

アルカリハライド結晶の 格子欠陥生成エネルギーの計算

遠 山 堯

I. 序

Bornがアルカリハライド結晶の格子エネルギーの計算を原子論的に行ない、¹⁾ 実験値と良く一致する結果を得た。アルカリハライド結晶の格子エネルギーが大きいにも拘らず、格子欠陥生成エネルギーが比較的少ないのは格子欠陥の作る電界によって結晶中に分極が生ずるためであることを、Jostが古典的誘電体理論によって示した。²⁾ 次に MottとLittletonがNaClとKClについて格子欠陥生成エネルギーの計算を原子論的に行なった。³⁾ 以後、各種イオン結晶について、格子欠陥生成エネルギー、格子欠陥の移動エネルギー、不純物イオンと格子欠陥との結合エネルギー等の計算が行なわれてきた。格子欠陥生成エネルギーの計算は、主としてNaCl, KClを中心に行なわれており、比較的、実験値に近い結果が得られているが、これに対し同一の計算法で計算の対象を広げると、例えばLiIについて計算した結果は実験値とあまり良く一致せず、従って前者についての良い結果は偶然得られたのではないかという疑問もある。⁴⁾ MottとLittleton以来殆どの計算は格子欠陥の最近接イオンについては、

-
- 1) M. Born and K. Huang *Dynamical Theory of Crystal Lattices* (Clarendon Press, Oxford, 1954)p.19-37.
 - 2) W. Jost *J. Chem. Phys.* 1(1933)466.
 - 3) N. F. Mott and M. J. Littleton *Trans Faraday Soc.* 34(1938)485.
 - 4) I. M. Boswarva and A. B. Lidiard *Phil. Mag.* 16(1967)805

Coulomb力, 双極子能率, 短距離力などによって原子論的にその平衡エネルギーを計算し, 他の部分については, 結晶格子点に誘起される双極子能率を誘電体理論によって導き, そのエネルギーを計算するという方法であるが, 原子論的取扱いを256個のイオンに拡張した計算がある。⁵⁾ この計算の結果, 原子論的取扱いを最近接の6個のイオンから256個のイオンまで拡大しても結果に殆ど差がなかったと結論しているが, 計算法がMottとLittleton方式と異なる点があるので他の計算と単純な比較はできない。

筆者らは高圧力下での格子欠陥の移動を伴う色中心の生成, 消滅の実験を行なった。⁶⁾ 高圧力下での格子欠陥の移動の解析を目標に, NaCl型アルカリハライド結晶のSchottky型格子欠陥の生成エネルギーの計算を行なってみた。⁷⁾ 計算法は従来のもので殆ど同様であるが, 原子論的取扱いの範囲を最近接イオンから拡大して行く過程でエネルギーがどのように変化するかを調べてみたので, その結果も併せて報告する。

II. 計算方法

結晶中から1個の陽イオンをとり出し, これを結晶の表面まで持つて行くのに要するエネルギーを E_{r1} とする。格子欠陥の周囲のイオンはCoulomb力, 斥力, Van der Waals力の平衡を失ない, 且つ格子欠陥の等価的負電荷による電界によって双極子能率が生じ, これらの相互作用エネルギーの和が最小になる様な新たな位置に緩和する。緩和前後のエネルギー差を E_{relax} とする。 E_{relax} は格子欠陥の付近のいくつかのイオンの変位および電子分極の関数であるエネルギーの最小値である。 E_{relax} を求めるための計算はかなり複雑なので次の様な近似をする。格子欠陥の近傍のイオンについてはその変位, 電子分極でエネルギーを表わし, このエネルギーを最小にする変位, 電子分極とこのときのエネルギーを求める, これを領域Iとする。分極が遠距離におよ

5) A. H. Scholz Phys. Status solidi 25 (1968) 285.

6) T. Toyama and M. Ishiguro Phys. Status solidi (b) 102 (1980) K45.

7) M. P. Tosi and M. Doyama Phys. Rev. 151 (1966) 642.

ぶことを考慮して、残りのイオンについては分極エネルギーの計算だけにする、これを領域Ⅱとする。領域Ⅱではイオンの変位はイオン分極で与えられるとし電子分極と同様エネルギーを最小にするための計算はしない。こうして得られた E_{r1} と E_{relax} の和は陽イオン欠陥を作るために要するエネルギー E_v^+ となる。陽イオン欠陥から充分離れたところから陰イオンをとり出すとして同様の計算で陰イオンをとり出すのに要するエネルギー E_v^- を求めるが、 E_v^+ と E_v^- の和がSchottky欠陥を作るのに要するエネルギー E_s となる。

以下の計算では格子欠陥およびイオンの電荷は素電荷 e を、イオン間距離は完全結晶の最近接イオン間距離 r_0 を、双極子能率は er_0 をそれぞれ単位として表わすことにする。格子欠陥、領域Ⅰのイオン、領域Ⅱのイオンをそれぞれ d , i , j の添字で表わすと

$$E_{r1} = \frac{1}{2} \left[\frac{e^2}{r_0} q_d \alpha_M - \left\{ \sum_i \phi_{di}(t_{di}) + \sum_j \phi_{dj}(t_{dj}) \right\} \right] \quad (1)$$

ここで q_d は欠陥の等価電荷、 α_M はMadelung定数、 t_{ki} は緩和する前の結晶格子の距離ベクトルを表わす。 β_{kl} , b , ρ をBorn型斥力ポテンシャルのPauling定数、強さ、硬さのパラメータ、 r_k , r_l をイオン半径、 c_{kl} をVan der Waalsの双極子—双極子相互作用エネルギーの係数とすると、イオン k , l 間の近距離力ポテンシアエネルギー ϕ_{kl} は斥力ポテンシャルと、Van der Waalsエネルギーの和として

$$\phi_{kl}(r_{kl}) = \beta_{kl} b \exp \left\{ (r_k + r_l - r_{kl} r_0) / \rho \right\} - \frac{c_{kl}}{(r_{kl} r_0)^6} \quad (2)$$

で与えられる。ここで $r_{kl} = t_{kl} + x_k - x_l$ とした。 x_k はイオン k の変位ベクトルである。なおVan der Waalsの双極子—四極子相互作用は無視した。

つぎに E_{relax} については領域Ⅰのイオンの電子分極ベクトルを m_k とし、領域Ⅰのイオン間のCoulomb、短距離力、電荷—双極子、双極子—双極子各相互作用の緩和前後のエネルギー差、欠陥の等価電荷とイオンの電荷および双極子相互作用の緩和前後のエネルギー差および各イオンの双極子自己エネルギー、領域Ⅰのイオンと領域Ⅱのイオンの間の短距離力および双極子—双

極子相互作用のエネルギーをまとめて

$$\begin{aligned}
 E_1 = & \frac{e^2}{r_0} \left\{ \frac{1}{2} \sum_i \sum_{i'} z_i z_{i'} (1/r_{ii'} - 1/t_{ii'}) \right. \\
 & - \sum_i \sum_{i'} z_i z_{i'} (1/s_{ii'} - 1/t_{ii'}) \\
 & + \sum_i \sum_{i'} z_i \left\{ \hat{m}_{ii'} \cdot (\hat{r}_{ii}' / r_{ii}^2 - \hat{s}_{ii}' / s_{ii}^2) \right\} \\
 & + \frac{1}{2} \sum_i \sum_{i'} \left\{ \hat{m}_{ii} \cdot \hat{m}_{ii}' - 3 (\hat{m}_{ii} \cdot \hat{r}_{ii}') (\hat{m}_{ii}' \cdot \hat{r}_{ii}') \right\} / r_{ii}^3 \\
 & + \frac{1}{2} r_0^3 \sum_i m_i^2 / \alpha_i \left. \right\} \\
 & + \frac{e^2}{r_0} \left\{ \sum_i q_a z_i (1/s_{ai} - 1/t_{ai}) + \sum_i q_a \hat{m}_i \cdot \hat{s}_{ai} / s_{ai}^2 \right\} \\
 & + \frac{1}{2} \sum_i \sum_{i'} \left\{ \phi_{ii}'(r_{ii}') - \phi_{ii}'(t_{ii}') \right\} \\
 & + \frac{e^2}{r_0} \sum_i \sum_j q_a (\hat{z}_i \hat{x}_j + \hat{m}_i) \cdot \left\{ M_{\pm}^i (\hat{t}_{aj} - 3 \hat{t}_{ji} (\hat{t}_{aj} \cdot \hat{t}_{ji}) / t_{aj}^2 t_{ji}^2) \right\} \\
 & + \sum_i \sum_j \left\{ \phi_{ij}(r_{ij}) - \phi_{ij}(s_{ij}) \right\} \quad . \quad (3)
 \end{aligned}$$

ここで $\mathbf{s}_{ki} = \mathbf{t}_{ki} - \mathbf{x}_i$ としイオンの電荷を z_k で表わしている。また α_k はイオンの電子分極率を表わす。 \sum の右肩の ' 記号で $i=i'$ の計算を除く事を表わしている。 \sum の右肩の (\pm) は領域 II のイオンの符号に応じて M_{\pm}^i 又は M_{\mp}^i を用いることを表わしている。

領域 II のイオンの分極エネルギーは

$$E_2 = -\frac{1}{2} \frac{e^2}{r_0} \sum_j q_a^2 \frac{M_{\pm}^j}{t_{aj}^4} \quad (4)$$

である。(3), (4) 式の M_{\pm}^i は ϵ を結晶の誘電率, α_+ , α_- を陽, 陰イオンの電子分極率, α をイオン分極率とすると

$$M_{\pm}^i = \frac{2}{4\pi} \left(1 - \frac{1}{\epsilon}\right) \frac{\alpha_{\pm} + \alpha}{\alpha_{\pm} + \alpha_{\mp} + 2\alpha} \quad , \quad (5)$$

$$\alpha = \frac{z^2 e^2}{4 \left\{ \phi''(r_0) + \frac{2}{r_0} \phi'(r_0) \right\}} \quad . \quad (6)$$

ここで $\phi(r)$ は近距離力ポテンシャルである。領域 II のイオンの変位はイオン分極によって与えられると考え(3)式の s_{ij} に含まれる x_j を次の式で与えた。

$$\hat{x}_j = \frac{2r_0^3}{4\pi} \left(1 - \frac{1}{\epsilon}\right) \frac{\alpha}{\alpha_+ + \alpha_- + 2\alpha} \frac{q_a \hat{t}_{aj}}{z_j t_{aj}^3} \quad (7)$$

同じイオンの電子分極 m_j^\pm は

$$\hat{m}_j^\pm = \frac{2r_0^3}{4\pi} \left(1 - \frac{1}{\epsilon}\right) \frac{\alpha^\pm}{\alpha_+ + \alpha_- + 2\alpha} \frac{q_a \hat{t}_{aj}}{t_{aj}^3} \quad (8)$$

(3)式の中の近距離力ポテンシャルの計算は各イオンの第二近接イオンまで計算しそれ以上離れているイオンについては無視した。以上述べたことより、 E_{relax} は二変数 x_i , m_i の関数 E_1 の最小値と E_2 の和ということになる。

Born 型斥力ポテンシャルの強さ、硬さのパラメータおよびイオン半径は Tosi と Fumi の文献から⁸⁾、Van der Waals エネルギーの係数は Mayer の文献から⁹⁾、電子分極率は Tessman らの値¹⁰⁾、誘電率は Højendahl の値を用いた¹¹⁾。任意の正の整数を n とするとき、緩和前の結晶で格子欠陥を中心として $\sqrt{n} \cdot r_0$ の半径で球面を描くとすべてのイオンの中心はこの球面上にある。 $n = 1, 2, 3$ のときの球面上にあるイオンをそれぞれ一般、二殻、三殻のイオンと称することにす。領域 I では同一殻のイオンの x_i , m_i は対称性から考えてすべて等しいとした。従って以後は添字 i で殻を表わすことにす。また x_i , m_i のベクトルの方向は欠陥と着目イオンを結ぶ線上にあり、向きは欠陥から遠ざかる方向を正とした。

III. 計算結果

領域 I を一般のみとした場合の緩和して平衡になったときの変位 \bar{x}_i , 電子分極 \bar{m}_i および E_s を測定値と共に表 1 にまとめた。ここで測定値とは Sch-

8) M. P. Tosi and F. G. Fumi J. Phys. Chem. Solids 25 (1964) 45.

9) J. E. Mayer J. Chem. Phys. I (1933) 270.

10) J. R. Tessman, A. H. Kahn and W. Shockley Phys. Rev. 93 (1953) 890.

11) K. Højendahl K. Danske Vidensk. Selskab 16 (1938) No. 2.

ottky 欠陥生成エネルギー E_s と結晶の融点 T_m (degreeK) との間の関係式¹²⁾
 $E_s = 2.14 \times 10^{-3} T_m$ (eV) から得られた値のことで、個々の結晶の実測値については文献 12), 13), を参照されたい。ここで個々の結晶の実測値を引用しなかった理由は、結晶によっては実測値の得られていないものがある反面、他のものでは実測値が多数あり、測定条件、測定法の違い等によって実測値に差が生じることが多く、この中から計算値に都合の良い値を参照する傾向を避けるためである。計算の結果と測定値を比較すると、±10%の範囲で測定値に合う結果が得られているのは NaCl, KCl 等 7 種である。アルカリイオンが大きくなるに従って計算結果の測定値に対する比が大きくなる。ハロゲンについては Cl イオンの場合が大きく Br, I イオンになるにつれて小さくなる。この傾向は Boswarva と Lidiard の計算結果と同じである。⁴⁾ 結局 LiI が最小で RbCl が最大となる。

領域 I のイオン数の少ない方が計算が容易であるが、最近接イオンの 6 個だけで良いのかどうかはまだ充分検討されていない。そこでここでは測定値に対する計算値の比が最小と最大のもの即ち LiI と RbCl について領域 I のイオンを一般から三殻まで拡大したときの x_i , m_i , E_v^+ , E_v^- , E_s の値を比べてみた。その結果を表 2 に示す。領域 I のイオンを一般に限ると、二殻のイオンは領域 II となり、その変位、電子分極は (7), (8) 式の x_j , m_j で、エネルギーは (4) 式で与えられる。領域 I を二殻まで拡大すると二殻のイオンの変位、電子分極は E_i を最小にする条件で得られる。この場合二殻のイオン同志の各相互作用および二殻のイオンと領域 II のイオンの双極子-双極子相互作用も計算に入ることになる。

IV. 考察

表 2 から RbCl の場合は領域 I を一般から三殻まで拡大しても E_s に殆ど

12) L. W. Barr and A. B. Lidiard *Physical Chemistry* ed. W. Jost (Academic Press 1970) Vol. 10 p. 176-177.

13) A. D. Franklin *Point Defects in Solids* ed. J. H. Crawford and L. M. Slifkin (Plenum Press 1972) Vol. 1. p. 76-77.

差が生じないことが解る。結晶中の格子欠陥の移動エネルギーの計算を念頭においてるのであるが、この計算は Schottky 格子欠陥生成エネルギーの計算よりも一尽繁雑であるから、できるだけ領域 I が狭くできる方が良い。この点で Rd Cl は他のものに比べて計算が容易であろう。

LiI の場合、領域 I を一殻から二殻に広げたときに E_{\ddagger} が大きく減少するが、 $E_{\bar{v}}$ の増加のため E_s としては殆ど差がない。領域 I を三殻に広げると $E_{\bar{v}}$ が大きく減少し、 E_{\ddagger} はあまり差がなく従って E_s が減少する。この事から Li⁺ イオンを領域 I に含める毎に E_{\ddagger} 又は $E_{\bar{v}}$ が減少することがわかる。この理由として、Li⁺ イオンと I⁻ イオンの半径の差が大きく、Li⁺ イオンは欠陥の影響よりも周囲の I⁻ イオンの影響を強く受けるためであろうと考えられる。Li⁺ イオン欠陥の場合の二殻の Li⁺ イオンの変位 x_2 が正になっていること、また I⁻ 欠陥の三殻の Li⁺ イオンの x_3 が三殻にしては大きいのはこの理由による、I⁻ イオンは逆に近傍の Li⁺ イオンの変位の影響を受けより大きく変位する。I⁻ イオン欠陥の場合の領域 I が二殻までの場合と三殻までの場合の x_2 がその例である。この結果 LiI の E_s は領域 I の拡大に伴って次第に減少することになり、十六殻までを領域 I に含めると発散して計算不能となるに至ったのであろう。⁵⁾ Li ハライド、特に LiI についてのこの様な測定値と計算値の不一致の原因として斥力ポテンシャルが軟かい、⁴⁾ 又はイオン間に重なり合⁵⁾ がないとして導かれた分極の関数が不適當などいろいろ原因が考えられているが、現在のところ何が原因かは明らかにされていない。表 1 と考え併せると、結晶中の格子欠陥の移動エネルギーの計算から Li ハライドは除外しておく方が無難な様に思われる。また欠陥生成エネルギーの計算結果が Li ハライドの次に低い Na ハライド、特に NaF, NaI について領域 I の拡大と E_s の関係を検討しておく必要がある。

なお参考のために今回の計算に用いた BASIC 言語によるプログラムを巻末に付す。このプログラムで計算可能な範囲は四殻までであるが、配列宣言の一部と電子分極を求める式の一部を修正すれば計算可能な範囲を拡大することができる。

表1. 領域Iが一般のみの場合の Schottky 欠陥生成エネルギーの計算値 E_s , 測定値 $E_{s,o}$ とその比

	欠陥の種類	\bar{x}_1	\bar{m}_1	$E_s(\text{eV})$	$E_{s,o}(\text{eV})$	$E_s/E_{s,o}$
LiF	+	0.110	-0.037	1.822	2.386	0.764
	-	0.137	0.001			
LiCl	+	0.076	-0.076	1.377	1.898	0.726
	-	0.130	0.0006			
LiBr	+	0.066	-0.088	1.266	1.755	0.721
	-	0.127	0.0005			
LiI	+	0.062	-0.099	0.876	1.539	0.569
	-	0.143	0.0003			
NaF	+	0.099	-0.028	2.335	2.707	0.863
	-	0.100	0.009			
NaCl	+	0.053	-0.071	2.368	2.296	1.031
	-	0.078	0.006			
NaBr	+	0.051	-0.081	2.084	2.200	0.947
	-	0.082	0.005			
NaI	+	0.049	-0.092	1.692	2.000	0.846
	-	0.091	0.004			
KF	+	0.094	-0.019	2.340	2.425	0.965
	-	0.078	0.032			
KCl	+	0.062	-0.051	2.404	2.245	1.071
	-	0.069	0.021			
KBr	+	0.052	-0.063	2.335	2.185	1.069
	-	0.065	0.018			
KI	+	0.046	-0.077	2.109	2.131	0.990
	-	0.067	0.015			
RbF	+	0.083	-0.017	2.339	2.211	1.058
	-	0.063	0.043			
RbCl	+	0.055	-0.047	2.478	2.119	1.169
	-	0.059	0.028			
RbBr	+	0.053	-0.056	2.316	2.044	1.133
	-	0.061	0.024			
RbI	+	0.044	-0.070	2.207	1.958	1.127
	-	0.058	0.020			

表2. 領域Iの拡大と変位 \bar{x}_i , 陽, 陰イオン欠陥生成エネルギー E_v および Schottky 欠陥生成エネルギー E_s の変化

LiI 領域Iの範囲	欠陥の 種類	\bar{x}_1	\bar{x}_2	\bar{x}_3	E_v	E_s
1	+	0.062			0.323	0.876
	-	0.143			0.553	
2	+	0.075	0.004		0.186	0.889
	-	0.079	-0.033		0.703	
3	+	0.074	0.013	0.016	0.178	0.610
	-	0.088	-0.045	0.048	0.432	

RbCl 領域Iの範囲	欠陥の 種類	\bar{x}_1	\bar{x}_2	\bar{x}_3	E_v	E_s
1	+	0.055			1.348	2.478
	-	0.059			1.130	
2	+	0.047	-0.026		1.147	2.454
	-	0.048	-0.028		1.307	
3	+	0.045	-0.016	0.004	1.156	2.444
	-	0.046	-0.021	0.002	1.298	

```

1000 REM ... SCHOTTKY DEF. ENERGY (NACL
TYPE)... FILE NAME... S. V
1010 PRINT "IN SUBSTANCE AND DATE"
1020 INPUT A$, B$: PRINT #, TAB(3); A$: TAB(
20); B$: PRINT #,
1030 DIM X(2, 40), Y(2, 40), Z(6, 40), X1(4),
Z1(4), M(4), J0(40), J1(4), A9(3, 40)
1040 DIM X8(40), X9(40), G3(4, 4), G4(4, 4),
G5(4), G6(4), O1(4), O2(4), O3(4), O4(4)
1050 DIM O0(4)
1060 PRINT " IN RADII OF P AND N IONS":
INPUT R1, R2
1070 PRINT " IN HARD., REP. AND R0": INPU
T B4, B5, R0
1080 LET B1=1. 25: LET B2=1: LET B3=. 75
1090 PRINT " IN V. D. W. CONST. ... ++, +-,
-- ... IN ERG": INPUT C1, C2, C3
1100 PRINT " IN POL. OF P AND N IONS": I
NPUT A2, A3: LET A5=4. 8032
1110 PRINT " IN DIE. CONST": INPUT A4
1120 LET F=(B5/B4)*(1/B4-2/R0)*EXP((R1+
R2-R0)/B4)-C2*30/(R0^8)
1130 LET C1=C1*3/A5: LET C2=C2*3/A5: LET
C3=C3*3/A5: LET A1=(A5^2)/(4*F)
1140 LET B5=B5*3/A5: LET B8=EXP(R1/B4): L
ET B9=EXP(R2/B4)
1150 LET K7=B1*B5*B8*B9: LET K8=B2*B5*B8
*B9: LET K9=B3*B5*B9*B9
1160 LET K1=A5*3/R0: LET K0=(1-1/A4)/(4*
PI*(A1+(A2+A3)/2)): LET K2=K1*K0
1170 PRINT #, "E*E/R0="; K1; "EV"
1180 PRINT #, "A="; A1
1190 LET M8=K2*(A1+A2): LET M9=K2*(A1+A3
): PRINT #, "M+="; M8, "M-="; M9: PRINT #,
1200 PRINT "P OR N VACANCY?": INPUT C$
1210 PRINT #, TAB(5); "("; C$; "-VACANCY)"
1220 LET S=1: IF C$="P" THEN LET S=-1
1230 PRINT " IN NO. OF SHELLS": INPUT Z9
1240 PRINT " IF USE DATA... IN 0, NOT... 1
": INPUT U8

```

```

1250 LET Q1=0:LET F=1
1260 FOR N=1 TO Z9
1270 IF U8=0 THEN GOTO 1300
1280 PRINT "IN COOR. FOR. .";N; ". . SHELL"
1290 LET B2=1:INPUT B1:GOTO 1330
1300 READ B1
1310 DATA 0,0
1320 IF B1>100 THEN LET U8=1:GOTO 1290
1330 LET B9=0:LET E=0
1340 LET B3=INT(N^(1/2))
1350 FOR L1=B3 TO -B3 STEP -1
1360 LET W1=INT((N-L1^2)^(1/2))
1370 FOR M1=W1 TO -W1 STEP -1
1380 LET W2=INT((N-L1^2-M1^2)^(1/2))
1390 FOR N1=W2 TO -W2 STEP -1
1400 IF L1^2+M1^2+N1^2<>N THEN GOTO 147
0
1410 LET E=E+1:LET Q1=Q1+1
1420 LET X(1,Q1)=L1:LET Y(1,Q1)=M1:LET
Z(1,Q1)=N1:LET X8(Q1)=B1:LET X9(Q1)=B2
1430 LET X(2,Q1)=L1*B1:LET Y(2,Q1)=M1*B
1:LET Z(2,Q1)=N1*B1:LET Z(6,Q1)=0
1440 LET A9(1,Q1)=L1*B2:LET A9(2,Q1)=M1
*B2:LET A9(3,Q1)=N1*B2:LET J0(Q1)=N
1450 LET B8=(L1+1)^2+(M1+1)^2+N1^2
1460 IF B8>B9 THEN LET B9=B8
1470 NEXT N1
1480 NEXT M1
1490 NEXT L1
1500 LET Z(6,F)=E:LET F=F+E
1510 NEXT N
1520 FOR I0=1 TO Z9
1530 FOR I1=1 TO Z9
1540 LET G3(I0,I1)=0:LET G4(I0,I1)=0:LE
T G5(I0)=0
1550 NEXT I1
1560 NEXT I0
1570 LET I0=0:LET G1=0:LET G2=0
1580 FOR E=1 TO Q1
1590 IF Z(6,E)=0 THEN GOTO 1610

```

```

1600 LET I0=I0+1:LET X1(I0)=X8(E):LET Z
1(I0)=Z(6,E):LET M(I0)=X9(E):LET J1(I0)=
J0(E)
1610 LET S1=(-1)^(X(1,E)+Y(1,E)+Z(1,E)+
(1+5)/2):LET I1=0
1620 FOR F=1 TO Q1
1630 IF Z(6,F)=0 THEN GOTO 1870
1640 LET I1=I1+1
1650 IF E=F THEN GOTO 1870
1660 LET S2=(-1)^(X(1,F)+Y(1,F)+Z(1,F)+
(1+5)/2):LET S3=S1*S2:LET S4=S1+S2
1670 IF S4>0 THEN LET C0=C1:LET B0=K7:G
OTO 1700
1680 IF S4=0 THEN LET C0=C2:LET B0=K8:G
OTO 1700
1690 LET C0=C3:LET B0=K9
1700 LET L2=X(1,F)-X(1,E):LET M2=Y(1,F)
-Y(1,E):LET N2=Z(1,F)-Z(1,E)
1710 LET L3=X(2,F)-X(2,E):LET M3=Y(2,F)
-Y(2,E):LET N3=Z(2,F)-Z(2,E)
1720 LET T0=(L2^2+M2^2+N2^2)^(1/2):LET
T1=((L2+L3)^2+(M2+M3)^2+(N2+N3)^2)^(1/2)
1730 LET T2=((L2-X(2,E))^2+(M2-Y(2,E))^
2+(N2-Z(2,E))^2)^(1/2)
1740 LET T3=((L2+X(2,F))^2+(M2+Y(2,F))^
2+(N2+Z(2,F))^2)^(1/2)
1750 LET H0=(1/T1+1/T0-2/T3)*K1*S3:LET
G1=G1+(H0/2)*Z(6,F)
1760 LET H0=(B0*EXP(-T1*R0/B4)-C0/((T1*
R0)^6))
1770 LET H1=(B0*EXP(-T0*R0/B4)-C0/((T0*
R0)^6)):LET G2=G2+(H0-H1)*Z(6,F)/2
1780 LET H0=(A9(1,E)*(L2+L3)+A9(2,E)*(M
2+M3)+A9(3,E)*(N2+N3))*S2*K1/(T1^3)
1790 LET D0=A9(1,E)*(L2-X(2,E))+A9(2,E)
*(M2-Y(2,E))+A9(3,E)*(N2-Z(2,E))
1800 LET H1=D0*S2*K1/(T2^3)
1810 LET G3(I0,I1)=G3(I0,I1)+H0-H1
1820 LET D1=A9(1,E)*(L2+L3)+A9(2,E)*(M2
+M3)+A9(3,E)*(N2+N3)

```

```

1830 LET H0=3*D1*(A9(1, F))*(L2+L3)+A9(2,
F)*(M2+M3)+A9(3, F)*(N2+N3)
1840 LET H1=(A9(1, E)*A9(1, F)+A9(2, E)*A9
(2, F)+A9(3, E)*A9(3, F))
1850 LET H2=H0*K1/(T1^5)-H1*K1/(T1^3)
1860 LET G4(I0, I1)=G4(I0, I1)-H2/2
1870 NEXT F
1880 LET L1=X(1, E)+X(2, E):LET M1=Y(1, E)
+Y(2, E):LET N1=Z(1, E)+Z(2, E)
1890 LET T1=(L1^2+M1^2+N1^2)^(1/2)
1900 LET T2=(X(1, E)^2+Y(1, E)^2+Z(1, E)^2
)^(1/2)
1910 LET G1=G1+(1/T1-1/T2)*K1*S*51
1920 LET H0=-(A9(1, E)*L1+A9(2, E)*M1+A9(
3, E)*N1)*S*K1/(T1^3)
1930 LET G5(I0)=G5(I0)+H0
1940 NEXT E
1950 LET N=B9^(1/2):LET B3=INT(N)
1960 FOR L1=-B3 TO B3
1970 LET W1=INT((B9-L1^2)^(1/2))
1980 FOR M1=-W1 TO W1
1990 LET W2=INT((B9-L1^2-M1^2)^(1/2))
2000 FOR N1=-W2 TO W2
2010 LET D1=L1^2+M1^2+N1^2:IF D1<=29 TH
EN GOTO 2210
2020 LET S1=(-1)^(L1+M1+N1+(1+S)/2)
2030 FOR F=1 TO Q1
2040 IF Z(6, F)=0 THEN GOTO 2190
2050 LET L2=X(1, F)-L1:LET M2=Y(1, F)-M1:
LET N2=Z(1, F)-N1
2060 LET T0=(L2^2+M2^2+N2^2)^(1/2)
2070 IF T0>2 THEN GOTO 2190
2080 LET S2=(-1)^(X(1, F)+Y(1, F)+Z(1, F)+
(1+S)/2):LET S3=S1*S2:LET S4=S1+S2
2090 IF S4>0 THEN LET C0=C1:LET B0=K7:G
OTO 2120
2100 IF S4=0 THEN LET C0=C2:LET B0=K8:G
OTO 2120
2110 LET C0=C3:LET B0=K9
2120 LET R1=S*S1*A1*K0/(D1^(3/2))

```

```

2130 LET L3=L2+X(2,F)-L1*R1:LET M3=M2+Y
(2,F)-M1*R1:LET N3=N2+Z(2,F)-N1*R1
2140 LET T1=(L3^2+M3^2+N3^2)^(1/2)
2150 LET L2=L2-L1*R1:LET M2=M2-M1*R1:LE
T N2=N2-N1*R1
2160 LET T2=(L2^2+M2^2+N2^2)^(1/2)
2170 LET H1=B0*EXP(-T1*R0/B4)-C0/((T1*R
0)^6)
2180 LET H2=B0*EXP(-T2*R0/B4)-C0/((T2*R
0)^6):LET G2=G2+(H1-H2)*Z(6,F)
2190 NEXT F
2200 PRINT L1, M1, N1
2210 NEXT N1
2220 NEXT M1
2230 NEXT L1
2240 LET M1=M8*(1-5)/2+M9*(1+5)/2
2250 LET M2=M9*(1-5)/2+M8*(1+5)/2
2260 LET G6(1)=(0.98265-1.14371*SGN(Z9-
1)+0.18708*INT(Z9/4))*M1
2270 LET G6(1)=G6(1)+(0.19401-0.21465*I
NT(Z9/3))*M2
2280 LET G6(2)=(0.1744*SGN(Z9-1)-0.1429
6*INT(Z9/4))*M1
2290 LET G6(2)=G6(2)+(0.51618*SGN(Z9-1)
-0.54209*INT(Z9/3))*M2
2300 LET G6(3)=(0.19159*INT(Z9/3)-0.176
1*INT(Z9/4))*M1+0.42521*INT(Z9/3)*M2
2310 LET G6(4)=0.38079*INT(Z9/4)*M1+0.8
4519*INT(Z9/4)*M2
2320 FOR I1=1 TO Z9
2330 LET M(I1)=M(I1)*(J1(I1)^(1/2))
2340 LET A0=A3*(1+(-1)^((1-5)/2+I1))/2+
A2*(1+(-1)^((1+5)/2+I1))/2
2350 LET O1(I1)=G5(I1)/(M(I1)*Z1(I1))+G
6(I1)*2*S+G3(I1, I1)/M(I1)
2360 LET O2(I1)=K1*(R0^3)/A0+2*G4(I1, I
1)/(M(I1)^2):LET O3(I1)=-O1(I1)/O2(I1)
2370 NEXT I1
2380 LET H0=0:LET H1=0
2390 FOR I1=1 TO Z9

```

```
2400 FOR I0=1 TO Z9
2405 IF I0=I1 THEN GOTO 2420
2410 LET H0=H0+(G4(I0, I1)/M(I1)+G3(I0, I
1))*O3(I0)/M(I0)
2420 NEXT I0
2430 LET O0(I1)=O1(I1)+H0
2440 LET O4(I1)=-O0(I1)/O2(I1):LET H0=0
2450 LET H1=H1+(O4(I1)-O3(I1))^2
2480 LET O3(I1)=O4(I1)
2490 NEXT I1
2500 IF H1>I1*1E-8 THEN GOTO 2380
2510 LET H1=0:LET H2=0:LET H3=0
2520 FOR I1=1 TO Z9:LET H0=0
2530 FOR I0=1 TO Z9
2540 LET H0=H0+G3(I0, I1)*O3(I0)/M(I0)+G
4(I0, I1)*O3(I0)*O3(I1)/(M(I0)*M(I1))
2550 NEXT I0
2560 LET A0=A3*(1+(-1)^((1-5)/2+I1))/2+
A2*(1+(-1)^((1+5)/2+I1))/2
2570 LET H1=H1+G6(I1)*(X1(I1)*((-1)^(I1
+(1+5)/2)))*Z1(I1)*5
2575 LET H3=H3+G6(I1)*(O3(I1)/(J1(I1)^(
1/2)))*Z1(I1)*5
2580 LET H2=H2+K1*(R0^3)*(O3(I1)^2)*Z1(
I1)/(2*A0)
2590 LET H2=H2+G5(I1)*O3(I1)/M(I1)+H0*Z
1(I1)
2600 PRINT #, I1, X1(I1), O3(I1)/(J1(I1)^(
1/2))
2620 NEXT I1
2630 LET H4=G1+G2+(H1+H3)*2+H2
2640 PRINT #, "E0="; H4; "EV"
2650 PRINT #, "G1="; G1; "G2="; G2
2655 PRINT #, "H1="; H1; "H2="; H2
2656 PRINT #, "H3="; H3:PRINT #,
2660 IF U8=0 THEN GOTO 1250
2670 PRINT "IF CHANGE 5 IN 0, NOT 1"
2680 INPUT U9:IF U9=0 THEN GOTO 1200
2690 GOTO 1250
2700 END
```