

MÔ PHỎNG CẤU TRÚC CỦA VẬT LIỆU ALUMINOSILICATE

Mai Văn Dũng^{1,3*}, Nguyễn Mạnh Tuấn¹, Lê Thế Vinh²

¹ Viện Khoa học Vật liệu Ứng dụng - TP Hồ Chí Minh

² Trường Đại học Tôn Đức Thắng

³ Trường Đại học Thủ Dầu Một

Ngày nhận bài: 20-01-2018; ngày nhận bài sửa: 24-6-2018; ngày duyệt đăng: 21-9-2018

TÓM TẮT

Cấu trúc của vật liệu aluminosilicate đã được nghiên cứu bằng phương pháp mô phỏng động lực học phân tử. Các đặc trưng cấu trúc của vật liệu được phân tích thông qua phân bố O-simplex và T-simplex. Bên cạnh đó, các đặc trưng khác như hàm phân bố xuyên tâm và phân bố số phối trí ở các áp suất khác nhau cũng được xem xét và thảo luận, các kết quả nghiên cứu được so sánh với số liệu mô phỏng và thực nghiệm trước đây.

Từ khóa: aluminosilicate, động lực học phân tử, vật liệu; vi cấu trúc.

ABSTRACT

Structural simulation of aluminosilicate

Microstructure of aluminosilicate are investigated by molecular dynamics simulation. The local structural characteristics are analysed through the distribution O-simplex and T-simplex. Besides, other features as the pair radial distribution functions and coordination number distributions are also discussed. Results of this study are compared with previous simulation and experimental results.

Keywords: aluminosilicate; molecular dynamics; materials; microstructure.

1. Giới thiệu

Hỗn hợp của silica với các ôxít MgO, Al₂O₃, Na₂O... đã được nghiên cứu trong thời gian dài và được sử dụng nhiều trong các lĩnh vực kỹ thuật [1]-[3]. Aluminosilicate là thành phần cơ bản của cao lanh và các khoáng chất đất sét, thành phần nguyên tử gồm Al, Si, O. Aluminosilicate đã được nghiên cứu bằng nhiều kỹ thuật thực nghiệm khác nhau như phổ cộng hưởng từ hạt nhân, phổ hồng ngoại, phổ Raman và phổ tán xạ tia X [4]. Các nghiên cứu này chủ yếu tập trung phân tích số nguyên tử oxy bao quanh các nguyên tử Al và nguyên tử Si. Trong các nghiên cứu [5], [6] với mô hình Al₂O₃.2SiO₂ chứa 1408 và 3025 nguyên tử, các nhóm tác giả và cộng sự đã khảo sát ảnh hưởng của nhiệt độ đến cấu trúc của vật liệu. Kết quả cho thấy, trong vật liệu hầu hết là các cấu trúc tứ diện và khoảng cách trung bình giữa các cặp nguyên tử tương ứng là $r_{Si-O} = 1,605 \text{ \AA}$, $r_{Al-O} = 1,66 \text{ \AA}$, $r_{Al-Al} = 3,13 \text{ \AA}$ và $r_{Si-Si} = 3,12 \text{ \AA}$. Các kết quả tìm được phù hợp với các kết quả nghiên cứu thực nghiệm trước đó. Cũng với mô hình vật liệu Al₂O₃.2SiO₂ trong công trình [7], nhóm tác giả xây dựng mô hình gồm 1100 nguyên tử ở nhiệt độ 3000 K, áp suất thay đổi theo các giá trị 0 GPa, 3 GPa, 5

* Email: maivandung79tdm@gmail.com

GPa, 7 GPa, 9 GPa, 11 GPa, 13 GPa, 15 GPa và 20 GPa. Kết quả thu được chỉ ra rằng, độ cao cực đại thứ nhất của các cặp Si-Si, Si-O và O-Al lần lượt là $g_{Si-Si}(r)=4,84 \text{ \AA}$ tại giá trị $r=3,18 \text{ \AA}$, $g_{Si-O}(r)=14,12 \text{ \AA}$ tại giá trị $r=1,58 \text{ \AA}$ và $g_{O-Al}(r)=7,84 \text{ \AA}$ tại $r=1,64 \text{ \AA}$.

Kết quả nghiên cứu trong công trình [8] cho thấy, cấu trúc của vật liệu aluminosilicate chủ yếu là các đơn vị cấu trúc TO_n và OT_m (T= Al, Si; n=3, 4, 5, 6; m=2, 3, 4, 5). Ở áp suất thấp, cấu trúc của vật liệu chủ yếu là SiO_4 , AlO_3 , AlO_4 và AlO_5 . Khi áp suất tăng các đơn vị cấu trúc SiO_4 , AlO_3 và AlO_4 giảm trong khi các đơn vị cấu trúc SiO_5 , SiO_6 và AlO_5 , AlO_6 tăng lên. Các kết quả nghiên cứu này hoàn toàn phù hợp với các nghiên cứu mô phỏng và thực nghiệm trước đó. Cùng với hướng nghiên cứu này, các kết quả nghiên cứu trong bài báo [9] cho thấy phân bố không gian của các đơn vị cấu trúc TO_x trong vật liệu không phụ thuộc vào áp suất. Bên cạnh đó, nghiên cứu cũng chỉ ra rằng kích thước của các miền với pha TO_5 tăng đến giá trị cực đại trong khoảng áp suất 10- 15 GPa.

Cấu trúc của vật liệu aluminosilicate được quan tâm nhiều trong cả lý thuyết và thực nghiệm. Tuy nhiên, cho đến nay, sự thay đổi cấu trúc, cũng như sự phân bố các O- simplex và T- simplex dưới điều kiện nén đang là vấn đề còn nhiều tranh luận. Trong nghiên cứu này, chúng tôi làm rõ cấu trúc của vật liệu aluminosilicate khi áp suất thay đổi từ 0-30 GPa ở nhiệt độ 2000 K qua phân tích sự phân bố các O- simplex và T- simplex. Bên cạnh đó các đặc trưng cấu trúc như hàm phân bố xuyên tâm và phân bố số phối trí cũng được xem xét và phân tích một cách chi tiết.

2. Phương pháp nghiên cứu

Mô hình vật liệu $Al_2O_3.2SiO_2$ gồm 2090 nguyên tử (380 nguyên tử Si, 380 nguyên tử Al và 1330 nguyên tử O) được xây dựng bằng phương pháp mô phỏng động lực học phân tử với điều kiện biên tuần hoàn và thế tương tác Born-Mayer,

$$U_{ij} = \frac{q_i q_j}{r_{ij}} + A_{ij} \exp(-B_{ij} r_{ij}) \quad (1)$$

với $i, j=Al, Si, O$, r là khoảng cách tương tác, các hệ số thế A_{ij} và B_{ij} như Bảng 1. Trong cấu hình ban đầu, các nguyên tử được gieo ngẫu nhiên với nhiệt độ 7000 K, sau 50.000 bước mô phỏng hệ được đưa về trạng thái cân bằng ở nhiệt độ 2000 K. Từ trạng thái ổn định ở 0 GPa, hệ được nén ở các áp suất 5 GPa, 10 GPa, 15 GPa, 20 GPa, 25 GPa và 30 GPa sau 50.000 bước. Để tăng tính thống kê của phép đo, số liệu tính toán của các thông số đặc trưng được lấy trung bình của 1000 lần tính với 5 bước mô phỏng được xác định một lần.

Phương pháp simplex được xác định là các quả cầu đi qua 4 nguyên tử bất kì bao gồm:

(i) Voi-simplex (VS) là quả cầu đi qua 4 nguyên tử mà trong quả cầu đó không có bất kì nguyên tử nào (Hình 1a);

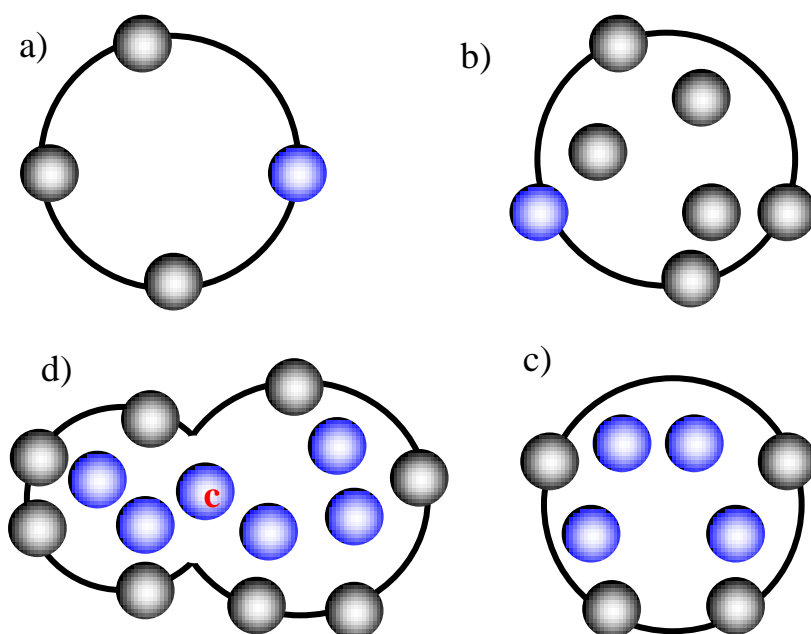
(ii) Oxy-simplex (OS) là các quả cầu đi qua 4 nguyên tử mà trong đó chỉ chứa các nguyên tử Oxy (Hình 1b);

(iii) Cation-simplex (CS) hay T- simplex là các quả cầu đi qua 4 nguyên tử mà trong đó chỉ chứa các cation (Hình 1c);

(iv) Simplex-cluster được xác định là các cation-simplex có chung một hoặc nhiều hơn một cation, khi đó có thể xem như chúng có một liên kết. Như vậy, một simplex-cluster sẽ bao gồm hai hoặc nhiều hơn 2 simplex dính vào nhau tạo ra các cluster (Hình 1d).

Trong nghiên cứu này, chúng tôi chỉ xét hai loại simplex là Oxy-simplex (OS) và Cation-simplex (CS) hay T- simplex.

Việc tính toán các simplex được thực hiện như sau: (i) xác định tất cả các O- simplex và các T- simplex có trong mô hình, (ii) loại bỏ một số simplex nhận được bằng cách: Nếu hai simplex có số nguyên tử khác nhau, nhưng các nguyên tử của simplex thứ nhất bao gồm tất cả các nguyên tử của simplex thứ hai thì loại bỏ simplex thứ hai. Trong trường hợp số nguyên tử ở hai simplex giống nhau thì loại bỏ simplex có bán kính lớn hơn.



Hình 1. Hình ảnh các loại simplex với VS (a), OS (b), CS (c), CSC (d)

Bảng 1. Các hệ số thể tương tác và điện tích của các ion được sử dụng trong mô hình [12]

| Các cặp | Hệ số A (eV) | Hệ số B (\AA^{-1}) | Ion | Điện tích (q_i, q_j) |
|---------|-----------------|----------------------------------|-----|-----------------------------|
| Al-Al | 0 | 0 | Al | +3 |
| Al-O | 1779 | 3.4483 | | |
| O-O | 1500 | 3.4483 | Si | +4 |
| Si-Si | 0 | 0 | | |
| Si-O | 1729 | 3.4483 | O | -2 |
| Si-Al | 0 | 0 | | |

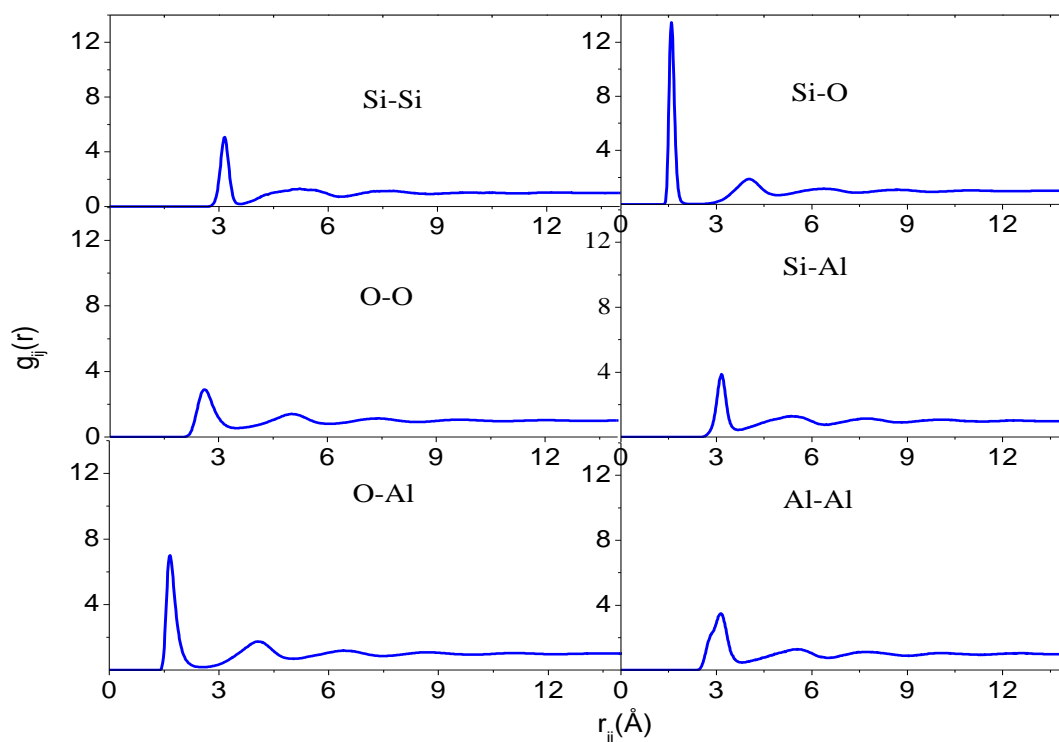
3. Kết quả và thảo luận

3.1. Phân tích hàm phân bố xuyên tâm và số phối trí

Bảng 2 và Hình 2 cho thấy khi áp suất tăng, độ dài liên kết của các cặp liên kết giữa các nguyên tử O-O và Al-Al giảm, trong khi đó độ dài liên kết của các cặp Si-O và O-Al tăng. Độ dài liên kết giữa các nguyên tử trong cặp Si-Si giảm khi áp suất tăng từ 0-5 GPa và giá trị này không đổi khi áp suất tăng từ 5-30 GPa.

Bảng 2. Vị trí đỉnh thứ nhất của hàm phân bố xuyên tâm ở các áp suất khác nhau

| P,GPa | Si-Si (Å) | Si-O (Å) | O-O (Å) | Si-Al (Å) | O-Al (Å) | Al-Al (Å) |
|-------|--------------|-------------|------------|--------------|-------------|--------------|
| 0 | 3,16 | 1,58 | 2,60 | 3,16 | 1,66 | 3,14 |
| 5 | 3,14 | 1,58 | 2,62 | 3,16 | 1,68 | 3,14 |
| 10 | 3,14 | 1,58 | 2,60 | 3,14 | 1,68 | 3,10 |
| 15 | 3,14 | 1,60 | 2,58 | 3,14 | 1,70 | 3,10 |
| 20 | 3,14 | 1,60 | 2,58 | 3,14 | 1,70 | 3,04 |
| 25 | 3,14 | 1,60 | 2,56 | 3,10 | 1,72 | 3,08 |
| 30 | 3,14 | 1,60 | 2,58 | 3,12 | 1,72 | 3,04 |



Hình 2. Hàm phân bố xuyên tâm cặp của aluminosilicate ở các áp suất 0 GPa

Giá trị độ dài liên kết của các cặp Si-Si và Si-O ở áp suất thấp có giá trị tương ứng 3,16 Å và 1,58 Å. Kết quả này phù hợp với số liệu trong nghiên cứu [8] tương ứng là 3,16 Å và 1,58 Å. Khi áp suất tăng từ 5-30 GPa độ dài liên kết của cặp Si-O có giá trị 1,60 Å kết quả này phù hợp với kết quả nghiên cứu [5] là 1,60 Å.

Kết quả Bảng 3 cho thấy độ cao đỉnh thứ nhất của hàm phân bố xuyên tâm của hệ

aluminosilicate đều giảm khi áp suất tăng. Trong đó độ cao của đỉnh thứ nhất của hàm phân bố xuyên tâm của các cặp liên kết Si-Si, O-Al và Al-Al có giá trị nhỏ nhất tại các giá trị áp suất 25 GPa, 30 GPa và 15 GPa. Điều này có nghĩa là, dưới điều kiện nén trật tự cấu trúc của hệ giảm đi.

Bảng 3. Độ cao đỉnh thứ nhất của hàm phân bố xuyên tâm ở các áp suất khác nhau

| P, GPa | Si-Si (Å) | Si-O (Å) | O-O (Å) | Si-Al (Å) | O-Al (Å) | Al-Al (Å) |
|--------|--------------|-------------|------------|--------------|-------------|--------------|
| 0 | 5,07 | 13,46 | 2,90 | 3,89 | 7,00 | 3,50 |
| 5 | 4,69 | 11,77 | 2,77 | 3,70 | 6,25 | 3,32 |
| 10 | 4,15 | 9,91 | 2,57 | 3,60 | 5,55 | 3,27 |
| 15 | 3,85 | 8,61 | 2,51 | 3,37 | 5,07 | 3,06 |
| 20 | 3,86 | 7,84 | 2,47 | 3,20 | 4,79 | 3,25 |
| 25 | 3,66 | 7,52 | 2,46 | 3,19 | 4,63 | 3,23 |
| 30 | 3,82 | 7,48 | 2,44 | 3,14 | 4,65 | 3,29 |

Số liệu về số phối trí của các cặp liên kết được trình bày trong Bảng 4. Kết quả cho thấy rằng ở áp suất thấp, hầu hết các nguyên tử Si được bao quanh bởi 4 nguyên tử O để hình thành đơn vị cấu trúc SiO_4 khoảng 94,8%. Trong khi đó, có 5 và 6 nguyên tử O bao quanh 1 nguyên tử Si để hình thành các đơn vị cấu trúc SiO_5 và SiO_6 là không đáng kể. Kết quả này phù hợp với số liệu trong công trình [9]. Khi áp suất tăng trong mô hình bao gồm các đơn vị cấu trúc SiO_4 , SiO_5 và SiO_6 . Trong đó, tỉ lệ SiO_4 giảm, trong khi tỉ lệ SiO_5 và SiO_6 tăng. Điều này có nghĩa là, khi áp suất tăng, có sự biến đổi cấu trúc từ SiO_4 sang cấu trúc SiO_5 và SiO_6 .

Đối với cặp Al-O ở áp suất thấp, hầu hết các nguyên tử Al được bao quanh bởi 3 nguyên tử O, 4 nguyên tử O và 5 nguyên tử O để hình thành các đơn vị cấu trúc tương ứng AlO_3 , AlO_4 và AlO_5 . Trong đó, đơn vị cấu trúc AlO_4 chiếm tỉ lệ lớn nhất khoảng 69,5%. Kết quả này có thể so sánh được với kết quả nghiên cứu [8]. Khi áp suất tăng tỉ lệ AlO_4 giảm, trong khi đó tỉ lệ AlO_5 và AlO_6 tăng. Ở áp suất 25 GPa, tỉ lệ của các đơn vị cấu trúc AlO_4 , AlO_5 và AlO_6 tương ứng là 24,5 %, 52,7 % và 20,9 %. Điều này cũng cho thấy rằng, khi áp suất tăng có sự biến đổi cấu trúc từ đơn vị cấu trúc AlO_4 sang các đơn vị cấu trúc AlO_5 và AlO_6 .

Cũng trong Bảng 4 cho thấy, số phối trí của cặp liên kết O-Si ở áp suất thấp chủ yếu có 1, 2 và 3 nguyên tử Si bao quanh 1 nguyên tử O. Trong đó, bao quanh 1 nguyên tử O có 2 nguyên tử Si chiếm tỉ lệ lớn nhất khoảng 48,9 %. Khi áp suất tăng, số lượng có 1 và 2 nguyên tử Si bao quanh 1 nguyên tử O giảm, trong khi số lượng có 3 nguyên tử Si bao quanh 1 nguyên tử O tăng và một lượng không đáng kể có 4 nguyên tử Si bao quanh 1 nguyên tử O.

Đối với cặp O-Al ở áp suất thấp có 1, 2, 3 và 4 nguyên tử Al bao quanh một nguyên

từ O và một lượng rất nhỏ có 5 nguyên tử Al bao quanh 1 nguyên tử O. Trong đó, bao quanh 1 nguyên tử O có 2 nguyên tử Al chiếm tỉ lệ lớn nhất khoảng 36,4 %. Khi áp suất tăng, bao quanh 1 nguyên tử O có 1 và 2 nguyên tử Si giảm, trong khi bao quanh 1 nguyên tử O có 3, 4 và 5 nguyên tử Si tăng.

Như vậy, sự tồn tại của các liên kết OT_n ($T= Si, Al; n=2, 3, 4, 5$) sẽ tạo nên các vùng giàu Si và Al. Đây là nguồn gốc gây ra sự không đồng nhất trong thành phần của vật liệu.

Bảng 4. Số phối trí của các cặp liên kết ở các áp suất khác nhau

| P, GPa | Si-O | | | Al-O | | | | |
|--------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|
| | 4 | 5 | 6 | 3 | 4 | 5 | 6 | 7 |
| 0 | 0,948 | 0,051 | 0,001 | 0,116 | 0,695 | 0,180 | 0,010 | 0,000 |
| 5 | 0,838 | 0,157 | 0,005 | 0,059 | 0,638 | 0,275 | 0,029 | 0,000 |
| 10 | 0,712 | 0,274 | 0,014 | 0,018 | 0,497 | 0,419 | 0,064 | 0,002 |
| 15 | 0,579 | 0,366 | 0,055 | 0,007 | 0,381 | 0,474 | 0,132 | 0,007 |
| 20 | 0,459 | 0,445 | 0,096 | 0,004 | 0,293 | 0,525 | 0,169 | 0,010 |
| 25 | 0,427 | 0,453 | 0,120 | 0,004 | 0,245 | 0,527 | 0,209 | 0,015 |
| 30 | 0,398 | 0,483 | 0,119 | 0,003 | 0,291 | 0,487 | 0,202 | 0,017 |

| P, GPa | O-Si | | | | O-Al | | | | |
|--------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|
| | 1 | 2 | 3 | 4 | 1 | 2 | 3 | 4 | 5 |
| 0 | 0,177 | 0,489 | 0,334 | 0,000 | 0,299 | 0,364 | 0,215 | 0,116 | 0,006 |
| 5 | 0,162 | 0,490 | 0,343 | 0,005 | 0,279 | 0,355 | 0,238 | 0,121 | 0,007 |
| 10 | 0,139 | 0,503 | 0,347 | 0,011 | 0,248 | 0,352 | 0,271 | 0,112 | 0,016 |
| 15 | 0,131 | 0,479 | 0,371 | 0,019 | 0,229 | 0,337 | 0,297 | 0,120 | 0,017 |
| 20 | 0,132 | 0,440 | 0,398 | 0,030 | 0,225 | 0,325 | 0,297 | 0,135 | 0,018 |
| 25 | 0,127 | 0,434 | 0,409 | 0,030 | 0,208 | 0,334 | 0,306 | 0,129 | 0,023 |
| 30 | 0,130 | 0,429 | 0,402 | 0,039 | 0,217 | 0,330 | 0,298 | 0,135 | 0,020 |

3.2. Phân tích phân bố O- simplex và T- simplex

Phân bố số O- simplex và phân bố bán kính của các O- simplex được trình bày trong Bảng 5. Kết quả cho thấy rằng số O- simplex có số nguyên tử O nhỏ hơn 4 tăng khi áp suất tăng. Trong khi đó, các O- simplex có số nguyên tử O lớn hơn 4 giảm khi áp suất tăng. Trong đó, số O- simplex có 4 nguyên tử O chiếm tỉ lệ lớn nhất khoảng 38,1% ở áp suất 25 GPa. Điều này có nghĩa là, dưới điều kiện nén, sự đồng đặc của chất lỏng là do giảm số lượng các O- simplex lớn. Mặt khác, ở áp suất 0 GPa số O- simplex có từ 3 – 5 nguyên tử O chiếm tỉ lệ khoảng 72,4%. Trong khi giá trị này ở áp suất 30 GPa có khoảng 85,9 %. Điều này cho thấy, phân bố không gian của nguyên tử O là đồng nhất. Kết quả này phù hợp với kết quả nghiên cứu [10].

Phân bố bán kính của các O- simplex trong Bảng 5 cũng cho thấy rằng bán kính của các O- simplex giảm khi áp suất tăng. Điều này cũng cho thấy, dưới điều kiện nén, sự đồng đặc của chất lỏng chủ yếu do các O- simplex bị co lại.

Bảng 5. Phân bố O- simplex

Trong đó N_s , M_s và R_s lần lượt là số nguyên tử, số O -simplex và bán kính của O -simplex

| Ns | 0 GPa | | 5 GPa | | 10 GPa | | 15 GPa | | 20 GPa | | 25 GPa | | 30 GPa | |
|----|-------|---------------------------|-------|---------------------------|--------|---------------------------|--------|---------------------------|--------|---------------------------|--------|---------------------------|--------|---------------------------|
| | M_s | R_s (Å^0) | M_s | R_s (Å^0) | M_s | R_s (Å^0) | M_s | R_s (Å^0) | M_s | R_s (Å^0) | M_s | R_s (Å^0) | M_s | R_s (Å^0) |
| 2 | 42 | 2,10 | 48 | 1,98 | 70 | 1,92 | 56 | 1,94 | 72 | 1,90 | 63 | 1,89 | 81 | 1,88 |
| 3 | 573 | 2,24 | 571 | 2,16 | 722 | 2,08 | 833 | 2,03 | 851 | 2,00 | 909 | 2,00 | 829 | 1,98 |
| 4 | 1110 | 2,48 | 1173 | 2,38 | 1149 | 2,28 | 1246 | 2,21 | 1315 | 2,17 | 1320 | 2,16 | 1317 | 2,16 |
| 5 | 921 | 2,71 | 972 | 2,59 | 896 | 2,48 | 838 | 2,40 | 759 | 2,36 | 761 | 2,33 | 804 | 2,33 |
| 6 | 548 | 2,88 | 496 | 2,77 | 426 | 2,64 | 353 | 2,54 | 346 | 2,54 | 291 | 2,49 | 290 | 2,48 |
| 7 | 260 | 3,07 | 179 | 2,95 | 175 | 2,84 | 111 | 2,71 | 102 | 2,71 | 91 | 2,62 | 85 | 2,64 |
| 8 | 99 | 3,23 | 75 | 3,16 | 57 | 2,93 | 33 | 2,82 | 27 | 2,79 | 24 | 2,79 | 21 | 2,72 |
| 9 | 31 | 3,38 | 19 | 3,25 | 11 | 3,16 | 12 | 3,02 | 3 | 3,01 | 5 | 2,93 | 8 | 2,82 |
| 10 | 12 | 3,58 | 2 | 3,42 | 1 | 3,26 | 4 | 3,03 | - | - | 1 | 2,96 | - | - |
| 11 | 3 | 4,17 | - | - | 5 | 3,28 | - | - | - | - | - | - | - | - |

Phân bố số T -simplex và phân bố bán kính của các T -simplex được trình bày trong Bảng 6. Kết quả cho thấy rằng các T -simplex có chứa 1, 11 và 12 nguyên tử T (Si và Al) ở các áp suất 5 GPa, 10 GPa, 20 GPa, 25 GPa và 30 GPa cũng như các T -simplex có chứa 1, 11 và 20 nguyên tử T ở các áp suất 0 GPa và 15 GPa chiếm tỉ lệ lớn. Điều này cho thấy rằng, ứng mỗi giá trị của áp suất sự phân bố của các nguyên tử T là không đồng nhất. Đây là nguyên nhân làm cho phân bố không gian, cũng như cấu trúc không gian của vật liệu là không đồng nhất.

Phân bố bán kính của các T -simplex trong Bảng 6 cũng cho thấy bán kính của các T -simplex giảm khi áp suất tăng từ 0- 30 GPa. Điều này cho thấy dưới điều kiện nén, sự đồng đặc của chất lỏng chủ yếu do các T -simplex bị co lại.

Bảng 6. Phân bố T -simplex
Trong đó N_s , M_s và R_s lần lượt là số nguyên tử, số T -simplex và bán kính của T -simplex

| Ns | 0 GPa | | 5 GPa | | 10 GPa | | 15 GPa | | 20 GPa | | 25 GPa | | 30 GPa | |
|----|-------|---------------------------|-------|---------------------------|--------|---------------------------|--------|---------------------------|--------|---------------------------|--------|---------------------------|--------|---------------------------|
| | M_s | R_s (Å^0) | M_s | R_s (Å^0) | M_s | R_s (Å^0) | M_s | R_s (Å^0) | M_s | R_s (Å^0) | M_s | R_s (Å^0) | M_s | R_s (Å^0) |
| 1 | 234 | 2,08 | 223 | 2,07 | 225 | 1,97 | 214 | 1,87 | 228 | 1,84 | 213 | 1,85 | 223 | 1,84 |
| 2 | 16 | 2,26 | 21 | 2,09 | 18 | 2,04 | 19 | 2,04 | 16 | 1,96 | 23 | 1,90 | 19 | 1,92 |
| 10 | 44 | 2,17 | 42 | 2,03 | 46 | 1,96 | 57 | 1,91 | 55 | 1,91 | 45 | 1,89 | 48 | 1,83 |
| 11 | 137 | 2,09 | 150 | 2,05 | 142 | 1,95 | 157 | 1,90 | 154 | 1,86 | 162 | 1,83 | 162 | 1,87 |
| 12 | 0 | 0,00 | 238 | 1,94 | 259 | 1,83 | 1 | 1,84 | 226 | 1,78 | 230 | 1,81 | 252 | 1,80 |
| 20 | 224 | 2,01 | 1 | 2,29 | 2 | 2,12 | 231 | 1,80 | 3 | 2,06 | 1 | 2,20 | 1 | 2,33 |
| 30 | 8 | 2,26 | 5 | 2,21 | 1 | 1,92 | 4 | 2,12 | 2 | 1,89 | 2 | 1,81 | 6 | 2,03 |

4. Kết luận

Có 7 mô hình vật liệu đã được xây dựng với áp suất khác nhau với hàm phân bố xuyên tâm phù hợp với số liệu thực nghiệm và tính toán trước đây, những mô hình này có thể sử dụng để nghiên cứu các tính chất vật lý khác của hệ vật liệu.

Kết quả nghiên cứu cho thấy, số phối trí của tất cả các cặp đều tăng khi áp suất tăng. Có xu hướng chuyển pha từ cấu trúc TO_5 sang TO_6 . Độ dài liên kết của các cặp thay đổi, độ cao đỉnh thứ nhất giảm. Ở áp suất thấp trong mô hình chủ yếu tồn tại dạng tứ diện, trong khi ở áp suất cao tỉ lệ tứ diện giảm mạnh và tỉ lệ bát diện tăng lên đáng kể.

Tồn tại một số lượng lớn O-simplex trong mô hình. Phân bố bán kính của các O-simplex có giá trị từ 1,88 Å đến 4,17 Å, trong khi đó phân bố bán kính của T-simplex có giá trị từ 1,80 Å đến 2,26 Å. Sự đông đặc của chất lỏng do số lượng O-simplex lớn giảm, cùng với sự co lại của các T-simplex và O-simplex trong vật liệu.

❖ **Tuyên bố về quyền lợi:** Các tác giả xác nhận hoàn toàn không có xung đột về quyền lợi.

TÀI LIỆU THAM KHẢO

- [1] C. A. Angell, "Formation of glasses from liquids and biopolymers," *Science* **267**, pp. 1924-1935, 1995.
- [2] S. Sampath, C. J. Benmore, K. M. Lantzky, et al., "Intermediate-range order in permanently densified GeO_2 glass," *Phys. Rev. Lett* **90**, pp.115502-1-115502-4, 2003.
- [3] B. O. Mysen, D. Virgo, and F. A. Seifert, "The structure of silicate melts: implications for chemical and physical properties of natural magma," *Rev. Geophys* **20**, pp.353-383, 1982.
- [4] M. Okuno, N. Zotov, M. Schmücker, et al., "Structure of $SiO_2-Al_2O_3$ glasses: Combined X-ray diffraction, IR and Raman studies," *J. NonCryst. Solids* **351**, pp.1032-1038, 2005.
- [5] A. Winkler, J. Horbach, W. Kob, et al., "Structure and diffusion in amorphous aluminum silicate A molecular dynamics computer simulation," *J. Chem. Physic* **120**, pp.384-393, 2004.
- [6] V. V. Hoang, N. N. Linh and N. H. Hung, "Structure and dynamics of liquid and amorphous $Al_2O_3.2SiO_2$," *Eur. Phys. J. Appl. Phys* **37**, pp.111-118, 2007.
- [7] Nguyễn Văn Hồng, Nguyễn Thu Nhân và Phạm Khắc Hùng, "Sự phụ thuộc cấu trúc của hệ $Al_2O_3.2SiO_2$ lỏng vào áp suất," *Tạp chí Khoa học và công nghệ các trường đại học kỹ thuật*, số **60**, 2007.
- [8] M. T. Lan, N. V. Yen, N. V. Hong, et al., "Visualisation-based analysis of structure and dynamics of liquid aluminosilicate under compression," *Phys. Chem. Liq* **55**, pp.62-84, 2017.
- [9] N. V. Hong, N. V. Yen, M. T. Lan, et al., "Coordination and polyamorphism of aluminium silicate under high pressure: insight from analysis and visualization of molecular dynamics data," *Can. J. Phys* **92**, pp.1573-1580, 2014.
- [10] P. K. Hung, L. T. Vinh, T. B. Van, et al., "Insight into dynamics and microstructure of aluminum-silicate melts from molecular dynamics simulation," *J. NonCryst. Solids* **462**, pp.1-9, 2017.
- [11] D. K. Belashchenko, "Computer simulation of the structure and properties of non-crystalline oxides," *Russ. Chem. Rev* **66**, pp.733-762, 1997.
- [12] V. V. Hoang, "Dynamical heterogeneity and diffusion in high-density $Al_2O_3.2SiO_2$ melts," *Physica B* **400**, pp.278-286, 2007.