

ĐẠI HỌC THÁI NGUYÊN
TRƯỜNG ĐẠI HỌC SƯ PHẠM

TRẦN VĂN HỒNG

**MÔ PHỎNG CẤU TRÚC VÀ ĐỘNG HỌC CỦA HỆ
SILICA LÔNG VỚI MÔ HÌNH KÍCH THƯỚC LỚN**

LUẬN VĂN THẠC SĨ VẬT LÝ

THÁI NGUYÊN - 2019

ĐẠI HỌC THÁI NGUYÊN
TRƯỜNG ĐẠI HỌC SƯ PHẠM

TRẦN VĂN HỒNG

**MÔ PHỎNG CẤU TRÚC VÀ ĐỘNG HỌC CỦA HỆ
SILICA LỎNG VỚI MÔ HÌNH KÍCH THƯỚC LỚN**

Ngành: Vật lý chất rắn

Mã ngành: 8.44.01.04

LUẬN VĂN THẠC SĨ VẬT LÝ

**Người hướng dẫn khoa học: 1. TS Nguyễn Thị Thanh Hà
2. PGS.TS Phạm Hữu Kiên**

THÁI NGUYÊN - 2019

LỜI CAM ĐOAN

Tôi xin cam đoan đây là đề tài riêng của tôi, do chính tôi thực hiện dưới sự hướng dẫn của TS. Nguyễn Thị Thanh Hà, PGS.TS Phạm Hữu Kiên và trên cơ sở nghiên cứu các tài liệu tham khảo. Đề tài này không trùng với kết quả của tác giả khác đã công bố. Nếu sai tôi hoàn toàn chịu trách nhiệm trước hội đồng.

Thái Nguyên, tháng 6 năm 2019

Học viên

Trần Văn Hồng

LỜI CẢM ƠN

Trong quá trình thực hiện luận văn này, tôi đã nhận được sự giúp đỡ, chỉ bảo tận tình của thầy cô, bạn bè và đồng nghiệp.

Tôi xin bày tỏ lòng biết ơn sâu sắc đến TS. Nguyễn Thị Thanh Hà, PGS.TS Phạm Hữu Kiên, những người thầy trực tiếp chỉ bảo, hướng dẫn và cung cấp tài liệu để tôi có thể hoàn thành luận văn này.

Tôi xin gửi lời cảm ơn chân thành tới thầy cô giảng dạy lớp cao học Vật lý K25 và phòng Sau đại học Trường Đại học Sư phạm Thái Nguyên đã tận tình chỉ bảo và giúp đỡ tôi tìm tòi kiến thức.

Cuối cùng chúng tôi xin gửi lời cảm ơn chân thành tới thầy cô giáo Bộ môn Vật lý - Tin học Trường Đại học Bách khoa Hà Nội đã tạo điều kiện thuận lợi cho tôi về mọi mặt trong suốt quá trình tôi thực hiện luận văn này.

Thái Nguyên, ngày 08 tháng 6 năm 2019

Tác giả

Trần Văn Hồng

MỤC LỤC

LỜI CAM ĐOAN	i
LỜI CẢM ƠN	i
MỤC LỤC.....	iii
DANH MỤC CÁC KÝ HIỆU VÀ CHỮ VIẾT TẮT	iv
DANH MỤC CÁC BẢNG BIỂU, HÌNH VẼ, ĐỒ THỊ.....	v
MỞ ĐẦU	1
1. Lý do chọn đề tài	1
2. Mục đích đề tài	2
3. Đối tượng nghiên cứu và nhiệm vụ nghiên cứu	2
4. Phương pháp nghiên cứu	2
5. Cấu trúc của luận văn	2
Chương 1: TỔNG QUAN	3
1.1. Tổng quan về các hệ ôxít.....	3
1.2. Hệ silica	5
1.2.1. Đặc trưng vi cấu trúc của hệ silica	5
1.2.2. Đặc trưng động học của hệ silica.....	7
1.3. Mô phỏng hệ silica dưới điều kiện nén áp suất	9
Chương 2: PHƯƠNG PHÁP TÍNH TOÁN	12
2.1. Xây dựng mô hình động lực học phân tử	12
2.2. Thế tương tác đối với hệ SiO ₂	15
2.3. Phương pháp gần đúng Ewald-Hansen	17
2.4. Xác định các đặc trưng vi cấu trúc	19
2.4.1. Hàm phân bố xuyên tâm.....	20
2.4.2. Xác định số phối trí và độ dài liên kết.....	23
2.4.3. Xác định phân bố góc	23
2.4.4. Trực quan hóa dữ liệu các đơn vị cấu trúc	24
2.5. Phương pháp khảo sát động học trong hệ SiO ₂ lỏng.....	24
Chương 3: KẾT QUẢ VÀ THẢO LUẬN	26
3.1. Khảo sát cấu trúc SiO ₂ lỏng theo áp suất	26
3.2. Khảo sát động học trong hệ SiO ₂	40
KẾT LUẬN	45
CÔNG TRÌNH ĐÃ CÔNG BỐ LIÊN QUAN ĐẾN LUẬN VĂN	46
TÀI LIỆU THAM KHẢO	47

DANH MỤC CÁC KÝ HIỆU VÀ CHỮ VIẾT TẮT

Chữ viết tắt	Chữ viết đầy đủ
BKS	Van Beets-Kramer-Van Santen
DCBPTB	Dịch chuyển bình phương trung bình
DH	Tính không đồng nhất động học
DLHPT	Động lực học phân tử
ĐVCT	Đơn vị cấu trúc
ĐVPT	Đơn vị phối trí
HPBXT	Hàm phân bố xuyên tâm
MD	Mô phỏng động lực phân tử
NBO	Ôxy không cầu
PBG	Phân bố góc
SPT	Số phối trí

DANH MỤC CÁC BẢNG BIỂU, HÌNH VẼ, ĐỒ THỊ

Bảng 2.1.	Các hệ số trong thế BKS đối với hệ SiO_2	16
Bảng 2.2.	Biểu diễn cách tính toán gần đúng Ewald –Hansen trong không gian 2 chiều có tâm $n(0,0)$	17
Hình 2.1.	Dạng đồ thị của thế BKS: (1) tương tác O-O; (2) dạng hiệu chỉnh của tương tác O-O; (3) tương tác Si-O và (4) dạng hiệu chỉnh đối với tương tác Si-O.....	16
Hình 2.2.	Mô tả 5 ĐVPT cấu thành mạng SiO_2 lỏng SiO_4	24
Hình 3.1.	Ảnh 3D mô tả cấu trúc của hệ SiO_2 lỏng ở 3500 K, áp suất phòng. Ở đây, quả cầu màu đỏ là nguyên tử Si; quả cầu màu xám là nguyên tử O	27
Hình 3.2.	Hàm phân bố xuyên tâm đối với cặp Si-Si của SiO_2 lỏng ở nhiệt độ 3500 K, tại các áp suất khác nhau	28
Hình 3.3.	Hàm phân bố xuyên tâm đối với cặp Si-O của SiO_2 lỏng ở nhiệt độ 3500 K, tại các áp suất khác nhau	28
Hình 3.4.	Hàm phân bố xuyên tâm đối với cặp O-O của SiO_2 lỏng ở nhiệt độ 3500 K tại các áp suất khác nhau	29
Hình 3.5.	Phân bố góc liên kết riêng phần Si-O-Si trong ĐVPT OSi_2 trong SiO_2 lỏng ở nhiệt độ 3500 K và tại áp suất khác nhau	30
Hình 3.6.	Phân bố góc liên kết riêng phần Si-O-Si trong ĐVPT OSi_3 trong SiO_2 lỏng ở nhiệt độ 3500 K và tại áp suất khác nhau	30
Hình 3.7.	Phân bố góc liên kết riêng phần O-Si-O trong ĐVPT SiO_4 trong SiO_2 lỏng ở nhiệt độ 3500 K và tại áp suất khác nhau	31
Hình 3.8.	Phân bố góc liên kết riêng phần O-Si-O trong ĐVPT SiO_5 của SiO_2 lỏng ở nhiệt độ 3500 K và áp suất khác nhau	32
Hình 3.9.	Phân bố góc liên kết riêng phần O-Si-O trong ĐVPT SiO_6 của SiO_2 lỏng ở nhiệt độ 3500 K và áp suất khác nhau	32
Hình 3.10.	Phân bố góc liên kết tổng cộng Si-O-Si của SiO_2 lỏng ở nhiệt độ 3500 K và áp suất khác nhau	33

Hình 3.11.	Phân bố góc liên kết tổng cộng O-Si-O của SiO ₂ lỏng ở nhiệt độ 3500 K theo áp suất.....	34
Hình 3.12.	Phân bố tỉ phần ĐVPT SiO ₄ ; SiO ₅ ; SiO ₆ và SiO _x (x>4) của SiO ₂ lỏng ở 3500K theo áp suất.....	35
Hình 3.13.	Phân bố tỉ phần ĐVPT OSi ₂ và OSi ₃ của SiO ₂ lỏng ở 3500 K theo áp suất.....	36
Hình 3.14.	Số phối trí trung bình của nguyên tử Si trong SiO ₂ lỏng ở 3500K theo áp suất.....	37
Hình 3.15.	Số phối trí trung bình của nguyên tử O trong SiO ₂ lỏng ở 3500 K theo áp suất.....	38
Hình 3.16.	Ảnh chụp phân bố đơn vị phối trí SiO _x trong mẫu ở nhiệt 3500 K tại áp suất phòng: A) phân bố đơn vị phối trí SiO ₄ ; B) phân bố đơn vị phối trí SiO ₅ ; C) phân bố đơn vị phối trí SiO ₆	39
Hình 3.17.	Khoảng cách dịch chuyển bình phương trung bình của nguyên tử Si của SiO ₂ lỏng ở 3500 K tại các áp suất khác nhau.....	42
Hình 3.18.	Khoảng cách dịch chuyển bình phương trung bình của nguyên tử O của SiO ₂ lỏng ở 3500 K tại các áp suất khác nhau.....	42
Hình 3.19.	Hệ số khuếch tán của nguyên tử Si, O theo áp suất trong SiO ₂ lỏng	43
Hình 3.20.	Hình vẽ minh họa các vùng có thể xảy ra phản ứng cho các trường hợp A) vùng mật độ cao; B) vùng mật độ thấp: vòng tròn màu xanh và màu đỏ biểu diễn nguyên tử mà ở vùng đó phản ứng xảy ra với tần số thấp và tần số cao. Vùng còn lại là vùng không có bất kỳ phản ứng xảy ra. Khi nhiệt độ tăng, các phản ứng mở rộng trên nhiều nguyên tử và phân bố đồng nhất hơn.....	43

MỞ ĐẦU

1. Lý do chọn đề tài

Vật liệu ôxít đã được biết đến là vật liệu phổ biến, có nhiều ứng dụng trong khoa học và công nghệ, chẳng hạn như trong điện tử, y học, quang học, siêu dẫn, cơ khí và công nghiệp chế tạo máy. Sự hiểu biết về cấu trúc, các tính chất vật lý đặc trưng và cơ chế động học ở mức nguyên tử của loại vật liệu này dưới tác động của nhiệt độ, áp suất đặc biệt là rất cần thiết. Vì cấu trúc địa phương của vật liệu ôxít được nghiên cứu khá chi tiết, nhưng hiểu biết về cơ chế khuếch tán và một số hiện tượng động học vẫn còn hạn chế. Một trong những nội dung đó là khuếch tán dị thường, sự thay đổi các tính chất động học xảy ra gần nhiệt độ chuyển pha, tính không đồng nhất động học hay tính đa thù hình. Nhiều công trình nghiên cứu bằng cả thực nghiệm, lý thuyết và mô phỏng đã được tiến hành, cố gắng giải thích cơ chế ở mức nguyên tử của các hiện tượng nêu trên nhưng vẫn chưa thành công.

Bên cạnh đó, Silica (SiO_2) là một trong những ôxít có nhiều ứng dụng quan trọng và là đối tượng của nhiều nghiên cứu nhằm giải quyết một số vấn đề còn bỏ ngỏ được đề cập ở trên. Nhiều nghiên cứu mô phỏng đã được tiến hành, tuy nhiên kích thước mô hình vẫn còn hạn chế do điều kiện của công nghệ tính toán, đặc biệt đối với điều kiện ở Việt Nam. Điều này khiến chúng tôi lựa chọn hướng nghiên cứu cấu trúc và động học trong SiO_2 lỏng với mô hình kích thước lớn (chứa 19.998 nguyên tử) để bổ sung thêm những thông tin về cấu trúc và tính chất động học của ôxít lỏng và khảo sát ảnh hưởng hiệu ứng kích thước lên các kết quả đã nhận được trong các nghiên cứu gần đây với các mô hình nhỏ cỡ 1998 và 5400 nguyên tử. Đề tài đã được thực hiện tại phòng tính toán tốc độ cao Trường Đại học Sư phạm - Đại học Thái Nguyên và Bộ môn Vật lý tin học, Viện Vật lý - Trường Đại học Bách Khoa Hà Nội.

2. Mục đích đề tài

Đề tài nhằm thực hiện các mục đích cụ thể sau:

- Xây dựng mẫu ôxít SiO_2 lỏng với kích thước 19998 nguyên tử (6666 Si và 13332 O) ở nhiệt độ 3500 K. Các đặc trưng cấu trúc của các mẫu vật liệu được phân tích thông qua hàm phân bố xuyên tâm (HPBXT) thành phần, phân bố số phối trí (SPT) và phân bố góc liên kết.

- Nghiên cứu tính chất động học của ôxít SiO_2 lỏng theo áp suất ở 3500 K.

3. Đối tượng nghiên cứu và nhiệm vụ nghiên cứu

- Hệ silica (SiO_2) lỏng ở nhiệt độ 3500 K, trong khoảng áp suất từ 0 GPa đến 45 GPa.

- Tìm hiểu các phương pháp mô phỏng hệ ôxít SiO_2 . Xây dựng các mẫu ôxít SiO_2 lỏng với kích thước 19998 nguyên tử (6666 Si và 13332 O) ở nhiệt độ 3500 K. Sau đó tạo các mẫu SiO_2 lỏng trong dải áp suất từ 0 đến 45 GPa.

- Khảo sát đặc trưng cấu trúc, tính đa thù hình của hệ SiO_2 .

- Nghiên cứu tính chất động học của SiO_2 lỏng theo áp suất.

4. Phương pháp nghiên cứu

Đề tài sử dụng phương pháp mô phỏng ĐLHPT, phương pháp phân tích cấu trúc vật liệu, trực quan hóa 3 chiều bằng phần mềm Matlab.

5. Cấu trúc của luận văn

Cấu trúc đề tài gồm phần mở đầu, nội dung chứa 3 chương và phần kết luận, trong đó: Chương 1 trình bày tổng quan về tình hình nghiên cứu cấu trúc và các tính chất động học đối với các vật liệu ôxít. Tiếp theo trình bày các phương pháp mô phỏng; Chương 2 trình bày cách xây dựng mẫu ôxít SiO_2 ở 3500 K trong dải áp suất từ 0 đến 45 GPa. Phương pháp xác định vi cấu trúc, xác định đặc trưng động học và phương pháp trực quan hóa các dữ liệu đối với mô hình đã xây dựng cũng được trình bày trong chương 2; Chương 3 trình bày các kết quả và thảo luận các kết quả nghiên cứu.