

MÔ PHỎNG VI CẤU TRÚC HỆ $(Al_2O_3)_x(SiO_2)_{1-x}$

Hoàng Văn Huệ

Đại học Công nghiệp thực phẩm TP.HCM

TÓM TẮT

Hỗn hợp oxit $(Al_2O_3).2(SiO_2)$ [AS2] là vật liệu cơ bản trong công nghệ gốm sứ, lọc hóa dầu và là thành phần cơ bản của vỏ trái đất, nhưng hiện nay các thông tin về hệ oxit này vẫn chưa được nghiên cứu đầy đủ. Bằng phương pháp MD và phương pháp phân tích về vi cấu trúc của $(Al_2O_3).2(SiO_2)$ trong khoảng nhiệt độ 350K - 5000K và áp suất từ 0 - 25Gpa cho thấy: liên kết Si-O và O-Al tăng. Các đơn vị cấu trúc SiO_4 , AlO_3 , AlO_4 giảm; cấu trúc SiO_5 , SiO_6 , AlO_5 , AlO_6 , AlO_7 tăng. Khi nhiệt độ tăng, độ dài của các cặp liên kết giảm, tuy nhiên tại 5000K độ dài liên kết Al - Al tăng trở lại. Các đơn vị cấu trúc chủ yếu là SiO_4 , SiO_3 , AlO_3 , AlO_4 và AlO_5 hầu như không phụ thuộc nhiệt độ.

Từ khóa: $(Al_2O_3).2(SiO_2)$; MD; vi cấu trúc; cặp liên kết.

1. ĐẶT VẤN ĐỀ

Hợp chất AS2 gồm hai loại oxit nhôm và oxit silic, trong tự nhiên có thể tìm thấy với tên gọi là zeolit và kaolin. Đây là các vật liệu rây phân tử ngày càng đóng vai trò quan trọng trong xúc tác công nghiệp, đặc biệt là zeolit. Nó càng ngày càng thay thế vị trí các loại xúc tác trước đây, vì thế đã thu hút được sự chú ý của nhiều nhà khoa học trên thế giới.

Zeolit là một loại vô cơ được tìm thấy trong tự nhiên (khoảng 40 cấu trúc zeolit khác nhau và một số được tổng hợp từ nhiều nguyên liệu khác nhau như đi từ Si, Al riêng lẻ, cao lanh (200 loại zeolit tổng hợp) chúng được ứng dụng rộng rãi trong nhiều lĩnh vực khoa học cũng như công nghiệp với vai trò chính là chất xúc tác, chất hấp phụ và trao đổi ion. Chúng còn được sử dụng để tách và làm sạch khí, tách ion phóng xạ từ các chất thải phóng xạ và đặc biệt là xúc tác cho nhiều quá trình chuyển hoá hydrocarbon. Chính nhờ những

đặc tính nổi trội của nó so với các loại xúc tác khác như: bề mặt riêng lớn, có thể điều chỉnh được lực axit và nồng độ tâm axit, cấu trúc tinh thể xốp với kích thước mao quản đồng đều phù hợp với nhiều loại phân tử có kích cỡ từ 5Å^0 - 12Å^0 và khả năng biến tính tốt. Do đó, zeolit được đánh giá là loại xúc tác có độ bền, hoạt tính và chọn lọc cao. Việc tìm ra zeolit tự nhiên và tổng hợp được chúng đã tạo nên bước ngoặt lớn trong công nghiệp hoá học, đặc biệt trong ngành dầu khí. Sự ứng dụng zeolit làm tăng cả về số lượng và chất lượng của sản phẩm dầu khí. Zeolit chiếm khoảng 95% tổng lượng xúc tác trong lọc và hoá dầu, có nhiều ứng dụng trong công nghiệp, trong đời sống [7].

Trong tinh thể zeolit, các tứ diện SiO_4 và AlO_4 liên kết với nhau qua nguyên tử oxy. Không gian bên trong tinh thể gồm các hốc nhỏ được nối với nhau bằng các đường rãnh có kích thước ổn định. Nhờ hệ thống lỗ xốp và các đường rãnh mà zeolit

có thể hấp phụ những phân tử có kích thước nhỏ hơn kích thước lỗ và đẩy ra những phân tử có kích thước lớn hơn.

Thông thường người ta điều chế zeolit nhân tạo từ gel được đun trong autoclav chứa các hợp chất nhôm, silic; một loại dung môi; chất khoáng hóa và một tác nhân định hình cấu trúc (SDA). Tính chất của gel, các điều kiện phản ứng và kích thước của tác nhân SDA là những yếu tố quan trọng giúp zeolit có được những kích thước lỗ xốp (đặc biệt là loại lỗ vi xốp) mà người ta mong muốn. Trước đây, dựa trên cơ sở thực nghiệm ta có thể để điều chế zeolit nhân tạo với các kích thước lỗ xốp theo yêu cầu. Dựa trên các thành tựu mới của khoa học kỹ thuật người ta đã thiết kế và tổng hợp được các tác nhân SDA mới, nhờ đó tạo ra nhiều cấu trúc tinh thể zeolit mới với các tính chất ưu việt. Việc tạo ra các zeolit nhân tạo đang được áp dụng ngày càng rộng rãi. Một số loại zeolit có những tính chất rất độc đáo (ví dụ: khi làm nóng lên nó sẽ co lại...) sẽ là đối tượng nghiên cứu của các nhà khoa học để tìm ra các ứng dụng mới (điều chỉnh độ dài sóng của tia laser, chế tạo các linh kiện điện tử cực nhỏ v.v...) [1, 5].

Đã có nhiều công trình nghiên cứu về

Bảng 1: Các thông số của thế BKS hiệu chỉnh cho hệ $(Al_2O_3)_x(SiO_2)_{1-x}$

Cặp nguyên tử	$A_{\alpha\beta}$ (eV)	$B_{\alpha\beta}$ (Å^{-1})	$C_{\alpha\beta}$ (eV Å^6)	Điện tích (e)
O-O	1388.7730	2.76	175.0	$q_{Al} = +3e$
Si-O	18003.7572	4.87318	133.5381	$q_O = -2e$
Al-O	8566.5434	4.66222	73.0913	$q_{Si} = +4e$

Mô hình đầu tiên của hệ nhận được bằng cách gieo ngẫu nhiên các nguyên tử trong không gian mô phỏng. Cấu hình này được nung nóng tới nhiệt độ 8000K và được duy trì ở nhiệt độ này trong hơn 65000 bước thời gian mô phỏng nhằm phá vỡ các điều kiện ngẫu nhiên ban đầu (với bước thời gian mô phỏng là 0.4776 fs). Sau đó mô hình được làm nguội dần sau 25000

AS2 trên nhiều phương diện khác nhau [2, 3, 8, 9] nhưng vẫn chưa cung cấp đầy đủ thông tin về vi cấu trúc và các tính chất vật lý của hệ như số phối trí, độ dài liên kết, "tricluster"... của hệ AS2 trong điều kiện áp suất và nhiệt độ thay đổi với giá trị lớn. Bài báo sẽ cung cấp thêm các thông tin chi tiết về sự ảnh hưởng của áp suất và nhiệt độ đến vi cấu trúc và tính chất khuếch tán thông qua việc phân tích độ dài liên kết T-O, T-T, phân bố góc T-O-T, O-T-O (T đại diện cho Al và Si), hệ số khuếch tán của các nguyên tử Al, Si, O, bằng phương pháp mô phỏng động lực học phân tử (ĐLHPT).

2. PHƯƠNG PHÁP TÍNH TOÁN

Mô hình AS2 được tạo từ 1650 nguyên tử, bao gồm 300 nguyên tử Si, 300 nguyên tử Al và 1050 nguyên tử O với thể tương tác BKS (van Beest, Kramer and van Santen) có dạng sau:

$$\Phi_{\alpha\beta}(r) = \frac{q_{\alpha}q_{\beta}e^2}{r} + A_{\alpha\beta} \exp(-B_{\alpha\beta}r) - \frac{C_{\alpha\beta}}{r^6} \quad (1)$$

với $\alpha, \beta = \text{Si, Al, O}$ và r là khoảng cách giữa một ion loại α và một ion loại β . Các giá trị của các thông số $\{A_{\alpha\beta}, B_{\alpha\beta}, C_{\alpha\beta}\}$ được tính toán bằng phương pháp *ab initio* với các giá trị chỉ ra trong bảng 1. [4]

bước và đưa về trạng thái cân bằng ở nhiệt độ 2500K, áp suất là 0GPa, mật độ $2,537\text{g/cm}^3$, kích thước mẫu là $27,97\text{Å}$. Khi trạng thái cân bằng được thiết lập, hệ được chạy thêm 25000 bước để đưa về các áp suất 5GPa, 10GPa, 15GPa, 20GPa, 25GPa (mỗi mẫu ở áp suất khác nhau đều được ổn định ở 25000 bước). Kết quả thu được 6 mẫu ở cùng nhiệt độ 2500K nhưng

có áp suất khác nhau, lần lượt là 0GPa, 5GPa, 10GPa, 15GPa, 20GPa, 25GPa. Từ dữ liệu ở mẫu mô hình AS2 cân bằng ở nhiệt độ 2500K và áp suất 0GPa, tiếp tục tạo thêm 6 mẫu ở áp suất không đổi là 0GPa, nhưng nhiệt độ thay đổi từ 300K, 1000K, 2000K, 3000K, 4000K, 5000K.

Mỗi mẫu mới được ổn định sau 50000 bước. Kết quả thu được 12 mẫu của hệ AS2 ở những trạng thái khác nhau. Khi các mô hình vật liệu đạt được trạng thái ổn định, tiến hành xác định vi cấu trúc của hệ. Số liệu thu được từ các mẫu được đưa vào tính toán, phân tích.

3. KẾT QUẢ VÀ BÀN LUẬN

3.1. Khảo sát ảnh hưởng của áp suất đến vi cấu trúc của hệ

Kết quả độ dài liên kết r_{ij} (Å) thu được thể hiện trong bảng 1.

Bảng 1. Độ dài liên kết r_{ij} (Å) của hàm phân bố xuyên tâm (HPBXT) của hệ AS2 ở các áp suất khác nhau.

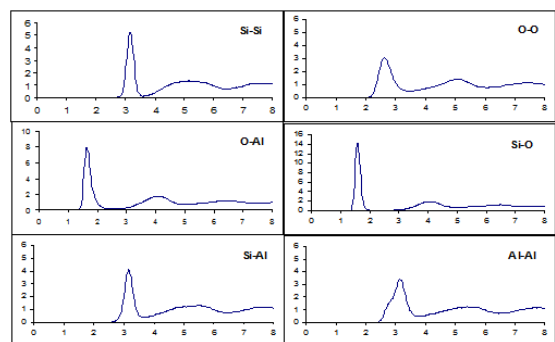
P(GPa)	r_{ij} (Å)					
	Si-Si	Si-O	O-O	Si-Al	O-Al	Al-Al
0	3.16	1.60	2.63	3.16	1.65	3.14
5	3.15	1.59	2.62	3.14	1.66	3.11
10	3.15	1.61	2.54	3.12	1.69	3.06
15	3.14	1.63	2.54	3.12	1.72	3.04
20	3.14	1.64	2.50	3.06	1.72	3.00
25	3.14	1.64	2.48	3.08	1.75	3.02

Từ bảng 1 cho thấy: khi áp suất tăng, độ dài các cặp liên kết trong các hệ đều giảm, ngoại trừ cặp liên kết Si-O và O-Al tăng lên. Khi áp suất tăng từ 0GPa đến 5GPa thì độ dài cặp liên kết Si - Si giảm, tuy nhiên từ giá trị 15GPa đến 25GPa thì giá trị độ dài liên kết lại rất ít thay đổi. So sánh với kết quả của công trình [6] thì kết quả thu được là khá phù hợp (1.61Å và 1.66Å). Độ dài liên kết của cặp O-Al có xu hướng tăng nhanh hơn so với cặp Si-O.

Bảng 2: Độ cao đỉnh thứ nhất $g_{ij}(r)$ HPBXT của hệ AS2 ở các áp suất khác nhau

P(GPa)	$g_{ij}(r)$					
	Si-Si	Si-O	O-O	Si-Al	O-Al	Al-Al
0	5.17	14.32	3.08	4.11	7.97	3.43
5	4.46	11.68	2.74	3.62	6.22	3.23
10	3.71	7.59	2.45	3.22	4.74	2.91
15	3.72	6.75	2.43	2.97	4.40	3.26
20	3.49	6.13	2.43	3.30	4.23	2.88
25	3.56	5.94	2.51	3.22	4.12	3.09

Bảng 2 là giá trị đỉnh thứ nhất của HPBXT. Từ bảng 2 cho thấy, độ cao đỉnh thứ nhất $g_{ij}(r)$ của HPBXT của của các cặp liên kết trong hệ AS2 đều giảm khi áp suất tăng. Tuy nhiên, tại áp suất 25GPa, độ cao đỉnh thứ nhất của các cặp liên kết Si- Si, O-O và Al- Al lại có sự tăng trở lại. Trong suốt quá trình tăng áp suất, độ cao đỉnh thứ nhất của của cặp Si-O luôn có giá trị lớn nhất và cặp O-O luôn có giá trị nhỏ nhất trong tất cả các cặp.



Hình 1: Hàm phân bố xuyên tâm của hệ AS2 tại 0GPa

Đồ thị HPBXT của hệ AS2 ở áp suất 0Gpa được biểu diễn trên hình 1. So sánh với kết quả của các công trình [4], [6] và các kết quả thực nghiệm [5] đều cho thấy độ dài liên kết của các cặp liên kết trong hệ

AS2 phù hợp tốt (ở áp suất 0 GPa) và HPBXT thu được cũng phù hợp tốt với các công trình nghiên cứu khác về cả hình dáng, vị trí và độ cao của các cực đại.

3.2. Số phối trí (SPT) trung bình của hệ AS2

Bảng 3. SPT trung bình của các cặp liên kết trong hệ AS2 ở các áp suất khác nhau.

P(GPa)	Z _{ij}								
	Si-Si	Si-O	Si-Al	O-Si	O-O	O-Al	Al-Si	Al-O	Al-Al
0	2.31	4.02	2.37	1.33	7.11	1.37	2.35	3.74	3.22
5	2.45	4.11	2.93	1.35	8.40	1.46	2.89	4.15	3.87
10	3.36	4.62	4.02	1.44	10.78	1.56	4.01	4.73	4.90
15	3.94	4.78	4.18	1.51	11.43	1.65	4.16	5.06	5.47
20	4.00	5.04	4.85	1.53	12.06	1.65	4.85	5.21	5.23
25	5.32	6.23	6.12	2.48	13.50	2.55	6.12	6.42	6.41

Kết quả tính toán SPT cặp trung bình trên bảng 3 chỉ ra rằng: ở áp suất 0GPa phần lớn các nguyên tử Si được bao quanh bởi 4 nguyên tử O, các nguyên tử O liên kết với 1 nguyên tử Si, các nguyên tử O liên kết với 1 nguyên tử Al lân cận, phần lớn các nguyên tử Al được bao quanh bởi 4 nguyên tử O, các nguyên tử Si được bao quanh bởi 2 nguyên tử Al và đa phần các nguyên tử Al được bao quanh bởi 2 nguyên tử Si lân cận. Khi áp suất tăng, SPT trung bình của tất cả các cặp liên kết đều tăng. Trong đó, SPT trung bình của cặp liên kết O-O tăng nhiều nhất với $\Delta Z_{O-O} = 6.40$ và cặp liên kết này cũng có SPT trung bình cao nhất trong tất cả các cặp liên kết ở các áp suất khác nhau. Trong khi đó, cặp liên kết O-Si có SPT

trung bình tăng chậm nhất $\Delta Z_{O-Si} = 1.15$, cặp liên kết này cũng có SPT trung bình nhỏ nhất so với các cặp liên kết khác ở dãy áp suất từ 0 đến 25GPa. Từ các kết quả trên ta thấy SPT trung bình của hệ AS2 phụ thuộc mạnh vào áp suất nén lên hệ.

3.3. Ảnh hưởng của nhiệt độ đến vi cấu trúc của hệ

Sáu mô hình AS2 có cùng áp suất 0GPa và ở các nhiệt độ 300K, 1000K, 2000K, 3000K, 4000K, 5000K được xây dựng bằng phương pháp ĐLHPT. Vi cấu trúc của các mô hình này được phân tích thông qua các dữ liệu nhận được từ HPBXT và phân bố SPT. Số liệu vi cấu trúc của mô hình thu được thể hiện trong bảng 4.

Bảng 4. Vị trí đỉnh thứ nhất r_{ij} (Å) của HPBXT của hệ AS2 ở các nhiệt độ khác nhau

T(K)	r_{ij} , Å					
	Si-Si	Si-O	O-O	Si-Al	O-Al	Al-Al
300	3.18	1.61	2.62	3.18	1.62	3.19
1000	3.17	1.61	2.61	3.16	1.64	3.19
2000	3.17	1.61	2.61	3.16	1.64	3.18
3000	3.16	1.59	2.63	3.16	1.64	3.12
4000	3.16	1.58	2.62	3.16	1.62	3.14
5000	3.16	1.58	2.62	3.14	1.62	3.16
[8]	3.18	1.58	2.64	3.16	1.64	3.16

Từ bảng 4 cho thấy vị trí đỉnh thứ nhất của HPBXT của hệ AS2 ít phụ thuộc vào nhiệt độ, cụ thể khi nhiệt độ tăng thì độ dài liên kết của các cặp đều giảm nhẹ ($\Delta r_{Si-Si} = 0.02\text{Å}$, $\Delta r_{Si-O} = 0.03\text{Å}$, $\Delta r_{Si-Al} = 0.04\text{Å}$). Trong đó cặp O-O và cặp O-Al, r_{ij} có giá trị không thay đổi ở nhiệt độ 300K và 5000K. Riêng cặp Al-Al, khi nhiệt độ tăng từ 300K lên 3000K thì r_{ij} giảm nhẹ (từ 3.19 ở 300K xuống còn 3.12Å ở 3000K) sau đó tăng lên theo nhiệt độ. Kết quả này phù hợp với kết quả mô phỏng [6].

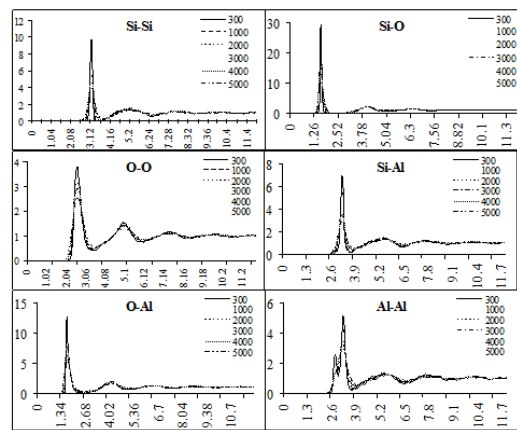
Khảo sát độ cao HPBXT cặp g_{ij} của hệ AS2 cho thấy chúng phụ thuộc mạnh vào nhiệt độ (bảng 4). Khi nhiệt độ tăng từ 300K lên 5000K thì độ cao đỉnh thứ nhất của HPBXT của tất cả các cặp liên kết đều giảm nhanh. Ví dụ như tại 300K độ cao HPBXT của cặp liên kết Si-Si là 9.81 Å song ở 5000K thì giá trị tương ứng là 3.94 Å. Kết quả này chứng tỏ khi nhiệt độ tăng các nguyên tử có xu hướng phân bố đều trong không gian dẫn tới làm giảm trật tự gần của cấu trúc. Trong suốt quá trình tăng nhiệt độ từ 300K lên 5000K thì cặp Si-O luôn có độ cao đỉnh HPBXT lớn nhất. Tại nhiệt độ 300K, cặp liên kết Si-O có độ cao đỉnh $g_{Si-O} = 29.25\text{Å}$ và tại 5000K thì $g_{Si-O} = 10.45\text{Å}$ và cặp O-O luôn có độ cao đỉnh HPBXT nhỏ nhất (tại 300K thì $g_{O-O} = 3.82\text{Å}$ và tại 5000K thì

Bảng 5. SPT trung bình của các cặp liên kết trong hệ AS2 ở các nhiệt độ khác nhau.

T, K	Si-Si	Si-O	O-O	Si-Al	O-Al	Al-Al
300	2.32	4.02	2.38	1.32	7.13	1.41
1000	2.33	4.03	2.42	1.31	7.19	1.40
2000	2.30	4.02	2.40	1.32	7.09	1.39
3000	2.32	4.02	2.35	1.31	7.05	1.37
4000	2.29	4.00	2.22	1.32	7.00	1.33
5000	3.33	5.01	3.18	2.15	7.91	2.04

Đối với nguyên tử Si trung bình có 2.31 nguyên tử Si khác, 4.01 nguyên tử O và 1.31 nguyên tử Al bao quanh. Với nguyên tử O có trung bình khoảng 2.35 nguyên tử O khác và 7.09 nguyên tử Al bao quanh. Tuy nhiên, SPT trung bình của các

$g_{O-O} = 2.53\text{Å}$) so với độ cao đỉnh HPBXT của các liên kết còn lại. Khi nhiệt độ tăng thì độ cao đỉnh thứ nhất của cặp liên kết Si-O giảm nhiều nhất ($\Delta g_{Si-O} = 18.8\text{Å}$) và cặp O-O giảm chậm nhất ($\Delta g_{O-O} = 1.29\text{Å}$) so với các liên kết còn lại. Kết quả này có sai lệch nhỏ so với [6], nguyên nhân có thể do lựa chọn mật độ khác nhau. Đồ thị HPBXT thành phần của các cặp liên kết trong hệ AS2 dưới ảnh hưởng của nhiệt độ được biểu diễn ở hình 2.



Hình 2: HPBXT của hệ AS2 ở các nhiệt độ khác nhau

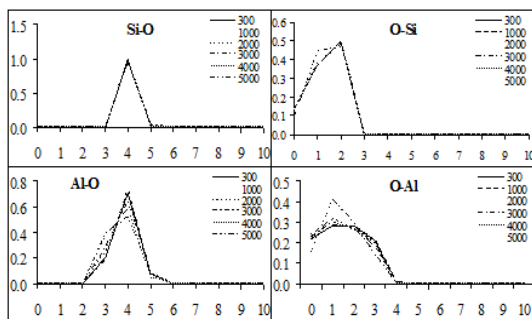
Bảng 5 cho thấy khi tăng nhiệt độ lên hệ từ 300K lên 4000K thì SPT trung bình của các cặp liên kết Si-Si, Si-O, O-O, Si-Al, O-Al, Al-Al đều giảm nhẹ, gần tương tự nhau.

cặp liên kết lại tăng mạnh ở khoảng nhiệt độ 5000K. Từ bảng 5 còn cho thấy SPT trung bình của cặp O-Al luôn có giá trị lớn nhất và SPT trung bình của cặp liên kết Si-Al luôn có giá trị bé nhất so với các cặp liên kết còn lại trong hệ. SPT trung bình

của cặp liên kết Si-O chủ yếu là 4 và 5. Do đó đơn vị cấu trúc chủ yếu của cặp liên kết Si-O trong hệ AS2 là SiO_4 (chiếm 98% ở 300K) và SiO_5 (chiếm 2% ở 300K). SPT trung bình của cặp liên kết Si-O rất ít thay đổi theo nhiệt độ.

SPT trung bình của cặp liên kết Al-O chủ yếu là 3, 4 và 5. Do đó, đơn vị cấu trúc của Al-O là AlO_3 chiếm 20.5%, AlO_4 chiếm 71.2% và AlO_5 chiếm 7.8% tại 300K. Khi nhiệt độ tăng ta thấy tỷ lệ đơn vị cấu trúc có sự thay đổi đáng kể. Cụ thể như sau, tỷ lệ đơn vị cấu trúc AlO_4 giảm dần từ 71.2% tại 300K xuống còn 52.2% tại 5000K.

SPT trung bình của cặp liên kết O-Si chủ yếu là 1, 2, có nghĩa là ở nhiệt độ thấp, xung quanh nguyên tử O luôn có từ 1 đến 2 nguyên tử Si bao quanh, tuy nhiên chúng chiếm tỷ lệ không đáng kể. Khi nhiệt độ tăng ta thấy các tỉ lệ SPT trung bình là 1 và 2 hầu như không thay đổi, nhưng tỷ lệ không có nguyên tử Si nào bao quanh nguyên tử O giảm dần. Ở 300K tỷ lệ này chiếm 13.4% và chỉ còn 8.8% tại 5000K. Tại 5000K trong hệ còn xuất hiện một ít tỷ lệ 3 nguyên tử Si bao quanh 1 nguyên tử O song tỷ lệ này rất nhỏ. Kết quả này chứng tỏ tại 5000K trong hệ có xuất hiện một ít tỷ lệ cấu trúc “tricluster” là 3 cation Si^+ bao quanh 1 nguyên tử O. Đồ thị phân bố SPT trung bình của các cặp liên kết được thể hiện trên hình 3.



Hình 3. Sự phân bố SPT của các cặp liên kết ở nhiệt độ từ 300k đến 500k

4. KẾT LUẬN

Trên cơ sở xác định các thông số vi cấu trúc, kết quả nghiên cứu đã đưa ra hệ thống các tính chất vật lý và cấu trúc của hệ AS2 trong các điều kiện khác nhau. Trong dãy áp suất 0-25GPa: a). Khi áp suất tăng thì liên kết Si-O và O - Al tăng, các liên kết khác giảm. Liên kết O-Al tăng nhanh hơn so với Si-O. Ở áp suất thấp, các đơn vị cấu trúc chủ yếu là SiO_4 , AlO_3 , AlO_4 . Khi tăng áp suất, các đơn vị cấu trúc SiO_4 , AlO_3 , AlO_4 giảm; các đơn vị cấu trúc SiO_5 , SiO_6 , AlO_5 , AlO_6 , AlO_7 tăng. Quá trình chuyển đổi này diễn ra mạnh nhất ở áp suất trên 15GPa. b). Trong khoảng 0GPa đến dưới 10GPa: có từ 1 đến 2 nguyên tử Si bao quanh 1 nguyên tử O và từ 1 đến 3 nguyên tử Al bao quanh nguyên tử O. Ngoài ra cũng có một tỷ lệ đáng kể nguyên tử O không có nguyên tử Si hoặc Al bao quanh. Khi áp suất lớn hơn 10GPa xuất hiện trường hợp có 3 nguyên tử Si bao quanh 1 nguyên tử O và 4 nguyên tử Al bao quanh 1 nguyên tử O.

Trong dãy nhiệt độ từ 300K đến 5000K: a). Khi nhiệt độ tăng, hầu hết độ dài của các cặp liên kết giảm, cặp liên kết O-O có cực đại tại khoảng nhiệt độ 3000K; cặp liên kết O-Al có cực đại trong khoảng 1000K - 3000K. Tuy nhiên tại 5000K độ dài liên kết Al - Al tăng trở lại. b) Các đơn vị cấu trúc chủ yếu là SiO_4 , SiO_3 , AlO_3 , AlO_4 và AlO_5 hầu như không thay đổi khi nhiệt độ tăng. c) Số nguyên tử Si và Al bao quanh 1 nguyên tử O cũng không phụ thuộc vào nhiệt độ.

MICROSTRUCTURE SIMULATION SYSTEM $(Al_2O_3)_x (SiO_2)_{1-x}$

Hoang Van Hue

Ho Chi Minh City University of Food Industry

ABSTRACT

$(Al_2O_3)_x(SiO_2)_{1-x}$ mixed oxide [AS2] is the basic material of ceramic and petrochemical technology, as well as the basic component of the earth's crust. At present, understanding about this mixed oxide system has not been fully studied. Using the molecular dynamics method and analysis of the structure of $(Al_2O_3)_x(SiO_2)_{1-x}$ in the temperature range of 350K-5000K and at various pressure (from 0Gpa to 25Gpa), we showed that Si-O and O-Al linkages increased. The structural units of SiO_4 , AlO_3 , AlO_4 were reduced, while SiO_5 , SiO_6 , AlO_5 , AlO_6 , AlO_7 increased. As the temperature increases, there is a reduction of the length of the atomic pair. The structural units mainly consist of SiO_4 , SiO_3 , AlO_3 , AlO_4 and AlO_5 , which are hardly temperature dependent.

TÀI LIỆU THAM KHẢO

- [1] Andrei Nossov, Marie-anne Springuel-Huet, Celine Schneider, Jeremy L. Bretherton, Colin A. Fyfe, and Serge Kaliaguine, *Zeolite nanoclusters coated onto the mesopore walls of SBA-15*, Published on web 15-10-2004.
- [2] Vo Van Hoang, Nguyen Hoang Hung, and Nguyen Ngoc Linh (2006), *Liquid-liquid phase transition in simulated liquid $Al_2O_3.2SiO_2$* , Physica Scripta, 74, p.697
- [3] Vo Van Hoang, Nguyen Ngoc Linh, Nguyen Hoang Hung (2007), *Pressure-and temperature-induced structural changes in simulated amorphous $Al_2O_3.2SiO_2$* , physica status solidi (b) Volume 244, Issue 9.
- [4] V.V. Hoang, N.N. Linh and N.H. Hung (2007), *Structure and dynamics of liquid and amorphous $Al_2O_3.2SiO_2$* , p.111 The European Physical Journal Applied Physics. Volume 37, Number 1.
- [5] R. M. Mohamed, O. A. Fouad, A. A. Ismail, I. A. Ibrahim, *Influence of crystallization times on the synthesis of nanosized ZSM-5*, Materials Letters 59 (2005), p.3441-3444.
- [6] Masayuki Okuno, Nikolay Zotov, Martin Schmücker, Hartmut Schneider, (2005), *Structure of $SiO_2-Al_2O_3$ glasses: Combined X-ray diffraction, IR and Raman studies*, Journal of Non-Crystalline Solids, Vol 351, p.1032-1038.
- [7] Nguyễn Hữu Phú, *Ứng dụng Zeolit trong hoá dầu*, Tạp chí Hoá học T35, số 36, trang 8 - 22, 1997.
- [8] Le The Vinh, Nguyen Thu Nhan, Nguyen Anh Vu, Hoang Van Hue, Pham Khac Hung, (2008), *A molecular dynamic study of alumina-silica liquid*, the 33th national conference on theoretical physics.
- [9] A. Winkler, J. Horbach, W. Kob, K. Binder, (2004), *Structure and diffusion in amorphous aluminum silicate: A molecular dynamics computer simulation*, J. Chem. Phys 120.