

## MÔ HÌNH HOÁ CẤU TRÚC $\text{GeO}_2$ VÔ ĐỊNH HÌNH BẰNG PHƯƠNG PHÁP HỒI PHỤC TĨNH

Nguyễn Huỳnh Tuấn Anh<sup>(1)</sup>, Võ Văn Hoàng<sup>(1)</sup>, Hoàng Dũng<sup>(1,2)</sup>

(1) Khoa Vật lý, Trường Đại học Khoa học Tự Nhiên, Đại học Quốc gia Tp.Hồ Chí Minh

(2) Ban Khoa học & Công nghệ, Đại học Quốc gia Tp.Hồ Chí Minh

**TÓM TẮT:** Lần đầu tiên một thể tương tác cặp gồm hai phần, phần tương tác tĩnh điện yếu và phần tương tác gần dưới dạng thể Morse cho hệ  $\text{GeO}_2$  được xác lập. Với thể tương tác này, chúng tôi dựng được mô hình  $\text{GeO}_2$  vô định hình gồm 3000 nguyên tử có năng lượng liên kết và cấu trúc phù hợp tốt với thực nghiệm. Cấu trúc mô hình được thể hiện qua hàm phân bố xuyên tâm, phân bố số phối vị, phân bố góc liên kết và khoảng cách trung bình giữa các nguyên tử. Kết quả tính toán cho thấy tất cả các thông số vừa nêu của mô hình phù hợp tốt hơn với thực nghiệm so với kết quả mô phỏng của một số tác giả khác vừa công bố.

### 1. GIỚI THIỆU

$\text{GeO}_2$  là vật liệu có thành phần hoá học và cấu trúc tương tự như  $\text{SiO}_2$ , hơn nữa hai oxide này còn có một số tính chất vật lý khá giống nhau. Ở trạng thái tinh thể  $\text{GeO}_2$  tồn tại ở hai dạng [1]: quartz có cấu trúc dạng tứ diện với 4 nguyên tử O bao quanh một nguyên tử Ge với khối lượng riêng tương đối nhỏ là  $4,28 \text{ g/cm}^3$ ; rutile có cấu trúc dạng lục giác với 6 nguyên tử O bao quanh một nguyên tử Ge với khối lượng riêng tương ứng tương đối lớn là  $6,25 \text{ g/cm}^3$ . Dạng rutile  $\text{GeO}_2$  thì bền vững ở nhiệt độ và áp suất thường, ngược lại cũng ở điều kiện như vậy thì  $\text{SiO}_2$  lại bền vững với cấu trúc dạng quartz. Cả hai loại oxide này đều là những chất dễ tạo thành trạng thái vô định hình (trạng thái thủy tinh) với cấu trúc dạng mạng tứ diện, đơn vị cấu trúc khi đó là  $\text{GeO}_4$  hay  $\text{SiO}_4$ . Ở trạng thái vô định hình cả hai oxide này đều là chất bán dẫn. Khối lượng riêng của  $\text{GeO}_2$  vô định hình vào khoảng  $3,60\text{-}3,70 \text{ g/cm}^3$  (xem trong [2,3,4]).

Trong khi  $\text{SiO}_2$  vô định hình (VDH) là vật liệu rất quan trọng trong công nghệ điện tử và địa vật lý và vì vậy mà oxide này được nghiên cứu rất nhiều bằng thực nghiệm lẫn mô phỏng trên máy tính, thì ngược lại  $\text{GeO}_2$  VDH được nghiên cứu ít hơn nhiều. Có thể lý giải một phần hiện tượng trên là do  $\text{GeO}_2$  VDH được ứng dụng ít hơn trong thực tế, do nhiệt độ nóng chảy quá thấp (khoảng 1378 K) so với  $\text{SiO}_2$  (với nhiệt độ nóng chảy tương ứng là 1995 K, xem bài của Gutierrez [3]). Tuy nhiên, gần đây sự chú ý đến  $\text{GeO}_2$  tăng lên như là một loại vật liệu thay thế  $\text{SiO}_2$  trong những điều kiện làm việc ít khắc nghiệt hơn. Trên thực nghiệm,  $\text{GeO}_2$  VDH được nghiên cứu bằng nhiễu xạ tia X [5], nhiễu xạ chùm neutron [6] hay kỹ thuật NMR [7] hoặc kết hợp nhiễu xạ tia X, chùm neutron và nhiễu xạ tia X bất thường [8]. Có sự trùng hợp tốt giữa các số liệu thực nghiệm về cấu trúc của  $\text{GeO}_2$  VDH, trung bình có 4 nguyên tử O bao quanh nguyên tử Ge và có 2 nguyên tử Ge bao quanh một nguyên tử O (xem trong [5,7,8]). Cấu trúc của  $\text{GeO}_2$  VDH có thể xem như là một mạng polymer không trật tự với đơn vị cấu trúc là  $\text{GeO}_4$  như đã nói ở trên. Độ dài liên kết Ge-O là  $1,739 \text{ \AA}$  [6]. Khoảng cách trung bình Ge-Ge là  $3,18 \text{ \AA}$ , của O-O là  $2,85 \text{ \AA}$  [6]. Góc liên kết Ge-O-Ge là  $130^\circ$  [7]. Các giá trị tương tự cũng tìm thấy trong [8] mà ta sẽ khảo sát chi tiết hơn bên dưới.

Tuy nhiên, để có những thông tin chi tiết hơn về cấu trúc  $\text{GeO}_2$  VDH thì phải tiến hành mô phỏng trên máy tính. Cho đến nay có rất ít kết quả mô phỏng cho hệ oxide này,

bởi vì còn thiếu một thể tương tác phù hợp cho các nguyên tử trong hệ. Gutierrez và Rogan đã mô phỏng cấu trúc  $\text{GeO}_2$  lỏng trong mô hình chứa 576 nguyên tử bằng phương pháp Động lực học phân tử ở nhiệt độ 1500 K và 3000 K. Họ đã khảo sát hàm phân bố xuyên tâm, phân bố số phối vị, phân bố góc liên kết và sự thay đổi các đại lượng trên dưới tác dụng của áp suất từ -2 GPa đến 30 GPa. Kết quả mô phỏng cho thấy, ở áp suất 0 GPa thì  $\text{GeO}_2$  lỏng có cấu trúc dạng tứ diện như đã biết và góc Ge-O-Ge bằng khoảng  $130^\circ$  như của  $\text{GeO}_2$  VĐH. Bên cạnh đó, hiện tượng chuyển pha cấu trúc trong  $\text{GeO}_2$  lỏng dưới tác dụng của áp suất cao cũng được khảo sát. Một điều cần lưu ý là thể tương tác mà Gutierrez dùng là thể tương tác cặp do Oeffner và Elliott [9] tính từ các nguyên lý ban đầu cho trường hợp  $\text{GeO}_2$  có cấu trúc tinh thể. Mô phỏng tương tự cho  $\text{GeO}_2$  VĐH cũng được tiến hành bởi Micoulaut [10] với cùng thể tương tác vừa nêu, điểm khác biệt so với Gutierrez là Micoulaut dùng điện tích cho ion Ge và O lớn hơn (+4 và -2, trong khi của Gutierrez dùng là +1,5 và -0,75). Theo chúng tôi, kết quả mô phỏng của cả hai nhóm tác giả trên phù hợp chưa tốt với thực nghiệm, nhất là khoảng cách Ge-Ge bằng 3,30 Å là khá lớn so với thực nghiệm là từ 3,16 Å đến 3,18 Å. Hơn nữa, năng lượng liên kết có phù hợp tốt với thực nghiệm hay không lại không được đề cập.

Do vậy, mục đích nghiên cứu của chúng tôi là xác định một thể tương tác cho hệ  $\text{GeO}_2$  (cả lỏng và VĐH) để kết quả mô phỏng phù hợp tốt hơn với thực nghiệm cả về cấu trúc lẫn năng lượng liên kết. Từ đó có thể tiến hành những nghiên cứu rộng hơn sau này cho hệ  $\text{GeO}_2$ .

## 2. PHƯƠNG PHÁP TÍNH TOÁN

Theo kết quả thực nghiệm và mô phỏng [2], trong các hệ oxide tồn tại các dạng liên kết cơ bản như sau: liên kết ion, liên kết cộng hoá trị, liên kết van der Waals. Liên kết ion thể hiện qua tương tác xa là tương tác Coulomb, các liên kết còn lại thể hiện qua tương tác gần. Chính vì vậy, thể tương tác giữa các hạt trong oxide có dạng tổng quát như sau [11]:

$$U_{ij}(r) = \frac{q_i q_j}{r} + \varphi_{ij}(r) \quad (1)$$

Số hạng đầu trong (1) là tương tác Coulomb với  $q_i$  và  $q_j$  lần lượt là điện tích các ion trong hệ oxide. Số hạng thứ hai mô tả tương tác gần trong oxide. Biểu thức của phần thể hiện tương tác gần  $\varphi_{ij}(r)$  có dạng khác nhau trong các thể tương tác khác nhau đã được dùng trước đây, ví dụ với thể tương tác Born-Mayer và thể BKS (một thể cải tiến từ Born-Mayer) thì :

$$\varphi_{ij}(r) = B_{ij} \exp(-C_{ij}r) - \frac{A_{ij}}{r^6} \quad (2)$$

Thể Born-Mayer và thể BKS có chung đặc điểm là tương tác gần yếu hơn đáng kể so với số hạng mô tả tương tác xa (điện tích các hạt thường có giá trị lớn). Các thể này và một vài thể khác có dạng tương tự đóng vai trò quan trọng trong mô phỏng hệ oxide suốt 10 năm qua, nhưng cũng thể hiện một số nhược điểm lớn như không thể hiện đúng sự dị thường của khối lượng riêng của  $\text{SiO}_2$  khi nhiệt độ thay đổi [12], hay không cho phép tính toán một cách chính xác các đặc trưng cơ học của  $\text{SiO}_2$  (xem trong [13]).

Gần đây, việc ứng dụng một dạng thể tương tác cho hệ  $\text{SiO}_2$  với phần tương tác tĩnh điện yếu hơn bình thường ( $q_i$  và  $q_j$  có giá trị nhỏ) và phần tương tác gần có dạng của thể

Morse đưa đến một số kết quả bước đầu khả quan hơn các thế tương tác cổ điển [14,15]. Khi đó phần tương tác gần có dạng như sau:

$$\varphi_{ij}(r) = D_0 \left\{ \exp \left[ \gamma \left( 1 - \frac{r}{R_0} \right) \right] - 2 \exp \left[ \frac{1}{2} \gamma \left( 1 - \frac{r}{R_0} \right) \right] \right\} \quad (3)$$

Do SiO<sub>2</sub> và GeO<sub>2</sub> giống nhau về mặt cấu trúc và các tính chất vật lý, nên khi xác định thế tương tác cho hệ GeO<sub>2</sub> chúng tôi chọn thế tương tác có dạng như vừa nêu, hẳn nhiên các hệ số trong thế tương tác được tính lại sao cho năng lượng liên kết và cấu trúc của mô hình GeO<sub>2</sub> phù hợp tốt với thực nghiệm. Cuối cùng với hệ GeO<sub>2</sub> chúng tôi xác định được thế tương tác có dạng như sau:

$$U_{ij}(r) = \frac{q_i q_j}{r} + D_0 \left\{ \exp \left[ \gamma \left( 1 - \frac{r}{R_0} \right) \right] - 2 \exp \left[ \frac{1}{2} \gamma \left( 1 - \frac{r}{R_0} \right) \right] \right\} \quad (4)$$

với  $q_{Ge} = 2e$  và  $q_O = -1e$ , trong đó  $e = 1,6 \cdot 10^{-19}$  C. Cần lưu ý rằng điện tích của các ion Ge và O ở đây rất gần với giá trị tính được trong [9] và sau đó được dùng trong [3] với các giá trị tương ứng là  $+1,5e$  và  $-0,75e$ . Các hệ số còn lại thể hiện qua bảng 1.

Chúng tôi dựng hệ GeO<sub>2</sub> VĐH trong mô hình có 3000 nguyên tử (gồm 1000 nguyên tử Ge và 2000 nguyên tử O) trong khối vuông có cạnh  $L = 36,235$  Å, ứng với khối lượng riêng là  $3,65$  g/cm<sup>3</sup> phù hợp với thực nghiệm. Điều kiện biên tuần hoàn được ứng dụng để hạn chế ảnh hưởng của kích thước nhỏ của mô hình lên kết quả tính toán. Mô hình được dựng bằng phương pháp hồi phục tĩnh, ban đầu các nguyên tử được phân bố trong khối vuông một cách ngẫu nhiên rồi lần lượt dịch chuyển các nguyên tử theo chiều lực tác dụng một đoạn nhỏ.

**Bảng 1.** Các hệ số trong thế Morse thể hiện tương tác gần trong GeO<sub>2</sub>.

Tương tác	$D_0$ (eV)	$\gamma$	$R_0$ (Å)
Ge-Ge	0,014	15.3744	3,750
Ge-O	4,100	8.6342	1,750
O-O	0,044	10.4112	4,400

Sau 12000 bước hồi phục năng lượng mô hình giảm dần cho đến giá trị cực tiểu ứng với trạng thái VĐH. Bởi vì các nguyên tử trong mô hình dựng theo phương pháp này không có động năng, nên mô hình nhận được ứng với trạng thái VĐH ở nhiệt độ 0 Kelvin. Chi tiết hơn về phương pháp có thể xem trong [16].

### 3. KẾT QUẢ VÀ THẢO LUẬN

#### 3.1. Xác định năng lượng liên kết của mô hình

Với thế tương tác như đã nêu, năng lượng cực tiểu của mô hình có 3000 nguyên tử đạt giá trị ổn định là  $-45.294,7$  eV. Chúng tôi tính năng lượng theo số mol của phân tử GeO<sub>2</sub> và tìm được năng lượng tương ứng cho một mol GeO<sub>2</sub> là  $-4.365 \frac{kJ}{mol}$ . Đây là năng lượng cần cung cấp để một mol GeO<sub>2</sub> phân rã thành những ion Ge<sup>2+</sup> và O<sup>1-</sup> rời rạc ứng với thế tương tác mà ta chọn bên trên, do đó bằng và ngược dấu với năng lượng liên kết.

Từ số liệu thực nghiệm cho GeO<sub>2</sub> tinh thể [17], ta có các số liệu như sau:

- Năng lượng nguyên tử hoá của Ge: 377 kJ/mol.
- Năng lượng nguyên tử hoá của O: 249 kJ/mol.

- Enthalpy hình thành  $\text{GeO}_2$  : -580 kJ/mol.
- Năng lượng ion hoá một nguyên tử Ge sang ion  $\text{Ge}^{1+}$ : 7,90 eV.
- Năng lượng ion hoá một  $\text{Ge}^{1+}$  sang  $\text{Ge}^{2+}$ : 15,93462 eV.
- Năng lượng ion hoá một nguyên tử O sang ion  $\text{O}^{1-}$ : 6,76 eV.

Như vậy, độ lớn năng lượng liên kết của một mol  $\text{GeO}_2$  ở dạng liên kết ion  $\text{Ge}^{2+}$  và  $\text{O}^{1-}$  như đã chọn trong mô hình là:

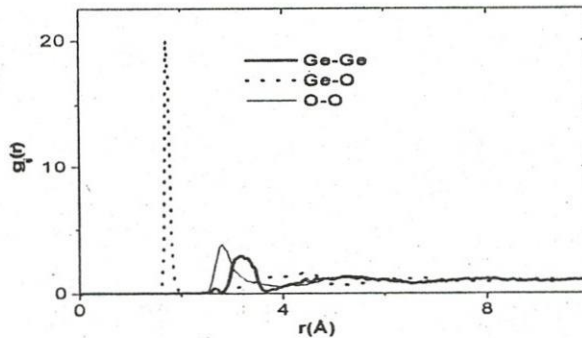
$$E = 1455,01 + (7,900 + 15,93462) \cdot 96,485 + 6,76 \cdot 96,485 = 4406,9219 \frac{\text{kJ}}{\text{mol}}$$

trong đó hệ số chuyển đổi từ eV/nguyên tử sang  $\frac{\text{kJ}}{\text{mol}}$  là 96,485. Ta nhận thấy năng lượng liên kết của mô hình tính được có giá trị gần với giá trị thực nghiệm cho trường hợp  $\text{GeO}_2$  có cấu trúc tinh thể. Năng lượng liên kết mô hình  $\text{GeO}_2$  VĐH nhỏ hơn so với  $\text{GeO}_2$  tinh thể khoảng  $41 \frac{\text{kJ}}{\text{mol}}$  là hợp lý ứng với năng lượng tinh thể hoá của  $\text{GeO}_2$  VĐH.

### 3.2. Cấu trúc mô hình $\text{GeO}_2$ VĐH

#### 3.2.1. Hàm phân bố xuyên tâm $g_{ij}(r)$

Hàm phân bố xuyên tâm riêng của mô hình  $\text{GeO}_2$  VĐH được mô tả trên hình 1. Các hàm phân bố này có dạng tương tự như cho hệ  $\text{SiO}_2$  và giống như các hàm đã nhận được cho  $\text{GeO}_2$  lỏng trong [3],  $\text{GeO}_2$  VĐH trong [10].



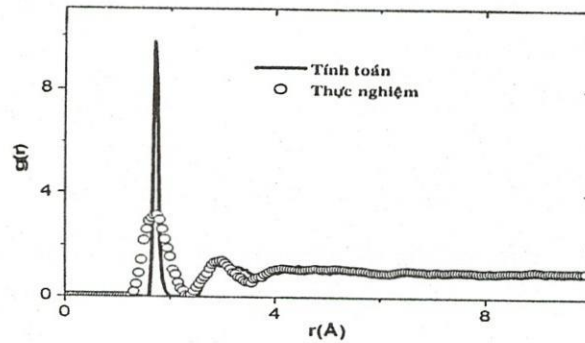
Hình 1. Hàm phân bố xuyên tâm riêng  $g_{ij}(r)$  của mô hình  $\text{GeO}_2$  vô định hình.

Bên cạnh đó, chúng tôi cũng tính hàm phân bố xuyên tâm tổng  $g(r)$  cho trường hợp nhiễu xạ tia Rontgen theo hệ thức sau:

$$g(r) = \frac{X_1^2 f_1^2 g_{11}(r) + 2X_1 X_2 f_1 f_2 g_{12}(r) + X_2^2 f_2^2 g_{22}(r)}{(X_1 f_1 + X_2 f_2)^2} \quad (5)$$

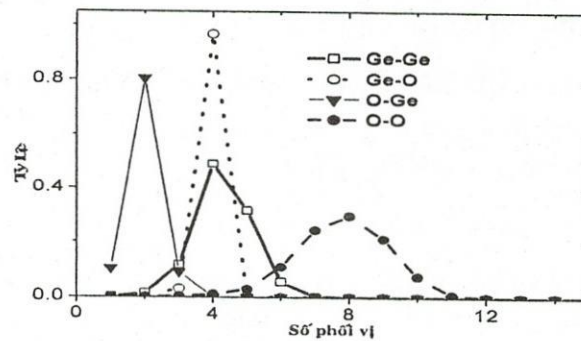
trong đó  $X_1$  và  $X_2$  là nồng độ nguyên tử Ge và O (với  $X_1 + X_2 = 1$ );  $f_1$  và  $f_2$  là hệ số tán xạ tia Rontgen của nguyên tử Ge và O. Chúng tôi chọn  $f_{\text{Ge}} = 0,8193 \times 10^{-4} \text{ \AA}$ ,  $f_{\text{O}} = 0,5805 \times 10^{-4} \text{ \AA}$  theo dữ liệu trong [3]. Hàm tổng  $g(r)$  thể hiện qua hình 2. Ta thấy kết quả tính toán phù hợp rất tốt với thực nghiệm cho toàn bộ vị trí các đỉnh cao. Độ cao của đỉnh có sự sai lệch đối với đỉnh thứ nhất, nhưng đường thực nghiệm và đường tính toán xem như trùng khít đối với các đỉnh còn lại. Sự sai lệch về độ cao tại đỉnh thứ nhất có thể lý giải một phần là do sự khác biệt về nhiệt độ giữa mô hình và thực nghiệm. Do nhiệt độ mô hình là 0 Kelvin, thấp

hơn rất nhiều so với thực nghiệm nên độ cao của hàm tính toán cao hơn thực nghiệm. Tuy nhiên, sự phù hợp với thực nghiệm có thể xét đến các yếu tố khác mà ta đề cập bên dưới. Cần lưu ý rằng sai biệt tương tự cũng tìm thấy khi mô phỏng  $\text{GeO}_2$  lỏng và VDH trong [3,10], do độ cao đỉnh đầu tiên của hàm  $g_{12}(r)$  cho cặp Ge-O là quá lớn so với thực nghiệm.



Hình 2. Hàm phân bố xuyên tâm tổng  $g(r)$  của  $\text{GeO}_2$  vô định hình.

### 3.2.2. Phân bố số phối vị, phân bố góc liên kết

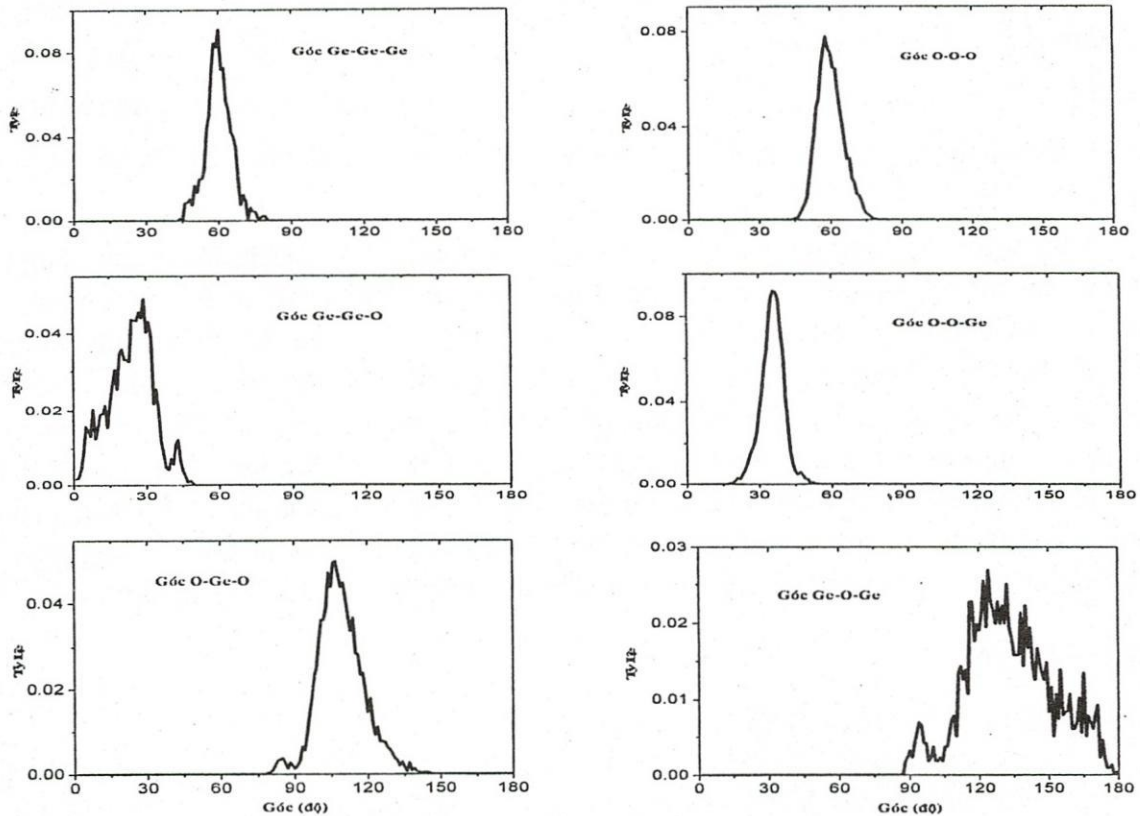


Hình 3. Phân bố số phối vị trong mô hình  $\text{GeO}_2$  vô định hình.

Phân bố số phối vị trong mô hình  $\text{GeO}_2$  vô định hình được thể hiện qua hình 3 giống với trường hợp  $\text{GeO}_2$  lỏng trong [3]. Phân bố cho cặp Ge-Ge có đỉnh tại 4, cặp Ge-O cũng có đỉnh tại 4 nhưng rất nhọn có nghĩa là phần lớn nguyên tử Ge có 4 nguyên tử O bao quanh thể hiện cấu trúc dạng tứ diện. Trong khi đó phân bố cho cặp O-Ge và O-O lần lượt có đỉnh tại 2 và 8 tương tự như trong [3]. Số phối vị trung bình tương ứng có thể xem ở bảng 2 bên dưới.

Để hiểu biết chi tiết hơn về cấu trúc của mô hình, ta cần khảo sát phân bố góc liên kết. Phân bố chi tiết cho toàn bộ 6 loại góc liên kết đã được xác lập và thể hiện qua hình 4. Cần lưu ý rằng, với trường hợp tứ diện chuẩn thì góc O-Ge-O bằng  $109,47^\circ$ , góc O-O-O là  $60^\circ$  và góc Ge-O-O là  $35,26^\circ$ . Kết quả tính toán cho thấy phân bố góc Ge-Ge-Ge và O-O-O có đỉnh lần lượt tại  $60^\circ$  và  $58^\circ$ . Phân bố góc Ge-Ge-O và O-O-Ge có đỉnh lần lượt tại  $29^\circ$  và  $36^\circ$ . Tương tự, phân bố góc O-Ge-O có đỉnh tại  $107^\circ$  gần với giá trị của tứ diện chuẩn là  $109^\circ$ . Với phân bố góc Ge-O-Ge thì có phức tạp hơn, có một đỉnh tại  $124^\circ$  đồng thời có một đỉnh bên cạnh tại giá trị góc  $132^\circ$  hơi thấp hơn một ít. Như vậy, nếu tính trung bình thì có thể xem phân bố này có góc cực đại trung bình tại giá trị  $128^\circ$  và gần với giá trị thực nghiệm là  $130^\circ$ . Sai lệch như thế là không lớn, nếu tính đến sai số trong tính phân bố góc là  $\pm 1^\circ$ .

Qua các phân tích trên, có thể kết luận rằng mô hình  $\text{GeO}_2$  VDH nhận được có cấu trúc dạng mạng tứ diện, với đơn vị cấu trúc cơ bản là  $\text{GeO}_4$  (chiếm 96,6% số đơn vị cấu trúc trong mô hình), nhưng đơn vị cấu trúc này cũng bị biến dạng một ít so với tứ diện



Hình 4. Phân bố góc liên kết trong mô hình  $GeO_2$  vô định hình.

chuẩn (có sự sai lệch về góc liên kết cũng như độ dài của các liên kết). Nói cách khác,  $GeO_2$  VĐH cũng có cấu trúc dạng tứ diện tương tự như quartz  $GeO_2$  nhưng ở trạng thái VĐH tứ diện bị biến dạng một ít. Ngoài ra trong mô hình  $GeO_2$  VĐH tồn tại hai đơn vị cấu trúc khác là  $GeO_3$  và  $GeO_5$  nhưng số lượng không nhiều (tổng cộng có khoảng 3,4%) tương tự như trường hợp của  $SiO_2$  lỏng và VĐH [2]. Trong các góc liên kết thì góc O-Ge-O và Ge-O-Ge là quan trọng hơn cả. Bởi vì góc O-Ge-O cho ta biết cấu trúc bên trong của một đơn vị cấu trúc cơ sở  $GeO_4$ , còn góc Ge-O-Ge cho ta thông tin về liên kết giữa các đơn vị cấu trúc này để tạo thành cấu trúc dạng mạng của  $GeO_2$  VĐH.

3.2.3. Một số đặc trưng cấu trúc

Bảng 2. Một số đặc trưng cấu trúc của  $GeO_2$  lỏng và vô định hình.

Nguồn dữ liệu	$R_{ij}$			$\xi_{ij}$			$Z_{ij}$				$\theta_{O-Ge-O}$	$\theta_{Ge-O-Ge}$
	1-1	1-2	2-2	1-1	1-2	2-2	1-1	1-2	2-1	2-2		
Mô hình của bài viết này	3,18	1,72	2,79	2,96	21,28	3,88	4,29	3,97	1,99	7,79	107°	128°
Thực nghiệm [8]	3,16	1,73	2,83	3,80	6,80	3,0						132°
Thực nghiệm [18]	3,18	1,75	2,82									
Thực nghiệm [6,7]	3,18	1,74	2,85					4,00	2,00			130°
Dữ liệu tính toán trong [3]*	3,30	1,70	2,85	2,25	18,0	3,7	4,31	4,03	2,01	8,37	109°	130°
Dữ liệu tính toán trong [10]	3,32	1,72	2,81	3,00	20	4,50		4,10				

\* Dữ liệu của mô hình  $GeO_2$  lỏng ở nhiệt độ 1500 K.

$R_{ij}$  là khoảng cách trung bình giữa các nguyên tử;  $g_{ij}$  là độ cao đỉnh cực đại đầu tiên của hàm  $g_{ij}(r)$ ;  $Z_{ij}$  là số phối vị trung bình cho các cặp nguyên tử loại  $i$  và  $j$ ;  $\theta_{O-Ge-O}$  là giá trị trung bình của góc liên kết O-Ge-O;  $\theta_{Ge-O-Ge}$  là giá trị trung bình của góc liên kết Ge-O-Ge. Để đơn giản, chúng tôi ký hiệu 1-1 là cho cặp Ge-Ge, 1-2 là cho cặp Ge-O, 2-1 là cho cặp O-Ge và 2-2 là cho cặp O-O.

Chúng tôi thể hiện một số đặc trưng cấu trúc của  $GeO_2$  VĐH nhận được bằng thực nghiệm và mô phỏng, bên cạnh đó chúng tôi cũng đưa thêm vào số liệu mô phỏng cho trường hợp  $GeO_2$  lỏng để tham khảo. Qua bảng 2 ta thấy kết quả mô phỏng của chúng tôi phù hợp khá tốt với thực nghiệm và kết quả tính toán của các tác giả trước đây. Một điều cần ghi nhận là khoảng cách trung bình giữa các nguyên tử trong mô hình của chúng tôi phù hợp tốt hơn so với kết quả mô phỏng trong [3,10]. Sự sai lệch lớn về độ cao đỉnh đầu tiên của hàm phân bố xuyên tâm cho cặp Ge-O là khá lớn và đó là đặc điểm chung của cả 3 kết quả mô phỏng so với thực nghiệm. Một điều cần lưu ý nữa là giá trị trung bình của góc Ge-O-Ge trong bài viết này là khoảng  $128^\circ$  phù hợp khá tốt với thực nghiệm.

#### 4. KẾT LUẬN

Cuối cùng chúng tôi có một số kết luận sau đây:

- Đã xác định được một hệ thế tương tác cho hệ  $GeO_2$ . Kết quả mô phỏng cho thấy cấu trúc mô hình  $GeO_2$  VĐH với thế tương tác vừa tìm được phù hợp khá tốt với thực nghiệm.
- Năng lượng liên kết của mô hình phù hợp rất tốt với thực nghiệm, đó là điều mà các thế tương tác khác trước đây chưa thể hiện được.
- Xét toàn cục, từ năng lượng liên kết đến cấu trúc của mô hình  $GeO_2$  VĐH nhận được, có thể kết luận rằng mô hình của chúng tôi phù hợp tốt hơn với thực nghiệm so với các mô hình dùng thế tương tác của R.D. Oeffner và S.R. Elliott.

### SIMULATION OF STRUCTURE OF AMORPHOUS $GeO_2$ BY STATICAL RELAXATION METHOD

Nguyen Huynh Tuan Anh<sup>(1)</sup>, Vo Van Hoang<sup>(1)</sup>, Hoang Zung<sup>(1,2)</sup>

(1) Faculty of Physics, University of Natural Sciences, VNU-HCM

(2) Vietnam National University – Ho Chi Minh City

**ABSTRACT:** Structure of amorphous  $GeO_2$  has been studied by computer simulation in a model containing 3000 particles under periodic boundary conditions. We proposed for the first time the new interatomic potentials for  $GeO_2$  which have weak electrostatic interactions and the Morse type short-range interactions. Models of amorphous  $GeO_2$  have been obtained by Statical Relaxation method. Calculations showed that structural characteristics of the models agree well with the experiment, moreover, the agreement is better than those observed recently by using traditional BKS type potentials. Furthermore, the atomization energy of the model has the realistic value compared with the experimental data. Microstructure of a model has been analyzed through the partial radial distribution functions (PRDFs), coordination number distributions, bond-angle distributions and

*interatomic distances. Structure of amorphous GeO<sub>2</sub> model is a tetrahedral network, the mean coordination number is equal to 4 and 2 for the Ge-O and O-Ge pairs, respectively.*

**Keywords:** Computer simulation, amorphous oxides, PACS numbers: 61.43.Fs, 61.20.Lc, 64.70.Pf, 78.55.Qr, 61.43.Bn

### TÀI LIỆU THAM KHẢO

- [1]. D.M. Christie and J.R. Chelikowsky, Phys. Rev. B 62, 14703 (2000).
- [2]. Belashchenko D.K., Russian Chem. Rev. 66, 733 (1997).
- [3]. G. Gutierrez and J. Rogan, Phys. Rev. E 69, 031201 (2004).
- [4]. O.B. Tsiok, V.V. Brazhkin, A.G. Lyapun and L.G. Khvostantsev, Phys. Rev. Lett. 80, 999 (1998).
- [5]. A.J. Leadbetter and A.C. Wright, J. Non-Cryst. Solids 7, 37 (1972).
- [6]. J.A. Desa and A.C. Wright, J. Non-Cryst. Solids 99, 276 (1988).
- [7]. R. Hussin, R. Dupree and D. Holland, J. Non-Cryst. Solids 246, 159 (1999).
- [8]. D.L. Price and M.L. Saboungi, Phys. Rev. Lett. 81, 3207 (1998).
- [9]. R.D. Oeffner and S.R. Elliott, Phys. Rev. B 58, 14791 (1998).
- [10]. M. Micoulaut, J. Phys.: Condens. Matt. 16, L131 (2004).
- [11]. D.K. Belashchenko, Inorganic Materials 40, 241 (2004).
- [12]. K. Vollmayr, W. Kob and K. Binder, Phys. Rev. B 54, 15808 (1996).
- [13]. Liping Huang, L. Duffrene and J. Kieffer, J. Non-Cryst. Solids 349, 1 (2004).
- [14]. N.T. Huff, E. Demiralp, T. Cagin and W. A. Goddard III, J. Non-Cryst. Solids 253, 133 (1999).
- [15]. Takada, P. Richet, C.R.A. Catlow and G.D. Price, J. Non-Cryst. Solids, 345-346, 224 (2004).
- [16]. Võ Văn Hoàng, Mô phỏng trong Vật lý, NXB ĐHQG TP.HCM, 2004, 291 tr.
- [17]. CRC Handbook of Chemistry and Physics, Edited by Lide D.R., CRC Press, NewYork, 1996.
- [18]. Y. Waseda, K. Sugiyama, E. Matsubara, and K. Harada, Mater. Trans. JIM 31, 421 (1990).