

# ẢNH HƯỞNG CỦA CÁC YẾU TỐ LÊN CẤU TRÚC, QUÁ TRÌNH KẾT TINH CỦA HỢP KIM $\text{Cu}_{1-x}\text{Au}_x$ ( $x = 0,25; 0,5; 0,75$ ) BẰNG PHƯƠNG PHÁP MÔ PHỎNG ĐỘNG LỰC HỌC PHÂN TỬ

Trần Quốc Tuấn<sup>1</sup>, Ông Văn Hoàng<sup>1</sup>, Nguyễn Thị Thu Cúc<sup>1</sup> và Nguyễn Trọng Dũng<sup>2\*</sup>

<sup>1</sup>Khoa Khoa học Ứng dụng, Trường Đại học Công nghệ Giao thông Vận tải, Việt Nam

<sup>2</sup>Khoa Vật lý, Trường Đại học Sư phạm Hà Nội, Việt Nam

\*Tác giả liên hệ: Nguyễn Trọng Dũng, Email: dungntsphn@gmail.com

## Lịch sử bài báo

Ngày nhận: 29/9/2023; Ngày nhận chỉnh sửa: 17/10/2023; Ngày duyệt đăng: 23/10/2023

## Tóm tắt

Trong nghiên cứu này, phương pháp mô phỏng động lực phân tử (MD) được sử dụng để nghiên cứu ảnh hưởng của nồng độ pha tạp, bước thời gian và thời gian ủ nhiệt lên các đại lượng đặc trưng cấu trúc, quá trình kết tinh của hợp kim  $\text{Cu}_{1-x}\text{Au}_x$ . Các kết quả thu được cho thấy trường lực thể tương tác nhúng Sutton-Chen đã sử dụng là phù hợp. Khi tăng nồng độ pha tạp Au trong hợp kim  $\text{Cu}_{1-x}\text{Au}_x$  thì quá trình kết tinh tăng và đạt giá trị cực đại ở 50%Au và biến mất ở 75%Au. Khi tăng bước thời gian, thời gian ủ nhiệt và nồng độ pha tạp Au trong hợp kim  $\text{Cu}_{1-x}\text{Au}_x$  thì độ dài các liên kết ( $r$ ) của Cu-Cu, Cu-Au, Au-Au và độ cao hàm phân bố xuyên tâm  $g(r)$  có giá trị thay đổi. Ngoài ra, số đơn vị cấu trúc lập phương tâm mặt (FCC), cấu trúc lập phương xếp chặt (HCP), và số đơn vị cấu trúc vô định hình (Amor) thay đổi. Các kết quả thu được có thể được dùng làm cơ sở cho các nghiên cứu thực nghiệm trong các ứng dụng quang xúc tác.

**Từ khóa:** Cấu trúc, động lực học phân tử, hợp kim  $\text{Cu}_{1-x}\text{Au}_x$ , nồng độ pha tạp Au, quá trình kết tinh.

DOI: <https://doi.org/10.52714/dthu.13.2.2024.1235>

Trích dẫn: Trần, Q. T., Ông, V. H., Nguyễn, T. T. C., & Nguyễn, T. D. (2024). Ảnh hưởng của các yếu tố lên cấu trúc, quá trình kết tinh của hợp kim  $\text{Cu}_{1-x}\text{Au}_x$  ( $x=0,25; 0,5; 0,75$ ) bằng phương pháp mô phỏng động lực học phân tử. *Tạp chí Khoa học Đại học Đồng Tháp*, 13(2), 65-73. <https://doi.org/10.52714/dthu.13.2.2024.1235>.

Copyright © 2024 The author(s). This work is licensed under a CC BY-NC 4.0 License.

# EFFECTS OF FACTORS ON THE STRUCTURE AND CRYSTALLIZATION PROCESS OF $\text{Cu}_{1-x}\text{Au}_x$ alloy ( $x=0.25; 0.5; 0.75$ ) BY MOLECULAR DYNAMICS SIMULATION METHOD

Tran Quoc Tuan<sup>1</sup>, Ong Van Hoang<sup>1</sup>, Nguyen Thi Thu Cuc<sup>1</sup>, and Nguyen Trong Dung<sup>2\*</sup>

<sup>1</sup>Faculty of Applied Science, University of Transport Technology, Vietnam

<sup>2</sup>Faculty of Physics, Hanoi National University of Education, Vietnam

\*Corresponding author: Nguyen Trong Dung, Email: dungntsphn@gmail.com

## Article history

Received: 29/9/2023; Received in revised form: 17/10/2023; Accepted: 23/10/2023

## Abstract

*In this study, molecular dynamics (MD) simulation method was used to study the effects of doping concentration, time step and annealing time on structural characteristics on crystallization process of  $\text{Cu}_{1-x}\text{Au}_x$  alloy. The obtained results show that the used Sutton-Chen embedded interaction force field is appropriate. When increasing the Au doping concentration in the  $\text{Cu}_{1-x}\text{Au}_x$  alloy, the crystallization process increases, and maximally at 50%Au and disappears at 75%Au. Meanwhile, an increase in the time step, annealing time and Au doping concentration in the  $\text{Cu}_{1-x}\text{Au}_x$  alloy, the length of the links ( $r$ ) of Cu-Cu, Cu-Au, Au-Au and the height of the distribution function  $g(r)$  will increase and have a variable value. In addition, the number of face-centered cubic (FCC), close-packed cubic (HCP), and amorphous (Amor) structural units change. The results obtained can be used as a basis for experimental studies into photocatalysis applications.*

**Keywords:** Au doping concentration, crystallization process,  $\text{Cu}_{1-x}\text{Au}_x$  alloy, structure, molecular dynamics.

## 1. Giới thiệu

Ngày nay, các đặc trưng cấu trúc và quá trình kết tinh của vật liệu đang là vấn đề cấp thiết hiện nay (Georg & cs., 2020). Để nghiên cứu các đặc trưng cấu trúc, quá trình kết tinh. Hiện nay, có nhiều phương pháp đã nghiên cứu thành công. Phương pháp lý thuyết, phương pháp thực nghiệm và phương pháp mô phỏng. Với phương pháp thực nghiệm, các nhà nghiên cứu rất khó có thể tiếp cận được với vật liệu có kích thước nhỏ hơn 2nm hoặc vùng vật liệu có nhiệt độ và áp suất cao ở tâm của trái đất như nhiệt độ 7000 K, áp suất 360 GPa. Cấu trúc, năng lượng ở trạng thái có trật tự, không có trật tự của hợp kim  $Cu_3Au$  và  $CuAu_3$  (Nemoshkalenko & cs., 1976). Với phương pháp thực nghiệm để xác định độ dài liên kết, hằng số mạng, ... sử dụng phương pháp nhiễu xạ tia X-ray (The Materials, 2020). Với các loại vật liệu, thì hợp kim AuCu được coi là vật liệu có nhiều ưu việt. Ứng dụng quang xúc tác để sản xuất metanol (Iwai, 2008), dùng trong các hợp chất hữu cơ (Corma & Garcia, 2008) và phản ứng oxy hóa (Bond & cs., 2006), quang xúc tác (Chen & cs., 2013). Với phương pháp mô phỏng, các nhà nghiên cứu sử dụng các mô hình liên kết (Daw & Baskes, 1989), mô hình phân tử (Alavi, 2020), mô hình trường lực nguyên tử (Li & cs., 2015), và mô hình Sutton–Chen (SC) (Ercolessi & cs., 1988). Để nghiên cứu các đại lượng đặc trưng cấu trúc, sử dụng trường lực thể tương tác của Rafi–Tabar và Sutton–Chen (SC) (Çagin & cs., 1999), quá trình chuyển pha của hợp kim CuAu (Artrith, Kolpak, 2015), và quá trình kết tinh của  $Cu_3Au$  (Cahn, 1990). Với hợp kim  $CuAu_3$  rất khó có thể xảy ra hiện tượng kết tinh còn với hợp kim CuAu thì dễ xảy ra hiện tượng kết tinh hơn (Tuan & cs., 2022). Các kết quả bằng phương pháp thực nghiệm cho rằng ở vùng nhiệt độ (T) từ  $T = 603$  K đến  $T = 643$  K thì hợp kim rất khó có thể xảy ra hiện tượng kết tinh (Sharif & cs., 2015). Ở vùng nhiệt độ lớn hơn 683 K thì chúng luôn có cấu trúc lập phương tâm diện (FCC), còn ở vùng nhiệt độ nhỏ hơn 543 K thì chúng luôn tồn tại cấu trúc tứ giác. Với vùng nhiệt độ nằm trong khoảng từ 543 K tới 683 K thì chúng xảy ra quá trình chuyển pha (Pfeiler & Sprusil, 2002). Bên cạnh phương pháp thực nghiệm, các nhà nghiên cứu còn sử dụng phương pháp mô phỏng động lực học phân tử (MD), kết hợp với trường lực thể tương tác nhúng Sutton–Chen (SC) và thêm vào các đại lượng như tần số phonon và năng lượng bằng không, và gọi trường tương tác

này là trường tương tác lượng tử nhúng Sutton–Chen (Q-SC) (Jacek, 2009). Trong những năm gần đây, các thành viên trong nhóm nghiên cứu đã nghiên cứu thành công cấu trúc, quá trình chuyển pha của hợp kim CuAu bằng phương pháp mô phỏng động lực học phân tử, kết hợp với thể tương tác nhúng (SC) (Tuan & cs., 2022). Với nội dung bài viết này, chúng tôi chỉ tập trung vào nghiên cứu ảnh hưởng của nồng độ pha tạp Au, bước thời gian và thời gian ủ nhiệt lên quá trình kết tinh của hợp kim  $Cu_{1-x}Au_x$ ,  $x=0,25; 0,5; 0,75$  ở nhiệt độ  $T= 300$  K và hy vọng với kết quả nghiên cứu mới này sẽ làm cơ sở cho các nghiên cứu về hợp kim CuAu bằng phương pháp thực nghiệm trong các ứng dụng quang xúc tác.

## 2. Phương pháp tính

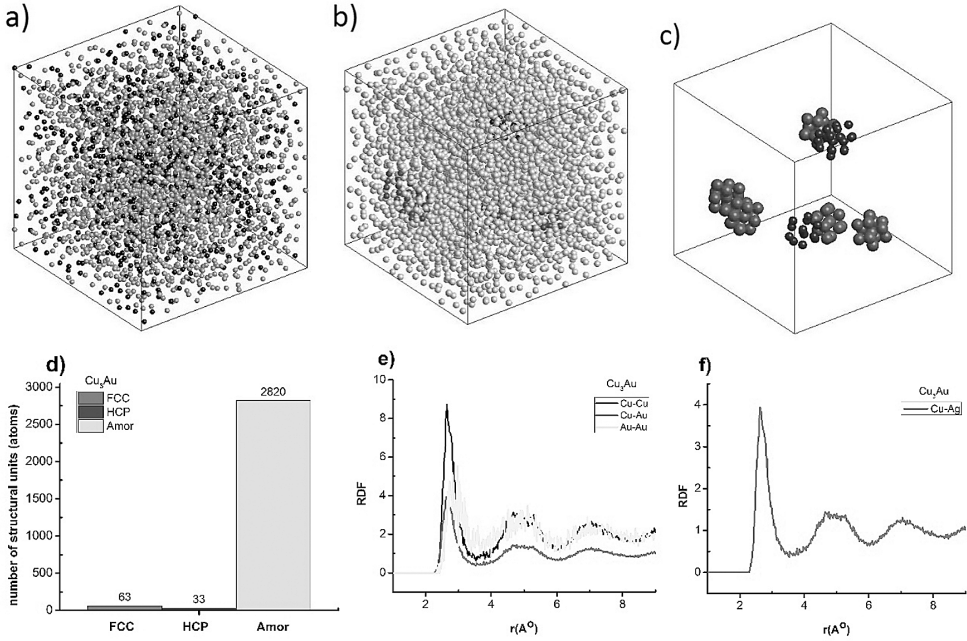
Để nghiên cứu ảnh hưởng của nồng độ pha tạp Au, bước thời gian (h) và thời gian ủ nhiệt (t) lên cấu trúc và quá trình kết tinh của hợp kim  $Cu_{1-x}Au_x$ ,  $x=0,25; 0,5; 0,75$  bằng phương pháp mô phỏng động lực học phân tử (MD). Toàn bộ quá trình thực hiện, dựa trên quá trình nghiên cứu đã công bố trước đó (Tuan & cs., 2022; Kart & cs., 2005). Quá trình nghiên cứu và mô phỏng được xác định bởi thuật toán Velet (Verlet, 1967) dùng để xác định vị trí, vận tốc của các nguyên tử. Với quá trình gia nhiệt tuân theo quy luật của Hoover (Hoover, 1985). Với quá trình kết tinh, sử dụng định luật của Nosé (Nose, 1984). Để phân tích kích thước hạt, thành phần nguyên tử và cấu hình cũng được áp dụng (Xu, 2008). Với số đơn vị cấu trúc chúng tôi sử dụng phương pháp phân tích chung (CNA) (Ali, 2017). Để xác định các đại lượng đặc trưng tính chất của vật liệu  $Cu_{1-x}Au_x$ , chúng tôi sử dụng thống nhất tất cả các vật liệu bằng cách cho tất cả các vật liệu cùng chạy thống kê hồi phục  $2 \times 10^4$  bước mô phỏng MD để các nguyên tử không bị dính vào nhau. Sau đó, hạ nhiệt độ từ 4500 K xuống 300 K với  $42 \times 10^4$  các bước mô phỏng MD để vật liệu chuyển từ trạng thái lỏng sang trạng thái kết tinh mới bằng việc sử dụng các bước gia nhiệt (h),  $h = 1$  fs, 2 fs và 3 fs với tốc độ gia nhiệt  $4 \times 10^{12}$  K/s và nghiên cứu ảnh hưởng của nồng độ pha tạp của Au là 25% Au, 50% Au, 75% Au trong hợp kim  $Cu_{1-x}Au_x$  và thời gian ủ nhiệt ở nhiệt độ  $T = 300$  K. Các kết quả thu được sẽ được phân tích, giải thích bản chất của quá trình chuyển pha, kết tinh của hợp kim  $Cu_{1-x}Au_x$  nhằm làm cơ sở cho các nghiên cứu của hợp kim  $Cu_{1-x}Au_x$  trong các ứng dụng quang xúc tác.

**3. Kết quả và thảo luận**

**3.1. Các đại lượng đặc trưng**

Để nghiên cứu các đại lượng đặc trưng cấu trúc, quá trình chuyển pha và quá trình kết tinh của hợp

kim  $\text{Cu}_{1-x}\text{Au}_x$ . Chúng tôi chọn hợp kim  $\text{Cu}_{0.75}\text{Au}_{0.25}$  để nghiên cứu ở nhiệt độ (T),  $T = 300 \text{ K}$ , với tốc độ gia nhiệt  $4 \times 10^{12} \text{ K/s}$ , và bước thời gian (h),  $h = 2 \text{ fs}$ . Các kết quả được thể hiện trong Hình 1.



**Hình 1. Hình dạng hợp kim  $\text{Cu}_{0.75}\text{Au}_{0.25}$  (a), hình dạng cấu trúc (b), hình dạng số đơn vị cấu trúc (c), số đơn vị cấu trúc (d), hàm phân bố xuyên tâm của các liên kết (e), hàm phân bố xuyên tâm của liên kết Cu-Au của hợp kim  $\text{Cu}_{0.75}\text{Au}_{0.25}$  ở nhiệt độ  $T = 300 \text{ K}$ , với tốc độ gia nhiệt  $4 \times 10^{12} \text{ K/s}$ , bước thời gian  $h = 2,0 \text{ fs}$**

Sau quá trình hạ nhiệt độ từ  $T = 4500 \text{ K}$  xuống  $T = 300 \text{ K}$  dẫn đến sự phân bố mật độ các nguyên tử đồng (Cu màu xanh da trời), các nguyên tử vàng (Au màu đen) khá đồng đều và được thể hiện thông qua hình dạng của hợp kim  $\text{Cu}_{0.75}\text{Au}_{0.25}$  (hình 1a). Tương tự, với hình dạng cấu trúc được cấu tạo bởi cấu trúc lập phương tâm mặt (FCC màu đỏ), cấu trúc lục giác xếp chặt (HCP màu xanh xẫm), cấu trúc vô định hình (Amor màu vàng) được thể hiện trên (hình 1b). Do mật độ số đơn vị cấu trúc Amor là rất lớn dẫn đến khả năng quan sát quá trình kết tinh rất khó cho nên chúng tôi không minh họa quá trình kết tinh của hợp kim với sự có mặt của cấu trúc vô định hình mà chỉ minh họa bằng số đơn vị cấu trúc FCC, HCP thông qua (hình 1c). Các kết quả hình dạng cấu trúc được thể hiện cụ thể thông qua số đơn vị cấu trúc tương ứng 63 FCC, 33 HCP, 2820 Amor (hình 1d) và hàm phân bố xuyên tâm ứng với độ dài các liên kết Cu-Cu, Cu-Au, Au-Au là  $r_{\text{Cu-Cu}} = 2,65 \text{ \AA}$ ,  $r_{\text{Cu-Au}} = 2,63 \text{ \AA}$ ,  $r_{\text{Au-Au}} = 2,73 \text{ \AA}$ ; chiều cao của RDF là  $g(r)_{\text{Cu-Cu}} = 8,73$ ,  $g(r)_{\text{Cu-Au}} = 3,93$ ,  $g(r)_{\text{Au-Au}} = 4,73$ , kích thước (l),  $l = 6,73 \text{ nm}$ ,  $E_{\text{tot}} = -2,86 \text{ eV}$  (Hình 1e), và độ dài

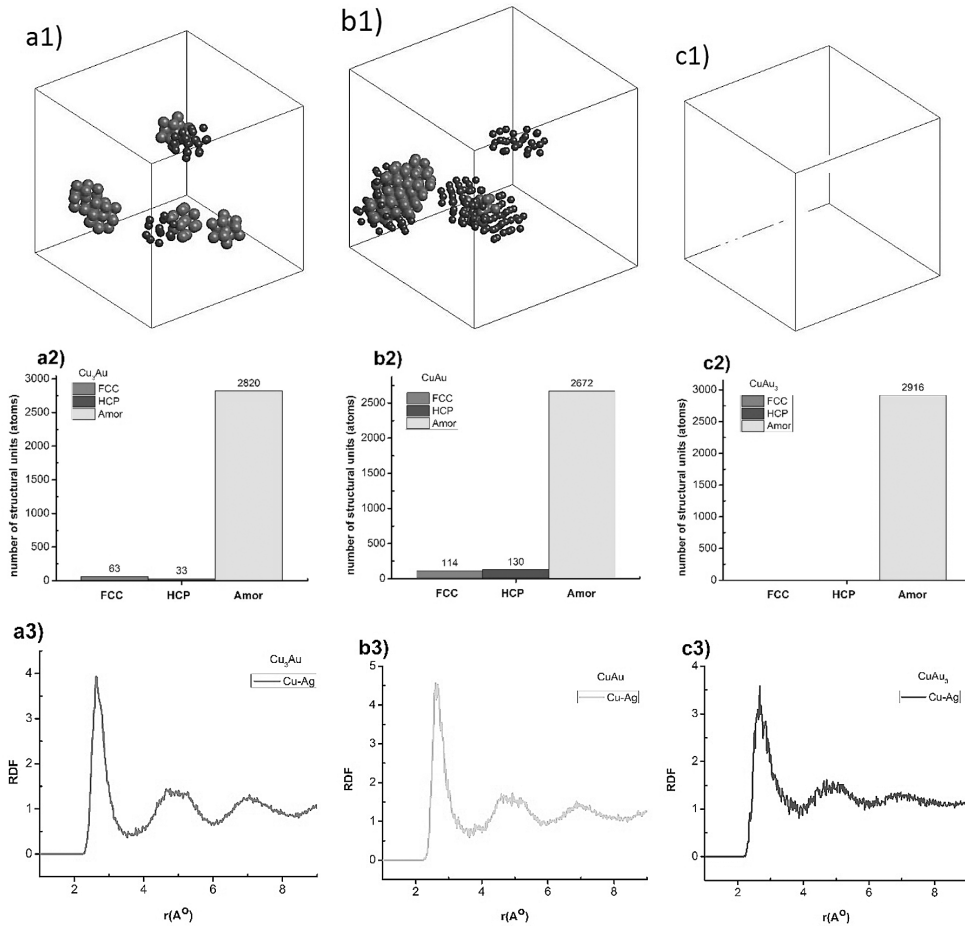
của liên kết Cu-Au được thể hiện  $r_{\text{Cu-Au}} = 2,63 \text{ \AA}$ ,  $g(r)_{\text{Cu-Au}} = 3,93$  trên (hình 1f). Để đơn giản trong suốt quá trình nghiên cứu các yếu tố ảnh hưởng lên cấu trúc, quá trình chuyển pha và quá trình kết tinh chúng tôi chỉ tập trung vào quan sát hình dạng cấu trúc, số đơn vị cấu trúc và hàm phân bố xuyên tâm (RDF) sẽ được trình bày ở phần sau.

**3.2. Các yếu tố ảnh hưởng**

**3.2.1. Ảnh hưởng của nồng độ pha tạp Au**

Các đại lượng đặc trưng cấu trúc, quá trình chuyển pha và quá trình kết tinh của hợp kim  $\text{Cu}_{1-x}\text{Au}_x$  sau khi pha tạp Au với tỷ lệ 25% Au, 50% Au, 75% Au ở nhiệt độ  $T = 300 \text{ K}$ . Các kết quả thu được được thể hiện trong Hình 2.

Các kết quả thu được cho thấy, hình dạng số đơn vị cấu trúc được thể hiện trên (hình 2a1, 2b1, 2c1) cho thấy. Khi tỷ lệ pha tạp Au trong  $\text{Cu}_{1-x}\text{Au}_x$  tăng từ 25% lên 75% thì quá trình kết tinh tăng ở 25% Au, đạt giá trị cực đại ở 50% Au và biến mất ở 75% Au. Nguyên nhân để xảy ra hiện tượng này là do nguyên tử Au có kích thước hằng số mạng  $a = 4,080 \text{ \AA}$  lớn



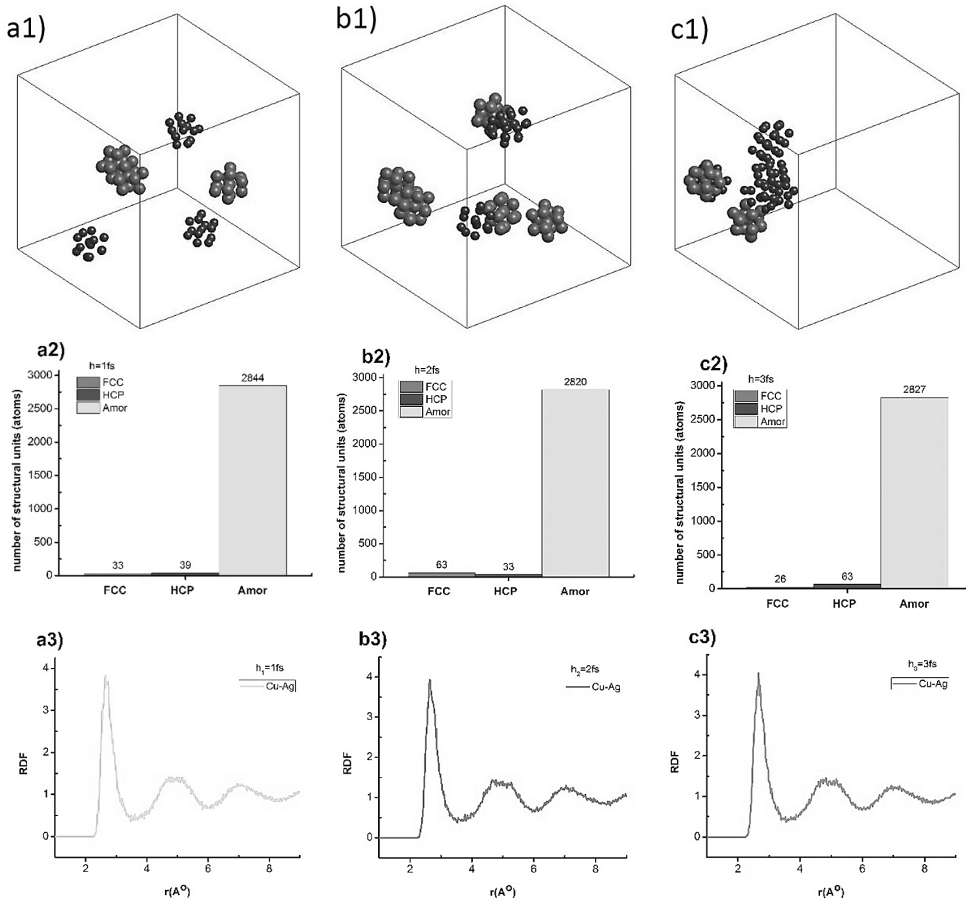
**Hình 2. Hình dạng số đơn vị cấu trúc (a1, b1, c1), số đơn vị cấu trúc (a2, b2, c2), hàm phân bố xuyên tâm của liên kết Cu-Au (a3, b3, c3) ở nhiệt độ  $T = 300$  K với nồng độ pha tạp Au trong hợp kim  $\text{Cu}_{1-x}\text{Au}_x$  khác nhau**

hơn hằng số mạng của nguyên tử Cu là  $a = 3,615$  Å dẫn đến nguyên tử Au không thể lấp đầy chỗ trống của nguyên tử Cu. Ngoài ra còn do sự tương tác điện từ giữa các nguyên tử Au-Au luôn lớn hơn so với các nguyên tử Cu-Cu. Chính điều này dẫn đến sự hình thành đám các tinh thể có cấu trúc FCC, HCP trong hợp kim  $\text{Cu}_{1-x}\text{Au}_x$  và xảy ra chủ yếu với nguyên tử Cu, còn nguyên tử Au chủ yếu tồn tại ở trạng thái vô định hình (hình 2a2, 2b2, 2c2). Kết quả này tương ứng với sự thay đổi số đơn vị cấu trúc FCC tăng từ 63 lên 114 rồi giảm về 0, HCP tăng từ 33 lên 130 rồi giảm về 0 và Amor giảm từ 2820 xuống 2672 và tăng 2916. Kết quả này cho thấy số đơn vị cấu trúc kết tinh đạt giá trị cực đại tại 50%Au và biến mất tại 75%Au. Khi đó dẫn đến độ dài liên kết của Cu-Au và độ cao hàm phân bố xuyên tâm  $g(r)$  thay đổi tương ứng với  $r_{\text{Cu-Au}}$  giảm từ 2,63 Å xuống 2,61 Å rồi tăng

lên 2,67 Å, kết quả thu được hoàn toàn phù hợp với kết quả thu được trước đó (Tuan & cs., 2022; Kart & cs., 2005] và độ cao hàm phân bố xuyên tâm  $g(r)$  Cu-Au tăng từ 3,93 lên 4,57 và giảm 3,59, kích thước (l) tăng rất lớn từ  $l = 6,73$  nm lên  $l = 8,07$  và 9,57 nm tương ứng với năng lượng tăng từ  $E_{\text{tot}} = -2,86$  eV lên -1,93 và -1,05 eV (hình 2a3, 2b3, 2c3). Với kết quả thu được chúng tôi chọn hợp kim  $\text{Cu}_{0,75}\text{Au}_{0,25}$  làm cơ sở cho các nghiên cứu trong các phần sau nguyên nhân là do với tỷ lệ pha tạp nhỏ của Au sẽ dễ xảy ra hiện tượng kết tinh.

### 3.2.2. Ảnh hưởng của bước thời gian

Các đặc trưng cấu trúc, quá trình chuyển pha, và quá trình kết tinh của hợp kim  $\text{Cu}_{0,75}\text{Au}_{0,25}$  sau khi tăng bước thời gian (h) từ  $h = 1$  fs lên  $h = 2$  fs và 3 fs ở nhiệt độ  $T = 300$  K. Các kết quả thu được, được thể hiện trong Hình 3.



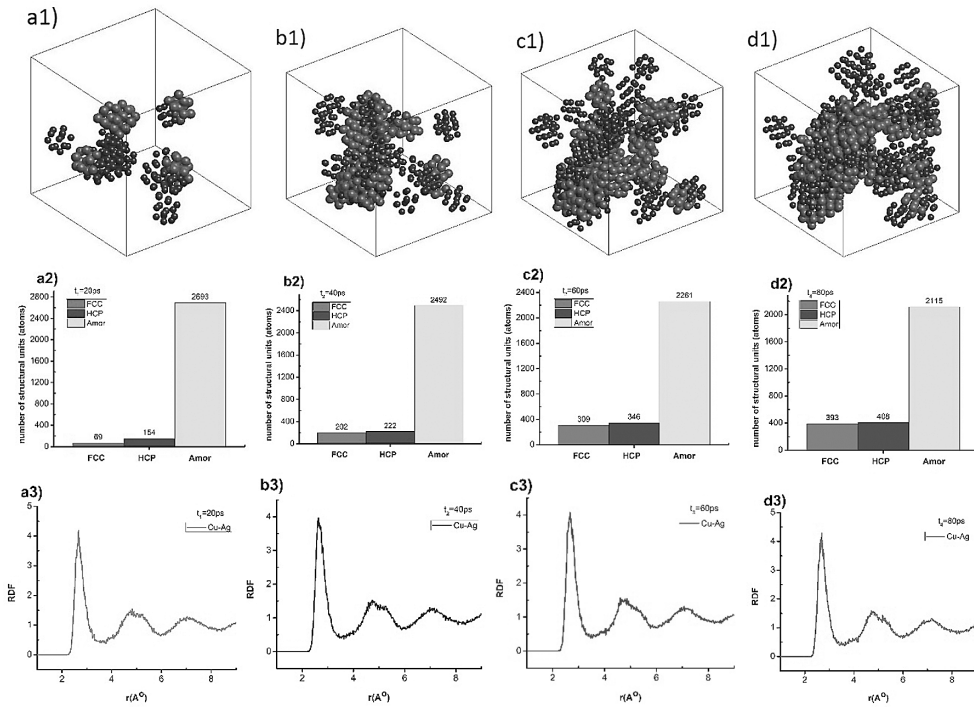
**Hình 3. Hình dạng số đơn vị cấu trúc (a1, b1, c1), số đơn vị cấu trúc (a2, b2, c2), hàm phân bố xuyên tâm của liên kết Cu-Au ở nhiệt độ  $T = 300$  K với bước thời gian khác nhau**

Các kết quả thu được cho thấy, hình dạng số đơn vị cấu trúc được thể hiện trên (hình 3a1, 3b1, 3c1) cho thấy. Khi tăng bước thời gian từ  $h = 1$  fs lên  $h = 2$  fs và 3 fs thì quá trình kết tinh bắt đầu xuất hiện xuất hiện ở  $h = 1$  fs, đạt giá trị cực đại tại  $h = 2$  fs và giảm ở  $h = 3$  fs (hình 3a1, 3b1, 3c1) tương ứng với số đơn vị cấu trúc thay đổi như FCC tăng từ 33 lên 63 rồi giảm về 26, HCP giảm từ 39 xuống 33 rồi tăng lên 63, Amor giảm từ 2844 xuống 2820 rồi tăng lên 2827, (hình 3a2, 3b2, 3c2). Sở dĩ có hiện tượng này là do khi tăng bước thời gian dẫn đến làm tăng thời gian của 1 bước gia nhiệt làm cho nguyên tử Cu và Au có thời gian tạo liên kết. Điều này cho thấy rằng, khi tăng  $h$  dẫn đến tăng sự kết tinh, kết quả được thể hiện thông qua độ dài của liên kết và độ cao hàm phân bố xuyên tâm của liên kết Cu-Au. Với  $r_{\text{Cu-Au}}$  giảm từ 2,65 Å xuống 2,63 Å rồi tăng lên 2,67 Å,  $g_{\text{Cu-Au}}(r)$  tăng từ 3,83 lên 3,93 và 3,93, kích thước, năng lượng tương tác thay đổi rất nhỏ xung

quang giá trị  $l = 6,73$  nm,  $E_{\text{tot}} = -2,86$  eV (hình 3a3, 3b3, 3c3), và làm tăng số đơn vị cấu trúc FCC và HCP và giảm số đơn vị cấu trúc Amor. Các kết quả thu được cho thấy có sự ảnh hưởng rất lớn của bước thời gian. Tuy nhiên, việc tăng bước thời gian dẫn đến tổng thời gian mô phỏng tăng mạnh dẫn đến việc lựa chọn cấu hình máy tính đáp ứng yêu cầu tính toán mạnh là rất cần thiết. Để đáp ứng yêu cầu nghiên cứu, chúng tôi chọn bước gia nhiệt là  $h = 2,0$  fs để thực hiện trong suốt quá trình nghiên cứu các trường hợp ảnh hưởng khác.

### 3.2.3. Ảnh hưởng của thời gian ủ nhiệt

Các đặc trưng cấu trúc, quá trình chuyển pha, và quá trình kết tinh của hợp kim  $\text{Cu}_{0.75}\text{Au}_{0.25}$  sau khi tăng thời gian ủ nhiệt ( $t$ ) từ  $t = 0$  ps lên  $t = 20, 40, 60, 80$  ps ở nhiệt độ  $T = 300$  K, với bước thời gian  $h = 2$  fs, nồng độ pha tạp 25% Au. Các kết quả thu được được thể hiện trong Hình 4.



**Hình 4. Hình dạng số đơn vị cấu trúc (a1, b1, c1), số đơn vị cấu trúc (a2, b2, c2), hàm phân bố xuyên tâm của liên kết Cu-Au ở nhiệt độ  $T = 300$  K, bước thời gian  $h = 2$  fs với thời gian ủ nhiệt khác nhau**

Các kết quả thu được cho thấy, hình dạng số đơn vị cấu trúc được thể hiện trên (hình 4a1, 4b1, 4c1) cho thấy. Khi tăng thời gian ủ nhiệt ( $t$ ) từ  $t = 0$  ps lên 20, 40, 60, 80 ps thì quá trình kết tinh tăng tương ứng với số đơn vị cấu trúc FCC, HCP và Amor thay đổi. Với FCC tăng từ 69 lên 202, 309, 393, FCC tăng từ 154 lên 222, 346, 408, Amor giảm từ 2693 xuống 2492, 2281, 2115 (hình 4a2, 4b2, 4c2). Sở dĩ có hiện tượng này là do khi tăng thời gian ủ nhiệt dẫn các nguyên tử Cu, Au có thời gian tăng liên kết và làm giảm năng lượng của hệ dẫn đến sự kết tinh tăng. Các kết quả thu được, được thể hiện thông qua độ dài liên kết và độ cao hàm phân bố xuyên tâm của liên kết Cu-Au thay đổi tương ứng với  $r_{Cu-Au}$  giảm từ 2,67 Å xuống 2,63 Å rồi tăng lên 2,67 và 2,69 Å; còn  $g(r)_{Cu-Au}$  giảm từ 4,20 xuống 3,97 rồi tăng lên 4,07 và 4,28; kích thước và năng lượng liên kết có giá trị không đổi tương ứng với  $l = 6,73$  nm,  $E_{tot} = -2,86$  eV (hình 4a3, 4b3, 4c3). Toàn bộ quá trình chuyển pha và kết tinh của hợp kim  $Cu_{0,75}Au_{0,25}$  cho thấy chúng luôn tuân theo chuyển pha loại I. Các kết quả này cho thấy có sự ảnh hưởng rất lớn của thời gian ủ nhiệt lên cấu trúc, quá trình chuyển pha, và quá trình tinh thể hóa của hợp kim. Quá trình nghiên cứu cho thấy, khi tăng nồng độ pha tạp lớn trên 50% Au vào hợp kim  $Cu_{1-x}Au_x$  thì xuất hiện hiện

tương hợp kim chuyển sang trạng thái vô định hình 100% điều đó chứng tỏ kích thước hằng số mạng của Au đã phá hủy cấu trúc của hợp kim. Với việc tăng bước thời gian và thời gian ủ nhiệt cho thấy quá trình kết tinh tăng. Với kết quả thu được sẽ làm cơ sở cho các nhà nghiên cứu thực nghiệm nghiên cứu với hợp kim  $Cu_{1-x}Au_x$  và ứng dụng chúng trong quang xúc tác.

#### 4. Kết luận

Sau quá trình nghiên cứu các yếu tố ảnh hưởng của nồng độ pha tạp, bước thời gian, và thời gian ủ nhiệt đến cấu trúc, quá trình chuyển pha, và quá trình kết tinh của hợp kim  $Cu_{1-x}Au_x$  chúng tôi nhận thấy. Việc sử dụng thế tương tác nhúng Sutton-Chen (SC) là phù hợp. Khi tăng nồng độ pha tạp Au từ 25% Au lên 75% Au thì quá trình kết tinh tăng tại 25% Au, đạt cực đại tại 50% Au, và biến mất ở 75% Au điều đó chứng tỏ với nồng độ pha tạp cao 75% Au dẫn đến Au đã phá hủy cấu trúc của hợp kim  $Cu_{1-x}Au_x$ . Quá trình này, ảnh hưởng rất lớn đến sự thay đổi độ dài liên kết, kích thước, năng lượng của hợp kim  $Cu_{1-x}Au_x$  khi thay đổi bước thời gian và thời gian ủ nhiệt. Các kết quả thu được về hợp kim  $Cu_{1-x}Au_x$  là rất hữu ích và có thể làm cơ sở cho các nghiên cứu thực nghiệm về hợp kim  $Cu_{1-x}Au_x$  và ứng dụng trong quang xúc tác.

**Lời cảm ơn:** Nghiên cứu này được tài trợ bởi Trường Đại học Công nghệ Giao thông Vận tải (UTT), Việt Nam theo số tài trợ: ĐTTĐ2021-10.

### Tài liệu tham khảo

- Alavi, S. (2020). Molecular simulations: fundamentals and practice. *Wiley-VCH Verlag GmbH: Weinheim, Germany*.
- Ali, R., & Kamran, B. (2017). Identification of crystal structures in atomistic simulation by predominant common neighborhood analysis. *Comput. Mater. Sci.* 126, 182–190. <http://dx.doi.org/10.1016/j.commatsci.2016.09.035>.
- Artrith, N., & Kolpak, A. M. (2015). Grand canonical molecular dynamics simulations of Cu–Au nanoalloys in thermal equilibrium using reactive ANN potentials. *Comput. Mater. Sci.* 110, 20–28. <http://dx.doi.org/10.1016/j.commatsci.2015.07.046>.
- Bond, G. C., Louis, C., & Thompson, D.T. (2006). Catalysis by Gold. World Scientific: Singapore.
- Çağın, T., Dereli, G., Uludogan, M., & Tomak, M. (1999). Thermal and mechanical properties of some fcc transition metals. *Phys. Rev. B*, 59, 3468–3473. <http://dx.doi.org/10.1103/physrevb.59.3468>.
- Cahn, R. W. (1990). in High Temperature Alluminides & Intermetallics/Ed. S.H. Whang et al. *TMS Warrendale, USA*, 245.
- Chen, S., Jenkins, S. V., Tao, J., Zhu, Y., & Chen, J. (2013). Anisotropic seeded growth of Cu–M (M = Au, Pt, or Pd) bimetallic nanorods with tunable optical and catalytic properties. *J. Phys. Chem. C*, 117, 8924–8932. <http://dx.doi.org/10.1021/jp4013653>.
- Corma, A., & Garcia, H. (2008). Supported gold nanoparticles as catalysts for organic reactions. *Chem. Soc. Rev.* 37, 2096–2126. <http://dx.doi.org/10.1039/b707314n>.
- Daw, M. S., & Baskes, M. I. (1989). Model of metallic cohesion: The embedded-atom method. *Phys. Rev. B*, 39, 7441. <http://dx.doi.org/10.1103/physrevb.39.7441>.
- Ercolessi, F., Parrinello, M., & Tosatti, E. (1988). Melting and equilibrium shape of icosahedral gold nanoparticles. *Phil. Mag. A*, 58, 213.
- Georg, Z., Michele, R., Clemens, M., Daniel, S., Cesare, F., & Jani, K. (2020). CuAu, a hexagonal two-dimensional metal, *2D. Mater.*, 7, 045017. <http://dx.doi.org/10.1088/2053-1583/ab9c39>.
- Hoover, W. G. (1985). Canonical dynamics: Equilibrium phase-space distributions. *Phys. Rev. A*, 31, 1695–1697. <http://dx.doi.org/10.1103/physreva.31.1695>.
- Iwai, H., Umeki, T., Yokomatsu, M., & Egawa, C. (2008). Methanol partial oxidation on Cu–Zn thin films grown on Ni(1 0 0) surface. *Surf. Sci.* 602, 2541–2546. <http://dx.doi.org/10.1016/j.susc.2008.06.001>.
- Jacek, D. (2009). Quantum classical calculations of the nanomechanical properties of metals. *Task Q.* 13, 207–310.
- Kart, H. H., Tomak, M., & Çağın, T. (2005). Thermal and mechanical properties of Cu–Au intermetallic alloys, *Modelling Simul. Mater. Sci. Eng.* 13, 657–669. <http://dx.doi.org/10.1088/0965-0393/13/5/002>.
- Li, Q., Peng, X., Peng, T., Tang, Q., Zhang, X., & Huang, C. (2015). Molecular dynamics simulation of Cu/Au thin films under temperature gradient. *Appl. Surf. Sci.* 357, 1823–1829. <http://dx.doi.org/10.1016/j.apsusc.2015.10.051>.
- Nemoshkalenko, V. V., Chuistov, K. V., Aleshin, V.G., & Senkevich, A.I. (1976). Changes in energy structure of Cu<sub>3</sub>Au and CuAu<sub>3</sub> alloys studied by the method of X-ray photoelectron spectroscopy. *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.* 9, 169–173. [http://dx.doi.org/10.1016/0368-2048\(76\)81026-2](http://dx.doi.org/10.1016/0368-2048(76)81026-2).
- Nose, S. A. (1984). Unified formulation of the constant temperature molecular dynamics methods. *J. Chem. Phys.* 81, 511–519. <https://doi.org/10.1063/1.447334>.
- Pfeiler & Sprusil, B. (2002). Atomic ordering in alloys: Stable states and kinetics. *Mater. Sci. Eng. A*, 324, 34–42. [http://dx.doi.org/10.1016/S0921-5093\(01\)01280-1](http://dx.doi.org/10.1016/S0921-5093(01)01280-1).
- Sharif, N., Rosaria, B., Pablo, G., Sergio, M., Liberato, M., & Massimo, C. (2015). Nanoscale transformations of Alumina-supported AuCu



ordered phase nanocrystals and their activity in CO oxidation, *ACS Catalysis*, 5, 2154-2163. <http://dx.doi.org/10.1021/cs501923x>.

The Materials Project. (2020). Materials data on CuAu by materials project; *U.S. Department of Energy Office of Scientific and Technical Information: Berkeley, CA, USA*.

Tuan, T. Q., Van, C. L., Stefan, T., & Dung, N. T. (2022). Molecular dynamics study on the crystallization process of cubic Cu–Au alloy, *Appl. Sci.* 12, 946 (15). <http://dx.doi.org/10.3390/app12030946>.

Verlet, L. (1967). Computer "experiments" on classical fluids. I. Thermodynamical properties of Lennard-Jones molecules. *Phys. Rev. B*, 159, 98–103. <http://dx.doi.org/10.1103/physrev.159.98>.

Xu, Y. H. & Wang, J. P. (2008). Direct Gas-phase synthesis of heterostructured nanoparticles through phase separation and surface segregation. *Adv. Mater.* 20, 994–999. <http://dx.doi.org/10.1002/adma.200602895>.

### Sự đóng góp của tác giả:

Trần Quốc Tuấn, Ông Văn Hoàng, Nguyễn Thị Thu Cúc: viết, chuẩn bị và viết bản thảo gốc.

Nguyễn Trọng Dũng: khái niệm hóa, phương pháp, xác nhận, điều tra, viết, chuẩn bị bản thảo gốc, chỉnh sửa và liên hệ.

Tất cả các tác giả đã đọc và đồng ý với phiên bản đã xuất bản của bản thảo.

**Xung đột lợi ích:** Các tác giả tuyên bố không có xung đột lợi ích. Các nhà tài trợ không có vai trò gì trong việc thiết kế nghiên cứu; trong việc thu thập, phân tích hoặc giải thích dữ liệu; trong việc viết bản thảo hoặc trong quyết định công bố kết quả.

**Tuyên bố về tính sẵn có của dữ liệu:** Dữ liệu hỗ trợ cho kết quả của nghiên cứu này được cung cấp bởi tác giả liên hệ theo yêu cầu hợp lý.

### ORCID

Trần Quốc Tuấn, <https://orcid.org/0000-0002-3267-0696>.

Nguyễn Trọng Dũng, <http://orcid.org/0000-0002-7706-1392>.