

СТРОИТЕЛЬНЫЕ МАТЕРИАЛЫ И ИЗДЕЛИЯ

УДК: 669.24' 783:539.389.1

*АБЗАЕВ ЮРИЙ АФАНАСЬЕВИЧ, докт. физ.-мат. наук, профессор,
abzaev2010@yandex.ru*

*КОПАНИЦА НАТАЛЬЯ ОЛЕГОВНА, докт. техн. наук, профессор,
kopanitsa@mail.ru*

*КЛИМЕНОВ ВАСИЛИЙ АЛЕКСАНДРОВИЧ, докт. техн. наук, профессор,
nauka@tsuab.ru*

*САРКИСОВ ЮРИЙ СЕРГЕЕВИЧ, докт. техн. наук, профессор,
sarkisov@tsuab.ru*

*ГОРЛЕНКО НИКОЛАЙ ПЕТРОВИЧ, докт. техн. наук, профессор,
gorlen52@mail.ru*

*ДЕМЬЯНЕНКО ОЛЬГА ВИКТОРОВНА, аспирант,
angel_n@sibmail.com*

*Томский государственный архитектурно-строительный университет,
634003, г. Томск, пл. Соляная, 2*

*ЗАВЬЯЛОВ АЛЕКСЕЙ ПАВЛОВИЧ, аспирант,
Zav_Alexey@list.ru*

*Институт теоретической и прикладной механики
им. С.А. Христиановича Сибирского отделения Российской академии наук,
630090, г. Новосибирск, ул. Институтская, 4/1*

МОДЕЛИРОВАНИЕ СТРУКТУРНОГО СОСТОЯНИЯ АМОРФНОГО ТАРКОСИЛА*

В работе проведено исследование структурного состояния диоксида кремния SiO₂ (Таркосил) методами рентгеноструктурного анализа и имитационного моделирования. Установлено, что исследованные нанопорошки диоксида кремния находятся в аморфном состоянии. Проведено моделирование аморфного состояния решеток SiO₂ и β-SiO₂ в рамках молекулярной динамики. Из первых принципов показано, что полученные домены аморфных фаз SiO₂ и β-SiO₂ являются стабильными. Количественный фазовый анализ нанопорошков Таркосил на основе метода Ритвельда (с учетом энергии решетки) показал, что диоксид кремния с высокой степенью согласия состоит из смеси SiO₂ и β-SiO₂. Доминирующей фазой является аморфный SiO₂. В результате полнопрофильного уточнения определены структурные параметры фаз: оптимизированные размеры доменов диоксида кремния, а также атомное распределение.

* Исследование выполнено при финансовой поддержке работ по проекту Министерства образования и науки Российской Федерации.

Ключевые слова: метод Ритвельда; параметр решетки; фазовый анализ; аморфное состояние.

YURI A. ABZAEV, DSc, Professor,

abzaev@tsuab.ru

NATAL'YA O. KOPANITSA, DSc, Professor,

kopanitsa@mail.ru

VASILII A. KLIMENOV, DSc, Professor,

nauka@tsuab.ru

YURII S. SARKISOV, DSc, Professor,

yu-s-sarkisov@yandex.ru

NIKOLAI P. GORLENKO, DSc, Professor,

gorlen52@mail.ru

OLGA V. DEM'YANENKO, Research Assistant,

angel_n@sibmail.com

Tomsk State University of Architecture and Building,

2, Solyanaya Sq., 634003, Tomsk, Russia

ALEKSEI P. ZAVYALOV, Research Assistant,

Zav_Alexey@list.ru

Khristianovich Institute of Theoretical and Applied Mechanics SB RAS,

4/1, Institutskaya Str., 630090, Novosibirsk, Russia

STRUCTURAL STATE MODELING OF AMORPHOUS TARKOSIL

The paper presents a study of the structural state of silicon dioxide SiO_2 (tarkosil) by the x-ray structural analysis and mathematical simulation. It is stated that Tarkosil nanopowders are in the amorphous state. The amorphous state model is presented for SiO_2 and $\beta\text{-SiO}_2$ lattices within the framework of molecular dynamics. It is shown that domains of amorphous phases SiO_2 and $\beta\text{-SiO}_2$ are stable. The quantification analysis of tarkosil using the Rietveld method shows that silicon dioxide comprises the mixture of SiO_2 and $\beta\text{-SiO}_2$. The dominant phase is amorphous SiO_2 . The structural parameters of phases are obtained, namely: optimized sizes of silicon dioxide domains and atomic arrangement.

Keywords: lattice parameter; Rietveld method; phase analysis; amorphous state.

Введение

Со времен И.А. Хинта [1–4] и до наших дней как у нас в стране, так и за рубежом проводятся многочисленные исследования по получению различных форм аэросила и обоснованию областей их применения. Если способы, впервые предложенные И.А. Хинтом, относятся к методам диспергирования до микро- и наноразмеров, то так называемые золь-гель технологии, напротив, являются одной из разновидностей методов конденсации [5–7]. Еще один способ получения нанодисперсного диоксида кремния (Таркосил) реализован в Институте теоретической и прикладной механики СО РАН и Институте ядерной физики СО РАН (г. Новосибирск).

Нанодисперсный диоксид кремния, полученный способом испарения вещества под действием электронного пучка, создаваемого электронным

ускорителем, получил название «Таркосил Т» [8–12]. Установлено, что свойства всех форм нанодисперсного SiO_2 , полученного разными способами, существенно отличаются друг от друга. Так, аэросил, полученный по методу И.А. Хинта, обладает кристалличностью и сравнительно невысокой долей содержания аморфных фаз. Нанодисперсный микрокремнезём, полученный по золь-гель технологиям, содержит уже значительную долю аморфного SiO_2 , а, как показали первые исследования Таркосила, доля аморфизации структуры в нем достигает 97–99 %.

Исследование структурного состояния нано- SiO_2 представляет значительный научный и прикладной интерес. Практическое применение Таркосила с размерами частиц менее 100 нм обусловлено способностью нанопорошков придавать модифицированным материалам новые свойства. Например, керамика из нанопорошков диоксида кремния обладает повышенной прочностью и микротвердостью. Также наблюдается значительное изменение микроструктуры и фазового состава оксидных слоев силумина с добавками диоксида кремния. В то же время в литературе отсутствуют систематические рентгеноструктурные исследования кристаллохимических свойств и имитационного моделирования аморфных структур в рамках молекулярной динамики (МД) с целью полной структурной идентификации доменов Таркосила. Научный интерес авторов связан с анализом структурного состояния и стабильности Таркосила в аморфном состоянии, идентификации распределения атомов в оптимизированной ячейке диоксида кремния.

Целью настоящей работы является изучение структурного состояния добавки Таркосил с разной удельной поверхностью, полученной по методу [10–12], идентификация методом Ритвельда структурного состояния и количественного содержания аморфных фаз, определение размеров доменов и координат атомов в них.

Методика эксперимента и имитационного моделирования решетки Таркосила

В качестве объектов исследования были выбраны нанопорошки: Таркосил 2002 ($S_{\text{уд}} = 38 \text{ м}^2/\text{г}$) и Таркосил Т10 ($S_{\text{уд}} = 91 \text{ м}^2/\text{г}$). Рентгеноструктурные исследования образцов Таркосила проводились на дифрактометре ДРОН 4-07, который был модифицирован к цифровой обработке сигнала. Съёмки производились на медном излучении (K_{α}) по схеме Брегга – Брентано с шагом $0,02^\circ$, временем экспозиции в точке 1 с, в угловом диапазоне $17\text{--}92^\circ$. Напряжение на рентгеновской трубке составляло 30 кВ, а ток пучка 25 мА.

Количественный фазовый анализ (КФА) Таркосила проводился на основе модифицированного метода Ритвельда, учитывающего энергию решеток фаз материала [13]. Энергия решеток анализируется в рамках молекулярной динамики. В КФА минимизируется относительная разность интегральной и экспериментальной интенсивностей отдельных фаз. Интенсивность фонового излучения на дифрактограммах в работе аппроксимируется многочленом 20-й степени. Интенсивности отдельных фаз позволяют оценить самосо согласо-

ванном образом вклад в интегральную интенсивность, а также структурные параметры решеток фаз [13–15].

В литературе указывается [10], что Таркосил состоит из аморфного вещества SiO_2 . В работе с целью идентификации аморфного состояния Таркосила использовалась база эталонных структур COD [13]. Анализировались эталонные оксиды SiO_2 различных модификаций. В рамках молекулярной динамики (МД) исходные полные структурные данные кристаллических оксидов SiO_2 аморфизировались в Amorphous и использовались в дальнейшем для КФА Таркосила методом Ритвельда. Имитационное моделирование аморфного вещества – на основе кристаллических решеток SiO_2 и $\beta\text{-SiO}_2$. Описание работы в Amorphous приводится в работе [Там же]. Эталонные оксиды SiO_2 и $\beta\text{-SiO}_2$ [15] состоят из 144 и 13 атомов соответственно, для которых известны относительные координаты атомов, параметры элементарных ячеек и пространственные группы. Имитационное моделирование осуществлялось в универсальном силовом поле [Там же]. В силовом поле учитывались только парные невалентные вклады – это кулоновское (электростатическое) взаимодействие и вклады сил Ван-дер-Ваальса (ВдВ). В последнем случае применялся потенциал Леннарда – Джонса. Радиус обрезания электростатических сил равнялся 1,85 нм. Точность оценки силового взаимодействия Ван-дер-Ваальса составляла 10^{-5} ккал/моль. Молекулярное моделирование траекторий атомов осуществлялось при комнатной температуре с временным шагом 1 fs. Начальные скорости атомов выбирались из распределения Больцмана, использовались периодические граничные условия для элементарных ячеек. Расчеты траектории атомов производились в условиях микроканонического ансамбля, в котором сохраняется заданное число атомов, объем (атомная плотность ячеек фиксирована) и температура (температурное окно – 10 К). Рассматривалось 1000 итераций. Начальными условиями расчетов были плотность атомов, температура. Далее для аморфных оксидов рассчитывалась плотность энергии домена в зависимости от весовой атомной плотности в интервале 1,5–3,0 г/см³ с целью достижения оптимизированного состояния, когда полная энергия домена оказывалась минимальной. Для оксида SiO_2 плотность энергии оказалась равной –182,530 ккал/моль, а для $\beta\text{-SiO}_2$ она равна –15,836 ккал/моль при весовой атомной плотности 2,2 и 1,95 г/см³ соответственно. Атомная плотность определяет размеры кубического «домена», где сосредоточены атомы исследуемых оксидов. В результате проведенной процедуры было достигнуто аморфное состояние SiO_2 и $\beta\text{-SiO}_2$ с установленным пространственным распределением атомов, на которых достигнуто силовое равновесие. Для оксидов нарушен дальний порядок, но сохраняется ближний порядок. Если присвоить доменам примитивную пространственную группу, тогда они идентифицируются как элементарные ячейки оксидов SiO_2 и $\beta\text{-SiO}_2$. Следовательно, для доменов SiO_2 и $\beta\text{-SiO}_2$ могут быть рассчитаны структурные факторы и интегральные интенсивности с целью определения КФА таркосила.

Стабильность и количественный фазовый анализ Таркосила

Структурные параметры аморфных оксидов SiO_2 и $\beta\text{-SiO}_2$ представлены в табл. 1, в которой приведены также номера карточек исходных кристалличе-

ских фаз SiO₂, β-SiO₂ из базы COD [15]. В работе анализировалась из первых принципов энергия смешения аморфных SiO₂ и β-SiO₂ с целью определения фазовой стабильности доменов. Структурные параметры оксидов SiO₂, β-SiO₂ и Si, O₂ полностью определяют входные данные расчетов полной энергии решеток указанных фаз (табл. 1).

Таблица 1

Структурные параметры аморфных оксидов SiO₂ и β-SiO₂ в исходном состоянии

Номер карточки	Фаза	a (нм)	b (нм)	c (нм)	α (град)	β (град)	γ (град)	Простр. группа
96-901-3493	SiO ₂	1,97977	1,94267	1,40507	94,13	96,35	77,78	P1 Triclinic
96-591-0148	β-SiO ₂	0,9931	0,9931	0,63392	108,61	71,38	64,73	P1 Triclinic
96-151-2542	Si	0,54689	0,54689	0,54689	90,00	90,00	90,00	Fd-3m Cubic
96-901-1648	O ₂	0,6780	0,6780	0,6780	90,00	90,00	90,00	Pm-3m Cubic

Для решеток SiO₂, β-SiO₂ и Si, O₂ известными являются также относительные координаты атомов. Расчеты производились при 0 К в рамках функционала электронной плотности, стандартным псевдопотенциалом локальной электронной плотности (LDA), детали кода приведены в работах [16–18]. Волновые функции валентных электронов анализировались в базисе плоских волн с радиусом обрезания кинетической энергии в 330 эВ. Энергия смешения вычисляется по формуле

$$E_c = E_t - [xE_{Si} + yE_{O_2}], \quad (1).$$

где E_t – полная энергия окисла SiO₂ или β-SiO₂; x, y – относительное число атомов, входящих в SiO₂ или β-SiO₂; E_{Si}, E_{O_2} – полные энергии Si, O₂. Результаты расчетов полной энергии окислов SiO₂, β-SiO₂ и Si, O₂ приведены в табл. 2.

Таблица 2

Энергия доменов оксидов SiO₂, β-SiO₂ и решеток фаз Si, O₂

Фазы	Число атомов			Энергия, эВ
	домен	Si	O	
SiO ₂	144	48	96	-46346,584
β-SiO ₂	13	4	9	-4299,005
Si	18			-1728,409
O ₂	8			-3271,886

Из данных табл. 2 следует, что для аморфного домена SiO_2 энергия смешения равна $E_c = -46349,584 - [-(48/18) \cdot 865,142 - 12 \cdot 3271,886] = -46349,584 + 46183,768 = -165,816$ эВ. Энергия смешения аморфного домена $\beta\text{-SiO}_2$ есть $E_c = -4299,005 - [-(4/18) \cdot 865,142 - (9/8) \cdot 3271,886] = -4299,005 + 3873,126 = -425,88$ эВ. Отрицательные энергии смешения доменов указывают на стабильность аморфных конфигураций атомов в окислах SiO_2 и $\beta\text{-SiO}_2$. Для доменов фаз SiO_2 и $\beta\text{-SiO}_2$ (рис. 1) в оптимизированном аморфном состоянии с присвоенной примитивной пространственной группой (P1, триклинная система, табл. 1) и известными относительными координатами атомов возможно рассчитать структурный фактор и интегральную интенсивность. Фазы SiO_2 и $\beta\text{-SiO}_2$ могут быть использованы для полнопрофильного уточнения структурных параметров доменов, а также для КФА Таркосила в двух модификациях.

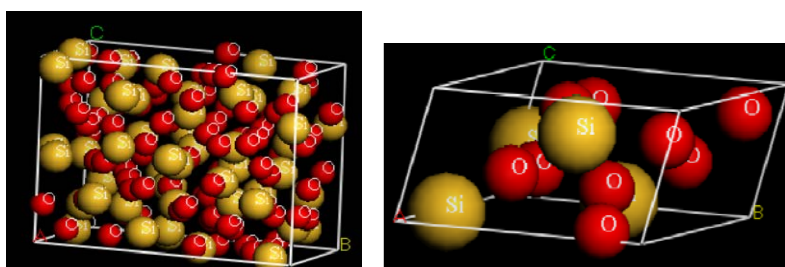


Рис. 1. Пространственное распределение атомов в доменах фаз SiO_2 и $\beta\text{-SiO}_2$

На рис. 2, 3 приведены дифрактограммы Таркосила, которые различаются размерами нанопорошков, а также результаты КФА расчетов интенсивностей доменов фаз SiO_2 и $\beta\text{-SiO}_2$ в аморфном состоянии. На рисунках приведены также разности между расчетными интегральными интенсивностями и экспериментальными дифрактограммами. Данные о разности интенсивностей (рис. 2, 3) свидетельствуют о хорошей аппроксимации теоретическими интенсивностями экспериментальных дифрактограмм Таркосила двух модификаций.

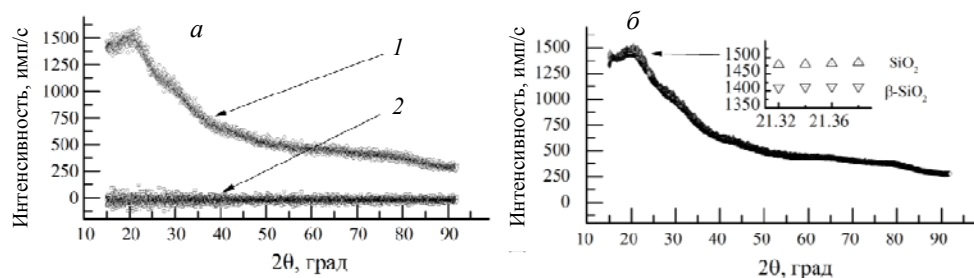


Рис. 2. Дифрактограмма Таркосила 2002:

a – эксперимент (1); разность между экспериментальной и теоретической дифрактограммами (2); *б* – расчетные дифрактограммы модельных фаз SiO_2 и $\beta\text{-SiO}_2$

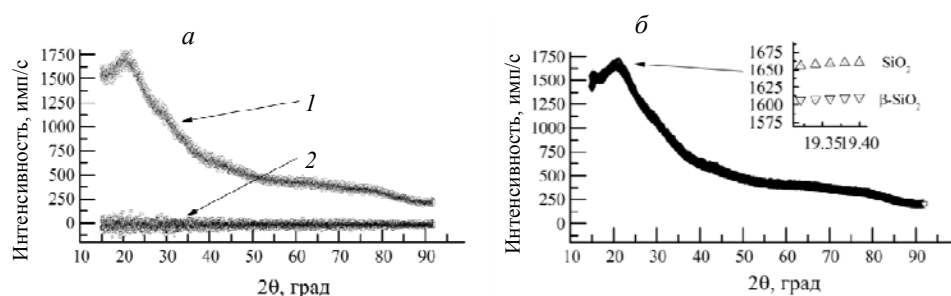


Рис. 3. Дифрактограмма Таркосила Т 10:

a – эксперимент (1); разность между экспериментальной и теоретической дифрактограммами (2); *б* – расчетные дифрактограммы модельных фаз SiO₂ и β-SiO₂

Количественная оценка разности оценивалась по критериям сходимости, которые приведены в табл. 3 и которые оказались равными $R_{wp} = 3,798$ и 3,864 %, табл. 3. Критерии согласия количественно оценивают относительную разность теоретической и экспериментальной дифрактограмм. Значения критериев свидетельствуют о высокой степени совпадения суперпозиции интенсивностей фаз SiO₂ и β-SiO₂ в аморфном состоянии и экспериментальной дифрактограммы.

В табл. 3 приведены доли фаз SiO₂ и β-SiO₂ в интегральной интенсивности Таркосила двух модификаций. КФА показал, что вклад интенсивности от фазы SiO₂ оказывается доминирующим (около 87 %, табл. 3), а фазы от β-SiO₂ она составляет около 6 %. Суммарный вклад аморфных фаз SiO₂ и β-SiO₂ является определяющим (свыше 97 %). Фазы SiO₂ и β-SiO₂ являются основными составляющими Таркосила. В табл. 3 приведено их количественное содержание. Полная идентификация структурного состояния фаз SiO₂ и β-SiO₂ включает в себя не только структурные данные (табл. 1), но и данные об относительных координатах атомов в доменах оптимизированных размеров. Координаты атомов приведены в табл. 4–6.

Таблица 3

Данные качественного фазового анализа образцов

Образец	Фазы	Интенсивность, %	Весовая доля, %	R_{wp}
Таркосил 2002	SiO ₂	87,28	93,90	3,798
	β-SiO ₂	10,40	6,01	
Таркосил Т 10	SiO ₂	87,50	93,91	3,864
	β-SiO ₂	9,86	6,09	

Таблица 4

Координаты атомов в аморфной фазе β -SiO₂

Таркосил 2002, фаза β -SiO ₂				Таркосил Т 10, фаза β -SiO ₂					
	x	y	z	Экв.		x	y	z	Экв.
Si	0.42854	0.92087	1.01875	0.01267	Si	0.57544	0.94439	0.99221	0.01267
O	0.15687	1.56848	1.13996	0.01267	O	0.78329	1.70975	0.90206	0.01267
Si	0.77592	1.10469	1.1593	0.01267	Si	0.97448	1.01382	1.2177	0.01267
O	0.65972	1.25142	1.16512	0.01267	O	0.74273	1.48392	0.94194	0.01267
Si	1.1848	0.54004	0.77673	0.01267	Si	1.00893	0.56004	0.86147	0.01267
O	1.09829	0.30145	0.50771	0.01267	O	1.35459	0.27651	0.86625	0.01267
Si	0.91859	0.4952	0.53451	0.01267	Si	0.64121	0.3636	0.76309	0.01267
O	0.93245	0.17545	0.84258	0.01267	O	1.0786	0.30562	0.41322	0.01267
O	1.39444	0.91344	0.45752	0.01267	O	1.24515	0.89082	0.56956	0.01267
O	0.48498	0.58154	1.05825	0.01267	O	0.59714	0.6643	0.54747	0.01267
O	0.38857	1.30233	0.24718	0.01267	O	0.38631	1.41876	-0.00245	0.01267
O	1.29518	0.84229	1.26975	0.01267	O	1.09354	0.84036	1.21643	0.01267
O	0.92666	0.79836	1.04734	0.01267	O	0.92666	0.79836	1.04734	0.01267

Таблица 5

Координаты атомов в аморфном домене SiO₂, Таркосил 2002

		x	y	z	Экв.			x	y	z	Экв.
1	Si	0.07406	0.3172	0.333	0.00613	73	Si	0.24556	0.054	-0.76215	0.00519
2	Si	0.25947	0.37981	-0.71385	0.01293	74	Si	0.66762	-0.47918	-1.27186	0.01763
3	Si	0.07918	0.90517	0.21707	0.01728	75	Si	0.34017	0.06099	-0.52835	0.01055
4	Si	0.32639	0.47817	0.61175	10 ⁻⁵	76	Si	0.65786	-0.42348	-0.98737	0.01247
5	Si	0.09931	0.41855	0.18482	0	77	Si	0.47217	-0.65487	-1.08587	0.01481
6	Si	0.3738	0.39664	0.09077	5E-4	78	O	-0.05495	0.34435	0.07392	0.01477
7	Si	0.33301	0.12825	-0.28601	0.0176	79	O	0.25349	0.20228	-0.65403	0.01441
8	Si	0.38234	-0.12694	0.02439	5.1E-4	80	O	0.82265	-0.73125	-1.04996	3.3E-4
9	O	0.02343	0.15554	0.06021	0.02885	81	O	0.452	0.25497	-0.08514	0.00219
10	O	0.0557	0.66065	0.18435	0.01562	82	O	0.41523	-0.04915	-0.35751	0.01436
11	O	0.1944	0.53514	0.11755	0.01455	83	O	0.48234	-0.30065	-0.27159	0.02185
12	O	0.03605	0.32955	-0.40919	0.01709	84	O	0.85231	-0.40432	-0.95998	0.01405
13	O	0.20798	0.57895	0.72588	0.00588	85	O	0.92823	-0.43261	-0.74784	0.01827
14	O	0.32672	0.54627	0.25751	0.01491	86	O	0.75313	-0.24695	-0.88825	0.02325
15	O	0.17955	0.56179	0.3773	0.00809	87	Si	0.66669	0.06365	-1.00891	0.01906
16	O	0.44722	0.5893	0.15977	0.01255	88	Si	0.67797	0.03537	-0.38423	0.01586
17	O	0.23726	0.20576	0.07807	0.05378	89	Si	0.47034	-0.14954	-0.56707	0.00263
18	O	0.30525	0.31535	-0.18021	0.01694	90	Si	1.0114	-0.49567	-0.64431	0.00898
19	O	0.38194	0.11882	0.01268	0.00626	91	O	0.37168	0.02031	-1.18959	0.01016
20	O	0.74787	0.29075	-0.2631	1.6E-4	92	O	0.68176	-0.0434	-1.12279	0.0082
21	O	0.05713	0.46032	0.77045	0.01513	93	O	0.57584	-0.15576	-1.23272	0.01211
22	O	0.34398	0.23321	0.12288	0.01472	94	O	0.61823	-0.14518	-0.78811	0.0137
23	O	0.51576	0.02486	-0.1961	0.01501	95	O	0.60858	0.17075	-0.5622	0.00368
24	Si	0.90899	-0.54901	-1.70939	1.3 10 ⁻⁴	96	O	0.75401	-0.19764	-0.36559	0.01343
25	O	0.81611	-0.53103	-1.09946	0.007	97	O	0.77322	-0.10775	-0.57635	1.3E-4
26	O	0.77463	-0.03638	-1.34559	0.00325	98	O	0.88777	-0.27024	-0.83121	0.01405
27	O	0.82546	-0.39271	-1.1366	0.02104	99	O	0.67643	0.05881	-0.27771	0.01598
28	O	0.25439	0.45244	-0.30751	0.00615	100	O	0.73361	-0.41702	-0.20835	0.03205
29	Si	0.43456	0.90291	2.14894	0.01167	101	Si	0.93902	0.09863	1.01939	3 10 ⁻⁴
30	Si	0.65002	0.85594	2.11679	0.03982	102	O	0.74169	0.32196	1.29944	0.01549
31	Si	0.69735	0.58947	1.84001	0.01006	103	O	1.03316	-0.14883	0.85612	0.01463
32	O	0.14601	0.74533	1.70774	0.01405	104	Si	0.9251	0.23983	1.64324	0.03822
33	O	0.6627	0.83739	1.43628	0.01449	105	Si	1.3476	-0.07547	0.59723	0.01251
34	O	0.45603	0.41811	1.30604	0.00566	106	O	0.8355	0.241	1.18454	0.00282
35	O	1.44669	-0.27759	0.02165	0.01449	107	O	1.24589	-0.00631	0.75203	0.00367
36	O	0.79266	0.43974	1.38081	0.02367	108	O	1.12827	-0.22853	0.90745	0.00918
37	O	0.32514	0.58475	1.00176	0.01464	109	Si	0.49368	-0.05182	-0.09486	6.8 10 ⁻⁴
38	O	0.20556	0.42384	0.87581	0.00502	110	Si	0.88685	-0.10101	0.01468	0.01705
39	Si	0.22202	1.00824	1.0069	0.0133	111	Si	0.61919	-0.30803	-0.43624	0.01077
40	Si	0.33275	0.77063	0.73705	0.01235	112	Si	0.90942	0.08272	0.43929	0.01629
41	Si	0.3248	0.52053	0.98067	0.00769	113	Si	0.78037	-0.39688	0.36188	8.6E-4
42	Si	0.07806	0.50909	0.7834	0.01282	114	Si	1.15603	-0.30826	-0.0357	0.01718
43	Si	0.39086	0.11222	0.15405	0.00167	115	O	0.56161	-0.02259	0.36647	0.01449
44	Si	0.43094	0.68288	1.58854	0.01913	116	O	0.64165	-0.02986	0.23461	0.00339
45	Si	0.31559	0.98662	1.61529	2.8E-4	117	O	0.52712	-0.00294	0.28998	9.9E-4
46	Si	0.58067	0.68843	1.26274	0.01628	118	O	0.71237	0.24089	0.0832	0.01463
47	Si	0.74282	0.42649	1.16467	0.00532	119	O	0.80442	-0.22118	-0.02509	0.00482
48	Si	0.4257	0.28064	1.01339	0.00349	120	O	1.10823	-0.05269	-0.58515	0.00794
49	Si	0.61965	0.29698	0.63802	0.02074	121	O	0.8479	0.06742	0.42392	0.01172
50	O	0.20413	0.8569	0.84503	0.01641	122	O	0.56299	0.1458	0.42082	0.01494
51	O	0.47732	0.58492	0.66922	0.01772	123	O	1.13358	-0.27602	0.45253	0.00975
52	O	0.15569	0.29035	0.76159	0.01499	124	O	0.85507	-0.15683	0.49188	0.01423
53	O	0.53806	0.41891	0.66254	0.01469	125	O	1.0357	-0.45955	-4 10 ⁻⁴	0.01064
54	O	0.23106	0.666	0.93205	0.00347	126	O	1.12593	0.25985	1.21505	0.01049
55	O	0.6517	0.75991	0.8865	0.00575	127	O	1.08076	-0.51522	0.23018	0.01413
56	O	0.52417	0.16643	0.70832	0.0198	128	Si	0.51932	0.3552	0.51881	0.05469
57	O	0.32042	1.00365	1.07725	0.01337	129	Si	0.8707	-0.0341	-0.27876	0.02507
58	O	0.5375	0.5181	1.35431	0.01647	130	Si	1.04297	-0.06958	-0.22375	0.03315
59	O	0.37745	0.85833	1.68655	0.00766	131	Si	0.75078	0.45239	0.66833	0.0074
60	O	0.41921	0.77792	1.3307	0.01647	132	Si	0.97587	-0.14737	0.31021	0.00916
61	O	0.46211	0.63089	1.1347	7 10 ⁻⁵	133	Si	1.1036	-0.11521	0.10997	0.02018
62	O	0.67301	0.35629	0.54259	0.01367	134	O	0.3953	0.28943	0.43416	0.00322
63	O	0.63411	0.20861	0.84028	0.01567	135	O	0.841	0.09098	0.06875	0.01371

Окончание табл. 5

		x	y	z	Экв.			x	y	z	Экв.
64	O	0.42598	0.24829	1.31959	0.01747	136	O	0.7376	-0.00265	0.13222	0.00865
65	O	0.58278	0.95307	1.59965	0.00875	137	O	0.73658	0.14226	0.22768	0.01475
66	O	0.78033	0.52485	1.21731	0.01515	138	O	0.99421	-0.18723	-0.37538	0.01532
67	O	0.71749	0.3784	1.13555	0.00869	139	O	0.79618	0.14562	0.63267	0.01471
68	Si	0.97177	-0.68743	-0.17609	0.01546	140	O	0.95787	0.13846	0.70733	0.01392
69	O	1.00926	-0.34254	-0.48961	0.00362	141	O	0.97001	0.01897	0.20227	0.016
70	O	1.04063	-0.82439	-0.51846	0.01508	142	O	0.71521	-0.13139	0.046	0.01222
71	O	1.01011	-0.49413	-0.64741	0.00914	143	O	0.93071	-0.32726	-0.06529	1.2 · 10 ⁻⁴
72	O	1.03775	-0.36368	-0.23008	0.016	144	O	1.21865	0.04673	0.51423	0.00345

Таблица 6

Координаты атомов в аморфном домене SiO₂, Таркосил Т 10

		x	y	z	Экв.			x	y	z	Экв.
1	Si	0.07406	0.3172	0.333	0.00613	73	Si	0.24556	0.054	-0.76215	0.00519
2	Si	0.25947	0.37981	-0.71385	0.01293	74	Si	0.66762	-0.47918	-1.27186	0.01763
3	Si	0.07918	0.90517	0.21707	0.01728	75	Si	0.34017	0.06099	-0.52835	0.01055
4	Si	0.32639	0.47817	0.61175	10 ⁻⁵	76	Si	0.65786	-0.42348	-0.98737	0.01247
5	Si	0.09931	0.41855	0.18482	0	77	Si	0.47217	-0.65487	-1.08587	0.01481
6	Si	0.3738	0.39664	0.09077	5E-4	78	O	-0.05495	0.34435	0.07392	0.01477
7	Si	0.33301	0.12825	-0.28601	0.0176	79	O	0.25349	0.20228	-0.65403	0.01441
8	Si	0.38234	-0.12694	0.02439	5.1E-4	80	O	0.82265	-0.73125	-1.04996	3.3E-4
9	O	0.02343	0.15554	0.06021	0.02885	81	O	0.452	0.25497	-0.08514	0.00219
10	O	0.0557	0.66065	0.18435	0.01562	82	O	0.41523	-0.04915	-0.35751	0.01436
11	O	0.1944	0.53514	0.11755	0.01455	83	O	0.48234	-0.30065	-0.27159	0.02185
12	O	0.03605	0.32955	-0.40919	0.01709	84	O	0.85231	-0.40432	-0.95998	0.01405
13	O	0.20798	0.57895	0.72588	0.00588	85	O	0.92823	-0.43261	-0.74784	0.01827
14	O	0.32672	0.54627	0.25751	0.01491	86	O	0.75313	-0.24695	-0.88825	0.02325
15	O	0.17955	0.56179	0.3773	0.00809	87	Si	0.66669	0.06365	-1.00891	0.01906
16	O	0.44722	0.5893	0.15977	0.01255	88	Si	0.67797	0.03537	-0.38423	0.01586
17	O	0.23726	0.20576	0.07807	0.05378	89	Si	0.47034	-0.14954	-0.56707	0.00263
18	O	0.30525	0.31535	-0.18021	0.01694	90	Si	1.0114	-0.49567	-0.64431	0.00898
19	O	0.38194	0.11882	0.01268	0.00626	91	O	0.37168	0.02031	-1.18959	0.01016
20	O	0.74787	0.29075	-0.2631	1.6E-4	92	O	0.68176	-0.0434	-1.12279	0.0082
21	O	0.05713	0.46032	0.77045	0.01513	93	O	0.57584	-0.15576	-1.23272	0.01211
22	O	0.34398	0.23321	0.12288	0.01472	94	O	0.61823	-0.14518	-0.78811	0.0137
23	O	0.51576	0.02486	-0.1961	0.01501	95	O	0.60858	0.17075	-0.5622	0.00368
24	Si	0.90899	-0.54901	-1.70939	1.3 · 10 ⁻¹	96	O	0.75401	-0.19764	-0.36559	0.01343
25	O	0.81611	-0.53103	-1.09946	0.007	97	O	0.77322	-0.10775	-0.57635	1.3E-4
26	O	0.77463	-0.03638	-1.34559	0.00325	98	O	0.88777	-0.27024	-0.83121	0.01405
27	O	0.82546	-0.39271	-1.1366	0.02104	99	O	0.67643	0.05881	-0.27771	0.01598
28	O	0.25439	0.45244	-0.30751	0.00615	100	O	0.73361	-0.41702	-0.20835	0.03205
29	Si	0.43456	0.90291	2.14894	0.01167	101	Si	0.93902	0.09863	1.01939	3 · 10 ⁻⁴
30	Si	0.65002	0.85594	2.11679	0.03982	102	O	0.74169	0.32196	1.29944	0.01549
31	Si	0.69735	0.58947	1.84001	0.01006	103	O	1.03316	-0.14883	0.85612	0.01463
32	O	0.14601	0.74533	1.70774	0.01405	104	Si	0.9251	0.23983	1.64324	0.03822
33	O	0.6627	0.83739	1.43628	0.01449	105	Si	1.3476	-0.07547	0.59723	0.01251
34	O	0.45603	0.41811	1.30604	0.00566	106	O	0.8355	0.241	1.18454	0.00282
35	O	1.44669	-0.27759	0.02165	0.01449	107	O	1.24589	-0.00631	0.75203	0.00367
36	O	0.79266	0.43974	1.38081	0.02367	108	O	1.12827	-0.22853	0.90745	0.00918
37	O	0.32514	0.58475	1.00176	0.01464	109	Si	0.49368	-0.05182	-0.09486	6.8 · 10 ⁻¹
38	O	0.20556	0.42384	0.87581	0.00502	110	Si	0.88685	-0.10101	0.01468	0.01705
39	Si	0.22202	1.00824	1.0069	0.0133	111	Si	0.61919	-0.30803	-0.43624	0.01077
40	Si	0.33275	0.77063	0.73705	0.01235	112	Si	0.90942	0.08272	0.43929	0.01629
41	Si	0.3248	0.52053	0.98067	0.00769	113	Si	0.78037	-0.39688	0.36188	8.6E-4
42	Si	0.07806	0.50909	0.7834	0.01282	114	Si	1.15603	-0.30826	-0.0357	0.01718
43	Si	0.39086	0.11222	0.15405	0.00167	115	O	0.56161	-0.02259	0.36647	0.01449
44	Si	0.43094	0.68288	1.58854	0.01913	116	O	0.64165	-0.02986	0.23461	0.00339
45	Si	0.31559	0.98662	1.61529	2.8E-4	117	O	0.52712	-0.00294	0.28998	9.9E-4
46	Si	0.58067	0.68843	1.26274	0.01628	118	O	0.71237	0.24089	0.0832	0.01463
47	Si	0.74282	0.42649	1.16467	0.00532	119	O	0.80442	-0.22118	-0.02509	0.00482
48	Si	0.4257	0.28064	1.01339	0.00349	120	O	1.10823	-0.05269	-0.58515	0.00794
49	Si	0.61965	0.29698	0.63802	0.02074	121	O	0.8479	0.06742	0.42392	0.01172
50	O	0.20413	0.8569	0.84503	0.01641	122	O	0.56299	0.1458	0.42082	0.01494

Окончание табл. 6

		x	y	z	Экв.			x	y	z	Экв.
51	O	0.47732	0.58492	0.66922	0.01772	123	O	1.13358	-0.27602	0.45253	0.00975
52	O	0.15569	0.29035	0.76159	0.01499	124	O	0.85507	-0.15683	0.49188	0.01423
53	O	0.53806	0.41891	0.66254	0.01469	125	O	1.0357	-0.45955	-4 10 ⁻⁴	0.01064
54	O	0.23106	0.666	0.93205	0.00347	126	O	1.12593	0.25985	1.21505	0.01049
55	O	0.6517	0.75991	0.8865	0.00575	127	O	1.08076	-0.51522	0.23018	0.01413
56	O	0.52417	0.16643	0.70832	0.0198	128	Si	0.51932	0.3552	0.51881	0.05469
57	O	0.32042	1.00365	1.07725	0.01337	129	Si	0.8707	-0.0341	-0.27876	0.02507
58	O	0.5375	0.5181	1.35431	0.01647	130	Si	1.04297	-0.06958	-0.22375	0.03315
59	O	0.37745	0.85833	1.68655	0.00766	131	Si	0.75078	0.45239	0.66833	0.0074
60	O	0.41921	0.77792	1.3307	0.01647	132	Si	0.97587	-0.14737	0.31021	0.00916
61	O	0.46211	0.63089	1.1347	7 10 ⁻⁵	133	Si	1.1036	-0.11521	0.10997	0.02018
62	O	0.67301	0.35629	0.54259	0.01367	134	O	0.3953	0.28943	0.43416	0.00322
63	O	0.63411	0.20861	0.84028	0.01567	135	O	0.841	0.09098	0.06875	0.01371
64	O	0.42598	0.24829	1.31959	0.01747	136	O	0.7376	-0.00265	0.13222	0.00865
65	O	0.58278	0.95307	1.59965	0.00875	137	O	0.73658	0.14226	0.22768	0.01475
66	O	0.78033	0.52485	1.21731	0.01515	138	O	0.99421	-0.18723	-0.37538	0.01532
67	O	0.71749	0.3784	1.13555	0.00869	139	O	0.79618	0.14562	0.63267	0.01471
68	Si	0.97177	-0.68743	-0.17609	0.01546	140	O	0.95787	0.13846	0.70733	0.01392
69	O	1.00926	-0.34254	-0.48961	0.00362	141	O	0.97001	0.01897	0.20227	0.016
70	O	1.04063	-0.82439	-0.51846	0.01508	142	O	0.71521	-0.13139	0.046	0.01222
71	O	1.01011	-0.49413	-0.64741	0.00914	143	O	0.93071	-0.32726	-0.06529	1.2 10 ⁻⁴
72	O	1.03775	-0.36368	-0.23008	0.016	144	O	1.21865	0.04673	0.51423	0.00345

Заключение

Таким образом, количественный фазовый анализ показал, что Таркосил состоит из смеси аморфных фаз SiO₂ и β-SiO₂. Доминирующей фазой является SiO₂. Детальный рентгеноструктурный и модельный анализ позволил установить с высокой степенью надежности структурное состояние аморфных фаз Таркосила, полнопрофильное уточнение методом Ритвельда фаз SiO₂ и β-SiO₂ позволило определить размеры доменов и пространственное распределение атомов внутри доменов. Количественное соотношение аморфных фаз в Таркосиле во многом должно определять его реакционную способность по отношению к оксиду кальция и другим компонентам цементных систем, что должно приводить к зарождению и накоплению в цементной системе низкоосновных гидросиликатов кальция и, как следствие, к повышению прочности цементного камня. Полученные данные могут быть использованы в дальнейшем для расчетов структурно-механических параметров Таркосила и прогнозирования его свойств.

БИБЛИОГРАФИЧЕСКИЙ СПИСОК

1. Хинт, И.А. О четвертом компоненте технологии / И.А. Хинт // Научно-информационный сборник СКТБ «Дезинтегратор». – Таллин : Изд-во «Валгус», 1980. – С. 66–72.
2. Хинт, И.А. Основы производства силикальцитных изделий / И.А. Хинт. – Л. : Госстрой, 1962.
3. Хинт, И.А. Об основных проблемах механической активации : материалы 5-го симпозиума по механоэмиссии и механохимии твердых тел / И.А. Хинт. – Таллин, 1975. – Т. 1. – С. 12–23.
4. Hint, J. Über den Wirkungsgrad der mechanischen Activierung. Einige Ergebnisse der Activierung von Feststoffen mittels grosser mechanischen Energien / J. Hint. – Zeitschrift @Aufbereitungs-Technik. – 1971. – Nr. 2.

5. Шабанова, Н.А. Золь-гель технологии. Нанодисперсный микрокремнезем / Н.А. Шабанова, П.Д. Саркисов. – М. : ИК «Академкнига». – 2004. – 208 с.
6. *Aerosil*. Коллоидный диоксид кремния для фармацевтической промышленности. Технический бюллетень № 1281. Evonik Degussa GmbH
7. Майзельс, А. Сравнительная эффективность гидрофильных марок коллоидного диоксида кремния. *Aerosil* при производстве твердых лекарственных форм / А. Майзельс // Фармацевтика. Технологии и упаковка. – 2009. – № 6. – С. 62–64.
8. Пат. 2067077 Российская Федерация. Способ получения ультрадисперсной двуокиси кремния, устройство для его осуществления и ультрадисперсная двуокись кремния / В.П. Лукашов, С.П. Бардаханов, Р.А. Салимов, А.И. Корчагин, С.Н. Фадеев, А.В. Лаврухин. – Бюл. № 27, 1996.
9. Получение нанопорошков испарением исходных веществ на ускорителе электронов при атмосферном давлении / С.П. Бардаханов, А.И. Корчагин, Р.А. Салимов [и др.] // ДАН. – 2006. – Т. 409. – № 3. – С. 320–323.
10. Исследование электрофизических свойств наноразмерных порошков диоксида кремния, оксида алюминия и никеля / С.П. Бардаханов, А.П. Завьялов, К.В. Зобов, В.И. Лысенко, А.В. Номоев, В.В. Обанин, Д.Ю. Труфанов // Вестник НГУ. Серия: Физика. – 2009. – Т. 4. – Вып. 1. – С. 75–79.
11. Влияние добавки в электролит наноразмерного диоксида кремния на характеристики оксидных слоев, сформированных микродуговым оксидированием на Al-Si сплаве АК9ПЧ / М.М. Криштал, П.В. Ивашин, И.А. Растегаев, А.В. Полуниин, Е.Д. Боргардт // Вектор науки ТГУ. – 2014. – № 1. – С. 48–52.
12. Номоев, А.В. Сверхмикротвердость керамики на основе нанодисперсных порошков оксида алюминия с добавками нанопорошков оксидов магния и кремния / А.В. Номоев // Письма ЖЭТФ. – 2010. – Т. 36. – Вып. 21. – С. 46–53.
13. Полнопрофильный рентгеноструктурный анализ клинкерного минерала C4AF / Ю.А. Абзаев, Ю.С. Саркисов, А.А. Клопотов, В.Д. Клопотов, Д.А. Афанасьев // Вестник Томского государственного архитектурно-строительного университета. – 2012. – № 4. – С. 200–209.
14. *Crystallography Open Database*. – Условия доступа : www.crystallography.net.
15. Физические основы рентгеноструктурного исследования кристаллических материалов / А.А. Клопотов, Ю.А. Абзаев, А.И. Потекаев, О.Г. Волокитин, В.Д. Клопотов. – Томск : Изд-во Томского политехнического университета, 2013. – 263 с.
16. *Structural-phase state analyses of mono-aluminate* / U.A. Abzaev, U.S. Sarkisov, D.A. Afanas'ev, A.A. Klopotov, N. Gorlenko, V.D. Klopotov // *Advanced Materials Research*. – V.1013. (2014). – P. 102–107.
17. Абзаев, Ю.А. Первопринципные расчеты концентрационной зависимости упругих модулей в монокристаллах $Ni_3(Ge_{1-x}Al_x)$ / Ю.А. Абзаев, М.Д. Старостенков, А.И. Клопотов // Фундаментальные проблемы современного материаловедения. – 2014. – Т. 11. – № 1. – С. 56–62.
18. *Rappe, A.K.* Application of universal force field to metal complex / A.K. Rappe, K.S. Colwell // *Inorg. Chem.* – 1993. – V. 32. – P. 3438–3450.

REFERENCES

1. *Hint J.* О четвёртом компоненте технологии [The fourth component of technology]. *Nauchno-informatsionnyi sbornik SKTB 'Dezintegrator'*. Tallin : Valgus. 1980. Pp. 66–72. (rus)
2. *Hint J.* Osnovy proizvodstva silikal'tsitnykh izdelii [Basics of silicalcite products]. Leningrad : The Gosstroy USSR, 1962. (rus)
3. *Hint J.* Ob osnovnykh problemakh mekhanicheskoi aktivatsii : materialy 5-go simpoziuma po mekhanoemissii i mekhanokhimii tverdykh tel [Basic problems of mechanical activation]. *Proc. 5th Symposium on Mechanochemistry and Solids*. Tallin. 1975. V.1. Pp. 12–23. (rus)
4. *Hint J.* Uberden Wirkungs gradder mechanischen Activierung. Einige Ergebnisse der Activierung von Feststoffenmittels grosser mechanischen Energien. *Zeitschrift @ Aufbereitungs-Technik*. Nr. 2. 1971.

5. *Shabanov N.A., Sarkisov P.D.* Zol'-gel' tekhnologii. Nanodispersnyi mikrokremnezem [Sol-gel technologies]. Nanodispersnyy mikrokremnezem. Moscow : Akademkniga. 2004. 208 p. (rus)
6. *Aerosil.* Kolloidnyi dioksid kremniya dlya farmatsevticheskoi promyshlennosti. Tekhnicheskii byulleten' [The colloidal silica in the pharmaceutical industry. Technical Bulletin N 1281]. Evonik Degussa GmbH
7. *Mayzels A.* Sravnitel'naya effektivnost' gidrofil'nykh marok kolloidnogo dioksida kremniya. Aerosil pri proizvodstve tverdykh lekarstvennykh form [Comparative efficacy of hydrophilic colloidal silica grades of cream. Aerosil the manufacture of solid dosage forms]. *Farmatsevtika. Tekhnologii i upakovka.* 2009. No. 6. Pp. 62–64. (rus)
8. *Lukashov V.P., Bardakhanov S.P., Salimov R.A., Korchagin A.I., Fadeev S.N., Lavrukhin A.V.* Pat. Rus. Fed. N 2067077. Sposob polucheniya ul'tradispersnoi dnuokisi kremniya, ustroystvo dlya ego osushchestvleniya i ul'tradispersnaya dnuokis' kremniya [A method for producing ultrafine silica device for its implementation]. Bull. N 27, 1996 (rus)
9. *Bardahanov S.P., Korchagin A.I., Salimov R.A.* Poluchenie nanoporoshkov ispareniem iskhodnykh veshchestv na uskoritele elektronov pri atmosfernom davlenii [Production of nanopowders by evaporation of starting materials for electron accelerator at atmospheric pressure]. *Proc. RAS,* 2006. V. 409. No. 3. Pp. 320–323. (rus)
10. *Bardahanov S.P., Zavyalov A.P., Zobov K.V., Lysenko V.I., Nomoev A.V., Obanin V.V., Trufanov D.Yu.* The study electrical properties of nanoscale powders of silicon dioxide, alumina and nickel. Bulletin of the NSU. Series: Physics. 2009. Volume 4 in. 1. P. 75–79.
11. *Krishtal M.M., Ivashin P.V., Rastegaev I.A., Polunin A.V., Borgardt E.D.* Vliyanie dobavki v elektrolit nanorazmernogo dioksida kremniya na kharakteristiki oksidnykh sloev, sformirovannykh mikrodugovym oksidirovaniem na Al-Si splave AK9PCh [Effect of additives in electrolyte of nanosized silicon dioxide on oxide layers properties formed by oxidation on microarc Al-Si AK9PCH alloy]. *Vektor nauki TGU.* 2014. No. 1. Pp. 48–52. (rus)
12. *Nomoev A.V.* Sverkhmikrotverdost' keramiki na osnove nanodispersnykh poroshkov oksida al'yuminiya s dobavkami nanoporoshkov oksidov magniya i kremniya [Microhardness of ceramics based on aluminum oxide nanopowders with magnesium oxide and silicon additives]. *JEPT Letters.* 2010. V. 36. No. 21. P. 46–53. (rus)
13. *Abzaev Yu.A., Yu.S. Sarkisov, Klopotov A.A., Klopotov V.D. Afanasiev D.* Polnoprofil'nyi rentgenostrukturnyi analiz klinkernogo minerala S4AF [Rietveld method for clinker mineral S4AF]. *Vestnik TSUAB.* No. 4. 2012. Pp. 200–209. (rus)
14. *Crystallography Open Database* Available at : www.crystallography.net
15. *Klopotov A.A., Abzaev Yu.A., Potekaev A.I., Volokitin O.G., Klopotov V.D.* Fizicheskie osnovy rentgenostrukturnogo issledovaniya kristallicheskikh materialov [Physical basis of X-ray diffraction analysis of crystalline materials]. Tomsk : TSUAB Publ., 2013. 263 p. (rus)
16. *Abzaev Yu.A., Sarkisov Yu.S., Afanas'ev D.A., Klopotov A.A., Gorlenko N., Klopotov V.D.* Structural-phase state analyses of mono-aluminate. *Advanced Materials Research* 2014. V. 1013. Pp. 102–107.
17. *Abzaev Yu.A., Starostenkov M.D., Klopotov A.I.* Pervoprintsipnye raschety kontsentratsionnoi zavisimosti uprugikh modulei v monokristallakh Ni₃(Ge_{1-x}Al_x) [Computations of concentration dependence of elastic moduli in single crystal Ni₃(Ge_{1-x}Al_x)]. *Basic Problems of Material Science.* 2014. V. 11. No. 1. Pp. 56–62. (rus)
18. *Rappe A.K., Colwell K.S.* Application of universal force field to metal complex. *Inorg. Chem.* 1993. V. 32. Pp. 3438–3450.