

Wykorzystanie dynamiki molekularnej w badaniach szkieł

MGR INŻ. PAWEŁ GOJ

AKADEMIA GÓRNICZO-HUTNICZA, WYDZIAŁ INŻYNIERII MATERIAŁOWEJ I CERAMIKI

1. Wprowadzenie

Nauka wymaga zarówno obserwacji zjawisk obecnych w przyrodzie, jaki i ich zrozumienia [1]. Symulacje komputerowe natomiast w wielu przypadkach pomagają zrozumieć budowę materii oraz procesy występujące w środowisku. Za ich pomocą można nie tylko sprawdzać teorie, ale również przewidywać wyniki badań eksperymentalnych. Jest to niezwykle pomocne przy określeniu ich kierunku i skutkuje znaczną oszczędnością czasu oraz pieniędzy.

Metody symulacji komputerowych, takie jak dynamika molekularna MD czy metody Monte Carlo, są obecnie szeroko stosowane w modelowaniu układów składających się z dużej liczby atomów lub cząsteczek [2, 3]. Dają bezpośrednią informację o rozmieszczeniu w przestrzeni oddziałujących ze sobą atomów oraz torach ich ruchu w systemach, na które działają zadane zewnętrzne czynniki. Łączą więc interakcje między atomami z budową i właściwościami substancji – takimi jak gęstość czy przewodnictwo cieplne [4, 5]. Stanowią przez to niezwykle użyteczne narzędzie uzupełniające badania eksperymentalne, a w szczególnych przypadkach umożliwiają opis zjawisk lub budowy materiałów niemożliwy na podstawie konwencjonalnych badań. Zaletą tego typu symulacji jest badanie układów składających się z dużej liczby atomów (często powyżej 100 tys.) w rozsądnych okresach czasu, przy wykorzystaniu obecnie dostępnych komputerów [6, 7], co nie jest możliwe przy bardziej zaawansowanych technikach np. *ab initio*.

Pierwsza symulacja klasycznej dynamiki molekularnej dla krzemionki została wykonana w 1976 r. [8] Od tamtej pory widoczny jest duży wzrost zainteresowania tą techniką, choćby ze względu na rozwój sprzętu komputerowego. Mnogość prac dotyczących szkieł borokrzemianowych i fosforanowych wskazuje, że tego typu symulacje stały się ważnym sposobem prowadzenia badań nie tylko więzby szkieł, ale również różnych procesów fizycznych w nich zachodzących, np. dyfuzji, rozpuszczania czy uszkodzenia radiacyjnego [4, 9–12].

Niniejsza praca ma na celu przedstawianie klasycznej dynamiki molekularnej jako użytecznego narzędzia w badaniach więzby szkieł, na przykładzie symulacji szkieł z układu $\text{SiO}_2\text{-Na}_2\text{O}$. Struktury tych szkieł są punktem wyjścia w opisie więzby wielu wieloskładnikowych szkieł przemysłowych i naturalnych [13].

2. Dynamika molekularna

W klasycznej dynamice molekularnej MD ewolucja czasowa wieloatomowego układu wynika z rozwiązywania numerycznego klasycznych równań ruchu [1, 3, 14]. W takim układzie siła wypadkowa \vec{F}_i

SŁOWA KLUCZOWE

dynamika molekularna, badania więzby szkieł, symulacje komputerowe, szkła krzemowo-sodowe

KEYWORDS

molecular dynamics, glass network examination, computer simulations, sodium silicate glasses

mgr inż. Paweł Goj



Doktorant na wydziale Inżynierii Materiałowej i Ceramiki w dyscyplinie Inżynierii Materiałowej. Absolwent wydziału Inżynierii Materiałowej i Ceramiki. W swojej pracy naukowej zajmuje się badaniami

struktury szkieł na bazie fosforanów żelaza stosowanych w immobilizacji odpadów radioaktywnych, w których wykorzystuje oprócz badań eksperymentalnych symulacje komputerowe.
e-mail: pgoj@agh.edu.pl

STRESZCZENIE

Klasyczna dynamika molekularna MD jest jedną z technik symulacji komputerowych wieloatomowych lub wielocząsteczkowych układów. Pozwala na badanie struktury oraz właściwości zarówno materiałów krystalicznych, jak i amorficznych. Opiera się na rozwiązywaniu numerycznym klasycznych równań ruchu. Nie tylko uzupełnia badania eksperymentalne, ale jest również narzędziem pozwalającym na badanie budowy materiałów na poziomie nieosiągalnym konwencjonalnymi technikami. W celu przedstawienia klasycznej dynamiki molekularnej wykonano symulacje dwóch szkieł $80\text{SiO}_2\text{-}20\text{Na}_2\text{O}$ i $85\text{SiO}_2\text{-}15\text{Na}_2\text{O}$ [%mol]. Otrzymane wyniki dobrze zgadzały się z obecnym stanem wiedzy. Wykonane symulacje świadczą o tym, że technika ta jest niezwykle użyteczna przy poznawaniu struktury szkieł. Wykorzystując tę technikę, można przewidywać wpływ modyfikatorów na więzbę szkła, a przez to możliwe jest wskazywanie kierunku dalszych badań oraz optymalizacja składów chemicznych.

SUMMARY

Application of molecular dynamics in examination of glasses

Molecular dynamics MD is one of computer simulation methods of multiatomic or multimolecular systems. It allows to examination of structure and properties both crystalline and amorphous materials. This technique consists of the numerical solution of the classical equation of motion. It complements not only experimental methods but also it is tool make possible examination of material structure on the unavailable level for conventional methods.

In order to introduce to molecular dynamics, the simulations of two glasses $80\text{SiO}_2\text{-}20\text{Na}_2\text{O}$ and $85\text{SiO}_2\text{-}15\text{Na}_2\text{O}$ [%mol] were performed. Obtained results corresponds well to the actual state of knowledge. Performed simulation testify that this technique is a very useful to examine glass structure. Using this method, it is possible to predict influence of modifiers on glass network, it's make possible indication research direction and optimization of chemical composition.

która w idealnym przypadku jest sumą wszystkich sił działających na i-ty atom jest dana przez drugą zasadę dynamiki Newtona:

$$\vec{F}_i = m_i \vec{a}_i \quad (1)$$

Gdzie m_i i \vec{a}_i to masa i przyspieszenie i-tego atomu.

Wektor położenia i-tego atomu \vec{r}_i w danym momencie czasu t można wtedy wyliczyć z danej poniżej zależności:

$$\vec{a}_i = \frac{d^2 \vec{r}_i}{dt^2} \quad (2)$$

Aby wykonać obliczenia numeryczne ewolucji czasowej układu, niezbędna jest znajomość sił, jakimi działają na siebie poszczególne atomy. Siły działające na dany atom są gradientami odpowiednich potencjałów opisujących najczęściej oddziaływania w parze lub w trójce atomów. W przypadku potencjału opisującego oddziaływania w parze atomów, siła dana jest poniższym równaniem:

$$\vec{F}_{ij} = -\nabla V(\vec{r}_{ij}) \quad (3)$$

Gdzie: \vec{F}_{ij} jest siłą, z jaką oddziałują na siebie atomy w parze i-j, $V(\vec{r}_{ij})$ to potencjał opisujący oddziaływanie w tej parze atomów, a \vec{r}_{ij} jest wektorem odległości między tymi atomami. Siła wypadkowa działająca na i-ty atom w N-atomowym układzie jest wtedy sumą wszystkich sił, z jakimi oddziałuje on z innymi atomami:

$$\vec{F}_i = \sum_{\substack{j=1 \\ (j \neq i)}}^N \vec{F}_{ij} \quad (4)$$

Zatem znając potencjały opisujące oddziaływania między atomami, warunki początkowe i brzegowe, możemy wyznaczyć położenia atomów i ich prędkości w dowolnym okresie czasowym.

W literaturze dostępnych jest wiele potencjałów opisujących oddziaływania czy to w parze, czy w trójce atomów (np. Si-O, czy O-Si-O). Tym samym dobór odpowiedniego potencjału oraz jego parametrów jest najważniejszym czynnikiem decydującym o poprawności wyniku symulacji. O doborze odpowiedniego potencjału może decydować m. in. charakter wiązania między atomami. W przypadku wiązań o charakterze jonowym często wystarczają potencjały opisujące oddziaływania dla danych par jonów, np. Na-O. W przypadku wiązań kowalencyjnych takie podejście może być niewystarczające i stosuje się często potencjały opisujące oddziaływania między trójką atomów. Parametry dla danej funkcji potencjału mogą być dobierane na podstawie eksperymentalnie wyznaczonych właściwości materiałów krystalicznych: gęstości, ściśliwości czy parametrów sieciowych, lub obliczeń kwantowo-mechanicznych [2].

3. Metoda symulacji

Wykonano symulacje klasycznej dynamiki molekularnej MD dla dwóch szkieł z układu SiO₂-Na₂O, których składy zestawiono w tabeli 2. Obliczenia wykonano przy pomocy programu LAMMPS [15], dla układów składających się z 2000 jonów zamkniętych w sześcianach ograniczonych periodycznymi warunkami brzegowymi. Warunki te zostały wprowadzone ze względu na niewielką liczbę jonów, ponieważ wtedy duża ich część znajduje się na powierzchni. W przypadku badań strukturalnych wpływ zewnętrznej powierzchni na układ jest szczególnie interesujący. Nawet w układach składających się z milionów atomów wpływ ten nie jest pomijalny. Na przykład w przypadku układu złożonego z 1 mln atomów około 6% z nich tworzy powierzchnię [3].

W symulacji oddziaływanie między daną parą jonów i-j opisano za pomocą potencjału Buckinghama [16]:

$$V(\vec{r}_{ij}) = A_{ij} \exp\left(-\frac{\vec{r}_{ij}}{\rho_{ij}}\right) + \frac{q_i q_j}{4\pi \epsilon_0 \vec{r}_{ij}} - C_{ij} / \vec{r}_{ij}^6 \quad (5)$$

Tab. 1. Wartości parametrów potencjału Buckinghama [13].

Para jonów (i-j)	Ładunek efektywny pierwszego jonu w parze [e]	A_{ij} [eV]	ρ_{ij} [Å]	C_{ij} [eV Å ⁶]
Si-O	2,4	13702,905	0,193817	54,681
Na-O	0,6	4383,7555	0,243838	30,70
O-O	-1,2	2029,2204	0,343645	192,28

Gdzie: A_{ij} , ρ_{ij} , C_{ij} są parametrami tego potencjału, natomiast q_i i q_j są ładunkami efektywnymi jonów. Wykorzystane parametry potencjału Buckinghama zawarto w tabeli 1 [13].

Pierwszy człon równania (4) opisuje oddziaływania odpychające związane z nakładaniem się na siebie chmur elektronowych, kolejny jest odpowiedzialny za kulombowskie siły przyciągania między dwoma jonami, natomiast ostatni człon wprowadza słabe siły przyciągania van der Waalsa. Potencjał ten opisuje dość dobrze oddziaływania o przeważającym charakterze jonowym. Należy jednak zwrócić uwagę na człon związany z oddziaływaniami van der Waalsa. Z jego powodu potencjał ten nie sprawdza się w układach, gdzie jonom nadawane są duże energie kinetyczne. Jest to spowodowane tym, że maksimum tego potencjału położone jest w zakresie małych wartości \vec{r}_{ij} i następnie wraz z \vec{r}_{ij} dążącym do zera, dąży on do minus nieskończoności.

W przeprowadzonych symulacjach siły były wyliczane bezpośrednio z potencjału Buckinghama do promienia odcięcia równego 12 Å. By obliczyć oddziaływania kulombowskie dalekiego zasięgu (poza promieniem odcięcia) wykorzystano metodę PME (eng. *particle-mesh Ewald's method*) [17].

Na początku symulacji układy składały się z losowo rozmieszczonych jonów w objętości sześcianu symulacyjnego. Gęstości i objętości początkowe układów zestawiono w tabeli 2.

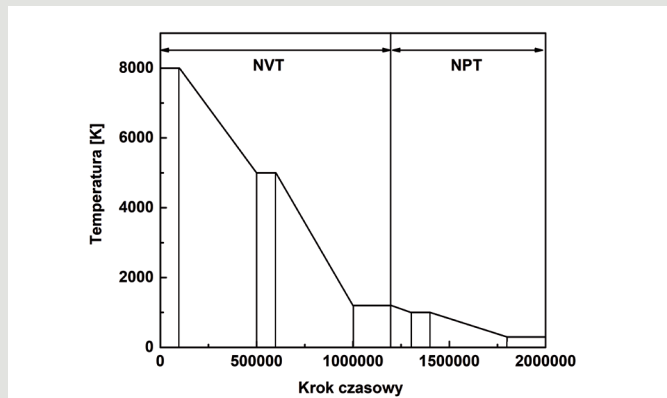
Tab. 2. Skład tlenkowy, objętości i gęstości układów.

	Udział molowy [%mol]		Na początku symulacji		Na końcu symulacji
	SiO ₂	Na ₂ O	Objętość układu [nm ³]	Gęstość układu [g/cm ³]	Gęstość układu [g/cm ³]
1SiNa	80	20	29,79	2,17	2,32
2SiNa	85	15	29,79	2,15	2,34

Zasadniczo w tego typu symulacjach, jeśli chodzi o stan początkowy układu, można rozpatrywać dwa podejścia: w jednym wychodzi się od konkretnej struktury krystalicznej, którą podgrzewa się do wysokiej temperatury, aby idealnie wymieszać układ i zatrzeć jego strukturę, lub tak jak w tym przypadku – drugie podejście – z wykorzystaniem generatora liczb losowych rozmieszcza się atomy w sposób przypadkowy w objętości układu [18].

Symulacja była prowadzona przy zadanym kroku czasowym równym 0,1 fs, czasy relaksacji ciśnienia i temperatury wynosiły 1 ps. Przez pierwsze 1200 tys. kroków symulacji zadane były warunki stałej ilości jonów N, objętości V i temperatury T (NVT). Na tym etapie istotne jest odpowiednie zhomogenizowanie układu, dlatego na początku był on przetrzymywany przez 100 tys. kroków w temperaturze 8000 K, po czym został schłodzony do temperatury 5000 K z szybkością 75 K/ps i w niej przetrzymany przez 100 tys. kroków. Następnie schłodzono układ do temperatury 1200 K z szybkością 95 K/ps i przetrzymano w tej temperaturze przez 200 tys. kroków. W następnych 800 tysiącach kroków zadano warunki stałego ciśnienia P równego 1 bar, ilości jonów i temperatury (NPT). Miało to na celu zrelaksowanie układu i umożliwienie zmiany jego gęstości. Z temperatury 1200 K do 1000 K symulowane szkło chłodzono z prędkością 20 K/ps i przetrzymano układ w temp. 1000 K

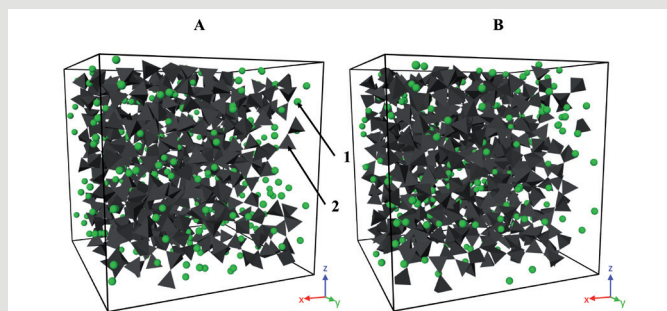
przez 100 tys. kroków. Ostatecznie układ schłodzony do temp. 300 K z prędkością 17,5 K/ps i przetrzymano w tej temperaturze przez 200 tys. kroków. Algorytm symulacji przedstawiono na rysunku 1. Układ posiada pewną bezwładność cieplną związaną z narzuconym czasem relaksacji, ale także interakcjami między atomami wynikającymi z zadanego potencjału. Więc, aby układ osiągnął w przybliżeniu jednakową temperaturę w całej swojej objętości, jest przetrzymywany w temperaturach 5000, 1200, 1000 i 300 K przez podaną liczbę kroków czasowych.



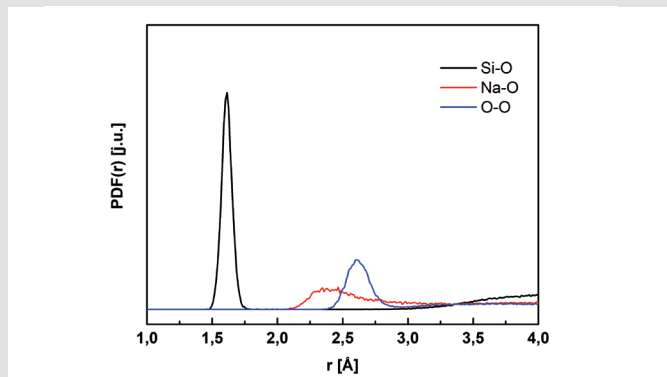
Rys. 1. Algorytm symulacji.

4. Wyniki symulacji

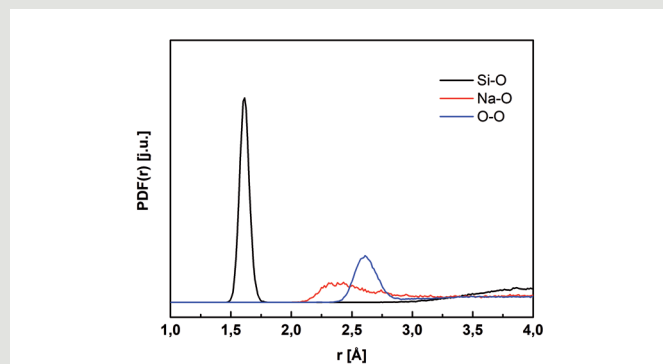
Na rysunku 2. przedstawiono obrazy struktur wysymulowanych szkielek. Wizualizacja dokonano za pomocą programu OVITO [19]. Tak jak widać na przedstawionych obrazach, tetraedry $[\text{SiO}_4]$ tworzą przestrzenną więźbę szkła, a sód zajmuje jej luki. Wyniki przedstawiono za pomocą funkcji rozkładu par PDF (ang. *pair distribution function*) oraz dystrybucji kątów ADF (ang. *angle distribution function*). Wykonano również analizę liczb koordynacyjnych.



Rys. 2. Obrazy wysymulowanych struktur A - 1SiNa, B - 2SiNa, gdzie: 1 - kation sodu, 2 - tetraedr $[\text{SiO}_4]$.



Rys. 3. Funkcje rozkładu par PDF dla szkła 1SiNa.



Rys. 4. Funkcje rozkładu par PDF dla szkła 2SiNa.

4.1. Funkcje PDF i ADF

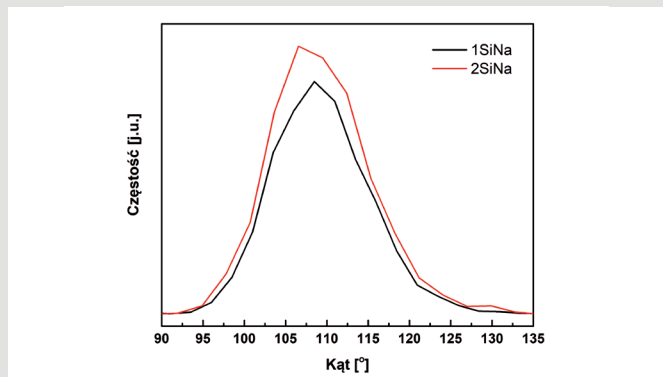
Najczęściej do opisu struktury wysymulowanych materiałów amorficznych stosuje się funkcje rozkładu par PDF [2, 4, 14]. Funkcje te dają informację o prawdopodobieństwie napotkania dwóch jonów pary $i-j$ w odległości $r+\Delta r$. Umożliwiają one również porównania wyników symulacji z danymi eksperymentalnymi ze względu na to, że można je uzyskać z badań dyfrakcji rentgenowskiej lub neutronów. Pierwsze maksima tych funkcji odpowiadają najczęściej odległościom występującym między najbliższymi sąsiadami danej pary jonów. Na rysunkach 3 i 4 przedstawiono funkcje PDF dla par jonów Si-O, Na-O i O-O w wysymulowanych szklach. Odległości między najbliższymi sąsiadami dla danych par jonów odczytane z pierwszych maksimów tych funkcji zestawiono w tabeli 3.

Tab. 3. Średnie odległości między najbliższymi sąsiadami dla danych par jonów.

Para jonów	Odległości między najbliższymi sąsiadami uzyskane z symulacji [Å]		Dane literaturowe [13] [Å]
	1SiNa	2SiNa	
Si-O	1,612	1,633	1,606 - 1,620
Na-O	2,432	2,429	2,362 - 2,480
O-O	2,616	2,613	2,619 - 2,624

Dystanse zgadzają się z danymi literaturowymi i świadczą o poprawności wykonania symulacji. Można zaobserwować znacznie szersze piki dla pary jonów Na-O, niż dla Si-O i oznacza to, że rozrzut odległości między najbliższymi sąsiadami dla tych pierwszych jest dużo większy.

Na rysunku 5. przedstawiono funkcje rozkładu kątów ADF pomiędzy wiązaniami w trójce jonów O-Si-O. Funkcje ADF przedstawiają częstotliwość występowania w funkcji kąta $\alpha+\Delta\alpha$. Tak jak na powyższych wykresach przybierają one dla O-Si-O kształt krzywej



Rys. 5. Funkcja rozkładu kątów ADF O-Si-O.

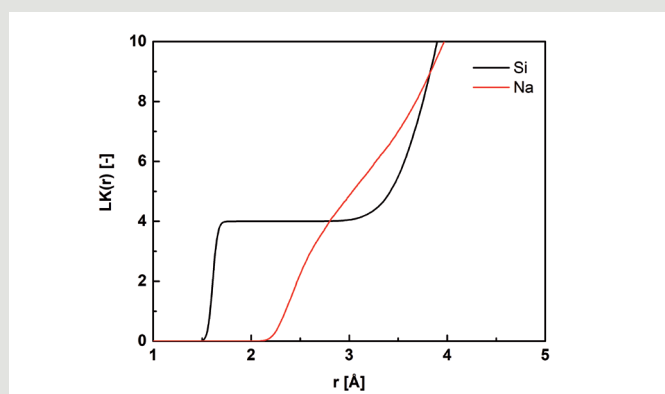
Gaussa [4, 13]. Można zaobserwować, że rozrzut kątów waha się od 95 do 130°. Rozrzut ten pojawia się, ponieważ duża ilość tetraedrów [SiO₄] w szklach jest zdeformowana, a na ich deformację może wpływać np. ilość tlenu niemostkowych [13]. W tabeli 4. zawarto średnie kąty dla O-Si-O w badanych szklach. Wyniki te zgadzają się dobrze z doniesieniami literaturowymi [4, 13] i pokazują, że mimo przeważającego kowalencyjnego charakteru wiązania Si-O (jonowość na poziomie 43% wyliczona z elektroujemności wg. Görlicha) w symulacji sprawdza się prosty potencjał opisujący oddziaływanie między cząstkami obdarzonymi ładunkiem, jakim jest potencjał Buckinghamama.

Tab. 4. Średnie kąty dla trójki O-Si-O.

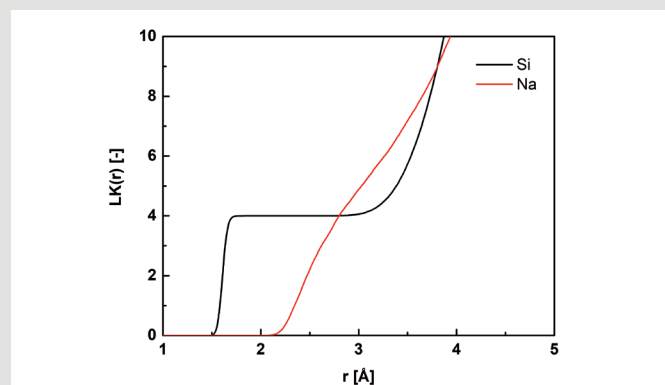
Szkło	Wyniki		Dane literaturowe
	Średni kąt O-Si-O [°]	Odchylenie standardowe [°]	Średni kąt O-Si-O [°]
1SiNa	109,4	5,9	109,3 [4]
2SiNa	109,3	6,2	108,3 - 109,1 [13]

4.2. Analiza liczb koordynacyjnych

Na rysunkach 6. i 7. przedstawiono liczby koordynacyjne LK w funkcji odległości od jonu sodu i krzemu. Liczba koordynacyjna krzemu do tlenu ma wartość równą 4 dla przedziału odległości od 1,8 do 3 Å. Oznacza to, że w badanych szklach występują wyłącznie tetraedry [SiO₄]. W przypadku sodu sytuacja wygląda odmiennie i nie jest obserwowane charakterystyczne plateau funkcji LK(r). Spowodowane jest to tym, że jako modyfikator sód przyjmuje różne koordynacje, które są silnie zależne od odległości do najbliższych tlenu. W tabeli 5. zestawiono średnie liczby koordynacyjne odczytane dla promieni odcięcia równych 1,8 i 3,5 Å, odpowiednio dla Si i Na. Promienie te odpowiadają minimum funkcji PDF zaraz po pierwszej strefie koordynacyjnej.



Rys. 6. Liczby koordynacyjne LK w funkcji odległości dla szkła 1SiNa.



Rys. 7. Liczby koordynacyjne LK w funkcji odległości dla szkła 2SiNa.

Tab. 5. Średnie liczby koordynacyjne dla danych jonów.

Jon	Średnia liczba koordynacyjna	
	1SiNa	2SiNa
Si	4,00	4,00
Na	7,01	7,21

5. PODSUMOWANIE

Wykonane badania klasycznej dynamiki molekularnej pokazują jej użyteczność w badaniu więzby szkła. Symulacje pozwoliły uzyskać obrazy struktury szkła z układu SiO₂-Na₂O oraz opisać uporządkowanie bliskiego zasięgu. Wykonano analizę liczb koordynacyjnych, przedstawiono rozkład kątów w tetraedrach [SiO₄] oraz odległości między najbliższymi sąsiadami dla par jonów Na-O, Si-O i O-O. Wyniki wykonanych symulacji szkła dobrze zgadzają się z obecnym stanem wiedzy.

Tego typu symulacje są niezwykle szczegółowe i dostarczają informacji statystycznych o całej populacji atomów w symulowanych szklach. Są więc użyteczne przy interpretowaniu wyników eksperymentalnych, ale też pomagają wskazać kierunek prowadzonych badań. Możemy na ich podstawie przewidywać wpływ modyfikatorów wprowadzanych do więzby szkła, co jest użyteczne przy optymalizacji składu chemicznego.

PODZIĘKOWANIA

Obliczenia zostały wykonane przy wsparciu infrastruktury PL-Grid.

LITERATURA

- [1] Repaport D.C. (2004), *The art of molecular dynamics simulation*, Cambridge University Press, Cambridge
- [2] D. K. Belashchenko (1997), *Computer simulation of the structure and properties of non-crystalline oxides*, Russian Chemical Reviews, 66 (9), 733–762
- [3] Allen M. (2004), *Introduction to molecular dynamics simulation*, „Computational Soft Matter: From Synthetic Polymers to Proteins” (tzw. c, 23 (2), 1–28
- [4] Stoch P., Stoch A. (2015), *Structure and properties of Cs containing borosilicate glasses studied by molecular dynamics simulations*, „Journal of Non-Crystalline Solids”, 411, 106–114
- [5] Li Q., Liu C. (2012), *Molecular dynamics simulation of heat transfer with effects of fluid-lattice interactions*, „International Journal of Heat and Mass Transfer”, 55, 8088–8092
- [6] Delaye J.M., Ghaleb D. (2006), *Damage inhomogeneity in the core region of displacement cascades in simplified nuclear glasses*, „Journal of Nuclear Materials”, 348 (3), 243–255
- [7] Jolley K., Smith R. (2016), *Iron phosphate glasses: Structure determination and radiation tolerance*, „Nuclear Instruments and Methods in Physics Research”, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 374, 8–13
- [8] Delaye J.M. (2001), *Modeling of multicomponent glasses: A review*, „Current Opinion in Solid State and Materials Science”, 5 (5), 451–454
- [9] Joseph K., Jolley K., Smith R. (2015), *Iron phosphate glasses: Structure determination and displacement energy thresholds, using a fixed charge potential model*, „Journal of Non-Crystalline Solids”, 411, 137–144
- [10] Al-Hasni B., Mountjoy G. (2011), *Structural investigation of iron phosphate glasses using molecular dynamics simulation*, „Journal of Non-Crystalline Solids”, 357 (15), 2775–2779
- [11] Delaye J.M., Ghaleb D. (1997), *Molecular dynamics simulation of low-energy atomic displacement cascades in a simplified nuclear glass*, „Journal of Nuclear Materials”, 244 (1), 22–28
- [12] Aertsens M., Ghaleb D. (2001), *New techniques for modelling glass dissolution*, „Journal of Nuclear Materials”, 298 (1–2), 37–46
- [13] Du J., Cormack A.N. (2004), *The medium range structure of sodium silicate glasses: A molecular dynamics simulation*, „Journal of Non-Crystalline Solids”, 349 (1–3), 66–79
- [14] Stoch P., Ciecierska M., Stoch A. (2010), *Wykorzystanie metody MD w projektowaniu procesu wtryskiwania odpadów radioaktywnych*, „Materiały Ceramiczne”, 62 (1), 3–13
- [15] Plimpton S. (1995), *Fast Parallel Algorithms for Short - Range Molecular Dynamics*, „Journal of Computational Physics”, 117, 1–19
- [16] Jansen F. (2007), *Introduction to Computational Chemistry*, 2nd ed., WILEY, Chichester
- [17] Plimpton S., Pollock R., Stevens M.J. (1997), *Particle Mesh Ewald and rRESPA for Parallel Molecular Dynamics Simulations*, „Proceedings of the Eighth Siam Conference on Parallel Processing for Scientific Computing”, 1–13
- [18] Limoge Y. (2001), *Numerical simulations studies of glasses*, „Comptes Rendus de l'Académie Des Sciences”, 2 (4), 263–283
- [19] Stukowski A. (2010), *Visualization and analysis of atomistic simulation data with OVITO-the Open Visualization Tool*, „Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering”, 18 (1), 1–7