

从加和法到 AI 辅助数据驱动的玻璃性质模拟计算

胡丽丽, 王 欣, 张丽艳, 邓 路, 郑锐林

(中国科学院上海光学精密机械研究所, 上海 201800)

摘 要: 玻璃由于非晶态的结构属性和非稳态的热力学属性, 其性质模拟计算是一个复杂命题。尽管如此, 玻璃研究者们始终努力探究玻璃性质计算模拟方法。本文全面回顾了从 1894 年 Winkelmann 和 Schott 首次提出玻璃性质计算方法的一个多世纪以来, 玻璃性质的模拟计算从最初的加和法, 到相图杠杆法、拓扑束缚理论、数理统计法、分子动力学模拟到 AI 辅助数据驱动的发展历程。提出了在结构研究手段不断发展和 AI 技术应用日趋普及的当下, 建立结合高通量制备、结构性能数据获取以及 AI 技术辅助建模的玻璃性能模拟计算新范式的必要性。

关键词: 玻璃; 性能模拟; 人工智能技术; 构效关系

中图分类号: J527.3 文献标志码: A 文章编号: 0454-5648(2025)10-2929-10

网络出版时间: 2025-07-04



玻璃作为典型的非晶态材料, 其原子无序排列带来的独特物理性质(如长程无序而短程有序的结构特征、亚稳态弛豫行为等)始终是凝聚态物理和材料科学的核心难题。自 19 世纪末, Winkelmann 和 Schott 提出玻璃性质的加和法计算以来, 研究者在逾一个世纪的探索中逐步构建起“成分-结构-性能”的关联框架, 但受限于非晶态体系的动态演化特性与复杂构效关系, 传统方法在精度、普适性和预测能力上始终存在瓶颈^[1,2]。

早期基于经验参数的加和法(如阿本法、捷姆金娜法)通过线性叠加氧化物贡献值, 在预测硅酸盐玻璃的密度、折射率等性能中展现出实用价值, 但其本质仍是对宏观实验数据的统计拟合, 无法解释硼反常现象或多元体系中的非线性效应^[3]。20 世纪后期, 相图杠杆法、拓扑束缚理论被相继提出, 从热力学和玻璃拓扑结构等角度对玻璃的性能进行预测, 加深了对玻璃构效关系的理解^[4,5]。尽管这些方法在对玻璃部分性质的预测中取得了成效, 却难以处理多元玻璃系统多性能预测等复杂问题。随着玻璃成分-性能数据的不断积累以及计算材料学的不断发展, 基于大数据和软件平台的玻璃性质模拟工作正在从数据积累向高效预测快速推进, 同时结合结构信息与高效计算预

测和设计玻璃材料性质的方法, 已成为现代玻璃研究的重要手段。当前, 随着人工智能(AI)与多尺度计算技术的深度融合, 玻璃性质的模拟计算正经历从经验驱动到数据驱动、从规律分析到构效关系精细解析和应用 AI 技术建模的范式革新。

本文系统地梳理了从经验加和法到 AI 辅助数据驱动的玻璃性质模拟方法的百年演进, 论述了在结构研究手段不断发展和 AI 技术应用日趋普及的当下, 建立结合高通量制备、结构性能数据获取以及 AI 技术辅助建模的玻璃性能模拟计算新范式的必要性。

1 基于理化经验知识的玻璃性质计算方法

玻璃的性质由成分和结构共同决定, 由于玻璃结构比较复杂, 特别是实际应用的多元系统, 建立玻璃结构和性质的量化模型非常困难, 因此只能对于一些组分比较少且结构相对简单的玻璃的某些特殊性质进行计算。对于大部分玻璃的很多性质主要依靠实验数据的积累进行数据分析, 得到一些定性的规律并进行加和性计算。此外, 随着玻璃结构相关理论的发展, 提出了相图杠杆法、拓扑束缚理论等方法用于计算简单系统玻璃的某些特殊性质。

收稿日期: 2025-04-15。 修订日期: 2025-05-11。

基金项目: 国家自然科学基金(52472017)。

第一作者: 胡丽丽(1963—), 女, 博士, 研究员。

Received date: 2025-04-15. Revised date: 2025-05-11.

First author: HU Lili(1963—), female, Ph.D., Professor.

E-mail: hulili@siom.ac.cn

1.1 成分-性质的加和法

成分-性质的加和法是利用玻璃成分及其加和系数计算玻璃性质的方法。利用该方法可以实现玻璃性能的快速计算,是目前玻璃行业中应用最为广泛的玻璃性能计算方法。玻璃的密度、折射率、色散、热膨胀、弹性模量等物理量与玻璃成分含量之间呈加和性关系,多组分玻璃系统加和量的数值等于每种组分指定的加和系数与其含量的乘积,采用该方法可以得到较为精确的计算结果。对于电导率、介电损耗、黏度、表面张力等性质,成分和性质之间不呈简单的加和性关系,这类性质只有在某些特定玻璃中且在很窄的成分范围内才能进行加和性计算。对于玻璃的强度、化学稳定性等性质,外界条件对其影响较大,采用加和法计算的结果误差很大,不宜采用该方法进行计算。

1894 年, Wilnkmann 和 Schott 最先提出玻璃热膨胀系数的加和性计算,并用实验得出各个氧化物的加和系数,对 30 种玻璃进行了计算,其计算精度为 $\pm 4.7\%$ ^[2]。之后国内外均对玻璃成分-性能的加和法进行了优化改进,其中阿本法、干福熹法和捷姆金娜法采用氧化物的种类比较多,可计算的性质也比较多,且计算结果与实验测试结果误差较小,是应用较多的加和性计算方法。此外,加和法可计算的玻璃体系也从硅酸盐玻璃、硼硅酸盐玻璃扩展到了磷酸盐玻璃和氟磷酸盐玻璃等,并在各类玻璃的研发过程中扮演着重要角色^[3,6]。

1.2 基于基团结构信息的性能计算方法

玻璃的性质由玻璃的成分和结构共同决定,虽然加和法在确定加和系数时考虑了结构的影响,但结构相关的因子均为经验参数。随着玻璃结构表征手段的不断发展以及对玻璃热力学过程理解的不断深入,研究者相继提出了包含结构信息的玻璃性能计算方法,如相图杠杆法和拓扑束缚理论等。

20 世纪 60 年代早期, Krogh-Moe 通过观察并比较硼酸盐玻璃及其晶体的红外(IR)光谱和核磁共振(NMR)谱,发现相同组分的玻璃结构与晶体结构具有一定的相似性,玻璃中的一些结构基团可在其对应晶体的结构中找到^[7],基于这个发现,他提出了玻璃结构基团模型。该模型认为玻璃结构中存在与对应晶体结构相似的结构基团,并且根据基团的性质及其在玻璃中的含量可计算玻璃的性质^[8]。在玻璃相图结构模型中,将玻璃视为对应相图中最邻近的一致熔融化合物混合熔体的产物。由于一致熔融化合物的结构基元混合构成了玻璃的结构,所以玻璃的

性能可以由一致熔融化合物的性能通过相图中的杠杆原理计算得到^[5]。

在随机网络理论中,玻璃被看作由多面体单元无序拼接的网络结构。Phillips 和 Thorpe 提出玻璃结构的拓扑束缚理论,通过比较原子的自由度数和原子间相互作用力的束缚数,可结合玻璃网络的近程拓扑结构对玻璃微观结构束缚状态进行定量分析^[9]。在此基础上, Mauro 和 Gupta 进一步考虑了温度对于网络结构约束的影响,从而获得玻璃的组分-结构-性质间的依赖关系^[10]。拓扑束缚理论可以用于计算玻璃的转变温度、杨氏模量、硬度等多个性质^[5]。

上述两种方法均耦合了玻璃结构信息对玻璃性能进行预测,为深入理解玻璃性能随成分的变化规律构造了桥梁,加深了对玻璃材料构效关系的理解。然而,由于玻璃拓扑束缚结构和多元复杂体系相图数据有限,上述两类方法多应用于简单玻璃体系的相关性质计算,其工业实用性受到较大限制。

2 基于大数据和软件应用的玻璃性质计算模拟

随着信息技术和材料科学的深度融合,在基于实验和经验的传统玻璃研究方法外,基于大量实验数据积累的玻璃组成-性能数据库开发玻璃性质计算模拟软件的工作取得了较大发展^[11]。这对新型功能玻璃的开发具有重要意义。近年来,多个国家的研究机构构建了高质量的玻璃数据库,并开发了相应的软件模拟平台,实现了高效、低成本的玻璃组成设计与优化。其中,具有代表性的工作包括 SciGlass^[12]和 INTERGLAD^[13]数据库、Cassar 等基于 SciGlass 数据库进一步开发的 GlassPy^[14]玻璃性能预测模型、以及国产商业数据库软件 SmartData^[15]等。这些数据库相关工作通过整理采集已报道的文献数据,应用图形化界面进行数据检索,在数据规模、预测能力、机器学习集成以及工业应用方面各具特色。

例如,在通用玻璃数据库方面, SciGlass 数据库是目前国际上收录数据最全面的商业玻璃数据库,其历史可以追溯到 1960 年,目前包含了约 42.2 万种玻璃及熔体数据,其中包括了约 26.8 万种氧化物玻璃及熔体、1.8 万种卤化物玻璃和 3.8 万种硫系玻璃,涵盖了来自 4 万多篇文献中的玻璃组成及对应的热学、光学、化学和力学性能数据^[16]。该数据库不仅支持玻璃性能的统计分析与趋势可视化,还集成部分机器学习功能,为科研人员与企业用户提供强大的数据支持。INTERGLAD 数据库从 1989 年开始

构建数据库内容,得到了日本主要玻璃制造公司的支持^[17]。该数据库重点收录了各类光学玻璃与结构玻璃的实验数据,尤其在折射率、色散系数、热膨胀系数等性能指标方面整理得较为系统,广泛用于光电子材料设计与筛选。研究表明,INTERGLAD 数据库更适合用于实际的商用玻璃研制及对其性质和使用细节的介绍,而 SciGlass 数据库则更适合用于研究玻璃性质和开发新型玻璃^[18]。此外, GlassPy 是使用较多的玻璃性能预测模型之一,是基于 SciGlass 数据库和 Python 语言、面向科研人员的开源模型,支持用户导入自定义实验数据并应用各种主流机器学习算法进行建模和预测,其灵活性强,常与材料信息学工具如 pymatgen、matminer 等结合使用,适合深入探究玻璃组成与性质的非线性关系与机理解释^[14]。国内方面,厦门灵捷软件有限公司的 SmartData 商业数据库是较早出现、相对成熟的商业玻璃数据库软件,整合了大量本土玻璃实验数据和工业需求,具备配方生成、性质预测和相容性分析等功能,并以中文界面和定制化服务为特色,被应用于国内玻璃企业的产品研发^[15]。

另一方面,在特定应用领域也有专业玻璃数据库。例如,在核废物处理领域,玻璃固化技术因其优异的化学耐久性较强的包容性,被广泛应用于高放射性核废液的固化处理^[19]。然而,高放射性核废液的化学成分复杂,通常包含几十种元素,涵盖裂变产物、少量锕系元素及核嬗变产物、后处理过程添加剂及腐蚀物^[20]。因此,核废料固化玻璃的研制难度大,需要专业数据库开展高效、低成本的固化玻璃配方研发。美国西北太平洋国家实验室(PNNL)长期致力于核废物玻璃固化技术的研究,并建立了核废料玻璃数据库^[21]。该数据库包含了大量核废料玻璃的组成和物理化学性质数据,例如密度、黏度、热导率、抗压强度、化学耐久性等性能参数。研究人员运用该数据库,进一步开发了基于机器学习的核废料玻璃设计算法,优化了核废料玻璃的配方,确保其在长期储存中的稳定性和安全性^[22]。美国 Hanford 厂通过与 PNNL 国家实验室合作,设计了一种低放射性核废液核废料玻璃配方的算法,并运用该算法帮助设计用于固化特定放射性废物组成的玻璃配方,实现了对废物组成的最大化包容^[23]。此外,韩国水电核电公司(KHNP)根据放射性废物的组成设计不同系列组成,构建了玻璃的黏度、电导率等线性模型,进而根据核废料玻璃组成预测了玻璃的性能^[24]。国内原子能研究院放化所初步建立了

玻璃固化配方设计及性能计算模型,为玻璃固化熔制工艺控制和配方设计提供了支撑^[25],研究团队针对高放射性核废液组成开展了配方设计和玻璃固化样品性能测试,成功获得了相应的硼硅酸盐玻璃固化配方及性能分析数据^[26]。

总之,当前基于大数据和软件平台的玻璃性质模拟工作正在从数据积累向高效预测快速推进,不同的数据库在数据规模、开放性、算法集成度和适用性等方面呈现出差异化发展的格局。未来,该领域将朝着数据共享互联、实验-计算-机器学习等多方法融合的方向发展,为玻璃材料的科学研究与工程应用提供更加高效、精准与智能的技术支撑。

3 结合结构信息和计算软件分析建模的玻璃性质计算模拟

如前所述,计算机技术及大数据模型的飞速发展作为新材料的计算模拟及 AI 智能化开发与设计提供了有力支持。与所有材料类似,玻璃成分所引起的实际结构变化最终决定了玻璃的性质。因此,开展玻璃成分-实测结构-性质关系研究对揭示并理解玻璃的特性尤为重要。引入玻璃结构数据辅助进行玻璃性能预测及配方设计的模拟方法有 2 种:一为以实测结构数据为模拟要素、基于数理统计模拟的“玻璃结构基因模拟法(Glass Structure gene Modeling, GSgM)”;二为基于计算材料学的系列模拟方法,如第一性原理分子动力学模拟(*ab initio* molecular dynamics, AIMD)、分子动力学(Molecular dynamics, MD)模拟以及基于统计学习和回归的定量结构性质关系(Quantitative Structure-Property Relationship, QSPR)分析方法等。

3.1 玻璃结构基因模拟法(GSgM)

玻璃结构基因模拟法是一种基于数理统计模拟和实测玻璃结构的玻璃性质模拟方法,由中国科学院上海光学精密机械研究所(简称“上海光机所”)于 2017 年提出并使用^[27]。在含 GeO₂ 的掺镱磷酸盐玻璃中,利用成分变化产生的玻璃红外/拉曼分峰积分面积变化与掺镱玻璃的光谱性质,包括 Yb³⁺的下能级 Stark 分裂、荧光有效线宽 $\Delta\lambda_{\text{eff}}$ 、受激发射截面 σ_{emi} 及荧光寿命 τ_f 变化之间的可归纳性量化关系,建立了基于 GSgM 方法的结构-性质预测模型。模型显示(P-O-P)、 $\delta_s^{[4]\text{Ge-O-}^{[4]\text{Ge}}}$ 、(P-O-^[4]Ge)和(^[6]Ge-O-^[6]Ge)振动基团含量对 Stark 分裂、线宽、截面及寿命的影响最为显著,并给出了对应性质的计算系数。这也是国际上第一次实现玻璃光谱性质模拟的相关报道。GSgM 的建模原理是在成分-性质

(C-P)数理统计 Cornell 一阶模拟公式中引入玻璃网络结构单元数据^[28], 如 NMR 的化学位移 δ_{iso} 、 Q^n 基团比例、同步辐射全散射的结构因子及原子成对出现的概率(原子对分布函数, PDF), 拉曼和红外光谱的结构振动单元分峰等, 进而建立成分、结构和性质之间的数值关系。这可以理解为从结构上将玻璃看作由一组网络单元组成, 每个网络单元具有统计学上独特的结构特征, 并且成比例地影响玻璃性质。通过这种方法及统计模拟软件(如 JMP), 以结构为桥梁构建玻璃成分、结构、性能间的量化关系。利用经统计模型软件筛选出成分、结构、性质之间的关联影响规律, 快速设计所需性质的玻璃成分或预测设计玻璃的性质, 再通过实验验证进一步补充数据, 修正模型, 最终实现成分 $\leftrightarrow$ 结构 $\leftrightarrow$ 性质(C-S-P)双向模拟设计的目的。成分-性质(C-P)与成分-结构-性质(C-S-P)模拟的优、缺点见表 1^[27, 28]。

玻璃纤维行业最早使用成分-性质数理统计软件模拟玻璃性质, 相关公司自行建立了玻纤成分-性质模拟数据库, 但对性质呈现非线性影响的玻纤组分, 缺失了玻璃结构这一关键因素则不能实现可靠的成分 $\leftrightarrow$ 性质双向模拟。如 ZnO 及 TiO₂ 对 E-CR 玻纤(一种无氟无硼、高强、高模量、耐高温、耐酸碱高性能玻纤)的机械性质、化学稳定性及电性质的影响是非线性的, 因此成分-性质模型不能对玻纤配方成分性质优化给予有效建议。但采用 GSgM 的成分-结构及结构-性质模型进行 ZnO 及 TiO₂ 组分优化及性能调控可以解决传统成分-性质模拟法无法解决的问题^[29]。

欧美等发达国家及地区在核废料玻璃固化领域依靠几十年来持续积累的约四千余个硼硅酸盐玻璃固化配方及其关键性质数据建立了成分-性质(C-P)数理统计模拟数据库, 用以实现固化玻璃配方设计

并优化废物包容量^[30]。但在数据量不足以实现准确的成分-性质模拟情况下, GSgM 方法可以提供较好的解决方案。上海光机所利用少量数据(15 个玻璃样品)实现了多组分(14 种氧化物组成)模拟源项硼硅固化玻璃关键元素浸出率及钼分相的模拟, 建立了具有较高预测精度的结构-性质模型^[31], 实验验证结果显示, 可由 130 g 小样品的红外结构数据准确预测 2 kg 大样品的元素浸出率及钼分相情况, 从而有效减少配方筛选、大尺寸样品制备及关键性质测试时间, 缩短研发周期。

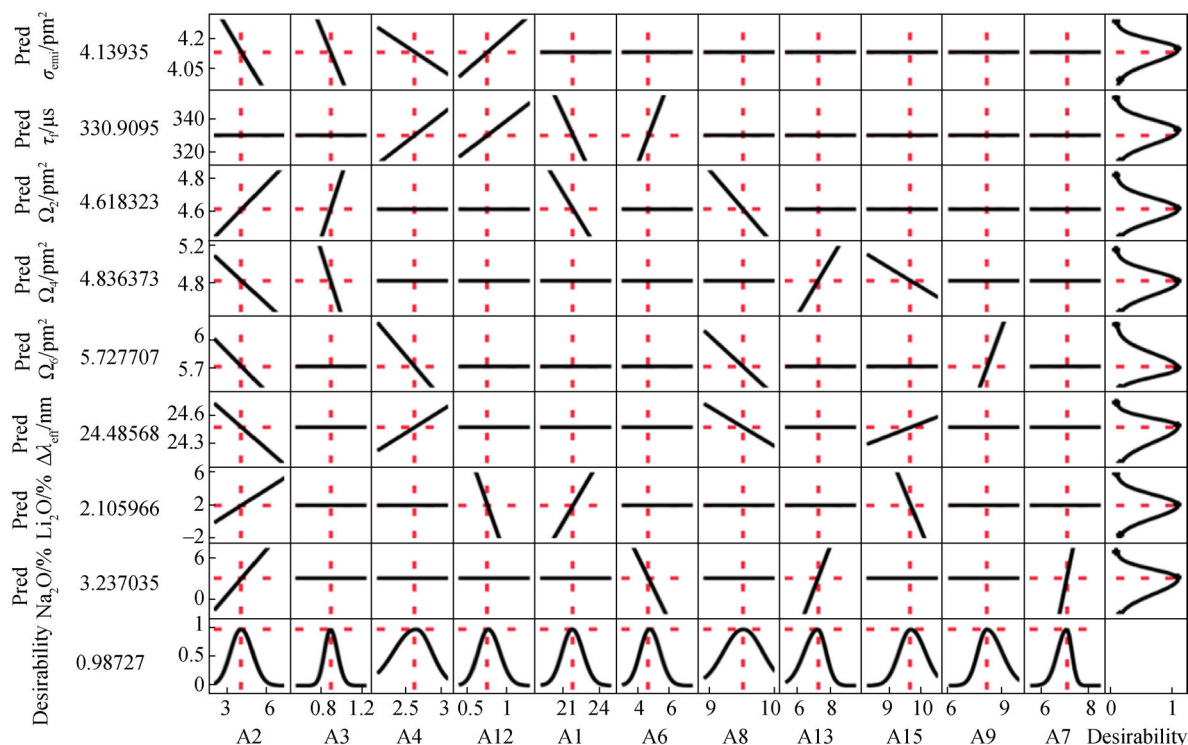
上海光机所一直致力于建立磷酸盐激光钼玻璃的模拟数据库, 并在磷酸盐激光钼玻璃的光谱性质(线宽、截面、寿命、J-O 参数等)研究上, 运用 GSgM 方法建立的模拟平台实现了较好的成分 $\leftrightarrow$ 结构 $\leftrightarrow$ 性质双向模拟预测^[32–34], 如图 1。

3.2 基于计算材料学的系列模拟方法

为了提高对复杂材料系统的模拟精度, 第一性原理计算不断发展。1985 年, Car 和 Parrinello 提出的开创性方法首次将电子自由度与核自由度耦合, 引入了 AIMD, 突破了经典分子动力学将电子与原子运动相分离的局限性^[35]。这一方法尤其适用于原子种类繁多、结构无序的玻璃体系, 为揭示其微观结构行为提供了强有力的手段。不同于高度依赖经验势的经典分子动力学模拟方法, AIMD 计算是基于量子力学基本原理, 通过数值求解薛定谔方程来预测多电子相互作用系统的物理性质。然而, 受限于计算资源, AIMD 的计算代价随着体系中原子数目的增加迅速上升。在常用的 Kohn-Sham 框架^[36]中, 计算复杂度通常与体系大小呈立方关系。因此, 典型模拟体系的规模通常限制在几十到几百个原子之间, 一般不超过 1000 个原子^[37]。这限制了其在高通量材料筛选和大尺度系统模拟中的广泛应用。

表 1 C-P 模型与 C-S-P 模型的特点^[28]
Table 1 Features of the C-P and C-S-P models^[28]

No.	C-P model	C-S-P model
1	The simulation process uses statistical methods to filter out high impact components, without chemical structure information	The simulation process uses statistical methods to filter out high impact structural groups and provide chemical structure information
2	Component uncertainty is influenced by the test method	Structural uncertainty is influenced by test methods and theoretical understanding
3	The dependence of the change of any two elements in the glass is low and the elemental substitution method is not applicable	Independent of the dependence associated with changes in any two elements, including the use of elemental substitution
4	Difficulty and low accuracy in simulating the non-linearly varying properties of more complex glass systems under data-limited conditions	Usually independent of the amount of data and suitable for linear, especially complex Simulation of the non-linearly varying nature of the heterogeneous glass system with high accuracy
5	Lack of basis for selection of cross-cutting effects on elements	The cross influence of structural groups is supported by a better structural test
6	Relatively low cost of setting up the database	Relatively high cost of setting up the database

图1 GSgM方法建立的掺钕磷酸盐玻璃的成分-结构-性质模拟平台^[8]Fig. 1 A composition-structure-property simulation platform for Nd-doped phosphate glasses established by the GSgM approach^[8]

因此,对于多组分玻璃体系,需在模型构建与尺寸选择之间进行合理的权衡。第一性原理模拟可预测的玻璃材料性质主要包括两类:一类为可与实验直接测量结果对比的性质,如:密度、机械性能、光谱性质、熔点与黏度等;另一类为只能与间接测量结果对比、但有助于解释材料各种性能的参量,如:电子结构与化学键合方式、电子态密度以及带隙等。采用 AIMD 进行玻璃结构性质计算时,其可模拟的时间尺度通常仅限于皮秒(ps)级,不能覆盖玻璃形成等需要纳秒(ns)级甚至更长时间尺度的动力学过程。玻璃结构模拟往往涉及大量原子、长时间演化以及温度依赖性与长程缺陷结构等复杂因素,仍需依赖经典分子动力学进行模拟。此外,由于玻璃结构的无序性与多样性,模拟结果对初始结构构建方式、模型尺寸与边界条件高度敏感,进一步挑战了模拟结果的可重复性。因此,AIMD 计算常用于对经典分子动力学结果的补充验证,为克服其计算规模与时间尺度的限制,未来研究中可考虑将第一性原理计算与经典分子动力学、机器学习以及多尺度建模方法结合,从而实现复杂玻璃体系在更真实条件下的精确模拟与性能预测。

在分子动力学模拟中,体系的势能面(Potential energy surface, PES)是描述一个多原子体系中所有

可能构型对应的势能分布的高维超曲面,经验势(Empirical potential)是对真实势能面的数学近似,通过参数化的解析经验函数拟合实验数据或高精度量子力学计算结果,以较低的计算成本重现势能面的关键特征,进而通过牛顿力学计算各个粒子的受力和速率,获得运动轨迹。因此,分子动力学模拟中,经验势直接决定了模拟结果的可靠性。在玻璃分子动力学模拟领域,常用的经验势函数形式有:1) 两体项,用来描述成键的离子性,包括长程静电相互作用、由于 Pauli 原理导致的短程交换排斥、以及由于电子关联涨落引起的色散等;2) 三体项,模拟共价相互作用来约束 O-M-O 和 M-O-M 键角分布(M 是网络形成体);3) 多体项,来源于氧离子的极化率对局域静电场的响应等。考虑到计算成本,平衡模型精度和计算效率是发展经验势的关键要素之一^[38]。只包含两体项的两体势仅考虑两个原子间的相互作用,大大简化了计算量,因此可以计算较大规模的玻璃系统,并且冷却速率更符合实际情况。如 Teter 势函数,由 D·M·Teter 开发, Du 和 Cormack 进行改进^[39],采用的电势形式是短程 Buckingham 的组合:

$$V(r_{ij}) = \frac{z_i z_j e^2}{4\pi\epsilon_0 r_{ij}} + A_{ij} \exp\left(-\frac{r_{ij}}{\rho_{ij}}\right) - \frac{C_{ij}}{r_{ij}^6} \quad (1)$$

式中: Z_i 和 Z_j 为原子 i 和 j 的简并电荷,也称为部

分电荷, 用来模拟部分共价键; e 为单个电子的电荷; ϵ_0 为真空介电常数; r_{ij} 为原子 i 和 j 之间的距离。 A_{ij} , ρ_{ij} 和 C_{ij} 是 Buckingham 项的经验参数。同时, 采用拼接校正函数来修正低 r_{ij} 区域的势能描述方程, 从而解决了 Buckingham 势在高温时的问题。Teter 经验势被广泛应用于玻璃体系的模拟, 具备玻璃网络形成体, 如硅和铝的势函数。在此基础上, Deng 和 Du 发展了硼相关的势函数, 能够在较宽的组成范围内再现硼酸盐玻璃和硼硅酸钠玻璃的结构特征及硼反常现象^[40], 还支持掺杂碱金属、碱土金属、部分过渡金属元素和稀土元素的玻璃结构模拟, 使其具备了模拟多组分玻璃的能力。通过模拟可以帮助阐明掺杂浓度和玻璃结构变化的关系, 从而指导玻璃组成设计, 为研究稀土掺杂玻璃的结构提供了新手段^[41,42]。三体项常用于对玻璃中中程结构特征的优化。例如, MG 势函数是 Mahadevan 和 Garofalini 在原有 Guillot- Guissani 势函数的基础上改进的一组势^[43]。与其他许多势相比, MG 势在广泛使用的两体刚性离子模型中增加了对三体相互作用的描述, 这使得可以用势能更好地描述键角项。该势函数最初用于模拟研究水的解离模型, 后来用于模拟研究水-二氧化硅界面反应以及钠硅玻璃表面与水的反应^[44-45]。MG 势中的两体项是根据每个原子上随与中心原子距离变化的扩散电荷计算的, 通过引入全局阻尼参数 β , 结合 Wolf 求和法求解 Madelung 长程项, 其中, Wolf 求和引入了互补误差函数来描述势函数的电荷部分。此外, 该经验势引入了三体项, 进一步优化对玻璃结构中键角的描述, 使模拟的玻璃结构更加准确^[45]。

近年来由于 AI 方法的发展, 机器学习势函数 (Machine learning potentials, MLPs) 得到了飞速发展。MLPs 利用神经网络拟合原子的结构信息, 并建立与高精度第一性原理计算数据 (例如能量和力) 之间的关系来构造势函数, 为目标体系的能量和力提供了高效且准确的预测方法。与 DFT 相比, MLPs 的计算速度大大提高。但是 MLPs 中所有的参数都采用纯数学的方法得到, 很难确定构造出来的参数是否包含正确的物理信息, 且构造过程需要用大量的数据训练, 同时还要利用足够的测试数据集进行检验, 以保证相关参数对训练数据集之外的样本仍然可靠。

定量结构性质关系分析法 (QSPR) 是一种建立材料结构描述符与测定性能之间相关性的方法^[46]。虽然 QSPR 分析的结构特征可以来自实验或模拟,

但当 QSPR 分析与 MD 模拟相结合时, 其显得特别强大, 可以提取复杂系统中的各种结构信息, 并且成功关联了多种玻璃性质, 包括玻璃密度、热膨胀系数、杨氏模量、硬度和化学稳定性等^[47-51]。QSPR 方法可以实现玻璃性质的精准预测, 提供模型的可解释性并且适用于多种玻璃体系。然而描述符也会受到能量形式、结构特征的影响, 从而影响模型的拟合度和预测准确性。例如, Lu 等^[50]系统地研究了采用不同能量相关结构描述符的 QSPR 模型的准确性, 结果表明, 不同能量类型与玻璃性质之间的关系可能存在很大差异。此外, 能量数据 (例如五配位的 Al-O 键能) 的缺失也会限制 QSPR 方法的应用。同时, 由于经验势的不足, 分子动力学模拟可能无法准确模拟某些元素的局部配位环境, 例如在模拟中六配位的铝会远低于实验值^[46,52]。但不可否认的是, QSPR 方法极具应用前景, 利用该方法有望生成大量高均匀性和可靠性的数据, 用于构建玻璃材料数据库, 也可以增强机器学习模型, 从而快速预测玻璃的目标性质和组成。

4 构建 AI 驱动的玻璃构效研究新范式

玻璃的形成、结构与性能演化机制属于凝聚态物理领域的核心难题, 传统实验方法存在周期长、成本高、理论模型复杂度高为瓶颈。虽然经过多年发展, 玻璃性能预测模型得到了长足发展, 且部分预测模型已在工业中得到应用, 但现有模型仍存在部分性能预测精度差、可预测性能种类少、结构关联性差等不足。尤其针对特种玻璃的特殊化要求以及复杂服役性能, 由于缺乏玻璃材料的定向性、功能化研发范式指导, 仅靠经验理论无法完成工程需求玻璃的开发, 我国玻璃材料在光刻机、核反应堆放废处理、聚变堆核心器件等关键领域存在“卡脖子”问题, 无法满足国家重大战略需求。玻璃材料的多尺度结构直接决定其关键性能, 玻璃构效关系研究必须克服跨尺度精细结构表征难、结构与性能映射关系不清这两大核心挑战。

AI for glass 是一种基于 AI 赋能的数据驱动玻璃研发新范式, 通过高通量数据采集建立组分-结构-性能的数据库, 结合机器学习建立玻璃构效关系映射, 进一步利用大数据智能分析实现新型玻璃的定向设计, 但该范式的实际应用仍面临挑战。首先, 数据质量决定了机器学习模型的性能, 快速获取大量同源、标签化的数据是关键。上海大学施思齐团队首次提出数据数量治理应关注样本数量与特征数

量(如描述符)以及二者指标的平衡性,进而提出融合材料领域知识的数据数量协同治理流程,实现了样本规模与特征维度(或模型参数量)的精准治理与协调^[53],并进一步提出材料领域知识全过程嵌入的材料机器学习数据质量与数量治理框架,实现了材料数据质量和数量的整体评估与提升,为高质量和适度数量的数据获取提供了理论指导和候选解决方案,推动了机器学习在材料研发中的深入应用^[54]。另一方面,由于玻璃是一种非晶态材料,其结构不具有长程有序性,但在原子尺度和介观尺度上仍有特定的结构特征,如网络单元、局域环境、相分离等。这些结构特征直接决定了玻璃的物理和化学性能,但其复杂的构效关系会阻碍机器学习模型的精准探索。施思齐团队首次提出分阶段建模和分描述符建模策略,将 $\text{Ge}_x\text{Se}_{1-x}$ 体系的玻璃转变起始温度因结构变化表现出特征划分为 2 个阶段,并基于机器学习预测模型,采用最小误差法进行合成预测,融合粗糙集理论与材料领域知识识别核心特征与特征簇群,结合规则提取策略挖掘材料复杂的影响机制。相关策略不仅在六大材料体系数据集上展现出优异的性能预测精度,更在规则提取与构效关系可解释分析方面表现出强大能力,为 AI 驱动的材料研究提供了高精度建模方法与可解释构效关系的提取策略^[55-57]。此外,玻璃材料作为一种过冷液体,其结构不仅与其组分关联,还高度依赖其热历史。此外,当力、热、光、电、磁等外场作用于玻璃时,其跨尺度结构也会产生相应的变化。因此,玻璃真实数据的获取,特别是大量准确的玻璃多维度、跨尺度结构参数的获取是构建这一研发新范式的前提。与其他表征方式相比,同步辐射多方法学表征可以高效率、高精度地获取大量结构数据,基于同步辐射光源的多谱学联用是同时满足玻璃多维度-跨尺度结构表征与使役条件性能模拟的理想方式。因此,建立结合高通量制备及同步辐射多方法学结构数据获取、结合 AI 辅助建模的玻璃性能模拟计算的研究新范式对发展高端特种玻璃材料,解决我国重大战略问题具有重要意义。

5 总结

玻璃作为典型的非晶态材料,其原子无序排列带来的独特物理性质始终是凝聚态物理和材料科学的核心难题。经过一个多世纪以来的发展,相继提出了加和法、相图杠杆法、拓扑束缚理论等多种玻璃性能的预测模型,同时伴随计算能力提升,基于

数据库配合机器学习算法、MD 模拟等材料计算以及 QSPR 等多种方法已被应用于玻璃性能预测。针对特种玻璃的特殊化要求以及复杂使役性能,亟待发展准确获取高通量数据、精细结构解析以及构效关系研究的新手段。因此,建立结合高通量制备及同步辐射多方法学进行结构数据获取、结合 AI 辅助建模的玻璃性能模拟计算的研究新范式将成为玻璃性能计算领域的重要发展方向。

(第二十七届中国科协年会学术论文)

参考文献:

- [1] WINKELMANN A, SCHOTT O. Ueber thermische Widerstandskoeffizienten verschiedener Gläser in ihrer Abhängigkeit von der chemischen Zusammensetzung[J]. Ann Der Phys, 1894, 287(4): 730-746.
- [2] 王承遇, 陶瑛. 玻璃成分设计与调整(三)[J]. 玻璃与搪瓷, 2002, 30(3):58-60.
WANG Chengyu, TAO Ying. Glass Enamel, 2002, 30(3):58-60.
- [3] 干福熹. 无机玻璃物理性质计算和成分设计[M]. 上海: 上海科学技术出版社, 1981.
GAN Fuxi. Physical properties calculation and composition design of inorganic glass[M]. Shanghai: Shanghai Scientific & Technical Publishers, 1981.
- [4] JIANG Z H, ZHANG Q Y. The structure of glass: A phase equilibrium diagram approach[J]. Prog Mater Sci, 2014, 61: 144-215.
- [5] ZHENG Q J, ZENG H D. Progress in modeling of glass properties using topological constraint theory[J]. Int J Appl Glass Sci, 2020, 11(3): 432-441.
- [6] 干福熹, 林凤英, 高文燕. 无机玻璃弹性的测试方法和计算方法[J]. 硅酸盐学报, 1978, 6(4): 256-265.
GAN Fuxi; LIN Fengying; GAO Wenyan. J Chin Ceram Soc, 1978, 6(4): 256-265.
- [7] SVANSON S E, FORSLIND E, KROGH-MOE J. Nuclear magnetic resonance study of boron coördination in potassium borate GLASSES¹[J]. J Phys Chem, 1962, 66(1): 174-175.
- [8] 姜中宏, 胡丽丽. 玻璃的相图结构模型[J]. 中国科学E辑: 技术科学, 1996, 26(5): 395-404.
JIANG Zhonghong, HU Lili. Sci China Ser E, 1996, 26(5): 395-404.
- [9] PHILLIPS J C, THORPE M F. Constraint theory, vector percolation and glass formation[J]. Solid State Commun, 1985, 53(8): 699-702.
- [10] GUPTA P K, MAURO J C. Composition dependence of glass transition temperature and fragility. I. A topological model incorporating temperature-dependent constraints[J]. 2009, 130(9): 094503.
- [11] DE GUIRE E, BARTOLO L, BRINDLE R, et al. Data-driven glass/ceramic science research: Insights from the glass and ceramic and data science/informatics communities[J]. J Am Ceram Soc, 2019, 102(11): 6385-6406.
- [12] AKos GmbH. Sciglass-glass property information system[EB].
- [13] International glass database system: INTERGLAD Ver. 7[EB].
- [14] CASSAR D R. GlassNet: A multitask deep neural network for predicting many glass properties[J]. Ceram Int, 2023, 49(22): 36013-36024.
- [15] 刘世民. 新型玻璃薄膜材料设计、制备技术进展[J]. 燕山大学学报, 2012, 36(6): 471-481.
LIU Shimin. J Yanshan Univ, 2012, 36(6): 471-481.
- [16] SciGlass, ver. 7.0,[2025-04-15].<https://github.com/epam/SciGlass>.

- [17] History of INTERGLAD, http://www.newglass.jp/interglad_6/gaiyo/history_e.html.
- [18] PRIVEN A I, MAZURIN O V. Glass property databases: Their history, present state, and prospects for further development[J]. *Adv Mater Res*, 2008, 39–40: 147–152.
- [19] CAURANT D, LOISEAU P, BARDEZ I, et al. Glass, Glass-Ceramics and Ceramics for Immobilization of Highly Radioactive Nuclear Wastes[M]. 2009.
- [20] XU K. Review of international research progress on nuclear waste vitrification[J]. *Materials China*, 2016, 35(7): 481–488.
- [21] VIENNA J D, HEREDIA-LANGNER A, COOLEY S K, et al. Glass property-composition models for support of Hanford WTP LAW facility operation[R]. Pacific Northwest National Laboratory (PNNL), Richland, WA (United States), 2022.
- [22] LU X N, WELLER Z D, GERVASIO V, et al. Glass design using machine learning property models with prediction uncertainties: Nuclear waste glass formulation[J]. *J Non Cryst Solids*, 2024, 631: 122907.
- [23] LUMETTA N A, KIM D S, VIENNA J D. Preliminary enhanced LAW glass formulation algorithm[R]. Pacific Northwest National Laboratory (PNNL), Richland, WA (United States), 2023.
- [24] SONG M J, KIM C W. Vitrification of combustible dry active waste generated from Korean nuclear power plants[J]. *Jpn J Health Phys*, 2004, 39(3): 250–256.
- [25] 李玉松, 张生栋, 鲜亮, 等. CIAE高放废液固化技术研发进展[J]. *原子能科学技术*, 2020, 54(增刊1): 126–136.
- LI Yusong, ZHANG Shengdong, XIAN Liang, et al. *At Energy Sci Technol*, 2020, 54(Suppl 1): 126–136.
- [26] 刘丽君. 我国高放废液玻璃固化技术四十年的发展[J]. *中国核科学技术进展报告(第四卷)*, 2015: 481–485.
- [27] ZHANG L Y, LI H, HU L L. Statistical structure analysis of GeO_2 modified Yb_3^+ : Phosphate glasses based on Raman and FTIR study[J]. *J Alloys Compd*, 2017, 698: 103–113.
- [28] 胡丽丽等. 激光玻璃及应用[M]. 上海: 上海科学技术出版社, 2019.
- HU Lili. *Laser glass and its applications*[M]. Shanghai: Shanghai Scientific & Technical Publishers, 2019.
- [29] ZHANG J, DU Y, XIE J, et al. Effects of ZnO and TiO_2 on E-CR fibre glass properties: Raman spectroscopic analysis and statistical modelling of structure–property relations[J]. *Phys Chem Glasses-Eur J Glass Sci Technol Part B*, 2021, 62(2): 61–72.
- [30] HRMA P, PIEPEL G F. Pacific Northwest National Laboratory[EB]. 1994.
- [31] 戴晨, 李洪, 张丽艳, 等. 模拟高放废液硼硅酸盐玻璃固化体钼相与化学稳定性的结构基因模拟[J]. *硅酸盐学报*, 2024, 52(6): 2068–2080.
- DAI Chen, LI Hong, ZHANG Liyan, et al. *J Chin Ceram Soc*, 2024, 52(6): 2068–2080.
- [32] LIU W X, YAN S S, WANG Y J, et al. Composition-structure-property modeling for Nd^{3+} doped alkali-phosphate laser glass[J]. *Opt Mater*, 2020, 102: 109778.
- [33] 厚月春, 戴晨, 张丽艳. 碱金属对磷酸盐钼玻璃光谱性质影响的结构模拟研究[J]. *中国激光*, 2023, 50(22): 183–193.
- HOU Yuechun, DAI Chen, ZHANG Liyan. *Chin J Lasers*, 2023, 50(22): 183–193.
- [34] HOU Y C, LI H, ZHANG L Y. Genome-based approach to new Nd: Phosphate glass: Composition-structure-property statistical modeling and validation[J]. *J Non Cryst Solids*, 2023, 600: 121988.
- [35] CAR R, PARRINELLO M. Unified approach for molecular dynamics and density-functional theory[J]. *Phys Rev Lett*, 1985, 55(22): 2471–2474.
- [36] KOHN W, SHAM L J. Self-consistent equations including exchange and correlation effects[J]. *Phys Rev*, 1965, 140(4A): A1133–A1138.
- [37] BELONOSHKO A B, LUKINOV T, FU J, et al. Stabilization of body-centred cubic iron under inner-core conditions[J]. *Nat Geosci*, 2017, 10(4): 312–316.
- [38] MASSOBRIO C, DU J C, BERNASCONI M, et al. Molecular Dynamics Simulations of Disordered Materials: From Network Glasses to Phase-Change Memory Alloys[M]. Cham: Springer International Publishing, 2015.
- [39] DU J, CORMACK A N. The medium range structure of sodium silicate glasses: A molecular dynamics simulation[J]. *J Non Cryst Solids*, 2004, 349: 66–79.
- [40] DENG L, DU J C. Development of boron oxide potentials for computer simulations of multicomponent oxide glasses[J]. *J Am Ceram Soc*, 2019, 102(5): 2482–2505.
- [41] WANG C H, WANG D, XU X X, et al. Transparent glass-ceramics functionalized with EuSiO_3 constrained BaF_2 : Eu^{2+} nanocrystals: Theoretical design and experimental fulfillment towards an efficient spectral converter[J]. *J Mater Chem C*, 2022, 10(42): 16138–16146.
- [42] WADHWA A, XU X X, HUANG Y P, et al. Modeling phase separation mechanisms in oxy-fluoride glass-ceramics containing SrF_2 : Ln^{3+} and ZnAl_2O_4 : Cr^{3+} nanocrystals[J]. *J Am Ceram Soc*, 2024, 107(12): 7800–7809.
- [43] GUILLOT B, GUISSANI Y. How to build a better pair potential for water[J]. *J Chem Phys*, 2001, 114(15): 6720–6733.
- [44] MAHADEVAN T S, SUN W, DU J C. Development of water reactive potentials for sodium silicate glasses[J]. *J Phys Chem B*, 2019, 123(20): 4452–4461.
- [45] MAHADEVAN T S, GAROFALINI S H. Dissociative water potential for molecular dynamics simulations[J]. *J Phys Chem B*, 2007, 111(30): 8919–8927.
- [46] YAN J P, ZHANG Y J, WANG F M, et al. Effect of Al_2O_3 on the structure–property relationship of sodium aluminophosphate glasses: A combined study of experiments, MD simulations, and QSPR analysis[J]. *J Am Ceram Soc*, 2023, 106(11): 6510–6526.
- [47] LU X N, VIENNA J D, DU J C. Glass formulation and composition optimization with property models: A review[J]. *J Am Ceram Soc*, 2024, 107(3): 1603–1624.
- [48] LUSVARDI G, MALAVASI G, TARSITANO F, et al. Quantitative structure-property relationships of potentially bioactive fluoro phospho-silicate glasses[J]. *J Phys Chem B*, 2009, 113(30): 10331–10338.
- [49] LU X N, DENG L, GIN S, et al. Quantitative structure-property relationship (QSPR) analysis of ZrO_2 -containing soda-lime borosilicate glasses[J]. *J Phys Chem B*, 2019, 123(6): 1412–1422.
- [50] LU X N, DU J C. Quantitative structure-property relationship (QSPR) analysis of calcium aluminosilicate glasses based on molecular dynamics simulations[J]. *J Non Cryst Solids*, 2020, 530: 119772.
- [51] DU J C, LU X N, GIN S, et al. Predicting the dissolution rate of borosilicate glasses using QSPR analysis based on molecular dynamics simulations[J]. *J Am Ceram Soc*, 2021, 104(9): 4445–4458.
- [52] ZHAO J J, NIENHUIS E T, MCCLOY J S, et al. Structures of fluoride containing aluminosilicate low activity nuclear waste glasses: A molecular dynamics simulations study[J]. *J Non Cryst Solids*, 2020, 550: 120379.
- [53] LIU Y, YANG Z W, ZOU X X, et al. Data quantity governance for

- machine learning in materials science[J]. Natl Sci Rev, 2023, 10(7): nwad125.
- [54] 刘悦, 马舒畅, 杨正伟, 等. 面向材料领域机器学习的数据质量治理[J]. 硅酸盐学报, 2023, 51(2): 427–437.
- LIU Y, MA S, YANG Z, et al. J Chin Ceram Soc, 2023, 51(2): 427–437.
- [55] LIU Y, ZHAO T L, YANG G, et al. The onset temperature (T_g) of As Se1 glasses transition prediction: A comparison of topological and regression analysis methods[J]. Comput Mater Sci, 2017, 140: 315–321.
- [56] LIU Y, WU J M, YANG G, et al. Predicting the onset temperature (T_g) of $\text{Ge}_x\text{Se}_{1-x}$ glass transition: A feature selection based two-stage support vector regression method[J]. Sci Bull, 2019, 64(16): 1195–1203.
- [57] LIU Y, WU L H, YANG Z W, et al. Descriptors divide-and-conquer enables multifaceted and interpretable materials structure–activity relationship analysis[J]. Adv Funct Mater, 2025: 2421621.

From Summation to AI-Assisted Data-Driven Methods of Glass Property Calculations

HU Lili, WANG Xin, ZHANG Liyan, DENG Lu, ZHENG Ruilin

(Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China)

Extended Abstract

Glass is widely used in various fields like smartphone screens, optical fibers and architectural windows. Nevertheless, the methods for calculating glass properties are explored. The amorphous structure of glass presents unique challenges for predicting its properties, compared to crystalline materials. This review introduces the evolution of methods used to calculate glass properties, from conventional summation techniques to contemporary AI-assisted data-driven approaches, and represents recent progress and future direction of this field.

A foundational work was performed by Winkelman and Schott in 1894, who introduced early summation methods for predicting glass properties, such as the density, thermal expansion coefficient, and refractive index. Despite the non-crystalline nature of glass, some pioneers laid the groundwork for further advancements, *i.e.*, composition-property additivity methods developed. These methods are rudimentary but crucial for understanding a relationship between glass composition and its properties. As research progressed, structure-based methods emerged as a significant leap forward. The methods, including the structural unit model, phase diagram approach, and topological constraint theory, incorporate the microstructural information. For instance, the phase diagrams visualize how different components interact within glass formulations, thus predicting critical glass properties such as the melting point and the viscosity. This is instrumental in controlling production processes and improving manufacturing outcomes. Besides, the development of topological constraint theory (TCT) is another milestone. The TCT method provides insights into atomic-scale constraints within amorphous materials, explaining why certain glass products exhibit specific behaviors. The material responses are predicted under various conditions without getting bogged down in complex jargon *via* understanding the arrangement of atoms. While these approaches enhance the understanding of composition-structure-property relationships, they are primarily applicable to simple systems due to limited structural data for complex multi-component glasses.

The integration of information technology and materials science leads to another significant advancements in glass research, complementing conventional experimental methods with the development of glass composition-property databases and simulation software. These tools enable efficient and cost-effective design and optimization of new functional glasses. Representative databases include SciGlass, INTERGLAD, GlassPy, and SMARTDATA, each offering unique features in data scale, prediction capabilities, machine learning integration, and industrial applications. Structural information of glass materials and their properties (*i.e.*, thermal, optical, chemical, and mechanical properties) are collected in these databases with integrated statistical analysis and machine learning functionalities. In addition, specialized databases also cater to specific applications. For instance, the databases of nuclear waste vitrification are constructed in different countries like USA, South Korea, and China. Models are constructed to predict glass properties based on nuclear waste compositions, and machine learning-based design algorithms are adopted to optimize formulations for stability and safety of the nuclear waste glass in long-term storage.

Since glass properties are ultimately determined by structural changes induced by its composition, it is crucial to investigate the relationships among composition, structure, and properties. Two main modeling approaches emerge for designing glass, *i.e.*, the statistical modeling with measured structural data, known as the Glass Structure Gene Simulation Method (GSgM), and computational methods such as *ab initio* molecular dynamics (AIMD), classical molecular dynamics (MD), and quantitative structure-property relationship (QSPR) models. The GSgM introduces structural data into conventional composition-property statistical models, enabling more accurate predictions *via* concerning composition, structure, and property relationships. Glass is considered as a network of structural units that statistically affect overall properties, and structural data can be integrated to obtain the Cornell's first-order statistical model. AIMD is continuously developed to overcome classical MD limitations. However, classical MD still remains a necessity for larger systems and longer timescales, despite relying on empirical potentials that approximate true potential energy surfaces. Moreover, recent progress on machine learning potentials and QSPR method offers promising alternatives, combining high accuracy with efficiency. MLPs use neural networks to fit potential functions from first-principles data, while QSPR links structural descriptors to material properties, enabling precise predictions. These integrated approaches aim to overcome

computational limitations and improve glass property modeling, offering effective tools for materials design and optimization.

Furthermore, the integration of artificial intelligence (AI) and machine learning algorithms revolutionizes glass research *via* enabling the analysis of vast datasets to uncover patterns and correlations. This advancement improves the accuracy of predicting glass properties, facilitating the discovery of new glass formulations with desirable characteristics. Note that AI excels in identifying non-linear relationships that are challenging for conventional methods, opening up novel avenues for innovation in glass development. Despite these advancements, some challenges persist. The effectiveness of AI models is profoundly affected by the quality and comprehensiveness of the training data, which can be affected by factors such as instrumentation, experimental conditions, and human involvement. Ensuring high-quality datasets is therefore paramount to achieving reliable predictions in this complex field. Also, the integration of diverse computational techniques into a unified framework presents significant technical and logistical challenges. While AI offers powerful tools for advancing glass research, overcoming these integration hurdles remains essential for fully harnessing its potential.

Summary and Prospects The advancements in glass property calculations are shifting from data accumulation to high-efficiency prediction, with databases differing in scale, openness, algorithm integration, and applicability. Future developments will focus on data sharing, multi-method integration, and experimental-computational-machine learning synergies, providing an enhanced technical support for both scientific research and industrial applications of glass materials. Some methodologies can merge advances in materials science with cutting-edge computational tools. High-throughput preparation techniques promise a rapid discovery of new glass compositions *via* enabling swift synthesis and testing. Pairing these with advanced characterization methods like spectroscopy or diffraction can generate datasets for AI models, driving a further innovation.

Keywords glass; properties simulation; artificial intelligence technology; structure-property relations