ترجمه فا

TarjomeFa.Com

ارائه شده توسط:

سایت ترجمه فا

مرجع جدیدترین مقالات ترجمه شده

از نشریات معتبر

اعداد جادویی هندسی خوشه های سدیم : تفسیر رفتار ذوب

چکیده :

حداقل مطلق خوشه های سدیم با بیش از 380 اتم برای دو پتانسیل بین اتمی مدل به منظور شناسایی ساختار های کنترل کننده وابستگی به اندازه خواص ترمودینامیک در آزمایشات تعیین شده است. ساختار های مبتنی بر بیست وجهی مکی برای هر دو پتانسیل غالب می باشند و اعداد جادویی برای مدل مورل-موترام، هم خوانی و تطابق عالی را با اندازه هایی نشان می دهد که در آن حداکثر در تغییر گرمای نهان و انتروپ در ذوب در آزمایش نشان داده شده است. به طور ویژه، اعداد جادویی در اندازه های بینابین بیست وجهی مک کی ناشی از ساختار های بیست وجهی پیچ خورده قرار دارند.

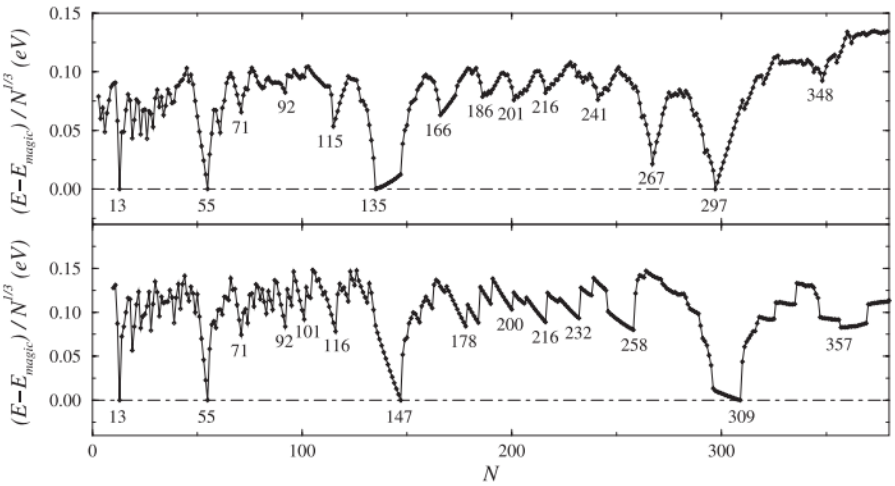
خوشه های سدیم به یک سیستم مدل بسیار مهم برای درک خواص ترمودینامیکی خوشه ها به دلیل قابلیت دسترسی به داده های آزمایشی با کیفیت بالا توسط گروه هابرلند برای اندازه های بیش از 360 اتم(1-5) تبدیل شده است. آن ها اولین سیستم خوشه ای بوده اند که در آن ها گرد کردن تغییرات فازی ناشی از اندازه محدود خوشه ها(1)، ظرفیت های گرمایی منفی در مجموعه‌ی بندادی کوچکی(3) و تغییرات گذار مایع-گاز(4) به طور آزمایشی نشان داده شده است. با این حال یکی از بزرگ ترین معما های باقی مانده از این داده ها، مبدا و منشا تغییرات غیر یکنواخت دمای ذوب با اندازه خوشه است. علی رغم مطالعات نظری گسترده(6-12)، اثرات هندسی یا الکترونیکی این تغییرات به طور کامل شناسایی نشده است.

پیشرفت های علمی در جدید ترین مقاله هابرلند و همکاران مطرح شده اند. در این مقاله ایشان نشان داده اند که تغییرات انرژی و انتروپی در زمان ذوب به جای دمای خود ذوب، اطلاعات ساختاری مهمی را در اختیار می گذارد(13). به طور اخص، این دو مقدار ماکزیمم (حداکثر) متمایزی را در اعداد جادویی خاص نشان می دهند که برخی از آن ها دارای یک تفسیر واضح و شفاف از حیث ساختارهای ژئومتریک نظیر بیست وجهی مک کی کامل دارند با این حال بیشتر آن ها هنوز تعیین نشده است. از این روی، یک بررسی نظری سیستماتیک از ساختار های هندسی خوشه ها در این بازه اندازه، از اهمیت ویژه ای در شناسایی ساختار های اصلی این اعداد جادویی برخوردار است.

مطالعات قبلی بر روی ساختار خوشه های سدیمی تا حد زیادی بر خوشه های با کم تر از 60 اتم متمرکز بوده اند(60 اتم)(14-19). بر عکس، در این مقاله ما سعی می کنیم تا ساختار های خوشه های سدیم با کم ترین انرژی را برای همه اندازه های بیش از N=380 با استفاده از روش بهینه سازی مطلق بیسین-هاپینگ مکان یابی کنیم(20). این اندازه های بزرگ لزوم استفاده از یک پتانسیل مدل را تاکید می کنند و ما دو شکل متفاوت را برای فعل و انفعالات بین اتمی در نظر می گیریم یعنی پتانسیل گوپتا(21-22) و مورل-موترام(MM)(23-25). پتانسیل MM دارای پارامتر های بیشتری بوده و با طیف وسیعی از ویژگی ها سازگار بوده و انتقال پذیری خوبی را نشان می دهد(25). از این روی، انتظار می رود که در مقایسه با دو پتانسیل دارای اطمینان پذیری بیشتر باشد با این حال محاسبه آن مستلزم هزینه بسیار زیادی است. مزیت در نظر گرفتن دو پتانسیل این است که ویژگی های ساختاری ای که در هر دو پتانسیل، مشترک هستند قابل اعتماد تر می باشند.

شکل 1 نمودار انرژی های حداقل مطلق را برای دو پتانسیل نشان می دهد و شکل 2 ساختار های برخی از خوشه های اعداد جادویی را نشان می دهد. انرژی ها و مختصات برای همه ساختار ها در دیتابیس خوشه کمبریج قابل دسترس می باشند(26). به ازای $N \leq 57$، حداقل مطلق گوپتا قبلا توسط لای و همکاران(17) گزارش شده است.

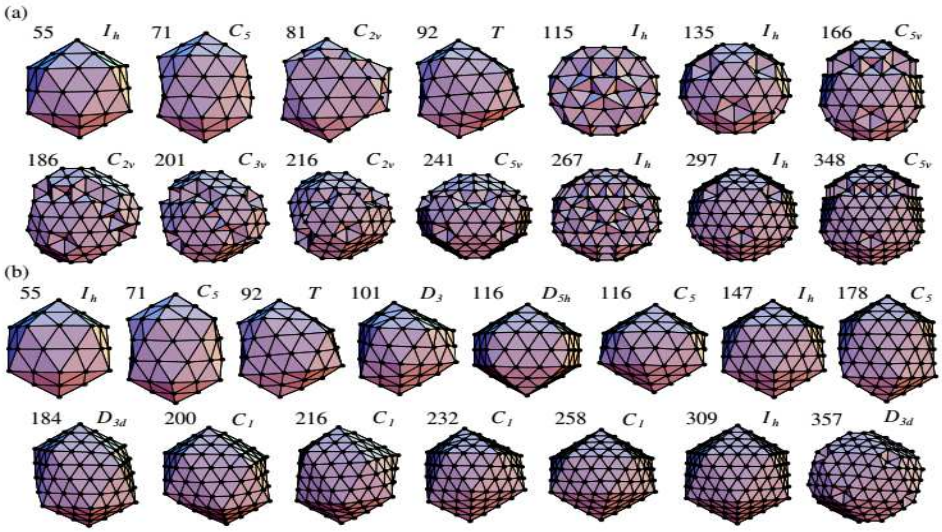
گروه هابرلند پی برده است که به ازای $N < 100$ بسیاری از خوشه های سدیم یک حالت گذار ذوب مشخص را نشان نمی دهد بلکه از حالت جامد به مایع بدون گرمای نهان مشخص جا به جا می شوند. Na55 خلاف این روند را نشان داده و دارای دمای ذوب نسبتا بالایی می باشد ولی Na70 و Na92 نیز استثناء هستند (13).



شکل1 : انرژی حداقل مطلق برای پتانسیلهای گوپتا(پانل فوقانی) وmm(پانل پایین) که تابعی از اندازه است.انرژی ها نسبت به Emagic نشان داده شده اند که تابع برازش یافته با انرژی های چهار عدد جادویی قوی اول هستند: T

$$E_{magic}^{Gupta} = 0.0403 - 0.2546N^{1/3} + 1.2134N^{2/3} - 1.1568N$$

$$E_{magic}^{MM} = -0.4788 + 0.5261N^{1/3} + 0.9852N^{2/3} - 1.1110N$$



شکل 2: مجموعه ای از خوشه های سدیم که پایداری های بالا را برای الف: پتانسیل های گوپتا و ب: پتانسیل های میورل-موترام نشان می دهند. هر ساختار با اعداد اتمی و تقارن گروه نقطه ای آن نام گذاری می شود.

هر دو پتانسیل ها، یک عدد جادویی برجسته را در N = 55 نشان می دهند که همان طور که انتظار می رود با بیست وجهی مک کی کامل متناظر است. معمولا دو نوع لایه برای رشد بر روی سطح بیست وجهی مک کی وجود دارد. اولین، لایه مک کی است که بسته بندی مکعب با سطح مرکز دار(fcc) تتراهدرای fcc تشکیل دهنده بیست وجهی مک کی را ادامه می دهد و منجر به تشکیل بیست وجهی مک کی بعدی می شود. بر عکس، دومین لایه که موسوم به لایه ضد مک کی است، اتم ها را به مکان هایی می افزاید که با توجه به چهار وجهی(تتراهدراری) fcc به صورت شش وجهی بسته بندی می شود. معمولا رشد در لایه ضد مک کی به دلیل تعداد زیاد فعل و انعفالات(اثرات متقابل) نزدیک ترین همسایه شروع می شود، ولی چون دارای کرنش پایینی است، به لایه مک کی سوییچ می کند(27، 28).

نکته جالب این است که، ساختار هایی که هیچ یک از این لایه ها را ندارند، برای هر دو پتانسیل مناسب هستند. عدد جادویی درNa71 که یک دلیل احتمالی برای ویژگی آزمایشی در $N = 70$ است، یک مثال خوب می باشد.

هر دو پتانسیل دارای حداقل مطلق یکسان C5 می باشند در آن ها پنج وجه حول راس بیست وجهی مک کی 55اتمی توسط یک لایه مک کی مانندپوشش داده شده است با ایت حال هر دو لایه فوقانی و هسته باتوجه به مکان های ایده ال مک کی به صورت پیچ خورده هستند. این پیچ خوردگی موجب افزایش عدد کوردیناسیون برخی از اتم های سطحی به قیمت افزایش کرنش شده و موجب ایجاد یک ساختاری می شود که در آن بر خلاف هر دو لایه آنتی مک کی و مک کی، سطح به طور کامل متشکل از وجه های {111}مانند است.یک ساختار مشابه، یک عدد جادویی در N = 92 بوده و شامل پوشش ده وجه با یک لایه مک کی است که سپس تحت اعوجاج پیچشی قرار گرفته و منجر به تشکیل ساختاری با تقارن گروه نقطه T به جای C_{3v} برای شکل هندسی ایده ال مک کی می شود. این ساختار ها همانند هیبرید بیست وجهی مک کی55 اتمی و 147 اتمی هستند زیرا آن ها دارای وجه های مثلثی{111} با اندازه متناظر با هر دو بیست وجهی مگ کی کوچک تر و بزرگ تر می باشند.

پتانسیل گوپتا به طور منحصر ساختار های مبتنی بر این بیست وجهی پیچ خورده را با این بازه اندازه نشان نمی دهد. برای مثال در N=81، یک ساختاری که در آن هشت وجه با یک لایه آنتی مک کی پوشیده می شوند، حداقل مطلق است. این تفاوت بین دو پتانسیل در اندازه های بزرگ تر مشهود تر می شود. برای مثال، یک ویژگی در $N \approx 116$ در نتایج آزمایشی وجود دارد که از حیث ساختار مک کی با 15 مورد از وجه های تشکیل دهنده بیست وجهی تفسیر شده است(13). هر دو پتانسیل دارای ویژگی های مشهودی نزدیک به این اندازه هستند. برای پتانسیل MM، یک عدد جادویی در N=116 وجود دارد و در این اندازه دو حداقل با انرژی تقریبا یکسان وجود دارند. کم ترین حداقل دوم با شکل پیچ خورده ساختار نشان داده شده توسط هابر لند و همکاران متناظر است و ایزومر با کم ترین انرژی بر اساس یک ده وجهی 116 اتمی ولی با حلقه مرکزی اتم های پیچ خورده برای حذف وجه های {100} می باشد. بر عکس،پتانسیل گوپتا دارای یک عدد جادویی در N=115 می باشد که با ساختار I_h با یک لایه ضد مک کی کامل متناظر است. این یک ویژگی غیر معمول است زیرا لایه ضد مک کی معمولا در طی رشد اولیه بر روی بیست وجهی مشاهده می شود(27) ولی وقتی که لایه تقریبا کامل است دیده نمی شود. به علاوه، این ساختار دارای انرژی بالایی برای پتانسیل MM است.

از نظر تجربی،Na147 یک عدد جادویی غالب می باشد و همان طور که انتظار می رفت بیست وجهی مک کی یک حداقل مطلق در این اندازه برای دو پتانسیل است. با این حال، برای پتانسیل گوپتا یک ساختار پایدار تر را می توان با حذف دوازده اتم راس بدست اورد که منجر به عدد جادویی در N = 135 می شود(شکل 1). این ویژگی کاملا با آزمایش متناقض است.

برای رشد بر روی بیست وجهی 147 اتمی، تفاوت بین نتایج برای دو پتانسیل بزرگ تر ی شود. برای پتانسیل MM، ساختار های مبتنی بر بیست وجهی پیچ خورده غالب می شود. با این حال پتانسیل گوپتا در ابتدا ساختار های با یک لایه مک کی را نشان می دهد. و سپس در نزدیکی تکمیل این لایه در N=267، به لایه ضد مک کی سوییچ می کند.

پتانسیل MM اعداد جادویی غالب را در N = 178, 216, 232,258 با ویژگی های ضعیف تر در 184،190، 200، 206، 222 و 238 نشان می دهد. این ساختار ها با پوشش وجه های متوالی بیست وجهی مک کی 147 اتمی با لایه های مک کی مانند متناظر است با این حال در آن سطح و مرکز تحت یک اعوجاج پیچشی قرار می گیرند. ساختار های 178، 216، 232 و 248 اتمی معادل با ساختار های 71،92، 101 و 116 توصیف شده در بالا بوده و با پوشش همه وجه های حول 1، 3، 4 و 6 راسی بیست وجهی متناظر است. این ویژگی ها هم خوانی خوبی با نتایج آزمایشی دارند که دارای ویژگی های شفاف در N=178و 278 و یک پیک پایین تر در N=184می باشد. هیچ گونه نتایج آزمایشی در N=232,258 شناسایی نشده است. با این حال در این بازه اندازه، داده ها پراکنده می شوند و نوار های خطا دارای بزرگی مشابه با تغییرات اندازه می باشند. از این روی، انجام آزمایشات بیشتر در این بازه ها برای بررسی پیش بینی های مدل MM جالب خواهد بود.

نکته جالب این است که، هابرلند و همکاران ساختار های مک کی بدون اعوجاج را برای توضیح اعداد جادویی در N=178,216(13) پیشنهاد کردند. با این حال، گفته می شود که ساختار های پایدار تر زمانی ایجاد می شوند که 5 اتم کوردینانسی در گوشه وجه های مثلثی اشغال نشده باشند. برای مثال، این مسئله منجر به اعداد جادویی در N=173 و 213 برای خوشه های لنارد-جونز(29) شده است. اعوجاج پیچشی بیست وجهی، یک دلیل احتمالی برای این تفاوت در اعداد جادویی است. در نتیجه اعوجاج، عدد کوردیناسیون برای اتم های گوشه از 5 تا 6 افزایش می یابد و موجب می شود تا برای این مکان ها، مطلوب تر شود.

اعداد جادویی برای پتانسیل گوپتا از نظر اندازه به دلیل مطلوبیت ساختار های بیست وجهی غیر اعوجاجی و مکان های راسی تهی، کاملا متفاوت می باشند. اعداد جادویی در N=166,186,201,216,241 همگی ناشی از ساختار های با لایه مک کی هستند. در صورتی که برای شش راس هماهنگ مطلوب باشد، این اندازه های جادویی به جای N=173,196,213,230,258 در نظر گرفته می شود. تنها اگر مکان های اشغال شود، اعداد جادویی به صورت 178و216،200، 232 و 258 خواهد بود. مشابه با پایداری ویژه Na115 در رشد سومین لایه، یک عدد جادویی دیگر در N=267 وجود دارد که ساختار آن دارای یک لایه کامل ضد مکی بدون رئوس است. هم چنین، هابرلند و همکاران یک طیف فوتو الکترون با ساختار مناسب را یافته اند(N=268)، با این حال آن ها این ویژگی را به وجود یک حلقه بسته الکترونی به جای تقارن گروه نقطه ای بالا(13) نسبت دادند.

به منظور ارزیابی عملکرد نسبی دو پتانسیل در این بازه اندازه، ما نتایج خود را با نتایج بدست آمده با استفاده از نظریه تابعی چگالی عاری از اوربیتال(OF-DFT) ، که برای آن ده بازه اندازه اخیرا با استفاده از حرارت دهی شبیه سازی شده(11) بهینه سازی شده است، این سطح از تئوری در بازتولید و تکرار دما های ذوب برای مجموعه اندازه های مطالعه شده، موفق بوده است(11-12). از این روی، ما همه ساختار های گوپتا و MM را در این سطح از تئوری مجددا بهینه سازی کرده ایم. این مقایسه موید برتری پتانسیل MM و پایداری بیشتر اشکال بیست وجهی پیچ خورده است. به علاوه، حداقل مطلق MM مجددا بهینه سازی شده منجر به حداقلی می شود که تاحدودی سطح انرژی کم تری از حداقل های یافته شده برای اندازه گزارش شده در منبع(11) داشته اند.

در خصوص سومین لایه، بیست وجهی مک کی کامل 309 اتمی یک عدد جادویی برای پتانسیل گوپتا نیست بلکه یک بیست وجهی با دوازده راس، پایدار تر است که عدد جادویی آن به N=297 تغییر می کند. پتانسیل MM هنوز، عدد جادویی را به صورت N=309 پیش بینی می کند ولی تفاوت در پایداری بین ساختار های 297 و 309 اتمی کوچک تر است. در واقع، در N=360 ساختار های با رئوس مفقود پایدار تر شده اند. رفتار مشابه دو پتانسیل نشان می دهد که از دست دادن اتم های راس، یک ویژگی ساختاری قوی برای سدیم است، دو پتانسیل تنها از نظر اندازه ای که در آن این اثر ابتدا ظاهر می شود متفاوت است. این نتایج حاکی از آن است که یک دلیل موجه برای نبود عدد جادویی آزمایشی در N=309 ولی ظهور یک ویژگی در N=298، پایداری بیشتر یک بیست وجهی مک کی است که رئوس خود را از دست داده است.با این حال هابرلند پی برده است

که طیف فوتوالگترون اندازه گیری شده برای Na298 با این ساختار سازگار نیست(13). به علاوه، هابرلند در زمان اندازه گیری طیف فوتوالکترون Na309 به صورت تابعی از دما پی برد که یک انتقال یا حالت گذار ساختاری در حدود 40K پایین تر از نقطه ذوب(13) رخ می دهد. با این حال شبیه سازی های حرارتی موازی با استفاده از پتانسیل گوپتا شواهدی مربوط به تغییرات قبل از ذوب برای Na309 نشان نداد. از این روی این نتایج نمی تواند یک دلیل ساختاری سازگار با یافته های تجربی مرتبط با تکمیل چهارمین لایه بیست وجهی باشد و منشا آن ها تا حدودی مبهم باقی مانده است. در نهایت برای رشد پنجمین لایه بیست وجهی، همین الگو ها ادامه می یابد یعنی لایه های فوقانی مک کی برای پتانسیل گوپتا و بیست وجهی پیچ خورده برای پتانسیل MM. در این بازه اندازه، آزمایشات یک مقدار پیک را در N=360 پیش بینی می کنند که عدد جادویی MM آن در N=257 می تواند یک دلیل احتمالی برای این موضوع باشد.

به طور خلاصه، ما ساختار های با کم ترین سطح انرژی را برای همه خوشه های سدیم با بیش از 380 اتم برای دو پتانسیل مدل تعیین کردیم. هر دو پتانسیل نتایج بدست آمده از تحلیل اخیر رفتار ذوب خوشه های سدیمی توسط هابرلند را تایید می کنند(13). یعنی خوشه های با این تغییرات اندازه غالبا بیست وجهی هستند. با این حال، پتانسیل MM قابلیت اطمینان بیشتری دارد و این مسئله بر اساس محاسبات در سطح پیشرفته تئوری و اعداد جادویی آزمایشی اثبات شده است. به طور ویژه، بر عکس پیشنهادات در منبع(13)، نتایج ما نشان می دهد که ویژگی های آزمایشی در اندازه های بین بیست وجهی مک کی کامل ناشی از ساختار های بیست وجهی با یک لایه مک کیمی باشند با این حال در آن ها هر دو هسته و لایه سطحی تحت یک اعوجاج قرار گرفته و تولید ساختار هایی می کنند که تنها دارای وجه های شبه 111 هستند.

یکی از محدودیت های رویکرد فعلی این است که پتانسیل های مدل، قادر به ایجاد اثرات لایه الکترونیک نظیر ساختار های کنترل کننده اعداد جادویی در طیف جرمی خوشه های سدیم مذاب(30) نمی باشند. لذا، با توجه به این که ما تنها از ساختار هندسی خوشه ها استفاده می کنیم، موفقیت رویکرد ما از اهمیت بالایی خواهد بود. دلیل این است که اثرات لایه الکترونیک بر هر دو حالت جامد و مایع خوشه ها د به شیوه ای مشابه اثر می گذارند. برای مثال، محاسبات پاولوف و گریگ نشان می دهد که اعداد جادویی الکترونیک برای خوشه های مایع و بیست وجهی بیش از 350 است(31).

ترجمه فا
TarjomeFa.Com

این مقاله، از سری مقالات ترجمه شده رایگان سایت ترجمه فا میباشد که با فرمت PDF در اختیار شما عزیزان قرار گرفته است. در صورت تمایل میتوانید با کلیک بر روی دکمه های زیر از سایر مقالات نیز استفاده نمایید:

✔ لیست مقالات ترجمه شده

✔ لیست مقالات ترجمه شده رایگان

✔ لیست جدیدترین مقالات انگلیسی ISI

سایت ترجمه فا ؛ مرجع جدیدترین مقالات ترجمه شده از نشریات معتبر خارجی