

РЕФЕРАТ

Отчет 38 с, 6 рис., 27 источн., 1 прил.

СТАТИСТИЧЕСКИЙ МЕТОД, КОРРЕЛЯТИВНЫЕ ФУНКЦИИ, МЕТОД УСЛОВНЫХ РАСПРЕДЕЛЕНИЙ, ДВУХУРОВНЕВОЕ ОПИСАНИЕ, ВАКАНСИИ, ЧИСЛА ЗАПОЛНЕНИЯ, НАНОРАЗМЕРНЫЕ ЧАСТИЦЫ

Объект исследования – кристаллические молекулярные наночастицы.

Цель работы – компьютерная реализация применения модифицированного двухуровневого молекулярно-статистического метода для установления корреляции между структурой и термодинамическими характеристиками кристаллических наночастиц с учетом пространственной релаксации решетки на границе наночастиц с окружающей средой.

Методы исследования – двухуровневый молекулярно-статистический метод, который является симбиозом трех известных методов: метода коррелятивных функций Боголюбова – Борна – Грина – Кирквуда – Ивона (ББГКИ), метода условных коррелятивных функций Ротта и метода функционалов плотности.

Область применений – теоретического описания микроструктуры кристаллических наночастиц с неоднородным распределением средней плотности.

Полученные результаты:

– с помощью двухуровневого статистического метода составлена полная система интегральных и алгебраических уравнений, решение которой позволяет рассчитывать структурные характеристики, функционалы энтропии, внутренней и свободной энергий сферических кристаллических наночастиц с заданным радиальным профилем плотности;

– разработан алгоритм расчета структурных и термодинамических характеристик сферических наночастиц в однородной газообразной среде;

– на основе разработанной методики итерационного решения системы интегральных уравнений, с использованием системы MathCad, разработана компьютерная программа расчета структурных и термодинамических характеристик кристаллической сферической наночастицы с искомым неоднородным радиальным профилем плотности;

– проведены контрольные расчеты структурных и термодинамических характеристик кристаллических молекулярных наночастиц при температуре ниже тройной точки;

– численным методом установлена корреляция между микро- и макроструктурой, а также термодинамическими характеристиками кристаллических наночастиц в рамках двухуровневого молекулярно-статистического метода описания неоднородных систем с учетом релаксации решетки на границах наночастиц.

ВВЕДЕНИЕ

Двухуровневый молекулярно-статистический метод [1, 2] ранее в основном использовался для описания равновесных свойств однородных макроскопических систем [3–7]. В данной работе он преобразован с целью описания неоднородных систем, какими являются наночастицы. Двухуровневый статистический метод базируется на совместном использовании метода коррелятивных функций Боголюбова – Борна – Грина – Кирквуда – Ивона (ББГКИ), метода условных распределений Ротта [8] и метода термодинамических потенциалов, которые в случае неоднородных систем являются функционалами поля плотности среды. Их совместное использование позволило эффективным образом оборвать цепочку интегро-дифференциальных уравнений для коррелятивных функций и решить вопрос о способе нормировки этих функций для неоднородной системы. Двухуровневый статистический метод [8, 11–16] позволяет реализовать учет неоднородного распределения средних чисел заполнения n_i микроячеек объемами ω_i метода условных распределений Л. А. Ротта [10], форма и размеры которых претерпевают существенные изменения вблизи границ наночастиц. При этом используется F_{11} -приближение, учитывающее множество наиболее вероятных состояний конденсированной системы из N молекул в объеме V , причем в этом приближении каждой микроячейке может содержаться не более одной частицы. Количество микроячеек M превышает число N частиц в наночастице так, что некоторые микроячейки с определенной вероятностью могут быть вакантными. В результате средние числа заполнения ячеек меньше единицы, а поле их распределения по объему отражает неоднородность наночастицы.

Ранее [9, 10] в результате последовательной реализации статистического метода получены приближенные аналитические выражения для среднего одночастичного потенциала взаимодействия выделенной молекулы конденсированной среды с остальными молекулами, статистически распределенными по ячейкам, центры которых образуют соответствующую кристаллическую решетку – регулярную для однородных и нерегулярную для неоднородных макроскопических систем и систем из малого числа атомов или молекул (кластеров), представителями которых являются наночастицы. Эти потенциалы использовались в качестве удобных аппроксимационных выражений для потенциалов средних сил двухуровневого статистического подхода к описанию структуры и термодинамических характеристик равновесных молекулярных систем. С их помощью были рассчитаны одночастичные функции распределения атомов или молекул в однородных макроскопических кристаллах с ГЦК решеткой, а также малых систем (кластеров в форме икосаэдра из 13 молекул и кластеров с ГЦК решеткой из 13, 19 и 43 узлов) с центром симметрии, на границах которых обнаружена пространственная релаксация узлов решетки в радиальном направлении.

В данной работе двухуровневый молекулярно-статистический метод модифицирован для разработки компьютерной программы статистического расчета структурных и термодинамических параметров кристаллических

сферических наночастиц с учетом пространственной релаксации решетки на границе наночастиц с окружающей средой.

Компьютерные теоретические исследования по изучению структурных и термодинамических характеристик наночастиц сокращают трудозатраты и объем сложных экспериментальных исследований в данном научном направлении, и тем самым сокращают финансовые затраты.