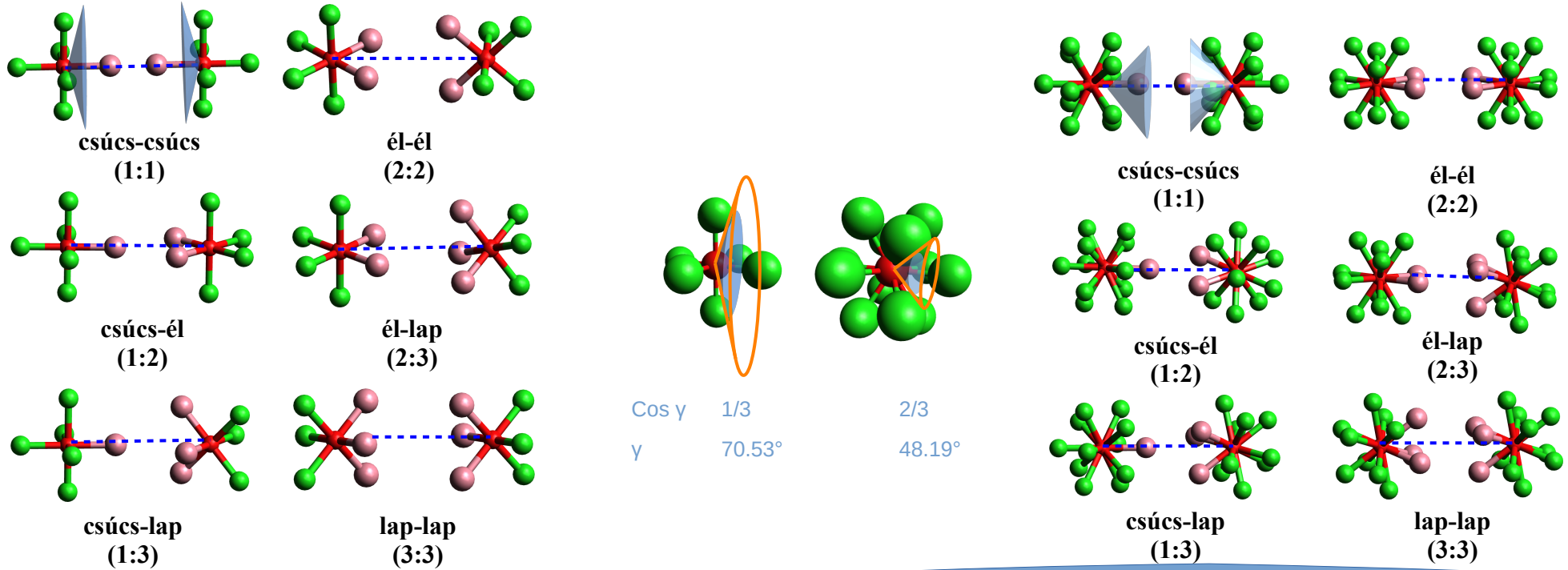


Magas szimmetriájú molekulák kölcsönös
elrendeződésének osztályozása különböző
fázisokon: SF₆

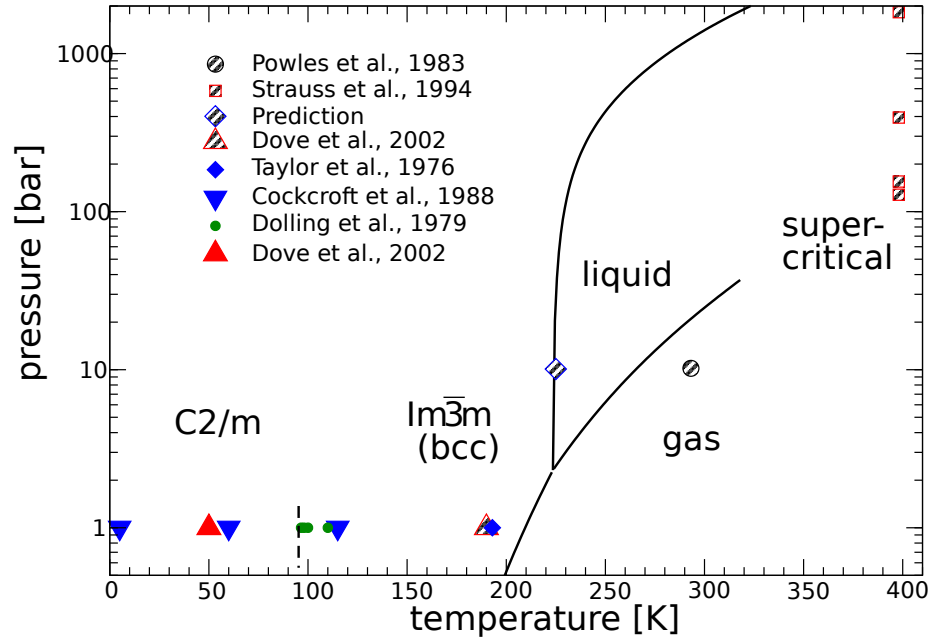
Temleitner László
HUN-REN Wigner Fizikai Kutatóközpont,
Folyadékszerkezet Csoport

Okta- és ikozaéderes molekulák párjainak ideális elrendeződései



[R. Rey, J.Chem.Phys. 126(2021) 164506] (Original idea for tetrahedral molecules)
 [L. Temleitner, J.Mol.Liq. 341(2021) 116916] (Generalization for high-symmetry molecules)

SF₆ fázisdiagram



Source: Guder&Wagner, JPCHEMREFDATA 38(2009) 33.

- Diffrakcióval elég jól tanulmányozott
- Kristályos fázisok (normál nyomáson):
 - Monoklin (rendezett) fázis (Z=6), stabil 96K alatt
 - BCC (plasztikus kristály) fázis (Z=2), stabil 210K-ig, $a=5.78..5.91\text{\AA}$
- Jellemző állapotpontok [Guder&Wagner, 2009]:
 - Hármaspont: 223.55K, 2.31 bar
 - Kritikus pont: 318.72K, 37.55 bar

Forcefield-ek és MD szimulációk

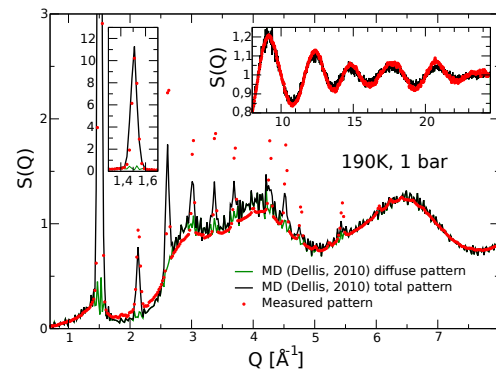
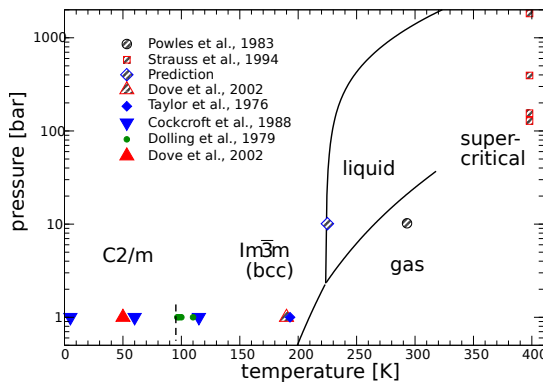
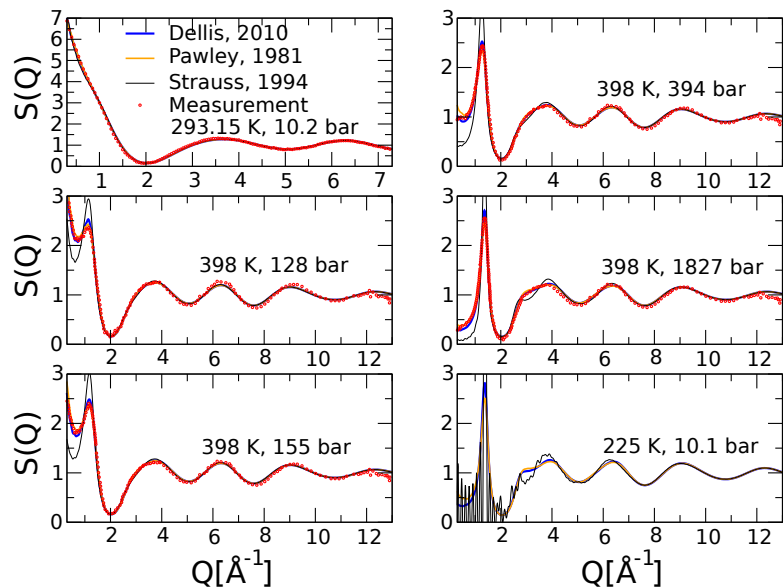
- Forcefieldek áttekintése és optimalizálása a rendezetlen fázisok sűrűségére [Dellis&Samios, Fluid Ph. Eq., 291(2010) 81]:

- 6 site Lennard-Jones: [Pawley, 1981], [Olivet, 2007]
- 7 site Lennard-Jones parciális töltésekkel: [Strauss, 1994], [Kinney, 1996]

$$U = 4 \epsilon \left[\left(\frac{\sigma}{r} \right)^{12} - \left(\frac{\sigma}{r} \right)^6 \right] + \frac{1}{4 \pi \epsilon_0} \frac{q_i q_j}{r}$$

- 7 site Lennard-Jones: [Dellis&Samios, 2010]
- NVT and NpT szimulációk:
 - bcc fázis 5488 molekula (14x14x14 egységcella)
 - Többi fázisnál 5000 molekula
 - S-F kötéshossz: 1.563(2) Å

Modellek egyezése korábbi teljes pordiffrakciós mérések eredményeivel



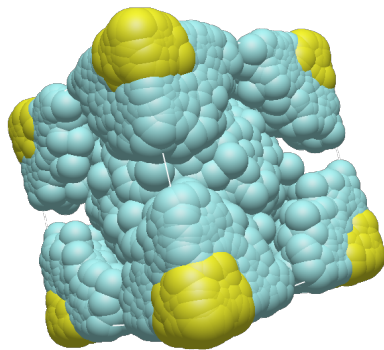
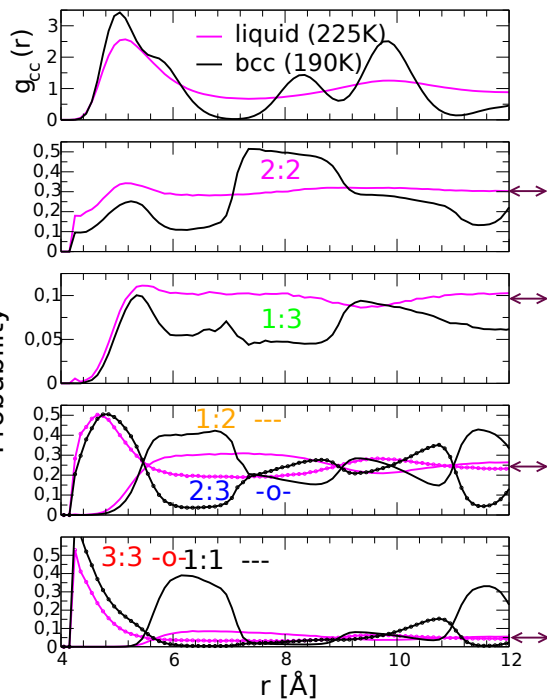
- Mindegyik elfogadható illeszkedést mutat, kivéve [Strauss, 1984] – csak kis különbségek vannak közöttük.
- A bcc fázisban a illeszkedés nem tökéletes: a modell egy kicsit rendezetlenebb, mint a valós rendszer.

Modellek és a mért sűrűségek

Hőmérséklet [K]	398	398	398	398	190	225
Nyomás [bar]	128	155	394	1827	1	10.1
Sűrűség [kg/m ³]	850	1000	1400	1850	2374	1842
Forcefield	Density difference [kg/m ³]					
Kinney	114	77	55	91	-4	266
Pawley	-112	-117	-12	118	81	-185
Kinney-opt	-8	-36	-16	45	-69	84
Powley-opt	-17	-42	-20	34	-45	42
Strauss-opt	-8	-34	-9	57	-43	71
Dellis	12	-14	-3	55	-41	58

- Optimalizáltak jobban teljesítenek

Az SF₆: folyadék és plasztikus kristály fázisa



Ideális távolságok (kristály):

1. szomszéd $\langle 111 \rangle$: 5.10 Å
2. szomszéd $\langle 100 \rangle$: 5.89 Å
3. szomszéd $\langle 110 \rangle$: 8.33 Å

- A kontakt régió elrendeződései függetlenek a fázistól
- A bcc fázisban a megfigyelt elrendeződések összhangban vannak azzal a képpel*, hogy a fluorinok **főként** a $\langle 100 \rangle$ tengelyek irányában orientálódnak.

*=([Dolling et al., Mol.Phys. 37(1979) 1859], [Dove&Pawley, J.Phys.C 17(1984) 6581], [Dove et al., Eur.J.Miner. 14(2002) 331])

Mit várok a résztvevőtől?

- Értesülni a legújabb trendekről, hogy melyek a „menő” potenciál optimalizálási eljárások a gépi tanulással összefüggésben
- ...

Köszönöm a figyelmet!