

Д. И. Кушель, аспирант; Л. И. Красовская, профессор

ИДЕНТИФИКАЦИЯ ОСНОВНЫХ КАНАЛОВ И РАСЧЕТ ПАРАМЕТРОВ ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ ДИМЕРОВ УГЛЕРОДА С ОДНОСЛОЙНОЙ УГЛЕРОДНОЙ НАНОТРУБКОЙ

Molecular dynamic modeling was used for the investigation of the channels of interaction of carbon dimers with open-ended armchair single-wall nanotubes. Effective cross-sections of the channels were calculated and basic types of the resulting structures were determined. It was established that the excitation of the rotational degrees of freedom of dimers increased the variety of the defects in the wall of initial nanotube which appear after the collision (in comparison with the defects forming after collisions of the nanotube with non-rotating dimers) while dimer vibrations didn't have direct influence on the dimer-nanotube interaction.

Введение. Совершенствование методик синтеза углеродных нанотрубок замедляется существующим пробелом в понимании механизмов и внутренних законов их роста. Трудности экспериментального исследования механизмов формирования нанотрубок приводят к попытке прояснить эти процессы теоретическими методами, среди которых в последнее десятилетие широкое использование получил метод молекулярной динамики, заключающийся в численном интегрировании уравнений движения для всей совокупности атомов, составляющих систему.

Целью данной работы являлось исследование методом молекулярной динамики взаимодействия димеров углерода с нанотрубкой. В качестве объекта моделирования взята однослойная нанотрубка с индексами хиральности (5,5), открытая с обоих концов и состоящая из 80 атомов. Для описания межатомного взаимодействия использовался потенциал REBO (reactive empirical bond order potential) [1] с поправками [2].

Методика работы. В ходе исследования проведен ряд молекулярно-динамических моделирований процессов столкновения углеродных димеров с рассматриваемой нанотрубкой для различных начальных состояний системы, которые определялись совокупностью начальных скоростей и координат всех атомов системы (значения скоростей задавались опосредованно через задание координат атомов на шаге, предшествующем началу моделирования). Перед столкновением атомы димера двигались с заданной скоростью, тогда как атомы, исходно составляющие нанотрубку, были неподвижны и имели координаты, соответствующие конфигурации системы с наименьшей энергией. Процесс столкновения определялся следующим набором пробегающих ряд дискретных значений параметров: M , α , \bar{v}_0 , Θ , φ , ξ , η , где v_0 – начальная скорость центра масс димера; Θ , φ – углы в сферической системе координат с полярной осью, совпадающей с осью нанотрубки, определяющие положение центра масс димера; ξ , η – прицельные параметры, определяющие

начальное положение налетающего димера в плоскости, перпендикулярной вектору начальной скорости; M – собственный момент импульса димера; α – угол, определяющий начальную фазу димера (рис. 1).

Моделирование было проведено для значений \bar{v}_0 в диапазоне 316–3162 м/с.

Численное интегрирование уравнений движения атомов системы осуществлялось по алгоритму Верле [3]:

$$\vec{r}_{i+1} = 2\vec{r}_i - \vec{r}_{i-1} + \vec{F}_i \Delta t^2, \quad (1)$$

где \vec{r}_{i+1} , \vec{r}_{i-1} , \vec{r}_i – радиус-векторы атомов на $i+1$, $i-1$ и i -м шаге моделирования соответственно, \vec{F}_i – суммарная сила, действующая на атом со стороны остальных частиц на i -м шаге моделирования; Δt – временной шаг, равный 0,5 фс.

Расчет сил производился на основе аналитического выражения, полученного путем соответствующего дифференцирования функции потенциальной энергии [1, 2]:

$$\vec{F}_i = - \frac{\partial U(\vec{R}_i)}{\partial \vec{r}_i}, \quad (2)$$

где \vec{R}_i – вектор, определяющий положение системы в ее $3n$ -мерном конфигурационном пространстве; $U(\vec{R}_i)$ – потенциальная энергия, зависящая от взаимного расположения всех n атомов системы.

Для наблюдения за процессами, протекающими в моделируемой реакционной системе, в расчетной программе был реализован графический блок, позволяющий визуализировать образующиеся промежуточные структуры и процессы перестройки связей.

Анализ получаемых в ходе моделирования структур выполнялся с помощью специально разработанной подпрограммы, осуществлявшей автоматическое распознавание и классификацию образующихся объектов.

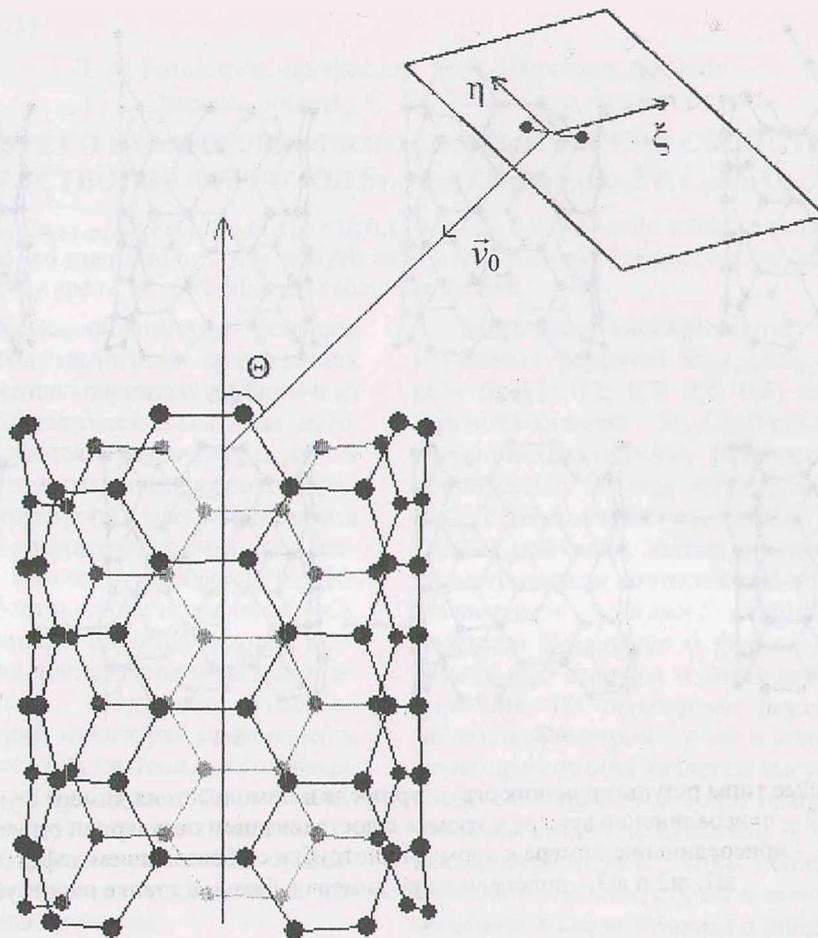


Рис. 1. Параметры столкновения в системе «нанотрубка – димер»

Получающиеся в ходе моделирования динамики системы «нанотрубка – димер» объекты трактовались как нанотрубка с дефектом (слово «дефект» здесь употреблено в широком смысле, в том числе для обозначения случая, когда происходило достраивание регулярной структуры нанотрубки), и классифицировались в соответствии с типом образовавшегося дефекта структуры.

Результаты и их обсуждение. В результате серий расчетов установлено, что результат взаимодействия димера с нанотрубкой очень чувствителен к вращению димера. Причем возбуждение вращательных степеней свободы значительно расширяет класс дефектов, образующихся на поверхности модельной нанотрубки в результате столкновения с димером. Возбуждение колебательной степени свободы димера, наоборот, не оказывает принципиального влияния на результат его столкновения с нанотрубкой, и поэтому с целью экономии машинного времени колебательные степени свободы димера были в дальнейшем исключены из рассмотрения (и даже с данными допущениями время расчетов на компьютере с

процессором Pentium IV 3 ГГц составило около двух тысяч часов). Моделирование также показало, что удельный вес тех или иных образующихся в результате столкновения димера с нанотрубкой дефектных структур практически не зависит от азимутального угла ϕ атаки нанотрубки димером.

В ходе исследования были идентифицированы каналы взаимодействия димеров углерода с рассматриваемой нанотрубкой и рассчитаны их эффективные сечения для различных скоростей димера относительно нанотрубки. Это позволило выделить основные типы образующихся после взаимодействия дефектных структур (рис. 2). Расчетные значения эффективных сечений образования данных структур приведены в таблице.

Дополнительная серия расчетов показала, что с увеличением длины нанотрубки (при неизменном диаметре) эффективные сечения образования структур с дефектом на кромке нанотрубки практически не изменяются, тогда как эффективные сечения образования дефектов на боковых стенках нанотрубки увеличиваются прямо пропорционально ее длине.

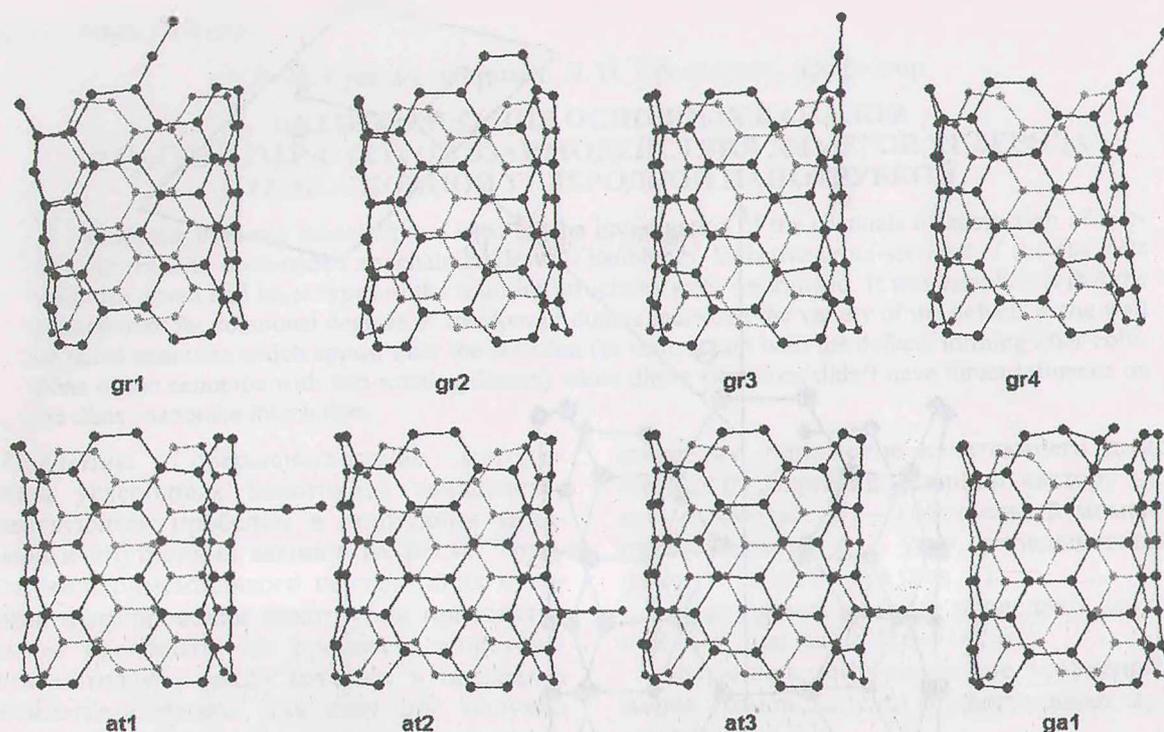


Рис. 2. Основные типы результирующих структур после взаимодействия димера с углеродной нанотрубкой: gr1 и gr2 – присоединение димера к кромке с достраиванием регулярной структуры нанотрубки; gr3, gr4 и ga1 – присоединение димера к кромке нанотрубки с образованием дефекта типа «семиугольник»; at1, at2 и at3 – присоединение димера к боковой стенке нанотрубки

Таблица

Эффективные сечения основных каналов образования дефектов при $\phi = 0$

Скорость центра масс димера, м/с	Расчетные значения эффективных сечений образования дефектных структур с соответствующей аббревиатурой, 10^{-20} м^2							
	gr1	gr2	gr3	gr4	at1	at2	at3	ga1
316	63,2	12,6	8,1	0,7	14,7	0,4	0,4	4,8
562	58,9	11,6	8,5	1,0	15,6	0,5	0,9	4,8
1000	59,5	14,6	10,0	1,0	23,4	0,6	3,0	6,4
1778	49,3	20,4	12,8	1,3	29,5	1,3	9,3	7,6
3162	38,8	24,6	17,4	1,2	23,0	1,8	20,3	7,9

Заключение. В данной работе проведено моделирование процессов взаимодействия димеров углерода с однослойной углеродной нанотрубкой типа (5,5) из 80 атомов, выявлены основные каналы взаимодействия и рассчитаны их эффективные сечения.

Литература

1. A second generation reactive empirical bond order (REBO) potential energy expression for hydrocarbons / D. W. Brenner [et al.] //

J. Phys.: Condens. Matter. – 2002. – V. 14. – P. 783–802.

2. Кушель, Д. И. Модификация REBO – потенциала межатомного взаимодействия в углеводородных системах / Д. И. Кушель // Труды БГТУ. Сер. III, Химия и технология неорганич. в-в. – 2006. – Вып. XIV. – С. 21–23.

3. Verlet, L. Computer «experiments» on classical fluids. Thermodynamical properties of Lennard-Jones molecules / L. Verlet // Phys. Rev. – 1967. – V. 159. – P. 98–103.