

УДК 544.169

ДИФФУЗИЯ НАНОАВТОМОБИЛЕЙ НА ОСНОВЕ ФУЛЛЕРЕНА НА ПОВЕРХНОСТИ КРИСТАЛЛА ЗОЛОТА

С.С. Колюхов, Н.Н. Артемов, И.А. Калиман, И.В. Купченко, А.В. Немухин,
А.А. Московский

(кафедра физической химии; e-mail: moskov@lcc.chem.msu.ru)

На основании расчетов молекулярно-динамических траекторий наномобилей с фуллереновыми колесами даны оценки коэффициентов поверхностной диффузии на поверхности золота Au(110).

Ключевые слова: наномобили, молекулярная динамика, поверхностная диффузия.

Для создания машин, способных выполнять функции молекулярных механических манипуляторов, необходимо изучение наноразмерных молекулярных устройств. Синтезированные в последние годы так называемые наномобили на основе фуллереновых колес, моделирующие молекулярные транспортеры, представляют собой один из перспективных классов наномашин [1]. Методы сканирующей туннельной микроскопии позволили наблюдать на поверхности кристаллов золота пространственные перемещения наномобилей, инициированные термической активацией подложки металла [2]. Наибольший интерес в этих исследованиях вызывает возможность определить, какое влияние на движение оказывает вращение колес (молекул фуллеренов) вокруг одинарных химических связей C–C, соединяющих колеса с шасси.

Методы молекулярного моделирования могут существенно помочь в экспериментах по исследованию движения наномобилей и при разработке новых устройств, способных совершать направленное перемещение по поверхностям твердых тел. В первой работе, посвященной молекулярно-динамическому моделированию наномобилей на фрагменте ГЦК-структуры кристалла золота [3], рассматривались системы с тремя и четырьмя колесами фуллерена C₆₀ и жесткими шасси на основе молекул бензола. Было показано, что при увеличении температуры системы заметно возрастает диффузия наномобилей.

В настоящей работе мы провели новые масштабные расчеты траекторий на подложке кристалла золота для двух моделей четырехколесных наномобилей, а именно прямоугольной (рис. 1, а) и Z-образной

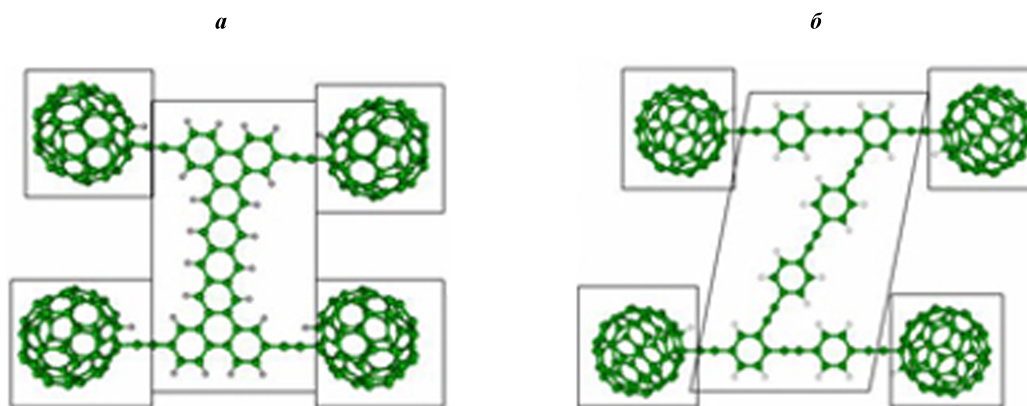


Рис. 1. Наномобили, рассмотренные в данной работе, и схемы подразделения систем на жесткие фрагменты: а – прямоугольная, б – Z-образная

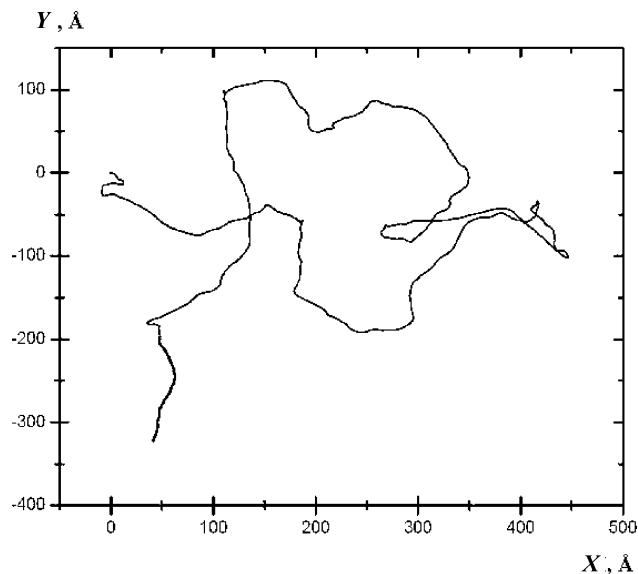


Рис. 2. Характерная траектория “перемещения” Z-образного наноавтомобиля на поверхности Au(110)

ного (рис. 1, б). В обоих случаях наноавтомобиль был представлен совокупностью пяти фрагментов.

Методика расчетов базируется на использовании алгоритмов метода молекулярной динамики в варианте, предусматривающем объединение групп атомов в жесткие фрагменты, перемещающиеся как твердые тела, в то время как силы, действующие на жесткие фрагменты, рассчитываются по вкладам атом-атомных взаимодействий по правилам классических силовых полей. Алгоритмы предшествующих версий компьютерных программ описаны в работах [3–5]. Мы ввели в программу усовершенствования, позволяющие более эффективно проводить расчеты траекторий при условии поддержки постоянной температуры с использованием термостата Носэ–Пуанкаре. Результаты траекторных расчетов позволили определить коэффициенты диффузии.

При расчетах использовали модель поверхности Au(110) с явным учетом кристаллической решетки с параметром $4,07 \text{ \AA}$. Вокруг проекции центра наноавтомобиля на поверхность золота строили квадрат ($33 \times 33 \text{ \AA}$) с 625 атомами и проводили подсчет взаимодействий только с этим числом атомов. В следующий момент времени вдоль траектории эффективный фрагмент поверхности “перемещался” вместе с машиной. Взаимодействие каждого атома наноавтомобиля с атомами поверхности кристалла золота описывалось потенциалом Леннарда–Джонса с параметрами, позволяющими воспроизвести экспериментальные

данные по адсорбции фуллерена на золоте [6]. Параметры взаимодействия атомов в наноавтомобиле определялись по правилам силового поля CHARMM [7].

Продолжительность каждой молекулярно-динамической траектории составляет от 5 до 20 нс, шаг интегрирования – 1 фс, температура системы – 300 К. Начальные координаты наноавтомобилей выбирали разными способами, помещая центр массы молекулы в пределах кубической ячейки размером 8 \AA и меняя ее ориентацию относительно координатных осей. Характерная траектория “перемещения” Z-образного наноавтомобиля, начинающаяся из точки (0,0), показана на рис. 2. Для сравнения укажем, что размеры самой машины составляют примерно $33 \times 33 \text{ \AA}$.

Оценку коэффициента диффузии D проводили общепринятым способом [8] по результатам расчетов координат центра массы наноавтомобиля вдоль молекулярно-динамической траектории, а именно по углу наклона линеаризованной зависимости квадрата смещения центра массы от времени. Для прямоугольного наноавтомобиля (см. рис. 1, а) получено значение $2,0 \times 10^{-7} \text{ м}^2/\text{с}$, для Z-образного наноавтомобиля (см. рис. 1, б) – $1,1 \times 10^{-7} \text{ м}^2/\text{с}$.

Результат подобной оценки зависит от ряда факторов, прежде всего от выбора начальных условий для молекулярно-динамической траектории и от выбора параметров потенциала взаимодействия атомов наноавтомобиля с подложкой. Наши расчеты показывают,

что от вариации этих параметров рассчитываемый коэффициент диффузии может изменяться на 1–2 порядка по величине. В меньшей степени рассчитываемые значения D зависят от температуры системы – при повышении температуры до 500 К коэффициент

диффузии может измениться в 2–5 раз. С учетом этих обстоятельств из полученных оценок можно сделать вывод, что движение Z-образного наноавтомобиля по поверхности кристалла золота медленнее, чем прямоугольного.

Работа выполнена при поддержке РФФИ (проект № 09-03-00338-а).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Shirai Y., Morin J.-F., Sasaki T., Guerrero J.M., Tour J.M. // Chem. Soc. Rev. 2006. **35**. P. 1043.
2. Shirai Y., Osgood A. J., Zhao Y., Yao Y., Saudan L., Yang H., Yu-Hung C., Sasaki T., Morin J.-F., Guerrero J. M., Kelly K. F., Tour J. M. // J. Am. Chem. Soc. 2006. **128**. P. 4854.
3. Akimov A.V., Nemukhin A.V., Moskovsky A.A., Kolomeisky A.B., Tour J.M. // J. Chem. Theory Comput. 2008. **4**. P. 652.
4. Moskovsky A. A., Vanovschi V. V., Konyukhov S. S., Nemukhin A. V. // Intern. J. Quant. Chem. 2006. **106**. P. 2208.
5. Московский А.А., Калиман И.А., Акимов А.В., Конюхов С.С., Григоренко Б.Л., Немухин А.В. // Вестн. Моск. ун-та. Сер. Химия. 2007. **4**. С. 219.
6. Gimzewski J.K., Modesti S., David T., Schlittler R.R. // Phys. Rev. Lett. 1994. **72**. P. 1036.
7. MacKerell A.D., Bashford D., Bellot M., Dunbrack R.L., Evanseck J.D., Field M. J., Fischer S., Gao J., Guo H., Ha S., Joseph-McCarthy D., Kuchmir L., Kuczera K., Lau F.T.K., Mattos C., Michnick S., Ngo T., Nguyen D.T., Prodhom B., Reiher W.E., Roux B., Schlenkrich B., Smith J., Stote R., Straub J., Watanabe M., Wiorkiewicz-Kuczera J., Karplus M. // J. Phys. Chem. B. 1998. **102**. P. 3586.
8. Allen M.P., Tildesley D.J. Computer Simulation of Liquids. N.Y., 1989. P. 385.

Поступила в редакцию 12.11.09

DIFFUSION OF FULLERENE-BASED NANOCARS ON THE GOLD CRYSTAL SURFACE

S.S. Konyukhov, N.N. Artiomov, I.A. Kaliman, I.V. Kupchenko, A.V. Nemukhin, A.A. Moskovsky

(Division of Physical Chemistry)

Basing on molecular dynamics simulations of nanocars with fullerene wheels on the gold crystal surface Au(110) the estimates of the diffusion coefficients are reported.

Key words: *nanocars, molecular dynamics, surface diffusion.*

Сведения об авторах: Конюхов Сергей Станиславович – мл. науч. сотр. лаборатории химической кибернетики кафедры физической химии химического факультета МГУ (kon@phys069b-2.chem.msu.ru); Артемов Никита Николаевич – студент химического факультета МГУ (n.artomov@gmail.com); Калиман Илья Александрович – аспирант кафедры физической химии химического факультета МГУ (ilya.kaliman@gmail.com); Купченко Илья Владимирович – аспирант кафедры физической химии химического факультета МГУ (ikupchenko@gmail.com); Немухин Александр Владимирович – профессор кафедры физической химии химического факультета МГУ, лаборатория химической кибернетики (anemukhin@yahoo.com); Московский Александр Александрович – ст. науч. сотр. лаборатории химической кибернетики кафедры физической химии химического факультета МГУ (moskov@phys069b-2.chem.msu.ru).