Моделирование рассеяния атомов водорода на углеродных нанотрубках

У.Б. Улжаев, Д.В. Алябьев, И.Д. Ядгаров*

[1] Институт ионно-плазменных и лазерных технологий АН РУз, Дурмон йули 33, 100125, Ташкент, Узбекистан

Received 22.09.2022, revised 09.12.2022

* Corresponding author: e-mail uub1988@mail.ru, Phone: +998 93 586 8517

Методами молекулярной динамики (ReaxFF, LAMMPS) проведены модельные эксперименты по рассеянию атомов водорода поверхностью углеродной нанотрубки. Сконструирована однослойная углеродная нанотрубка хиральностью (5.5), диаметром 0.693 нм и длиной 2.275 нм. Показано, что процесс адсорбции преобладает в диапазоне энергий атомов водорода 1–8 эВ, а максимум процесса инкапсуляции лежит в диапазоне 14–16 эВ. Показано, что характер происходящих процессов зависит как от энергии рассеянных атомов, так и от количества атомов водорода.

Ключевые слова: адсорбция, моделирование, атом водорода, инплантация, углеродная нанотрубка, диаметр нанотрубки, взаимодействия водорода, хиральность.

Model experiments on the scattering of hydrogen atoms by the carbon nanotube surface have been carried out using molecular dynamics methods (ReaxFF, LAMMPS). A single-layer carbon nanotube with chirality (5.5), 0.693 nm in diameter, and 2.275 nm in length has been constructed in this work. It has been shown that the adsorption process prevails within the hydrogen atom energy range of 1–8 eV, while the maximum encapsulation process prevails within the range of 14–16 eV. It has been shown that the nature of the occurring processes depends both on the energy of scattered atoms and on the number of hydrogen atoms.

Keywords: adsorption, modeling, hydrogen atom, implantation, carbon nanotube, nanotube diameter, hydrogen interactions, chirality..

DOI: https//doi.org/10.52304/.v24i4.381

I. Введение

В последнее время выполнено много экспериментальных работ по исследованию адсорбции водорода в однослойных углеродных нанотрубках (ОУНТ) и с целью улучшения адсорбционной способности трубок путем их легирования [1-5]. Однако эксперименты по хранению водорода в образцах нанотрубок противоречивы [6-8]. Теоретическое моделирование стало решающим, и хотя эксперименты показывают, что происходит, только теория позволяет выяснить, почему это происходит и что произойдет в подобных условиях [9]. Что касается адсорбции водорода в углеродных нанотрубках, то теоретические расчеты могут быть чрезвычайно полезны для понимания элементарных стадий процедуры адсорбции и дает понимание явления.

Для рассмотрения углеродных нанотрубок как объектов для хранения водорода небходимо понимание процессов взаимодействия водорода с углеродными нанотрубками [10, 11]. Однослойные углеродные нанотрубки (ОУНТ), которые обычно имеют диаметр в несколько нанометров, были предложены в качестве подходящих объектов для хранения газа [12]. Поскольку поры молекулярных размеров могут адсорбировать большие количества газа, водород может конденсироваться до высокой плотности внутри узких ОУНТ даже при комнатной температуре [13]. Высокое содержание водорода в ОУНТ

допускает, что они могут быть использованы для хранения водорода для топливных элементов электромобилей [14-16]. Как показано в работах [10, 17], углеродные нанотрубки с инплантированными атомами внутри имеют специфические свойства. По этой причине рассеяние атомов на углеродных нанотрубках представляет интерес как способ их модификации [17].

II. Описание объекта и методов исследования

Методами молекулярной динамики проведено численное моделирование взаимодействия атомов водорода с углеродной нанотрубкой. Объектом моделирования выбрана однослойная углеродная нанотрубка хиральностью (5.5), диаметром 0.693 нм. (рис. 1). Численное значение диаметра нанотрубки в целом совпадает с экспериментальными результатами, в которых внутренний диаметр нанотрубки лежит в диапазоне 0.63 нм<d<0.79 нм [18].

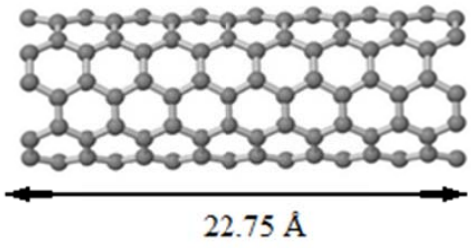


Рисунок 1. Геометрическая модель одностенной углеродной нанотрубки, используемая в настоящей работе.

Одним из параметров, характеризующих нанотрубки, является хиральность. Любую однослойную углеродную нанотрубку, развернутую в лист, можно представить как пример поверхности графена (правильной гексагональной сетки с атомами углерода), заданной парой чисел (n, m), называемых индексами хиральности. Индексы хиральности (n, m), координаты радиус-вектора r в криволинейной системе координат (рис. 2), они указывают координаты шестиугольника, который в результате сворачивания плоскости должен совпасть с шестиугольником, находящимся в начале координат Индексы хиральности однозначно определяют диаметр нанотрубки:

$$D = \sqrt{m^2 + n^2 + nm}\,\frac{\sqrt{3}d_0}{\pi},$$

где d_0 = 0.142 нм – расстояние между соседними атомами углерода в графитовой плоскости.

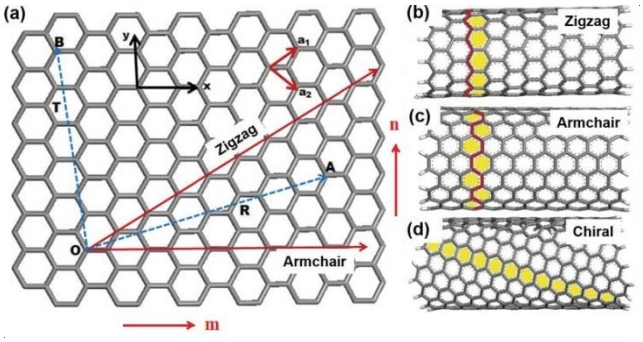


Рисунок 2. График, отображающий карту хиральности, показывает различные типы одностенной углеродной нанотрубки.

В данной работе мы рассмотрели задачу моделирования взаимодействия 5 и 300 атомов водорода с однослойной углеродной нанотрубкой методом молекулярной динамики. Здесь мы используем моделирование реактивной молекулярной динамики (МД) взаимодействия атома водорода с углеродной нанотрубкой. В реактивном MD моделировании мы используем параметры, разработанные для потенциала ReaxFF [19].

Изучаемая нами модель изначально была приведена к желаемой температуре применением термостата Берендсена в ансамбле NPT (N – число атомов в системе, P – давление, T – температура) [20]. Затем было наложено термостатирование Бусси [21] для управления температурой в ансамбле NVT (N – число атомов в системе, V – объем, T – температура).

В процессе моделирования атомы водорода осаждали на поверхность нанотрубки по оси z с различными энергиями при температурах 300 К в диапазоне 0 пс–100 пс с временным шагом 0.1 нс. Исследованы процессы адсорбции и проникновения (инкапсуляции) атомов водорода (5 Н, 300 Н) в нанотрубку.

Для проведения модельных экспериментов по рассеянию атомов водорода поверхностью углеродной нанотрубки был использован программный пакет LAMMPS. Был выбран ReaxFF потенциал, который широко используется для моделирования подобных атомномолекулярных систем. Такие методы моделирования, как теория функционала плотности (DFT) или молекулярная динамика (MD), могут быть очень

©Академия наук Республики Узбекистан, 2022 г.

полезны для детального понимания процесса рассеяния [22, 23].

III. Описание и анализ результатов

На рис. 3 показаны процессы адсорбции и инкапсуляции 5 атомов водорода углеродной нанотрубкой.

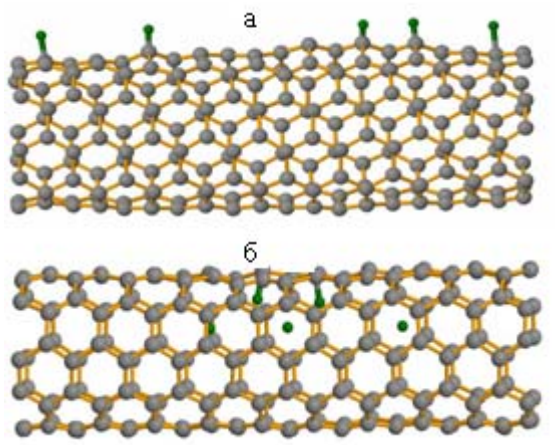


Рисунок 3. а) адсорбция атомов водорода поверхностью углеродной нанотрубки, б) инкапсуляция атомов водорода в процессе рассеяния его поверхностью углеродной нанотрубки.

Затем было проведено моделирование осаждения 300 атомов водорода на поверхность углеродной нанотрубки (рис. 4). Среднее межатомное расстояние C-H составляет 1.16 Å.

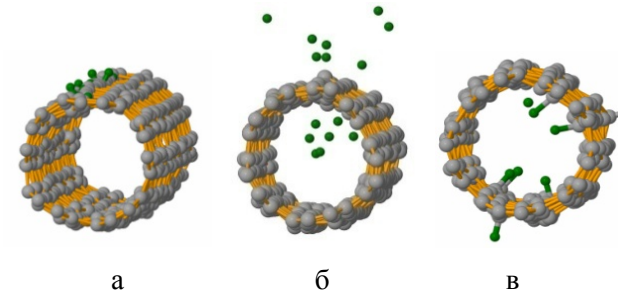


Рисунок 4. Процессы адсорбции (а), инкапсуляции (б), сквозного прохождения (в) атомов водорода в углеродной нанотрубке.

В диапазоне энергий 9.3–15.1 эВ наблюдается инкапсуляция атомов водорода внутрь углеродной нанотрубки, причем в диапазоне энергий 13-24 эВ инкапсулируется более 10% рассеиваемых атомов. При энергии более 15эВ, также наблюдается сквозное прохождение некоторых атомов водорода сквозь стенки нанотрубки. Эти процессы иллюстрирует рис. 4.

На рис. 5 приведены зависимости числа адсорбированных атомов от их энергии рассеяния. Как видно из графиков, максимум адсорбции находится в интервале энергий 6–8 эВ. В диапазоне энергий атомов водорода 3–12 эВ происходит в основном адсорбция атомов водорода поверхностью углеродной нанотрубки. Межатомное расстояние C-H составляет 1.15 Å.

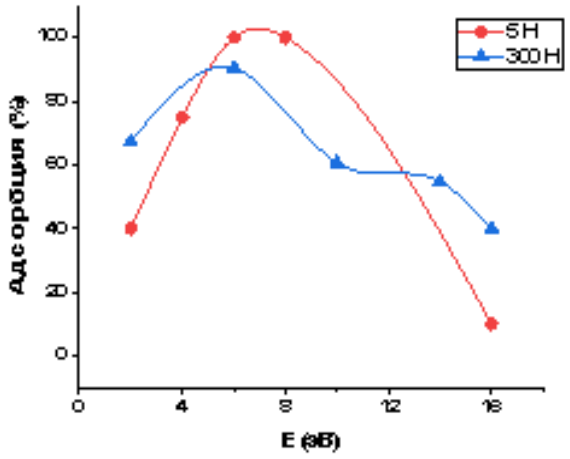


Рисунок 5. Зависимости числа адсорбированных атомов водородаот их энергии.

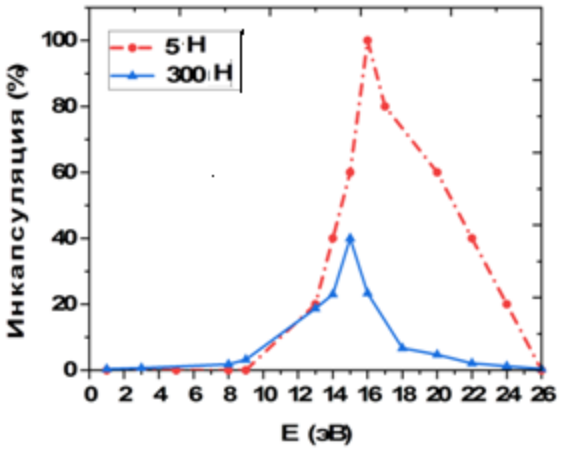


Рисунок 6. Инкапсуляция атомов водорода в углеродную нанотрубку.

На рис. 6 приведены зависимости числа инкапсулированных атомов от их энергии рассеяния. При значениях энергии атомов водорода в диапазоне 15–20 эВ в основном происходит инкапсуляция атомов водорода внутрь углеродной нанотрубки (в случае рассеяния 5 атомов водорода). В случае рассеяния 300 атомов водорода, пик инкапсуляции лежит в диа-

©Академия наук Республики Узбекистан, 2022 г.

пазоне 14–16 эВ. В этом случае межатомное расстояние C-H лежит в диапазоне 1.08–1.15 Å.

IV. Заключение

Сконструирована однослойная углеродная нанотрубка хиральностью (5.5), диаметром 0.693 нм и длиной 2.275нм. Методами молекулярной динамики проведены модельные эксперименты по рассеянию атомов водорода поверхностью углеродной нанотрубки (потенциал ReaxFF, температура нанотрубки – 300 К). Показано, что при рассеянии 300 атомов водорода, процесс адсорбции преобладает в диапазоне энергий 1–8 эВ, а максимум инкапсуляции лежит в диапазоне 14-16 эВ. В частности, определено, что характер происходящих процессов зависит как от энергии рассеянных атомов, так и от количества атомов водорода. В случае большего количества рассеиваемых атомов водорода (300 атомов), помимо процессов взаимодействия атомов водорода с углеродной нанотрубкой, также возможны процессы взаимодействия атомов водорода друг с другом, что приводит к их частичной десорбции. Это объясняет различия в графиках, представленных на рис. 5.

Метаданные

Modeling the scattering of hydrogen atoms on carbon nanotubes

U.B. Uljaev, D.V. Alyabev, I.D. Yadgarov

Institute of Ion-Plasma and Laser Technologie, Uzbekistan Academy of Sciences, 100125, Tashkent, Uzbekistan

Model experiments on the scattering of hydrogen atoms by the carbon nanotube surface have been carried out using molecular dynamics methods (ReaxFF, LAMMPS). A single-layer carbon nanotube with chirality (5.5), 0.693 nm in diameter, and 2.275 nm in length has been constructed in this work. It has been shown that the adsorption process prevails within the hydrogen atom energy range of 1–8 eV, while the maximum encapsulation process prevails within the range of 14–16 eV. It has been shown that the nature of the occurring processes depends both on the energy of scattered atoms and on the number of hydrogen atoms.

Keywords: adsorption, modeling, hydrogen atom, implantation, carbon nanotube, nanotube diameter, hydrogen interactions, chirality.

Литература (References)

[1] K.F. Kelly, I.W. Chiang, E.T. Mickelson, R.H. Hauge, J.L. Margrave, X. Wang, G.E. Scuseria, C. Radloff, N.J. Halas. Chem. Phys. Lett. **313**, 445-450 (1999).
[2] Y. Ye, C.C. Ahn, C. Witham, B. Fultz, J. Liu, A.G. Rinzler, D. Colbert, K.A. Smith, and R.E. Smalley. Appl. Phys. Lett. **74**, 2307-2309 (1999).
[3] Ralph T. Yang, Carbon **38**, 623–41 (2000).
[4] H.W. Zhu. J. Mater.Sci. Lett. **19**, 1237-1239 (2000).
[5] A. Kuznetsova, D.B. Mawhinney, J.T. Yates, L. Liu. Chem. Phys. Lett.**321**, 292-296 (2000).
[6] C.M. Brown, T. Yildirim, D.A. Neumann, M.J. Heben, T. Gennett, A.C. Dillon, J.L. Alleman, J.E. Fischer. Chem. Phys. Lett. **329**, 311-316 (2000).
[7] Zheng Hong, Wang Shaoqing, Cheng Huiming. Science in China, Ser.: B Chemistry **47**, 222-227 (2004).
[8] A. Cao, G.E. Froudakis. Chem. Phys. Lett. **342**, 510-14 (2001).
[9] V. Meregalli, M. Parrinello. Review of theoretical calculations of hydrogen storage in carbon-based materials. Appl. Phys. A **72**, 143-146 (2001).
[10] A.V. Belosludsev. Dissertatsiya na soiskaniye uchonoy stepeni kandidata fiziko-matematicheskikh nauk “Simmetriya I electronnye svoystva uglerodnykh nanotrubok” (Ijevsk, 2017).
[11] Noriaki Hamada, Shin Ichi Sawada, Atsushi Oshiyama. Physical Review Letters **68**, No.10, 1579-1581 (1992).
[12] I.V. Sukhno, V.Yu. Buzko. In the conference NASA Tech. Briefs National Nano Engineering «Carbon nanotubes" (November 14, 2007).
[13] Timo Vehviläinen. Hydrogen interaction with carbon nanostructures. (Aalto University publication series Doctoral dissertations **5** (2012).
[14] K.V. Agrawal. Nature nanotechnology. Advance online publication **254** (2016). http:// dx.doi:10.1038/nnano2016.
[15] A.C. Dillon, K.M. Jones, T.A. Bekkedahl, D.S. Bethune, and M.J. Heben. Nature **386**, 377-379 (1997).
[16] C. Liu, Y.Y. Fan, M. Liu, H.T. Cong, and M.S. Dresselhaus. Science **286**, 1127-1129 (1999). http//doi:10.1126/science.286.5442.1127.
[17] K. Tserpes and P. Papanikos. Compos B **36**, 468 (2005).
[18] A.C. Dillon, M.J. Heben. Appl. Phys. A: Mater.Sci. Process **72(2),** 133-142 (2001).
[19] C. Zou, Y.K. Shin, A.C.T. van Duin, H. Fang, Z.-K. Liu, Acta Mater. **83** (2015).
[20] H.J.C. Berendsen, J.P.M. Postma, W.F. van Gunsteren, A. Di Nola, J.R. Haak. J. Chem. Phys. **81** 3684-3690 (1984.
[21] G. Bussi, D. Donadio, M. Parrinello. , J. Chem. Phys. **126**, 014101 (2007).
[22] K.A. Dubey, S. Agrawal, T. R. Rao, and J. Jose. Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics **52**, 035203 (2019).
[23] T.T. Vehviläinen, M.G. Ganchenkova, L.E. Oikkonen, and R.M. Nieminen. Physical Review **84**, 085447 (2011).

©Академия наук Республики Узбекистан, 2022 г.

Углерод нанотрубкасидан водород атомларининг сочилишини моделлаштириш

Ў.Б. Ўлжаев[1], Д.В. Алябьев[1], И.Д. Ядгаров[1]

[1]Ўзбекистон Фанлар Академияси Ион-плазма ва лазер технологиялари институти, Дўрмон йўли 33, 100125, Тошкент, Ўзбекистон

Молекуляр динамика усули (ReaxFF, LAMMPS) асосида водород атомларининг углерод нанотрубкаси сиртидан сочилиши жараёни бўйича модел экспериментлари ўтказилди. Ушбу ишда хираллиги (5,5), диаметри 0,693 нм ва узунлиги 2,275 нм бўлган бир қатламли углерод нанотрубкаси қурилган. 5-10 эВ водород атомларининг энергия диапазонида адсорбция жараёни, 14-16 эВ оралиғида эса инкапсуляция жараёни кузатилди. Ушбу жараёнларнинг табиати сочилган атомларнинг энергиясига ва водород атомлари сонига боғлиқлиги кўрсатилган.

Калит сўзлар: адсорбция, углерод, моделлаштириш, атом, имплантация, углерод нанотрубкаси, нанотрубка диаметри, водород ўзаро таъсири, чираллик.

©Академия наук Республики Узбекистан, 2022 г.