

Научная статья

УДК 531.352

doi: 10.17223/19988621/87/6

Состояние фуллерена C_{60} в двухкомпонентной смеси газов

Владислав Иванович Бородин¹, Михаил Алексеевич Бубенчиков²,
Алексей Михайлович Бубенчиков³,
Дмитрий Владимирович Мамонтов⁴, Сергей Викторович Тимченко⁵

¹ ООО «Газпром трансгаз Томск», Томск, Россия

^{2, 3, 4, 5} Томский государственный университет, Томск, Россия

¹ borodingtgazprom@mail.ru

² michael121@mail.ru

³ bubenchikov_am@mail.ru

⁴ orevaore@mail.ru

⁵ Timchenko@tsu.ru

Аннотация. В рамках подхода атом-атомных и атом-молекулярных взаимодействий представлена численная модель динамики частиц газа, включая крупную молекулу фуллерена. Под ударами более мелких частиц поддерживающей газовой среды фуллерен приобретает вращения. Для расчета этих вращений авторами статьи разработан оригинальный способ определения поворотов молекулярных тел в пространстве. Расчетами определена установившаяся скорость вращения фуллерена, отвечающая заданным параметрам состояния газовой среды. Дается также оценка времени, за которое фуллерен достигает равновесных значений по кинетической энергии.

Ключевые слова: численное моделирование, молекулярная динамика, фуллерены, энергия

Благодарности: Исследование выполнено при финансовой поддержке гранта РФФ № 19-71-10049.

Для цитирования: Бородин В.И., Бубенчиков М.А., Бубенчиков А.М., Мамонтов Д.В., Тимченко С.В. Состояние фуллерена C_{60} в двухкомпонентной смеси газов // Вестник Томского государственного университета. Математика и механика. 2024. № 87. С. 59–72. doi: 10.17223/19988621/87/6

Original article

State of fullerene C_{60} in a two-component gas mixture

Vladislav I. Borodin¹, Mikhail A. Bubenchikov², Aleksey M. Bubenchikov³,
Dmitriy V. Mamontov⁴, Sergey V. Timchenko⁵

¹ Gazprom Transgaz Tomsk, Tomsk, Russian Federation

^{2, 3, 4, 5} Tomsk State University, Tomsk, Russian Federation

¹ borodingtgazprom@mail.ru

² michael121@mail.ru

³ bubenchikov_am@mail.ru

⁴ orevaore@mail.ru

⁵ Timchenko@tsu.ru

Abstract. In this paper, the non-equilibrium state of a gaseous molecular system containing nitrogen, helium, and fullerenes is studied in the framework of the model of classical molecular dynamics. In such systems, the non-equilibrium state is determined by different states of single components. Here, the heavy fraction of the fullerenes can induce the internal non-equilibrium state associated with the difference between its translational and rotational temperatures. This paper proposes an original method for calculating the rotations of fullerenes in space, which does not use Euler angles and therefore has no consequential restrictions. The diffusion trajectories of fullerene particles are calculated, and the energy of their rotation is determined as the average temperature in the system of 300 K. The calculated results show that the internal non-equilibrium state of the fullerene fraction becomes apparent at pressures less than 10 atm. At pressures of a few tens of atmospheres, the rotational temperature of fullerenes coincides with their translational temperature.

Keywords: numerical modeling, molecular dynamics, fullerenes, energy

Acknowledgments: This work was partially supported by the Russian Science Foundation (project No. 19-71-10049).

For citation: Borodin, V.A., Bubenchikov, M.A., Bubenchikov, A.M., Mamontov, D.V., Timchenko, S.V. (2024) State of fullerene C₆₀ in a two-component gas mixture. *Vestnik Tomskogo gosudarstvennogo universiteta. Matematika i mekhanika – Tomsk State University Journal of Mathematics and Mechanics*. 87. pp. 59–72. doi: 10.17223/19988621/87/6

Введение

Актуальными в настоящее время являются работы по исследованию состояний двухатомных молекул внутри C₆₀ [1–10]. Вызывает большой интерес вращательная динамика самих фуллеренов в фуллерите [7–9]. В этих работах фиксируется зависящая от времени связь спина валентного электрона с вращением фуллерена, от которой зависит ориентационный фазовый переход при $T > 256$ K. В статье [1] на основе масс-спектрометрических экспериментов рассматривается состояние энергии связи C₂, или энергии диссоциации этой молекулы, внутри C₆₀. Результаты согласуются с высокоуровневыми расчетами теории функционала плотности *ab initio*. В [2] изучены электронные свойства одиночных молекул с помощью низкотемпературной сканирующей туннельной спектроскопии. Исследуются молекулы C₆₀, осажденные на поверхности Au(111) при разных температурах подложки и смешанные с двумя разными углеводородами. Таким образом, меняются взаимодействие фуллерена с поверхностью и / или дипольный отклик молекулярного окружения на зарядку. Далее исследуется зависимость выравнивания энергетических уровней от молекулярного окружения. Результаты подтверждают уже установленную картину в фотоэлектронной спектроскопии. Авторы [3] исследовали электронные структуры интерфейсов пентацена и C₆₀ с использованием ультрафиолетовой фотоэлектронной спектроскопии и рентгеновской фотоэлектронной спектроскопии. Полученные спектры C_{1s} на этих образцах показывают отсутствие значительных химических связей на границе раздела. В исследовании [4] представлен спектр потерь энергии электронов C₆₀

в газовой фазе от 1 до 30 эВ. Спектр аналогичен спектрам твердого тела, но сдвиги взаимно наблюдаемых полос видны только для ранее идентифицированных плазмонных особенностей. Данные результаты подтверждают эту идентификацию, а также обеспечивают косвенное измерение относительного сечения поглощения в рассматриваемой области. Результаты измерений рассеяния под большими углами дают первое свидетельство существования мультипольных плазмонов в C_{60} . В [5] электронная структура кристаллических фуллеритов C_{60} и C_{70} исследована методом спектроскопии потерь энергии высокоэнергетических электронов на просвет. По возбуждениям валентной зоны и основным возбуждениям уровня C_{1s} получена информация о занятых и незанятых π - и σ -зонах. Пористый углерод, легированный азотом, получают активацией КОН C_{60} в атмосфере аммиака. В качестве анода для литий-ионных аккумуляторов он показывает обратимую емкость до $\approx 1\,900\text{ мА ч г}^{-1}$ при 100 мА г^{-1} . Моделирование [6] предполагает, что лучшее хранение литий-иона может быть связано с кривизной графена и присутствием легирующих примесей пиррольной / пиридиновой группы. Исследования, собранные в статьях [1–6] так или иначе связаны с изучением энергии фуллеренов C_{60} .

Вращательная динамика C_{60} в твердом состоянии была исследована в [7] с помощью ядерного магнитного резонанса на углероде-13 (^{13}C ЯМР). Скорость релаксации из-за анизотропии химического сдвига ($1/9\text{TICSA}$) была точно измерена по зависимости T_1 от магнитного поля, что позволило определить время корреляции молекулярной переориентации τ . При температуре 283 К $\tau = 9,1$ пс. В серии экспериментов [8] с твердым C_{60} изучались низкоэнергетическая вращательная динамика молекул, высокоэнергетические колебательные спектры и аспекты беспорядка в статической структуре. Почти сферическая форма молекулы C_{60} и возникновение ориентационного фазового перехода при $T_c = 256\text{ К}$ делают твердое тело C_{60} превосходной системой для исследований ориентационной динамики. Когерентное квазиупругое рассеяние нейтронов выше T_c количественно описывается моделью вращательной диффузии. В [9] представлен оригинальный способ проверить связь вращения и вращения Машхуна. Поскольку в низкотемпературной фазе (ниже 300 К) твердого тела C_{60} нецентральный межмолекулярный потенциал будет вызывать прецессию и нутацию частоты вращения молекул C_{60} , что приводит к зависящей от времени связи спина валентного электрона с вращением C_{60} , волновые функции электронов во вращающихся молекулах C_{60} приобретут геометрические фазы, возникающие из-за этой зависящей от времени связи спин–вращение. Геометрические фазы валентных электронов в молекулах C_{60} рассчитаны с использованием теории инвариантов Льюиса–Ризенфельда в настоящей статье. Показано, что геометрические фазы электронов в молекулах C_{60} могут быть измерены с помощью фотоэлектронной спектроскопии C_{60} . Также продемонстрирован физически интересный факт, что информация о вращении и прецессии молекул C_{60} в ориентационно упорядоченной (или неупорядоченной) фазе может быть считана из фотоэлектронной спектроскопии C_{60} . В [10] представлен гамильтониан для колебаний и вращений СО внутри свободно вращающейся или неподвижной молекулы C_{60} и вычислены его собственные состояния из атом-атомного модельного потенциала. Как показано в [11–13], наноразмерные примеси могут оказывать серьезное влияние на свойства расплавов и физических процессов. Одним из наиболее релевантных способов изучения наноматериалов является молекулярная динамика, как, например, в статьях [14–15].

В настоящей работе также используется атом-атомный или атом-молекулярный модельный потенциал как для частиц, составляющих газовую фазу, так и для атомов углерода фуллерена, взаимодействующих с частицами газовой среды. Столь простая модель взаимодействия, объединенная с условиями недеформируемости молекулярного каркаса C_{60} , позволяет получить совершенно конкретные и полные результаты по вращательной динамике фуллерена, а также по его трансляционным перемещениям в многокомпонентной смеси газов. Цель настоящей работы – построение универсальной численной процедуры для описания поворотов фуллерена в двухкомпонентной смеси газов и определение на ее основе характерных частот углеродной молекулы в газовой среде с заданными параметрами состояния.

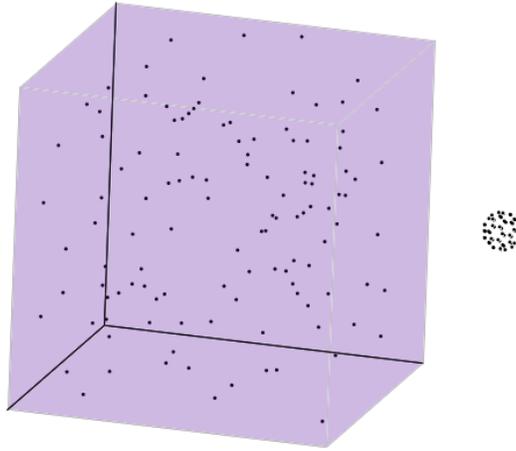


Рис. 1. Представительный объем, содержащий газовые частицы и входящий в него фуллерен
Fig. 1. A representative volume with gas particles and a fullerene penetrating into the volume

Для того чтобы рассчитать взаимодействия атомов и молекул, находящихся в газовой фазе, необходимо выделить мезообъем газовой среды, в которой будут разворачиваться последующие молекулярно-динамические события (рис. 1). Объем должен содержать количество частиц, достаточное для проведения статистических осреднений. Однако по понятным причинам это количество не должно быть слишком большим. Для описания движения частиц используется классическая модель динамики газовых частиц. Однако фуллереновая частица рассматривается как недеформируемая молекулярная конструкция, состоящая из 60 атомов углерода. Газовые частицы взаимодействуют между собой и с атомами фуллерена по модели притяжение–отталкивание, в которой используется одна силовая функция, но различные параметры, отвечающие конкретной паре взаимодействующих частиц.

Математическая модель

Уравнения движения частиц двухкомпонентной смеси газа имеют вид:

$$m_i \frac{dv_i}{dt} = - \sum_{\substack{k=1, \\ k \neq i}}^M \nabla U_{11}(r_{ik}) - \sum_{k=M+1}^N \nabla U_{12}(r_{ik}) - \sum_{k=N+1}^K \nabla U_{13}(r_{ik}) \quad (i = 1, 2, \dots, M), \quad (1)$$

$$m_2 \frac{dv_i}{dt} = - \sum_{k=1}^M \nabla U_{21}(r_{ik}) - \sum_{\substack{k=M+1, \\ k \neq i}}^N \nabla U_{22}(r_{ik}) - \sum_{k=N+1}^K \nabla U_{23}(r_{ik}) \quad (i = M+1, \dots, N). \quad (2)$$

Здесь m_1, m_2 – массы частиц первой и второй компонент; $r_{ik} = |r_i - r_k|$; r_i, r_k – радиусы-векторы i -й и k -й частиц; v_i – скорость i -й частицы; M, N – соответственно количество частиц в первой ассоциации и суммарное количество частиц обоих сортов газа; K – сумма количеств всех газовых частиц и всех атомов углерода в фуллерене; U_{11}, U_{22} – потенциалы взаимодействия частиц определенного сорта; $U_{12} = U_{21}$ – потенциалы взаимодействия частиц, принадлежащих различным компонентам. Все эти потенциалы имеют одну форму, но различные значения σ и ε ; $\sigma_{11} = \sigma_1, \varepsilon_{11} = \varepsilon_1; \sigma_{22} = \sigma_2; \varepsilon_{22} = \varepsilon_2; \sigma_{12} = \sigma_{21} = \frac{\sigma_1 + \sigma_2}{2}; \varepsilon_{12} = \varepsilon_{21} = \sqrt{\varepsilon_1 \varepsilon_2}$. Здесь σ_1, ε_1 – параметры потенциала Леннарда-Джонса, относящиеся к первой компоненте, σ_2, ε_2 – ко второй. $\nabla = \mathbf{i} \frac{\partial}{\partial x} + \mathbf{j} \frac{\partial}{\partial y} + \mathbf{k} \frac{\partial}{\partial z}$; $\mathbf{i}, \mathbf{j}, \mathbf{k}$ – орты абсолютной системы декартовых координат; $r_i = (x_i, y_i, z_i)$; $r_k = (x_k, y_k, z_k)$; x, y, z – прямоугольные декартовы координаты.

В рассматриваемый представительный объем, занятый смесью газов, начиная с определенного момента времени входит фуллерен. Его взаимодействие с молекулярным окружением описывается уравнением движения центра масс фуллерена и уравнениями его вращательного движения вокруг собственного центра масс. Трансляционные перемещения фуллерена полностью задаются уравнением движения центра масс молекулы C₆₀

$$m_3 \frac{dv_c}{dt} = - \sum_{k=N+1}^K \sum_{i=1}^M \nabla U_{13}(r_{ik}) - \sum_{k=N+1}^K \sum_{i=M+1}^N \nabla U_{23}(r_{ik}), \quad (3)$$

где m_3 – масса фуллерена; v_c – скорость его центра масс; U_{13}, U_{23} – потенциалы взаимодействия атомов углерода фуллерена с частицами первой и второй газовых компонент. Эти потенциалы различаются лишь параметрами взаимодействия: $\sigma_{13} = \frac{\sigma_1 + \sigma_3}{2}, \varepsilon_{13} = \sqrt{\varepsilon_1 \varepsilon_3}; \sigma_{23} = \frac{\sigma_2 + \sigma_3}{2}, \varepsilon_{23} = \sqrt{\varepsilon_2 \varepsilon_3}$. При этом параметры σ_3 и ε_3 , относящиеся к углерод-углеродному взаимодействию, берутся для атомов углерода, находящихся в связанном состоянии 2D углеродной структуры.

Эти уравнения необходимо дополнить кинематическими соотношениями

$$\frac{dr_i}{dt} = v_i \quad (i = 1, 2, \dots, K). \quad (4)$$

В случае движения фуллерена с вращением скорость его силовых центров определяется из теоремы сложения скоростей с использованием векторного произведения для относительной скорости атома углерода:

$$v_i = v_c + [\boldsymbol{\omega}, (r_i - r_c)] \quad (i = N+1, \dots, K).$$

Здесь r_c – радиус-вектор центра масс фуллерена, v_c – его поступательная скорость, $\boldsymbol{\omega}$ – скорость поворота фуллерена вокруг его центра масс. Эта скорость находится из уравнения, выражающего теорему об изменении момента количества движения фуллерена для относительного движения около его центра масс:

$$\frac{d\mathbf{K}}{dt} = \mathbf{L}.$$

В последнем выражении кинетический момент \mathbf{K} есть произведение тензора инерции на вектор-столбец мгновенной угловой скорости фуллерена $\boldsymbol{\omega}$:

$$\mathbf{K} = \mathbf{J}\boldsymbol{\omega}. \quad (5)$$

При этом тензор инерции определяется выражением

$$\mathbf{J} = \begin{pmatrix} m \sum (y_i'^2 + z_i'^2) & -m \sum x_i' y_i' & -m \sum x_i' z_i' \\ -m \sum y_i' x_i' & m \sum (x_i'^2 + z_i'^2) & -m \sum y_i' z_i' \\ -m \sum x_i' z_i' & -m \sum y_i' z_i' & m \sum (x_i'^2 + y_i'^2) \end{pmatrix}. \quad (6)$$

x_i, y_i, z_i ($i = N + 1, \dots, K$) – координаты атомов углерода фуллереновой частицы, x_c, y_c, z_c – координаты центра масс фуллерена. Здесь $x_i' = x_i - x_c$, $y_i' = y_i - y_c$, $z_i' = z_i - z_c$, суммирование производится по числу атомов, составляющих молекулу фуллерена. Момент сил, входящих в правую часть векторного уравнения (6), определяется выражением

$$\mathbf{L} = - \sum_{i=1}^M \sum_{k=N+1}^K [(\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_c), \nabla U_{13}(\mathbf{r}_{ik})] - \sum_{i=M+1}^N \sum_{k=N+1}^K [(\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_c), \nabla U_{23}(\mathbf{r}_{ik})]. \quad (7)$$

Дифференциальные уравнения (1)–(6) интегрируются численно с использованием следующих начальных условий:

$$t = 0; \mathbf{v}_i = \mathbf{v}_i^0 \quad (i = 1, 2, \dots, N); \mathbf{r}_j = \mathbf{r}_j^0 \quad (j = 1, 2, \dots, K); \mathbf{v}_c = \mathbf{v}_c^0; \boldsymbol{\omega} = \boldsymbol{\omega}^0. \quad (8)$$

При этом величины начальных скоростей равны среднетепловым значениям скорости, относящимся к температуре $T = 300$ К. Направления скоростей газовых частиц выбираются случайным образом. Скорость фуллерена направлена в центр грани представительного объема перпендикулярно ее поверхности. Начальные положения газовых частиц должны быть такими, чтобы расстояния между частицами не были слишком малыми. Это позволяет получить прогнозируемую температуру в системе газовых частиц.

Для того чтобы частицы не разлетались из представительного объема, на его границах ставятся условия зеркального отражения частиц с сохранением модуля скорости. Эти условия моделируют переходы частиц из смежных объемов пространства, заполненного газом, и обеспечивают сохранение полной энергии в системе.

Численный метод интегрирования уравнений движения крупных молекул

Во многих процессах молекулярной динамики фуллерен может участвовать как заряженная и магнитовосприимчивая частица, т.е. может реагировать на внешние электромагнитные поля. В этом случае важно уметь рассчитывать не только угловые колебания фуллерена, но и его направленные вращения, вызванные действием внешних полей. При отсутствии электромагнитных полей угловые колебания

фуллерена связаны с тепловым движением окружающих его частиц. Однако и такой случай не является простым в отношении расчета угловых поворотов этой частицы. Движение углеродных частиц, имеющих жесткий каркас, можно разделить на две группы: трансляционные перемещения и повороты. Первая группа, когда любая грань молекулярной конструкции перемещается параллельно самой себе, полностью определяется движением центра масс крупной молекулы. Нахождение этой группы не вызывает затруднений, поскольку получающиеся при этом уравнения явно разрешены относительно компонент линейных скоростей объекта. Уравнения для угловых скоростей молекулярного тела получают из уравнений вращательной динамики относительно центра масс рассматриваемого тела. В таких уравнениях под производную по времени входят проекции момента количества движения молекулярного тела. Каждая из этих компонент в общем случае зависит от трех компонент вектора угловой скорости тела. Численная процедура нахождения элементарных поворотов тела должна быть выстроена так, чтобы на каждом шаге по времени и даже на промежуточных шагах все компоненты вектора мгновенной угловой скорости находились одновременно. Тогда результирующий элементарный поворот будет поворотом относительно мгновенной оси вращения.

Описанная схема позволяет избежать замены результирующего поворота последовательностью поворотов относительно трех различных осей и тем самым избежать ошибок в описании сложных вращений. Решение всех эволюционных уравнений представленной математической модели проводится с использованием пошаговых схем высокого порядка точности, использующих идею пересчета искомых величин в промежуточных позициях каждого отдельного шага. В расчетах использовался постоянный шаг интегрирования $\Delta t = 10^{-6}$ нс. В каждый момент времени полный баланс механической энергии составлял 10^{-6} относительных единиц.

Результаты расчетов

В куб с ребром 5 нм поместим 100 атомов гелия и 100 молекул азота. Пусть скорости частиц газа будут иметь величины, отвечающие среднетепловым скоростям соответствующих компонент для температуры $T = 300$ К. Такое состояние газовой смеси соответствует давлению 35 атм. Начальные скорости всех частиц газа были одинаковыми и отвечали средним тепловым скоростям движения для заданной температуры, а их направления выбирались случайным образом. Систему частиц с такими параметрами движения иногда называют клаузиуским газом (модельная система, предназначенная для подсчета давления газа на выбранную площадку). На гранях куба реализуются зеркальные отражения частиц. Начиная с некоторого момента времени на центр одной из граней куба будет направлен фуллерен, имеющий некоторую скорость движения, перпендикулярную поверхности грани. Нас прежде всего будет интересовать, как раскручивается фуллерен в среде газовых частиц и как энергия полученных вращений будет соотноситься с энергией его трансляционных перемещений. Первоначально рассмотрим состояние газовой среды. Температура газовых компонент определяется как средняя по ансамблю всех частиц данного сорта кинетическая энергия отдельной частицы, отнесенная к величине $3k/2$.

Из рис. 2 видно, что на начальном этапе из-за отсутствия равновесия в системе наблюдается разделение компонентов по температуре. Это разделение полностью исчезает через 7 нс от начала процесса. Отсутствие равновесия на первых двух наносекундах обусловлено заданием для каждой из компонент смеси одинаковых значений модулей скорости в начальный момент времени. После этого за указанное время в газовой системе устанавливается равновесие по скоростям для каждой из компонент.

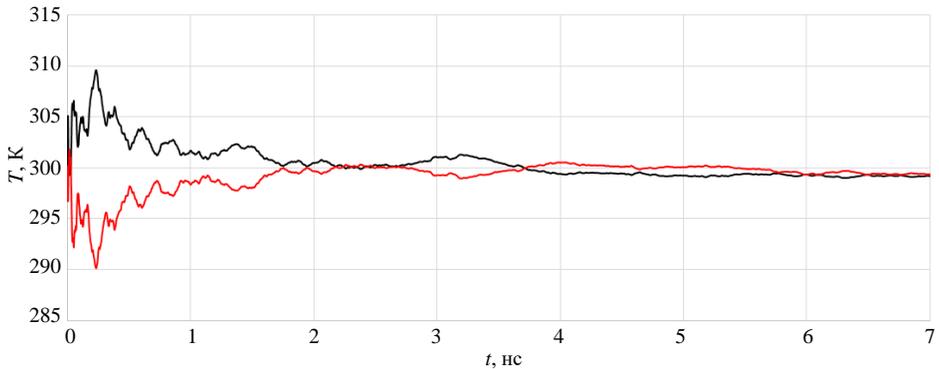


Рис. 2. Температура гелия – красная линия, азота – черная

Fig. 2. Helium and nitrogen temperatures indicated by red and black lines, respectively

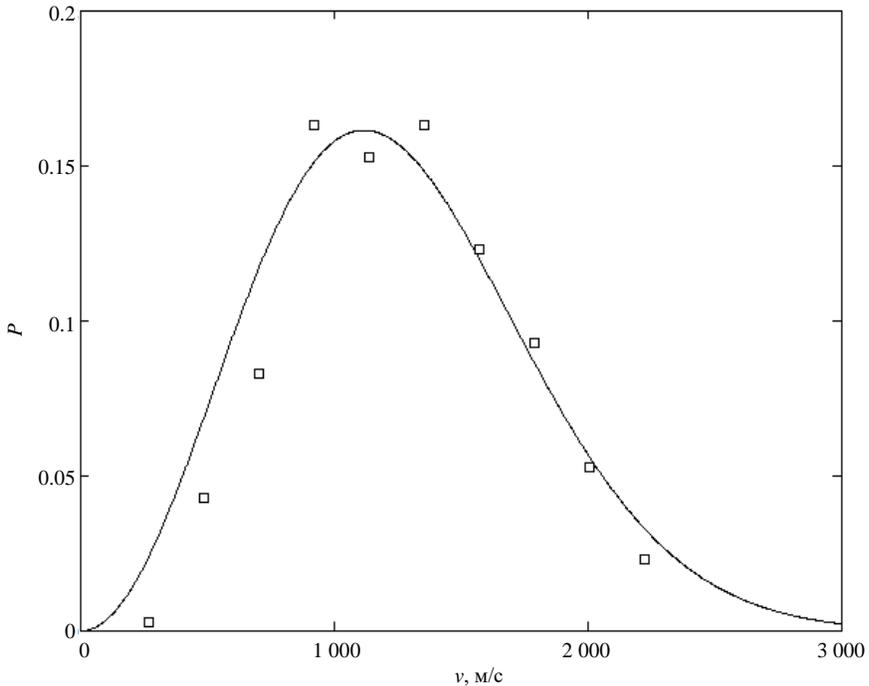


Рис. 3. Аналитическое (сплошная кривая) и численное (символы) распределение Максвелла

Fig. 3. Analytical (solid curve) and numerical (symbols) Maxwell's distribution

На рис. 3 показаны равновесные распределения Максвелла (сплошные линии) и расчетные (символы) плотности вероятности нахождения частиц отдельных компонентов в соответствующих скоростных диапазонах. Определение по заданному количеству частиц не дает регулярных во времени распределений температур компонентов. Кроме того, всякое измерение температуры тем или иным прибором предполагает еще определение по времени, поэтому в данном случае мы его также используем. Интервал осреднения был равен 1 нс. При этом на начальном этапе, если $t < 1$ нс, он был равен t . После этого были получены распределения, показанные на рис. 2.

На рис. 4 показаны проекции угловых скоростей фуллерена. На значениях этих скоростей сказывается каждый удар окружающих газовых частиц. Если усреднить значения мгновенной угловой скорости на определенном интервале времени, то получим вполне регулярное распределение изменяющейся во времени величины.

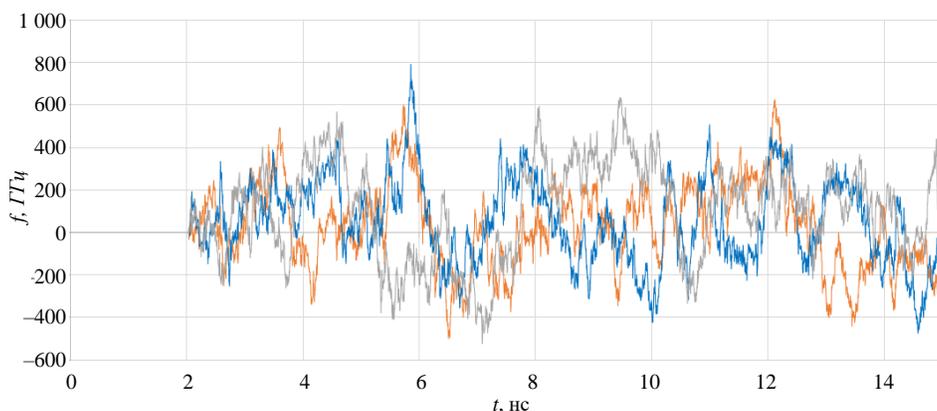


Рис. 4. Угловые скорости фуллерена относительно стационарных осей вращения
Fig. 4. Angular velocities of the fullerene relative to stationary axes of rotation

На рис. 5 представлено значение модуля угловой скорости фуллерена в зависимости от времени. Видно, что за время около 10 нс фуллереновая частица раскручивается до значений угловой скорости 300 нс^{-1} . Далее величина скорости вращения выходит на постоянное значение.

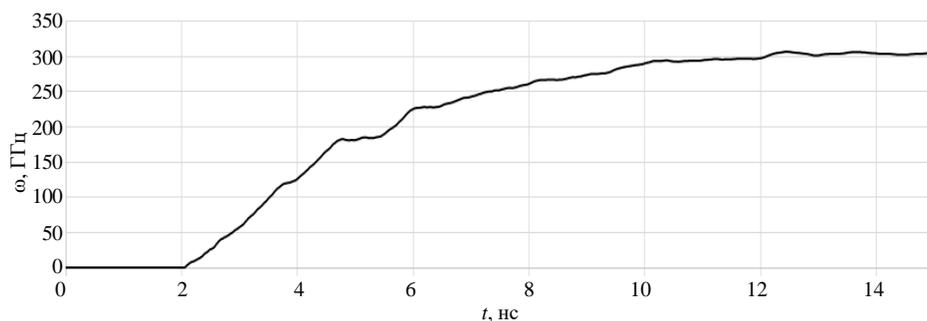


Рис. 5. Величина угловой скорости фуллерена в зависимости от времени
Fig. 5. Angular velocity of the fullerene as a function of time

На рис. 6 приведены локальные значения модуля скорости центра масс фуллера.

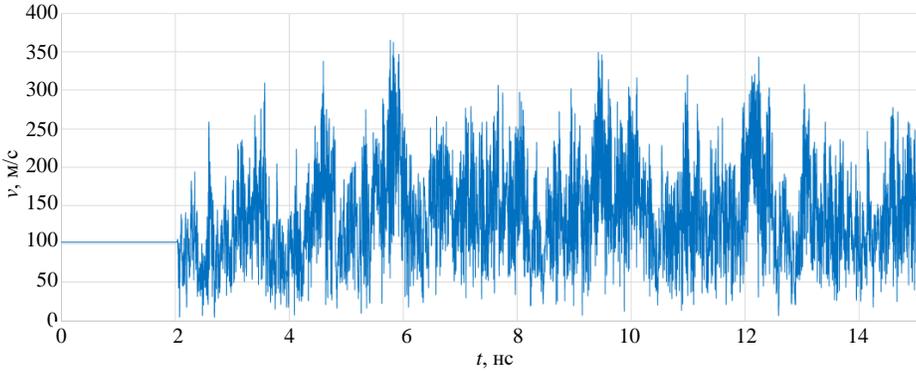


Рис. 6. Локальная трансляционная скорость фуллера
Fig. 6. Local translational velocity of the fullerene

Данный рисунок показывает, как под действием ударов молекул и атомов газовой среды перемещается фуллерен. Однако это лишь скалярное отражение пространственной картины движения. Анализ покомпонентных характеристик движения позволяет выделить составляющие вектора скорости центра масс фуллера, которые отвечают за некоторое среднее перемещение этой частицы:

$$\mathbf{v}_c = \mathbf{v}_m + \mathbf{v}'_c. \quad (9)$$

Это среднее перемещение можно назвать диффузией (v_m). Три компоненты данного вектора можно найти из условий осреднения полной величины скорости центра масс (v_c). Тогда пульсационная составляющая этой скорости будет подчиняться условию

$$\int_{t-\Theta}^t \mathbf{v}'_c d\tau = 0. \quad (10)$$

Здесь Θ – некоторый интервал осреднения (в нашем случае $\Theta = 1$ нс). Проводя соответствующие статистические расчеты, нетрудно найти вектор миграции \mathbf{v}_m . На рис. 7 показано распределение во времени модуля этого вектора.

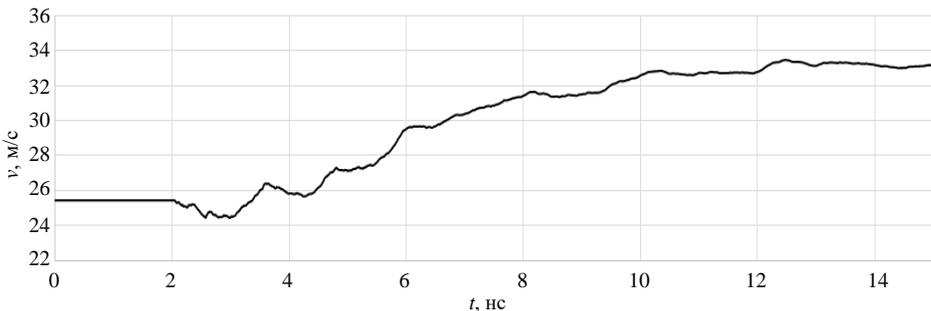


Рис. 7. Величина скорости миграции фуллера
Fig. 7. Fullerene migration rate

Проведенные расчеты позволяют получить мгновенные значения кинетической энергии вращения и энергии трансляционных перемещений. Однако воспользуемся возможностью получить приближенные оценки указанных энергий. Для энергии вращательного движения около собственного центра масс фуллерена имеется формула

$$T_r = I \frac{\omega^2}{2}. \quad (11)$$

Здесь ω – угловая скорость фуллерена; I – момент инерции относительно мгновенной оси вращения. В рамках приближенного описания величину I можно определить как момент инерции бесконечно тонкой сферы, по которой равномерно распределена масса фуллерена:

$$I = \frac{2}{3} m_3 R^2. \quad (12)$$

Здесь m_3 – масса фуллерена, R – его радиус. Энергия трансляционных перемещений есть

$$T_t = \frac{m_3 v_c'^2}{2}. \quad (13)$$

Тогда отношение рассматриваемых энергий будет следующей величиной:

$$\frac{T_r}{T_t} = \frac{3v_c'^2}{2\omega^2 R^2}. \quad (14)$$

Если в эту формулу подставить стабилизированные значения ω из рис. 5, расчетное значение величины v_c' , а также известное значение радиуса фуллерена $R = 0.357$ нм, то получим значение, близкое к единице. Последнее обстоятельство говорит о том, что в газовых смесях с малой концентрацией фуллереновых частиц и высоким давлением несущей фазы вращательная температура фуллереновой среды совпадает с ее трансляционной температурой.

Заключение

Расчеты показывают, что в условиях термодинамического равновесия поддерживающей фуллереновую частицу газовой среды сам фуллерен мигрирует по случайным траекториям, занимающим в конечном счете все пространство представительного объема. При осреднении этой траектории остается след миграционного перемещения. Вообще осреднение является важной процедурой в работе по интерпретации данных вычислений в рассматриваемом кластере задач. Интервал осреднения по времени должен обеспечивать равенство нулю всех трех пульсационных компонент вектора трансляционной скорости. Полученные поля мгновенных характеристик движения и правильно найденный интервал осреднения позволяют заключить, что несмотря на то, что фуллереновая компонента представлена одной частицей, вполне можно говорить о температуре фуллереновой составляющей. Расчетами найдено, что при переходе от клаузиусского состояния системы частиц с максвелловским распределением наблюдается небольшое температурное расслоение по гелию и азоту. При этом естественно, что тяжелые и инерционные углеродные молекулы фуллеренов также находятся в неравновесном состоянии. Однако для систем с высоким давлением и на более продол-

жительных интервалах времени, чем участок начального перехода, наблюдается равенство вращательной температуры фуллереновой фракции.

Список источников

1. Lifshitz C. C₂ binding energy in C₆₀ // *International Journal of Mass Spectrometry*. 2000. V. 198. P. 1–14. doi: 10.1016/S1387-3806(00)00192-5
2. Torrente I.F., Franke K.J., Pascual J.I. Spectroscopy of C₆₀ single molecules: The role of screening on energy level alignment // *Journal of Physics: Condensed Matter*. 2008. V. 20. Art. 184001. doi: 10.1088/0953-8984/20/18/184001
3. Kang S.J., Yi Y., Kim C.Y., Cho S.W., Noh M., Jeong K., Whang C.N. Energy level diagrams of C₆₀/pentacene/Au and pentacene/C₆₀/Au // *Synthetic Metals*. 2006. V. 156. P. 32–37. doi: 10.1016/j.synthmet.2005.10.001
4. Gorokhov D.A., Suris R.A., Cheianov V. Electron-energy-loss spectroscopy of the C₆₀ molecule // *Physics Letters A*. 1998. V. 223. P. 116–122. doi: 10.1016/S0375-9601(96)00707-4
5. Lee S., Nicholls R., Nguyen-Manh D., Pettifor D., Briggs G., Lazar S., Pankhurst D.A., Cockayne D.J.H. Electron energy loss spectra of C₆₀ and C₇₀ fullerenes // *Chemical Physics Letters*. 2005. V. 404. P. 206–211. doi: 10.1016/j.cplett.2005.01.089
6. Tan Z., Kun N., Chen G., Zeng W., Zhuchen T., Ikram M., Zhang Q., Wang H., Sun L., Zhu X., Wu X., Ji H., Ruoff R., Zhu Y. Incorporating Pyrrolic and Pyridinic Nitrogen into a Porous Carbon made from C₆₀ Molecules to Obtain Superior Energy Storage // *Advanced Materials*. 2016. V. 29. Art. 1603414. doi: 10.1002/adma.201603414
7. Johnson R.D., Yannoni C.S., Dorn H.C., Salem J.R., Bethune D. C₆₀ Rotation in the Solid State: Dynamics of a Faceted Spherical Top // *Science*. 1992. V. 255. P. 1235–1238.
8. Kamitakahara W., Copley J., Cappelletti R., Rush J., Neumann D., Fischer J., Mccauley J., Smit A. Rotations, Vibrations and Structure in Solid C₆₀: Investigations by Neutron Scattering // *MRS Proceedings*. 2011. V. 270. doi: 10.1557/PROC-270-167
9. Shen J.Q., He S. Geometric phases of electrons due to spin-rotation coupling in rotating C₆₀ molecules // *Phys. Rev. B*. 2003. V. 68. doi: 10.1103/PhysRevB.68.195421
10. Olthof E.H.T., van der Avoird A., Wormer P.E.S. Vibration and rotation of CO in C₆₀ and predicted infrared spectrum // *J. Chem. Phys.* 1996. V. 104. P. 832–847. doi: 10.1063/1.470809
11. Афанасьева С.А., Бирюков Ю.А., Белов Н.Н. и др. Повышение эффективности высоко-скоростного метания ударников с применением высокоэнергетических топлив с нанодисперсными наполнителями // *Вестник Томского государственного университета. Математика и механика*. 2012. № 2 (18). С. 67–79.
12. Крайнов А.Ю., Порязов В.А., Моисеева К.М. Скорость распространения пламени в взрыве наноразмерного порошка алюминия // *Вестник Томского государственного университета. Математика и механика*. 2018. № 53. С. 95–106. doi: 10.17223/19988621/53/9
13. Ворожцов А.Б., Данилов П.А., Жуков И.А. и др. Влияние внешних воздействий на расплав и неметаллических наночастиц на структуру и механические характеристики легких сплавов на основе алюминия и магния // *Вестник Томского государственного университета. Математика и механика*. 2020. № 64. С. 91–107. doi: 10.17223/19988621/64/7
14. Андриященко В.А., Рудяк В.Я. Самодиффузия молекул флюида в наноканалах // *Вестник Томского государственного университета. Математика и механика*. 2012. № 2. С. 63–66.
15. Рудяк В.Я., Андриященко В.А. Молекулярно-динамическое моделирование разделения наножидкости с помощью наномембран // *Вестник Томского государственного университета. Математика и механика*. 2014. № 4. С. 88–94.

References

1. Lifshitz C. (2000) C₂ binding energy in C₆₀. *International Journal of Mass Spectrometry*. 198. pp. 1–14. doi: 10.1016/S1387-3806(00)00192-5

2. Torrente I.F., Franke K.J., Pascual J.I. (2008) Spectroscopy of C₆₀ single molecules: The role of screening on energy level alignment. *Journal of Physics: Condensed Matter*. 20. Article 184001. doi: 10.1088/0953-8984/20/18/184001
3. Kang S.J., Yi Y., Kim C.Y., Cho S.W., Noh M., Jeong K., Whang C.N. (2006) Energy level diagrams of C₆₀/pentacene/Au and pentacene/C₆₀/Au. *Synthetic Metals*. 156. pp. 32–37. doi: 10.1016/j.synthmet.2005.10.001
4. Gorokhov D.A., Suris R.A., Cheianov V. (1998) Electron-energy-loss spectroscopy of the C₆₀ molecule. *Physics Letters A*. 223. pp. 116–122. doi: 10.1016/S0375-9601(96)00707-4
5. Lee S., Nicholls R., Nguyen-Manh D., Pettifor D., Briggs G., Lazar S., Pankhurst D.A., Cockayne D.J.H. (2005) Electron energy loss spectra of C₆₀ and C₇₀ fullerenes. *Chemical Physics Letters*. 404. pp. 206–211. doi: 10.1016/j.cplett.2005.01.089
6. Tan Z., Kun N., Chen G., Zeng W., Zhuchen T., Ikram M., Zhang Q., Wang H., Sun L., Zhu X., Wu X., Ji H., Ruoff R., Zhu Y. (2016) Incorporating pyrrolic and pyridinic nitrogen into a porous carbon made from C₆₀ molecules to obtain superior energy storage. *Advanced Materials*. 29. Article 1603414. doi: 10.1002/adma.201603414
7. Johnson R.D., Yannoni C.S., Dorn H.C., Salem J.R., Bethune D. (1992) C₆₀ rotation in the solid state: dynamics of a faceted spherical top. *Science*. 255. pp. 1235–1238. doi: 10.1126/science.255.5049.1235
8. Kamitakahara W., Copley J., Cappelletti R., Rush J., Neumann D., Fischer J., Mccauley J., Smit A. (2011) Rotations, vibrations and structure in solid C₆₀: investigations by neutron scattering. *MRS Proceedings*. 270. doi: 10.1557/PROC-270-167
9. Shen J.Q., He S. (2003) Geometric phases of electrons due to spin-rotation coupling in rotating C₆₀ molecules. *Physical Review B*. 68. doi: 10.1103/PhysRevB.68.195421
10. Olthof E.H.T., van der Avoird A., Wormer P.E.S. (1996) Vibration and rotation of CO in C₆₀ and predicted infrared spectrum. *Journal of Chemical Physics*. 104(3). pp. 832–847. doi: 10.1063/1.470809
11. Afanas'eva S.A.-R., Biryukov Yu.A., Belov N.N., Burkin V.V., Ishchenko A.N., Kartashov Yu.I., Kasimov V.Z., Fomenko V.V., Yugov N.T. (2012) Povyshenie effektivnosti vysokoskorostnogo metaniya udarnikov s primeneniem vysokoenergeticheskikh topliv s nanodispersnymi napolnitelyami [Increase of efficiency of high-speed throwing of strikers application of high-energy fuels with nanodispersed fillers]. *Vestnik Tomskogo gosudarstvennogo universiteta. Matematika i mekhanika – Tomsk State University Journal of Mathematics and Mechanics*. 2(18). pp. 67–79.
12. Kraynov A.Yu., Poryazov V.A., Moiseeva K.M. (2018). Skorost' rasprostraneniya plameni aerovzvesi nanorazmernogo poroshka allyuminiya [Flame propagation velocity in an aerosuspension of nanoscale aluminum powder]. *Vestnik Tomskogo gosudarstvennogo universiteta. Matematika i mekhanika – Tomsk State University Journal of Mathematics and Mechanics*. 53. pp. 95–106. doi: 10.17223/19988621/53/9
13. Vorozhtsov A.B., Danilov P.A., Zhukov I.A., Khmeleva M.G., Platov V.V., Valikhov V.D. (2020) Vliyanie vneshnikh vozdeystviy na rasplav i nemetallicheskih nanochastits na strukturu i mekhanicheskie kharakteristiki legkikh splavov na osnove alyuminiya i magniya [The effect of external actions on a molten metal and the influence of nonmetallic nanoparticles on the structure and mechanical properties of the light alloys based on aluminum and magnesium]. *Vestnik Tomskogo gosudarstvennogo universiteta. Matematika i mekhanika – Tomsk State University Journal of Mathematics and Mechanics*. 64. pp. 91–107. doi: 10.17223/19988621/64/7
14. Andryushchenko V.A., Rudyak V.Ya. (2012) Samodiffuziya molekul flyuida v nanokanalakh [Self-diffusion of fluid molecules in nanochannels]. *Vestnik Tomskogo gosudarstvennogo universiteta. Matematika i mekhanika – Tomsk State University Journal of Mathematics and Mechanics*. 2(18). pp. 63–66.
15. Rudyak V.Ya., Andryushchenko V.A. (2014) Molekulyarno-dinamicheskoe modelirovanie razdeleniya nanozhidkosti s pomoshch'yu nanomembran [Molecular dynamics modeling of

nanofluid separation in nanomembranes]. *Vestnik Tomskogo gosudarstvennogo universiteta. Matematika i mekhanika – Tomsk State University Journal of Mathematics and Mechanics*. 4. pp. 88–94.

Сведения об авторах:

Бородин Владислав Иванович – Генеральный директор ООО «Газпром трансгаз Томск», Томск, Россия. E-mail: borodinttgazprom@mail.ru

Бубенчиков Михаил Алексеевич – доктор физико-математических наук, доцент кафедры теоретической механики Томского государственного университета, Томск, Россия. E-mail: michael121@mail.ru

Бубенчиков Алексей Михайлович – доктор физико-математических наук, профессор кафедры теоретической механики Томского государственного университета, Томск, Россия. E-mail: bubenchikov_am@mail.ru

Мамонтов Дмитрий Владимирович – младший научный сотрудник Регионального научно-образовательного математического центра Томского государственного университета, Томск, Россия. E-mail: orevaore@mail.ru

Тимченко Сергей Викторович – доктор физико-математических наук, профессор, старший научный сотрудник Томского государственного университета, Томск, Россия. E-mail: Timchenko@tsu.ru

Information about the authors:

Borodin Vladislav I. (Chief Executive Officer, Lead Engineer, Gazprom Transgaz Tomsk, Tomsk, Russian Federation). E-mail: borodinttgazprom@mail.ru

Bubenchikov Mikhail A. (Doctor of Physics and Mathematics, Tomsk State University, Tomsk, Russian Federation). E-mail: michael121@mail.ru

Bubenchikov Aleksey M. (Doctor of Physics and Mathematics, Tomsk State University, Tomsk, Russian Federation). E-mail: bubenchikov_am@mail.ru

Mamontov Dmitriy V. (Research Tomsk State University, Tomsk, Russian Federation). E-mail: orevaore@mail.ru

Timchenko Sergey V. (Doctor of Physics and Mathematics, - Tomsk State University, Tomsk, Russian Federation). E-mail: Timchenko@tsu.ru

Статья поступила в редакцию 02.06.2023; принята к публикации 12.02.2024

The article was submitted 02.06.2023; accepted for publication 12.02.2024