

КВАНТОВО-ХИМИЧЕСКОЕ ИЗУЧЕНИЕ ВЗАИМОДЕЙСТВИЙ КЛАСТЕРОВ Fe_2O_n С МОЛЕКУЛАМИ H_2 И O_2

К.В. Боженко^a, А.Н. Утенышев^a, Л.Г. Гуцев^a, С.М. Алдошин^a, Г.Л. Гуцев^b

^aФедеральный исследовательский центр проблем химической физики и медицинской химии РАН, 142432, Московская обл., г. Черноголовка, проспект акад. Семенова, 1.

^bФакультет физики, Флоридский университет А&М, Таллахасси, Флорида, 32307 США.

bogenko@icp.ac.ru

Аннотация

Выполнены квантово-химические расчеты кластеров Fe_2O , Fe_2O_3 , Fe_2O_5 и продуктов их взаимодействия с молекулами водорода, и кислорода в газовой фазе. Использован метод теории функционала плотности (DFT-GGA) по программе GAUSSIAN-09 и базис 6-311+G*. Показано, что исходный полный спиновый магнитный момент в реакции $\text{Fe}_2\text{O}_3 + \text{H}_2 \rightarrow \text{Fe}_2\text{O}_3\text{H}_2$ не сохраняется, и антиферромагнитные состояния реагентов трансформируются в ферримагнитное состояние продукта реакции.

Ключевые слова: Азосоединения, металлохелаты, квантово-химические расчеты.

Суперпарамагнитные наночастицы оксидов железа, находят применение в такой современной области медицины, как тераностика. Они интересны тем, что могут использоваться для адресной доставки противораковых препаратов [1]. Такие частицы соединяются определенными линкерами с антителами, которые восприимчивы к специфическим клеткам, после чего их движение в потоке крови может управляться магнитным полем. К сожалению, взаимодействие суперпарамагнитных наночастиц оксидов железа с окружающей средой мало изучено из-за сложности моделирования их магнитных свойств. Адсорбция молекул на поверхности наночастицы может приводить к изменению ее полного магнитного момента. Особый интерес представляют наночастицы оксидов переходных металлов, которые не имеют магнитного момента в основном состоянии и приобретают его при взаимодействии с определенными молекулами. Интересны также наночастицы оксидов переходных металлов, изменяющие магнитный момент при взаимодействии с определенными молекулами. Оба типа частиц могут служить в качестве сенсоров для обнаружения данных молекул.

Расчеты выполнены методом теории функционала плотности в обобщенном градиентном приближении (DFT GGA) по программе GAUSSIAN-09 [2] с использованием базиса 6-311+G* [3]. В качестве обменно-корреляционного функционала выбран функционал BPW91, состоящий из обмена по Беке [4] и корреляции по Пердью-Вангу [5].

Показано, что для реакции $\text{Fe}_2\text{O}_3 + \text{H}_2 \rightarrow \text{Fe}_2\text{O}_3\text{H}_2$ наблюдается переход от антиферромагнитного синглетного состояния реагента к ферримагнитному состоянию продукта. Полный спиновый магнитный момент продукта этой реакции равен $6 \mu_B$, тогда как сумма полных спиновых магнитных моментов основных состояний реагентов Fe_2O_3 и H_2 равна нулю. Таким образом, эта реакция ведет к кардинальному изменению полного спинового момента реагентов. В реакции $\text{Fe}_2\text{O}_5 + \text{H}_2 \rightarrow \text{Fe}_2\text{O}_5\text{H}_2$, наоборот, присоединение H_2 ($2S + 1 = 1$) к Fe_2O_5 ($2S + 1 = 3$) ведет к синглетному основному состоянию продукта реакции. Таким образом, результаты расчетов позволяют утверждать, что наночастицы на основе кластеров Fe_2O_3 и Fe_2O_5 могут быть использованы в качестве сенсоров для

обнаружения молекул водорода при условии, что они сохраняют свойства изменения полного магнитного момента при взаимодействиях с молекулами водорода.

Литература

1. Gobbo O.L., Sjaastad K., Radomski M.W. et al. // *Theranostics*. 2015. V. 5. № 11. P. 1249.
2. Frisch M.J., Trucks G.W., Schlegel H.B. et al. *Gaussian 09*, Revision C.01. Gaussian, Inc. Wallingford CT, 2009.
3. Curtiss L.A., McGrath M.P., Blaudeau J.-P. et al. // *J. Chem. Phys.* 1995. V. 103. P. 6104.
4. Becke A.D. // *Phys. Rev. A*. 1988. V. 38. P. 3098.
5. Perdew J.P., Wang Y. // *Phys. Rev. B*. 1992. V. 45. P. 13244.

QUANTUM-CHEMICAL STUDY OF CLUSTER INTERACTIONS Fe_2O_n WITH H_2 and O_2 MOLECULES

K.V. Bozhenko, A.N. Utenyshev, L.G. Gutsev, S.M. Aldoshin, G.L. Gutsev.

Federal Research Center of Problems of Chemical Physics and Medical Chemistry of the Russian Academy of Sciences, 142432, Moscow region, Chernogolovka, Akad Semenov Avenue, 1.

Abstract

Quantum chemical calculations of Fe_2O , Fe_2O_3 , Fe_2O_5 clusters and products of their interaction with hydrogen and oxygen molecules in the gas phase have been performed. The method of density functional theory (DFT-GGA) according to the GAUSSIAN-09 program and the 6-311+G* basis were used. It is shown that the initial total spin magnetic moment in the reaction and $\text{Fe}_2\text{O}_3 + \text{H}_2 \rightarrow \text{Fe}_2\text{O}_3\text{H}_2$ is not preserved, and the antiferromagnetic states of the reagents are transformed into the ferrimagnetic state of the reaction product.