

01:06

## Модель свернутой в цилиндр квантовой ямы и ее приложение к расчету энергетической структуры тубелена

© Л.А. Мельников, А.В. Курганов

Саратовский государственный университет

Поступило в Редакцию 19 ноября 1996 г.

Представлена модель свернутой в цилиндр квантовой ямы для описания электронной структуры трубообразных кластеров углерода и образуемых ими систем. Рассчитаны энергетические уровни молекулы тубелена. Полученные в рамках модели оценки для потенциала ионизации и характера проводимости этого кластера согласуются с известными данными.

Одним из подходов к построению способа адекватного математического описания свойств наноразмерных объектов, необходимого для решения ряда прикладных задач, может стать использование элементов теории квантовых ям, развитой в рамках полупроводниковых наноструктур.

Здесь мы рассмотрим электронный газ, находящийся в потенциальном поле, которое имеет вид свернутой в цилиндр квантовой ямы. Такая система представляет собой модификацию модели свернутой в сферу квантовой ямы, предложенной в работе [1] для расчета электронной структуры фуллерена. Основные отличия нашей задачи обусловлены цилиндрической симметрией потенциала и выбором используемых приближений.

В пренебрежении межэлектронным взаимодействием стационарные одноэлектронные состояния системы описываются уравнением Шредингера с гамильтонианом:

$$\hat{H} = -\frac{\hbar^2}{2m}\nabla^2 + U(r), \quad (1)$$

где  $m$  — масса электрона,  $r$  — расстояние, отсчитываемое от оси ямы, а потенциал  $U(r)$  имеет вид свернутой в цилиндр радиусом  $R$

прямоугольной потенциальной ямы глубиной  $U_0$  и шириной  $d$ :

$$U(r) = \begin{cases} 0 & 0 \leq r \leq R - d/2 \\ U_0 & R - d/2 \leq r \leq R + d/2 \\ 0 & r > R + d/2 \end{cases} \quad (2)$$

Движению электрона в радиальном направлении соответствует набор дискретных уровней энергии по аналогии с квантованием движения поперек обычной квантовой ямы. Вращательное движение также имеет дискретный энергетический спектр, который определяется квантованием углового момента. Вдоль оси свернутой квантовой ямы электрон может двигаться свободно. Масштаб энергии радиального движения определяется глубиной  $U_0$  ямы. Вращательная составляющая энергии пропорциональна квадрату отношения углового момента электрона к радиусу его орбиты. Энергия движения вдоль оси определяется квадратом  $z$ -составляющей импульса электрона.

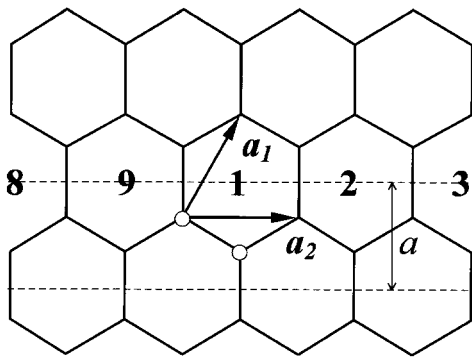
Исходя из цилиндрической симметрии потенциала, волновую функцию электрона будем искать в виде

$$\Psi_{n,\nu,\beta}(r, \varphi, z, t) = AF_{n,\nu}(r) \exp(i\nu\varphi) \exp(i\beta z) \exp(-i\omega t), \quad (3)$$

где  $A$  — амплитудный множитель, функция  $F_{n,\nu}(r)$  описывает радиальную, а квантовые числа  $\nu$  и  $\beta$  — угловую и аксиальную зависимости соответственно. В результате уравнение Шредингера сводится к известному уравнению Бесселя относительно радиальной компоненты  $F_{n,\nu}(r)$ , решениями которого являются цилиндрические функции Бесселя. Потребовав непрерывности решений и их первых производных на границах ямы, мы получим уравнение для определения собственных значений энергии электрона. При этом радиальная и вращательная составляющие энергии оказываются связанными за счет центробежного смещения электронов и образуют дискретные уровни радиально-вращательной энергии. Кинетическая энергия электрона имеет вид суммы

$$E = E_{n,\nu} + E_{\beta} \quad (4)$$

энергий радиально-вращательного и аксиального движений.



**Рис. 1.** Развертка на плоскость фрагмента цилиндрической поверхности тубелена.  $\mathbf{a}_1, \mathbf{a}_2$  — векторы примитивных трансляций двумерной решетки Браве.  $\mathbf{a}_1$  соответствует трансляции вдоль винтовой цепочки атомов, а вектор  $\mathbf{a}_2$  — повороту на угол  $2\pi/9$  относительно главной оси симметрии.

Теперь на основе представления об электронном газе в свернутой в цилиндр квантовой яме построим модель углеродного кластера трубообразной формы. Такие кластеры привлекают повышенное внимание не только благодаря своим уникальным электрическим и механическим свойствам [2], но и в связи с широкими перспективами их применения для создания плоскоструктурных дисплеев [3], наноразмерных эмиттеров [4–6], высокотемпературных сверхпроводников [7] и в качестве щупов сканирующих микроскопов нового поколения [4]. Трубообразные структуры, аналогичные углеродным, могут быть образованы из атомов других элементов [8].

Рассмотрим трубообразный кластер  $C_{60+18N}$  ( $N \gg 1$ )-тубелен [9], строение которого было установлено при экспериментальном наблюдении образованной тубеленами твердотельной нановолоконной структуры [10]. Он представляет собой цилиндрический фрагмент графитовой поверхности, закрытый с обоих концов полусферами — половинками  $C_{60}$  фуллерена [10]. Тубелен является ахиральным трубчатым кластером типа "зигзаг" [9,11] и имеет главную ось симметрии 9-го порядка. Его поверхность может быть получена периодическим повторением в пространстве фрагмента, состоящего из двух атомов углерода, с векторами трансляций  $\mathbf{a}_1$  и  $\mathbf{a}_2$  (рис. 1). При

этом тубелен можно рассматривать как квазиодномерный кристалл, образованный  $N$  кольцевыми ячейками длины  $a$ .

Строго говоря, рассматриваемая модель соответствует предельному случаю тубелена  $C_{60+18N}$  бесконечной длины ( $N \rightarrow \infty$ ). Однако благодаря тому, что отношение длины кластера к его диаметру обычно очень велико —  $10^3$  и больше, можно при расчете тубелена заданной длины рассматривать модель в качестве первого приближения, а ограничение по длине учесть наложением некоторых условий на квантовое число  $\beta$  волновой функции (3). В нашей модели, кроме того, необходимо учесть структуру поверхности тубелена, в зависимости от которой проводимость кластера может изменяться от металлической до полупроводниковой [11–13]. Введем периодические граничные условия для волновых функций нашей задачи, считая длину блока периодичности, равной длине тубелена  $L$  ( $L = Na$ ). При этом квантовое число  $\beta$  может принимать следующий ряд значений:

$$\beta = 0, \pm 2\pi/L, \pm 4\pi/L, \dots, \pi/a. \quad (5)$$

Требованию периодичности волновой функции при повороте на угол  $2\pi$  относительно главной оси симметрии удовлетворяют любые целые значения квантового числа  $\nu$ , которое определяет число угловых узлов волновой функции. Однако имеет смысл использовать только состояния с моментом  $\nu \leq 9$ , так как при  $\nu > 9$  число угловых узлов становится больше числа атомов углерода, попадающих в поперечное сечение тубелена.

Структура концевых фрагментов тубелена оказывает существенное влияние на эмиссию электронов во внешнем поле [4], процесс роста нанотруб и другие поверхностные явления. Поэтому при расчете соответствующих характеристик тубелена необходимо учесть локализованные вблизи его концов электронные состояния (таммовские уровни) [14,15], соответствующие закрывающей структуре.

Параметры модели для описания энергетической структуры тубелена были выбраны следующим образом. Диаметр свернутой в цилиндр квантовой ямы  $2R$  мы положили равным диаметру тубелена 0.71 нм [16]. Глубина  $U_0$  и ширина  $d$  потенциальной ямы выступали в качестве подгоночных параметров. Для их определения мы заменили притягивающий потенциал иона углерода прямоугольной сферически симметричной потенциальной ямой. Соотношение ее

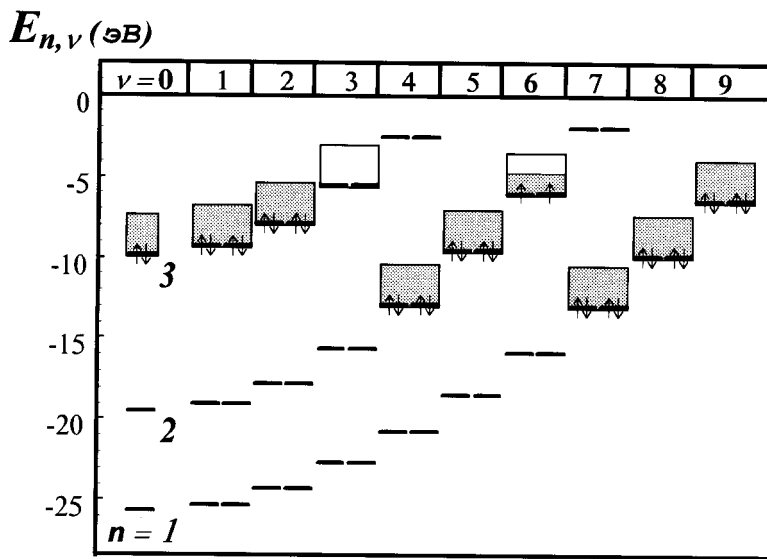
радиуса  $R_s$  и глубины  $U_s$  подбирались так, чтобы в яме разместилось только два состояния: одно с орбитальным квантовым числом  $l = 0$ , а другое с  $l = 1$ . Эти состояния играют в модели роль  $2s$  и  $2p$  орбиталей атома углерода,  $R_s$  и  $U_s$  таковы, что модельные уровни располагаются на глубине, соответствующей потенциалам ионизации  $I_{2s}$ ,  $I_{2p}$  атома углерода. При этом волновые функции модельных уровней и уровней углерода имеют равное число узлов в радиальном направлении, как этого требует приближение метода линейной комбинации атомных орбиталей [1]. При построении квантовой ямы ее параметры определялись соотношениями:  $U_0 = U_s = 27.6 \text{ эВ}$ ,  $d = 2R_s = 0.35 \text{ нм}$ . Такой полуэмпирический подход позволяет добиться хороших результатов даже при использовании достаточно грубых приближений.

Результаты численного решения характеристического уравнения для электрона представлены на рис. 2 в виде схемы уровней радиально-вращательной энергии  $E_{n,\nu}$ , которые соответствуют значениям квантовых чисел  $n$  и  $\nu$  волновой функции (3), допускаемым структурой поверхности тубелена. Каждое состояние двукратно вырождено по спиновому квантовому числу. Состояния с  $\nu$ , отличным от нуля, кроме того, еще дважды вырождены в соответствии с двумя возможными знаками  $\nu$ . С учетом кратности вырождения верхний уровень оказывается заполненным только наполовину. В тубелене — квазиодномерном кристалле полученные уровни размываются в энергетические зоны (рис. 2), ширина которых

$$E_\beta = \hbar^2 \beta^2 / 2m \quad (6)$$

определяется максимальным значением  $\beta$  из набора (5). В области верхнего заполненного уровня электроны перераспределяются между тремя энергетическими зонами, которые в результате оказываются заполненными лишь частично, что указывает на металлический характер проводимости. Для потенциала ионизации тубелена наша модель дает значение  $6.0 \text{ эВ}$ . Такие выводы согласуются с результатами расчетов зонной структуры ахиральных трубчатых кластеров с аналогичным строением поверхности и близкими к нашему тубелену диаметрами [14,17,18].

Таким образом, модель свернутой в цилиндр квантовой ямы, не претендуя на строгое описание особенностей электронной структуры трубообразных кластеров, позволяет оценить ее основные па-



**Рис. 2.** Схема одноэлектронных уровней радиально-вращательной энергии электрона в свернутой в цилиндр квантовой яме. Каждый горизонтальный штрих изображает состояние с двумя возможными ориентациями спина электрона. Для электронов, заполняющих верхние уровни, взаимная ориентация спинов показана стрелками. Приведены энергетические зоны, которые соответствуют верхним заполненным уровням в тубелене — квазиодномерном кристалле. Заселенные подуровни зон заштрихованы.

раметры и выявить закономерности расположения энергетических уровней, определяемые цилиндрической симметрией и размерами системы. Она основывается на наглядных приближениях и не требует значительных вычислительных ресурсов. Это позволяет использовать рассмотренную модель для описания образованных трубообразными кластерами сложных систем, таких как многослойные кластеры [2] или волокна [10] из близко расположенных однослойных. При этом описание эквивалентно рассмотрению системы соответственно вложенных или связанных свернутых в цилиндр квантовых ям с двумерным электронным газом.

Работа выполнена при частичной поддержке РФФИ (грант 95–02–06445а).

## Список литературы

- [1] *Potkin B.B., Syris P.A.* // ФТТ. 1994. Т. 36. № 12. С. 3569–3581.
- [2] *Iijima S.* // Nature. 1991. V. 354. P. 56.
- [3] *Cowan L., Smestad G.* // OE Reports. 1996. N 147. P. 2, 6.
- [4] *Rinzler A.G., Hafner J.H., Nikolaev P. et al.* // Science. 1995. V. 269. N 5230. P. 1550–1553.
- [5] *De Heer W.A., Chatelain A., Ugarte D.* // Science. 1995. V. 270. P. 1179.
- [6] *Chernozatonskii L.A., Gulyaev Yu.V., Kosakovskaja Z.Ja. et al.* // Chem. Phys. Lett. 1995. V. 233. P. 63.
- [7] *Fossheim K., Tuset E.D., Ebbesen T.W. et al.* // Physica. C. 1995. V. 248. P. 195.
- [8] *Tenne R.* // Adv. Mater, 1995. V. 7. P. 965.
- [9] *Chernozatonskii L.A.* // Phys. Lett. A. 1992. V. 166. P. 55.
- [10] *Косаковская З.Я., Чернозатонский Л.А., Федоров Е.А.* // Письма в ЖЭТФ. 1992. Т. 56. В. 1. С. 26.
- [11] *Satio R., Fujita M., Dresselhaus G., Dresselhaus M.S.* // Phys. Rev. B. 1992. V. 46. P. 1804–1811.
- [12] *Mintmire J.W., Dunlap B.I., White C.T.* // Phys. Rev. Lett. 1992. V. 68. P. 631–634.
- [13] *Hamada N., Sawada S., Oshiyama A.* // Phys. Rev. Lett. 1992. V. 68. P. 1579–1581.
- [14] *Станкевич И.В., Чернозатонский Л.А.* // Письма в ЖЭТФ. 1996. Т. 63. В. 8. С. 588–593.
- [15] *Tamura R., Tsukada M.* // Phys. Rev. B. 1995. V. 52. N 8. P. 6015–6026.
- [16] *Omel'yanovskii O.E., Tsebro V.I., Lebedev O.I. et al.* // Письма в ЖЭТФ. 1995. Т. 62. В. 6. С. 483–490.
- [17] *Blase X., Benedict L.X., Shirley E.L., Louie S.G.* // Phys. Rev. Lett. 1994. V. 72. N 12. P. 1878.
- [18] *Lou L., Nordlander P., Smalley R.E.* // Phys. Rev. B. 1995. V. 52. N 3. P. 1429–1432.