

ТЕОРЕТИЧЕСКОЕ ИССЛЕДОВАНИЕ СТАБИЛЬНОСТИ ФУЛЛЕРЕНОПОДОБНЫХ СТРУКТУР В РАМКАХ МОДЕЛИ «ЖЕЛЕ»

Цель работы — исследование возможности существования устойчивых металлических кластеров, имеющих фуллереноподобную структуру.

В работе нами рассматривались металлические кластеры Na с зарядовым числом 8–40, которые превращались в структуру типа фуллерена путем «вырезания» сферически симметричной полости внутри кластера.

Для описания структуры металлического кластера использовалась желе–модель [1–3]. Суть желе–модели состоит в том, что кластер, содержащий N атомов, рассматривается как две квазинезависимые подсистемы: система валентных электронов и система положительных ионов остова. Обобществленные валентные электроны движутся в среднем поле, создаваемом всеми ионами кластера. При этом поле положительных ионов остова заменяется усредненным фоном нескомпенсированного заряда, его распределение $n(r)$ считается однородным и сферически симметричным. В этом случае потенциал кластера имеет вид:

$$U(r) = \begin{cases} \frac{Ne^2}{2R} \left(3 - \left(\frac{r}{R} \right)^2 \right), & r \leq R \\ \frac{Ne^2}{r}, & r > R \end{cases}$$

где $R = r_s N^{1/3}$, r_s — среднее расстояние между атомами, N — число атомов в кластере. При переходе к структуре типа фуллерена (Рис.1) потенциал остова заменяется на гораздо более сложный.

Полная энергия кластера характеризует его стабильность и равняется сумме энергии положительно заряженного остова и энергии взаимодействующих электронов:

$$E_{tot} = E_{core} + E_{el} \quad E_{core} = \frac{1}{2} \int \rho_{core}(\vec{r}) U(\vec{r}) d\vec{r}$$

Для вычисления энергии межэлектронного взаимодействия используется приближение Хартри-Фока, позволяющее найти волновые функции электронов в самосогласованном поле [1–3]:

$$E_{el} = \sum_i \varepsilon_i - \frac{1}{2} \sum_{i,j} (\langle ij | V_{el}(\vec{r}, \vec{r}') | ij \rangle - \langle ji | V_{el}(\vec{r}, \vec{r}') | ij \rangle)$$

где $\langle i |, \langle j | \equiv \varphi_i, \varphi_j$, которые вычисляются из уравнения

$$\left(-\frac{\Delta_i}{2} - U(\vec{r}) + \sum_j \int \langle \varphi_j^*(x') \varphi_j(x') V_{el-el}(|\vec{r}' - \vec{r}|) dx' \right) \varphi_i(x) - \sum_j \varphi_j(x) \int \langle \varphi_j^*(x') \varphi_i(x') V_{el-el}(|\vec{r}' - \vec{r}|) dx' = \varepsilon_i \varphi_i(x)$$

Самосогласованный потенциал для двух предельных случаев: $R_{min} = 0$ (кластер) и $R_{min} = R$ (сфера) изображен на рис. 2

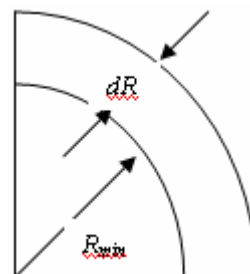


Рис. 1

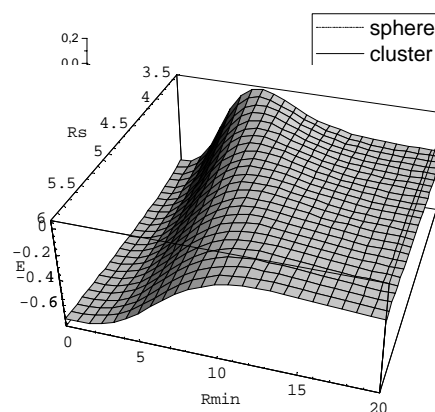


Рис. 3

Для кластера Na_8 были получены зависимости $E(r_s, R_{min})$, где R_{min} — глубина вырезаемой полости.

Энергетические поверхности для различных значений r_s и R_{min} приведены на рис. 3–5. Значение $R_{min} = 0$ соответствует металлическому кластеру. Из рис. 5 видно, что полная энергия системы имеет минимум при значении $r_s \approx 4.5$, что в данном приближении хорошо согласуется с известным значением $r_s = 4$ для кластера натрия.

Из рис. 6 видно, что связанные состояния наблюдаются в широком интервале размеров полости. Минимум полной энергии соответствует отсутствию полости, т.е. случаю «традиционного» металлического кластера. Однако, для любого из рассмотренных случаев наблюдается второй минимум полной энергии, соответствующий устойчивой фуллереноподобной системе. Причем эти два состояния разделены барьером, высота которого зависит от зарядового числа кластера.

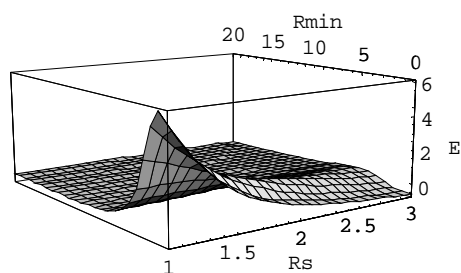


Рис. 4

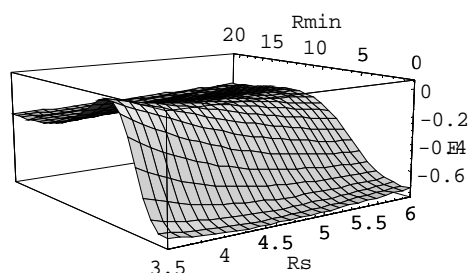


Рис. 5

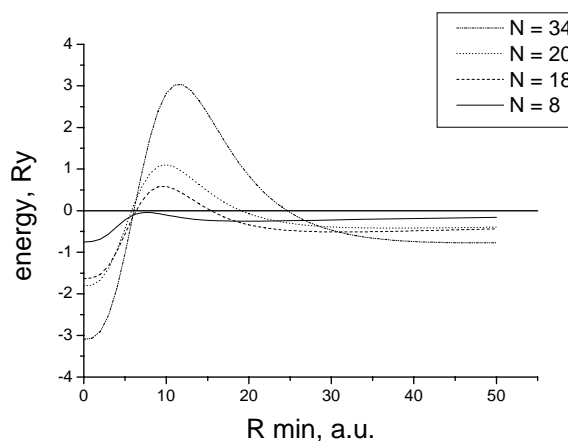


Рис. 6

Приближение Хартри-Фока хорошо учитывает обменное взаимодействие между электронами, однако оно не учитывает различного рода корреляционные эффекты. Это можно исправить, используя теорию функционала плотности, и, в частности, приближение локальной плотности (LDA — Local Density Approximation). Использование этого метода является основой для дальнейшей работы в этом направлении.

ЛИТЕРАТУРА:

1. Ivanov V.K., Ipatov A.N. Many-Body Calculations for Metallic Clusters Using the Jellium Model // Correlations in Clusters and Related Systems / Ed. J.-P. Connerade. Singapore: World Sci., 1996. p.141.
2. Иванов В.К., Ипатов А.Н., Харченко Н.А. // ЖЭТФ, 1996 г, т.109, стр.902.
3. Иванов В.К. СОЖ № 8, 1999 г, стр. 97-102.