

First-principle study on interplay between structural and electronic properties of armchair CNTs

Hayoung Lee and Cheol-Woon Kim

Department of Physics and Research Institute for Basic Sciences, Kyung Hee University.

e-mail: hayoung617@gmail.com, walker11@khu.ac.kr

ABSTRACT

Carbon nanotubes (CNTs) have been intensively investigated since they have been considered as building blocks of nanoscience and nanotechnology. Theoretical and computational studies on CNTs have revealed their physical and chemical properties and helped researchers build various experimental devices to study them in depth. However, there have been only few systematic studies on detailed changes in electronic structures of CNTs due to geometrical structure modifications. In this regard, it is necessary to perform systematic investigations of the modifications in electronic structures of CNTs, as their geometrical configurations are altered, using the first-principles density functional theory. In other words, it is essential to determine the true equilibrium structure of CNTs. We are going to construct different atomic configurations of each nanotube by maintaining the original symmetries, but changing all the other bonding types one by one. Furthermore, as for CNTs, for example, the way the graphene sheet is wrapped is represented by a pair of indices (n,m) and electronic structures of CNTs vary depending on different indices. Therefore, we plan to study and discuss all the significant couplings between electronic and geometric structures in CNTs.

INTRODUCTION

탄소나노튜브 (CNT) 는 수소저장물질, 센서, 트랜지스터 등 다양한 전기소자의 후보로 각광받고 있고, 이를 위해 실험적인 연구 뿐만 아니라 계산 연구 또한 활발히 이루어지고 있다.[1-3] 이 때 대부분의 계산 연구에서는 단순히 그래핀 시트를 원통형으로 말아서 튜브를 만들고 있는데, 이는 탄소-탄소 결합 길이의 오차가 남게 된다. 이 길이의 오차는 CNT 의 전자구조에 대해 중요한 역할을 한다.

이를 알아보기 위해 실제 결합길이를 변수로 CNT 구조를 만들어서 전자구조를 계산해보았다.

METHOD

이번 연구에서는 CNT 의 geometrical configuration 이 전자구조에 어떤 영향을

미치는지 알아보기 위해 Density Functional Theory (DFT) 계산을 이용하였다. 원자 궤도 basis, SIESTA 코드 [4] 를 사용하였고, 교환-상관 에너지는 Local density approximation (LDA) 방법을 통해 평형 구조를 결정하고 전자구조를 계산 하려 시도하였다. K-grid 는 $1 \times 1 \times 10$ grid 를 사용하였다. 특히, (n,n) 의 kiral 을 갖는 armchair-CNT (a-CNT) 에 대해 계산하였다. $(n= 5, 6, 7)$ 추가로 EDISON 시스템을 분석하기 위해서 single zeta basis 와 double zeta polarization basis로 계산하였다.

우리는 a-CNT 구조 변수들을 크게 세 가지로 생각했다. Fig 1 은 $(6,6)$ CNT 를 나타낸 그림이다. Z는 z축 방향의 격자상수(2.41, 2.46, 2.51 Å)를 나타내며, d_1 은 z축 방향과 수직인 방향의 탄소간 거리, d_2 는 비스듬히 나타나 있는 탄소간 거리이다.(0.02 Å 씩, 1.32 ~ 1.52 Å)

Z 값을 변화시키면서, d_1, d_2 를 변수로 하는 contour map 을 그린 후 fitting 하여 Z 값에 대한 안정된 구조를 찾았다.

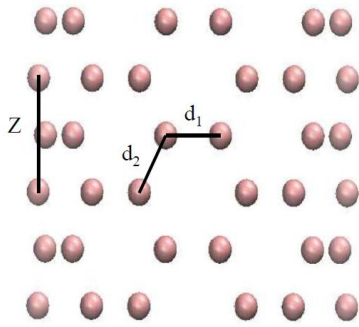


Fig 1. (6,6) CNT

DISCUSSION

우리는 하나의 contour map를 121개의 grid point 를 이용하여 그렸다. 이를 계산 하기 위해서 EDISON LCAO DFT tool 에 (5,5) a-CNT 의 격자상수와 결합길이를 조절한 121개의 좌표 파일을 넣어서 계산하였다. 이 때 다른 매크로나 스크립트를 사용할 수 없었기 때문에 121개의 좌표를 직접 넣고 제출하는 과정을 반복하고 다시 다운 받는 과정까지 반복해야 했다. 이를 통해 얻은 구조상수들은 Table 1. 과 같다. 그러나 EDISON 에서 돌아가는 계산은 basis가 single zeta (SZ) 이기 때문에 실제 있는 물질의 성질 완벽하게 구사하기 힘들다는 점이 있다. 실제로 Table 1을 보면 탄소간 결합이 그래핀(1.42 Å)보다 크게 나온 것을 확인 할 수 있다. 그래서 이를 double zeta polarization (DZP) 과 비교하기 위해서 EDISON 의 SIESTA fdf 파일을 업로드하여 계산을 시도 하였지만 EDISON 시스템이 이를 인식하지 못했다.

DZP를 통한 계산시도를 위하여, 매크로나 스크립트를 사용하지 못하는 EDISON 는 비교 대상으로만 이용하고 다시 (5,5) (6,6) (7,7) a-CNT를 로컬서버에서 계산하여 Table 1. 와 같은 구조상수들을 얻었고, 이 값들에 대해서 전자구조를 구하여 비교해 보았다.

Fig 2. 를 보면 (5,5) a-CNT 의 dirac-cone 이 Z값이 늘어감에 따라 Γ 쪽으로 가까워지는 것을 알 수 있다. 이는 z 축 방향의 브릴루앙 존이 점점 작아지기 때문이다. 이를 통해 계산의 신뢰도를 확인했다.

curvature effect를 확인하기 위해 (5,5)와 (7,7)의 결합길이에 주목했다. d_1 을 보면 (5,5)

CNT보다 (7,7) CNT 가 미세하게 작은 것을 알 수 있다. 이는 탄소의 π 오비탈이 반지름이 작을 때는 많이 겹치면서 밀어내려 하지만, n값에 따라 반지름이 커져 결합길이를 그래핀과 같게 돌아오려고 하기 때문이다.

CONCLUSION

우리는 EDISON 과 로컬서버를 이용 하여 CNT의 결합길이를 고려한 실제 구조를 계산하였다. EDISON 시스템의 오류를 확인하고 이들의 결과와 로컬서버에서의 결과를 비교했다. armchair-CNT의 전자구조의 Z 값에 관계를 보고 그 원인을 알아보았다. 그리고 결합 길이를 통해 curvature effect를 보이는 것을 확인하였다.

REFERENCE

- [1] M.S Dresselhaus, G. Dresselhaus, P.C. Ecklund, Science of Fullerene and Carbon Nanotubes, Academic Press, San Diego, 1996
- [2] W. Andreoni, The Physics of Fullerene-Based and Fullerene-Related Materials, Kluwer Academic press, Dordrecht and Boston 2000.
- [3] D. Chen, T. Sasaki, J. Tang, L.C. Qiin, Phys. Rev. B 77 (2008) 125412..
- [4] J. M. Soler et al., Journal of Physics: Condensed Matter 18, 2745 (2002)

	Z (Å)	d_1 (Å)	d_2 (Å)	E_{tot} (eV)
(5,5) EDISON	2.41	1.447	1.425	0.70
	2.46	1.450	1.440	0
	2.51	1.460	1.456	0.68
(5,5)	2.41	1.426	1.404	0.22
	2.46	1.430	1.422	0
	2.51	1.430	1.440	0.26
(6,6)	2.41	1.426	1.408	0.27
	2.46	1.430	1.423	0
	2.51	1.428	1.441	0.29
(7,7)	2.41	1.426	1.402	0.34
	2.46	1.427	1.420	0
	2.51	1.426	1.440	0.33

Table 1. EDISON 과 로컬서버에서 계산된 a-CNT 의 Z, d_1 , d_2 . 총 에너지는 각 kiral 별로 가장 낮은 값을 기준으로 표시하였다.

(5,5) a-CNT

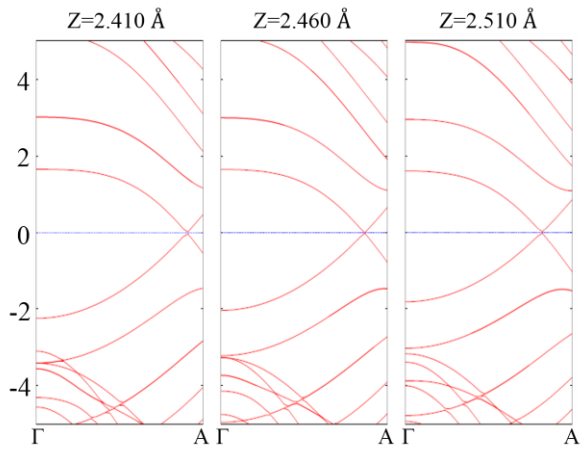


Fig 1. 로컬서버에서 계산된 (5,5) a-CNT 의 Z 값에 따른 전자구조