

## مطالعه تحلیلی پذیرفتاری الکتریکی نانولوله‌های کربنی با در نظر گرفتن هم‌پوشانی میان همسایه‌های مرتبه سوم

عباس ظریفی\*، فاطمه عطار

گروه فیزیک، دانشکده علوم، دانشگاه یاسوج، یاسوج، ایران

### چکیده

توصیف ترازهای انرژی برای گرافین و همچنین نانولوله‌های کربنی به کمک تقریب بستگی قوی با در نظر گرفتن هم‌پوشانی میان توابع موج اتمی مربوط به الکترون‌های اوربیتال  $\pi$  اتم‌های کربن و همچنین لحاظ نمودن هم‌پوشانی تا همسایه‌های مرتبه سوم، به خوبی با نتایج حاصل از محاسبات اصول اولیه (first principle) برای این ساختارها در توافق می‌باشد.

[S. Reich, *et all*, Phys. Rev. B 66, 035412(2012)]

لذا در این تحقیق بر آن شدیم با استفاده از این روش ساده علاوه بر ترازهای انرژی، عناصر ماتریسی دو قطبی الکتریکی و پذیرفتاری الکتریکی خطی به صورت تابعی از فرکانس اپتیکی را برای چندین نانولوله کربنی تک دیواره برای حالت نور قطبیده موازی با محور نانولوله‌ها بررسی نماییم. سپس پذیرفتاری الکتریکی خطی به دست آمده را با نتایج حاصل از محاسبات به کمک روش بستگی قوی با در نظر گرفتن صرفاً همسایه‌های اول و سپس همسایه‌های دوم بدون و با در نظر گرفتن هم‌پوشانی مقایسه نماییم. نمودارهای ترازهای انرژی حاکی از آن هستند که وارد کردن هم‌پوشانی اولاً تقارن ترازهای انرژی را از بین می‌برد و از طرفی ضمن افزایش دقت محاسبات، فرآیند سرخ‌گرایی و یا انتقال به سرخ را در طیف پذیرفتاری الکتریکی برای همه نانولوله‌های کربنی به همراه دارد.

کلیدواژگان: پذیرفتاری الکتریکی، نانولوله‌های کربنی، بستگی قوی و همسایه‌های سوم

### مقدمه

راستای نور قطبیده نسبت به محور نانولوله بستگی دارد [۶-۸]. نانولوله‌های تک‌جداره به دلیل خواص الکترونیکی ویژه و کاربردهای متنوع و فراوان در زمینه الکترونیک مورد توجه بیشتری قرار گرفته‌اند. این نوع نانولوله‌ها با چرخش یک صفحه گرافن در راستاهای مختلف به شکل استوانه ایجاد می‌شوند و سپس خواص فیزیکی آن‌ها اغلب به وسیله تقریب ساده بستگی قوی توصیف می‌شود. با اعمال شرایط مرزی بر روی صفحات گرافنی به کمک این مدل تقریبی می‌توان عبارات تحلیلی برای ترازهای انرژی الکترونی

از زمان کشف نانولوله‌های کربن در سال ۱۹۹۱ توسط ایجیما [۱] تحقیقات گسترده‌ای بر روی این نانومواد به خاطر خواص الکترونیکی، مغناطیسی، شیمیایی، و همچنین استحکام مکانیکی و انعطاف‌پذیری بالای آن‌ها صورت گرفته است. نانولوله‌های کربن یکی از آلوتروپ‌های کربن می‌باشند که به دو دسته تک‌جداره و چندجداره ساخته می‌شوند [۲]. این مواد دارای قطری در ابعاد نانو و طولی در ابعاد میکرون هستند لذا آن‌ها را سیستم‌های یک‌بعدی در نظر می‌گیریم. نتایج به دست آمده حاکی از آن است که خصوصیات اپتیکی آن‌ها به

\*نویسنده مسئول: zarifi@yu.ac.ir

به‌علاوه برای نانولوله‌های رسانای نوع آرمچیر یک قله تند در پذیرفتاری الکتریکی نزدیک به انرژی فرمی ایجاد شده که نشان از ایجاد گاف انرژی بسیار کوچک برای این قبیل نانولوله‌ها می‌باشد.

### ترازهای انرژی

با توجه به فرم کلی معادله مشخصه و اینکه سلول قراردادی مربوط به گرافن شامل دو اتم کربن می‌باشد ویژه‌مقادیر و ویژه‌بردارهای هامیلتونی گرافن از روابط زیر به دست می‌آیند [۹-۷]:

$$E_j^\pm = \frac{2E_0 - E_1 \pm \sqrt{(-2E_0 + E_1)^2 - 4E_2E_3}}{2E_3} \quad ۱$$

$$v(\vec{k}) = (C_{vA}, C_{vB}) = \frac{1}{\sqrt{2}} \left( \frac{E^- S_{AB} - H_{AB}}{H_{AA} - E^- S_{AA}}, 1 \right),$$

$$c(\vec{k}) = (C_{cA}, C_{cB}) = \frac{1}{\sqrt{2}} \left( \frac{E^+ S_{AB} - H_{AB}}{H_{AA} - E^+ S_{AA}}, 1 \right)$$

که در روابط فوق،

$$E_0 = H_{AA} S_{AA}, \quad E_1 = S_{AB} H_{AB}^* + H_{AB} S_{AB}^*,$$

$$E_2 = H_{AA}^2 - H_{AB} H_{AB}^*, \quad E_3 = S_{AA}^2 - S_{AB} S_{AB}^*$$

با در نظر گرفتن برهم‌کنش همسایه‌های سوم عبارات فوق به شکل زیر تعریف می‌شوند:

$$H_{AB}(\vec{k}) = \gamma_0 f_0(\vec{k}) + \gamma_2 f_2(\vec{k}),$$

$$H_{AA}(\vec{k}) = \varepsilon_{2p} + \gamma_1 f_1(\vec{k}),$$

$$S_{AB}(\vec{k}) = s_0 f_0(\vec{k}) + s_2 f_2(\vec{k}),$$

$$S_{AA}(\vec{k}) = 1 + s_1 f_1(\vec{k})$$

که در آن‌ها

نانولوله‌ها به دست آورد [۴، ۳]. عموماً در مطالعه خواص فیزیکی نانولوله‌ها فقط برهم‌کنش میان سه همسایه اول هر اتم کربن را لحاظ می‌کنند. طبق مدل بستگی قوی با تغییر تعداد اتم‌های تشکیل دهنده هر سلول واحد نانولوله و بنابراین تغییر دو کمیت صحیح  $(n, m)$  خواص فیزیکی آن‌ها نیز تغییر می‌کند. با توجه به رابطه  $2n + m = 3p + r$  در نانولوله‌ها، به طوری که  $p$  مقداری صحیح و  $r = 0, 1, 2$  می‌باشد این مواد به ترتیب به سه دسته فلز، نیم‌رسانای نوع یک (SI) و نیم‌رسانای نوع دو (SII) تقسیم می‌شوند [۳]. عبارات تحلیلی مربوط به عناصر ماتریس دوقطبی الکتریکی برای دو حالت نور قطبیده موازی و عمود بر محور نانولوله‌ها در حد همسایه‌های اول به دست آمده و پذیرفتاری الکتریکی خطی مربوطه مطالعه شده است [۴]. محاسبات ریچ و همکاران [۷] عبارتی تحلیلی برای ترازهای انرژی نانولوله‌های کربن به روش بستگی قوی تا همسایه‌های سوم به دست آورده که در مقایسه با محاسبات مربوط به لحاظ نمودن فقط همسایه‌های اول انطباق بهتری با نتایج حاصل از مدل محاسبات اصول اولیه دارد. با این حال تا کنون عناصر ماتریس دوقطبی الکتریکی و پذیرفتاری الکتریکی نانولوله‌ها با در نظر گرفتن همسایه‌های سوم مطالعه نشده است. لذا در این پژوهش ابتدا با استفاده از روش بستگی قوی و با در نظر گرفتن اوربیتال اتمی  $p_z$  به عنوان ویژه تابع اتم کربن و همچنین در نظر گرفتن برهم‌کنش سومین همسایه‌های اتمی، عناصر ماتریس هامیلتونی و هم‌پوشانی گرافن به عنوان پایه ساختاری نانولوله به دست آمده و سپس با اعمال شرایط مرزی بر روی صفحات گرافن ترازهای انرژی نانولوله‌ها را به دست آورده و در ادامه دوقطبی و پذیرفتاری الکتریکی آن‌ها بررسی شده است. محاسبات انجام شده، فرآیند سرخ‌گرایی و یا انتقال به سرخ را در طیف پذیرفتاری الکتریکی برای همه نانولوله‌های کربنی به همراه دارد.

موازی با محور نانولوله تا همسایه‌های سوم با توجه

به‌ویژه توابع بهنجار متناظر از رابطه زیر به دست می‌آیند

[۴]:

۸

$$d_{\vec{k}, \vec{k}'}^Y = \frac{-e}{E_{cv}(\vec{k})} \left\{ C_{cA}^*(\vec{k}) C_{vA}(\vec{k}) \vec{v}_1^{YA}(\vec{k}) \gamma_1 \right. \\ \left. + C_{cA}^*(\vec{k}) (\vec{v}_0^{YA}(\vec{k}) \gamma_0 + \vec{v}_2^{YA}(\vec{k}) \gamma_2) \right. \\ \left. - \vec{v}_1^{YA*}(\vec{k}) \gamma_1 \right. \\ \left. - C_{vA}(\vec{k}) (\vec{v}_0^{YA*}(\vec{k}) \gamma_0 + \vec{v}_2^{YA*}(\vec{k}) \gamma_2) \right\}$$

که در آن  $\vec{v}_i^{YA}(\vec{k}) (i=0,1,2)$  معرف بردارهای

دوقطبی‌اند.

با استفاده از رابطه  $p = (m_e / \hbar e) E_{cv} d_{cv}$  قطبش

انواع نانولوله‌ها را نیز می‌توان به دست آورد. معادله

مربوط به پذیرفتاری خطی نیز به صورت زیر داده

می‌شود [۴]:

۹

$$\chi_{ii}(\omega) = \frac{2}{\pi \epsilon_0 A} \sum_{c,v} \int_{-\pi/T}^{\pi/T} |d_{c,v}^i(\vec{k})|^2 \frac{E_{cv}(k) dk}{E_{cv}^2(k) - \hbar^2 \Omega^2}$$

که در آن  $d_{c,v}^i(\vec{k})$  مؤلفه‌های دوقطبی الکتریکی

نانولوله‌ها و  $E_{cv}(k)$  ویژه‌مقادیر انرژی میان ترازهای

ظرفیت و رسانش می‌باشند. فرکانس مختلط

$\Omega = \omega + i\Gamma$  نیز شامل بسامد انرژی فرودی و پارامتر

میرایی است. با جای‌گذاری عبارت دوقطبی الکتریکی

در رابطه فوق می‌توان پذیرفتاری الکتریکی نانولوله‌ها

را مطالعه کرد. اگر چه عبارت تحلیلی برای پذیرفتاری

الکتریکی به دست نیامده با این حال محاسبات به کمک

برنامه **mathematica** به راحتی قابل حل می‌باشند. در

شکل‌های ۱ و ۲ پذیرفتاری الکتریکی را برای چندین

نمونه از نانولوله‌ها با و بدون در نظر گرفتن هم‌پوشانی

و همچنین با در نظر گرفتن همسایه‌های سوم به دست

آورده‌ایم. سپس نتایج با محاسبات مربوط به

همسایه‌های اول و دوم مقایسه شده‌است.

۵

$$f_0(\vec{k}) = e^{-ik_x a / \sqrt{3}} + 2e^{ik_x a / 2\sqrt{3}} \cos(k_y a / 2),$$

$$f_1(\vec{k}) = 2 \cos(k_y a) + 4 \cos(ak_x \sqrt{3} / 2) \cos(k_y a / 2),$$

$$f_2(\vec{k}) = e^{i2k_x a / \sqrt{3}} + 2e^{-ik_x a / \sqrt{3}} \cos(k_y a)$$

می‌باشد. در روابط فوق  $\epsilon_{2p}$  انرژی اوربیتال تراز  $2p$

و  $\gamma_0, \gamma_1, \gamma_2$  به ترتیب انتگرال انتقال نزدیکترین،

دومین و سومین همسایه‌ها و  $s_0, s_1, s_2$  به ترتیب

انتگرال‌های هم‌پوشانی اولین، دومین و سومین

همسایه‌ها می‌باشند که همگی با روش‌های تجربی

تعیین می‌شوند.

برای ساختن نانولوله از صفحه گرافن بردار انتقال  $\vec{T}$

در جهت محور نانولوله و بردار کایرال  $\vec{C}$  عمود بر

محور تعریف می‌شود. لذا محور  $Y$  دستگاه مختصات

چرخیده را در جهت محور نانولوله در نظر می‌گیریم

به طوری که اعداد موج  $K_1$  و  $K_2$  مؤلفه‌های محوری و

جانبی بردار موج می‌باشند و  $k_x, k_y$  به صورت زیر

تعریف می‌شوند [۸،۹]

۶

$$k_x = K_1 \cos(\alpha) - K_2 \sin(\alpha)$$

$$k_y = K_1 \sin(\alpha) - K_2 \cos(\alpha)$$

و

$$\alpha = \pi / 6 - \cos^{-1} \left[ (2n + m) / \sqrt{n^2 + m^2 + nm} \right]$$

برای انواع نانولوله‌های تک دیواره داریم:

۷

$$K_1^{\mu} L = 2\pi\mu \quad \mu = 0, \dots, N - 1$$

$$-\pi / T \leq K_2 \leq \pi / T$$

که در آن  $L$  و  $T$  به ترتیب اندازه بردارهای کایرال و

انتقال‌اند.

### دوقطبی و پذیرفتاری الکتریکی

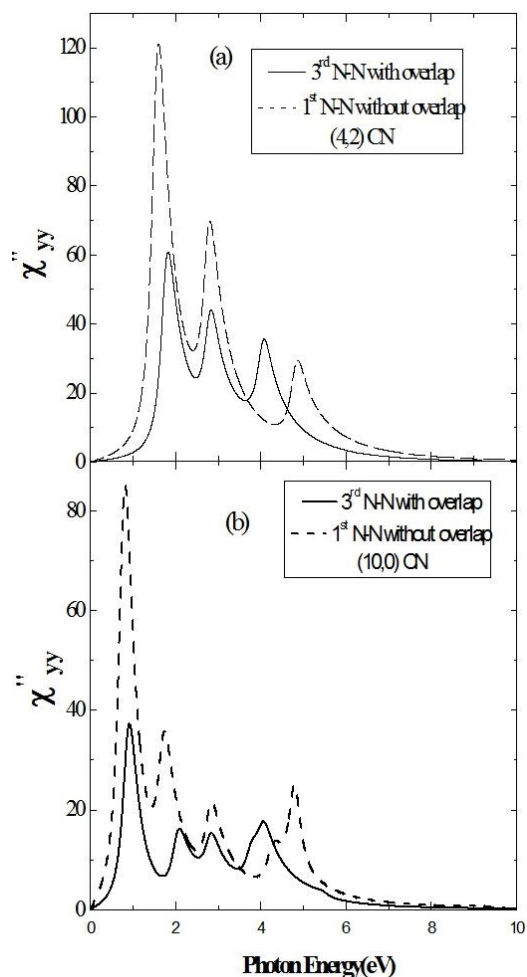
مؤلفه‌های بردار دو قطبی الکتریکی برای همه

نانولوله‌ها با کایرالیته دلخواه در حالت نور قطبیده

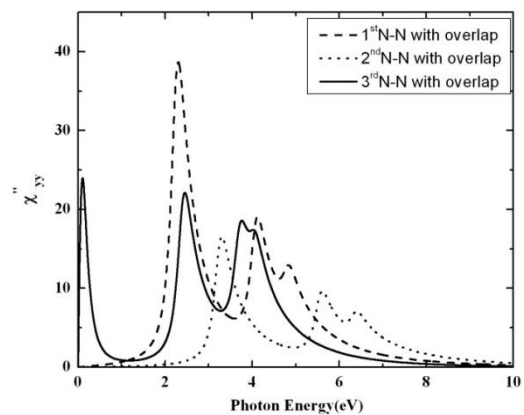
نمودن همسایه‌های سوم و همسایه‌های اول و همسایه‌های دوم با هم‌پوشانی.

### بحث و نتیجه‌گیری

با بررسی انواع مختلف نانولوله‌ها مشاهده می‌شود که در نظر گرفتن هم‌پوشانی و همچنین لحاظ کردن سومین همسایه‌های نزدیک، از یک سو منجر به عدم تقارن میان ترازهای انرژی شده و از سوی دیگر تغییر گاف انرژی میان ترازهای ظرفیت و رسانش را به دنبال دارد. این تغییرات در نانولوله‌های فلزی به‌ویژه در ترازهای پایه محسوس‌تر می‌باشند. همچنین بر طبق شکل‌های ۱ و ۲ در نظر گرفتن عبارات مربوط به سومین همسایه‌های نزدیک در هامیلتونی، به‌طور کلی منجر به انتقال قله‌های پذیرفتاری الکتریکی در قطبش موازی به سمت انرژی‌های کمتر می‌شود. شکل ۲ قله‌ای تند را در حالت قطبش موازی و با در نظر گرفتن همسایه‌های سوم در مجاورت نقطه صفر انرژی نشان می‌دهد. این قله با در نظر گرفتن صرفاً همسایه اول در نقطه صفر انرژی اتفاق می‌افتد که نشان می‌دهد در نانولوله‌های فلزی دو تراز انرژی ظرفیت و رسانش همدیگر را قطع می‌کنند، یعنی گاف انرژی صفر می‌باشد. برای توضیح قله تند ایجاد شده در شکل ۲ مقادیر مربوط به اختلاف انرژی میان دو تراز ظرفیت و رسانش در نقطه صفر انرژی را برای نانولوله نوع آرمچیر (6,6) در هر دو حالت یعنی لحاظ نمودن همسایه‌های اول و سوم با هم‌پوشانی بررسی نمودیم. برای نانولوله‌های نوع آرمچیر صفر انرژی در  $\mu = 6$  اتفاق می‌افتد که در این حالت با در نظر گرفتن همسایه‌های سوم این مقدار از صفر به مقدار  $3.1334 \times 10^{-10} \text{ eV}$  تبدیل شده است و همین مقدار باعث شده است که قله تندی در نزدیکی سطح فرمی در نانولوله نوع (6,6) ایجاد گردد، که نشان از ایجاد یک گاف بسیار کوچک می‌باشد. این قله با در



شکل ۱. (a) قسمت موهومی پذیرفتاری الکتریکی مربوط به نانولوله کربنی نوع کایرال (4,2) و (b) نانولوله‌های نوع زیگزاگ (10,0) با قطبش موازی برای دو وضعیت لحاظ نمودن همسایه‌های سوم با هم‌پوشانی و همسایه‌های اول بدون هم‌پوشانی.



شکل ۲. مقایسه قسمت موهومی پذیرفتاری الکتریکی نانولوله کربنی رسانا (6,6) با قطبش موازی برای سه وضعیت لحاظ

[7] S. Reich, J. Maultzsch, C. Thomsen, P. Ordejon, Tight-Binding Description of Graphene, *Physical Review B* 66 3 (2002) 035412-5.

[8] A. Zarifi, Analytical study of the optical, electro optical and magneto optical properties of carbon nanotubes, PhD thesis, Aalborg University, Denmark, (2008).

[9] R. Saito, G. Dresselhaus, M.S. Dresselhaus, *Physical Properties of Carbon Nanotubes*, Imperial College Press (2003).

نظر گرفتن صرفاً همسایه اول در نقطه صفر انرژی وجود دارد که به علت عدم لحاظ نمودن انتقال‌های درون ترازوی چشم‌پوشی شده بود. به علاوه محاسبات بیشتر برای دیگر نانولوله‌ها نشان می‌دهد با افزایش شعاع نانولوله افزایش تعداد قلّه‌ها ناچیز و قابل چشم‌پوشی است.

#### مرجع‌ها

[1] S. Iijima, Helical Microtubules of Graphitic Carbon, *Nature* 345 (1991) 56-58.

[2] J.W. Mintmire, B.I. Dunlap, C.T. White, Are Fullerene Tubules Metallic?, *Physical Review Letters* 68 5 (1992) 631-634.

[3] A. Zarifi, T.G. Pederson, Linear Optical and Quadratic Electro-Optic Response of Carbon Nanotubes: Universal analytic Expression for Arbitrary Chirality, *Journal of Physics: Condensed Matter* 20 27 (2008) 275211-6.

[4] A. Zarifi, T.G. Pederson; Universal Analytic Expression of Electric-Dipole Matrix Elements for Carbon Nanotubes, *Physical Review B* 80 19 (2009) 195422-7.

[5] M. Ichida, S. Mizuno, Y. Saito, H. Kataura, Y. Achiba, A. Nakamura, Coulomb Effects on the Fundamental Optical Transition in Semiconducting Single-Walled Carbon Nanotubes: Divergent Behavior in the Small-Diameter Limit, *Physical Review B* 65 24 (2002) 241407-4.

[6] Z.M. Li, Z.K. Tang, H.J. Liu, N. Wang, C.T. Chan, R. Saito, S. Okada, G.D. Li, J.S. Chen, N. Nagasawa, S. Tsuda, Polarized Absorption Spectra of Single-Walled  $4 A^0$  Carbon Nanotubes Aligned in Channels of an  $AlPO_4-5$  Single Crystal, *Physical Review Letters* 87 12 (2001) 127401-4.

# **Analytic Study of the Susceptibility of Carbon Nanotubes by Including the Overlap between Third Nearest Neighbors**

**Abas Zarifi\*, Fatemeh. Attar**

<sup>1</sup>Department of Physics, Faculty of Science, Yasouj University, Yasouj, Iran

## **Abstract**

Including third nearest neighbors interactions, tight-binding description of electronic dispersion reproduces the first-principle calculations for graphene as well as carbon nanotubes [S. Reich, *et al*, Phys. Rev. B 66, 035412(2012)]. Using a simple tight-binding method up to the third nearest neighbor interactions and considering the orbital overlap between wave functions, the energy dispersion, the electric dipole matrix elements and the linear electric susceptibility as a function of optical frequency of some single wall carbon nanotubes for polarized light parallel to the nanotube axis are investigated. The linear electric susceptibility obtained up to the third nearest neighbors including orbital overlap is compared with those obtained for the first nearest neighbors. The calculations show a red shift in linear electric susceptibility including third neighbors in comparison with those including only first nearest neighbors.

**Keywords:** Carbon nanotubes, Tight-binding description, Linear susceptibility, Third nearest neighbors