

采用 Lennard-Jones 原子间势研究 $(C_{60})_N$ 分子团簇的结构演化行为^{*}

吴 洋 段海明[†]

(新疆大学物理科学与技术学院, 乌鲁木齐 830046)

(2010 年 7 月 15 日收到; 2010 年 11 月 1 日收到修改稿)

采用描述原子间相互作用的 Lennard-Jones 势来描述 C_{60} 分子间的相互作用, 考虑了每个 C_{60} 分子的一定位置取向, 并采用最速下降法计算了 IH, fcc, hcp, DH 及 SC 五种典型结构满壳层 $(C_{60})_N$ 团簇 ($N < 2000$) 的能量. 结果显示: 当尺寸较小 ($N < 20$) 时, IH 结构最稳定; 当尺寸处于中等 ($50 < N < 300$) 时, HCP 结构最稳定; 当尺寸较大 ($300 < N < 2000$) 时, fcc 结构最稳定. 随着团簇尺寸的增大, IH, fcc, hcp 及 DH 四种典型结构的平均分子能量呈下降趋势, 而 SC 结构发生畸变, 表明所研究尺度内, $(C_{60})_N$ 团簇处于 SC 结构不稳定, 分子团簇低能结构还远未过渡到 C_{60} 晶体.

关键词: C_{60} 团簇, 取向, 最速下降法, 结构演化

PACS: 61.46.Bc, 61.48.-c

1. 引言

实验上富勒烯 C_{60} 的发现^[1] 及大量合成^[2] 的成功, 引起了国内外学术界对 $(C_{60})_N$ 团簇、晶体及其衍生物研究的广泛关注^[3-11]. Martin 等人^[12] 的质谱实验显示: 对于 $N = 13, 19, 23, 35, 39, 43, 46, 49$ 和 55 具有明显的丰度, 这被称为 C_{60} 分子团簇的幻数. 最早对 C_{60} 晶体结构的 X 射线衍射分析指出 C_{60} 晶体具有 hcp 密堆积结构^[13], 其后的研究表明 C_{60} 在室温下以 fcc 结构存在, 并在 260 K 左右存在 fcc 相到 SC 相的一级结构相变^[2,14].

理论上, 对 C_{60} 分子团簇几何结构的研究也引起了普遍关注. Luo 等人^[15] 采用 Pacheco-Ramalho^[16] (PR) 分子间作用势, 结合遗传算法, 研究了尺寸 N 介于 30 以内的 $(C_{60})_N$ 团簇的最低能量结构, 总能量的二阶差分表明: 显著峰位对应 $N = 13, 19, 23, 26$ 和 28, 与 Martin 等人的实验结果在 $N = 13, 19, 23$ 处相符合. 另外 Gallego 小组在这方面做了大量的工作, 该小组的 Rey 等人^[17] 利用 Girifalco^[18] 分子间作用势并结合分子动力学 (MD) 模拟, 给出了 $(C_{60})_N$

团簇 $N = 25$ 以下的总能二阶差分图, 显著峰位除了 $N = 13$ 外, 与 Martin 小组的实验结果不符合, 可能的原因认为是 Girifalco 势描述 C_{60} 分子间的相互作用不够准确. 之后同小组的 Garcia-Rodeja^[19] 等人又采用 Lennard-Jones 原子间相互作用势研究 $(C_{60})_N$ 最大尺寸 N 为 20 的作用体系, 主要描述了基态几何结构及能量, 总能量的二阶差分对应的显著峰位与 Martin 等人的实验质谱丰度是一致的.

由上述可见在描述 C_{60} 分子团簇的几何结构上相互作用势的选取至关重要, 诸多人^[15,20] 采用 PR 分子间势计算了尺寸较小的 $(C_{60})_N$ 团簇最低能量结构, 很少有人采用原子间 Lennard-Jones 势描述 $(C_{60})_N$ 团簇体系. 由于 PR 单点势将 C_{60} 分子看做点模型, 没有考虑到 C_{60} 分子的位置取向, 而在 C_{60} 晶体中已发现, C_{60} 分子的取向对 C_{60} 晶体^[13] 结构及其他物理性质有着重要的影响. 另一方面, 在研究体系尺寸大小上, 对尺寸 $N < 200$ 的 $(C_{60})_N$ 团簇的研究已有大量工作^[17-21], 然而在尺寸较大 ($N > 200$) 时, 经调研还未发现有相关工作, 这可能主要是由于在采用几何结构全局优化算法 (如模拟退火算法^[22]) 计算团簇基态结构时对团簇尺寸有很大限制. 综合

^{*} 国家自然科学基金 (批准号: 10864005), 教育部留学回国人员科研启动基金资助的课题.

[†] 通讯联系人. E-mail: dhm@xju.edu.cn

以上考虑,本文采用描述原子间相互作用的 Lennard-Jones 势,考虑 C_{60} 分子的一定取向,利用最速下降法计算了较大尺寸 ($N < 2000$) 的 $(C_{60})_N$ 团簇在五种典型结构 (IH, fcc, hcp, DH, SC) 下的能量,进而研究了相关的结构演化行为.

2. 典型结构、Lennard-Jones 原子间相互作用势及计算方法

2.1. 结构模型

相互作用以 Lennard-Jones 势描述的 C_{60} 分子团簇中各 C_{60} 分子间的相互作用为弱的范德瓦尔斯相互作用,该作用下团簇趋向于密堆积结构,通常团簇研究中所考虑的密堆积结构有晶体结构中不出现的含有五次对称轴的 IH 及 DH 结构以及类如晶体碎片的 fcc, hcp 及 SC 结构^[23–25],考虑到满壳层密堆积结构(往往为幻数结构)的较高相对稳定性,本

文中只计算了包含 2000 个 C_{60} 分子以内 C_{60} 团簇在五种典型结构 (IH, fcc, hcp, DH, SC) 满壳层下的能量.

IH 结构是自然界中对称性最高的结构,具有五次对称轴的对称性,是一种典型的密堆积结构,其密集度与面心立方结构很接近. 其满壳层序列数是 13, 55, 147, 309 等. 本文考虑的 DH 结构是指 Marks decahedron^[26], 满壳层序列数是 13, 75, 212, 434 等. fcc 结构可通过截取正八面体六个顶点到,所得结构与 IH 结构有相同的满壳层序列数 13, 55, 147, 309 等. 但是他们的结构对称性不一样, fcc 属于 O_h 点群. hcp 结构,即六角密堆结构,也是晶体中常见的一种结构. 其团簇结构的满壳层序列数是 13, 57, 153, 323 等. SC 结构是晶体中最简单的一种结构,也是 C_{60} 晶体在低温 ($T < 260$ K) 下表现出的相. 满壳层序列数为 27, 64, 125, 343 等. IH, fcc, hcp, DH 及 SC 五种典型结构满壳层结构示意图如图 1 所示.

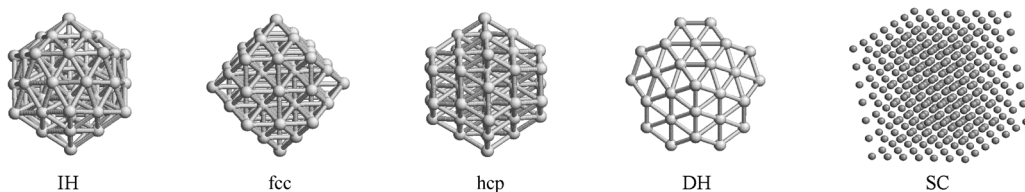


图 1 IH, fcc, hcp, DH 及 SC 五种典型结构满壳层结构示意图

2.2. Lennard-Jones (LJ) 相互作用势^[27]

本文中采用的 C_{60} 坐标是通过第一性原理严格计算求得的, C_{60} 分子表面有 12 个正五边形和 20 个正六边形, 每个六边形均与 3 个六边形和 3 个五边形相邻. 连接六边形与六边形的 C-C 间距是 1.39 Å, 五边形与六边形相接的 C-C 间距是 1.44 Å, 这与实验^[28]上测得的结果是一致的. 计算中将 C_{60} 分子看做刚性体, 刚性体的转动取向对应于 C_{60} 分子中 60 个 C 原子的整体的位置不同(绕中心点转动). 考虑 N 个 $(C_{60})_N$ 团簇中每个 C_{60} 分子的 60 个 C 原子均参与相互作用, 该 LJ 势的具体表述如下所示:

$$u_{\alpha\beta} = \sum_{i=1}^{60} \sum_{j=1}^{60} \left(-\frac{A}{(r_{ij}^{\alpha\beta})^6} + \frac{B}{(r_{ij}^{\alpha\beta})^{12}} \right), \quad (1)$$

式中 $r_{ij}^{\alpha\beta}$ 是指第 α 个 C_{60} 分子中的第 i 个 C 原子与第 β 个 C_{60} 分子的第 j 个 C 原子的间距(其中 $\beta \neq \alpha$). 参数^[18]分别为 $A = 19.97 \text{ eV} \cdot \text{\AA}^6$, $B = 34808.39 \text{ eV} \cdot \text{\AA}^{12}$.

2.3. 计算方法

计算中对于所选取各 $(C_{60})_N$ 分子团簇的初始结构, 采用力和力矩的双重标准进行最速下降法结构弛豫以达到结构稳定态. 具体计算过程如下: 首先给出五种不同的初始结构, 为加快结构弛豫优化计算, 初始结构中 $(C_{60})_N$ 团簇中相邻 C_{60} 分子(中心)间距离取为 10 Å 左右^[29], 根据每一个 C_{60} 分子中每个 C 原子所受团簇中其他所有 C_{60} 分子中的每个 C 原子的力的作用, 计算出每一个 C_{60} 分子所受到的合力以及对该 C_{60} 分子中心点的合力矩, 在该合力及合力矩的作用下, 实现每个 C_{60} 分子的平动以及相对各自中心点的转动, 直至达到稳定的状态. 具体采用最速下降法由合力矩计算各 C_{60} 分子旋转步骤如下(以绕 X 轴旋转为例, 绕 Y, Z 轴类同): 对某 C_{60} 分子之某一原子, 先计算出其绕 OX 轴旋转角 θ_x (可由该原子及所属 C_{60} 分子几何中心直角坐标之 Y, Z 分量决定), 再由合力矩

X 分量 L_X 决定该原子 (也即所属整个 C_{60} 分子) 绕 OX 轴旋转角增量 $\Delta\theta_X$ ($\Delta\theta_X \propto |L_X|$, 计算程序中取 $\Delta\theta_X = \alpha \times L_X / |L_X|$, α 为一小量), 由 θ_X 及 $\Delta\theta_X$ 可计算出该原子 (C_{60} 分子) 绕 X 轴旋转 $\Delta\theta_X$ 后的新位置 (坐标).

3. 结果与讨论

表 1 中给出了计算所得 IH, fcc, hcp, DH 及 SC 五种典型结构下 (C_{60}) $_N$ 满壳层团簇稳定结构的能

量, 其中均能是指团簇的总结合能均摊到每一个 C_{60} 分子上的能量.

在 (C_{60}) $_N$ 团簇结构演化过程中, 图 2 中给出了期间的一些最低能量结构, 由于尺寸更大时仍是 fcc 结构稳定, 与 $N=309$ 时结构一样, 仅尺寸增大, 壳层增多, 故不再一一罗列. 在分子尺寸 $N=13$ 时, IH 结构团簇最稳定, 分析该结构中 C_{60} 分子具体取向可发现, 当相互作用的 C_{60} 分子取向尽可能呈六边形面相对时, (C_{60}) $_N$ 分子团簇的能量变低, 表现出的结构也更稳定, 这一结果与文献[19]中的结果也是一致的.

表 1 IH, fcc, hcp, DH 及 SC 五种典型结构下 (C_{60}) $_N$ 满壳层团簇稳定结构的平均能量

	N	13	55	147	309	561	923	1415
IH	均能/eV	-0.885	-1.159	-1.309	-1.404	-1.467	-1.510	-1.543
fcc	N	13	55	147	309	561	923	1415
	均能/eV	-0.855	-1.237	-1.425	-1.536	-1.608	-1.658	-1.695
hcp	N	13	57	153	323	587	967	1483
	均能/eV	-0.847	-1.245	-1.487	-1.535	-1.603	-1.651	-1.686
DH	N	13	75	212	434	766	1228	1840
	均能/eV	-0.813	-1.229	-1.381	-1.468	-1.523	-1.559	-1.587
SC ₁	N	27	64	125	343	512	1000	1331
	均能/eV	-0.624	-0.714	-0.770	-0.835	-0.856	-0.885	-0.895
SC ₂	均能/eV	-1.013	-1.206	-1.270	-1.477	-1.465	-1.438	-1.522

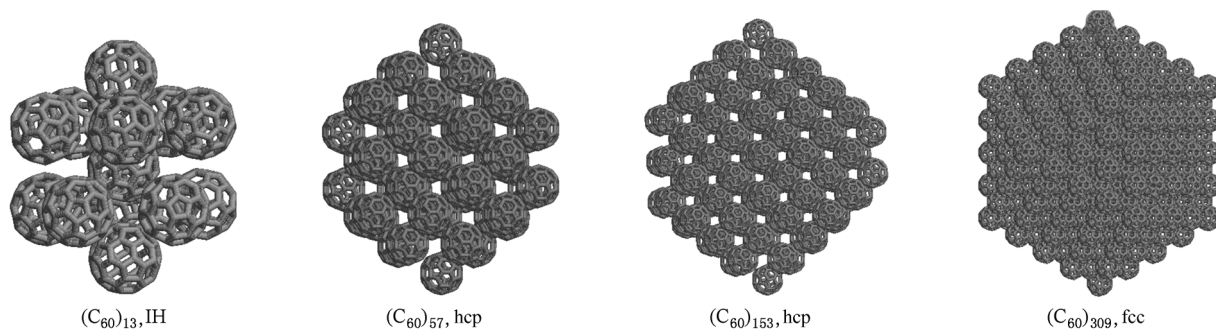


图 2 (C_{60}) $_N$ 分子团簇随尺寸 N 演化过程中最低能量结构示例 ($N=13, 57, 153, 309$)

为具体分析 (C_{60}) $_N$ 分子团簇中旋转效应的影响, 使 (相同尺寸下) 不同初始结构中各 C_{60} 分子取向一致, 可考查考虑或不考虑旋转效应下团簇的能量差. 在 $N=13$ 时, 对于具有 IH 对称性的 (C_{60}) $_{13}$ 团簇, 不考虑之后的转动以及考虑之后的转动能量 (总结合能) 可相差 0.8 eV 左右, 平均到每个 C_{60} 分子的能量约 0.06 eV. 而对于其它的四种结构 (fcc, hcp, DH, SC), 该能量差平均到每个 C_{60} 分子上约为 0.02 eV, 这说明不同初始结构对应的势能面有很大

差异, $N=13$ 时, IH 结构相比其他几种结构的势能面更加特殊. 当然, 如果初始结构的取向给的很特殊, 旋转效应对能量的影响会相对较小, 因此这里能量差大小也只是相对而言. 此外, (C_{60}) $_N$ 团簇尺寸 N 的大小也关系到力矩作用 (旋转效应) 的显著程度与否, 这表明对于相同对称性体系, 尺寸不同时, 体系的势能面也会有很大差异. 如对于 IH 对称性的 (C_{60}) $_{55}$ 团簇的结构弛豫, 考虑转动后的能量比不考虑低 0.62 eV, 平均到每个 C_{60} 分子的能量约

0.01 eV, (旋转效应) 影响相对 $\text{IH}(\text{C}_{60})_{13}$ 团簇要小很多. 同样, 对于相近尺寸的 fcc 结构 $(\text{C}_{60})_{55}$ 团簇和 hcp 结构 $(\text{C}_{60})_{57}$ 团簇, 能量 (总结合能) 差别仅在 0.08 eV, 比相近尺寸的 IH 结构还是小很多, 同样的, 相比小尺寸 ($N = 13$) 相同结构 (fcc, hcp) 时, 均摊到每个 C_{60} 分子的能量差别也小很多. 由此可见, 取向性影响的显著程度和结构以及尺寸都有着重要的关系, 在很多情形下, 当体系的结构达到一种稳定平衡时, 通过细微的扰动 (如转动), 便可向更加稳定的平衡状态 (更低能稳定结构) 转变, 因此 C_{60} 分子的位置取向对能量影响不可忽视.

由表 1 中的数据可绘出 IH, fcc, hcp, DH 及 SC 五种不同典型结构下 $(\text{C}_{60})_N$ 满壳层团簇分子平均能量随团簇尺寸 N 的变化关系图, 如图 3 所示.

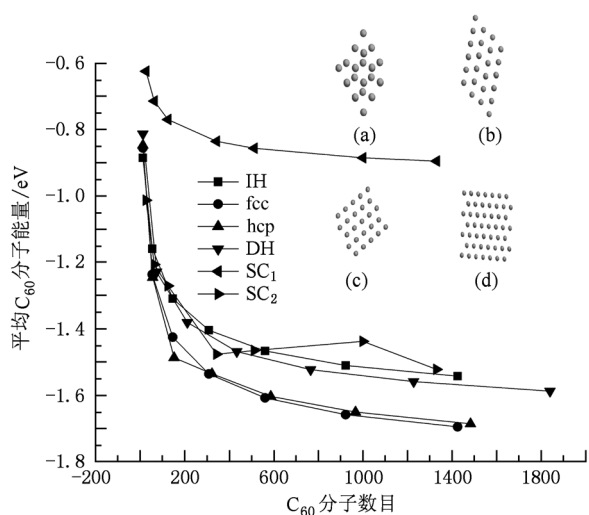


图 3 IH, fcc, hcp, DH 及 SC 五种不同典型结构下 $(\text{C}_{60})_N$ 满壳层团簇分子平均能量随团簇尺寸 N 的变化关系图 (SC_1 是描述固定 SC 结构弛豫后的结果曲线, SC_2 是描述自然 (无限制) 弛豫 SC 结构达到稳定后的结果曲线, 附图 (a), (b), (c) 及 (d) 分别是 $(\text{C}_{60})_{27}$, $(\text{C}_{60})_{64}$, $(\text{C}_{60})_{125}$ 与 $(\text{C}_{60})_{343}$ 的初始 SC 结构经自然弛豫重构之后的新结构示意图)

需要说明的是, 对所选取初始五种典型满壳层团簇结构, IH, fcc, hcp 及 DH 四种典型初始结构经 (力及力矩双重作用) 弛豫达到稳定结构后, 均保持原有结构形状 (对称性) 不变, 而对初始结构为 SC 的 $(\text{C}_{60})_N$ 团簇, 经过弛豫之后, 形状发生重构, 向新的更稳定结构过渡, 所得平均能量曲线如图 3 中 SC_2 所示. 图 3 中附图 (a), (b), (c) 及 (d) 分别是 $(\text{C}_{60})_{27}$, $(\text{C}_{60})_{64}$, $(\text{C}_{60})_{125}$ 与 $(\text{C}_{60})_{343}$ 的初始结构为 SC 经弛豫重构之后的新结构示意图. 从附图中可看出, 尽管尺寸上 SC 结构并不满足 hcp 结构满壳层序

列数, 但在所研究尺寸范围内 SC 结构有结构重组趋向 hcp 结构的趋势. 考虑到晶体 C_{60} 基态为 SC 结构, 我们也计算了固定 SC 结构 (即弛豫过程中固定 SC 结构框架不变, 只是 C_{60} 分子间距离整体改变) 下的满壳层 C_{60} 分子团簇能量, 所得结果如图 3 中 SC_1 曲线所示. 可见, 在所研究 C_{60} 分子团簇尺寸范围内, 该结构 (能量) 远不具有竞争性.

现具体分析 $(\text{C}_{60})_N$ 分子团簇的结构演化. 由图 3 可见: 当团簇尺寸 $N = 13$ 时, IH 曲线在该点处于最低状态, 说明 $(\text{C}_{60})_{13}$ 团簇的最稳定结构为 IH, 在团簇尺寸 $N = 55$ 时, $(\text{C}_{60})_{55}$ 团簇的 fcc 结构稳定性高于 IH 结构, 而 $(\text{C}_{60})_{57}$ 团簇的 hcp 结构的平均 C_{60} 分子能量比 $(\text{C}_{60})_{55}$ 团簇的 IH 结构及 fcc 结构都低, $(\text{C}_{60})_{75}$ 团簇的 DH 结构和 $(\text{C}_{60})_{64}$ 团簇的 SC 结构的平均能量也比 $(\text{C}_{60})_{57}$ 团簇的 hcp 结构高, 说明在该尺寸附近, hcp 结构占优势. 随 $(\text{C}_{60})_N$ 团簇的尺寸进一步增大, 在 $N = 309$ 时, $(\text{C}_{60})_{309}$ 团簇的 fcc 结构明显比相近尺寸 IH, DH 及 SC 结构稳定, 与 hcp 结构 ($(\text{C}_{60})_{323}$) 能量非常接近但已经低于 hcp 结构, fcc 结构开始占据主要结构优势. 当尺寸继续增大时, fcc 结构一直处于优势结构, hcp 结构的稳定性最接近于 fcc, 处于其次的地位. 但值得注意的是, SC_1 曲线的结果显示: SC 结构的平均能量曲线高处于上面位置, 表明 SC 结构在所研究尺寸演化过程中明显未占据优势地位. 此外, 从 C_{60} 分子团簇平均分子势能随团簇尺寸增大而下降的一般趋势可以看出, 随着 $(\text{C}_{60})_N$ 团簇的尺寸 N 的增大, IH, fcc, hcp 及 DH 四种典型结构的分子平均势能依次降低, 而 SC 结构的自然弛豫却出现了反常现象, 这主要是由于在弛豫过程中, SC 结构发生畸变 (结构重组) 造成的, 而曲线 SC_1 尽管并非联系稳定结构, 但曲线反映的变化趋势还是和 IH, fcc, hcp 及 DH 相符合的. 分析上述结果也可看出: 尽管 C_{60} 晶体低温时时处于 SC 结构相, 而在所研究尺寸范围内, SC 结构 $(\text{C}_{60})_N$ 团簇并不稳定, 说明在尺寸 N 小于 2000 时, $(\text{C}_{60})_N$ 分子团簇还远未能实现向 C_{60} 晶体结构过渡.

4. 结 论

本文采用 Lennard-Jones 原子间相互作用势来描述 C_{60} 分子团簇中 C_{60} 分子间相互作用, 考虑了 C_{60} 分子的取向性这一重要因素, 利用最速下降法计算了尺寸介于 2000 以内的 $(\text{C}_{60})_N$ 团簇在 IH, fcc, hcp,

DH 及 SC 五种典型结构下满壳层 C_{60} 分子团簇的能量. 所得结果表明, 在尺寸很小 ($N < 20$) 时, $(C_{60})_{13}$ 团簇的结果与 PR 势计算结果一致, IH 结构表现出高稳定性. 对于中等尺寸 ($50 < N < 300$) 团簇, hcp 结构表现出高稳定性, fcc 与 DH 稳定性次之. 当尺寸较大 ($N > 300$) 时, fcc 结构占优势, 其次是 hcp, 相比较 IH 与 DH 结构的稳定性最低, 而 SC 结构不稳定, 结构发生畸变; 此外, 随着 $(C_{60})_N$ 团簇尺寸的增

大, IH, fcc, hcp 及 DH 四种典型结构的平均分子能量呈下降趋势, 但是由于 SC 结构的畸变, 曲线的变化在局部地方出现了反常, 不遵循该趋势; 表明对于尺寸 N 小于 2000 的 $(C_{60})_N$ 团簇, SC 结构处于不稳定状态, 也说明在该尺寸范围内, $(C_{60})_N$ 分子团簇仍远未过渡到 C_{60} 晶体结构.

感谢陈楚、曹彪炳及张蓓老师的建议和讨论.

-
- [1] Kroto H W, Heath J R, O'Brien S C, Curl R F, Smalley R E 1985 *Nature* **318** 162
 - [2] Kratschmer W, Lamb L D, Fostiropoulos K, Huffman D R 1990 *Nature* **347** 354
 - [3] Shi X, Cheng L D, Bai S Q, Tang X F 2004 *Acta. Phys. Sin.* **53** 1469 (in Chinese) [史迅、陈立东、柏胜强、唐新峰 2004 物理学报 **53** 1469]
 - [4] Chen X H, Peng J C, Li W Z 2000 *Acta. Phys. Sin.* **49** 513 (in Chinese) [陈小华、彭景翠、李文铸 2000 物理学报 **49** 0513]
 - [5] He S L, Li H N, Wang X X, Li H Y, Kurash I, Qian H J, Su R, Abbas M I, Zhong J, Hong C H 2005 *Acta. Phys. Sin.* **54** 1400 (in Chinese) [何少龙、李宏年、王晓雄、李海洋、I. Kurash、钱海杰、苏润、M. I. Abbas、钟俊、洪才浩 2005 物理学报 **54** 1400]
 - [6] Wang F, Zeng X H, Xu X L 2002 *Acta. Phys. Sin.* **51** 1778 (in Chinese) [王峰、曾祥华、徐秀莲 2002 物理学报 **51** 1778]
 - [7] Jiang Y L, Fu S Y, Deng K M, Tang C M, Tan W S, Huang D C, Liu Y Z, Wu H P 2008 *Acta. Phys. Sin.* **57** 3690 (in Chinese) [蒋岩玲、付石友、邓开明、唐春梅、谭伟石、黄德财、刘玉真、吴海平 2008 物理学报 **57** 3690]
 - [8] Tang C M, Xia H Y, Deng K M, Chen X, Hu F L, Huang D C 2009 *Acta. Phys. Sin.* **58** 2675 (in Chinese) [唐春梅、夏海燕、邓开明、陈宣、胡凤兰、黄德财 2009 物理学报 **58** 2675]
 - [9] Sau J D, Neaton J B, Hyoung Joon Choi, Louie S G, Cohen M L 2008 *Phys. Rev. Lett.* **101** 026804
 - [10] Diaz Tendero S, Alcamí M, Martín F 2005 *Phys. Rev. Lett.* **95** 013401
 - [11] Mehring M, Scherer W, Weidinger A 2004 *Phys. Rev. Lett.* **93** 206603
 - [12] Martin T P, Naher U, Schaber H, Zimmermann U 1993 *Phys. Rev. Lett.* **70** 3079
 - [13] Yannoni C S, Johnson R D, Meijer G, Bethune D S, Salem J R 1991 *J. Phys. Chem.* **95** 9
 - [14] Heiney P A, Fischer J E, McGhie A R, Romanow W J, Denenstein A M, McCauley J P, Jr, Smith A B, Cox D E 1991 *Phys. Rev. Lett.* **66** 2911
 - [15] Luo Y H, Zhao J J, Qiu S T, Wang G H 1991 *Phys. Rev. B* **59** 14903
 - [16] Pacheco J M, Prates Ramalho J P 1997 *Phys. Rev. Lett.* **79** 3873
 - [17] Rey C, Gallego L J, Alonso J A 1994 *Phys. Rev. B* **49** 8491
 - [18] Girifalco L A 1992 *J. Phys. Chem.* **96** 858
 - [19] Garcia-Rodeja J, Rey C, Gallego L J 1997 *Phys. Rev. B* **56** 6466
 - [20] Doye J P K, Wales D J, Branz W, Calvo F 2001 *Phys. Rev. B* **64** 235409
 - [21] Zhang W H, Liu L, Zhuang J, Li Y F 2000 *Phys. Rev. B* **62** 8276
 - [22] Cai W S, Feng Y, Shao X G, Pan Z X 2002 *Chem. Phys. Lett.* **359** 27
 - [23] Doye J P K, Calvo F 2001 *Phys. Rev. Lett.* **86** 3570
 - [24] Baletto F, Ferrando R 2005 *Rev. Mod. Phys.* **77** 371
 - [25] Bao K, Goedecker S, Koga K, Lançon F, Neelov A 2009 *Phys. Rev. B* **79** 041405
 - [26] Baletto F, Ferrando R, Fortunelli A, Montalenti F, Mottet C 2002 *J. Chem. Phys.* **116** 3856
 - [27] Jones J E 1924 *Proc. R. Soc. Lond. A* **106** 463
 - [28] David W I F, Ibberson R M, Matthewman J C, Prassides K, Dennis T J S, Hare J P, Kroto H W, Taylor R, Walton D R M 1991 *Nature* **353** 147
 - [29] Lu J P, Li X P, Martin R M 1992 *Phys. Rev. Lett.* **68** 1551

Study of structure evolution of $(C_{60})_N$ clusters using Lennard-Jones atom-atom potential^{*}

Wu Yang Duan Hai-Ming[†]

(College of Physical Science and Technology, Xinjiang University, Urumqi 830046, China)

(Received 15 July 2010; revised manuscript received 1 November 2010)

Abstract

In this paper, we use the Lennard-Jones atom-atom potential to describe the interaction between C_{60} molecules in $(C_{60})_N$ clusters. Considering the orientation of each C_{60} molecule, we have calculated the energies of the closed-shell $(C_{60})_N$ ($N < 2000$) clusters under five typical structures, *i. e.*, IH, fcc, hcp, DH and SC. Our results show that the IH structure is the most stable one in a small size ($N < 20$), and the HCP structure is the lowest-energy one in a medium size ($50 < N < 300$), and the fcc structure is the most favorable one in a larger size ($300 < N < 2000$). With cluster sizes increasing, the average molecular energies of $(C_{60})_N$ clusters decrease monotonically for the four typical structures of IH, fcc, hcp and DH, but the average molecular energy changes irregularly for the SC structure which undergoes structural reconstruction, implying that the SC $(C_{60})_N$ clusters are unstable in the size range investigated, and the lowest-energy structures of those $(C_{60})_N$ clusters are still far from their crystal forms.

Keywords: C_{60} cluster, orientation, the steepest-descent method, the structure evolution

PACS: 61.46.Bc, 61.48.-c

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 10864005), the Scientific Research Starting Foundation for Returned Overseas Chinese Scholars, Ministry of Education of China.

[†] Corresponding author. E-mail: dhm@xju.edu.cn