

Влияние BSSE на геометрию графеновых наноструктур

Каплун М.В.¹, Аникина Е.В.¹, Бескачко В.П.¹

kaplunmv@susu.ru

¹ ЮУрГУ, Челябинск, Россия

В настоящее время активно используется метод численного моделирования в области материаловедения и, как известно, при использовании метода теории функционала электронной плотности, который реализован на базе атомоподобных орбиталей, необходимо учитывать ошибку суперпозиции базисного набора.

Для учета данной ошибки по энергии можно использовать методику, именуемую как поправка Бойса-Бернарди к ошибке суперпозиции базисного набора (Boys-Bernardi correction to the basis set superposition error, BSSE) [1]. Но данная поправка учитывает ошибку лишь по энергиям, но не по силам, которые могут искусственно изменять геометрию наноструктур.

В данной работе использовался программный пакет SIESTA, в котором базис реализован в качестве атомноподобных орбиталей [2], в расчетах использовались приближения локальной электронной плотности (LDA) и обобщенных градиентов (GGA) для обменно-корреляционного функционала, а также GGA с поправками Гримме и приближение vdW. Исследование проводилось для двух видов графеновых наноструктур: двухслойный графен (bilayer graphene, BLG) и графеновые наноленты (graphene nanoribbons, GNR) с адсорбированным водородом. В исследовании проводился анализ влияния ошибки суперпозиции базисного набора на геометрию структур. Исследуемые наноструктуры разбивались на подсистемы, далее геометрия системы фиксировалась, а расстояние между подсистемами изменялось вручную. На каждом этапе изменения расстояния отслеживалась энергия связи между подсистемами, по её минимуму определялось оптимальное расстояние между подсистемами. Для двухслойного графена это расстояние является межслойным расстоянием, а для графеновых нанолент – расстояние между водородом и GNR.

Как показало исследование, учет BSSE действительно не даёт понимание об истинной геометрии систем, что приводит к искусственному «слипанию» подсистем. По численным расчетам порядок ошибки в расстоянии между подсистемами варьируется от порядка 4% до 12% в зависимости от используемого приближения для обменно-корреляционного функционала.

Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда № 25-22-20023, <https://rscf.ru/project/25-22-20023/>.

Ссылки

1. Boys S.F., Bernardi F., Molecular Physics (1970), 19, p. 553.
2. Soler J.M., Artacho E., Gale J.D., García A., Junquera J., Ordejón P., Sánchez-Portal D., Journal of Physics: Condensed Matter (2002), 14, p. 2745.