



Doctoral Thesis

Static and dynamic properties of novel materials ab initio molecular dynamics studies

Author(s):

Kohanoff, Jorge

Publication Date:

1993

Permanent Link:

<https://doi.org/10.3929/ethz-a-000888776> →

Rights / License:

[In Copyright - Non-Commercial Use Permitted](#) →

This page was generated automatically upon download from the [ETH Zurich Research Collection](#). For more information please consult the [Terms of use](#).

**STATIC AND DYNAMIC PROPERTIES OF NOVEL
MATERIALS: AB INITIO MOLECULAR DYNAMICS
STUDIES**

A dissertation submitted to the
SWISS FEDERAL INSTITUTE OF TECHNOLOGY ZÜRICH
for the degree of
DOCTOR OF NATURAL SCIENCES

presented by

JORGE JOSÉ KOHANOFF

Licenciado en Física, Universidad de Buenos Aires (Argentina)

Magister Philosophiæ, SISSA - Trieste (Italia)

born June 21st 1962

citizen of Argentina

accepted on the recommendation of
Prof. Dr. Thomas Maurice Rice, examiner
Prof. Dr. Reinhard Nesper, co-examiner
Prof. Dr. Michele Parrinello, co-examiner

1993



CatE

Abstract

This work consists of the detailed study, by quantum (or *ab initio*) molecular dynamics simulations, of two problems in molecular and condensed matter physics concerning recently discovered materials.

First, carbon and lithium-carbon compounds of the fullerene and fulleride type are addressed, and compared with the closely related and thoroughly studied graphite intercalation compounds (GIC). The structural, electronic and dynamical properties of the C_{60} molecule and of a proposed $Li_{12}C_{60}$ molecule are computed and analyzed in detail. The picture obtained is then compared to calculations performed on graphite and the GIC LiC_6 . Experimentally measured quantities are computed within the quantum harmonic approximation, and the role of ionic quantum effects is analyzed. A novel technique is developed to extract the information on the vibrational properties from short non-thermally equilibrated simulations.

The second system studied here is the very recently discovered porous silicon. This is achieved by modelling it with thin silicon quantum wires. Optical properties are computed, showing that the highly efficient visible-light luminescence that is observed experimentally can be explained in terms of idealized silicon wires. An insight into the subject of direct vs. indirect bandgap in low-dimensionality semiconducting structures is provided. Structural, electronic and vibrational properties of silicon wires are also computed at finite temperature.

Kurzfassung

Die vorliegende Arbeit umfasst die detaillierte Untersuchung zweier Problemkreise aus der Molekularphysik und der Physik der kondensierten Materie, welche sich auf erst kürzlich entdeckte Stoffe beziehen, und mit der Methode der *ab-initio* molekular-dynamischen Simulationen durchgeführt wurden.

Zuerst werden Kohlenstoff- und Lithium-Kohlenstoffaggregate des Fullere-ne und Fulleride Typs untersucht und mit den ihnen nahe verwandten und genau erforschten Graphitinterkalationsverbindungen (GIC) verglichen. Die strukturellen, elektronischen und dynamischen Eigenschaften des C_{60} -Moleküls sowie eines theoretischen $Li_{12}C_{60}$ -Aggregats werden berechnet und im Detail analysiert. Das so gewonnene Bild wird mit Berechnungen für Graphit und LiC_6 verglichen. Experimentell gemessene Werte werden mit der harmonischen Annäherung berechnet und die Rolle der Quanteneffekte wird analysiert. Für diese Arbeit ist ein neuartiges Verfahren entwickelt worden, um Informationen über die Schwingungseigenschaften aus kurzen Simulationen zu gewinnen, welche nicht im thermischen Gleichgewicht ablaufen müssen.

Als zweites wird das erst kürzliche entdeckte poröse Silizium untersucht, und zwar mittels der Modellvorstellung von dünnen Quantendrähten aus Silizium. Die optischen Eigenschaften werden errechnet und zeigen, dass durch sie auch die experimentell gefundene, hoch-effiziente Luminosität im sichtbaren Bereich erklärt werden kann. Ausserdem wird die Fragestellung diskutiert, ob bei Halbleitern niedriger Dimensionalität eine direkte oder eine indirekte Bandlücke vorliegt. Die strukturellen, elektronischen Eigenschaften

sowie die Schwingungseigenschaften von Siliziumdrähten werden für endliche Temperaturen berechnet.