

具有分离门的电抽运多层石墨烯负动态电导率的理论研究*

张玉萍[†] 张洪艳 尹贻恒 刘陵玉 张晓 高莹 张会云

(山东科技大学理学院, 青岛市太赫兹技术重点实验室, 青岛 266510)

(2011年7月12日收到; 2011年10月19日收到修改稿)

本文提出了具有分离门的电抽运多层石墨烯结构, 建立了电诱导 n-i-p 结的理论模型, 计算了集居数反转的条件下与带内和带间跃迁相关的动态电导率, 讨论了偏置电压、门电压、石墨烯层数以及动量弛豫时间对动态电导率的影响. 结果表明, 在一定条件下, 动态电导率的实部在太赫兹范围内可以是负的, 即带间辐射大于带内吸收, 论证了电抽运多层石墨烯结构作为产生太赫兹相干光源的激活物质的可行性.

关键词: 多层石墨烯, n-i-p 结, 负电导率, 太赫兹辐射

PACS: 78.45.+h, 72.80.-r

1 引言

石墨烯 (graphene) 是碳原子紧密堆积成单层二维蜂窝状晶格结构的一种碳质新材料, 在 2004 年由英国曼彻斯特大学的两位科学家安德烈·杰姆和克斯蒂亚·诺沃塞洛夫在实验室中获得. 石墨烯具有很多特有的性质和潜在应用, 主要包括新型的量子霍尔效应^[1], 零载流子浓度极限下的最小量子导电率^[2], 量子干涉效应的强烈抑制^[3], 超高载流子迁移率^[4], 无质量的电子和空穴, 线性色散关系^[5], $\varepsilon = v_{FP}p$, 以及零带隙能谱等. 近年来, 我国的科学研究工作者在石墨烯的控制制备、结构表征与物理特性的研究方面取得了一系列新的进展, 例如, 实验研究了不同极性 6H-SiC 表面石墨烯的制备及其电子结构^[6]; 理论分析了非近邻跳跃对扶手椅型石墨烯纳米带电子结构的影响^[7]; 计算了单层正三角锯齿型石墨烯量子点的电子结构和磁性^[8]; 用分子动力学模拟了石墨烯的弛豫性能^[9]等.

电子和空穴的零带隙和能量的线性色散关系使石墨烯可以在光抽运或电抽运作用下^[5,10]作为太赫兹相干辐射源的激活或放大介质. Ryzhii 等人在利用石墨烯产生太赫兹波这一方面做了大量

的工作, 包括研究具有分离门的单层石墨烯中电诱导 p-n 结电子和空穴的注入及集居数反转^[10], 分析光抽运多层石墨烯结构产生太赫兹相干光的可行性^[11], 讨论多层石墨烯结构中电诱导 n-i-p 结特性^[12]等. 结果表明, 在具有分离门的电抽运单层石墨烯结构和光抽运多层石墨烯结构中, 动态电导率可以是负的, 即能够实现太赫兹相干光源的辐射.

与单层石墨烯相似, 多层石墨烯结构中每层石墨烯的电子和空穴的能量满足线性色散关系, 这已被大量的实验验证^[13-16], 利用多层石墨烯代替单层石墨烯, 可以显著改善光电子器件的性能^[17-19]. 作为刚被提出不久的一种新型结构, 电抽运石墨烯结构的负动态电导率是科学工作者的重要研究对象之一, 它对于 THz 激光器的新发展有着重要的意义. 相较于光抽运石墨烯结构, 目前对电抽运石墨烯结构的动态电导率的研究很少, 而且仅限于单层石墨烯^[10], 研究讨论了与动态电导率相关的费米能级以及电诱导 n-i-p 结特性, 但没有对动态电导率展开详细讨论. 对电抽运多层石墨烯结构的负电导率的研究尚未有文献报道.

基于以上研究背景, 本文建立了具有分离门的电抽运多层石墨烯结构模型. 在该模型中, 电诱

* 国家自然科学基金 (批准号:61001018), 山东省自然科学基金 (批准号:ZR2011FM009), 山东科技大学杰出青年科学基金 (批准号:2010KYJQ103), 山东省高等学校科技计划项目 (批准号:J11LG20), 青岛市科技计划 (批准号: 11-2-4-4-(8)-jch,10-3-4-2-1-jcj) 和山东科技大学科技创新基金 (批准号: YCB110084) 资助的课题.

[†] E-mail: sdust.thz@yahoo.cn

导 p-n 结和 n-i-p 结允许门电压控制, 这与化学掺杂的 n 区和 p 区有很大的不同. 不同的门电压会影响 n 区或 p 区的电子或空穴密度, 进而引起各层石墨烯的费米能级的变化. 利用一维泊松方程推导出各层石墨烯的费米能级, 理论计算了多层石墨烯的动态电导率, 讨论了石墨烯层数, 门电压, 偏置电压以及动量弛豫时间对多层石墨烯动态电导率的影响. 结果表明, 带有电诱导 n-i-p 结的多层石墨烯结构的动态电导率在太赫兹范围内可以是负的, 即带间辐射大于带内吸收, 这论证了电抽运多层石墨烯结构可以作为产生太赫兹相干光源的激活物质的可行性.

2 模型及理论基础

我们所考虑的电抽运多层石墨烯结构的每一层都与侧边触点相连, 结构顶部带有两个独立于石墨烯层的分离门, 如图 1 所示. 在分离门和相邻的触点之间施加正向偏置电压, 就可以获得电诱导的 p 区和 n 区. 具有顶部分离门的单层和多层石墨烯结构, 可以产生横向的 n-p 结和 n-i-p 结. 假设第一个触点和相应的门的电势分别是 $\varphi_s = 0$ 和 $\varphi_g = V_g > 0$, 另一个门和触点的电势分别是 $\varphi_g = -V_g < 0$ 和 $\varphi_d = V = 0$ (或者 $\varphi_d = V \neq 0$). 如果两个门之间的距离 $2L$ 足够宽, 明显地超过门层厚度, 即门和顶层石墨烯间的距离 W_g , 则狭缝下的每层石墨烯都有一个固有的 i 区, 这样, 就会形成 n-i-p 结. 将 $\varphi_k = \varphi|_{z=(k-1)d}$ 定义为第 k 层石墨烯的电势, 其中, $k = 1, 2, 3, \dots, K$, K 是结构中石墨烯的层数, d 是石墨烯层之间的间隔, z 轴与石墨烯平面垂直, $z = 0$ 处对应顶层石墨烯, $z = z_K = (K-1)d$ 是最低的一层. 那么, 离触点足够远的第 k 层石墨烯的费米能级写为 $\mu_k = \pm e\varphi_k$. 其中, e 是电荷电量 [12].

首先, 计算了电抽运多层石墨烯结构 n 区的电势分布 (p 区可以用相同的方法). 引进无量纲电势 $\psi = 2\varphi/V_g$, 可以得到电势分布的一维泊松方程 (n 区):

$$\frac{d^2\psi}{dz^2} = \frac{8\pi e}{\alpha V_g} \sum_{k=1}^K (\Sigma_k^- - \Sigma_k^+) \delta(z - kd + d), \quad (1)$$

式中, α 是介电常数, Σ_k^- 和 Σ_k^+ 分别是平衡状态下第 k 层石墨烯的电子和空穴面密度. 后者可以用下式表示

$$\Sigma_k^\mp = \frac{2}{\pi} \left(\frac{k_B T}{\hbar v_F} \right)^2 \int_0^\infty \frac{d\xi\xi}{1 + \exp(\xi \mp \mu_k/k_B T)}$$

$$= \frac{12\Sigma_T}{\pi^2} \int_0^\infty \frac{d\xi\xi}{1 + \exp(\xi \mp \mu_k/k_B T)}, \quad (2)$$

此处, $\Sigma_T = (\pi/6)(k_B T/\hbar v_F)^2$ 是温度为 T 时, 本征石墨烯中电子和空穴的密度, \hbar 和 k_B 是约化的普朗克常量和玻尔兹曼常数. 利用边界条件, 解一维泊松方程, 得到当石墨烯层数 K 大于 2 时的方程组

$$\begin{aligned} \frac{d}{W_g}(2 - \psi_1) - \psi_1 + \psi_2 &= \frac{d}{W_g} \tau \phi(\psi_1), \\ \psi_{k-1} - 2\psi_k + \psi_{k+1} &= \frac{d}{W_g} \tau \phi(\psi_k), \\ (2 \leq k \leq K-1), \\ \psi_{K-1} - \psi_K &= \frac{d}{W_g} \tau \phi(\psi_K), \end{aligned} \quad (3)$$

其中

$$\begin{aligned} \phi(\psi) &= \frac{12}{\pi^2} \left[\int_0^\infty \frac{d\xi\xi}{1 + \exp(\xi - U_g\psi)} \right. \\ &\quad \left. - \int_0^\infty \frac{d\xi\xi}{1 + \exp(\xi + U_g\psi)} \right], \end{aligned} \quad (4)$$

式中 $\tau = (8\pi/\alpha)(eW_g\Sigma_T/V_g) \propto T^2/V_g$ 且 $U_g = eV_g/2k_B T$.

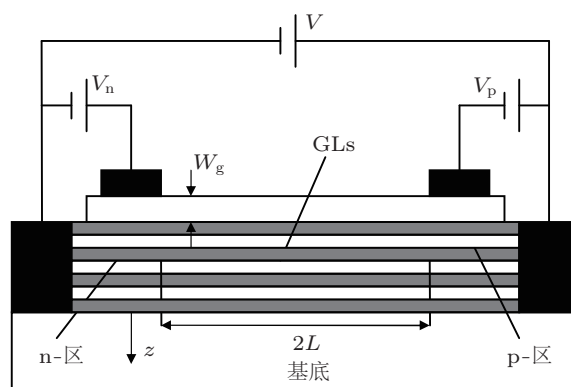


图 1 具有分离门的多层石墨烯结构

第 k 层石墨烯的费米能级可由下式表示:

$$\mu_k = \frac{eV_g}{2} \psi_k. \quad (5)$$

多层石墨烯结构的厚度比太赫兹和远红外光的波长小得多, 所以发射或吸收太赫兹和远红外光由多层石墨烯结构的动态电导率的实部决定 [11]. K 层石墨烯结构的 n 区 (p 区) 动态电导率 σ_ω 的实部与带内和带间跃迁以及能量为 $\hbar\omega$ 的光子辐射有关 [10],

$$\text{Re}\sigma_\omega = \sum_{k=1}^K (\text{Re}\sigma_{\omega k}^{\text{(inter)}} + \text{Re}\sigma_{\omega k}^{\text{(intra)}}), \quad (6)$$

其中

$$\text{Re}\sigma_{\omega k}^{\text{(inter)}} = \frac{e^2}{2\hbar} \exp\left(-\frac{\mu_k}{k_B T}\right) \exp\left(\frac{eV}{2k_B T}\right)$$

$$\times \sinh\left(\frac{\hbar\omega - eV}{2k_B T}\right), \quad (7)$$

$$\begin{aligned} \text{Re}\sigma_{\omega k}^{(\text{intra})} &= \frac{e^2 v_F \tau}{2\pi\hbar} \int_0^\infty \frac{dpp(-df_0/dp)}{1 + \omega^2 \tau^2} \\ &\approx \frac{e^2}{2\pi\hbar} \left(\frac{\mu_k}{\hbar}\right) \frac{\tau}{1 + \omega^2 \tau^2}, \end{aligned} \quad (8)$$

分别对应第 k 层石墨烯的带间和带内跃迁 [20–23].

3 计算结果和分析

由方程 (1)–(8) 可求得动态电导率的值, 计算过程中取 $\alpha = 4$, $d = 0.35 \text{ nm}$, $W_g = 10 \text{ nm}$, 动量弛豫时间 $t = 10 \text{ ps}$.

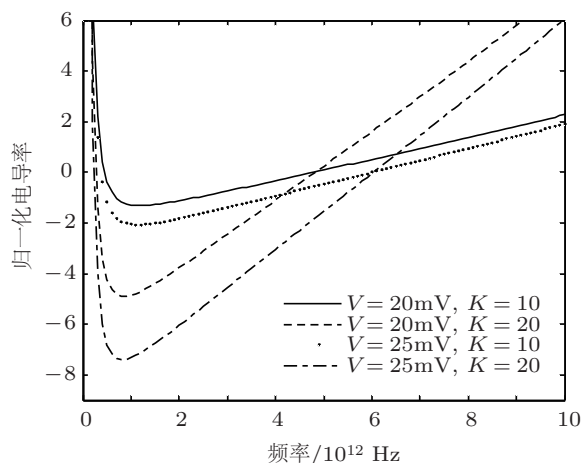


图2 在偏置电压与电抽运多层石墨烯结构总层数不同的情况下, 多层石墨烯动态电导率与频率的关系

图2给出了石墨烯层数 K 和偏置电压 V 别取不同数值时, 多层石墨烯的动态电导率的实部 $\text{Re}\sigma_\omega$ (用 $e^2/2\hbar$ 归一化, 以下简称多层石墨烯动态电导率) 与频率的关系, 其中, 门电压为 1 V , 温度为 300 K . 从图2可以看出, 动态电导率的实部 $\text{Re}\sigma_\omega$ 在 $\omega_{\min} < \omega < \omega_{\max}$ 频率范围为负, 并在此范围内可取得最小值. ω_{\min} 和 ω_{\max} 是 $\text{Re}\sigma_\omega = 0$ 时的频率值, 其中, 由石墨烯层数、门电压、偏置电压和动量弛豫时间等决定. 在 $\omega_{\min} < \omega < \omega_{\max}$ 时, $\text{Re}\sigma_\omega < 0$, 说明电抽运多层石墨烯结构在太赫兹波段的带间辐射大于带内吸收, 能够实现太赫兹相干光的辐射或放大, 且 ω_{\min} 随着石墨烯层数的增加而减小. 与此同时, $\text{Re}\sigma_\omega$ 存在着一个最小值, 它的最小值的绝对值随着偏置电压和石墨烯层数的增加而增大, 而其中偏置电压的存在是粒子数反转的根本原因, 偏置电压越大, 越容易实现粒子数反转, $\text{Re}\sigma_\omega < 0$ 也就越容易获得, 从而 $\text{Re}\sigma_\omega$ 最小值的绝对值就越大.

图3给出了层数为10的石墨烯结构在不同偏置电压下动态电导率 $\text{Re}\sigma_\omega$ 随频率的变化情况, 其中门电压为 1 V , 温度为 300 K . 从图中可以看出, ω_{\min} 随着偏置电压的增加而变小, 动态电导率 $\text{Re}\sigma_\omega$ 最小值的绝对值和 ω_{\max} 随着偏置电压的增加而变大. 电抽运多层石墨烯负动态电导率的频率范围主要由偏置电压来决定, 偏置电压越大, 能够输出的太赫兹相干光的频率范围就越大.

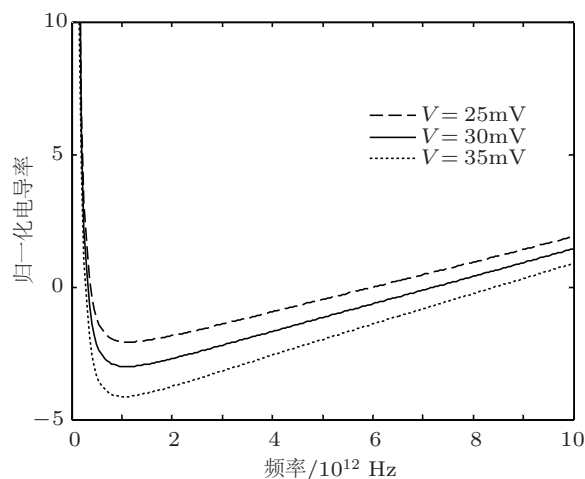


图3 在不同的偏置电压下动态电导率随频率的变化关系

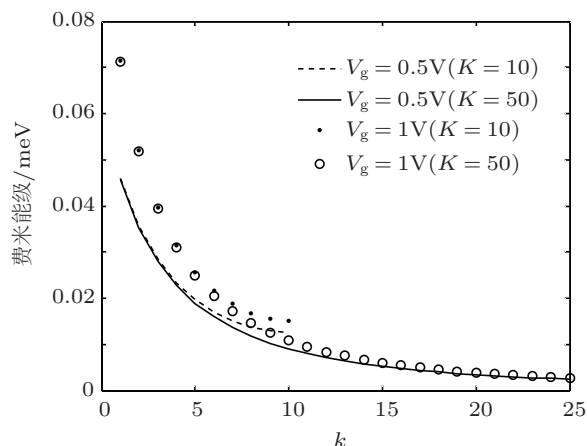


图4 门电压不同时电抽运多层石墨烯各层费米能级的变化

图4给出了门电压不同的条件下, 具有分离门的电抽运石墨烯结构中 k 层石墨烯的费米能级. 其中, 偏置电压为 30 mV , 温度为 300 K . 从图中可以看出, 随着 k 的增加, k 层石墨烯的费米能级越来越小, 这种下降的趋势在 $1 \leq k \leq 10$ 的范围内比较明显. 这是电抽运多层石墨烯结构相对于各层石墨烯费米能级基本保持不变的光抽运多层石墨烯结构的一大特点. 从 (6), (7), (8) 式中可以看出, 费米能级对多层石墨烯结构的动态电导率影响较为显著, 因此, 在电抽运的情况下, 必须考虑不同门电压对

多层石墨烯动态电导率的影响.

图 5 在图 4 的基础上给出了在不同的门电压条件下, 动态电导率随着频率的变化关系, 从图 5 可以看出, 门电压越大, 多层石墨烯动态电导率的最小值的绝对值越小, 相反地, ω_{\min} 却随着门电压的增大而增大. 此外, 无论门电压如何变化, 对于固定的偏置电压 ω_{\max} 始终保持不变. 由此可以推论, 门电压越小, 动态电导率为负的频率范围越大, 能够抽运的太赫兹激光的频率范围越大.

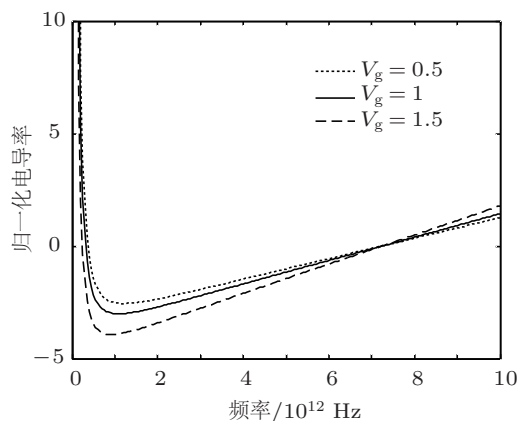


图 5 不同门电压下动态电导率随频率的变化关系

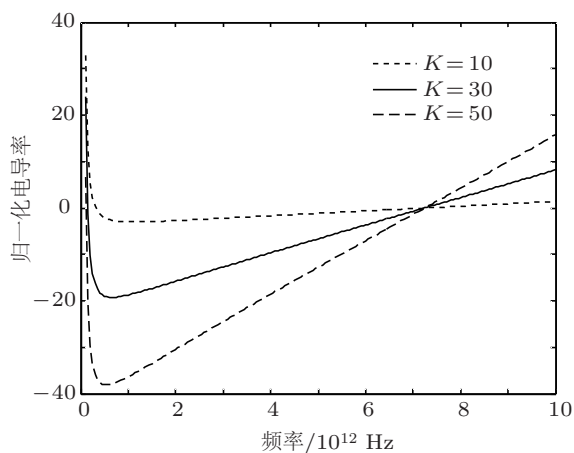


图 6 在不同的石墨烯总层数下动态电导率随频率的变化关系

图 6 给出了门电压为 1 V、温度为 300 K、偏置电压为 30 mV、石墨烯层数不同时, 动态电导率与频率的关系. 显然地, 石墨烯的总层数越大, 使得 $\text{Re}\sigma_{\omega} = 0$ 成立的 ω_{\min} 越小, 但 $\text{Re}\sigma_{\omega}$ 的最小值的绝对值随着石墨烯层数的增加而增大, 且存在固定的 ω_{\max} 使 $\text{Re}\sigma_{\omega} = 0$ 成立. 因此, 石墨烯层数越多, 动态电导率为负的范围就越大, 在将来太赫兹激光器或放大器的应用中, 能够实现的太赫兹激光的频率范围就越大.

图 7 所示为弛豫时间不同的多层石墨烯结构

中动态电导率 $\text{Re}\sigma_{\omega}$ 随频率的变化, 其中, 门电压为 1 V, 温度为 300 K, 偏置电压为 30 mV. 由图 7 可知, 在相同层数的石墨烯结构中, ω_{\min} 随着动量弛豫时间的增加而减小, 即带间辐射大于带内吸收的范围随着动量弛豫时间的增大而增大. 较长的动量弛豫时间使得带内吸收在太赫兹波段比较弱, 因此, 动量弛豫时间较长的电抽运多层石墨烯结构非常适用于太赫兹辐射的产生.

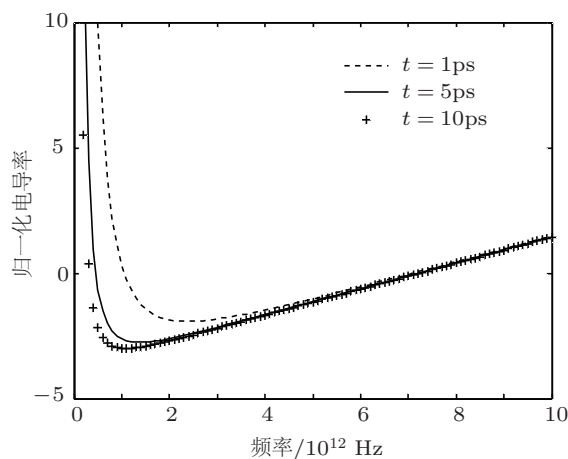


图 7 不同动量弛豫时间下动态电导率随频率的变化关系

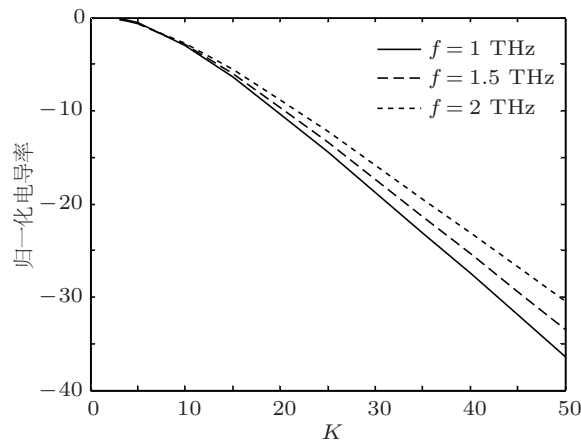


图 8 在不同频率下动态电导率随石墨烯总层数的变化关系

图 8 给出了多层石墨烯动态电导率作为石墨烯层数 K 的函数, 在门电压为 1 V, 温度为 300 K, 弛豫时间为 10 ps, 偏置电压为 30 mV, ω 分别为 1 THz, 1.5 THz, 2 THz 时的变化曲线. 我们可以看出, 在特定频率下, $\text{Re}\sigma_{\omega}$ 随着石墨烯层数的增加而减小. 已有实验证明多层石墨烯的线性色散关系 $\varepsilon = v_{\text{FP}}$ 与单层石墨烯相似, 因此, 在其他条件相同的情况下, $\text{Re}\sigma_{\omega}$ 的值在经过 K 次累加之后, 会比单层石墨烯更适合于太赫兹相干光源的产生; 同理, 在一定范围内, 层数越多的电抽运多层石墨烯结构越容易辐射

出太赫兹相干光.

4 结论

本文提出了具有分离门的多层石墨烯结构,建立了电诱导 n-i-p 结的理论模型,计算了多层石墨烯结构中每层石墨烯的费米能级,给出了电抽运多

层石墨烯动态电导率的理论计算公式,并讨论了偏置电压、门电压、石墨烯层数以及动量弛豫时间对电抽运多层石墨烯动态电导率的影响.结果证明,在太赫兹范围内,多层石墨烯结构的动态电导率可以为负,即带间辐射大于带内吸收,这对基于石墨烯的太赫兹相干辐射源或太赫兹放大器具有潜在应用.

-
- [1] Zhang Y, Tan Y W, Stormer H L, Kim P. 2005 *Nature* (London) **438** 201
- [2] Novoselov K S, Geim A K, Morozov S V, Jiang D, Katsnelson M I, Dubonos S V, Firsov A A 2005 *Nature* (London) **438** 197
- [3] Katsnelson M I, Novoselov K S, Geim A K 2006 *Nat. Phys.* **2** 620
- [4] Geim A K, Novoselov K S 2007 *Nat. Mater.* **6** 183
- [5] Ryzhii V, Ryzhii M, Otsuji T 2007 *J. Appl. Phys.* **101** 083114
- [6] Kang C Y, Tang J, Li L M 2011 *Acta Phys. Sin.* 047302 (in Chinese) [康朝阳, 唐军, 李利民 2011 物理学报 **60** 047302]
- [7] Jin Z F, Tong G P, Jiang Y J 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 8537 (in Chinese) [金子飞, 童国平, 蒋永进 2009 物理学报 **58** 8537]
- [8] Pan H Z, Xu M, Chen L 2010 *Acta Phys. Sin.* **59** 6443 (in Chinese) [潘洪哲, 徐明, 陈丽 2010 物理学报 **59** 6443]
- [9] Han T W, He P F 2010 *Acta Phys. Sin.* **59** 3408 (in Chinese) [韩同伟, 贺鹏飞 2010 物理学报 **59** 3408]
- [10] Ryzhii M, Ryzhii V 2007 *Jpn. J. Appl. Phys.* **46** L151
- [11] Ryzhii V, Ryzhii M, Satou A, Otsuji T, Dubinov A A, Ya Aleshkin V 2007 *J. Appl. Phys.* **106** 0908
- [12] Ryzhii M, Ryzhii V, Otsuji T, Mitin V, Shur M S 2010 *Phys. Rev. B* **82** 075419
- [13] Neugebauer P, Orlita M, Faugeras C, Barra A L, Potemski M 2009 *Phys. Rev. Lett.* **103** 136403
- [14] Orlita M, Potemski M 2010 *Semicond. Sci. Technol.* **25** 063001
- [15] Miller D L, Kubista K D, Rutter G M, Ruan M, deHeer W A, First P N, Strosio J A 2009 *Science* **324** 924
- [16] Sprinkle M, Siegel D, Hu Y, Hicks J, Tejada A, TalebIbrahimi A, Le Fèvre P, Bertran F, Vizzini S, Enriquez H, Chiang S, Soukiasian P, Berger C, de Heer W A, Lanzara A, Conrad E H 2009 *Phys. Rev. Lett.* **103** 226803
- [17] Ryzhii V, Ryzhii M, Satou A, Otsuji T, Dubinov A A, Ya Aleshkin V 2009 *J. Appl. Phys.* **106** 084507
- [18] Ryzhii V, Dubinov A A, Otsuji T, Mitin V, Shur M S 2010 *J. Appl. Phys.* **107** 054505
- [19] Ryzhii V, Ryzhii M, Mitin V, Otsuji T 2010 *J. Appl. Phys.* **107** 054512
- [20] Zheng Y, Ando T 2002 *Phys. Rev. B* **65** 245420
- [21] Gusynin V P, Sharapov S G 2006 *Phys. Rev. B* **73** 245411
- [22] Falkovsky L A 2006 *Phys. Rev. B* **75** 033409
- [23] Falkovsky L A, Varlamov A A 2007 *EPJ B* **56** 4

Theory research of negative dynamic conductivity in electrically pumped multiple graphene layer structures with split gates*

Zhang Yu-Ping[†] Zhang Hong-Yan Yin Yi-Heng Liu Ling-Yu Zhang Xiao
Gao Ying Zhang Hui-Yun

(Qingdao Key Laboratory of Terahertz Technology, College of Science, Shandong University of Science and Technology, Qingdao 266510, China)

(Received 12 July 2011; revised manuscript received 19 October 2011)

Abstract

The negative dynamic conductivity of graphene in THz range makes it to be a promise medium in THz radiation and amplification. This paper proposes electrically pumped multiple graphene layer structures with split gates, sets up the theory model of electrically induced n-i-p junction, calculates the ac conductivity associated with the interband and intraband transitions under the conditions of population inversion, discusses the bias voltage, gate voltage, number of graphene layers and the momentum relaxation time dependences of ac conductivity. It is shown that the real part of dynamic conductivity within terahertz range can be negative in certain conditions, namely, interband radiation is greater than the intraband absorption, which demonstrates the feasibility of taking electrically pumped multiple graphene layer structures with split gates as an active medium in radiating terahertz coherent source.

Keywords: multiple graphene layer, n-i-p junction, negative conductivity, terahertz radiation

PACS: 78.45+h 72.80.-r

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 61001018), the Natural Science Foundation of Shandong Province, China (Grant No. ZR2011FM009), the Research Fund of Shandong University of Science and Technology (SDUST), China (Grant No. 2010KYJQ103), the project of Shandong Province Higher Educational Science and Technology Program (Grant No. J11LG20), the Qingdao Science and Technology Program (Grant No. 11-2-4-4-(8)-jch, 10-3-4-2-1-jcj), and the Shandong University of Science and Technology Foundation, China (Grant No. YCB110084).

[†] E-mail: sdust_thz@yahoo.cn