

掺杂石墨烯系统电场调控的非线性太赫兹光学特性研究*

董海明[†]

(中国矿业大学理学院物理系, 徐州 221116)

(2013年8月16日收到; 2013年9月9日收到修改稿)

石墨烯是单原子厚的二维狄拉克相对论费米子系统, 其优秀的光电学性质得到了广泛的关注和研究. 本文利用量子理论研究掺杂石墨烯系统外电场和光场共同作用下的非平衡载流子的非线性太赫兹光学性质. 研究发现, 掺杂石墨烯带内光吸收表现出强的非线性太赫兹光学特性. 随着外加偏压电场的增大, 石墨烯非线性光学响应增强; 随着外界太赫兹光频率的减小, 非线性特性增强. 研究表明通过改变电场强度, 可以有效调节石墨烯系统太赫兹非线性光学特性. 研究结果为探索和发展以石墨烯为基础的新型纳米太赫兹光电器件的研究和实际应用提供了理论依据.

关键词: 石墨烯, 太赫兹, 非线性, 光电流

PACS: 78.67.Wj, 78.20.Ci, 81.05.Ue

DOI: 10.7498/aps.62.237804

1 引言

石墨烯独特的电子结构和光电学性质, 使得其在光电材料和器件领域拥有巨大的研究和应用价值^[1,2]. 自2004年以来, 全世界掀起了研究石墨烯的热潮. 一方面, 石墨烯系统电子低能量区是线性色散的相对论狄拉克费米子, 这就为研究相对论的狄拉克粒子提供的很好的平台^[3]. 另一方面, 石墨烯超高的载流子迁移率使得有可能替代硅制作新一代的半导体器件^[4]. 石墨烯可以被刻成尺寸不到一个分子大小的单电子晶体管. 石墨烯的电子迁移率非常高, 并且电荷迁移时消耗的能量很小^[5]. 此外, 石墨烯高度稳定, 即使被切成一纳米宽的元件, 导电性也很好. 石墨烯的导电电子不仅能在晶格中无障碍地移动, 而且速度极快. 石墨烯中电子的运动速度达到了光速的1/300, 远远超过了电子在一般导体中的速度. 这使得石墨烯中的电子的性质和相对论的中微子非常相似. 但是, 目前石墨烯制作电子器件还存在诸多困难: 制作尺寸层数可控, 高

质量的石墨烯比较困难; 石墨烯是无带隙的半金属系统, 打开带隙比较困难; 另外石墨烯的集成也很困难^[6].

随着研究的深入, 人们发现石墨烯同样具有非常优秀的光学性质, 利用这些独特的光电学性质, 可以制作石墨烯高速高频纳米光学器件^[7]. 最近的实验研究表明, 利用石墨烯高导电性能和高的光透射率, 可以将石墨烯制作成为透明电极, 代替贵金属电极氧化锡铟(ITO)、金等改善液晶显示器, 太阳能电池, 光电探测器等光电器件的性能以及降低他们的制作成本^[8]. 此外, 我们注意到, 石墨烯在太赫兹区表现出强的非线性光学性质, 并且这种非线性特性并没有表现出随光波长变化的共振行为^[9]. 福州大学的陆晶晶等研究表明不同于碳纳米管简单的非线性散射, 在氧化石墨烯中可能存在多种非线性光学效应另外^[10]. 姚建铨研究组通过太赫兹光谱实验研究发现石墨烯载流子的动量弛豫随太赫兹光谱强度表现出明显的阈值行为^[11]. 石墨烯系统的拉比震荡可以在飞秒范围内很容易的观测到, 并且石墨烯还有着超快饱和光吸收的性质^[12]. Wright

* 中央高校基本科研业务费专项资金(批准号: 2013QNA29)和国家自然科学基金(理论物理专款-合作研修)(批准号: 11247002)资助的课题.

[†] 通讯作者. E-mail: hmdong@cumt.edu.cn

和 Ishikawa 等人分别用不同的方法证明石墨烯系统存在非常强的太赫兹光学特性^[13,14]. 这些超快光学性质都非常不同于以往的传统半导体材料的性质, 同时也表明石墨烯是非常好的非线性光学材料, 在非线性光学领域具有非常大的用途.

在电场、光场、磁场共同作用下, 由于外场与材料的相互作用的复杂性, 电子系统将呈现许多奇妙的物理性质. 现在的研究, 无论是实验还是理论, 大多是单一的外场时材料性质的研究. 未来, 人们希望可以同时使用多个外场调控材料的性质, 使得器件能够实现更多的功能和更高的效率. 从 2006 年开始, 我们系统研究了石墨烯系统低温以及高温下的电输运性质以及热载流子效应^[15,16]. 同时我们也系统研究了石墨烯系统的光学性质, 得到了许多有价值的研究成果^[17,18]. 在过去的研究中, 我们分别发展了系统的理论模型研究石墨烯的电学性质和光学性质, 能够系统解释相关的实验结果, 并且发现了许多有意义和价值的研究成果. 正如和其他大多数研究者一样, 我们研究石墨烯的电学和光学性质都是分开处理的, 石墨烯仅仅处于一种外在的场的作用下. 我们很自然的会思考, 如果石墨烯同时处于两个外场, 如电场和光场的作用下, 是否会有更有趣又价值的物理性质. 因此, 为了更深入的理解石墨烯的光电学性质, 在本研究论文中, 我们将研究并理解掺杂的石墨烯系统, 在外电场和光场的共同作用下, 石墨烯系统的光学性质是怎样的, 外加的偏压电场是怎样影响石墨烯光学性质的.

2 理论模型

本论文, 我们考虑门电压调制掺杂的石墨烯-二

氧化硅-硅衬底系统, 该系统是现代电子场效应管中广泛应用的电子器件模型. 石墨烯放在绝缘的 300 nm 的二氧化硅上, 在石墨烯层可以制作各种电极, 例如 S 源极, D 漏极. 然后氧化硅的下面是个导电的硅层. 这种石墨烯的三明治结构有很多的优点. 首先, 两位英国物理学家正是利用这种系统首次制备并鉴定了单层石墨烯; 其次, 这种结构系统非常利于减小石墨烯的起伏和应变; 最后, 一个最大的优点就是这种系统可以很方便的加门电压 V_g 改变载流子的浓度, 得到高掺杂的石墨烯样品, 同时可以非常方便的制作电极, 测试石墨烯的光学性质, 这是一种已经被广泛应用的结构. 正如其他研究者一样, 这里我们考虑电子型掺杂的石墨烯样品, 通过半经典的波尔兹曼动量和能量平衡方程, 以及载流子数守恒方程, 我们自洽计算得到了在给定偏压稳定电场 F_x 时石墨烯系统的电子漂移速度 v_x 和电流以及电子的温度 T_e ^[16]. 该理论模型能够理解石墨烯在电场尤其是高电场时的非线性电输运性质, 并能够解释相应的实验结果.

当研究石墨烯的线性光学性质时, 在弱辐射场下, 可以将石墨烯系统和光场分开处理, 即把光场当作微扰. 这种方法是研究材料外场响应比较普遍的方法^[19], 通过线性响应理论, 我们系统研究了石墨烯弱光场时的光学性质, 能够系统理解并解释石墨烯弱光场时的实验结果和发现^[18]. 但是, 当外界辐射光非常较强时, 研究系统对外场的非线性响应时, 用微扰理论处理已不合适, 需要将石墨烯和光场作为整体处理. 这时当超快光或光脉冲与石墨烯相互作用时, 包含辐射场的石墨烯哈密顿量为

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \psi(t) = v_F \begin{bmatrix} 0 & p_x - ip_y + e\mathbf{A}(t) \\ p_x + ip_y + e\mathbf{A}(t) & 0 \end{bmatrix} \psi(t), \quad (1)$$

这里费米速度 $v_F = 10^8$ cm/s, t 是时间, $e < 0$ 为基本的电子电量, $\psi(t)$ 为光场存在时石墨烯系统载流子的含时波函数, $\mathbf{p} = (p_x, p_y)$ 为载流子的动量, $\mathbf{A}(t) = -\int E(t) dt$ 是光场电场分量的矢势, 其中 $E(t)$ 是光场的电场强度. 我们考虑沿 X 轴线性极化的光场 $E(t) = E_0 \sin \omega t$, 则 $A(t) = \frac{E_0}{\omega} \cos \omega t$, ω 是光场的频率. 通过分析, 可知此时光场-石墨烯系统波函数的形式解为^[14]

$$\psi(t) = c_+(t)\psi_+(t) + c_-(t)\psi_-(t), \quad (2)$$

其中

$$\psi_{\pm}(t) = \frac{1}{\sqrt{2}} e^{[\mp i\Omega(t)]} \begin{bmatrix} e^{-(i/2)\theta(t)} \\ \pm e^{(i/2)\theta(t)} \end{bmatrix}, \quad (3)$$

分别是导带 (+) 和价带 (-) 的波函数, $c_{\pm}(t)$ 分别是导带或价带载流子的占据概率. 含时的相位

$$\Omega(t) = \frac{v_F}{\hbar} \int \sqrt{[p_x + e\mathbf{A}(t)]^2 + p_y^2} dt,$$

含时的角度 $\theta(t) = \arctan[p_y/(p_x + e\mathbf{A}(t))]$. 由以上的分析, 我们可以构造单粒子的光电流算符

$j(t) = -ev_F \psi^\dagger \sigma \psi$, 从而计算得到 X 方向上线性极化的光场产生的光电流.

正如上面所述, 本工作研究的是高掺杂的电子型石墨烯系统, 这就使得导带中的电子费米能 E_F 远远大于外界太赫兹光场光子能量 $\hbar\omega$, 即 $E_F \gg \hbar\omega$. 因此, 在外界电场和太赫兹光场的作用下, 该石墨烯系统只会存在导带内的光吸收, 从价带到导带的电子跃迁的带间光吸收是被限制的. 进而由上面的光电流算符可以计算得到石墨烯系统单电子的带内光电流为

$$j(t) = \frac{-ev_F(p_x + eA)}{\sqrt{(p_x + eA)^2 + p_y^2}}, \quad (4)$$

很明显该单粒子光电流 $j(t)$ 与外界光场 $A(t)$ 并不是简单的线性响应关系, 即光电流的行为特征与外界光场的行为特征有明显的区别, 是一个复杂的非线性关系. 这与普通的抛物线型色散的半导体材料有明显的区别, 抛物线型色散的材料其光电流与外界光场是线性响应的, 即 $j(t) \propto A(t)$.

同时, 由于电场的存在, 使得石墨烯中的电子从电场中获得了动量和能量, 从而使电子系统并不是处在平衡状态, 而是处于非平衡状态, 其在电场作用下非平衡时的费米分布函数 $f[E_\lambda(\mathbf{p}^*)]$, 这里 $\mathbf{p}^* = \mathbf{p} - \mathbf{p}_v$ 为电场存在时非平衡分布的电子的动量, $\mathbf{p}_v = p_F \mathbf{v} / v_F$ 为电子从电场获得的动量, $\mathbf{v} = (v_x, 0)$ 是电子的漂移速度, p_F 是费米波矢. 考虑到此时电子的分布, 可以计算得到电场和光场同时存在时总的光电流

$$J(t) = \frac{g_s g_v}{(2\pi\hbar)^2} \int j(t) f[E_\lambda(\mathbf{p}^*)] d\mathbf{p}.$$

给定电场强度时电子的漂移速度和温度在以前的工作中已经可以自洽自己算得到^[16]. 最后, 经过积分分析计算可得

$$J(t) = \frac{2J_F}{3\pi\chi} \left[(1 + \chi^2) \mathcal{E}_+(\eta) - (1 - \chi^2) \mathcal{E}_-(\eta) \right]. \quad (5)$$

这里 $J_F = -ev_F k_F^2$ 是与电子浓度 n_e 有关的元电流, $k_F = \sqrt{\pi n_e}$, $\mathcal{E}_\pm(x) \equiv \mathcal{E}_\pm\left(\frac{\pi}{2} |x|\right)$ 分别是第一(二)类椭圆积分, 其中无量纲化的两个参数 $\chi = eA/p_F + v_x/v_F$ 和 $\eta = 4\chi/(1 + \chi^2)$. 这便于我们在数值计算时做无量纲处理, 简化计算.

3 结果讨论

图 1 计算了三组不同运输电场强度 F_x 时对应的光电流 $J(t)$. 计算发现, 石墨烯系统表现出强的

非线性光学响应特性, 这是由其线性的色散关系导致的. 这种强的非线性光吸收行为从单粒子的光电流 $j(t)$ 的表达式就能清楚的显示出来. 很明显, 石墨烯的这种非线性光学行为既不同于传统的抛物线型半导体的行为, 也明显不同于传统的非线性材料的光吸收行为, 比如克尔型和饱和型非线性光学材料^[20]. 石墨烯是一种新的非线性光学材料. 同时, 随着外界稳定偏流电场强度 F_x 的增加, 石墨烯载流子的漂移速度 v_x 相应增大, 进而会使得石墨烯太赫兹非线性特性增强. 图 1 表明外界电场增强了石墨烯的非线性光学特性. 这是由于电场增大, 使得电子偏离平衡状态增强, 漂移速度 v_x 增加, 进而使得 $\chi = eA/p_F + v_x/v_F$ 增加. 同时, 随着 χ 的增大, 系统的光电流会增大, 非线性特性也会变大. 同时我们也应当指出, 不论是电场强度 (v_x) 的增大, 还是光场强度的增大, 都会使得 χ 增大, 电子偏离平衡状态增强, 从而非线性光学行为也更加明显. 这说明在石墨烯系统中, 电场能够影响光场的行为. 通过研究说明, 石墨烯系统强的非线性太赫兹光学行为可以通过外界的电场有效的调节和控制. 这一重要性为制作以石墨烯为基础性能可控的非线性太赫兹光电器件提供了便利.

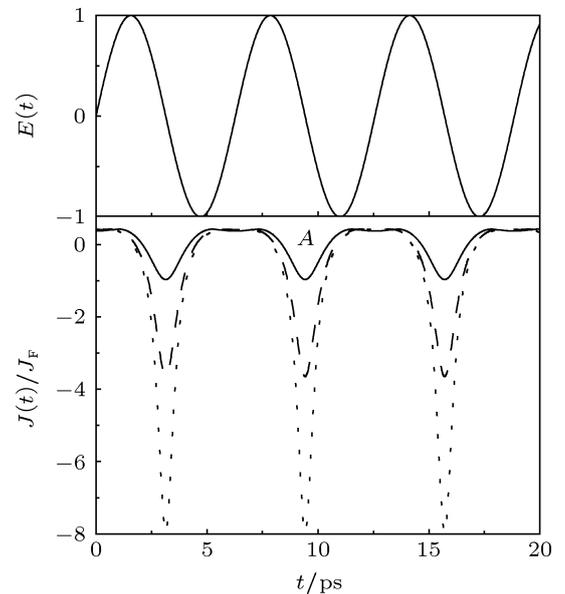


图 1 外加 1 THz 的光场 $E(t) = \cos \omega t$, 选取不同的运输电场强度 F_x 时, 对应的光电流 $J(t)$. 图中三组数据 (实线, 虚线, 实线-虚线) 对应运输电场强度由上往下逐渐增大. 为了比较, 显示光电流 $J(t)$ 的非线性行为, 图中同时画出了太赫兹光场 $E(t)$ 的变化

图 2 显示了外界电场强度 F_x 一定, 选取不同太赫兹光场频率时光电流 $J(t)$ 的变化. 从图中可以看出, 随着外界太赫兹光频率 ω 的减小, 即光子的能

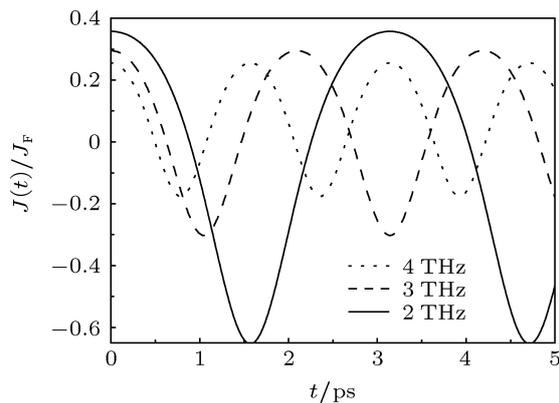


图2 外界电场强度 E_x 一定, 选取不同太赫兹光场频率时光电流 $J(t)$ 的变化

量减小, 石墨烯的非线性光吸收增强. 这是由于随着频率 ω 的减小, $A(t) = \frac{E_0}{\omega} \cos \omega t$ 会相应的增大, 对应 $\chi = eA/p_F + v/v_F$ 的值也会增大, 计算得到的光电流 $J(t)$ 也会增大, 其非线性也会增强. 其背后的物理原因是光子能量越小, 对应的带内的波函数的交迭越强, 进而产生的光电流就越大, 非线性特性也越强. 这一特点说明, 不需要能量较高的太赫兹光子, 就能获得较强的非线性光学特性. 这一优点也使得石墨烯非常适合用于制作新型的非线性太赫兹光电器件.

4 结论

本论文研究计算了掺杂石墨烯在外界电场和太赫兹光场共同作用下的光电流. 石墨烯是线性色散的二维狄拉克费米子系统, 表现出了强的非线性光吸收性质. 通过研究发现, 石墨烯是一种新型的非线性光学材料. 外界电场增大可以增强了石墨烯的非线性光学行为. 光场的频率越低, 其非线性也会越强. 石墨烯系统强的非线性太赫兹光学特性可以通过外界的电场有效的调节和控制. 这些特性使得石墨烯成为制作非线性太赫兹光电器件理想材料. 本工作的理论研究结果可以为石墨烯器件尤其是相关的太赫兹器件的研究和实际应用提供一定的理论依据.

最后我们应当指出, 本论文初步研究了石墨烯材料在光电场共同作用下的响应行为. 运用量子理论对光场的处理较为准确, 而运用半经典的理论对电场的处理较为简化. 虽然如此, 我们仍然得到了一些有价值的研究成果. 后期我们希望进行更深入的研究, 建立更准确系统的量子模型, 研究石墨烯在多外场作用下的性质.

作者在此非常感谢与日本东京大学 K. L. Ishikawa 教授有益的讨论.

- [1] Quhe R G, Zheng J X, Luo G F, Liu Q H, Qin R, Zhou J, Yu D P, Nagase S, Mei W N, Gao Z X, Lu J 2012 *NPG Asia Materials* **4** e6
- [2] Wu H Q, Linghu C Y, Lü H M, Qian H 2013 *Chin. Phys. B* **22** 098106
- [3] Novoselov K S, Geim A K, Morozov S V, Jiang D, Katsnelson M I, Grigorieva I V, Dubonos S V, Firsov A A 2005 *Nature* **438** 197
- [4] Novoselov K S, Geim A K, Morozov S V, Jiang D, Zhang Y, Dubonos S V, Grigorieva I V, Firsov A A 2004 *Science* **306** 666
- [5] Yuan W J, Liu A R, Huang L, Li C, Shi G Q 2013 *Advanced Materials* **25** 766
- [6] Guinea F, Katsnelson M I, Geim A K 2010 *Nature Physics* **6** 30
- [7] Eda G, Fanchini G, Chhowalla M 2008 *Nature Nanotechnol* **3** 270
- [8] Li Z Q, Henriksen E A, Jiang Z, Hao Z, Martin M C, Kim P, Stormer H L, Basov D N 2008 *Nature Physics* **4** 532
- [9] Hendry E, Hale P J, Moger J, Savchenko A K, Mikhailov S A 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 097401
- [10] Lu J J, Feng M, Zhan H B 2013 *Acta Phys. Sin.* **62** 014204 (in Chinese) [陆晶晶, 冯苗, 詹红兵 2013 物理学报 **62** 014204]
- [11] Zuo Z G, Wang P, Ling F R, Liu J S, Yao J Q 2013 *Chin. Phys. B* **22** 097304
- [12] Zhang H, Tang D Y, Knize R J, Zhao L M, Bao Q L, Loh K P 2010 *Appl. Phys. Lett.* **96** 111112
- [13] Wright A R, Xu X G, Cao J C, Zhang C 2009 *Appl. Phys. Lett.* **95** 072101
- [14] Ishikawa K L 2010 *Phys. Rev. B* **82** 201402(R)
- [15] Dong H M, Xu W, Zeng Z, Lu T C, Peeters F M 2008 *Phys. Rev. B* **77** 235402
- [16] Dong H M, Xu W, Peeters F M 2011 *Journal of Applied Physics* **110** 063704
- [17] Dong H M, Xu W, Zhang J, Yuan Y Z 2010 *Optics Communications* **283** 3695
- [18] Xu W, Dong H M, Li L L, Yao J Q, Vasilopoulos P, Peeters F M 2010 *Phys. Rev. B* **82** 125304
- [19] Chen Y L, Feng X B, Hong D D 2013 *Acta Phys. Sin.* **62** 187301 (in Chinese) [陈英良, 冯小波, 侯德东 2013 物理学报 **62** 187301]
- [20] Haus H A, Wong W S 1996 *Rev. Mod. Phys.* **68** 423

Electrically-controlled nonlinear terahertz optical properties of graphene*

Dong Hai-Ming[†]

(*Department of Physics, China University of Mining and Technology, Xuzhou 221116, China*)

(Received 16 August 2013; revised manuscript received 9 September 2013)

Abstract

In this paper, we present a detailed theoretical study of nonlinear terahertz optical properties of graphene in the presence of electric field and terahertz radiation field. The optical current is computed and investigated on the basis of quantum theory and semi-classical Boltzmann equations. It shows a large nonlinear terahertz response and the nonlinearity becomes larger with increasing electric field or decreasing terahertz frequencies. Moreover, it is found that the optical nonlinearity can be modified and controlled by electric fields.

Keywords: graphene, terahertz, nonlinear, current

PACS: 78.67.Wj, 78.20.Ci, 81.05.Ue

DOI: 10.7498/aps.62.237804

* Project supported by the Fundamental Research Funds for the Central Universities of Ministry, China (Grant No. 2013QNA29), and the National Natural Science Foundation of China (Grant No.11247002).

[†] Corresponding author. E-mail: hmdong@cumt.edu.cn