

双层石墨烯材料中无序导致超导-绝缘体相变的数值研究*

何龙 宋筠†

(北京师范大学物理系, 北京 100875)

(2012年6月27日收到; 2012年10月10日收到修改稿)

本文利用一种新的数值方法研究了在较大的双层石墨烯样品中杂质的无序效应对超导态特性的影响. 采用核多项式方法 (Kernel Polynomial Method) 来自洽求解双层石墨烯系统的 Bogoliubov-de-Gennes (BdG) 方程, 从而得到了由无序效应所引起的超导序参量的空间涨落精确解. 进一步, 计算了系统处于超导态时的态密度、光电导和广义逆参与率 (inverse participation ratio) 等物理量, 并发现随着无序强度的不断增大态密度中的能隙被完全抑制, 同时光电导的 Drude 权重也迅速减小并最终降为零, 这表明双层石墨烯中的低能电子态发生了安德森局域化, 系统因而发生了由无序效应诱导的超导-绝缘体相变.

关键词: 双层石墨烯, 安德森局域化, 超导-绝缘体相变, 核多项式方法

PACS: 73.22.Pr, 74.81.-g, 71.23.An

DOI: 10.7498/aps.62.057303

1 引言

石墨烯材料因其物性极为丰富而备受大家的关注, 其独特性源于费米面附近的电子呈现无质量狄拉克费米子的特征. 最近, 角分辨光电子谱实验确认多体相互作用能够显著地改变石墨烯的费米面的形状, 随着范·霍夫奇异的出现, 体系将会向超导态转变^[1]. 此前, 通过将石墨烯生长于超导衬底材料上, 利用亲近效应可驱使石墨烯材料进入超导态^[2], 不过这属于外缘型超导. 理论研究预期在多层或双层石墨烯材料中超导态会更加稳定, 因此开展对双层石墨烯材料的超导特性的研究是非常必要和有意义的.

双层石墨烯是能隙可调控的新型半导体材料, 材料能隙的大小可直接由作用在其上下面的外接偏压来调控^[3-7]. 由于双层石墨烯材料既有奇特的电学性质又有独特的光学性质, 因此这一特殊材料的出现有望在现代电子科技领域引发新一轮革新. 在研究双层石墨烯材料处于超导态时的电学和光

学特性时, 我们也同时需要考虑杂质所引入的无序效应, 因为任何材料在实际应用中都无法避免杂质的影响, 特别是石墨烯不仅会受到表面和衬底吸附的杂质的影响, 其材料本身由于褶皱而引入的内禀无序和内部结构变化产生的拓扑无序等都对材料的性质有非常显著的影响^[8]. 本文将着重探讨由杂质引入的无序效应导致双层石墨烯材料发生超导-绝缘体相变的相关问题.

严格对角化方法是研究无序效应以及安德森局域化^[9]的最有效的数值计算方法之一. 然而在实际应用中, 这一方法有一定的局限性, 特别是对于弱局域体系, 当局域电子态的局域化长度显著地超出严格对角化方法所能研究的晶格尺度上限时 (严格对角化计算方法所能达到的矩阵计算维度 $D \approx 10^5$), 计算结果的可信度会大大降低, 有时我们甚至无法通过标度理论来有效地分辨出电子态到底是局域态还是扩展态, 这也正是严格对角化数值计算方法的瓶颈所在. 为了解决这一难题, 本文采用了最近提出的一套研究无序体系的非常有效

* 国家重点基础研究发展计划 (批准号: 2011CBA00108) 和国家自然科学基金 (批准号: 10974018, 11174036) 资助的课题.

† 通讯作者. E-mail: yunsong@bnu.edu.cn

的数值计算方法,即核多项式方法^[10].这一方法的主要优点是能够精确地计算较大尺寸的晶格体系($D \approx 10^9$).相对于严格对角化方法,核多项式方法能够研究晶格尺度增加两个数量级的二维无序体系,因此能够揭示出更多的基于尺寸效应的物理现象的本质.本文利用核多项式方法自洽求解了双层石墨烯超导态的 Bogoliubov-de-Gennes(BdG) 方程,并通过分析系统中由无序效应导致的超导序参量的空间涨落、以及体系的态密度和光电导等物理量随无序的改变,证实了杂质的无序效应能够导致系统发生超导-绝缘体相变.

2 核多项式方法与双层石墨烯中的无序效应

2.1 理论模型

本文采用有效的紧束缚模型来描述含有随机格点无序能的双层石墨烯材料,两层石墨烯以 AB Bernal 方式叠排^[3,11],即上层的 A 子晶格正好处于下层的 B 子晶格的正上方位置,其所对应的哈密顿量可以表示为如下形式^[3,11-13]:

$$\begin{aligned}
 H = & -t \sum_{\langle ij \rangle m \sigma} c_{im\sigma}^\dagger c_{jm\sigma} \\
 & -t_\perp \sum_{i' \sigma} [c_{i'(A1)\sigma}^\dagger c_{i'(B2)\sigma} + c_{i'(B2)\sigma}^\dagger c_{i'(A1)\sigma}] \\
 & + \sum_{im\sigma} \varepsilon_{im} c_{im\sigma}^\dagger c_{im\sigma} \\
 & - \sum_{im} [\Delta_{im} c_{im\uparrow}^\dagger c_{im\downarrow}^\dagger + \text{H.c.}], \quad (1)
 \end{aligned}$$

其中算符 $c_{im\sigma}^\dagger$ ($c_{im\sigma}$) 表示在 m ($m = 1, 2$) 层第 i 个格点上产生(湮没)一个自旋方向为 σ 的电子; t 代表双层石墨烯材料中电子在同一层内最近邻格点间的跃迁常数; t_\perp 则表示对应的上层 A_1 格点和下层 B_2 格点间的电子的跃迁常数^[3,11]; ε_{im} 表示 m 层第 i 个格点上的无序位能,我们选取处于区间 $[-W/2, W/2]$ 中的等概率随机箱分布无序势^[9],而 W 表示无序的强度;最后,(2)式中的参量 $\Delta_{im} = -U \langle c_{im\downarrow} c_{im\uparrow} \rangle$ 代表在同格点上引入了哈伯德吸引相互作用 U 后 m 层第 i 个格点上的超导序参量.

下面我们利用核多项式方法来自洽求解 BdG 方程:

$$H \begin{pmatrix} \mu_n(r_i) \\ \nu_n(r_i) \end{pmatrix} = E_n \begin{pmatrix} \mu_n(r_i) \\ \nu_n(r_i) \end{pmatrix}, \quad (2)$$

这里 E_n 为系统本征值, $\mu_n(r_i)$ 和 $\nu_n(r_i)$ 为波戈留波夫变换中的准粒子幅和准空穴幅,其中 $i = 1, 2, \dots, N$.

2.2 超导能隙的自洽求解

单电子格林函数的虚部可以利用核多项式方法展开为切比雪夫多项式^[10]:

$$\text{Im}G_{ij}(\tilde{\omega}) = -\frac{2}{1-\tilde{\omega}^2} \sum_{n=0}^{M-1} \mu_n(i, j) g_n^{(L)} T_n(\tilde{\omega}), \quad (3)$$

式中 $\tilde{\omega}$ 为已被线性标度到 $[-1, 1]$ 区间内的能量, $T_n(\tilde{\omega}) = \cos[n \arccos(\tilde{\omega})]$ 为切比雪夫多项式通项的第一种形式, μ_n 为多项式展开系数, $g_n^{(L)}$ 即 Lorentz Kernel, 用来消除切断近似引起的 Gibbs 震荡^[10].于是上文定义的超导序参量 Δ_i 就可以由格林函数的虚部计算得出^[10,14,15]

$$\Delta_i = -U \int_{-E_c}^{E_c} \text{Im}G_{ii}(\omega) [1 - 2f(\omega)] d\omega, \quad (4)$$

式中 $f(\omega)$ 为费米狄拉克分布函数.

2.3 光电导函数

为了便于使用核多项式方法,我们需要对系统在有限温度下的光电导函数做如下变换^[16]:

$$\begin{aligned}
 \sigma(\omega) = & \sum_{k,q} \frac{|\langle k|J|q \rangle|^2 [f(E_k) - f(E_q)]}{ZD\omega} \\
 & \times \delta[\omega - (E_k - E_q)] \\
 = & \frac{1}{\omega} \int_{-\infty}^{\infty} j(x, x + \omega) \\
 & \times [f(E_k) - f(E_q)] dx, \quad (5)
 \end{aligned}$$

这里 $J = -iqt \sum_{i,\sigma} (c_{i,\sigma}^\dagger c_{i+1,\sigma} - \text{H.c.})$ 为电流密度算符, Z 为系统的配分函数, D 是整个晶格的哈密顿量矩阵的维度, E_k (E_q) 表示本征态 $|k\rangle$ ($|q\rangle$) 对应的本征能量, $j(x, y)$ 为光电导的密度元函数,可将其规范化后进行切比雪夫多项式展开

$$\begin{aligned}
 j(\tilde{x}, \tilde{y}) = & \frac{1}{D} \sum_{k,q} |\langle k|J|q \rangle|^2 \delta(\tilde{x} - \tilde{E}_k) \delta(\tilde{y} - \tilde{E}_q) \\
 = & \sum_{n,m=0}^{M-1} \frac{\mu_{nm} h_{nm} g_n^{(J)} g_m^{(J)} T_n(\tilde{x}) T_m(\tilde{y})}{\pi^2 \sqrt{(1-\tilde{x}^2)(1-\tilde{y}^2)}}, \quad (6)
 \end{aligned}$$

式中 $g_n^{(J)}$ 为 Jackson Kernel, 其作用与前文介绍到的 Lorentz Kernel 一样, 是用于消除切断近似引起的 Gibbs 震荡, 只是适用范围有所不同.

下面我们就来讨论密度元函数 $j(x,y)$ 的物理意义. 图 1 展示的即为双层石墨烯超导态光电导的密度元函数 $j(x,y)$ 在无序强度分别取 $W = 0$ 和 $W = 8t$ 时的能量空间分布图像. 由 (6) 式可以推知系统光电导的行为很大程度上是由该能量空间分布图像中直线 $y = x + \omega$ 的函数值来决定. 以图 1(b) 为例, 图中的密度元函数 $j(x,y)$ 以对角线 $y = x$ 为界劈裂为完全分离的两部分, 而对角线上的密度为零, 这将使得当 $\omega = 0$ 时系统的光电导的 Drude 权重为零.

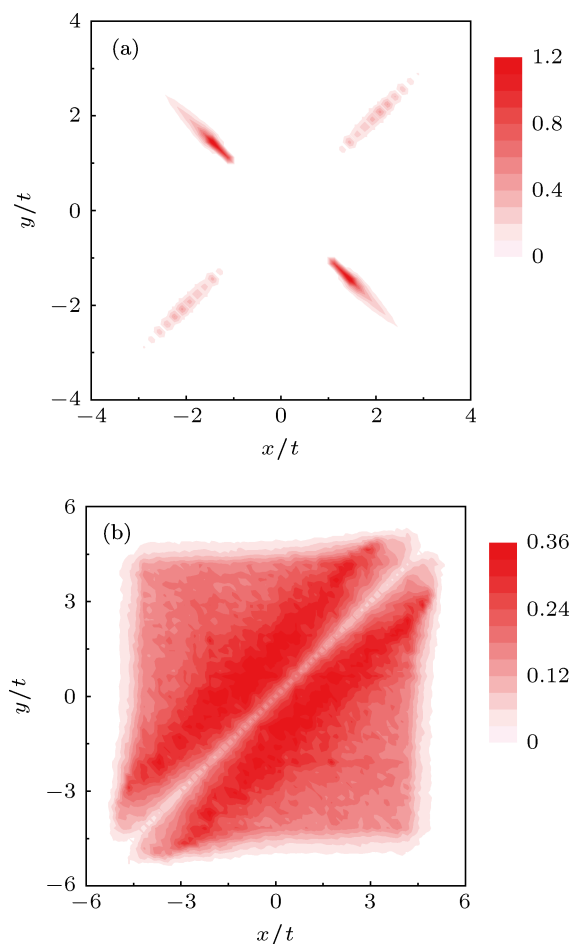


图 1 双层石墨烯超导态光电导密度元函数 $j(x,y)$. (a) 和 (b) 分别对应无序强度 $W = 0$ 和 $W = 8t$ 时 $j(x,y)$ 的能量空间分布, 其参数设定如下: 晶格尺寸 $N = 240a \times 240a$ (a 为最近邻格点距离), 展开阶数 $M = 4096$, 随机样本个数 $R = 1000$, 哈伯德吸引相互作用 $U = -4t$

3 计算结果及讨论

实验发现在双层石墨烯中电子在同层内最近邻格点间的跃迁能约为 3.1 eV , 而在层间格点间的跃迁能约为 0.37 eV ^[17]. 因此, 在计算中我们以层内最近邻跃迁项 t 为单位, 取层间跃迁能 $t_{\perp} = 0.15t$,

库仑吸引势 $U = -4t$, 而无序位能项 ε_{im} 选取为 $[-W/2, W/2]$ 区间内的等概率随机数^[9], 其中参数 W 表示无序的强度.

首先我们计算了理想的单层和双层石墨烯纯净材料在上述参数条件下的均匀超导序参量, 对于单层材料我们得到序参量为 $\Delta_0 = 1.0235t$. 而对于双层石墨烯, 由于层间跃迁项破坏了 AB 子晶格间的对称性, 我们因而得到了两个相近的序参量: $\Delta_0^{(1)} = 1.0239t$ 和 $\Delta_0^{(2)} = 1.0157t$. 显然, 层间跃迁对超导序参量的影响已达到了可观测的程度. 下一步, 我们来研究无序效应引起的超导序参量的空间涨落问题. 如图 2 所示, 随着无序强度的增加超导区域会不断地缩小并局域化, 而伴随着非超导区域面积的不断扩大, 形成了一些被非超导区域完全包围起来的局域的“超导小岛”, 这预示着系统已进入了绝缘相. 严格地来判断材料是否发生了超导 - 绝缘体相变需要细致的理论分析, 我们将在下文中详细讨论相关的问题. 最近, 关于氧化铋超导薄膜的实验研究发现, 即使在超导薄膜因无序效应而发生超导 - 绝缘体转变后, 仍然能够通过扫描隧穿光谱探测到局域化的库伯对的存在^[18], 而我们的计算结果, 即强无序区仍然存在局域的超导小岛可以用来解释这一实验发现.

下面我们来具体地研究格点上的无序势能是如何来影响超导序参量的. 我们的计算展示出了三种情况: 1) 当无序效应较弱时, 无序导致系统的序参量整体下降, 即便是超导序参量的最高值也比无杂质影响的纯净体系的均匀值要小 ($\Delta_i^{\max} < \Delta_0^{(2)}$). 此外, 如图 3(a) 所示, 无序能的绝对值 $|\varepsilon_i|$ 较大的格点上的超导序参量被明显抑制, 而越靠近中心的低能点, 序参量会有显著的增加, 但空间涨落较弱, 体系仍然处于超导态. 2) 在中等强度无序的影响下, 如图 3(b) 所示, 在高能区的格点超导序参量会被强烈抑制, 其中的一部分格点上的超导序参量降为零, 表明超导被完全抑制了. 而在低能格点上超导序参量的涨落则显著增加, 并出现序参量反号的情况, 这时体系正好处于超导 - 绝缘体相变点附近. 3) 在强无序情况下, 低能区的超导序参量的涨落随无序的增加会显著地增大, 甚至会出现局域序参量比均匀的序参量大很多的少数格点, 如图 3(c) 所示, $\Delta_i^{\max} \approx 1.45\Delta_0^{(1)}$, 如此大的涨落正对应了孤立的超导小岛的存在, 并说明靠增强无序无法消除超导小岛的存在. 因为体系已完全进入了绝缘态, 因此我们可以将超导小岛看作局域化的库伯对. 在这一

方面,六角晶格超导体与正方晶格超导体的行为相似 [21,13,19]. 尽管无序对超导序总体上是起着破坏的作用,但在强无序情况中,当两个自旋取向相反的强局域化的电子态在空间和能量上相匹配时,会形成局域化的库伯对,这时周围格点上的强无序能

反而起到保护局域化库伯对的作用. 由于这些局域化的库伯对对超导序参量的贡献将主要集中在少数格点上,因而贡献值就会相对很大,所以我们在图 3(c) 中观察到少量格点的超导序参量在强无序条件下会显著增加这一现象.

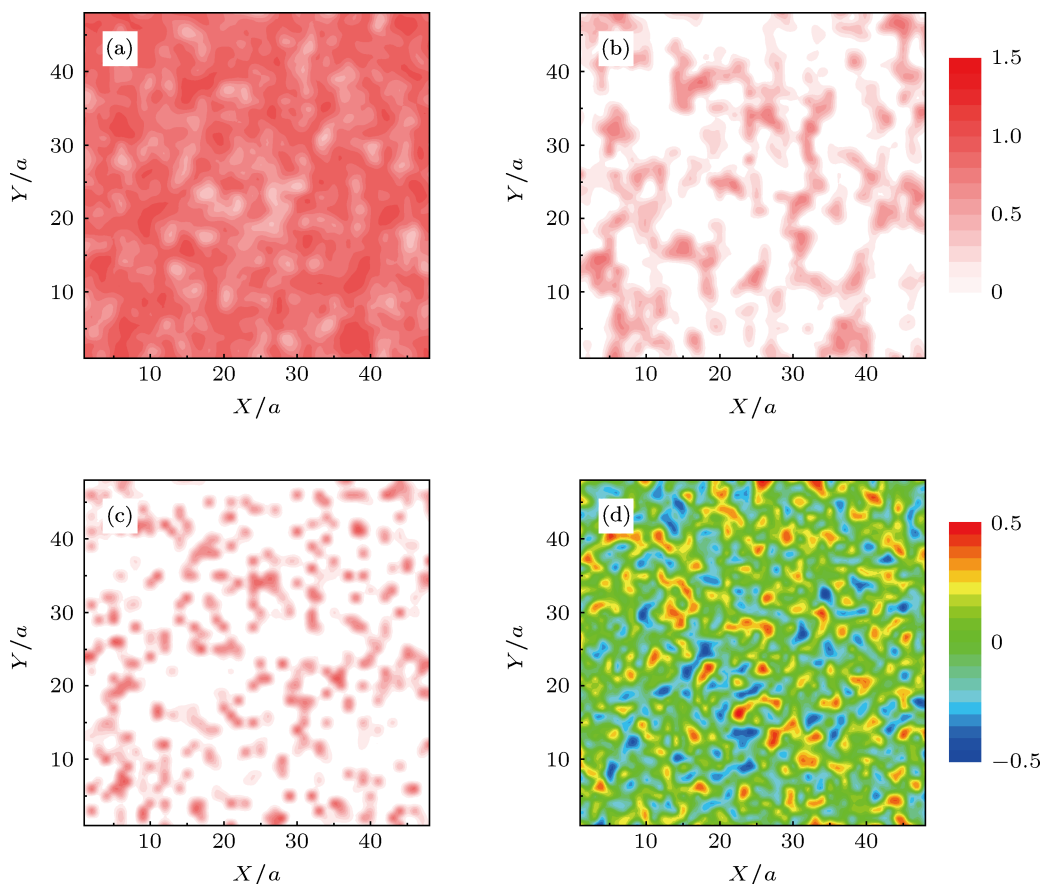


图2 双层石墨烯处于超导态时无序引起的超导序参量的空间涨落分布. 因无序导致的上下两层中超导序参量的空间涨落非常相近, 我们只图示了上一层中的超导序参量的空间分布. (a), (b) 和 (c) 所对应的无序强度分别为 $W = 2t$, $W = 4t$ 和 $W = 8t$; (d) 展示了双层石墨烯材料的第一层中无序势能 ϵ_i 的晶格分布情况

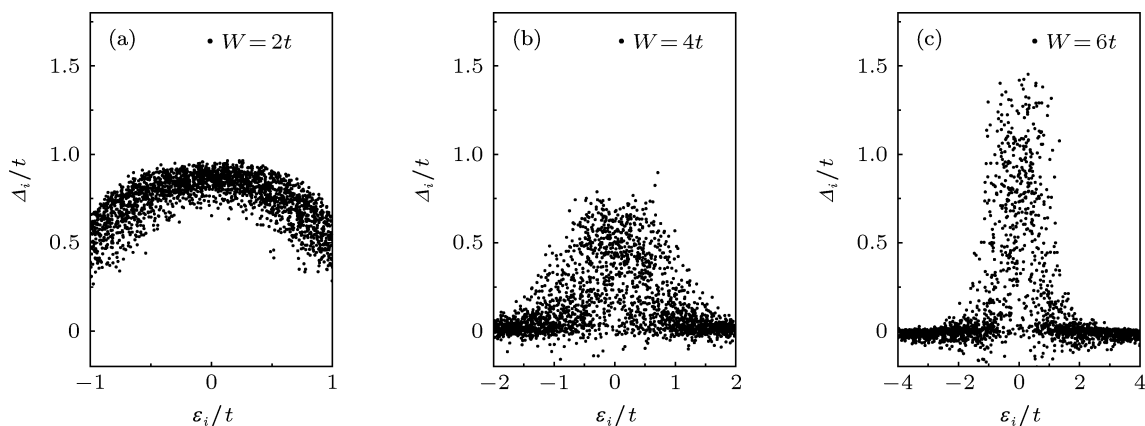


图3 超导序参量 Δ_i 对格点无序势能 ϵ_i 的依赖关系 (a), (b) 和 (c) 分别对应的无序强度为 $W = 2t$, $W = 4t$ 和 $W = 8t$

下面, 我们利用晶格尺寸的标度来研究超导 - 绝缘体相变, 并重点探讨无序引起的超导态准粒子以及正常电子态的安德森局域化问题. 关于石墨烯中无序效应的理论研究发现^[20], 通过对逆参与率 (inverse participation ratio) 进行合理的晶格尺寸标度能够得到四个迁移率边, 证明体系在一定的条件下存在金属态. 但是, 我们不能将上述方法直接引入到核多项式方法中, 因为逆参与率依赖于电子的本征态, 而核多项式方法虽能精确计算局域态密度但无法得到本征波函数. 这里, 我们引入广义逆参与率^[21,22], 其定义为

$$G_2(\omega) = \frac{\sum_i^N [\rho(r_i, \omega)]^2}{[\sum_i^N \rho(r_i, \omega)]^2}, \quad (7)$$

其中 $\rho(r_i, \omega)$ 代表格点 i 上的局域态密度. 对于二维系统, 广义逆参与率随晶格尺寸的二次幂倒数 (L^{-2}) 线性变化, 如果在扩展到尺寸极限 $L \rightarrow \infty$ 广义逆参与率取值为零则表明电子态为扩展态, 而如果极限值不为零则对应局域态, 同时二维体系的局域化长度可通过公式 $\xi_{\text{loc}} = 1/\sqrt{\lim_{L \rightarrow \infty} G_2(\omega)}$ 来获得. 如图 4 所示, 我们计算了能量为 $\omega = 2t$ 处广义逆参与率在不同的无序强度下的尺寸标度, 我们得到: 当 $W = 4t$ 时, 局域化长度是 $\xi_{\text{loc}} = 238.7a$, 而增加无序到 $W = 8t$ 时, 局域化长度减小到 $136.4a$, 局域化随无序增强而显著增加.

最后, 我们来研究无序效应对一些实验可观测物理量的影响. 理论计算发现, 正方晶格 s 波超导体的态密度在费米面处始终保持能隙的打开, 甚至于会随着无序强度的增加而增大^[12,13]. 而石墨烯的表现则完全不同, 如图 5(a) 所示, 随着无序强度

的不断增长, 超导能隙被完全抑制, 并且费米面附近的态密度会不断地增加, 在强无序条件下与常规无序系统相一致. 我们的计算说明石墨烯中的超导态稳定性相对较弱, 无序对超导态的影响更加显著. 在图 5(b) 中, 我们展示了光电导在不同的无序强度下的行为. 在弱无序条件下, 由于超导能隙的存在, 光电导在低能区域内取值为零, 对应于双层石墨烯的两个超导序参量处出现了两个超导相干峰, 而系统较大的 Drude 权重表明材料具有很强的导电性. 随着无序强度的不断增长, 超导能隙会被强烈地压制掉, 此时系统的准粒子态会发生安德森局域化^[9], 而当费米面附近的准粒子也被无序局域化后, 系统就会发生超导 - 绝缘体相变, 对应其光电导的 Drude 权重为零. 因此, 观测双层石墨烯的光电导中 Drude 权重随无序的演化, 以及测量费米面处的态密度受无序的影响, 都能够为我们确定超导 - 绝缘体相变提供直接的证据.

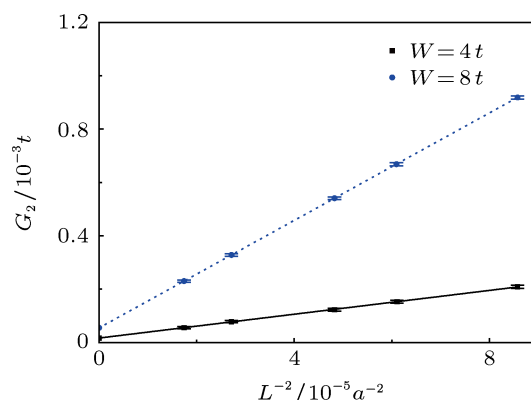


图 4 广义逆参与率的晶格尺度标度. 最大的晶格尺寸为 $L = 300a$, $N = L \times L$, 所对应的准粒子能量为 $\omega = 2t$

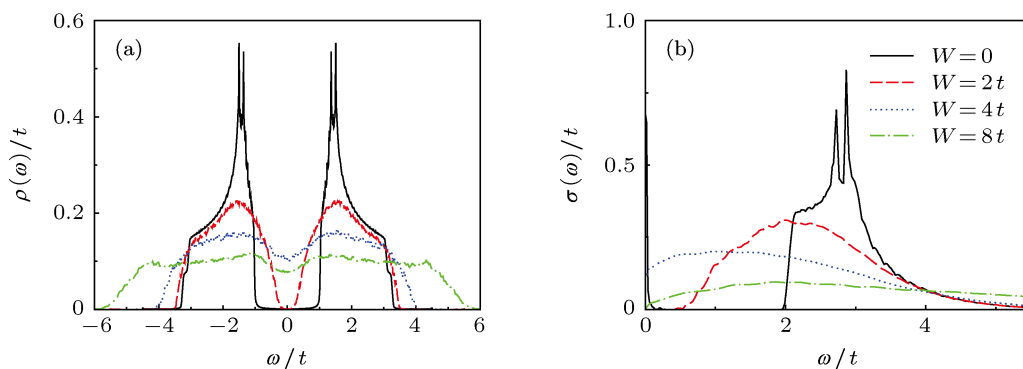


图 5 无序效应对双层石墨烯超导态的影响 (a) 态密度 $\rho(\omega)$ 和 (b) 光电导 $\sigma(\omega)$. 计算中所选晶格尺寸 $N = 240a \times 240a$, 展开阶数 $M = 4096$

4 结 论

本文利用核多项式方法计算了大尺寸双层石墨烯材料中的无序效应, 并利用广义逆参与率的晶格尺寸标度来准确地判断准粒子态是否发生安德

森局域化, 从而确定系统可发生由无序诱导的超导—绝缘体相变. 无序对石墨烯材料的光电导和态密度的影响与普通的正方晶格超导体有显著的差异, 因此这些可观测量能够为超导—绝缘体相变是否发生提供直接证据.

-
- [1] McChesney J L, Bostwick A, Ohta T, Seyller T, Horn K, González J, Rotenberg E 2010 *Phys. Rev. Lett.* **104** 136803
- [2] Heersche H B, Jarillo Herrero P, Oostinga J B, Vandersypen L M K, Morpurgo A 2007 *Nature* **446** 56
- [3] Castro E V, Novoselov K S, Morozov S V, Peres N M R, dos Santos J M B, Lopes N J Guinea F, Geim A K, Castro Neto A H 2007 *Phys. Rev. Lett.* **99** 216802
- [4] Zhang Y, Tang T T, Girit C, Hao Z, Martin M C, Zettl A, Crommie M F, Shen Y R, Wang F 2009 *Nature* **459** 820
- [5] Wang T, Guo Q, Liu Y, Sheng K 2012 *Chin. Phys. B* **21** 67301
- [6] Wang Z G, Zhang P, Li S S, Fu Z G 2011 *Chin. Phys. B* **20** 058103
- [7] Wang J J, Wang F, Yuan P F, Sun Q, Jia Y 2012 *Acta Phys. Sin.* **61** 106801 (in Chinese) [王建军, 王飞, 原鹏飞, 孙强, 贾瑜 2012 物理学报 **61** 106801]
- [8] Castro Neto A H, Guinea F, Peres N M R, Novoselov K S, Geim A K 2009 *Rev. Mod. Phys.* **81** 109
- [9] Anderson P W 1958 *Phys. Rev.* **109** 1492
- [10] Weiße A, Wellein G, Alvermann A, Fehske H 2006 *Rev. Mod. Phys.* **78** 275
- [11] Castro E V, Novoselov K S, Morozov S V, Peres N M R, Lopes dos Santos J M B, Nilsson J, Guinea F, Geim A K, Castro Neto A H 2010 *J. Phys.: Condens. Matter* **22** 175503
- [12] Ghosal A, Randeria M, Trivedi N 1998 *Phys. Rev. Lett.* **81** 3940
- [13] Ghosal A, Randeria M, Trivedi N 2000 *Phys. Rev. B* **65** 014501
- [14] Covaci L, Peeters F M, Berciu M 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 167006
- [15] Nagai Y, Ota Y, Machida M 2012 *J. Phys. Soc. Jpn.* **81** 024710
- [16] Weiße A 2004 *Eur. Phys. J. B* **40** 125
- [17] Partoens B, Peeters F M 2006 *Phys. Rev. B* **74** 075404
- [18] Sacépé B, Dubouchet T, Chapelier C, Sanquer M, Ovodnia M, Shahar D, Feigel'man, Loffe L 2011 *Nature Phys.* **7** 239
- [19] Dubi Y, Meir Y, Avishai Y 2007 *Nature* **449** 876
- [20] Song Y, Song H K, Feng S P 2011 *J. Phys.: Condens. Matter* **23** 205501
- [21] Song Y, Wortis R, Atkinson W A 2008 *Phys. Rev. B* **77** 054202
- [22] Murphy N C, Wortis R, Atkinson W A 2011 *Phys. Rev. B* **83** 184206

Numerical study of the superconductor-insulator transition in double-layer graphene driven by disorder*

He Long Song Yun[†]

(Department of Physics, Beijing Normal University, Beijing 100875, China)

(Received 27 June 2012; revised manuscript received 10 October 2012)

Abstract

The kernel polynomial method is employed to study the disorder effects of impurities on the superconductivity of double-layer graphene. The Bogoliubov-de-Gennes equations are solved self-consistently by the kernel polynomial method, and the spatial fluctuations of the superconducting order parameters caused by disorder are obtained. Furthermore, we calculate the density of states, the optical conductivity and the general inverse participation ratio, and we find that the energy gap in the density of states can be constrained by increasing disorder, accompanied with the disappearance of the Drude weight in optical conductivity. We also find that the electron states are Anderson localized by disorder and the superconductor-insulator transition happens in double-layer graphene.

Keywords: double-layer graphene, anderson localization, superconductor-insulator transition, kernel polynomial method

PACS: 73.22.Pr, 74.81.-g, 71.23.An

DOI: 10.7498/aps.62.057303

* Project supported by the National Basic Research Program (Grant No. 2011CBA00108), and the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 10974018, 11174036).

[†] Corresponding author. E-mail: yunsong@bnu.edu.cn