

多层石墨烯的表面起伏的分子动力学模拟*

常旭†

(商丘师范学院物理与电气信息学院, 商丘 476000)

(2014年2月7日收到; 2014年2月27日收到修改稿)

运用经典分子动力学方法, 研究了呈现不同堆积方式的多层石墨烯在不同温度下的表面起伏, 并且和单层、双层石墨烯做对比. 计算发现: 室温下, 多层石墨烯中存在着横向特征尺寸约为100 Å的起伏, 该尺寸会随着温度的升高而增大; 同时, 起伏的高度也随着温度的升高而增大. 这些石墨烯的层内起伏高度关联函数都遵从幂指数标度行为 $G_h(q) \propto q^{-\alpha}$, 对于同一种石墨烯, 温度越高幂指数越小; 而在同一温度下, 不同堆积方式的石墨烯的幂指数也不同. 所有这些特征都来源于温度以及层间耦合作用引起的非谐效应.

关键词: 多层石墨烯, 分子动力学, 堆积, 起伏

PACS: 61.48.Gh, 83.10.Rs, 61.72.Nn, 62.30.+d

DOI: 10.7498/aps.63.086102

1 引言

单层石墨烯是由单层碳原子按照蜂窝状结构排列而成的二维原子晶体, 它可以包裹成零维的富勒烯、卷曲而成一维的碳纳米管, 或者是堆积形成三维的体相石墨^[1,2]. 近年来, 关于单层石墨烯的稳定性问题一直是人们讨论的热点. 一般来说, 随着物质厚度的减小, 熔化温度也急剧降低, 当厚度只有几十个原子层的时候, 系统会变得不稳定^[3,4]. 根据 Mermin-Wagner 的理论, 长波起伏会使长程有序的二维晶体受到破坏^[5-7]. Peierls^[8] 和 Landau^[9] 也认为热起伏将会破坏二维晶体的长程序, 使其在有限温度下熔化, 严格的二维晶体不能稳定存在. 然而, 2004年, Novoselov等^[10]第一次用微机械剥离法从体相石墨上获得单层和2—3层的石墨烯, 且发现它们可以在外界环境中稳定地存在. 对此, Meyer等^[11]利用透射电镜观察到这些石墨烯并不完全平整, 而是表现出物质微观状态下固有的粗糙性, 其表面会出现起伏. 之后的理论研究^[12]表明, 单层石墨烯为了降低表面能, 倾向于从二维向三维形貌转变, 因此, 正是这些三维褶皱巧

妙地促使了二维晶体结构稳定存在.

单层石墨烯独特的结构, 使其具有很多奇特的物理性质. 例如, 在其费米面附近, 单层石墨烯呈现出特殊的色散关系, 其中的传导电子满足有效质量为零的相对论 Dirac 方程, 同时还具有反常的整数量子霍尔效应, 以及室温下有长程弹道输运和较高的电荷迁移率. 这些特殊的性质使其在以后的纳米光、电子器件中有着很高的潜在应用价值^[13,14]. 而表面起伏的存在会对石墨烯的电子、光学等方面的性质产生明显的影响^[15,16], 同时作为一种散射机制决定了石墨烯上的电子迁移率^[17,18], 限制了电子在平面内的传导并产生电荷密度的不均匀性. 更为重要的是, 这些起伏是不是也存在于其他二维晶体中, 以及如何维持二维晶体的稳定性都值得进行进一步的实验和理论研究.

同时, 双层和多层石墨烯也引起了人们的兴趣. 从某些方面来讲, 双层和多层石墨烯比单层石墨烯更有用, 因为人们可以通过其层间相互作用或者在垂直于层面的方向加上一个电场以打开一个能带, 这在纳米电子学中的应用是很重要的. 由于天然的体相石墨采用的是 AB (Bernal) 堆积方式,

* 国家自然科学基金(批准号: 11247289, 11204169)、河南省教育厅科学技术研究重点项目(批准号: 12B140012, 13B140191)、商丘师范学院青年科研基金(批准号: 2011QN13)和商丘师范学院教改项目(批准号: 2012jgxm25)资助的课题.

† 通讯作者. E-mail: chx2113@gmail.com

因此,过去人们主要对AB堆积的双层石墨烯进行了理论和实验上的研究.2009年,Liu等^[19]在实验上利用高分辨率透射电子显微镜区分出了AA堆积的双层石墨烯.在理论上,许多研究小组也讨论了AA和AB堆积的双层石墨烯的电子性质^[20-22],表明了费米面的形状和传导电子的性质与层间相互作用和堆积方式有很大关系.汪涛等^[23]则利用第一性原理的方法,研究了AB,AA堆积的双层石墨烯在电场作用下的层间距和能带结构等方面的变化.在另一方面,实验表明双层石墨烯像单层石墨片一样有着热起伏^[13,14,24].我们前期的工作讨论了呈现AA和AB堆积的双层石墨烯表面起伏与温度以及堆积方式的关系,表明层间相互作用会对双层石墨烯的起伏产生一定的影响^[25].

除了双层石墨烯,许多学者对于多层石墨烯也进行了研究.2010年,Norimatsu等^[26]观测到了ABC堆积的三层石墨烯,Mak等^[27]则观察到了呈现ABAB和ABCA堆积的四层石墨烯.在理论上,朱国宝和章鹏^[28]利用Kubo-Greenwood公式讨论了ABA堆积的三层石墨烯的光传导性质.然而,迄今为止,对于呈ABA,ABC堆积的三层石墨烯和呈ABAB,ABCA堆积的四层石墨烯的表面起伏的相关性质还未有研究,我们有兴趣讨论这些多层石墨烯的表面起伏的特征以及它们与层间相互作用、温度等因素的关系.因此,在本文中,我们利用经典分子动力学方法,研究了ABA,ABC堆积的三层石墨烯和ABAB,ABCA堆积的四层石墨烯的表面起伏.计算结果表明,对于这些多层石墨烯,其表面起伏在横向上也有一个特征尺寸,且随着温度的升高而增大,这和单层石墨烯是类似的.另外,温度对表面起伏的高度也有一定程度的影响;同时,由于不同的层间相互作用,相同层数不同堆积方式下的多层石墨烯,其表面起伏的性质也表现出一些差异.

2 模型和计算方法

为了避免在 x 和 y 方向尺寸的不相等而带来的不对称性,我们取管轴方向长度为 $2n$ 层的armchair(n,n)碳管展开的结构作为多层石墨烯中某一单层的初始结构.例如,在计算中我们主要是取单层包含8万个碳原子的体系,它由轴向是200个平移周期的(100,100)碳管展开得到,其长宽比大约是1.15:1.具体来讲,可标记第 i 层的A,B原子

为 A_i, B_i .以三层石墨烯为例,其构型如图1所示,在ABA堆积中, B_1, A_2, B_3 这些格位原子在垂直于石墨层的同一列上,而 A_1, B_2, A_3 则是分别处于相邻层的六边形的中心的上面或者下面.ABC多层石墨烯有一个不同的排布,其中 B_1 和 A_2 的格位原子在垂直于石墨层的同一列上,且位于第三层的六边形的中心的上面,同样, B_2, A_3 的格位原子在同一列,并位于第一层的六边形的中心的上面(如图1(b)所示).也即在ABA结构中,第一层和第三层对应的碳原子有着相同的 x 和 y 坐标,第二层则是相当于将第一层沿着armchair链的方向平移了一个C—C键长而得到的;在ABC结构中,下层原子分别相对于上层原子沿着armchair链的方向平移一个C—C键长.此外,初始的层间距均取作3.4 Å.先利用拟牛顿算法中的Broyden-Fletcher-Goldfarb-Shanno(BFGS)方法^[29]对结构进行优化,得到了1.463 Å的最佳键长.

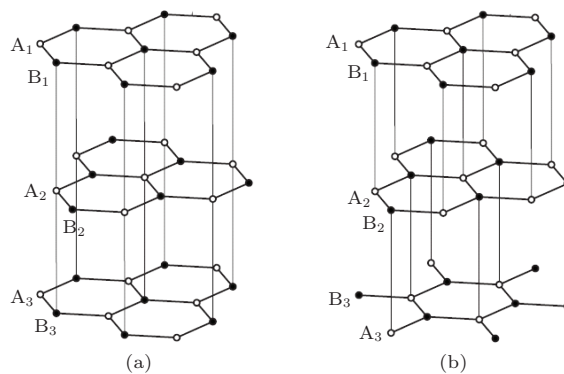


图1 ABA和ABC堆积的三层石墨烯的结构示意图

我们知道,实验上对石墨烯进行研究时,常将其附着在微型支架上或者置于衬底上,这样势必使得石墨烯的某些性质受到依附载体的影响,为了避免这些干扰,人们常借助数值计算的方法来模拟石墨烯在微观尺度下的特性.例如,韩同伟等^[30]对石墨烯在接近绝对零度条件下的弛豫性能进行了分子动力学模拟,考察了石墨烯在自然状态下的结构特征.王卫东等^[31]也利用分子动力学方法讨论了三种长宽比的单层石墨烯纳米带在不同热力学温度下的弛豫性能.本文采用经典分子动力学方法来模拟石墨烯的表面起伏,模拟中用LAMMPS软件包^[32].在模拟过程中,选择正则系综,利用Nosé-Hoover热浴来保持系统的温度不变^[33].采用了Velocity-Verlet积分方法,时间步长设定为1 fs.由于Tersoff势能够很好地描述碳原子之间的相互

作用并且被广泛地用于碳基材料的计算中^[34], 所以在模拟中, 层内碳原子的相互作用使用 Tersoff 势; 而层间碳原子的相互作用则用 Lennard-Jones 势^[35] 来描述:

$$U_{cc} = 4\varepsilon_{cc} \sum_{ij}^N \left[\left(\frac{\sigma_{cc}}{r_{ij}} \right)^{12} - \left(\frac{\sigma_{cc}}{r_{ij}} \right)^6 \right], \quad (1)$$

其中, N 表示单层石墨烯中碳原子总数, $r_{i,j}$ 表示碳原子之间的距离, $\varepsilon_{cc} = 2.964$ meV, $\sigma_{cc} = 3.407$ Å^[36,37]; Lennard-Jones 势的截断距离取作 10 Å. 石墨层平铺在 xy 平面, 且在 x, y 方向利用了周期性边界条件.

我们的模拟多数是在室温 $T = 300$ K 下进行的, 为了考虑温度对热起伏的影响, 也在 $T = 100, 1000$ K 下做了一系列的模拟. 在每一温度下, 总的模拟时间为 2.5 ns, 其中在前 0.2 ns, 系统和热浴的响应时间为 0.01 ps, 随后在同样的温度下弛豫 1.3 ns, 系统和热浴的响应时间是 0.1 ps; 在最后的 1.5—2.5 ns 时间段内对样品取样, 并进行时间平均, 所得的数据用于做最终的物理量的统计.

由于关联函数能够很好地反映不同的随机变量之间的关系, 因此, 在本工作中它被用来分析石墨烯表面起伏的物理性质. 我们计算了层内起伏高度的关联函数, 其定义如下:

$$g_h(\mathbf{r}) = h(\mathbf{r}'_i)h(\mathbf{r}'_i + \mathbf{r}), \quad (2)$$

式中, h 表示碳原子在 Z 方向偏离该层平衡位置的距离, \mathbf{r}'_i 是第 i 个原子的位置坐标, \mathbf{r} 表示第 i 个原子与和它关联的原子之间的相对位移. 在计算层内关联函数的时候, 相关联的两个原子位于同一层内; 对层内关联函数做傅里叶变换得到相应的动量空间的关联函数 $G_h(q)$, 它更能够反映出表面起伏在实空间和倒空间的力学性质和统计特性. 一般情况下, 我们对其做角度平均, 从而得到 $G_h(q)$, 下文中对层内起伏的高度关联函数的讨论就是针对 $G_h(q)$ 展开的.

3 计算结果与讨论

对于 ABA 堆积的三层石墨烯, 选用的是一层包含 8 万个碳原子的系统 (即三层共 24 万个碳原子). 在图 2(a) 给出了温度为 300 K 时上层石墨烯在实空间的表面起伏示意图, 图中用不同的颜色来表示碳原子在 Z 方向的偏离量 $h(\mathbf{r})$. 可以看出, 图上存在许多尺寸大约在几个纳米的不规则的区

域. 计算发现上下起伏的最大值为 1.8 Å, 这比我们之前计算的双层石墨烯的表面起伏略小, 后者约为 2.2 Å^[25], 这说明层间碳原子相互作用对表面起伏起到一定的抑制作用. 同时我们也对 $h(\mathbf{r})$ 做了时间平均, 并且进行了傅里叶变换得到 $h(q)$ (见图 2(b)), 与实空间的结果对比后可以看出, 傅里叶变换图上有一些规则的斑点区, 表明 $h(q)$ 在这些点存在着最大值.

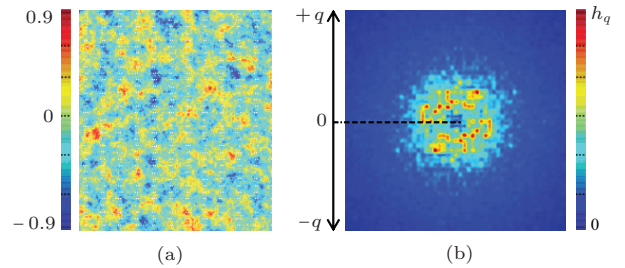


图2 (网刊彩色) (a) 300 K 时 ABA 堆积的三层石墨烯中上层碳原子在 Z 方向的起伏图, 图中颜色表示起伏的高度, 红色表示凸起, 蓝色表示凹陷; (b) (a) 图的二维傅里叶变换图, 正中心表示的空间频率是零, 暗的部分表示相应空间频率分量为零或者很小, 亮的部分表示有相应的频率分量

我们还计算了石墨烯的层内起伏高度关联函数 $G_h(q)$, 如图 3(a) 所示. 在 $T = 300$ K 时, 对于 ABA 堆积, $G_h(q)$ 的最大值约位于 $q_c = 0.062$ Å⁻¹ 处, 对应于实空间的平均尺寸是 101 Å, 这与实验结果比较一致^[11]. 由于在薄膜的谐振近似情况下, 弯曲和拉伸模式是退耦合的, 这使得弯曲模式的关联函数的傅里叶变换满足幂律关系 $G_h(q) \propto q^{-\alpha}$, 其中 $\alpha = 4$ ^[2, 38]. 在计算中, 我们主要关注 0.15 Å⁻¹ $< q < 1.0$ Å⁻¹ 的范围. 从图 3(a) 可以看出, 在这一区域内, $G_h(q)$ 的确满足前面提到的幂指数标度律, 并且得到 $\alpha = 2.94$. 这与简谐近似有一定差异, 表明在这种堆积结构存在着较强的非谐作用, 意味着层内的弯曲和拉伸模式的耦合不可忽视.

为了考查温度对多层石墨烯起伏的影响, 我们比较了温度在 1000, 300 和 100 K 下的层内起伏的关联函数 $G_h(q)$, 相应的结果也在图 3 中给出. 以 ABA 堆积的石墨烯为例, 主要发现有以下几点差异: 1) 这三种温度下, 幂指数 α 分别为 2.88, 2.94, 3.10, 即 α 随着温度的降低而逐渐增大, 说明在高温下, 系统的非谐效应更加明显. 对此, 可以这样唯象地理解, 高温使得系统变得更“软”、更“松弛”, 对谐振近似的偏离就更大; 2) 表面起伏的高度随着

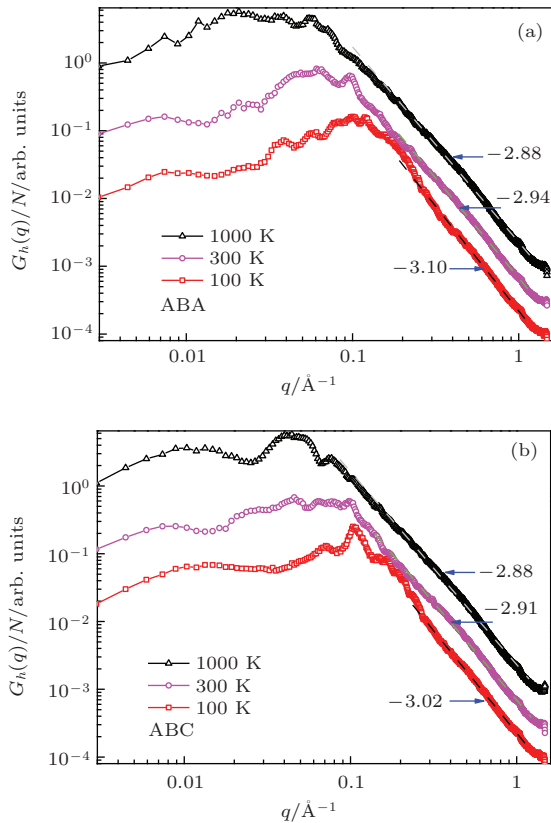


图3 温度分别为1000, 300, 100 K时, 两种堆积类型的三层石墨烯的层内关联函数 $G_h(q)$ 随 q 的变化情况(这里给出的是对数关系) (a) ABA型; (b) ABC型; 虚线为大 q 情况下 $G_h(q)$ 的幂律关系; 每一温度下, 上中下三层的 $G_h(q)$ 函数曲线基本重合, 此处仅以最上层石墨烯的函数曲线为代表

温度的升高而增大, 例如100 K时, 该值约为1.2 Å, 1000 K时则增大为3.5 Å, 这不难理解, 温度高时原子在 Z 方向的振动必然比低温时更加剧烈; 3) 层内关联函数的峰值位置 q_c 随着温度的升高而红移, 即在实空间中, 起伏的平均横向尺寸随温度升高而增大. 这和我们前期工作中对双层石墨烯的计算是一致的. 例如, 在100 K时, $q_c = 0.098 \text{ \AA}^{-1}$, 对应于实空间内的平均尺寸是64 Å; 在1000 K时, $q_c = 0.022 \text{ \AA}^{-1}$, 对应于实空间内的平均尺寸是288 Å. 这是因为在低温时, 某些原子的振动几乎可以忽略, 它们所在的区域可看作是平坦的, 也即对起伏的横向尺寸没有贡献. 高温情况下, 更多的原子将会被激发起来, 导致此时表面起伏在实空间的平均横向尺寸变大. 需要指出的是, 在高温1000 K下, 起伏的平均横向尺寸和实验上所谓的石墨烯起伏的“特征尺寸”100 Å偏离很大. 结合计算结果, 我们可以这样理解: 一般来讲, 在小 q 区间, 高度关联函数呈现为一个展宽的峰, 意味着表面起伏在实空间的尺寸是在一定的范围内取值的, 不过我们通

常是取其平均值作为起伏的横向“特征尺寸”, 这一点在高温时尤其明显, 现有的计算结果可以定性地说明高低温下起伏尺寸的差异. 以上这些特点, 在ABC堆积石墨烯中同样存在, 如图3(b)所示.

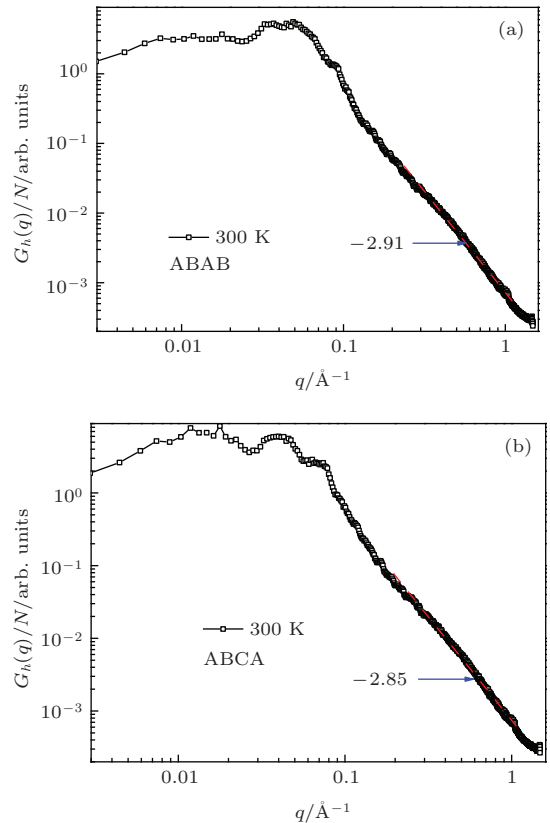


图4 温度为300 K时, 两种堆积类型的四层石墨烯的层内关联函数 $G_h(q)$ 随 q 的变化情况(这里给出的是对数关系) (a) ABAB型; (b) ABCA型; 虚线为大 q 情况下 $G_h(q)$ 的幂律关系; 每一温度下, 各个石墨片层的 $G_h(q)$ 函数曲线基本重合, 此处仅给出最上层石墨烯的函数曲线

在同一温度下, 我们也进一步比较了ABA和ABC两种堆积方式对关联函数造成的差异. 对比图3(a)和(b)可以看出, 在1000 K下, ABA石墨烯的关联函数的峰值尤为不明显, 呈现一定范围的分布, 而ABC石墨烯的关联函数的峰值则相对较明显; 此温度下, 在 $0.15 \text{ \AA}^{-1} < q < 1.0 \text{ \AA}^{-1}$ 的范围内, 两种类型的石墨烯对应的幂指数 α 均约为2.88, 与具体的堆积方式无关. 我们可以这样理解: 高温时温度对原子振动的影响要超过层间耦合相互作用, 非谐效应很大程度上取决于温度. 这一现象随着温度的降低而发生改变, 比如300 K时, ABA和ABC石墨烯中, 幂指数分别为2.94和2.91, 二者有一些差异; 温度下降到100 K时, 这两种石墨烯对应的幂指数分别为3.10和3.02, 这种差异更加突出. 说明随着温度的降低, 层间作用则越明显.

也即在低温时, 非谐效应主要是来源于层间耦合作用.

除了三层石墨烯, 四层的ABAB和ABCA型石墨烯也为人们所关注. 这里我们仅对室温300 K的情况加以简要讨论. 如图4所示, 在低频区, 这两种类型的四层石墨烯的层内关联函数均有较大的展宽, 峰值不太明显, 意味着起伏斑块的横向尺寸也是在一定范围内取值, 这和三层石墨烯的情况类似, 应该与层间复杂的耦合作用有关. 其次, 两种类型下对应的幂指数分别为2.91和2.85, 这和三层情况下幂指数的大小关系是一致的, 上述计算表明ABA和ABC三层石墨烯的幂指数分别为2.94和2.91, 这些都是由于堆积方式的不同造成的. 再次, 不难看出, 层数越多幂指数越小, 即相对于简谐近似中 $\alpha = 4$ 的偏离越大, 说明层数越多层间耦合带来的非谐效应越明显.

4 结 论

本文利用经典分子动力学的方法, 研究了呈现ABA, ABC, ABAB以及ABCA堆积的几种多层石墨烯的表面起伏随温度等因素的变化情况, 得到以下结论: 1) 多层石墨烯的层内起伏的高度关联函数的傅里叶变换满足幂律关系 $G_h(q) \propto q^{-\alpha}$, 且幂指数 α 均小于薄膜简谐近似下的幂指数4, 这源于层内的弯曲和拉伸模式的耦合; 2) 幂指数 α 均随着温度的升高而减小, 这是由于温度带来了非谐效应; 3) 随着温度的升高, 表面起伏的高度和横向尺寸都将增大, 这是因为高温促使了更多的原子发生更剧烈的振动; 4) 相同温度下, 堆积方式的不同也将影响石墨烯的表面起伏.

感谢中国矿业大学物理系李会超副教授的讨论.

参考文献

- [1] Morozov S V, Novoselov K S, Katsnelson M I, Schedin F, Ponomarenko L A, Jiang D, Geim A K 2006 *Phys. Rev. Lett.* **97** 016801
- [2] Geim A K, Novoselov K S 2007 *Nat. Mater.* **6** 183
- [3] Nelson D R, Peliti L 1987 *J. Phys.* **48** 1085
- [4] Doussal P Le, Radzihovsky L 1992 *Phys. Rev. Lett.* **69** 1209
- [5] Mermin N D, Wagner H 1966 *Phys. Rev. Lett.* **17** 1133
- [6] Mermin N D 1968 *Phys. Rev.* **176** 250
- [7] Zinke-Allmang M, Feldman L C, Grabow M H 1992 *Surf. Sci. Rep.* **16** 377
- [8] Peierls R E 1934 *Helv. Phys. Acta* **7** 81
- [9] Landau L D 1937 *Phys. Z. Sowjetunion* **11** 26
- [10] 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
- [11] Meyer J C, Geim A K, Katsnelson M I, Novoselov K S, Booth T J, Roth S 2007 *Nature* **446** 60
- [12] Fasolino A, Los J H, Katsnelson M I 2007 *Nat. Mater.* **6** 858
- [13] 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
- [14] Zhang Y B, Tan Y W, Stormer H L, Kim P 2005 *Nature* **438** 201
- [15] Schedin F, Geim A K, Morozov S V, Hill E W, Blake P, Katsnelson M I, Novoselov K S 2007 *Nat. Mater.* **6** 652
- [16] Carlsson J M 2007 *Nat. Mater.* **6** 801
- [17] Katsnelson M I, Geim A K 2008 *Phil. Trans. R. Soc. A* **366** 195
- [18] Zakharchenko K V, Katsnelson M I, Fasolino A 2009 *Phys. Rev. Lett.* **102** 046808
- [19] Liu Z, Suenaga K, Harris P J F, Iijima S 2009 *Phys. Rev. Lett.* **102** 015501
- [20] Lu C L, Chang C P, Lin M F 2007 *Eur. Phys. J. B* **60** 161
- [21] Ho J H, Lu C L, Hwang C C, Chang C P, Lin M F 2006 *Phys. Rev. B* **74** 085406
- [22] de Andres P L, Ramírez R, Vergés J A 2008 *Phys. Rev. B* **77** 045403
- [23] Wang T, Guo Q, Liu Y, Sheng K 2012 *Chin. Phys. B* **21** 067301
- [24] Meyer J C, Geim A K, Katsnelson M I, Novoselov K S, Oberfell D, Roth S, Girit C, Zettl A 2007 *Solid State Commun.* **143** 101
- [25] Chang X, Ge Y, Dong J M 2010 *Eur. Phys. J. B* **78** 103
- [26] Norimatsu W, Kusunoki M 2010 *Phys. Rev. B* **81** 161410
- [27] Mak K F, Lui C H, Shan J, Heinz T F 2009 *Phys. Rev. Lett.* **102** 256405
- [28] Zhu G B, Zhang P 2013 *Chin. Phys. B* **22** 017303
- [29] Liu D C, Nocedal J 1989 *Mathematical Programming* **45** 503
- [30] 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]
- [31] Wang W D, Hao Y, Ji X, Yi C L, Niu X Y 2012 *Acta Phys. Sin.* **61** 200207 (in Chinese) [王卫东, 郝跃, 纪翔, 易成龙, 牛翔宇 2012 物理学报 **61** 200207]
- [32] <http://lammps.sandia.gov> [2014-02-06]
- [33] Hoover W G 1985 *Phys. Rev. A* **31** 1695
- [34] Tersoff J 1988 *Phys. Rev. B* **37** 6991
- [35] Lennard-Jones J E 1924 *Proceedings of the Royal Society* (Vol. 106) pp463-469
- [36] Popov V N, Henrard L 2002 *Phys. Rev. B* **65** 235415
- [37] Lu J P, Yang W 1994 *Phys. Rev. B* **49** 11421
- [38] Los J H, Katsnelson M I, Yazyev O V, Zakharchenko K V, Fasolino A 2009 *Phys. Rev. B* **80** 121405

Ripples of multilayer graphenes: a molecular dynamics study*

Chang Xu[†]

(School of Physics and Electrical Information, Shangqiu Normal University, Shangqiu 476000, China)

(Received 7 February 2014; revised manuscript received 27 February 2014)

Abstract

Using the classical molecular dynamics simulations, we have investigated the thermally-excited ripples of the multilayer graphenes at different temperatures, and compared them with those of the single- and doublelayer graphene. It is found that: 1) the ripples in multilayer graphene are intrinsic with a characteristic size of about 100 Å at room temperature, increasing with increase of temperature; at the same time, the ripple's height also increases with the temperature; 2) the ripple's intralayer height-height correlation functions for the multilayer graphene follow a power-law behavior, $G_h(q) \propto q^{-\alpha}$; the scaling exponent decreases as temperature increases. Moreover, the scaling exponents are different for different types of multilayer graphene even at the same temperature. All these phenomena result from the anharmonic effects which are induced by the temperature and the interlayer interactions.

Keywords: multilayer graphene, molecular dynamics, stacking, ripple

PACS: 61.48.Gh, 83.10.Rs, 61.72.Nn, 62.30.+d

DOI: 10.7498/aps.63.086102

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11247289, 11204169), the Key Program of Science and Technology Research of the Education Department of Henan Province, China (Grant Nos. 12B140012, 13B140191), the Science Research Foundation for Young Scientists of Shangqiu Normal University, China (Grant No. 2011QN13), and the Education Reform Project of Shangqiu Normal University, China (Grant No. 2012jgxm25).

† Corresponding author. E-mail: chx2113@gmail.com