

三角形石墨烯量子点阵列的磁电子学特性和磁输运性质

胡锐 范志强 张振华

Magneto-electronic and magnetic transport properties of triangular graphene quantum-dot arrays

Hu Rui Fan Zhi-Qiang Zhang Zhen-Hua

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, **66**, 138501 (2017) DOI: 10.7498/aps.66.138501

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.138501>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2017/V66/I13>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

功能化扶手椅型石墨烯纳米带异质结的磁器件特性

Magnetic device properties for a heterojunction based on functionalized armchair-edged graphene nanoribbons

物理学报.2016, 65(11): 118501 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.118501>

基于钴和坡莫合金纳磁体的全自旋逻辑器件开关特性研究

Switching characteristics of all spin logic devices based on Co and Permalloy nanomagnet

物理学报.2016, 65(9): 098501 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.098501>

界面铁掺杂锯齿形石墨烯纳米带的自旋输运性能

Spin transport properties for iron-doped zigzag-graphene nanoribbons interface

物理学报.2016, 65(6): 068503 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.068503>

面内形状各向异性对自旋转矩振荡器零场振荡特性的影响

Effect of the intrinsic in-plane shape anisotropy on the oscillation characteristics of zero-field spin torque oscillator

物理学报.2015, 64(19): 198502 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.198502>

应力调制的自旋转矩临界电流

Spin-torque critical current tuned by stress

物理学报.2014, 63(13): 138501 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.138501>

三角形石墨烯量子点阵列的磁电子学特性和磁输运性质*

胡锐 范志强 张振华†

(长沙理工大学物理与电子科学学院, 长沙 410114)

(2017年3月1日收到; 2017年4月21日收到修改稿)

基于密度泛函理论的第一性原理计算方法, 研究了三角形石墨烯纳米片用不同连接方式拼接而成的四种一维量子点阵列(1D QDAs)的磁电子学性质和磁输运性质. 结合能计算表明所有1D QDAs是非常稳定的. 特别是研究发现1D QDAs的电子和磁性质不仅依赖于磁性态, 也明显依赖于连接方式, 如: 在无磁态时, 不同量子点阵列(QDAs)可为金属或窄带隙半导体. 在铁磁态时, 不同QDAs可为半金属(half-metal)或带隙不同的双极化磁性半导体. 而在反铁磁态时, 不同QDAs为带隙不等的半导体. 这些结果意味着连接方式对有效调控纳米结构电子和磁性质扮演重要的角色. 1D QDAs呈现的半金属或双极化磁性半导体性质对于发展磁器件是非常重要的, 而这些性质未曾在本征石墨烯纳米带中出现. 同时, 我们也研究了一种阵列的磁器件特性, 发现其拥有完美的(100%)单或双自旋过滤效应, 尤其是呈现超过 $10^9\%$ 的巨磁阻效应.

关键词: 三角形石墨烯纳米片, 一维量子点阵列, 磁电子学性质, 磁输运性质

PACS: 85.75.-d, 71.15.-m, 72.25.-b, 73.63.-b

DOI: 10.7498/aps.66.138501

1 引言

自2004年石墨烯被曼彻斯特大学Novoselov等^[1]通过机械剥离法成功制备以来, 由于其新奇的电、磁、机械和热性质在凝聚态物理和材料科学领域得到了广泛的研究^[2-9]. 石墨烯是一种由碳原子紧密排列成的苯环结构单层2维(2D)系统, 它的载流子迁移率高达 $2 \times 10^5 \text{ cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$, 使其具有优良的导电性能, 且是目前发现的最薄、最坚韧的纳米材料, 所以它具有极好的应用前景.

然而, 石墨烯是零带隙半金属(semi-metal), 故不能在电子器件中直接实现“关”的效应, 从而极大地限制了它在纳米电子领域的应用, 所以人们致力于寻找打开带隙的方法. 目前, 实验上主要有两种方法: 物理方法和化学方法. 物理方法主要通过几何裁剪获得有限宽度的1维(1D)石墨

烯纳米带(GNRs)^[10-14]或0维(0D)石墨烯纳米片(GNFs)^[15-18], 根据边缘的不同, 1D GNRs可分为扶手椅型石墨烯纳米带(AGNRs)和锯齿型石墨烯纳米带(ZGNRs). ZGNRs为金属, 而AGNRs是半导体^[19]. 对于0D GNFs, 由于结构简单、物性特别, 已成为重要的研究对象, 尤其对正三角形石墨烯纳米片有较多的研究^[20-24]. 而化学方法是对石墨烯的边缘及表面进行化学修饰或异质原子掺杂等. 如Lee和Cho^[25]研究发现: 一边双氢化、一边氧化的ZGNRs表现半导体性, 而王鼎等^[26]研究表明BN链掺杂的ZGNRs虽然不能打开带隙, 但其金属性却降低了. 此外, 将石墨烯纳米片之间拼接成不同的结构也是一种控制电子性质的有效方法, 虽然目前研究还较少, 但在未来制造纳米集成电路的实际应用中, 将是一个很重要的概念. 最近, Yuan等^[27]研究了一种有趣的拼接: 将石墨烯纳米片沿着一

* 国家自然科学基金(批准号: 61371065, 11674039)和湖南省自然科学基金(批准号: 14JJ2076, 2015JJ3002, 2015JJ2009, 2015JJ2013)资助的课题.

† 通信作者. E-mail: lgzzhang@sohu.com

个方向周期连接成一维阵列,发现它可以有效地调节电子性质,出现金属和带隙丰富的半导体.但他们考虑的三角形纳米片连接方式较少,且只考虑无磁(NM)态,也没有研究这种阵列的输运性质.所以,系统全面地研究三角形石墨烯纳米片的连接方式,探讨其在磁性态下的电子结构(尤其是带隙的变化)和输运性质是非常必要的.

本文考虑将三角形石墨烯纳米片采用不同的连接方式构建四种一维量子点阵列(1D QDAs),并利用密度泛函理论的第一性原理研究它们的磁电子学性质和磁输运性质.研究发现1D QDAs的电子和磁性性质不仅与不同的磁性态相关,也明显依赖于连接方式,这意味着对纳米结构采用合适的连接方式能有效地调控其电子和磁性.特别是发现1D QDAs呈现的半金属或双极化磁性半导体性质对于发展磁器件非常重要,而这些性质未曾在本征石墨烯纳米带中出现.同时,我们也研究了一种阵列的磁器件特性,发现其具有优良的自旋过滤效应及巨磁阻效应.

2 模型和方法

我们考虑的1D QDAs如图1所示,它是由三角形石墨烯纳米片沿一个方向连接而成.与GNRs一样,裁剪成的三角形纳米片可以是扶手椅型边

缘或是锯齿型边缘,由于扶手椅型边缘无磁性,故本文只选取锯齿型三角形石墨烯纳米片(ZTGNFs)来连接.如图1(a)所示,以三角形每边六元环的数目 R 来表示纳米片的大小,这里选取将 $R = 5$ 的ZTGNFs为代表进行研究.考虑四种连接方式:1)所有朝上的ZTGNFs“底边对齐,顶点相连”构成一维阵列,优化后相邻三角形纳米片之间形成两个键,通过四元环连接,然后再氢化,最后优化得到的模型如图1(b)所示,记为M1;2)所有朝右的ZTGNFs“顶点连底边”构成一维阵列,优化后相邻三角形纳米片之间形成三个键,通过两个五元环连接,然后再氢化,最后优化得到的模型如图1(c)所示,记为M2;3)所有交替朝左朝右的ZTGNFs“底边连底边,顶点连顶点”构成一维阵列,优化后相邻三角形纳米片之间形成五个键或一个键相连,通过四个六元环或者一个键连接,然后再氢化,再优化,得到模型如图1(d)所示,记为M3;4)所有交替朝上朝下ZTGNFs“底边对齐,顶点相连”构成一维阵列,优化后相邻三角形纳米片之间通过一个键连接,然后再氢化,最后优化得到的模型如图1(e)所示,记为M4.为了研究1D QDAs的多重反铁磁态(AFM)性质,对于M1, M2, M3和M4,我们选取两个三角形纳米片作为一个单胞来研究,图1中的黑色虚线框就表示这样的单胞.

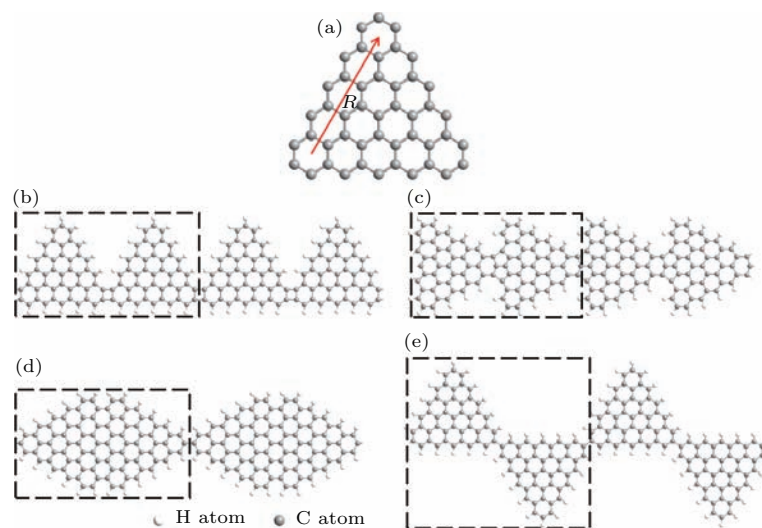


图1 (a) 锯齿型三角形石墨烯纳米片; 锯齿三角形石墨烯纳米片构成的四种H饱和的一维量子点阵列: (b) M1, (c) M2, (d) M3, (e) M4

Fig. 1. (a) Zigzag-edged triangular graphene nanoflake; four hydrogen-saturated one-dimensional quantum-dot arrays consisting of zigzag triangular graphene nanoflakes: (b) M1, (c) M2, (d) M3, (e) M4.

我们采用基于密度泛函理论和非平衡格林函数的第一性原理方法计算上述模型的磁电子学性质和输运性质,并在ATK软件包^[28-32]中实现.为解Kohn-Sham方程,选用自旋极化的Perdew-Burke-Ernzerhof形式的广义梯度近似(SGGA)来描述电子之间相互作用的电子交换-关联作用.电子的本征波函数则采用原子轨道的线性组合,考虑到原子的电极化效应,所有原子选DZP为基函数组,原子实则采用Troullier-Martins模守恒赝势.在第一布里渊区 x, y 和 z 方向采用 $1 \times 1 \times 300$ 的 k 点抽样,其中 z 为QDAs长度方向.能量截断半径(mesh cut-off)的取值为250 Ry.选择Quasi Newton方法对几何结构进行优化,使其原子间的残存应力减少到0.01 eV/Å以内.在整个计算过程中,除QDAs长度方向外,其他两个方向选取15 Å的真空胞(vacuum cell),以降低相邻阵列之间的耦合作用,从而模拟一个孤立的一维阵列.为了简便,在所有计算的电子结构中,其费米能级(E_F)设定为0.

3 计算结果与分析

3.1 结构稳定性及无磁态电子特性

为了呈现构造的QDAs结构的稳定性,我们首先计算结合能(E_b),其定义为: $E_b = (E_{\text{QDAs}} -$

$n_C E_C - n_H E_H)/(n_C + n_H)$,其中 E_{QDAs} , E_C 和 E_H 分别表示一个单胞的总能量、一个孤立C原子和一个孤立H原子的能量; n_C 和 n_H 分别是一个单胞中C原子和H原子的数目.计算结果见表1, M1, M2, M3和M4的结合能分别为-7.269, -7.366, -7.475和-7.157 eV/atom满足 $E_b(\text{M3}) < E_b(\text{M2}) < E_b(\text{M1}) < E_b(\text{M4})$,即相连发生在“底边”上的阵列(M2和M3)比相连在“顶点”的阵列(M1和M4)更稳定.

QDAs在NM态的电子特性如图2所示,图2(a)–(d)分别对应M1, M2, M3和M4的能带结构(BS)、总态密度(DOS)和投影态密度(PDOS).投影态密度为总态密度投影到边缘的C原子上.从BS及DOS可以看出:模型M1及M4有子能带且有DOS峰落在费米能级上,所以表现为金属性,与锯齿石墨烯纳米带在NM态时的电子结构相似.而M2及M3的情况不同,在费米能级上存在带隙,大小分别为61及75 meV,即它们为半导体.由此可见:相连发生在“底边”上的阵列M2, M3更易打开带隙.总之,通过控制纳米片的连接方式,可以使阵列产生不同带隙.此外,对所有模型,从PDOS可以看出,费米能级上或费米能级附近的DOS峰主要来源于边缘碳原子,也就是说边缘态对于QDAs的电子特性扮演着关键角色.

表1 QDAs的结合能和磁电子学性质
Table 1. The binding energy and magneto-electronic properties of QDAs.

Structure	E_b	M_{FM} / $\mu_B \cdot \text{cell}^{-1}$	E_{FM} /meV·cell ⁻¹	$E_{\text{AFM(I)}}$ /meV·cell ⁻¹	$E_{\text{AFM(II)}}$ /meV·cell ⁻¹	$E_{\text{AFM(III)}}$ /meV·cell ⁻¹	Δ_{NM} /eV	Δ_{FM} /eV	$\Delta_{\text{AFM(I)}}$ /eV
M1	-7.269	4.015	48	0	320	330	0.0	0.530	0.610
							(M)	(BS)	(S)
M2	-7.366	4.003	170	0	297	323	0.061	0.266	0.244
							(S)	(HM)	(S)
M3	-7.475	1.985	157	0	205	205	0.075	0.219	0.671
							(S)	(BS)	(S)
M4	-7.157	7.994	84	0	607	696	0.0	0.617	0.780
							(M)	(BS)	(S)

其中 E_b 表示阵列的结合能; M_{FM} 表示单胞铁磁态的磁距; E_{FM} , $E_{\text{AFM(I)}}$, $E_{\text{AFM(II)}}$ 和 $E_{\text{AFM(III)}}$ 分别是单胞在FM态、AFM(I)态、AFM(II)态和AFM(III)态下的相对能量; Δ_{NM} , Δ_{FM} 和 Δ_{AFM} 分别表示阵列在NM态、FM态和AFM基态下的带隙大小; 括号中的M, S, BS和HM分别表示金属、半导体、双极化磁半导体和半金属
 E_b represents the binding energy of the arrays, M_{FM} the magnetic moment for unit cell in the FM state; E_{FM} , $E_{\text{AFM(I)}}$, $E_{\text{AFM(II)}}$ and $E_{\text{AFM(III)}}$ indicate the relative energies for unit cell in the FM state, AFM(I) state, AFM(II) state, and AFM(III) state, respectively. Δ_{NM} , Δ_{FM} , and Δ_{AFM} denote the band gaps in the NM, FM, and AFM states, respectively. The metal M, semiconductor S, bipolar magnetic semiconductor BS, or half-metal HM feature is shown in parentheses.

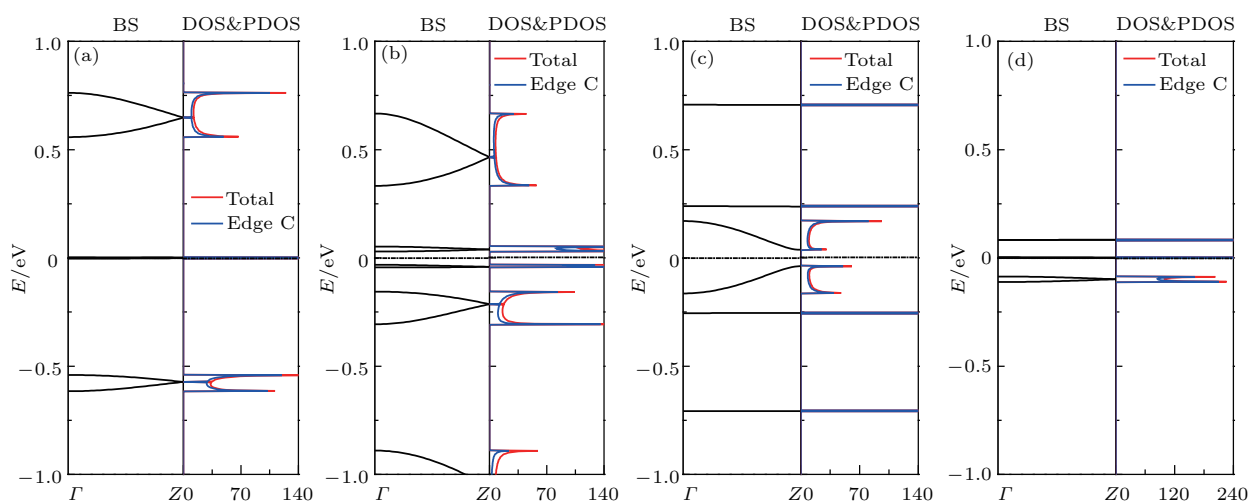


图2 (网刊彩色) QDAs 在 NM 态时的电子结构 (a)—(d) 分别对应 M1, M2, M3 和 M4 的 BS, DOS, PDOS

Fig. 2. (color online) The electronic structures for QDAs in the nonmagnetic state: (a)—(d) correspond to the band structure (BS), density of the state (DOS), and projected density of the state (PDOS) of M1, M2, M3, and M4, respectively.

3.2 磁电子学性质

3.2.1 铁磁态

我们将 QDAs 所有原子的初始自旋设置为指向同一方向, 以研究模型的 FM 态磁电子学性质, 计算收敛后的自旋极化电荷密度 ($\nabla\rho = \rho_\alpha - \rho_\beta$) 等值面图如图 3 (a)—(d) 所示, 其中 ρ_α 和 ρ_β 分别表示 α -自旋和 β -自旋的电荷密度, 等值面取为 $0.01|e|/\text{\AA}^3$, 由此可以看出磁矩的空间分布. 显然, 局域磁矩主要分布在边缘碳原子上, 这是因为边缘的碳原子存在未抵消的 π 电子的自旋极化, 且处于石墨烯的同一子晶格 (A 子晶格) 上, 这与石墨烯纳米带的磁性来源于局域边缘态的结论 [33–36] 相一致. 从图中还可以明显看出 M4 磁性最强, 而 M3 磁性最弱, 其原因是“底边连底边”方式时两条边磁性完全消失. 同时, 我们也计算了四种 QDAs 每个单胞的磁矩 E_{FM} , 结果见表 1, 分别为 4.015, 4.003, 1.985 及 $7.994 \mu_B$.

图 3 (e)—(h) 分别表示四种 QDAs 在 FM 态下的 BS 和 DOS&PDOS. 从 BS 图, 可以看到明显的自旋极化, 能带劈裂成两套子能带: α -自旋子能带和 β -自旋子能带, 这是因为此时 α -自旋为多子态, β -自旋为少子态, 这必然导致能带自旋简并消除. 有趣的是: M2 只有 β -自旋能带穿过费米能级, 表现出明显的半金属性 (half-metallicity) [37], 这是在本征石墨烯纳米带中未曾发现的现象. 我们知道, 当给半金属系统通过一个电流时, 电流将出现 100%

自旋极化, 这种完美的自旋极化有很多与自旋相关的应用 [38,39]. 此外, M2 半金属带隙达到 0.266 eV, 约是 $T = 300 \text{ K}$ 时 $k_B T$ 的 11 倍, 所以它的自旋过滤完全可以在室温下操作. PDOS 表明 M2 的 β -自旋金属态主要来源于边缘碳原子的贡献, 这反映了边缘碳原子的重要性. 而模型 M1, M3 和 M4 情况不同, 它们分别是带隙为 0.530, 0.219 和 0.617 eV 的双极化磁性半导体 (bipolar magnetic semiconductor), 这也是在本征石墨烯纳米带中未曾发现的现象, 这种半导体在巨磁阻器件和自旋整流器件上有很好的应用 [28]. 此外, 从 M1, M3 和 M4 能态图可以看到, 两种自旋基本关于费米能级对称, 这是因为在 NM 态时费米能级上或邻近能带基本关于费米能级对称, FM 态时, α -自旋为多子, β -自旋是少子, 不同的能带占据情况导致 α -自旋相关的能带下移成为最高价带 (HVB), 而 β -自旋相关的能带上移成为最低导带 (LCB), 致使距离费米能级最近的能带分别为不同的自旋子能带, 由于是远离费米能级, 也就没有任何一种自旋能带会穿过费米能级, 所以 M1, M3, M4 由 NM 态的金属或半导体变成 FM 态的双极化磁性半导体, 对于 M2 的半金属性也是能带类似移动形成的.

3.2.2 反铁磁态

AFM 态的设置实际上很复杂, 为了简化问题, 这里仅仅考虑三种不同的初始磁序, 分别定义为 AFM(I), AFM(II) 和 AFM(III). 设置的原则是: AFM(I) 态初始设置为相邻的三角形石墨烯片

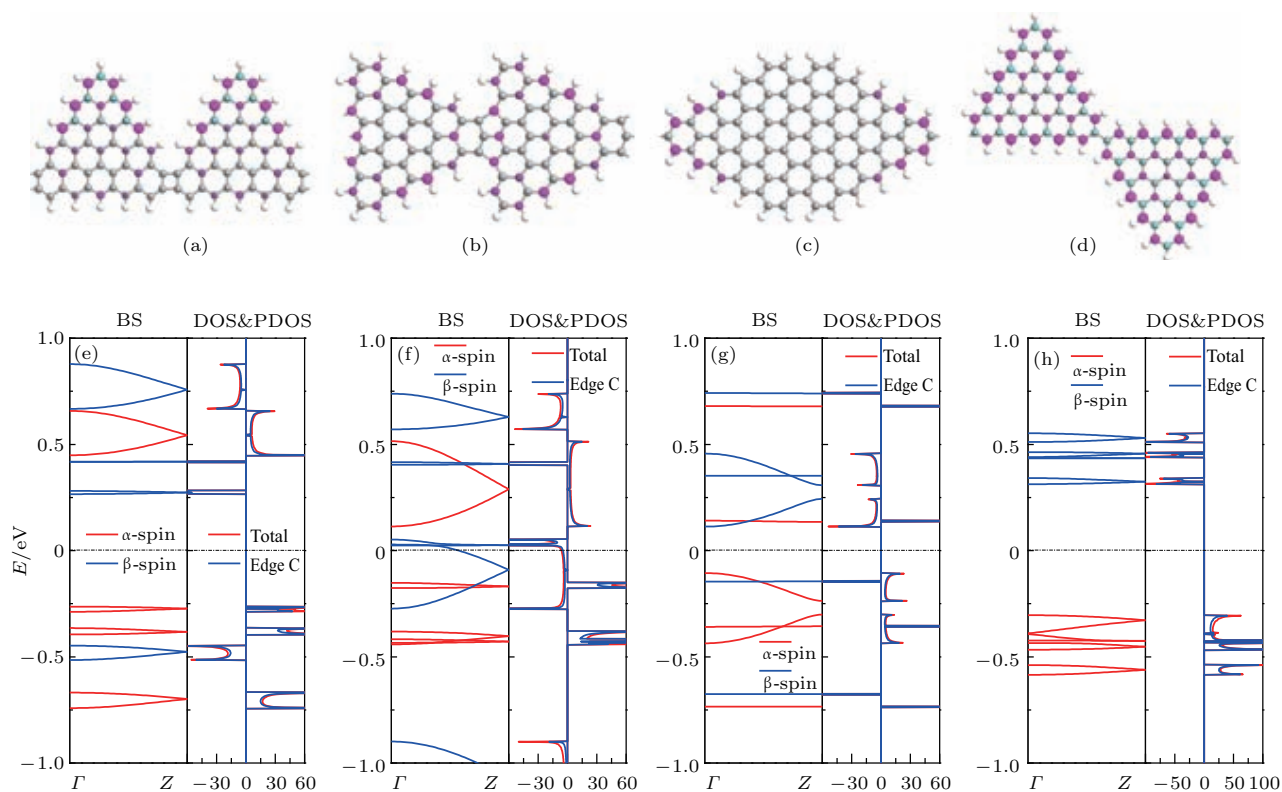


图3 (网刊彩色) QDAs 在 FM 态时的磁电子学特性 (a)—(d) 分别表示 M1, M2, M3 和 M4 的自旋极化电荷密度等值面图; (e)—(h) 分别表示 M1, M2, M3 和 M4 的能带结构和态密度

Fig. 3. (color online) The magneto-electronic features for QDAs in the FM state: (a)—(d) Correspond to the isosurface plots for the spin polarized density of M1, M2, M3, and M4, respectively; (e)—(h) correspond to the spin-resolved band structure (BS), density of the state (DOS), and projected density of the state (PDOS) of M1, M2, M3, and M4, respectively.

为 AFM 耦合, AFM(II) 态初始设置为相邻的边为 AFM 耦合, 而 AFM(III) 态初始设置为在 AFM(II) 态基础上, 使最邻近的三角形石墨烯片的自旋设置反向 (α -自旋变为 β -自旋, 反之亦然). 计算收敛后的自旋极化电荷密度等值面图如图 4(a)—(l) 所示, 图中品红色和青色分别表示 α -自旋和 β -自旋, 等值面取 $\pm 0.004|e|/\text{\AA}^3$. 显然, M2 的 AFM(II) 态收敛后与初始自旋设置不同, 上锯齿边变为 α -自旋, 下锯齿边变为 β -自旋, 使上、下锯齿边成 AFM 耦合. M3 只有 AFM(I) 态, 其他两种态收敛到 NM 态. M4 的 AFM(II) 和 AFM(III) 态收敛后, 与初始设置也不相同, 这也许与边缘变形有关.

为了找到系统的磁基态 (GS), 我们计算单胞在 FM 态和三个 AFM 态的能量, 计算结果见表 1, 这里不同磁态的能量是相对于磁基态的能量. 可以看出, 与其他磁态相比, 四种阵列的 AFM (I) 态拥有最低的能量, 意味着 AFM (I) 态是 GS, FM 态是邻近的亚稳态 (GS+1). 我们知道一个正锯

齿三角形石墨烯纳米片外边缘碳原子属于同一子晶格, 此时边缘碳原子自旋平行时三角形能量最低^[36], 虽然 AFM (I) 态和 FM 态都符合, 但相邻三角形之间反磁序 (AFM (I) 态) 比同磁序 (FM 态) 拥有更大的 (负) 交换能, 导致 AFM(I) 态是磁态中能量上最有利的基态 (与 ZGNRs 一样, AFM 态为基态). 值得特别指出的是, 虽然 FM 态不是系统的基态, 但可以通过施加外部垂直磁场^[40] 来稳定.

图 4(m)—(p) 分别表示四种 QDAs 在 AFM(I) 态时的 BS 和 DOS&PDOS. 可以看到它们分别是带隙为 0.610, 0.244, 0.671 和 0.780 eV 的自旋简并的半导体, 说明连接方式的不同可改变半导体带隙大小. 同时, PDOS 也说明了边缘碳原子的重要影响, 它决定 HVB 及 LCB.

从以上研究我们可以得到几个重要结论: 1) 在 NM 态时, QDAs 或是窄带隙半导体或是金属, 依赖于三角形纳米片之间的连接方式; 2) 在 FM 态时,

QDAs 要么是半金属, 要么是双极化磁性半导体, 表明阵列的磁电子性质也强烈地依赖于三角形纳米片之间的连接方式; 3) 不同的阵列优化后三角形

边缘和顶点会有一些变形, 这也影响磁性和能态. 总的来说, 连接方式在确定系统的电子及磁性方面起着重要作用.

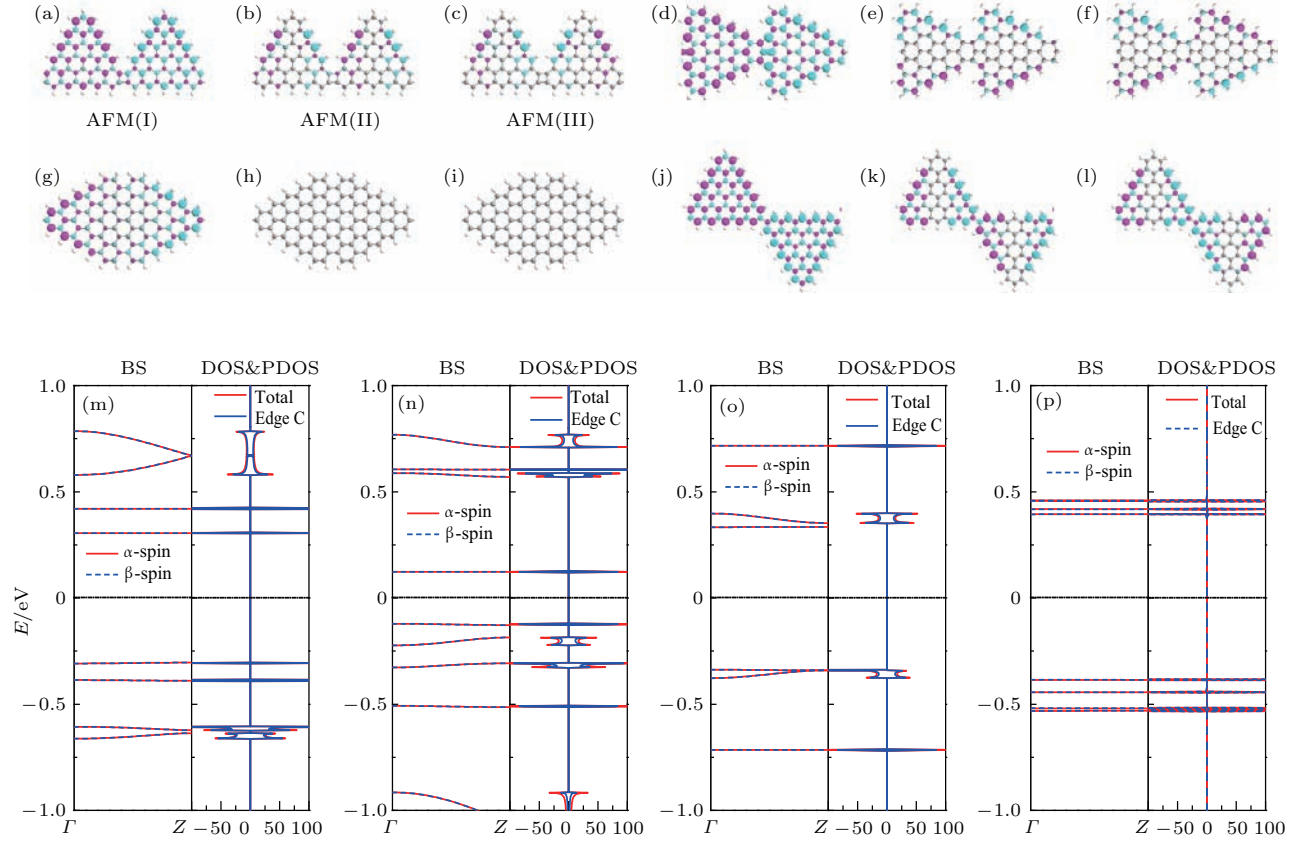


图4 (网刊彩色) QDAs 在 AFM 态的磁电子学结构 (a)–(l) 分别表示 M1, M2, M3 和 M4 在 AFM(I), AFM(II), AFM(III) 态时的自旋极化电荷密度等值面图; (m)–(p) 分别表示 M1, M2, M3 和 M4 在 AFM(I) 态 (基态) 的 BS, DOS 及 PDOS

Fig. 4. (color online) The magneto-electronic features for QDAs in the AFM state: (a)–(l) Correspond to the isosurface plots for the spin polarized density of M1, M2, M3, and M4 in the AFM(I), AFM(II), AFM(III), respectively; (m)–(p) correspond to the spin-resolved BS, DOS, and PDOS of M1, M2, M3, and M4 in the AFM(I) state (ground state), respectively.

3.3 输运性质

为了研究上述结构的磁输运性质, 我们以 M2 为例构造了如图 5(a) 所示的器件, 模型分为三部分: 左电极(L), 右电极(R) 和中心散射区(S), 左右电极由两个半无限长的 M2 构成. 在计算中将左右电极化学势的平均值作为费米能级, 自旋极化电流计算运用 Landauer 公式^[41]: $I_{\sigma}(V_b) = \frac{e}{h} \int T_{\sigma}(E, V_b)[f_L(E, V_b) - f_R(E, V_b)]dE$, 这里 $T_{\sigma}(E, V_b)$ 是自旋相关的透射系数, $f_L(E, V_b)$ 和 $f_R(E, V_b)$ 分别表示左右电极的费米-狄拉克分布函数, σ 代表 α -自旋或 β -自旋. 为了研究自旋输运, 对其电极考虑两种磁构型: 1) P

磁构型, 即两电极自旋方向平行, 都为 α -自旋极化, 即通过在两电极上施加垂直于 M2 平面的同方向磁场来实现, 此时的两电极相当于处在 FM 态; 2) AP 磁构型, 即改变施加在右电极上的垂直磁场的方向, 使其自旋磁序与左电极相反, 也就是左电极仍为 α -自旋极化而右电极变为 β -自旋极化. 图中上方的箭头分别表示 P 和 AP 磁构型的自旋方向.

我们计算的 P 磁构型和 AP 磁构型下的自旋依赖性的伏安 (I - V) 特性, 分别列于图 5(b) 和图 5(c). 显然, 可以看出几个重要特性: 1) 在 P 磁构型下, 正负偏压范围内, β -自旋电流都是先随偏压增大后减小, 但 α -自旋电流几乎为零, 出现了单自旋过滤效应; 2) 在 AP 磁构型下, 伏安特性发

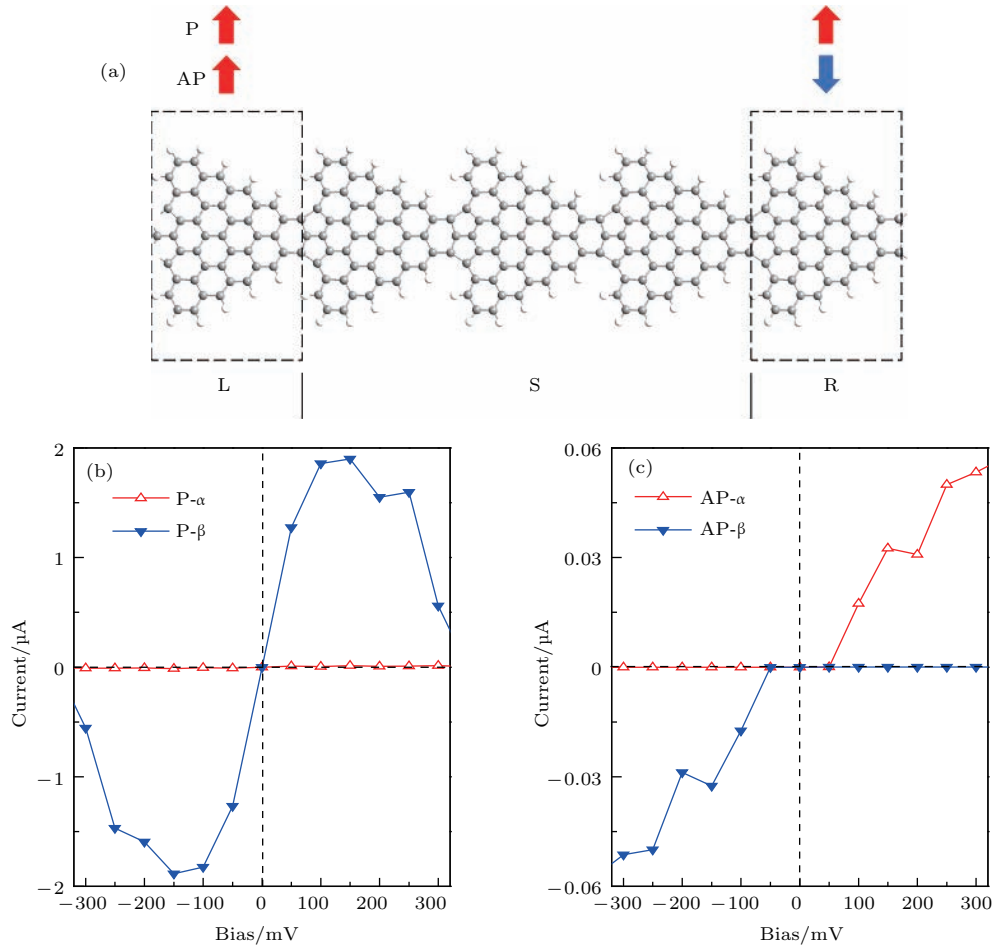


图5 (网刊彩色) (a) M2结构的器件模型; (b), (c) 分别表示在P和AP磁构型下的自旋依赖性的伏安特性

Fig. 5. (color online) (a) The device model based on the M2; (b), (c) show the spin-resolved I - V characteristics in P magnetic configuration and AP magnetic configuration, respectively.

生了明显的变化, α -自旋电流通道只在正偏压时被打开, 而在负偏压则完全抑制, β -自旋电流刚好相反, 即 α -和 β -自旋分别在相反的偏压下过滤. 这表明在 AP 磁构型下的 M2 可以作为双自旋过滤器; 3) 将 P 磁构型和 AP 磁构型两种情况电流对比可以发现, P 磁构型下的电流约为几个 μA , 远大于 AP 型在 $(-50 \text{ mV}, 50 \text{ mV})$ 范围内的最大值 $6 \times 10^{-8} \mu\text{A}$, 这意味着磁场对该器件的自旋输运具有极大的调节, 也就预示器件具有巨磁阻效应.

为了解释 M2 自旋输运性质的起源, 图 6 列出了几个典型偏压 (0 V 和 0.25 V) 下的电极能带和透射谱. 在每个小图中, 从左到右依次是左电极能带 (L)、器件透射谱 (T) 和右电极能带 (R), 图 6 (a)–(c) 对应于 P 磁构型, 图 6 (d)–(f) 对应于 AP 磁构型, 图中蓝色区域为偏压窗. 为了获得自旋电流, 两电极在偏压窗内必须具自旋类型相同的电子态, 即同类型自旋的能带在偏压窗内要对齐

(重叠) 才能产生电流. 首先分析 P 磁构型的情况, 在 0 V 时, 如图 6 (b) 所示, 此时两电极能带完全对齐, 而产生透射峰, 但由于未加偏压, 没有偏压窗, 所以不能形成电流. 施加负偏压, 左右电极能带分别上移和下移, -0.25 V 时如图 6 (a) 所示, 此时两电极的 β -自旋能带在偏压窗内有较大的重叠, 形成了一个透射峰, 因此该偏压下器件有较大的 β -自旋电流通过. 而 α -自旋能带没有重叠, 故在偏压窗内没有透射峰, 导致 α -自旋电流几乎为零. 正偏压情况与负偏压类似, 只是左电极能带变成了下移而右电极为上移, 但能带重叠和透射情况和负偏压一样, 在 0.25 V 时的情况如图 6 (c) 所示, 所以有较大的 β -自旋电流, 但几乎没有 α -自旋电流. 而 AP 构型情况则不同, 如图 6 (d)–(f) 所示. 对右电极施加的磁场使右电极 β -自旋变为多子、 α -自旋变为少子, 与左电极情况恰好相反. 在 0 V 时, 如图 6 (e) 所示, 此时左右电极间, 两种自旋能带有小部分重

叠, 产生相比于P磁构型小很多的峰. 随着负偏压增加, 偏压窗内 β -自旋能带重叠部分增大形成透射峰, 但没有 α -自旋带重叠, 故无相应的透射峰, 在 -0.25 V 时的情况如图6(d)所示. 而正偏压下, 偏压窗内 α -自旋能带重叠也逐渐增加, 但是没有 β -自

旋透射峰, 在 0.25 V 时的情况如图6(f)所示. 因此, 在AP磁构型时, 一定的偏压范围内, 负偏压下只存在 β -自旋电流且逐渐增大; 正偏压下只存在 α -自旋电流也逐渐增大. 显然, 电极能带与透射谱的关系与图5中自旋依赖性 I - V 特性完全一致.

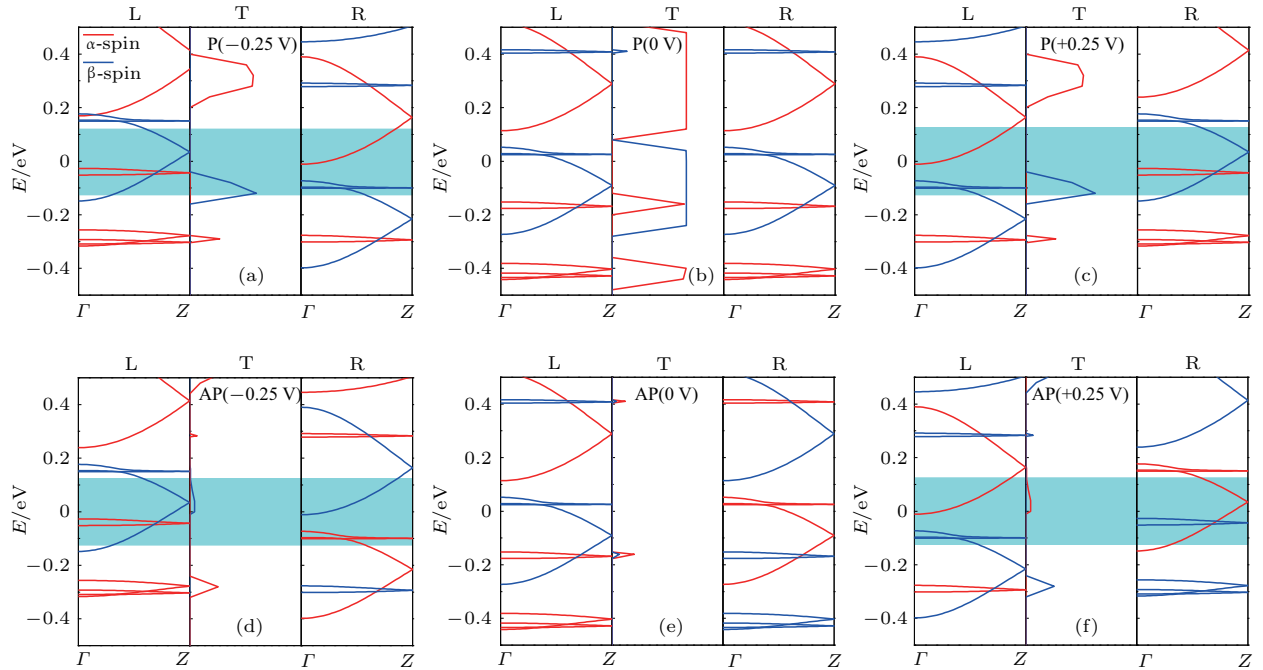


图6 (网刊彩色) 不同偏压时M2器件的电极能带与透射谱的关系 (a)—(c) 对应于P磁构型在 $-0.25, 0$ 和 $+0.25\text{ V}$ 的情况; (d)—(f) 对应于AP磁构型在 $-0.25, 0$ 和 $+0.25\text{ V}$ 的情况

Fig. 6. (color online) The relation of the electrode band structures and transmission spectrum in the M2 based device at different biases: (a)—(c) For P magnetic configuration device at the bias voltage of $-0.25, 0$ and $+0.25\text{ V}$; (d)—(f) for AP magnetic configuration device at the bias voltage of $-0.25, 0$ and $+0.25\text{ V}$.

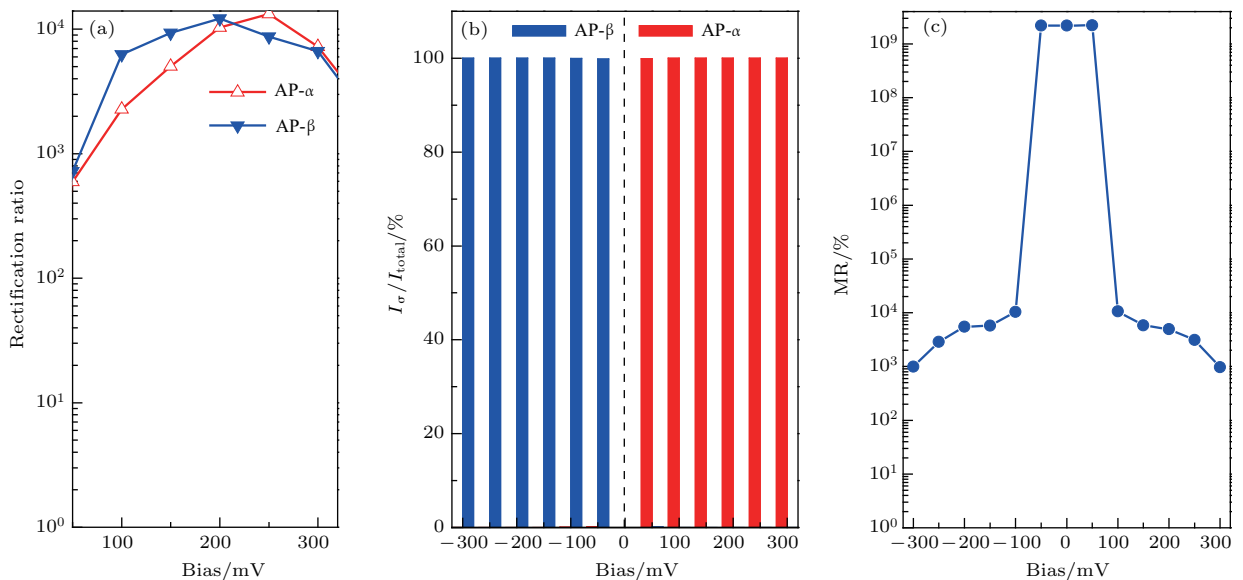


图7 (网刊彩色) 在AP磁构型下M2器件的磁性 (a) 自旋整流比; (b) 自旋极化率; (c) 磁电阻

Fig. 7. (color online) The magnetic properties of M2 based device in AP magnetic configuration: (a) Spin-independent rectification ratio; (b) spin polarization; (c) magnetoresistance.

最后, 我们定量地研究M2器件的自旋输运特性. 为此, 定义自旋整流比 $RR_{\sigma} = \frac{|I_{\sigma}(\pm V)|}{|I_{\sigma}(\mp V)|}$ ($\sigma = \alpha, \beta$), 自旋极化率 $SP_{\sigma} = \frac{I_{\sigma}}{I_{\text{total}}} \times 100\%$ ($\sigma = \alpha, \beta$) 和磁阻 $MR = \frac{I_{\text{P}} - I_{\text{AP}}}{I_{\text{AP}}} \times 100\%$ (其中 I_{P} 和 I_{AP} 分别为P磁构型和AP磁构型下的总电流), 计算结果如图7所示. 在图7(a)中可以看到, AP磁构型下器件的整流比最高可达 10^4 , 其中 α -自旋态为正向整流而 β -自旋态为反向整流. 如图7(b)清晰地反映出AP磁构型可实现接近100%的自旋极化, 且呈现双自旋过滤器的特点, 也就是说改变偏压极性, 可得到自旋方向不同的电流. 此外, 改变施加在右电极上的磁场方向可实现高效的自旋阀器件, 其巨磁阻高达 $10^9\%$, 这比ZGNRs的预测值高两个数量级, 比之前报道的MgO隧道结实验值高5个数量级^[42]. 以上结果表明, M2在自旋电子器件方面拥有很高的研究价值和应用潜力.

4 结 论

基于密度泛函理论, 我们研究了石墨烯纳米片有序拼接成的1D QDAs的磁电子学性质. 考虑了四种连接方式, 即四种不同的1D QDAs. 研究发现, 不同拼接方式的1D QDAs, 在NM态时可为金属或窄带隙半导体, 在FM态时可以是半金属或者双极化磁半导体, 而在AFM态时, 不同QDAs为带隙不等的半导体. 这些结果意味着连接方式对有效调控纳米结构电子和磁性质扮演着重要的角色. 1D QDAs呈现的半金属或双极化磁性半导体性质对于发展磁器件是非常重要的, 而这些性质未曾在本征石墨烯纳米带中出现. 同时, 我们也研究了一种阵列的磁器件特性, 发现其拥有完美的(100%)单或双自旋过滤效应, 尤其是呈现超过 $10^9\%$ 的巨磁阻效应.

参考文献

[1] Novoselov K S, Geim A K, Morozov S V, Jiang D, Zhang Y, Dubonosn S V, Grigorieva I V, Firsov A A 2004 *Science* **306** 666
 [2] Weiss N O, Zhou H L, Liao L, Liu Y, Jiang S, Huang Y, Duan X F 2012 *Adv. Mater.* **24** 5782
 [3] Katsnelson M I, Novoselov K S, Geim A K 2006 *Nat. Phys.* **2** 620

[4] Katsnelson M I, Novoselov K S 2007 *Solid State Commun.* **14** 3
 [5] Zhang Y B, Tan Y W, Stormer H L, Kim P 2005 *Nature* **438** 201
 [6] Morozov S V, Novoselov K S, Katsnelson M I, Schedin F, Elias D C, Jaszczak J A, Geim A K 2008 *Phys. Rev. Lett.* **100** 016602
 [7] Lee C, Wei X D, Kysar J W, Hone J 2008 *Science* **321** 385
 [8] Hu J N, Ruan X L, Chen Y P 2009 *Nano Lett.* **9** 2730
 [9] Evans W J, Hu L, Koblinski P 2010 *Appl. Phys. Lett.* **96** 203112
 [10] Kusakabe K, Maruyama M 2003 *Phys. Rev. B* **67** 092406
 [11] Son Y W, Cohen M L, Louie S G 2006 *Nature* **444** 347
 [12] Pisani L, Chan J A, Montanari B, Harrison N M 2007 *Phys. Rev. B* **75** 064418
 [13] Huang B, Liu F, Wu J, Gu B L, Duan W H 2008 *Phys. Rev. B* **77** 153411
 [14] Chen Y, Hu H F, Wang X W, Zhang Z J, Cheng C P 2015 *Acta Phys. Sin.* **64** 196101 (in Chinese) [陈鹰, 胡慧芳, 王晓伟, 张照锦, 程彩萍 2015 物理学报 **64** 196101]
 [15] Fernandez-Rossier J, Palacios J J 2007 *Phys. Rev. Lett.* **99** 177204
 [16] Wang W L, Meng S, Kairas E 2007 *Nano Lett.* **8** 241
 [17] Ezawa M 2007 *Phys. Rev. B* **76** 245415
 [18] Hod O, Barone V, Scuseria G E 2008 *Phys. Rev. B* **77** 035411
 [19] Son Y W, Cohen M L, Louie S G 2006 *Phys. Rev. Lett.* **97** 216803
 [20] Hod O, Barone V, Scuseria G E 2008 *Phys. Rev. B* **77** 035411
 [21] Wang W L, Yazyev O V, Meng S, Kaxiras E 2009 *Phys. Rev. Lett.* **102** 157201
 [22] Ezawa M 2010 *Physica E* **42** 703
 [23] Li J, Zhang Z H, Zhang J J, Deng X Q 2012 *Org. Electron.* **13** 2257
 [24] Zhang J J, Zhang Z H, Guo C, Li J, Deng X Q 2012 *Acta Phys. -Chim. Sin.* **28** 1701 (in Chinese) [张俊俊, 张振华, 郭超, 李杰, 邓小清 2012 物理化学学报 **28** 1701]
 [25] Lee G, Cho K 2009 *Phys. Rev. B* **79** 165440
 [26] Wang D, Zhang Z H, Deng X Q, Fan Z Q 2013 *Acta Phys. Sin.* **62** 207101 (in Chinese) [王鼎, 张振华, 邓小清, 范志强 2013 物理学报 **62** 207101]
 [27] Yuan P F, Tian W, Zeng Y C, Zhang Z H, Zhang J J 2014 *Org. Electron.* **15** 3577
 [28] Wang D, Zhang Z, Zhu Z, Liang B 2014 *Sci. Rep.* **4** 7587
 [29] Taylor J, Guo H, Wang J 2001 *Phys. Rev. B* **63** 245407
 [30] Brandbyge M, Mozos J L, Ordejon P, Taylor J, Stokbro K 2002 *Phys. Rev. B* **65** 165401
 [31] Zeng J, Chen K Q, He J, Zhang X J, Sun C Q 2011 *J. Phys. Chem. C* **115** 25072
 [32] Perdew J P, Burke K, Ernzerhof M 1996 *Phys. Rev. Lett.* **77** 3865
 [33] Nakada K, Fujita M, Dresselhaus G, Dresselhaus M S 1996 *Phys. Rev. B* **54** 17954
 [34] Fujita M, Wakabayashi K, Nakada K, Kusakabe K 1996 *J. Phys. Soc. Jpn.* **65** 1920

- [35] Yan Q M, Huang B, Yu J, Zheng F W, Zang J, Wu J, Gu B L, Liu F, Duan W H 2007 *Nano Lett.* **7** 1469
- [36] Yu D, Lupton E M, Gao H J, Zhang C, Liu F 2008 *Nano Res.* **1** 497
- [37] de Groot R A, Mueller F M, van Engen P G, Buschow K H J 1983 *Phys. Rev. Lett.* **50** 2024
- [38] Prinz G A 1998 *Science* **282** 1660
- [39] Wolf S A, Awschalom D D, Buhrman R A, Daughton J M, von Molnar S, Roukes M L, Chtchelkanova A Y, Treger D M 2001 *Science* **294** 1488
- [40] Munoz-Rojas F, Fernandez-Rossier J, Palacios J J 2009 *Phys. Rev. Lett.* **102** 136810
- [41] Landauer R 1970 *Philos. Mag.* **21** 863
- [42] Parkin S S, Kaiser C, Panchula A, Rice P M, Hughes B, Samant M, Yang S H 2004 *Nat. Mater.* **3** 862

Magneto-electronic and magnetic transport properties of triangular graphene quantum-dot arrays*

Hu Rui Fan Zhi-Qiang Zhang Zhen-Hua[†]

(School of Physics and Electronic Science, Changsha University of Science and Technology, Changsha 410114, China)

(Received 1 March 2017; revised manuscript received 21 April 2017)

Abstract

Graphene (GN), a monolayer two-dimensional (2D) system closely arranged into a benzene ring structure by C atoms, has so far aroused considerable research interest due to its novel electronic, magnetic, mechanical and thermal properties. But 2D GN is a semimetal with zero band gap, and the lowest conduction band touches the highest valence band at Fermi level, leading to the inability to achieve the “off” effect in the electronic device. Therefore, many researchers are searching the solutions. A simple and feasible method is to convert 2D GN into quasi-one-dimensional (1D) graphene nanoribbons, quantum-dot arrays (QDAs) and zero-dimensional (0D) quantum-dot by tailoring it along a specific single crystallographic direction. The QDAs, due to their structural diversity, have great potential applications in future nano-integrated circuit. In this work, first-principles method based on density functional theory is used to study the magneto-electronic and magnetic transport properties of four 1D quantum-dot arrays (1D QDAs) consisting of triangular graphene nanoflakes with different linking modes. The calculated binding energy suggests that these structures are very stable, and the arrays that are linked by the “bottom-side” are more stable than that only by the “vertex”. In particular, it is found that the electronic and magnetic features are not only related to the different magnetic states, but also depend on linking modes. For example, in the non-magnetism state, different QDAs can be a metal or a narrowed band-gap semiconductor. In the ferromagnetic state, different QDAs can be half-metal materials or bipolar magnetic semiconductors with different gaps, and have greatly different magnetic moments from 1.985 to 7.994 μ_B /unit cell, reaching a difference almost as large as four times. While in the antiferromagnetic state, all QDAs are semiconductors but with different gaps. These results imply that the linking modes play a crucial role in effectively tuning the electronic and magnetic features for nanostructures. The calculated atom-projected density of states indicates that the highest valence band and the lowest conduction band are determined by the edge C atoms. The half-metallic and bipolar magnetic semiconducting behaviors presented by 1D QDA are extremely important for developing magnetic devices, which is not found in the intrinsic graphene nanoribbons. And, we also investigate the magnetic device properties based on one kind of QDA, and the single or dual spin-filtering effect with the perfect (100%) spin polarization and a rectification ratio of about 10^4 can be predicted. Particularly, a giant magnetoresistance over $10^9\%$ is found unambiguously, which is two orders of magnitude higher than the value predicted based on the zigzag graphene nanoribbons and five orders of magnitude higher than previously reported experimental values for the MgO tunnel junction. Our results thus provide strong evidence for the effectiveness of QDAs on the magneto-electronic properties.

Keywords: triangular graphene nanoflake, 1D quantum-dot array, magneto-electronic properties, magnetic transport properties

PACS: 85.75.-d, 71.15.-m, 72.25.-b, 73.63.-b

DOI: 10.7498/aps.66.138501

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 61371065, 11674039) and Hunan Provincial Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 14JJ2076, 2015JJ3002, 2015JJ2009, 2015JJ2013).

[†] Corresponding author. E-mail: lgzhang@sohu.com