

## 石墨烯狄拉克等离激元调控的第一性原理研究\*

李鹏飞<sup>1)2)†</sup> 韩丽君<sup>1)</sup> 张琳<sup>1)</sup> 惠宁菊<sup>1)</sup>

1) (西安理工大学应用物理系, 西安 710048)

2) (光子功率器件与放电调控陕西省高等学校重点实验室, 西安 710048)

(2025年7月11日收到; 2025年8月29日收到修改稿)

石墨烯等离激元在红外-太赫兹波段具有高度局域化和动态可调性, 但其精准调控机制仍需深入探索. 本文基于国产第一性原理计算软件 ABACUS, 采用线性响应含时密度泛函理论方法, 结合截断库仑势消除层间耦合效应, 系统研究了石墨烯狄拉克等离激元的三类调控机制. 研究表明, 无论采用何种调控手段, 石墨烯狄拉克等离激元的色散关系均呈现出典型的双区域特征: 在长波区域, 其色散关系遵循  $\sqrt{q}$  的形式; 在短波区域, 则逐渐过渡为准线性行为. 此外, 随着载流子浓度的增加, 等离激元的激发能量呈现系统性增强, 并遵循  $\omega \propto n^{1/4}$  的标度律; 施加双轴应变时, 等离激元激发能量随晶格常数的增大而线性降低; 引入六方氮化硼 (hBN) 作为基底时, 对原始结果影响较小, 仅导致整体能量发生轻微红移. 进一步地, 深入揭示了上述三种调控机制的物理起源. 这些结果为基于石墨烯/hBN 异质结构的高性能动态光电器件设计提供了坚实的理论支撑.

**关键词:** 第一性原理计算, 石墨烯, 线性响应含时密度泛函理论, 狄拉克等离激元

**PACS:** 71.15.-m, 73.20.Mf

**DOI:** 10.7498/aps.74.20250913

**CSTR:** 32037.14.aps.74.20250913

## 1 引言

石墨烯 (graphene) 是由单层碳原子通过  $sp^2$  杂化形成的二维蜂窝状晶格材料<sup>[1]</sup>. 作为首个被稳定制备的二维原子晶体, 其具备诸多优异特性: 室温下载流子迁移率高达  $15000 \text{ cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$ , 理论强度可达  $130 \text{ GPa}$ , 热导率约为  $5000 \text{ W}/(\text{m}\cdot\text{K})$ , 可见光透射率近  $98\%$ <sup>[2]</sup>. 这些特性使其在纳米电子器件、复合材料、能源存储及生物传感等领域展现出革命性的应用潜力<sup>[3]</sup>. 石墨烯等离激元 (graphene plasmons) 作为二维材料中自由载流子集体振荡形成的电磁模式, 因突破传统光学的衍射极限, 已成为纳米光子学的研究前沿, 并展现出巨大的应用潜力<sup>[4,5]</sup>. 相较于金属等离激元, 石墨烯等离激元具有

极端光场压缩效应<sup>[6,7]</sup>、动态电调谐特性<sup>[8,9]</sup>以及低传播损耗<sup>[10]</sup>等显著优势. 其激发主要依赖近场耦合技术, 在中红外至太赫兹波段展现出优异的场局域能力, 为设计亚波长光子器件提供了新范式<sup>[11]</sup>. 目前研究已证实其在多个领域的应用潜力: 基于局域场增强效应的高灵敏度生物传感器实现了单分子层化学信号探测<sup>[12]</sup>; 利用电控等离激元共振调制的超快光电调制器显著提升了光通信效率<sup>[13]</sup>; 范德瓦耳斯异质结构中的混合模式则进一步拓展了量子调控与非线性光学的研究维度<sup>[14]</sup>. 近年来, 多项突破性研究同样为深入理解石墨烯等离激元的物理本质提供了关键线索: Lundeberg 等<sup>[15]</sup>利用散射式近场光学技术, 在石墨烯-hBN-金属复合体系中观测到太赫兹波段下接近电子费米速度传播的等离激元, 揭示了其非局域响应特性; Zhang 等<sup>[16]</sup>

\* 国家自然科学基金青年科学基金 (批准号: 11904284)、陕西省自然科学基金基础研究计划 (批准号: 2025JC-YBMS-052, 2024JC-YBMS-512) 和陕西省教育厅青年创新团队项目 (批准号: 24JP114) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: [lpf91124@xaut.edu.cn](mailto:lpf91124@xaut.edu.cn)

通过在双层石墨烯/hBN 异质结构中施加电场,首次实现了对狄拉克等离子激元寿命的精准调控;此外, Zhao 等<sup>[17]</sup>利用片上太赫兹光谱,在超净石墨烯中观测到流体动力学等离子激元与能量波等新型集体激发模式。

石墨烯的等离子激元可以分为三种类型<sup>[18]</sup>。在低能量区域 (0—2 eV), 当引入有限的电子或空穴掺杂时, 会形成所谓的狄拉克等离子激元, 其源于狄拉克锥能带结构中  $K$  点附近的带内跃迁; 在更高能量区域 (4—10 eV), 存在  $\pi$  等离子激元, 其由  $\pi$  到  $\pi^*$  的带间跃迁导致; 当能量进一步升高 (>14 eV) 时,  $\sigma$  能带开始发挥作用, 形成高能激发的  $\pi$ - $\sigma$  等离子激元。在石墨烯的三种等离子激元中,  $\pi$  和  $\pi$ - $\sigma$  等离子激元属于本征等离子激元 (intrinsic plasmons), 由石墨烯自身的电子集体振荡产生, 调控难度较大; 而狄拉克等离子激元作为外赋等离子激元 (extrinsic plasmons), 源于外部手段引入额外载流子的集体振荡, 具有高度可调性, 是本研究的重点对象。然而, 要实现石墨烯狄拉克等离子激元在诸多领域中的实际应用, 关键在于发展对其精准、高效且动态的调控策略。目前, 实验上已通过栅压、应变和介质环境修饰等<sup>[9,19-21]</sup>多种手段实现了对等离子激元的初步调控, 然而, 不同调控方式背后的微观物理机制、定量化调控效率以及对应的电子结构响应, 仍缺乏从第一性原理层面进行系统深入的揭示。本文基于国产第一性原理计算软件 ABACUS, 采用线性响应含时密度泛函理论方法, 结合针对二维材料优化的截断库仑势, 有效消除了周期性边界条件引入的层间耦合效应, 从而系统研究并对比了载流子浓度、双轴应变以及六方氮化硼基底对石墨烯狄拉克等离子激元的调控作用。不仅明确了诸如载流子浓度调控中的  $n^{1/4}$  标度律, 双轴应变调控中的线性响应等定量规律, 更进一步地从电子结构层面揭示了其物理起源, 主要是费米速度重整化带来的狄拉克锥斜率变化以及对称性破缺导致的带隙开启效应。这些研究结果为基于石墨烯及其异质结构的高性能、动态可调谐光电器件的设计与优化提供了坚实的理论依据与设计指南。

本文内容结构安排如下: 在“研究方法”部分, 重点介绍用于计算二维体系等离子激元的“无规近似线性响应含时密度泛函理论”(linear response time-dependent density-functional theory within the random-phase approximation, LR-TDDFT-

RPA) 的算法流程及在第一性原理软件包中的实现, 并详细阐述计算过程中涉及的主要参数的设置。在“结果与讨论”部分, 展示了通过三种不同方式调控石墨烯狄拉克等离子激元的定量结果, 包括石墨烯载流子浓度调控、双轴应变诱导的几何结构调控以及引入六角氮化硼 (hBN) 基底的介电环境调控, 并深入分析这些调控机制的内在物理实质。最后, 在“结论”部分, 对本文的研究成果进行了总结并提炼出关键结论。

## 2 研究方法

本文对材料等离子激元性质的计算分为前处理 (电子结构计算) 与后处理 (等离子激元性质分析) 两个阶段。在前处理阶段, 采用国产第一性原理计算软件 ABACUS<sup>[22,23]</sup> 对目标体系的电子结构进行精确计算, 离子-电子相互作用采用 SG15 优化的多投影模守恒赝势<sup>[24]</sup> 来描述, 交换关联泛函则选用基于 Perdew-Burke-Ernzerhof (PBE) 的广义梯度近似<sup>[25]</sup>。Kohn-Sham 电子波函数以平面波基组展开, 并设定平面波基组截断能为 680 eV, 电荷密度收敛精度为  $1 \times 10^{-9}$  eV。在结构优化过程中, 原子间力的收敛标准设定为 0.01 eV/Å。对于石墨烯及石墨烯/六方氮化硼 (hBN) 异质结体系, 在垂直于平面 ( $z$  轴) 的方向引入厚度为 20 Å 的真空层, 以最大限度地抑制层间耦合效应。布里渊区  $k$  点采样网格密度设置为较密的  $200 \times 200 \times 1$ , 以便于精确描述狄拉克等离子激元在长波区的行为。最终, 从输出中提取能带对应的能量和波函数信息, 作为后续分析的数据基础。

基于前处理所得结果, 在后处理阶段深入分析材料的等离子激元性质。电子能量损失谱 (electron energy loss spectroscopy, EELS) 是表征材料中等离子激元色散行为的关键实验技术, 该技术通过测量入射高能电子的特征能量损失, 可精确测定等离子激元的激发能量, 当 EELS 与透射电子显微镜 (TEM) 联用时, 还可获取等离子激元的动量分布信息, 从而在实验上绘制出色散关系<sup>[26]</sup>。而在密度泛函理论 (DFT) 框架下, 基于无规近似 (RPA) 的线性响应含时密度泛函理论 (LR-TDDFT-RPA) 可以用来描述材料的 EELS 响应, 其具体概念和方法已在文献<sup>[27-30]</sup>中详细阐述。近年来, 我们成功将该方案集成到中国科学技术大学开发的第一性原理

计算软件 ABACUS 中, 其计算可靠性已在之前的文章 [31,32] 中验证过, 因此同样适用于本研究中的计算.

对等离激元的计算主要由以下五个关键步骤来实现:

1) 计算 Kohn-Sham 无相互作用体系响应函数  $\chi^0$  的虚部  $\chi^S$  [33,34]:

$$\begin{aligned} \chi_{\mathbf{G},\mathbf{G}'}^S(\mathbf{q},\omega) &= \frac{1}{\Omega} \sum_{\mathbf{k}} \sum_{n,n'=c,v}^{1\text{BZ}} (f_{n,\mathbf{k}} - f_{n',\mathbf{k}+\mathbf{q}}) \\ &\times \delta(\omega + \epsilon_{n,\mathbf{k}} - \epsilon_{n',\mathbf{k}+\mathbf{q}}) \langle n, \mathbf{k} | e^{-i(\mathbf{q}+\mathbf{G})\mathbf{r}} | n', \mathbf{k} + \mathbf{q} \rangle \\ &\times \langle n', \mathbf{k} + \mathbf{q} | e^{i(\mathbf{q}+\mathbf{G}')\mathbf{r}'} | n, \mathbf{k} \rangle, \end{aligned} \quad (1)$$

式中,  $\Omega$  表示 Born-von-Karman 超胞体积,  $\omega$  代表频率,  $\mathbf{q}$  表示动量转移大小,  $\mathbf{k}$  表示电子态波矢,  $\mathbf{G}$  和  $\mathbf{G}'$  为三维倒格矢. 此外,  $f_{n,\mathbf{k}}$ ,  $\epsilon_{n,\mathbf{k}}$  与  $|n, \mathbf{k}\rangle$  分别表示各条能带在具体  $\mathbf{k}$  点位置处的占据概率、本征能量和本征波函数, 其中  $n$  和  $n'$  分别代表占据态和非占据态指标.

2) 利用希尔伯特变换 (Hilbert transform) 还原完整形式的 Kohn-Sham 无相互作用体系响应函数  $\chi^0$ :

$$\begin{aligned} \chi_{\mathbf{G},\mathbf{G}'}^0(\mathbf{q},\omega) &= \int_0^\infty d\omega' \left( \frac{1}{\omega - \omega' + i\eta} - \frac{1}{\omega + \omega' + i\eta} \right) \\ &\times \chi_{\mathbf{G},\mathbf{G}'}^S(\mathbf{q},\omega'), \end{aligned} \quad (2)$$

式中,  $\eta$  为趋近于零的平滑参数, 以保证运算中分母不会出现奇异性.

3) 利用 Dyson 方程构建真实的相互作用体系下的响应函数  $\chi$  [35]:

$$\begin{aligned} \chi_{\mathbf{G},\mathbf{G}'}(\mathbf{q},\omega) &= \chi_{\mathbf{G},\mathbf{G}'}^0(\mathbf{q},\omega) + \sum_{\mathbf{G}_1,\mathbf{G}_2} \chi_{\mathbf{G},\mathbf{G}_1}^0(\mathbf{q},\omega) \\ &\times K_{\mathbf{G}_1,\mathbf{G}_2}(\mathbf{q},\omega) \chi_{\mathbf{G}_2,\mathbf{G}'}(\mathbf{q},\omega), \end{aligned} \quad (3)$$

式中,  $\mathbf{G}_1$  和  $\mathbf{G}_2$  为三维倒格矢. 在无规相近似下, (3) 式中的  $K$  核心不包含交换关联部分, 仅有库仑项的贡献. 尤其要指明的是本文的研究对象是二维材料, 为了消除模型计算中的层间相互作用影响, 这里的核心  $K$  需要取截断库仑势的形式 [36]:

$$K_{\mathbf{G}_1,\mathbf{G}_2}(\bar{\mathbf{q}},\omega) = \frac{4\pi\delta_{\mathbf{G}_1,\mathbf{G}_2}}{|\bar{\mathbf{q}} + \bar{\mathbf{G}}_1|^2} \left[ 1 - (-1)^{n_z} e^{-|\bar{\mathbf{q}} + \bar{\mathbf{G}}_1| \frac{L_z}{2}} \right], \quad (4)$$

式中  $\mathbf{G} = (\bar{\mathbf{G}}, G_z)$ ,  $\mathbf{q} = (\bar{\mathbf{q}}, 0)$ ,  $\bar{\mathbf{G}}$  和  $\bar{\mathbf{q}}$  分别代表平面内的二维倒格矢和布洛赫动量矢量;  $L_z$  为沿  $z$  轴方向的晶格矢量长度;  $n_z = G_z L_z / 2\pi$  为整数.

4) 利用真实体系响应函数  $\chi$  计算介电函数的倒数:

$$(\epsilon^{-1})_{\mathbf{G},\mathbf{G}'} = \delta_{\mathbf{G},\mathbf{G}'} + (v\chi)_{\mathbf{G},\mathbf{G}'}, \quad (5)$$

式中  $v$  为二维库仑势.

5) 利用介电函数的倒数画出电子能量损失图谱, 并从中提取等离激元信息: 电子能量损失谱与介电函数倒数的虚部成正比, 且此处仅关注  $\epsilon^{-1}$  的头部项 ( $\mathbf{G} = \mathbf{G}' = 0$ ), 其对应系统在宏观尺度下的结果.

$$E_{\text{Loss}} \propto -\text{Im}\{\epsilon_{\mathbf{G}=0,\mathbf{G}'=0}^{-1}\}. \quad (6)$$

得到电子能量损失谱后, 材料等离激元激发一般由能量损失谱的峰值位置来确定. 本文的 LR-TDDFT-RPA 计算中, 取平滑参数  $\eta = 0.136$  eV, 各类响应函数矩阵用  $50 \times 50$  来展开.

## 3 结果与讨论

### 3.1 石墨烯等离激元总体特征

经过结构优化弛豫, 获得石墨烯的晶格常数为 2.46 Å. 其倒空间结构 (包含高对称点位置)、相应的能带结构以及态密度分布分别如图 1(a)—(c) 所示. 分析表明, 石墨烯的电子结构呈现以下关键特征: 1)  $K$  点狄拉克锥: 费米面上下  $K$  点附近存在独特的线性狄拉克锥结构, 电子在该区域表现出无质量狄拉克费米子行为. 2)  $M$  点平带结构与范霍夫奇点: 布里渊区边界中点 ( $M$  点) 附近的能带较为平坦, 导致其在态密度谱对应位置出现显著的  $\pi$  能带峰值. 3)  $\Gamma$  点的高能简并与杂化: 在高能量区域,  $\Gamma$  点附近存在具有抛物线形状的能带简并, 并在态密度谱对应位置产生  $\pi$  能带与  $\sigma$  能带杂化的特征峰. 上述三种独特的电子结构特征分别诱导了三种不同类型的等离激元模式 [37], 如图 1(d) 所示. 源于掺杂后  $K$  点附近狄拉克锥中的带内跃迁导致了狄拉克等离激元的诞生, 其表现出简单的单峰结构, 能量分布在 0—2 eV 范围内; 而费米面附近占据态与非占据态的  $\pi$  与  $\pi^*$  能带在  $M$  点附近区域的带间跃迁导致了  $\pi$  等离激元的产生, 其仍旧呈现简单的单峰结构, 分布在 4—10 eV 范围内; 而更高能级下  $\pi$  与  $\sigma$  杂化能带产生的带间跃迁导致了  $\pi$ - $\sigma$  等离激元的形成, 其能量范围在 14 eV 以上, 与前两者不同的是,  $\pi$ - $\sigma$  等离激元呈现更为复杂的多峰结构.

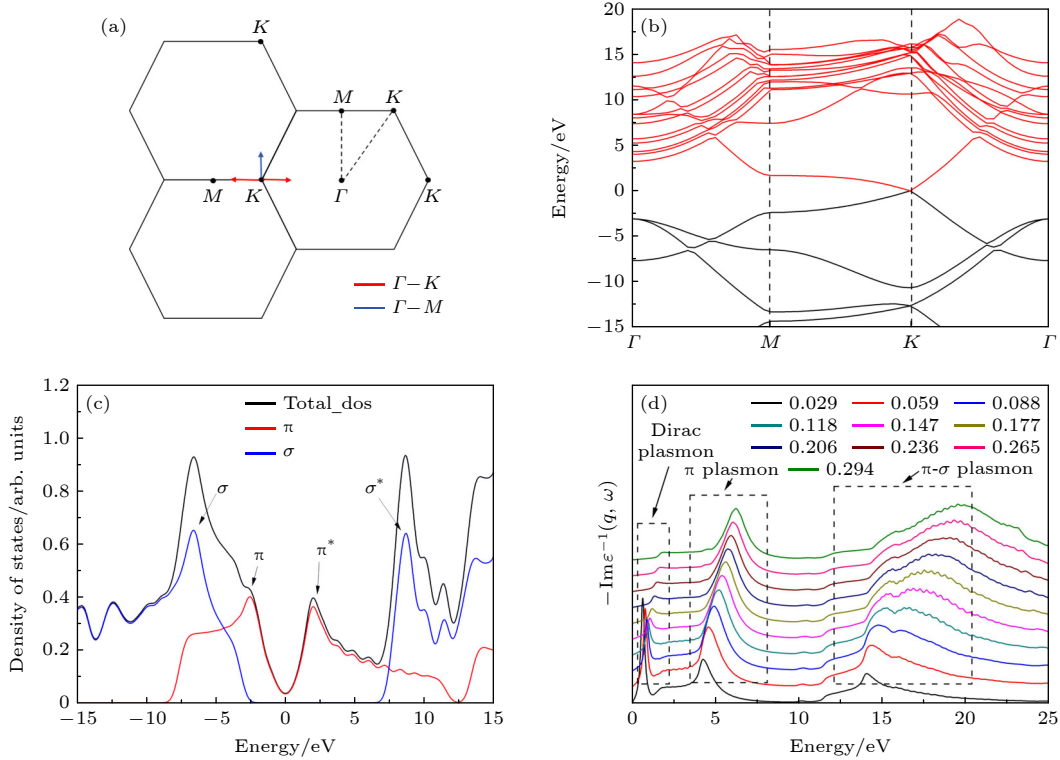


图 1 石墨烯的电子结构及等离激元分布 (a) 石墨烯的倒空间结构及高对称点位置与高对称路径方向, 红线和蓝线分别表示从  $K$  点出发的  $\Gamma-K$  方向和  $\Gamma-M$  方向; (b) 石墨烯能带图, 其中黑色曲线表示占据态, 红色曲线表示非占据态; (c) 石墨烯态密度图, 黑色线表示总态密度, 红色线为  $\pi$  能带态密度分布, 蓝色线为  $\sigma$  能带态密度分布; (d) 石墨烯在 0.03 electrons/unit cell 掺杂浓度时沿  $\Gamma-M$  方向不同  $q$  值对应的电子能量损失谱, 其中  $q$  的取值范围为  $0.029-0.294 \text{ \AA}^{-1}$

Fig. 1. Graphene's electronic structure and plasmon distributions: (a) The reciprocal space structure of graphene along with the positions of high-symmetry points and the directions of high-symmetry paths, where the red and blue lines represent the  $\Gamma-K$  and  $\Gamma-M$  directions from the  $K$  point, respectively; (b) graphene's band structure, where the black curve denotes the occupied states and the red curve represents the unoccupied states; (c) graphene's density of states (DOS), with the black line indicating the total DOS, the red line showing the projected DOS of the  $\pi$ -band, and the blue line displaying the projected DOS of the  $\sigma$ -band; (d) electron energy loss spectroscopy (EELS) of graphene along the  $\Gamma-M$  direction for different  $q$  values at 0.03 electrons/unit cell concentration, where  $q$  ranges from 0.029 to  $0.294 \text{ \AA}^{-1}$ .

为了深入探究石墨烯狄拉克等离激元的特性, 对掺杂浓度为 0.03 electrons/unit cell 的石墨烯电子能量损失谱线的低能区域进行了分析, 结果如图 2 所示, 其中图 2(a) 为不同波矢  $q$  沿  $\Gamma-M$  方向的结果, 图 2(b) 为沿  $\Gamma-K$  方向的结果. 通过对比发现, 沿  $\Gamma-M$  方向的等离激元结构相对简单, 呈现出单一的峰结构, 即传统意义上的二维狄拉克等离激元 (two-dimensional Dirac plasmon, 2DP), 然而, 沿  $\Gamma-K$  方向的等离激元结构则稍显复杂, 当  $q$  值较大时, 会出现较为复杂的双峰结构. 其中, 能量较高的峰对应于传统的二维狄拉克等离激元, 而能量较低的新峰则被称为声学等离激元 (acoustic plasmon, AP)<sup>[38]</sup>. 声学支的产生源于具有不同费米速度的电荷载流子之间的耦合<sup>[39]</sup>. 如图 1(a) 所示, 在石墨烯倒空间中, 从狄拉克点  $K$  出发, 沿  $\Gamma-M$  方向仅存在一种  $K-K$  类型 (蓝

色箭头, 倒空间六边形短对角线方向) 的单一传播模式; 而沿  $\Gamma-K$  方向则存在  $K-M$  (红色箭头, 六边形边长方向) 和  $K-\Gamma$  (红色箭头, 六边形长对角线方向) 两种不同的传播模式. 与紧束缚近似预测的各向同性狄拉克锥不同, 基于第一性原理的计算结果显示, 石墨烯在  $K$  点附近的电子结构具有微弱的方向依赖性: 沿  $K-K$  路径的费米速度约为  $8.43 \times 10^5 \text{ m/s}$ , 而沿  $K-M$  和  $K-\Gamma$  路径的费米速度分别为  $8.21 \times 10^5 \text{ m/s}$  和  $8.63 \times 10^5 \text{ m/s}$ . 这两种不同费米速度的电荷载流子发生耦合, 导致沿  $\Gamma-K$  方向出现独特的双峰结构. 本研究的重点在于探讨传统二维狄拉克等离激元的性质.

接下来详细分析石墨烯沿不同方向二维狄拉克等离激元随波矢变化的色散关系, 如图 2(c) 所示. 可以看出, 在波矢较小和波矢较大时, 色散关系呈现出不同的形状, 临界点大致位于费米波矢

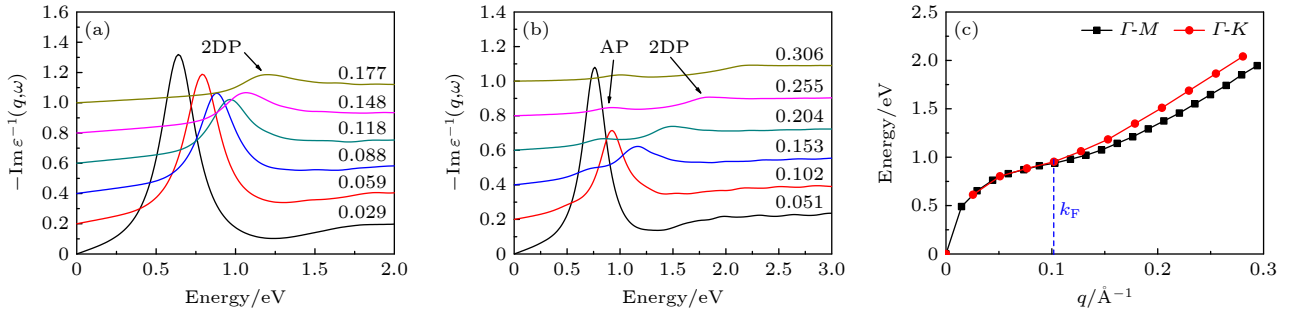


图 2 石墨烯狄拉克等离子元分布及色散图 (a) 沿  $\Gamma-M$  方向的分布; (b) 沿  $\Gamma-K$  方向的分布; (c) 两种不同方向二维狄拉克等离子元色散关系的对比图, 其中蓝色竖虚线代表费米波矢  $k_F$  的位置

Fig. 2. Distribution and dispersion behaviors of graphene Dirac plasmons: (a) Distributions along the  $\Gamma-M$  direction; (b) distributions along the  $\Gamma-K$  direction; (c) a comparative of the dispersion relationships for two-dimensional Dirac plasmons along  $\Gamma-M$  and  $\Gamma-K$  directions, where the blue vertical dashed line represents the position of the Fermi wave vector  $k_F$ .

$k_F$  处. 理论<sup>[40]</sup>和实验<sup>[41]</sup>均已验证, 在  $q < k_F$  的区域内, 等离子元无法衰变为能量与动量均匹配的电子-空穴对 (单粒子激发), 因此在该区域内理论上寿命是无限长的, 色散关系大致满足  $\sqrt{q}$  的形式; 而当  $q > k_F$  时, 等离子元衰变为电子-空穴对的通道被打开, 这一过程被称为朗道阻尼过程<sup>[42]</sup>. 此时, 等离子元会将能量耗散至单粒子激发, 导致其寿命减小, 色散关系呈现准线性行为. 此外, 从图 2(c) 可看出, 沿  $\Gamma-M$  和  $\Gamma-K$  方向的狄拉克等离子元色散在非朗道阻尼区域 ( $q < k_F$ ) 基本重合, 表现出良好的各向同性; 而在朗道阻尼区域 ( $q > k_F$ ),  $\Gamma-K$  方向的等离子元能量略高于  $\Gamma-M$  方向. 该现象可归因于前述的耦合机制: 沿  $\Gamma-K$  方向存在的两种传播模式会激发 2DP 与 AP 两支等离子元, 其间的能量排斥效应抬升了 2DP 模式的能量, 从而在该方向引入微弱的各向异性. 我们预测, 这种微弱的各向异性可以通过高分辨角分辨能量损失谱 (high-resolution electron energy loss spectroscopy, HREELS) 在实验上观测到.

由于等离子元激发能随波矢的变化而变化, 为了在后文中更方便地定量研究等离子元激发能随不同参数变化的关系, 选取  $q$  值为费米波矢时 ( $q = k_F$ ) 所对应的能量作为研究对象. 不同体系对应的费米波矢不同, 可以通过以下方法计算: 首先通过能带结构计算对应的费米速度  $v_F = \frac{1}{\hbar} \frac{\partial E}{\partial k}$ , 然后通过费米速度与费米波矢之间的关系计算费米波矢  $k_F = \frac{E_F}{\hbar v_F}$ . 这样取的优势在于刚好处在临界位置处, 此时等离子元不会衰变为电子-空穴对, 因此具有无限长的寿命. 我们将该位置对应的能量称为朗道阻尼临界阈值能量, 简称为阈值能量.

### 3.2 载流子浓度对于等离子元的调控

实验中, 载流子浓度可通过化学掺杂或门电压调控实现; 而在本文计算中, 通过调节费米能级的特定量值, 等效地调控载流子浓度. 图 3(a) 展示了不同载流子浓度 ( $-0.09$ — $0.09$  electrons/unit cell, 其中正号表示电子掺杂, 负号表示空穴掺杂) 下掺杂石墨烯狄拉克等离子元的色散关系. 可以看出, 所有浓度下的色散曲线均呈现出典型的双区特征: 在长波区 ( $q$  值较小时) 遵循  $\omega \propto \sqrt{q}$  的标度律, 而在短波区 ( $q$  值较大时) 则过渡为准线性行为, 且随着载流子浓度的增大, 对应费米波矢  $k_F$  的提升, 双区临界点向大波矢方向移动. 此外, 随着载流子浓度升高, 石墨烯狄拉克等离子元的整个色散关系发生系统性蓝移. 这一现象可通过文献<sup>[43]</sup>中钾掺杂自由悬挂纳米多孔石墨烯的研究得到验证: 随着钾掺杂剂量的增加, 对应的等离子元能量呈现系统性上升趋势. 值得注意的是, 电子掺杂与空穴掺杂对等离子元能量的调控效果近似对称, 但空穴掺杂对应的能量略高, 这一细微差异也在相应图 3(a) 子图中有所体现.

为定量表征掺杂效应, 图 3(b) 进一步给出费米波矢处等离子元阈值能量随载流子浓度的变化关系. 可以看出, 阈值能量随载流子浓度的增大而增大, 且在浓度从  $0.005$ — $0.1$  electrons/unit cell 范围内, 阈值能量从  $0.45$  eV 提升至  $1.38$  eV, 调控幅度达 207%. 值得注意的是, 阈值能量随载流子浓度的增加呈亚线性增长关系, 即调控效率随浓度升高逐渐降低, 该现象的物理起源将在 3.5 节中予以阐明.

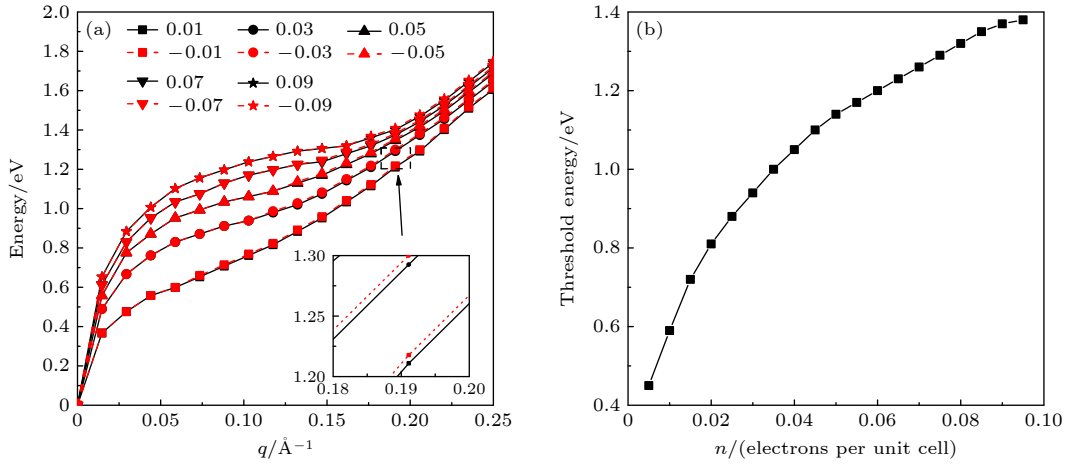


图3 载流子浓度对石墨烯狄拉克等离激元的调控 (a) 不同载流子浓度下沿  $\Gamma-M$  方向的等离激元色散关系, 正值表示电子掺杂, 负值表示空穴掺杂, 插图为同浓度下电子/空穴掺杂的色散行为对比; (b) 狄拉克等离激元阈值能量随载流子浓度的演化规律  
Fig. 3. Modulation of graphene Dirac plasmons by carrier concentrations: (a) Plasmon dispersion along the  $\Gamma-M$  direction under varied carrier concentrations. Positive/negative values indicate electron/hole doping. Inset: comparative dispersion behavior of electron- and hole-doped systems at identical carrier concentration. (b) Evolution of Dirac plasmon threshold energy as a function of carrier concentration.

### 3.3 双轴应变对于等离激元的调控

石墨烯因具有优异的力学性能, 是研究应变调控的理想二维平台<sup>[44]</sup>. 通过施加可控应变, 可有效调制其能带结构, 为设计新型电子与光电器件提供新思路<sup>[45]</sup>. 实验上, 利用柔性基底弯曲、纳米结构压痕或局部热膨胀失配等方法可实现不同类型的应变<sup>[46]</sup>. 单轴应变与双轴应变对石墨烯性质的影响存在显著差异: 单轴应变定向破坏了六方晶格的对称性, 导致狄拉克锥分裂并在狄拉克点处打开带隙, 其机制源于应变诱导了子晶格 A/B 位点的不等价性; 相反, 等双轴应变则维持了晶格对称性, 使所有狄拉克点同步移动而不打开带隙<sup>[47]</sup>. 因此, 二者影响的本质区别在于, 对称性的破缺与否直接决定了狄拉克锥拓扑结构的演变方式. 文献<sup>[48]</sup>表明等双轴应变作为调控石墨烯电子结构的有效手段, 在  $\pm 15\%$  应变范围内可保持布里渊区  $K$  点附近的狄拉克锥特性不发生本质性破坏.

如图 4(a) 所示, 10% 压缩应变下的能带结构在费米面附近的狄拉克点处仍保留典型的狄拉克锥结构, 这一对称性保护的电子结构特性使石墨烯在应变下仍能维持等离激元的激发能力. 本文固定掺杂浓度为 0.03 electrons/unit cell, 系统研究了不同大小的等双轴应变 ( $-10\%$ — $10\%$ ) 对等离激元色散关系的调制效应, 结果如图 4(b) 所示. 可以看出, 所有应变条件下的色散曲线仍旧保留典型的双区特征: 在长波极限区, 等离激元频率遵循  $\omega \propto \sqrt{q}$

的标度律; 而当波矢增大至短波区, 色散关系过渡为准线性. 值得注意的是, 由于掺杂浓度的恒定导致其对应费米波矢几乎一样, 因此双区临界点位置基本保持不变. 此外, 整体色散曲线随应变从压缩态向拉伸态转变时产生系统性红移趋势.

为了定量揭示双轴应变对等离激元激发能量的调控能力, 图 4(c) 展示了费米波矢处的阈值能量随应变的变化. 可以看出, 在  $-10\%$ — $10\%$  的应变范围内, 狄拉克等离激元的阈值能量与应变呈现显著的线性变化关系, 该结论可得到文献<sup>[49]</sup>的间接支持. 当应变从压缩态 ( $-10\%$ ) 转变为拉伸态 ( $10\%$ ) 时, 阈值能量从 1.12 eV 单调下降至 0.78 eV, 相对调控幅度达到 30.4%. 这一结果从电子结构层面证实了双轴应变在 0.78—1.12 eV 范围内实现调控石墨烯等离激元激发能量的可行性.

### 3.4 基底效应对于等离激元的调控

在器件应用中, 石墨烯通常集成于  $\text{SiO}_2$  或六方氮化硼 (hBN) 基底上以增强稳定性<sup>[50,51]</sup>. hBN 又称“白色石墨烯”, 是一种具有类石墨烯蜂窝状晶格的层状宽带隙半导体材料, 其单层内硼、氮原子通过强  $\text{sp}^2$  键结合, 层间由弱范德瓦耳斯力堆叠, 可通过机械剥离获得原子级平整表面<sup>[52]</sup>. hBN 具有约 6 eV 的间接带隙<sup>[53]</sup>、优异的绝缘性、超高的面内热导率以及卓越的化学和热稳定性<sup>[54]</sup>. 尤为重要的是, 其表面无悬挂键, 且晶格常数 (约 2.504 Å)

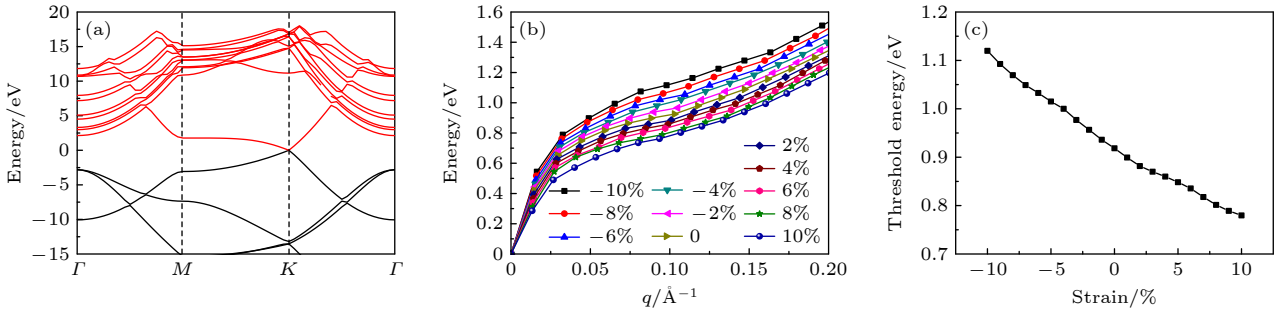


图 4 双轴应变对石墨烯狄拉克等离子激元的调控 (a) 10% 压缩应变下石墨烯的能带结构, 其中红线表示非占据态, 黑线表示占据态; (b) 掺杂浓度为 0.03 electrons/unit cell 时, 不同程度双轴应变下石墨烯狄拉克等离子激元沿  $\Gamma$ - $M$  方向的色散关系; (c) 狄拉克等离子激元阈值能量随双轴应变大小的演化规律

Fig. 4. Tuning graphene Dirac plasmons via biaxial strain: (a) Band structure of graphene under 10% compressive strain, the red lines represent the unoccupied states and the black lines represent the occupied states; (b) dispersion relation of Dirac plasmons under varying biaxial strains along the  $\Gamma$ - $M$  direction at 0.03 electrons/unit cell; (c) evolution of Dirac plasmon threshold energy with biaxial strain.

与石墨烯 (约 2.46 Å) 高度匹配<sup>[55]</sup> (失配度仅约为 1.8%), 使其成为构筑范德瓦耳斯异质结的理想基底和介电层材料<sup>[56]</sup>. 常见的石墨烯/hBN 堆垛方式包括 AA 堆垛 (hBN 的硼、氮原子分别与石墨烯六元环的两个碳原子上下对齐)、 $AB_1$  堆垛 (氮原子对齐石墨烯碳原子, 硼原子位于六元环中心上方) 和  $AB_2$  堆垛 (硼原子对齐石墨烯碳原子, 氮原子位于六元环中心上方). 通过结构优化 (收敛标准: 原子间力  $< 0.01$  eV/Å, 面内应力  $< 0.1$  kbar (1 bar = 105 Pa)) 并引入范德瓦耳斯相互作用修正 (DFT-D2 方法)<sup>[57]</sup>, 比较基态总能量发现,  $AB_2$  堆垛构型的能量 (-660.234 eV) 显著低于 AA 堆垛 (-660.206 eV) 和  $AB_1$  堆垛 (-660.213 eV), 表明其结构最稳定. 因此, 本研究选择  $AB_2$  堆垛作为后续所有计算的初始构型, 其优化后的晶格常数约为 3.48 Å, 层间距约为 3.3 Å. 该异质结构在费米面附近的能带结构如图 5(a) 所示. 可见, 即使在基底耦合效应作用下, 绝缘的 hBN 对费米面附近石墨烯的本征能带特性影响甚微. 在  $K$  点附近, 狄拉克锥特征依然清晰保留, 仅打开了一个约 43 meV 的小能隙. 这一结果表明, 该体系仍具备激发狄拉克等离子激元的能力. 从图 5(b) 可以看出, 当掺杂浓度为 0.03 electrons/unit cell 时, 石墨烯/hBN 异质结的等离子激元能量相较于纯石墨烯有所降低, 对应色散关系呈现一定量的红移. 此外, 对该异质结构体系施加应变后, 与纯石墨烯一样, 整体色散关系曲线随应变从压缩态向拉伸态转变发生系统性红移趋势, 如图 5(c) 所示. 另外, 异质结中等离子激元的阈值能量在 -10%—10% 的双轴应变范围内, 同

样表现出显著的线性响应规律, 如图 5(d) 所示. 当应变从压缩态 (-10%) 转变为拉伸态 (10%) 时, 阈值能量从 1.03 eV 单调下降至 0.72 eV, 相对调控幅度达到 30.1%. 该结果证实六方氮化硼基底未破坏应变调控的核心物理机制.

### 3.5 狄拉克等离子激元调控机制

#### 3.5.1 载流子浓度对石墨烯等离子激元的调控机制

在长波极限下, 掺杂石墨烯的等离子激元行为由极化率高频近似与二维库仑势的竞争为主导. 理论分析<sup>[40]</sup> 表明, 对应等离子激元色散关系满足如下形式:

$$\omega = \sqrt{\frac{g_s g_v e^2 E_F}{2\kappa}} \sqrt{q}, \quad (7)$$

其中  $g_s = 2$  和  $g_v = 2$  分别表示自旋与谷自由度, 反映石墨烯的狄拉克费米子特性;  $\kappa$  为基底介电常数, 主要用来调控库仑屏蔽强度. 此外, 源于石墨烯狄拉克点附近的线性能带关系, 有  $E_F \propto \sqrt{n}$ , 则可进一步导出等离子激元频率的独特标度律:  $\omega \propto n^{1/4}$ . 可以看出, 载流子浓度越大, 等离子激元激发能量越大. 为了验证此机制, 图 6 展示了在固定波矢 ( $q = 0.029$  Å<sup>-1</sup>, 位于非朗道阻尼区) 下等离子激元激发能量随载流子浓度  $n^{1/4}$  的变化关系. 计算数据 (黑色方块) 与线性拟合结果 (蓝色虚线) 表明: 在掺杂浓度 0.005—0.1 electrons/unit cell 的范围内, 该能量与掺杂浓度严格遵循上述线性依赖关系, 该理论关系已得到文献 [10] 中近场光学成像技术实验结果的验证.

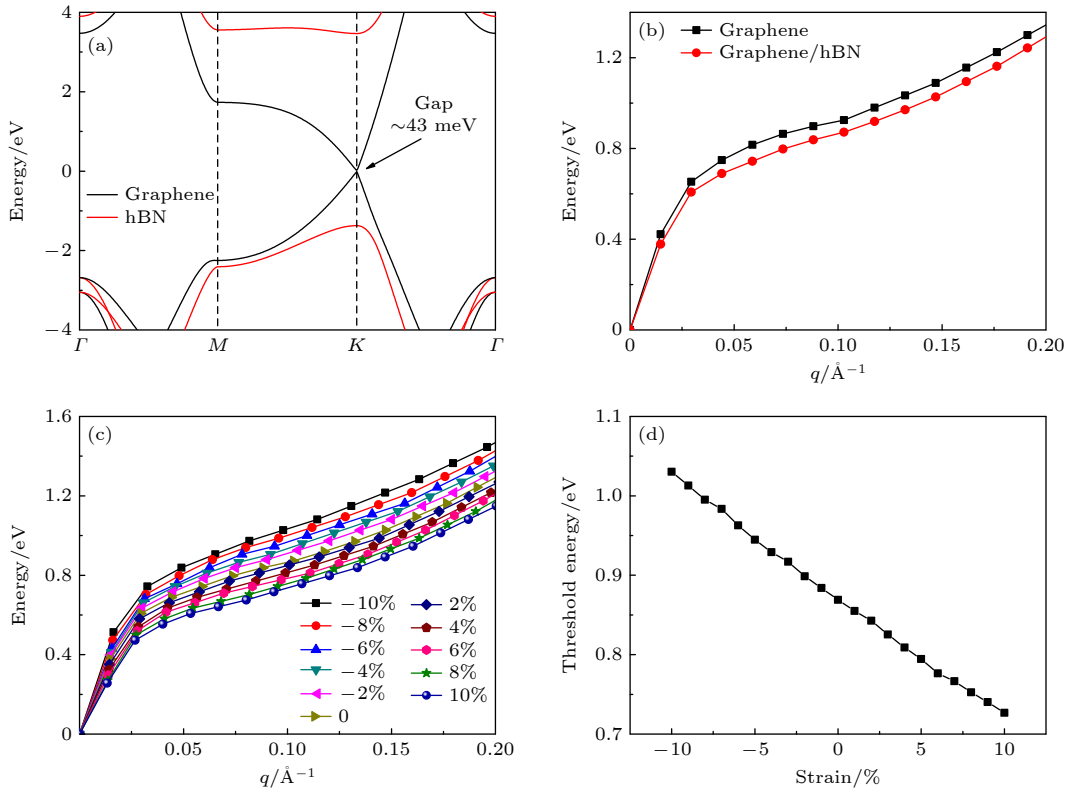


图 5 基底引入对石墨烯狄拉克等离激元的调控 (a) 石墨烯/六角氮化硼异质结在费米能级附近的能带结构, 其中黑线表示石墨烯的贡献, 红线表示六角氮化硼的贡献; (b) 掺杂浓度为 0.03 electrons/unit cell 时, 纯石墨烯与石墨烯/六角氮化硼沿  $\Gamma-M$  方向狄拉克等离激元色散关系对比图; (c) 掺杂浓度为 0.03 electrons/unit cell 时, 不同程度双轴应变下石墨烯/六角氮化硼狄拉克等离激元沿  $\Gamma-M$  方向的色散关系; (d) 石墨烯/六角氮化硼狄拉克等离激元阈值能量随双轴应变大小的演化规律

Fig. 5. Tuning graphene Dirac plasmons via substrate integration: (a) Band structure of graphene/hexagonal boron nitride (hBN) heterostructure near the Fermi level, where the black line indicates the contribution from graphene and the red line represents the contribution from hBN; (b) Dirac plasmon dispersions along  $\Gamma-M$  direction at 0.03 electrons/unit cell; (c) strain-dependent Dirac plasmon dispersions (graphene/hBN) under biaxial strains (-10% to 10%); (d) evolution of plasmon threshold energy with biaxial strain in graphene/hBN heterostructure.

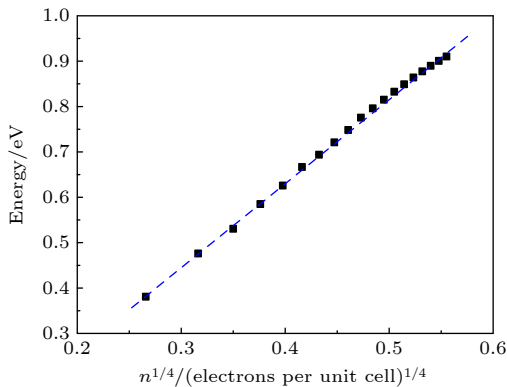


图 6 石墨烯等离激元激发能与载流子浓度 ( $n^{1/4}$ ) 在固定波矢处 ( $q = 0.029 \text{ \AA}^{-1}$ ) 的标度关系

Fig. 6. Scaling relation between plasmon excitation energy and carrier concentration ( $n^{1/4}$ ) in graphene at fixed wave vector ( $q = 0.029 \text{ \AA}^{-1}$ ).

此外, 3.2 节中观察到的调控效率随载流子浓度升高而降低的现象, 亦可归因于石墨烯狄拉克费

米子的本征能带特性: 费米能级满足  $E_F \propto n^{1/2}$ , 而等离激元能量进一步满足  $\omega \propto E_F^{1/2} \propto n^{1/4}$ . 该函数关系决定等离激元能量的一阶导数  $d\omega/dn \propto n^{-3/4}$ , 即单位浓度变化引起的能量变化随  $n$  的增加而递减, 从而导致调控效率随载流子浓度升高而逐渐下降.

### 3.5.2 双轴应变与基底调控石墨烯等离激元的机制

双轴应变通过改变狄拉克锥的费米速度显著调制石墨烯的等离激元激发特性. 如图 7(a) 所示, 在固定波矢跃迁量 ( $\Delta k$ ) 下, 陡峭的狄拉克锥产生更大的能量跃迁 ( $E_C > E_T$ ), 从而导致更高频的等离激元激发. 更为通俗的说法是, 高费米速度赋予电子更小的有效质量, 因此会增强库仑回复力驱动的集体振荡频率, 从而对应更大的能量. 这一机制

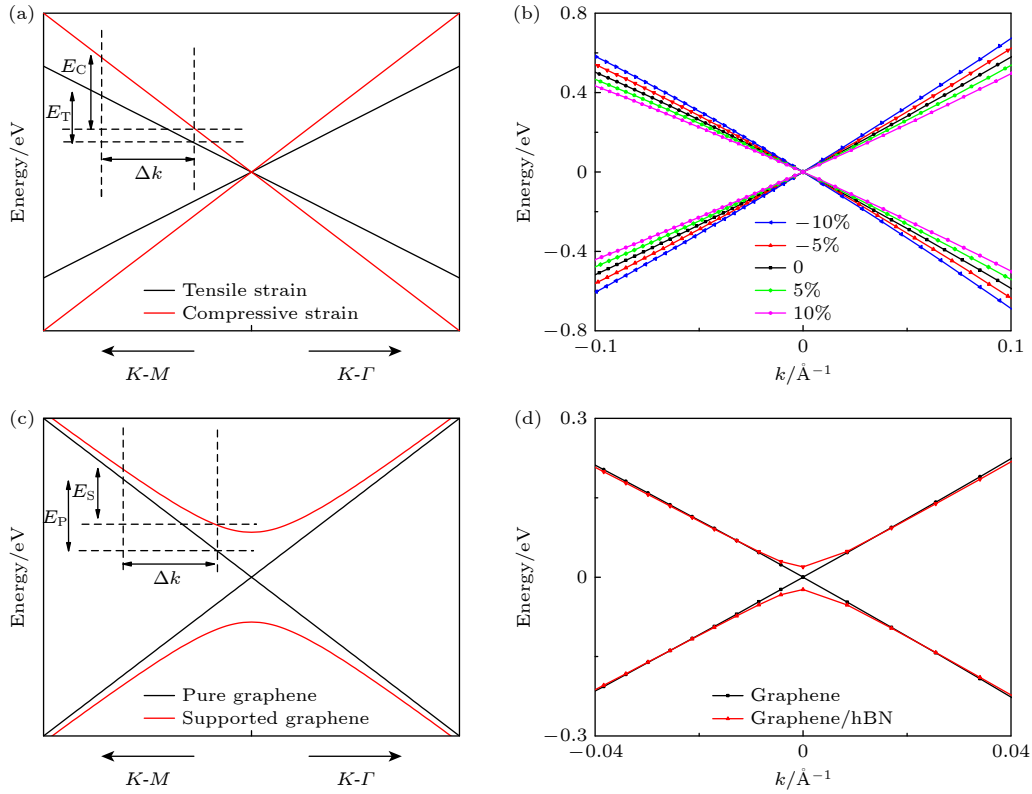


图 7 双轴应变与基底引入调控石墨烯等离激元机制 (a) 狄拉克锥斜率对等离激元激发的影响示意图; (b) 施加不同应变 (-10% 压缩应变到 10% 拉伸应变) 对石墨烯  $K$  点附近能带结构的影响; (c) 基底效应诱变能带形变对等离激元激发的影响示意图; (d) 纯净石墨烯与石墨烯/六角氮化硼异质结  $K$  点附近能带结构对比

Fig. 7. Mechanisms for tuning graphene plasmons via biaxial strain and substrate effects: (a) The influence of Dirac cone slope on plasmon excitations; (b) strain-dependent band structure near  $K$ -point under varying biaxial strains (-10% compressive to 10% tensile); (c) substrate-induced band deformation modulating plasmon excitation; (d) band structure comparison near  $K$ -point between pristine graphene and graphene/hBN heterostructure.

在图 7(b) 中得到直接验证: 当双轴应变从 -10% (压缩) 增至 +10% (拉伸) 时, 对应能带中狄拉克锥的斜率连续减小, 因此对应诱发等离激元色散曲线产生系统性的红移。

基底引入则通过对称性破缺重构能带结构, 进一步调控等离激元的行为。图 7(d) 表明, 六角氮化硼 (hBN) 基底使石墨烯狄拉克点处打开约 43 meV 的带隙, 同时将  $K$  点附近本身的线性色散转变为抛物线型能带形状。而从图 7(c) 可以看出, 在固定波矢跃迁 ( $\Delta k$ ) 条件下, 抛物线型能带的能量跃迁量显著低于原始线性能带 ( $E_P > E_S$ )。其本质是该能带重整化能够增大电子的有效质量, 从而削弱集体振荡回复力, 导致等离激元激发能降低, 表现为石墨烯/hBN 异质结的色散曲线相对纯石墨烯出现明显红移。

双轴应变与基底引入通过不同机制重构石墨烯能带结构, 前者调制狄拉克锥斜率, 后者诱导对称性破缺形成带隙, 两者均实现对等离激元激发能

量的可控调制。

## 4 结 论

本文基于国产第一性原理计算软件 ABACUS, 采用线性响应含时密度泛函理论 (LR-TDDFT-RPA) 方法, 系统探索了石墨烯狄拉克等离激元的三类调控机制, 主要结论如下:

1) 载流子浓度调控: 通过改变电子/空穴掺杂浓度 (0.005—0.1 electrons/unit cell), 对应狄拉克等离激元实现阈值能量在 0.45—1.38 eV 范围内的连续调谐, 其物理本质遵循  $\omega \propto n^{1/4}$  的标度律, 符合二维无质量狄拉克费米子模型的理论预期。

2) 双轴应变调控: 通过双轴应变改变狄拉克点附近的费米速度, 从而实现在  $\pm 10\%$  应变范围内, 阈值能量在 0.78—1.12 eV 间的调节, 且随着应变大小的变化呈现线性关系。

3) 基底介电环境影响: 当对石墨烯施加 hBN

基底时, 会诱导狄拉克点处产生约 43 meV 带隙, 导致等离激元能量整体红移, 且应变在异质结中仍保持线性调控能力, 这证实了基底引入不影响应变调控的核心机制, 具有一定的兼容性。

上述结果表明, 通过掺杂、应变、基底三重手段可实现石墨烯狄拉克等离激元的精准调控, 为石墨烯及石墨烯/hBN 异质结的动态光电器件设计提供了关键理论支撑。

## 参考文献

- [1] Novoselov K S, Geim A K, Morozov S V, et al. 2004 *Science* **306** 666
- [2] Geim A K, Novoselov K S 2007 *Nat. Mater.* **6** 183
- [3] Allen M J, Tung V C, Kaner R B 2010 *Chem. Rev.* **110** 132
- [4] Yang X X, Kong X T, Dai Q 2015 *Acta Phys. Sin.* **64** 106801 (in Chinese) [杨晓霞, 孔祥天, 戴庆 2015 物理学报 **64** 106801]
- [5] Yang X J, Xu H, Xu H Y, Li M, Yu H F, Cheng Y X, Hou H L, Chen Z Q 2024 *Acta Phys. Sin.* **67** 157802 (in Chinese) [杨肖杰, 许辉, 徐海焯, 李铭, 于鸿飞, 成显轩, 侯海良, 陈智全 2024 物理学报 **67** 157802]
- [6] Jablan M, Buljan H, Soljačić M 2009 *Phys. Rev. B* **80** 245435
- [7] Alonso-González P, Nikitin A Y, Golmar F, et al. 2014 *Science* **344** 1369
- [8] Fei Z, Rodin A, Andreev G O, Bao W Z, et al. 2012 *Nature* **487** 82
- [9] Chen J, Badioli M, Alonso-González P, et al. 2012 *Nature* **487** 77
- [10] Woessner A, Lundberg M B, Gao Y, et al. 2015 *Nat. Mater.* **14** 421
- [11] Basov D N, Fogler M M, García de Abajo F J 2016 *Science* **354** aag1992
- [12] Rodrigo D, Limaj O, Janner D, Etezadi D, García de Abajo F J, Pruneri V, Altug H 2015 *Science* **349** 165
- [13] Liu M, Yin X B, Ulin-Avila E, Geng B S, Zentgraf T, Ju L, Wang F, Zhang X 2011 *Nature* **474** 64
- [14] Grigorenko A N, Polini M, Novoselov K S 2012 *Nat. Photonics* **6** 749
- [15] Lundberg M B, Gao Y, Asgari R, et al. 2017 *Science* **357** 187
- [16] Zhang H Y, Fan X D, Wang D L, Zhang D B, Li X G, Zeng C G 2022 *Phys. Rev. Lett.* **129** 237402
- [17] Zhao W Y, Wang S X, Chen S D, Zhang Z C, Kenji W, Takashi T, Alex Z, Wang F 2023 *Nature* **614** 688
- [18] Li P F, Ren X G, He L X 2017 *Phys. Rev. B* **96** 165417
- [19] Ju L, Geng B S, Jason H, et al. 2011 *Nat. Nanotechnol.* **6** 630
- [20] Yan H G, Low T, Zhu W J, Wu Y Q, Freitag M, Li X, Guinea F, Avouris P, Xia F N 2013 *Nat. Photonics* **7** 394
- [21] Ni G X, Wang L, Goldflam M, et al. 2016 *Nat. Photonics* **10** 244
- [22] Chen M H, Guo G C, He L X 2010 *J. Phys. Condens. Matter* **22** 445501
- [23] Li P F, Liu X H, Chen M H, Lin P Z, Ren X G, Lin L, Yang C, He L X 2016 *Comp. Mater. Sci.* **112** 503
- [24] Schlipf M, Gygi F 2015 *Comput. Phys. Commun.* **196** 36
- [25] Perdew J P, Burke K, Ernzerhof M 1996 *Phys. Rev. Lett.* **77** 3865
- [26] Wu Y Y, Li G L, Camden J P 2018 *Chem. Rev.* **118** 2994
- [27] Onida G, Reining L, Rubio A 2002 *Rev. Mod. Phys.* **74** 601
- [28] Silkin V M, Chulkov E V, Echenique P M 2004 *Phys. Rev. Lett.* **93** 176801
- [29] Yuan Z, Gao S W 2009 *Comput. Phys. Commun.* **180** 466
- [30] Mowbray D J 2014 *Phys. Status Solidi B* **251** 2509
- [31] Li P F, Shi R, Lin P Z, Ren X G 2023 *Phys. Rev. B* **107** 035433
- [32] Li P F, Hui N J 2025 *Vacuum* **240** 114424
- [33] Adler S L 1962 *Phys. Rev.* **126** 413
- [34] Wisner N 1963 *Phys. Rev.* **129** 62
- [35] Petersilka M, Gossmann U J, Gross E K U 1996 *Phys. Rev. Lett.* **76** 1212
- [36] Rozzi C A, Varsano D, Marini A, Gross E K U, Rubio A 2006 *Phys. Rev. B* **73** 205119
- [37] Antonio P, Gennaro C 2014 *Nanoscale* **6** 10927
- [38] Pisarra M, Sindona A, Riccardi P, Silkin V M, Pitarke J M 2014 *New J. Phys.* **16** 083003
- [39] Pines D 1956 *Can. J. Phys.* **34** 1379
- [40] Hwang E H, Sarma S D 2007 *Phys. Rev. B* **75** 205418
- [41] Liu Y, Willis R F, Emtsev K V, Seyller T 2008 *Phys. Rev. B* **78** 201403
- [42] Wunsch B, Stauber T, Sols F, Guinea F 2006 *New J. Phys.* **8** 318
- [43] Marchiani D, Tonelli A, Mariani C, et al. 2023 *Nano Lett.* **23** 170
- [44] Lee C G, Wei X D, Kysar J W, Hone J 2008 *Science* **321** 385
- [45] Guinea F, Katsnelson M I, Geim A K 2010 *Nat. Phys.* **6** 30
- [46] Bao W Z, Miao F, Chen Z, Zhang H, Jiang W Y, Dames C, Lau C N 2009 *Nat. Nanotechnol.* **4** 562
- [47] Pereira V M, Castro Neto A H 2009 *Phys. Rev. Lett.* **103** 046801
- [48] Yasumasa H, Keita K 2012 *Phys. Rev. B* **86** 165430
- [49] Wang L J, Baumgartner A, Makk P, Zihlmann S, Varghese B S, Indolese D I, Watanabe K, Taniguchi T, Schönenberger C 2021 *Commun. Phys.* **4** 147
- [50] Drogowska-Horna K A, Mirza I, Rodriguez A, et al. 2020 *Nano Res.* **13** 2332
- [51] Lyu B S, Chen J J, Wang S, et al. 2024 *Nature* **628** 758
- [52] Dean C R, Young A F, Meric I, et al. 2010 *Nat. Nanotechnol.* **5** 722
- [53] Cassabois G, Valvin P, Gil B 2016 *Nat. Photonics* **10** 262
- [54] Watanabe K, Taniguchi T, Kanda H 2004 *Nat. Mater.* **3** 404
- [55] Luo M, Zhou Y, Cheng T T, Meng Y X, Wang Y J, Xian J C, Qin J Y, Yu C H 2024 *Acta Photon. Sin.* **53** 0753307 (in Chinese) [罗曼, 周杨, 成田恬, 孟雨欣, 王奕锦, 鲜佳赤, 秦嘉怡, 余晨辉 2024 光子学报 **53** 0753307]
- [56] Geim A K, Grigorieva I V 2013 *Nature* **499** 419
- [57] Grimme S 2006 *J. Comput. Chem.* **27** 1787

# First-principles study of modulation of graphene Dirac plasmons\*

LI Pengfei<sup>1)2)†</sup> HAN Lijun<sup>1)</sup> ZHANG Lin<sup>1)</sup> HUI Ningju<sup>1)</sup>

<sup>1)</sup> (*Department of Applied Physics, Xi'an University of Technology, Xi'an 710048, China*)

<sup>2)</sup> (*Shaanxi University Key Laboratory of Photonic Power Devices and Discharge Regulation, Xi'an 710048, China*)

(Received 11 July 2025; revised manuscript received 29 August 2025)

## Abstract

Graphene Dirac plasmons, which are collective oscillations of charge carriers behaving as massless Dirac fermions, have emerged as a transformative platform for nanophotonics due to their exceptional capability for deep subwavelength light confinement in the infrared-to-terahertz spectral region and their unique dynamic tunability. Although external controls such as electrostatic doping, mechanical strain, and substrate engineering are empirically known to be able to modulate plasmonic responses, a comprehensive and quantitative theoretical framework from first principles is essential to reveal the distinct efficiency and fundamental mechanisms of each tuning strategy. To address this issue, we conduct a systematic first-principles study of three primary modulation pathways—carrier density, biaxial strain, and substrate integration—by using linear-response time-dependent density functional theory in the random-phase approximation (LR-TDDFT-RPA) as implemented in the computational code ABACUS. A truncated Coulomb potential is adopted in order to accurately model the isolated two-dimensional system, while structural and electronic properties are computed using the PBE functional with SG15 norm-conserving pseudopotentials and van der Waals corrections for heterostructures. Our research results indicate that modulating carrier concentration can cause the plasmon dispersion to follow the characteristic  $\omega \propto n^{1/4}$  scaling law, thereby tuning within a wide range from 0.45 eV to 1.38 eV at the Landau damping threshold—a 207% change for the carrier density varying from 0.005 to 0.1 electrons/unit cell, although efficiency decreases at higher concentrations due to the sublinear nature of the scaling law. Biaxial strain linearly changes the plasmon energy by modifying the Fermi velocity ( $v_F$ ) near the Dirac point, yielding a 30.4% tuning range (0.78–1.12 eV) under  $\pm 10\%$  strain. Introducing an hBN substrate induces a small band gap ( $\sim 43$  meV) and causes a general redshift in plasmon energy due to band renormalization, while remarkably preserving the linear strain-tuning capability in a 30.1% energy range (0.72–1.03 eV) in the heterostructure, demonstrating robust compatibility between strain engineering and substrate integration. These results quantitatively elucidate the different physical mechanisms—Fermi level shifting, Fermi velocity modification, and substrate-induced symmetry breaking and hybridization—underpinning each strategy, thereby providing a solid theoretical foundation for designing dynamically tunable optoelectronic devices based on graphene and its van der Waals heterostructures.

**Keywords:** first-principles calculations, graphene, linear-response time-dependent density functional theory, Dirac plasmons

**PACS:** 71.15.-m, 73.20.Mf

**DOI:** [10.7498/aps.74.20250913](https://doi.org/10.7498/aps.74.20250913)

**CSTR:** [32037.14.aps.74.20250913](https://cstr.cn/32037.14.aps.74.20250913)

\* Project supported by the Young Scientists Fund of the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 11904284), the Natural Science Basic Research Program of Shaanxi Province, China (Grant Nos. 2025JC-YBMS-052, 2024JC-YBMS-512), and the Scientific Research Program Funded by Shaanxi Provincial Education Department, China (Grant No. 24JP114).

† Corresponding author. E-mail: [lpf91124@xaut.edu.cn](mailto:lpf91124@xaut.edu.cn)



石墨烯狄拉克等离子体调控的第一性原理研究

李鹏飞 韩丽君 张琳 惠宁菊

First-principles study of modulation of graphene Dirac plasmons

LI Pengfei HAN Lijun ZHANG Lin HUI Ningju

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 74, 217101 (2025) DOI: 10.7498/aps.74.20250913

CSTR: 32037.14.aps.74.20250913

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.74.20250913>

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

## 您可能感兴趣的其他文章

### Articles you may be interested in

石墨烯过渡层对金属/SiC接触肖特基势垒调控的第一性原理研究

First principle study on modulating of Schottky barrier at metal/4H-SiC interface by graphene intercalation

物理学报. 2022, 71(5): 058102 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20211796>

石墨烯线缺陷局域形变对谷输运性质的影响

Influence of local deformation on valley transport properties in the line defect of graphene

物理学报. 2023, 72(16): 166101 <https://doi.org/10.7498/aps.72.20230736>

$\text{Si}_n$  团簇/石墨烯( $n \leq 6$ )结构稳定性和储锂性能的第一性原理计算

First-principles study of structural stability and lithium storage property of  $\text{Si}_n$  clusters ( $n \leq 6$ ) adsorbed on graphene

物理学报. 2021, 70(19): 198101 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210521>

二维有限元方法研究石墨烯环中磁等离子体

Study of magnetoplasmons in graphene rings with two-dimensional finite element method

物理学报. 2023, 72(8): 087301 <https://doi.org/10.7498/aps.72.20222467>

氧原子在氟化石墨烯上扩散的第一性原理计算

First-principles calculations of O-atom diffusion on fluorinated graphene

物理学报. 2023, 72(1): 016801 <https://doi.org/10.7498/aps.72.20221630>

石墨烯条带各向异性堆垛结构中的半狄拉克电子态

Semi-Dirac electronic states in anisotropic stacked graphene structure

物理学报. 2025, 74(19): 197101 <https://doi.org/10.7498/aps.74.20250758>