

graphene 量子点的起伏效应对尺寸的敏感性研究

李桂琴[†] 蔡 军

(清华大学物理系, 北京 100084)

(2009 年 1 月 29 日收到, 2009 年 2 月 17 日收到修改稿)

用第一原理研究了 graphene 量子点器件在不同尺寸时的输运特性, 以得到起伏效应所引起的输运特性的变化, 以及对尺寸的敏感性. 研究表明无论电极与锯齿型边界的 graphene 量子点相连还是与扶手椅型边界的 graphene 量子点相连, 都会受起伏效应较大的影响, 并且随尺寸的不同影响程度也不同. 加偏压后得到的电流也受较大影响, 但两种连法受到的影响随尺寸的增加效果不同.

关键词: graphene, 量子点, 起伏效应

PACC: 7200, 7115M

1. 引 言

graphene 是一种碳原子分布在二维蜂巢晶体点阵上的单原子层晶体. 这种材料有许多特殊的性质, 如 Dirac 点附近的载流子的有效静质量为零, 呈现相对论性质的特征, 出现反常的量子霍尔效应等特性^[1-3]. 由于这种材料具有奇特的电子性质, 近几年受到人们广泛的关注^[1-4]. graphene 似乎是严格的二维材料, 在研究 graphene 的许多性质时也是按照这样的结构处理的. 但已有理论和实验指出^[5-8]完全的二维晶体在自由态是不存在的, 但单层的晶体可以在三维空间中存在. Meyer 等^[9]对 graphene 的实验研究证实了这一结果. 他们用透射电子显微镜研究了 graphene, 研究结果表明单层 graphene 相对平面的变形可以达到 1 nm. 实验结果表明 graphene 不是严格的二维结构, 是有一定起伏的, 即 graphene 是三维空间的单原子层晶体. 本文用分子动力学方法模拟得到具有起伏效应的 graphene 单原子层晶体的空间构象. 接着研究了由几种不同尺寸的 graphene 量子点构成的纳电子器件在考虑了起伏效应后其输运特性以及在偏压下其电流特性的变化, 并讨论起伏效应引起的变化是否会对 graphene 量子点尺寸的变化很敏感.

2. 计算方法

本文用密度泛函理论与非平衡态格林函数方法^[10,11]研究 graphene 量子点器件的电子输运特性. 为了利用目前已经成熟的理论计算方法, 计算时可将器件分成两部分: 一部分称为扩展的 graphene 区, 即 graphene 和电极上近邻的金属原子, 另一部分为电极的其他部分, 称为接触区. 输运特性的计算采用了方程^[10]

$$T = \text{Tr}(\Gamma_1 G \Gamma_2 G^*), \quad (1)$$

其中 G 是推迟格林函数, 可由下式得到. $G = (ES - F - \Sigma_1 - \Sigma_2)^{-1}$. 式中 S 是重叠矩阵, E 是能量, F 是 Fock 矩阵, Σ_i 表示电极的自能. (1) 式中的 Γ_i 是谱密度, 描述了第 i 个电极与扩展区域之间的耦合, 可由下式给出:

$$\Gamma_i = i(\Sigma_i - \Sigma_i^*).$$

对器件加偏压后, 器件两端的电流为

$$I = \frac{2e}{h} \int_{-\infty}^{+\infty} dE T(E, V) [f(E - \mu_1) - f(E - \mu_2)], \quad (2)$$

其中 $f(E)$ 是 Fermi 函数, μ_1, μ_2 是化学势,

$$f(E) = \frac{1}{1 + \exp(E/k_B T)},$$

[†] 通讯联系人. E-mail: ligqin@mail.tsinghua.edu.cn

$$\mu_1 = E_f - \frac{1}{2}eV,$$

$$\mu_2 = E_f + \frac{1}{2}eV.$$

3. 结果与讨论

分子动力学模拟是研究复杂微观系统的有力工具,可以得出与实验结果相符合或者可比拟的计算结果.我们利用分子动力学的方法对大块的二维 graphene 材料进行优化.大量理论计算和模拟结果都证实 Tersoff 多体势^[12]是模拟 Si, C, Ge 等体系的很好的作用势.所以在对 graphene 进行优化时采用了 Tersoff 势.势参数与截断半径来自文献^[12].分子动力学采用等温等压系综,模拟温度为 100 K,时间步长为 3×10^{-15} s,模拟计算单胞包含 20000 个碳原子.对大块的二维 graphene 材料优化后的结果展示了相对 graphene 表面的起伏.这种起伏特征与实验结果一致^[9].图 1(a)为用分子动力学方法优化后的

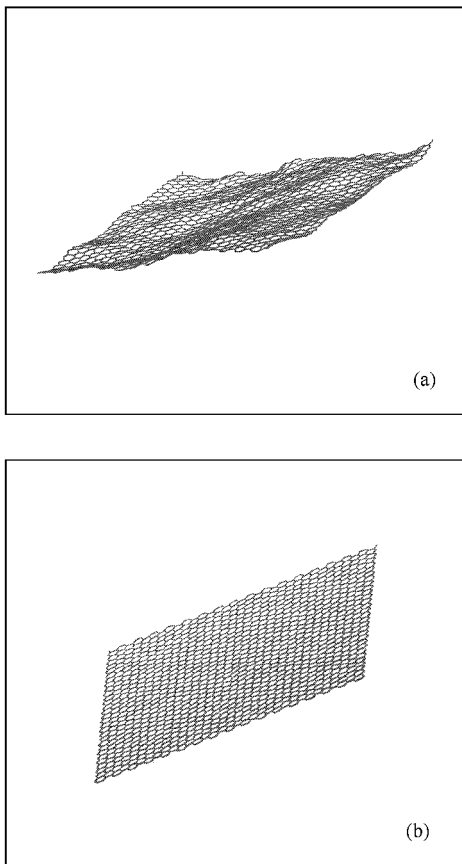


图 1 (a)用分子动力学方法优化后的 graphene 材料 (b)平面 graphene 材料

graphene 材料.图 1(b)为没有优化的完全平面的二维 graphene 材料.

由于三明治结构纳电子器件已经越来越受到人们的广泛重视,并成为国际上的热点课题^[13-18].所以我们也采用了三明治结构.从由分子动力学方法优化得到的大块 graphene 材料截取一段有限大小的 graphene 材料(量子点),通过硫(S)原子将此 graphene 材料与金(Au)电极连接形成三明治结构的纳电子器件.为了简化计算器件中的 Au 电极取有限长度,即取 Au 电极由 13 个原子组成,沿(111)方向.如图 2 所示.器件中原子之间键长的关系为 C—C 是 1.42 Å, S—C 是 1.97 Å, S—Au 是 2.53 Å, Au—Au 是 2.88 Å.在用第一性原理计算输运特性之前对扩展的 graphene 进行了进一步的优化.优化时应用 Gaussian98 软件包,采用了密度泛函理论方法和 B3LYP 函数,graphene 的几何参数使用了由分子动力学模拟得到的参数.

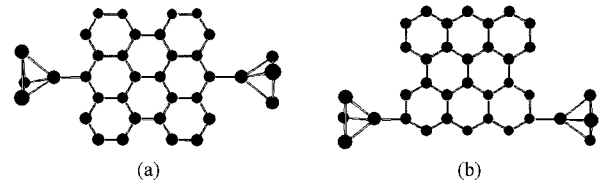


图 2 graphene 器件的几何构型 (a)电极与锯齿型边界相连; (b)电极与扶手椅型边界相连

在我们所考虑的图 2 的电子器件中,graphene 具有两种边界^[19-21],一种是锯齿型,一种为扶手椅型.锯齿型边界的 graphene 和扶手椅型边界的 graphene 在取成条带状时已显现出不同的特性.锯齿型边界的 graphene 具有导体的特性,而扶手椅型边界的 graphene 随宽度的不同分别呈现导体和半导体特性.这些特性使得这种材料在未来电子器件的应用中具有挑战性.本文通过第一性原理的理论计算来研究 graphene 量子点组成的纳电子器件的输运特性.输运特性的计算根据(1)式,应用了 SMEAGOL 软件包^[10]得到.几何参数使用了由密度泛函理论优化后得到的参数.计算中 Cutoff 取为 120 Ry 以达到计算效率和精度的平衡,电荷密度积分沿半圆取 60 个能量点,沿复平面取 60 个能量点.在计算中选取了不同尺寸的严格二维结构和有起伏效应的 graphene 量子点,以了解 graphene 量子点的起伏效应对尺寸的敏感性.如图 2 所示 graphene 量子点边界是左右为锯齿型边界,上下为扶手椅型边界,或左右

为扶手椅型边界,上下为锯齿型边界.

本文首先研究了电极通过 S 原子与锯齿型边界的 graphene 量子点相连.图 3 所示为考虑了起伏效应和严格二维结构的 graphene 量子点器件在费米能附近的传输系数与能量的关系.图 3 (a)对应的是 28 个碳原子组成的量子点器件的传输特性曲线.图 3 (b)对应的是沿电极方向增加到 56 个碳原子的量子点器件的传输特性曲线.

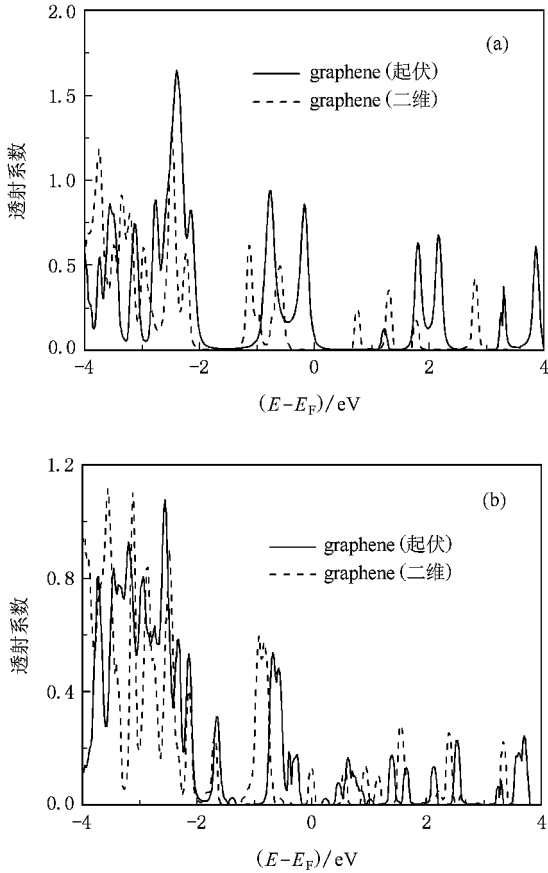


图 3 电极与锯齿型边界 graphene 相连时的传输特性比较 (a) 28 个碳原子 (b) 56 个碳原子

从图 3 中可以看出,考虑了起伏效应和没考虑此效应的结果是有差异的,特别是 28 个碳原子的 graphene 器件的传输系数,考虑了起伏效应和没考虑此效应的结果是有较大差异的.第一,曲线的峰位不同,特别是图 3 (a)中在费米能附近的峰位相差很大.第二,曲线峰值的高度不同,图 3 (a)中 -3 eV 以上有起伏效应时其峰值要高,图 3 (b)中 -2 eV 以上有起伏效应时其峰值与严格二维结构时的峰值相差较小.第三,考虑起伏效应和没考虑起伏效应时传输曲线的峰值的间距也是不同的.比较图 3 (a)和图 3 (b)不同尺寸的 graphene 的传输曲线中峰间距也是

不同的,并且随长度的增加间距变小.由于考虑起伏效应而导致的传输曲线的这些特性必然会导致电流特性的改变.

利用方程 (2)可以计算器件的电流电压特性.图 4 (a)(b)分别是加偏压 -1 到 1 V 时 28 个碳原子考虑了起伏效应与严格二维结构的 graphene 量子点器件和 56 个碳原子考虑了起伏效应与严格二维结构的 graphene 量子点器件的电流电压特性曲线.

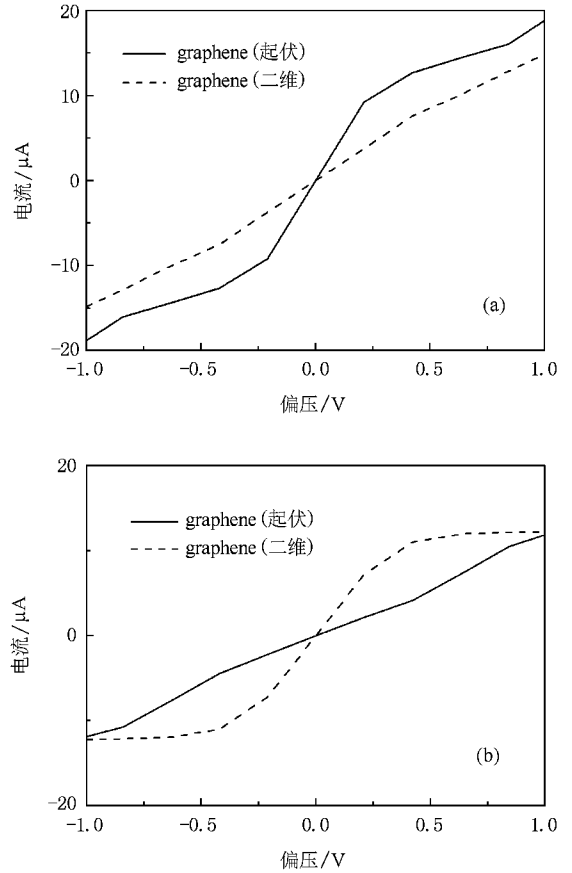


图 4 电极与锯齿型边界 graphene 相连时的电流特性 (a) 28 个碳原子 (b) 56 个碳原子

从图 4 (a)中可以看出,graphene 量子点器件在考虑了起伏效应与不考虑此效应时其电流有较大的差别.考虑了起伏效应后的电流值更大一些,这与考虑起伏效应后传输曲线的幅值普遍高于不考虑起伏时的幅值是一致的.图 4 (b)中两条电流线也有较大的差别,但与图 4 (a)的情况相反,考虑了起伏效应后的电流值小一些.从图 3 和图 4 的结果看不同尺寸的 graphene 量子点器件的传输特性和电流特性受起伏效应的影响是不同的.

本文也研究了电极通过 S 原子与扶手椅型边界的 graphene 量子点相连.图 5 所示为 28 个碳原子和

沿电极方向增加到 52 个碳原子组成的 graphene 量子点器件在费米能附近的输运系数与能量的关系. 图 5 (a) 是 28 个碳原子的量子点器件考虑了起伏效应和严格二维结构的输运特性曲线. 图 5 (b) 是 52 个碳原子的量子点器件考虑了起伏效应和严格二维结构的输运特性曲线.

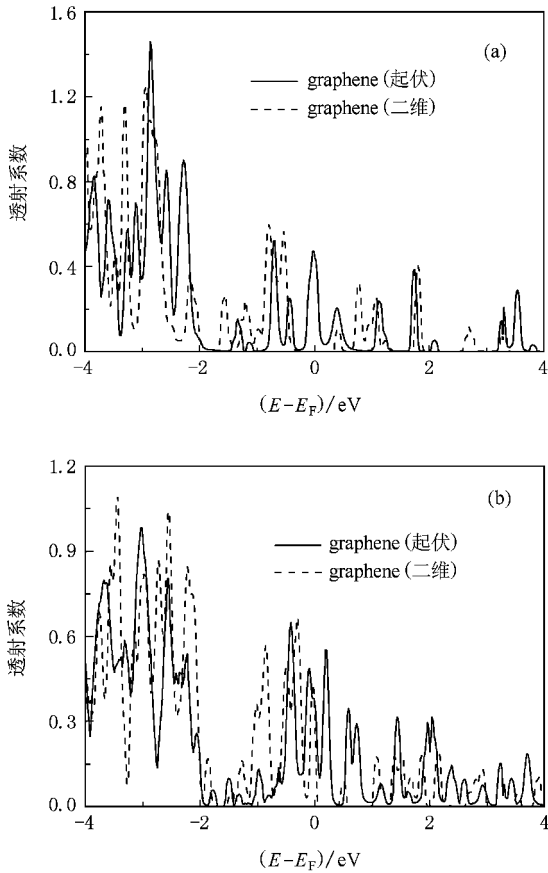


图 5 电极与扶手椅型边界 graphene 相连时的输运特性比较 (a) 28 个碳原子 (b) 52 个碳原子

从图 5 可以看出, 对电极与扶手椅型边界的 graphene 量子点相连的情况, 考虑了起伏效应和没考虑此效应的结果差异也是很大的. 第一, 曲线峰值的高度不同, 有些区间有起伏效应时的峰值要高, 有些区间没有起伏效应时的峰值要高. 没有确定的规律. 第二, 峰位有明显的偏离, 峰的间距也不同. 虽然不同尺寸的 graphene 器件的输运曲线中峰间距不同并且随长度的增加间距变小, 但同一尺寸的 graphene 器件考虑起伏效应和没考虑起伏效应时其输运曲线的峰值的间距也是不同的, 即能级的位置和间隔发生了变化.

图 6 是偏压为 -1 到 1 V 范围的 graphene 量子点器件的电流电压特性曲线. 从图中可以看出, 对于

同一个尺寸的 graphene 量子点器件在考虑了起伏效应与不考虑此效应时其电流是不同的. 与锯齿型边界的 graphene 量子点器件不同, 无论尺寸大小, 器件考虑了起伏效应后的电流值比不考虑起伏效应的小一些.

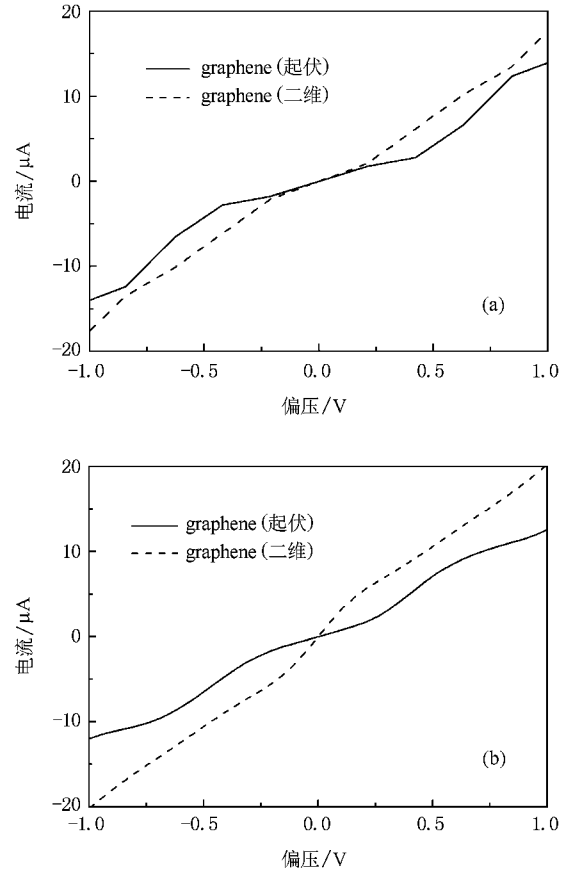


图 6 电极与扶手椅型边界 graphene 相连时的电流特性 (a) 28 个碳原子 (b) 52 个碳原子

4. 结 论

我们用分子动力学方法对大块的二维 graphene 材料进行优化, 优化后的结果展示了相对 graphene 表面的起伏. 截取不同的尺寸并与金电极相连形成 graphene 量子点器件. 用第一性原理研究了电极与不同尺寸的锯齿型边界的 graphene 量子点相连时的输运特性和电流特性, 以及电极与不同尺寸的扶手椅型边界的 graphene 量子点相连时的输运特性和电流特性. 从计算结果中可以得到起伏效应所引起的输运特性的变化, 以及对尺寸的敏感性. 研究结果表明无论电极与锯齿型边界的 graphene 量子点相连还是与扶手椅型边界的 graphene 量子点相连, 都会受

到起伏效应的影响. 加偏压后得到的电流也受较大影响, 但两种连法受到的影响随尺寸的不同有所差异.

- [1] 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
- [2] 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
- [3] Berger C , Song Z , Li X , Wu X , Brown N , Naud C , Mayou D , Li T , Hass J , Marchenkov A N , Conrad E H , First P N , de Heer W A 2006 *Science* **312** 1191
- [4] Li A H , Zhang K W , Meng L J , Li J , Liu W L , Zhong J X 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 4356 (in Chinese) [李爱华、张凯旺、孟利军、李俊、刘文亮、钟建新 2008 物理学报 **57** 4356]
- [5] Peierls R E 1934 *Helv. Phys. Acta* **7** 81
- [6] Peierls R E 1935 *Ann. Inst. Henri Poincare* **5** 177
- [7] Mermin N D 1968 *Phys. Rev.* **176** 250
- [8] Novoselov K S , Jiang D , Schedin F , Booth T J , Khotkevich V V , Morozov S V , Geim A K 2005 *Natl Acad. Sci. USA* **102** 10451
- [9] Meyer J C , Geim A K , Katsnelson M I , Novoselov K S , Booth T J , Roth S 2007 *Nature* **446** 60
- [10] Rocha A R , Garcia-Suarez V , Bailey S W , Lambert C J , Ferrer J , Sanvito S 2006 *Phys. Rev. B* **73** 085414
- Rocha A R , Garcia-Suarez V , Bailey S W , Lambert C J , Ferrer J , Sanvito S 2005 *Nature Materials* **4** 335
- [11] Soler J M , Artacho E , Gale J D , Garcia A , Junquera J , Ordejón P , Sánchez-Portal D 2002 *J. Phys. Condens. Matt.* **14** 2745
- [12] Tersoff J 1988 *Phys. Rev. B* **37** 6991
- [13] Nitzan A , Ratner M A 2003 *Science* **300** 1384
- [14] Heath J R , Ratner M A 2003 *Phys. Today* **56** 43
- [15] Reichert J , Ochs R , Beckmann D , Weber H B , Mayor M , von Lohneysen H 2002 *Phys. Rev. Lett.* **88** 176804
- [16] Xiao X , Xu B , Tao N J 2004 *Nano Lett.* **4** 267
- [17] Venkataraman L , Klare J E , Nuckolls C , Hybertsen M S , Steigerwald M L 2006 *Nature (London)* **442** 904
- [18] Xia C J , Fang C F , Hu G C , Li D M , Liu D S , Xie S J , Zhao M W 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 3154 (in Chinese) [夏丽娟、房常峰、胡贵超、李冬梅、刘德胜、解士杰、赵明文 2008 物理学报 **57** 3154]
- [19] Fujita M , Wakabashi K , Nakada K , Kusakabe K 1996 *J. Phys. Soc. Jpn.* **65** 1920
- [20] Nakada K , Fujita M , Dresselhaus G , Dresselhaus M S 1996 *Phys. Rev. B* **54** 17954
- [21] Sasaki K , Murahami S , Saito R 2006 *J Phys. Soc. Jpn.* **75** 074713

The investigation of roughing effect sensitive to size in graphene quantum dot device

Li Gui-Qin[†] Cai Jun

(*Department of Physics ,Tsinghua University ,Beijing 100084 ,China*)

(Received 29 January 2009 ; revised manuscript received 17 February 2009)

Abstract

The transport property of graphene quantum dot devices of different length is investigated by first-principles calculation. The changes of transport property caused by roughing effect are sensitive to size of graphene. The results demonstrate that whether the electrode is connected with zigzag edge or armchair edge of graphene ,both the transmission coefficient and current always change. But the changes have reversed effect for the two different connections when the length is increased.

Keywords : graphene , quantum dot , roughing effect

PACC : 7200 , 7115M

[†] Corresponding author. E-mail : ligqin@mail.tsinghua.edu.cn