

ТУННЕЛЬНАЯ ПРОВОДИМОСТЬ МЕЖДУ СЛОЯМИ БИСЛОЯ ГРАФЕНА

Н. А. Поклонский, Е. Ф. Кисляков, А. И. Сягло, С. А. Вырко

Белорусский государственный университет, poklonski@bsu.by

Методом Бардина теоретически исследовался ток между двумя слоями графена в бислое графена в направлении, перпендикулярном плоскости бислоя.

ВВЕДЕНИЕ

Монослой углерода – графен является перспективным материалом для современной электроники [1]. В бислое графена обнаружена перестраиваемая внешним электрическим полем энергетическая щель [2]. На основе этого эффекта возможно конструирование разнообразных устройств нанoeлектроники. В связи с этим представляет интерес взаимодействие между слоями графена, которое исследовано недостаточно. В данной работе методом Бардина исследуется туннельный ток между слоями графена в бислое графена.

ОСНОВНЫЕ СООТНОШЕНИЯ

Туннельный ток π -электронов при разности электрических потенциалов U между нижним (bot) и верхним (top) слоями бислоя графена может быть записан в виде [3]:

$$I = \frac{2\pi e}{\eta} \sum_{\mathbf{k}_{bot}} \sum_{\mathbf{k}_{top}} [f(E_{top}, E_F + eU/2) - f(E_{bot}, E_F - eU/2)] |M_{bot,top}^{\mathbf{k}_{bot}, \mathbf{k}_{top}}|^2 \delta(E_{bot} - E_{top}), \quad (1)$$

где $f(E, E_F) = \{1 + \exp[(E(k_x, k_y) - E_F)/k_B T]\}^{-1}$ – функция Ферми–Дирака, E_{bot} и E_{top} – энергии электронов нижнего и верхнего слоев, $k_B T$ – тепловая энергия, E_F – уровень Ферми, $M_{bot,top}^{\mathbf{k}_{bot}, \mathbf{k}_{top}}$ – туннельный матричный элемент между состояниями Ψ_{bot} и Ψ_{top} нижнего и верхнего слоев графена, e – модуль заряда электрона, η – постоянная Планка. Дельта-функция $\delta(E_{bot} - E_{top})$ обеспечивает сохранение энергии при туннелировании электрона между слоями. Суммирование проводится по квантовым числам k_x и k_y (волновым векторам электронов в слоях).

В формализме Бардина [4] туннельный матричный элемент между состояниями Ψ_{bot} и Ψ_{top} нижнего и верхнего слоев бислоя графена есть:

$$M_{bot,top}^{\mathbf{k}_{bot}, \mathbf{k}_{top}} = \frac{\eta^2}{2m_0} \int_S (\Psi_{bot}^* \nabla \Psi_{top} - \Psi_{top} \nabla \Psi_{bot}^*) dS, \quad (2)$$

где S – произвольная поверхность между нижним и верхним слоями графена, m_0 – масса электрона в вакууме.

В приближении сильной связи волновая функция графена [5]:

$$\Psi(\mathbf{k}, \mathbf{r}) = \frac{1}{\sqrt{N_G}} \sum_{g=1}^{N_G} \exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{R}_g) \frac{1}{\sqrt{2}} \left(\chi(\mathbf{r} - \mathbf{R}_g) \pm \frac{\omega(\mathbf{k})}{|\omega(\mathbf{k})|} \chi(\mathbf{r} - \mathbf{R}_g - \mathbf{d}) \right). \quad (3)$$

В формуле (3) N_G – число элементарных ячеек графена, \mathbf{k} – двумерный вектор в пространстве квазиволновых векторов решетки графена, $\mathbf{d} = (\mathbf{a}_1 + \mathbf{a}_2)/3$ – вектор между двумя неэквивалентными атомами углерода (A и B) в элементарной ячейке, \mathbf{a}_1 и \mathbf{a}_2 – базисные векторы решетки графена (см. рис. 1а); знаки \pm соответствуют π – связывающей (валентная зона) и π^* – антисвязывающей (зона проводимости) конфигурациям орбиталей в графене, $\omega(\mathbf{k}) = 1 + \exp(-i\mathbf{k}\mathbf{a}_1) + \exp(-i\mathbf{k}\mathbf{a}_2)$; $\mathbf{R}_g = g_1\mathbf{a}_1 + g_2\mathbf{a}_2$; $\omega(\mathbf{k})/|\omega(\mathbf{k})| \approx 1$ вблизи K -точек (\mathbf{K}_j) зоны Бриллюэна (рис.1, б); функции $\chi(\mathbf{r})$ – слэйттеровские атомные $2p_x$ -орбитали

$$\chi(\mathbf{r}) = (\xi^5/\pi)^{1/2} z \cdot \exp(-\xi\sqrt{x^2 + y^2 + z^2}), \quad (4)$$

где $\xi = 1,5679/a_B$ [6], $a_B = 0,0529$ нм – борковский радиус; ось z направлена перпендикулярно плоскости (xy) графена.

При расчёте матричного элемента (2) будем учитывать взаимодействие между ячейками нижнего и верхнего слоёв, находящихся на расстоянии меньшем, чем $\Delta R_1 = 2\sqrt{3} a_{CC}$ друг от друга (рис.1а); в качестве волнового вектора \mathbf{k} для верхнего и нижнего слоёв использовалось $\mathbf{k} = \mathbf{K}_j$. Преобразуем выражение для матричного элемента (2) с учетом (3):

$$M_{bot,top} = \sum_{g=1}^{N_{Gbot}} \exp(i\mathbf{k} \cdot \Delta\mathbf{R}_g) (\gamma_{A-A'_g} + \gamma_{A-B'_g} + \gamma_{B-A'_g} + \gamma_{B-B'_g}). \quad (5)$$

В формуле (5) $\Delta\mathbf{R}_g$ – проекция вектора, соединяющего элементарную ячейку g верхнего слоя с элементарной ячейкой g' нижнего слоя на плоскость xy графена, N_{Gbot} – число элементарных ячеек нижнего слоя, находящихся на расстоянии меньшем, чем ΔR_1 до рассматриваемой элементарной ячейки верхнего слоя; $\gamma_{A(B)-A'_g(B'_g)}$ – интегралы перескока между атомами (A, B) рассматриваемой элементарной ячейки верхнего слоя и атомами (A'_g, B'_g) элементарных ячеек нижнего слоя:

$$\gamma_{A(B)-A'_g(B'_g)} = \frac{\eta^2}{2m_0} \int_S \left(\chi_{bot}^* \frac{d}{dz} \chi_{top} - \chi_{top} \frac{d}{dz} \chi_{bot}^* \right) dS. \quad (6)$$

В формуле (6) $dS = dx dy$; $\chi_{top} = \chi(x - X_{A(B)}, y - Y_{A(B)}, \delta Z/2)$; $\chi_{bot} = \chi(x - (X_{A'_g(B'_g)} + \delta X), y - (Y_{A'_g(B'_g)} + \delta Y), -\delta Z/2)$; x и y – расстояния вдоль осей x и y до атомов нижнего слоя, $\delta Z = 0.335$ нм – расстояние между слоями графена в бислое, δX и δY – сдвиг атомов верхнего слоя относительно атомов нижнего слоя вдоль осей x и y ; $X_{A(B)}$, $Y_{A(B)}$ – координаты атомов A и B в элементарной ячейке верхнего слоя графена ($X_A = 0$, $X_B = a_{CC}$, $Y_A = Y_B = 0$); $X_{A'_g(B'_g)}$ и $Y_{A'_g(B'_g)}$ – координаты нижнего слоя графена.

Далее в формуле (1) суммирование по \mathbf{k}_{bot} и \mathbf{k}_{top} заменим интегрированием $\sum_{\mathbf{k}_{bot}} \sum_{\mathbf{k}_{top}} (\dots) \delta(E_{bot} - E_{top}) \rightarrow A^2 \int_{E_{min}}^{E_{max}} dE_{bot} g_{gr}(E_{bot}) \int_{E_{min}}^{E_{max}} g_{gr}(E_{top}) (\dots) \delta(E_{bot} - E_{top}) dE_{top} = A^2 \int_{E_{min}}^{E_{max}} g_{gr}(E) (\dots) dE$, где $g_{gr} = A^{-1} dN/dE$ — плотность состояний электронов в графене, $dN = 2(A/(2\pi)^2) dk_x dk_y$ — число электронных состояний в слое графена, площадью A ; E_{min} и E_{max} — минимальное и максимальное значение энергии электрона. Вид функции $g_{gr}(E)$ можно получить из закона дисперсии π -электронов в графене [7, 8]:

$$E_{\pm}(k_x, k_y) = \pm \gamma_0 \sqrt{1 + 4 \cos\left(\frac{\sqrt{3}k_x a}{2}\right) \cos\left(\frac{k_y a}{2}\right) + 4 \cos^2\left(\frac{k_y a}{2}\right)}, \quad (7)$$

где $\gamma_0 = 2,7$ эВ, $a = \sqrt{3}a_{CC}$, $a_{CC} = 0,142$ нм — длина связи между атомами углерода в графене; знаки \pm соответствуют π^* и π конфигурациям; начало отсчета энергии выбрано на уровне Ферми $E_F = 0$. Элементарная ячейка, зона Бриллюэна и закон дисперсии графена показаны на рис. 1.

Вблизи K -точек зоны Бриллюэна графена энергия электрона линейно зависит от абсолютной величины волнового вектора $\Delta \mathbf{k} = \mathbf{k} - \mathbf{K}_j$, отсчитанного относительно K -точки: $E(k) = \pm(\gamma a \sqrt{3}/2) \cdot |\mathbf{k} - \mathbf{K}_j|$, откуда следует:

$$g_{gr}(E) = \frac{1}{A} \frac{dN}{dE} = \frac{4}{3\pi \gamma^2 a^2} E. \quad (8)$$

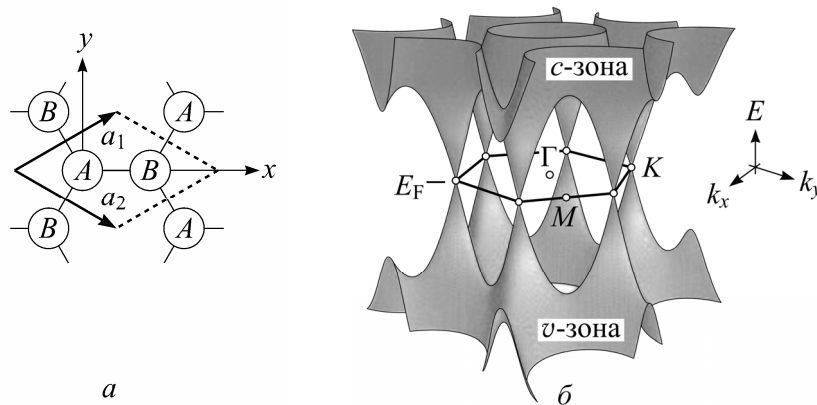


Рис. 1. а – Элементарная ячейка графена: \mathbf{a}_1 и \mathbf{a}_2 – базисные векторы решетки графена.
б – Закон дисперсии π -электронов в монослое графена (формула (7)).
Шестиугольник – зона Бриллюэна графена

Окончательная формула для тока между слоями графена площадью A , получаемая из (1) с учетом (2)–(8), имеет вид:

$$I = \frac{2\pi e}{\eta} A^2 \int_{E_{min}}^{E_{max}} g_{gr}^2(E) [f(E, eU/2) - f(E, -eU/2)] |M_{bot,top}|^2 dE =$$

$$= \frac{2\pi e}{\eta} A^2 \left(\frac{4}{3\pi\gamma^2 a^2} \right)^2 |M_{bot,top}|^2 (eU)^3 F(k_B T/eU), \quad (9)$$

где

$$F(k_B T/eU) = \left(\frac{k_B T}{eU} \right)^3 \int_{-\infty}^{+\infty} \epsilon^2 \frac{\sinh(eU/2k_B T)}{\cosh(eU/2k_B T) + \cosh(\epsilon)} d\epsilon \approx \begin{cases} \frac{1}{12} & \text{при } k_B T \ll eU, \\ \frac{\pi^2}{3} \left(\frac{k_B T}{eU} \right)^2 & \text{при } k_B T \gg eU. \end{cases}$$

Функция $F(eU/k_B T)$ и ее асимптоты изображены на рис. 2. Из (9) следует, что при $k_B T \geq eU/2\pi$ ток пропорционален напряжению. При комнатной температуре закон Ома выполняется до $U \approx 0,1$ В. При $k_B T \leq eU/2\pi$ ток не зависит от температуры, а при $k_B T \geq eU/2\pi$ ток пропорционален T^2 .

РЕЗУЛЬТАТЫ

Туннельный матричный элемент $|M_{bot,top}|$ рассчитан в зависимости от относительного положения слоев графена в бислое. Направление оси z декартовой системы координат выбрано перпендикулярно плоскостям графена в бислое, оси x и y – направлены вдоль и перпендикулярно направлению между атомами A и B элементарной ячейки графена. Для $\delta X = 0$ и $\delta Y = 0$ каждый атом верхнего слоя находится над атомом нижнего слоя (рис. 3а); для $\delta X = a_{CC}$ и $\delta Y = 0$ атомы бислоя упакованы согласно структуре Бернала [9] (рис. 3б), в которой половина атомов верхнего слоя

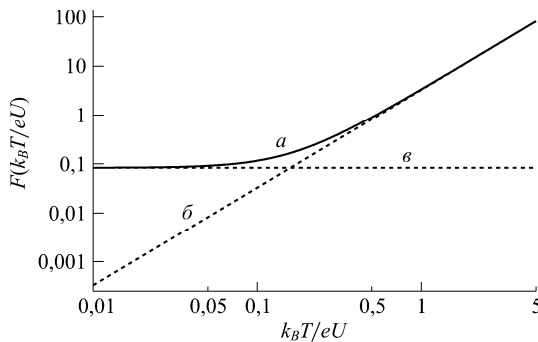


Рис. 2. Функция $F(k_B T/eU)$ (а), используемая в выражении для тока (9) между слоями бислоя графена, асимптоты функции $F(k_B T/eU)$ для $k_B T \gg eU$ (б) и $k_B T \ll eU$ (в)

находится точно над атомами нижнего слоя, а половина атомов верхнего слоя находится над центрами шестиугольников, образуемых атомами нижнего слоя. Отметим, что упаковка атомов в структуру Бернала соответствует положению атомов в слоях графита. Упаковка атомов в структуру AA' (рис. 3в), была синтезирована в [10].

Расчет по (6) дает значение интеграла перескока $\gamma_{(A-A')} = \gamma_{(B-B')} = 0,31$ эВ для пары расположенных напротив друг друга атомов верхнего и нижнего слоя.

При учете туннелирования между атомами ячейки для $\delta X = 0$ и $\delta Y = 0$ матричный

элемент между состояниями Ψ_{bot} и Ψ_{top} нижнего и верхнего слоев графена равен $|M_{bot,top}| = 0,22$ эВ; удельное поперечное сопротивление примитивной ячейки бислоя графена равно $\rho_{\perp} = 0,36$ Ом·м. Последние экспериментальные данные для поперечного удельного сопротивления двухслойных углеродных нанотрубок дают значения $\sim 0,03$ Ом·м [11] и 1 Ом·м [12]. Если размеры бислоя меньше длины когерентности его волновой функции, то согласно (9) его сопротивление обратно пропорционально квадрату числа примитивных ячеек бислоя N_G^2 (см. также [13,14]).

Зависимость матричного элемента от смещения вдоль направления x представлена на рис. 4.

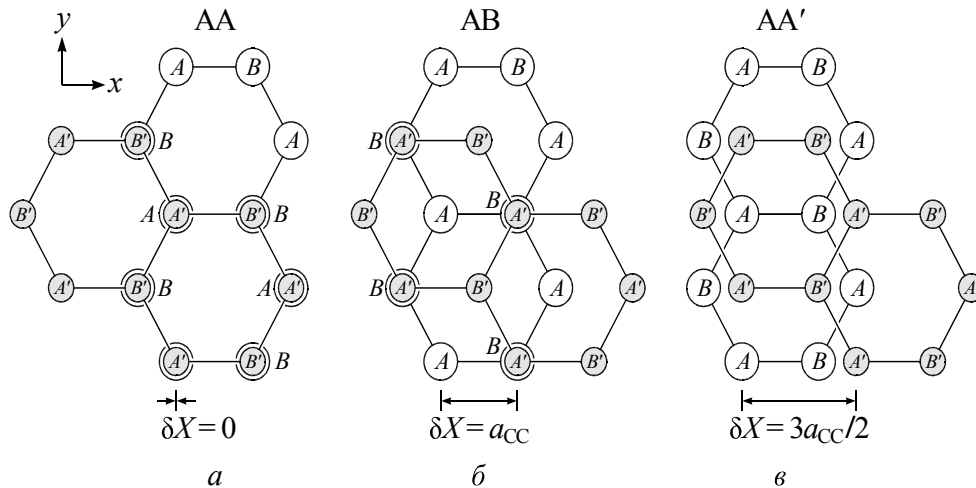


Рис. 3. Атомная структура бислоя графена при $\delta X = 0$ (а), при $\delta X = a_{cc}$ (б) (структура Бернала) и при $\delta X = 3a_{cc}/2$ (в) (структура с минимальным туннельным током между слоями). Показаны фрагменты двух слоев; светлые кружки – атомы нижнего слоя, темные – атомы верхнего слоя

ВЫВОДЫ

Проведены расчеты туннельного тока между слоями в бислое графена, которые согласуются с известными экспериментальными данными. Расчет может быть применен для произвольного положения слоев друг относительно друга и разных расстояний между слоями.

Работа выполнена при поддержке гранта БРФФИ № Ф10Р-062.

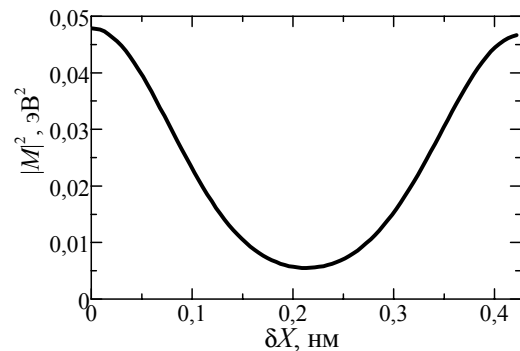


Рис. 4. Зависимость квадрата матричного элемента от смещения слоев графена вдоль оси x (δX) при $\delta Y = 0$

ЛИТЕРАТУРА

1. *Castro Neto, A. H.* The electronic properties of graphene / A. H. Castro Neto [et al.] // *Rev. Mod. Phys.* 2009. V. 81. № 1. P. 109.
2. *Zhang, Y.* Direct observation of a widely tunable bandgap in bilayer graphene / Y. Zhang [et al.] // *Nature*. 2009. V. 459. № 7248. P. 820.
3. *Tersoff, J.* Theory of the scanning tunneling microscope / J. Tersoff, D. R. Hamann // *Phys. Rev. B*. 1985. V. 31. № 2. P. 805.
4. *Bardeen, J.* Tunneling from a many-particle point of view / J. Bardeen // *Phys. Rev. Lett.* 1961. V. 6. № 2. P. 57.
5. *Barnett, R.* Electron-phonon interaction in ultrasmall-radius carbon nanotubes / R. Barnett, E. Demler, E. Kaxiras // *Phys. Rev. B*. 2005. V. 71. № 3. P. 035429(22).
6. *Clementi, E.* Atomic screening constants from SCF functions / E. Clementi, D. L. Raimondi // *J. Chem. Phys.* 1963. V. 38. № 11. P. 2686.
7. *Wallace, P. R.* The band theory of graphite / P. R. Wallace // *Phys. Rev.* 1947. V. 71. № 9. P. 622.
8. *Лозовик, Ю.Е.* Коллективные электронные явления в графене / Ю. Е. Лозовик, С. П. Меркулова, А. А. Соколик // *Успехи физических наук*. 2008. Т. 178. № 7. С. 757.
9. *Malard, L. M.* Probing the electronic structure of bilayer graphene by Raman scattering / L. M. Malard [et al.] // *Phys. Rev. B*. 2007. V. 76. P. 201401(4).
10. *Lee, J.-K.* The growth of AA graphite on (111) diamond / J.-K. Lee [et al.] // *J. Chem. Phys. B*. 2008. V. 129, № 23. P. 234709(4).
11. *Stetter, A.* Determination of the intershell conductance in a multiwall carbon nanotube / A. Stetter, J. Vancea, C. H. Back // *Appl. Phys. Lett.* 2008. V. 93, № 17. P. 172103(4).
12. *Bourlon, B.* Determination of the intershell conductance in multiwalled carbon nanotubes / B. Bourlon [et al.] // *Phys. Rev. Lett.* 2004. V. 93. № 17. P. 176806(4).
13. *Tunney, M. A.* Effects of disorder and momentum relaxation on the intertube transport of incommensurate carbon nanotube ropes and multiwall nanotubes / M. A. Tunney, N. R. Cooper // *Phys. Rev. B*. 2006. V. 74. № 7. P. 075406(16).
14. *Poklonski, N. A.* Interwall conductance in double-walled armchair carbon nanotubes / N. A. Poklonski [et al.] // *Phys. Lett. A*. 2008. V. 372, P. 5706.