

单层石墨烯矩形纳米片等离子体共振频率的解析判定

路海, 李丽君, 张现周, 张军, 夏世强, 黄蒙, 沈克胜

(河南师范大学 物理与材料科学学院, 河南 新乡 453007)

摘要:利用经典电路演绎,对单层石墨烯矩形纳米片等离子体共振频率进行了研究.将单层结构化石墨烯等效为由电感和电容共同构成的集总电路.基于准静态近似,分析得到了单层结构化石墨烯等离子体共振频率的解析判定公式.结果表明,通过调节周围环境介电常数,石墨烯自身几何形状及其费米能量,石墨烯等离子体的共振特性能够得到有效的调控.此外,借助于数值仿真实验,上述解析判定公式的可靠性得到了验证.这种电路描述方法为石墨烯等离子体微结构器件共振频率的确定提供了指导,能够进一步降低复杂构型石墨烯等离子体的设计难度.

关键词:石墨烯;等离子体共振;电导率

中图分类号:O436.1

文献标志码:A

石墨烯是一种具有六角晶格结构的二维材料,仅由一个原子层厚的单层石墨烯片组成.自 2004 年采用“微机械剥离法”获得了单层石墨烯结构^[1]以来,石墨烯所具有的独特电子结构和输运特性引起了研究者广泛的兴趣.不同于普通的金属或半导体,石墨烯的光电性质能够通过掺杂或者门控的手段加以调控,这在光学和光电子领域具有很多潜在的应用,比如电子的运动与传输,光与物质的强相互作用,石墨烯等离子体强的局域性、可调性,电的可控性等^[2-7].然而,由于单原子层厚度的石墨烯对光波几乎是透明的,因此其对可见光的吸收率比较低,只有 2.3%^[8].幸运的是,作为一种特殊的二维半金属材料,石墨烯同样具备类似金属的等离子体特性.通过将二维石墨烯剪切或加工成特定的几何结构,能够激发石墨烯等离激元模式,从而极大的增强二维石墨烯与光的相互作用.典型的例子包括石墨烯光栅耦合器^[9],石墨烯光子晶体^[10],石墨烯超材料^[11],或结构化石墨烯纳米带^[12-14].其中更特别的是,在矩形石墨烯纳米波导中,可以通过调节石墨烯的费米能级,来调谐石墨烯等离子体共振的诸多特性^[14-15].但是,目前关于石墨烯等离子体的研究大都是采用数值仿真的方法.这种方法作为一种数值实验的手段,并无法解析地给出二维结构化石墨烯具体参量之间的联系,如几何结构参数与共振频率之间的相互关系.

本文提出一种简单的解析方法,能够准确地预测二维结构化石墨烯等离子体共振频率随几何结构参数以及费米能级的变化关系.局域等离子体共振是金属纳米结构中电子的集体振荡.由于石墨烯具有类金属性,所以单层纳米结构石墨烯可以方便地通过电感(L)和电容(C)形式的集总电路元件进行类比.在光激发下,石墨烯纳米结构表面上积累电荷而产生电势能;同时电子运动的动能可以通过动态电感产生;而电流的运动产生磁场,可以用法拉第电感表示.在准静态下,结合欧姆定律,分析得到了单层结构化石墨烯等离子体共振频率的解析判定公式.通过该公式能够判断出石墨烯等离子体共振频率不仅与周围介质有关,还与它自身的几何长度和费米能量有关.本文提出的解析方法为石墨烯等离子体的调制提供了方便,并且在石墨烯等离子体微结构和相关器件设计中具有潜在应用.

1 单层石墨烯矩形纳米片等离子体共振模型简介

研究结构为长 l , 宽 a 的单层结构化石墨烯(见图 1(a)),其截面边长 a 远小于纳米结构的长度 l .将石墨

收稿日期:2017-11-28;修回日期:2018-01-23.

基金项目:国家自然科学基金(11404102);河南省重点科技攻关计划项目(152102210079);河南省教育厅科学技术研究重点项目(14A140002);先进微结构材料教育部重点实验室开放课题(5201029160008).

作者简介(通信作者):路海(1980-),男,河南新乡人,河南师范大学讲师,研究方向:纳米光子学,E-mail:luh.phy@htu.edu.cn.

烯嵌入介电常数为 ϵ_d 的介质中,入射光沿着 z 轴的负方向垂直入射到石墨烯片上,其中入射光的电场方向沿着 x 轴,磁场方向沿着 y 轴.在入射光的作用下,激发纵向等离子体的振荡,从而在纳米结构两端面产生电荷的累积(见图 1(b)),在此过程中还伴有电流的产生,电流产生磁场,磁场主要集中在石墨烯纳米结构附近,如图 1(c)所示.

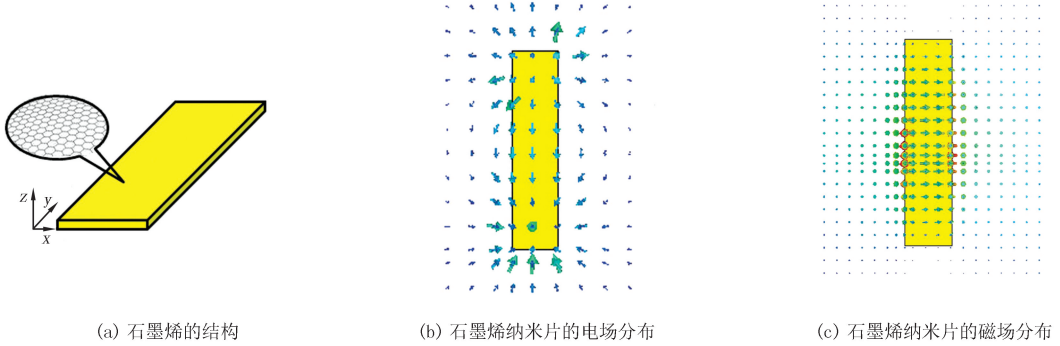


图 1 石墨烯示意图

使用频域有限积分法(CST Microwave Studio)对单层纳米结构石墨烯的等离子体进行数值仿真模拟.在数值仿真建模过程中,采用自适应网格划分法对模型进行剖分,并在 x 方向和 y 方向上设置为周期性边界,周期为 700 nm,在 z 方向上设置为开放性边界.在这里,用相对介电常数来描述石墨烯的光学特性,

$$\epsilon_r(\omega) = 1 + i \frac{\sigma}{\omega b \epsilon_0}, \quad (1)$$

其中 b 是石墨烯纳米结构的厚度(目前工艺所制备出的石墨烯的厚度约为 $1 \text{ nm}^{[16]}$), ϵ_0 是真空的介电常数, σ 是石墨烯的电导率.电导率用 $\sigma(\omega) = i4c\alpha\epsilon_0 E_F / (\hbar(\omega + i/\tau))$ 来表示,其中 c 是光速, α 是精细结构常数(取 $1/137$), E_F 是费米能量, τ 是弛豫时间(取 1 ps), \hbar 是普朗克常数^[16].由于石墨烯具有类金属性,还可以根据 Drude 模型将石墨烯的相对介电常数

$$\epsilon_r(\omega) = 1 + \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\gamma\omega}, \quad (2)$$

其中 γ 是石墨烯的阻尼频率^[17].因此,比较(1)~(2)式可以得到石墨烯等离子体频率为 $\omega_p = \sqrt{4c\alpha E_F / (\hbar b)}$,阻尼频率为 $\gamma = 1/\tau$.知道了石墨烯等离子体的频率和阻尼频率后,便可以利用 CST 微波工作室对单层纳米结构化石墨烯进行参数化建模.

2 结果与讨论

局域等离子体共振是金属或半导体纳米结构中电子的集体振荡.由于石墨烯具有类金属性,所以单层结构化石墨烯可以方便地通过含有电感(L)和电容(C)的集总电路进行建模.在入射光的作用下,纳米结构表面上由于积累电荷而产生电势能;由于电子的运动而产生动能,该动能可以用动态电感表示;由于电流的运动而产生磁场,该磁场可以用法拉第电感表示.假设纳米结构石墨烯横截面的边长小于趋肤深度,可以忽略延迟效应,纳米结构石墨烯内部的场可以看作是均匀的;还假设纳米结构的尺寸远远大于费米波长,所以量子效应可以忽略不计,并且该效应的经典描述是适用的.

表面电荷沿着极化方向变化(见图 1(b)),电场线由纳米结构的一个端面指向无限远处,并且由无限远处指向另一端面边界,即一个端面表面积累正电荷,另一端面的表面积累负电荷.在纳米结构两端面上由于积累电荷而产生电势能.假设两端面的电荷分布是均匀的,忽略边缘效应,根据静电理论,两个端面间的电势差 $U = q \ln(2a/b) / (a\pi\epsilon_d)$.如果把两端面看成一个电容器,则它们的电容

$$C = \frac{a\pi\epsilon_d}{\ln \frac{2a}{b}}. \quad (3)$$

应该指出的是,由于两端面的电荷分布是不均匀的,所以电势也不均匀,是从中心到边缘逐渐减小的.当然,两个端面之间的弱耦合效应也会改变有效电容.考虑到这些因素的影响,为了更精确表示有效电容,引入一个修正系数 $\alpha=3.26$ 来修正电容.

由于电荷的集体运动,在单层纳米结构石墨烯中伴有电流的产生,因此就会伴有感应的磁场(见图 1(c)).用法拉第电感来描述由导体内部和外部存储的磁场.为了简化计算,假定横截面边长远小于纳米结构的长度,且电流分布均匀.首先根据纽曼公式,可以得到两条平行导线之间的互感 $M = \mu l (\ln(2l/d) - 1 + d/l)/2\pi$,其中 d 是两个平行导线之间的距离.其次在精度范围内,矩形截面直导线的自感近似等于与其相同长度的两条平行导线的互感,但两条平行导线之间的距离应等效为纳米结构横截面的几何平均距离.因此可以把单层纳米结构石墨烯的法拉第电感

$$L_f = \frac{\mu l}{2\pi} \left(\ln \frac{2l}{g} - 1 + \frac{g}{l} \right), \quad (4)$$

其中 $g=0.2236(a+b)$ 是纳米结构横截面的几何平均距离.由于在计算法拉第电感的时候,假设了横截面边长远小于纳米结构的长度,电流分布均匀,并且在计算的时候做了近似.同样的,为了更准确地描述法拉第电感,也引入一个参数 $\beta = -18.5$ 来对法拉第电感进行修正.同时电子运动的动能可以通过动态电感来表示^[18],

$$L_k = \frac{\mu l c^2}{ab\omega_p^2}. \quad (5)$$

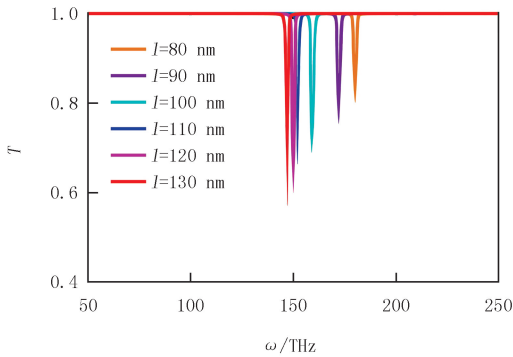
在准静态近似中,时谐场的入射光的作用下,欧姆定律可以应用在深亚波长结构的 LC 电路中 $\xi = I/(R - i\omega L + i/\omega C)$ (其中 ξ 表示的是电动势)^[19].在相反端携带正负电荷的单层纳米结构石墨烯可以认为是具有偶极矩的电偶极子.根据欧姆定律可知 LC 电路的振荡频率为 $\omega = (C(L_k + L_f))^{-1/2}$,结合(3~5)式,单层纳米结构石墨烯等离子体共振频率

$$\omega = \frac{1}{\pi} \sqrt{\frac{\ln \frac{2a}{b}}{2\alpha\beta\alpha\mu\epsilon_d \left(\ln \frac{2l}{g} - 1 + \frac{g}{l} \right) + \frac{4al\pi}{b\omega_p^2}}}. \quad (6)$$

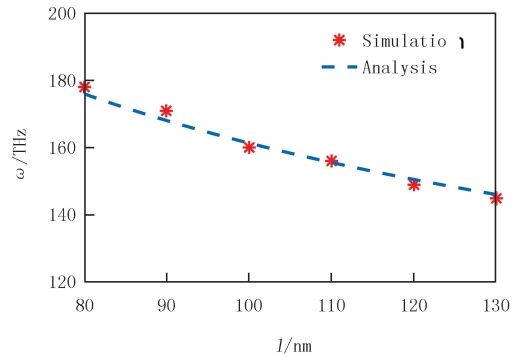
为了观察石墨烯等离子体,用有限积分法进行了数值仿真模拟.首先通过调节单层纳米结构石墨烯的长度,来观察其等离子体共振频率的变化(见图 2).模型的周期为 700 nm,周围是空气包裹层.当 $a=30$ nm, $E_F=0.3$ eV 时,石墨烯纳米片的透射光谱如图 2(a)所示, T 代表的是透射率, ω 代表的是频率.图 2(b)显示的是当 $a=30$ nm, $E_F=0.3$ eV 时,改变单层纳米结构石墨烯的长度,共振频率的变化情况.红色星号表示的是利用微波工作室数值仿真的结果,蓝色虚线表示的是利用推导公式计算的结果.由图 2(b)可知,当单层纳米结构石墨烯的长度增加时,对应的等离子体共振频率在减小,共振峰的位置向长波方向移动,即发生红移.主要是由纳米粒子的量子尺寸效应和表面效应引起的^[20].即当粒子尺寸位于纳米量级时,沿着光源极化方向的纳米粒子表面原子数与总原子数的比值会随着纳米粒子长度 l 的增大而减小,使得电子在纳米结构中重新分配,键强度减弱,从而引起共振峰的红移.并且数值仿真模拟的结果和推导计算的结果一致,说明理论推导公式可以准确描述石墨烯等离子体的共振频率随着纳米结构长度变化的情况,同时还意味着可以通过改变纳米结构长度的大小来精确调节石墨烯等离子体的共振频率.

同样的,当 $l=100$ nm, $E_F=0.3$ eV 时,石墨烯等离子体的透射光谱如图 3(a)所示.图 3(b)显示的是当 $l=100$ nm, $E_F=0.3$ eV 时,改变单层纳米结构石墨烯的横截面边长 a 的长度,等离子体共振频率的变化情况.红色星号表示的是利用微波工作室数值仿真的结果,蓝色虚线表示的是利用推导公式(6)计算的结果.由图 3(b)可知,当单层纳米结构石墨烯的横截面边长 a 增大时,对应的等离子体共振频率也增大,共振峰的位置向短波方向移动,即发生蓝移.主要是由纳米粒子的量子尺寸效应和表面效应引起的^[20-21].即当粒子尺寸位于纳米量级时,沿着光源极化方向的纳米粒子表面原子数与总原子数的比值随着纳米粒子的截面长度 a 的增大而增大,使得电子在纳米结构中重新分配,键强度增强,从而引起共振峰的蓝移.并且数值仿真和理论结果一致.理论公式可以准确地描述石墨烯等离子体的共振频率随着纳米结构截面长度变化的情况.通过改

变纳米结构截面长度的大小来精确调节石墨烯等离子体的共振频率。

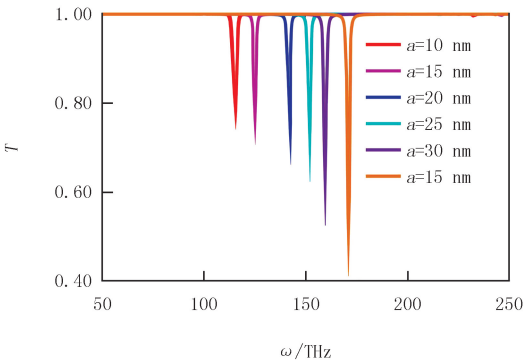


(a) 单层石墨烯矩形纳米片透射光谱随纳米片长度 l 的变化

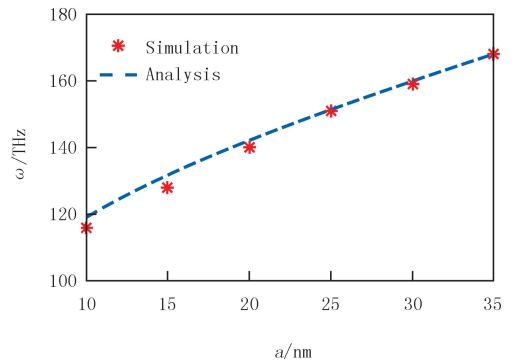


(b) 共振频率位置的解析判定结果与数值仿真结果的对比图

图2 当 $a=30$ nm, $E_f=0.3$ eV 时, 单层石墨烯矩形纳米片的等离子体共振特性



(a) 单层石墨烯矩形纳米片透射光谱随纳米片宽度 a 的变化



(b) 共振频率位置的解析判定结果与数值仿真结果的对比图

图3 当 $l=100$ nm, $E_f=0.3$ eV 时, 单层石墨烯矩形纳米片的等离子体共振特性

石墨烯中等离子体的振荡频率在很大程度上也取决于费米能量(如图4所示).当 $a=30$ nm, $l=100$ nm 时,取不同的费米能量时,石墨烯等离子体共振的透射谱图,如图4(a)所示.红色星号表示的是利用微波工作室进行数值仿真的结果,蓝色虚线表示的是利用公式(6)计算的结果.由图4(b)可知,当费米能量增加时,对应的等离子体共振频率也增大.并且数值仿真和理论结果一致.理论公式可以准确地描述石墨烯等离子体的共振频率随着费米能量变化的情况.通过改变费米能量的大小来精确调节石墨烯等离子体的共振频率.具体来说,石墨烯的光学电导率实际上是费米能量的函数,当费米能量发生变化时,根据费米—狄拉克统计分布,电子在能带中各个能级的分布概率也将发生变化,因此电子跃迁所支持的光学过程也受到影响,这就直接导致了石墨烯光学电导率的变化,进而影响了石墨烯纳米结构等离子体的激发,因此可以利用石墨烯的费米能量灵活地控制等离子体的传播,这种优越性是金属表面等离子体完全不具备的.

需要注意,石墨烯的等离子体共振也受周围介质的介电常数影响.这种对介质介电常数的依赖性可以提供额外的自由度来对石墨烯的等离子体共振进行调控.在这里不再做进一步的讨论.通过等效电路的方法可以有效地简化石墨烯等离子体共振的问题.并且根据推导公式,可以通过多种途径来调节精确调节石墨烯等离子体的共振频率,如几何长度、费米能量、周围介质的介电常数等.

3 结论

石墨烯等离子体共振本质上是自由电子在电磁波作用下做受迫运动的体现,因此可以在经典共振电路中找到严格的类比.本文以矩形石墨烯纳米片为例,利用 LC 共振电路模型,得到了能够直观描述结构参数、

费米能量和共振频率之间关系的判定方程.此外,通过对矩形石墨烯纳米片进行数值计算,发现数值仿真结果很好的验证了解析公式的有效性和可靠性.基于这种解析方法,可以更便捷地设计出不同类型的石墨烯纳米结构,并有希望构建一些具有奇异光学特性的复杂石墨烯纳米结构.

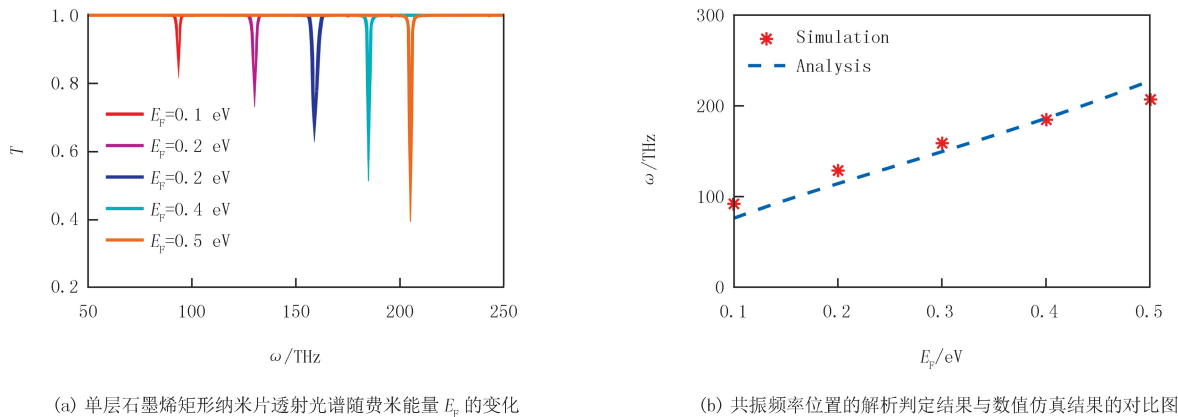


图 4 当 $a=30$ nm, $l=100$ nm 时, 单层石墨烯矩形纳米片的等离子体共振特性

参 考 文 献

- [1] NOVOSELOV K S, GEIM A K, MOROZOV S V, et al. Electric field effect in atomically thin carbon films[J]. Science, 2004, 306(5296): 666-669.
- [2] HWANG E H, SARMA S D. Dielectric function, screening, and plasmons in two-dimensional graphene[J]. Phys Rev B, 2007, 75(20): 205418.
- [3] JABLON M, BULJAN H, SOLJACIC M. Plasmonics in graphene at infrared frequencies[J]. Phys Rev B, 2009, 80(24): 245435.
- [4] BONACCORSO F, SUN Z, FERRARI A C, et al. Graphene photonics and optoelectronics[J]. Nat Photonics, 2010, 4(9): 611-622.
- [5] GRIGORENKO A N, POLIMNI M, NOVOSELOV K S. Graphene plasmonics[J]. Nat Photonics, 2012, 6(11): 749-758.
- [6] CUI Jian, SUN Yu, WANG Liang, et al. Graphene plasmonic waveguide based on a high-index dielectric wedge for compact photonic integration[J]. Optik, 2016, 127(1): 152-155.
- [7] BRAR V W, SHERROTT M C, JANG M S, et al. Electronic modulation of infrared radiation in graphene plasmonic resonators[J]. Nature Communications, 2015(6): 7032.
- [8] NAIR R R, BLAKE P, GRIGORENKO A N, et al. Fine structure constant defines visual transparency of graphene[J]. Science, 2008, 320(5881): 1308.
- [9] KIM Y, KWON M S. Mid-infrared subwavelength modulator based on grating-assisted coupling of a hybrid plasmonic waveguide mode to a graphene plasmon[J]. Nanoscale, 2017, 25(22): 1742-17438.
- [10] PIPER J R, FAN S H. Total Absorption in a Graphene Monolayer in the Optical Regime by Critical Coupling with a Photonic Crystal Guided Resonance[J]. ACS Photonics, 2014 1(4): 347-353.
- [11] AMIN M, FARHAT M, BAGCI H. A dynamically reconfigurable fano metamaterial through graphene tuning for switching and sensing applications[J]. Set Rap, 2013, 3: 2105.
- [12] KOPPENS F H, CHANG D E, ARCIA DE ABAJO F J. Graphene plasmonics: a platform for strong light-matter interactions[J]. Nano Lett, 2011, 11(8): 3370-3377.
- [13] PARIZI S B, REJAEI B, KHAVASI A. Analytical Circuit Model for Periodic Arrays of Graphene Disks[J]. IEEE J Quantum Electron, 2015, 51(9): 7000507.
- [14] SHI Xi, GE Lixin, WEN Xiewen, et al. Broadband light absorption in graphene ribbons by canceling strong coupling at subwavelength scale[J]. Opt Express, 2016, 24(23): 26357-26362.
- [15] HAN Xu, WANG Tao, LI Xiaoming, et al. Dynamically tunable plasmon induced transparency in a graphene-based nanoribbon waveguide coupled with graphene rectangular resonators structure on sapphire substrate[J]. Opt Express, 2015, 23(25): 31945-31955.
- [16] SHI Xi, HAN Dezhan, DAI Yunyun, et al. Plasmonic analog of electromagnetically induced transparency in nanostructure graphene[J]. Opt Express, 2013, 21(23): 28438-284343.
- [17] ZHU D, BOSMAN M, YANG J K W. A circuit model for plasmonic resonators[J]. Opt Express, 2014, 22(8): 9809-9819.
- [18] STAFFARONI M, CONWAY J, VEDANTAM S, et al. Circuit analysis in metal-optics[J]. Photon Nanostructures, 2012, 10(1): 166-176.

- [19] YANG Jianji, GIESSEN HARALD, LALANNE PHILIPPE. Simple analytical expression for the peak-frequency shifts of plasmonic resonances for sensing[J]. *Nano Lett*, 2015, 15(5): 3439-3444.
- [20] BRUS L E. Electron-electron and electron-hole interactions in small semiconductor crystallites: The size dependence of the lowest excited electronic state[J]. *Phys Chem*, 1984, 80(13): 4403-4409.
- [21] 张晓彤, 路海, 张现周, 等. 硅基微纳结构薄膜中全反向光吸收反应[J]. *河南师范大学学报(自然科学版)*, 2016, 44(6): 62-66.

Analytical determination of plasmon resonance frequency of the monolayer graphene rectangular nanosheet

Lu Hai, Li Lijun, Zhang Xianzhou, Zhang Jun, Xia Shiqiang, Huang Meng, Shen Kesheng

(College of Physics and Electronic Engineering, Henan Normal University, Xinxiang 453007, China)

Abstract: In this paper, the resonance frequency of monolayer graphene plasmon has been studied by classical circuit deduction. We consider the monolayer structured graphene equivalent to a lumped circuit model with a inductance and capacitance. Based on the quasi-static approximation, the analytic determination formula of the plasmon resonance frequency of monolayer structured graphene was obtained. The results show that the resonant properties of graphene plasmon can be effectively controlled by adjusting the dielectric constant of the surrounding environment, the geometry of graphene itself and the Fermi energy. In addition, by means of numerical simulation experiments, the reliability of the above analytical determination formula has been verified. This method of circuit description provides guidance for the determination of the resonance frequency of graphene plasmon microstructure devices, and can further simplify the design difficulty of graphene plasmons with complex configurations.

Keywords: graphene; plasmonic resonance; conductivity

[责任编辑 杨浦]