

# 光抽运石墨烯太赫兹负动态电导率的理论研究

张玉萍 张晓 刘陵玉 张洪艳 高莹 徐世林 张会云

(山东科技大学理学院青岛市太赫兹技术重点实验室, 山东 青岛 266510)

**摘要** 石墨烯特殊的零带隙能带结构和载流子弛豫特性,在研究太赫兹辐射源相干放大领域引起广泛关注。考虑带内和带间跃迁对电导率的贡献,研究了光抽运单层和多层石墨烯中非平衡二维电子-空穴系统的动态电导率特性。结果表明,在足够强的光抽运下,石墨烯中的粒子数反转能够使得动态电导率的实部在太赫兹频段内出现负值,这使基于石墨烯的太赫兹放大或受激辐射源成为可能。同时,通过研究动量弛豫时间、温度、层数、光强对石墨烯的负动态电导率的影响表明,石墨烯多层结构的动态电导率最小值的绝对值更大,作为太赫兹激光器的激活介质更具优势。

**关键词** 激光技术;太赫兹;光抽运;石墨烯;负动态电导率

**中图分类号** TN248.1 **文献标识码** A **doi**: 10.3788/CJL201239.0111002

## Theoretical Research of Terahertz Negative Dynamic Conductivity in Optically Pumped Graphene

Zhang Yuping Zhang Xiao Liu Lingyu Zhang Hongyan Gao Ying

Xu Shilin Zhang Huiyun

(Qingdao Key Laboratory of Terahertz Technology, College of Science, Shandong University of Science and Technology, Qingdao, Shandong 266510, China)

**Abstract** Due to the gapless energy spectrum and carriers relaxation characteristics, graphene causes a widespread concern in amplification of terahertz coherent sources. We consider the contribution of both interband and intraband transitions to the conductivity, and study the dynamic conductivity characteristics of a nonequilibrium two-dimensional electron-hole system in optically pumped single and multiple graphene layer (SGL and MGL) structures. The results demonstrate that the population inversion in graphene can lead to a negative dynamic conductivity in the terahertz range of frequencies at sufficiently strong pumping, and the phenomenon might be used in graphene-based terahertz coherent sources radiation and amplification. Meanwhile, by studying the dependences of the negative conductivity on momentum relaxation time, temperature, number of layers, and optical intensity, it is found that the minimum absolute value of the real part of conductivity in MGL structures is greater than that in SGL structures. Thus, the MGL structures have more advantages to be the active medium of terahertz laser.

**Key words** laser technique; terahertz; optically pumped; graphene; negative dynamic conductivity

**OCIS codes** 140.3070; 140.3580; 140.3430; 160.4330

## 1 引言

近年来,太赫兹(THz)技术得到了世界各国的极大关注和广泛研究,并取得了令人瞩目的成果。THz波不仅在物理、化学、天文学、生命科学和医药科学等基础研究领域具有重要的研究意义,在医学

成像、材料检测、环境监测、移动通信、卫星通信和军用雷达等应用研究领域也具有重大的科学研究价值和广阔的应用前景。但由于目前THz辐射源转换效率低,发射的THz波的平均功率只有纳瓦到微瓦量级,限制了其应用范围。因此,寻找新型高效材

**收稿日期**: 2011-09-15; **收到修改稿日期**: 2011-11-07

**基金项目**: 国家自然科学基金(61001018, 60637010)、山东省自然科学基金(ZR2011FM009)、山东科技大学杰出青年科学基金(2010KYJQ103)、山东省高等学校科技计划(J11LG20)和青岛市科技计划(11-2-4-4-(8)-jch, 10-3-4-2-1-jch)资助课题。

**作者简介**: 张玉萍(1976—),女,博士,副教授,主要从事激光与太赫兹技术等方面的研究。

E-mail: zhangyuping1976@yahoo.com.cn

料,对 THz 辐射源进行放大,提高其功率、转换效率和相干性,一直是科研工作者努力奋斗的目标。

石墨烯是一种由单层碳原子紧密堆积成蜂窝状晶格结构的二维新型单晶材料,具有优异的电、光、热和机械性能<sup>[1~6]</sup>。由于其特殊的零带隙能带结构和载流子弛豫特性,在光激发下石墨烯实现粒子数反转后的带间载流子跃迁复合产生的电磁波恰好处于 THz 波段,这使石墨烯具有能够产生和放大 THz 波的特性。近几年,国内北京大学、清华大学、天津大学、山东大学、国家纳米中心及中国科学院金属研究所、物理研究所、化学研究所和上海微系统所等单位在石墨烯的控制制备、结构表征与物性的研究方面取得了一系列新的进展,相关研究成果发表在国际知名刊物上<sup>[7~13]</sup>,但对石墨烯作为激活介质产生 THz 波以及对 THz 信号进行放大的研究尚未见报道。国际上,Falkovsky 等<sup>[14,15]</sup>分析了石墨烯在费米能级附近的几电子伏特区域内的电导率随频率、温度、波矢的变化,计算了掺杂和无掺杂石墨烯的霍尔电导率和迁移率与温度、磁场和载流子浓度的关系<sup>[15]</sup>;Wang 等<sup>[16]</sup>利用超快光抽运-探测光谱,研究了外延生长在碳化硅基和镍基上的石墨烯层中热光学声子的弛豫变化,建立了带速率方程的耦合载流子-声子系统的弛豫动态模型,证明了实验数据与理论结果的一致;Ryzhii 等<sup>[17~20]</sup>研究了光抽运情况下石墨烯电导率负动态的实现机理,理论证明了利用石墨烯作为激活物质产生 THz 辐射的可行性。

本文以单层和多层石墨烯(MGL)薄膜为研究对象,建立了单层和多层石墨烯的电导率理论模型,考虑带间和带内跃迁对电导率的贡献,计算了光激发下非平衡二维电子-空穴系统的动态电导率。通过推导计算,证明了在足够强的光激发下,石墨烯可以实现粒子数反转,使得石墨烯电导率的实部为负时产生的激光辐射处于 THz 频段。同时研究了动量弛豫时间、温度、层数等对石墨烯负电导率的影响,证明多层石墨烯作为 THz 激光器的激活介质更具有优势,因为多层结构的动态电导率最小值的绝对值更大。

## 2 石墨烯单层光抽运模型及分析

石墨烯在费米能级附近的几电子伏特区域内具有简单的圆锥形能带结构<sup>[2,5]</sup>,如图 1 所示。由于石墨烯的零带隙能量谱,平衡时费米能级  $\epsilon_F = 0$ ,则  $f_e(0) = f_h(0) = 1/2$ ,当用光子能量  $\hbar\Omega$  [ $\hbar = h/2\pi$  为约化的普朗克常量, $\Omega$  是光子的角频率] 的光来激发

时,产生的光生电子和空穴的能量为  $\epsilon_0 = \frac{\hbar\Omega}{2}$ 。光激发载流子的冷却与热化主要由飞秒和亚皮秒时间段内的带内弛豫过程和随后的带间复合决定,且光学声子发射的特征时间  $\tau_0$  非常短,光激发后的前几百飞秒时间内,热载流子损失的大部分能量用来产生光学声子<sup>[16]</sup>。级联发射光学声子后,光生电子和空穴占据的能级态接近  $\epsilon_N = \frac{\hbar\Omega}{2} - N\hbar\omega_0$ ,这里  $\hbar\omega_0$  是光学声子的能量, $N = 1, 2, 3, \dots (N \leq N_{\max}, N_{\max}$  为小于等于  $\frac{\Omega}{2\omega_0}$  的最大整数)。当  $\epsilon_{N_{\max}} = \hbar(\Omega/2 - N_{\max}\omega_0) \approx 0$  时,光生电子-空穴级联发射光学声子后,载流子将聚集在导带的底部(电子)和价带的顶部(空穴)附近。此时,电子和空穴的光生过程不会热化电子-空穴系统,因此可以认为  $T \approx T_0$ ,其中, $T$  为电子(空穴)的有效温度, $T_0$  为晶格温度。但若  $\epsilon_{N_{\max}}$  不是很小,将导致电子-空穴系统明显的热化,即  $T > T_0$ 。石墨烯的能带结构、级联辐射与复合过程及光生电子和空穴的能量分布如图 1 所示,图中箭头表示以  $\hbar\Omega$  的光子能量激发所对应的跃迁、能量为  $\hbar\omega_0$  的光学声子的级联发射以及伴随能量为  $\hbar\omega$  的光子发射的辐射跃迁。

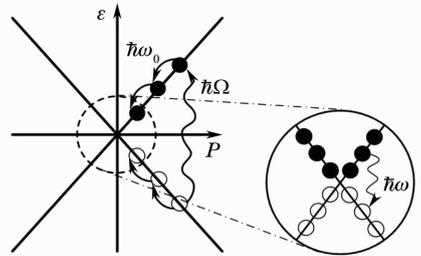


图 1 石墨烯的能带结构以及光生电子和空穴的能量分布示意图

Fig. 1 Schematic diagram of graphene band structure and energy distribution of photogenerated electrons and holes

考虑石墨烯是零带隙,而且弛豫过程速度非常快(小于等于 1 ps),而复合过程速度相对缓慢(远大于 1 ps),如果石墨烯中非平衡电子和空穴系统能够实现负动态电导率,那么实现粒子数反转、产生 THz 激光辐射就可以实现。下面就石墨烯中非平衡电子和空穴系统的动态电导率进行讨论。

假定  $\frac{\Omega}{2} - N_{\max}\omega_0 \ll \omega_0, N_{\max} \approx \Omega/(2\omega_0)$ ,即光辐射到二维电子-空穴系统中的能量转移很小,则可以忽略  $T$  和  $T_0$  的不同,即  $T \approx T_0$ 。石墨烯电导率是频率  $\omega$  和波矢  $k$  的函数<sup>[14]</sup>,即

$$\sigma_{ij}(\omega, \mathbf{k}) = \frac{ie^2}{\pi^2} \times \left\{ \sum_{a=1,2} \int \frac{Pd\rho v^i v^j \{f_0[\varepsilon_a(\mathbf{p}_-)] - f_0[\varepsilon_a(\mathbf{p}_+)]\}}{[\varepsilon_a(\mathbf{p}_+) - \varepsilon_a(\mathbf{p}_-)] [\omega - \varepsilon_a(\mathbf{p}_+) + \varepsilon_a(\mathbf{p}_-)]} + 2\omega \int \frac{Pd\rho v_{12}^i v_{21}^j \{f_0[\varepsilon_1(\mathbf{p}_-)] - f_0[\varepsilon_2(\mathbf{p}_+)]\}}{[\varepsilon_2(\mathbf{p}_+) - \varepsilon_1(\mathbf{p}_-)] \{\omega^2 - [\varepsilon_2(\mathbf{p}_+) - \varepsilon_1(\mathbf{p}_-)]^2\}} \right\}, \quad (1)$$

式中  $\mathbf{p} = \hbar\mathbf{k}$  是电子(空穴)动量,  $v^i, v^j$  分别是电子和空穴速度, 下标“+”表示空穴, “-”表示电子。  $\varepsilon = v_F p$  是电子(空穴)的动力学能量,  $v_F$  是电子和空穴能量谱的特征速度 ( $v_F \approx 10^8$  cm/s),  $\varepsilon_F$  是费米能级,  $f(\varepsilon)$  是费米分布函数, 热平衡状态下的费米分布函数可表示为

$$f_0(\varepsilon) = \left[ 1 + \exp\left(\frac{\varepsilon - \varepsilon_F}{k_B T}\right) \right]^{-1}, \quad (2)$$

式中  $k_B$  为玻尔兹曼常数。考虑当空间色散非常小 ( $k v_F \ll \omega, k_B T / \hbar$ , 这里设  $k = 0$ ), 而传输散射时间又非常大 ( $\omega\tau \gg 1$ ),  $\tau$  是电子和空穴的动量弛豫时间, 与杂质中的电子空穴散射和声学声子散射有关时, 等式(1)右边括号内的第一项与带内电子-声子散射过程相关, 第二项则源于带间电子跃迁。(1)式可表示为

$$\sigma_{ij}(\omega, \mathbf{k}) = \sigma_{\text{intra}}(\omega, \mathbf{k}) + \sigma_{\text{inter}}(\omega, \mathbf{k}). \quad (3)$$

石墨烯结构的厚度比 THz 波长小得多, 因而发射或吸收 THz 波由动态电导率的实部决定, 只需计算石墨烯中动态电导率的实部  $\text{Re } \sigma_\omega$ :

$$\text{Re } \sigma_\omega = \text{Re } \sigma_\omega^{(\text{inter})} + \text{Re } \sigma_\omega^{(\text{intra})}. \quad (4)$$

带间和带内跃迁对电子-空穴系统电导率实部的贡献分别表示为

$$\text{Re } \sigma_\omega^{(\text{inter})} = \frac{e^2}{4\hbar} \left[ 1 - f_c\left(\frac{\hbar\omega}{2}\right) - f_h\left(\frac{\hbar\omega}{2}\right) \right] = \frac{e^2}{4\hbar} \tanh\left(\frac{\hbar\omega - 2\varepsilon_F}{4k_B T}\right), \quad (5)$$

$$\text{Re } \sigma_\omega^{(\text{intra})} = \frac{e^2 v_F \tau}{\pi \hbar^2 (1 + \omega^2 \tau^2)} \int_0^\infty p \cdot \left(-\frac{df_0}{dp}\right) dp = \frac{e^2 k_B T \tau}{\pi \hbar^2 (1 + \omega^2 \tau^2)} \int_0^\infty \frac{\xi \cdot \exp(\xi - \eta_F) d\xi}{[1 + \exp(\xi - \eta_F)]^2} = \frac{e^2 k_B T \tau}{\pi \hbar^2 (1 + \omega^2 \tau^2)} \Phi(\eta_F), \quad (6)$$

式中

$$\Phi(\eta_F) = \int_0^\infty \frac{\xi \cdot \exp(\xi - \eta_F) d\xi}{[1 + \exp(\xi - \eta_F)]^2}, \quad (7)$$

$$\text{且 } \eta_F = \frac{\varepsilon_F}{k_B T}, \xi = \frac{v_F p}{k_B T}.$$

如果抽运光垂直入射, 那么产生电子-空穴对时, 归一化的电子(空穴)费米能级  $\eta_F = \varepsilon_F / (k_B T)$  遵循平衡方程:

$$R(\eta_F) - R(0) = \alpha_\Omega I_\Omega, \quad (8)$$

式中  $R(\eta_F)$  是电子-空穴对的复合率,  $I_\Omega$  是光子能量为  $\hbar\Omega$  的入射光的辐射强度,  $\alpha_\Omega$  是电子-空穴对的光生速率, 可表示为

$$\alpha_\Omega = \frac{4\pi}{c} \frac{\text{Re } \sigma_\Omega^{(\text{inter})}}{\hbar\Omega}, \quad (9)$$

式中  $c$  是光速,  $\sigma_\Omega^{(\text{inter})}$  是石墨烯电导率, 它与频率为  $\Omega$  的光子诱导的带间跃迁有关。当光子能量  $\hbar\Omega \gg k_B T, \varepsilon_F$ , 电导率的实部表示为

$$\text{Re } \sigma_\omega^{(\text{inter})} = \frac{e^2}{4\hbar} \tanh\left(\frac{\hbar\Omega - 2\varepsilon_F}{4k_B T}\right) \approx \frac{e^2}{4\hbar}, \quad (10)$$

因此

$$\alpha_\Omega = \frac{\pi\alpha}{\hbar\Omega}, \quad (11)$$

式中  $\alpha = e^2 / (\hbar c) = 1/137$ 。

而当抽运光不是很强时, 可以认为  $\eta_F < 1$ 。在这种情况下, 引入特征复合时间  $\tau_R$ , 它主要由复合机制决定, 则平衡方程(8)式左边表示为

$$R(\eta_F) - R(0) \approx \sum_0 \eta_F, \quad (12)$$

式中  $\sum_0$  是无抽运时(即  $\varepsilon_F = 0$  时)的电子(空穴)浓度, 可表示为

$$\sum_0 = \frac{1}{\pi \hbar^2} \int_0^\infty \frac{p dp}{1 + \exp[v_F p / (k_B T)]} = \frac{\pi}{12} \left(\frac{k_B T}{\hbar v_F}\right)^2. \quad (13)$$

通过(8)、(11)和(12)式, 求得

$$\eta_F = \frac{\alpha_\Omega I_\Omega \tau_R}{\sum_0} = \frac{\pi\alpha}{\hbar\Omega} \frac{12}{\pi} \left(\frac{\hbar v_F}{k_B T}\right)^2 I_\Omega \tau_R = 12\alpha \left(\frac{\hbar v_F}{k_B T}\right)^2 \frac{\tau_R I_\Omega}{\hbar\Omega}. \quad (14)$$

若  $\varepsilon_F \neq 0$ , 而  $\frac{\hbar\omega}{2}, \varepsilon_F \ll k_B T$ , 则(5)式表示为

$$\text{Re } \sigma_\omega^{(\text{inter})} = \frac{e^2}{4\hbar} \tanh\left(\frac{\hbar\omega - 2\varepsilon_F}{4k_B T}\right) \approx \frac{e^2}{8\hbar} \left(\frac{\hbar\omega}{2k_B T} - \eta_F\right). \quad (15)$$

在  $\eta_F < 1$  的条件下,  $\Phi(\eta_F) \approx \ln 2 + \eta_F / 2$ , 由带内跃迁引起的电导率(6)式化简为

$$\text{Re } \sigma_\omega^{(\text{intra})} = \frac{e^2 k_B T \tau}{\pi \hbar^2 (1 + \omega^2 \tau^2)} \Phi(\eta_F) \approx \frac{(\ln 2 + \eta_F / 2) e^2}{\pi \hbar} \frac{k_B T \tau}{\hbar (1 + \omega^2 \tau^2)}. \quad (16)$$

由(4)、(15)和(16)式,得到

$$\begin{aligned} \text{Re } \sigma_{\omega} \approx & \frac{e^2}{8\hbar} \left( \frac{\hbar\omega}{2k_B T} - \eta_F \right) + \\ & \frac{(\ln 2 + \eta_F/2)e^2}{\pi\hbar} \frac{k_B T\tau}{\hbar(1 + \omega^2\tau^2)} \approx \\ & \frac{e^2}{8\hbar} \left\{ \frac{\hbar\omega}{2k_B T} + \frac{8\ln 2}{\pi} \left( \frac{k_B T\tau/\hbar}{1 + \omega^2\tau^2} \right) - \right. \\ & \left. \left[ 1 - \frac{4}{\pi} \left( \frac{k_B T\tau/\hbar}{1 + \omega^2\tau^2} \right) \right] \eta_F \right\}. \end{aligned} \quad (17)$$

在  $k_B T\tau/\hbar < \omega^2\tau^2$  的情况下,将(14)式代入(17)式化简得到

$$\text{Re } \sigma_{\omega} \approx \frac{e^2}{8\hbar} \left[ g_{\omega} - 12\alpha \left( \frac{\hbar v_F}{k_B T} \right)^2 \frac{\tau_R I_{\Omega}}{\hbar\Omega} \right], \quad (18)$$

式中

$$g_{\omega} = \frac{\hbar\omega}{2k_B T} + \frac{8\ln 2}{\pi} \left( \frac{k_B T\tau/\hbar}{1 + \omega^2\tau^2} \right). \quad (19)$$

假设函数  $g_{\omega}$  在  $\omega = \bar{\omega}$  时,获得最小值  $\bar{g}$ ,那么  $\bar{\omega}$  即为阈值频率,

$$\bar{\omega} = \left( \frac{32\ln 2}{\pi} \right)^{1/3} \left( \frac{k_B T\tau}{\hbar} \right)^{2/3} \frac{1}{\tau} \approx \left( \frac{k_B T\tau}{\hbar} \right)^{2/3} \frac{1.92}{\tau}, \quad (20)$$

$$\bar{g} = \frac{3}{2} \left( \frac{4\ln 2}{\pi} \right)^{1/3} \left( \frac{\hbar}{k_B T\tau} \right)^{1/3}. \quad (21)$$

此时动态电导率在阈值附近改变符号,用  $\bar{\omega}$ ,  $\bar{g}$  将(18)式表示为

$$\text{Re } \sigma_{\omega} \approx \frac{e^2 \bar{g}}{8\hbar} \left( \frac{2}{3} \frac{\omega}{\bar{\omega}} + \frac{1}{3} \frac{\bar{\omega}^2}{\omega^2} - \frac{I_{\Omega}}{\bar{I}_{\Omega}} \right), \quad (22)$$

式中

$$\bar{I}_{\Omega} = \frac{3}{2} \left( \frac{4\ln 2/\pi}{12\alpha} \right)^{1/3} \left( \frac{\hbar}{k_B T\tau} \right)^{1/3} \left( \frac{k_B T}{\hbar v_F} \right)^2 \frac{\hbar\Omega}{\tau_R} \quad (23)$$

是光辐射的阈值强度。

当  $v_F = 10^8$  cm/s,  $T = 77$  K,  $\tau = 1 \times 10^{-12}$  s,  $\hbar\Omega \approx 0.8$  eV ( $\hbar\Omega = 4\hbar\omega_0$ , 其中石墨烯中光学声子的能量  $\hbar\omega_0 \approx 0.2$  eV),  $\tau_R = 10^{-7} \sim 10^{-9}$  s 时,可以得到  $\bar{\omega} = 1.43$  THz,  $\bar{g} \approx 0.67$ ,  $\bar{I}_{\Omega} \approx 0.10 \times (1 \sim 100)$  W/cm<sup>2</sup>。如果  $\tau = 3 \times 10^{-12}$  s,其他条件不变,则有  $\bar{\omega} \approx 1$  THz,  $\bar{g} \approx 0.46$ ,  $\bar{I}_{\Omega} \approx 0.07 \times (1 \sim 100)$  W/cm<sup>2</sup>。如果  $T = 300$  K,其他条件不变,得到  $\bar{\omega} \approx 3.5$  THz,  $\bar{g} \approx 0.42$ ,  $\bar{I}_{\Omega} \approx 0.95 \times (1 \sim 100)$  W/cm<sup>2</sup>。

图2给出了  $T = 77$  K,  $\tau = 1 \times 10^{-12}$  s,不同光辐射强度下,用特征电导率  $e^2/(4\hbar)$  归一化的动态电导率随频率的变化关系(以下图示的单层和多层石墨烯的电导率均由  $e^2/(4\hbar)$  归一化)。由图2可以看到,当入射光的辐射强度大于阈值强度时,在THz频段内开始出现负电导率,且随着辐射光强度

的增加,  $\text{Re } \sigma_{\omega} < 0$  的THz频率范围加宽。

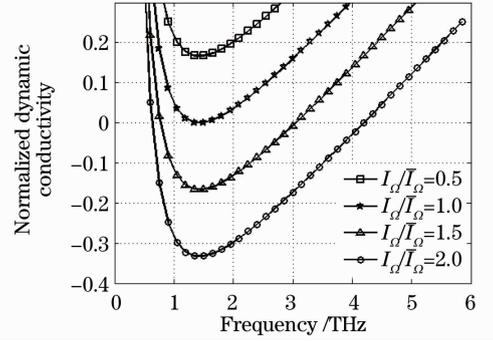


图2 不同光辐射强度下,归一化动态电导率实部  $\text{Re } \sigma_{\omega}$  随频率的变化曲线

Fig. 2 Frequency dependence of normalized dynamic conductivity at different intensities of optical radiation

由(22)式,满足  $\text{Re } \sigma_{\omega} < 0$  的频率范围为  $\omega_{\min} < \omega < \omega_{\max}$ ,其中  $\omega_{\min}$  和  $\omega_{\max}$  是  $\text{Re } \sigma_{\omega} = 0$  的频率,它们由  $\tau_R$ ,  $\tau$  和  $I_{\Omega}$  (入射抽运光强度) 决定。图3给出的是抽运光强度  $I_{\Omega}$  大于阈值强度  $\bar{I}_{\Omega}$ ,  $T = 77$  K 时,不同弛豫时间下,归一化电导率随频率的变化关系。光抽运单层石墨烯结构,动量弛豫时间越长,其对应的阈值频率  $\bar{\omega}$  越小,并且  $\omega_{\max} - \omega_{\min}$  间隔宽度也越小,这是因为  $\bar{\omega}$  和  $\bar{I}_{\Omega}$  都与  $\tau$  有关。

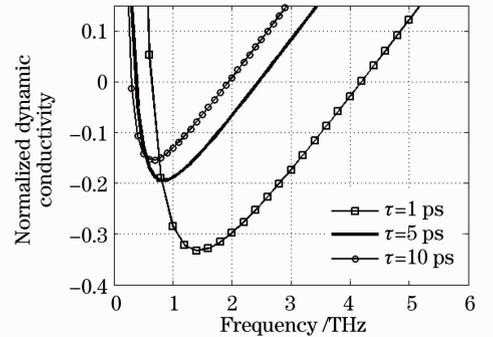


图3 不同弛豫时间下,归一化动态电导率实部  $\text{Re } \sigma_{\omega}$  随频率的变化曲线

Fig. 3 Frequency dependence of normalized dynamic conductivity at different relaxation time

弛豫时间和光强一定(抽运光强度  $I_{\Omega}$  大于阈值强度  $\bar{I}_{\Omega}$ ),而温度不同时,归一化电导率与频率的变化曲线如图4所示。由于  $\bar{\omega}$  和  $\bar{I}_{\Omega}$  都和温度  $T$  有关,当入射光的辐射强度大于阈值强度时,温度越高,对应的阈值频率  $\bar{\omega}$  越大,  $\omega_{\max} - \omega_{\min}$  间隔宽度也越大。

当强光照射时,电子和空穴的费米能级  $\epsilon_F$  可以相当大。如果  $\frac{\Omega}{2} - N_{\max}\omega_0 \ll \omega_0$ ,电子-空穴系统吸收的光辐射将不会引起明显的系统热化,在这种情况下,  $\eta_F \gg 1$ 。

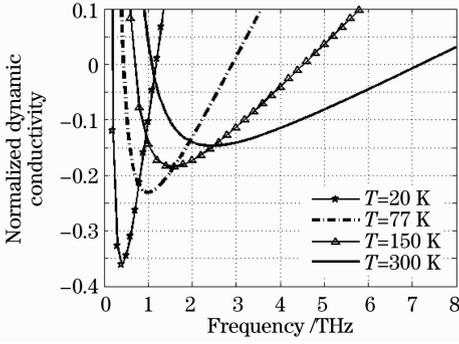


图4 不同温度的条件下,归一化动态电导率实部  $\text{Re } \sigma_\omega$  随频率的变化曲线

Fig. 4 Frequency dependence of normalized dynamic conductivity at different temperatures

由于强抽运时在 THz 频率范围内应该有  $\hbar\omega < \epsilon_F$ , 因此,在这种情况下带间跃迁对电导率的贡献变为

$$\text{Re } \sigma_\omega^{(\text{inter})} = \frac{e^2}{4\hbar} \tanh\left(\frac{\hbar\omega - 2\epsilon_F}{4k_B T}\right) = -\frac{e^2}{4\hbar}. \quad (24)$$

同时,考虑  $\eta_F \gg 1$  时,由(7)式有  $\Phi(\eta_F) \approx \eta_F$ , 则伴随杂质上的电子和空穴散射以及声学声子散射的带内电导率的贡献为

$$\text{Re } \sigma_\omega^{(\text{intra})} \approx \frac{e^2}{\pi\hbar} \frac{k_B T \tau}{\hbar(1 + \omega^2 \tau^2)} \eta_F = \frac{e^2}{\pi\hbar^2} \frac{\epsilon_F \tau}{(1 + \omega^2 \tau^2)}. \quad (25)$$

因此,得到

$$\text{Re } \sigma_\omega = \frac{e^2}{4\hbar} \left[ -1 + \frac{4\tau\epsilon_F}{\pi\hbar(1 + \omega^2 \tau^2)} \right], \quad (26)$$

当  $\omega \gg \tau^{-1}$ , (26)式可化简为

$$\text{Re } \sigma_\omega = \frac{e^2}{4\hbar} \left( -1 + \frac{4}{\pi\hbar\tau} \frac{\epsilon_F}{\omega^2} \right). \quad (27)$$

由(14)式知,  $\epsilon_F$  与光强成正比,若令  $\epsilon_F$  取不同值,  $\tau=1$  ps 时,得到归一化的动态电导率实部  $\text{Re } \sigma_\omega$  与频率的变化关系,如图5所示。从图中可以看到,当  $\epsilon_F$  太大时,在 THz 范围内将不再出现负动态电导率,即光强太强时,光抽运石墨烯将不再产生 THz 激光辐射。这是因为带间跃迁对动态电导率的实部有负贡献值,而由 Drude 机制决定的带内跃迁过程对交流电导率则是正贡献值,随着电子和空穴浓度的增加,带内跃迁随强度的增加而不断增加,带间跃迁贡献却已趋于饱和。

### 3 光抽运多层石墨烯模型及分析

由于单层石墨烯的电子和空穴浓度有限,导致光强达到一定值时,THz 范围内将不再出现负动态电导率(图5),所以考虑增加石墨烯层数,来提高石

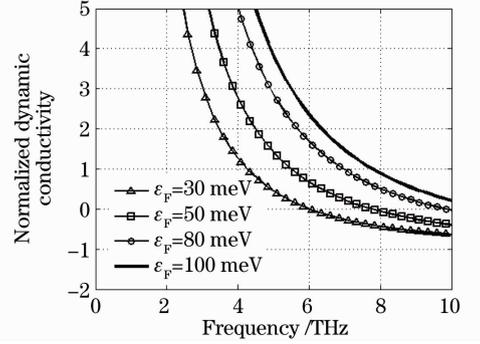


图5  $\epsilon_F$  取不同值时,归一化动态电导率实部  $\text{Re } \sigma_\omega$  随频率的变化关系

Fig. 5 Frequency dependence of normalized dynamic conductivity as  $\epsilon_F$  equals different values

墨烯的电子和空穴浓度,进一步研究多层石墨烯实现 THz 放大的机理。图6为光抽运  $M$  层石墨烯结构的导带和价带分布,其中箭头指示的是带间发射跃迁和 THz 光子能量为  $\hbar\omega$  的带内吸收(光生电子和空穴的带内跃迁没有表示出来)。

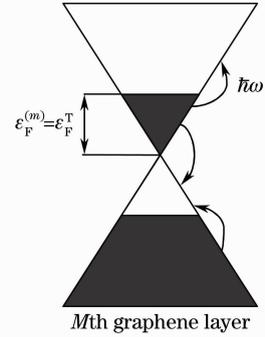


图6 光抽运  $M$  层石墨烯结构的导带和价带分布

Fig. 6 Occupied (by electrons) and vacant states in the  $M$ th graphene layer under optical pumping

若用光子能量为  $\hbar\Omega$  的光束来激发多层石墨烯异质结构,由于多层石墨烯的电子和空穴浓度比单层大得多,所以当能量在  $\epsilon \ll \hbar\omega_0$  (光学声子能量) 范围内时,第  $m$  层 ( $1 < m \leq M$ ) 石墨烯的电子和空穴的分布需用准费米能级  $\epsilon_F^{(m)}$  的费米函数来描述,每一层的电导率的实部为准费米能级  $\epsilon_F^{(m)}$  的函数:

$$\text{Re } \sigma_\omega^{(m)} = \frac{e^2}{4\hbar} \tanh\left(\frac{\hbar\omega - 2\epsilon_F^{(m)}}{4k_B T}\right) + \frac{e^2}{4\hbar} \frac{8k_B T \tau}{\pi\hbar(1 + \omega^2 \tau^2)} \ln\left[1 + \exp\left(\frac{\epsilon_F^{(k)}}{k_B T}\right)\right], \quad (28)$$

上式右边第一项为带间跃迁引起的电导率,第二项为带内跃迁引起的电导率。层数为  $M$  的多层石墨烯结构的动态电导率的实部表示为:

$$\text{Re } \sigma_\omega = \text{Re } \sum_{m=1}^M \sigma_\omega^{(m)}. \quad (29)$$

将(28)和(29)式联立,可以得到

$$\text{Re } \sigma_{\omega} = \frac{e^2}{4\hbar} \left\{ \frac{8k_B T \tau}{\pi \hbar (1 + \omega^2 \tau^2)} \sum_{m=1}^M \ln \left[ 1 + \exp \left( \frac{\epsilon_F^{(m)}}{k_B T} \right) \right] + \sum_{m=1}^M \tanh \left( \frac{\hbar \omega - 2\epsilon_F^{(m)}}{4k_B T} \right) \right\}. \quad (30)$$

在足够强的光抽运下,多层石墨烯的电导率与层数  $M$  的大小、石墨烯最顶层的准费米能级  $\epsilon_F^{\uparrow}$  的大小、温度以及动量弛豫时间都有密切的关系。

取  $\hbar\Omega = 920$  meV,  $T = 300$  K,  $\tau = 10$  ps, 根据

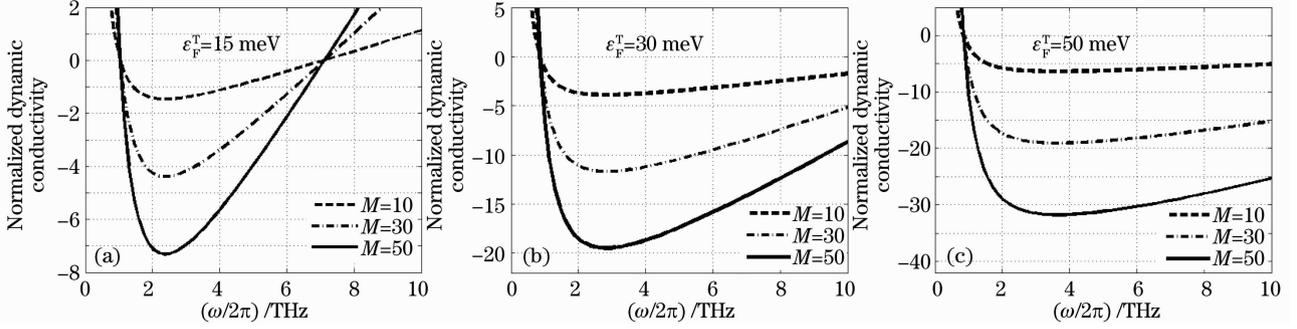


图 7 多层石墨烯结构的频率与归一化动态电导率实部  $\text{Re } \sigma_{\omega}$  的关系

Fig. 7 Frequency dependences of the normalized dynamic conductivity for MGL structures with different  $\epsilon_F^{\uparrow}$

图 8 给出的是温度  $T$  取不同值时,多层石墨烯归一化动态电导率  $\text{Re } \sigma_{\omega}$  与频率的关系,其中  $\epsilon_F^{\uparrow} = 15$  meV,  $M = 10$ ,  $\tau = 10$  ps. 从图中可以看到,温度的升高使得  $\text{Re } \sigma_{\omega}$  的最小值增大,同时还会减小负电导率的范围,即  $\omega_{\max} - \omega_{\min}$  的值减小。

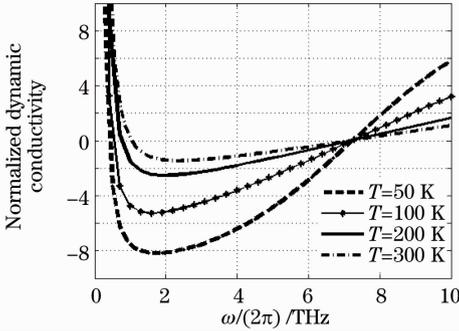


图 8 温度  $T$  取不同值时,多层石墨烯归一化动态电导率实部  $\text{Re } \sigma_{\omega}$  与频率的关系

Fig. 8 Frequency dependence of normalized dynamic conductivity at different temperatures for MGL structures

当  $\omega^2 \tau^2 \gg 1$  时,可以将(30)式化简为

$$\text{Re } \sigma_{\omega} = \frac{e^2}{4\hbar} \left\{ \frac{8k_B T}{\pi \hbar \omega^2 \tau} \sum_{m=1}^M \ln \left[ 1 + \exp \left( \frac{\epsilon_F^{(m)}}{k_B T} \right) \right] + \sum_{m=1}^M \tanh \left( \frac{\hbar \omega - 2\epsilon_F^{(m)}}{4k_B T} \right) \right\}. \quad (31)$$

在强光抽运下,  $\epsilon_F^{(m)} \gg \hbar \omega, k_B T$ , 且  $\tanh[(\hbar \omega -$

(30)式,多层石墨烯结构分别取不同的  $M$  值和不同的  $\epsilon_F^{\uparrow}$  时,归一化的  $\text{Re } \sigma_{\omega}$  与频率的关系如图 7 所示。在频率  $\omega > \omega_{\min}$  时,  $\text{Re } \sigma_{\omega}$  可以是负值,  $\omega_{\min}$  随石墨烯最顶层的准费米能级  $\epsilon_F^{\uparrow}$  (即抽运光强度)的增加而减小。当  $\omega > \omega_{\max}$  时,  $\text{Re } \sigma_{\omega}$  变为正值,  $\omega_{\max}$  随  $\epsilon_F^{\uparrow}$  的增加而增大,当  $\epsilon_F^{\uparrow} = 30 \sim 50$  meV 时,  $\omega_{\max} > 10$  THz。在抽运强度加强、层数  $M$  增大的多层石墨烯结构中,不仅  $\omega_{\min}$  更小,函数  $\text{Re } \sigma_{\omega}$  的最小值也迅速减小。

$2\epsilon_F^{(m)}) / (4k_B T)] \approx 1$ , 令  $\sum_{m=1}^M \epsilon_F^{(m)} \approx M^* \epsilon_F^{\uparrow}$ ,  $M^* < M$ , 由(31)式可得到

$$\text{Re } \sigma_{\omega} \approx \frac{e^2}{4\hbar} \left( \frac{8M^* \epsilon_F^{\uparrow}}{\pi \hbar \omega^2 \tau} - M \right). \quad (32)$$

根据(32)式,  $\tau = 10$  ps,  $M = 10$ ,  $\epsilon_F^{\uparrow}$  取较大值时,得到多层石墨烯归一化动态电导率  $\text{Re } \sigma_{\omega}$  与频率的关系,如图 9 所示。当  $\epsilon_F^{\uparrow}$  大于一定的数值时,如  $\epsilon_F^{\uparrow} = 330$  meV 时,  $\text{Re } \sigma_{\omega}$  在 THz 范围内不再出现负值。

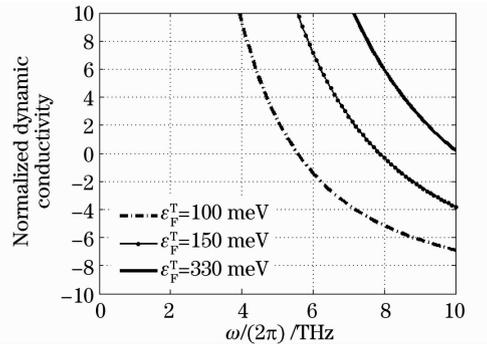


图 9  $\epsilon_F^{\uparrow}$  取不同值时,多层石墨烯频率与归一化动态电导率实部  $\text{Re } \sigma_{\omega}$  的关系

Fig. 9 Frequency dependence of normalized dynamic conductivity at different  $\epsilon_F^{\uparrow}$  for MGL structures

## 4 结 论

建立了光抽运单层和多层石墨烯中二维电子-

空穴系统的非平衡模型,研究了电子和空穴的能量谱的特征及其决定动态电导率的过程。通过计算单层和多层石墨烯在光激发下伴随光学声子级联发射的动态电导率,证明了在足够强的光抽运下,石墨烯的粒子数反转可以引起在 THz 频段内的负的动态电导率,这使基于石墨烯的 THz 放大或受激辐射源成为可能。同时还模拟了石墨烯的负动态电导率与动量弛豫时间、温度、层数等的关系,结果表明,多层结构的动态电导率最小值的绝对值更大,多层石墨烯作为 THz 激光器的激活介质更具优势。

### 参 考 文 献

- 1 P. R. Wallace. The band theory of graphite[J]. *Phys. Rev.*, 1947, **71**(9): 622~634
- 2 A. K. Geim, K. S. Novoselov. The rise of graphene[J]. *Nature Mater.*, 2007, **6**(3): 183~191
- 3 Shengjun Yuan, Hans De Raedt, Mikhail I. Katsnelson. Electronic transport in disordered bilayer and trilayer graphene[J]. *Phys. Rev. B*, 2010, **82**(23): 235409
- 4 Tobias Kampfrath, Luca Perfetti, Florian Schapper *et al.*. Strongly coupled optical phonons in the ultrafast dynamics of the electronic energy and current relaxation in graphite[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2005, **95**(18): 187403
- 5 A. H. Castro Neto, F. Guinea, N. M. R. Peres *et al.*. The electronic properties of graphene[J]. *Rev. Mod. Phys.*, 2009, **81**(1): 109~162
- 6 Oded Hod, Verónica Barone, Gustavo E. Scuseria. Half-metallic graphene nanodots: a comprehensive first-principles theoretical study[J]. *Phys. Rev. B*, 2008, **77**(3): 035411
- 7 Zhou Haiqing, Qiu Caiyu, Liu Zheng *et al.*. Thickness-dependent morphologies of gold on *N*-layer graphenes[J]. *J. Am. Chem. Soc.*, 2010, **132**(3): 944~946
- 8 Mao Jinhai, Zhang Haigang, Jiang Yuhang *et al.*. Tunability of supramolecular Kagome lattices of magnetic phthalocyanines using graphene-based moire patterns as templates[J]. *J. Am. Chem. Soc.*, 2009, **131**(40): 14136~14137
- 9 Liu Jiang, Wu Sida, Wang Ke *et al.*. Passively mode-locked and Q-switched Yb-doped fiber lasers with graphene-based saturable absorber[J]. *Chinese J. Lasers*, 2011, **38**(8): 0802001
- 10 He Jingliang, Hao Xiaopeng, Xu Jinlong *et al.*. Ultrafast mode locked solid state lasers with graphene saturable absorber[J]. *Acta Optica Sinica*, 2011, **31**(9): 0900138
- 11 何京良, 郝霄鹏, 徐金龙等. 基于石墨烯可饱和吸收被动锁模超快全固体激光器的研究[J]. *光学学报*, 2011, **31**(9): 0900138
- 12 D. C. Wei, Y. Q. Liu, H. L. Zhang *et al.*. Scalable synthesis of few-layer graphene ribbons with controlled morphologies by a template method and their applications in nanoelectromechanical switches [J]. *J. Am. Chem. Soc.*, 2009, **131**(31): 11147~11154
- 13 L. M. Xie, X. Ling, Y. Fang *et al.*. Graphene as a substrate to suppress fluorescence in resonance raman spectroscopy[J]. *J. Am. Chem. Soc.*, 2009, **131**(29): 9890~9891
- 14 Chengmeng Chen, Quanhong Yang, Yonggang Yang *et al.*. Self-assembled free-standing graphite oxide membrane[J]. *Adv. Mater.*, 2009, **21**(29): 3007~3011
- 15 L. A. Falkovsky, A. A. Varlamov. Space-time dispersion of graphene conductivity[J]. *Eur. Phys. J. B.*, 2007, **56**(4): 281~284
- 16 L. A. Falkovsky. Unusual field and temperature dependence of Hall effect in graphene[J]. *Phys. Rev. B*, 2007, **75**(3): 033409
- 17 Haining Wang, Jared H. Strait, Paul A. George *et al.*. Ultrafast relaxation dynamics of hot optical phonons in graphene[J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2010, **96**(8): 081917
- 18 V. Ryzhii, M. Ryzhii. Negative dynamic conductivity of graphene with optical pumping[J]. *J. Appl. Phys.*, 2007, **101**(8): 083114
- 19 A. Satou, F. T. Vasko, V. Ryzhii. Nonequilibrium carriers in intrinsic grapheme under interband photoexcitation[J]. *Phys. Rev. B*, 2008, **78**(11): 115431
- 20 V. Ryzhii, M. Ryzhii, A. Satou. Feasibility of terahertz lasing in optically pumped epitaxial multiple grapheme layer structures[J]. *J. Appl. Phys.*, 2009, **106**(8): 084507
- 21 Victor Ryzhii, Maxim Ryzhii, Taiichi Otsuji. Population inversion of photoexcited electrons and holes in graphene and its negative terahertz conductivity[J]. *Phys. Stat. Sol. (c)* 2008, **5**(1): 261~264