

ДОКЛАД • ОТКРЫТЫЙ ДОСТУП

# Роль примеси кислорода на электронные Свойства монослойного графена: зависимость плотности от Функциональное исследование

Для цитирования этой статьи: Muh. Юсрул Ханна и др., 2018 J. Phys.: Conf. Ser. 1011 012071

Просмотрите статью онлайн для получения обновлений и улучшений.

Соответствующий контент.

- [Эффективное поглощение монослоем графен в микрорезонаторе](#)  
Цзыю Лю
- [Колебания магнитосопротивления при заряде точка нейтральности в монослое графена из-за к потенциальным колебаниям](#)  
Рюта Яги, Сейя Фукада, Хироаки Кобара et al.
- [Влияние сильного магнитного поля на взаимодействие дислокации с примесью кислорода в Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>](#)  
И. Йоненага и К. Такахаси

# Роль примеси кислорода на электронные свойства монослойного графена: исследование функционала плотности

М.Юсрул Ханна<sup>1</sup>, Иман Сантосо<sup>1</sup>, Минздрав. Adhib Ulil Absor<sup>1,a</sup>

<sup>1</sup> Физический факультет Университета Гаджа  
Мада, Булаксумур, Джокьякарта 55281, Индонезия

Аннотация. Окисления при изготовлении двумерной системы на основе углерода (графена) избежать невозможно, так что это повлияет на электронные свойства системы. В этом в ходе исследования мы исследуем влияние примеси кислорода на электронные свойства монослойного графена с использованием расчетов по теории функционала плотности. Расчеты были выполнены с использованием модели суперячеек ( $3 \times 3$ ) и были подтверждены с помощью ( $1 \times 1$ ) суперячеек расчетов. Мы находим, что при увеличении концентрации кислорода с 6%, 11%, 17%, 33% до 50% ширина запрещенной зоны увеличилась с 0,1 до 2,48 эВ. Анализ с использованием частичной плотности состояний, спроецированных на атомы, подтвердил, что сильные гибридизации между орбиталями  $O-P_y$  и  $C-P_z$  ответственны за увеличение запрещенной зоны. Атомы кислорода очень чувствительны к изменениям электронных свойств монослоя графен.

## 1. ВВЕДЕНИЕ

За последний год технологическое развитие продвинулось очень далеко с точки зрения поиска новых материалов, таких как материалы на основе углерода, известные как графен. Графен состоит из двумерного углерода атомы расположены в гексагональном кристалле толщиной в один атом [1,2]. Монослойный графен обладает экстраординарными свойствами, такими как высокая подвижность электронов в условиях окружающей среды около  $20 \text{ м}^2 / \text{Vs}$  [3], невероятная механическая прочность при пределе прочности при растяжении до 130 ГПа [4] и теплопроводность проводимость выше  $2000 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$  [5]. В первичном графене появляется линейная дисперсия вокруг Уровня Ферми, известный как конус Дирака [2]. Более того, скорость Ферми достигает  $v_f \approx 1.0 \times 10^8 \text{ м/с}$  в зависимости от импульса Ферми, что подтверждается анализом данных колебаний Шубникова-де Хааса (SdHO) о магнитосопротивлениях [6].

Из-за нулевой запрещенной зоны в первичном графене важно вызвать открытие запрещенной зоны, которая ожидается, что это будет полезно для электронного устройства. Существует множество методов обеспечения открытой запрещенной зоны в монослойном графене одним из них является использование атомной ковалентной функционализации, такой как водород [7], цвет [8] и кислород [9, 10] или молекула [11] либо выше, либо ниже поверхности графена. Однако, использование кислорода для функционализации графена более перспективно. С другой стороны, ожидается, что введение кислорода вызовет нарушение симметрии электронных свойств [9].

В настоящей работе мы использовали расчеты по теории функционала плотности из первых принципов (DFT), чтобы прояснить электронные свойства графена с кислородной функционализацией.

автор-корреспондент :adhib@ugm.ac.id



2. ВЫЧИСЛИТЕЛЬНЫЕ МЕТОДЫ

Мы выполнили первичный расчет электронной структуры монослоя графена на основе теория функционала плотности (DFT) в рамках обобщенного градиентного приближения (GGA) [12] с использованием Кода OpenMx[13]. Используются псевдопотенциалы с сохранением нормы [14], и волновая функция расширяется линейной комбинацией псевдоатомных орбиталей (LCPO), сгенерированных с использованием ограничения схема[15,16]. Орбитали задаются через  $C6.0-s^2p^2d^1$  и  $O7.0-s^2p^2d^1$ , что означает, что радиусы отсечения составляют 6,0 и 7,0 бора для атомов С и О соответственно в схеме конфайнмента [15,16]. Для атомов С dan О две примитивные орбитали расширяют s- и р-орбитали, а одна примитивная орбиталь расширяет d-орбиталь.

Монослойный графен моделируется как периодическая пластина с большим вакуумным слоем (25 Å), чтобы избежать взаимодействия между соседними слоями. Мы использовали суперячейки размером 3 × 3, состоящие из 18 атомов С. Мы ввели атомы кислорода, концентрации которых варьируются для 0 % -50% Сетки с 12 × 12 × 1 k-точками и используется отсечка энергии 250 Ry. Геометрия была полностью расслаблена до тех пор, пока сила, действующая на каждый атом, была меньше 2 МэВ / Å. Мы находим, что оптимизированная постоянная решетки первичного графена составляет 2,47 Å, что хорошо согласуется с недавно рассчитанными данными[10].

Мы рассчитали энергию адсорбции, определенную следующим образом [10]:

$$E_{ads} = E_{tot}(graphene+O)-E_G -NE_O$$
 (1)

Где  $E_{tot}$  - общая энергия графена с различной концентрацией кислорода,  $E_G$  - энергия первозданного графен, N - количество атомов О и  $E_O$  - энергия изолированного атома О.

3. РЕЗУЛЬТАТ И ОБСУЖДЕНИЕ

Сначала мы исследуем структурную и энергетическую стабильность функционализации графен-кислород. В таблице 1 показан рассчитанный результат структурной оптимизации и энергии адсорбции. В первичном графене, мы находим, что  $d_{C-C} = 1.42$ Å что согласуется с предыдущим результатом [10]. Кроме того, функционализация кислорода в графене приведет к увеличению общей энергии.

Таблица 1. Краткое описание структурной оптимизации.  $d_{C-C}$  (Å) обозначает расстояние между двумя С связанными атомами.  $d_{C-O}$  (Å) обозначает расстояние между атомами С и О, которые связаны.  $E_{abs}$  (эВ/ О) - энергия адсорбции кислорода для наиболее стабильной конфигурации, и  $E_{tot}$  (eV) - это общая энергия системы.

O/C (%)	0%	6%	11%	17%
$>d_{C-C} <$ (Å)	1.42	1.42	1.39	1.37
$>d_{C-O} <$ (Å)		1.42	1.45	1.45
$>E_{ab} <$ (eV/O)		-2.19	-2.02	-1.94
$>E_{tot} <$ (eV)	-286154.91	-330182.95	-374156.35	-418156.35

На рисунке 1 показана расслабленная геометрия графена с функционализацией кислорода, мы обнаруживаем деформацию структуры при концентрациях 11%, 17% и 33%. Эти структуры с выпуклостью возникают из-за нарушения симметрии, вызванного присутствием атомов О.

Затем мы исследуем влияние кислородной функционализации на электронные свойства графена. Как показано в таблице 2, открывающаяся запрещенная зона видна при введении атомов кислорода, что хорошо согласуется с предыдущими результатами [10].

Таблица 2. Суммарная энергия запрещенных зон графена при различной концентрации кислорода.

O /C (%)	0%
$E_g$ (eV)	

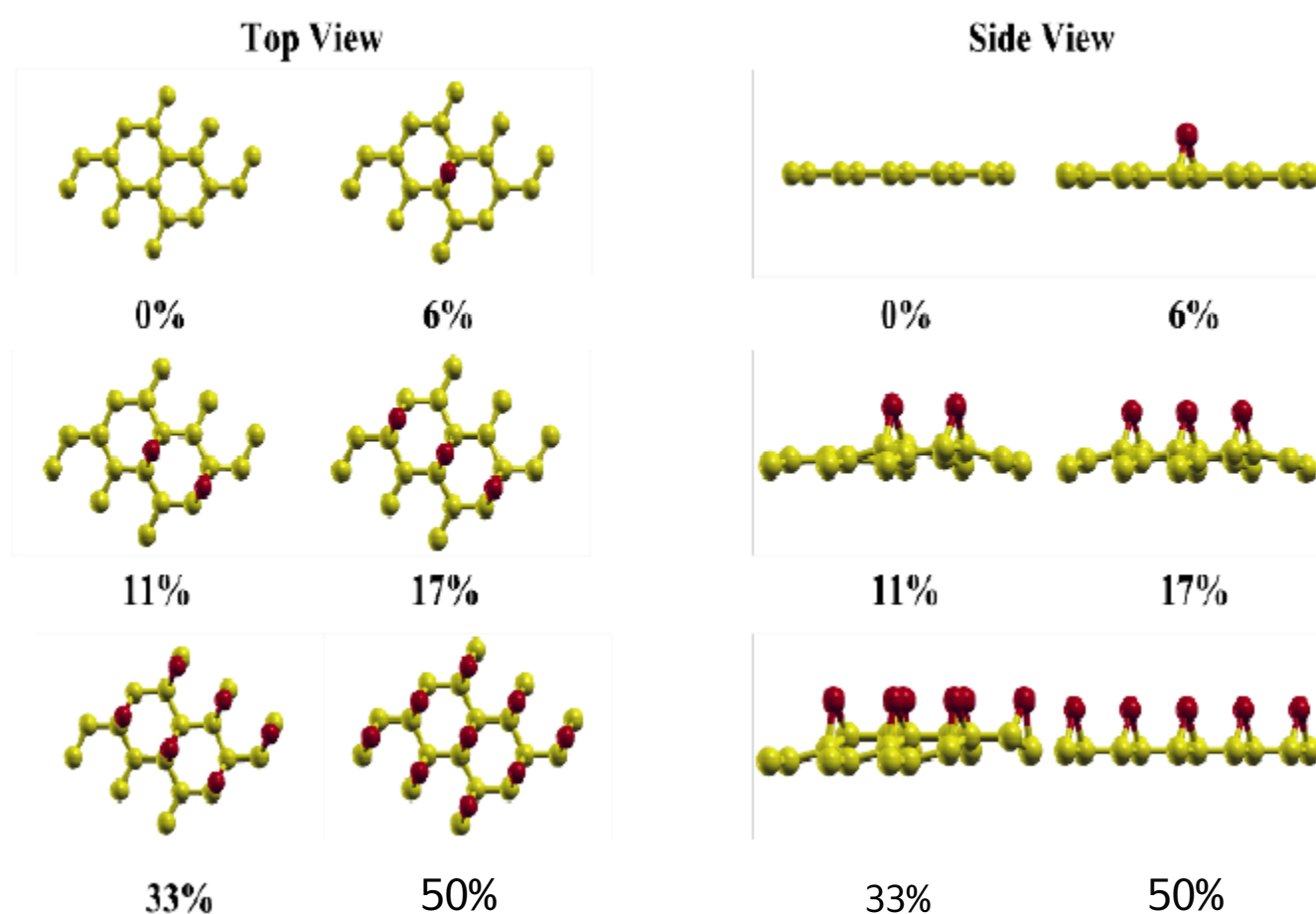


Рисунок 1. Результат оптимизации структуры для монослойных графеновых систем с  $3 \times 3$  суперячейки с различной концентрацией кислорода (O/C) составляют 0%, 6%, 11%, 17%, 33% и 50%.

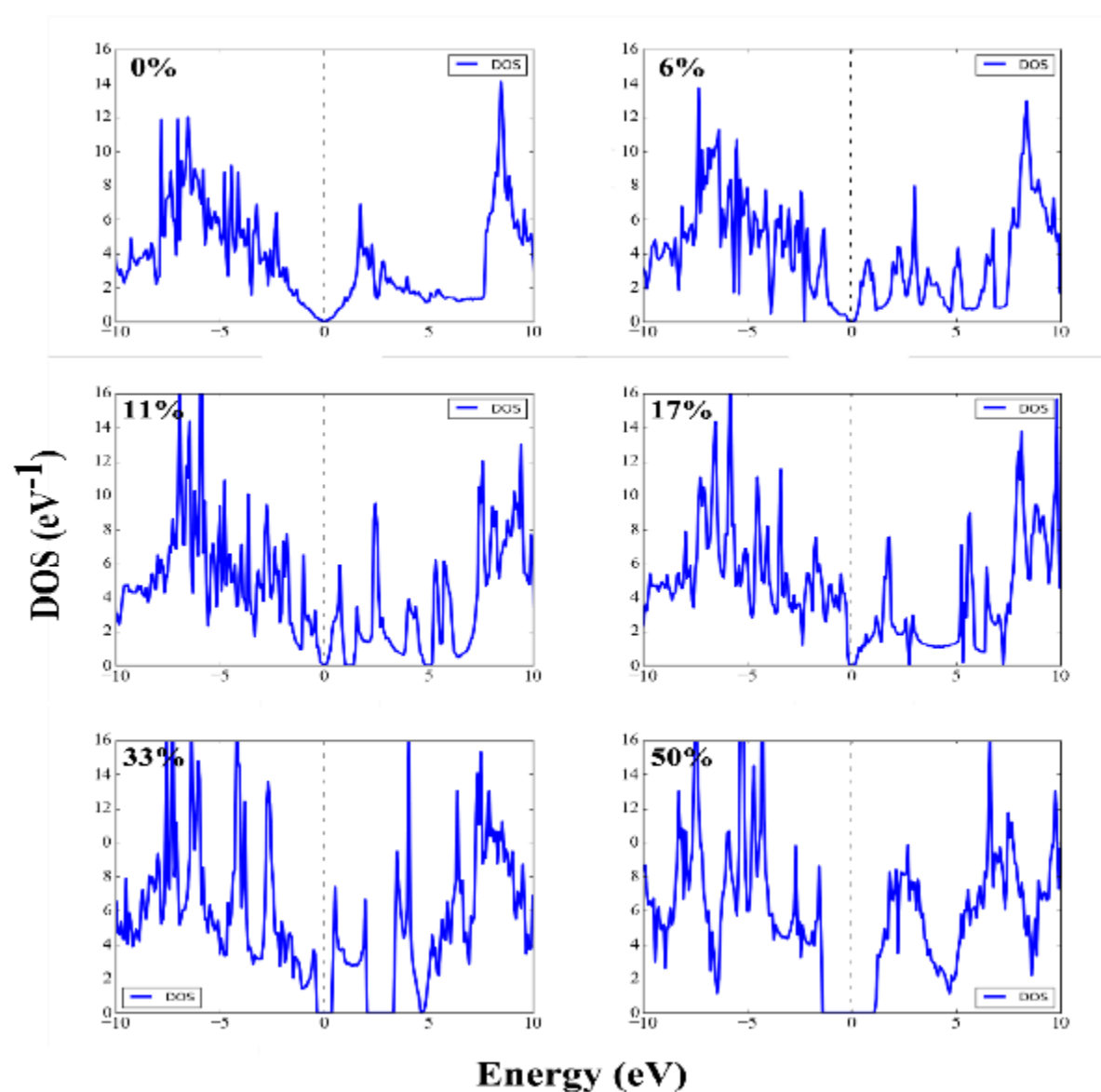


Рисунок 2. Плотность состояний (DOS) монослоя графена с различной концентрацией кислорода

Чтобы прояснить причину открытия запрещенной зоны, мы рассмотрим частичную плотность состояний (PDO) спроецировали атомные орбитали, как показано на рисунке 3.

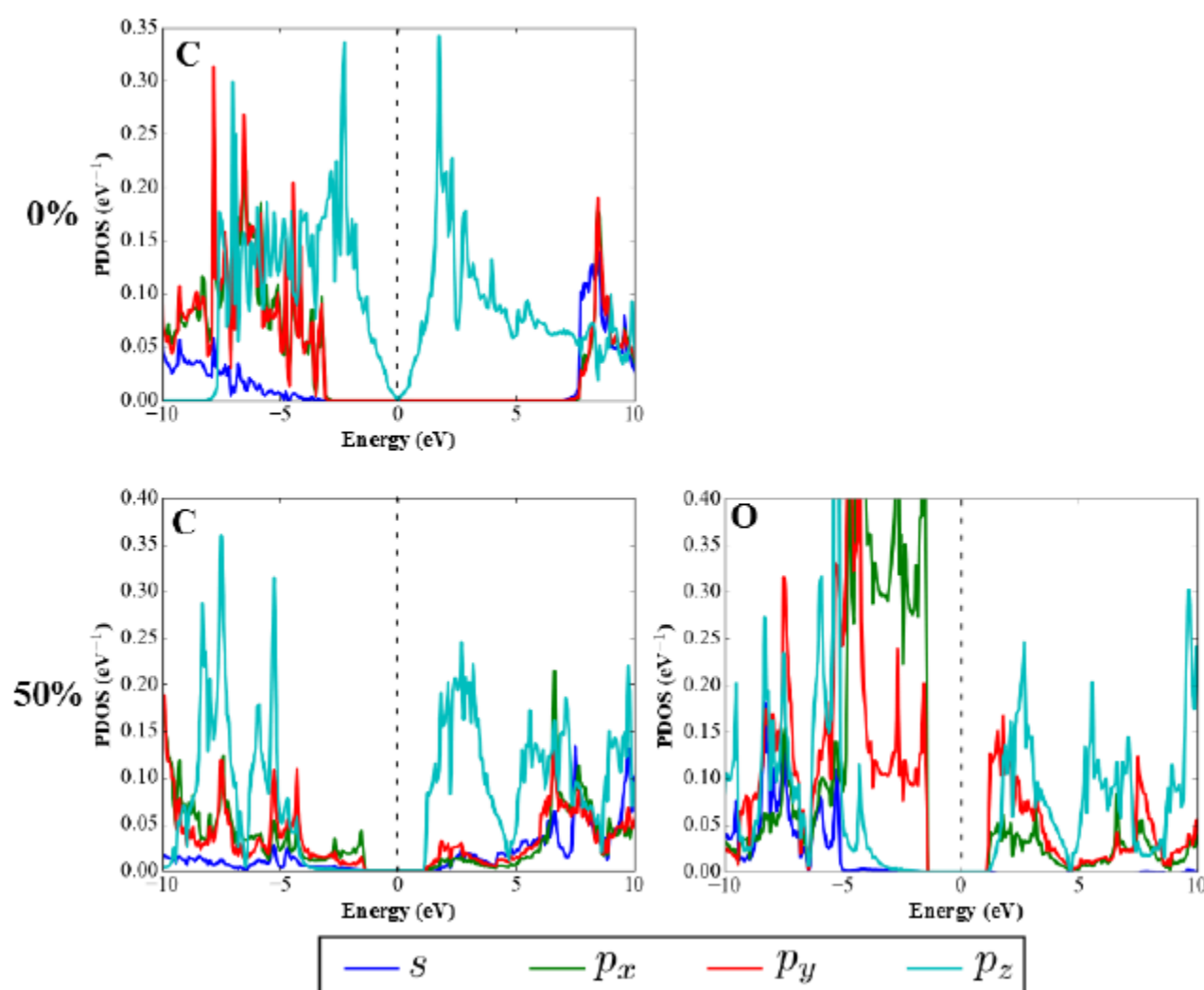


Рисунок 3. PDOS для атомов С и О с концентрацией кислорода 0% и 50%.

На рисунке 3 показаны PDOS монослойного графена с концентрацией кислорода 0%,  $p_z$  орбиталь атом С доминирует над энергией зоны в области вокруг уровня Ферми. Принимая систему с при 50% концентрации мы обнаруживаем, что сильная гибридизация между С – р и О – р орбиталями играет важную роль в открытии запрещенной зоны. Здесь максимум валентной зоны (VBM) определяется вкладом орбиталей  $O-p_z$  и  $O-p_y$ , в то время как минимум зоны проводимости (CBM) преимущественно за счет  $C-p_z$  и  $O-p_y$  таким образом, уровень энергии в валентной зоне и проводимости смещается от уровня Ферми и вызывает запрещенную зону в системах.

#### 4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В заключение, мы успешно рассчитали структурные электронные свойства кислорода функционализация графена с использованием первичного расчета DFT. Мы обнаружили, что улучшение ширина запрещенной зоны видна при увеличении концентрации кислорода. Анализ с использованием частичной плотности состояния, спроецированные на атомы, подтвердили, что сильные гибридизации между  $O-p_y$  и  $C-p_z$  орбиталями ответственны за увеличение запрещенной зоны.

#### Благодарность

Эта Работа была поддержана грантом на фундаментальные исследования (2017), финансируемым Министерством исследований технологии и высшее образование Республики Индонезия. Вычисления в этом исследовании были выполнены с использованием высокопроизводительного компьютера (Лаборатория физики материалов и приборостроения) в Университет Гаджа Мада.



[1] Уоллес П.Р., 1947, Зонная теория графита, физика. Откр. 71 622

[2] Нето А. Х., Гиней Ф., Перес Н. М. Р., Новоселов К. С. и Гейм А. К. 2009 Электронные свойства графена Rev. Mod. Физика. 81 109

[3] Морозов С. В., Новоселов К. С., Кацнельсон М. И., Шедин Ф., Элиас Д. К., Яцак Ю. А. и Гейм А К 2008 Гигантская внутренняя подвижность носителей в графене и его двухслойной физике. Rev. Lett. 100 16602

[4] Ли Си, Вэй Икс, Кисар Дж. В. и Хон Дж. 2008 Измерение упругих свойств и собственной прочности наука о прочности монослоя графена (80-. ). 321 385-8

[5] Баландин А. А., Гхош С., Бао В., Кализо И., Тевельдебран Д., Мiao Ф. и Лау К. Н. 2008 Превосходная теплопроводность однослойного графенового наноматериала Lett. 8 902-7

[6] Чжан И, Смолл Дж.П., Амори М. Е. С и Ким П. 2005 Модуляция электрического поля гальваномагнитные свойства мезоскопического графита Phys. Rev. Lett. 94 176803

[7] Путц С., Гмитра М. и Фабиан Дж. 2014 Оптическая проводимость гидрогенизированного графена из первых принципы физики. Rev. B 89 35437

[8] Юань С., Реснер М., Шульц А., Велинг Т. О. и Кацнельсон М. И. 2015 Электронные структуры и оптические свойства частично и полностью фторированного графена Phys. Rev. Lett. 114 47403

[9] Сантосо I, Сингх Р. С., Гогой П. К., Асмара Т.К., Вэй Д., Чен В., Ви А. Т. С., Перейра В. М. и Русиди А 2014 Настраиваемое оптическое поглощение и взаимодействия в графене с помощью кислородной плазмы Phys. Rev. B 89 75134

[10] Насехния Ф., Лима С. М., Сейфи М. и Мехран Э. Исследование первых принципов оптического отклика в 2016 году из оксидов графена: от восстановленного оксида графена до полностью окисленной поверхности Вычисл. Матер. Наука. 114 112-20

[11] Велинг Т.О., Новоселов К. С., Морозов С. В., Вдовин Е. Е., Кацнельсон М. И., Гейм А. К. и Лихтенштейн А.И. 2008 Молекулярное легирование графена нанометром Lett. 8 173-7

[12] Пердью Дж.П., Берк К. и Эрнзерхоф М. 1996 Обобщенное градиентное приближение, упрощенное Преподобный Латыш. 77 3865

[13] Одзаки Т., Кино Х., Ю Дж., Хан М. Дж., Кобаяси Н., Охфути М., Исии Ф., Охваки Т., Венг Х. и Теракура К. <http://www.openmx-square.org/>

[14] Трулье Н. и Мартинс Дж.Л. 1991 Эффективные псевдопотенциалы для расчетов на плоской волне Phys. Rev. B 43 1993

[15] Озаки Т. 2003 Вариационно оптимизированные атомные орбитали для крупномасштабных электронных структур Phys. Rev. B 67 155108

[16] Одзаки Т. и Кино Х. 2004 Численные атомные базисные орбитали от H до Kr Phys. Rev. B 69 195113