



DOI:10.22144/ctujos.2024.370

ẢNH HƯỞNG ĐỒNG THỜI CỦA KHUYẾT VÀ ĐIỆN TRƯỜNG LÊN TÍNH CHẤT ĐIỆN TỬ VÀ NHIỆT ĐIỆN CỦA ARMCHAIR GRAPHENE ĐƠN LỚP NANORIBBONS

Nguyễn Thị Kim Quyên^{1,2*}, Phạm Nguyễn Hữu Hạnh³ và Vũ Thanh Trà⁴

¹Khoa Kỹ thuật, Trường Đại học Kiên Giang

²Khoa Sau đại học, Trường Đại học Cần Thơ

³Trường THCS & THPT Thới Thuận, Cần Thơ

⁴Bộ môn Sư phạm Vật lý, Khoa Sư phạm, Trường Đại học Cần Thơ

*Tác giả liên hệ (Corresponding author): kimquyen929@gmail.com

Thông tin chung (Article Information)

Nhận bài (Received): 18/04/2024

Sửa bài (Revised): 04/07/2024

Duyệt đăng (Accepted): 05/08/2024

Title: The influence of the vacancy and the external electric field in the electronic structure and the thermoelectric of monolayer armchair graphene nanoribbons

Author(s): Nguyen Thi Kim Quyên^{1,2*},
Pham Nguyen Huu Hanh³ and Vu
Thanh Tra⁴

Affiliation(s): ¹Kien Giang University;
^{2,4}Can Tho University; ³Thoi Thuan
Secondary & High School, Can Tho

TÓM TẮT

Trong nghiên cứu này, cấu trúc armchair graphene đơn lớp nanoribbons (AGNRs) dưới ảnh hưởng của khuyết và tái cấu trúc tạo thành vòng 5-9 được đưa vào tính toán. Phương pháp gắn đúng liên kết mạnh (TB) được sử dụng để khảo sát cấu trúc vùng năng lượng của vật liệu khi không có và có sự xuất hiện của điện trường ngoài. Bên cạnh đó, bài toán nhiệt điện cũng được thực hiện dựa trên phương pháp luận hàm Green. Kết quả khảo sát với $M = 15$ cho thấy rằng, độ rộng vùng cấm của vật liệu được chia thành hai vùng cấm con nằm quanh mức Fermi. Tùy thuộc vào các vị trí khuyết khác nhau, độ rộng vùng cấm sẽ thay đổi. Đặc biệt, dưới tác động của điện trường song song, độ rộng vùng cấm của vật liệu được điều khiển, dẫn đến sự thay đổi mật độ trạng thái (DOS) và hệ số Seebeck S của vật liệu. Như vậy, sự kết hợp của khuyết và điện trường ngoài mang nhiều tiềm năng để đưa vật liệu graphene hướng đến những ứng dụng trong tương lai.

Từ khóa: Armchair graphene đơn lớp nanoribbons, cấu trúc vùng năng lượng, hệ số Seebeck, phương pháp gắn đúng liên kết mạnh

ABSTRACT

In this study, the monolayer graphene nanoribbons (AGNRs) under the influence of vacancy and reconstruction to form a 5-9 ring were calculated. The Tight binding (TB) method is used to investigate the energy bands of the material without and with the presence of an external electric field. Besides, the thermoelectric based on Green's function formalism is also examined. The results with $M = 15$ show that the band gap of the material is divided into two gaps located around the Fermi level. Depending on the different defect positions, the gap size is going to change. In particular, under the influence of the transverse electric field, the band gap of the material is controlled, leading to a change in density of states (DOS) and Seebeck coefficient S of the material. Therefore, the combination of defects and external electric fields has great potential to lead graphene materials toward future applications.

Keywords: Monolayer armchair graphene nanoribbons, band structure, Seebeck coefficient, tight binding model

1. GIỚI THIỆU

Với những tính chất đặc biệt của mình, các vật liệu carbon đã và đang thu hút sự quan tâm đặc biệt của các nhà khoa học, hứa hẹn đóng góp một vai trò quan trọng trong ứng dụng thực tế của lĩnh vực điện tử - bán dẫn trong tương lai. Các nghiên cứu trước đây đã chỉ ra rằng cấu trúc 2D hexagonal graphene đơn lớp có nhiều tính chất ưu việt như: vật liệu mỏng, trong suốt, độ linh động điện tử cao, phổ hấp thụ quang học đặc biệt đơn giản, cấu trúc điện tử độc đáo, ... (Zhang et al., 2005; Morozov et al., 2008; Meric et al., 2008; Du et al., 2008; Nair et al., 2008; Mak et al., 2008; Sheehy et al., 2009) và có tiềm năng rất lớn trong việc trở thành trung tâm cho sự phát triển của khoa học trong tương lai. Trong đó, công nghệ bán dẫn – transistor và công nghệ nhiệt điện là hai trong các lĩnh vực đang rất cần và mong đợi ứng dụng bởi vật liệu tiềm năng này. Tuy nhiên, đối với hexagonal graphene đơn lớp, độ rộng vùng cấm gần bằng không (Liu et al., 2009; Novoselov et al., 2012) dẫn đến việc phát triển các thiết bị điện tử dựa trên vật liệu này gặp nhiều hạn chế. Các linh kiện chế tạo từ vật liệu này sẽ hoạt động kém hiệu quả với việc điều khiển dòng on/off của vật liệu. Do đó, nếu như việc khắc phục hạn chế của vật liệu này thành công, tức là thành công trong việc mở độ rộng vùng cấm của vật liệu, thì việc khảo sát đặc trưng dẫn và các tính chất khác nhau của vật liệu để đưa chúng vào ứng dụng là hoàn toàn thuận lợi. Vì vậy, các nghiên cứu đã được tiến hành với các phương pháp khác nhau nhằm mở rộng vùng cấm của vật liệu, như cắt tấm graphene thành cấu trúc một chiều (Melinda et al., 2007; Chen et al., 2007; Stampfe et al., 2009), sử dụng một vài lớp graphene (Ohta et al., 2006; Wang et al., 2016), pha tạp (Zanella et al., 2008), sử dụng điện trường (Yu et al., 2009; Vu et al., 2016; Vu et al., 2017; Vu et al., 2018) hoặc biến dạng cơ học (Ni et al., 2008),... Đặc biệt, việc sử dụng khuyết cũng được đưa vào sử dụng như tác nhân kích thích để điều khiển trạng thái dẫn của vật liệu (Topsakal et al., 2008; Sukhbir et al., 2020; Sahan et al., 2020). Tuy nhiên, các nghiên cứu về lĩnh vực này chủ yếu dựa trên phương pháp DFT với việc tối ưu thông qua các phần mềm chuyên dụng điển hình như Atomistix ToolKit (ATK) và Vienna ab initio simulation package (VASP). Việc khảo sát tính chất điện tử của vật liệu thông qua phương pháp gần đúng liên kết mạnh dường như còn khá khiêm tốn. Do đó, với mong muốn góp phần hoàn thiện hơn bức tranh về tính chất của vật liệu mới này bằng việc sử dụng phương

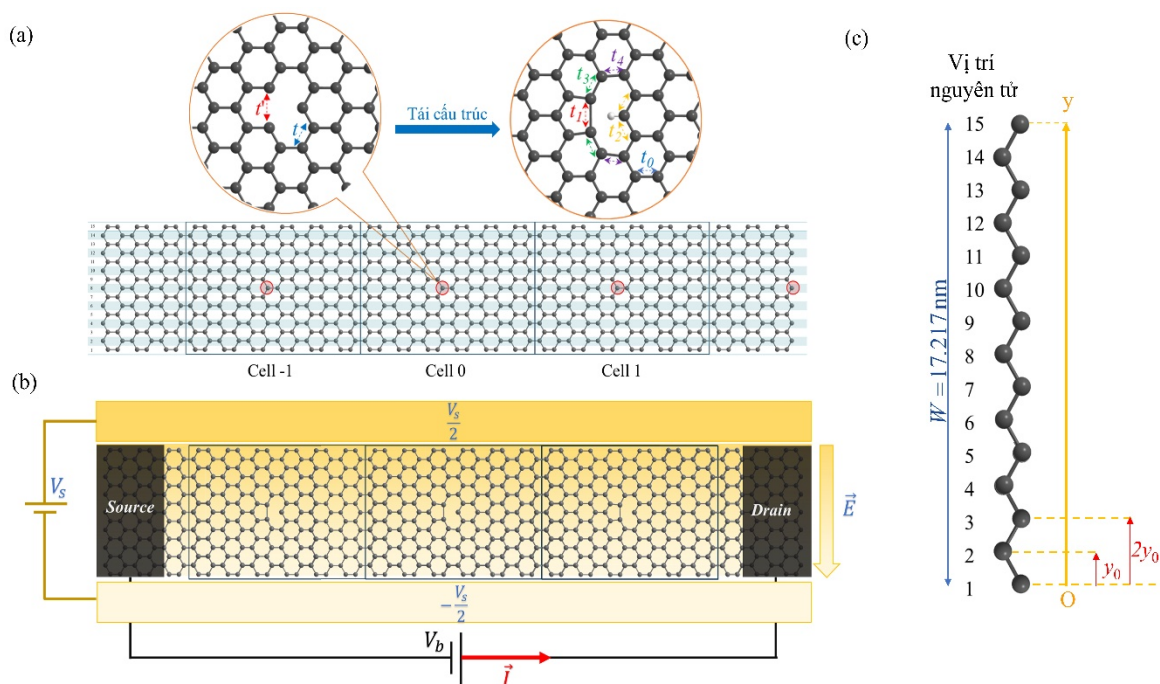
pháp gần đúng liên kết mạnh, đồng thời đề xuất một phương pháp mới trong việc lựa chọn để điều khiển độ rộng vùng cấm của vật liệu, nghiên cứu hướng đến khảo sát tính chất điện tử của graphene nanoribbons dưới ảnh hưởng đồng thời của khuyết và điện trường ngoài.

Cụ thể, trong nghiên cứu này, phương pháp gần đúng liên kết mạnh được sử dụng để tính toán và xây dựng mô hình khảo sát cấu trúc vùng năng lượng của vật liệu trong điều kiện khuyết và có tái cấu trúc tạo thành vòng 5-9. Đồng thời, kết quả nghiên cứu trước đó của Sahan et al. (2020) được so sánh với kết quả thu được để khẳng định tính đúng đắn của mô hình, cũng như từ đó đưa ra bộ tham số cấu trúc của vật liệu cho trường hợp này. Bên cạnh đó, bộ tham số được sử dụng để phát triển tính toán, khảo sát ảnh hưởng của các vị trí khuyết khác nhau lên đặc trưng dẫn của vật liệu; đồng thời kết hợp với điện trường ngoài để cho thấy ảnh hưởng đồng thời của khuyết và điện trường ngoài lên tính chất điện tử và nhiệt điện của vật liệu, từ đó đưa ra những dự đoán về khả năng ứng dụng vật liệu trong tương lai dưới tác nhân của kích thích ngoài.

2. MÔ HÌNH VÀ PHƯƠNG PHÁP TÍNH TOÁN

2.1. Mô hình

Trong mô hình khuyết một nguyên tử và không tái cấu trúc, tám AGNRs được chia thành các ô với độ dài tám ribbons là $W=17.217$ nm và được quy ước các tham số tương tác như thể hiện trên hình 1(a). Cụ thể, năng lượng tương tác trong mô hình này bao gồm năng lượng t là tương tác giữa 2 nguyên tử gần nhau nhất và tương tác mới được hình thành giữa hai nguyên tử thẳng hàng là t' . Dựa trên phương pháp gần đúng liên kết mạnh, mô hình tính toán được xây dựng theo 3 ô lân cận nhau. Đó là ô (0) và ô lân cận trái /phải là $(-1)/(1)$. Trong đó, mỗi ô gồm 12 zigzag line thành phần. Tiến hành tương tự để xây dựng mô hình cho trường hợp khuyết một nguyên tử và có tái cấu trúc tạo thành vòng 5-9. Các năng lượng tương tác mới hình thành được đặt là t_1 , t_2 , t_3 , và t_4 , thể hiện trên Hình 1(a). Ngoài ra, mô hình tác động của điện trường song song lên tám AGNRs cũng được xây dựng, như thể hiện trên hình 1(b). Trong nghiên cứu này, các vị trí sai hỏng xảy ra tại zigzag line thứ 6 lần lượt với các nguyên tử có vị trí tương ứng sẽ được tập trung khảo sát như được thể hiện trong Hình 1(c).



Hình 1. Mô hình tính toán và các tham số tương tác của cấu trúc AGNRs cho các trường hợp: (a) khuyết một nguyên tử không tái cấu trúc và khuyết một nguyên tử có tái cấu trúc; (b) mô hình tác động của điện trường song song lên tấm vật liệu; (c) vị trí các nguyên tử theo chiều rộng ribbons và khoảng cách từ gốc tọa độ đến vị trí tương ứng.

2.2. Phương pháp tính toán

Phương pháp gần đúng liên kết mạnh dưới dạng ma trận được sử dụng để xây dựng mô hình và khảo sát cấu trúc vùng năng lượng của AGNRs, khi đó, cấu trúc vùng năng lượng của vật liệu được tính toán dựa trên biểu thức (1) (Cresti et al., 2008):

$$H = \sum_i U_i |i\rangle\langle i| - \sum_{ij} t_{ij} |i\rangle\langle j|. \quad (1)$$

Trong đó:

- t_{ij} : năng lượng tương tác giữa nguyên tử thứ i và nguyên tử thứ j .

U_i : tổng năng lượng của nguyên tử ở vị trí thứ i , bao gồm năng lượng nội tại của nguyên tử và thế nhiễu loạn. Năng lượng nội tại của các nguyên tử carbon được chọn bằng 0, năng lượng tại vị trí i sẽ được biểu diễn bởi năng lượng do điện trường song song gây ra theo từng vị trí tương ứng: $U_i = -eV_i$, với $V_i = -V_s / 2 + E_{//} \cdot y_i$, V_s là điện thế song song, $E_{//}$ là tổng giá trị điện trường song song, y_i là khoảng cách từ gốc tọa độ đến nguyên tử thứ i (theo phương y) được biểu diễn trong Hình 1(c) và có giá trị tương ứng trong Bảng 1.

Bảng 1. Khoảng cách từ gốc tọa độ đến nguyên tử thứ i , với $y_0 = \frac{a\sqrt{3}}{2}$

i	1	2	3	4	5	6	...	...	M
$y(i)$	$0y_0$	$1y_0$	$2y_0$	$3y_0$	$4y_0$	$5y_0$	...	...	$(M-1)y_0$

Phổ mật độ trạng thái của vật liệu được tính toán dựa trên phương pháp luận hàm Green (Data, 2005), cụ thể như sau:

$$\text{với } G = [(E + i\eta).I - H]^{-1}.$$

Bên cạnh đó, bài toán nhiệt điện cũng được thực hiện dựa trên hàm Green không cân bằng, khi đó hệ số S của vật liệu ứng với thế hóa học μ và nhiệt độ T được tính toán dựa theo (D'Agosta, 2013) (3):

$$\begin{cases} S(\mu, T) = \frac{1}{eT} \cdot \frac{L_1(\mu, T)}{L_0(\mu, T)} \\ L_n(\mu, T) = \frac{2}{h} \int_{-\infty}^{+\infty} dE T_e(E) \cdot (E - \mu)^n \cdot \frac{-\partial f_e(E, \mu, T)}{\partial E} \end{cases} \quad (3)$$

Trong đó, $T_e(E)$ là hệ số truyền qua của electron, được định nghĩa dựa trên hình thức luận hàm Green (Lewenkopf et al., 2013; Data, 2005):

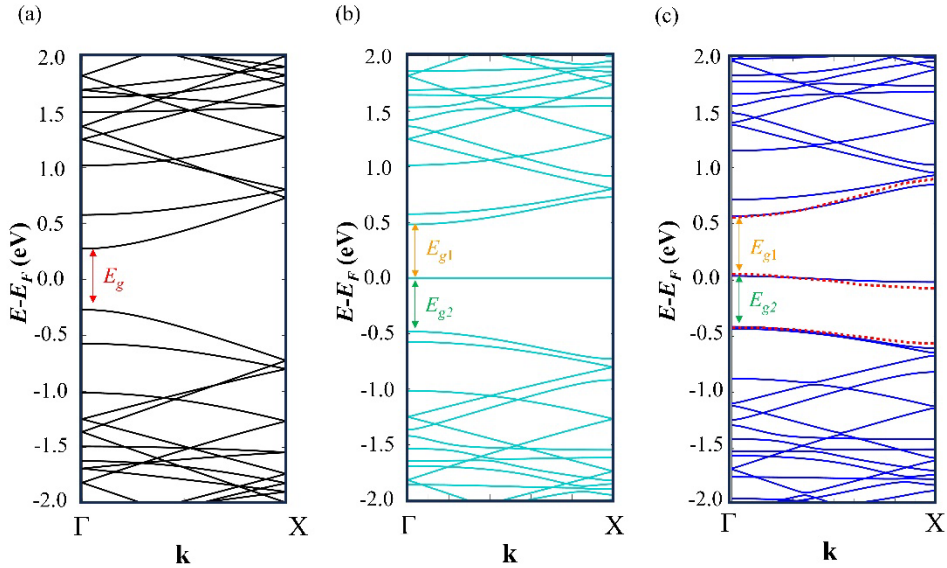
$$\begin{cases} T_e(E) = \text{trace}(\Gamma_L G_D \Gamma_R G_D) \\ \Gamma_{L(R)} = i(\Sigma_{L(R)} - \Sigma_{R(L)}) \\ G_D = [E - H_D - \Sigma_L - \Sigma_R] \end{cases} \quad (4)$$

- $\Gamma_{L(R)}$: hàm tương tác bề mặt giữa công cực trái (phải) và vùng hoạt động của thiết bị.
- G_D : hàm Green vùng hoạt động của thiết bị.
- $f_e(E, \mu, T)$: hàm phân bố Fermi-Dirac.

3. KẾT QUẢ VÀ THẢO LUẬN

3.1. Khảo sát cấu trúc vùng năng lượng của AGNRs với ảnh hưởng của khuyết một nguyên tử

Để cho thấy ảnh hưởng của khuyết một nguyên tử lên cấu trúc vùng năng lượng của AGNRs, tính toán được thực hiện cho hai trường hợp: (i) khuyết một nguyên tử và không có tái cấu trúc; (ii) khuyết một nguyên tử và có tái cấu trúc để tạo thành vòng 5-9, kết quả được thể hiện cụ thể trên Hình 2.



Hình 2. Cấu trúc vùng năng lượng của AGNRs trong các trường hợp: (a) mô hình hoàn hảo; (b) mô hình khuyết một nguyên tử; (c) mô hình khuyết một nguyên tử và tái cấu trúc tạo thành vòng 5-9 (đường màu xanh), kết quả nghiên cứu trước (Sahan et al., 2020) (đường màu đỏ).

Trên Hình 2(a), khảo sát cấu trúc vùng năng lượng của AGNRs với độ rộng ribbons ứng với $M = 15$, thu được độ rộng vùng cấm của vật liệu $E_{gap} = 543.6$ meV, chứng tỏ với $M = 15$, vật liệu thể hiện tính chất bán dẫn – điện môi, điều này hoàn toàn phù hợp với những nghiên cứu trước đó (Duong et al., 2021). Dưới ảnh hưởng của khuyết một nguyên tử, độ rộng vùng cấm của vật liệu được tách ra thành hai vùng cấm nhỏ, nằm gần mức năng lượng Fermi,

như thể hiện trên Hình 2(b). Kết quả thu được tương tự cho trường hợp khuyết một nguyên tử và tái cấu trúc tạo thành vòng 5-9, thể hiện trên Hình 2(c). So sánh độ rộng vùng cấm của mô hình hoàn hảo và các mô hình khuyết, thể hiện trên bảng 2, độ rộng vùng cấm của AGNRs đã được thu hẹp lại dưới sự xuất hiện của khuyết, dự đoán khả năng điều khiển trạng thái dẫn của vật liệu với tác nhân là khuyết nguyên tử.

Bảng 2. Độ rộng vùng cấm của AGNRs khi khảo sát $M = 15$ với các trường hợp khác nhau

E_{gap}	Mô hình hoàn hảo	Mô hình khuyết một nguyên tử	Mô hình khuyết và tái cấu trúc	Kết quả nghiên cứu trước đó của mô hình khuyết và tái cấu trúc (Sahan et al., 2020)
E_{g1} (meV)	543.6	481.6	532.7	505.1
E_{g2} (meV)		481.6	452.2	474.7

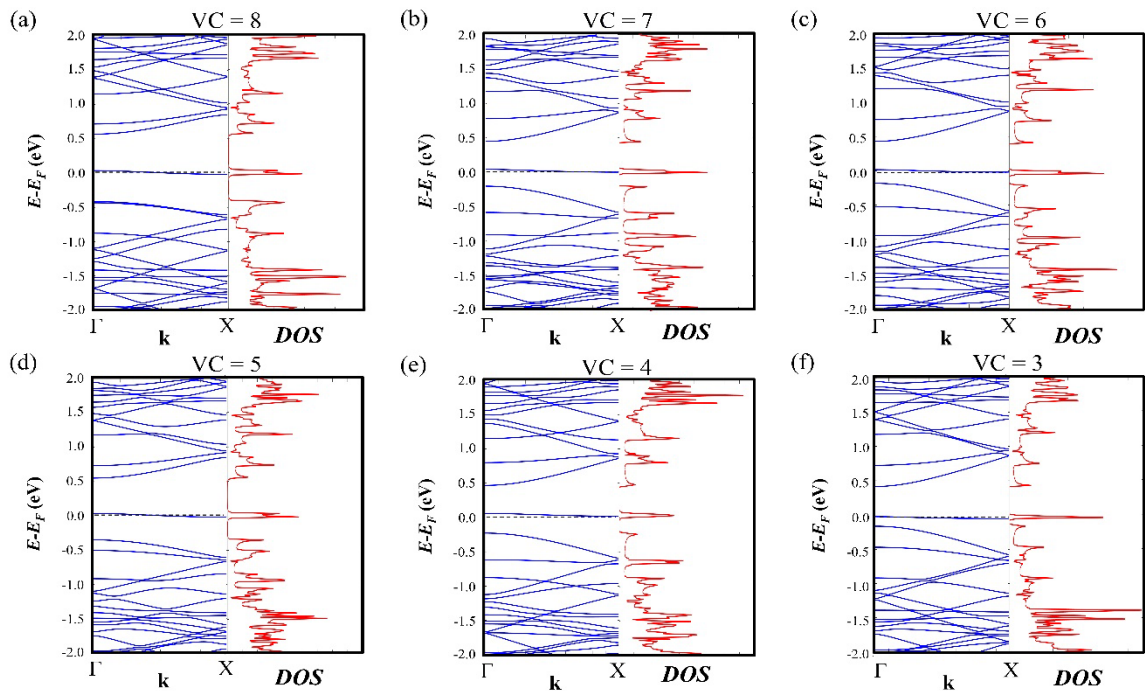
Đặc biệt, kết quả thu được ở mô hình tái cấu trúc gần như tương đồng với nghiên cứu trước đó của Sahan et al., (2020). Do đó, mô hình đã xây dựng và đưa ra bộ tham số cấu trúc để sử dụng tính toán cho cấu trúc AGNRs khuyết, thể hiện trên bảng 3. Đồng thời, theo những nghiên cứu trước đó, mô hình khuyết một nguyên tử và không tái cấu trúc tồn tại không bền, do đó, ở những phần sau, nghiên cứu sẽ thực hiện khảo sát cho trường hợp tái cấu trúc và tạo thành vòng 5-9.

Bảng 3. Tham số cấu trúc sử dụng cho mô hình AGNRs khuyết và tái cấu trúc tạo thành vòng 5-9

t_0	t_1	t_2	t_3	t_4
-2.45	-0.65	$1 * t_0$	$1 * t_0$	$1 * t_0$

3.2. Ảnh hưởng của các vị trí khuyết lên tính chất điện tử của AGNRs

Với sự xuất hiện của khuyết một nguyên tử và tạo thành vòng 5-9, cấu trúc vùng năng lượng của AGNRs đã có sự thay đổi đáng kể ở quanh mức năng lượng Fermi. Do đó, để thấy rõ hơn ảnh hưởng của từng vị trí khuyết khác nhau lên cấu trúc vùng năng lượng cũng như tính chất điện tử của vật liệu, các vị trí khuyết khác nhau được tiến hành khảo sát là VC = 3, 4, 5, 6, 7, 8, ứng với độ dài ribbons $M = 15$. Kết quả thu được thể hiện trên hình 3.



Hình 3. Cấu trúc vùng năng lượng (đường màu xanh) và DOS (đường màu đỏ) của AGNRs ứng với các vị trí khuyết khác nhau là VC = 8, 7, 6, 5, 4, 3, ứng với (a), (b), (c), (d), (e), (f).

Khảo sát ảnh hưởng của các vị trí khuyết khác nhau, kết quả cho thấy rằng dạng của các mức năng lượng trong cấu trúc vùng của vật liệu dường như không thay đổi khi ta thay đổi các vị trí khuyết. Tuy nhiên, độ rộng vùng cấm E_{gap1} và E_{gap2} có sự thay

đổi rõ ràng ở các vị trí khuyết khác nhau. Cụ thể là, với độ rộng ribbons $M = 15$, tại vị trí khuyết trung tâm, ứng với VC = 8, độ rộng vùng cấm thu được là lớn nhất, ứng với các giá trị E_{gap1} và E_{gap2} là 532.7 meV và 452.2 meV, như thể hiện trên Hình 3(c).

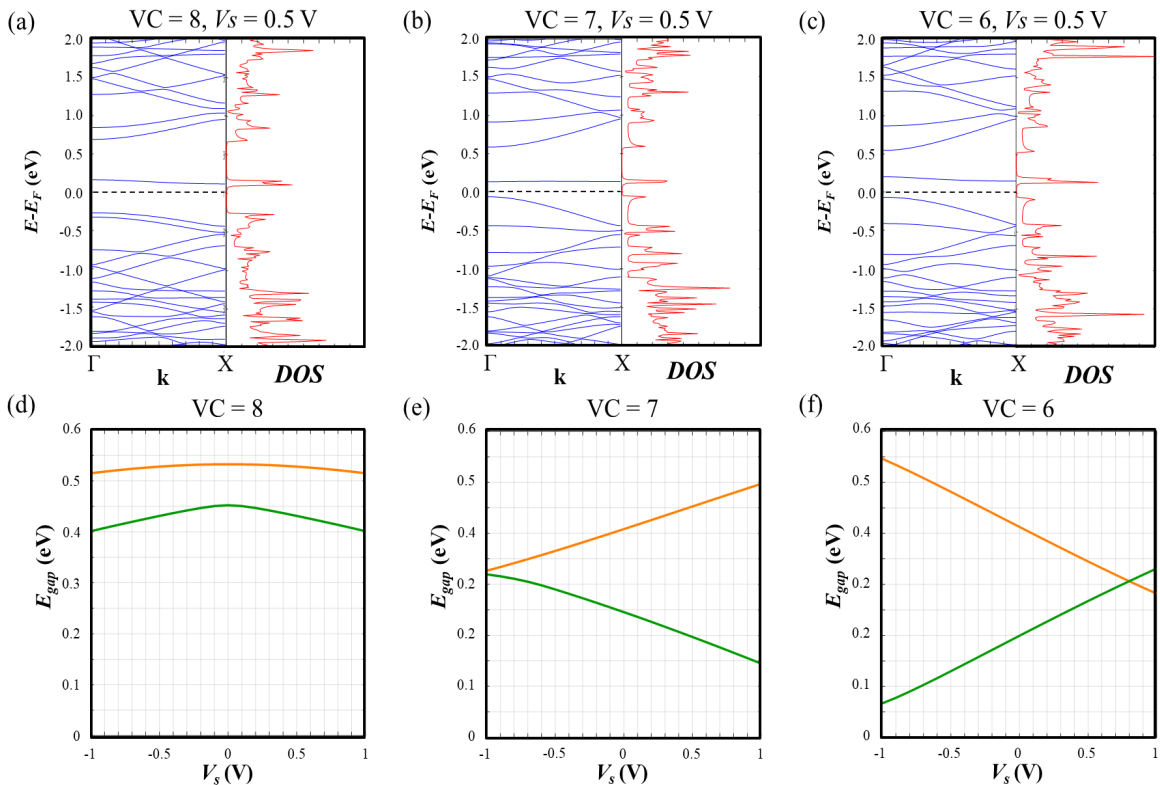
Trong khi đó, độ rộng vùng cấm thu được tại vị trí VC = 3 là nhỏ nhất, ứng với giá trị 439.1 meV và 140.6 meV của E_{gap1} và E_{gap2} , thể hiện trên Hình 3(f). Như vậy, kết quả trên đã chỉ ra rằng, đối với tấm AGNRs có độ dài ribbons tương ứng với $M = 15$ thì ảnh hưởng của khuyết tại vị trí tâm tấm ribbons là ít nhất, càng ra gần biên thì ảnh hưởng của khuyết càng mạnh mẽ. Bên cạnh đó, trên Hình 3(a) và 3(f), kết quả khảo sát DOS cũng cho thấy rằng, tại mức năng lượng Fermi ứng với vị trí khuyết tại biên thì điện tử tập trung cao nhất, ứng với vị trí khuyết trung tâm thì điện tử tập trung ít nhất. Điều này có nghĩa rằng với vị trí khuyết tại biên, khả năng chuyển đổi trạng thái của vật liệu sẽ thuận lợi hơn so với các vị trí khuyết khác, và khả năng chuyển trạng thái của vật liệu xảy ra khó nhất khi ta đặt vị trí khuyết ở trung tâm của tấm ribbons.

Bên cạnh đó, khi khảo sát các vị trí khuyết khác nhau, ta nhận thấy rằng cấu trúc vùng và tính chất điện tử của vật liệu có xu hướng thay đổi theo chu kỳ 3p (với p là số nguyên). Cụ thể là sự thay đổi diễn

ra gần như giống nhau tại các cặp vị trí khuyết VC = 8 và VC = 5, tương ứng với Hình 3(a) - 3(d); tại vị trí VC = 7 và VC = 4, ứng với Hình 3(b) - 3(e) và tại vị trí VC = 6 và VC = 3, ứng với Hình 3(c) - 3(f). Do đó, để khảo sát ảnh hưởng đồng thời của khuyết và điện trường ngoài lên sự thay đổi trạng thái dẫn của vật liệu, 3 đại diện ứng với 3 nhóm khuyết được tiến hành khảo sát là VC = 8, VC = 7 và VC = 6. Kết quả thu được thể hiện trên Hình 4.

3.3. Ảnh hưởng đồng thời của khuyết và điện trường ngoài lên tính chất điện tử của AGNRs

Hình 4 đưa ra bức tranh đầy đủ về sự thay đổi trong cấu trúc vùng, tính chất điện tử và độ rộng vùng cấm của vật liệu dưới sự ảnh hưởng đồng thời của khuyết và điện trường ngoài. Cụ thể là ở Hình 4(a) – (c) thể hiện cấu trúc vùng năng lượng và DOS của AGNRs ứng với các vị trí khuyết khác nhau tại $V_s = 0.5$ V; Hình 4(d) – (f) cho thấy ảnh hưởng của các giá trị điện thế V_s khác nhau lên độ rộng vùng cấm của vật liệu.



Hình 4. Cấu trúc vùng năng lượng (đường màu xanh) và DOS (đường màu đỏ) của AGNRs với $V_s = 0.5$ V tại các vị trí khuyết khác nhau VC = 8, VC = 7 và VC = 6 ứng với các hình (a) – (c); Độ rộng vùng cấm được vẽ như hàm của các giá trị V_s ứng với các vị trí khuyết tương ứng (d) – (f).

Kết quả trên hình 4(a) – (c) cho thấy rằng với sự xuất hiện của điện trường ngoài, độ rộng vùng cấm của vật liệu được thay đổi một cách mạnh mẽ, tùy theo các vị trí khuyết khác nhau. Trong đó, khảo sát với $V_s = 0.5$ V ứng với vị trí khuyết là $VC = 8$, các độ rộng vùng cấm E_{gap1} và E_{gap2} giảm còn 528.0 meV và 431.2 meV. Tuy nhiên, kết quả thu được là khác cho vị trí khuyết $VC = 7$ và $VC = 6$. Cụ thể là dưới tác dụng của điện trường ngoài, đối với vị trí khuyết $VC = 7$, độ rộng vùng cấm E_{gap1} là tăng còn E_{gap2} là giảm so với khi chưa áp trường. Điều ngược lại xảy ra cho trường hợp của khuyết tại vị trí $VC = 6$. Kết quả một lần nữa cho thấy rằng thay đổi trong trạng thái dẫn của mô hình khuyết là không giống nhau tại các vị trí khuyết khác nhau, đồng thời sự thay đổi này sẽ tuân theo quy luật 3p như đã được đề cập trước đó.

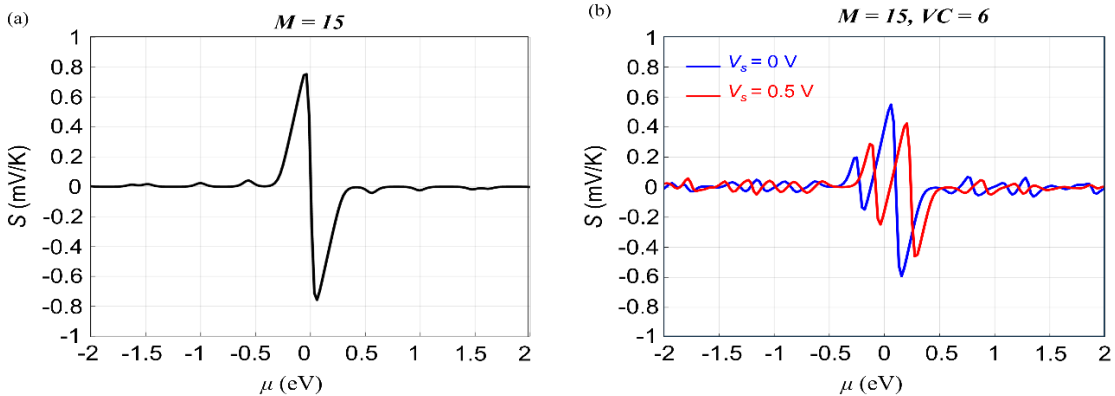
Đặc biệt, khi khảo sát độ rộng vùng cấm của vật liệu ứng với các vị trí khuyết và các giá trị khác nhau của điện thế V_s , kết quả thu được là hoàn toàn thú vị. Trong đó, tại vị trí khuyết trung tâm, ứng với $VC = 8$, điện trường song song sẽ có tác dụng thu hẹp độ rộng vùng cấm của vật liệu, tuy nhiên sự thu hẹp này vẫn không đáng kể, thể hiện trên Hình 4(d). Hay nói cách khác, vị trí trung tâm của tấm ribbons khó để có thể lựa chọn kích thích trong việc điều khiển trạng thái dẫn của vật liệu. Tuy nhiên, độ rộng vùng cấm của vật liệu có thể được thay đổi mạnh mẽ tại các vị trí biên, ứng với nhóm của vị trí khuyết là $VC = 7$ và $VC = 6$. Tùy theo giá trị điện thế áp vào, độ rộng vùng cấm của vật liệu có thể giảm dần về gần đến 0 (như thể hiện trên Hình 4(e) và (f)), điều này đồng nghĩa với việc vật liệu có thể chuyển dần trạng thái bán dẫn – điện môi sang kim loại dưới các giá trị điện trường thích hợp.

Như vậy, dưới sự ảnh hưởng đồng thời của khuyết và điện trường ngoài, tính chất điện tử của

vật liệu được thay đổi đáng kể, tùy thuộc vào vị trí khuyết và giá trị điện thế áp vào mà việc điều khiển trạng thái dẫn của AGNRs hoàn toàn có thể được chủ động. Đặc biệt, để cho thấy rõ hơn ảnh hưởng của hai tác nhân này lên trạng thái dẫn của vật liệu, hệ số Seebeck S , đặc trưng cho tính chất nhiệt điện của vật liệu được tiến hành khảo sát, kết quả thu được thể hiện trên Hình 5.

3.4. Tính chất nhiệt điện của AGNRs dưới tác động đồng thời của khuyết và điện trường ngoài

Trên Hình 5, hệ số S của AGNRs được khảo sát tại nhiệt độ phòng ứng với hai mô hình là mô hình hoàn hảo và mô hình khuyết có tái cấu trúc. Kết quả cho thấy rằng trong mô hình hoàn hảo, với độ rộng ribbons tương ứng với $M = 15$, hệ số S cực đại thu được vào khoảng 0.75 mV/K, như thể hiện trên Hình 5(a). Dưới sự tồn tại của khuyết và tái cấu trúc, độ rộng vùng cấm của vật liệu giảm, tách ra thành 2 vùng cấm nằm xung quanh mức Fermi, do đó, hệ số S của vật liệu cũng giảm và tách thành hai cực đại dương với giá trị lần lượt là 0.55 mV/K và 0.2 mV/K và hai cực đại âm với giá trị là -0.52 mV/K và -0.15 mV/K (đường màu xanh, hình 5(b)). Điều này cho thấy mối liên hệ giữa độ rộng vùng cấm và hệ số S của vật liệu, hoàn toàn phù hợp với kết quả nghiên cứu trước đó (Mazzamuto et al., 2011). Đặc biệt, với sự kết hợp của điện trường song song, các giá trị này thay đổi rõ rệt, cụ thể đối với các đỉnh dương, các giá trị thu được lần lượt là 0.42 mV/K và 0.29 mV/K ứng với các thể hóa học là 0.2 eV và -0.12 eV; đối với cực đại âm, các giá trị nhận được là -0.46 mV/K và -0.2 mV/K, ứng với thể hóa học là 0.3 eV và -0.06 eV (đường màu đỏ, Hình 5(b)). Như vậy, có thể thấy rằng, dưới ảnh hưởng đồng thời của khuyết và điện trường song song, hệ số S của vật liệu thay đổi một cách mạnh mẽ, dự đoán khả năng ứng dụng của vật liệu trong tương lai.



Hình 5. Hệ số S tại $T = 300$ K của AGNRs ứng với $M = 15$ với các mô hình: (a) Mô hình hoàn hảo; (b) Mô hình khuyết tái cấu trúc và điện trường ngoài.

4. KẾT LUẬN VÀ ĐỀ XUẤT

Sử dụng phương pháp gần đúng liên mạnh và phương pháp luận hàm Green, cấu trúc vùng năng lượng, tính chất điện tử và tính chất nhiệt điện của AGNRs đã được tiến hành khảo sát dưới tác dụng đồng thời của khuyết và điện trường ngoài. Kết quả cho thấy rằng, dưới ảnh hưởng của khuyết, tính chất điện tử của vật liệu được thay đổi, độ rộng vùng cấm của vật liệu tách thành hai vùng cấm con nằm quanh mức Fermi. Trong đó, ảnh hưởng của vị trí khuyết ở tâm tấm ribbons là ít nhất, càng ra xa biên, ảnh hưởng của khuyết càng mạnh mẽ. Đặc biệt, với việc tách thành hai vùng cấm con, hệ số Seebeck của vật

liệu thu được cũng thay đổi thành hai giá trị cực đại dương và hai giá trị cực đại âm tương ứng. Như vậy, dưới tác động của khuyết và điện trường ngoài, độ rộng vùng cấm và hệ số Seebeck của vật liệu được điều khiển, từ đó dẫn đến tính chất truyền dẫn và tính chất nhiệt điện của vật liệu thay đổi một cách thú vị, dự đoán những tiềm năng ứng dụng trong tương lai dưới các tác nhân kích thích này.

LỜI CẢM ƠN

Nghiên cứu được hỗ trợ kinh phí của Trường Đại học Kiên Giang cho đề tài cấp cơ sở, mã số A2023-KTCN-07

TÀI LIỆU THAM KHẢO

- Cresti, A., Grosso, G., & Parravicini, G. P. (2008). Valley-valve effect and even-odd chain parity in p-n graphene junctions *Physical Review B*, 77(23), 233402. <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.77.233402>
- Chen, Z., Lin, Y., Rooks, M. J., & Avouris, P. (2007). Graphene nano-ribbon electronics. *Physica E: Low-dimensional Systems and Nanostructures*, 40, 228-232. <https://doi.org/10.1016/j.physe.2007.06.020>
- D'Agosta, R. (2013). Towards a dynamical approach to the calculation of the figure of merit of thermoelectric nanoscale devices. *Physical Chemistry Chemical Physics*, 15, 1758-1765. <https://doi.org/10.1039/C2CP42594G>
- Datta, S. (2005). *Quantum transport: Atom to transistor*. Cambridge University Press.
- Du, X., Skachko, I., Barker, A., & Andrei, A. Y., (2008). Approaching ballistic transport in suspended graphene. *Nature Nanotechnology*, 3(8), 491-495. <https://doi.org/10.1038/nnano.2008.199>
- Duong, N. L. T., Khoa, L. D., Trang, T. Q., Tuyen, H. T. B., Quyen, N. T. K., Loan, P. T. K., & Tra, V. T. (2021). Electronic Properties of Single-Layer and Bilayer Graphene Nanoribbons. *Physica Status Solidi (B)*, 260(4), 2200432. <http://dx.doi.org/10.1002/pssb.202200432>
- Han, M. Y., Özyilmaz, B., Zhang, Y., & Kim, P. (2007). Band-gap engineering of graphene nanoribbons. *Physical Review Letters*, 98, 206805. <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.98.206805>
- Lewenkopf, C. H. & Mucciolo, E. R. (2013). The recursive Green's function method for graphene. *Journal of Computational Electronics*, 12(2), 203-231. <http://dx.doi.org/10.1007/s10825-013-0458-7>
- Liu, W., Wang, Z. F., Shi, Q. W., Yang, J., & Liu, F. (2009). Band-gap scaling of graphene nanohole superlattices. *Physical Review B*, 80(23), 233405. <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.80.233405>
- Mak, K. F., Sfeir, M. Y., Wu, Y., Lui, C. H., Misewich, J. A., & Heinz, T. F. (2008). Measurement of the optical conductivity of graphene. *Physical Review Letters*, 101(19), 196405. <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.101.196405>
- Mazzamuto, F., Nguyen, V. H., Apertet, Y., Caer, C., Chassat, C., Sait-Martin, J., Dollfus, P. (2011). Enhanced thermoelectric properties in graphene nanoribbons by resonant tunneling of electrons. *Physical Review B*, 83, 235426. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.83.235426>
- Meric, I., Han, M. Y., Young, A. F., Özyilmaz, B., Kim, P., & Shepard, K. L. (2008). Current saturation in zero-bandgap, top-gated graphene field-effect transistors. *Nature Nanotechnol*, 3(11), 654-659. <https://doi.org/10.1038/nnano.2008.268>
- Morozov, S. V., Novoselov, K. S., Katsnelson, M. I., Schedin, F., Elias, D. C., Jaszczak, J. A., & Geim, A. K., (2008). Giant intrinsic carrier mobilities in graphene and its bilayer. *Physical Review Letters*, 100(1), 016602. <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.100.016602>
- Nair, R. R., Blake, P., Grigorenko, A. N., Novoselov, K. S., Booth, T. J., Stauber, T., Peres, N. M. R., & Geim, A. K. (2008). Fine structure constant defines visual transparency of graphene. *Science*, 320(5881), 1308. <https://doi.org/10.1126/science.1156965>
- Ni, Z. H., Yu, T., Lu, Y. H., Wang, Y. Y., Feng, Y. P., & Shen, Z. X., (2008). Uniaxial strain on graphene: Raman spectroscopy study and band-gap opening. *ACS Nano*, 2(11), 2301-2305. <https://doi.org/10.1021/nn800459e>
- Novoselov, K. S., Fal'ko, V. I., Colombo, L. P. M., Gellert, P. R., Schwab, M. G., & Kim, K. S.

- (2012). A roadmap for graphene. *Nature*, 490(7419), 192-200.
<http://dx.doi.org/10.1038/nature11458>
- Ohta, T., Bostwick, A., Seyller, T., Horn, K., & Rotenberg, E. (2006). Controlling the electronic structure of bilayer graphene. *Science*, 313, 951–954.
<https://doi.org/10.1126/science.1130681>
- Sahan, Z., & Berber, S. (2020). Monovacancy in achiral and chiral graphene nanoribbons. *Computational Condensed Matter*, 23(5696), e00471.
<http://dx.doi.org/10.1016/j.cocom.2020.e00471>
- Sakhace-Pour, A. (2009). Elastic properties of single-layered graphene sheet. *Solid State Commun*, 149(1), 91-95.
<http://dx.doi.org/10.1016/j.ssc.2008.09.050>
- Sheehy, D. E. & Schmalian, J. (2009). Optical transparency of graphene as determined by the fine-structure constant. *Physical Review B*, 80(19), 193411.
<https://doi.org/10.1103/PhysRevB.80.193411>
- Shirodkar, S. N., & Waghmare, U. V (2012). Electronic and vibrational signatures of Stone-Wales defects in graphene: First-principles analysis. *Physical Review B*, 86, 165401
<https://doi.org/10.1103/PhysRevB.86.165401>
- Stampfer, C., Güttinger, J., Hellmüller, S., Molitor, F., Ensslin, K., & Ihn, T. (2009). Energy gaps in etched graphene nanoribbons. *Physical Review Letters*, 102, 056403.
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.102.056403>
- Sukhbir, S., & Inderpreet, K (2020). Bandgap engineering in armchair graphene nanoribbon of zigzag-armchair-zigzag based Nano-FET: A DFT investigation. *Physica E*, 118, 113960.
<https://doi.org/10.1016/j.physe.2020.113960>
- Topsakal, M., Aktürk, E., Sevinçli, H & Ciraci, S (2008). First-principles approach to monitoring the band gap and magnetic state of a graphene nanoribbon via its vacancies. *Physical Review B*, 78, 235435.
<http://doi.org/10.1103/PhysRevB.78.235435>
- Vu, T. T., & Tran, V. T. (2016). Electric gating induced bandgaps and enhanced Seebeck effect in zigzag bilayer graphene ribbons. *Semiconductor Science and Technology*, 31(8), 085002.
<https://iopscience.iop.org/article/10.1088/0268-1242/31/8/085002/meta>
- Vu, T. T., Nguyen, T. K. Q., Huynh, A. H., Phan, T. K. L., & Tran, V. T. (2017). Modulation of bandgap in bilayer armchair graphene ribbons by tuning vertical and transverse electric fields. *Superlattices Microstructure*, 102, 451-458.
<http://dx.doi.org/10.1016/j.spmi.2016.12.031>
- Vu, T. T., Nguyen, T. K. Q., Nguyen, T. M. T., Nguyen, V. C., & Tran, V. T. (2018). Enhancement of the Seebeck effect in bilayer armchair graphene nanoribbons by tuning the electric fields. *Superlattices and Microstructures*, 113, 616-622.
<https://doi.org/10.1016/j.spmi.2017.11.042>
- Wang, Z., Dong, J., Cui, Y., Eres, G., Timpe, O., Fu, Q., Ding, F., Schloegl, R., & Willinger, M. (2016). Stacking sequence and interlayer coupling in few-layer graphene revealed by in situ imaging. *Nature Communications*, 7, 13256.
<https://doi.org/10.1038/ncomms13256>
- Yu, Y., Zhao, Y., Ryu, S., Brus, L. E., Kim, K.S., & Kim, P. (2009). Tuning the graphene work function by electric field effect. *Nano Letters*, 9(10), 3430-3434.
<http://dx.doi.org/10.1021/nl901572a>
- Zanella, S., Guerini, S. B., Fagan, J., Filho, M., & Filho, A. G. S. (2008). Chemical doping-induced gap opening and spin polarization in graphene. *Physical Review B*, 77(7), 073404.
<https://doi.org/10.1103/PhysRevB.77.073404>
- Zhang, Y., Tan, Y., Stormer, H. L., & Kim, P. (2005). Experimental observation of the quantum Hall effect and Berry's phase in graphene. *Nature*, 438(7065), 201-204.
<http://dx.doi.org/10.1038/nature04235>