

单层石墨烯上单个钴磁性原子近藤效应的调控

石墨烯以其独特的线性能量色散关系、高载流子迁移率和优异的物理化学性质等在凝聚态物理及材料科学领域引起了广泛的研究兴趣，并有望在未来核心信息器件与电路中获得应用。近年来，中科院物理所/北京凝聚态物理国家实验室（筹）高鸿钧研究组在高质量石墨烯研究方面取得了一系列突破性进展，他们提出了基于表面外延的石墨烯生长技术，在 Ru(0001) 等金属表面获得高质量、大面积、连续的单晶石墨烯 [Chin. Phys. 16, 3151(2007); Adv. Mater. 21, 2777 (2009)]，并对其物理性质和结构调制进行了系列研究 [J. Am. Chem. Soc. 131, 14136(2009); Phys. Rev. Lett. 105, 219701 (2010); J. Phys.: Condens. Matter 22, 302001 (2010) (Cover Story)]。他们还首次提出了“原位非转移”的硅插层技术，成功地将该“高质量”的石墨烯“直接”置于硅材料上 [Appl. Phys. Lett. 100, 093101 (2012) (Cover story); 100, 083101 (2012); 102, 093106 (2013)]。

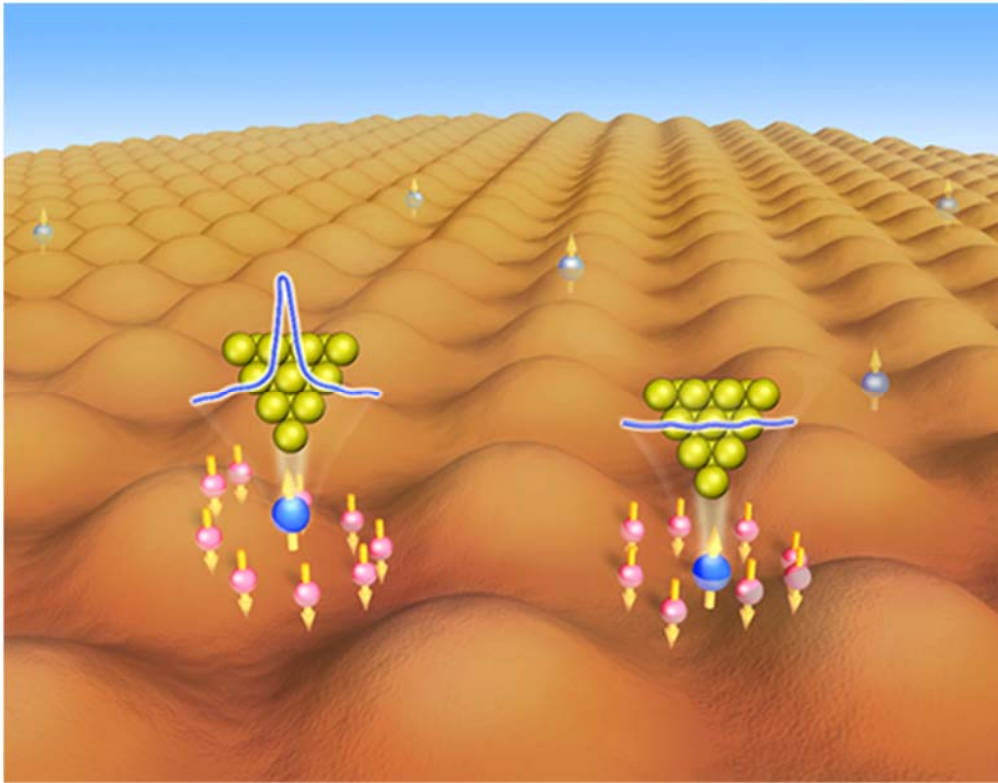
石墨烯的磁性可来源于其部分填充的电子态，如缺陷或边界态，且磁性比较弱。为获得基于石墨烯的自旋电子器件，许多理论工作致力于研究石墨烯上磁性杂质原子的自旋态。磁性杂质的局域自旋与传导电子强关联相互作用在低温 ($T \leq T_k$) 下可形成近藤 (Kondo) 现象，近藤温度 (T_k) 取决于磁性杂质与基底的耦合强度以及基底传导电子在费米面附近的态密度。自由状态的石墨烯由于在费米面附近电子态密度趋近于零而很难观察到近藤效应。很多理论预言可通过掺杂或加偏压等方式获得 n 型 (p 型) 石墨烯，调制其费米面附近的电子态密度，从而调制石墨烯上磁性原子的自旋态，有可能实现近藤效应。然而，实验上人们尝试了在很多不同的衬底上，都未有观测到石墨烯表面磁性杂质原子的近藤效应。

最近，该研究组的郭海明博士、任金东和武旭同学等利用极低温矢量磁场扫描隧道显微镜/扫描隧道谱 (STM/STS) 技术，以 Ru(0001) 单晶上的单层石墨烯为基底，通过其上外延石墨烯的周期性摩尔 (Moiré) 条纹结构来调制石墨烯的态密度和单个钴磁性原子的自旋，在实验上首次观测到了石墨烯上磁性原子的近藤效应，并深入研究了它的位置依赖关系以及形成机理。通过对基底上低温 (~ 20 K) 沉积的单原子钴的 STS 研究，他们发现只有在石墨烯摩尔周期结构的 atop 区域边界位置上吸附的钴原子，才会在费米面附近出现一个共振峰，变温和变磁场实验证明了该共振峰是由磁性杂质钴原子的近藤效应引起。此外，他们发现 atop 区域边界的不同位置会进一步调制近藤温度：紧邻 fcc 区域的边界位置上吸附的钴的近藤温度会比紧邻 hcp 区域的近藤温度更低。该研究组与美国 Vanderbilt 大学的张余洋博士、S. T. Pantelides 教授和兰州大学的罗洪刚教授合作进行第一性原理计算。结果表明对于 Ru(0001) 上外延的石墨烯，由于其摩尔周期结构不同区域与 Ru 基底的间距不同，对石墨烯电子态密度、与钴原子的交换耦合作用能以及钴原子磁矩进行调制。只有在 atop 的边界位置上吸附的钴原子具有较大磁矩和适合的态密度，在低温下 (4.2 K) 观测到近藤效应。通过向 Ru 与石墨烯间插入单层硅，减弱了石墨烯与基底的相互作用，费米面处态密度大大降低，类似于自由状态石墨烯，实验发现石墨烯上钴磁性原子的近藤效应消失。

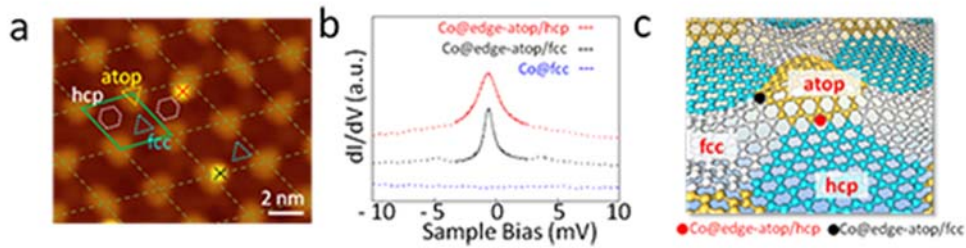
该项工作第一次从实验上直接观察和证实了石墨烯上单个磁性杂质原子的近藤效应，并通过基底对其近藤温度实现了调控。这一成果对石墨烯和磁性杂质相互作用的深入研究是一个重大进展，对石墨烯在自旋电子学中的潜在应用具有重要意义。相关工作发表在《纳米快报》杂志上【Nano Letters, 14, 4011 (2014)】。

此项工作得到了科技部 973、国家自然科学基金委和中国科学院等计划的支持。

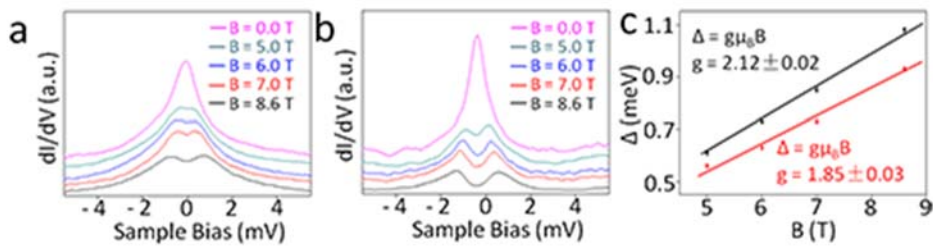
相关工作链接：<http://pubs.acs.org/doi/abs/10.1021/nl501425n>



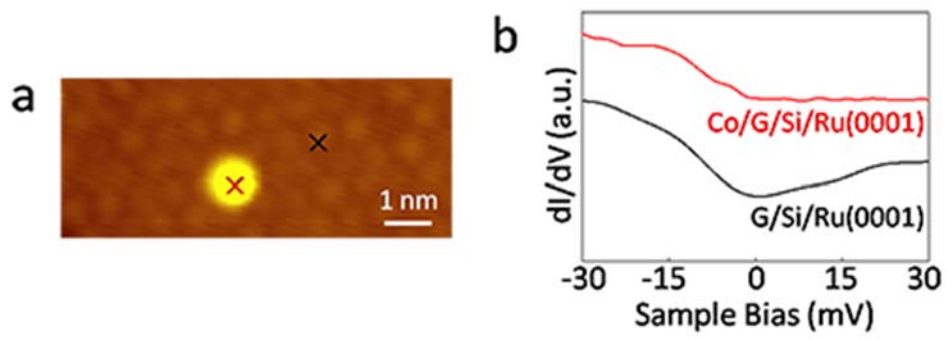
图一：单层石墨烯上单个钴磁性原子近藤效应调控的示意图。



图二： a, Ru(0001)上外延石墨烯摩尔周期 atop 区域边界上不同钴原子吸附的STM图； b, 在不同吸附位的钴原子上测量的费米面附近的扫描隧道谱（STS）曲线，红色和黑色实线是相应的 STS 谱 Fano 拟合； c, atop 区域边界上钴原子不同吸附位置的示意图。



图三： 石墨烯上钴原子费米面附近近藤共振峰的磁场依赖关系。图 a 和 b 分别对应图一中 atop 区域边界上两个不同位置吸附的钴原子近藤共振峰随磁场的变化。图 c 是近藤峰的塞曼劈裂拟合结果。



图四： 在石墨烯/Ru(0001)上插硅后钴磁性原子的近藤效应消失。