



UNIVERSIDAD NACIONAL AUTÓNOMA DE MÉXICO

FACULTAD DE CIENCIAS

VÓRTICES DE CORRIENTE EN NANO-ESTRUCTURAS
DE GRAFENO.

T E S I S

QUE PARA OBTENER EL TÍTULO DE:

FÍSICO

P R E S E N T A :

JOSÉ DAMIÁN LÓPEZ DÍAZ

TUTOR

DR. THOMAS WERNER STEGMANN



CIUDAD UNIVERSITARIA, Cd. Mx., 2021



Universidad Nacional
Autónoma de México

Dirección General de Bibliotecas de la UNAM

Biblioteca Central



UNAM – Dirección General de Bibliotecas
Tesis Digitales
Restricciones de uso

DERECHOS RESERVADOS ©
PROHIBIDA SU REPRODUCCIÓN TOTAL O PARCIAL

Todo el material contenido en esta tesis esta protegido por la Ley Federal del Derecho de Autor (LFDA) de los Estados Unidos Mexicanos (México).

El uso de imágenes, fragmentos de videos, y demás material que sea objeto de protección de los derechos de autor, será exclusivamente para fines educativos e informativos y deberá citar la fuente donde la obtuvo mencionando el autor o autores. Cualquier uso distinto como el lucro, reproducción, edición o modificación, será perseguido y sancionado por el respectivo titular de los Derechos de Autor.

Agradecimientos

A mis padres José de Jesús López D. y Claudia Cristina Díaz A., por los años de apoyo que me han brindado. Por todos los esfuerzos que han hecho por criarme y darme la mejor vida posible.

A Montserrat Ojeda, por estar conmigo durante todo este tiempo, apoyándome con su cariño y su amistad. Todo el tiempo y amor que me ha dedicado ha hecho mas feliz y fácil el trayecto hasta aquí y el que viene. Quien cada día me demuestra su amor y cariño.

A mis amigos y familia, especialmente Erik, Ricardo y Jafet, quienes a pesar del tiempo y la distancia siempre me han apoyado con su amistad.

A Thomas Stegmann, por ser mi tutor y guía. Quien durante todo el trayecto me apoyo, con enorme paciencia y dedicación. Quien me brindo los elementos necesarios para llevar acabo el presente trabajo. Agradezco toda su ayuda al brindarme los conocimientos que necesite para poder desarrollar lo mejor posible este trabajo. Conocimientos que reflejan años de arduo trabajo en el ámbito científico, y una actitud que refleja su gran calidad de persona.

Se agradece el apoyo técnico de la M. en Aud. Reyna Elizabeth Caballero Cruz y el espacio brindando en el Laboratorio de Sistemas Computacionales y Físicas de la Facultad de Ciencias.

Agradezco apoyo a los proyectos CONACYT Fronteras 952, CONACYT A1-S-13469 y UNAM-PAPIIT IA103020.

Resumen

En esta tesis se estudian las características de vórtices de corriente que se presentan en nano-estructuras de grafeno. Las nano-estructuras, que son estudiadas en esta tesis, se encuentran conectadas a una fuente y a un drenaje, que tienen la función de inyectar y de recolectar electrones, respectivamente. La fuente y el drenaje se modelan por la aproximación de banda ancha. Para el cálculo numérico se utiliza la aproximación de amarre fuerte en el Hamiltoniano de las nano-estructuras, y se aplica el método de funciones de Green fuera de equilibrio (NEFG) para el cálculo de la corriente.

Se describe la circulación de corriente sobre nano-estructuras de grafeno, comenzando con una descripción en el benceno. Se estudia la relación entre el comportamiento del patrón de corriente así como de los vórtices, y las características de las nano-estructuras de grafeno. Las principales características involucradas son, la posición, el acoplamiento y el tamaño de los contactos, así como el tamaño de la nano-cinta. Mediante la descomposición espectral se logra identificar las eigenenergías predominantes del sistema, con las cuales podemos explicar la formación de vórtices de corriente mediante la interferencia entre los eigenestados del sistema.

Logramos identificar que las configuraciones en los contactos influyen en los patrones de corriente. También se logra identificar ciertas configuraciones, las cuales permiten la formación de patrones de corriente simétricos, o la formación de grandes vórtices de corriente que se extienden por un gran parte del sistema.. Se hace uso la transmisión circular para caracterizar la simetría en los patrones de corriente sobre las nano-cintas de grafeno.

Finalmente se incluye una sección dedicada al estudio sobre nano-cintas de grafeno mas amplias, y la formación de vórtices de corriente. Aplicando los resultados obtenidos en sistemas con menor tamaño, se obtuvo que los mismos resultados siguen siendo validos sobre las nano-celdas de grafeno. Logrando caracterizar las configuraciones donde los nanosistemas presentaron grandes vórtices de corriente, que se pueden explicar mediante la interferencia de solo dos eigenenergías casi degeneradas.

Abstract

In this thesis, we study the characteristics of current vortices that occur in graphene nano-structures. The nano-structures, which are studied in this thesis, are connected to a source and a drain, which have the function of injecting and collecting electrons, respectively. The source and drain are modeled by the broadband approach. For the numerical calculation, the tight binding model is used for the Hamiltonian of the nanostructures, and the method of the Non-Equilibrium Green's Function (NEFG) is applied to calculate the current.

The current flow in graphene nano-structures is described, starting with a description on benzene. The relationship between the behavior of the current pattern as well as the vortices, and the characteristics of the graphene nano-structures is studied. The main characteristics involved are the position, the coupling and the size of the contacts, as well as the size of the nano-ribbon. By means of spectral decomposition, it was possible to identify the predominant eigenenergies of the system, with which we can explain the formation of current vortices through interference between the eigenstates of the system.

We show that the configuration of the contacts influences the current patterns. It was also possible to identify certain configurations, which allow the formation of symmetrical current patterns, or the formation of large current vortices. Circular transmission is used to characterize the symmetry of the current patterns in graphene-nanoribbons.

Finally, a section dedicated to the study of larger graphene nano-ribbons and the formation of current vortices is included. Applying the results obtained for smaller systems, it was obtained that the results are still valid for nano-ribbons of larger size. We identify the configurations, where the nanosystems present large current vortices, which can be explained by the interference of only two almost degenerate eigenenergies.

Índice general

Agradecimientos	I
Resumen	II
Abstract	III
1. Introducción	1
2. Funciones de Green fuera de equilibrio	2
2.1. Bases teóricas	2
2.1.1. Hamiltoniano del nanosistema	2
2.1.2. Función espectral y densidad de estados	3
2.1.3. Funciones de Green	4
2.1.4. Función de correlación G^n y densidad de electrones	4
2.2. Sistemas cuánticos abiertos	4
2.3. Corriente en sistemas abiertos	8
2.4. Descomposición espectral	10
2.4.1. Aproximación de banda ancha	10
2.4.2. Transmisión circular	10
2.4.3. Expansión en una base completa	11
2.5. Unidades	14
3. Nano-Estructuras de Grafeno	15
3.1. Introducción a nano-materiales de carbono	15
3.1.1. Grafeno	15
3.1.2. Hibridación	16
3.1.3. Estructura cristalina	17
3.2. Estructura de Bandas	19
3.2.1. Hamiltoniano del Grafeno	19
3.2.2. Estructura electrónica	19
3.3. Fermiones de Dirac	21
4. Vórtices de corriente	22
4.1. Benceno	22
4.1.1. Descripción de la circulación de corriente en el Benceno	22
4.2. Nanografeno 3×3	27

4.2.1. Efectos de la configuración de los contactos en la formación de vórtices.	27
4.2.2. Transmisión circular	34
4.2.3. Efectos del acoplamiento en el nanografeno	36
4.3. Ampliación de contactos en nanografeno 3×3	37
4.4. Ampliación de la nano-celda	44
5. Conclusiones	48

Capítulo 1

Introducción

Dentro del área de las nanociencias, el estudio del flujo de corriente a través de un dispositivo es de vital importancia. El entendimiento del transporte de cargas posee diversas aplicaciones, en particular el transporte electrónico en nano-cintas de grafeno ha despertado gran interés en la comunidad científica [1, 2]. Un ejemplo de aplicaciones potenciales son los circuitos integrados [3].

Las nano-cintas de grafeno consisten en redes bidimensionales de átomos de carbono, es decir, láminas con el grosor de un átomo y estructura cristalina. Los átomos de carbono en la red del grafeno poseen una hibridación sp^2 , lo cual permite esta excepcional característica de formas estructuras cristalinas bidimensionales. El grafeno y un método para obtenerlo fueron reportados por primera vez por Novoselov y Geim [4], quienes fueron galardonados con el Premio Nobel de Física en 2010, por su descubrimiento revolucionario y descripción de sus notables propiedades físicas.

Esta tesis está estructurada en cinco capítulos. En el capítulo 2 se introduce a las herramientas básicas para el estudio del transporte cuántico, con esto se desarrolla la teoría necesaria para el método NEGF (Non-Equilibrium Green's Function). En el capítulo 3 se discuten características esenciales del grafeno, estructura química, cristalina y electrónica. Se introduce la aproximación usada para modelar los contactos y la descomposición espectral con la cual estudiamos las eigenenergías predominantes en el nanosistema. En el capítulo 4 se discuten los resultados sobre los vórtices en el flujo de electrones, partiendo con el benceno. Se usa el método NEGF para cuantificar el transporte electrónico y la descomposición espectral e identificar las eigenenergías relevantes. Posteriormente se estudian las nano-cintas de grafeno y las principales características de los contactos, que afectan la naturaleza de los vórtices. Paralelo a esto se estudia la participación de las eigenenergías en nanosistema. Finalmente, el capítulo 5 está destinado a las conclusiones y demás interpretaciones.

Capítulo 2

Funciones de Green fuera de equilibrio

Este capítulo está destinado a presentar los conceptos básicos de las funciones de Green, desarrolladas con un profundo formalismo en [5], y aplicarlas a sistemas abiertos, con el fin de estudiar el transporte electrónico. Para esto se recurre al formalismo de las funciones de Green fuera de equilibrio (NEGF), desarrollado en [6, 7].

2.1. Bases teóricas

Aquí se da una breve presentación de los conceptos básicos para funciones de Green y el Hamiltoniano de amarre fuerte (tight-binding).

2.1.1. Hamiltoniano del nanosistema

Los nanosistemas en esta tesis son descritos por medio del Hamiltoniano de amarre fuerte (usamos unidades tales que $\hbar = 1$), el cual es de la forma,

$$H = \sum_i \varepsilon_i |i\rangle\langle i| + \sum_{j < i} (t_{ij} |i\rangle\langle j| + t_{ji}^* |j\rangle\langle i|), \quad (2.1)$$

donde ε_i representa la energía potencial, que es necesaria para ocupar el estado $|i\rangle$ (el sitio i -ésimo) por un electrón. La matriz de acoplamiento, cuyos elementos, t_{ij} describen la energía de enlace entre el sitio j al sitio i [8, 9].

Podemos esquematizar el Hamiltoniano (2.1), como en la figura 2.1, mediante una red de sitios, los cuales representan la energía ε_i y sus enlaces, que indican la energía de enlace $t_{i,j}$.

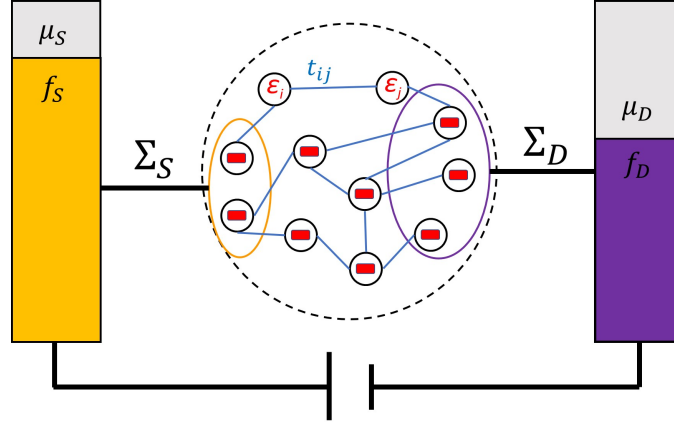


Figura 2.1: En naranja se representa la fuente, cuyo funcionamiento es inyectar electrones al nanosistema y en morado el drenaje, cuyo funcionamiento es drenar los electrones. El transporte es a través de la región punteada (representando el nanosistema), que puede verse como una red de sitios, con energía ε_i (barras rojas) y enlaces t_{ij} (líneas azules). Las elipses encierran los átomos del nanosistema que se encuentran conectados a la fuente y al drenaje. Cada reservorio está caracterizado por una densidad de estados continua que está descrita por la función de Fermi.

2.1.2. Función espectral y densidad de estados

La densidad de estados (DOS), para sistemas cerrados¹, nos dice el número eigenestados por unidad de rango de energía [7].

La función espectral está definida como

$$A(E) = 2\pi\delta(EI - H), \quad (2.2)$$

donde E es la energía del electrón en el nanosistema, H el hamiltoniano del nanosistema, e I es la matriz identidad con las mismas dimensiones que H ; por simplicidad escribiremos únicamente E en lugar de EI (escalar por matriz identidad) cuando se opere con matrices.

Si expandimos la función espectral en términos de las eigenfunciones $\psi_k(\mathbf{r})$ y de las eigenenergías ε_k del Hamiltoniano H se obtiene

$$A(\mathbf{r}, \mathbf{r}', E) = 2\pi \sum_n \psi_n(\mathbf{r}) \delta(E - \varepsilon_n) \psi_n^*(\mathbf{r}'). \quad (2.3)$$

La densidad local de estados $D(\mathbf{r}, E)$ (LDOS) está dada por los elementos diagonales de $\frac{1}{2\pi}A(\mathbf{r}, E)$, y la densidad de estados se obtiene integrando (2.3) sobre todo el

¹Se entiende como sistema cerrado a la red de sitios del nanosistema que no interacciona con ningún otro sistema.

espacio. La función espectral es de la forma (2.2) y la integral se reduce a

$$D(E) = \frac{1}{2\pi} \text{Tr}(A(E)) = \frac{1}{2\pi} \sum_n \delta(E - \epsilon_n). \quad (2.4)$$

2.1.3. Funciones de Green

Podemos representar la distribución δ por la expresión

$$2\pi\delta(E - \epsilon_n) = \frac{2\nu}{(E - \epsilon_n)^2 + \nu^2} = i\left(\frac{1}{E - \epsilon_n + i\nu} - \frac{1}{E - \epsilon_n - i\nu}\right), \quad (2.5)$$

en donde ν es un número infinitesimal positivo. Mediante esta representación podemos reescribir la función espectral como

$$A(E) = 2\pi\delta(E - H) = i((E - H + i\nu)^{-1} - (E - H - i\nu)^{-1}) = -2\text{Im}(G), \quad (2.6)$$

donde se introducen la función de Green retardada (2.7a) y adelantada (2.7b),

$$G = (E - H + i\nu)^{-1}. \quad (2.7a)$$

$$G^\dagger = (E - H - i\nu)^{-1}. \quad (2.7b)$$

Las ecuaciones de Green son descritas y desarrolladas con mayor detalle en [5].

2.1.4. Función de correlación G^n y densidad de electrones

La función de correlación se define como

$$G_{ij}^n := 2\pi|i\rangle\langle j|. \quad (2.8)$$

En equilibrio, la densidad de electrones está dada por la densidad de estados (DOS), cuyos estados están ocupados acorde a la función de Fermi, $f(E - \mu)$, cuyo potencial químico es μ . Dado que la diagonal de la función de correlación se relaciona con la densidad de los electrones, mientras que la diagonal de la función espectral $A(E)$ con la densidad de estados [6], se concluye que

$$G_{eq}^n := A(E)f(E - \mu). \quad (2.9)$$

La relación (2.9) es válida solo en el equilibrio, y se denomina como función de correlación en equilibrio.

2.2. Sistemas cuánticos abiertos

Con el fin de estudiar el transporte de electrones a través del nanosistema, se conectan dos reservorios, fuente (S) y drenaje (D), ilustrados en la figura 2.1. La fuente y el drenaje permanecen en equilibrio, por ende la ocupación de sus estados está descrita

por la distribución de Fermi $f_{S/D} := f(E - \mu_{S/D})$ con el potencial químico $\mu_{S/D}$ de la fuente y el drenaje, respectivamente. Una diferencia de potencial entre estos reservorios induce un flujo de corriente.

Cada reservorio aislado está descrito por su Hamiltoniano $H_{S/D}$ (H_S y H_D para la fuente y el drenaje, respectivamente), y su respectiva energía. Sean $|\Psi_{S/D}\rangle$ eigenestados de sus respectivos sistemas, entonces se satisfacen las relaciones

$$(E - H_{S/D})|\Psi_{S/D}\rangle = 0. \quad (2.10)$$

Los reservorios se ven perturbados ante la apertura a otros sistemas. Estas perturbaciones pueden expresarse teóricamente como

$$(E - H_{S/D} + i\nu)|\Psi_{S/D}\rangle = |Q_{S/D}\rangle, \quad (2.11)$$

donde ν es un número infinitesimal positivo.

La extracción de electrones en los reservorios se representa por el término $i\nu|\Psi_{S/D}\rangle$, y la reinyección de electrones a los reservorios desde fuentes externas por $|Q_{S/D}\rangle$. Para mantener el equilibrio en los reservorios, es necesaria tanto la extracción como la reinyección, además que estas deben ser equivalentes, y debe cumplirse $i\nu|\Psi_{S/D}\rangle = |Q_{S/D}\rangle$. En la ecuación (2.11), E deja de ser eigenenergía del Hamiltoniano y actúa como una variable independiente, la cual proporciona la energía de excitación $|Q_{S/D}\rangle$ de fuentes externas. Un efecto importante de abrir los reservorios, ver la ecuación (2.10), es que el estado $|\Psi_{S/D}\rangle$ difiere de cero solo para las eigenenergías, mientras que en la ecuación (2.11), el estado $|\Psi_{S/D}\rangle$ es distinto de cero para cualquier energía y representa la respuesta de los reservorios a excitaciones externas.

Para expresar matemáticamente la conexión de los reservorios con el nanosistema, se definen las matrices de acoplamiento $\tau_{S/D}$. Esta matriz indica cuales son los sitios (átomos o moléculas) que se encuentran en contacto con el reservorio. En la figura 2.1, se representan los átomos que se encuentran conectados con la fuente (encerrados en la elipse naranja) y aquellos que están acoplados con el drenaje (encerrados en la elipse morada).

Al conectar el nanosistema a los reservorios, los estados $|\Psi_{S/D}\rangle$ producen una excitación en el estado $|\psi\rangle$ del nanosistema, que regresan como estados excitados $|\psi_{S/D}\rangle$ en los reservorios. El sistema completo está descrito por la ecuación de Schrödinger

$$\begin{pmatrix} E - H_S + i\nu & -\tau_S^\dagger & 0 \\ -\tau_S & H - E & -\tau_D \\ 0 & -\tau_D^\dagger & E - H_D + i\nu \end{pmatrix} \begin{pmatrix} |\Psi_S + \psi_S\rangle \\ |\psi\rangle \\ |\Psi_D + \psi_D\rangle \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} |Q_S\rangle \\ 0 \\ |Q_D\rangle \end{pmatrix}. \quad (2.12)$$

La reinyección de electrones $|Q_{S/D}\rangle$ no se modifica por el acoplamiento con el nano-

sistema, y podemos asumir válidas las ecuaciones (2.10) y (2.12). Así obtenemos la expresión

$$|\psi_S\rangle = G_S \tau_S^\dagger |\psi\rangle, \quad (2.13a)$$

$$|\psi_D\rangle = G_D \tau_D^\dagger |\psi\rangle, \quad (2.13b)$$

donde se definen las funciones de Green de los reservorios $G_{S/D}$ de forma análoga a la ecuación (2.7). Por lo tanto, las expresiones se reducen a

$$G_S := (E - H_S + i\nu)^{-1}, \quad (2.14a)$$

$$G_D := (E - H_D + i\nu)^{-1}. \quad (2.14b)$$

Lo anterior se obtiene del primer y último renglón de (2.12). Del renglón medio de (2.12) y (2.13), podemos llegar a la expresión

$$(E - H - \Sigma_S - \Sigma_D)|\psi\rangle = |Q\rangle, \quad (2.15)$$

en términos de las auto-energías de los contactos

$$\Sigma_S := \tau_S G_S \tau_S^\dagger, \quad (2.16a)$$

$$\Sigma_D := \tau_D G_D \tau_D^\dagger, \quad (2.16b)$$

por lo tanto la excitación total del nanosistema es

$$|Q\rangle := \tau_S |\Psi_S\rangle + \tau_D |\Psi_D\rangle. \quad (2.17)$$

Por otro lado la expresión (2.15) puede ser simplificada como

$$|\psi\rangle = G|Q\rangle, \quad (2.18)$$

donde definimos G como la función de Green del nanosistema

$$G := (E - H - \Sigma_S - \Sigma_D)^{-1}. \quad (2.19)$$

Mediante lo anterior, la ecuación de Schrödinger del sistema completo (nanosistema acoplado a los reservorios) se simplifica a la ecuación (2.18). Este enfoque nos permite describir el nanosistema abierto con más facilidad ya que las dimensiones de la Eq. (2.19) son las mismas dimensiones del nanosistema (numero de sitios al cuadrado), mientras que la dimensión del nanosistema abierto corresponde a la suma de los sitios del nanosistema y sus reservorios.

Las matrices de auto-energías pueden verse como una modificación no hermitiana en el Hamiltoniano H para incorporar las condiciones de frontera, es decir, los átomos que se encuentran en contacto con los reservorios. De ahora en adelante nos referiremos a estos como contactos [7]. Esta modificación separa las eigenenergías del plano real al plano complejo, la parte imaginaria de las eigenenergías es inversamente proporcional

al tiempo de vida de los estados en el nanosistema y provocan un ensanchamiento en las resonancias, véase figura 2.2, donde se ejemplifica el caso de las resonancias en la transmisión.

Cuando el nanosistema se encuentra en contacto con los reservorios, sus propiedades en general sufren de un ensanchamiento. Un ejemplo de esto ocurre en la DOS, que de acuerdo con la Eq. (2.2) actúa como una distribución discreta. Sin embargo, al abrir el nanosistema pierde esta propiedad.

El ensanchamiento se describe por medio de la matriz Γ que se define como

$$\Gamma := i(\Sigma - \Sigma^\dagger), \quad (2.20)$$

y de la expresión de la función espectral (2.3), obtenemos

$$A := i(G - G^\dagger) = G(\Gamma_S + \Gamma_D)G^\dagger = A_1 + A_2. \quad (2.21)$$

Las funciones espectrales $A_{1/2} := G\Gamma_{S/D}G^\dagger$ dan la densidad de estados para los electrones que provienen de la fuente y el drenaje, mientras que las funciones espectrales $A_{S/D} = i(G_{S/D} - G_{S/D}^\dagger)$, dan la densidad de estados en los reservorios.

Para estudiar la función de correlación del sistema abierto, podemos usar la expresión (2.8) como

$$\begin{aligned} G^m &= |\psi\rangle\langle\psi| = G\tau_S|\Psi_S\rangle\langle\Psi_S|\tau_S^\dagger G^\dagger + G\tau_D|\Psi_D\rangle\langle\Psi_D|\tau_D^\dagger G^\dagger \\ &= G\tau_S G_S^m \tau_S^\dagger G^\dagger + G\tau_D G_D^m \tau_D^\dagger G^\dagger = G\tau_S A_S \tau_S^\dagger G^\dagger f_S + G\tau_D A_D \tau_D^\dagger G^\dagger f_D, \end{aligned}$$

aquí estamos usando $G_{S/D}^m = |\Psi_{S/D}\rangle\langle\Psi_{S/D}|$ y que $|\Psi_S\rangle\langle\Psi_D| = 0$ puesto que no hay un acoplamiento directo entre la fuente y el drenaje. Usando (2.16) y (2.20) obtenemos la función de correlación fuera de equilibrio del nanosistema

$$G^m = A_1 f(E - \mu_S) + A_2 f(E - \mu_D), \quad (2.22a)$$

$$G^m = G\Sigma^{in}G^\dagger, \quad (2.22b)$$

donde se define la función de dispersión (in-scattering function), la cual describe como se inyectan los electrones [7]

$$\Sigma^{in} := \Sigma_S^{in} + \Sigma_D^{in} = \Gamma_S f_S + \Gamma_D f_D. \quad (2.23)$$

La expresión (2.22) es válida para sistemas fuera de equilibrio (suponiendo una diferencia entre μ_S y μ_D). Dada la suposición de que los electrones no interactúan, la función de correlación del nanosistema es la suma de las funciones espectrales ocupadas por las distribuciones de Fermi de los contactos correspondientes, que da la densidad electrónica.

Estos son los resultados principales de las funciones de Green fuera de equilibrio,

el mismo resultado es obtenido por Keldysh en [10], donde se aplica la teoría de perturbaciones de varios cuerpos.

2.3. Corriente en sistemas abiertos

Para definir un operador correspondiente a la corriente, debemos partir del nanosistema aislado, usando la evolución temporal del operador $|\psi\rangle\langle\psi|$ desarrollada en [11], pagina 115, Ec. 3.71

$$\frac{d}{dt}|\psi\rangle\langle\psi| = \frac{1}{i\hbar}[H, |\psi\rangle\langle\psi|]. \quad (2.24)$$

Esta ecuación describe la conservación de la densidad de probabilidad. Sin embargo, al abrir el nanosistema pueden entrar y salir electrones, por lo que la densidad de probabilidad no se conserva. En un estado estacionario, el primer termino de (2.24) se cancela, y el conmutador nos dice el ritmo con el que una partícula entra o sale del volumen que ocupa el sistema.

Usando (2.8), el operador de corriente se define como

$$I^{op} := \frac{ie}{\hbar}[H, G^n], \quad (2.25)$$

donde e es la carga del electrón. Sus elementos diagonales

$$I_{ii}^{op} = \frac{ie}{\hbar} \sum_j (H_{ij}G_{ji}^n - G_{ij}^n H_{ji}), \quad (2.26)$$

nos dan la corriente total que fluye hacia el i -ésimo sitio.

Mientras que los elementos individuales, descritos en (2.26), pueden ser identificados como la corriente local que fluye entre el i -ésimo, al j -ésimo sitio [12, 13]

$$I_{ij}^{loc} = \frac{ie}{\hbar}(t_{ij}G_{ji}^n - G_{ij}^n t_{ji}) = \frac{2e}{\hbar}\text{Im}(t_{ij}^* G_{ij}^n). \quad (2.27)$$

En consecuencia, la corriente total de electrones con energía E está dada por

$$I(E) := \text{Tr}(I^{op}) = \frac{e}{\hbar}\text{Tr}(\Sigma^{in} A - \Gamma G^n). \quad (2.28)$$

Como el flujo saliente de la fuente es igual al entrante del drenaje, la corriente total es nula. Podemos expresar esto como $I_S = -I_D$, con lo que podemos deducir que la traza de la ecuación (2.25) es siempre cero. Igualmente como la traza de un conmutador es siempre cero deducimos que la corriente total es nula.

Para calcular únicamente la corriente entrante, basta con separar la función de dispersión (2.23) y Γ en términos de $\Sigma_{S/D}^{in}$ y $\Gamma_{S/D}$, tomando solo el término de D , podemos

obtener la corriente total en el drenaje

$$I_D(E) := \frac{e}{h} \text{Tr}(\Sigma_D^{\text{in}} A - \Gamma_D G^m). \quad (2.29)$$

Integrando (2.29) sobre la energía, obtenemos la fórmula de Landauer [14, 15] para la corriente que pasa a través del sistema

$$I_D := \int I_D(E) dE = \frac{e}{h} \int T(E) (f(E - \mu_S) - f(E - \mu_D)) dE, \quad (2.30)$$

donde se define la función de transmisión como

$$T(E) := \text{Tr}(\Gamma_S G \Gamma_D G^\dagger). \quad (2.31)$$

La función de transmisión (2.31) da la probabilidad de que un electrón con energía E se transmita desde la fuente hasta el drenaje y depende de la energía. La transmisión de un sistema típico es mostrada en la figura 2.2. Cuando el sistema se encuentra aislado, se transmiten todos los electrones $T = 1$ solo en las eigenenergías. Estos picos se ensanchan conforme se abre el sistema (línea continua azul y roja), un comportamiento similar ocurre con la DOS. Para sistemas aislados², la transmisión toma el valor $T = 1$ solo cuando se evalúa en una eigenenergía, transmitiéndose todos los electrones entrantes. Cuando el sistema se abre, los picos de la DOS y la transmisión sufren de un ensanchamiento y presentan resonancias cerca de las eigenenergías del sistema cerrado.

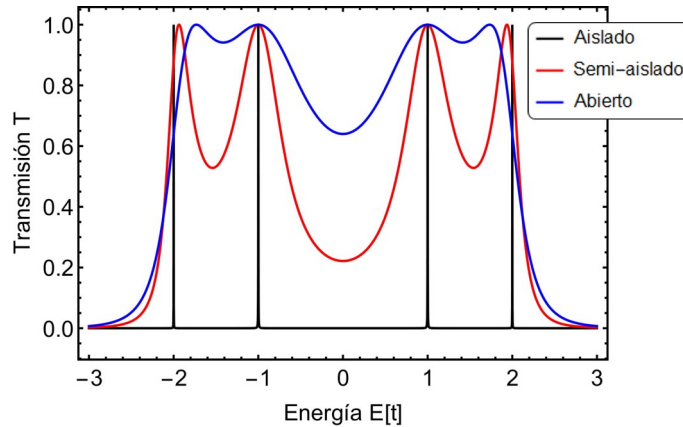


Figura 2.2: Transmisión del sistema abierto (línea azul), semi-abierto (línea roja) y aislado (línea negra) como función de la energía. La energía se mide en múltiplos de t ($E[t]$), donde $t = 2.8$ eV, es la energía de acoplamiento entre dos sitios, la cual se supone homogénea.

También se define la función de transmisión local [16], que da la probabilidad de que

²Para describir un sistema aislado se aproxima con un acoplamiento infinitesimal.

un electrón se transmita del sitio i -ésimo al j -ésimo

$$T_{ij}(E) := \text{Im}(H_{ij}^* G_{ij}^n). \quad (2.32)$$

La transmisión local ver Eq. (2.32) es proporcional a la corriente local (2.27), de forma que

$$T_{ij}(E) = \frac{ie}{h} I_{ij}^{loc}. \quad (2.33)$$

2.4. Descomposición espectral

En esta tesis se estudia el transporte electrónico y la formación de vórtices en el flujo de electrones, los cuales se transmiten en nano-estructuras de grafeno. En esta sección se desarrollan herramientas para analizar el flujo de corriente. Se define la descomposición espectral, la cual nos permite identificar las eigenenergías que son predominantes en la formación de vórtices. También se define la transmisión circular, la cual nos permite cuantificar la vorticidad de la corriente sobre un anillo de la red del nanografeno.

2.4.1. Aproximación de banda ancha

Para modelar las autoenergías de los contactos se utiliza la aproximación de banda ancha (wide-band). Esta aproximación es ampliamente usada [17, 18, 8] y se aplica en los resultados de esta tesis. Se describe por medio de

$$\Sigma_{S/D} = -i\eta \sum_{n \in S/D} |n\rangle \langle n|, \quad (2.34)$$

donde la suma es sobre los sitios que constituyen los contactos, ya sea de la fuente (S) o el drenaje (D), η es una constante positiva que toma el nombre de parámetro de contacto, la cual describe el grado de acoplamiento entre ellos. El parámetro de contacto es usado ampliamente en esta tesis para estudiar el sistema con distintos niveles de acoplamiento.

La auto-energía (2.34) corresponde a una LDOS constante en la superficie del contacto. La ventaja de los contactos de banda ancha es que requieren menos esfuerzo computacional que otros modelos.

2.4.2. Transmisión circular

El grafeno consiste en una estructura bidimensional, la cual está constituida por una red de átomos en un arreglo hexagonal. En esta tesis se estudia el transporte electrónico en nano-estructuras de grafeno. Las cuales están constituidas por anillos

hexagonales, véase figura la 2.3, y cada anillo puede ser numerado mediante una etiqueta.

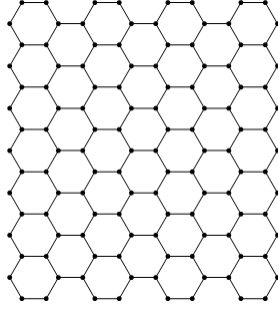


Figura 2.3: Ejemplo de una celda de nanografeno, la estructura hace posible numerar cada uno de los anillos hexagonales en el nanografeno.

Se define la transmisión circular, la cual nos permite cuantificar la magnitud en la circulación sobre un hexágono en el sentido de las manecillas del reloj o en el sentido contrario [16, 19]

$$T_C(E, \gamma) = \frac{1}{L_\gamma} \sum_{i,j \in \gamma} T_{ij}(E) \text{sign}((\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_\gamma) \times (\mathbf{r}_j - \mathbf{r}_\gamma)), \quad (2.35)$$

en donde γ es la etiqueta del hexágono (pensando en una red con uno o mas anillos, el caso mínimo es el benceno). La suma es sobre todos los átomos que forman parte del anillo hexagonal γ con centro \mathbf{r}_γ y longitud L_γ , \mathbf{r}_i representa la posición del sitio o átomo sobre el que se suma.

Cabe mencionar que un valor de $(T_C(E, \gamma) > 0)$ o $(T_C(E, \gamma) < 0)$ equivale a decir que en el anillo γ , la transmisión o flujo de electrones es predominante en la dirección de las manecillas del reloj, o en el sentido contrario, respectivamente. Sin embargo no implica que la circulación sea completamente un vórtice. Mientras que un valor nulo indica que no existe un flujo circular predominante en ninguna de las direcciones mencionadas.

2.4.3. Expansión en una base completa

En esta tesis se estudia la descripción del flujo de electrones³, el cual está descrito por la transmisión local (2.32). Esta sección está dedicada a la presentación de la descomposición espectral, la cual es la expansión de una propiedad del sistema (como puede ser la transmisión), como suma de términos que dependen de las eigenenergías y eigenvectores del mismo sistema.

³Recordemos que la transmisión local es proporcional a la corriente local, por lo que se habla indistintamente de transmisión local como del flujo de electrones de la corriente local.

Mediante la descomposición espectral buscamos expresar las propiedades del transporte electrónico usando las eigenenergías del nanosistema. El fin de la descomposición es identificar los eigenestados y eigenenergías que dominan el transporte a cierta energía y que generan los vórtices de corriente en el flujo de electrones.

Para desarrollar la descomposición espectral es necesario primero describir la función de Green como suma en términos de las eigenenergías. El nanosistema abierto está descrito por el Hamiltoniano efectivo $H_{ef} = H + \Sigma_S + \Sigma_D$, que posee un conjunto completo de eigenestados $|\phi_\alpha\rangle$, que cumplen

$$H_{ef}|\phi_\alpha\rangle = \epsilon_\alpha|\phi_\alpha\rangle, \quad (2.36)$$

siendo ϵ_α la eigenenergía asociada a ϕ_α . Sin embargo el Hamiltoniano del grafeno es no hermítico, es decir $H_{ef} \neq H_{ef}^\dagger$, lo cual implica que tenemos eigenvectores izquierdos y derechos. Debido a la estructura de las auto-energías (2.34) estos eigenvectores están relacionados por una conjugación compleja y cumplen con la relación de ortogonalidad ($\langle\phi_\alpha|\phi_\beta^*\rangle = \delta_{\alpha,\beta}$).

Los eigenestados forman un sistema completo y podemos expresar cualquier sistema en esta base. Dado que componen un sistema completo cumplen

$$I = \sum_{\alpha} |\phi_\alpha\rangle\langle\phi_\alpha|, \quad (2.37)$$

podemos usar esta ecuación para desarrollar la descomposición espectral e identificar los eigenestados y eigenenergías que dominan el transporte a cierta energía.

El sistema abierto (2.31) posee la característica de que sus eigenenergías están dadas por números complejos. Además, mientras el sistema cerrado posee solo eigenenergías reales, estas dependen del numero de sitios de la red, mientras que las eigenenergías del sistema abierto se ven afectadas también por la configuración de los contactos. La configuración de los contactos se identifica por los átomos que se encuentran en contacto con los reservorios y el parámetro de contacto es η descrito por la aproximación de banda ancha, véase ecuación (2.34). Cada configuración en los contactos cambia el Hamiltoniano H_{ef} y sus eigenenergías.

Por medio de la relaciones (2.37) se puede descomponer la función de Green del sistema abierto (2.31) en términos de los eigenestados, véase las siguientes ecuaciones

$$G = \sum_{\alpha} \frac{|\phi_\alpha\rangle\langle\phi_\alpha|}{(E - \epsilon_\alpha)}, \quad G^\dagger = \sum_{\beta} \frac{|\phi_\beta\rangle\langle\phi_\beta|}{(E - \epsilon_\beta^*)}. \quad (2.38)$$

Este procedimiento también se desarrolla en [5] y resulta en una suma sobre el conjunto de eigenenergías. Este efecto se estudia ampliamente en esta tesis.

En base a esto, se puede desarrollar la descomposición espectral de la transmisión local (2.32), como una suma sobre las eigenenergías y eigenestados. Si usamos la ecuación (2.32), podremos reescribir la función de transmisión local, la cual llamaremos T_{ij}^{DE} , con el fin de distinguir la función original de su descomposición espectral

$$T_{ij}^{DE}(E) = \text{Im}(t_{i,j}^* G_{i,j}^n) = \text{Im}(t_{i,j}^* G_{i,\gamma} \Gamma_{\gamma,\nu}^S G_{\nu,j}^*), \quad (2.39)$$

en esta ecuación se usa el convenio de suma de Einstein.

Tengamos en cuenta que $\Gamma_{\gamma,\nu}^S = 2\eta \sum_s \delta_{\gamma,s} \delta_{\nu,s}$ y usando (2.38) logramos expresar la transmisión local como una suma sobre las eigenenergías

$$T_{ij}^{DE}(E) = \sum_{\alpha,\beta \in A} \sum_{s,\gamma,\nu} \text{Im} \left[t_{ij}^* \frac{\phi_{\alpha,i} \phi_{\alpha,\gamma} \delta_{\gamma,s} \delta_{\nu,s} \phi_{\beta,j}^* \phi_{\beta,\nu}^*}{(E - \epsilon_\alpha)(E - \epsilon_\beta^*)} \right], \quad (2.40a)$$

$$T_{ij}^{DE}(E) = \sum_{\alpha,\beta \in A} \sum_{s,\gamma,\nu} \text{Im} \left[t_{ij}^* \frac{\phi_{\alpha,s} \phi_{\alpha,i} \phi_{\beta,j}^* \phi_{\beta,s}^*}{(E - \epsilon_\alpha)(E - \epsilon_\beta^*)} \right], \quad (2.40b)$$

donde $\phi_{\alpha,i} = \langle i | \phi_\alpha \rangle$ es el eigenestado asociada a la eigenenergía ϵ_α en el sitio i . La primer suma es sobre A , que en este caso representa el conjunto de todas la eigenenergías del nanosistema, mientras que la segunda suma es sobre los sitios que están acoplados al contacto S, que pueden ser uno o mas sitios de la red. La expresión (2.40) es usada en [16] para estudiar el benceno.

También podemos aplicar la descomposición espectral para reescribir la transmisión circular como una suma sobre las eigenenergías del nanosistema. Para esto basta con sustituir T_{ij} por T_{ij}^{DE} en la ecuación (2.35), y la etiquetamos con DE con el fin de distinguirla de la función original

$$T_C^{DE}(E, \gamma) = \frac{1}{L_\gamma} \sum_{i,j \in \gamma} T_{ij}^{DE}(E) \text{sign}((\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_\gamma) \times (\mathbf{r}_j - \mathbf{r}_\gamma)). \quad (2.41)$$

Al igual que las transmisión local, también aplicamos la descomposición espectral a la transmisión del nanosistema para expresar la transmisión en términos de las eigenenergías. Usando la ecuación (2.31), que describe la transmisión, podemos reescribirla como

$$T_{DE}(E) = 4\eta^2 \sum_{s,d} \left| \sum_{\alpha \in A} \frac{\phi_{\alpha,s} \phi_{\alpha,d}}{E - \epsilon_\alpha} \right|^2, \quad (2.42)$$

donde α corre sobre el conjunto A de todas las eigenenergías y (s,d) suman sobre los sitios que constituyen tanto la fuente como el drenaje.

La descomposición espectral nos permite entender el transporte electrónico mediante

las eigenenergías del nanosistema. Cuando la suma es sobre A , no existe ninguna diferencia entre T y T_{DE} (análogamente con T_{ij}). Sin embargo, en este trabajo buscamos explicar los vórtices de corriente usando un conjunto mínimo de eigenenergías, por lo que la suma sobre el conjunto de eigenenergías A no será sobre todas las eigenenergías, sino sobre solo una parte de estas, por ende T y T_{DE} no son necesariamente iguales (análogamente T_{ij}), y esto nos permitirá identificar las eigenenergías y eigenestados que dominan el transporte electrónico.

2.5. Unidades

Con el fin de simplificar la presentación de los resultados, se usan las unidades naturales para cada una de las cantidades del sistema.

Supondremos el nano-grafeno en ausencia de campos magnéticos externos, con los todos los enlaces idénticos entre sí, y un acoplamiento homogéneo entre sitios, es decir, los elementos $t_{ij} = t$ con $t = 2.8$ eV [2]. Bajo estas suposiciones en la ecuación (2.1), la energía es medida en múltiplos de t , como en la figura 2.2. La energía de origen se define por medio de la energía ε_i , la cual está bien definida siendo la misma para todos los sitios. La nanocelda se mide en unidades de $a = 0.142$ nm [20, 16, 2], que es la distancia entre átomos de la red del grafeno, en el caso del benceno es $a = 0.139$ nm [16].

Capítulo 3

Nano-Estructuras de Grafeno

3.1. Introducción a nano-materiales de carbono

En este capítulo se da una breve introducción del grafeno y algunas de sus características, así como una descripción de su estructura atómica y electrónica. Se menciona el comportamiento de los electrones cerca de los puntos de Dirac. Finalmente, se describe la descomposición espectral con la cual podemos verificar algunas propiedades presentadas en el capítulo 2, por medio de las eigenenergías del nanosistema.

3.1.1. Grafeno

El grafeno es una estructura cristalina bidimensional constituida por átomos de carbono en un arreglo similar a un panal de abejas, es decir, constituida por arreglos hexagonales, de anillos de benceno el cual es un compuesto aromático¹. Existen también nano-cintas y nano-hojuelas, de grafeno que constan de una cantidad numerable de átomos, y pueden ser descritas como moléculas. Se ha investigado su aromaticidad en pequeñas muestras de nano-cintas y nano-hojuelas [21]. Además, la relación entre la aromaticidad y la estabilidad estructural de los nanoflakes (nano-hojuelas) de grafeno han sido estudiadas en [22].

El estudio experimental y teórico del grafeno es un campo en rápido crecimiento. Dos ejemplos de esto fueron la evidencia experimental de un efecto Hall cuántico inusual [23] y el estudio de sus portadores de carga, los cuales se comportan como fermiones ultra-relativistas en el espacio 2D [4]. Sin embargo, el flujo de corriente local, es decir, la distribución espacial de la corriente, ha recibido menos atención. Recientemente han habido estudios sobre la distribución espacial de la corriente en nano-cintas de grafeno [1], y en moléculas aromáticas [16, 24].

Las razones del enorme interés científico son múltiples, que en mayor parte es por su posible potencial tecnológico. Una tira estrecha de grafeno con un ancho de solo

¹La aromaticidad se define como la propiedad de deslocalización en los electrones que forman los enlaces π de los compuestos de carbono.

unos pocos nanómetros se puede usar como transistor [25], que es un componente electrónico básico y por lo tanto, podría mejorar la miniaturización al usar grafeno. Además, la movilidad de los electrones es bastante elevada en comparación al silicio, y esto destaca ya que la electrónica basada en silicio de hoy alcanza sus límites.

Existen diversas técnicas utilizadas en la fabricación de grafeno, un ejemplo de esto es la exfoliación mecánica de grafeno a partir del grafito pirolítico altamente orientado. La técnica de exfoliación mecánica consiste en escamar el grafito en capas utilizando una cinta cristal [26]. Se deposita una hojuela de grafito en un sustrato y las pilas delgadas de grafito son exfoliadas hasta conseguir delgadas laminas de grafito. La mayoría de estas delgadas laminas tienen decenas a cientos de capas de grafeno, y muy pocas constituyen una monocapa grafeno.

En la práctica, no se usa un lápiz (grafito) para fabricar capas de grafeno, sino que se preparan muestras muy delgadas exfoliando un pequeño cristal de grafito en un trozo de cinta adhesiva doblada. Cada vez que se despega la cinta, la escama de grafito se divide en dos partes y, por lo tanto, disminuye el número de capas de grafeno. Después de repetidas exfoliaciones, la cinta adhesiva contiene las hojas de grafeno pegadas a ella.

3.1.2. Hibridación

El carbono es el componente elemental del grafeno y el grafito, es el sexto elemento de la tabla periódica. El átomo de carbón está constituido a partir de seis protones, seis neutrones y seis electrones. En el estado base, los seis electrones están en la configuración $1s^2 2s^2 2p^2$. Dos electrones llenan la capa interna $1s$, que está cerca del núcleo y que es irrelevante para las reacciones químicas, mientras que cuatro electrones ocupan las capas externas de orbitales $2s$ y $2p$.

Los orbitales de valencia consisten en cuatro estados cuánticos equivalentes, $|2s\rangle$, $|2p_x\rangle$, $|2p_y\rangle$ y $|2p_z\rangle$. Una superposición cuántica de los estados $|2s\rangle$ con los n de los $|2p_j\rangle$ estados se llama hibridación sp^n , que juega un papel esencial en los enlaces covalentes del carbono.

El grafeno posee átomos de carbón con hibridación sp^2 , el cual es la superposición de un orbital $2s$ y dos orbitales $2p$. Podemos escoger $|2p_y\rangle$ y $|2p_x\rangle$ obteniendo tres orbitales híbridos de la forma $|sp_i^2\rangle = a_i|2s\rangle + b_i|2p_x\rangle + c_i|2p_y\rangle$ con $i \in 1, 2, 3$. Estos orbitales están orientados en el plano x, y y poseen un ángulo de 120° entre pares. El orbital restante (no híbrido) $2p_z$ es perpendicular al plano.

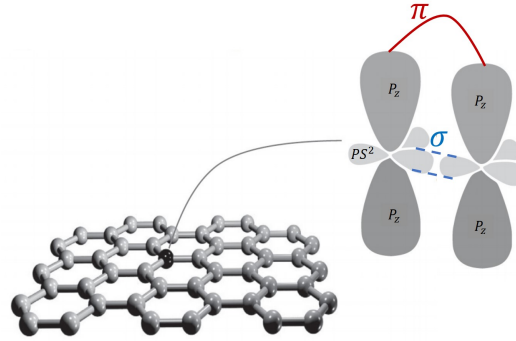


Figura 3.1: Orbitales del átomo de carbono con hibridación sp^2 . Los orbitales sp^2 forman enlaces covalentes σ , con un ángulo de 120° entre pares, mientras que el solapamiento de los orbitales p_z forma enlaces tipo π

Los estados híbridos sp^2 forman enlaces covalentes σ entre ellos, véase figura 3.1, esto sucede dentro de la red del grafeno. Para los orbitales p_z se da un solapamiento² lo cual da lugar a enlaces tipo π . Estas combinaciones generan un sistema de electrones π delocalizados, que domina el transporte electrónico en el grafeno.

3.1.3. Estructura cristalina

Los átomos de carbono en el grafeno se ordenan en una red de panal debido a su hibridación sp^2 . Sin embargo, el vector de un sitio a su vecino mas cercano no mantiene invariante a la red del grafeno bajo traslaciones. Por lo tanto los sitios no se consideran equivalentes y la red por si misma no es una red de Bravais³, puesto que esta es una propiedad de las redes de Bravais. Por otro lado, la red puede ser descrita por dos sub-redes de Bravais.

²Cuando dos átomos están suficientemente cerca, sus orbitales se ven entrelazados, formando enlaces.

³Arreglo de puntos que puede ser generado por medio de la repetición de una celda unitaria.

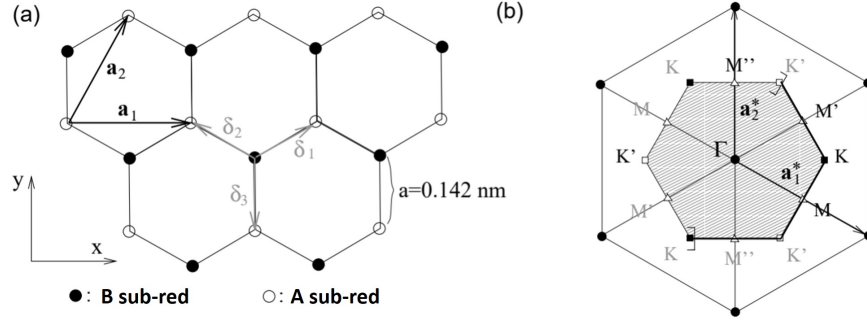


Figura 3.2: (a) Red en forma de panal de abeja, se muestra la separación entre dos sub-redes, que son (A,B). Los vectores δ_i conectan ambas sub-redes, la separación entre átomos es $a = 0.142$ nm. (b) El panel muestra la red recíproca, la región sombreada es la zona de Brillouin, Γ es su centro y \mathbf{K} , \mathbf{K}' son los puntos de Dirac. Imagen modifica de [20]

En la figura 3.2 se muestra que la red del grafeno está estructurada como una red bipartita, es decir, está formada por dos sub-redes. Podemos clasificar a los átomos como tipo A y B, pertenecientes a su respectiva sub-red. La red de grafeno puede visualizarse como la superposición o el acoplamiento desfasado de éstas dos subredes triangulares. Si consideramos la red A, obtenemos una red de Bravais triangular, la cual está generada por los vectores base⁴

$$\mathbf{a}_1 = a(\sqrt{3}, 0), \quad \mathbf{a}_2 = \frac{a}{2}(\sqrt{3}, 3), \quad (3.1)$$

donde $a = 0.142$ nm es la distancia entre los átomos de carbono en la red de grafeno.

La red recíproca, la cual está definida con respecto a la red triangular, está generada por los vectores

$$\mathbf{a}_1^* = \frac{2\pi}{a}\left(\frac{1}{\sqrt{3}}, -\frac{1}{3}\right), \quad \mathbf{a}_2^* = \frac{2\pi}{a}\left(0, \frac{2}{3}\right). \quad (3.2)$$

Físicamente, todos los sitios de la red recíproca representan vectores de onda equivalentes. En la figura 3.2 se muestra la primera zona de Brillouin, la cual está constituida por seis vectores de onda en sus esquinas, solo dos de estos no son equivalentes, y están representados como

$$\mathbf{K} = \frac{2\pi}{a}\left(\frac{2}{3\sqrt{3}}, 0\right), \quad \mathbf{K}' = \frac{2\pi}{a}\left(-\frac{2}{3\sqrt{3}}, 0\right). \quad (3.3)$$

Las esquinas restantes son equivalentes a uno de estos dos puntos, desde la traslación por un vector de la red recíproca. En la cristalografía \mathbf{K} y \mathbf{K}' son puntos de alta simetría en el espacio recíproco. Para el caso del grafeno, en las bandas electrónicas,

⁴Los sitios de una red de Bravais pueden ser expresados por su base en la forma $n\mathbf{a}_1 + m\mathbf{a}_2$, con n, m , enteros [27]

estos puntos, están cerca de la energía de Fermi. Los electrones se comportan en estas regiones como partículas pseudo-relativistas, y por ende se llaman puntos de Dirac.

3.2. Estructura de Bandas

Como se ha discutido, tres electrones por carbono están involucrados en la formación de enlaces covalentes σ , y un electrón se encuentra en los enlaces π . A bajas energías los electrones en los enlaces π , son los responsables del transporte electrónico [20].

Con el fin de explicar el rango de energía que un electrón puede tomar en la red del nanografeno, esta sección se limita la discusión a las bandas de energía de los electrones π usando el Hamiltoniano de amarre fuerte

3.2.1. Hamiltoniano del Grafeno

Aplicando el Hamiltoniano de amarre fuerte (2.1) al grafeno, podemos describir sus propiedades de transporte electrónico. En la ecuación (2.1), la energía de sitio es cero, ya que todos los átomos del grafeno son idénticos ($\varepsilon_i = \text{constante}$), podemos tomar como origen dicha energía, tal que $\varepsilon_i = 0$. Además dado que el acoplamiento es homogéneo entre sitios, ($t_{ij} = t = 2.8 \text{ eV.}$), podemos escribir su Hamiltoniano como

$$H = -t \sum_{\langle ij \rangle} (|\phi_j^A\rangle\langle\phi_i^B| + |\phi_i^B\rangle\langle\phi_j^A|). \quad (3.4)$$

La suma es sobre los vecinos cercanos, y esto lo denotamos por $\langle ij \rangle$. La energía de enlace es $t = 2.8 \text{ eV}$, y $|\phi_i^{A/B}\rangle$ son los orbitales p_z de los átomos de carbono de la sub-red A y B , respectivamente, ya que solo tomamos en cuenta los electrones π . Como se menciona en la sección 2.5, la energía se mide en múltiplos de t , la cual es la unidad natural para la energía del grafeno.

3.2.2. Estructura electrónica

Para resolver el Hamiltoniano (3.4) se propone la siguiente función de prueba

$$|\psi\rangle = \sum_j e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{R}_j} (a|\phi_j^A\rangle + b|\phi_j^B\rangle), \quad (3.5)$$

donde \mathbf{R}_j es la posición en la red en la que se evalúa la función de onda, y \mathbf{k} es el vector de onda. De acuerdo al teorema de Bloch, la función de onda debe ser periódica, cumpliendo la condición que al ser evaluada entre dos puntos \mathbf{R}_1 y \mathbf{R}_2 , la función de onda solo difiere por una fase $e^{i\mathbf{k}\cdot(\mathbf{R}_1-\mathbf{R}_2)}$, condición que la función propuesta satisface.

Para evaluar la función de prueba, esta se sustituye en el Hamiltoniano (3.4), y después se aplica el bra $\langle\phi_l^{A/B}|$, y con la relación de ortogonalidad $\langle\phi_l^\alpha|\phi_j^\beta\rangle = \delta_{\alpha\beta}\delta_{lj}$, obtenemos

el sistema de ecuaciones siguiente

$$\begin{pmatrix} 0 & h(\mathbf{k}) \\ h^*(\mathbf{k}) & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} a \\ b \end{pmatrix} = E(\mathbf{k}) \begin{pmatrix} a \\ b \end{pmatrix}, \quad (3.6)$$

donde

$$h(\mathbf{k}) = -te^{3ik_x a} \left[1 + 2e^{-i3k_x a/2} \cos(\sqrt{3}k_y a/2) \right]. \quad (3.7)$$

Resolviendo el sistema de ecuaciones (3.6), encontramos las eigenenergías que se muestran a continuación

$$E_{\pm}(\mathbf{k}) = \pm t \left[3 + 4 \cos\left(\frac{\sqrt{3}k_x a}{2}\right) \cos\left(\frac{\sqrt{3}k_x a}{2}\right) + 2 \cos(\sqrt{3}k_y a) \right]^{1/2}. \quad (3.8)$$

La estructura de bandas del grafeno está dada por la relación de dispersión (3.8), la cual describe el espectro de energía de un electrón en la red de grafeno, en función de su vector de onda. La estructura de bandas, dada por la ecuación (3.8), se representa en la figura 3.3 La estructura de bandas consiste en dos bandas etiquetadas por $\lambda = \pm 1$, cada una contiene el mismo número de estados.

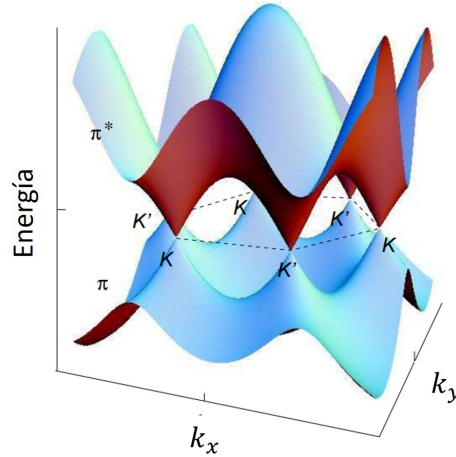


Figura 3.3: Estructura de bandas del grafeno. La energía es función del vector de onda (k_x, k_y) . Podemos distinguir la banda de valencia π , de la banda de conducción π^* .

Cada electrón ocupa un orbital p_z . En consecuencia del espín del electrón, cada uno de estos orbitales puede albergar hasta dos electrones, por ende las bandas están ocupadas hasta la mitad. La banda inferior con $\lambda = -1$, que se denomina banda de valencia π , posee todos sus estados ocupados, mientras que la banda superior con $\lambda = +1$, se denomina banda de conducción π^* , y está completamente vacía. La energía de Fermi se encuentra situada en los puntos donde la banda de valencia, π , se toca con la banda de conducción, π^* . Estos puntos están localizados en las esquinas de la zona de Brillouin, las cuales se denotan como \mathbf{K} y \mathbf{K}' .

3.3. Fermiones de Dirac

La estructura de bandas del grafeno posee una propiedad importante cerca de los puntos \mathbf{K} y \mathbf{K}' . En estos puntos ambas bandas se tocan, por lo que no es propiamente un semiconductor, ni un metal, si no mas bien un semimetal. Aplicando una expansión de Taylor, en la ecuación (3.7), alrededor de los puntos \mathbf{K} o \mathbf{K}' obtenemos un comportamiento lineal. Si se usa el cambio de variable $\mathbf{q} = \mathbf{k} - \mathbf{K}$ ($\mathbf{q} = \mathbf{k} - \mathbf{K}'$), con $\mathbf{q} \ll 1$, se obtiene

$$h_{\mathbf{K}/\mathbf{K}'}(\mathbf{q}) \approx -\hbar v_F (iq_x \pm q_y), \quad (3.9)$$

donde v_F se denomina como la velocidad de Fermi, y está definida como

$$v_F = \frac{3at}{2\hbar}. \quad (3.10)$$

Bajo la aproximación (3.10), podemos obtener un nuevo hamiltoniano (para cada punto, \mathbf{K} y \mathbf{K}'). Al igual que en (3.6), estos hamiltonianos los podemos expresar por medio de una matriz

$$H_{\mathbf{K}/\mathbf{K}'} = \hbar v_F \begin{pmatrix} 0 & q_x \mp iq_y \\ q_x \pm iq_y & 0 \end{pmatrix} = \hbar v_F (\sigma_x q_x \pm \sigma_y q_y), \quad (3.11)$$

donde σ_x y σ_y son las dos primeras matrices de Pauli. El signo positivo está asociado al punto \mathbf{K} , mientras el signo negativo al punto \mathbf{K}' , y que se denomina como índice de valle.

Tenemos un análogo bidimensional del hamiltoniano para Fermiones ultra-relativistas sin masa [28]. La diferencia en este caso es que, la velocidad de la luz c es reemplazada por la velocidad de Fermi, la cual es 300 veces menor, $v_F \approx c/300$, además en la ecuación (3.11) las matrices de Pauli no operan sobre el espín, sino sobre el grado de libertad asociado a las sub-redes A y B . A este grado de libertad de los electrones se le llama pseudoespín de la subred. La relación de dispersión para el Hamiltoniano (3.11) es lineal, de forma que obtenemos

$$E(\mathbf{q}) = \hbar v_F |\mathbf{q}|. \quad (3.12)$$

Esta relación de dispersión es cónica alrededor de los dos puntos \mathbf{K} y \mathbf{K}' , que por ende se llaman también puntos de Dirac. El grado de libertad, que un electrón puede ocupar en el valle alrededor del punto \mathbf{K} y \mathbf{K}' se llama pseudoespín de valle. Estas excepcionales propiedades hacen el grafeno cualitativamente diferente a otros materiales.

Capítulo 4

Vórtices de corriente

4.1. Benceno

Los resultados que se muestran a continuación corresponden al benceno, el cual es un hidrocarburo aromático de fórmula molecular C_6H_6 , que se puede considerar como la nano-estructura más pequeña del grafeno ya que consiste de solo un anillo de átomos de carbono. En este sistema se usan contactos con un parámetro de acoplamiento de $\eta = 0.1$. Los contactos están acoplados a dos átomos de la molécula, uno como la fuente y el otro el drenaje. Se desprecian los efectos de los átomos de hidrógeno en los bordes. Se estudia el patrón en la transmisión local mediante la descomposición espectral y también las propiedades de la transmisión circular.

4.1.1. Descripción de la circulación de corriente en el Benceno

El nanosistema consta de una red de átomos, sobre esta red se forman los patrones de transmisión para los electrones que fluyen por el nanosistema. Por medio de la transmisión local (2.32), podemos identificar las distintas formas en la que la corriente fluye a través del sistema.

Los patrones de transmisión se constituyen por los valores de T_{ij} , ecuación (2.32), y por ende dependen de la energía de los electrones. En la figura 4.1, la transmisión local se representa por medio de flechas de diferente tamaño. La dirección de la flecha indica la dirección en la cual los electrones se transmiten del sitio i al sitio j . El tamaño indican la magnitud relativa, tal que la flecha mas grande representa la transmisión local máxima normalizada del sistema. Debemos tener en cuenta que las flechas no representan el valor absoluto de la transmisión local.

En la figura 4.1 (a), podemos observar algunos patrones de transmisión en el benceno para dos energías de electrones. Se destaca que la primera configuración de los contactos no presenta ningún patrón circular, si no que la corriente fluye igual en ambos lados del benceno. Podemos ver un patrón circular en las otras dos configuraciones de los contactos, es decir que el patrón en la transmisión local sigue un circuito circular,

lo cual denominamos vórtices.

Por medio de T_C , la transmisión circular (2.35), podemos cuantificar la circulación de electrones al rededor del anillo hexagonal. Mas adelante se aplica lo mismo en la red del nanografeno. La transmisión circular se representa por un gradiente de color que observamos dentro del anillo hexagonal en la figura 4.1 (a), el cual indica la transmisión circular normalizada. Tonalidades verdes indican una circulación predominantemente en la dirección de las manecillas del reloj $T_C < 0$, las azules indican la dirección opuesta $T_C > 0$, el color blanco indica que $T_C = 0$, véase gradiente de colores en la figura 4.1. Sin embargo, una tonalidad azul o verde no necesariamente indica un vórtice completo, sino que la circulación de la corriente es predominante en la dirección del giro.

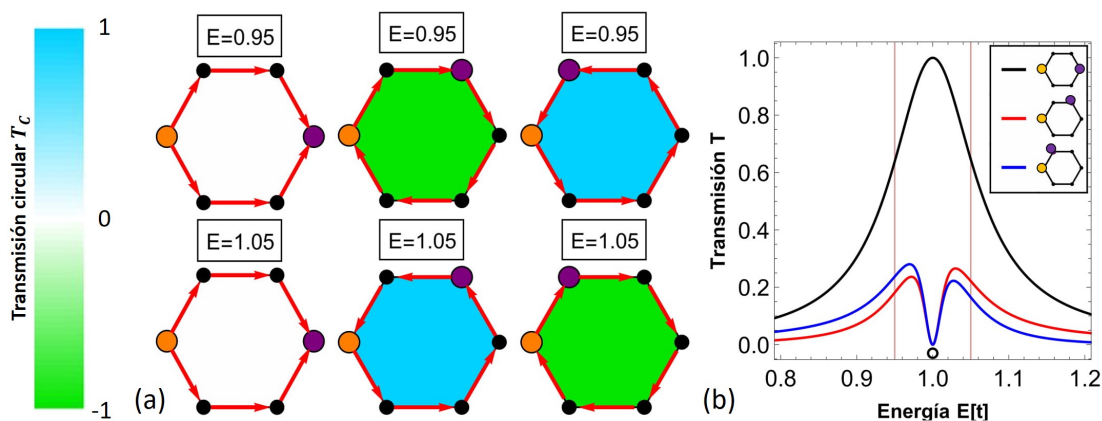


Figura 4.1: (a) Patrones en la transmisión local normalizada para el benceno, calculada mediante el método NEGF. El color en el anillo indica la magnitud de la transmisión circular normalizada, los sitios naranjas y morados indican la conexión a la fuente y al drenaje, respectivamente. (b) Transmisión del benceno, para las tres configuraciones mostradas en (a), 'para', 'meta' y 'ortho' en orden descendente. Las franjas rojas representan la energía en la que se evalúa la transmisión circular (2.35).

La transmisión T (2.31) y la transmisión local T_{ij} (2.32) son calculadas mediante el método de NEGF. La transmisión se muestra en la figura 4.1 (b) para diferentes configuraciones de los contactos, el círculo abierto representa una eigenenergía del Hamiltoniano de amarre fuerte para el sistema cerrado H (en ausencia de los contactos). Para este sistema cerrado, el nivel energético $E = 1$ es degenerado. Para cada configuración de los contactos se puede observar en la función de transmisión resonancias o anti-resonancias, dependiendo de la posición de los contactos [29]. Dentro de la química orgánica se denominan, configuración 'para' a la primera, 'meta' a la segunda y 'ortho' a la última configuración de izquierda a derecha. La configuración de los contactos influye en la formación de las anti-resonancias o resonancias. Para la configuración 'para' observamos una resonancia, es decir un máximo en $E = 1$ y observamos una circulación nula a través del benceno. Sin embargo, la corriente es

completamente circular en las otras configuraciones de los contactos, junto con una anti-resonancia o mínimo en la transmisión en $E = 1$. Además, al sobrepasar el nivel $E = 1$, la circulación cambia bruscamente de sentido. Podemos apreciar estos cambios de la circulación en las energías $E = 0.95$ y $E = 1.05$.

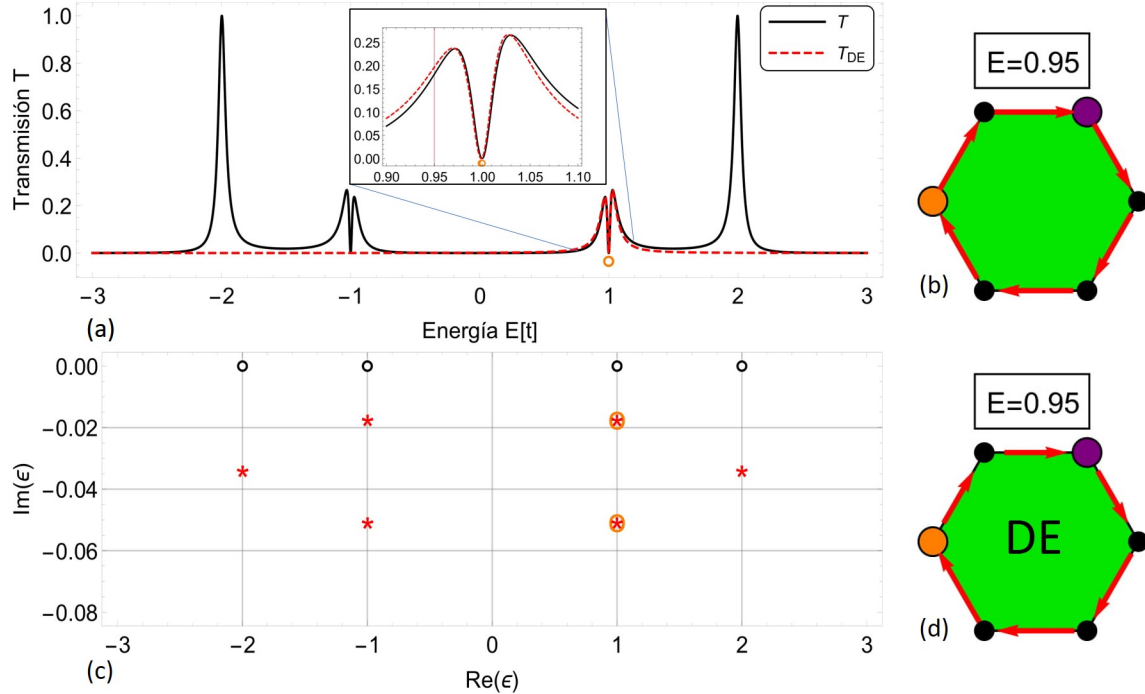


Figura 4.2: (a) Transmisión del benceno como función de la energía se indica en la línea negra, y T_{DE} , ecuación (2.42), en la línea roja rayada. (b) Patrón formado por la transmisión local T_{ij} . (c) Las eigenenergías para el sistema cerrado H se indican en círculos negros, las eigenenergías del sistema abierto con asteriscos rojos y las eigenenergías usadas en el cálculo de T_{DE} y T_{ij}^{DE} con círculos naranjas. Este ultimo conjunto lo llamamos A . (d) Patrón formado por T_{ij}^{DE} , ecuación (2.40), tomando en cuenta en la descomposición espectral solo el conjunto A .

En la figura 4.2 (a) se observa la transmisión T del benceno para la configuración 'meta'. La cual posee una anti-resonancia o mínimo en $E = 1$. En (b) vemos que se forma un patrón circular en la transmisión de electrones, es decir, un vórtice de corriente. El vórtice circula en dirección a las manecillas del reloj, tal como lo indica la tonalidad verde.

La descomposición espectral nos permite entender la formación de vórtices mediante las eigenenergías del sistema. En la figura 4.2 (c) representamos las eigenenergías del sistema cerrado en círculos negros, las eigenenergías del sistema abierto con asteriscos rojos y las eigenenergías usadas en la descomposición espectral con círculos naranjas (conjunto A). El acoplamiento de los contactos causa una perturbación en el sistema, en consecuencia las eigenenergías pasan del plano real al complejo. Además, las eige-

energías degeneradas en $E = 1$, del sistema cerrado, se separan en el plano complejo al abrir el sistema.

Usando la ecuación (2.40) para sumar sobre el conjunto A reproducimos el mismo vórtice calculado por NEGF. El resultado de T_{ij}^{DE} se muestra en la figura 4.2 (d). Es importante mencionar que no se cumple la conservación de la corriente dado que no se toman en cuenta todas las eigenenergías. El calculo numérico no necesariamente implica que $T_{ij} = T_{ij}^{DE}$, mas bien, se reproduce la vía de transmisión en la que fluyen los electrones que forman los vórtices del nanosistema.

Al igual que en T_{ij} , podemos usar la descomposición espectral en la transmisión T . Sumando sobre A en la ecuación (2.42) obtenemos T_{DE} , véase la figura 4.2 (a). La descomposición espectral demuestra que T_{DE} describe localmente la transmisión T calculada mediante el método de NEGF. Los círculos naranjas en la figura 4.2 (a), representan la parte real de las eigenenergías del conjunto A .

La descomposición espectral aplicada al conjunto A , nos dice que, solo necesitamos de tan solo dos eigenenergías para poder entender la formación del vórtice en el patrón de la transmisión local [16].

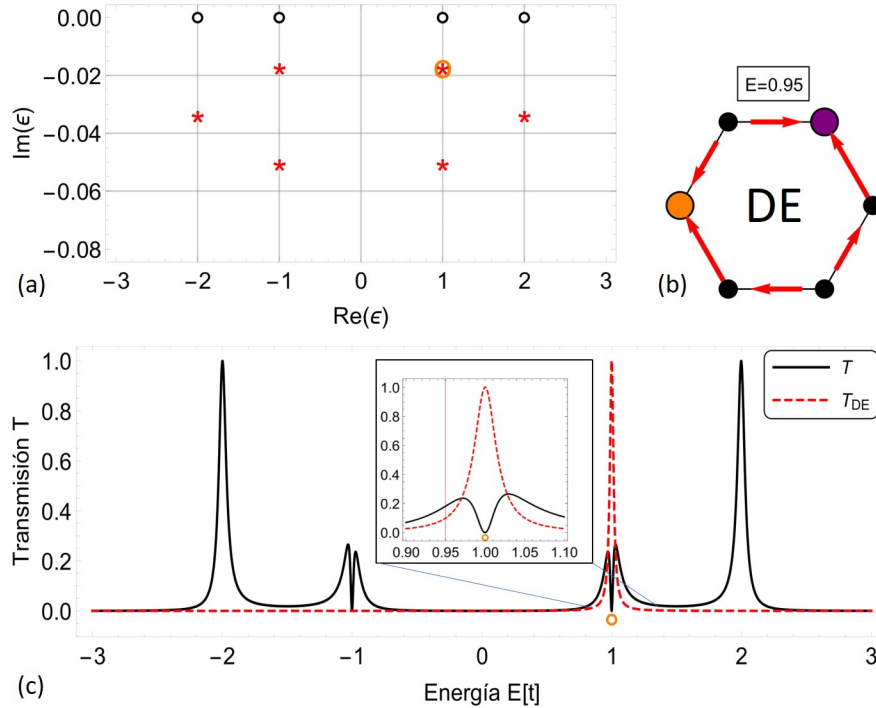


Figura 4.3: (a) Conjunto B, que se obtiene de remover una eigenenergía al conjunto A. Se usa el mismo esquema que en la figura 4.2. (b) Patrón de corriente calculado por medio de T_{ij}^{DE} . (c) Transmisión del benceno T (línea negra) y T_{DE} (línea roja discontinua).

Podemos explicar la formación del vórtice en $E = 1$ mediante los eigenenergía cer-

canos a esta energía. Además, se observa una anti-resonancia en la transmisión. Sin embargo, estas dos eigenenergías son fundamentales para la formación del vórtice. Sin la participación de alguno de estos dos, observaremos que el patrón no corresponde al vórtice.

En la figura 4.3, se ha removido una de las eigenenergías correspondientes de A , a este nuevo conjunto lo llamamos B y que es representado por círculos naranja véase figura 4.3 (a). Vemos que la descomposición espectral no reproduce el vórtice e inclusive la corriente no se conserva, véase figura 4.3 (b). Además, no replicamos la transmisión del sistema, véase figura 4.3 (c).

Los resultados nos muestran que es posible explicar localmente el transporte electrónico del sistema y la formación de vórtices en el flujo de corriente, mediante solo dos eigenenergías. Sin embargo, ambas son indispensables para explicar tanto la formación de vórtices, como la transmisión del sistema.

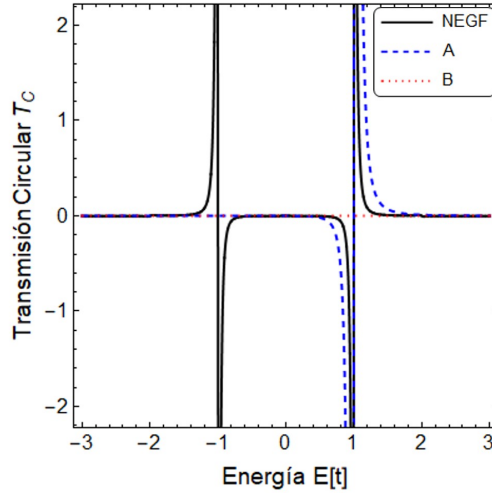


Figura 4.4: Transmisión circular en el benceno, $T_{i,j}$ obtenida por NEGF, línea negra sólida y mediante la descomposición espectral $T_{i,j}^{DE}$ con los conjuntos A y B , línea discontinua y punteada, respectivamente.

Como se menciona en la sección 3.4.2, la transmisión circular nos permite cuantificar la magnitud de la circulación en un anillo. Si calculamos la transmisión circular T_C con la ecuación (2.35), describiremos la circulación sobre el anillo del benceno, dado que es un solo anillo podemos escribir T_C . En la figura 4.4 (curva solida negra) se muestra la transmisión circular $T_C(E, \gamma)$, vemos que existe un cambio brusco del signo de la transmisión circular en $E = 1$. Esto quiere decir que el vórtice cambia abruptamente de sentido al pasar por esta energía, que también discutimos en la figura 4.1.

También, podemos calcular la transmisión circular por medio de la descomposición espectral T_C^{DE} , ecuación (2.41). La línea discontinua azul en la figura 4.4, representa T_C^{DE} aplicando la descomposición espectral en el conjunto A . La línea punteada roja

representa el análogo pero con la descomposición espectral aplicada al conjunto B . Efectivamente, la descomposición espectral de T_C aplicada en A explica localmente el mismo comportamiento que lo obtenido mediante NEGF. Mientras que usando B no muestra el mismo comportamiento en la transmisión circular, al contrario, describe un flujo circular nulo.

4.2. Nanografeno 3×3

En esta sección se estudian los patrones de transmisión en el flujo de corriente del nanografeno 3×3 para diferentes configuraciones de los contactos. El sistema posee un parámetro de acoplamiento $\eta = 0.1$ y cada contacto consiste en un único átomo. Además, se estudian las eigenenergías que participan en la formación de los vórtices por medio de la descomposición espectral. Se estudia también el comportamiento de la transmisión circular en el nanografeno para diferentes configuraciones de los contactos. Así como el efecto del parámetro de acoplamiento en los vórtices del flujo de corriente.

4.2.1. Efectos de la configuración de los contactos en la formación de vórtices.

Al igual que el benceno, se describe la transmisión local $T_{i,j}$ mediante flechas de diferente tamaño en la nanocelda de grafeno 3×3 . Si variamos la posición de los contactos, observaremos la formación de vórtices en la corriente local para ciertas configuraciones en diferentes energías, efecto que se estudia en esta sección.

En la figura 4.5, se muestra el patrón de transmisión en $E = 2.285$ para diferentes configuraciones de los contactos. Observamos que la primera configuración nos presenta ciertas inhomogeneidades en el flujo de corriente, pero ningún vórtice bien definido, mientras que las siguientes tres muestran un flujo circular que se extiende a más de un solo anillo. Destacan las últimas dos configuraciones, las cuales presentan el mismo gran vórtice central.

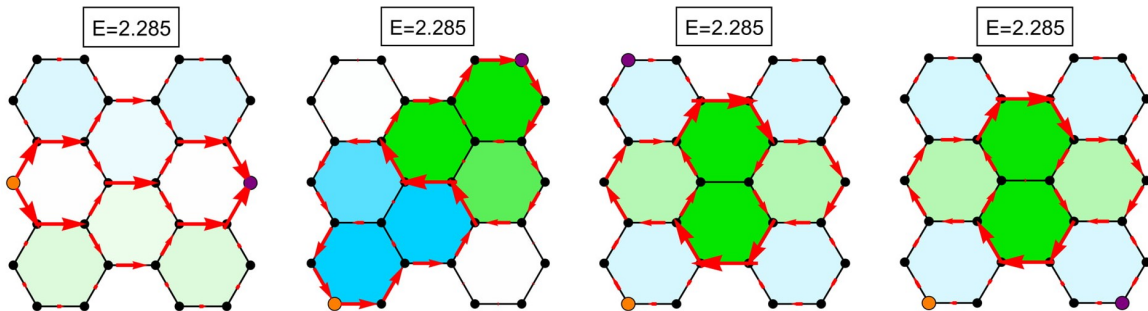


Figura 4.5: Patrones en la transmisión local. Se pueden observar vórtices en la vecindad de $E = 2.285$. Sin embargo, para la primera configuración no se observa ningún vórtice.

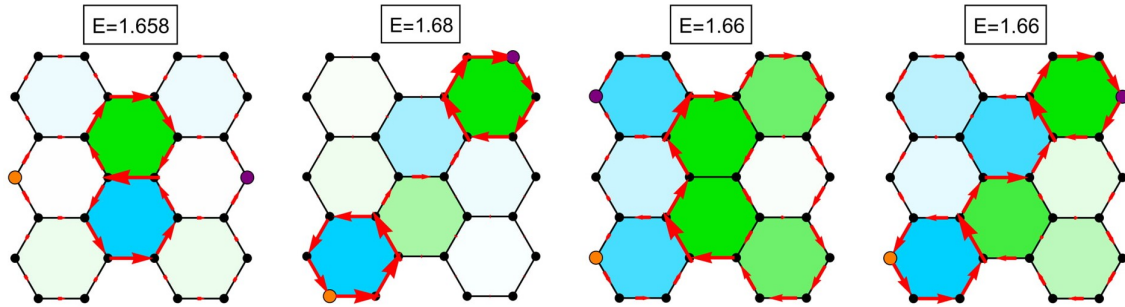


Figura 4.6: Patrones en la transmisión local. Se pueden observar vórtices cerca de $E = 1.658$, a diferencia de la primer configuración.

Sin embargo, la primera configuración de la figura 4.5 no necesariamente impide que se presenten vórtices en el patrón de la transmisión. En la figura 4.6 observamos el efecto de diferentes configuraciones en los contactos alrededor de la energía¹ $E = 1.65$. En la primera configuración se muestra que el nanosistema no presenta ningún vórtice bien definido en $E = 2.285$, pero esto no implica que la configuración de los vórtices anule por completo la formación de vórtices, ya que si los presenta en $E = 1.658$. También, notamos que otras configuraciones presentan vórtices alrededor de la misma energía.

Esto nos indica que en ciertos rangos de energía, se forman vórtices en el flujo de corriente. Además, las configuraciones de los contactos puede anular o maximizar el tamaño de la corriente circular.

¹En este caso los vórtices se presentan en una vecindad de esta energía. Sin embargo, algunos sistemas presentan vórtices en vecindades muy reducidas, y son susceptibles a cambios en la tercera cifra decimal.

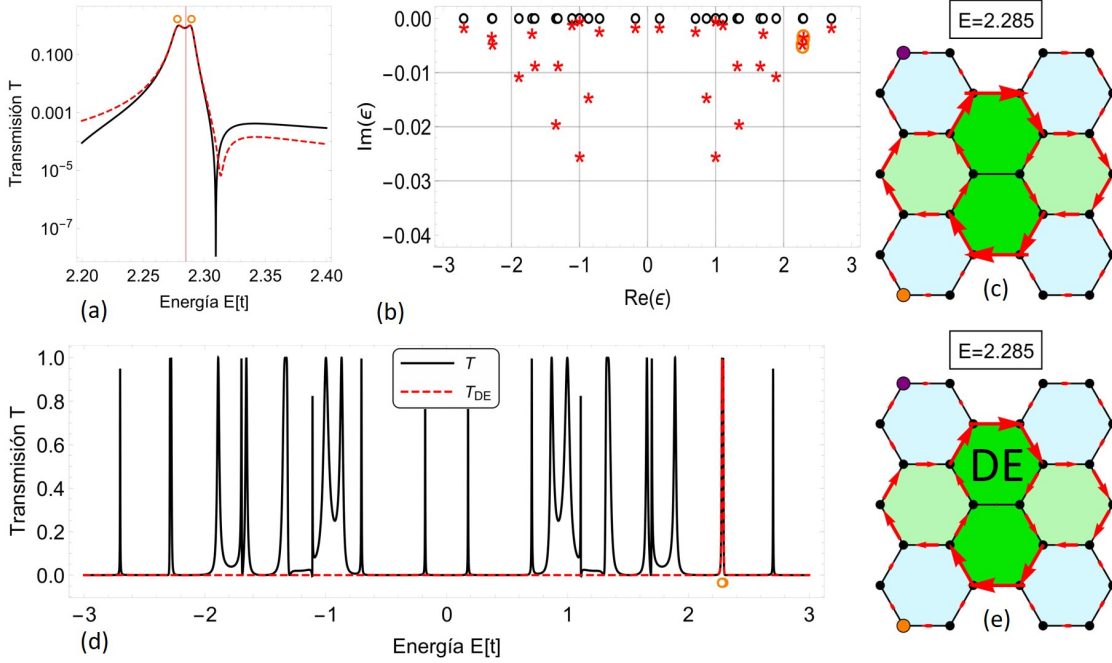


Figura 4.7: (a) Transmisión T representada en línea continua negra, T_{DE} en roja discontinua, ambas en escala logarítmica. (b) Las eigenenergías del sistema cerrado, se indican en círculos negros, las eigenenergías del sistema abierto con asteriscos rojos y las eigenenergías usadas en el cálculo de T_{DE} y T_{ij}^{DE} con círculos naranjas. Este ultimo conjunto lo llamamos A . (c) Patrón formado por la transmisión local T_{ij} . (d) Transmisión T representada en línea continua negra, T_{DE} en roja discontinua. (e) Patrón formado por T_{ij}^{DE} , con la descomposición espectral aplicada en el conjunto A .

La posición de los contactos, al igual que en el benceno, influye en la formación de vórtices. Sin embargo, esto también influye ampliamente en la participación de las eigenenergías que explican estos vórtices. En la figura 4.7, se muestran los resultados correspondientes a una nanocelda de grafeno. Los contactos están sobre las esquinas de un mismo borde.

En el benceno, podemos explicar los vórtices en los patrones de la transmisión mediante dos eigenenergías [16]. Para el nanografeno es similar. En la figura 4.7 (a), se muestra la transmisión en escala logarítmica a detalle en $E = 2.285$, y observamos que T_{DE} reproduce bien la transmisión, aunque su mínimo (anti-resonancia) no es tan pronunciado como el calculado por NEGF. La descomposición espectral parece explicar el fenómeno solo localmente cerca de la parte real de las eigenenergías. La descomposición espectral se aplica al conjunto A el cual se representa en la figura 4.7 (b). La representación de las eigenenergías es igual que en la sección 4.1.1. En la figura 4.7 (c) se muestra la transmisión local T_{ij} calculada mediante el método NEGF. El patrón de corriente que se forma en $E = 2.285$ corresponde al de un gran vórtice de corriente central. En la figura 4.7 (d), observamos la transmisión T y T_{DE} . La transmisión muestra múltiples resonancias que corresponden a las eigenenergías, y la descomposición espectral reproduce la resonancia causada por las eigenenergías

del conjunto A . En la figura 4.7 (e), se muestra la transmisión local T_{ij}^{DE} calculada por la descomposición espectral, aplicada al conjunto A . El mismo vórtice central de la transmisión local se reproduce usando solo dos eigenenergías en la descomposición espectral.

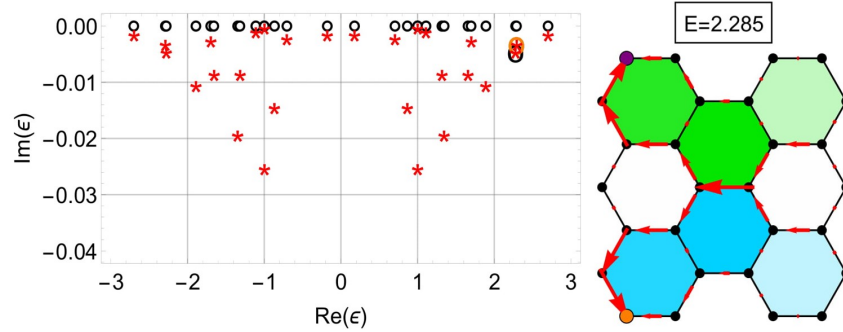


Figura 4.8: Descomposición espectral $T_{i,j}^{DE}$ con el conjunto de eigenenergías marcados en el círculo naranja (conjunto B). Este no muestra el mismo patrón como en la figura 4.7 (c) y (d).

Al igual que el benceno ambas eigenenergías son fundamentales para explicar este fenómeno. Si removemos alguno de estas dos, no obtendremos el vórtice en el flujo de corriente. En la figura 4.8, la eigenenergía removida se marca con el círculo de color negro. Al nuevo conjunto lo llamamos B . Desde B , calculamos la transmisión local mediante la descomposición espectral $T_{i,j}^{DE}$, y no logramos reproducir el mismo vórtice, y además, la corriente no se conserva.

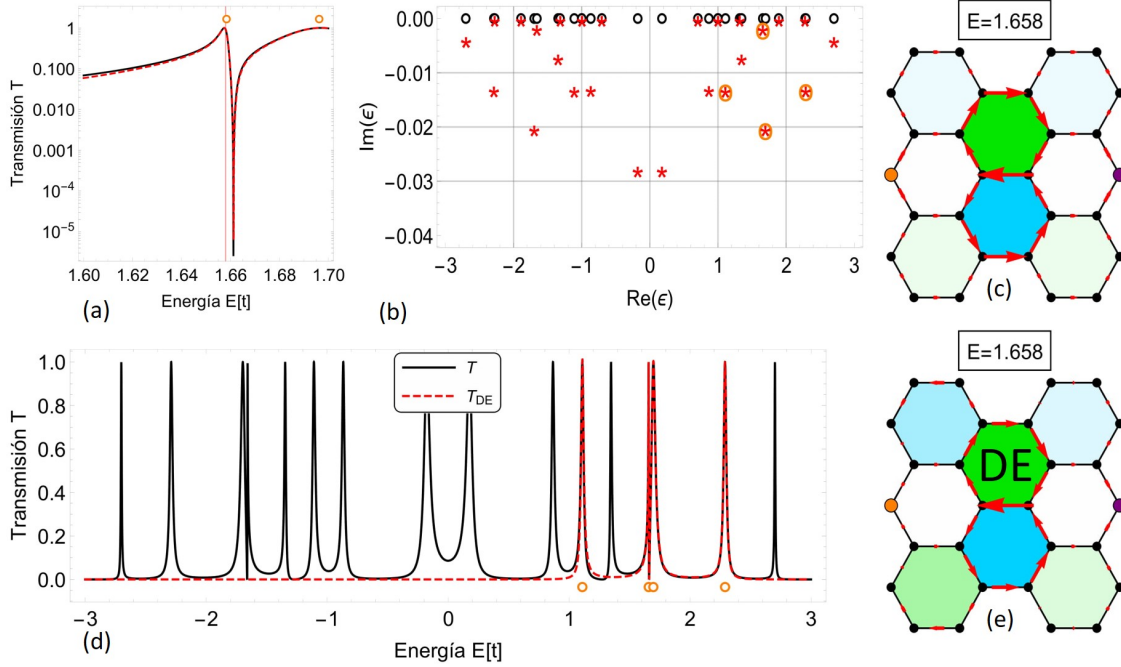


Figura 4.9: (a) Transmisión T representada en línea continua negra, T_{DE} en roja discontinua, ambas en escala logarítmica. (b) Las eigenenergías del sistema cerrado, se indican en círculos negros, las eigenenergías del sistema abierto con asteriscos rojos y las eigenenergías usadas en el cálculo de T_{DE} y T_{ij}^{DE} con círculos naranjas. Este ultimo conjunto lo llamamos A . (c) Patrón formado por la transmisión local T_{ij} . (d) Transmisión T representada en línea continua negra, T_{DE} en roja discontinua. (e) Patrón formado por T_{ij}^{DE} , con la descomposición espectral aplicada en el conjunto A .

Sin embargo, los vórtices no siempre pueden ser explicados solo por dos eigenenergías. Si tomamos la primera configuración que se muestra en la figura 4.6, observaremos que es más complicado explicar el vórtice.

En la figura 4.9 (a), se muestra la transmisión en escala logarítmica a detalle cerca de $E = 1.658$, donde la transmisión es casi máxima. La descomposición espectral se aplica al conjunto A el cual se representa en la figura 4.9 (b). En la figura 4.9 (c), podemos analizar los vórtices en la energía² $E = 1.658$ y veremos que este patrón no se puede explicar completamente solo por dos eigenenergías sino por cuatro de ellas. Cabe destacar que son dos vórtices simétricos, tanto en la geometría como en su circulación, es decir, giran en la dirección contraria. El conjunto A explica localmente la transmisión, véase la figura 4.9 (d). Además, T_{DE} explica las resonancias de cada una de las eigenenergías del conjunto A . En la figura 4.9 (e), se muestra que la transmisión local T_{ij}^{DE} explica los vórtices de corriente.

²Para esta configuración se obtiene un máximo en la transmisión para esta energía. Sin embargo, los vórtices observados se presentan en una vecindad sobre esta energía, no solo sobre $E = 1.658$ específicamente.

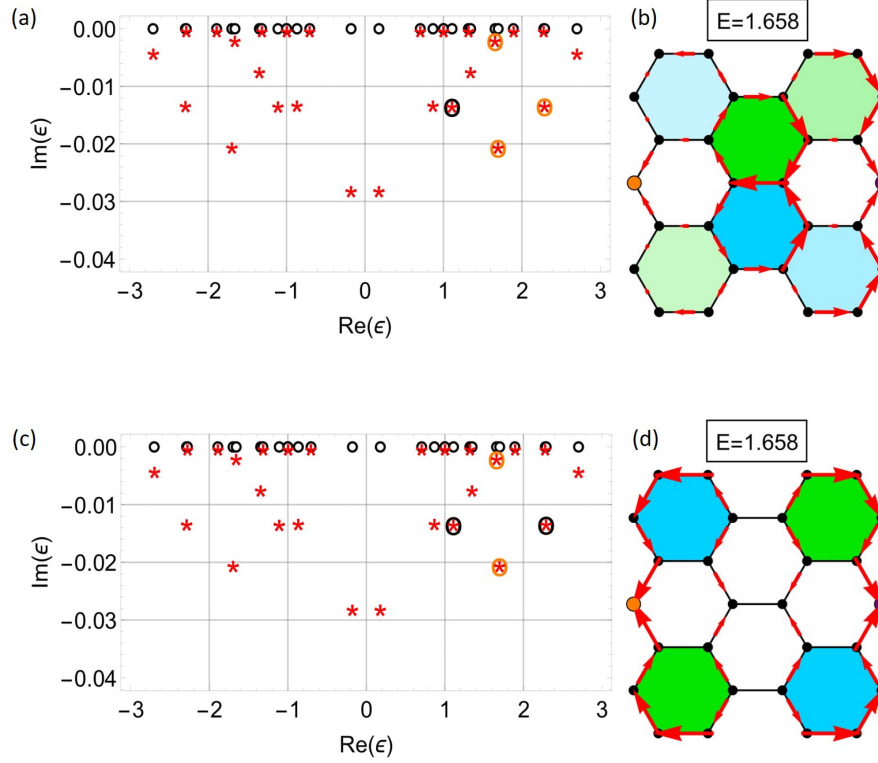


Figura 4.10: (a) Eigenenergías del sistema, las cuales se representan bajo el mismo esquema que en la figura 4.9. Se remueve una eigenenergía del conjunto A , la cual se representa en un círculo negro, al nuevo conjunto lo llamamos B . (b) Patrón formado por T_{ij}^{DE} , con la descomposición espectral aplicada en el conjunto B . (c) Eigenenergías del sistema, las cuales se representan bajo el mismo esquema que en la figura 4.9. Se remueven dos eigenenergías del conjunto A , las cuales se representan en círculos negros, al nuevo conjunto lo llamamos C . (d) Patrón formado por T_{ij}^{DE} , con la descomposición espectral aplicada en el conjunto C .

Al igual que los sistemas anteriores, si tomamos cualquier eigenenergía del conjunto A y la removemos, no podremos reproducir el mismo patrón en el flujo de corriente. En la figura 4.10 (a), el conjunto B (círculos naranjas) no contiene una de las eigenenergías del conjunto A . El patrón calculado por T_{ij}^{DE} es cualitativamente diferente de la figura 4.9 (c) y (e), ya que posee un flujo de corriente más pronunciado sobre el lado derecho del nanografeno, véase figura 4.10 (b). Sin embargo, los vórtices siguen presentes. Al remover otra de las eigenenergías, el patrón de corriente local cambia de tal forma que los vórtices centrales son suprimidos. En la figura 4.10 (c), se muestran las dos eigenenergías removidas. En la figura 4.10 (d), observamos el patrón de corriente calculado por T_{ij}^{DE} al remover dos eigenenergías. A pesar de que se tomen las eigenenergías cercanas a la energía evaluada, T_{ij}^{DE} es completamente distinto a lo calculado por NEGF, inclusive se borran los vórtices centrales.

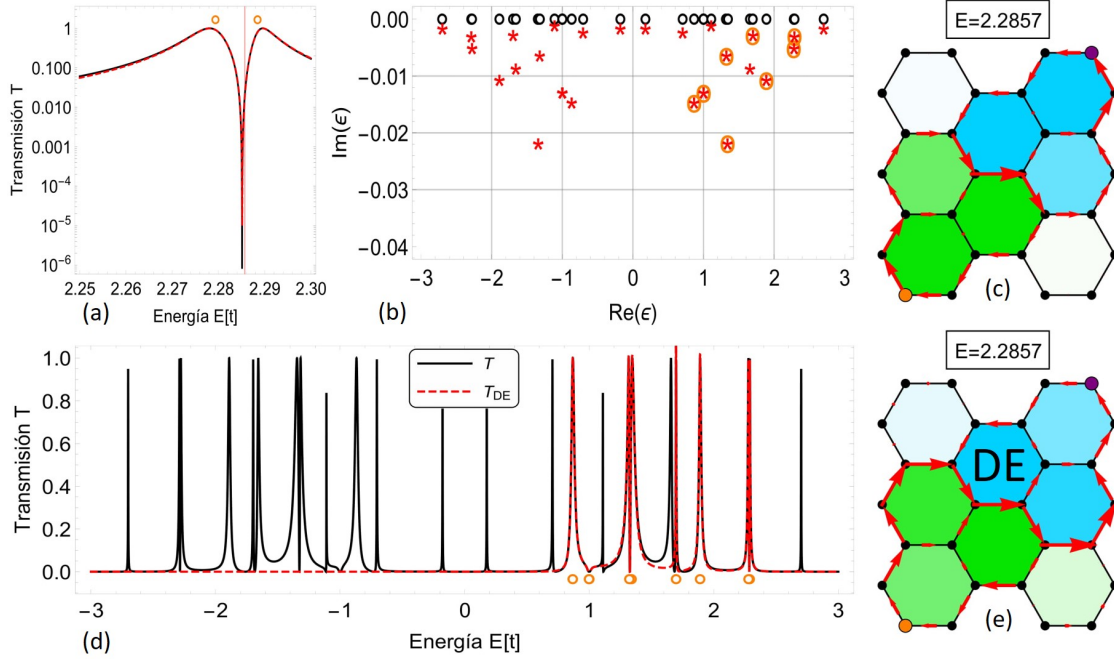


Figura 4.11: (a) Transmisión T representada en línea continua negra, T_{DE} en roja discontinua, ambas en escala logarítmica. (b) Las eigenenergías del sistema cerrado, se indican en círculos negros, las eigenenergías del sistema abierto con asteriscos rojos y las eigenenergías usadas en el cálculo de T_{DE} y T_{ij}^{DE} con círculos naranjas. Este ultimo conjunto lo llamamos A . (c) Patrón formado por la transmisión local T_{ij} . (d) Transmisión T representada en línea continua negra, T_{DE} en roja discontinua. (e) Patrón formado por T_{ij}^{DE} , con la descomposición espectral aplicada en el conjunto A .

Cuando se cambia la posición de los contactos, los patrones en la transmisión local muestran diferentes aspectos [1]. La posición de los contactos afecta la participación de las eigenenergías en la formación de vórtices. Si elegimos la energía $E = 2.285$, como en la figura 4.7, veremos que un arreglo distinto en los contactos aumenta el número de eigenenergías que causan los vórtices.

En la figura 4.11 (a), se muestra la transmisión en escala logarítmica a detalle en $E = 2.2857$, aquí el vórtice se forma cerca de un mínimo. En la figura 4.11 (b), se representa el conjunto A , que se aplica a la descomposición espectral. Este conjunto contiene una mayor cantidad de eigenenergías que los nanosistemas anteriormente visto. En la figura 4.11 (c), se muestran los vórtices cuando la energía es $E = 2.2857$, y a diferencia del caso en la figura 4.7, este caso consta de dos vórtices, y no de un gran vórtice central. Nuevamente, T_{DE} explica las resonancias asociadas a cada una de las eigenenergías del conjunto A , véase la figura 4.9 (d). En la figura 4.9 (e), se muestra que la transmisión local T_{ij}^{DE} explica los vórtices de corriente.

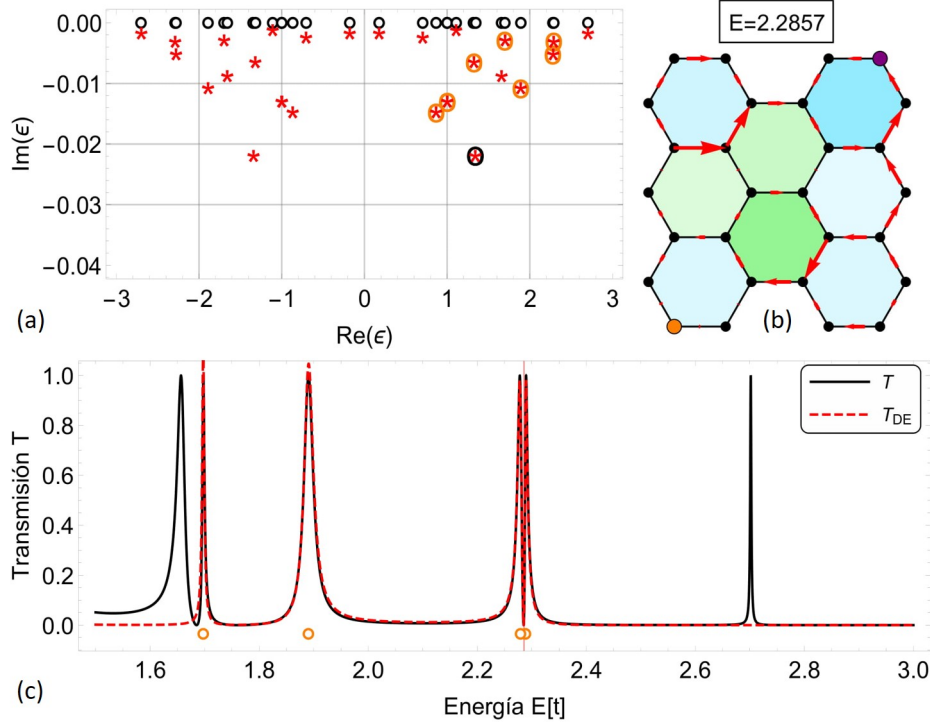


Figura 4.12: (a) Las eigenenergías del sistema cerrado, se indican en círculos negros, las eigenenergías del sistema abierto con asteriscos rojos y las eigenenergías usadas en el cálculo de T_{DE} y T_{ij}^{DE} con círculos naranjas. Este ultimo conjunto lo llamamos B . La eigenenergía removida se representa en un círculo negro. (b) Patrón formado por T_{ij}^{DE} , con la descomposición espectral aplicada en el conjunto B . (c) Transmisión T representada en línea continua negra, T_{DE} en roja discontinua.

Igualmente, al remover cualquier elemento de A conseguimos un nuevo conjunto B , véase figura 4.12 (a). Teniendo en cuenta esto, en el desarrollo espectral no se reproduce el mismo vórtice en el flujo de corriente, véase figura 4.12 (b). Por lo que el conjunto A es el conjunto mínimo de eigenenergías fundamentales para explicar la formación de los vórtices de la figura 4.11. Por último, vemos que la transmisión T puede ser explicada localmente en $E = 2.285$ por dos eigenenergías, véase la figura 4.12 (c). Lo cual nos indica que cada eigenenergía explica las resonancias provocadas por ella misma, es decir, determinan la transmisión (transporte total por el sistema). Sin embargo, en el transporte local pueden producirse vórtices de corriente, los cuales no contribuyen a la corriente total que pasa por el sistema. Los vórtices están explicados por la interferencia de varios eigenestados.

4.2.2. Transmisión circular

Al igual que el benceno, podemos definir la transmisión circular $T_C(E, \gamma)$ en cada anillo hexagonal de la red del nanografeno. El principal problema radica en el número de anillos que el nanografeno posee. Se podría analizar cada anillo como en [16, 19], no obstante, dada la cantidad de anillos que el nanografeno posee, se recurre a otro

método para analizar la transmisión circular. Las cantidades

$$T_C^\alpha(E) = \sum_{\gamma} |T_C(E, \gamma)|, \quad (4.1a)$$

$$T_C^\beta(E) = \left| \sum_{\gamma} T_C(E, \gamma) \right|, \quad (4.1b)$$

permiten analizar el comportamiento de la transmisión circular en el sistema. Estas ecuaciones suman la transmisión circular de cada anillo en formas distintas. Debemos de notar que la condición ($T_C(E, \gamma) > 0$), ó ($T_C(E, \gamma) < 0$) no necesariamente implica la existencia de un vórtice en el anillo γ , sino que indica la existencia de una corriente predominante en el sentido contrario de las manecillas del reloj o al sentido de las manecillas del reloj, respectivamente.

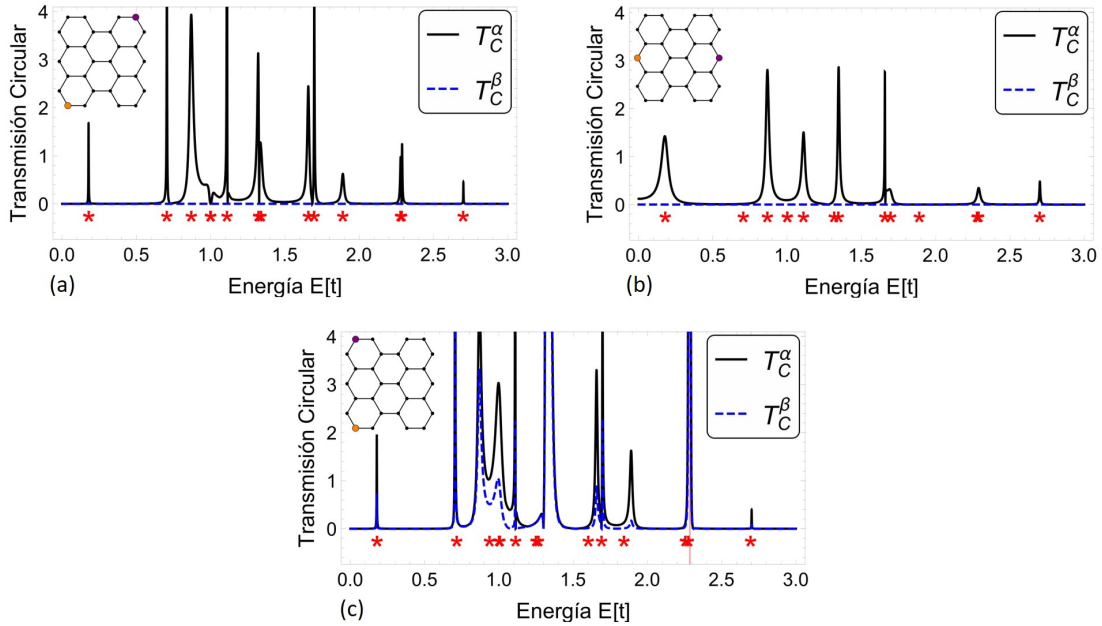


Figura 4.13: Transmisión circular de los sistemas discutidos en la sección 4.2.1. (a) Transmisión circular del sistema de la figura 4.11. (b) Transmisión circular del sistema de la figura 4.9. (c) Transmisión circular del sistema de la figura 4.7. $T_C^\alpha(E)$ en línea solida negra y $T_C^\beta(E)$ en discontinua azul. Los asteriscos rojos representan la parte real de las eigenenergías para cada sistema abierto.

La figura 4.13 muestra la transmisión circular que es resultado de aplicar las ecuaciones (4.1a) y (4.1b) a los sistemas descritos en la sección 4.2.1. Podemos notar que existe un incremento en T_C^α cerca de la parte real de las eigenenergías del sistema abierto. Los máximos en T_C^α nos indica que existen anillos que tienen una circulación predominante en algún sentido de las manecillas del reloj. Los máximos sobresalen por el hecho que los vórtices se encuentran en las vecindades de las eigenenergías casi degeneradas.

En la figura 4.13 (a) y (b), observamos que $T_C^\beta = 0$. Recordemos que esta expresión corresponde al valor absoluto de la suma de todas las transmisiones circulares. Por otro lado T_C^α es diferente de cero en las vecindades de las eigenenergías. La diferencia entre T^α y T^β nos indica que por cada anillo, el flujo es predominante en alguna dirección circular, y existe otro anillo con la misma magnitud en su transmisión circular pero en sentido contrario, que al sumar sus magnitudes el resultado es cero. Este comportamiento se corresponde a una simetría de la circulación del nanosistema. En la figura 4.13 (c), $T_C^\beta \neq 0$ porque esta configuración en los contactos rompe la simetría en el patrón de la transmisión local. Resalta el hecho de que en $E = 2.285$, observamos un gran vórtice central, véase figura 4.7. Ciertas configuraciones en los contactos inducen simetrías en el patrón del flujo de corriente, mientras que otras las rompen.

4.2.3. Efectos del acoplamiento en el nanografeno

Un importante comportamiento de los sistemas que se han mostrado en la sección 4.2.1, es que, al cambiar la energía de acoplamiento η , no se muestra ningún cambio en el patrón del flujo de corriente, es decir, la manera en que los electrones circulan por el nanografeno es independiente de la intensidad del acoplamiento de los contactos.

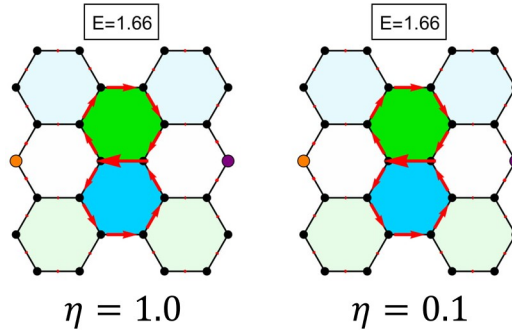


Figura 4.14: (a) Patrón de corriente en $E = 1.66$, con $\eta = 1.0$. (b) Patrón de corriente en $E = 1.66$, con $\eta = 0.1$. No se observa ningún cambio en la vía de transmisión de los electrones.

El parámetro η controla la energía de acoplamiento en los contactos [16]. En la sección 4.2.1 y 4.2.2 se trató el sistema con $\eta = 0.1$. Al aumentar el valor de este parámetro el acoplamiento de los contactos es más fuerte. Esto induce a una mayor perturbación en las eigenenergías. Sin embargo el patrón en el flujo de corriente no se ve afectado, véase figura 4.14 (a) y (b). Debemos resaltar que este comportamiento es válido cuando los contactos están acoplados a un solo átomo.

El efecto de η también se observa en la transmisión, de forma que los picos en la transmisión para $\eta = 0.1$ se ensanchan al aumentar a $\eta = 1.0$, véase figura 4.15 línea negra. Aquí usamos el sistema tratado en la figura 4.14.

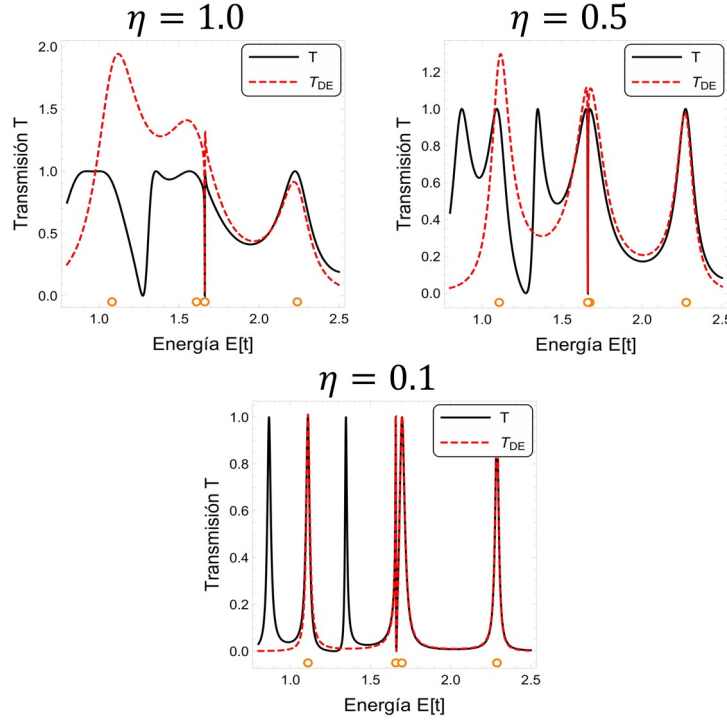


Figura 4.15: Transmisión T y T_{DE} para el sistema estudiado en la figura 4.14, donde $\eta \in \{1.0, 0.5, 0.1\}$. Con un menor acoplamiento, $T_{DE}(E)$ estima mejor la transmisión. Se aplica el conjunto A en la descomposición espectral, donde A es el conjunto de eigenenergías que explica el vórtice en $E = 1.658$.

En la figura 4.15, se aplica la descomposición espectral para $\eta = 0.1$, $\eta = 0.5$ y $\eta = 1.0$, la cual se representa con la línea punteada roja. Cada valor de η nos muestra que a mayor valor de acoplamiento, es más complicado explicar la transmisión mediante la descomposición espectral T_{DE} . El conjunto de eigenenergías que se usa en esta descomposición espectral lo llamamos A . Sin embargo, este mismo conjunto es capaz de explicar o reproducir el mismo vórtice central que mostramos en la figura 4.14 (independientemente del valor de η), el cual no cambia bajo diferentes valores de η . Esto nos indica que el parámetro de acoplamiento η induce diferentes efectos en la transmisión y en la transmisión local.

4.3. Ampliación de contactos en nanografeno 3×3

En esta sección se estudian las propiedades de transporte de una nanocelda de grafeno 3×3 con un fuente, y un drenaje que constan de más de un átomo. A diferencia de los sistemas anteriores, la configuración de los contactos depende de su posición y del número de átomos involucrados.

Los sistemas anteriores, tanto el benceno como el nanografeno 3×3 , se estudiaron considerando solo dos átomos (uno como fuente y otro el drenaje), no obstante podemos aumentar el número de contactos. El incremento en el número de contactos cambia el

patrón de la transmisión local, tal y como se estudia en [1]. Primero, se analizará el comportamiento de la transmisión local y de su simetría bajo ciertas configuraciones con más de dos átomos de contactos.

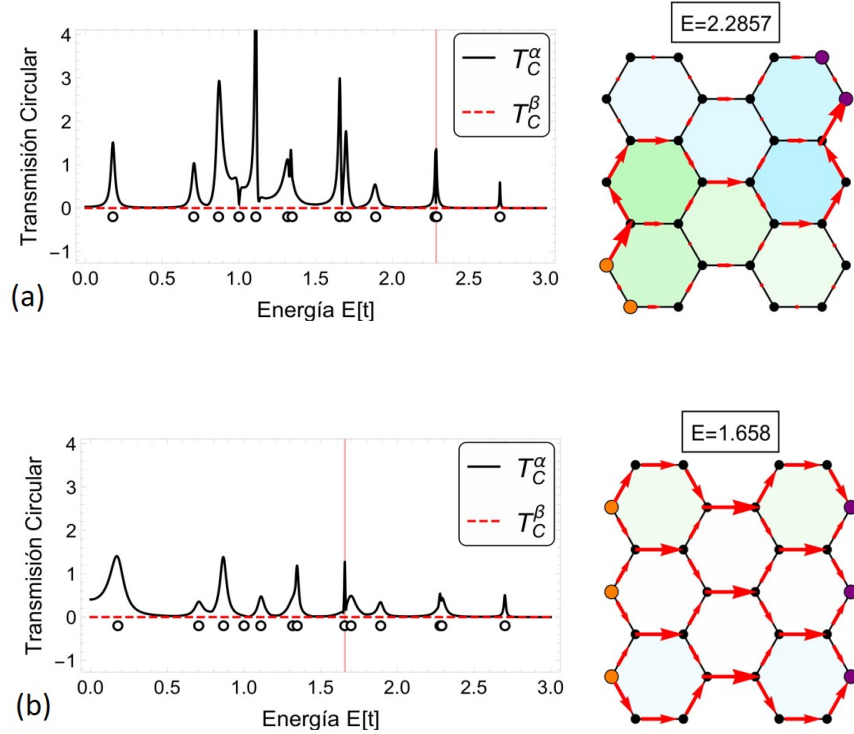


Figura 4.16: (a) y (b) Transmisión circular T_C^α y T_C^β , con la configuración de contactos que se muestra. En ambas observamos $T_C^\beta = 0$; lo que significa que, para cada vórtice que gira en el sentido del reloj existe uno con un giro contra el sentido del reloj.

La figura 4.16 muestra la transmisión circular para dos sistemas con $\eta = 0.1$, cada uno con diferentes configuraciones en los contactos. En ambos casos observamos que $T_C^\beta = 0$, preservándose la simetría discutida en los anillos. Cabe mencionar que a pesar de que existen incrementos en T_C^α , no existen vórtices bien pronunciados en la transmisión local.

En la figura 4.16 (a), vemos que los vórtices formados en la figura 4.11 se disipan, dejando una corriente simétrica que fluye en una sola dirección. En la figura 4.16 (b), el vórtice que se mostró en la figura 4.9 se ve igualmente disipado. En ambos casos la corriente fluye en una sola dirección, aunque en algunos anillos fluye preferentemente sobre alguna dirección circular, lo cual origina los incrementos en T_C^α .

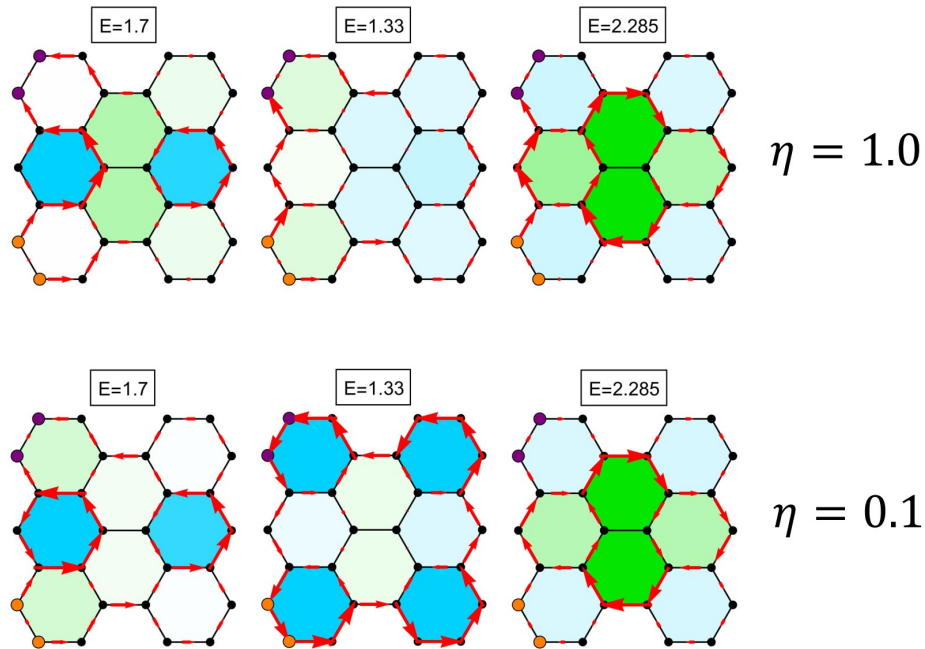


Figura 4.17: Patrones de transmisión local para distintos valores de E . El parámetro de contacto, o de acoplamiento, toma los valores, $\eta = 1.0$ y $\eta = 0.1$.

En cambio, si analizamos la configuración con cuatro contactos en un mismo borde zigzag, véase figura 4.17, observamos múltiples vórtices en distintas energías. Los sistemas mostrados son para $\eta = 0.1$ (panel inferior) y $\eta = 1.0$ (panel superior). En ambos casos vemos que existen distintos vórtices en el sistema, sin embargo, el patrón de flujo de corriente se ve afectado cuando cambia la energía de acoplamiento. Con las energías $E = 1.7$ y $E = 2.285$ es poco distinguible una diferencia, pero en $E = 1.33$ vemos que al disminuir η a 0.1 se da la formación de vórtices en las esquinas del nanosistema.

Estos sistemas nos muestran que un incremento en la cantidad de los átomos de contacto, puede anular la formación de vórtices en el nanosistema. Sin embargo, la simetría en el flujo de corriente se preserva, esto indica que las simetrías en los contactos influyen en la simetría del flujo, independientemente del tamaño de los contactos. Otro aspecto importante es cómo el parámetro de acoplamiento puede inducir vórtices en el flujo.

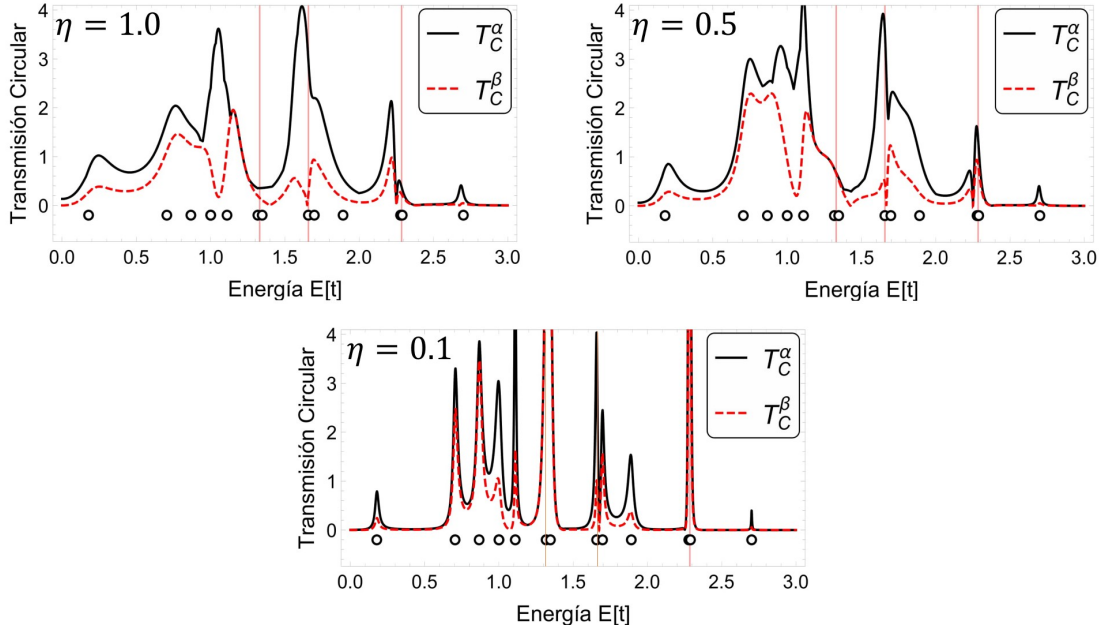


Figura 4.18: Transmisión circular del sistema de la figura 4.17, para los valores $\{1.0, 0.5, 0.1\}$ de η . A mayor acoplamiento se observa un ensanchamiento en los picos de la transmisión circular.

Retomando el sistema de la figura 4.17, observamos que $T_C^\beta \neq 0$, véase figura 4.18 en la cual $\eta \in \{0.1, 0.5, 1.0\}$. El flujo no posee la misma simetría que las configuraciones anteriores ($T_C^\beta = 0$), que contrasta con el sistema descrito en la figura 4.7, en donde los contactos también se localizan en el mismo borde zigzag. Observamos que la transmisión circular T_C^α y T_C^β forma resonancias cerca de las eigenenergías, y estas se estrechan al disminuir el parámetro de acoplamiento. También, sobresale el aumento en la transmisión circular alrededor de $E = 1.33$ que se obtiene disminuyendo η . En este sistema se presenta un efecto sumamente interesante. Al disminuir η se forma un vórtice en la vecindad de $E = 1.33$, que se nota tanto en la figura 4.18 como en 4.17. Mediante la descomposición espectral, podemos estudiar como las eigenenergías participan en este patrón del flujo de electrones.

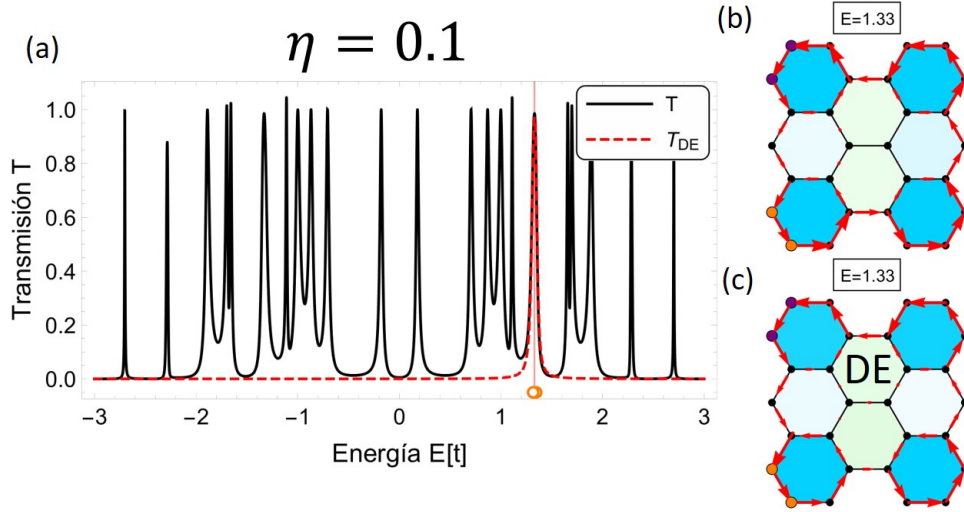


Figura 4.19: (a) Transmisión T (línea negra) y T_{DE} (línea roja discontinua) del sistema de la figura 4.17, con $\eta = 1.0$ en $E = 1.33$. La descomposición espectral se aplica a las eigenenergías representadas en círculos naranjas. (b) Patrón de corriente en la nanocelda, calculado con NEGF. (c) Patrón de corriente en la nanocelda, calculado con la descomposición espectral.

Tomamos como referencia inicial el sistema en $E = 1.33$ de la figura 4.17, con $\eta = 0.1$. En la figura 4.19 (a), se muestra la transmisión y su estimación mediante T_{DE} . La descomposición espectral se aplica al conjunto representado en círculos naranjas. Observamos que, T_{DC} estima localmente T . En este caso se usan dos eigenenergías en la descomposición espectral. Además, la transmisión posee resonancias producidas por las eigenenergías. En la figura 4.19 (b), se observa un gran vórtice de corriente que rodea la nanocelda. En la figura 4.19 (c), observamos el patrón de corriente formado por T_{ij}^{DE} .

A diferencia de los sistemas anteriores en esta sección se manejan contactos mas amplios. Lo cual nos permite observar que si el parámetro de acoplamiento η aumenta de valor, se producirá un efecto tanto sobre el patrón en la corriente local, como en la participación de las eigenenergías que explican el patrón.

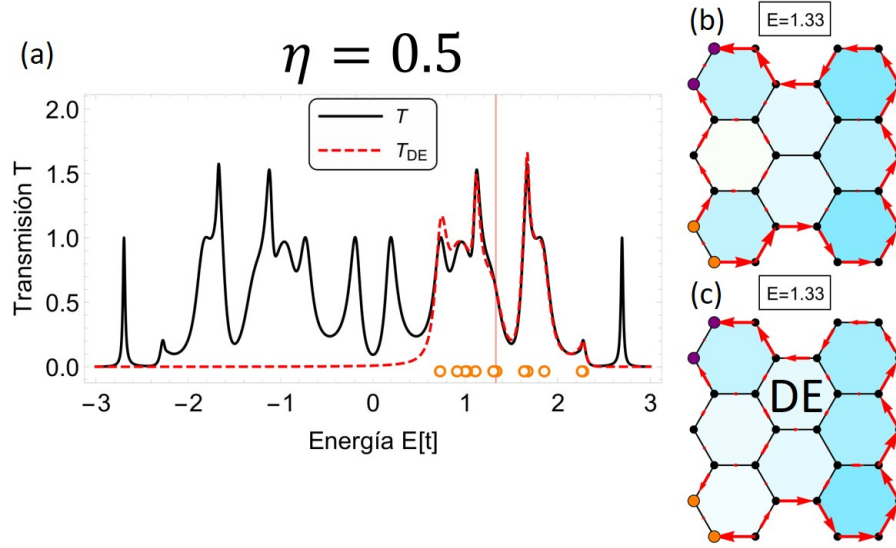


Figura 4.20: (a) Transmisión T (línea negra) y T_{DE} (línea roja discontinua) del sistema de la figura 4.17, con $\eta = 0.5$ en $E = 1.33$. La descomposición espectral se aplica a las eigenenergías representadas en círculos naranjas. (b) Patrón de corriente en la nanocelda, calculado con NEGF. (c) Patrón de corriente en la nanocelda, calculado con la descomposición espectral.

En la figura 4.20 (a) y (b), se muestran la transmisión y el patrón de corriente para $\eta = 0.5$, respectivamente. Aquí se aplica la descomposición espectral a un conjunto de eigenenergías representado por círculos naranjas. En la figura 4.20 (c), observamos el patrón de corriente formado por T_{ij}^{DE} , en este caso para reproducir el patrón de corriente necesitamos abarcar un mayor número de eigenenergías. Sin embargo, a diferencia del caso con $\eta = 0.1$, en este sistema la corriente fluye alrededor de la nanocelda, mayormente en el sentido contrario a las manecillas del reloj.

Disminuir el valor del parámetro de acoplamiento es equivalente a aislar el sistema. El vórtice que hemos estudiado en la figura 4.17 nos muestra un gran vórtice central al poseer un parámetro $\eta = 0.1$. Sin embargo cuando aumentamos el acoplamiento vemos que este vórtice se debilita.

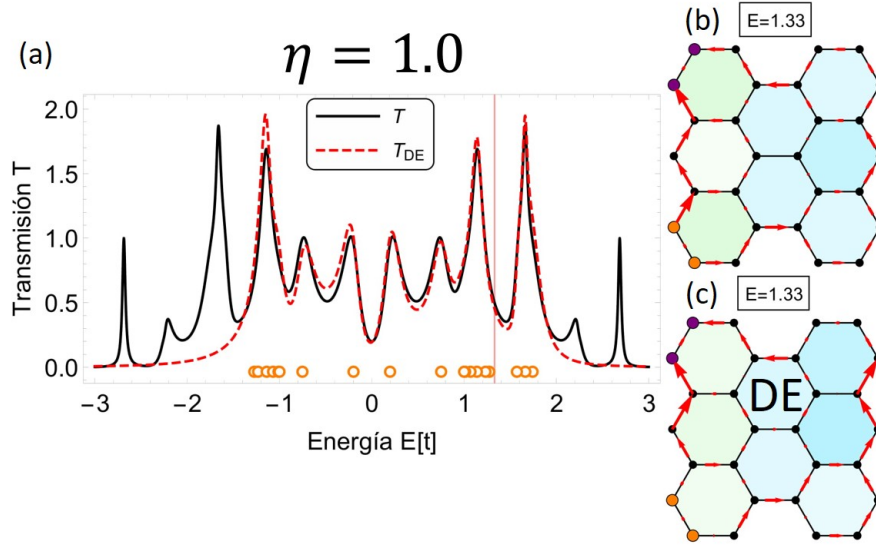


Figura 4.21: (a) Transmisión T (línea negra) y T_{DE} (línea roja discontinua) del sistema de la figura 4.17, con $\eta = 1.0$ en $E = 1.33$. La descomposición espectral se aplica a las eigenenergías representadas en círculos naranjas. (b) Patrón de corriente en la nanocelda, calculado con NEGF. (c) Patrón de corriente en la nanocelda, calculado con la descomposición espectral.

En la figura 4.21 (a), se muestra la transmisión y su estimación mediante T_{DE} . En la figura 4.21 (b), se muestra el patrón de corriente. En la figura 4.21 (c), observamos el patrón de corriente formado por T_{ij}^{DE} . En este último caso se toma $\eta = 1.0$, lo cual provoca la anulación del vórtice anteriormente visto. Además, el rango de eigenenergías que dan la mejor aproximación al patrón de corriente (mediante la descomposición espectral), abarca casi todo el conjunto de eigenenergías. Observamos que, T_{DE} estima T en todo el rango de energía que cubre la parte real de las eigenenergías. A diferencia de los casos anteriores con vórtices, no parece existir eigenenergías que puedan estar asociadas al patrón mostrado. Sin embargo la transmisión T_{DE} en todos los casos si se aproxima a T , en particular en una vecindad de $E = 1.33$.

Estos resultados nos revelan que, al expandir el tamaño de los contactos, el sistema se vuelve sensible al parámetro de acoplamiento, de manera que al aislar el sistema (disminuyendo η) se comporta de manera similar a un sistema con solo dos contactos, que pueden inducir la formación de vórtices. Otro comportamiento importante es como la configuración de los contactos afecta a los vórtices y a la transmisión circular. Al colocar los contactos sobre un mismo borde observamos el mismo comportamiento en la transmisión local T_{ij} , donde nuevamente un vórtice se extiende sobre varios anillos, y que se explica con solo dos eigenenergías. Igualmente las eigenenergías en el sistema cerrado son casi degeneradas.

En conclusión, existen configuraciones que inducen una simetría espejo en los anillos, o que pueden suprimir los vórtices. Un caso singular es cuando los contactos están sobre un mismo borde, el cual ha demostrado tener un comportamiento inusual con

grandes vórtices centrales. Hemos logrado explicar vórtices de corriente en el patrón de corriente, esto mediante la descomposición espectral y un conjunto reducido de eigenenergías. Esto nos indica que los vórtices de corriente parecen estar asociados a subconjuntos de eigenenergías. El hecho de que necesitemos de un conjunto mínimo se asocia a la interferencias de las mismas, y este efecto se da al aislar el sistema, de modo que unas cuantas eigenenergías describen el transporte en la nanocelda.

4.4. Ampliación de la nano-celda

En esta última sección, se incluyen unos cuantos resultados relacionados a las nanoceldas de grafeno más amplias. Debido a las características que ya fueron analizadas en secciones anteriores, en esta sección solo se expone brevemente que las propiedades siguen presentes aún sin importar el tamaño de la nanocelda.

Los resultados ya discutidos nos muestran que el tamaño, la posición de los contactos y el acoplamiento de los mismos, son las características que determinan la existencia de vórtices y la naturaleza de estos. Sin embargo, independientemente del tamaño de la nanocelda, se pueden dar la formación de vórtices y el comportamiento de los sistemas en una manera similar al anteriormente expuesto.

Si tomamos la nanocelda 5×5 , obtenemos un comportamiento similar al cambiar la posición y el número de átomos de los contactos con respecto al sistema 3×3 , ver figura 4.22. Sin embargo, al aumentar el número de átomos en los contactos, se forma una gran corriente central (imagen a la derecha).

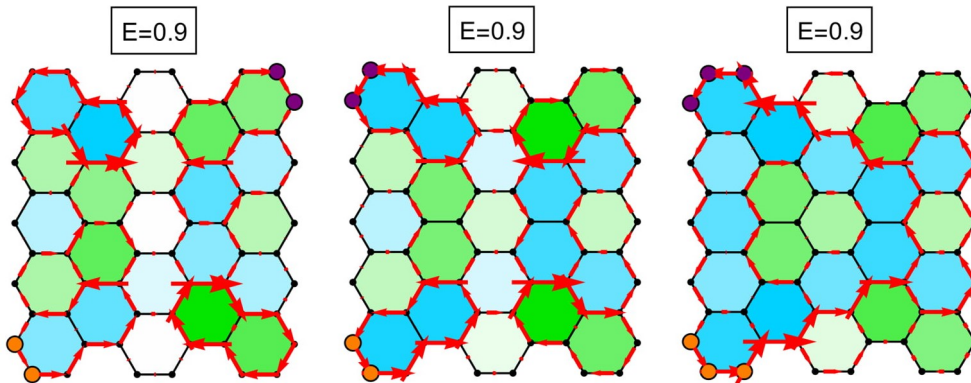


Figura 4.22: Patrones de la corriente local en una nanocelda de grafeno de 5×5 con diferentes configuraciones de contactos. En los tres sistemas $\eta = 0.1$.

En la figura 4.22, podemos apreciar como la posición y la cantidad de átomos que constituyen los contactos modifica los vórtices. Efecto que ya se presentó anteriormente, y el cual parece ser independiente del tamaño de la nanocelda de grafeno, aunque no todo sistema presenta vórtices. Todo parece indicar que si la configuración posee suficientes átomos, los electrones fluirán formando vórtices, y una gran cantidad de átomos acoplados a los contactos puede suprimir la formación de vórtices.

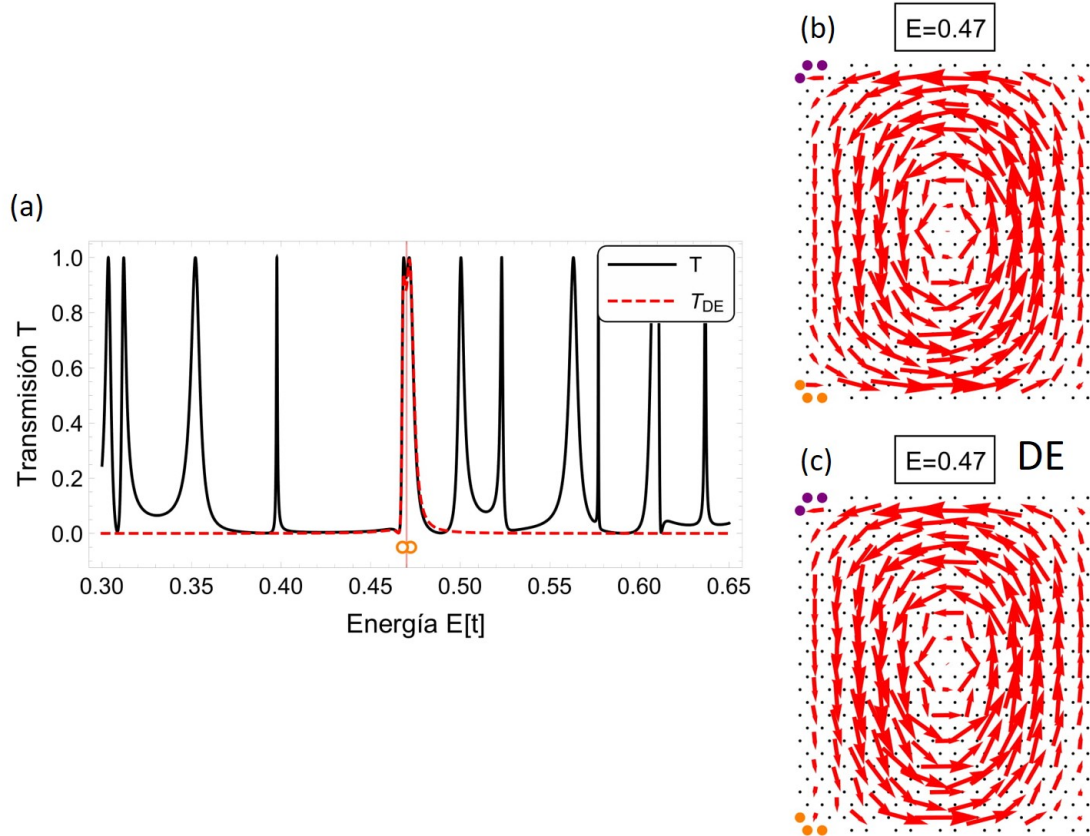


Figura 4.23: Nanocinta de grafeno de 13×13 , con $\eta = 0.1$. (a) Transmisión junto con la parte real de las eigenenergías usadas en la descomposición espectral. Transmisión T representada por la línea continua y T_{DE} por la línea discontinua roja. (b) Patrón de la corriente local calculado por NEGF. (c) Patrón de la corriente local calculado por la descomposición espectral (abajo).

Si seguimos ampliando el tamaño de la nanocelda, podemos seguir observando vórtices. Además, ciertas configuraciones parecen favorecer a los vórtices de la corriente. En la figura 4.23, observamos los resultados correspondientes a una nanocelda de 378 átomos de carbono. En la figura 4.23 (a), vemos que la transmisión cerca de la energía evaluada es casi máxima. Para el cálculo de T_{ij}^{DE} y T_{DE} se usan las dos eigenenergías cuya parte real se representa en círculos naranjas. En la figura 4.23 (b), se muestra la corriente en la nanocelda. Está no se visualiza igual que las nanoceldas presentadas en las secciones previas. Las flechas rojas representan la corriente total sobre cada anillo de la red del nanografeno, es decir, para cada anillo se toma la corriente que circula en cada enlace y se suma vectorialmente, resultando un solo vector por cada anillo. Los vórtices en estos sistemas están mucho más extendidos. Se extienden siempre por varios anillos. En la figura 4.23 (c), observamos el patrón de corriente (calculado con T_{ij}^{DE}) que se explica mediante la descomposición espectral usando solo dos eigenenergías. Como en casos anteriores estas eigenenergías son casi degeneradas en el sistema cerrado.

En $E = 0.47$, observamos un gran vórtice central, este se aprecia mejor cuando tomamos las corrientes totales sobre cada anillo, véase figura 4.23 (b). Un aspecto sumamente interesante es el comportamiento que prevalece en este tipo de configuraciones, donde los contactos se encuentran sobre las esquinas de un mismo borde. Incluso podemos explicar el vórtice solo con dos eigenenergías.

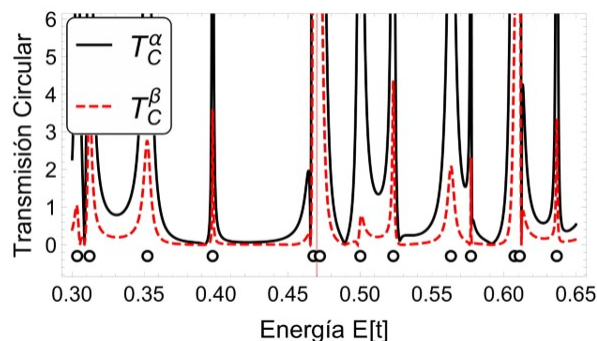


Figura 4.24: Transmisión circular T_C^α con máximos en las eigenenergías del sistema cerrado (círculos negros) y $T_C^\beta \neq 0$.

La transmisión circular $T_C^{\alpha/\beta}$ del sistema de la figura 4.23, posee máximos en las eigenenergías (para el sistema cerrado) y además $T_C^\beta \neq 0$. Esto se entiende como que la simetría discutida en la sección 4.2.2, desaparece. Lo más destacable es que $T_C^\beta \neq 0$, comportamiento dominante para este tipo de contactos, así como los grandes vórtices centrales.

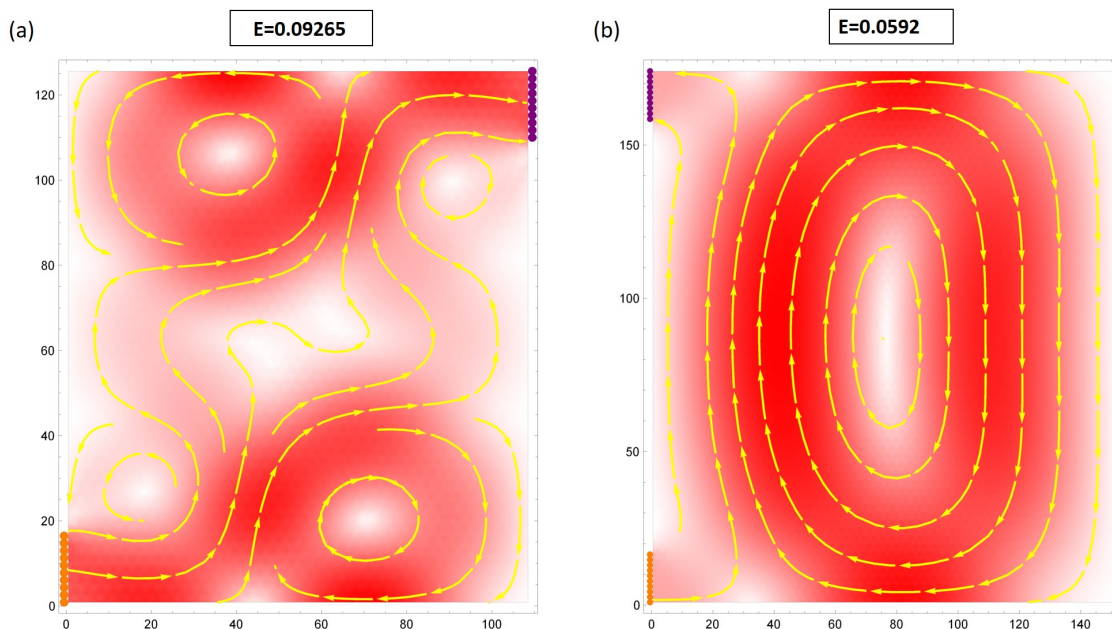


Figura 4.25: Nanoceldas de grafeno. (a) Nanocelda con 10,878 átomos y (b) con 20,706 átomos. La fuente y el drenaje se representan con los colores anteriormente usados en secciones previas. Se usa el parámetro $\eta = 0.05$ en (a) y $\eta = 0.1$ en (b).

En la figura 4.25, observamos dos extensiones mas amplias de la nanocelda de grafeno. En este caso la intensidad de color indica la magnitud de la corriente local, siendo mas intensa a mayor magnitud y viceversa. Las flechas amarillas indican la dirección en la cual fluye la corriente y vemos la formación de grandes vórtices. Al aumentar el tamaño de la nanocelda, aumentan la cantidad de eigenenergías del sistema, lo cual dificulta el estudio de la participación de las mismas en la formación de vórtices. Además, el sistema se vuelve mas sensible a pequeños cambios de la energía, hasta en un cuarto de cifra decimal.

La figura 4.25 nos revela que inclusive en nanoceldas con una cantidad masiva de átomos se siguen presentando vórtices. La primer configuración muestra un comportamiento similar a los flujos anterior, es decir existen flujos circulares antisimetricos. Mientras que la segunda configuración cuyos contactos se encuentran sobre un mismo borde, muestra un gran vórtice central.

Los sistemas estudiados nos revelan que, al conectar una fuente y un drenaje al nanografeno, este puede llevar a la formacion de vórtices de corriente. Las principales características de estos se deben a la configuración de sus contactos, el parámetro de acoplamiento, y el tamaño de la nanocelda. Además, estos resultados nos muestran un comportamiento sumamente interesante, cuando la fuente y el drenaje se ubican en un mismo borde, tienden a formar grandes vórtices centrales, y que se pueden explicar con solo dos eigenenergías casi degeneradas por medio de la descomposición espectral.

Capítulo 5

Conclusiones

En esta tesis, se estudiaron los vórtices de corriente y las características de las nano-estructuras de grafeno que los producen. Las nano-estructuras se conectaron a una fuente y a un drenaje, los cuales tienen la función de inyectar y de recolectar electrones, respectivamente. Partimos de las estructuras más simples como el benceno, y se estudiaron comportamientos de acuerdo al tamaño de las nano-estructuras, que prevalecían o mostraban mayor complejidad.

Los métodos empleados fueron, el Hamiltoniano amarre fuerte para las nano-estructuras, y la aproximación de banda ancha en los contactos. Para el cálculo numérico de la corriente se utilizó el método de las funciones de Green fuera de equilibrio (NEFG).

Se probó que los contactos en las nano-estructuras afectan al sistema tanto por su posición como por su tamaño. Se comenzó con contactos constituidos por un solo átomo como fuente y uno como drenaje, y bajo estas condiciones las nano-estructuras presentaron vórtices de corriente cerca de las eigenenergías, que en el sistema cerrado son (casi) degeneradas. Los vórtices mostraron una dependencia de la posición de los contactos, e inclusive en algunas configuraciones, se mostró que los vórtices se anularon.

Mediante la descomposición espectral logramos explicar la formación de vórtices, y aunque en el caso del benceno fue posible describir el vórtice con solo dos eigenenergías, en el análisis del nanografeno 3×3 encontramos vórtices más complejos. En el nanografeno 3×3 , algunos vórtices son explicados por solo dos eigenenergías, al igual que el benceno, pero al cambiar la posición de los contactos aumenta el número de eigenenergías para explicar el fenómeno. En las figuras 4.7 y 4.11, observamos este efecto sobre la vecindad de $E = 2.28$, en el primer caso, podemos obtener el vórtice con solo dos eigenenergías, mientras que en el segundo, el aumento de la cantidad de eigenenergías son necesarias para explicar el vórtice. Por lo tanto, una configuración de los contactos puede inducir un vórtice en el patrón de la corriente, e inclusive afecta las energías donde aparece el vórtice.

Los resultados mostraron que bajo ciertas configuraciones de los contactos, se presenta una simetría en la cual dada la circulación sobre un anillo, existirá otro cuya circulación es igual en magnitud pero en dirección opuesta. Esta característica resulta ser independiente del número de átomos que la forman, y del tamaño de la nano-celda. Sin embargo, las configuraciones cuyos contactos se encuentran sobre un mismo borde, rompen esta simetría y además presentan grandes vórtices centrales.

Observamos que la cantidad de átomos que constituyen los contactos, cambia el patrón en la corriente del nanosistema. Además, los vórtices de corriente pueden disminuir o desaparecer al aumentar la cantidad de átomos que forman los contactos. También, el patrón de corriente es sensible al parámetro de acoplamiento η cuando cada contacto tiene más de un átomo. La combinación de ambos efectos permite inducir la formación de un vórtice al disminuir η , lo que es equivalente a aislar el nano-sistema, véase las figuras 4.21 a 4.19. En el patrón de corriente con $\eta = 1.0$ fueron necesarias casi todas las eigenenergías a fin de explicar este efecto, que contrasta con el sistema con $\eta = 0.1$, donde fueron necesarias solo dos eigenenergías.

Las características estudiadas que predominan la formación de vórtices y de su naturaleza, son independientes del tamaño de la nano-celda, véase la figura 4.25. Esto nos lleva a inferir que los vórtices de corrientes son efectos que se presentan al conectar una nano-celda de grafeno a una fuente y un drenaje. Se puede llegar a inducir la formación de vórtices mediante la configuración de sus contactos y su acoplamiento. Además, usando la descomposición espectral, podemos explicar los vórtices de corriente por medio de eigenenergías cercanas a la energía de los electrones. También, hemos logrado caracterizar las configuraciones cuyos contactos residen sobre un mismo borde, ya que estas presentan grandes vórtices capaces de ser generados por solo dos eigenenergías, y estos son independientes del tamaño de la nanocelda, véase la figura 4.25

Los diversos ejemplos expuestos en esta tesis fueron elegidos con la condición de que la transmisión no fuera nula $T \neq 0$. Se buscó estudiar los sistemas tal que su transmisión no fuese nula. Sin embargo, los vórtices de corriente tienden a ocurrir en las vecindades de las eigenenergías, y debido a las resonancias, suele suceder que la transmisión alcanza máximos o mínimos. En un futuro se podrían implementar métodos distintos a la descomposición espectral para abordar sistemas más grandes con un espectro continuo, esto con el fin de explicar los vórtices de corriente en estructuras mayores a la nanoescala.

Bibliografía

- [1] J. Mabillard, T. Can, and D. Morr. Spatial current patterns, dephasing and current imaging in graphene nanoribbons. *New J. Phys.*, **16**:013054, (2014).
- [2] A. H. Castro Neto, F. Guinea, N. M. R. Peres, K. S. Novoselov, and A. K. Geim. The electronic properties of graphene. *Rev. Mod. Phys.*, **81**:109, (2009).
- [3] D. A. Areshkin and C. T. White. Building blocks for integrated graphene circuits. *Nano Lett.*, **7**:3253, (2007).
- [4] K. S. Novoselov, A. K. Geim, S. V. Morozov, D. Jiang, M. I. Katsnelson, I. V. Grigorieva, S. V. Dubonos, and A. A. Firsov. Two-dimensional gas of massless dirac fermions in graphene. *Nature*, **438**:197, (2005).
- [5] E. N. Economou. *Green's Functions in Quantum Physics*. Springer Series in Solid-State Sciences. Springer, (2006).
- [6] S. Datta. *Electronic Transport in Mesoscopic Systems*. Cambridge University Press, (1995).
- [7] S. Datta. *Quantum Transport: Atom to Transistor*. Cambridge University Press, (2005).
- [8] T. Stegmann. *Quantum transport in nanostructures: From the effects of decoherence on localization to magnetotransport in two-dimensional electron systems*. PhD thesis, Die Universität Duisburg-Essen, (2014).
- [9] S. H. Simon. *Lecture Notes for Solid State Physics*. Oxford, (2011). <https://www-thphys.physics.ox.ac.uk/people/SteveSimon/condmat2011/LectureNotes.pdf>.
- [10] L. V. Keldysh. Diagram technique for nonequilibrium processes. *Zh. Eksp. Teor. Fiz.*, **47**:1515, (1964).
- [11] D. J. Griffiths. *Introduction to Quantum Mechanics 2nd Edition*. Pearson Prentice Hall, (2004).
- [12] C. Caroli, R. Combescot, P. Nozieres, and D. Saint-James. Direct calculation of the tunneling current. *J Phys C Solid State Phys*, **4**:916, (1971).

- [13] A. Cresti, R. Farchioni, G. Grosso, and G. P. Parravicini. Keldysh-green function formalism for current profiles in mesoscopic systems. *Phys. Rev. B*, **68**:075306, 2003.
- [14] R. Landauer. Spatial variation of currents and fields due to localized scatterers in metallic conduction. *IBM J. Res. Dev.*, **1**:223, (1957).
- [15] R. Landauer. Electrical transport in open and closed systems. *Zeitschrift für Physik B Condensed Matter*, **68**:217, (1987).
- [16] T. Stegmann, J. A. Franco-Villafañe, Y. P. Ortiz, M. Deffner, C. Herrmann, U. Kuhl, F. Mortessagne, F. Leyvraz, and T. H. Seligman. Current vortices in aromatic carbon molecules. *Phys. Rev. B*, **102**:075405, (2020).
- [17] C. Verzijl, J. Seldenthuis, and J. Thijssen. Applicability of the wide-band limit in dft-based molecular transport calculations. *Int. J. Chem. Phys.*, **138**:094102, (2013).
- [18] J. Maassen, F. Zahid, and H. Guo. Effects of dephasing in molecular transport junctions using atomistic first principles. *Phys. Rev. B*, **80**:125423, (2009).
- [19] D. Rai, O. Hod, and A. Nitzan. Magnetic fields effects on the electronic conduction properties of molecular ring structures. *Phys. Rev. B*, **85**:155440, (2012).
- [20] M. O. Goerbig and Jean-Noël Fuchs. Introduction to the physical properties of graphene, 2008. http://web.physics.ucsb.edu/~phys123B/w2015/pdf_CoursGraphene2008.pdf.
- [21] I. Popov, K. Bozhenko, and A. Boldyrev. Is graphene aromatic? *Nano Res.*, **5**:117–123, (2011).
- [22] A. Akaishi, M. Ushirozako, H. Matsuyama, and J. Nakamura. Structural stability and aromaticity of pristine and doped graphene nanoflakes. *Jpn. J. Appl. Phys.*, **57**:0102BA, (2018).
- [23] Y. Zhang, Y. Tan, H. L. Stormer, and P. Kim. Experimental observation of the quantum hall effect and berry’s phase in graphene. *Nature*, **438**:201, (2005).
- [24] S. Jhan and B. Jin. A simple molecular orbital treatment of current distributions in quantum transport through molecular junctions. *Int. J. Chem. Phys.*, **147**:194106, (2017).
- [25] M. Lemme. Current status of graphene transistors. *Solid State Phenom.*, **156**:499–509, (2009).
- [26] K. S. Novoselov, D. Jiang, F. Schedin, T. J. Booth, V. V. Khotkevich, S. V. Morozov, and A. K. Geim. Two-dimensional atomic crystals. *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.*, **102**:10451, (2005).

- [27] C. Kittel. *Introduction To Solid State Physics 8Th Ed.* John Wiley and Sons, (2019).
- [28] J.D. Bjorken and S.D. Drell. *Relativistic quantum mechanics.* International series in pure and applied physics. McGraw-Hill, (1964).
- [29] M. Walz, J. Wilhelm, and F. Evers. Current patterns and orbital magnetism in mesoscopic dc transport. *Phys. Rev. Lett.*, **113**:136602, (2014).