

石墨烯量子点和量子比特

魏 鹏[†], 葛晓贞, 李 娜, 席在荣

(中国科学院 数学与系统科学研究院 系统科学研究所, 北京 100190; 中国科学院大学, 北京 100190)

摘要: 本文主要回顾了石墨烯量子点的制备以及基于石墨烯量子点自旋和电荷量子比特操作的研究进展, 由于石墨烯材料相对较轻的原子重量使其具有较小的自旋轨道相互作用, 另外含有核自旋的碳同位素¹³C在自然界中的含量大约只占1%, 这使得超精细相互作用(即核自旋和电子自旋相互作用)较弱, 所以石墨烯比其他材料具有较长的自旋退相干时间, 在量子计算和量子信息中有非常好的应用前景. 本文计算了5种静电约束制备的石墨烯量子点: 1) 扶手型单层石墨烯纳米条带, 2) 单层石墨烯圆盘, 3) 双层石墨烯圆盘, 4) ABC堆积型三层石墨烯圆盘, 5) ABA堆积型三层石墨烯圆盘. 石墨烯量子点中自旋比特应用的关键是破坏谷简并, 在1)中, 主要是利用边界条件破坏谷简并, 而2)–5)中是利用外磁场破坏谷简并. 文章进一步介绍了自旋轨道相互作用和超精细相互作用对石墨烯量子点中自旋操作的影响.

关键词: 石墨烯量子点; 自旋量子比特; 电荷量子比特; 退相干

中图分类号: TP273

文献标识码: A

Graphene quantum dots and qubits

WEI Peng[†], GE Xiao-zhen, LI Na, XI Zai-rong

(Institute of Systems Science, Academy of Mathematics and Systems Science, Chinese Academy of Science, Beijing 100190, China;
University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China)

Abstract: This paper reviews the progress of preparation of graphene quantum dots (GQD) and the operation of spin qubits and charge qubits based on GQD. Since the graphene material has a relatively light atomic weight resulting to a smaller spin orbital interaction, and the ¹³C of carbon isotope containing the nuclear spin accounts for only about 1% in the nature world, the ultra-fine interaction (i.e., nuclear spin and electron spin interaction) is weaker, which means graphene has longer spin decoherence time than other materials. Therefore, graphene has promising application in quantum computation and quantum information. This paper calculates five different types of graphene quantum dots prepared by electrostatic confinement: 1) graphene nanoribbons with armchair, 2) a disc in monolayer graphene, 3) a disc in bilayer graphene, 4) a disc in trilayer graphene of ABC stacking, 5) a disc in trilayer graphene of ABA stacking. The key to application of spin qubits in the graphene quantum dots is the destruction of valley degeneracy. In the first scenario, boundary condition is used to destroy valley degeneracy, while in other cases, valley degeneracy is destroyed by external magnetic field. Further, the effect of spin-orbit interaction and hyperfine interaction on operation of spin is introduced in graphene quantum dots.

Key words: graphene quantum dot; spin qubit; charge qubit; decoherence

1 引言(Introduction)

2004 年安德烈·K·海姆(Andre Geim)研究小组首次制备出单层石墨烯^[1], 打破了热力学涨落不允许任何二维晶体在有限温度下存在的观点. 自此, 这种只有单层原子厚度、具有蜂巢结构^[2]的新型材料逐渐受到了全世界科学家的广泛关注. 石墨烯是目前世界上发现的厚度最薄、强度最大、导热导电性能最强的一种纳米材料, 随着其制备方法的^[3–5]不断成熟, 在许多领域有广泛应用, 如半导体器件晶体管, 太阳能电池

等. 在量子计算和量子信息领域, 石墨烯也有着非常巨大的应用前景. 量子点^[6]作为承载量子比特的载体有着非常重要的作用, 碳原子较轻和含核自旋的¹³C在自然界的含量较低等优点, 使得由石墨烯制备的量子点比由传统纳米材料(如GaAs)制成的量子点有着更大的优越性. 但由于石墨烯载流子是狄拉克费米子, 没有能带间隙, 迁移速率达到光速的1/300, 能自由通过高势垒, 即克莱因悖论^[7], 因此如何将载流子约束在一个狭小空间内是需要克服的一个难题,

收稿日期: 2017–08–02; 录用日期: 2017–11–14.

[†]通信作者. E-mail: weipeng215@mails.ucas.ac.cn; Tel.: +86 15201051296.

本文责任编辑: 崔巍.

国家自然科学基金项目(61227902, 61573343), 中国科学院国家数学与交叉科学中心资助.

Supported by National Natural Science Foundation of China (61227902, 61573343) and National Center for Mathematics and Interdisciplinary Sciences, CAS.

并且要形成有效的量子比特构成两比特空间必须要消除石墨烯能带的谷简并. 目前主要是利用电场和基底来约束载流子, 形成可调的能带间隙, 利用扶手型石墨烯^[8]的边界条件或磁场来消除石墨烯能带结构的谷简并^[2].

近几年, 无论是理论还是实验都对石墨烯量子点进行了广泛的研究. 首先, 石墨烯可以制备成期望的形状, 为制备不同形状的石墨烯量子点打下了基础. 理论上, 低能狄拉克模型证明了在外部门电压操作下, 载流子波函数存在束缚态, 即形成石墨烯量子点. 在扶手型石墨烯边界条件或恒定磁场下, 通过分析费米子的能带, 发现可以破坏能带的谷简并. 这种静电约束制备的量子点在量子信息和量子计算上有着更大应用优势. 实验方面, 通过自上而下^[9]、自下而上^[10-11]、静电约束、电子束刻蚀^[12]等方法, 可制备能控稳定的石墨烯量子点.

本文主要介绍静电约束方法制备的量子点. 在第2部分, 介绍如何应用边界条件、电场和磁场等条件下, 在单层^[13]、双层^[14]以及三层^[15]石墨烯当中制备石墨烯量子点. 第3部分, 介绍了自旋和电荷量子比特^[16], 以及在石墨烯中导致退相干的自旋轨道相互作用和超精细相互作用^[17]. 最后, 在第4部分, 总结并简要地给出了未来的工作展望.

2 静电约束制备石墨烯量子点(Preparation of GQD by electrostatic confinement)

2.1 扶手型单层石墨烯纳米条带 (Monolayer graphene nanoribbon with armchair)

首先, 利用扶手型石墨烯纳米条带在 x 轴方向的边界条件和两端的势垒(barrier)电压来制备长为 L , 宽为 W 的量子点, 如图1所示.

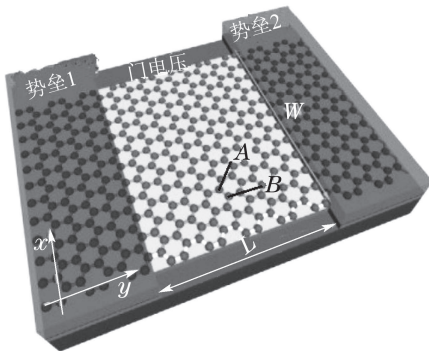


图1 石墨烯量子点

Fig. 1 Graphene quantum dot

系统电子在外电场作用下用 4×4 狄拉克方程表示:

$$H\Psi = \epsilon\Psi, \quad (1)$$

其中: $H = H_0 + u(y)$, H_0 表示系统自身哈密顿量, $u(y)$ 表示外部势场, 分别为

$$H_0 = -i\hbar v \begin{bmatrix} \sigma_x \partial_x + \sigma_y \partial_y & 0 \\ 0 & -\sigma_x \partial_x + \sigma_y \partial_y \end{bmatrix}, \quad (2)$$

$$u(y) = \begin{cases} u_{\text{gate}}, & 0 \leq y \leq L, \\ u_{\text{barrier}}, & y < 0 \text{ 或 } y > L, \end{cases} \quad (3)$$

$$\sigma_x = \begin{bmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{bmatrix}, \sigma_y = \begin{bmatrix} 0 & -i \\ i & 0 \end{bmatrix}, \sigma_z = \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{bmatrix}. \quad (4)$$

其中: $\hbar$ 为约化普朗克常数, $v = 10^6$ m/s. 根据方程(1), 电子的四分量自旋包络函数用 $\Psi = (\Psi_A^{(K)}, \Psi_B^{(K)}, -\Psi_A^{(K')}, -\Psi_B^{(K')})^T$ 来表示, 其中A, B指碳原子二维蜂巢晶格结构中的两种不同的子晶格, K, K' 分别指石墨烯能带结构的两个谷, 这两点均为零能点. 方程(1)的平面波解参见^[13], 并且满足如下的边界条件:

$$\Psi_\alpha^{(K)}|_{x=0} = \Psi_\alpha^{(K')}|_{x=0}, \quad (5)$$

$$\Psi_\alpha^{(K)}|_{x=W} = e^{\pm 2\pi i/3} \Psi_\alpha^{(K')}|_{x=W}. \quad (6)$$

将边界条件(5)和(6)代入平面波解, 得到在 x 轴方向的波矢 $k_x \equiv q_n$ 的量子化条件

$$q_n = (n \pm 1/3)\pi/W, \quad n \in \mathbb{Z}. \quad (7)$$

根据这个量子化条件, 能带会产生大小为 $E_{\text{gap}} = 2\hbar v q_0$ 的间隙, 这个能带间隙对于半导体材料具有重要意义.

接下来考虑基态束缚态, 首先计算出基态能. 在势垒区, 即 $y < 0$ 和 $y > L$ 区域内, 基态能量 $\epsilon = \pm\hbar v \sqrt{q_0^2 + k^2} + u_{\text{barrier}}$; 在量子点区, 即 $0 \leq y \leq L$ 区域内, 基态能量 $\epsilon = \pm\hbar v \sqrt{q_0^2 + \tilde{k}^2} + u_{\text{gate}}$; k 和 $\tilde{k}$ 是电子在 y 轴方向的波矢, $\pm$ 分别指导带和共价带解. 对于束缚态解, 需要满足当 $y \rightarrow \pm\infty$ 时, 平面波解在 y 轴方向衰减. 由此得出 $\hbar v q_0 > |\epsilon - u_{\text{barrier}}|$, 即

$$k = i\sqrt{q_0^2 - ((\epsilon - u_{\text{barrier}})/\hbar v)^2} \quad (8)$$

是一个纯虚数. 在量子点区, 根据波函数在 $y = 0$ 和 $y = L$ 的连续性, 则需要满足 $\hbar v q_0 \leq |\epsilon - u_{\text{gate}}|$, 即 $\tilde{k}$ 是一个实数, 也就是

$$|\epsilon - u_{\text{barrier}}| < \hbar v q_0 \leq |\epsilon - u_{\text{gate}}|. \quad (9)$$

最终, 束缚态解可以由如下的超越方程得到:

$$\tan(\tilde{k}L) = \frac{\hbar v \tilde{k} \sqrt{(\hbar v q_0)^2 - (\epsilon - u_{\text{barrier}})^2}}{(\epsilon - u_{\text{barrier}})(\epsilon - u_{\text{gate}}) - (\hbar v q_0)^2}. \quad (10)$$

选取量子点的纵横比 $q_0 L = \pi L/3W$, 则数值仿真图如图2所示.

图2中, 对角线区域表明通过求解(10)束缚态解确实存在, 即可以制备单层石墨烯量子点. 上述过程使用扶手型石墨烯条带制备单量子点. 事实上, 根据这种方法, 不仅可以制备单量子点, 而且可以同时制备双量子点甚至多量子点. 如图3所示, 制备距离为 d 的

双量子点.

同样地, 可以制备多量子点, 如图4所示.

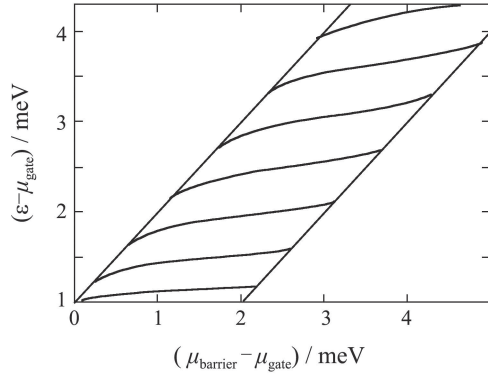


图 2 单量子点

Fig. 2 Single quantum dot

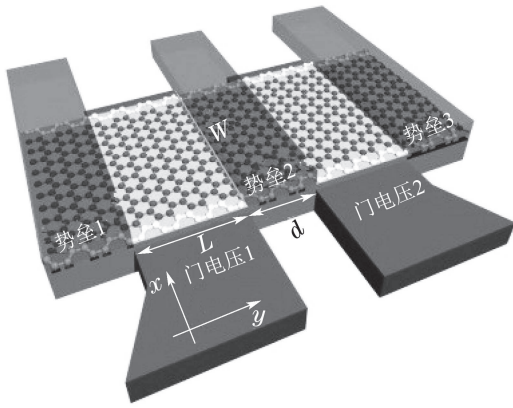


图 3 双量子点

Fig. 3 Double quantum dot

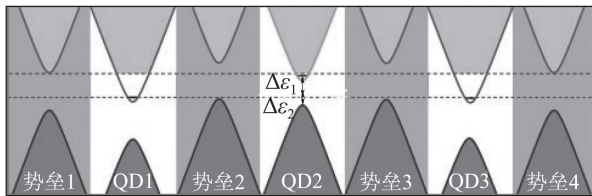


图 4 多量子点

Fig. 4 Multiple quantum dot

由于石墨烯中狄拉克粒子的克莱因隧穿效应, 在双量子点和多量子点中可以实现量子点长程耦合, 两量子点之间的距离 d 会影响耦合强度的大小, 并且在多量子点中可以实现任意两个量子点之间的耦合, 如在图4中, 可以实现量子点1和量子点3之间强耦合, 而通过去谐使它们与量子点2退耦合, 这对于量子计算中量子门的制备具有重要意义.

2.2 单层石墨烯圆盘(A disc in monolayer graphene)

在这一部分, 不需要考虑石墨烯条带的边界条件, 只利用外部静电势场来制备单量子点, 如图5所示.

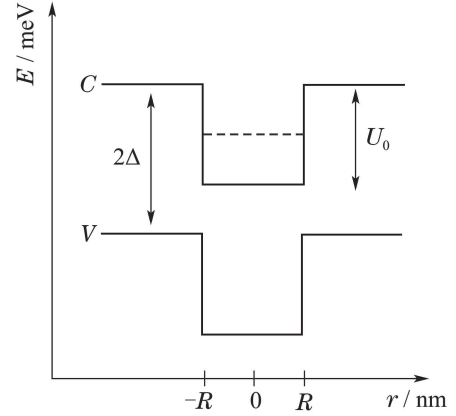


图 5 单层石墨烯圆量子点

Fig. 5 Circular quantum dot in single-layer graphene

石墨烯与基底相互作用对于两子晶格 A 和 B , 会产生不同的势场, 从而破坏反对称性. 在狄拉克方程中, 这个相互作用产生一个正比于 σ_z 的质量项 $\Delta\sigma_z$, 在能带之间产生一个间隙. 将单层石墨烯置于垂直于石墨烯平面的均匀磁场和圆盘形外部势场之中, 那么系统谷各项同性哈密顿量为

$$H = H_0 + \tau\Delta\sigma_z + U(x, y), \quad (11)$$

其中:

$$H_0 = v(\mathbf{p} + e\mathbf{A}) \cdot \boldsymbol{\sigma},$$

$$\boldsymbol{\sigma} = (\sigma_x, \sigma_y, \sigma_z),$$

$$\mathbf{B} = \nabla \times \mathbf{A} = (0, 0, B),$$

$\tau = \pm$ 表示两个谷 K 和 K' . 选择对称性规范 $\mathbf{A} = \frac{B}{2}(-y, x, 0)$, 假设圆对称约束势

$$U(x, y) = U(r), r = \sqrt{x^2 + y^2},$$

$$U(r) = \begin{cases} 0, & r < R, \\ U_0, & r > R, \end{cases} \quad (12)$$

选择自然单位制, $\hbar = 1$, 在极坐标下 H_0 表示为

$$H_0 = -iv \begin{bmatrix} 0 & e^{-i\varphi} \\ e^{i\varphi} & 0 \end{bmatrix} \partial_r + v \begin{bmatrix} 0 & -e^{-i\varphi} \\ e^{i\varphi} & 0 \end{bmatrix} \cdot \left(\frac{1}{r} \partial_\varphi + \frac{ieBr}{2} \right), \quad (13)$$

因为 H 和总角动量 $J_z = -i\partial_\varphi + \frac{\sigma_z}{2}$ 对易, 即 $[H, J_z] = 0$, 则系统的旋量本征态可以选取 J_z 的本征态

$$\Psi^\tau(r, \varphi) = e^{i(j-1/2)\varphi} \begin{pmatrix} \chi_A^\tau(r) \\ \chi_B^\tau(r) e^{i\varphi} \end{pmatrix}, \quad (14)$$

其中 j 是总角动量 J_z 的本征值, 为半奇正数, 那么系统的运动方程为

$$H\Psi^\tau(r, \varphi) = E\Psi^\tau(r, \varphi). \quad (15)$$

为了找到方程(15)的束缚态解, 需求解半径狄拉克

方程

$$\tilde{H}(r)\chi^\tau(r) = E\chi^\tau(r), \quad (16)$$

其中:

$$\begin{aligned} \chi^\tau(r) &= (\chi_A^\tau(r) \ \chi_B^\tau(r))^\text{T}, \\ \tilde{H}(r) &= \\ &-iv\sigma_x\partial_r + \tau\Delta\sigma_z + U(r) + \\ &v\sigma_y \begin{bmatrix} \frac{j-1/2}{r} + \frac{eBr}{2} & 0 \\ 0 & \frac{j+1/2}{r} + \frac{eBr}{2} \end{bmatrix}, \end{aligned} \quad (17)$$

求解方程(16), 得到量子点的束缚态解^[14]用超几何函数 $M(a, b, z)$ 和 $U(a, b, z)$ 表示为

$$\begin{aligned} \chi_\sigma^\tau(r) &= \\ &2^{(1+n_\sigma)/2} e^{-br^2/2} r^{n_\sigma} \times \\ &\begin{cases} \beta_\sigma M(q_\sigma, 1+n_\sigma, br^2), & r < R, \\ \alpha_\sigma U(q_\sigma, 1+n_\sigma, br^2), & r > R. \end{cases} \end{aligned} \quad (18)$$

在表达式(18)中:

$$q_\sigma \equiv \frac{1}{4} \left[\frac{a_\sigma}{b} + 2(1+n_\sigma) \right], \quad b \equiv eB/2,$$

$\sigma = A$ 或 B 表示两子晶格. 随着 $r \rightarrow \infty$, $\chi_\sigma^\tau(r)$ 指数衰减. 由波函数在 $r = R$ 的连续性, 对于能量本征值为 E , 可以得到量子点束缚态的特征方程. 当 $j > 0$ 时,

$$\begin{aligned} \xi_{>}^+ M(q_{<}, j+1/2, x) U(q_{>}, j+3/2, x) - \\ \xi_{<}^+ M(q_{<}, j+3/2, x) U(q_{>}, j+1/2, x) = 0, \end{aligned} \quad (19)$$

当 $j < 0$ 时,

$$\begin{aligned} \xi_{>}^- M(q_{<}, -j+3/2, x) U(q_{>}-1, j+1/2, x) - \\ \xi_{<}^- M(q_{<}-1, j+1/2, x) U(q_{>}, -j+3/2, x) = 0, \end{aligned} \quad (20)$$

其中: $x \equiv bR^2 = (1/2)(R/l_B)^2$, $l_B = \sqrt{\hbar/eB}$ 磁长度. 参数

$$\begin{aligned} q_{<,>} &= (j-1/2)\theta(j) + 1 - (\epsilon_{<,>}^2 - \Delta^2)/4bv^2, \\ \xi_{<}^+ &= (\epsilon_{<} - \tau\Delta)/4(j+1/2), \\ \xi_{>}^+ &= bv^2/(\epsilon_{>} + \tau\Delta), \\ \xi_{<}^- &= (j-1/2)/(\epsilon_{<} + \tau\Delta), \\ \xi_{>}^- &= 1/(\epsilon_{>} + \tau\Delta), \end{aligned}$$

$\theta(x)$ 为Heaviside阶梯函数, $\epsilon_{<} \equiv E$, $\epsilon_{>} \equiv E - U_0$.

如图6所示, 给出了特征方程(19)和(20)作为 R/l_B (无量纲) 的函数的数值结果, 说明了束缚态存在, 这里 $\Delta = 10\delta$, $\delta = \hbar v/R$, $U_0 = \Delta$. 实线对应着 $\tau = 1$, 虚线对应着 $\tau = -1$. 注意到在有限磁场存在的情况下, 能级的谷简并被破坏, 并且基态能级间隙 Δ 和约束势垒高度 U_0 比量子点能级间隔要大, 说明这种量子点是一个理想的量子比特载体.

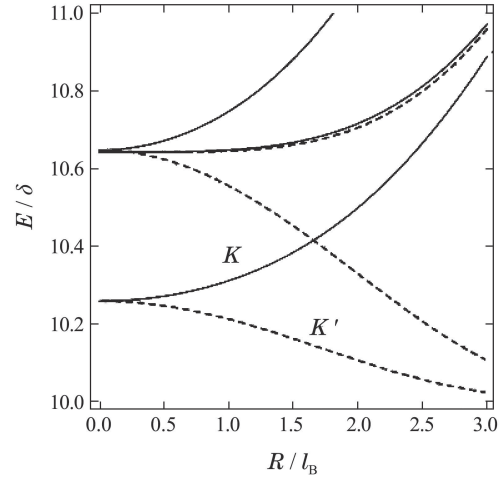


图6 有限磁场中的量子点能级

Fig. 6 Energy levels of quantum dot at finite magnetic fields

2.3 双层石墨烯圆盘(A disc in bilayer graphene)

双层石墨烯量子点的制备可以类比到单层石墨烯情形, 但在双层石墨烯中要考虑层间子晶格之间的耦合隧穿矩阵元 $t_\perp$. 外部电压 V 会破坏反对称性(类似于单层石墨烯中的质量项 Δ), 并且可以打开一个正比于电压的能带间隙. 顶栅和背栅的结合可以独立地调节能带间隙和平均势 $U(r)$, 如图7所示.

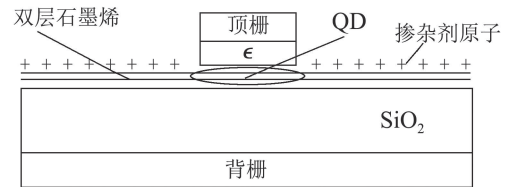


图7 双层石墨烯圆量子点

Fig. 7 Circular quantum dot in bilayer graphene

为了在双层石墨烯中研究门可调量子点, 将系统的哈密顿量分成两部分, 这里选取自然单位制, 则 $\hbar = v = 1$. 那么谷各向同性表示如下:

$$H = H_0 + H_1^\tau, \quad (21)$$

$$H_0 = \begin{bmatrix} 0 & p_x + ip_y & 0 & 0 \\ p_x - ip_y & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & p_x - ip_y \\ 0 & 0 & p_x + ip_y & 0 \end{bmatrix}, \quad (22)$$

类似于单层石墨烯, 在双层石墨烯中, 加磁场后, $\mathbf{p} \rightarrow (\mathbf{p} + e\mathbf{A})$, 其中 $\mathbf{A} = (B/2)(-y, x, 0)$. 哈密顿量的另一部分在最简近似下:

$$H_1^\tau = \begin{bmatrix} \frac{\tau V}{2} & 0 & t_\perp & 0 \\ 0 & \frac{\tau V}{2} & 0 & 0 \\ t_\perp & 0 & -\frac{\tau V}{2} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -\frac{\tau V}{2} \end{bmatrix} + U(r)\mathbf{1}, \quad (23)$$

其中 $\tau = \pm 1$ 分别表示两谷. 为了对角化 H , 也就是找到满足 $H\Psi = E\Psi$ 的旋量波函数, 将 H 用柱坐标表示. 根据总角动量守恒, 也就是 $[H, J_z] = 0$, 波函数表示为

$$\Psi = \frac{e^{im\varphi}}{\sqrt{r}} \begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & e^{-i\varphi} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & e^{i\varphi} \end{bmatrix} \Psi_1, \quad (24)$$

注意到在单层石墨烯当中, 总角动量的数值 j 是一个半奇整数, 而在双层石墨烯当中, 总角动量的数值 m 是一个整数. 将问题转化为

$$H_0 \Psi_1 = E \Psi_1, \quad (25)$$

$$H_0 = \frac{1}{i\sqrt{2}l_B} \times \begin{bmatrix} 0 & a_1 & 0 & 0 \\ a_2 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & a_3 \\ 0 & 0 & a_4 & 0 \end{bmatrix}, \quad (26)$$

其中参数

$$\begin{aligned} a_1 &= \partial_\xi - \frac{j-1}{\xi} - s\xi, \\ a_2 &= \partial_\xi + \frac{j-1}{\xi} + s\xi, \\ a_3 &= \partial_\xi + \frac{j}{\xi} + s\xi, \\ a_4 &= \partial_\xi - \frac{j}{\xi} - s\xi, \end{aligned}$$

无量纲坐标 $\xi = r/(\sqrt{2}l_B)$, $l_B = \sqrt{\hbar/(e|B|)}$ 为磁长度. 类似于单层石墨烯量子点, 求解微分方程(25), 波函数解同样是用超几何函数 $M(a, b, z)$ 和 $U(a, b, z)$ 表示, 随着与量子点中心的距离的增大而指数衰减. 根据波函数在 $r = R$ 的连续性, 得到束缚态解.

束缚态能作为 $R/\sqrt{2}l_B$ (无量纲)的函数的数值结果如图8所示.

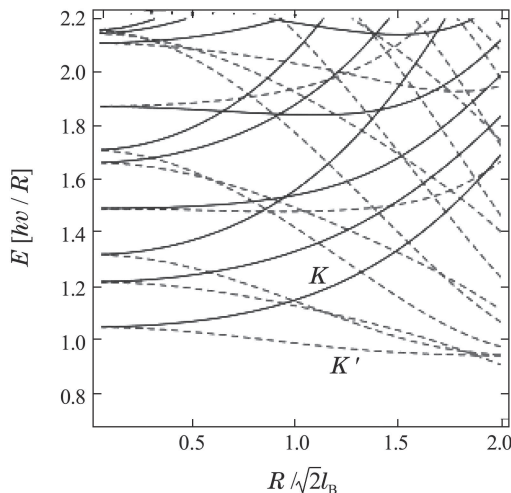


图 8 双层石墨烯量子点能级

Fig. 8 Energy levels of bilayer quantum dot

图8中: 量子点半径 $R = 25 \text{ nm}$, 其他参数分别为 $t_\perp = 15.19\hbar v/R = 0.4 \text{ eV}$, $U_0 = 1.52\hbar v/R$, $s = 1$ 以及 $V = 1.92\hbar v/R$. 实线和虚线分别代表 K 和 K' 两谷. 从图中可以看出, 基态能级间隙存在, 并且随着磁场的增大, 谷简并被破坏.

2.4 ABC堆积型三层石墨烯圆盘(A disc in trilayer graphene of ABC stacking)

随着石墨烯层数的增加, 需要考虑其堆积方式, 自然界中主要有两种方式^[15]: ABC堆积和ABA堆积. 如图9所示.

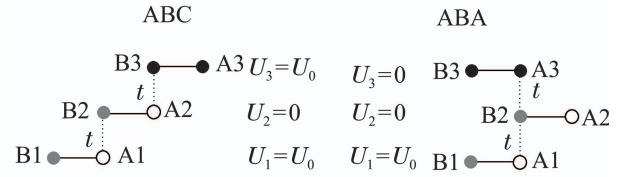


图 9 ABC堆积和ABA堆积

Fig. 9 ABC stacking and ABA stacking

首先考虑在ABC堆积方式制备量子点, 在圆形势垒下, 系统的哈密顿量为

$$H = \begin{bmatrix} U_1 & v\pi & t & 0 & 0 & 0 \\ v\pi^\dagger & U_1 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ t & 0 & U_2 & v\pi^\dagger & 0 & 0 \\ 0 & 0 & v\pi & U_2 & 0 & t \\ 0 & 0 & 0 & 0 & U_3 & v\pi \\ 0 & 0 & 0 & t & v\pi^\dagger & U_3 \end{bmatrix}, \quad (27)$$

其中: U_i ($i = 1, 2, 3$) 为外部静电势, $v = 10^6 \text{ m/s}$ 是单层石墨烯狄拉克电子的费米速度, $\pi = \pi_x + i\tau\pi_y$, $\pi^\dagger = \pi_x - i\tau\pi_y$ 是动量算符, $\tau = \pm 1$ 区分 K 谷和 K' 谷. 施加垂直于石墨烯平面的磁场之后, $\pi = -i\hbar\nabla + e\mathbf{A}$, 矢量势在对称性规范下取为 $\mathbf{A}(\mathbf{r}) = (0, Br/2, 0)$, 最近邻居耦合项 $t \approx 400 \text{ meV}$.

考虑到量子点的形状, 将算符 π 和 $\pi^\dagger$ 在极坐标下表示:

$$\pi = -i\hbar e^{i\tau\theta} \left[\frac{\partial}{\partial \rho} + (i\tau/\rho) \frac{\partial}{\partial \theta} - \tau\beta \right], \quad (28)$$

$$\pi^\dagger = -i\hbar e^{-i\tau\theta} \left[\frac{\partial}{\partial \rho} - (i\tau/\rho) \frac{\partial}{\partial \theta} + \tau\beta \right], \quad (29)$$

其中: $\rho = r/R$, $\beta = R^2/2l_B^2$, $l_B = \sqrt{\hbar/eB}$ 是磁长度. 此时系统的总角动量

$$\mathbf{J}_z^{\text{ABC}} = \mathbf{L}_z + \frac{\hbar}{2} \begin{bmatrix} \alpha_1 \mathbf{I} & 0 & 0 \\ 0 & -\mathbf{I} & 0 \\ 0 & 0 & \alpha_2 \mathbf{I} \end{bmatrix} \pm \frac{\hbar}{2} \begin{bmatrix} -\sigma_z & 0 & 0 \\ 0 & \sigma_z & 0 \\ 0 & 0 & -\sigma_z \end{bmatrix}, \quad (30)$$

其中: $\mathbf{L}_z = -i\hbar\partial_\theta$, $\mathbf{I}$ 是 2×2 单位阵, σ_z 为泡利矩阵, 具体形式参见第2.1节, $\{\alpha_1, \alpha_2\} \equiv \{1, -3\}\{-3, 1\}$

和 $+$ ($-$)指 K (K')谷.

由于式(27)和式(30)对易, 即式(27)的本征态也是式(30)的本征态, 因此对于 K 和 K' 谷系统的旋量波函数分别为

$$\Psi_{ABC} = \begin{pmatrix} e^{im\theta} \phi_{A1} \\ ie^{i(m-1)\theta} \phi_{B1} \\ e^{im\theta} \phi_{B2} \\ ie^{i(m+1)\theta} \phi_{A2} \\ e^{i(m+2)\theta} \phi_{A3} \\ ie^{i(m+1)\theta} \phi_{B3} \end{pmatrix}, \Psi'_{ABC} = \begin{pmatrix} e^{i(m+1)\theta} \phi_{A1} \\ ie^{i(m+2)\theta} \phi_{B1} \\ e^{i(m+1)\theta} \phi_{B2} \\ ie^{im\theta} \phi_{A2} \\ e^{i(m-1)\theta} \phi_{A3} \\ ie^{im\theta} \phi_{B3} \end{pmatrix}, \quad (31)$$

在这里: m 是总角动量 $\mathbf{J}_z^{ABC}$ 的本征值, 取值为整数; $\phi_{A1}, \dots, \phi_{B3}$ 是包络函数分别对应着不同的子晶格 $A1, \dots, B3$. 事实上, $\phi_{A1} = \phi_{A1}(\rho)$, 为简单起见, 省去了 ρ .

进一步, 在无量纲单位下, 系统本征波函数可转化为如下的微分方程:

$$\begin{cases} \left(\frac{\partial}{\partial \rho} - \tau \frac{m-1}{\rho} - \tau \beta \rho \right) \phi_{B1} = (\varepsilon - u_1) \phi_{A1} - t' \phi_{B2}, \\ \left(\frac{\partial}{\partial \rho} + \tau \frac{m}{\rho} + \tau \beta \rho \right) \phi_{B1} = -(\varepsilon - u_1) \phi_{B1}, \\ \left(\frac{\partial}{\partial \rho} + \tau \frac{m+1}{\rho} + \tau \beta \rho \right) \phi_{A2} = (\varepsilon - u_2) \phi_{B2} - t' \phi_{A1}, \\ \left(\frac{\partial}{\partial \rho} - \tau \frac{m}{\rho} - \tau \beta \rho \right) \phi_{B2} = -(\varepsilon - u_2) \phi_{A2} + t' \phi_{B3}, \\ \left(\frac{\partial}{\partial \rho} - \tau \frac{m+1}{\rho} - \tau \beta \rho \right) \phi_{B3} = (\varepsilon - u_3) \phi_{A3}, \\ \left(\frac{\partial}{\partial \rho} + \tau \frac{m+2}{\rho} + \tau \beta \rho \right) \phi_{A3} = -(\varepsilon - u_3) \phi_{B3} + t' \phi_{A2}, \end{cases} \quad (32)$$

其中:

$$\varepsilon = E/E_0, E_0 = \hbar v/R, \\ t' = t/E_0, u_i = U_i/E_0, i = 1, 2, 3.$$

现在, 考虑圆对称的, 依赖位置的静电势. 在这种情况下, 令 $U_2 = 0, U_1 = -U_3 = U_b(r)$, 其中

$$U_b(r) = \begin{cases} U_0 r^2/R^2, & r < R, \\ U_0, & r > R, \end{cases} \quad (33)$$

U_0 为势阱深度, R 是量子点半径.

图10中, 给出了量子点能级在 $B = 0$ 和 $B = 10T$ 时作为点半径的函数的示意图. 实线和虚线分别表示 K 和 K' 谷, 蓝色、绿色和红色分别指 $m = -1, m = 0$ 和 $m = 1$, 势垒深度 $U_0 = 50 \text{ meV}$. 能谱包含了表明束缚态存在的离散能级, 能级之间存在间隙, 并且间隙随着 R 的增大而逐渐减小.

在零磁场情形下, 如图10(a), 注意到束缚态存在于间隙 $\sim 2U_0$ 之间, 由于谷对称的 $E_K(m) = E_{K'}[-(m$

$+1)$ 态, 电子态能级有二重简并. 简并态的存在导致石墨烯不能像其他半导体材料一样, 制备应用于量子计算和量子信息的量子门. 然而在磁场不为零时, 如图10(b), 电子态能级的谷简并被破坏. 从图10(c)和10(d)中可以看出, 波函数随着距量子点中心距离的增大逐渐衰减到零, 证明束缚态存在. 随着 R 的增大, 波函数完全束缚在量子点区域内.

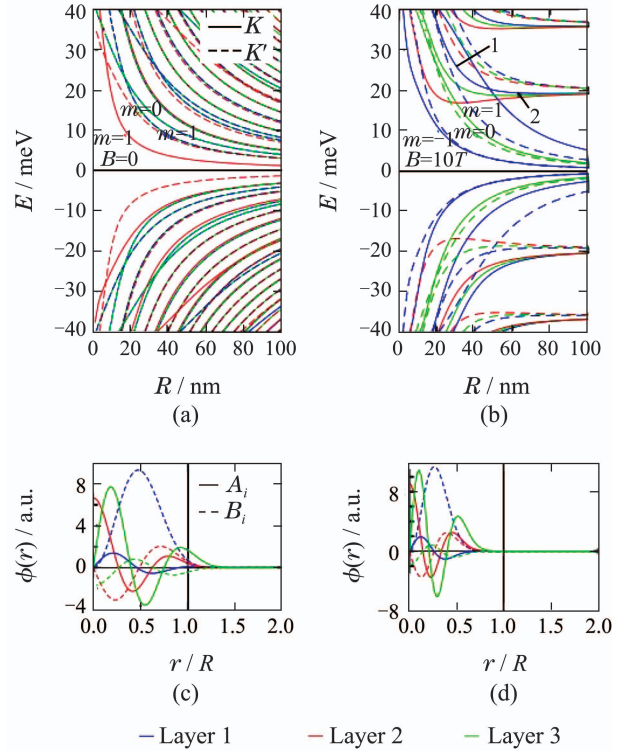


图10 ABC堆积的量子点的能级

Fig. 10 Energy levels of an ABC-stacked trilayer QGD

2.5 ABA堆积型三层石墨烯圆盘(A disc in trilayer graphene of ABA stacking)

同样地, 在ABA堆积的三层石墨烯中, 考虑外部圆形势垒约束, 哈密顿量形式参见文[15], 当 $B = 0$ 时, 谷简并依然存在, 当 $B \neq 0$ 时, 谷简并被破坏, 最终数值结果表明了ABA堆积同样可以制备量子点. 对于ABA堆积方式, 最低能级 $E_0 \sim 1/R$, 而在ABA堆积方式中, 当 R 较小时, $E_0 \sim 1/R^{1.2}$, 当 R 较大时, $E_0 \sim 1/R^{1.5}$. 并且ABA堆积的三层石墨烯量子点的能带间隙比ABC堆积的三层石墨烯量子点的能带间隙要小, 这对于量子比特操控具有重要意义.

3 石墨烯量子点中量子比特操作(Manipulation of qubits in GQD)

量子比特是量子信息的基本单位, 任何量子算法都可以用单比特逻辑门和两比特逻辑门的组合来实现, 因此, 如何利用量子比特制备两比特逻辑门, 对于量子计算具有重要意义. 通常使用自旋、电荷, 或无相互作用的光子作量子比特, 在进行量子计算时, 系

统不可避免地会与环境相互作用而导致退相干. 理想的量子比特应该是易于操作, 并且尽可能小地与环境耦合. 石墨烯作为低维的半导体材料, 用于量子比特的载体有更大的优势. 在这一部分, 介绍石墨烯量子点中的自旋量子比特和电荷量子比特, 以及导致自旋退相干的自旋轨道相互作用和超精细相互作用.

3.1 自旋量子比特(Spin qubits)

对于单自旋量子比特的转动, 通常是电子自旋共振或是电偶极子诱发自旋共振. 在电子自旋共振实验中, 量子比特转动的拉比频率正比于电子自旋 g 因子, $f_{Rabi} = g\mu_B B_{ac}/2\hbar$. 在GaAs量子点中, 测量值 $|g| < 0.43$, 而在石墨烯量子点中, $|g| = 2$. 也就是说, 石墨烯量子点中电子自旋转动速度大约比GaAs量子点电子自旋转动速度快5倍.

石墨烯自旋比特除了转动速度这个优点之外, 它的另一个优点是石墨烯纳米条带中的小能带间隙, 这对于量子比特操作而言更灵活, 通过克莱因隧穿实现多量子比特中任意两量子比特长程耦合. 这个特点也就是非局域相互作用, 在量子纠错计算中具有重要意义.

在两量子比特操作中, 自旋之间耦合通过Heisenberg交换相互作用:

$$H_{ex} = JS_1 \cdot S_2, \quad (34)$$

其中 S_1 和 S_2 分别是两量子比特的自旋. 在Hubbard模型近似下, 即 $t \ll U$,

$$J \approx 4t^2/U, \quad (35)$$

这里 t 是量子点之间的隧穿矩阵元, U 是格点Coulomb能, 对于石墨烯量子点, $U \approx 10 \text{ meV}$.

然而对于自旋比特量子门的制备不得不考虑导致退相干的自旋轨道相互作用和超精细相互作用. 石墨烯中自旋轨道相互作用为

$$\begin{cases} H_{SOI} = H_{SO} + H_R, \\ H_{SO} = \Delta_{so}\tau_z\sigma_zS_z, \\ H_R = \lambda_r(\tau_z\sigma_xS_y - \sigma_yS_x), \end{cases} \quad (36)$$

这里: H_{SO} 满足所有对称性, H_R 的出现是由于外部磁场或与基底相互作用导致镜面对称性的破坏; $\sigma_i(i = x, y, z)$ 和 $S_i(i = x, y, z)$ 均表示泡利矩阵, 不同之处在于 $\sigma_i(i = x, y, z)$ 是由于石墨烯的两个子晶格 A, B 形成的赝自旋, 而 $S_i(i = x, y, z)$ 表示真正的电子自旋. $\tau_z = \pm$ 表示两谷, Δ_{so} 和 λ_r 均表示相互作用强度.

电子自旋和核自旋之间的超精细相互作用为

$$H_{HI} = A_{HI} \sum_{k=1}^K \sum_{\mu,\nu} \vec{A}_{\mu,\nu} |\phi(\vec{r}_k)|^2 \hat{S}_\mu \hat{I}_{k,\nu}, \quad (37)$$

这里指标 μ, ν 是空间坐标 x, y, z , K 是核自旋数目, $\hat{S}_\mu$ 和 $\hat{I}_{k,\nu}$ 分别为电子自旋和核自旋. 在石墨烯材料中, 相互作用强度 $A_{HI} = 0.6 \mu\text{eV}$, $\vec{A}_{\mu,\nu}$ 是秩为2的球面张量, 在石墨烯坐标系中, 取其最简形式

$$\vec{A}_{\mu,\nu} = \begin{bmatrix} -\frac{1}{2} & 0 & 0 \\ 0 & -\frac{1}{2} & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{bmatrix}, \quad (38)$$

由于 $|\phi(\vec{r}_k)|^2$ 表示电子出现在位置 r_k 的概率, 因此有

$$\sum_{k=1}^{N_{13}} |\phi(\vec{r}_k)|^2 \sim N_{13}/N, N = N_{12} + N_{13},$$

其中 N_{12} 和 N_{13} 分别表示 ^{12}C 和 ^{13}C 原子核数目. 当施加一个垂直石墨烯平面的均匀磁场, 电子自旋退相干时间^[17]

$$\tilde{\tau}_c = \frac{2\hbar}{\sqrt{1-p^2} \sqrt{N_{13}} A_{HI}}, \quad (39)$$

其中 p 是核自旋极化率.

如图11所示, 自旋退相干时间随着 ^{13}C 原子核数目相对含量的增加而越来越小. 按自然界 ^{13}C 仅有1%的含量计算, 自旋退相干时间为80 μs , 与GaAs在不考虑超精细相互作用的自旋退相干时间5 ns相比, 高了4个数量级.

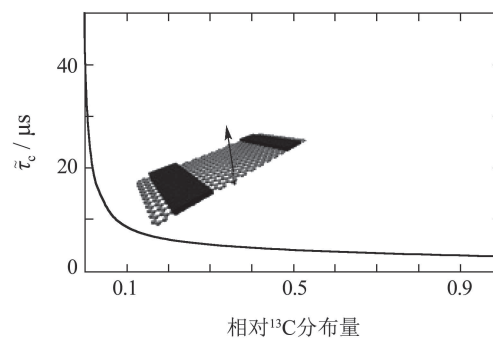


图 11 退相干时间

Fig. 11 Decoherence time

3.2 电荷量子比特(Charge qubits)

在这一部分, 介绍在单层石墨烯圆形量子点中的电荷量子比特, 并用电荷量子比特制备单比特量子门. 在制备圆形量子点时, 垂直磁场的应用破坏了谷简并, 因此可以选取 K 谷中的两个能级束缚态构成单量子比特空间, 记作 $\{|0\rangle \equiv |\Psi_{1/2}\rangle, |1\rangle \equiv |\Psi_{-1/2}\rangle\}$, 其中 $\pm 1/2$ 是总角动量本征值 j 的取值.

为了制备 $\sigma_x, \sigma_y, \sigma_z$ 单比特门, 这里应用激光和电压脉冲来进行量子控制. 两电子比特对应的能级分别为 $E_{1/2} = 0.2492 \text{ eV}$ 和 $E_{-1/2} = 0.2551 \text{ eV}$, 于是能级间隙为 $E_{01} = E_{-1/2} - E_{1/2} = 5.838 \text{ meV}$. 为了实现两比特之间的转换, 必须选取波长为 $\lambda_{\text{laser}} = \frac{2\pi c}{E_{01}} =$

212.35 μm 的激光, 提供磁场和电场.

施加激光和脉冲电压之后, 系统的哈密顿量由3部分构成:

$$\begin{cases} H = H_0 + V_{\text{laser}}(t) + V_{\text{gate}}(t), \\ V_{\text{laser}}(t) = e\varepsilon(t)\mathbf{r}, \\ V_{\text{gate}}(t) = V_{g0}h(-t+\tau_v+t_0)h(t-t_0)h(R-r), \end{cases} \quad (40)$$

其中: H_0 是式(13),

$$\varepsilon(t) = \varepsilon_0(\cos \rho, \sin \rho) \cos(\omega t),$$

$$\mathbf{r} = r(\cos \varphi, \sin \varphi),$$

ρ 和 ε_0 分别是电场的方向和大小, V_{g0} 和 τ_v 是脉冲电压的大小和脉宽, $h(x)$ 是Heaviside函数, 并且 $\{V_{g0}, \tau_v, \varepsilon_0, \rho\}$ 都是待定参数.

量子点态波函数的演化方程用如下薛定谔方程表示:

$$\begin{cases} i\frac{\partial}{\partial t}\Psi_l(r, \varphi, t) = H\Psi_l(r, \varphi, t), \\ \Psi_l(r, \varphi, t) = \sum_l C_l(t)\Psi_l(r, \varphi). \end{cases} \quad (41)$$

这个控制的优化函数选取为

$$F(t_{\text{med}}) = |\langle \Psi_{\text{obj}} | \Psi(t_{\text{med}}) \rangle|^2 \times |\langle \Psi_0 | \Psi(2t_{\text{med}}) \rangle|^2,$$

用于衡量门保真度, 使得系统在最短时间内使 $F(t_{\text{med}})$ 达到最大, $|\Psi_{\text{obj}}\rangle$ 为目标态. 这里给出了遗传算法下 $\sigma_x, \sigma_y, \sigma_z$ 单比特门的实现. 如图12所示.

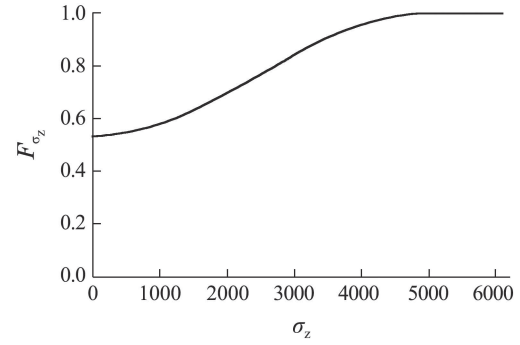
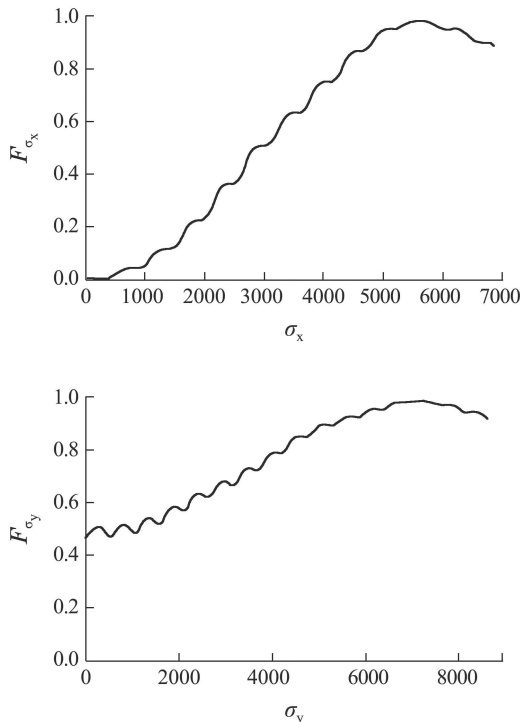


图12 $\sigma_x, \sigma_y, \sigma_z$ 门保真度

Fig. 12 Gate fidelity of $\sigma_x, \sigma_y, \sigma_z$

4 总结和展望(Conclusions and outlook)

本文总结了近几年以石墨烯纳米材料为主体, 运用静电约束的方法在单层、双层以及三层石墨烯中制备量子点. 应用扶手型石墨烯纳米条带和外加磁场来破坏石墨烯能带的谷简并, 从而形成自旋量子比特和电荷量子比特, 用于量子计算和量子信息. 介绍了石墨烯中单比特和两比特的操作, 以及导致退相干的自旋轨道相互作用和超精细相互作用. 并且在单层石墨烯圆形量子点中, 通过激光和门电压控制, 利用电荷量子比特形成的两比特空间制备单比特量子门. 虽然石墨烯材料具有较小的自旋轨道相互作用和超精细相互作用, 但时间的累积也会对系统产生巨大的负面影响. 基于以上的工作, 未来如何应用量子控制理论和方法, 在石墨烯量子点中快速制备单比特门和两比特门是一个值得研究的问题.

参考文献(References):

- [1] NOVOSELOV K S, GEIM A K, MOROZOV S V, et al. Electric field effect in atomically thin carbon films [J]. *Science*, 2004, 306(5696): 666 – 669.
- [2] NETO A C, GUINEA F, PERES N M, et al. The electronic properties of graphene [J]. *Reviews of Modern Physics*, 2009, 81(1): 109.
- [3] MAYOROV A S, ELIAS D C, MUKHIN I S, et al. How close can one approach the Dirac point in graphene experimentally? [J]. *Nano Letters*, 2012, 12(9): 4629 – 4634.
- [4] MURUGAN A V, MURALIGANTH T, MANTHIRAM A. Rapid, facile microwave-solvothermal synthesis of graphene nanosheets and their polyaniline nanocomposites for energy storage [J]. *Chemistry of Materials*, 2009, 21(21): 5004 – 5006.
- [5] HERANNDEZ Y, NICOLASI V, LOTYA M, et al. High-yield production of graphene by liquid-phase exfoliation of graphite [J]. *Nature Nanotechnology*, 2008, 3(9): 563 – 568.
- [6] LOSS D, DIVINCENZO D P. Quantum computation with quantum dots [J]. *Physical Review A*, 1998, 57(1): 120.
- [7] KATSNELSON M I, NOVOSELOV K S, GEIM A K. Chiral tunneling and the Klein paradox in graphene [J]. *Nature Physics*, 2006, 2(2): 620 – 625.

- [8] BREY L, FERTIG H A. Electronic states of graphene nanoribbons studied with the Dirac equation [J]. *Physical Review B*, 2006, 73(23): 235411.
- [9] ZHOU J, BOOKER C, LI R, et al. An electrochemical avenue to blue luminescent nanocrystals from multiwalled carbon nanotubes (MWCNTs) [J]. *Journal of the American Chemical Society*, 2007, 129(4): 744 – 745.
- [10] WANG J, XIN X, LIN Z. Cu_2ZnSnS_4 nanocrystals and graphene quantum dots for photovoltaics [J]. *Nanoscale*, 2011, 3(8): 3040 – 3048.
- [11] MUELLER M L, YAN X, DRAGNEA, et al. Slow hot-carrier relaxation in colloidal graphene quantum dots [J]. *Nano Letters*, 2010, 11(1): 56 – 60.
- [12] PONOMARENKO L A, SCHEDIN F, KATSNELSON M I, et al. Chaotic Dirac billiard in graphene quantum dots [J]. *Science*, 2008, 320(5874): 356 – 358.
- [13] TRAUZETTEL B, BULAEV D V, LOSS D, et al. Spin qubits in graphene quantum dots [J]. *Nature Physics*, 2007, 3(3): 192 – 196.
- [14] RECHER P, NILSSON J, BURKARD G, et al. Bound states and magnetic field induced valley splitting in gate-tunable graphene quantum dots [J]. *Physical Review B*, 2009, 79(8): 7715 – 7722.
- [15] MIRZAKHANI M, ZARENIA M, VASILOPOULOS P, et al. Electrostatically confined trilayer graphene quantum dots [J]. *Physical Review B*, 2017, 95(15): 155434.
- [16] AMPARAN G, ROJAS F, PEREZ-GARRIDO A. One-qubit quantum gates in a circular graphene quantum dot: genetic algorithm approach [J]. *Nanoscale Research Letters*, 2013, 8(1): 242.
- [17] FISCHER J, TRAUZETTEL B, LOSS D. Hyperfine interaction and electron-spin decoherence in graphene and carbon nanotube quantum dots [J]. *Physical Review B*, 2009, 80(15): 155401.

作者简介:

魏 鹏 (1992–), 男, 博士研究生, 主要研究方向为量子控制、石墨烯量子点, E-mail: weipeng215@mails.ucas.ac.cn;

葛晓贞 (1990–), 女, 博士研究生, 主要研究方向为量子博弈, E-mail: llinzhen@126.com;

李 娜 (1992–), 女, 博士研究生, 主要研究方向为非线性控制、优化和多智能体系统的移动目标跟踪, E-mail: lina314@mails.ucas.ac.cn;

席在荣 (1969–), 男, 博士, 研究员, 主要研究方向为非线性系统分析和合成、电力控制系统、机械系统、稳定性分析、鲁棒控制和量子控制, E-mail: zrxi@iss.ac.cn.