

尺度效应下太赫兹非局部二维纳米薄膜结构 涟漪动力学建模方法*

邹衡 胡开明[†] 邓心陆 张文明 孟光

(上海交通大学 机械与动力工程学院,机械系统与振动国家重点实验室,上海 200240)

摘要 本研究通过非局部理论和分子动力学模拟,深入探讨了尺度效应下二维纳米薄膜涟漪动力学特性。首先,基于非局部 Kirchhoff 板理论,构建了太赫兹激励下二维纳米薄膜涟漪动力学模型,揭示了涟漪波数与太赫兹激励频率的关系。其次,通过与分子动力学模拟对比,验证了非局部涟漪动力学模型的准确性,并对非局部参数进行了辨识。进一步,分析了小尺度范围内二维薄膜结构离散分子动力学模型和连续介质理论模型的差异性,讨论了等效厚度,手性和非局部参数等重要参数对涟漪波数和相速度的影响。研究表明:当涟漪波长接近碳-碳键尺度时,原子的离散特性破坏了相邻涟漪的均匀性,论证了考虑原子分布的离散特性对太赫兹高频激励下二维纳米薄膜跨尺度涟漪动力学建模的重要性。此外,本研究还发现了锯齿方向的相速度大于扶手椅方向的相速度,且随着中心激励频率的增加,闭合涟漪的波型从环形转变为六边形。

关键词 太赫兹振动, 二维纳米薄膜, 涟漪动力学, 非局部理论

中图分类号:O323.1

文献标志码:A

Modeling Method for the Dynamics of Ripples in Terahertz Nonlocal Two-Dimensional Nanofilm Structures Considering Scale Effects*

Zou Heng Hu Kaiming[†] Deng Xinlu Zhang Wenming Meng Guang

(State Key Laboratory of Mechanical System and Vibration, Shanghai Jiao Tong University, Shanghai 200240, China)

Abstract This study delves into the dynamic characteristics of ripples in two-dimensional (2D) nanofilms considering scale effects through nonlocal theory and molecular dynamics simulations. Initially, ripple dynamics model for 2D nanofilms under terahertz (THz) excitation is constructed based on the nonlocal Kirchhoff plate theory, revealing the relationship between ripple wavenumber and THz excitation frequency. Subsequently, the accuracy of the nonlocal ripple dynamics model is verified by comparing it with molecular dynamics simulations, and the nonlocal parameters is identified. Furthermore, the differences between the discrete molecular dynamics model and the continuous medium theory model for 2D film structures at small scales is analyzed, and the effects of important parameters such as equivalent thickness, chirality and nonlocal parameters on ripple wavenumber and phase velocity is discussed. The study indicates that when the ripple wavelength approaches the scale of carbon-carbon bonds, the discrete nature of atoms disrupts the uniformity of adjacent ripples, demonstrating the importance of con-

2024-09-08 收到第 1 稿,2024-10-05 收到修改稿。

* 国家自然科学基金资助项目(12032015, 12121002, 12172216),上海市学术/技术研究带头人计划(19XD1421600),上海交通大学双一流建设项目(WH220402002),国家重点研发计划重点专项(2021YFB3202200),上海交通大学“深蓝计划”基金项目(SL2023MS005), National Science Foundation of China (12032015, 12121002, 12172216), Program of Shanghai Academic/Technology Research Leader (19XD1421600), Double First-Class Construction Project of Shanghai Jiao Tong University (WH220402002), National Key R&D Program of China (2021YFB3202200), Oceanic Interdisciplinary Program of Shanghai Jiao Tong University (SL2023MS005).

[†] 通信作者 E-mail:hukaiming@sjtu.edu.cn

sidering the discrete nature of atomic distribution for modeling the cross-scale ripple dynamics of 2D nanofilms under high-frequency THz excitation. Additionally, it is found that the phase velocity in the zigzag direction is greater than that in the armchair direction, and as the central excitation frequency increases, the wave pattern of closed ripples transitions from circular to hexagonal.

Key words terahertz vibration, two-dimensional nanofilm, ripples dynamics, nonlocal theory

引言

太赫兹(THz)技术以其高光谱分辨率、优异的穿透深度、高透明度和高带宽,在安全^[1]、通信^[2]、成像^[3]、医疗^[4]和生物传感领域^[5]有着广泛的应用。二维纳米薄膜,如石墨烯和过渡金属二卤代化合物(TMDs),因其高载流子迁移率、可调带隙和优异的机械性能等特性,已被证明是设计太赫兹器件的一种有前途的方法^[6]。利用二维纳米薄膜,人们已经制备了多种对太赫兹波段具有高效响应的发射器、调制器、探测器和光源^[7-9]。

为了充分发挥二维纳米薄膜在太赫兹应用领域的潜力,对由二维纳米薄膜太赫兹振动形成的涟漪动力学特性进行深入理解至关重要^[10]。目前,二维纳米薄膜的理论建模主要采用三种方法:原子模拟、原子-连续混合力学模型和连续介质力学模型^[11]。原子模拟如经典分子动力学(MD)、紧束缚分子动力学(TBMD)和密度泛函理论(DFT)等,虽然精确度高,但计算量大,适用于分子和原子数量较少的体系^[12]。原子-连续混合力学模型允许将原子间势直接纳入连续体分析^[13]。连续介质力学包括经典梁、板和壳理论,比前两种方法计算量小,且公式相对简单^[14]。然而,经典连续介质模型在处理小尺度效应对二维纳米薄膜力学行为的影响时存在局限性^[15,16]。在小尺度下,薄膜的纳米离散结构不能简单地视为连续体^[17]。因此,直接应用经典连续介质模型对二维纳米薄膜进行力学建模时需谨慎。在此情况下,Eringen^[18]发展出非局部弹性理论,其不同于经典的连续模型,给定参考点的应力状态是体中每一点应变场的函数,因此能够解释原子间的长程作用力和尺度效应,被广泛用于纳米材料的建模。Pradhan等人^[19]通过非局部连续介质力学对嵌入聚合物基体中的多层石墨烯片进行振动分析,发现非局部效应对石墨烯片的动力学行为有显著影响。Shen等人^[20]利用非局部冯·卡曼板

研究了热环境中简支、矩形、单层石墨烯薄板的非线性振动行为。结果表明,选取合适的非局部参数对预测热环境中石墨烯片的非线性振动有重要影响。Xiao等人^[21]利用Hamilton原理和非局部应变梯度理论讨论了波数、材料长度尺度参数、非局部参数和阻尼系数对二维材料面内波传播行为的影响。研究发现:当激发波长或结构尺寸与材料长度尺度参数和非局部参数相当时,尺度效应对波传播行为有显著影响。

尽管在非局部连续介质力学模型的框架下,众多研究已经探讨小尺度效应对二维纳米薄膜涟漪的影响。然而,这些研究往往缺乏必要的数值模拟和实验验证,导致无法精确校准模型中关键的非局部参数,进而无法全面验证非局部理论的适用性。此外,关于离散的微观结构对涟漪的影响知之甚少。

根据上述现状,本文旨在通过非局部理论和分子动力学模拟,以石墨烯为例,对二维纳米薄膜涟漪动力学特性进行分析。本研究利用MD模拟探讨了非局部模型的合理性并对非局部参数进行了标定,结果表明尺度效应对涟漪的高频传播具有重大影响。此外,本研究还特别关注了离散模型与连续模型在小尺度上的差异性,为二维纳米薄膜的力学建模提供了新理解,这对设计基于二维纳米薄膜的应变传感器、质量和压力传感器、原子尘埃探测器、表面图像分辨率增强器具有重要的理论意义。

1 非局部 Kirchhoff 板模型

根据Eringen非局部理论^[18],弹性连续体中参考点 x 处的应力不仅取决于该点的应变,还取决于整个物体上每一点处的应变,如图1(b)所示。忽略体力的线性均匀各向同性弹性固体的基本方程可以表示为

$$\begin{aligned}\sigma_{ij,j} &= 0, \\ \sigma_{ij}(x) &= \int \lambda(|x-x'|, \alpha) C_{ijkl} \epsilon_{kl}(x') dV(x')\end{aligned}\quad (1)$$

其中, σ_{ij} 和 ϵ_{kl} 分别是应力和应变张量; C_{ijkl} 是经典各向同性弹性中的弹性模量张量。

式(1)表明,参考点处的应力取决于 x 点周围有限体积 V 内产生的局部应变,通过一个非局部内核 $\int \lambda(|x-x'|, \alpha)$ 对 x 点附近的经典应变进行加权。 λ 是非局部模量或衰减函数,它是欧几里得距离 $|x-x'|$ 和材料常数 α 的函数。材料常数 α 定义为 $e_0 a/l$, 取决于内部特征长度 a (晶格参数、颗粒尺寸、碳-碳键距离), 外部特征长度 l (裂纹长度、

$$\begin{Bmatrix} \sigma_{xx} \\ \sigma_{yy} \\ \sigma_{xy} \end{Bmatrix} - \mu \nabla^2 \begin{Bmatrix} \sigma_{xx} \\ \sigma_{yy} \\ \sigma_{xy} \end{Bmatrix} = \begin{bmatrix} E/(1-\nu^2) & \nu E/(1-\nu^2) & 0 \\ \nu E/(1-\nu^2) & E/(1-\nu^2) & 0 \\ 0 & 0 & G_{xy} \end{bmatrix} \begin{Bmatrix} \epsilon_{xx} \\ \epsilon_{yy} \\ \epsilon_{xy} \end{Bmatrix} \quad (3)$$

其中, $\nabla^2 = \partial/\partial x^2 + \partial/\partial y^2$ 为拉普拉斯算子。

在图 1(a) 和图 1(c) 所示的 Kirchhoff 均质板模型中,薄板仅受到垂直于板面的位移 w 且板的变形是纯弯曲。因此,几何方程可以写成

$$\begin{aligned} \epsilon_{xx} &= \frac{\partial u}{\partial x} = -z \frac{\partial^2 w}{\partial x^2}, \\ \epsilon_{yy} &= \frac{\partial v}{\partial y} = -z \frac{\partial^2 w}{\partial y^2}, \\ \gamma_{xy} &= \frac{\partial u}{\partial y} + \frac{\partial v}{\partial x} = -2z \frac{\partial^2 w}{\partial x \partial y} \end{aligned} \quad (4)$$

根据 Kirchhoff 板理论,弯曲力矩的动力学平衡方程为^[22]

$$\frac{\partial^2 M_x}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 M_y}{\partial y^2} - 2 \frac{\partial^2 M_{xy}}{\partial x \partial y} = -q + \rho h \frac{\partial^2 w}{\partial t^2} \quad (5)$$

其中, $M_{xx} = \int_{-h/2}^{h/2} z \sigma_{xx} dz$ 是 x 方向的弯矩; $M_{yy} =$

$\int_{-h/2}^{h/2} z \sigma_{yy} dz$ 是 y 方向的弯矩; $M_{xy} = \int_{-h/2}^{h/2} z \sigma_{xy} dz$ 是 x

$$k = \sqrt{[2\pi^2 f^2 \rho h (e_0 a)^2 + 2\sqrt{\pi^4 \rho h^2 (e_0 a)^4 f^4 + \pi^2 \rho h f^2 D}]/D} \quad (9)$$

其中, f 为激励频率。

相速度与波数的关系可以表示为

$$c = \frac{\omega}{k} = k \sqrt{\frac{D}{\rho h [1 + (e_0 a)^2 k^2]}} \quad (10)$$

当 $e_0 a = 0$ 的时候,得到传统板中波数和相速度与频率的关系^[23]

$$k = \sqrt{2\pi f \sqrt{\frac{\rho h}{D}}} \quad (11)$$

$$c = k \sqrt{\frac{D}{\rho h}} \quad (12)$$

波长) 和非局部参数 $e_0 a$, 揭示了小尺度效应对纳米结构响应的影响。通常,在石墨烯中 $e_0 a$ 的取值范围与其在碳纳米管中类似,一般为 $0 \sim 2\text{nm}$ 。核函数 $\int \lambda(|x-x'|, \alpha)$ 由 Eringen 给出

$$\lambda(|x-x'|, \alpha) = (2\pi l^2 \alpha^2)^{-1} K_0 \left(\frac{\sqrt{\chi, \chi}}{l\alpha} \right) \quad (2)$$

其中, K_0 是修正的 Bessel 函数。

基于式(1)和式(2)以及经典胡克定律,可以得到非局部本构关系

和 y 方向的剪力矩; h 为板的厚度。

将式(3)和式(4)代入式(5)中可得到以位移形式给出的纳米板动力学平衡方程

$$-D \nabla^4 w = [1 - (e_0 a)^2 \nabla^2] \left(I_0 \frac{\partial^2 w}{\partial t^2} \right) \quad (6)$$

其中, $D = Eh^3/12(1-\nu^2)$ 是板的弯曲刚度; $I_0 = \rho h$ 是第一质量转动惯量; ρ 是质量密度。

在仅考虑 x 方向涟漪传播时, y 方向的波数为 0。在此情况下,涟漪可以表示为

$$w(x, t) = W \cos(kx - \omega t) \quad (7)$$

其复数形式为

$$w(x, t) = W e^{i(kx - \omega t)} \quad (8)$$

其中: W 表示涟漪的幅值,是一个与 x 和 t 无关的量; k 是 x 方向的波数; ω 是激励的角频率; t 代表时间。

将式(8)代入式(6)可以得到涟漪波数与频率的关系

2 分子动力学模型

在 MD 模拟中, AIREBO 势被用于描述碳原子之间的相互作用^[24]。在该势函数中,碳-碳共价键部分依赖于 REBO 势来描述,截断距离为 $2\text{\AA}$ 。长程的范德华相互作用则采用 12-6 Lennard-Jones 势来计算,截断距离为 $3\text{\AA}$ 。这两种力的作用范围如图 1(f) 所示。石墨烯的尺寸被设定为 $340\text{\AA} \times 340\text{\AA}$, 其中 x 对应扶手椅方向, y 对应锯齿方向,如图 1(d) 所示。为了保证模拟的准确性以及避免

尺寸效应,在 x 和 y 方向上施加周期性边界条件, z 方向则为自由边界条件. 在模拟的初始阶段,石墨烯在 NVT 系综下进行了 10ps 的弛豫,以确保系统达到能量最低的稳定状态. 在模拟过程中,石墨烯最左端 $10\text{\AA}$ 范围内的原子被设置为振动源[图 1(c)中白色原子]. 为了避免在振动过程中对石墨烯造成损伤,振动源的幅值被设为 $0.02\text{\AA}$. 同时,石墨烯最右端 $10\text{\AA}$ 范围内的原子被固定为边界层(黑色原子). 棕色原子代表牛顿层,在模拟过程中传递振动并形成涟漪,如图 1(d)、图 1(e)所示. 在振动过程中,牛顿层采用 NVE 系综和 Velocity-Verlet 算法进行积分,时间步长为 1fs. 所有的模拟都是在大规模原子/分子并行模拟器(LAMMPS)上进行的^[25].

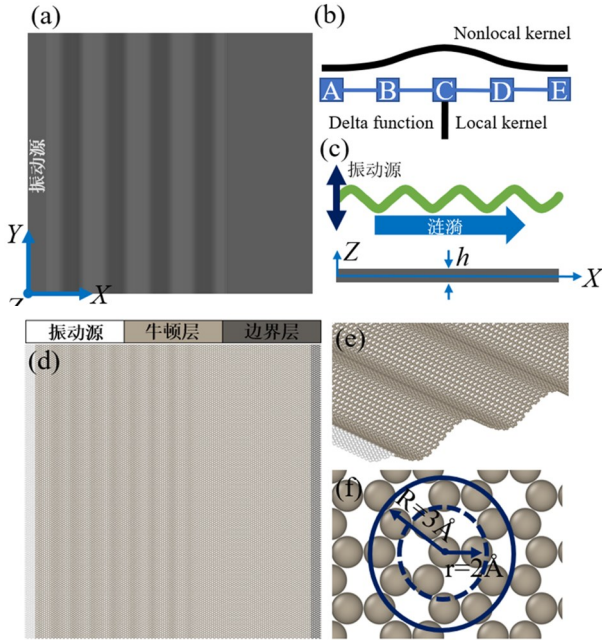


图1 石墨烯涟漪示意图:(a)~(c)等效连续介质模型;
(d)~(f)离散分子动力学模型

Fig. 1 Schematic diagram of graphene ripples: (a)~(c) Equivalent continuous medium model; (d)~(f) Discrete molecular dynamics model

3 结果与讨论

3.1 模型验证

在本研究中,所用石墨烯的关键材料参数均基于先前采用 AIREBO 势函数的轴向拉压模拟^[24]: 面内刚度 Eh 分别为 360J/m^2 (扶手椅方向)和 380J/m^2 (锯齿方向),质量密度 ρ 为 2.27g/cm^3 ,泊松比 ν 为 0.34. 另外,板对应的有效厚度 h 为 0.34nm .

为了考察非局部 Kirchhoff 模型在预测石墨烯涟漪波数方面的合理性,本研究将其基于 $e_0\alpha =$

0.52nm 所得的结果与 MD 模拟以及局部和非局部 Mindlin 模型所得的结果进行对比,如图 2 所示. 在低频域,即振动源频率低于 1THz 时,四种模型所预测的波数相近,均能准确预测 MD 模拟的结果. 然而,当频率高于 1THz 后,两种局部模型所预测的波数明显小于非局部模型所预测的波数. 此外,局部模型的预测结果也与 MD 模拟存在明显偏差. 这表明局部理论并不适用于捕捉石墨烯中高频涟漪动力学特性. 局部理论仅考虑了材料内部的直接邻近相互作用. 在低频范围内,这种简化对涟漪特性的影响较小. 但在高频区域内,涟漪波长与材料的微观结构尺寸相近,使得非相邻单元间的相互作用对涟漪的传播产生显著影响,非局部效应变得十分显著. 在 1THz 到 3.33THz 范围内,两种非局部模型与 MD 模拟具有良好的一致性. 进一步地,当振动源的频率超过 3.33THz 时,非局部 Mindlin 模型预测的波数随激励频率的增加迅速上升,其预测值显著高于非局部 Kirchhoff 模型以及 MD 模拟的结果. 考虑到石墨烯的单层原子结构,石墨烯并没有沿厚度方向的转动惯量 $I_2 = \rho h^3/12$. 而非局部 Mindlin 模型保留了厚度相关的惯性项 $I_2 \partial^4 w / (\partial x^2 \partial t^2)$, 使式(6)变为:

$$-D \nabla^4 w = [1 + (e_0 \alpha)^2 \nabla^2] \left(I_0 \frac{\partial^2 w}{\partial t^2} - I_2 \frac{\partial^4 w}{\partial x^2 \partial t^2} \right) \quad (13)$$

这导致其在高频区域内对波数过分高估. 对于非局部 Kirchhoff 模型,其结果在整个频率范围内始终与 MD 结果保持良好的一致性,表明非局部 Kirchhoff 模型在石墨烯涟漪动力学建模方面具有最佳的适用性.

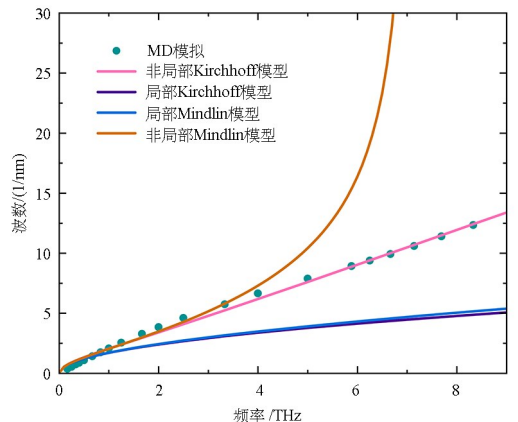


图2 MD模拟,局部/非局部 Kirchhoff 模型,
局部/非局部 Mindlin 模型波数对比

Fig. 2 Comparison of wave numbers in MD simulation, local/non-local Kirchhoff model, and local/non-local Mindlin model

非局部参数,作为揭示纳米结构尺度效应的关键固有参数,其值恒定且独立于外部条件。MD 模拟与非局部 Kirchhoff 模型对比表明石墨烯的非局部参数 $e_0 a$ 为 0.52nm。图 3 展示了在不同外部条件下,MD 模拟与非局部 Kirchhoff 模型的结果对比。图 3(a)为沿不同晶格方向的一维涟漪波数对比。在扶手椅和锯齿方向上,非局部 Kirchhoff 模型的预测结果均与 MD 模拟保持良好的一致性,证实了该模型与 $e_0 a =$

0.52nm 在不同晶格取向上的适用性。同样地,在图 3(b)和图 3(c)中,非局部 Kirchhoff 模型对由双振动源形成的二维涟漪和由中心激励形成的闭合涟漪的预测结果与 MD 模拟展现出良好的一致性。这些结果共同表明 $e_0 a = 0.52\text{nm}$ 的准确性以及非局部 Kirchhoff 模型的合理性。该模型和上述参数可以被广泛用于描述不同晶格方向、边界条件和激励条件下的石墨烯涟漪动力学特性。

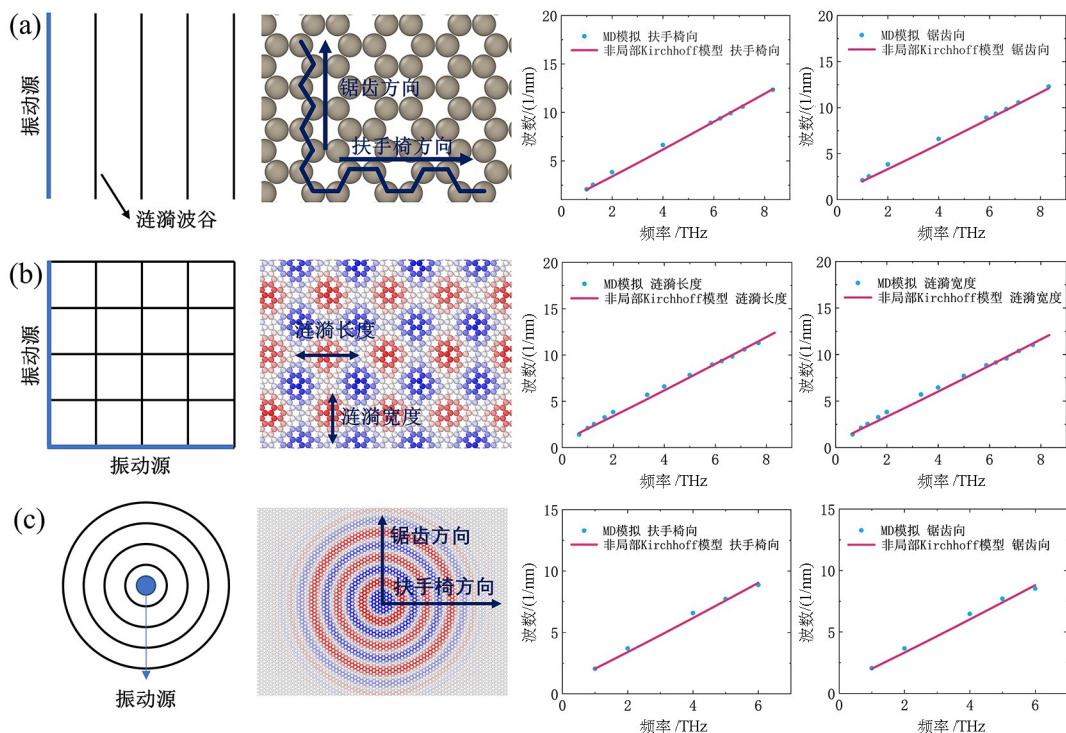


图 3 不同外部条件下非局部 Kirchhoff 模型与 MD 模拟对比:(a)手性对涟漪波数的影响;(b)二维涟漪动力学特性;(c)闭合涟漪动力学特性
Fig. 3 Comparison between non-local Kirchhoff model and MD simulation under different external conditions: (a) The effect of chirality on wave number; (b) Dynamic characteristics of two-dimensional ripples; (c) Dynamic characteristics of closed ripples

3.2 离散模型与连续模型对比

在宏观板中,涟漪的传播遵循连续介质力学原理,波数对幅值并无影响。但在石墨烯中,当波长与原子间距接近时,其离散的微观结构使涟漪的传播特性与连续介质理论存在差异。MD 模拟表明在石墨烯中,涟漪的幅值 W 受到波数 k 的影响,如图 4(a)所示。当 $k < 1.066/\text{nm}$ 时, W 与振动源的幅值几乎一致,这与宏观连续理论相符。此时波长远大于碳-碳键长 ($l_{cc} = 1.4\text{\AA}$),微观结构对涟漪传播的影响可以忽略。当 $1.066/\text{nm} < k < 6.634/\text{nm}$ 时,随着 k 逐渐增加,涟漪与微观结构的相互作用增强,降低了涟漪的传播效率。 W 随着 k 的增加而近似线性地减小。当 k 达到 $6.634/\text{nm}$ 时,微观结构对涟漪的影响达到饱和,此时 W 达到稳定值 $0.852W_0$ 。直

到当 k 进一步增加至 $12.642/\text{nm}$ 时,波长缩短至三排碳原子长度以下导致涟漪无法传播, W 几乎降至零。基于模拟结果, W 可以表示为 k 的分段函数:

$$W(k) = \begin{cases} 0.994W_0, & 0 < k < 1.066 \\ (1.0212 - 0.0255k)W_0, & 1.066 < k < 6.634 \\ 0.852W_0, & 6.634 < k < 12.642 \\ 0, & 12.642 < k \end{cases} \quad (14)$$

其中, W_0 为振动源的幅值。

进一步地,将模拟得到的 W 和离散的碳原子坐标

$$x_n = \begin{cases} x_{n-1} + 0.7\text{\AA}, & n \text{ 为奇数} \\ x_{n-1} + 1.4\text{\AA}, & n \text{ 为偶数} \end{cases} \quad (15)$$

代入非局部 Kirchhoff 模型中,并将得到的波型与 MD 结果进行对比,如图 4(b)~(f)所示。尽管二者

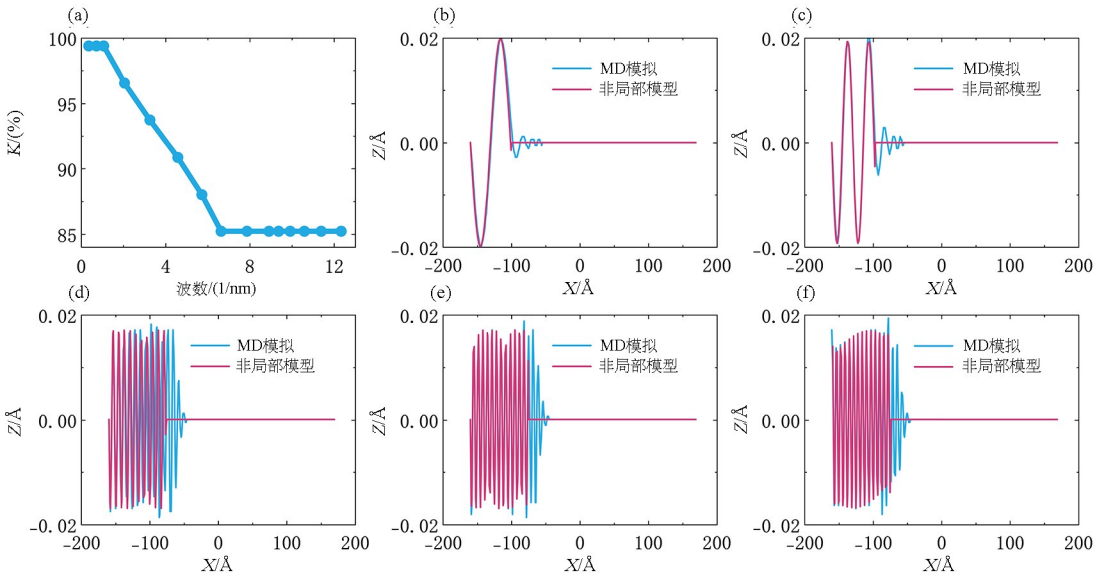


图4 非局部连续模型与离散 MD 模型之间的差异:(a)幅值与波数的关系,其中 $K=W/W_0$;
(b)~(f) $t=2000\text{fs}$ 时,不同频率的波型对比;(b)0.5THz;(c)1THz;(d)5THz;(e)6.25THz;(f)6.77THz
Fig. 4 Differences between non-local continuous models and discrete MD models;(a) The relationship between amplitude and wave number, $K=W/W_0$; (b)~(f) Comparison of wave patterns at different frequencies at $t=2000\text{fs}$;
(b) 0.5THz;(c) 1THz;(d) 5THz;(e) 6.25THz;(f) 6.77THz.

在波前处存在差异,这主要归因于离散介质中涟漪的传播具有一定耗散,而在连续介质模型中这一现象通常未被考虑,但在波的主体部分,非局部 Kirchhoff 模型预测的波型与 MD 模拟结果展现出良好的一致性.即使是在高频激励下,相邻涟漪的波长和幅值并不完全相同,非局部 Kirchhoff 模型仍然能与 MD 模拟保持良好的一致性.这表明尽管微观结构存在离散性,但涟漪的波型本质上仍是谐波.波型的失真是在微观尺度上,涟漪的物理载体(碳原子)无法维持连续性.

图5显示了在 $t=2000\text{fs}$ 时,石墨烯在不同激

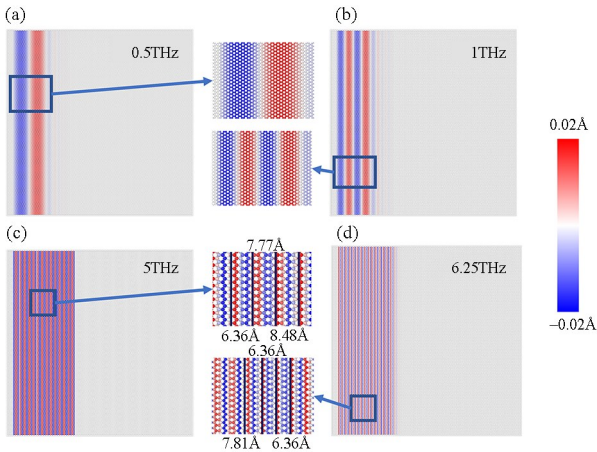


图5 石墨烯涟漪微观结构示意图,模拟时间 $t=2000\text{fs}$;
(a)0.5THz;(b)1THz;(c)5THz;(d)6.25THz
Fig. 5 Schematic diagram of ripples microstructure in graphene at simulation time $t=2000\text{fs}$;(a) 0.5THz; (b) 1THz;
(c) 5THz; (d) 6.25THz

励频率下的原子分布.可以看到,由于结构的离散性,相邻涟漪的原子分布存在一定差异.尤其是在高频激励下,此时波长接近 l_{cc} ,相邻涟漪的差异更为显著,如图5(c)、图5(d)所示.进一步地,图6显示了 MD 模拟中相邻涟漪之间的波长和幅值变化.从图6(a)中可以看出在高频激励下,相邻涟漪之间的振幅差异十分明显.图6(b)显示了相邻涟漪的波长变化.可以看到,由于原子的离散排列导致波长也呈离散分布,为 $l_{cc}/2 \times n$,其中 n 为整数.特别地,在 3.33THz 和 6.67THz 的激励频率下,相邻涟漪的波长保持一致,这是特定波长与离散原子间的耦合所致.

图6(c)展示了非局部 Kirchhoff 模型在考虑离散原子坐标后,不同频率下相邻涟漪的波长变化.平均波长越接近 $(l_{cc} + l_{cc}/2 = 2.1\text{\AA})$ 的整数倍时,相邻涟漪之间的波长变化越趋于稳定.这是由于当波长与离散原子分布的最小周期相匹配时,即波长为该周期的整数倍时,谐波与离散原子耦合所形成的波型在周期上与谐波波长一致,从而使得相邻涟漪的属性一致.当激励频率为 6.592 和 4.878THz 时,波长为 6.3Å 和 8.4Å(分别为 2.1Å 的 3 倍和 4 倍),此时相邻涟漪的波长完全保持一致[图6(c)中紫线与黄线],这与 MD 模拟类似.同样地,波长与离散原子间的耦合也会形成不同的波型,如图7所示.当波长接近 6.3Å 和 8.4Å 时,相邻

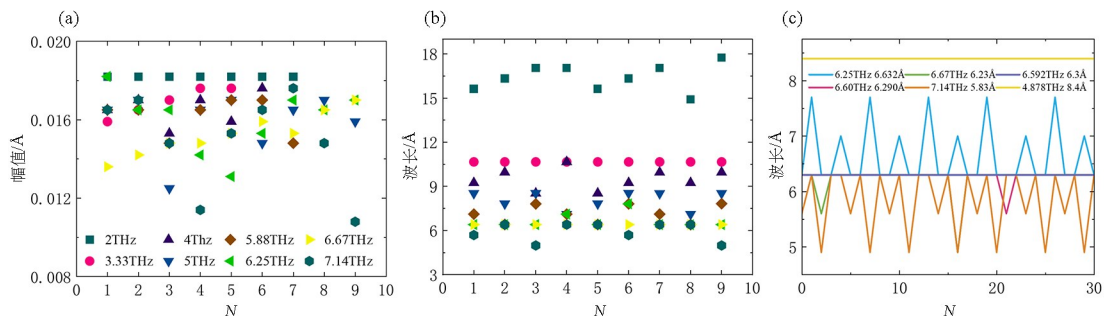


图 6 MD 中相邻涟漪之间幅值和波长变化: (a) 幅值变化, $t = 2000\text{fs}$; (b) 波长变化, $t = 2000\text{fs}$; (c) 非局部 Kirchhoff 模型中的波长变化

Fig. 6 Changes in amplitude and wavelength between adjacent ripples in MD: (a) Amplitude change at $t = 2000\text{fs}$; (b) Wavelength change at $t = 2000\text{fs}$; (c) Wavelength change in the non-local Kirchhoff model

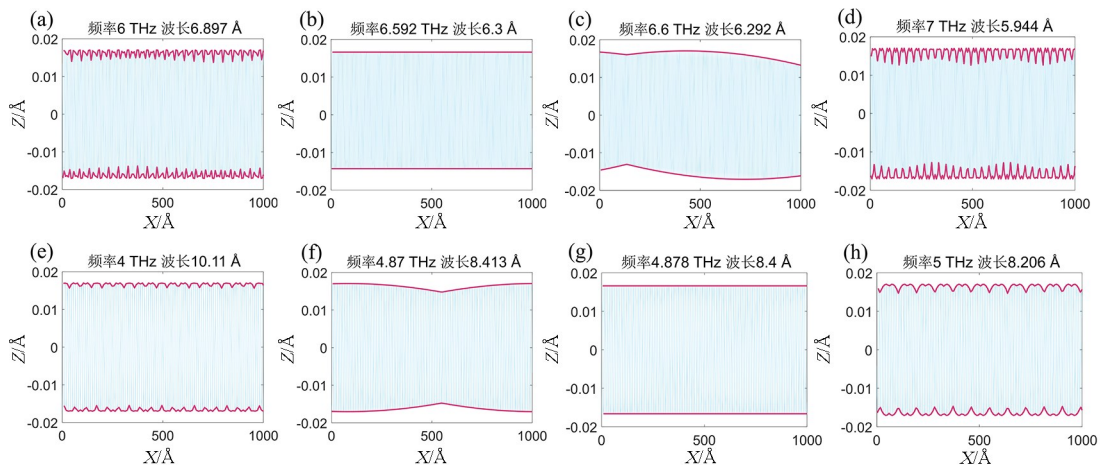


图 7 非局部 Kirchhoff 模型中不同频率下的石墨烯涟漪波型: (a) 6THz; (b) 6.592THz; (c) 6.6THz; (d) 7THz; (e) 4THz; (f) 4.87THz; (g) 4.878THz; (h) 5THz

Fig. 7 Graphene ripple patterns at different frequencies in the non-local Kirchhoff model: (a) 6THz; (b) 6.592THz; (c) 6.6THz; (d) 7THz; (e) 4THz; (f) 4.87THz; (g) 4.878THz; (h) 5THz

涟漪的振幅变化开始减缓,呈现出连续缓慢上升或下降的趋势,这与图 6(a)中频率为 3.33 和 6.67THz 的 MD 模拟结果一致.当波长正好等于 $l_{cc} + l_{cc}/2$ 的整数倍时(6.3Å 和 8.4Å),相邻涟漪的振幅完全一致,如图 7(b)和图 7(g)所示.每个涟漪的最大值点连线为一条水平的直线.这种特性有助于提高识别和定位石墨烯缺陷的准确性^[27].

3.3 参数讨论

图 8 显示了等效厚度,杨氏模量(手性)和 e_0a 对波数的影响.等效厚度的增加会造成涟漪波数的减小,如图 8(a)所示.在杨氏模量不变的情况下, h 的增加会导致面内质量与弯曲刚度的比值 $\rho h/D = 12\rho(1-v^2)/Eh^2$ 减小,进而使涟漪波数降低.在石墨烯中,不同手性方向的原子排列会对杨氏模量造成一定影响.如图 8(b)所示,随着杨氏模量的增加,波数轻微上升.但在 E 在 360J/m^2 (扶手椅方向)至 380J/m^2 (锯齿方向)的范围内,波数变化并不明显.图 8(c)显示了 e_0a 对波数的影响,高频下

非局部模型预测的波数高于局部模型所预测的波数.另外, e_0a 的增大也会导致波数增加,且随着频率增加,这一现象更加显著.这是因为 e_0a 的引入实质上相当于调整了石墨烯的弯曲刚度.弯曲刚度从局部模型中的 D 降为 $D/[1 + (e_0a)^2 k^2]$.随着激励频率增加,波数 k 增加,进而导致 $D/[1 + (e_0a)^2 k^2]$ 进一步降低.因此,局部模型与非局部模型以及各 e_0a 之间差异随着频率的增加而增加.这再次表明了对于高频波动,考虑非相邻单元间的相互作用是十分必要的.

为了深入探究非局部效应的影响,我们进行了采用 REBO 势函数的 MD 模拟,该模拟的其余条件与采用 AIREBO 势函数的模拟一致. REBO 势函数忽略了长程的范德华相互作用项,仅保留了 AIREBO 势函数中用于描述碳-碳共价键的项^[26].两种不同势函数模拟结果的对比展示在图 8(d)中.结果表明,在激励频率低于 5.5THz 时,使用 REBO 势函数得到的波数明显高于使用 AIREBO 势函数的结果.然而,当频率超过 5.5THz 时,

采用 AIREBO 势函数所得的波数超过了采用 REBO 势函数的结果. 这一现象归因于在使用 REBO 势函数的模拟中, 由于未计入范德华力, 石墨烯的杨氏模量相对较低, 从而在低频下的波数较高. 并

且忽略范德华力作用导致在 REBO 势函数模拟中的非局部效应远低于在 AIREBO 势函数模拟中的非局部效应. 具体而言, REBO 势函数下的 $e_0 a$ 仅为 0.08nm. 这导致在采用 REBO 势函数的模拟中,

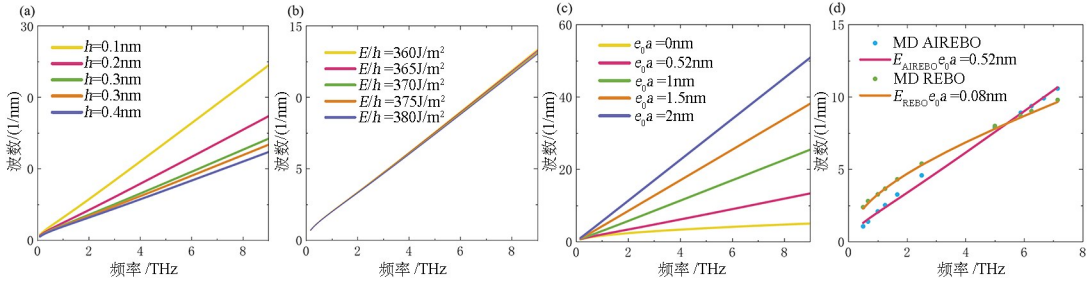


图 8 重要参数对波数的影响: (a) 等效厚度对波数的影响; (b) 杨氏模量对波数的影响; (c) $e_0 a$ 对波数的影响; (d) AIREBO 势函数与 REBO 势函数对比

Fig. 8 The influence of important parameters on wave number: (a) The effect of equivalent thickness on wave number; (b) The effect of Young's modulus on wave number; (c) The effect of $e_0 a$ on wave number; (d) Comparison between AIREBO potential and REBO potential

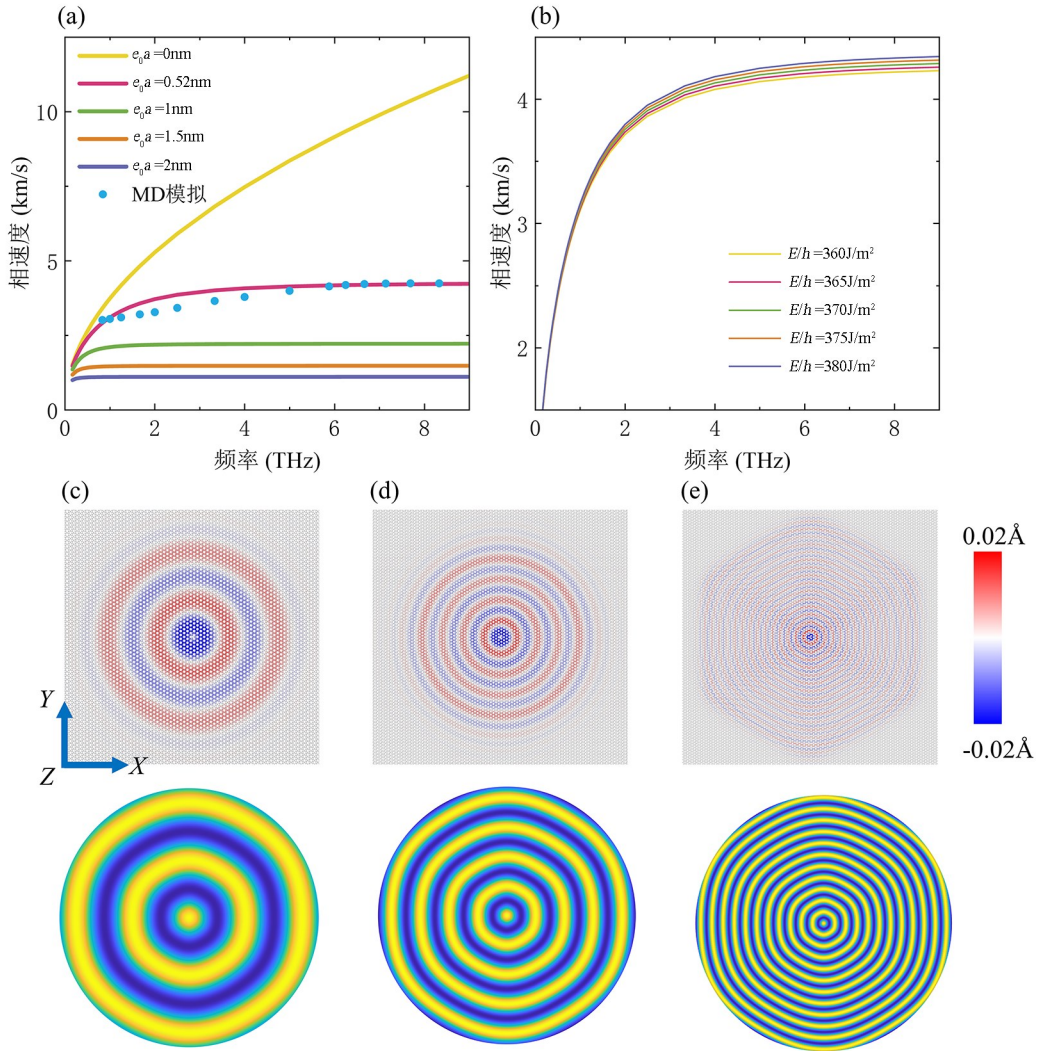


图 9 非局部参数和手性对相速度的影响: (a) $e_0 a$ 对相速度的影响; (b) 杨氏模量对相速度的影响; (c)~(e) 不同频率下闭合涟漪的波形, 其中 x 为扶手椅向, y 为锯齿向 [(c) 1THz; (d) 2THz; (e) 6THz]

Fig. 9 The influence of important parameters on phase velocity: (a) The effect of $e_0 a$ on phase velocity; (b) The effect of Young's modulus on phase velocity; (c)~(e) Wave patterns of closed ripples at different frequencies, in which x represents the armchair direction, and y represents the zigzag direction [(c) 1THz; (d) 2THz; (e) 6THz]

波数随频率的增长速率明显低于使用 AIREBO 势函数的模拟。最终,在频率超过 5.5 THz 之后,采用 REBO 势函数所得的波数低于使用 AIREBO 势函数的模拟结果。

在相速度方面[图 9(a)],非局部模型预测的相速度普遍高于局部模型的结果。更重要的是,非局部模型中相速度在达到某一临界频率后趋于稳定,这与 MD 模拟一致。这可能是因为当频率增加到一定程度时,涟漪的传播速度受到材料微观结构和动力学过程的内在限制,涟漪的传播接近材料的某些固有模式。这些模式具有特定的传播速度,导致相速度不再随激励频率变化。另外, $e_0 a$ 的增加会导致相速度逐渐降低,且达到稳定相速度所需的临界频率也随之降低。这表明非局部效应不仅影响了涟漪的传播速度,还改变了其达到稳定传播状态下的临界条件。相比之下,局部模型未能预测出相速度在高频下的稳定化特征。这表明在高频条件下,非局部模型能够更准确地反映材料微观结构与涟漪的相互作用。

图 9(b)显示了杨氏模量(手性)对相速度的影响,在激励频率小于 1 THz 时,不同杨氏模量下的相速度几乎一致,这与波数类似,表明石墨烯涟漪动力学特性在低频下近似各向同性。但当激励频率大于 1 THz 后,具有较高杨氏模量的手性方向展现出较高的相速度且这一现象随着频率的增加变得更加显著。进一步地,图 9(c)~(e)显示了在中心振动激励下,MD 模拟与非局部 Kirchhoff 模型在不同激励频率下形成的闭合涟漪对比。二者的波型表现出良好的一致性,进一步证实了非局部 Kirchhoff 模型在捕捉石墨烯涟漪动力学特性方面的适用性和准确性。在 1 THz 的低频激励下,波型为环形[图 9(c)]。随着激励频率的增加,相速度对手性的依赖性逐渐增强。涟漪在锯齿方向上的传播距离与其在扶手椅方向上的传播距离差异愈发明显,导致波型由环形逐步演变为六边形。在 6 THz 时,相速度已进入稳定阶段,波型为六边形[图 9(e)]。这进一步证实了在高频区域内,涟漪的相速度与手性密切相关。

4 结论

本研究结合非局部理论和 MD 模拟,深入探讨了尺度效应下石墨烯太赫兹涟漪动力学特性,并辨识了石墨烯非局部参数 $e_0 a = 0.52 \text{ nm}$ 。研究发现:

在低频范围内,局部模型与非局部模型的结果较为接近。但在高频区域内,非局部效应对涟漪的影响十分显著,此时仅非局部 Kirchhoff 模型能够准确预测其动力学特性。相比之下,传统局部模型倾向于低估波数,而非局部 Mindlin 模型则倾向于高估波数。此外,本研究还对比了离散模型与连续模型的差异性。MD 模拟与非局部模型的对比表明:当涟漪波长接近碳-碳键尺度时,原子的离散特性破坏了相邻涟漪的均匀性。在此情况下,考虑原子分布的离散特性对太赫兹高频激励下二维纳米薄膜跨尺度涟漪动力学建模是十分重要的。最后,本研究分析了等效厚度,手性和非局部参数等重要参数对波数和相速度的影响。结果表明:锯齿方向的相速度大于扶手椅方向的相速度,且随着中心激励频率的增加,闭合涟漪的波型从环形转变为六边形。尽管本研究聚焦于石墨烯,但鉴于二维材料原子排列的共性,该模型可以被广泛用于其它二维纳米薄膜涟漪动力学建模。上述结论为二维纳米薄膜的跨尺度建模提供了新视角,有助于推动二维纳米薄膜在柔性电子器件、纳米机电系统等领域的应用。

参考文献

- [1] SHEN Y C, LO T, TADAY P F, et al. Detection and identification of explosives using terahertz pulsed spectroscopic imaging [J]. *Applied Physics Letters*, 2005, 86(24): 241116.
- [2] YANG Y H, YAMAGAMI Y, YU X B, et al. Terahertz topological photonics for on-chip communication [J]. *Nature Photonics*, 2020, 14: 446—451.
- [3] BAI J J, PANG Z Q, SHEN P Y, et al. A terahertz photo-thermoelectric detector based on metamaterial absorber [J]. *Optics Communications*, 2021, 497: 127184.
- [4] ZHANG J, LI S, LE W D. Advances of terahertz technology in neuroscience: current status and a future perspective [J]. *iScience*, 2021, 24(12): 103548.
- [5] MARKEZ A G, MITTLEMAN D M. Perspective on terahertz applications in bioscience and biotechnology [J]. *ACS Photonics*, 2022, 9(4): 1117—1126.
- [6] LIN Y C, TORSI R, YOUNAS R, et al. Recent advances in 2D material theory, synthesis, properties, and applications [J]. *ACS Nano*, 2023, 17(11): 9694—9747.

- [7] JAKHAR A, KUMAR P, MOUDGIL A, et al. Optically pumped broadband terahertz modulator based on nanostructured PtSe_2 thin films [J]. *Advanced Optical Materials*, 2020, 8(7): 1901714.
- [8] QIN H, SUN J D, LIANG S X, et al. Room-temperature, low-impedance and high-sensitivity terahertz direct detector based on bilayer graphene field-effect transistor [J]. *Carbon*, 2017, 116: 760—765.
- [9] WU Y F, WANG Y Q, BAO D, et al. Emerging probing perspective of two-dimensional materials physics: terahertz emission spectroscopy [J]. *Light: Science & Applications*, 2024, 13: 146.
- [10] SRIVASTAV R K. Resonant excitation of terahertz surface plasmons by optical rectification over a rippled graphene surface [J/OL]. *Plasmonics*, 2024. [2024-09-08]. <https://link.springer.com/article/10.1007/s11468-024-02437-8>.
- [11] ARASH B, WANG Q, LIEW K M. Wave propagation in graphene sheets with nonlocal elastic theory via finite element formulation [J]. *Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering*, 2012, 223/224: 1—9.
- [12] PAGE A J, DING F, IRLE S, et al. Insights into carbon nanotube and graphene formation mechanisms from molecular simulations; a review [J]. *Reports on Progress in Physics*, 2015, 78(3): 036501.
- [13] KHARE R, MIELKE S L, SCHATZ G C, et al. Multiscale coupling schemes spanning the quantum mechanical, atomistic forcefield, and continuum regimes [J]. *Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering*, 2008, 197(41/42): 3190—3202.
- [14] CHARATONIK J J. History of continuum theory [M]//AULL C E, LOWEN R, eds. *History of topology*. Dordrecht: Springer Netherlands, 1998: 703—786.
- [15] 罗秋阳, 李成. 考虑非局部应变梯度效应的轴对称压电纳米圆板热—力—电耦合振动[J]. *振动工程学报*, 2022, 35(5): 1118—1129.
- LUO Q Y, LI C. Thermal-mechanical-electrical coupling vibration of axisymmetric piezoelectric circular nanoplates accounting for nonlocal strain gradient effects [J]. *Journal of Vibration Engineering*, 2022, 35(5): 1118—1129. (in Chinese)
- [16] 陈玲, 沈纪苹, 李成, 等. 梯度型非局部高阶梁理论与非局部弯曲新解法[J]. *力学学报*, 2016, 48(1): 127—134.
- CHEN L, SHEN J P, LI C, et al. Gradient type of nonlocal higher-order beam theory and new solution methodology of nonlocal bending deflection [J]. *Chinese Journal of Theoretical and Applied Mechanics*, 2016, 48(1): 127—134. (in Chinese)
- [17] WANG L F, HU H Y. Flexural wave propagation in single-walled carbon nanotubes [J]. *Physical Review B*, 2005, 71(19): 195412.
- [18] ERINGEN A C. On differential equations of nonlocal elasticity and solutions of screw dislocation and surface waves [J]. *Journal of Applied Physics*, 1983, 54(9): 4703—4710.
- [19] PRADHAN S C, PHADIKAR J K. Small scale effect on vibration of embedded multilayered graphene sheets based on nonlocal continuum models [J]. *Physics Letters A*, 2009, 373(11): 1062—1069.
- [20] SHEN L, SHEN H S, ZHANG C L. Nonlocal plate model for nonlinear vibration of single layer graphene sheets in thermal environments [J]. *Computational Materials Science*, 2010, 48(3): 680—685.
- [21] XIAO W W, LI L, WANG M. Propagation of in-plane wave in viscoelastic monolayer graphene via nonlocal strain gradient theory [J]. *Applied Physics A*, 2017, 123(6): 388.
- [22] LEONETTI L, MAGISANO D, MADEO A, et al. A simplified Kirchhoff-Love large deformation model for elastic shells and its effective isogeometric formulation [J]. *Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering*, 2019, 354: 369—396.
- [23] LIU X Y, WANG F C, WU H G. Anisotropic propagation and upper frequency limitation of terahertz waves in graphene [J]. *Applied Physics Letters*, 2013, 103(7): 071904.
- [24] YAO J C, XIA Y X, DONG S H, et al. Finite element analysis and molecular dynamics simulations of nanoscale crack-hole interactions in chiral graphene nanoribbons [J]. *Engineering Fracture Mechanics*, 2019, 218: 106571.
- [25] PLIMPTON S. Fast parallel algorithms for short-range molecular dynamics [J]. *Journal of Computational Physics*, 1995, 117(1): 1—19.
- [26] TORKAMAN-ASADI M A, KOUCHAKZADEH M A. Atomistic simulations of mechanical properties and fracture of graphene: a review [J]. *Computational Materials Science*, 2022, 210: 111457.
- [27] LIU J L, LI X, JIANG R R, et al. Recent progress in the development of graphene detector for terahertz detection [J]. *Sensors*, 2021, 21(15): 4987.