

MoS₂ 电子屏蔽长度和等离子激元

陶泽华 董海明

Electron screening lengths and plasma spectrum in single layer MoS₂

Tao Ze-Hua Dong Hai-Ming

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 66, 247701 (2017) DOI: 10.7498/aps.66.247701

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.247701>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2017/V66/I24>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

低太阳高度角条件下的天空偏振模式模拟及大气折射影响研究

Atmospheric polarization pattern simulation for small solar elevation angles and the analysis of atmospheric effect

物理学报.2016, 65(1): 014203 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.014203>

大气折射对可见光波段辐射传输特性的影响

Influence of atmospheric refraction on radiative transfer at visible light band

物理学报.2015, 64(18): 184203 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.184203>

磁光克尔效应中的光子自旋分裂

Photon spin splitting in magneto-optic Kerr effect

物理学报.2015, 64(17): 174202 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.174202>

偏振光在非球形气溶胶中传输特性的 Monte Carlo 仿真

Simulation of radiation transfer properties of polarized light in non-spherical aerosol using Monte Carlo method

物理学报.2015, 64(9): 094201 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.094201>

带喷流超声速光学头罩流场气动光学畸变试验研究

Experimental investigation on aero-optical aberration of the supersonic flow passing through an optical dome with gas injection

物理学报.2013, 62(8): 084219 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.084219>

MoS₂电子屏蔽长度和等离激元*

陶泽华 董海明†

(中国矿业大学物理科学与技术学院, 徐州 221116)

(2017年7月8日收到; 2017年9月7日收到修改稿)

通过有效哈密顿量求解了单层 MoS₂ 低能量区的电子薛定谔方程, 分析得出电子能量本征值以及波函数、电子态密度以及电子间的屏蔽长度. 发现电子能带分裂成两支导带和两支价带, 并且其能带是准线性的. MoS₂ 的电子间的屏蔽长度非常大, 高达 10^8 cm^{-1} . 利用费曼图形自洽方法, 在无规相近似的基础上研究了单层二硫化钼电子系统的多体相互作用产生的等离激元. 研究发现二硫化钼系统由于自旋的劈裂使得导带中存在两支自旋频率不同的等离激元, 该元激发的特征与单层石墨烯和传统二维电子气的等离激元对波矢 q 的依赖关系是一样的, 激发频率都正比于 $q^{1/2}$, 并且随着电子浓度的增加激发频率增大. 由于其准线性的能量色散关系, 该系统等离激元的频率与电子浓度的变化关系非常不同于石墨烯和二维电子气的关系. 自旋-轨道耦合对单层二硫化钼的能带结构和电子性质有重要的影响. 研究发现, 通过调控二硫化钼系统的电子浓度可以有效地调节该系统两支等离激元的频率. 研究结果对理解二硫化钼的电子结构和性质, 以及开发二硫化钼为基础的等离激元器件有重要的研究和参考价值.

关键词: MoS₂, 等离激元, 自旋-轨道耦合

PACS: 77.22.Ch, 73.22.Lp, 71.70.Ej

DOI: 10.7498/aps.66.247701

1 引言

电子元激发即等离激元是系统中电子集体振荡的能量, 具有优越的介电性质和光电性质. 早在 20 世纪初期, 美国研究学者 Wood 等^[1] 观测到在金属质光栅中, 会发生电磁波反常衍射的现象, 此为最早发现的集体激发现象. 1957 年, 美国的 Richie^[2] 采用箔作为金属薄膜, 应用快电子能量损耗方法初次确切证明了等离激元的存在. 此后, Stem 和 Farrell^[3], Otto^[4], Kretschmann^[5] 及 Raether^[6] 也陆续发展和扩展了等离激元科学的研究, 并取得了一系列重要的研究进展. 此外, 被调制的表面等离激元能够产生非常优异的光电特性, 例如显著的选择性光吸收与散射特性^[7]、局域电场增强特性^[8] 和突破光的衍射极限^[9]、反常的介电特性^[10] 等性质. 这些性质使得等离激元能够在超

分辨率纳米光刻、光信息处理技术、超分辨率成像技术等领域发挥重要作用. 随着对等离激元光子学研究的一步步深入, 等离激元光谱逐渐展现出它在光电子器件应用领域的巨大潜力, 具有广阔的发展前景.

2004 年, Novoselov 和 Geim 首先剥离出单层碳原子层结构——石墨烯^[12]. 石墨烯具有优越的物理性质, 如超高的电导率和良好的热传导性能, 在电子结构理论、量子霍尔效应和自旋电子学等诸多方面具有重要的研究和应用价值, 两人因此获得了 2010 年诺贝尔物理学奖. 虽然石墨烯性能非常优秀, 但是它是无带隙的狄拉克系统, 这使得石墨烯并不能提供较低的截止态电流, 不能满足现代电子电路应用中的需求. 由于二维材料在平面间虽然具有较强的化学键, 但由于其相邻两层的耦合作用比较弱小, 易于被分割成一个个互相独立的单层材料. 因此, 科学家考虑剥离出其他的具有直接带

* 中央高校基本科研业务费专项资金 (批准号: 2015XKMS077) 和国家自然科学基金 (批准号: 11604380) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: hmdong@cumt.edu.cn

隙的二维材料,如单层二硫化钼(MoS_2).在过渡金属层状二硫族化合物中,二硫化钼是间接带隙半导体材料,能带间隙约为1.8 eV,而其切割为单层时具有直接带隙,单层二硫化钼的直接带隙约为1.66 eV,从而弥补了石墨烯的不足,同时又具有良好的光学、电学、光催化等性能.早在1986年,研究者就通过插入锂的方法成功剥离出单层二硫化钼.最近也有报道称通过溶剂或裂解,可制备出单层 MoS_2 .作为典型的类石墨烯单层二硫族化合物,单层二硫化钼由于优越的性质,在光学、电学和新能源材料等领域具有很好的应用前景.另外较石墨烯而言,它在光电子器件方面也具有更为广泛的应用领域,如电子探针、晶体管制造等.利用单原子层二硫化钼材料能够制造出高电流开关比和较高电子迁移率的低能耗场效应管,此项技术非常有希望用于下一代纳米电子器件和设备领域,将比传统的硅材料或石墨烯更有优势^[11].

同时, MoS_2 也具有非常重要的光学性质.南洋理工大学的Yin等^[13]发现单层 MoS_2 比石墨烯拥有更优秀的光电响应特性,未来能够利用 MoS_2 制作光电晶体管等新型光电器件.Mak等^[14]发现单层二维的 MoS_2 具有强的光发射效率,是普通块体材料的 10^4 倍.Lee等^[15]研究了一、二、三层的 MoS_2 纳米光子晶体管,发现三层的 MoS_2 对红光的探测能力较强,两层和一层对绿光有较强的探测能力.与 WS_2 , WSe_2 , MoSe_2 和 TiS_2 等类似, MoS_2 是一种典型的层状过渡金属硫族化合物.量子限制会影响电子结构和光学性质,这些已经在 MoS_2 的薄层和纳米管上被观测到.北京大学冯济研究员和王恩哥教授与中国科学院物理研究所和半导体研究所合作首次从理论上预言,并从实验上证实了单层二硫化钼的谷选择圆偏振光吸收性质^[16],这表明二硫化钼在新奇量子特性的探索中具有重要研究价值.单层 MoS_2 晶体为直接带隙半导体,具有强的光致发光效应,研究结果表明在 MoS_2 这样的分层的d型电子结构中量子限制效应非常明显,也为在纳米级制造新型光电器件提供了可能.通过新型低维物理上的探索,d型电子之间的相互作用可以产生新的物理现象.量子限制效应会影响电子结构和光学性质,这已经在 MoS_2 的薄层、纳米片和纳米管上被观测到.最近,北京大学物理学院和新加坡南洋理工大学的科研人员研究了单层 MoS_2 的等离激元以及等离激元与激子的相互作用,研

究发现自旋-轨道耦合对等离激元以及激子发光具有重要的作用,并且可以增强该系统的光致发光(PL)^[17].中山大学的Yang课题组^[18]研究了不同层数的 MoS_2 等离激元对PL的影响,发现等离激元的能量转移可以导致材料PL的增强或淬灭.实验研究发现,通过改变 MoS_2 的掺杂浓度,可以有效调控该系统的等离激元的共振,为 MoS_2 在等离激元技术的应用指明了方向^[19].材料的电子结构决定了材料的电子性质及其应用,而电子系统的多体效应,电子间的屏蔽效应和电子元激发-等离激元是电子系统最基本性质的体现,反映了电子系统最基本的结构和性质.为了更好地理解和研究单层二硫化钼系统电子结构和性质,发展以此为基础的光电器件,本文研究了单层二硫化钼电子多体效应、电子间的库仑屏蔽以及电子元激发.

2 理论模型

层状结构 MoS_2 是钼和硫由共价键结合在一起的正六方晶系结构,每一个晶体有很多硫和钼原子组成,当连接分子层之间的键被切断时,体材料的二硫化钼便被切割成单层二硫化钼.单层的二硫化钼是由三层原子层构成,其中上下两层为硫原子组成的六角平面,中间一层为钼原子层,将两个硫原子层隔开,从而形成了三明治夹心结构^[20].层之内的每个钼原子被六个硫原子所包围,它们通过共价键结合,形成三棱柱状配位结构,六个硫原子分布在三棱柱体的各项端,每个硫原子通过共价键和三个钼原子形成三棱锥型配位结构,钼原子位于单层二硫化钼的边缘位置,它和四个硫原子相互结合,而每个硫原子和两个钼原子结合.多层或体状的二硫化钼是由这些单层结构之间通过相对较弱的范德瓦耳斯力作用而成.因此,二硫化钼层与层之间相互作用较弱,但层内作用力却很强.这种特殊结构使得二硫化钼用作催化剂和润滑剂时的性能非常优越,利用微机械剥离法也较容易获得单层的高质量的二硫化钼样品.

2.1 单层二硫化钼的本征能量和波函数

为了研究该系统的电子性质,考虑单层的 MoS_2 系统,该单层的电子系统置于 $x-y$ 平面.在低能量区,可以通过如下的有效哈密顿量描述该区

域电子的运动, 即^[21]

$$H(\mathbf{k}) = \begin{bmatrix} \Delta/2 & at(k_x - ik_y) \\ at(k_x + ik_y) & -\Delta/2 + s\gamma \end{bmatrix}, \quad (1)$$

其中, $\mathbf{k} = (k_x, k_y)$ 是电子波矢(动量算符), $s = \pm 1$ 表示自旋向上和向下, 晶格常数 $a = 3.193 \text{ \AA}$, 最近邻原子之间电子的跳跃能 $t = 1.1 \text{ eV}$. 考虑自旋-轨道耦合, 其耦合强度 $\gamma = 75 \text{ meV}$, $\Delta = 1.66 \text{ eV}$ 是禁带宽度^[22]. 由该有效哈密顿量, 求解该能量区的电子的薛定谔方程, 即

$$\psi_{\mathbf{k}}(\mathbf{r})H(\mathbf{k}) = E(\mathbf{k})\psi_{\mathbf{k}}(\mathbf{r}). \quad (2)$$

通过解析, 可以得到单层二硫化钼电子的本征能量, 即

$$E_{\lambda}^s(\mathbf{k}) = s\gamma/2 + \lambda\sqrt{\zeta^2k^2 + (\Delta - s\gamma)^2/4}, \quad (3)$$

其中, $\lambda = +1$ 表示导带, $\lambda = -1$ 表示价带, $\zeta = at$, 以及电子波函数, 即

$$\psi_{\lambda, \mathbf{k}}^s(\mathbf{r}) = N_{\lambda}^s(\mathbf{k})[\zeta k e^{-i\phi}/B_{\lambda}^s(\mathbf{k}), 1]e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}}, \quad (4)$$

$k = \sqrt{k_x^2 + k_y^2}$, $\mathbf{r} = (x, y)$, $B_{\lambda}^s(\mathbf{k}) = E_{\lambda}^s(\mathbf{k}) - \Delta/2$, $N_{\lambda}^s(\mathbf{k}) = |B_{\lambda}^s(\mathbf{k})|/[(B_{\lambda}^s(\mathbf{k}))^2 + \zeta^2k^2]^{1/2}$, ϕ 是 \mathbf{k} 与 x 轴之间的夹角. 由上面的推导可以看出, 由于自旋-轨道耦合, 导致自旋劈裂, 从而使得低能量区的单层二硫化钼的导带 ($\lambda = +1$) 分裂成两个自旋子带, 价带 ($\lambda = -1$) 也相应的分裂成两个自旋子带, 并且电子能带是准线性的. 该解析结果与第一性原理的计算结果一致^[16], 说明该模型哈密顿量可以有效地描述该区域的电子的状态和性质.

2.2 单层二硫化钼动态介电函数矩阵

通过电子波函数, 以此可以计算单层 MoS_2 电子系统的裸的电子-电子相互作用, 该相互作用可以通过费曼图表示(如图 1(a))^[23], 表达式可以写为

$$\begin{aligned} & V_{\lambda_1\lambda_2\lambda_3\lambda_4}^{\text{ee}} \\ &= S_{\lambda_1\lambda_2\lambda_3\lambda_4} \int d^2\mathbf{r}_1 d^2\mathbf{r}_2 \psi_{\lambda_1\mathbf{k}_1}^*(\mathbf{r}_1)\psi_{\lambda_2\mathbf{k}_2}(\mathbf{r}_1) \\ & \quad \times V(\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2)\psi_{\lambda_3\mathbf{k}_3}^*(\mathbf{r}_2)\psi_{\lambda_4\mathbf{k}_4}(\mathbf{r}_2), \end{aligned} \quad (5)$$

其中 $V(\mathbf{r}) = e^2/\varepsilon_{\infty}|\mathbf{r}|$ 是电子库仑相互作用势能, ε_{∞} 是材料的高频介电常数, $S_{\lambda_1\lambda_2\lambda_3\lambda_4} = -i^{(\lambda_1+\lambda_2+\lambda_3+\lambda_4)/2} = \pm 1$ 或者 $\pm i$ 是由不同能带的电子的状态决定的符号函数. 通过费曼图技术(如

图 1 所示), 电子在不同状态间的散射过程保持动量守恒, 由此在动量空间, 裸的电子-电子相互作用可以写成

$$V_{\alpha\beta} = S_{\alpha\beta}V_q G_{\alpha\beta}(\mathbf{k}, \mathbf{q}), \quad (6)$$

这里, $\alpha = (\lambda'\lambda)$ 表示电子不同的跃迁过程, $\lambda' = \lambda$ 表示带内的散射跃迁, $\lambda' \neq \lambda$ 表示带间的跃迁, \mathbf{q} 是电子散射过程中动量的变化, $V_q = 2\pi e^2/\varepsilon_{\infty}q$ 是二维情况下的库仑相互作用势的傅里叶变换系数. 另外,

$$G_{\alpha\beta}(\mathbf{k}, \mathbf{q}) = \frac{1 + \alpha A_{\mathbf{k}\mathbf{q}}}{2} \delta_{\alpha,\beta} + i \frac{\alpha B_{\mathbf{k}\mathbf{q}}}{2} (1 - \delta_{\alpha,\beta}),$$

式中

$$A_{\mathbf{k}\mathbf{q}} = \frac{k + q \cos \theta}{|\mathbf{k} + \mathbf{q}|}, \quad B_{\mathbf{k}\mathbf{q}} = \frac{q \sin \theta}{|\mathbf{k} + \mathbf{q}|},$$

θ 是电子动量 \mathbf{k} 和 \mathbf{q} 之间的夹角.

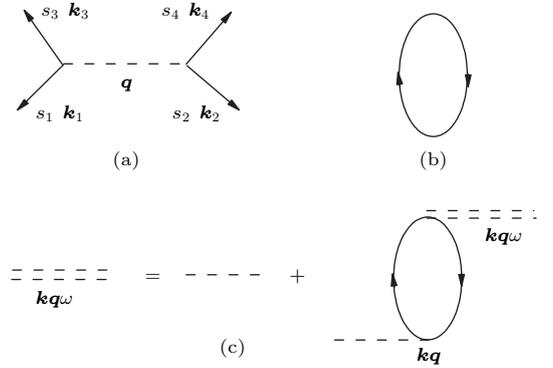


图 1 (a) 裸的电子-电子相互作用; (b) 密度-密度关联函数; (c) 无规相近似 (PRA) 下的电子-电子有效相互作用
Fig. 1. Electron many body Feynman diagrams: (a) Bare electron-electron interactions; (b) pair bubble; (c) effective electron-electron interactions.

通过格林函数和费曼图自洽理论(如图 1), 有效的电子-电子多体相互作用可以表示为如下形式:

$$V_{\alpha\beta}^{\text{eff}} = V_{\alpha\beta} \varepsilon_{\alpha\beta}(\omega, \mathbf{q})^{-1}, \quad (7)$$

这里 $\varepsilon_{\alpha\beta}(\omega, \mathbf{q}) = \delta_{\alpha,\beta} \delta(\mathbf{k}) - V_{\alpha\beta} \Pi_{\beta}(\mathbf{k}, \mathbf{q}; \omega)$ 就是动态介电函数矩阵元,

$$\begin{aligned} & \Pi_{\lambda'\lambda s' s}(\mathbf{k}, \mathbf{q}; \omega) \\ &= \frac{f[E_{\lambda' s'}(\mathbf{k} + \mathbf{q})] - f[E_{\lambda s}(\mathbf{k})]}{\hbar\omega + E_{\lambda' s'}(\mathbf{k} + \mathbf{q}) - E_{\lambda s}(\mathbf{k}) + i\delta} \end{aligned} \quad (8)$$

是密度-密度关联函数, 在费曼图中可以由 pair bubble 图表示, 如图 1(b) 所示. $f_{\lambda}(x)$ 表示 λ 带的电子狄拉克-费米分布函数. ω 对应电子元激发的频率, $\delta \rightarrow 0$. 另外, 如果自旋和能谷是简并的, 还

需要考虑两者的简并. 对于弱相互作用电子系统, 在PRA下, 电子-电子之间的有效相互作用可以如图1(c)进行展开. 令 $j = (\lambda'\lambda) = 1 = (++)$, $2 = (+-)$, $3 = (-+)$, $4 = (--)$, 并对 \mathbf{k} 求和, 从而得到动态介电函数矩阵

$$\varepsilon(\omega, \mathbf{q}) = \begin{bmatrix} 1 + a_1 & 0 & 0 & -a_4 \\ 0 & 1 - a_2 & -a_3 & 0 \\ 0 & -a_2 & 1 - a_3 & 0 \\ -a_1 & 0 & 0 & 1 + a_4 \end{bmatrix}, \quad (9)$$

式中

$$a_{\lambda'\lambda, s's}(q, \omega) = - (V_q/2) \sum_{\mathbf{k}} (1 + \lambda'\lambda A_{\mathbf{k}\mathbf{q}}) \Pi_j(\mathbf{k}, \mathbf{q}; \omega)$$

表示不同的电子元激发通道. 当 $\lambda'\lambda, s's$ 取不同的值 (± 1) 时, 表示电子不同的激发通道.

2.3 态密度和电子间屏蔽效应

单粒子的自由格林函数为

$$G_{\lambda\mathbf{k}}(E) = [E - E_{\lambda}(\mathbf{k}) + i\delta]^{-1}, \quad (10)$$

其中 E 是载流子的能量. 通过该格林函数的虚部, 可以计算得到系统载流子的态密度, 即

$$\begin{aligned} D_{\lambda}^s(E) &= \sum_{\mathbf{k}} \delta[E - E_{\lambda}(\mathbf{k})] \\ &= \frac{|2E - s\gamma|}{2\pi a^2 t^2} \Theta(\lambda E). \end{aligned} \quad (11)$$

很明显, 由于自旋-轨道相互作用, 导致态密度发生分裂.

在半导体研究中, 载流子之间的库仑相互作用对半导体材料的物理性质有重要的影响, 例如能带重整化、光吸收增强等效应. 在低温情况 (温度 $T \rightarrow 0$) 下, 研究低温时的材料的光电输运性质时, 必须考虑载流子之间的屏蔽效应^[24]. 在研究载流子间的屏蔽效应时, 一种比较粗糙的模型是费米-托马斯模型, 而较为准确的模型是RPA模型. 因此, 本文利用RPA, 当 $\omega \rightarrow 0$ 时, MoS₂ 的静态介电函数的实部可以写为

$$\text{Re}[\varepsilon(0, q)] = 1 + K_s/q, \quad (12)$$

其中, K_s 即为载流子之间的屏蔽长度, 反映了载流子之间由于库仑作用导致的屏蔽效应. MoS₂ 材料

的载流子之间的屏蔽长度为

$$K_s = \frac{\pi e^2}{\varepsilon_{\infty}} \sum_{\mathbf{k}} (1 + \lambda'\lambda A_{\mathbf{k}\mathbf{q}}) \Pi_j(\mathbf{k}, \mathbf{q}; 0). \quad (13)$$

考虑n型掺杂的MoS₂样品, 即载流子为电子, 则电子间的屏蔽长度为

$$\begin{aligned} K_s &= \frac{e^2}{\pi \varepsilon_{\infty} a t} \int_0^{\infty} dk f(k) k \left[\frac{K(-\eta) + K(\eta)}{\sqrt{\nu^2 + k^2}} \right. \\ &\quad \left. + \frac{\sqrt{\nu^2 + k^2}}{2kq} (\Pi(2, \eta) - \Pi(2, -\eta)) \right], \end{aligned} \quad (14)$$

其中, $\nu = (\Delta - s\gamma)/at$, $\eta = 4kq/(k^2 + \nu^2)$. $K(x)$ 和 $\Pi(n, x)$ 分别是第一类和第三类完全椭圆积分. 考虑到即使是高浓度重掺杂的样品, 系统的费米能量 E_F 依然远远小于带隙宽度 Δ , 并且能带接近抛物线形, 当温度较低 ($T \rightarrow 0$) 时, 可以分析得到MoS₂ 导带中自旋向上 $s = +1$ (向下 $s = -1$) 的子带中电子之间的屏蔽长度

$$\begin{aligned} K_s &= \frac{e^2(\Delta - s\gamma)}{2\varepsilon_{\infty} a^2 t^2} \left[1 - \sqrt{\left(\frac{2k_F}{q}\right)^2 - 1} \right] \\ &\sim 10^8 \text{ cm}^{-1}, \end{aligned} \quad (15)$$

其中, k_F 是MoS₂ 电子的费米波矢, $k_F = \sqrt{4\pi n_e}$; n_e 是导带中电子的密度. 上面的推导可以看出, MoS₂ 电子间的库仑屏蔽效应依赖于其禁带宽度和自旋-轨道耦合, 并且与一般的系统相比, 其屏蔽效应要强得多, 说明电子间的相互作用对其电子输运和光学性质都有重要影响.

2.4 单层二硫化钼集体激发

由于库仑作用的长程性和价电子易动巡游性, 外部的微小扰动必然导致电子集体的振荡, 即电子的集体元激发——等离激元. 根据微扰理论, 当没有外部作用施加于相互作用的单层二硫化钼电子系统时, 即 $V_{\alpha\beta}^{\text{eff}} \rightarrow 0$ 时, 介电函数的响应方程 $V_{\alpha\beta} \varepsilon_{\alpha\beta}(\omega, \mathbf{q})^{-1} \rightarrow 0$, 其中 $V_{\alpha\beta}$ 存在非零解对应着系统的元激发, 因此需要满足 $\varepsilon_{\alpha\beta}(\omega, \mathbf{q}) = 0$. 由动态介电函数矩阵可以得出

$$|\varepsilon(\omega, \mathbf{q})| = (1 + a_1 + a_4)(1 - a_2 - a_3), \quad (16)$$

介电函数的实部 $\text{Re}|\varepsilon(\omega, \mathbf{q})| \rightarrow 0$ 决定着等离激元的色散关系, 利用关系 $\lim_{\eta \rightarrow 0} \frac{1}{x \pm i\eta} = P\left(\frac{1}{x}\right) \mp i\pi\delta(x)$ 可以分离出 $\varepsilon(\omega, \mathbf{q})$ 的实部, P 表示主值部分.

由于朗道阻尼作用, 电子系统的电子元激发会退变成电子-空穴对的个别激发, 从而导致元激发不能稳定存在. 一般情况下, 当元激发的波矢 \mathbf{q} 较大时, 元激发会退变成电子-空穴对的个别激发. 受阻尼的元激发无法通过实验观察到. 另外, 价带中的电子, 由于能量较小, 被原子核束缚, 会受到强的朗道阻尼, 不能跃迁产生电子集体的元激发^[25]. 因此, 导带中的电子在较小的 \mathbf{q} 区域 ($q \rightarrow 0$), 即 $\lambda = \lambda' = +$, 可以产生稳定的电子元激发——等离激元. 同时, 为了研究电子多体相互作用的影响, 考虑温度 $T \rightarrow 0$ 时的情况. 对于 N 型掺杂的 MoS₂ 系统, 动态介电函数为 $1 + a_{++} = 0$. 因此可由如下公式计算导带中电子的元激发, 即

$$1 - (V_q/2) \sum_{\mathbf{k}} (1 + A_{\mathbf{k}\mathbf{q}}) \Pi_j(\mathbf{k}, \mathbf{q}; \omega) = 0. \quad (17)$$

代入相应的表达式, 将求和变成积分, 方程(17)变为

$$1 - \frac{\pi e^2}{q} \frac{1}{(2\pi)^2} \int_0^\infty \int_0^{2\pi} k dk d\phi \times \left(1 + \frac{k + q \cos \theta}{\sqrt{k^2 + 2kq \cos \theta + q^2}} \right) \Pi_{++}^s = 0, \quad (18)$$

其中, ϕ 是 \mathbf{k} 与 \mathbf{x} 轴的夹角, $\Pi_{++}^s = [\hbar\omega + E_{+s'}(\mathbf{k}) - E_{+s}(\mathbf{k} - \mathbf{q})]^{-1} - [\hbar\omega + E_{+s'}(\mathbf{k} + \mathbf{q}) - E_{+s}(\mathbf{k})]^{-1}$.

在 $q \rightarrow 0$ 的近似下, 即对方程中的 q 进行泰勒展开, 求解方程(18), 可以计算得到导带中的电子元激发谱, 即

$$\omega_+ = \frac{e\zeta}{\hbar} \left(\frac{\pi n_e}{\varepsilon_\infty} \right)^{1/2} \frac{q^{1/2}}{[16\pi\zeta^2 n_e + (\Delta - \gamma)^2]^{1/4}}, \quad (19)$$

该等离激元是由导带中自旋向上 ($s' = s = +1$) 的子带中的电子集体激发产生的, n_e 是导带中的电子的密度.

$$\omega_- = \frac{e\zeta}{\hbar} \left(\frac{\pi n_e}{\varepsilon_\infty} \right)^{1/2} \frac{q^{1/2}}{[16\pi\zeta^2 n_e + (\Delta + \gamma)^2]^{1/4}}, \quad (20)$$

该等离激元是由导带中自旋向下 ($s' = s = -1$) 的子带中的电子集体激发产生的. 另外计算显示, 没有自旋极化的情况下, 不存在导带中不同自旋子带间 ($s \neq s'$) 的电子元激发.

3 结果分析

根据(14)式, 图2计算了不同电子密度情况下, $T \rightarrow 0$ 时, 电子屏蔽长度 K_s 随散射角度的变化. 计

算时忽略了不同电子自旋的影响, 因为自旋-轨道耦合影响了屏蔽长度的大小, 而对散射角度和电子密度的依赖行为是一致的. 由计算可知, 单层 MoS₂ 系统电子屏蔽效应较强. 随着散射角度 θ 变大, 屏蔽长度变小. 这说明散射角度越大, 电子间的屏蔽效应越小. 当散射角度 $\theta = 0$ 时, 散射时电子的屏蔽效应最大. 计算还表明电子密度越大, 电子间的屏蔽长度 K_s 越大, 即屏蔽效应越强. 这是由于电子密度越大, 整个电子系统就会越拥挤, 从而使得电子间感受到更强的屏蔽效应.

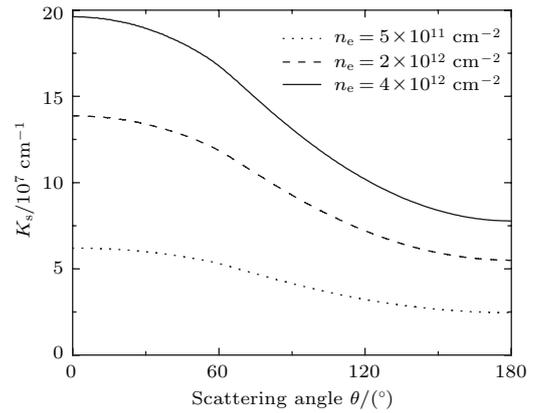


图2 不同电子密度时, 电子屏蔽长度 K_s 随散射角度的变化

Fig. 2. The inverse screening length K_s as a function of scattering angle θ .

图3给出了导带中自旋向上的子带中的电子集体激发产生的等离激元谱 ω_+ . 由(19)式以及图3可以看出, 该元激发 ω_+ 是声学型的, $\omega_+ \sim q^{1/2}$, 元激发的频率(能量)非常强地依赖于波矢 \mathbf{q} . 随着电子密度的增加, 其激发频率 ω_+ 明显增加. 由此, 可以通过改变单层二硫化钼系统的电子掺杂密度, 有效地调节系统的电子元激发频率 ω_+ . 图4给出了导带中自旋向下的子带内的电子集体激发产生的等离激元谱 ω_- , 由图4和(20)式可知, 该激发谱 ω_- 的性质与自旋向上的子带中的电子等离激元光谱产生的等离激元谱 ω_+ 的性质相似, 该元激发 ω_- 也是声学型的, $\omega_- \sim q^{1/2}$, 元激发的频率(能量)非常强地依赖于波矢 \mathbf{q} . 随着电子密度的增加, 其激发频率 ω_- 明显地增加. 由此, 可以通过改变单层二硫化钼系统的电子掺杂密度, 有效地调节系统的电子元激发频率 ω_- . 两个自旋子带的电子密度相同时, 然而由于存在自旋-轨道耦合, 这两支激发谱 $\omega_+ \sim (\Delta - \gamma)^{-1/2}$ 和 $\omega_- \sim (\Delta + \gamma)^{-1/2}$ 仍然是不

同的, 很明显 $\omega_+ > \omega_-$. 由于 $\gamma = 75 \text{ meV}$, 考虑到 $\gamma \ll \Delta$, 可以得出 $(\omega_+ - \omega_-) \sim \gamma \cdot q^{1/2} \cdot n_e^{-3/4}$, 说明随着 q 的增大或者电子浓度 n_e 的减小, 两个等离激元的频率的差别将变大. 因此这种差异将在低能量区或低频率时 (如太赫兹) 表现得更加明显. 通过调节电子密度, 从而调节系统的电子元激发频率, 可以方便地通过调控系统的电子密度, 得到两支频率完全不同的等离激元激发 ω_+ 和 ω_- , 得到双色的元激发. 该研究结果能够很好地说明最近的实验研究发现, 通过调控掺杂的电子浓度, 调节系统的等离激元, 从而调控材料的发光性能 [19].

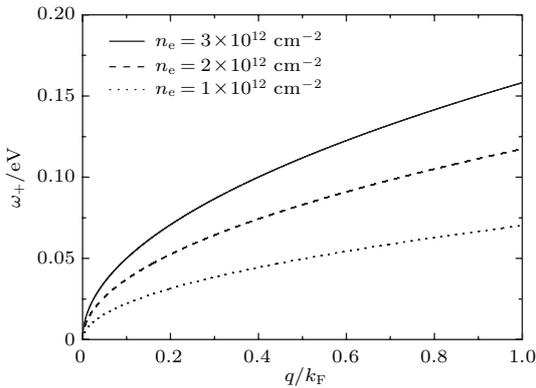


图3 不同电子密度时, 自旋向上的子带中的电子元激发谱 ω_+ (k_F 表示导带中电子费米波矢)

Fig. 3. Plasmon dispersion ω_+ in spin $s = +1$ sub-bands for different electron densities.

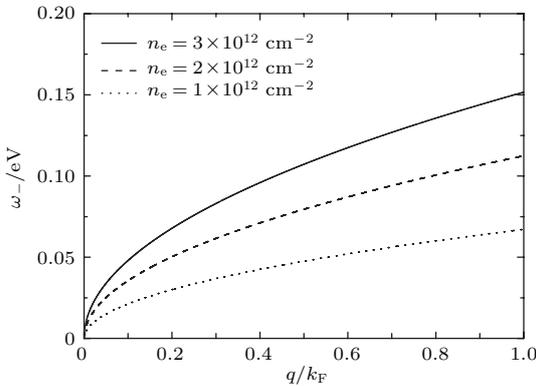


图4 不同电子密度时自旋向下的子带中的电子元激发谱 ω_-

Fig. 4. Plasmon dispersion ω_- in spin $s = -1$ sub-bands for different electron densities.

传统的二维电子气的等离激元频率 $\omega_p = (2\pi e^2 n q / m^*)^{1/2} \sim q^{1/2} \sim n^{1/2}$ [26], 其中 n 为电子密度, m^* 为电子有效质量; 二维狄拉克系统石墨烯的等离激元频率 $\omega'_p = (2e^2 E_F q / \hbar^2 \epsilon_\infty)^{1/2} \sim q^{1/2} \sim n^{1/4}$ [25], 其中 E_F 是电子的费米能量. 二维单层 MoS_2 系统的电子等离激元 $\omega_\pm \sim q^{1/2}$. 通过比较

可以看出, 这三种系统的元激发频率对波矢 q 的依赖关系都是相同的. 但是, 由于这三个系统能带结构非常不同, 这三个系统的等离激元谱又有明显的不同, 尤其是对电子密度的依赖关系不同. 传统的二维电子气的能带是抛物线型的, 其 $\omega_p \sim n^{1/2}$; 石墨烯是线性色散的能谱, $\omega'_p \sim n^{1/4}$; 而单层的 MoS_2 系统的能谱介于两者之间, 是准线性的, 元激发的频率 ω_\pm 对电子密度的关系较为复杂. 二硫化钼系统存在明显的自旋劈裂, 自旋-轨道耦合作用扮演非常重要的角色, 因此其存在两支等离激元模, 并且其频率还依赖于禁带宽度 Δ 和自旋-轨道耦合 γ , 与其他系统有明显的不同. 由此可见, 自旋-轨道耦合对单层二硫化钼的能带结构和电子性质有重要的影响, 该理论发现与最近的实验研究结果是一致的 [17,18].

4 结 论

考虑自旋-轨道耦合效应, 研究了单层二硫化钼低能量区的电子结构和性质. 自旋-轨道耦合对单层二硫化钼的能带结构和电子性质有重要的影响. MoS_2 的电子态密度和电子间的库仑屏蔽效应依赖于其禁带宽度和自旋-轨道耦合, 并且与一般的系统相比, 其屏蔽效应要强, 说明电子间的相互作用对其电子输运和光学性质都有重要影响. 通过费曼图形自洽方法, 研究了该系统的电子元激发. 研究发现, 由于自旋的劈裂 (能带的分裂), 导致存在两支频率不同的自旋带内的等离激元激发, 激发频率都正比于 $q^{1/2}$, 并且随着电子浓度的增加激发频率增大. 单层二硫化钼电子系统的电子性质非常不同于传统的二维电子气和石墨烯系统的电子性质. 研究发现通过调控二硫化钼系统的电子浓度可以有效调节该系统两支等离激元的频率. 研究结果显示单层二硫化钼材料是发展等离激元器件的理想材料.

参考文献

- [1] Wood R W 1902 *Phil. Magm.* **4** 396
- [2] Richie R H 1957 *Phys. Rev.* **106** 874
- [3] Stem E A, Ferrell R A 1960 *Phys. Rev.* **120** 130
- [4] Otto A 1968 *Eur. Phys. J. A* **216** 398
- [5] Kretschmann E 1971 *Eur. Phys. J. A* **241** 313
- [6] Raether H 1988 *Springer Tracts in Modern Physics* **111** 110

- [7] Khlebtsov B N 2008 *Phys. Rev. B* **77** 035440
- [8] Kahraman M, Tokman N, Culha M 2008 *ChemPhys Chem* **9** 902
- [9] Ruan Z, Qiu M 2006 *Phys. Rev. Lett.* **96** 233901
- [10] Smith D R, Padilla W J, Vier D C 2000 *Phys. Rev. Lett.* **84** 4184
- [11] Radisavljevic B, Radenovic A, Brivio J, Giacometti V, Kis A 2011 *Nat. Nanotechnol.* **6** 147
- [12] Novoselov K S, Geim A K, Morozov S V, Jiang D, Zhang Y, Dubonos S V, Grigorieva I V, Firsov A A 2004 *Science* **306** 666
- [13] Yin Z Y, Li H, Li H, Jiang L, Shi Y M, Sun Y H, Lu G, Zhang Q, Chen X D, Zhang H 2012 *ACS Nano* **6** 74
- [14] Mak K F, Lee C G, Hone J, Shan J, Heinz T F 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 136805
- [15] Lee H S, Min S W, Chang Y G, Park M K, Nam T, Kim H J, Kim J H, Ryu S M 2012 *Nano Lett.* **12** 3695
- [16] Cao T, Wang G, Han W P, Ye H Q, Zhu C R, Shi J R, Niu Q, Tan P H, Wang E G, Liu B L, Feng J 2012 *Nat. Commun.* **3** 887
- [17] Li Z W, Li Y, Han T Y 2017 *ACS Nano* **11** 1165
- [18] Yang J H, Ma C R, Liu P, Yang G W 2017 *ACS Photon.* **4** 1092
- [19] Wang Y C, Ou J Z, Chrimes A F 2015 *Nano Lett.* **15** 883
- [20] Kadantsev E S, Hawrylak P 2012 *Solid State Commun.* **152** 909
- [21] Xiao D, Liu G B, Feng W, Xu X, Yao W 2012 *Phys. Rev. Lett.* **108** 196802
- [22] Li Z, Carbotte J P 2012 *Phys. Rev. B* **86** 205425
- [23] Mahan G D 2000 *Many-Particle Physics* (New York: World Book Publishing House)
- [24] Dong H M, Xu W, Zeng Z, Lu T C, Peeters F M 2008 *Phys. Rev. B* **77** 235402
- [25] Dong H M, Li L L, Wang W Y 2012 *Physica E* **44** 1889
- [26] Mackens U, Heitmann D, Prager L, Kotthaus J P, Beinvoogl W 1984 *Phys. Rev. Lett.* **53** 1485

Electron screening lengths and plasma spectrum in single layer MoS₂*

Tao Ze-Hua Dong Hai-Ming[†]

(School of Physical Science and Technology, China University of Mining and Technology, Xuzhou 221116, China)

(Received 8 July 2017; revised manuscript received 7 September 2017)

Abstract

We obtain the energy eigenvalues and wave functions of the single layer molybdenum disulfide by using an effective Hamiltonian. Moreover, the density of states and high electron-electron screening length up to 10^8 cm^{-1} are also evaluated based on the dielectric function of MoS₂. It is shown that the quasi-linear energy bands split off due to the spin-orbit couplings. Plasmons in such a system are investigated theoretically within diagrammatic self-consistent field theory. In the random phase approximation, it is found that two plasma spectra can be produced via intra band transitions induced in conduction bands in monolayer MoS₂ because of splitting off. The plasma spectrum frequency increases with increasing wave-vector \mathbf{q} and electron density. It is found that the two plasmon modes induced by the spin intra-subband transitions are acoustic-like and depend strongly on wave-vector \mathbf{q} . We find that the plasma spectrum is very different from those of graphene and two-dimensional electron gas due to the quasi-linear dispersion and spin-orbit couplings in single layer MoS₂. Moreover, the plasmon frequency can be effectively controlled through changing the doping electron density. Our results exhibit some interesting features which can be utilized to realize the plasmonic devices based on the single layer MoS₂.

Keywords: MoS₂, plasmon, spin-orbit couplings

PACS: 77.22.Ch, 73.22.Lp, 71.70.Ej

DOI: 10.7498/aps.66.247701

* Project supported by the Fundamental Research Funds for the Central Universities, China (Grant No. 2015XKMS077) and the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 11604380).

[†] Corresponding author. E-mail: hmdong@cumt.edu.cn