

电场调控双层 WSe_2 转角同质结激子莫尔势*

石蓓蓓 陶广益 戴宇琛 何霄 林峰 张酣 方哲宇†

(北京大学物理学院, 人工微结构和介观物理国家重点实验室, 北京 100871)

(2022年4月11日收到; 2022年5月3日收到修改稿)

二维过渡金属硫化物构成的范德瓦耳斯异质结由于存在晶格失配或层间相对旋转角度会产生周期性的莫尔条纹结构, 由此引入的纳米尺度莫尔周期势可以影响激子的空间传输过程. 目前有关双层过渡金属硫化物转角同质结中激子莫尔势调控的研究比较有限, 本工作利用第一性原理计算研究了外加垂直电场对不同旋转角度的双层 WSe_2 同质结激子莫尔势的影响, 发现层间激子莫尔势的大小和势垒/势阱的位置与层间相对旋转角度及电场强度有关, 不同旋转角度的双层 WSe_2 同质结激子莫尔势大小及势垒/势阱的位置随电场强度 ($\leq 1 \text{ V/nm}$) 的变化不同. 这些结果为调控层间激子的局域与非局域转变提供了理论依据和数据预测, 在推动人工激子晶体及纳米阵列激光器等半导体器件的发展方面具有重要指导意义.

关键词: 过渡金属硫化物, 转角同质结, 激子莫尔势, 第一性原理计算

PACS: 73.20.At, 73.21.Cd, 73.43.Cd

DOI: 10.7498/aps.71.20220664

1 引言

自2004年以来, 二维材料一直是物理学界中研究内容最多的材料体系, 并在纳米光电、半导体器件等领域得到了广泛应用. 近年来, 由石墨烯、六方氮化硼 (h-BN) 和过渡金属硫属化物 (transition metal dichalcogenides, TMDCs) 等二维材料, 通过层间相互作用构成的范德瓦耳斯异质/同质结以层内共价键和层间范德瓦耳斯力为特征形成了一个新兴的研究领域, 可以让人们深入研究二维材料中一些不寻常特性和新现象^[1].

当组成范德瓦耳斯异质/同质结构的两种材料存在晶格失配或层间相对旋转角度时, 会在平面内产生比每层拥有更长周期性的莫尔条纹并形成莫尔超晶格, 同时在层间引入纳米尺度的周期性势场, 从而成为研究量子反常霍尔效应及强关联量子

态等物理现象的良好平台^[2,3]. 在石墨烯/h-BN组成的范德瓦耳斯异质结中, 该周期势可以调控石墨烯本征狄拉克点处的电子特性, 诱导出次级狄拉克点, 从而打开本征石墨烯带隙. 在低温强磁场环境下, 还能够在该体系中观察到霍夫施塔德蝴蝶图案 (Hofstadter butterfly pattern)^[4-6]. 最近几年的研究表明, 由两个单层石墨烯以大约 1.1° 的角度堆叠形成的“魔角”石墨烯同样具有丰富的物理性质, 通过施加垂直电场来调控其载流子浓度, 可以让石墨烯实现由绝缘体到超导体的转变^[7,8].

TMDCs 由于空间反演对称性破缺而天然具有半导体能隙, 是低维纳米材料领域的热门研究对象. 本征二维 TMDCs 材料中存在强自旋-轨道耦合作用, 由此引起的能谷与自旋序数锁定使其在谷效应调控及低维谷电子学器件等领域具有重要研究意义^[9]. 由于单层 TMDCs 的带隙各不相同, 因此由单层 TMDCs 材料堆叠形成的同质/异质结具

* 国家重点研发计划 (批准号: 2019YFA0210203)、北京市自然科学基金 (批准号: Z180011) 和国家自然科学基金 (批准号: 21790364, 12027807) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: zhyfang@pku.edu.cn

有更加丰富的能带结构和光学性质. TMDCs 范德瓦耳斯异质结具有 II 型能带对齐, 导带和价带的极值点位于不同的材料层, 由不同层极值点处的电子和空穴组成的电子-空穴对叫作层间激子, 其拥有比层内激子更长的寿命, 在实现远程激子和谷自旋传输方面具有极大的潜在应用^[10]. 在 TMDCs 同质/异质结中, 由材料晶格失配或层间相对转角引入的外加周期势场为激子莫尔势^[11], 可以调控 TMDCs 转角体系中层间激子的物理性质. 基于密度泛函理论 (density functional theory, DFT) 的第一性原理计算预测了莫尔势可以将层间自由激子局域化, 使得原来的层间激子峰附近出现新的激子态——莫尔激子. 进一步地, 已经有研究通过远场光学测量证实了 TMDCs 转角异质结中莫尔激子的存在^[12–15]. 这些研究使得 TMDCs 转角材料在制造高性能半导体激光器、单光子发射器阵列以及纠缠光子源等方面具有潜在应用^[16,17].

目前已有的工作对于 TMDCs 转角同质结中层间激子莫尔势的研究比较有限, 并且在调制莫尔势大小从而能够操纵激子的局域与非局域转变方面的研究几乎空白. 因此, 本研究利用第一性原理计算的方法研究外加垂直电场对转角分别接近 0° 和 60° 的双层 WSe_2 同质结层间激子莫尔势的主动调控. 结果表明, 在转角接近 0° 的双层 WSe_2 中, 当施加的电场强度小于 1 V/nm 时, 激子莫尔势的大小会随电场强度的增大发生改变; 而在转角接近 60° 的体系中, 其莫尔势的大小及势垒/势阱的位置都会随电场强度的变化而改变. 本工作的研究结果为实验上利用外加电场操纵激子的局域与非局域转变, 进而实现其空间扩散行为的主动调控提供了数据预测, 为未来设计和制备人工激子晶体及局域纳米阵列激光器等半导体器件提供了理论依据.

2 理论模型和计算方法

2.1 理论模型

本研究采用从头计算连续模型 (*ab initio* continuum model) 方法来计算双层 WSe_2 转角同质结激子莫尔势随实空间位置的变化关系^[18,19]. 图 1(a) 是转角为 θ 具有 AA 堆叠次序的双层 WSe_2 (AA- WSe_2) 示意图, 其中 d 为面内晶格间相对位移. 以底层 W 原子为坐标原点建立直角坐标系, 则双层 WSe_2 的原始晶格平移矢量为

$$\mathbf{a}_1 = a(1, 0), \quad \mathbf{a}_2 = a(1, \sqrt{3})/2, \quad (1)$$

其中 a 为单层 WSe_2 的晶格常数.

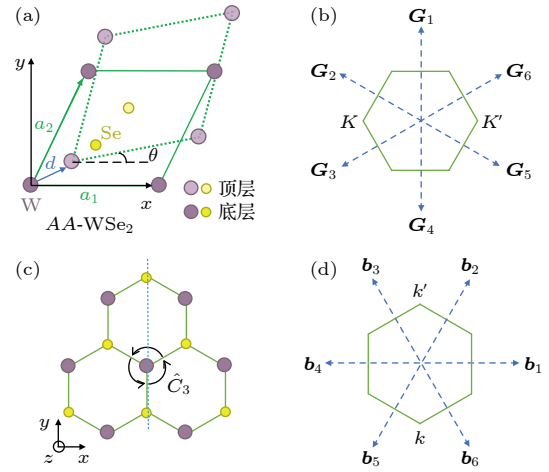


图 1 (a) 转角 θ 接近 0° 晶胞 AA- WSe_2 的图示; (b) 单层 WSe_2 第一布里渊区 (绿色六边形) 及其倒格矢 \mathbf{G}_j ; (c) WSe_2 晶格的 \hat{C}_3 对称操作, 黑色箭头表示由 \hat{C}_3 导致的相位变化; (d) 双层 WSe_2 转角同质结莫尔单胞的布里渊区及相应的倒格矢 \mathbf{b}_j

Fig. 1. (a) Illustration of AA- WSe_2 homobilayer with a small twist angle θ ; (b) first-shell reciprocal lattice vectors \mathbf{G}_j of a monolayer WSe_2 triangular lattice and the corresponding Brillouin zone (green hexagon); (c) \hat{C}_3 transformation of the WSe_2 lattice (Black arrows denote the phase change by \hat{C}_3); (d) moiré reciprocal lattice vectors \mathbf{b}_j and corresponding Brillouin zone.

双层 WSe_2 转角同质结层间激子势能的大小 $E_g - E_b$ 与超晶格实空间的位置有关, 其中 E_g 为动量空间 K 点对应的导带底和价带顶之间的能隙, E_b 为激子的束缚能. 由于莫尔条纹结构的存在使得 E_b 的变化量小于 E_g 的变化量, 因此在整个计算过程中可以忽略 E_b 的变化. 由于能隙的变化 Δ_0 是关于晶格间相对位移 d 的周期函数, 因此可以通过最低谐波展开来充分近似^[20–23]:

$$\Delta_0(d) \equiv E_g(d) - \langle E_g \rangle \approx \sum_{j=1}^6 V_j \exp(i\mathbf{G}_j \cdot d), \quad (2)$$

其中, $\langle E_g \rangle$ 是 E_g 在 d 上的平均值; V_j 表示莫尔势大小的参数; \mathbf{G}_j 是第一布里渊区的倒格矢, 可以由 $\mathbf{G}_1 = 4\pi/\sqrt{3}a\hat{y}$ 通过逆时针旋转角度 $(j-1)\pi/3$ 得到, 如图 1(b) 所示. 由于 TMDCs 材料存在三重旋转对称性, 如图 1(c) 所示, 因此存在:

$$V_1 = V_3 = V_5, \quad V_2 = V_4 = V_6. \quad (3)$$

又因 Δ_0 为实数, 所以有 $V_1 = V_4^*$, 且 $V_1 = V \exp(i\psi)$, 其中 ψ 表示莫尔势形状的参数, 决定莫尔势能量极

值点 (势垒/势阱) 的位置.

将倒格矢 \mathbf{G}_j 代入 (2) 式中, 化简得:

$$\begin{aligned} \Delta_0(d) \equiv & V \exp(i\psi) \left[2 \exp\left(i \frac{2\pi}{\sqrt{3}a} d\right) + \exp\left(-i \frac{4\pi}{\sqrt{3}a} d\right) \right] \\ & + V \exp(-i\psi) \\ & \times \left[2 \exp\left(-i \frac{2\pi}{\sqrt{3}a} d\right) + \exp\left(i \frac{4\pi}{\sqrt{3}a} d\right) \right]. \quad (4) \end{aligned}$$

在小转角的双层异质/同质结材料体系中, 由于位移 d 在莫尔周期内的变化比较缓慢, 因此可以假设能隙的变化局部跟随位移的变化, 所以有

$$\begin{aligned} \Delta(\mathbf{r}) \approx & \Delta_0[d(\mathbf{r})] \approx \sum_{j=1}^6 V_j \exp[i\mathbf{G}_j \cdot d(\mathbf{r})] \\ \approx & \sum_{j=1}^6 V_j \exp[i\mathbf{b}_j \cdot \mathbf{r}], \quad (5) \end{aligned}$$

其中, $\mathbf{r}=(x, y)$ 为实空间的全局位移, $\mathbf{b}_j = \theta \mathbf{G}_j \times \hat{z}$ 为莫尔单胞第一布里渊区的倒格矢, 如图 1(d) 所示, 可以由 $\mathbf{b}_1 = 2\pi\theta/\sqrt{3}a\hat{x}$ 通过逆时针旋转角度 $(j-1)\pi/3$ 得到.

将莫尔单胞倒格矢 \mathbf{b}_j 及实空间的全局位移表达式代入 (5) 式中并化简, 可以得到超晶格中激子莫尔势随实空间位置变化的关系式:

$$\begin{aligned} \Delta(\mathbf{r}) = & 2V \cos\psi \left[\cos\left(\frac{4\pi\theta}{\sqrt{3}a}x\right) + \cos\left(\frac{2\pi\theta}{\sqrt{3}a}x - \frac{2\pi\theta}{a}y\right) \right. \\ & \left. + \cos\left(\frac{2\pi\theta}{\sqrt{3}a}x + \frac{2\pi\theta}{a}y\right) \right] + 2V \sin\psi \left[\sin\left(-\frac{4\pi\theta}{\sqrt{3}a}x\right) \right. \\ & \left. + \sin\left(\frac{2\pi\theta}{\sqrt{3}a}x - \frac{2\pi\theta}{a}y\right) + \sin\left(\frac{2\pi\theta}{\sqrt{3}a}x + \frac{2\pi\theta}{a}y\right) \right]. \quad (6) \end{aligned}$$

2.2 计算方法

本研究利用 Materials Studio 构造 AA 堆叠和 3R 堆叠的双层 WSe₂ 原胞模型. 考虑到后续的计算过程要施加电场, 因此在垂直于平面方向设置的真空层厚度大于 20 Å (1 Å = 10⁻¹⁰ m), 避免相邻层间原子的影响. 使用基于 DFT 的 VASP 软件包^[24] 进行模型结构优化、电荷密度自洽以及能带结构的计算, 过程中采用投影缀加平面波方法 (projector-augmented wave, PAW)^[25], 使用 PBE 形式的广义梯度近似 (general gradient approximate, GGA) 计算交换关联函数, 并加入范德瓦耳斯修正 (采用

DFT-D2 方法)^[26], 平面波截断能设置为 400 eV. 在结构优化过程中, 固定单层 WSe₂ 平面 (x - y 平面) 内各个原子的位置, 采用高斯变换仅在真空层方向 (z 方向) 对原子位置进行弛豫. 每个原子的能量收敛标准设置为 1×10^{-7} eV, 晶体应力收敛标准为低于 1×10^{-3} eV/Å, 采用 Monkhorst-Pack 方法选择 $11 \times 11 \times 1$ 的 k 点. 此外, 电荷密度自洽和能带计算过程中都考虑了自旋-轨道耦合效应.

3 结果和讨论

3.1 双层 WSe₂ 转角同质结

在构建双层 WSe₂ 时引入层间相对旋转角度 θ 会产生周期性莫尔条纹并形成莫尔超晶格, 如图 2(a) 所示, 绿色菱形线框表示莫尔超晶格. 莫尔周期 $a_M = a/\theta$.

在具有较小转角的双层 WSe₂ 中, 其莫尔超晶格顶点附近以及沿长对角线方向上两个特殊位置处的晶格构型具有高度对称性, 如图 2(a), (b) 中的红色、黑色及蓝色圆形虚线所示. 对于转角接近 0° 的双层 WSe₂ 而言, 其莫尔超晶格中几个特殊位置处的晶格结构可以近似视为具有 AA 堆叠次序 (AA-WSe₂) 或 3R 堆叠次序 (3R-WSe₂) 的双层 WSe₂ 的晶格结构. 图 2(b) 显示的是 AA-WSe₂ 的俯视图 (上) 及侧视图 (下), 可以看到 AA-WSe₂ 的结构特征是上层 Mo 原子位于下层 Mo 原子正上方, 上层 S 原子位于下层 S 原子正上方. 图 2(c) 为 3R-WSe₂ 的俯视图和侧视图, 其结构特征是上层 Mo 原子位于下层 S 原子正上方, 与上层 Mo 原子相连的 S 原子则恰好位于下层六角晶格的中心位置处. 从图 2(b), (c) 可以看出, AA-WSe₂ 的上层或下层沿着晶胞中长对角线的方向平移一定的距离可以得到 3R-WSe₂, 反之亦然.

对于转角接近 60° 的双层 WSe₂ 而言, 其莫尔超晶格顶点以及长对角线方向上两个特殊位置处的晶格结构, 可以近似视为具有 2H 堆叠次序 (2H-WSe₂) 或 AB' 堆叠次序 (AB'-WSe₂) 或 A'B 堆叠次序 (A'B-WSe₂) 的双层 WSe₂ 的晶格结构, 如图 2(d) 所示. 图 2(e) 为 2H-WSe₂ 的俯视图和侧视图, 其结构特征是上层 Mo 原子位于下层 S 原子正上方, 上层 S 原子位于下层 Mo 原子正上方. 图 2(f) 是 AB'-WSe₂ 的俯视图和侧视图, 其结构特征是上层 Mo 原子位于下层 Mo 原子正上方, 所有的 S 原子

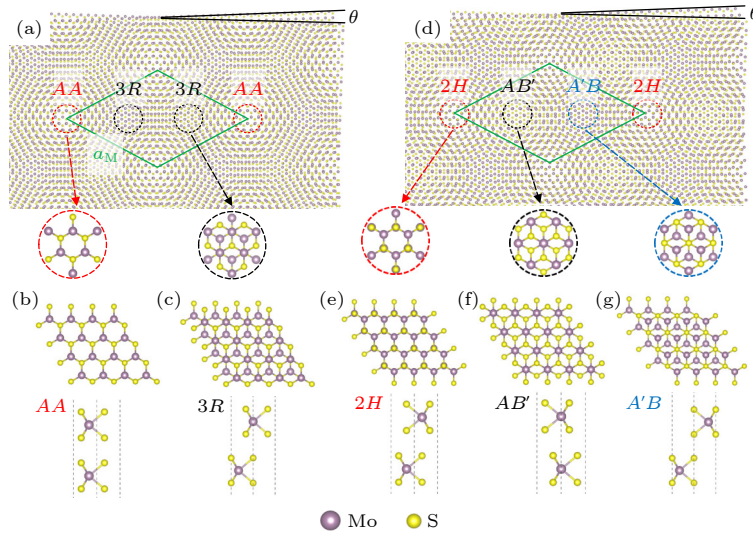


图 2 (a) 转角接近 0° 的莫尔条纹及莫尔超晶格; (b), (c) 分别为 AA - WSe_2 和 $3R$ - WSe_2 晶格结构的俯视图(上)和侧视图(下); (d) 转角接近 60° 的莫尔条纹及莫尔超晶格; (e)–(g) 分别为 $2H$ - WSe_2 , AB' - WSe_2 和 $A'B$ - WSe_2 晶格结构的俯视图和侧视图
 Fig. 2. (a) Schematic of the long-period moiré superlattice formed in real space at 0° ; (b), (c) top (top) and side (bottom) views of two high-symmetry stacking patterns of AA - WSe_2 and $3R$ - WSe_2 ; (d) schematic of the long-period moiré superlattice formed in real space at 60° ; (e)–(g) top and side views of two high-symmetry stacking patterns at 60° of $2H$ - WSe_2 , AB' - WSe_2 and $A'B$ - WSe_2 .

都位于六角晶格的中心位置处. 图 2(g) 是 $A'B$ - WSe_2 的俯视图和侧视图, 其结构特征是上层 S 原子位于下层 S 原子正上方, 而所有的 Mo 原子都位于六角晶格的中心位置处. 可以看出, $2H$ - WSe_2 , AB' - WSe_2 和 $A'B$ - WSe_2 同样可以通过上下层之间的相对平移而相互得到. 此外, 从图 2(b), (g) 和图 2(c), (e) 中可以得知 AA - WSe_2 通过旋转能够得到 $A'B$ - WSe_2 , $3R$ - WSe_2 通过旋转则可以得到 $2H$ - WSe_2 .

对于具有不同旋转角度的双层 WSe_2 体系而言, 其莫尔超晶格高对称点位置对应的晶格构型只有 AA - WSe_2 , $3R$ - WSe_2 , $2H$ - WSe_2 , AB' - WSe_2 和 $A'B$ - WSe_2 这 5 种, 其中前两者晶格构型对应转角为 0° 的双层 WSe_2 , 后三者对应转角为 60° 的双层 WSe_2 . 因此, 本文选择转角为 0° 和 60° 的双层 WSe_2 同质结进行研究.

3.2 能带结构和激子莫尔势

研究计算了 AA - WSe_2 , $3R$ - WSe_2 , $2H$ - WSe_2 , AB' - WSe_2 以及 $A'B$ - WSe_2 在不同电场强度下的能带结构. 根据从头计算连续模型方法, 将 DFT 计算所得的不同电场强度下、不同堆叠次序的双层 WSe_2 的能隙 E_g , 分别对应地近似看作不同转角体系下莫尔超晶格中 5 个特殊位置处具有高对称性晶格构型的能隙 $E_g(d)$, 然后将 $E_g(d)$ 代

入 (4) 式中并利用 Mathematica 进行数据拟合, 得到转角分别接近 0° 和 60° 的双层 WSe_2 同质结中层间激子莫尔势在不同电场强度下的大小及形状参数 V 和 Ψ , 最后将莫尔势参数 V 和 Ψ 代入 (6) 式, 就可以得到不同转角体系莫尔超晶格中激子莫尔势随实空间位置及电场强度的变化关系.

图 3(a) 是电场分别为 0, 1 V/nm 时 $2H$ - WSe_2 的能带结构图, 其中红色实线为不加电场时 $2H$ - WSe_2 的能带结构, 可以看到其动量空间 K 点对应的导带底和价带顶之间的能隙 E_g 约为 1.38 eV, 由此可知 $2H$ - WSe_2 中 K - K 层间激子的能量约为 1.38 eV; 黑色虚线是场强为 1 V/nm 时 $2H$ - WSe_2 的能带结构. 从图 3(a) 可以看出, 在外加电场的影响下 $2H$ - WSe_2 的导带能量降低, 导致 K - K 层间带隙减小. 图 3(b) 为图 3(a) 中 K 点价带的放大图像, 可以看到 K 点对应的价带同样随着电场强度增大而发生移动. 此外还发现, 不同场强下 K 点对应的导带底和 Q 点 (K 和 Γ 的中点) 对应的价带顶之间的能隙总是最低, 因此可以推测出 K - Q 层间激子代表跃迁基态, 图 3(c) 为本征 $2H$ - WSe_2 在动量空间 Q 点处导带底 (conduction band minimum, CBM) 和 K 点处价带顶 (valence band maximum, VBM) 的二维电荷密度图, 等值面的取值为 $0.002 \text{ eV}/\text{\AA}^3$.

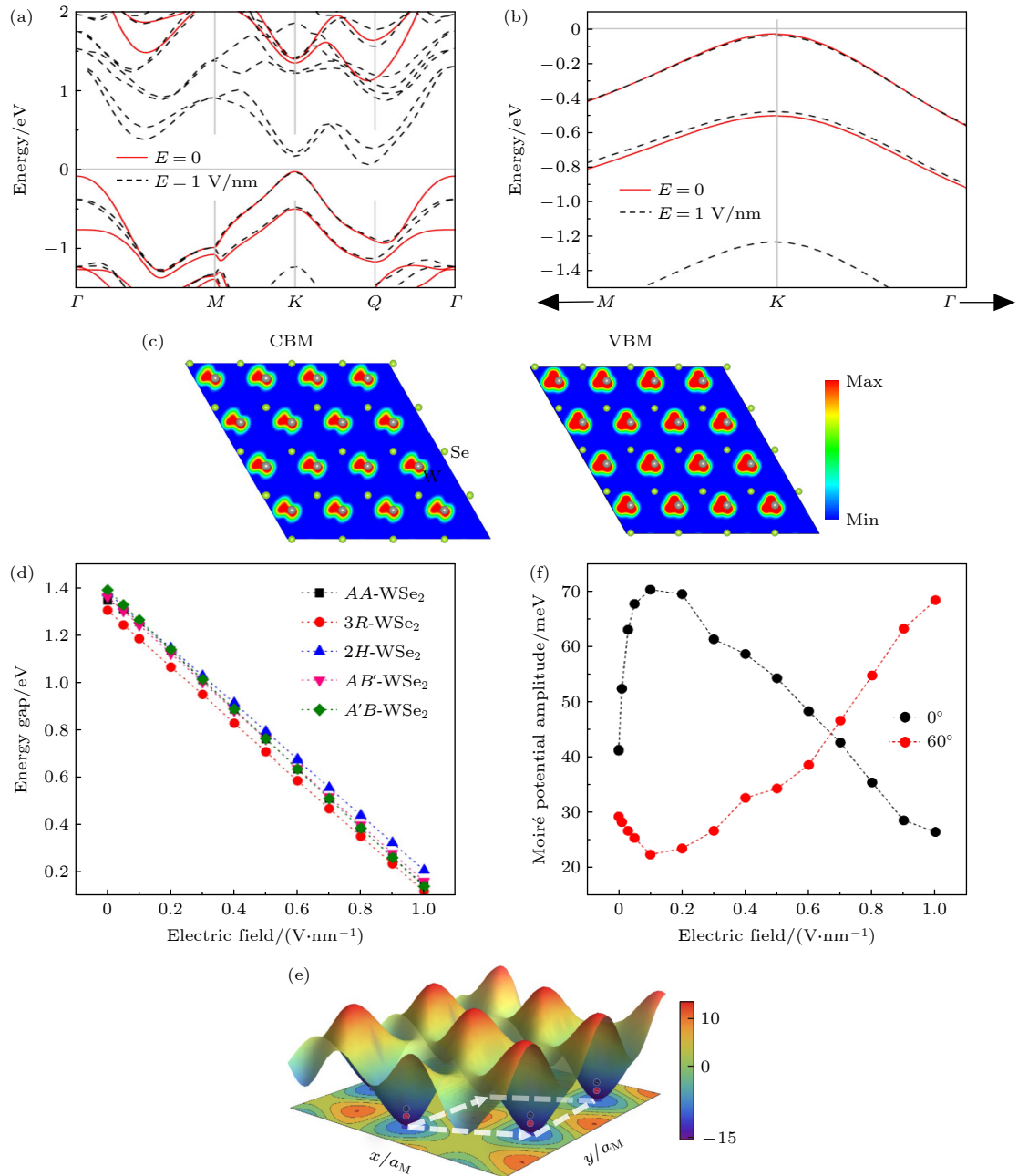


图 3 (a) 电场强度为 0, 1 V/nm 时 2H-WSe₂ 的能带结构图; (b) 2H-WSe₂ 在 K 点处对应价带的放大图; (c) 2H-WSe₂ 在 Q 点处 CBM 及 K 点处 VBM 的 W 原子的二维电荷密度图; (d) 不同电场强度下 5 种堆叠次序的双层 WSe₂ 在 K 点对应的能隙; (e) K-K 激子莫尔势随实空间位置变化的三维及二维投影示意图, 可以将激子 (红色和黑色小球) 束缚在莫尔势最低位置处; (f) 转角接近 0°/60° 的双层 WSe₂ 中 K-K 激子莫尔势大小随电场强度的变化

Fig. 3. (a) Band structure diagram of 2H-WSe₂ when the electric field is 0, 1 V/nm; (b) enlarged view of the valence band maximum at K-point of 2H-WSe₂; (c) 2D plots of partial charge density CBM and VBM states of 2H-WSe₂ at Q-point and K-point of W atom, respectively; (d) band gap corresponding to K-point in momentum space of double-layer WSe₂ with five stacking orders under different electric field intensity; (e) illustrations of the K-K moiré potentials in both 3D and 2D projections that can trap inter-layer excitons (red and black spheres) in the local minima; (f) electric field intensity-dependent of K-K moiré potentials in twisted WSe₂ homobilayers with rotation angle close to 0°/60°.

当所加的电场强度超过 1 V/nm 时, DFT 计算结果显示不同堆叠次序的双层 WSe₂ 的能带结构会发生严重变形, 因此本研究只给出了电场强度小于 1 V/nm 时不同电场强度下 5 种堆叠次序的

双层 WSe₂ 的能隙, 如图 3(d) 所示. 可以看到, 不同堆叠次序的双层 WSe₂ 中动量空间 K 点对应的层间带隙 E_g 均随着电场强度的增大而减小. 其中, AA-WSe₂ 和 3R-WSe₂ 的能隙差随着场强增大而

减小, $2H$ - WSe_2 和 AB' - WSe_2 的能隙差随着场强增大而增大. 在此需要特别说明的是, 实验中所施加的电场强度可以超过 1 V/nm 而不发生击穿现象, 因此, 实验中可以调控的电场强度范围更大.

将不加电场时 $2H$ - WSe_2 , AB' - WSe_2 和 $A'B$ - WSe_2 的 K - K 能隙代入 (4) 式中, 利用 Mathematica 进行数据拟合得到参数 $(V, \Psi) = (2.8 \text{ MeV}, 83.2^\circ)$. 将参数 V 和 Ψ 代入 (6) 式, 就可以得到电场强度为 0 的情况下, 转角接近 60° 的双层 WSe_2 中 K - K 激子莫尔势随实空间位置的变化. 正如图 3(e) 所示的 K - K 激子莫尔势随实空间位置变化的三维及二维投影图, 白色菱形虚线框表示莫尔超晶格, x, y 坐标轴的单位为莫尔周期 a_M . 从图 3(e) 中可以看到莫尔势势垒的能量约为 15 MeV , 势阱的能量为 -15 MeV , 因此 K - K 激子莫尔势的大小 (势垒与势阱的能量差值) 约为 30 MeV . 由于材料中的激子从一个位置移动到另一个位置时会遇到这些能量势垒或势阱, 从而影响原有激子的空间扩散行为 [27–30]. 在实验上可以利用电子倍增相机采集激光光斑图像及泵浦激子历经超快俄歇过程后的均匀扩散发光图像, 得到激子有效扩散系数的变化. 结合激子的空间动力学理论及激子的泵浦超快过程, 进一步分析可以得到其空间扩散行为的变化.

本研究还计算了不同电场强度下转角接近

$0^\circ/60^\circ$ 的双层 WSe_2 中 K - K 激子莫尔势的大小, 得到其随电场强度的变化. 结果如图 3(f) 所示, 随着电场强度增大, 转角接近 0° 的双层 WSe_2 中激子莫尔势逐渐增大; 当电场强度为 0.1 V/nm 时, 莫尔势达到最大值 70 MeV ; 随着电场强度继续升高, 莫尔势逐渐减小. 对于转角接近 60° 的双层 WSe_2 而言, 其莫尔势大小随电场强度变化的关系正好相反, 随着电场强度增大, 激子莫尔势逐渐减小; 当电场强度为 0.1 V/nm 时, 莫尔势达到最小值, 约为 20 MeV ; 随着电场强度继续升高, 莫尔势逐渐增大. DFT 计算结果表明了双层 WSe_2 转角同质结中的激子莫尔势也与材料的旋转角度有关, 不同转角体系的莫尔势大小随电场强度变化的关系不同.

将不同电场强度下的莫尔势参数 V 和 Ψ 代入 (6) 式中, 可以得到不同转角体系下莫尔势大小及能量极值点的位置随电场强度的变化关系, 如图 4 所示. DFT 计算结果表明在不同电场强度下, 转角接近 0° 的双层 WSe_2 中的 K - K 激子莫尔势只有大小发生改变, 而势垒/势阱位置不变. 电场强度为 $0, 0.5, 1.0 \text{ V/nm}$ 时该转角体系中 K - K 激子莫尔势的二维投影图如图 4(a)–(c) 所示, 白色菱形线框表示莫尔超晶格. 从图中可知, 莫尔势随着场强增加先增大后减小, 但是势垒和势阱始终分别位于具有 AA 和 $3R$ 堆叠次序的高对称位置处.

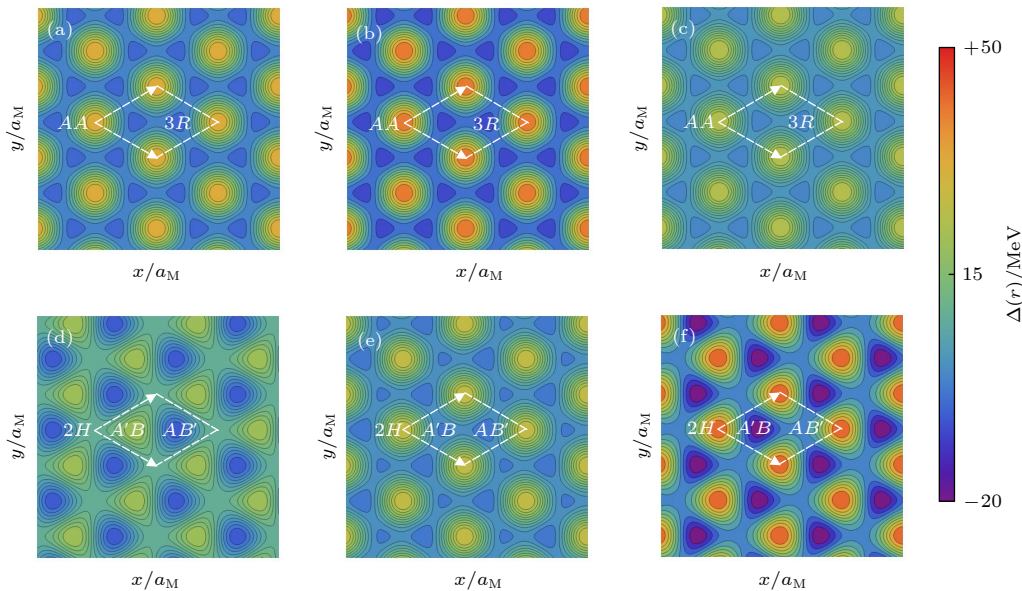


图 4 电场强度不同时, 转角接近 (a)–(c) 0° 和 (d)–(f) 60° 的双层 WSe_2 中 K - K 激子莫尔势随实空间位置变化的二维投影图 (a), (d) 0 V/nm ; (b), (e) 0.5 V/nm ; (c), (f) 1.0 V/nm

Fig. 4. Illustrations of 2D projections of K - K moiré potentials in WSe_2 homobilayers with rotation angle close to (a)–(c) 0° and (d)–(f) 60° with different electric field intensity: (a), (d) 0 V/nm , (b), (e) 0.5 V/nm ; (c), (f) 1.0 V/nm .

在转角接近 60° 的双层 WSe_2 中, K - K 激子莫尔势的大小和势垒/势阱位置都会随着场强变化而改变, 如图 4(d)—(f) 所示: 场强为 0 时, K - K 莫尔势势垒和势阱分别位于 $A'B$ 和 AB' 位置处; 场强为 0.5 V/nm 时, $2H$ 位置为势垒, AB' 位置为势阱; 场强为 1 V/nm 时, 莫尔势增大, $2H$ 位置仍为势垒, 势阱位置则又变到 $A'B$ 处.

DFT 计算结果表明, 外加垂直电场可以调控双层 WSe_2 转角同质结中激子莫尔势的大小和能量极值点的位置, 因此, 理论上可以通过外加电场来实现层间激子空间传输行为的主动调控. 本研究的计算结果为实验上研究 TMDCs 转角体系中层间激子的空间扩散过程提供了理论支持及数据预测, 即在实验上可以通过施加外场来调控双层 WSe_2 转角同质结中的激子莫尔势, 使得沿材料体系实空间中某一方向的莫尔势增大, 则原来沿该方向扩散的自由激子会发生局域化, 从而阻碍激子空间扩散行为. 反之, 通过调控外加电场的大小, 还可以减小沿体系实空间中某一方向的莫尔势, 使得该方向上某些位置的局域激子脱离束缚态成为自由激子, 从而实现激子的局域与非局域转变. 因此, 通过调控 TMDCs 转角体系中层间激子莫尔势的大小和能量极值点的位置, 可以实现纳米尺度的激子局域点阵列, 这对未来设计激子晶体及纳米阵列激光器具有指导意义.

4 结 论

本工作利用第一性原理计算研究了外加垂直电场对双层 WSe_2 转角同质结 K - K 激子莫尔势大小和势垒/势阱位置的主动调控, 揭示了不同旋转角度下双层 WSe_2 同质结中层间激子莫尔势随电场强度及实空间位置的变化关系. DFT 计算结果表明, 不同转角体系的激子莫尔势随电场强度的变化不同, 转角接近 0° 的双层 WSe_2 同质结激子莫尔势随着电场强度的增加先增大后减小, 当电场强度为 0.1 V/nm 时, 激子莫尔势有其最大值 (70 MeV); 对于转角接近 60° 的体系而言, 其激子莫尔势随着电场强度的增加先减小后增大, 当电场强度为 0.1 V/nm 时, 激子莫尔势达到最小值 (20 MeV). 莫尔势可以影响激子的空间扩散行为, 本研究为实验上利用外加电场操纵激子的局域与非局域转变, 从而实现其空间扩散行为的主动调控提供了理论

依据和数据预测, 在未来推动人工激子晶体乃至纳米阵列激光器等半导体器件的构造方面具有重要的指导意义.

感谢北京大学高性能计算校级公共平台的支持.

参考文献

- [1] Geim A K, Grigorieva I V 2013 *Nature* **499** 419
- [2] Lu X B, Zhang G Y 2015 *Acta Phys. Sin.* **64** 077305 (in Chinese) [卢晓波, 张广宇 2015 物理学报 **64** 077305]
- [3] Lv X Y, Li Z Q 2019 *Acta Phys. Sin.* **68** 220303 (in Chinese) [吕新宇, 李志强 2019 物理学报 **68** 220303]
- [4] Dean C R, Wang L, Maher P, Forsythe C, Ghahari F, Gao Y, Katoch J, Ishigami M, Moon P, Koshino M 2013 *Nature* **497** 598
- [5] Hunt B, Sanchez-Yamagishi J D, Young A F, Yankowitz M, LeRoy B J, Watanabe K, Taniguchi T, Moon P, Koshino M, Jarillo-Herrero P 2013 *Science* **340** 1427
- [6] Ponomarenko L, Gorbachev R, Yu G, Elias D, Jalil R, Patel A, Mishchenko A, Mayorov A, Woods C, Wallbank J 2013 *Nature* **497** 594
- [7] Cao Y, Fatemi V, Demir A, Fang S, Tomarken S L, Luo J Y, Sanchez-Yamagishi J D, Watanabe K, Taniguchi T, Kaxiras E 2018 *Nature* **556** 80
- [8] Cao Y, Fatemi V, Fang S, Watanabe K, Taniguchi T, Kaxiras E, Jarillo-Herrero P 2018 *Nature* **556** 43
- [9] Cao T, Wang G, Han W, Ye H, Zhu C, Shi J, Niu Q, Tan P, Wang E, Liu B 2012 *Nat. Commun.* **3** 1
- [10] Rivera P, Yu H, Seyler K L, Wilson N P, Yao W, Xu X 2018 *Nat. Nanotechnol.* **13** 1004
- [11] Shabani S, Halbertal D, Wu W, Chen M, Liu S, Hone J, Yao W, Basov D N, Zhu X, Pasupathy A N 2021 *Nat. Phys.* **17** 720
- [12] Jin C, Regan E C, Yan A, Utama M I B, Wang D, Zhao S, Qin Y, Yang S, Zheng Z, Shi S 2019 *Nature* **567** 76
- [13] Alexeev E M, Ruiz-Tijerina D A, Danovich M, Hamer M J, Terry D J, Nayak P K, Ahn S, Pak S, Lee J, Sohn J I 2019 *Nature* **567** 81
- [14] Tran K, Moody G, Wu F, Lu X, Choi J, Kim K, Rai A, Sanchez D A, Quan J, Singh A 2019 *Nature* **567** 71
- [15] Seyler K L, Rivera P, Yu H, Wilson N P, Ray E L, Mandrus D G, Yan J, Yao W, Xu X 2019 *Nature* **567** 66
- [16] Yu H, Liu G B, Tang J, Xu X, Yao W 2017 *Sci. Adv.* **3** e1701696
- [17] Zhang C, Chuu C P, Ren X, Li M Y, Li L J, Jin C, Chou M Y, Shih C K 2017 *Sci. Adv.* **3** e1601459
- [18] Carr S, Fang S, Kaxiras E 2020 *Nat. Rev. Mater.* **5** 748
- [19] Jung J, Raoux A, Qiao Z, MacDonald A H 2014 *Phys. Rev. B* **89** 205414
- [20] Wu F, Lovorn T, MacDonald A 2018 *Phys. Rev. B* **97** 035306
- [21] Wu F, Lovorn T, MacDonald A H 2017 *Phys. Rev. Lett.* **118** 147401
- [22] Wu F, Lovorn T, Tutuc E, MacDonald A H 2018 *Phys. Rev. Lett.* **121** 026402
- [23] Wu F, Lovorn T, Tutuc E, Martin I, MacDonald A 2019 *Phys. Rev. Lett.* **122** 086402
- [24] Kresse G, Furthmüller J 1996 *Comput. Mater. Sci.* **6** 15
- [25] Kresse G, Joubert D 1999 *Phys. Rev. B* **59** 1758
- [26] Grimme S 2004 *J. Comput. Chem.* **25** 1463

- [27] Yuan L, Zheng B, Kunstmann J, Brumme T, Kuc A B, Ma C, Deng S, Blach D, Pan A, Huang L 2020 *Nat. Mater.* **19** 617
- [28] Zipfel J, Kulig M, Perea-Causin R, Brem S, Ziegler J D, Rosati R, Taniguchi T, Watanabe K, Glazov M M, Malic E, Chernikov A 2020 *Phys. Rev. B* **101** 115430
- [29] Choi J, Hsu W T, Lu L S, Sun L, Cheng H Y, Lee M H, Quan J, Tran K, Wang C Y, Staab M 2020 *Sci. Adv.* **6** eaba8866
- [30] Bai Y, Zhou L, Wang J, Wu W, McGilly L J, Halbertal D, Lo C F B, Liu F, Ardelean J, Rivera P 2020 *Nat. Mater.* **19** 1068

Exciton moiré potential in twisted WSe₂ homobilayers modulated by electric field*

Shi Bei-Bei Tao Guang-Yi Dai Yu-Chen He Xiao
 Lin Feng Zhang Han Fang Zhe-Yu †

(State Key Laboratory for Artificial Microstructure and Mesoscopic Physics, School of Physics,
 Peking University, Beijing 100871, China)

(Received 11 April 2022; revised manuscript received 3 May 2022)

Abstract

The nanoscale periodic energy potential is introduced by moiré pattern in two stacked transition metal dichalcogenide monolayers with lattice mismatch or crystal orientation misalignment. It is demonstrated that the moiré potential can act as a diffusion barrier that affects interlayer exciton transport, providing an opportunity for studying the electronic and optical properties of moiré excitons. However, the current research on the modulation of exciton moiré potential in twisted homobilayers is limited. In this paper the effect of externally applied perpendicular electric field on the exciton moiré potential in twisted WSe₂ homobilayers with different rotation angles is studied by using first principle calculations. It is found that the amplitude and shape of the interlayer exciton moiré potential are dependent on the relative rotation angle between the layers and electric field intensity. The amplitude and shape of the moiré potential in the twisted WSe₂ homobilayers with different rotation angles vary with the electric field intensity (≤ 1 V/nm). These results provide theoretical basis and data prediction for modulating the local and the non-local transition of interlayer excitons, and are of great significance in promoting the development of semiconductor devices such as artificial excitonic crystals and nanoarray lasers.

Keywords: transition metal dichalcogenide, corner homobilayers, exciton moiré potential, first principle calculation

PACS: 73.20.At, 73.21.Cd, 73.43.Cd

DOI: [10.7498/aps.71.20220664](https://doi.org/10.7498/aps.71.20220664)

* Project supported by the National Key Research and Development Program of China (Grant No. 2019YFA0210203), the Natural Science Foundation of Beijing, China (Grant No. Z180011), and the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 21790364, 12027807).

† Corresponding author. E-mail: zhifang@pku.edu.cn



电场调控双层WSe₂转角同质结激子莫尔势

石蓓蓓 陶广益 戴宇琛 何霄 林峰 张酣 方哲宇

Exciton moiré potential in twisted WSe₂ homobilayers modulated by electric field

Shi Bei-Bei Tao Guang-Yi Dai Yu-Chen He Xiao Lin Feng Zhang Han Fang Zhe-Yu

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 71, 177301 (2022) DOI: 10.7498/aps.71.20220664

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220664>

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

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

WS₂与WSe₂单层膜中的A激子及其自旋动力学特性研究

Dynamics of A-exciton and spin relaxation in WS₂ and WSe₂ monolayer

物理学报. 2019, 68(1): 017201 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20181769>

亚波长介质光栅对单层过渡金属硫化物的发光增强

Enhancement of photoluminescence of monolayer transition metal dichalcogenide by subwavelength TiO₂ grating

物理学报. 2022, 71(8): 087801 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20212358>

石墨烯过渡层对金属/SiC接触肖特基势垒调控的第一性原理研究

First principle study on modulating of Schottky barrier at metal/4H-SiC interface by graphene intercalation

物理学报. 2022, 71(5): 058102 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20211796>

二维过渡金属硫化物二次谐波: 材料表征、信号调控及增强

Second harmonic generation of two-dimensional layered materials: characterization, signal modulation and enhancement

物理学报. 2020, 69(18): 184210 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200452>

氢化二维过渡金属硫化物的稳定性和电子特性: 第一性原理研究

Stability and electronic structure of hydrogenated two-dimensional transition metal dichalcogenides: First-principles study

物理学报. 2019, 68(3): 037102 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20181597>

三氨基三硝基苯基高聚物粘结炸药热力学性质的理论计算研究

Theoretical study of interface thermodynamic properties of 1,3,5-triamino-2,4,6-trinitrobenzene based polymer bonded explosives

物理学报. 2019, 68(10): 106201 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190075>