

专题: 二维材料与未来信息器件

过渡金属二硫族化合物异质结构中层间激子的形成判定与调控机制*

王烁# 殷垚#† 王琳‡

(南京工业大学柔性电子(未来技术)学院, 先进材料研究院, 南京 211816)

(2025年7月8日收到; 2025年8月21日收到修改稿)

层间激子是由范德瓦耳斯异质结构中相邻材料层内的电子与空穴通过库仑作用束缚形成的激子, 通常表现出空间间接性, 因而具有较大结合能、长寿命及主要沿垂直方向分布的电偶极矩, 在低维激子物理与新型光电器件研究中具有重要意义. 过渡金属二硫族化合物异质结构因其天然的能带对齐特性成为理想研究平台. 本文综述了层间激子的形成机制与判定方法, 总结了在典型能带结构下激子的能量分布、空间归属与态属性, 并归纳了光致发光光谱分析、瞬态吸收和电调制吸收等表征手段的识别特征. 在此基础上, 系统梳理了电场、磁场、光场、应力、扭转角等外部条件对激子能级、复合行为与光谱特征的调控规律, 并介绍了温度变化、多激子作用和多层堆叠结构等辅助策略, 揭示了层间激子的行为受能带结构、界面耦合影响及局域势场共同作用的复杂性, 对构建可控激子态与激子功能器件具有重要意义, 有望推动其在低功耗逻辑、量子光源与集成光电子芯片等领域的实际应用.

关键词: 层间激子, 范德瓦耳斯异质结构, 激子调控, 光谱表征**PACS:** 71.35.-y, 73.22.-f, 78.67.Wj**DOI:** 10.7498/aps.74.20250890**CSTR:** 32037.14.aps.74.20250890

1 引言

激子是由电子与空穴在库仑相互作用下束缚形成的准粒子态, 是研究低维材料光-物质相互作用的关键. 相较传统三维体材料, 二维材料中显著增强的库仑作用和减弱的介电屏蔽使激子在室温下依然稳定, 并展现出多体效应强、能量结构清晰、寿命长等独特特性, 极大拓展了激子物理的研究空间. 随着范德瓦耳斯 (van der Waals, vdW) 异质结构的发展^[1-4], 过渡金属二硫族化合物 (transition metal dichalcogenides, TMDs) 构成的异质

双层因其能带结构可调、界面无悬挂键等特性, 成为构建新型激子态的重要平台^[5-7].

在 TMD 异质结构中, II 型能带对齐使光生电子与空穴趋于跨层分离, 从而形成具有空间间隔结构的层间激子 (interlayer excitons, IXs)^[8,9]. 此类激子结合能通常超过 200 meV^[10-14], 寿命可达纳秒或更长时间^[15-18], 具备远超层内激子的稳定性与操控性. 同时, 层间激子因电子与空穴分布于相邻单层而在多数情况下呈现主要沿垂直方向的电偶极矩^[19], 结合其谷选择性发射特性, 使其对外部电场、应力、磁场及局域周期势等高度敏感, 是实现激子态调控与器件功能化的核心物理单元^[19-23].

* 国家重点基础研究发展计划 (批准号: 2020YFA0308900) 和国家自然科学基金 (批准号: 92477123, 52373290, 62288102) 资助的课题.

同等贡献作者.

† 通信作者. E-mail: iamyyin@njtech.edu.cn

‡ 通信作者. E-mail: iamlwang@njtech.edu.cn

值得注意的是, 近期研究也发现, 在特定堆叠构型或扭转角条件下, 该偶极结构中亦可能包含一定的面内分量^[24,25].

层间激子不仅在能带结构、复合动力学与寿命尺度上表现出与常规激子截然不同的特性, 还展现出一系列独特的物理行为. 例如, 在 WS_2/WSe_2 莫尔超晶格中, 通过垂直电场调控可使电子与空穴分别位于不同的 WSe_2 层, 形成因强库仑相互作用而稳定存在的层间激子; 电场可进一步调节两层能带的相对对齐, 实现电子-空穴的共存与束缚状态调控, 对其能级及存在状态产生显著影响^[26]; 其谷自旋结构结合层间跃迁规则, 实现了谷选择性发射和偏振调控^[27]; 在强 moiré 势调制下, 层间激子可呈现出局域化、自旋分裂、多体态耦合等新奇行为^[28,29]. 这些特性不断丰富低维激子物理的研究边界, 为研究多体激子、非平衡态激发和量子激子态提供了良好平台.

基于上述物理特性, 层间激子在光电器件领域展现出广阔的应用前景^[21,30]. 其长寿命与可控扩散特性使其适用于激子输运器件与激子晶体管^[31,32]; 可调谐能级结构与偶极响应使其在发光二极管和激子激光器中具有独特优势^[33]; 谷选择性发射行为为发展基于激子的偏振光源与谷电子学元件提供了可能路径^[34]. 此外, 借助周期势诱导的局域激子态, 还可实现能量选择性输出、强耦合发光与激子凝聚等新型器件功能^[35,36]. 这些探索不仅推动了激子物理的功能转化, 也为构建新一代二维光电平台奠定了技术基础.

作为低维激子物理的重要分支, 层间激子因其独特的能带结构与相互作用特性而受到广泛关注. 如图 1 所示, 为梳理该领域的最新进展与核心问题, 本文系统总结了 TMD 异质结构中层间激子的物理特性与调控机制. 首先介绍其形成条件与判定方法, 包括能带对齐特征、光谱识别手段及动力学行为. 随后重点讨论多种外部环境下的能级调控与发光调制规律, 涵盖电场、磁场、应力与扭转角等因素, 并简要评述温度调节、多激子相互作用及堆叠结构设计等拓展策略. 最后结合当前发展趋势, 对实现稳定激子态、提升调控精度及推动器件集成等方面的关键挑战与潜在方向进行分析与讨论. 相关研究的持续深入, 不仅有助于揭示激子态的本征物理机制, 也将为新一代低维光电与量子器件的构建奠定坚实基础.

2 层间激子的形成和判定

2.1 层间激子的形成

层间激子的形成依赖于 TMD 异质结构界面处的能带排列与载流子动力学过程. 在典型的 II 型对齐条件下, 光激发首先在各单层中产生内层激子, 随后电子与空穴通过超快层间电荷转移分别注入能量较低的导带底与价带顶, 形成空间分离的层间激子. 此外, 近年来的研究还发现, 层间激子亦可通过直接的层间吸收过程生成, 而无需先经历层内激子的中间态^[37,38]. 尽管电子和空穴在空间上分离, 但由于 TMD 材料的库仑屏蔽效应较弱, 二者之间仍能形成强束缚态, 从而稳定地存在于相邻层间^[39,40]. 该过程通常伴随着界面电荷的重分布与有效带隙的收窄, 使得激子发射能量显著低于单层材料的本征激子峰.

此外, 层间激子的形成还受到结构构型的显著影响. 在人工堆叠的 TMD 异质结构中, 由于难以实现理想晶格匹配与原子对齐, 层间耦合常受到晶格常数差异与扭转角偏移的影响, 从而在能带结构中引入非零动量失配, 显著影响激子的形成路径、辐射选择规则, 与寿命稳定性^[41-44]. 值得注意的是, 近期基于化学气相沉积 (chemical vapor deposition, CVD) 方法生长的 0° 堆叠 TMD 异质结构在大面积均匀性与界面质量方面取得了重要进展, 并在层间激子行为上展现出与人工堆叠体系一致的动量失配特征与耦合调控规律, 进一步印证了这一机制^[45]. 因此, 深入理解层间激子需从能带结构、界面态、偶极分布与动量空间耦合等多个维度综合考察.

2015 年, Rivera 等^[19] 首次在 $\text{MoSe}_2/\text{WSe}_2$ 异质结构中观测到层间激子的发光, 被视为 TMD 异质结构中层间激子研究的关键起点之一. 如图 2(a) 所示, 低温 (20 K) 下, 异质结区域出现了一个位于 1.35 eV 的新发射峰 (X_1), 能量显著低于上层 WSe_2 (1.65 eV) 和下层 MoSe_2 (1.57 eV) 的层内激子峰. 这个新的发射峰被归因于电子和空穴分别局域于不同单层后形成的激子态, 表现出空间间接性, 表明异质结构中存在稳定的层间激子. 此后, 这类现象在多种 TMD 组合体系中被陆续验证^[46-49]. 例如 Mouri 等^[46] 通过温度依赖光致发光光谱 (photoluminescence, PL) 测试, 确定 $\text{MoS}_2/\text{MoSe}_2$ 中激子结合能约为 93 meV, 显示出室温下的稳定性潜力.

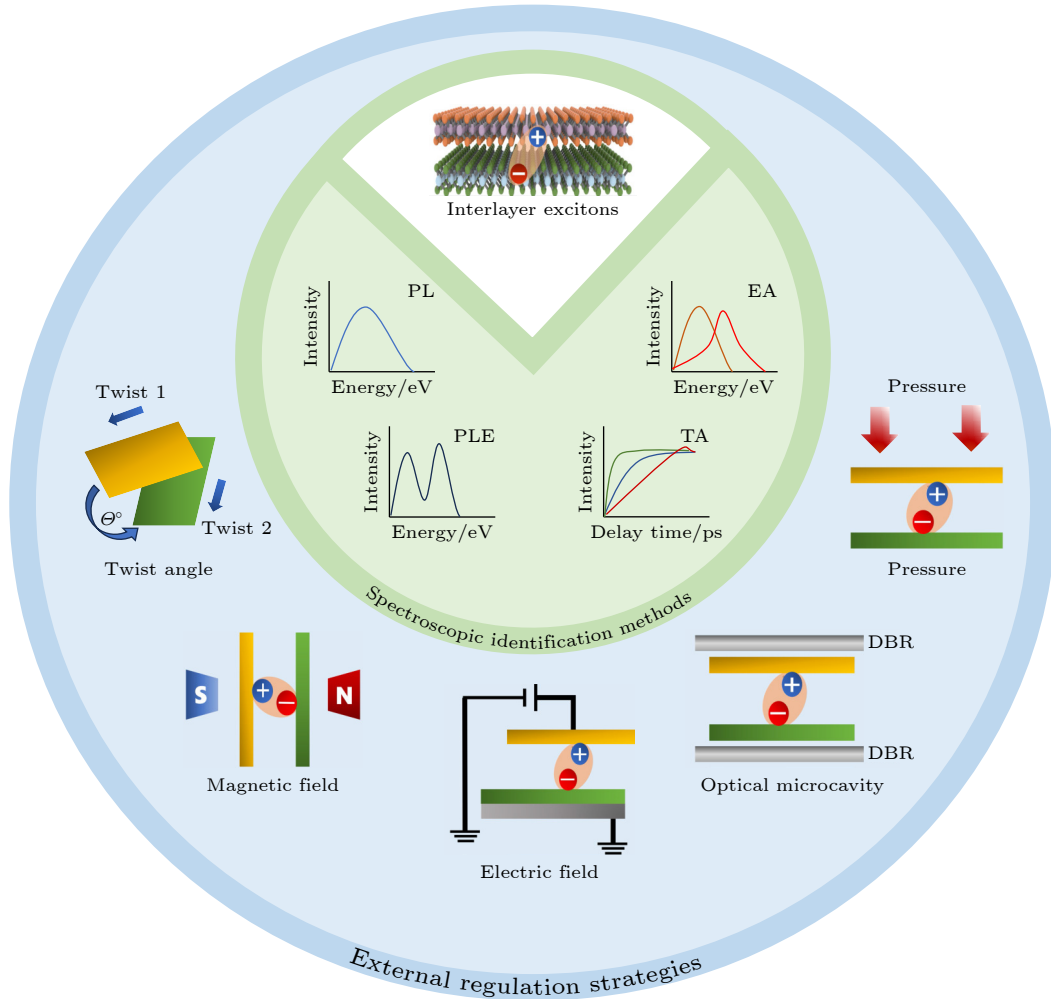


图 1 TMD 异质结构中中层间激子的形成判定与多样化调控机制. 图中心展示典型异质结构中中层间激子的空间构型及常用光谱学表征手段 (PL, PLE, EA, TA), 外围示意常见调控方式, 包括电场、磁场、应力、光学微腔与扭转角等

Fig. 1. Schematic of interlayer exciton identification and regulation. The center illustrates the spatial configuration of interlayer excitons and representative spectroscopic techniques (PL, PLE, EA, TA), surrounded by common external tuning approaches such as electric field, magnetic field, pressure, optical microcavity, and twist angle.

为进一步阐明形成机制, 可结合异质结构的能带结构图进行理解. 如图 2(b) 所示, $\text{MoSe}_2/\text{WSe}_2$ 异质结构呈现典型的 II 型能带排列^[19]. 光激发后, 电子隧穿转移至 MoSe_2 层中, 而空穴局域于 WSe_2 中. 这对载流子在较弱的层间屏蔽下被库仑作用束缚, 形成稳定的层间激子. 图 2(c) 显示, 界面区域在 1.36 eV 处出现的新发射峰, 相较单层明显红移, 并排除了单层激子峰的干扰, 进一步支持其发射源来自界面层间耦合态. 此外, 该峰与理论界面带隙之差, 可用于估算结合能, 为激子动力学建模提供依据.

近年来的研究也逐步开始关注层间激子的内能级结构, 以揭示其类氢模型下的能级分布与光学跃迁行为. Merkl 等^[12] 通过中红外激发-探测技

术, 在 WSe_2/WS_2 异质结构中首次探测到层间激子的 1s-2p 跃迁. 如图 2(d) 所示, 泵浦-探测延迟时间为 5.1 ps 时, 光学电导率变化的实部谱中出现了 (67 ± 6) meV 的吸收峰, 与理论预期的 1s-2p 跃迁能量 (69 ± 6) meV 高度吻合, 显著低于层内激子的 1s-2p 跃迁能量 (约 144 meV), 可以明确归因于层间激子. 该工作还通过中红外脉冲与光谱分析提取复介电函数, 结合二维 Wannier 方程计算, 确定其结合能为 (126 ± 7) meV, 表明激子具有强束缚特性.

这些结果不仅证实了 TMD 异质结构中中层间激子的有效形成, 也揭示了其结合能、能级结构与波函数空间分布等微观特征. 随着对激子形成过程的深入解析, 进一步的调控手段与激子态操控策略

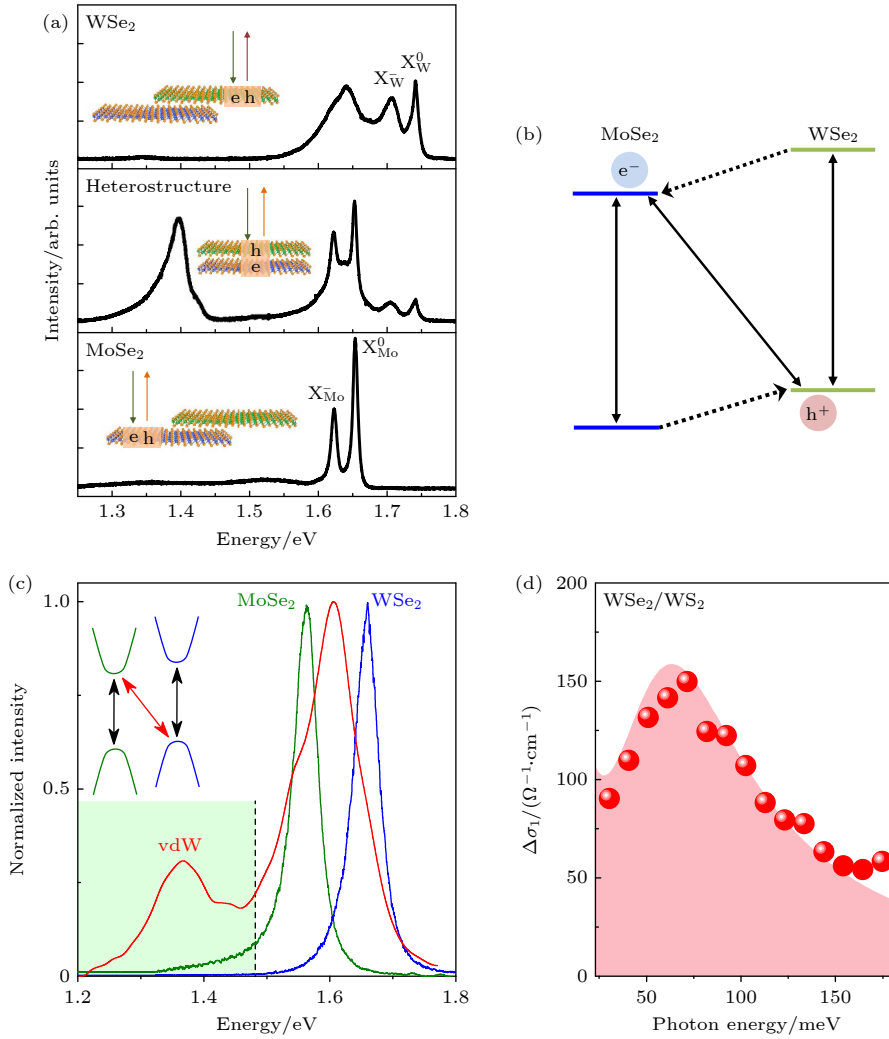


图2 层间激子的形成 (a) 单层 WSe₂、单层 MoSe₂ 和异质结构的光致发光光谱, 出自文献 [19], 已获得授权; (b) 2D MoSe₂/WSe₂ 异质结的 II 型半导体能带排列图, 出自文献 [19], 已获得授权; (c) WSe₂/MoSe₂ 异质结及其单层组分的光致发光谱对比, 1.36 eV 处的发光峰来源于层间激子复合, 出自文献 [13], 已获得授权; (d) WSe₂/WSe₂ 异质结构中中层间激子的 1s-2p 跃迁 (67 meV) 中红外吸收谱, 出自文献 [12], 已获得授权

Fig. 2. Formation of interlayer excitons: (a) PL spectra of monolayer WSe₂, monolayer MoSe₂, and their heterostructure, reproduced with permission from Ref. [19]; (b) type-II semiconductor band alignment diagram for the 2D MoSe₂/WSe₂ heterojunction, reproduced with permission from Ref. [19]; (c) comparison of PL spectra between the WSe₂/MoSe₂ heterojunction and its monolayer components, where the emission peak at 1.36 eV arises from interlayer exciton recombination, reproduced with permission from Ref. [13]; (d) mid-infrared absorption spectrum of the 1s-2p transition (67 meV) of interlayer excitons in the WSe₂/WSe₂ heterostructure, reproduced with permission from Ref. [12].

得以建立, 并为后续识别机制、多体行为探索及器件设计奠定了物理基础.

2.2 层间激子的判断规则

层间激子 (IXs) 是指电子与空穴分别局域于相邻单层材料中所形成的激子态, 典型情况下具有空间间接性, 与电子-空穴共存于同一层的层内激子 (intralayer excitons, ILXs) 相区别. 由于 TMD 异质结构中库仑屏蔽较弱, IXs 仍可形成强束缚态, 具有面外偶极矩、长寿命及特殊的动量与自旋结

构. 按照动量复合路径, IXs 可细分为动量直接型 (如 K - K) 和动量间接型 (如 Q - K 、 Σ - K) 等; 若进一步考虑自旋构型, 还可区分为单态 (singlet) 和三重态 (triplet). 由于其复合路径、激发机制与空间构型与 ILXs 存在本质差异, IXs 的判定通常需结合多种光谱学手段对其能量结构、动力学过程及辐射特性进行综合分析.

IXs 判定常以稳态 PL 谱为主要依据. 在 TMD 异质结构中, IXs 通常表现为 PL 谱中能量显著低于单层激子峰的发射特征, 且发射仅限于异质结区

域, 强度对激发位置高度敏感. 如图 3(a) 所示, 与单层 WS_2 和 MoS_2 的本征 PL 峰相比, 异质结构中两者的激子信号强度明显减弱, 同时在低能侧出现一个新的发射峰, 表明载流子已非辐射转移至界面形成 IX 态^[10]. 这一“强度猝灭+新峰形成”的特征组合, 构成了层间激子的最初级光谱证据.

除发光能量外, 激发-复合位置的解耦性也是层间激子的关键特征, 常通过激发光谱 (photoluminescence excitation spectroscopy, PLE) 加以验证. 如图 3(b) 所示, 在异质结构中, IXs 发射随激发能量在 WSe_2 与 MoSe_2 单层本征峰附近出现共振增强, 表明激发发生于单层而复合来自界面 IX 态. 这种“激发位置与发射路径错位”的行为是空间间接性的间接证据^[50].

需要指出的是, 传统 PL 手段无法直接区分空

间间接性与动量间接性, 尤其难以排除 Σ - K 型跃迁等其他低能态的干扰. 因此, 为进一步明确 IX 形成路径, 超快瞬态吸收 (transient absorption, TA) 与电调制吸收 (electro-modulation absorption, EA) 等手段被广泛用于解析其动力学演化与本征吸收特征. Policht 等^[51] 通过 TA 研究发现, 在 $\text{MoSe}_2/\text{WSe}_2$ 异质结构中, IXs 信号上升时间约为 0.8 ps, 显著慢于 100 fs 量级的层间空穴转移 (interlayer hole transfer, IHT), 揭示出 IXs 形成涉及声子辅助的级联过程与激子热弛豫机制 (图 3(c)). 这一结果首次在时间域内直接分离出 IXs 形成行为, 证实了其需经界面散射与声子协同的复合路径.

Barré 等^[37] 则基于 EA 技术直接解析了 IXs 的跃迁路径. 他们在 1.359 eV 与 1.377 eV 位置观察到两个 IXs 的直接吸收峰, 能量高于 PL 主峰 L1,

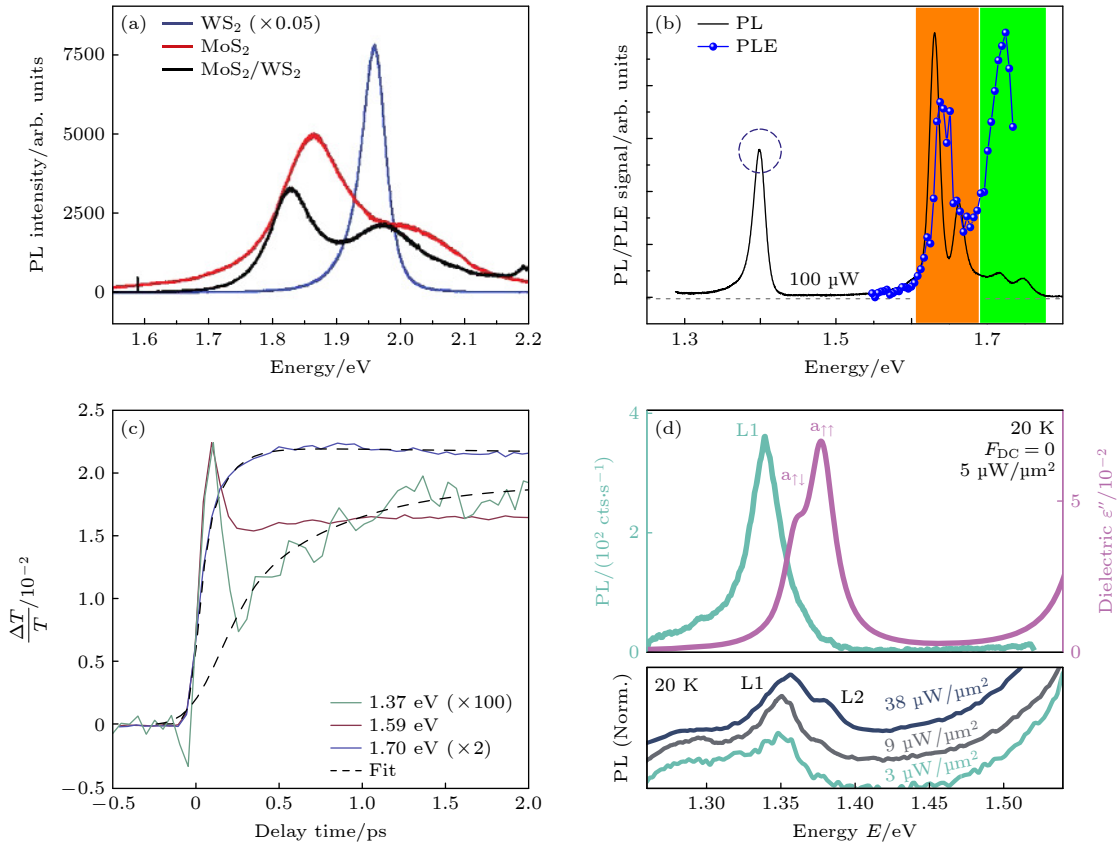


图 3 层间激子的判断 (a) 单层 WS_2 , MoS_2 以及 WS_2/MoS_2 异质结构的 PL 谱, 出自文献 [10], 已获得授权; (b) $\text{MoSe}_2/\text{WSe}_2$ 异质结构的 PLE 谱, 出自文献 [50], 已获得授权; (c) 超快瞬态吸收 (TA) 谱中 IXs 形成的延迟 (0.8 ps) 与层间空穴转移 (IHT) 过程 (0.2 ps), 出自文献 [51], 已获得授权; (d) 电调制吸收 (EA) 谱中 IX 的本征吸收峰 (1.359 eV, 1.377 eV) 与 PL 间接跃迁峰 (L1), 出自文献 [37], 已获得授权

Fig. 3. Identification of interlayer excitons: (a) PL spectra of monolayer WS_2 , MoS_2 , and the WS_2/MoS_2 heterostructure, reproduced with permission from Ref. [10]; (b) PLE spectrum of the $\text{MoSe}_2/\text{WSe}_2$ heterostructure, reproduced with permission from Ref. [50]; (c) formation dynamics of IXs (0.8 ps delay) and IHT (0.2 ps) observed in ultrafast TA spectroscopy, reproduced with permission from Ref. [51]; (d) intrinsic absorption peaks of IXs (1.359 eV, 1.377 eV) and indirect transition PL peak (L1) in EA spectroscopy, reproduced with permission from Ref. [37].

反映其来源于 K - K 跃迁; 相应 L1 峰则源自动量间接 (如 K - A) 跃迁, 在吸收谱中不可见 (图 3(d)). 这一“发光可见、吸收不可见”的反差被认为是 IXs 动量间接性的重要判据, 有效弥补了传统 PL 仅限次级辐射过程的局限性, 首次实现了对层间激子本征态的原位检测.

此外, IXs 在偏振响应与谷态行为上的独特性亦可辅助判定. Hanbicki 等 [52,53] 分别在圆偏振 PL [52] 以及磁场 Zeeman 响应 [53] 中发现 IXs 较 ILXs 偏振保持度显著下降, 谷分裂斜率增大, 表明其具有非对称层间耦合与减弱的谷选择性. 在存在 Moiré 超晶格调制的异质结构中, Jin 等 [54] 进一步观察到 IXs 的局域化行为和能级分裂现象. 偏振与谷响应、局域发射行为与能带调制相结合, 为系统判断 IXs 提供了更多维度的支撑.

3 层间激子的调控手段

3.1 电场调控

电场调控是实现层间激子浓度调节与定向输运的重要手段之一. 得益于其垂直取向的永久电偶极特性, 外加垂直电场能够引发显著的斯塔克位移 (Stark shift), 从而调变激子的能级结构与偶极势垒. 具体而言, 施加电场在上下单层之间产生势能差, 导致激子能级出现方向依赖的红移或蓝移, 并相应改变其结合能和空间分布. 当电场强度足够大时, 偶极势垒可被显著降低, 进而诱导偶极矩反转、激子解离甚至自由载流子的形成, 对激子的辐射效率与寿命产生深远影响 [55-59]. 通过电场精确调控激子流动性、密度分布及稳定性, 不仅拓展了对激子态的操控自由度, 也为激子晶体管、激子二极管等新型电控器件的构筑奠定了物理基础.

Unuchek 等 [31] 在 $\text{WSe}_2/\text{MoSe}_2$ 异质结构中构建了如图 4(a) 所示的激子晶体管, 采用双栅极结构在室温下实现了激子流的纳秒级开关控制. 该器件通过上下栅极形成可调垂直电场, 调节激子的能量分布, 进而构建可重构的势垒或势阱. 图 4(b) 显示, 当施加正栅压 (V_{g1}) 时, 激子扩散被抑制, 输出区域的发光强度显著降低 (OFF 状态); 而零栅压下, 激子自由扩散, 发光强度增强 (ON 状态). 图 4(c) 进一步量化了器件性能. 可以看到, 器件开关比随电压提升而迅速增大, 当栅压达到约 8 V 时, 此时势垒高度约为 $k_B T$, 激子流被完全阻断, 开关比超

过 100. 这一工作首次在实验上证明了垂直电场通过 Stark 效应实现激子流调控的可行性.

在此基础上, Joe 等 [60] 进一步提出了基于静电陷阱的局域激子调控方案. 如图 4(d) 所示, 他们在 $\text{MoSe}_2/\text{WSe}_2$ 异质结构中设计了多栅极静电阱, 通过外部门控电压 (E_{og}) 调节陷阱深度和激子密度分布. 图 4(e) 显示, 当 $E_{og} = 0.114$ V/nm 时, 激子被局域在陷阱中心, 扩散宽度从 4.5 μm 压缩至 3 μm ; 如图 4(f) 所示, 通过加深陷阱势阱, 激子密度提升至 2.4×10^{12} cm^{-2} , 接近 Mott 转变阈值. 此外, 陷阱中激子寿命延长了 20%, 表明电场不仅能调控激子流, 还可提升其稳定性.

除了调节激子密度, 电场也可以通过设计纳米尺度电势通道, 实现对激子输运路径的精确控制. Sun 等 [61] 系统研究了 $\text{WSe}_2/\text{hBN}/\text{MoS}_2$ 三明治异质结构中的激子输运行为, 揭示了其受电场与激子-激子偶极排斥协同调控的动力学特征. 如图 5(a) 所示, 激子扩散受电场势能 (δE_{el}) 和激子-激子排斥势 (δE_{xx}) 共同调控. 在高密度激发条件下 ($P_{ave} = 200$ μW), δE_{xx} 占主导, 激子云快速扩散; 当密度降低, δE_{el} 逐渐占据主导, 激子被局域在电场定义的势阱中. 图 5(b) 展示了通过调节 $\delta E_{el}/\delta E_{xx}$ 比值, 可实现激子从自由扩散 ($\delta E_{el}/\delta E_{xx} \approx 0$) 到完全局域化 ($\delta E_{el}/\delta E_{xx} > 1$) 的连续调控. 此外, Tagarelli 等 [55] 通过精细调控电场强度和材料组成, 观察到混合态激子与纯层间激子之间的相互转换行为, 揭示了多体输运中状态竞争与偶极响应的复杂机制.

Shanks 等 [62] 则通过纳米图案化设计了 $\text{MoSe}_2/\text{WSe}_2$ 异质结构 (图 5(c) 所示), 并构建了如图 5(d) 展示的三角形电势“滑道”, 通过局域调控垂直电场梯度, 实现了激子的定向高速输运. 如图 5(e) 所示, 当电场关闭时激子扩散呈现各向同性; 开启电场后, 激子仅沿三角形宽端方向扩散 (黄色箭头), 表现出强烈的方向选择性, 并且漂移速度高达 2×10^6 cm/s , 比传统二维体系中的激子扩散速度高 1 个数量级. 此外, 该器件还引入第 2 束激光脉冲控制通道内的激子密度, 实现了光控激子晶体管功能, 具有 8:1 的开关比和 14 GHz 的响应速率, 为低损耗激子逻辑器件设计提供了可行的架构.

此外, Policht 等 [51] 利用飞秒瞬态吸收光谱揭示了层间激子的形成延迟过程, 指出激子-声子耦合与电场共同决定其形成速率, 为理解调控下的激子动力学提供了关键实验证据. Wu 等 [63] 则通过

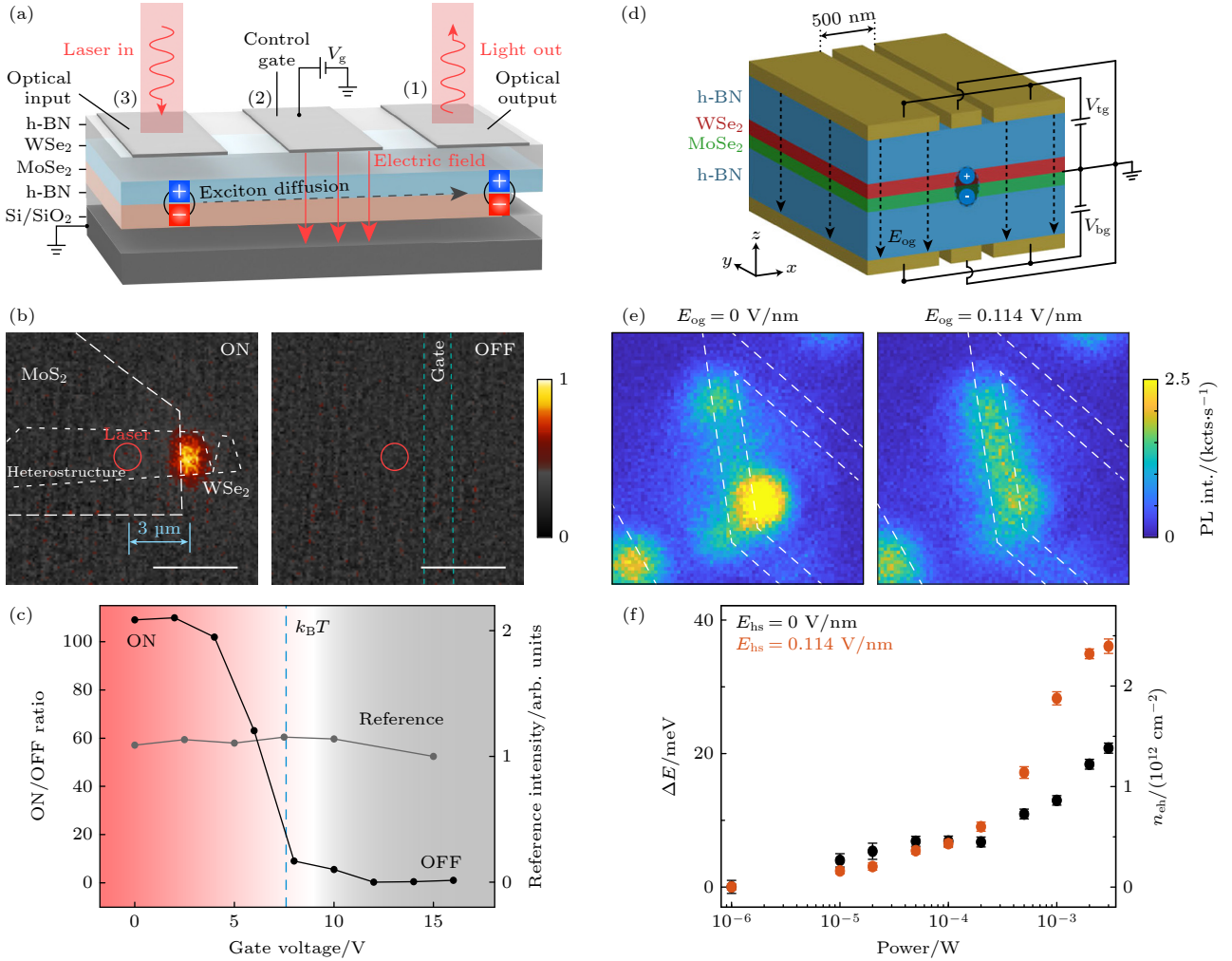


图4 电场调节层间激子密度 (a) WSe₂/MoSe₂ 激子晶体管结构示意图, 出自文献 [31], 已获得授权; (b) 栅压调控激子流开关 (ON/OFF 状态) 的 PL 强度对比, 出自文献 [31], 已获得授权; (c) WSe₂/MoSe₂ 激子晶体管开关比随栅压的变化, 出自文献 [31], 已获得授权; (d) 双栅极结构的 WSe₂/MoSe₂ 异质结激子晶体管示意图, 出自文献 [60], 已获得授权; (e) 无陷阱势与陷阱势下的层间激子光致发光空间分布图, 出自文献 [60], 已获得授权; (f) 不同外栅电场下, 层间激子蓝移能量 ΔE 及对应的电子-空穴对密度随激发功率的变化关系, 出自文献 [60], 已获得授权

Fig. 4. Interlayer exciton density under electric field conditions: (a) Schematic of a WSe₂/MoSe₂ excitonic transistor structure, reproduced with permission from Ref. [31]; (b) comparison of PL intensities demonstrating exciton current switching (ON/OFF states) under gate voltage modulation, reproduced with permission from Ref. [31]; (c) gate voltage dependence of the ON/OFF ratio in WSe₂/MoSe₂ excitonic transistors, reproduced with permission from Ref. [31]; (d) schematic of a dual-gated WSe₂/MoSe₂ heterostructure excitonic transistor, reproduced with permission from Ref. [60]; (e) spatial distribution of interlayer exciton PL with and without trapping potentials, reproduced with permission from Ref. [60]; (f) electric-field-induced blue shift energy (ΔE) of interlayer excitons and corresponding electron-hole pair density as functions of excitation power under different external gate biases, reproduced with permission from Ref. [60].

电场调控激子共振强度, 展示了在异质结构中激子增强二次谐波响应的可能性, 扩展了电场调控激子的非线性光学应用场景。

综上, 电场通过调控激子偶极势垒、构建静电陷阱与纳米势能通道, 已实现对层间激子密度、寿命及输运行行为的多维控制。这些策略不仅推动了室温激子晶体管与运输器件的发展, 也为后续激子集成、非线性光子学及多体准粒子操控提供了实验基础。

3.2 应变调控

应力调控作为非侵入式、连续可调的外场手段, 在二维材料异质结构中展现出对激子能带结构、束缚能、辐射行为等方面的显著影响 [64-68]。得益于 TMD 单层材料的高机械柔性和范德瓦耳斯连接形成的异质界面结构, 局域或全域施加的应力不仅能实现层间激子能量的精准可逆调谐, 也可用于调控激子结合强度、态间跃迁路径及发光效率等

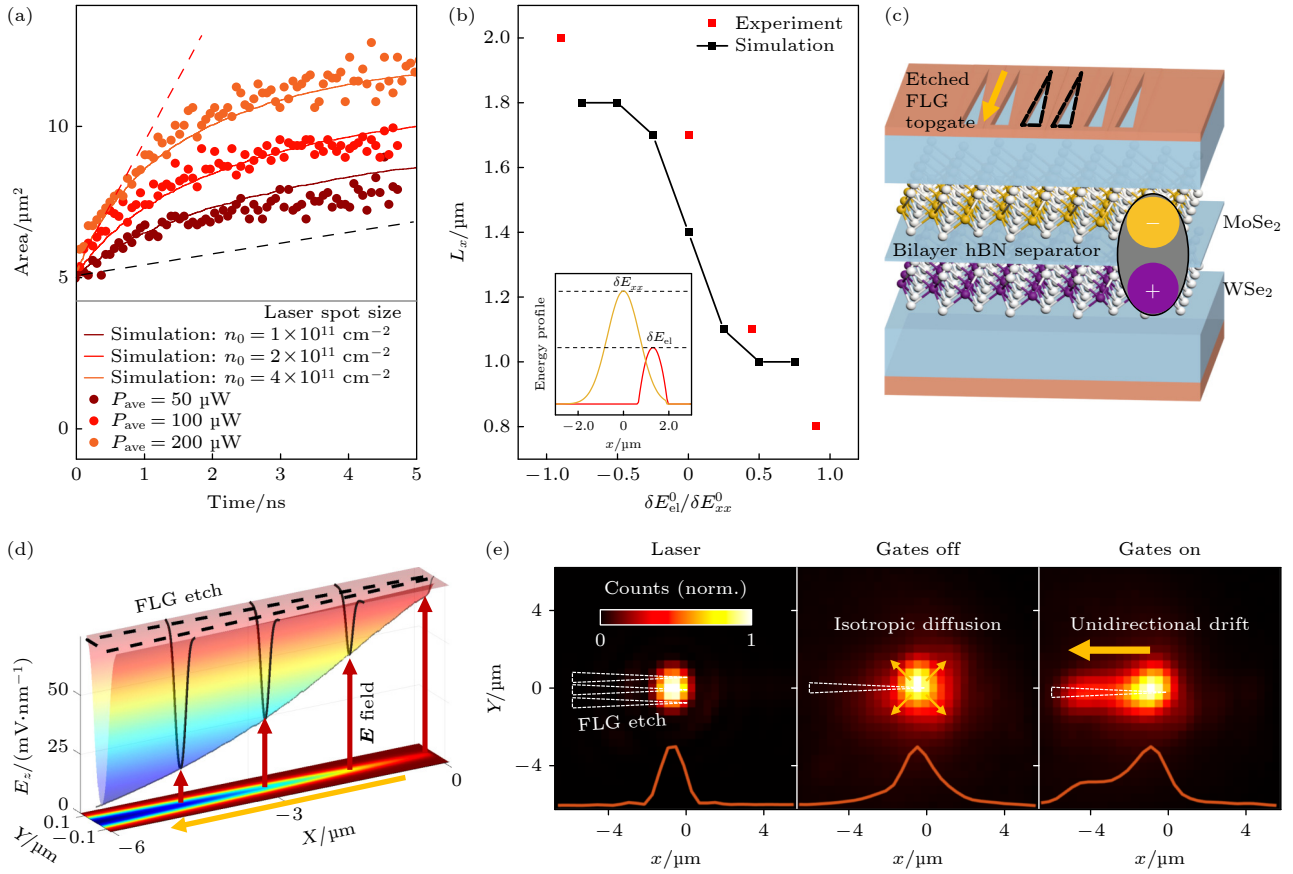


图 5 电场调控激子输运 (a) $\text{WSe}_2/\text{hBN}/\text{MoSe}_2$ 三明治结构中激子扩散受电场势能 (δE_{el}) 与激子-激子排斥 (δE_{xx}) 协同调控的示意图, 出自文献 [61], 已获得授权; (b) 激子传播距离 L_x 随静电势能与激子-激子排斥能比值 $\delta E_{el}/\delta E_{xx}$ 的变化关系, 插图为模拟中的势能分布示意图, 出自文献 [61], 已获得授权; (c) 纳米图案化 $\text{MoSe}_2/\text{WSe}_2$ 异质结的器件示意图, 出自文献 [62], 已获得授权; (d) $\text{MoSe}_2/\text{WSe}_2$ 异质结的三角形电势“滑道”设计示意图, 出自文献 [62], 已获得授权; (e) 激发激光强度分布的 CCD 图像, 出自文献 [62], 已获得授权

Fig. 5. Electric-field-controlled exciton transport: (a) Schematic of exciton diffusion regulation in a $\text{WSe}_2/\text{hBN}/\text{MoSe}_2$ sandwich structure through the synergistic effects of electric potential energy (δE_{el}) and exciton-exciton repulsion (δE_{xx}), reproduced with permission from Ref. [61]; (b) exciton propagation distance (L_x) as a function of the ratio between electrostatic potential energy and exciton-exciton repulsion energy ($\delta E_{el}/\delta E_{xx}$), with the inset showing the simulated potential energy distribution reproduced with permission from Ref. [61]; (c) device schematic of a nanopatterned $\text{MoSe}_2/\text{WSe}_2$ heterostructure reproduced with permission from Ref. [62]; (d) design schematic of triangular potential “channels” in a $\text{MoSe}_2/\text{WSe}_2$ heterostructure; (e) CCD image of the excitation laser intensity distribution reproduced with permission from Ref. [62].

物理特性, 为激子器件设计提供了丰富的调控自由度。

在 $\text{MoS}_2/\text{WSe}_2$ 异质双层中, 通过构建周期性褶皱结构 (图 6(a)), 可在波峰与波谷处分别引入拉伸与压缩应变, 从而实现对动量空间间接层间激子 (Γ - K) 的高效调控 [69]。这种显著的应变灵敏性源于 Γ 点价带和 K 点导带对局域应变的轨道响应增强。此外, 层间激子的光致发光 (PL) 强度随应变呈现非单调演化, 反映出面内应变与面外层间耦合间的复杂竞争效应, 表明激子态行为受多重结构因子的耦合调控。

应变对激子束缚特性的影响也可通过理论模

拟得到定量评估。图 6(c) 展示了 $\text{MoSe}_2/\text{WSe}_2$ 垂直堆叠异质结构中, 双轴应变下层间和层内激子结合能的 GW+BSE 计算结果。可以看出, 层间激子的结合能随应变增大呈现线性下降的趋势, 灵敏度为 $-4.2 \text{ meV}/\%$ 。相比之下, 层内激子结合能对应变更敏感。这种差异源于层间激子中电子与空穴的空间分离特性, 使其库仑束缚作用对应力场的响应相对较弱 [70]。

在实验层面, Zhang 等 [71] 通过 PVA 封装技术对 WSe_2/WS_2 异质结构施加可控拉伸应变, 在室温下实现了层间激子 PL 的增强 (图 6(d), (e))。可以看出, 3 种不同层数配置的异质结构 (1L $\text{WSe}_2/1\text{L}$

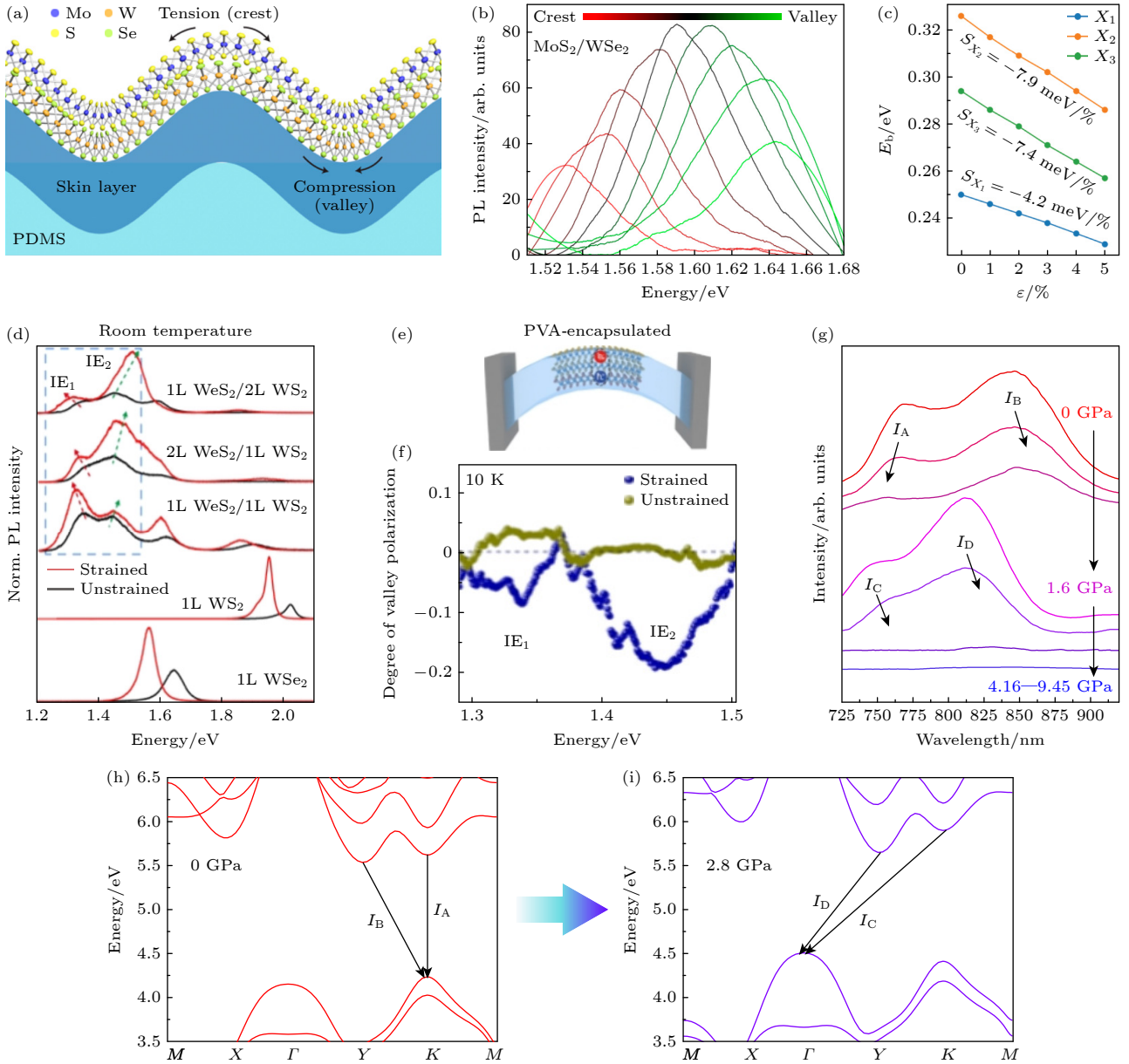


图6 应变调控层间激子 (a) MoS₂/WS₂ 异质双层中周期性褶皱结构的示意图, 波峰与波谷分别引入拉伸与压缩应变, 出自文献 [69], 已获得授权; (b) 激子发射峰值能量随褶皱轮廓的连续移动, 总调节范围达 107 meV, 出自文献 [69], 已获得授权; (c) MoSe₂/WS₂ 异质结构中双轴应变下层间和层内激子结合能的 GW+BSE 计算结果, 出自文献 [70], 已获得授权; (d), (e) WS₂/WS₂ 异质结构在拉伸应变下 PL 增强及谷极化效应 (10 K 下极化度达 20%), 出自文献 [71], 已获得授权; (f) 应变诱导的谷间不等势示意图, 出自文献 [71], 已获得授权; (g) WS₂/MoSe₂ 异质结构在静水压力下激子态演化过程及能带重排示意图, 出自文献 [65], 已获得授权; (h), (i) 静水压力诱导的能带重排示意图 (低压与高压下的能带对齐变化), 出自文献 [65], 已获得授权

Fig. 6. Strain-engineered interlayer excitons: (a) Schematic of periodic wrinkle structures in MoS₂/WS₂ heterobilayers, where peak and valley regions introduce tensile and compressive strains, respectively, reproduced with permission from Ref. [69]; (b) continuous tuning of exciton emission peak energy along the wrinkle profile, showing a total modulation range of 107 meV, reproduced with permission from Ref. [69]; (c) GW+BSE calculated binding energies of interlayer and intralayer excitons under biaxial strain in MoSe₂/WS₂ heterostructures, reproduced with permission from Ref. [70]; (d), (e) PL enhancement and valley polarization effects (20% polarization degree at 10 K) in WS₂/WS₂ heterostructures under tensile strain, reproduced with permission from Ref. [71]; (f) schematic of strain-induced valley potential inequality, reproduced with permission from Ref. [71]; (g) evolution of excitonic states and band rearrangement in WS₂/MoSe₂ heterostructures under hydrostatic pressure, reproduced with permission from Ref. [65]; (h), (i) schematic of pressure-induced band rearrangement (low-pressure *vs.* high-pressure band alignment), reproduced with permission from Ref. [65].

WS₂, 2L WSe₂/1L WS₂ 和 1L WSe₂/2L WS₂) 中均存在两种层间激子态, 分别对应于动量直接跃迁 (IE₁) 和动量间接跃迁 (IE₂). 这两种激子态在应变作用下表现出能量漂移方向相反的行为, 并伴随 PL 强度的显著增强. 此外, 应变通过打破三重旋转对称性引发了谷间不等势, 增强了谷极化效应. 如图 6(f) 所示, 在 10 K 下谷极化度可达 20%, 展现了应变在谷电子学调控中的潜力.

在高应力场中, 激子态的跃迁与重构现象亦被明确观测. Xia 等 [65] 在 WSe₂/MoSe₂ 异质结构中通过金刚石对顶砧 (DAC) 施加 0—3 GPa 静水压力, 系统研究了压力作用下层间激子态的演化过程 (图 6(g)). 低压下 (<1.2 GPa), 体系表现出典型的双激子态发射行为 (I_A/I_B); 随着压力升高, 两种激子态的发射能量呈现与前文一致的反交叉特征, 同时强度逐步减弱; 由于体系在压力作用下发生了能带重排 (图 6(h), (i)), I_A 和 I_B 在临界压力 (~1.2 GPa) 附近迅速衰减, 过渡为两种全新的间接跃迁型层间激子态 (I_C/I_D), 表明外场调控引发了激子跃迁通道的根本性转变. 这一工作直观揭示了激子态在外场诱导的能带重构过程中的跃迁行为, 确立了静水压力作为调控强耦合异质结构中激子构型与发光特性的高精度手段, 为实现可编程激子功能器件提供了物理依据与工程路径.

值得指出的是, 除全局应力调控外, 局部纳米尺度应力对层间激子的调控能力也越来越受关注. 一方面, 通过电子束刻蚀在衬底或封装层中引入预设图案, 可在二维异质结构中形成高度可控的局域应力场, 实现对激子发射能量与空间分布的精细调控 [72]. 另一方面, 铁电纳米结构和局域极化调控手段的引入, 使得激子态的空间可编程控制成为可能, 不仅在发射强度和偏振方向上展现出高度调谐性, 也为实现可重构激子光子器件奠定了基础 [73,74]. 这些工作突破了传统应变调控对整体形变的依赖, 展示出应变工程在亚波长尺度下调控激子行为的新范式.

3.3 磁场调控

磁场调控在二维 TMD 异质结构中为层间激子的能级结构、谷极化行为与自旋耦合态提供了独特的自由度 [16,18,27,34,75-79]. 相比电场和应力主要调控能带结构与态密度, 磁场主要作用于激子的自旋与能谷自由度, 在激子型自旋电子器件的实现中扮

演了关键角色.

在 WSe₂/MoSe₂ 异质结构中, Wang 等 [27] 通过磁场依赖的 PL, 首次揭示了层间激子的自旋单重态 (IX_S) 与三重态 (IX_T) 的精细结构及其谷 Zeeman 劈裂行为. 如图 7(a) 所示, 在垂直磁场作用下, 两种激子态均表现出显著的能谷劈裂, 在 17 T 的磁场中劈裂能隙分别达到 11.2 meV 和 16.0 meV, 对应的 g 因子分别高达 ~10.7 和 ~15.2 (图 7(b)), 远高于单层 TMDs 中亮激子的 g 因子 (约 4). 这种增强效应源于层间激子的空间分离, 导致轨道磁矩增大, 同时 60° 扭转角异质结中还产生了激子构型的自旋再分布. 理论分析表明, IX_T 和 IX_S 分别对应于平行与反平行自旋构型, 它们的 g 因子与理论预期高度一致. 此外, 这两种激子态在圆偏振激发下呈现相反的手性发射特性, 为构建可控手性激子源与自旋-能谷逻辑器件提供了实验基础.

在 MoSe₂/WSe₂ 异质结构中, Smirnov 等 [80] 进一步观测到了层间激子的谷-磁声子共振效应. 图 7(c), (d) 显示, 尽管 H 型 (60° 扭转) 和 R 型 (0° 扭转) 堆叠的异质结具有显著不同的 g 因子 (-14.8 *vs.* +4.7), 但两者均在 24.2 T 的外磁场中出现圆偏振发射的极化度 (degree of polarization, DOP) 共振增强, 其中 H 型对应 DOP > 90%, R 型 ~37%. 这一现象源于激子中空穴的谷间自旋翻转过程与 MoSe₂ 中手性 TA 声子的能量共振, 导致激子优先占据低能谷态, 进而显著增强了谷极化响应. 该共振效应可通过长程电子-空穴交换作用调控激子的谷霍尔输运路径, 在莫尔势场中实现类反常霍尔效应的定向偏折, 为探索拓扑激子输运行为提供了潜在途径, 也为设计基于激子谷自由度的低功耗逻辑器件提供了新思路. 未来结合磁性界面工程 (如 CrI₃ 衬底) [81], 有望实现无外磁场的谷极化操控, 推动二维异质结在自旋谷电子学的应用.

界面磁性调控也是近年来磁场激子调控的重要方向之一. Zhang 等 [82] 构建了 WSe₂/YIG (钇铁石榴石) 异质结构, 利用 YIG 衬底的磁交换效应实现了显著增强的层间激子谷极化. 图 7(e) 显示, 在 -7 T 的外加磁场作用下, 异质结构中中性激子 (X₀) 和带电激子 (T) 的谷极化度分别提升至 63% 和 42%, 远高于使用非磁性衬底的对照样品 (11%). 这种增强源于界面磁交换场通过自旋-谷锁定机制抑制了谷间散射, 同时磁场方向调控进一步放大了谷劈裂效应. 此外, 即便在磁场为 0 T 的情况下,

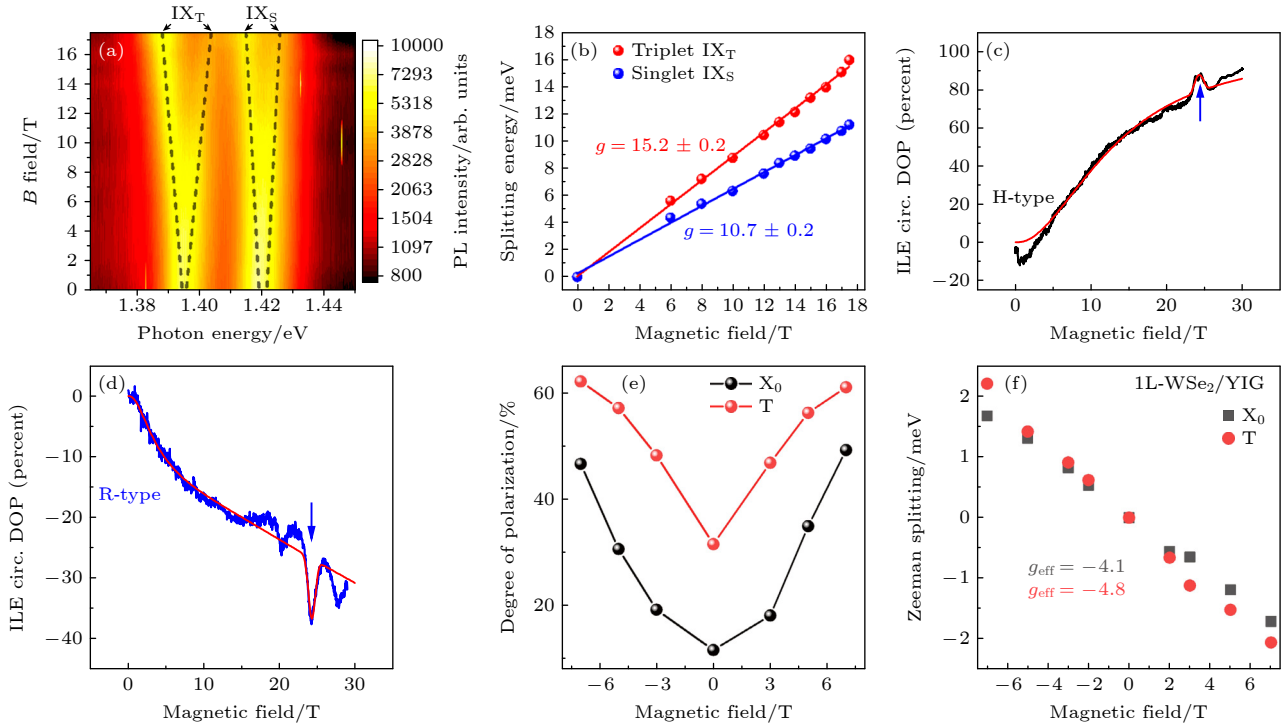


图7 磁场调控层间激子 (a) WSe₂/MoSe₂异质结构中自旋单重态 (IX_S) 与三重态 (IX_T) 的 PL 谱随磁场的变化, 出自文献 [27], 已获得授权; (b) IX_S 和 IX_T 的谷 Zeeman 劈裂能隙及 g 因子 (高达 ~ 15.2) 的磁场依赖关系, 出自文献 [27], 已获得授权; (c), (d) H 型和 R 型堆叠异质结在 24.2 T 磁场下的谷极化度共振增强现象, 出自文献 [80], 已获得授权; (e) WSe₂/YIG 异质结构中中性激子 (X₀) 和带电激子 (T) 的谷极化度随磁场的变化, 出自文献 [82], 已获得授权; (f) 谷塞曼劈裂随外磁场的线性变化特征, 出自文献 [82], 已获得授权

Fig. 7. Magnetic-field-controlled interlayer excitons: (a) Magnetic-field-dependent PL spectra of spin-singlet (IX_S) and triplet (IX_T) states in WSe₂/MoSe₂ heterostructures, reproduced with permission from Ref. [27]; (b) valley Zeeman splitting energy gaps and magnetic-field dependence of g -factors (up to ~ 15.2) for IX_S and IX_T states, reproduced with permission from Ref. [27]; (c), (d) resonance-enhanced valley degree of polarization (DOP) in H-type and R-type stacked heterostructures under 24.2 T magnetic field, Reproduced with permission from Ref. [80]; (e) magnetic-field evolution of valley polarization for neutral excitons (X₀) and charged excitons (T) in WSe₂/YIG heterostructures, reproduced with permission from Ref. [82]; (f) linear dependence of valley Zeeman splitting on external magnetic field, reproduced with permission from Ref. [82].

该异质结构依然能够维持较高的极化水平, 表明界面磁性作用对激子能谷自由度具有非易失性的调控能力. 图 7(f) 的线性拟合进一步证实 WSe₂/YIG 异质结构中带电激子 (T) 和中性激子 (X₀) 的谷塞曼劈裂随外加磁场呈线性变化特征, 支持其作为谷电子器件中的核心调控手段.

Lou 等 [83] 近期在结构中也观察到激子能级对垂直磁场的非线性响应与 g 因子的演化, 进一步揭示了磁场-激子-莫尔势场三者间的深度耦合机制. 这一结果表明, 在同质结构中, 磁场可作为普适有效的激子自由度调控手段, 为未来低功耗自旋-谷电子器件的构建提供了坚实的物理基础.

3.4 扭转角调控

在二维范德瓦耳斯异质结构中, 扭转角作为一种独特且可控的自由度, 不仅决定了布里渊区的对

准关系, 还通过形成莫尔超晶格引发激子行为的深刻重构. 当两层 TMD 材料以微小角度错位堆叠时, 晶格常数的不匹配与相对旋转会产生周期性调制势场, 从而影响激子的局域性、结合能以及发光能量 [84,85]. Yuan 等 [5] 在 60° 堆叠的 WS₂/WSe₂ 异质结构中, 通过 ADF-STEM 成像首次明确观测到约 7.6 nm 的 moiré 周期, 该周期源自约 4% 的晶格失配 (图 8(a)). 随后 Jin 等 [54] 在接近 0° 的 WSe₂/WS₂ 异质结中观察到了约 8 nm 周期的 moiré 调控发光现象. 此外, Tran 等 [84] 还在 WSe₂/MoS₂ 体系中报道了类似的 moiré 激子态, 这些研究奠定了以扭转角为驱动参量构建激子调控平台的物理基础.

除了增强激子的实空间局域性外, moiré 势场还可调控其波函数对称性与态密度分布. Choi 等 [86] 在双层 WSe₂ 中系统研究了扭转角对激子光学行为的影响, 发现激子在不同角度下呈现出显著差异

的空间分布形态与对称性特征, 进而影响其光学选择规则与辐射效率. 这一研究为后续开展激子跃迁路径调控与极化行为调控提供了关键的物理前提.

基于以上结构调控, Chen 等^[87]在 WSe_2/WS_2 异质结构中, 通过调控堆叠角度首次实现了层间激子在动量空间 K - K 直接跃迁与 Q - K 间接跃迁之间的可控切换. 如图 8(b) 所示, 他们在低温 PL 测量中发现, 激子发射强度在接近 0° 与 60° 堆叠角时显著增强, 而在约 30° 时几乎完全消失, 表明激子

形成效率高度依赖扭转角所引起的层间耦合变化. 如图 8(c) 所示, 通过能量位置与极化成分分析, 他们将 PL 光谱中两个激子峰 (ILE1 与 ILE2) 分别归属于 K - K 直接跃迁与 Q - K 间接跃迁.

不过, 跃迁通道的识别并非总是直观可辨. Wu 等^[25]在 WS_2/WSe_2 异质结中结合 PL 动力学与理论计算发现, 即便激子发光能量接近 K - K 直接跃迁预期位置, 其实际复合路径可能为 Σ - K 间接跃迁. 他们指出, 受限于带结构、隧穿耦合与极化行

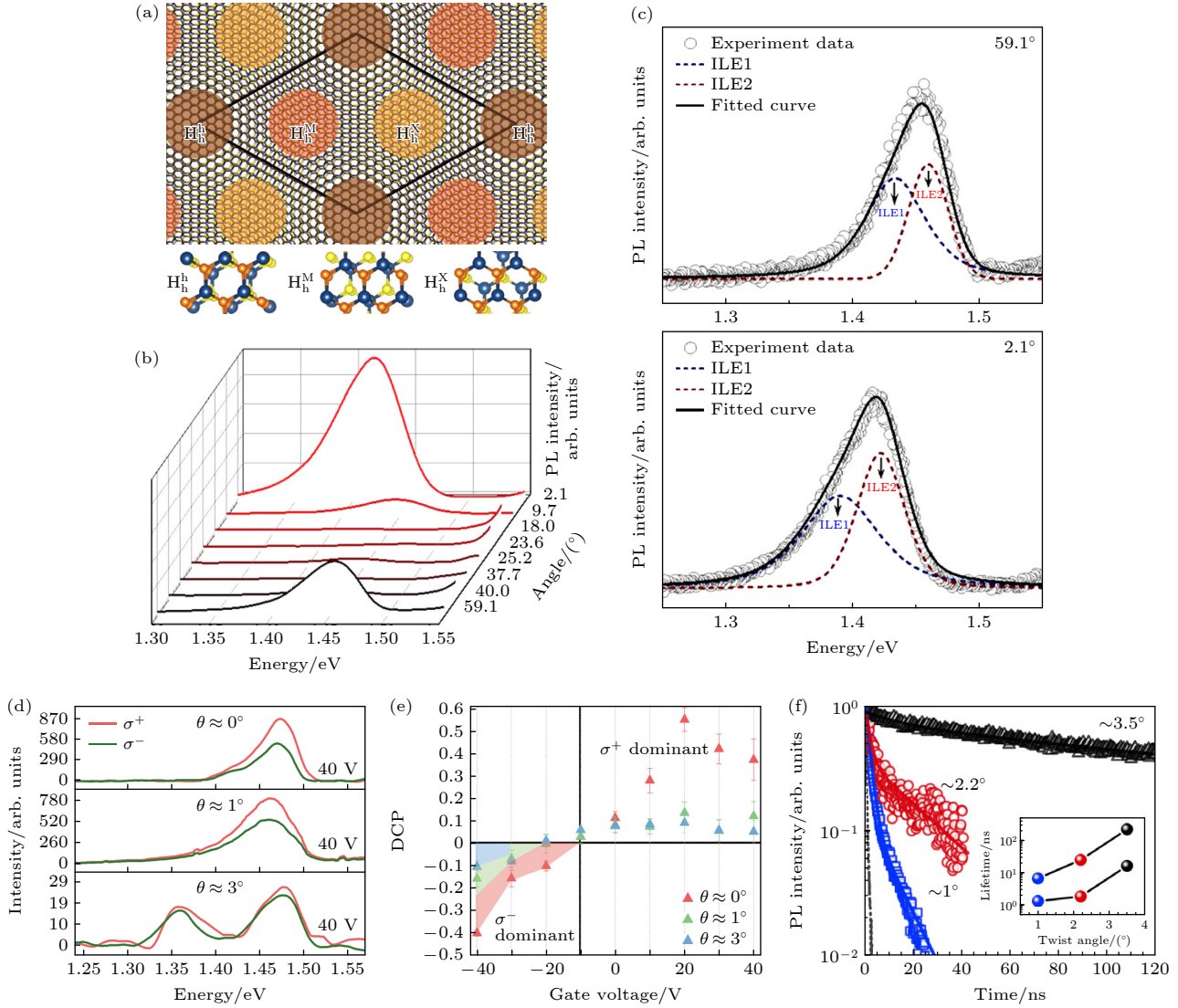


图 8 扭转角调控层间激子 (a) WS_2/WSe_2 异质结构中 ADF-STEM 成像显示的 ~ 7.6 nm 莫尔周期, 出自文献^[5], 已获得授权; (b), (c) WS_2/WS_2 异质结构中激子 PL 强度及跃迁路径 (K - K 直接跃迁与 Q - K 间接跃迁) 随扭转角的变化, 出自文献^[87], 已获得授权; (d), (e) 不同扭转角下层间激子圆偏振发射方向反转及极化度周期性波动行为, 出自文献^[88], 已获得授权; (f) $\text{MoSe}_2/\text{WSe}_2$ 异质结构中层间激子寿命随扭转角的变化趋势 (1° — 3.5°), 出自文献^[90], 已获得授权

Fig. 8. Twist-angle-engineered interlayer excitons: (a) ADF-STEM image of a WS_2/WSe_2 heterostructure showing moiré superlattices with ~ 7.6 nm periodicity, Reproduced with permission from Ref. [5]; (b), (c) twist-angle dependence of excitonic PL intensity and transition pathways (direct K - K transition vs. indirect Q - K transition) in WSe_2/WS_2 heterostructures, reproduced with permission from Ref. [87]; (d), (e) circularly polarized emission reversal and periodic oscillations of polarization degree under different twist angles, reproduced with permission from Ref. [88]; (f) interlayer exciton lifetime evolution with twist angle (1° to 3.5°) in $\text{MoSe}_2/\text{WSe}_2$ heterostructures, reproduced with permission from Ref. [90].

为的复杂交织,单靠能量位置判断跃迁路径可能存在误判,需结合发射偏振、激子寿命与 moiré 势场建模等手段综合判断.

在激子的谷极化行为方面, Dai 等^[88]通过构建电控的 WSe₂/WS₂ 异质结构,系统揭示了扭转角对层间激子谷极化行为的显著影响.如图 8(d), (e) 所示,他们在不同扭转角下对器件进行偏振分辨 PL 测试,发现层间激子的圆偏振发射方向 (σ^+/σ^-) 随角度变化发生反转,且极化度呈周期性波动.这一现象归因于扭转角引起的莫尔周期变化,导致激子波函数对称性与光学选择规则发生重构,进而影响谷态间的耦合与偏振转换.进一步的调控实验还表明,极化翻转的临界电场 E 与扭转角 θ 呈线性关系.这为构建具备谷地址编码功能的电控激子器件奠定了基础.值得注意的是, Fang 等^[89]也曾指出,在小扭转角的 MoSe₂/WSe₂ 异质结构中, moiré 势阱与缺陷势阱可同时作用于激子行为.不同深度与形貌的局域势场可能导致发射的极化特性存在差异,为解释激子发射的能量漂移与极化选择性提供了新的视角.

动力学层面, Choi 等^[90]开展了一系列 MoSe₂/WSe₂ 异质结构的时间分辨 PL 测量,揭示了扭转角对层间激子寿命的调控机制.如图 8(f) 所示,随着扭转角从 1° 增至 3.5°,层间激子的寿命可缩短 1 个数量级.这一变化主要源于两个核心因素:一是布里渊区不对准导致激子从动量直接态向间接态转变,降低了辐射的复合速率;二是扭转角增大时, moiré 势阱趋于收缩并加深,使激子波函数更加局域化,从而增强了非辐射过程.

在另一项基于 WS₂/MoSe₂ 异质结构的研究中, Zhang 等^[91]系统探讨了扭转角对 moiré 激子态的调控作用,与 Choi 等^[90]形成互补,共同描绘了从布里渊区调制到光谱行为变化的物理过程.他们发现,即便在较大的扭转角范围内, moiré 激子态依然保持稳定,并通过构建解析模型拟合激子能级与 moiré 倒格矢之间的非线性依赖关系,从而提取出激子的有效质量与层间隧穿强度.这一研究结果为后续探索激子的跃迁路径调控与极化行为调控提供了重要物理前提.

3.5 光场共振调控

在二维 TMD 异质结构中,层间激子因其垂直取向的电偶极矩而表现出较低的发光效率与较长

的辐射寿命,限制了其在光电器件中的实用性.为了提升层间激子的辐射概率并实现对其动力学行为的有效调控,研究者近年来引入了多种具有谐振特性的光学结构,包括电介质腔体、金属等离激元阵列与莫尔调制微腔等,构建出“光腔-激子”共振系统.这类结构不仅能增强局域电磁场强度以提升发射效率,还可与激子形成混合态(极化子),进而调控其寿命、能量与非线性响应特性.

早期研究多聚焦于微腔结构中 Purcell 效应对激子辐射的增强机制.在 MoSe₂/WSe₂ 异质结构中, Förg 等^[92]将其嵌入可调谐 Fabry-Pérot 腔体中,实现了激子与腔模频率的精确匹配(图 9(a)).当共振条件满足时,层间激子的辐射寿命明显缩短,发射强度提高近 1 个数量级,呈现典型的 Purcell 增强特征.这一增强来源于腔内局域光态密度的提升,使得激子辐射概率得以显著放大,从而在保持能级结构不变的情况下提高了发光效率.

在此基础上, Lopriore 等^[93]进一步引入电调谐机制,在 WSe₂/MoSe₂ 异质结构中构建了双栅控的单片腔体结构(图 9(b)),通过垂直施加电场调节层间激子的发射能量,并使其与腔模共振点动态对齐(图 9(c)).该体系在共振条件下实现了激子发射强度与寿命的同步增强,并通过理论模拟证实了电场调节可有效改变激子-腔体耦合条件,从而控制其辐射行为与能量分布.

除了介质腔体,金属结构支持的等离激元共振也被证明能够有效增强层间激子的发射行为. Zhu 等^[94]构建了一种由金纳米盘阵列与金属镜面组成的等离激元晶格-镜面结构(plasmonic lattice on mirror, PLoM),将 WS₂/InSe 异质结构嵌入其中,利用晶格共振模式与垂直偶极激子耦合,实现了超过 20 倍面积平均增强的发光提升(图 9(d)),并通过寿命缩短验证了典型的 Purcell 增强机制.该结构具备高匹配性与均匀增强能力,在集成化方面较传统腔体更具优势.在此基础上, Zhu 等^[95]设计了一种双旋向超表面,利用手性 Purcell 效应显著提升了 WSe₂/WS₂ 异质结构中层间激子的谷极化.在 77 K 下,左旋和右旋超表面分别使激子的圆二色性(circular dichroism, CD)达到-16%和+25%,通过优化激发波长,CD 值进一步提升至 38% (620 nm 激发),创下了无外场调控的最高纪录.该研究还实现了基于谷极化的光信息传输功能,为谷电子学在光通信中的应用提供了新方案.

当光-激子耦合强度达到强耦合条件时, 激子与腔模可形成新型的混合准粒子——激子极化子. Zhao 等 [96] 在多层堆叠的 WS₂ 超晶格结构中实现了多单层激子与腔模之间的强耦合, 真空 Rabi 劈裂可由 36 meV 调节至 72 meV (图 9(e)), 并在室温下展现出由相空间填充效应主导的非线性响应. 这一现象表明, 多层激子系统不仅具备增强耦合能力, 还可在高温条件下稳定形成极化子态, 展现出

明显的非线性调控潜力.

基于这一方向, Song 等 [97] 发展了具备自洽非线性计算的理论模型, 揭示了在 TMD 双层体系中, 激子的非线性行为不仅受到扭转角诱导的 moiré 调制影响, 还可通过外加电场实现从吸引型至排斥型非线性的可逆转换. 该模型指出, 在微腔环境中, 激子的 umklapp 散射对增强非线性起关键作用, 并可调控极化子间的有效相互作用强度,

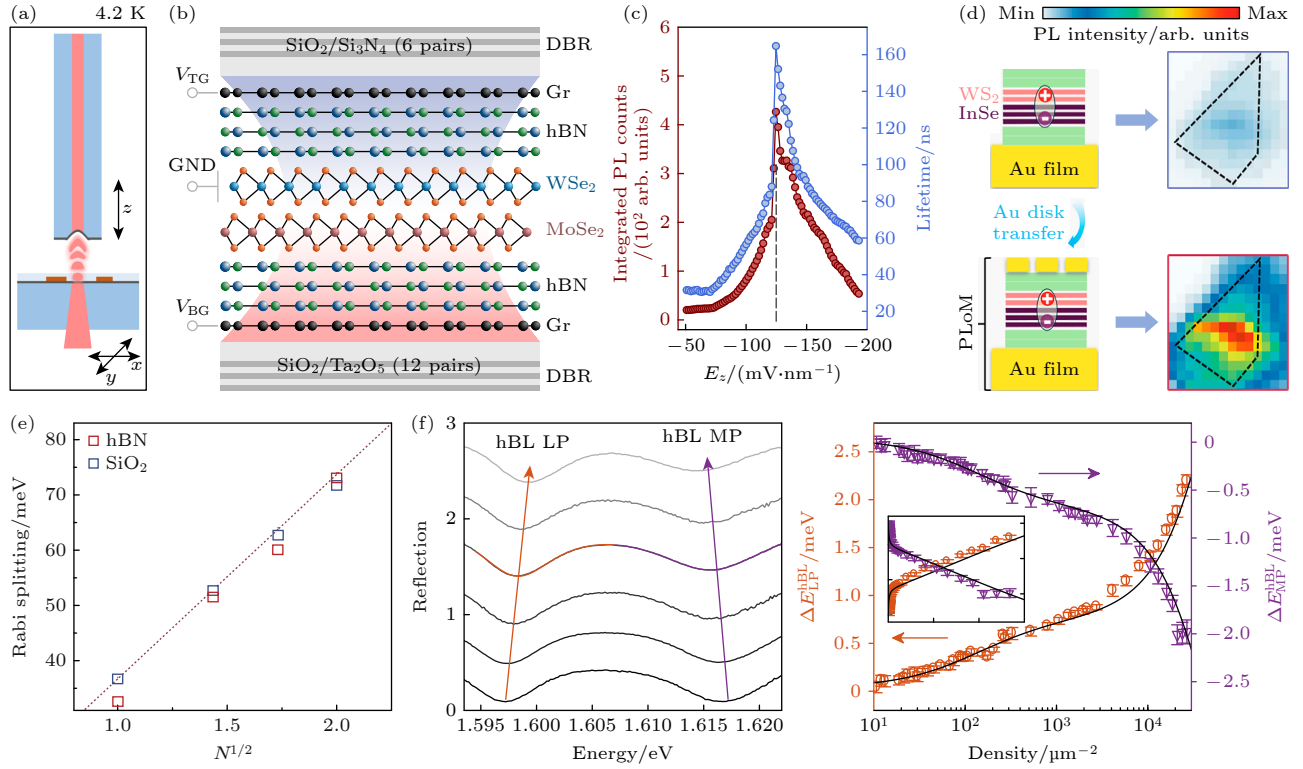


图 9 光场共振调控 (a) 4.2 K 下的腔装置, 基于光纤的微镜与顶部带有化学气相沉积 (CVD) 生长的 MoSe₂-WSe₂ 异质结构的平面宏观镜共同构成腔体, 出自文献 [92], 已获得授权; (b) 器件结构示意图, 包含一个被 hBN 包裹的 MoSe₂/WSe₂ 异质双层, 上下层均有石墨烯 (Gr) 层. 底部栅极电压 (V_{BG}) 和顶部栅极电压 (V_{TG}) 分别施加在石墨烯层上, 而 TMD 薄片接地 (GND), 该腔体由底部和顶部的 SiO₂ 层以及范德瓦耳斯异质堆叠组成, 出自文献 [93], 已获得授权; (c) 层间激子 (IX) 的总积分光致发光 (PL) 强度 (红色) 和寿命 (蓝色) 随电场 E_z 的变化关系, 出自文献 [93], 已获得授权; (d) 右列为无 PLoM 结构 (上) 和有 PLoM 结构 (下) 的异质结示意图, 左列为无 PLoM 结构 (上) 与有 PLoM 结构 (下) 层间激子光致发光的映射图像, 出自文献 [94], 已获得授权; (e) 不同绝缘层 (hBN, 红色; SiO₂, 蓝色) 情况下, 拉比分裂随层数平方根的变化关系. 可以发现耦合强度存在明显的 $N^{1/2}$ (层数的平方根) 增强效应, 出自文献 [96], 已获得授权; (f) 上图为不同泵浦密度下零失谐时莫尔下极化激元 (LPs) 和中极化激元 (MPs) 的反射光谱, 下图为莫尔异质双层极化激元能量位移与载流子密度的关系, 出自文献 [98], 已获得授权

Fig. 9. Optical field resonance control: (a) Cavity setup at 4.2 K, the fiber-based micro-mirror forms the cavity together with a planar macro-mirror with CVD-grown MoSe₂-WSe₂ heterostructure on top, reproduced with permission from Ref. [92]; (b) schematic of the device structure, comprising a MoSe₂/WSe₂ heterobilayer encapsulated with hBN, with bottom and top graphene (Gr) layers, bottom (V_{BG}) and top (V_{TG}) gate voltages are applied to the graphene layers, respectively, while the TMD flakes are grounded (GND), the cavity consists of the bottom and top SiO₂ layers and the van der Waals heterostack, reproduced with permission from Ref. [93]; (c) total integrated IX PL intensity (red) and lifetime (blue) as a function of E_z , reproduced with permission from Ref. [93]; (d) the right column shows the schematic diagrams of the heterojunction without PLoM structure (top) and with PLoM structure (bottom), while the left column presents the photoluminescence mapping images of interlayer excitons without PLoM structure (top) and with PLoM structure (bottom), reproduced with permission from Ref. [94]; (e) Rabi splitting as a function of the square root of the number of layers for different insulators, hBN (red) and SiO₂ (blue), a clear $N^{1/2}$ enhancement of the coupling strength is found, reproduced with permission from Ref. [96]; (f) the upper figure shows the reflection spectra of moiré lower polaritons (LPs) and middle polaritons (MPs) at zero detuning under different pumping densities, the lower figure shows the relationship between the energy shift of moiré heterobilayer polaritons and carrier density, reproduced with permission from Ref. [98].

为构建具有可编程非线性响应的激子系统提供了理论支撑。

Zhang 等^[98]则在 $\text{WSe}_2/\text{MoSe}_2$ 异质结构中构建了 moiré 调制微腔系统, 实现了激子-光子-晶格三重耦合。在该体系中, 两个具有强振子强度的 moiré 激子与腔模分别形成极化子态 (图 9(f)), 并在激发功率变化下展现出蓝移特征, 表明极化子态间存在明显的互斥行为。这一系统为操控激子极化子之间的相互作用提供了新的手段, 并具备构建室温激子激光器的潜力。

3.6 其他调控

除了电场、磁场、应力与扭转角外, 近年来研究者们还提出了多种“非常规”调控策略, 为多功能激子器件开发提供了新路径。

温度调控是最常见且基本的参数之一, 在激子物理中扮演着关键角色。Liu 等^[99]在 $\text{WSe}_2/\text{MoSe}_2$ 异质双层中系统研究了温度对层间激子态的影响, 发现其发光特性表现出显著的温度依赖性。通过图 10(a), (b) 的温度依赖 PL 光谱分析发现: 在低温 (~ 5 K) 条件下, 体系的光致发光主要来源于能量位于 1.389 eV 的自旋三重态层间激子 ($\text{IX}_{\text{triplet}}^0$); 随着温度升高, 位于高能端 ($\Delta E \approx 25$ meV) 的自旋单态激子 ($\text{IX}_{\text{singlet}}^0$) 的发光强度呈现显著增强的

趋势。这一现象可以从激子能级的热分布和自旋特性两个方面进行解释, 一方面, 温度升高提供的热能促使激子从低能的三重态向高能的单态跃迁; 另一方面, 不同自旋态的激子具有差异化的辐射复合效率。Alexeev 等^[32]则在 $\text{MoS}_2/\text{MoSe}_2$ 异质结构中研究了 moiré 层间激子的寿命变化, 发现随着温度从 5 K 升高至 80 K, 激子寿命由近百纳秒大幅缩短至约十纳秒, 呈现出非指数的快速衰减特征。这一行为被归因于高温下激子从 moiré 局域态向延展态的跃迁概率提升, 导致辐射通道和非辐射过程同时增强。这些研究为温度调控层间激子发光路径等提供了清晰的实验依据。

激子浓度本身也构成一种内在调控自由度。Joe 等^[60]在 $\text{MoSe}_2/\text{WSe}_2$ 异质结构中观察到, 当激子密度超过 $2 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ 时, PL 光谱出现明显展宽, 并伴随蓝移, 表明激子之间的库伦屏蔽效应正削弱其束缚态稳定性, 推动激子向自由载流子过渡。这种激子离化现象表现出温度增强特征, 提示其与 Mott 转变密切相关。

多激子交互作用也能引发有效的自发调控机制。Li 等^[100]报道, 在 $\text{WSe}_2/\text{MoSe}_2$ 异质结构中, 即使在低激发功率下, 多激子之间的相互作用也可形成 valley Zeeman 分裂的等效行为, 诱导约 6 T 的内建“有效磁场”, 调控激子发射的能级与偏振

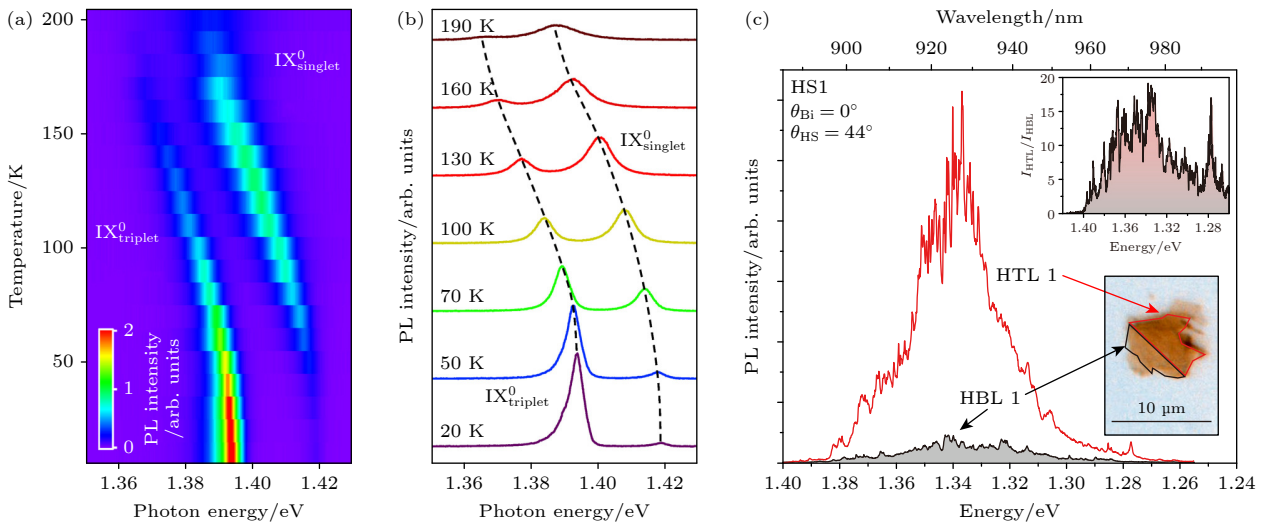


图 10 其他调控手段 (a), (b) $\text{WSe}_2/\text{MoSe}_2$ 异质结构中自旋单态 ($\text{IX}_{\text{singlet}}^0$) 与三重态 ($\text{IX}_{\text{triplet}}^0$) 的 PL 强度随温度的变化, 出自文献^[99], 已获得授权; (c) 三层 $\text{WSe}_2/\text{WSe}_2/\text{MoSe}_2$ 异质结构中双 WSe_2 夹层构型对激子发光强度的增强效应 (近 20 倍), 出自文献^[102], 已获得授权

Fig. 10. Additional modulation approaches: (a), (b) Temperature-dependent PL intensity evolution of spin-singlet ($\text{IX}_{\text{singlet}}^0$) and triplet ($\text{IX}_{\text{triplet}}^0$) states in $\text{WSe}_2/\text{MoSe}_2$ heterostructures, reproduced with permission from Ref. [99]; (c) dual- WSe_2 sandwich configuration in $\text{WSe}_2/\text{WSe}_2/\text{MoSe}_2$ trilayer heterostructures showing near 20 \times exciton emission enhancement, reproduced with permission from Ref. [102].

分布. 该效应独立于外加磁场, 是 valley 非对称激发下激子交换作用的直接体现, 为非外场调控提供了新路径.

摩擦调控作为一种新兴的无接触调控手段, 也展现出调节层间激子行为的潜力. Sun 等^[101]在 WSe₂/MoSe₂ 异质结构中利用原子力显微镜施加周期性摩擦应力, 实现在不依赖外场或静态应力的情况下, 对激子复合过程进行可逆调控. 实验表明, 摩擦作用会引发界面局域势能的微扰, 进而调节激子束缚态的能级分布与波函数重叠程度, 导致层间激子发射强度显著衰减. 该效应在去除摩擦后可完全恢复, 表现出良好的可逆性与空间选择性. 该策略不依赖材料的具体电子结构, 也无需复杂器件结构, 适用于多种异质体系的灵活调控, 为柔性激子器件与面内激子信息写入等新兴方向提供了技术支撑.

材料结构构型的设计也被证实对层间激子的发射行为具有直接调控作用. Lou 等^[83]通过构建多种堆叠顺序的 WSe₂/MoSe₂ 异质双层, 系统研究了堆叠形态对层间激子发射强度、能量位置及偏振特性的影响, 发现界面对称性破缺与电荷分布变化是导致激子行为差异的关键因素. 与之类似, Palekar 等^[102]在三层 WSe₂/WSe₂/MoSe₂ 异质结构中引入双 WSe₂ 夹层构型, 如图 10(c) 所示, 通过引导上下 WSe₂ 层形成 R 型堆垛 (0° 扭转角), 实现了动量匹配通道的构建和激子发光强度的显著增强 (近 20 倍), 进一步拓展了堆叠工程在激子调控中的空间.

此外, 衬底环境、杂质掺杂与界面极化效应等材料环境因素也会对层间激子的形成与发射特性产生不可忽略的影响. 例如, 不同介电常数的衬底可调节激子的束缚能和辐射寿命, 而缺陷势场可能

引入新的发射通道, 或干扰已有激子态的稳定性^[103]. 进一步的实验发现, 衬底所引入的局域静电势可有效调控激子的库仑相互作用与复合路径, 进而在层间激子向带电激子或双激子的转化过程中发挥重要作用^[104].

总体而言, 这些手段尽管这些调控机制不如外场手段直观易控, 但其在特定体系中的突出效应与结构可编程性为激子调控提供了新的自由度. 未来, 结合多物理机制设计异质结构器件, 将有望实现对层间激子的高维调控与多功能应用.

3.7 小结与策略对比

在当前研究中, 电场、应变、磁场、扭转角与光场等外部手段已被广泛用于调控层间激子的能带结构、结合能、发光行为与态间跃迁等关键物理性质 (表 1). 不同调控方式在作用机制、响应维度、调控效率与可编程性方面展现出各自优势与局限. 电场调控可实现线性、快速与可逆的激子能级调节, 尤其适用于偶极矩方向显著的层间激子; 应变手段则兼具高空间分辨率与能带重构能力, 适合用于构建势阱与引导态重排, 但其动态响应性相对受限. 磁场调控主要用于调节谷极化、态简并与自旋-轨道耦合行为, 适用于研究激子自旋与拓扑特性; 扭转角则通过构建 moire 超晶格引入周期性调制势, 可产生新型激子态与极化子模式, 具备构型可编程优势但实验控制难度较高; 光场调控可通过局域光态密度变化或光-物质强耦合过程增强激子辐射, 但对体系结构匹配要求较高. 其他如温度、摩擦或探针调控等方式虽灵活但稳定性与重复性仍待提升. 综合对比可为后续实现多场协同调控与可编程激子器件提供设计基础 (表 1).

表 1 层间激子的主要调控手段对比
Table 1. Comparison of main regulation methods for interlayer excitons.

调控手段	主要调控对象	调控维度	调控效率/范围	动态响应性	空间分辨率	实验难度	典型应用
电场	能级漂移 ^[31,56,60,62,64,105] 偶极矩调制 ^[55,57]	能量强度	可达数十 ^[56,58,60,64] —百 ^[62] meV	高	中	中	能带调控 ^[55,62,64] 发光增强 ^[106]
应变	能带结构 ^[64,66-69,72,73] 结合能 ^[63] 谷分裂 ^[74]	能量极化度	可达百 meV ^[65,69] , 结合能下降 ^[65]	中-低	高	中	态重构 ^[68,69,72-74] 波导设计 ^[67]
磁场	自旋/谷态分裂态 简并破缺 ^[27,80-83]	能级极化度	~meV 级 ^[18,27,34,75,77,80]	高	低	高	谷电子学 ^[16,18,27,75,76,80] 拓扑探索 ^[34,77]
扭转角	态耦合 ^[25,85,87] moire 调制 ^[5,54,84,86,88,89]	能带极化态	可诱导新态生成 ^[25,54,84-86,89,90]	固定	中	高	极化子 ^[25,87,88] 束缚态 调控 ^[5,54,84-86,89]
光场	辐射效率 ^[92-94,96] 发射模式 ^[95,97,98]	发光强度 寿命	可增强数十倍 ^[93,94,96]	高	高	中-高	强耦合 ^[92,96-98] PL增强 ^[93-95]
其他	双激子转化局域 势场扰动等	能量、态密度	不等(视手段)	高-低	高	中	探针调控 ^[101] 热场诱导 ^[83,104]

4 总结与展望

近年来,层间激子作为范德瓦耳斯异质结构中独特的准粒子态,因其空间间接性、强束缚特性与丰富的可调响应行为,逐渐成为二维光电物理研究的前沿热点.本文围绕层间激子的形成、判定与调控三大核心议题,系统梳理了其物理机制与实验进展,旨在为相关研究提供清晰的脉络归纳与方法指引.

在形成与判定方面,层间激子的产生依赖于异质结构中 Π 型能带对齐条件与载流子动力学过程,涉及能带排列、界面偶极与动量选择规则等多个维度.激子的能量位置、结合能与内能级结构可通过多种光谱技术进行解析,而其空间分布与复合路径的间接性也为激子态的识别提供了丰富信息支持.在调控行为上,电场、应力、扭转角等外部参量可有效调节激子的能级结构、偶极响应与辐射行为,进而实现激子密度、稳定性与局域化特征的精细控制.此外,周期势诱导、堆叠序调控与动态调节手段的引入不断拓展了激子态调控的参数空间,为构建多功能激子器件奠定了物理基础.

尽管近年来层间激子的基础研究和器件探索取得了重要进展,其发展仍面临一系列亟待解决的挑战.首先,激子态的判定缺乏统一的光谱学标准.目前主要依赖 PL, PLE, TA 和 EA 等间接手段,难以准确区分不同空间构型与动量通道所贡献的发射信号,尤其在 Σ - K 或 Q - K 等动量间接态与缺陷辅助态之间,常出现谱线重叠与物理解释的歧义.此外,不同研究中对激子结合能、极化响应和寿命参数的提取存在显著实验条件差异,导致结果之间缺乏可比性,制约了研究的一致性与规范化发展.其次,激子调控机制尚不充分明确.包括电场、应力、Moiré调制等外部手段所产生的调控效应,往往耦合多个因素,例如能带偏移、偶极反转与局域势场分布等,但当前尚缺乏系统性的理论解析框架加以支撑;同时,部分关键物理量难以直接观测,也限制了实验表征与理论建模之间的深度衔接.

未来研究可从以下几个方向进一步拓展与深化.一方面,应构建多手段协同验证的激子判定体系,融合高分辨吸收光谱、泵浦-探测动力学、EA 调制与偏振响应等技术,形成涵盖能量、时间、动量与谷自由度的多维识别规则.理论方面,需发展适用于异质结构环境的激子态建模策略,结合多

尺度第一性原理计算^[107,108]与低能哈密顿模型理论策略^[109],精确引入界面偶极、电荷转移与声子耦合等影响因素,以揭示二维异质界面中激子行为的复杂响应过程.另一方面,应推进调控手段与材料设计的协同优化.通过构建高质量异质结构与可编程 Moiré超晶格,有望实现激子态的稳定局域、可调耦合与多功能转换;通过集成栅极或动态堆叠构型等方式开发可重构激子器件^[110],将成为提升器件功能可拓展性的关键路径.

在结构体系层面,双层范德瓦耳斯异质结正逐步演化为三层^[110]、多层及莫尔超晶格^[111-113],并不断引入光学微腔^[114]、磁性衬底或三维界面环境,以实现更丰富的激子态调控机制与光子耦合行为,从而催生新的激子极化子、凝聚态激子甚至拓扑激子模式的研究.二维材料与传统三维半导体及光子器件的集成,也为激子态物理向实用化转化提供了重要平台.

在应用探索方面,层间激子独特的物理属性亦展现出良好的器件潜力.其长寿命和电偶极结构为开发高密度激子存储器、低功耗晶体管与逻辑器件提供了新路径^[31,115];能量可调性和光致发光特性则使其适用于宽谱发光器件、激子激光器和调制器等新型光电功能元件^[116,117].同时,借助莫尔调控与强光-物质耦合机制,有望构建具有多态调控与非线性响应能力的可编程光子-激子系统^[97].尽管目前相关器件仍处于实验验证阶段,但随着材料质量提升、界面控制技术进步及多物理场集成平台的建立,层间激子正逐步从基础物理平台向功能器件单元过渡,预示着其在集成光电子、量子模拟与片上信息处理等领域的广阔前景.

随着材料生长、异质结构构建与调控技术的不断成熟,层间激子有望在片上集成光电子系统、可编程量子器件以及谷自由度信息处理等前沿领域发挥日益重要的作用.其研究重点将逐步从激子本征行为的探索,转向功能调控与器件实现的深入发展.持续推动激子态的机制理解、判定体系的规范构建与多维调控手段的协同优化,将为下一代低维激子器件奠定坚实基础,并为未来在光子学、量子信息与低功耗集成电子技术中的广泛应用提供强有力的支撑.

参考文献

- [1] Geim A K, Grigorieva I V 2013 *Nature* **499** 419
- [2] Novoselov K S, Mishchenko A, Carvalho A, Castro Neto A

- H 2016 *Science* **353** aac9439
- [3] Sun Y, Zhou Z H, Huang Z, Wu J B, Zhou L J, Cheng Y, Liu J Q, Zhu C, Yu M T, Yu P, Zhu W, Liu Y, Zhou J, Liu B W, Xie H G, Cao Y, Li H, Wang X R, Liu K H, Wang X Y, Wang J P, Wang L, Huang W 2019 *Adv. Mater.* **31** e1806562
- [4] Liu C, Pan J, Yuan Q H, Zhu C, Liu J Q, Ge F X, Zhu J J, Xie H T, Zhou D W, Zhang Z C, Zhao P Y, Tian B B, Huang W, Wang L 2024 *Adv. Mater.* **36** e2305580
- [5] Yuan L, Zheng B Y, Kunstmann J, Brumme T, Kuc A B, Ma C, Deng S B, Blach D, Pan A L, Huang L B 2020 *Nat. Mater.* **19** 617
- [6] Wu R X, Zhang H M, Ma H F, Zhao B, Li W, Chen Y, Liu J T, Liang J Y, Qin Q Y, Qi W X, Chen L, Li J, Li B, Duan X D 2024 *Chem. Rev.* **124** 10112
- [7] Sun Y, Yin Y, Pols M, Zhong J X, Huang Z, Liu B W, Liu J Q, Wang W, Xie H G, Zhan G X, Zhou Z X, Zhang W, Wang P C, Zha C Y, Jiang X H, Ruan Y J, Zhu C, Brocks G, Wang X Y, Wang L, Wang J P, Tao S X, Huang W 2020 *Adv. Mater.* **32** e2002392
- [8] Castellanos-Gomez A, Buscema M, Molenaar R, Singh V, Janssen L, van der Zant H S J, Steele G A 2014 *2D Mater.* **1** 011002
- [9] Dean C R, Young A F, Meric I, Lee C, Wang L, Sorgenfrei S, Watanabe K, Taniguchi T, Kim P, Shepard K L, Hone J 2010 *Nat. Nanotechnol.* **5** 722
- [10] Chen H L, Wen X W, Zhang J, Wu T M, Gong Y J, Zhang X, Yuan J T, Yi C Y, Lou J, Ajayan P M, Zhuang W, Zhang G Y, Zheng J R 2016 *Nat. Commun.* **7** 12512
- [11] Heo H, Sung J H, Cha S, Jang B G, Kim J Y, Jin G, Lee D, Ahn J H, Lee M J, Shim J H, Choi H, Jo M H 2015 *Nat. Commun.* **6** 7372
- [12] Merkl P, Mooshammer F, Steinleitner P, Girnghuber A, Lin K Q, Nagler P, Holler J, Schuller C, Lupton J M, Korn T, Ovesen S, Brem S, Malic E, Huber R 2019 *Nat. Mater.* **18** 691
- [13] Ponomarev E, Ubrig N, Gutierrez-Lezama I, Berger H, Morpurgo A F, 2018 *Nano Lett.* **18** 5146
- [14] Wilson N R, Nguyen P V, Seyler K, Rivera P, Marsden A J, Laker Z P, Constantinescu G C, Kandyba V, Barinov A, Hine N D, Xu X, Cobden D H 2017 *Sci. Adv.* **3** e1601832
- [15] Baranowski M, Surrente A, Klopotoski L, Urban J M, Zhang N, Maude D K, Wiwatoski K, Mackowski S, Kung Y C, Duncenco D, Kis A, Plochocka P 2017 *Nano Lett.* **17** 6360
- [16] Jiang C Y, Xu W G, Rasmita A, Huang Z M, Li K, Xiong Q H, Gao W B 2018 *Nat. Commun.* **9** 753
- [17] Miller B, Steinhoff A, Pano B, Klein J, Jahnke F, Holleitner A, Wurstbauer U 2017 *Nano Lett.* **17** 5229
- [18] Nagler P, Ballottin M V, Mitioglu A A, Mooshammer F, Paradiso N, Strunk C, Huber R, Chernikov A, Christianen P C M, Schuller C, Korn T 2017 *Nat. Commun.* **8** 1551
- [19] Rivera P, Schaibley J R, Jones A M, Ross J S, Wu S, Aivazian G, Klement P, Seyler K, Clark G, Ghimire N J, Yan J, Mandrus D G, Yao W, Xu X 2015 *Nat. Commun.* **6** 6242
- [20] Hong X P, Kim J, Shi S F, Zhang Y, Jin C H, Sun Y H, Tongay S, Wu J Q, Zhang Y F, Wang F 2014 *Nat. Nanotechnol.* **9** 682X
- [21] Liu Y D, Elbanna A, Gao W B, Pan J S, Shen Z X, Teng J H 2022 *Adv. Mater.* **34** e2107138
- [22] Rivera P, Seyler K L, Yu H, Schaibley J R, Yan J, Mandrus D G, Yao W, Xu X 2016 *Science* **351** 688
- [23] Sigl L, Sigger F, Kronowetter F, Kiemle J, Klein J, Watanabe K, Taniguchi T, Finley J J, Wurstbauer U, Holleitner A W 2020 *Phys. Rev. Res.* **2** 042044
- [24] Sigl L, Troue M, Katzer M, Selig M, Sigger F, Kiemle J, Brotons-Gisbert M, Watanabe K, Taniguchi T, Gerardot B D, Knorr A, Wurstbauer U, Holleitner A W 2022 *Phys. Rev. B* **105** 035417
- [25] Wu K, Zhong H X, Guo Q B, Tang J B, Zhang J, Qian L H, Shi Z F, Zhang C D, Yuan S J, Zhang S P, Xu H X 2022 *Natl. Sci. Rev.* **9** nwab135
- [26] Chen D X, Lian Z, Huang X, Su Y, Rashetnia M, Ma L, Yan L, Blei M, Xiang L, Taniguchi T, Watanabe K, Tongay S, Smirnov D, Wang Z H, Zhang C W, Cui Y T, Shi S F 2022 *Nat. Phys.* **18** 1171
- [27] Wang T M, Miao S N, Li Z P, Meng Y Z, Lu Z G, Lian Z, Blei M, Taniguchi T, Watanabe K, Tongay S, Smirnov D, Shi S F 2020 *Nano Lett.* **20** 694
- [28] Li S W, Wei K, Liu Q R, Tang Y X, Jiang T 2024 *Front. Phys.* **19** 42501
- [29] Liu Y D, Fang H L, Rasmita A, Zhou Y, Li J T, Yu T, Xiong Q H, Zheludev N, Liu J, Gao W B 2019 *Sci. Adv.* **5** eaav4506
- [30] Kim T J, Lee S-h, Kwon D, Joo J 2024 *J. Mater. Chem. C* **12** 404
- [31] Unuchek D, Ciarrocchi A, Avsar A, Watanabe K, Taniguchi T, Kis A 2018 *Nature* **560** 340
- [32] Alexeev E M, Purser C M, Gilardoni C M, Kerfoot J, Chen H, Cadore A R, Rosa B L T, Feuer M S G, Javary E, Hays P, Watanabe K, Taniguchi T, Tongay S A, Kara D M, Atature M, Ferrari A C 2024 *Nano Lett.* **24** 11232
- [33] Sakamoto M, Kawawaki T, Kimura M, Yoshinaga T, Vequizo J J M, Matsunaga H, Ranasinghe C S K, Yamakata A, Matsuzaki H, Furube A, Teranishi T 2019 *Nat. Commun.* **10** 406
- [34] 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
- [35] Qian C, Troue M, Figueiredo J, Soubelet P, Villafane V, Beierlein J, Klemmt S, Stier A V, Hofling S, Holleitner A W, Finley J J 2024 *Sci. Adv.* **10** eadk6359
- [36] Lin Q, Fang H, Kalaboukhov A, Liu Y, Zhang Y, Fischer M, Li J, Hagel J, Brem S, Malic E, Stenger N, Sun Z, Wubs M, Xiao S 2024 *Nat. Commun.* **15** 8762
- [37] Barré E, Karni O, Liu E, O'Beirne A L, Chen X, Ribeiro H B, Yu L, Kim B, Watanabe K, Taniguchi T, Barmak K, Lui C H, Refaely-Abramson S, da Jornada F H, Heinz T F 2022 *Science* **376** 406
- [38] Zhang C, Wu K, Gan L, Liu X Y, Zhang C, Wu S L, Yuan X M, Zhang L L, Xi J Y, Yang J, Li X F 2024 *ACS Nano* **18** 33520
- [39] Rivera P, Yu H, Seyler K L, Wilson N P, Yao W, Xu X 2018 *Nat. Nanotechnol.* **13** 1004
- [40] Yu H Y, Cui X D, Xu X D, Yao W 2015 *Nat. Sci. Rev.* **2** 57
- [41] Liu F, Li Q Y, Zhu X Y 2020 *Phys. Rev. B* **101** 201405
- [42] Wang Y, Wang Z, Yao W, Liu G B, Yu H Y 2017 *Phys. Rev. B* **95** 115429
- [43] Zhu H M, Wang J, Gong Z Z, Kim Y D, Hone J, Zhu X Y 2017 *Nano Lett.* **17** 3591
- [44] Liu Z Y, Pan J B, Zhang Y Y, Du S X 2021 *Acta Phys. Sin.* **70** 027301 (in Chinese) [刘子媛, 潘金波, 张余洋, 杜世宣 2021 物理学报 **70** 027301]
- [45] Ju Q K, Cai Q, Jian C Y, Hong W T, Sun F P, Wang B C, Liu W 2024 *Adv. Mater.* **36** 2404371
- [46] Mouri S, Zhang W, Kozawa D, Miyauchi Y, Eda G,

- Matsuda K 2017 *Nanoscale* **9** 6674
- [47] Li L H, Zheng W H, Ma C, Zhao H P, Jiang F, Ouyang Y, Zheng B Y, Fu X W, Fan P, Zheng M, Li Y, Xiao Y, Cao W P, Jiang Y, Zhu X L, Zhuang X J, Pan A L 2020 *Nano Lett.* **20** 3361
- [48] Wang K, Huang B, Tian M K, Ceballos F, Lin M W, Mahjouri-Samani M, Boulesbaa A, Puzetzkyy A A, Rouleau C M, Yoon M, Zhao H, Xiao K, Duscher G, Geoegegan D B 2016 *ACS Nano* **10** 6612
- [49] Luong D H, Lee H S, Neupane G P, Roy S, Ghimire G, Lee J H, Vu Q A, Lee Y H 2017 *Adv. Mater.* **29** 1701512
- [50] Nagler P, Plechinger G, Ballottin M V, Mitioglu A, Meier S, Paradiso N, Strunk C, Chernikov A, Christianen P C M, Schüller C, Korn T 2017 *2D Mater.* **4** 025112
- [51] Policht V R, Mittenzwey H, Dogadov O, Katzer M, Villa A, Li Q, Kaiser B, Ross A M, Scotognella F, Zhu X, Knorr A, Selig M, Cerullo G, Dal Conte S 2023 *Nat. Commun.* **14** 7273
- [52] Hanbicki A T, Chuang H J, Rosenberger M R, Hellberg C S, Sivaram S V, McCreary K M, Mazin, II, Jonker B T 2018 *ACS Nano* **12** 4719
- [53] Wang G, Robert C, Glazov M M, Cadiz F, Courtade E, Amand T, Lagarde D, Taniguchi T, Watanabe K, Urbaszek B, Marie X 2017 *Phys. Rev. Lett.* **119** 047401
- [54] Jin C H, Regan E C, Yan A, Iqbal Bakti Utama M, Wang D, Zhao S, Qin Y, Yang S, Zheng Z, Shi S, Watanabe K, Taniguchi T, Tongay S, Zettl A, Wang F 2019 *Nature* **567** 76
- [55] Tagarelli F, Lopriore E, Erkensten D, Perea-Causin R, Brem S, Hagel J, Sun Z, Pasquale G, Watanabe K, Taniguchi T, Malic E, Kis A 2023 *Nat. Photonics* **17** 615
- [56] Jauregui L A, Joe A Y, Pistunova K, Wild D S, High A A, Zhou Y, Scuri G, De Greve K, Sushko A, Yu C H, Taniguchi T, Watanabe K, Needleman D J, Lukin M D, Park H, Kim P 2019 *Science* **366** 870
- [57] Erkensten D, Brem S, Perea-Causin R, Hagel J, Tagarelli F, Lopriore E, Kis A, Malic E 2023 *Nanoscale* **15** 11064
- [58] Ciarrocchi A, Unuchek D, Avsar A, Watanabe K, Taniguchi T, Kis A 2019 *Nat. Photonics* **13** 131
- [59] Shi B B, Tao G Y, Dai Y C, He X, Lin F, Zhang H, Fang Z Y 2022 *Acta Phys. Sin.* **71** 177301 (in Chinese) [石蓓蓓, 陶广益, 戴宇琛, 何霄, 林峰, 张酣, 方哲宇 2022 物理学报 **71** 177301]
- [60] Joe A Y, Mier Valdivia A M, Jauregui L A, Pistunova K, Ding D, Zhou Y, Scuri G, De Greve K, Sushko A, Kim B, Taniguchi T, Watanabe K, Hone J C, Lukin M D, Park H, Kim P 2024 *Nat. Commun.* **15** 6743
- [61] Sun Z, Ciarrocchi A, Tagarelli F, Marin J F G, Watanabe K, Taniguchi T, Kis A 2022 *Nat. Photonics* **16** 79
- [62] Shanks D N, Mahdikhanyarsarvejahany F, Stanfill T G, Koehler M R, Mandrus D G, Taniguchi T, Watanabe K, LeRoy B J, Schaibley J R 2022 *Nano Lett.* **22** 6599
- [63] Wu H J, Chen H T, Han J S, Xiao Y, Yuan X M, Kang D D, Zhu M J, Zhu Z H, Qin S Q, Dai J Y 2025 *Adv. Opt. Mater.* **13** 2403535
- [64] Tang Y H, Gu J, Liu S, Watanabe K, Taniguchi T, Hone J, Mak K F, Shan J 2021 *Nat. Nanotechnol.* **16** 52
- [65] Xia J, Yan J X, Wang Z H, He Y M, Gong Y J, Chen W Q, Sun T C, Liu Z, Ajayan P M, Shen Z X 2020 *Nat. Phys.* **17** 92
- [66] Tongay S, Fan W, Kang J, Park J, Koldemir U, Suh J, Narang D S, Liu K, Ji J, Li J, Sinclair R, Wu J 2014 *Nano Lett.* **14** 3185
- [67] Moon H, Grosso G, Chakraborty C, Peng C, Taniguchi T, Watanabe K, Englund D 2020 *Nano Lett.* **20** 6791
- [68] He Y M, Yang Y, Zhang Z H, Gong Y J, Zhou W, Hu Z L, Ye G L, Zhang X, Bianco E, Lei S D, Jin Z H, Zou X L, Yang Y C, Zhang Y, Xie E Q, Lou J, Yakobson B, Vajtai R, Li B, Ajayan P 2016 *Nano Lett.* **16** 3314
- [69] Cho C, Wong J, Taqieddin A, Biswas S, Aluru N R, Nam S, Atwater H A 2021 *Nano Lett.* **21** 3956
- [70] Li L L, Gillen R, Palumbo M, Milošević M V, Peeters F M 2023 *Appl. Phys. Lett.* **123** 033102
- [71] Zhang D L, Ge C H, Wang Y W, Xia Y, Zhao H P, Yao C D, Chen Y, Ma C, Tong Q J, Pan A L, Wang X 2024 *ACS Nano* **18** 17672
- [72] Hsieh Y C, Lin Z Y, Fung S J, Lu W S, Ho S C, Hong S P, Ho S Z, Huang C H, Watanabe K, Taniguchi T, Chan Y H, Chen Y C, Wu C L, Chen T M 2023 *Nano Lett.* **23** 7244
- [73] Yang D, Cao Q, Akyuz E, Hayden J, Nordlander J, Mercer I, Yu M, Ramachandran R, Irvin P, Maria J P, Hunt B M, Levy J 2024 *Nano Lett.* **24** 16231
- [74] Alexeev E M, Mullin N, Ares P, Nevison-Andrews H, Skrypkina O, Godde T, Kozikov A, Hague L, Wang Y, Novoselov K S, Fumagalli L, Hobbs J K, Tartakovskii A I 2020 *ACS Nano* **14** 11110
- [75] Aivazian G, Gong Z, Jones A M, Chu R-L, Yan J, Mandrus D G, Zhang C, Cobden D, Yao W, Xu X 2015 *Nat. Phys.* **11** 148
- [76] Gunawan O, Shkolnikov Y P, Vakili K, Gokmen T, De Poortere E P, Shayegan M 2006 *Phys. Rev. Lett.* **97** 186404
- [77] Faria Junior P E, Fabian J 2023 *Nanomaterials* **13** 1187
- [78] Rycerz A, Tworzydło J, Beenakker C W J 2007 *Nat. Phys.* **3** 172
- [79] Ma H, Zhu Y J, Liu Y L, Bai R X, Zhang X L, Ren Y B, Jiang C Y 2023 *Chin. Phys. B* **32** 107201
- [80] Smirnov D S, Holler J, Kempf M, Zipfel J, Nagler P, Ballottin M V, Mitioglu A A, Chernikov A, Christianen P C M, Schüller C, Korn T 2022 *2D Mater.* **9** 045016
- [81] Zhang W L, Zhu H R, Zhang W Q, Wang J, Zhang T T, Yang S R, Shao B, Zuo X 2024 *Appl. Surf. Sci.* **647** 158986
- [82] Zheng H H, Wu B, Wang C T, Li S F, He J, Liu Z W, Wang J T, Yu G Q, Duan J A, Liu Y P 2023 *Nano Res.* **16** 10580
- [83] Lou J Y, Lv Z, Wang H C, Tang Y T, Luo S, Liu Y, Zhang X Y, Lv G X, Zhang Y N, Zhou H, Zhang L, Chen Z H 2024 *Phys. Rev. B* **110** 045412
- [84] Tran K, Moody G, Wu F, Lu X, Choi J, Kim K, Rai A, Sanchez D A, Quan J, Singh A, Embley J, Zepeda A, Campbell M, Antry T, Taniguchi T, Watanabe K, Lu N, Banerjee S K, Silverman K L, Kim S, Tutuc E, Yang L, MacDonald A H, Li X 2019 *Nature* **567** 71
- [85] 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, Molas M R, Koperski M, Watanabe K, Taniguchi T, Novoselov K S, Gorbachev R V, Shin H S, Fal'ko V I, Tartakovskii A I 2019 *Nature* **567** 81
- [86] 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, Jones K, Taniguchi T, Watanabe K, Chu M W, Gwo S, Kim S, Shih C K, Li X, Chang W H 2020 *Sci. Adv.* **6** eaba8866
- [87] Chen J J, Yue X F, Shan Y B, Wang H S, Han J K, Wang H M, Sheng C X, Hu L G, Liu R, Yang W H, Qiu Z J, Cong C X 2023 *RSC Adv.* **13** 18099
- [88] Dai D J, Fu B W, Yang J N, Yang L L, Yan S, Chen X Q, Li H C, Zuo Z C, Wang C, Jin K, Gong Q, Xu X L 2024

Sci. Adv. **10** eado1281

- [89] Fang H L, Lin Q L, Zhang Y, Thompson J, Xiao S S, Sun Z P, Malic E, Dash S P, Wiczorek W **2023** *Nat. Commun.* **14** 6910
- [90] Choi J, Florian M, Steinhoff A, Erben D, Tran K, Kim D S, Sun L, Quan J, Claassen R, Majumder S, Hollingsworth J A, Taniguchi T, Watanabe K, Ueno K, Singh A, Moody G, Jahnke F, Li X **2021** *Phys. Rev. Lett.* **126** 047401
- [91] Zhang L, Zhang Z, Wu F C, Wang D Q, Gogna R, Hou S C, Watanabe K, Taniguchi T, Kulkarni K, Kuo T, Forrest S R, Deng H **2020** *Nat. Commun.* **11** 5888
- [92] Forg M, Colombier L, Patel R K, Lindlau J, Mohite A D, Yamaguchi H, Glazov M M, Hunger D, Hoge A **2019** *Nat. Commun.* **10** 3697
- [93] Lopriore E, Tagarelli F, Fitzgerald J M, Gonzalez Marin J F, Watanabe K, Taniguchi T, Malic E, Kis A **2025** *Nat. Nanotechnol.*
- [94] Zhu J S, Shen F H, Chen Z F, Liu F H, Jin S Y, Lei D Y, Xu J B **2024** *ACS Nano* **18** 13599
- [95] Zhu Y, Zou K L, Qi D X, He J, Peng R W, Wang M **2025** *Nano Lett.* **25** 8680
- [96] Zhao J X, Fieramosca A, Dini K, Bao R, Du W, Su R, Luo Y, Zhao W J, Sanvitto D, Liew T C H, Xiong Q H **2023** *Nat. Commun.* **14** 1512
- [97] Song K W, Kyriienko O **2025** *Phys. Rev. Lett.* **135** 036901
- [98] Zhang L, Wu F C, Hou S C, Zhang Z, Chou Y H, Watanabe K, Taniguchi T, Forrest S R, Deng H **2021** *Nature* **591** 61
- [99] Liu E F, Barre E, van Baren J, Wilson M, Taniguchi T, Watanabe K, Cui Y T, Gabor N M, Heinz T F, Chang Y C, Lui C H **2021** *Nature* **594** 46
- [100] Li W J, Lu X, Wu J T, Srivastava A **2021** *Nat. Nanotechnol.* **16** 148
- [101] Sun Z, Ge P, Chen S, Huang S, Xu H, Wang C, Han R, Zhang X, Liu H, Luo J, Qian L, Sun J, Liu D, Liu H **2025** *Adv. Mater.* e2502986
- [102] Palekar C C, Faria Junior P E, Rosa B, Sousa F B, Malard L M, Fabian J, Reitzenstein S **2024** *npj 2D Mater. Appl.* **8** 49
- [103] Zhu T, Zheng C H, Xu L, Yang M **2024** *Phys. Rev. B* **110** 155416
- [104] Sun X Q, Zhu Y, Qin H, Liu B Q, Tang Y L, Lü T Y, Rahman S, Yildirim T, Lu Y **2022** *Nature* **610** 478
- [105] Joe A Y, Jauregui L A, Pistunova K, Mier Valdivia A M, Lu Z, Wild D S, Scuri G, De Greve K, Gelly R J, Zhou Y, Sung J, Sushko A, Taniguchi T, Watanabe K, Smirnov D, Lukin M D, Park H, Kim P **2021** *Phys. Rev. B* **103** L161411
- [106] Meng Y Z, Wang T M, Jin C H, Li Z P, Miao S N, Lian Z, Taniguchi T, Watanabe K, Song F Q, Shi S F **2020** *Nat. Commun.* **11** 2640
- [107] Lu J Z, Zhu Z Y, Angeli M, Larson D T, Kaxiras E **2022** *Phys. Rev. B* **106** 144305
- [108] Naik M H, Regan E C, Zhang Z C, Chan Y H, Li Z L, Wang D Q, Yoon Y, Ong C S, Zhao W Y, Zhao S H, Utama M I B, Gao B N, Wei X, Sayyad M, Yumigeta K, Watanabe K, Taniguchi T, Tongay, da Jornada F H, Wang F, Louie S G **2022** *Nature* **609** 52
- [109] Wu F, Lovorn T, Tutuc E, Martin I, MacDonald A H **2019** *Phys. Rev. Lett.* **122** 086402
- [110] Xin M, Lan W Z, Bai Q H, Huang X, Watanabe K, Taniguchi T, Wang G, Gu C Z, Liu B L **2022** *Appl. Phys. Lett.* **121** 143101
- [111] Li W, Hadjri Z, Devenica L M, Zhang J, Liu S, Hone J, Watanabe K, Taniguchi T, Rubio A, Srivastava A **2023** *Nat. Mater.* **22** 1478
- [112] Lian Z, Chen D X, Ma L, Meng Y Z, Su Y, Yan L, Huang X, Wu Q R, Chen X Y, Blei M, Taniguchi T, Watanabe K, Tongay S, Zhang C W, Cui Y T, Shi S F **2023** *Nat. Commun.* **14** 4604
- [113] Yu L, Pistunova K, Hu J, Watanabe K, Taniguchi T, Heinz T F **2023** *Nat. Mater.* **22** 1485
- [114] Huang L, Krasnok A, Alu A, Yu Y, Neshev D, Miroshnichenko A E **2022** *Rep. Prog. Phys.* **85** 046401
- [115] Jin C H, Kim J, Utama M I B, Regan E C, Kleemann H, Cai H, Shen Y, Shinner M J, Sengupta A, Watanabe K, Taniguchi T, Tongay S, Zettl A, Wang F **2018** *Science* **360** 893
- [116] Wang Z, Rhodes D A, Watanabe K, Taniguchi T, Hone J C, Shan J, Mak K F **2019** *Nature* **574** 76
- [117] Sung J, Zhou Y, Scuri G, Zolyomi V, Andersen T I, Yoo H, Wild D S, Joe A Y, Gelly R J, Heo H, Magorrian S J, Berube D, Valdivia A M M, Taniguchi T, Watanabe K, Lukin M D, Kim P, Fal'ko V I, Park H **2020** *Nat. Nanotechnol.* **15** 750

SPECIAL TOPIC—2D materials and future information devices

Formation, identification, and regulation mechanisms of interlayer excitons in transition metal dichalcogenides heterostructures*

WANG Shuo[#] YIN Yao^{#†} WANG Lin[‡]

(*Institute of Advanced Materials (IAM), School of Flexible Electronics (Future Technologies),
Nanjing Tech University, Nanjing 211816, China*)

(Received 8 July 2025; revised manuscript received 21 August 2025)

Abstract

Interlayer excitons (IXs), formed in type-II van der Waals (vdW) heterostructures where electrons and holes reside in adjacent monolayers, have attracted increasing interest due to their spatially indirect nature, long lifetime, strong Coulomb binding, and unique out-of-plane dipole moment. These features make IXs a promising platform for exploring many-body physics and realizing next-generation excitonic devices. This review systematically presents the formation mechanisms, identification methods, and external modulation strategies of interlayer excitons in two-dimensional materials.

First, we analyze the prerequisites for the IX formation, emphasizing the role of band alignment, interlayer charge transfer, and momentum mismatch. Recent studies have also revealed that direct interlayer absorption is an alternative pathway for IX generation. For identification, we summarize multiple optical techniques, including photoluminescence (PL), photoluminescence excitation (PLE), transient absorption (TA), and electro-absorption (EA). These techniques can detect IX energy positions, binding energies, and recombination pathways. However, distinguishing interlayer excitons from defect-bound or momentum-indirect excitons remains challenging in experiment due to spectral overlap and measurement-dependent explanation.

Then, we review five primary external modulation methods: electric field, strain, magnetic field, twist angle, and optical cavities. Electric fields can realize fast, reversible tuning of exciton energy levels, especially for excitons with large dipole moments. Strain provides nanoscale spatial control and can reshape local potential landscapes. Magnetic fields affect the spin-valley configurations and allow access to exciton polarization dynamics. Moiré engineering via twist angles introduces periodic potential landscapes, yielding moiré-trapped IXs and novel hybrid exciton-polaritons. Optical cavities enhance exciton radiative recombination via light-matter coupling and open up possibilities for strong coupling regimes. We further discuss additional strategies such as substrate-induced screening, dielectric environment, probe-induced local stress, and ferroelectric gating, all of which enrich the modulation toolbox.

To facilitate cross-comparison, we present a comprehensive summary table comparing different modulation approaches in terms of tuning targets, dimensionality, efficiency, dynamic responsiveness, and implementation complexity.

Finally, we discuss emerging applications of IXs in optoelectronic and quantum devices. Their tunable emission and long-lived nature make them suitable for exciton-based memory, logic, lasers, and reconfigurable photonic circuits. With the development of material synthesis, interface engineering, and hybrid integration, interlayer excitons are evolving from basic quasiparticles to programmable excitonic elements in chip-scale photonics and quantum information technologies.

Keywords: interlayer excitons, van der Waals heterostructures, exciton modulation, spectroscopic identification

PACS: 71.35.-y, 73.22.-f, 78.67.Wj

DOI: 10.7498/aps.74.20250890

CSTR: 32037.14.aps.74.20250890

* Project supported by the State Key Development Program for Basic Research of China (Grant No. 2020YFA0308900) and the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 92477123, 52373290, 62288102).

These authors contributed equally.

† Corresponding author. E-mail: iamyyin@njtech.edu.cn

‡ Corresponding author. E-mail: iamlwang@njtech.edu.cn



过渡金属二硫族化合物异质结构中层间激子的形成判定与调控机制

王烁 殷焱 王琳

Formation, identification, and regulation mechanisms of interlayer excitons in transition metal dichalcogenides heterostructures

WANG Shuo YIN Yao WANG Lin

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 74, 207102 (2025) DOI: 10.7498/aps.74.20250890

CSTR: 32037.14.aps.74.20250890

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.74.20250890>

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

二维MoS₂压痕过程异质界面范德瓦耳斯力引起的撕裂行为

Tearing behavior induced by van der Waals force at heterogeneous interface during two-dimensional MoS₂ nanoindentation

物理学报. 2022, 71(19): 194601 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220875>

高压调控过渡金属硫族化合物及异质结构的光电性质

Optoelectronic properties of high pressure regulated transition metal chalcogenides and their heterostructures

物理学报. 2025, 74(17): 176802 <https://doi.org/10.7498/aps.74.20250498>

Sb/SnC范德瓦耳斯异质结光电性质的层间转角依赖性及其应用

Interlayer angle dependence of photoelectric properties of Sb/SnC van der Waals heterojunction and its application

物理学报. 2024, 73(22): 227101 <https://doi.org/10.7498/aps.73.20241138>

WSeTe/CrI₃范德瓦耳斯异质结能谷的调控

Valley manipulation in WSeTe/CrI₃ van der Waals heterostructures: A first-principles study

物理学报. 2025, 74(9): 097101 <https://doi.org/10.7498/aps.74.20241750>

应力调控BlueP/XTe₂ (X = Mo, W)范德瓦耳斯异质结电子结构及光学性质理论研究

Tunable electronic structure and optical properties of BlueP/XTe₂ (X = Mo, W) van der Waals heterostructures by strain

物理学报. 2021, 70(6): 067101 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20201728>

CuPc/MoS₂范德瓦耳斯异质结荧光特性

Photoluminescence properties of CuPc/MoS₂ van der Waals heterostructure

物理学报. 2022, 71(12): 128103 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220132>