

过渡金属硫族化合物A₁'模所有Davydov组分的室温拉曼检测^{*}

李临寒¹⁾²⁾ 梅瑞¹⁾²⁾ 刘雪璐¹⁾²⁾ 林妙玲¹⁾²⁾ 谭平恒^{1)2)†}

1) (中国科学院半导体研究所, 半导体芯片物理与技术全国重点实验室, 北京 100083)

2) (中国科学院大学材料科学与光电技术学院, 北京 100049)

S1 低温 (77 K) 下本征1—4层MoS₂的共振拉曼光谱

在 77 K 低温条件下, 尽管热展宽效应受到抑制, 光谱分辨率有所提高, 但对少层 MoS₂ 中所有 Davydov 组分实现同步观测仍存在根本性限制。实验结果表明, 即使在 77 K 下, 本征少层 MoS₂ 样品中也仅能分辨出部分 Davydov 组分: 2LM 仅显示 1 个组分, 3—4LM 中也仅可识别 2 个组分 (图 S1), 未实现与层数相匹配的全组分观测。这一现象主要源于两方面原因: 其一, 低温并不能彻底抑制能带填充效应 (BFE)^[1], 材料内部仍缺乏高效的载流子散射与耗散通道, 导致 BFE 对共振拉曼过程的抑制作用依然显著; 其二, 低温无法改变材料固有的点群对称性, 因此那些仅具有红外活性的拉曼禁戒模式仍然无法被激活。以上结果表明, 仅依靠低温技术难以实现 Davydov 组分的完整同步解析, 进一步凸显了本研究采用石墨烯异质结策略, 通过引入界面耦合以提供非辐射弛豫通道并打破对称性限制, 在实现室温下全组分探测方面的必要性。

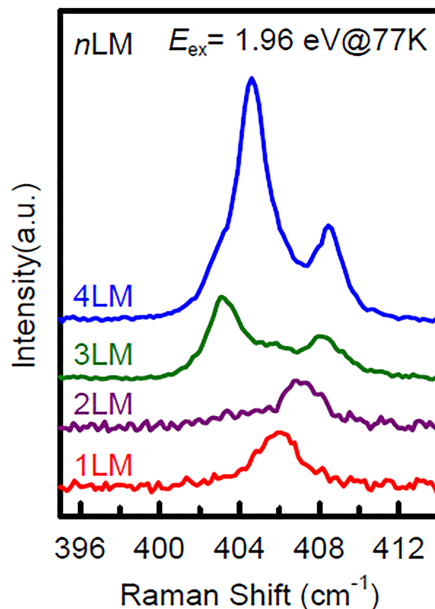


图 S1 低温 (77K) 下本征 1—4L MoS₂ 的共振拉曼光谱

Fig. S1. Resonance Raman spectra of intrinsic 1–4L MoS₂ at low temperature (77 K).

* 国家重点研发计划 (批准号: 2022YFF0609800) 和国家自然科学基金 (批准号: 12127807, 12322401, 12393832) 资助的课题.

† Corresponding author. E-mail: phtan@semi.ac.cn

‡ Corresponding author. E-mail: 第一作者. E-mail: lilinhao@semi.ac.cn

S2 双层 MoS₂/石墨烯异质结中的界面耦合与拉曼增强效应

我们测量了本征双层 MoS₂ (2LM) 及 2LM 与不同层数石墨烯 (1—4LG) 构成的异质结在 2.54 eV 激光激发下的低波数拉曼光谱。如图 S2 (a) 所示, 与本征 2LM 中的呼吸模 ($LB_{2,1} \sim 40.7 \text{ cm}^{-1}$) 相比, 2LM/1LG 异质结中可观测到峰位略低于其的呼吸模 $LB_{N,N-1}$ 。随石墨烯薄片层数的增加, 该呼吸模 $LB_{N,N-1}$ 峰位的变化更加显著。尤为重要的是, 在 2LM/4LG 异质结光谱中除呼吸模 $LB_{N,N-1}$ 模之外, 还在位于 $\sim 43.4 \text{ cm}^{-1}$ 处清晰观察到一个新的呼吸振动模式 $LB_{N,N-2}$, 该新呼吸模的出现是界面强耦合的直接证据^[2]。图 S2 (b) 为 1.96 eV 激光激发下, 2LM/1—4LG 异质结中一阶 A 模 ($\sim 405 \text{ cm}^{-1}$) 的共振拉曼光谱。结果表明, 尽管低频拉曼响应存在差异, 但单层至四层石墨烯薄片在通过电荷转移提供非辐射弛豫通道从而增强 A 模拉曼信号方面效果相当。

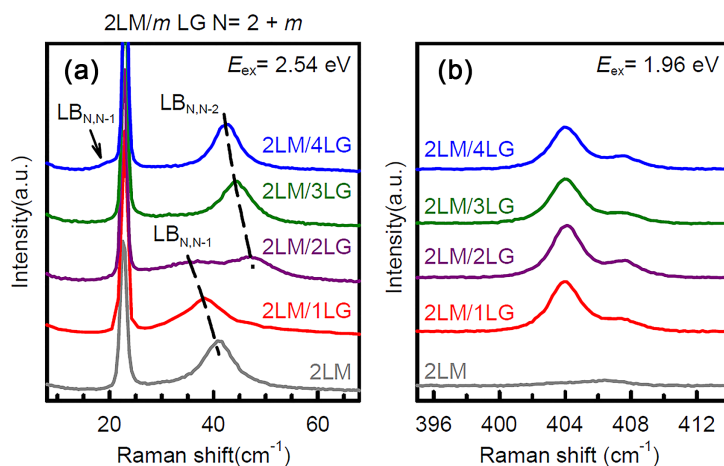


图 S2 双层 MoS₂/石墨烯异质结的层间耦合与拉曼增强 (a) 本征 2LM 及 2LM/1—4LG 的低波数拉曼光谱; (b) 2LM/1—4LG 异质结中 A 模共振拉曼光谱

Fig. S2. Interlayer coupling and Raman enhancement in 2L MoS₂/Gr heterostructures (a) Low-frequency Raman spectra of intrinsic 2LM and 2LM/1—4LG; (b) Resonance Raman spectra of the A-mode in 2LM/1—4LG.

参考文献

- [1] Mei R, Zhong Y G, Xie J L, Wu J B, Du W N, Zhang X H, Liu X F, Lin M L, Tan P H 2025 *Laser Photonics Rev.* e00821
- [2] Li H, Wu J B, Ran F, Lin M L, Liu X L, Zhao Y, Lu X, Xiong Q, Zhang J, Huang W, Zhang H, Tan P H 2017 *ACS Nano* 11 11714