

圆偏振光伏效应

苏欣 黄天烨 王军转 刘媛 郑有料 施毅 王肖沐

Circular photogalvanic effect

Su Xin Huang Tian-Ye Wang Jun-Zhuan Liu Yuan Zheng You-Liao Shi Yi Wang Xiao-Mu

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 70, 138501 (2021) DOI: 10.7498/aps.70.20210498

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210498>

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

非共振圆偏振光作用下单层二硫化钼电子结构及其自旋/谷输运性质

Electronic structure and spin/valley transport properties of monolayer MoS₂ under the irradiation of the off-resonant circularly polarized light

物理学报. 2018, 67(10): 107101 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180213>

三重简并拓扑半金属MoP中超快圆偏振光产生和调控光生热电流

Generation and control of photo-excited thermal currents in triple degenerate topological semimetal MoP with circularly polarized ultrafast light pulses

物理学报. 2020, 69(20): 207801 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200031>

铁电体的光伏效应

Photovoltaic effect in ferroelectrics

物理学报. 2018, 67(15): 157801 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180979>

量子点操控的光子探测和圆偏振光子发射

Single photon detection and circular polarized emission manipulated with individual quantum dot

物理学报. 2018, 67(22): 227301 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20182049>

基于Pancharatnam–Berry相位和动力学相位调控纵向光子自旋霍尔效应

Manipulating longitudinal photonic spin Hall effect based on dynamic and Pancharatnam–Berry phase

物理学报. 2019, 68(6): 064201 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20182004>

钙钛矿的Rashba效应及其对载流子复合的影响

Rashba effect in perovskites and its influences on carrier recombination

物理学报. 2019, 68(15): 158506 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190675>

专题—原子制造: 基础研究与前沿探索

圆偏振光伏效应*

苏欣 黄天烨 王军转 刘媛 郑有焘[†] 施毅[‡] 王肖沐^{††}

(南京大学电子科学与工程学院, 南京 210023)

(2021 年 3 月 15 日收到; 2021 年 6 月 8 日收到修改稿)

自旋电子学和谷电子学作为半导体物理的新方向, 旨在利用电子的自旋和谷自由度来实现新型的逻辑运算和信息处理. 圆偏振光伏效应是近年来研究自旋电子学和谷电子学的重要实验手段, 也是实现新型的自旋与谷存储器件的一个可能的方式, 为下一代的器件信息的处理方法提出了一种新的可能. 圆偏振光伏效应是一种二阶非线性光电响应, 是指材料在圆偏振光的激发下产生随偏振角度变化的光电流. 光电流的产生依赖于自旋、谷极化、对称性以及 Berry 曲率等诸多因素, 可以揭示出材料深层次的物理性质. 本篇综述主要讨论了在不同材料体系产生圆偏振光伏效应的主要机制, 包括在半导体异质结由对称性破缺导致的 Rashba 自旋轨道耦合引起的圆偏振光电流, 以及拓扑 Weyl 半金属由 Berry 曲率以及泡利阻塞造成的电子动量选择, 以及二维层状过渡金属硫化物中圆偏振光产生的谷极化电流等. 在此基础上, 本文还简略介绍了一些新型二维材料中的圆偏振光伏效应的可能实现的方式, 以及一些潜在的应用.

关键词: 圆偏振光伏效应, Rashba 效应, 自旋极化, Berry 曲率**PACS:** 85.35.-p, 05.30.Fk, 72.25.Fe**DOI:** 10.7498/aps.70.20210498

1 引言

在过去几十年中, 围绕着对半导体中电子的调控, 半导体产业获得了巨大的成功. 随着近年来摩尔定律遭遇瓶颈, 在传统 CMOS 器件外, 是否还有新的结构和载体可以提供信息传输和逻辑计算. 人们发现在电子的电荷自由度以外, 电子自旋自由度和材料中的能谷自由度可以为半导体技术的发展提供新的机遇, 这两个内禀的自由度可以带来新型的信息存储器件和处理器件. 在逻辑电路和存储器中, 由电子的自旋或谷为基本信息处理单位的器件可能会成为集成电路领域下一个发展方向, 由此产生了自旋电子学与谷电子学这两个新的领域. 自旋电子器件和谷电子器件的研究中的基本的问题

是: 如何产生、调控以及验证器件中的自旋和谷极化. 而探测和调控自旋和谷极化的一个重要的手段就是验证自旋和谷极化产生的电流. 所以本文主要讨论在光伏效应中与自旋极化相关的机制-圆偏振光伏效应 (circular photogalvanic effect, CPGE).

一般来说, 材料中光电流的产生是一个二阶效应^[1], 需要两个过程: 光生空穴电子对以及非平衡载流子的方向选择 (图 1). 光生空穴电子对是一个线性响应, 在满足空间反演对称与时间反演对称的体系下不会产生净电流. 净电流的产生来自于特殊的结构 (如 PN 结、铁电材料、倾斜能带以及 Berry 曲率等) 或晶格对称性对电子群速度的选择, 从而产生宏观光电流.

圆偏振光伏效应是指随圆偏振光依赖的光伏效应. 最先由苏联科学家 Ivchenko 和 Pikus^[2] 及

* 国家重点研发计划 (批准号: 2018YFA0209100) 资助的课题.

[†] 通信作者. E-mail: ydzheng@nju.edu.cn[‡] 通信作者. E-mail: yshi@nju.edu.cn^{††} 通信作者. E-mail: xiaomu.wang@nju.edu.cn

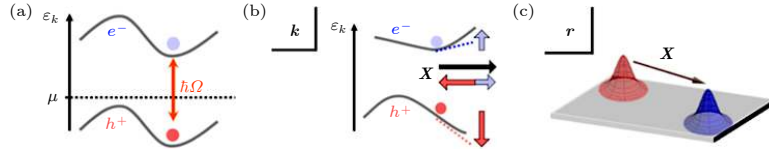


图 1 光电流响应产生的两个主要过程的示意图^[1]: (a) 电子空穴对产生; (b) 产生的成对电荷具有方向性, 对电子和空穴有选择性整流, 从而在动量空间产生群速度的差异; (c) 实空间中对于转移电流 (shift currents) 和回旋电流 (gyration currents) 的电子波包位置移动

Fig. 1. Schematic picture of the two processes causing the photocurrent response^[1]: (a) Electron-hole pair creation; (b) alternating rectification of paired charges by the director. There are two kinds of directors. The group velocity difference for the injection currents (momentum space picture); (c) the positional shift of wave packets for the shift and gyration currents (real space picture).

Belinicher^[3] 于 1978 年提出, 他们在旋光晶体中发现的新的光伏效应. 在旋光性晶体碲中, 预言了由圆偏振光激发的一种随着偏振角度的改变而改变方向的光电流, 并在碲中计算了电流数值 (带间跃迁和带内跃迁), 随后由 Belinicher^[3] 观测到.

德国科学家 Ganichev 等^[4] 首次在 AlGaAs/GaAs 的异质结构中测量出 CPGE. Ganichev 在此基础上提出了新的理论, 从能带的角度解释了 CPGE 产生的原因: 由于量子阱中 Rashba 自旋轨道耦合导致中心反演对称性被打破, 从而产生了 Rashba 的自旋轨道劈裂, 在动量空间能带不对称分布. 在依赖于具体能带结构的光选择定律下, 光的角动量通过电子自旋转变为电子线动量, 由于电子在动量空间的不对称分布, 引起了光电流.

圆偏振光伏效应的现象可以定义为, 在不同偏振角度的圆偏振光的照射下, 在某些可以打破空间反演对称性的体系 (如纤锌矿 GaN 体系、Al_xGa_{1-x}N/GaN 异质结构以及 Weyl 半金属和 TMDC 材料) 中会产生随偏振角度变化而方向大小周期变化的光电流 (如图 2 所示), 可以定量的表示为

$$j_{\lambda} = \sum_{\mu} \gamma_{\lambda\mu} i(\mathbf{E} \times \mathbf{E}^*)_{\mu}, \quad (1a)$$

$$i(\mathbf{E} \times \mathbf{E}^*)_{\mu} = e_{\mu} E_o^2 P_{\text{circ}}, \quad (1b)$$

其中 j_{λ} 是光电流密度; $\gamma_{\lambda\mu}$ 是 CPGE 二阶赝张量; \mathbf{E} 表示电磁波电场的强度; E_o , P_{circ} , e_{μ} 表示电场绝对值, 圆偏振强度, 圆偏振光传播方向^[5].

CPGE 现象是半导体自旋动力学的一个重要的探测手段, 目前产生 CPGE 现象的体系包括 AlGaAs/GaN 的异质结构和量子阱等^[5], 以及具有谷自由度的 Weyl 半金属^[6] 和过渡金属硫化物 (transition metal dichalcogenides, TMDCs) 材料等^[7]. 产生圆偏振光伏效应的主要机理可以归纳为下面三种: Rashba 自旋轨道耦合、Weyl 半金属中

的谷选择与泡利阻塞以及 TMDCs 材料中的谷选择与轨道耦合共同作用.

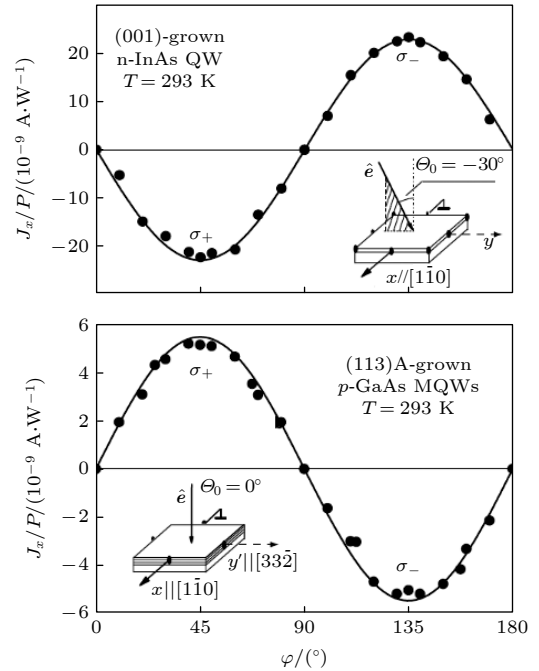


图 2 量子阱中的光电流作为相位角 w 的函数, 相位角决定了螺旋度, 光电流由光功率 P 归一化, σ_+ 和 σ_- 表示携带角动量子数为 +1 和 -1 的光子, 分别对应于右旋偏振光和左旋偏振光^[5]

Fig. 2. Photocurrent in QWs normalized by the light power P as a function of the phase angle w defining helicity. σ_+ and σ_- represent the photon with angular momentum quantum number are +1 and -1, corresponding to right-hand circular polarization light and left-hand circular polarization light, respectively^[5].

2 Rashba 自旋轨道耦合

在晶体中, 自旋轨道相互作用决定了自旋极化电子的运动, 而晶体中的电子波函数受周期性晶格势的调制, 所以自旋极化电子的运动与晶格对称性有关. 在同时满足时间反演对称和空间反演对称的晶体中, 自旋双重简并, 不同自旋极化的电子占据

同一个轨道. 但是在打破空间反演对称或时间反演对称的晶格中, 自旋简并被打破, 出现自旋轨道耦合能级劈裂. 磁场打破时间反演对称的体系下, 产生的能级劈裂为我们熟知的塞曼劈裂. 在某些在特定方向打破空间反演对称的体系中, 如 III-V 族半导体 GaAs 等, 自旋轨道耦合会在哈密顿量中引入与波矢相关的能级劈裂和波矢线性相关, 被称为 Rashba 自旋轨道耦合. 轨道耦合哈密顿量和分裂能分别为

$$H_{\text{SOC}} = \alpha \cdot \sigma \cdot (\mathbf{k} \times \mathbf{z}), \quad (2)$$

$$H_{\text{SOC}} = \pm \alpha k, \quad (3)$$

其中 α 为自旋轨道耦合相互作用强度; σ 为自旋. 以上体晶格对称性破缺产生的自旋轨道耦合能级劈裂. 还有一类为纤锌矿三角形量子阱, 由结构的不对称性引起的自旋轨道耦合能级劈裂, 轨道耦合相互作用哈密顿量为

$$H_{\text{SOC}} = (\alpha_{\text{D}} + \alpha_{\text{BR}}) \cdot \sigma \cdot (\mathbf{k} \times \mathbf{z}), \quad (4)$$

其中 α_{D} , α_{BR} 为自旋轨道耦合相互作用强度, α_{BR} 与内建电场相关, 可以理解为电场调控下的自旋进动, 自旋轨道耦合能级劈裂和电场相关. 不同自旋极化的电子, 占据不同的能级.

光生电子空穴对为一阶光电响应过程. 而净光电流的产生是一个二阶响应, 需要产生非平衡载流子. 同时满足时间反演对称与空间反演对称的体系不会产生净的光电流. 普遍意义上来讲, 光电流的产生是一个打破宇称的过程, 在宏观上来说 p-n 结、量子阱等破坏了空间对称性, 可以产生净电流. 在微观上, 非中心对称的晶体结构, 可以产生随圆偏振光和线偏光变化的光电流. 在 Rashba 自

旋轨道耦合的材料体系中, 圆偏振光是一个可以有效产生特定自旋极化的手段, 左 (右) 旋圆偏振光携带 $-1(+1)$ 角动量子数的光子, 产生的能级跃迁分别对应自旋轨道耦合解简并的两个能级, 从而产生自旋极化的选择. 而 Rashba 自旋轨道耦合体系中特定的二阶响应可以对自旋极化的电子运动方向进行选择, 从而产生手性光关联的净电流. 下面通过能级跃迁具体分析圆偏振光选择下的净电流产生过程.

在 Rashba 自旋轨道耦合体系中, 能级发生劈裂, 根据激发波长的不同, 带间激发, 带内激发和带内间接激发均可以对不同手性的偏振光进行选择. 如图 3 所示.

带间激发如图 3(a) 所示, 这是一个导带和价带发生 Rashba 自旋轨道耦合的能带图, 假设其有 C_s 的对称性, 且具有直接带隙跃迁. 为了简化能带图, 只考虑导带低子带 $e1$ 和导带顶子带 $hh1$ 导带中的劈裂表示为

$$\varepsilon_{e1, \pm \frac{1}{2}}(k) = (\hbar^2 k_x^2 / 2m_{e1}) \pm \beta_{e1} k_x + \varepsilon_g, \quad (5)$$

价带中的劈裂表示为

$$\varepsilon_{hh1, \pm \frac{3}{2}}(k) = -(\hbar^2 k_x^2 / 2m_{hh1}) \pm \beta_{hh1} k_x, \quad (6)$$

其中 ε_g 为能隙.

对于特定能量的圆偏振入射光, 满足动量守恒定律和能量守恒定律的只有两个 k_x 值. 根据选择定律, 对于右旋圆偏振光的跃迁发生在 $m_s = -3/2$ 到 $-1/2$ 之间, 对于左旋偏振光, 光跃迁发生在 $m_s = 3/2$ 到 $1/2$ 之间. 这里 m_s 代表电子轨道的自旋量子数. 那么经过计算, 相应的右旋偏振光的光子引起的跃迁发生在:

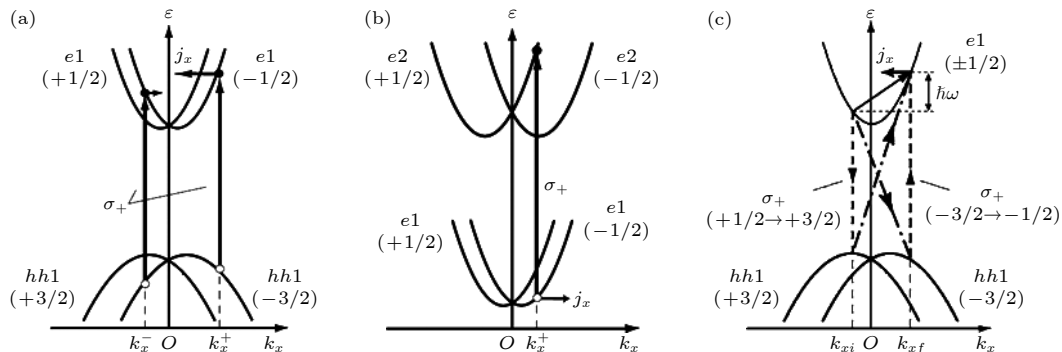


图 3 描述自旋极化光电流来源的微观模型 (a) 价带和导带的带间直接跃迁; (b) 导带子带能级量化的导带带内跃迁; (c) 带内德鲁特 (Drude) 间接跃迁

Fig. 3. Microscopic picture describing the origin of spin polarized photocurrents: (a) Interband transition between the valence and conduction band; (b) intraband transition between size-quantized subbands in the conduction band; (c) indirect (Drude) transitions.

$$k_x^\pm = +\frac{\mu}{h^2}(\beta_{e1} + \beta_{hh1}) \pm \sqrt{\frac{\mu^2}{h^4}(\beta_{e1} + \beta_{hh1})^2 + \frac{2\mu}{h^2}(hw - \varepsilon_g)}. \quad (7)$$

如图 3(a) 中实线箭头表示, 其中 $\mu = \frac{m_{el} \cdot m_{hh1}}{m_{el} + m_{hh1}}$ 为电子有效约化质量. 这些跃迁的质量中心从 $k_x=0$ 的点到了

$$k_x^\pm = +\frac{\mu}{h^2}(\beta_{e1} + \beta_{hh1}), \quad (8)$$

因此电子在导带激发态的速度和为

$$v_{e1} = \frac{h(k_x^- + k_x^+ - 2k_x^{\min})}{m_{e1}} = \frac{2}{(\beta_{hh1}m_{hh1} - \beta_{e1}m_{e1})}. \quad (9)$$

可以看出, 除非上下导带价带发生相同程度的劈裂, 否则沿动量空间对称的两个跃迁的光电子贡献的光电流不能相互抵消, 形成净速度的光电流.

对于较长的波段, 如中红外和远红外区域, 电流则由带内直接跃迁和带内间接跃迁导致. 如图 3(b) 所示, 电子的导带由于哈密顿量中的自旋轨道耦合项在 z 方向上分裂成了两个自旋量子数为 $\pm 1/2$ 的子带. 由于光选择定律, 右手圆偏振光在一般情况下都产生从自旋量子数为 $m_s = -1/2$ 的子带到 $m_s = +1/2$ 的子带的跃迁. 与带间跃迁相同, 为满足动量守恒以及能量守恒, 带内直接跃迁也只发生在动量空间固定的 k_x 处. 因此同样的, 光激发导致了两条子带的动量分布不平衡, 产生了沿 x 方向的光电流. 由于在 n 型半导体量子阱中子带 $e1$ 和 $e2$ 的带隙一般比光学声子大, 因为声子的释放, 所以在 $e2$ 子带中的非平衡载流子的寿命会非常短. 这样就导致了子带 $e2$ 贡献的光电流消失了. 因此对于这种情况的带内直接跃迁, 电流的强度和方向是由自旋量子数为 $-1/2$ 的子带 $e1$ 中的光生空穴的弛豫时间以及群速度决定的.

对于带内的间接吸收 (Drude 吸收), 一般出现在光子能量不足以激发带内直接跃迁的在远红外区域. 由于能量守恒和动量守恒, 带内间接跃迁的同时释放或者吸收一个声子. 这个过程等同于在不同的子带能级间包含了中间态. 图 3(c) 阐述了两种典型的带内间接跃迁的机理. 第一种是从子带 $m_s = +1/2$ 至 $m_s = +3/2$ 的跃迁, 包含了声子从子带 $m_s = +3/2$ 跃迁回导带的过程. 另一种则是从子带 $m_s = -3/2$ 至 $m_s = -1/2$ 的过程. 这两个过

程共同作用下, 由于动量空间的载流子数目不平衡, 导致了自旋极化的光电流. 调整圆偏振光的手性可以使得自旋光电流沿着相反的方向传播.

在半导体量子阱结构中观察到 CPGE 效应后, 人们发现无论是闪锌矿结构的体材料 GaAs, 还是金刚石结构的体材料 Si, Ge, 都无法观察到 CPGE 效应, 是因为这些材料都是满足中心反演对称的, 在电子能带以及异质结的子带中, 能带的自旋简并始终保持. 而在闪锌矿结构的异质结量子阱中, 由于空间反演对称性的破坏, 可以在不同的圆偏振光下产生非平衡的载流子, 产生了可观察的 CPGE 效应.

3 谷选择和泡利阻塞

3.1 Weyl 半金属中 Weyl 费米子的手性和 CPGE

Weyl 半金属是近几年来新出现的一种拓扑材料 [8–21]. 其中 Weyl 费米子在动量空间类似于赝磁单极子. 而由赝磁极子的符号决定的 Weyl 费米子的手性, 是 Weyl 半金属的核心研究内容之一. Weyl 费米子的手性直接决定了其拓扑数的符号, 产生了很多新奇的现象, 诸如费米弧 [10,14,15], 手性反常 [18,19,22–24] 等. 2017 年, 麻省理工学院的 Pablo Jarillo-Herrero 以及 Nuh Gedik 组首次在实验中在 Weyl 半金属 TaAs 中测量到随中红外圆偏振光变化的光电流, 从而直接确定材料中 Weyl 费米子的手性 [25]. Weyl 半金属中的圆偏振光效应为进一步研究控制 Weyl 费米子和与之相关的量子反常的光电效应提供了可能性 [18,19,26–36]. 另外, 与二维材料中的谷自由度相似, 手性自由度也为未来自旋器件存储处理信息提供了新的可能 [37,38].

在 1923 年, Weyl 提出质量为零的基本费米子都拥有确定的手性. 这种手性的无质量费米子被称为 Weyl 费米子. 在当时高能物理没有发现 Weyl 费米子实物粒子, 但是随后的凝聚态物理的研究者在新的拓扑材料 Weyl 半金属中发现了相似的粒子. 与高能物理中的定义相同, 在 Weyl 半金属中的 Weyl 费米子具有确定的手性 [9–19,25,39]. 一个右手手性的 Weyl 点可看作 Berry 曲率的源端, 而一个左手手性的 Weyl 点可以看作 Berry 曲率的漏端. 任何完全包围一个 Weyl 点 (左手手性或右手手性) 的费米面具有一个整数的 Berry 通量

放出(进入), 因此具有 $-1(+1)$ 的陈数. 因此 Weyl 费米子的手性代表材料的拓扑数.

Weyl 费米子独特的手性使得 Weyl 半金属具有很多奇异的物理现象. 第一, 动量空间中, 拥有不同手性的 Weyl 费米子是受拓扑保护的; 第二, 相反陈数的体费米面保证了拓扑表面费米弧的存在, 并且连接了相反手性的 Weyl 结; 第三, 增加平行的电场和磁场可以打破手性对称, 产生量子自旋/反常霍尔效应. Weyl 半金属除了这些在拓扑物理学中的价值外, 它的手性还导致了三维材料中的新的自由度, 这类似于二维材料 TMDCs 中的谷自由度^[37,38]. 通过结合手性带来的自由度和 Weyl 半金属中的高载流子迁移率, 我们可以为编码信息带来新思路.

因此, 探测 Weyl 费米子的手性就被赋予了重要的意义, 这需要这个观测的物理量对 Weyl 费米子的手性非常敏感, 但是传统的角分辨光电子谱、磁阻、扫描隧道显微镜, 输运实验的都不能直接反

映 Weyl 费米子的性质, 而圆偏振光光伏效应产生的光电流的测量^[6], 为探测和操作 Weyl 费米子的手性提供了新的方法.

如图 4 中所示为 Weyl 半金属 TaAs 中 Weyl 费米子以及相应的光电过程^[6]. 在 Weyl 半金属中存在手性相反的 Weyl 点(图 4(a)). Weyl 半金属中的 CPGE 不同于半导体中的能带跃迁, 它的光跃迁发生在 Weyl 点处. Weyl 半金属中的 CPGE 效应由手性选择和泡利阻塞共同作用导致. 手性选择规定在拓扑数为 $+1$ 的 Weyl 点处, 由于角动量守恒, 沿着 $+z$ 方向入射的右旋偏振光只能激发 $+k_z$ 边的电子, 而 $-k_z$ 边的跃迁是被禁止的(图 4(c))^[26,30,40]. 泡利阻塞则出现在费米能级离开 Weyl 点的位置. 如图 4(d) 所示, 由于 Weyl 半金属的 Weyl 锥存在倾斜, 所以泡利阻塞在 Weyl 点两侧并不对称, 那么考虑一个单一的 Weyl 点, 我们就可以得到非零的光电流. 而在反演对称打破了 Weyl 半金属的镜面对称的情况下, 两个拓扑数相反的 Weyl 点的光

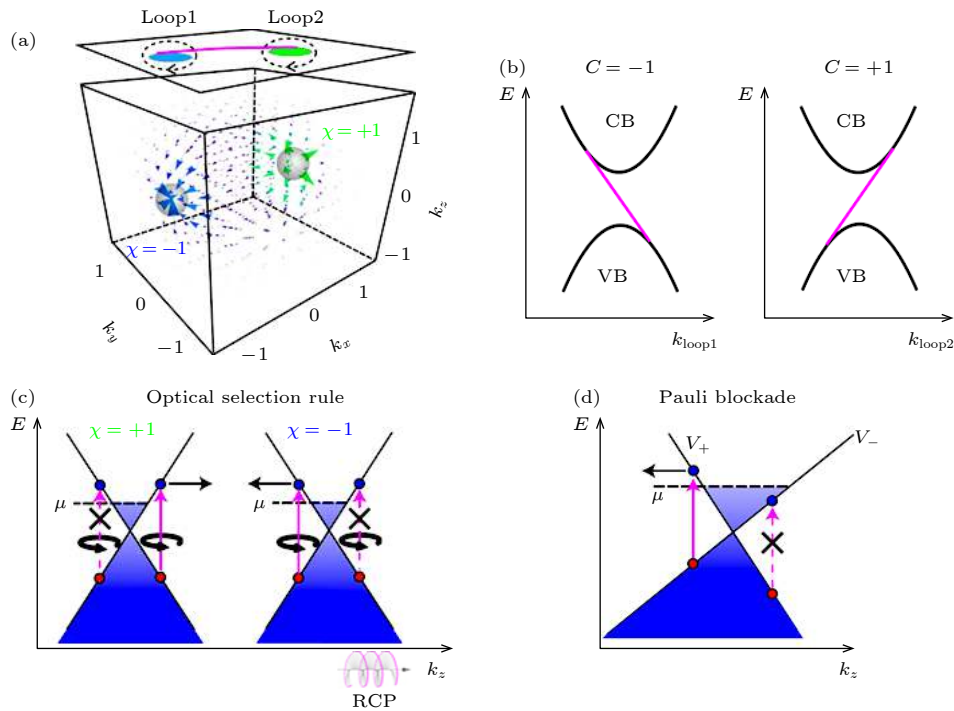


图 4 TaAs 中的手性相关的 Weyl 费米子的光跃迁^[6]: (a) 动量空间中两个手性相反的 Weyl 费米子的示意图, 蓝色和绿色箭头表示动量空间中 Berry 曲率, 灰色球体代表包裹 Weyl 点的费米面; (b) 表面布里渊区沿着 (a) 中虚线的能带结构, 对应于 (a) 中虚线圆; (c) 两个手性相反的 Weyl 锥的光选择过程; (d) 倾斜 Weyl 锥在泡利阻塞和有限化学势下的光跃迁过程, 节点的泡利阻塞是反对称的

Fig. 4. Chirality-dependent optical transition of Weyl fermions in TaAs^[6]: (a) The blue and green arrows depict the Berry curvatures in momentum space. The grey spheres represent the Fermi surfaces that enclose the Weyl nodes; (b) band structures along the closed k loops in the surface Brillouin zone(BZ) defined by the dashed circles in Figure (a); (c) Chirality selection rule in Weyl node; (d) in the presence of a finite tilt and a finite chemical potential away from the Weyl node, the Pauli blockade becomes asymmetric about the nodal point.

电流并不能相互抵消. 因此就形成了随入射光的偏振角度而改变大小周期的 CPGE 效应.

通过理论计算, TaAs 的二十四个 Weyl 中具有两个独立的 Weyl 点, 其他二十二个点由对称性相互关联产生, TaAs 是观察 CPGE 现象的良好平台^[6]. 它同时具有时间反演对称性, 四重旋转对称以及两个镜面对称. 因为在 c 轴缺乏镜面对称, 故可以产生不平衡的电流. 如图 5 所示, 可以看到在红点区域和蓝点区域分别照射圆偏振光. 当偏振光角度从左旋变为右旋时, 产生的光电流的大小和方向随着周期的变化而变化, 图 5(c) 和图 5(d) 随偏振光变化的光电流证明了, 除了低频率的响应与非极化相关的光热电流符合外, 仍观察到了光电流分量, 并证明为材料的内禀属性.

在 Weyl 半金属中的 CPGE 现象有两个重要的特征. 第一, 由于 Weyl 半金属特殊的对称结构, 沿着特定方向不产生光电流, 也就是特定方向的两个 Weyl 点形成的光电流相互抵消. 当右旋偏振光沿着 a 轴入射时, 在 c 方向上并不产生光电流, 同样的, 当圆偏振光沿着 c 轴入射时, 在 a 和 b 方向上观察不到光电流. 第二, 旋转样品的角度也会使得

光电流的方向旋转. 可以通过 Weyl 半金属中 CPGE 光电流的二次光电流响应张量来解释. 该张量 $\eta_{\alpha\beta\gamma}$ 定义为

$$J_{\alpha} = \eta_{\alpha\beta\gamma} E_{\beta}(w) E_{\gamma}^{*}(w). \quad (10)$$

这里 J_{α} 是总的光电流; E 为电场强度; α, β, γ 代表方向. CPGE 响应对应着其虚数部分. 二次张量是材料本身的内禀属性, 它由材料的对称性决定. 因此, 独立于能带细节, 光的波长, 以及光跃迁的微观机理, 对称性是决定的 CPGE 重要因素. 例如在 TaAs 中, 镜面对称 M_a 和 M_b 使得二阶张量在 c 轴消失.

除了在 TaAs 中发现的 CPGE 效应外, 2019 年北京孙栋课题组^[41]也在 TaIrTe 这种二类 Weyl 半金属中测得了圆偏振光伏效应, 如图 6 所示, 在两个点观察到方向相反的随着入射光偏振角度而改变大小的光电流. 在傅立叶频谱上可以观察到清晰的峰.

与 TaAs 不同的是, 由于其晶体对称性, TaIrTe 的 CPGE 响应由三阶非线性张量来表示. 在 TaAs 中, 可以通过倾斜的 Weyl 锥来实现手性选择和泡利阻塞, 而在 TaIrTe 中, 则通过内建电场来达成

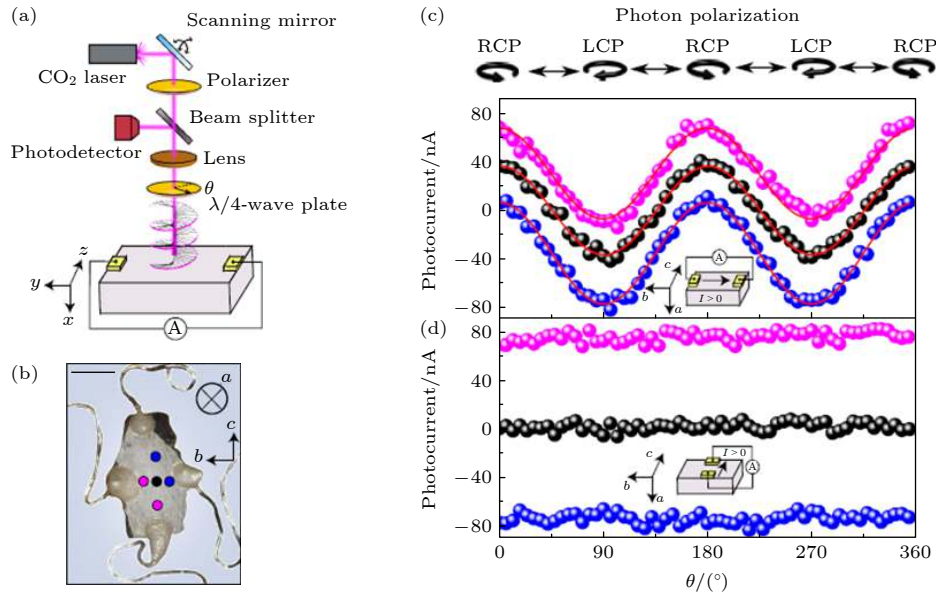


图 5 TaAs 中的手性相关的光电流^[6] (a) 中红外光电微区测试的示意图, 使用 10 mW 的激光; (b) TaAs 样品的光学照片. a, b, c 三个方向标注在了图上. 比例尺: 300 μm ; (c), (d) 10 K 下沿着 $\hat{b}(c), \hat{c}(d)$ 方向的圆偏振光电流, 激光分别沿着平行 (c) 和垂直 (d) 方向. 黑色、红色和蓝色圆点分别与 (b) 中的位置对应. LCP 为左旋偏振光, RCP 为右旋偏振光

Fig. 5. Observation of chirality-dependent photocurrent in TaAs^[6]: (a) Schematic illustration of the mid-IR photocurrent microscope setup. We used a laser power about 10 mW throughout the main text; (b) a photograph of the measured TaAs sample. The crystal axes a, b, c are denoted. Scale bar: 300 μm ; (c), (d) polarization-dependent photocurrents at $T=10$ K measured along the $\hat{b}(c), \hat{c}(d)$ direction with the laser applied at the horizontally (c) or vertically (d) aligned pink, black and blue dots in Figure (b). LCP, left-handed circularly polarized. RCP, right-handed circularly polarized.

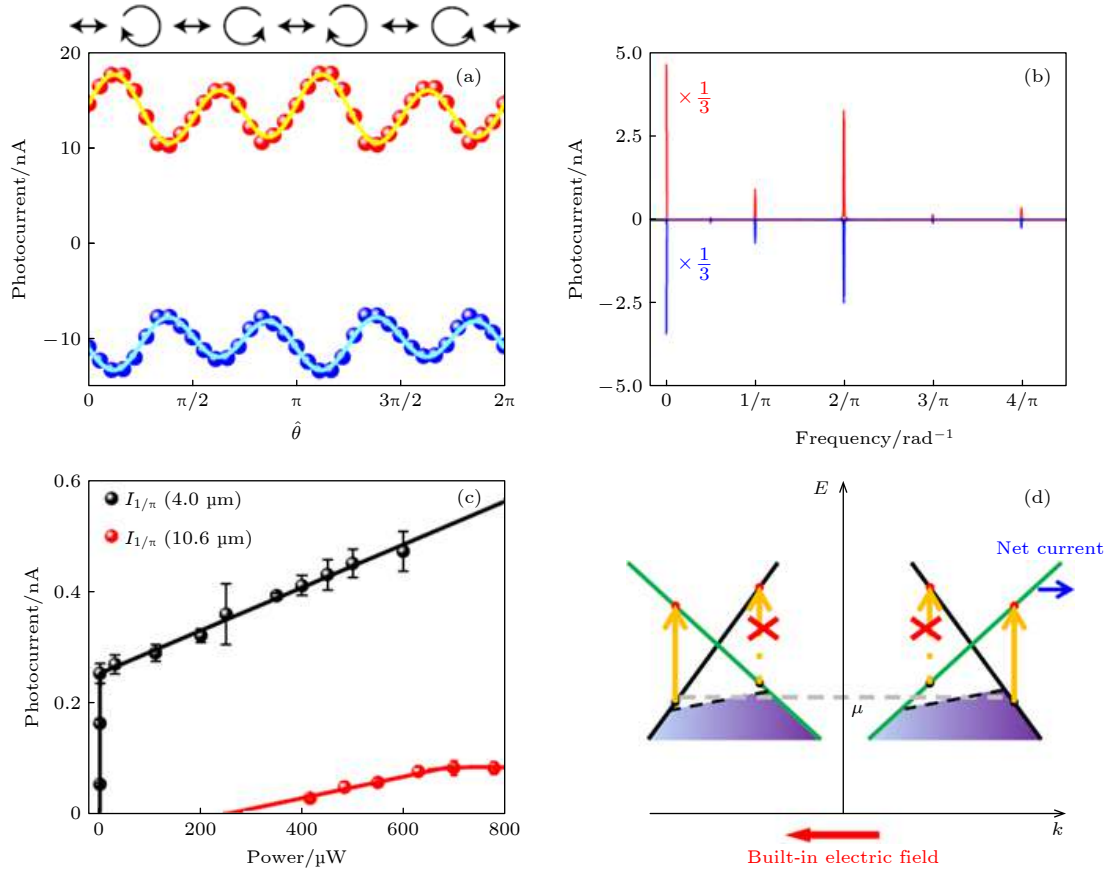


图 6 TaIrTe 的圆偏振光伏效应^[41] (a) 光电流响应, $1/4$ 波片快轴与入射光偏振方向的夹角为自变量; (b) 从 $\hat{\theta}$ 空间到角频率空间的傅里叶变换; (c) 10.6 和 $4.0 \mu\text{m}$ 激发下光电流 $I_{1/\pi}$ 的功率依赖; (d) 动量空间中一对 Weyl 锥的手性选择规则和 CPGE 响应示意图. 灰虚线表示未施加内置电场的费米能级 μ , 红色十字标志着禁止的跃迁

Fig. 6. Circular photogalvanic response of TaIrTe^[41]: (a) Photocurrent response as a function of the angle of the fast axis of the quarter-waveplate with respect to the polarization orientation of the incident light; (b) Fourier transform from $\hat{\theta}$ space to the angular frequency space; (c) power dependence of $I_{1/\pi}$ under 10.6 and $4.0 \mu\text{m}$ excitations, respectively; (d) schematics of the chiral selection rule and CPGE response from a pair of Weyl cones in momentum space. The grey dashed line denotes the Fermi level μ without applying a built-in electric field. Red crosses mark the forbidden transitions.

相反手性的 Weyl 点的倾斜的费米能级的效果. 不平衡的费米能级会造成特定的能量的光子在 Weyl 锥的一侧不能使得电子跃迁, 这样形成了动量空间载流子分布的不平衡, 形成光电流^[26,40]. 对于确定的圆偏振光激发, 由于动量守恒, 两个 Weyl 锥形成的光电流不能相互抵消, 所以最终形成了垂直于电场方向的电流.

3.2 Weyl 半金属中的量子化光电流

对于量子化的 CPGE 光电流^[30], 是由 Weyl 费米子的手性选择以及泡利阻塞导致的, 所不同的是引入了 Berry 曲率和陈数的概念. 加州大学伯克利分校的 Joel E. Moore 从整数化的 Berry 曲率导出了量子化的 CPGE 光电流. Berry 曲率是一个源自于数学微分几何拓扑上的概念^[42–45], 在动量空

间中, 布里渊区被看作底流形, 布里渊区上的每个单电子波函数看作底流形上的纤维, 那么这些电子的波函数与布里渊区在数学上看作一个纤维丛结构. 由于布里渊区在 k_x 和 k_y 的边界区域是等价的, 所以布里渊区也可以在拓扑上看作一个轮胎面. 而通过 Wilson loop 的方法, 我们可以发现相邻 k 点的占据态波函数的内积乘积是规范不变的, 而该相位角在布里渊区等价成的轮胎面上绕的圈数即是陈数.

如果有一类 Weyl 半金属的相反手性的 Weyl 点在不同的能量上, 圆偏振光效应的光电流大小只取决于单个 Weyl 点的陈数, 这样 CPGE 完全是可以量子化的. 一般的低频下, 在入射光强在 1 W 左右时, CPGE 的光电流强度在 $10\text{--}100 \text{ pA}$ 之间. 这是从 Berry 效应的角度得出, 在非线性光学中适

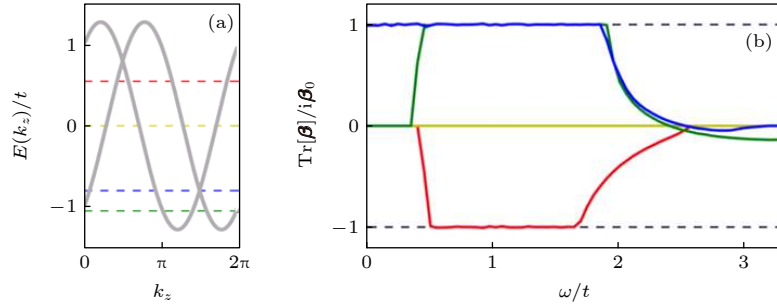


图 7 两带模型 Weyl 半金属的量子化的 CPGE 效应^[48] (a) 两带 Weyl 半金属模型的能带结构; (b) 在图 (a) 虚线所示四个化学势下 CPGE 张量的迹

Fig. 7. CPGE quantization for a two-band Weyl semimetal model^[48]: (a) Band structure for a generic two-band Weyl semimetal model; (b) CPGE trace for four different values of the chemical potential.

用^[31,46,47]. 在上述 Weyl 半金属中, Weyl 点的光电流是可以被量子化的. 如图 7 所示, 对于两带模型的 Weyl 半金属通过陈数理论计算得到的 CPGE 光响应. β 表示为 CPGE 张量, 由下式定义:

$$\frac{dj_i}{dt} = \beta_{ij}(\omega) [\mathbf{E}(\omega) \times \mathbf{E}^*(\omega)]. \quad (11)$$

如图 7(b) 所示, 在有限的频率范围内, 二带 Weyl 半金属中 β_{ij} 的迹是量子化的, 在不同的化学势下出现了相反的 CPGE 电流.

4 谷选择和自旋轨道耦合共同作用

4.1 TMDCs 中的轨道磁矩和 Berry 曲率 (Berry 偶极子)

TMDCs 中的 CPGE 不同于半导体中 Rashba 效应产生的自旋轨道劈裂, 也不同于 Weyl 半金属中的 Weyl 费米子手性引起的光选择, 是由 TMDCs 材料中独特的谷自由度产生的^[49]. 谷电子在晶格周期性势场下的运动遵循布洛赫定理. 布洛赫电子除了具有电荷和自旋两个内禀自由度外, 还有来自于晶格势的自由度. 能带色散曲线上的某些极值点作为谷自由度, 具有独特的电子结构和运动规律. 而通过圆偏振光激发可以得到在单层 TMDCs 材料中的谷极化, 并且弛豫时间长于 1 ns. 因为光子并不具有特别大的动量, 所以一般来说, 光子并不能选择激发特定谷的载流子. 但是在 TMDCs 材料中, 不同的谷具有不同的确定的轨道角动量. 这就给予了人们控制谷自由度的一种新方法, 通过控制光子的角动量, 也就是圆偏振光的方法来控制不同的谷载流子. 实际上, 具有 K 和 K' 谷的石墨烯在理论上也被寄予了观测到谷极化的希望, 但是对于

石墨烯来说, 单层和双层石墨烯的反演对称性难以通过常规的方法来打破^[50,51], 所以实验上一直没有得出相应的结论. 而单层的 TMDCs 材料 MoS_2 , 是具有和石墨烯相似能带的直接带隙的半导体材料^[52–55], 同时晶体结构决定了其被打破的反演对称性, 使其更容易观察到谷极化带来的圆偏振光效应.

在 TMDCs 的圆偏振二色谷选择中, 两个谷的 Berry 曲率和轨道磁矩是谷自由度的重要特性^[49]. 其中 Berry 曲率可以看作动量空间的等价磁场, 产生了横向的电流和霍尔效应. 谷的 Berry 曲率不同导致了不同的谷激发的空穴和电子的方向不同. 而另一个重要的性质是布洛赫电子的轨道磁矩, 谷的赝自旋联系着谷载流子的内在磁矩, 与电子的波尔磁矩相似. 偏振光激发有不同的轨道磁矩的载流子, 在横向上形成角动量电流 (谷电流), 导致 K 和 K' 谷电子在材料的左侧和右侧边缘累积, 谷的有效自由程内形成谷极化 (数量不均匀).

4.2 谷极化引起的自旋耦合的谷光电流

单层的 MoS_2 包含了一层 Mo 原子和两层包含着 Mo 原子层的 S 原子. 由于两个 S 原子层与 Mo 原子层之间分别相互嵌套, 所以空间反演对称性被打破. 如图 8 所示. 在动量空间的 K 和 K' 谷, 价带顶和导带底具有 Mo 原子 d 电子轨道的特征^[56]. 由于其反演对称性被打破, 所以自旋轨道相互作用使得其价带劈裂约 160 meV, 如图 8(b) 所示, 确定沿着晶体 c 轴的自旋投影 S_z , 以及两条分别自旋向上和自旋向下的能带. 这里被打破的自旋简并与时间反演对称性的结合, 说明了在单层的 MoS_2 的价带中, 自旋和谷是耦合的. 因此, 对于沿着 c 轴的

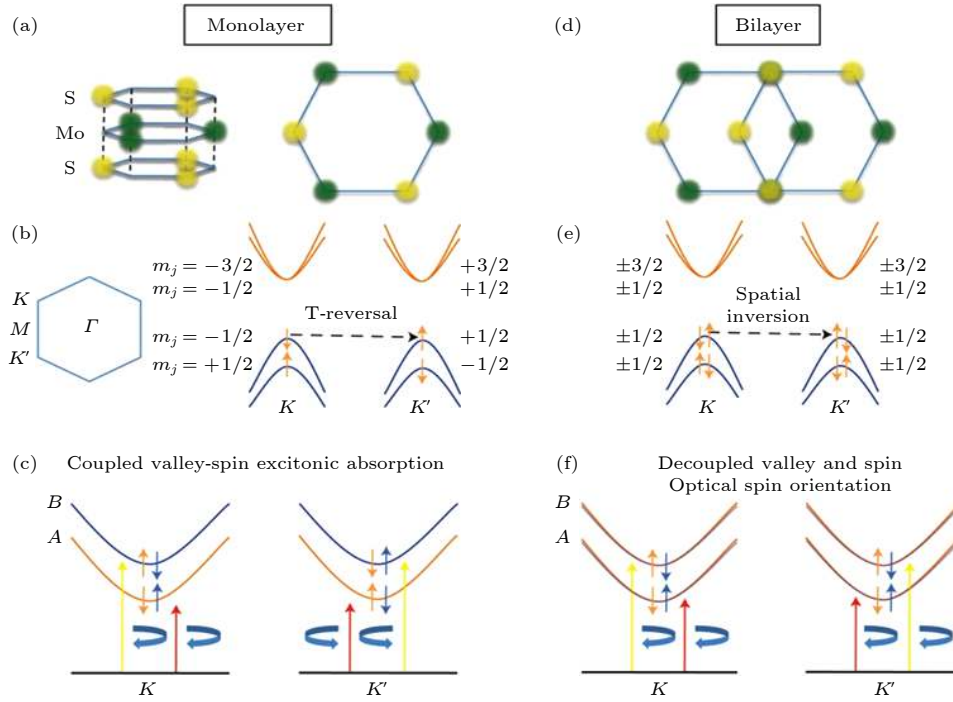


图 8 单层 MoS_2 ((a)–(c)) 和双层 MoS_2 ((d)–(f)) 的在 K 谷和 K' 谷的原子层结构和电子跃迁^[49] (a) 单层 MoS_2 的蜂窝状晶格结构, 空间反演对称性明显被打破; (b) 由总角动量的 z 分量标记的导带最低点和价带最高点, 自旋轨道耦合提高了价带边缘处的自旋简并度. 谷自由度和旋转自由度是耦合的; (c) 圆偏振光在两谷 A 和 B 激子态的光学选择规则; (d) 双层 MoS_2 原子 Bernal 堆积; (e) 通过空间反转和时间反演对称, 价带自旋简并; (f) 双层二硫化钼的光吸收, 在圆极化激发下, 两个谷是等价的, 只产生净自旋取向

Fig. 8. Atomic structure and electronic structure at the K and K' valleys of monolayer ((a)–(c)) and bilayer ((d)–(f)) MoS_2 ^[49]: (a) The honeycomb lattice structure of monolayer MoS_2 . Spatial inversion symmetry is explicitly broken; (b) the lowest-energy conduction bands and the highest-energy valence bands labelled by the z -component of their total angular momentum. The spin degeneracy at the valence-band edges is lifted by the spin-orbit interactions. The valley and spin degrees of freedom are coupled; (c) optical selection rules for the A and B exciton states at two valleys for circularly polarized light; (d) bilayer MoS_2 with Bernal stacking; (e) spin degeneracy of the valence bands is restored by spatial inversion and time-reversal symmetries. Valley and spin are decoupled; (f) optical absorption in bilayer MoS_2 . Under circularly polarized excitation both valleys are equally populated and only a net spin orientation is produced.

圆偏振光, 两个谷的光激发可以产生, 具体来说, 就是对于左旋偏振光对应 K 谷, 右旋偏振光对应 K' 谷^[57]. 而在单层 MoS_2 中的带边跃迁则由电子和空穴作用修正, 产生了 AB 激子^[52,53]. 如图 8(c) 和图 8(f) 所示, 在 TMDCs 材料中的谷选择也是由自旋和谷耦合带来的, 因为 d 电子轨道有很大的质量和很大的能隙, 所以谷选择原理也对 AB 激子有效.

2012 年, 香港大学的崔晓东组和哥伦比亚大学的 Heinz 研究组^[49] 分别在单层 MoS_2 中测得了圆偏振二色谷极化光谱. 如图 9 所示, 在 14 K 的温度下, 得到近乎 100% 的极化率. 从左到右依次为光致发光谱, 极化率, 以及圆偏振光的吸收示意图. 我们通常用其发光光谱来分析谷自旋的性质. 当光子能量接近单层 MoS_2 A 激子能量 1.96 eV

时, 达到了近乎 100% 的极化率. 这表示在左旋光激发时, 只有 K 谷发生了电子的跃迁. 这是由于在单层的 MoS_2 中, 除了自旋相反外, 电子从在 K 和 K' 两个谷中跃迁需要越过很大的势垒, 这使得在低温下左旋光激发中, K' 谷几乎不产生载流子跃迁. 而对于双层样品的圆偏振光测试中, 在左旋光激发下, 左旋和右旋的光致发光同时出现, 极化率在 25%. 这是因为双层的 MoS_2 存在中心反演对称性, 这样就失去了谷选择性. 事实上, 从微观角度来说, 极化率与共振激发的载流子在 K 和 K' 谷的数目有关.

2014 年斯坦福大学的 Cui Y 研究组^[58] 在双层的 WSe_2 晶体管中使用圆偏振光激发, 第一次观测到了方向和振幅与入射光角度相关的自旋谷电流, 并且可用电场控制. 在其中, WSe_2 的两个谷有

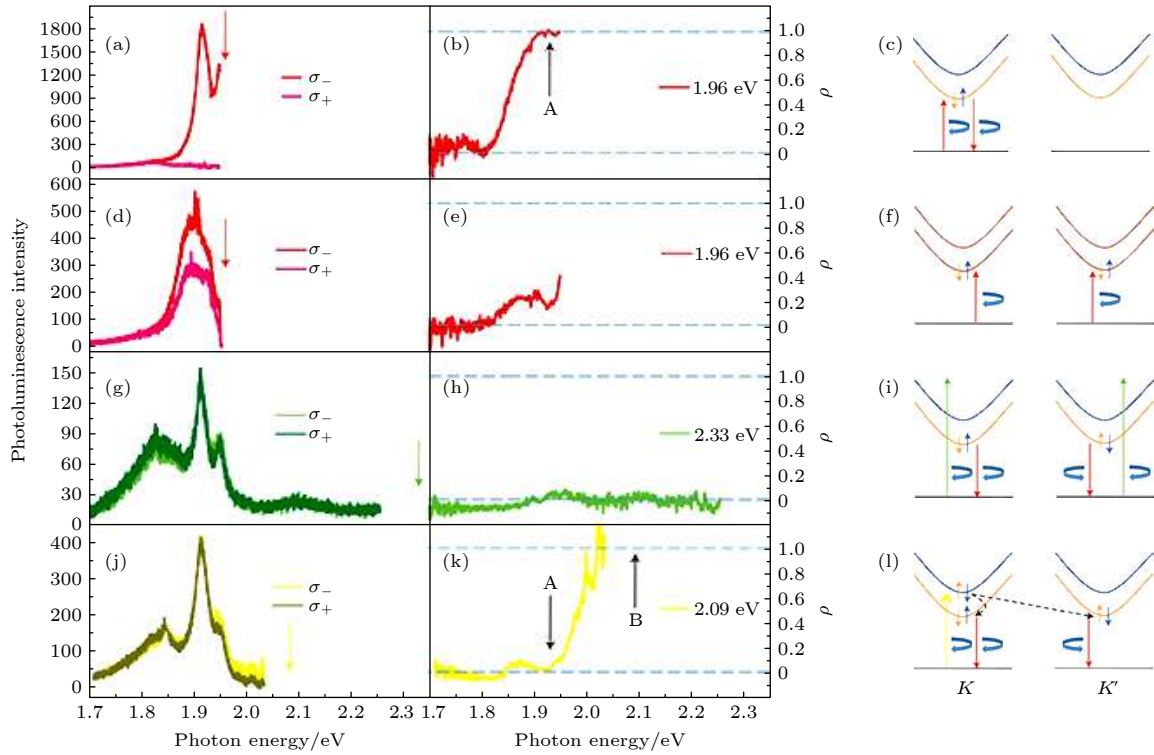


图9 光控制单层 MoS₂ 的谷自旋极化^[49] (a)–(c) 单层 MoS₂ 在 1.96 eV (633 nm) 激发, A 激子共振; (d)–(f) 1.96 eV 时双层 MoS₂ 的激发; (g)–(i) 在 2.33 eV (532 nm) 下激发单层, 与 A, B 激子均非共振; (j)–(l) 在 2.09 eV (594 nm) 下激发单层, 与 B 激子共振. 左列: σ^- 和 σ^+ 分辨光致发光光谱. 中间柱: 相应的光致发光极化率作为光子能量的函数. 右柱: 光学吸收和发射过程的示意图

Fig. 9. Optical control of valley-spin polarization in monolayer MoS₂^[49]: (a)–(c) Excitation of monolayer MoS₂ at 1.96 eV (633 nm), on resonance with the A exciton; (d)–(f) excitation of bilayer MoS₂ at 1.96 eV; (g)–(i) Excitation of monolayer at 2.33 eV (532 nm), off resonance with both the A and B exciton; (j)–(l) excitation of monolayer at 2.09 eV (594 nm), on resonance with the B exciton. Left column: σ^- and σ^+ -resolved photoluminescence spectra. Middle column: corresponding photoluminescence helicity as a function of photon energy. Right column: schematic representation of optical absorption and emission processes.

着不同的选择定律, 因此产生自旋耦合的谷光电流.

在 WSe₂ 上的 CPGE 测试如图 10 所示, 所用的光子能量 (1.17 eV) 小于 WSe₂ 的间接带隙, 因此光电流在层间的表面产生, 而不是由体中的电子空穴对产生. 从图 10 可以看到, 光电流随着激光斑点在样品上的移动而变换极化方向, 但是在样品中心则有非零量, 而光热效应在中心产生的电流一般为零, 所以观察到样品中央的非零电流值可以说明该光电流是由非平衡分布的光生载流子产生. WSe₂ 的 CPGE 的自旋光电流一般认为是劈裂能带的非对称光激发产生, 目前只能从理论的角度去验证 CPGE 现象与 WSe₂ 能带的谷极化有关. 随着费米能级被调控到导带底, 费米面处在 $k_z=0$ 的位置, 所有的光子跃迁都是在导带靠近谷处的直接跃迁. 由于反演对称性被破坏, 不同的谷由布洛赫能带的 Berry 相位区分. 因此可以通过 Berry 相位

来表示其光电流. 经过对其镜面对称性的分析, 在不考虑能带的自旋轨道耦合的情况下, 与入射光垂直的光电流, 应该是一个纯的谷极化的电流. 而考虑自旋轨道耦合后, 自旋简并消失, 有着相反自旋的跃迁电子强度变得不同. 光电流变成一个基于谷极化的空间分布自旋极化的电流, 这给了我们对于观察到的自旋轨道耦合的谷光电流的本质的解释. 由于在 WSe₂ 中 SOC 并不是一个主要的影响, 故自旋电流也比总的光电流小一到两个数量级.

2018 年, Quereda 等^[59] 通过电压调控、波长选择以及偏压调制对单层 MoSe₂ 材料中圆偏振光电流的起源、性质以及物理机制做了一个比较详细的研究. 如图 11 所示, 圆偏振光由 1/4 玻片提供, 波长 785 nm, 单层 MoSe₂ 由上下两层 hBN 包裹. 在 MoSe₂ 体系中同时存在着由晶格对称性引起的二阶响应: 圆偏振光伏效应和线偏振光伏效应以及光子拖拽效应, 总的二阶光生伏特电压可以写为

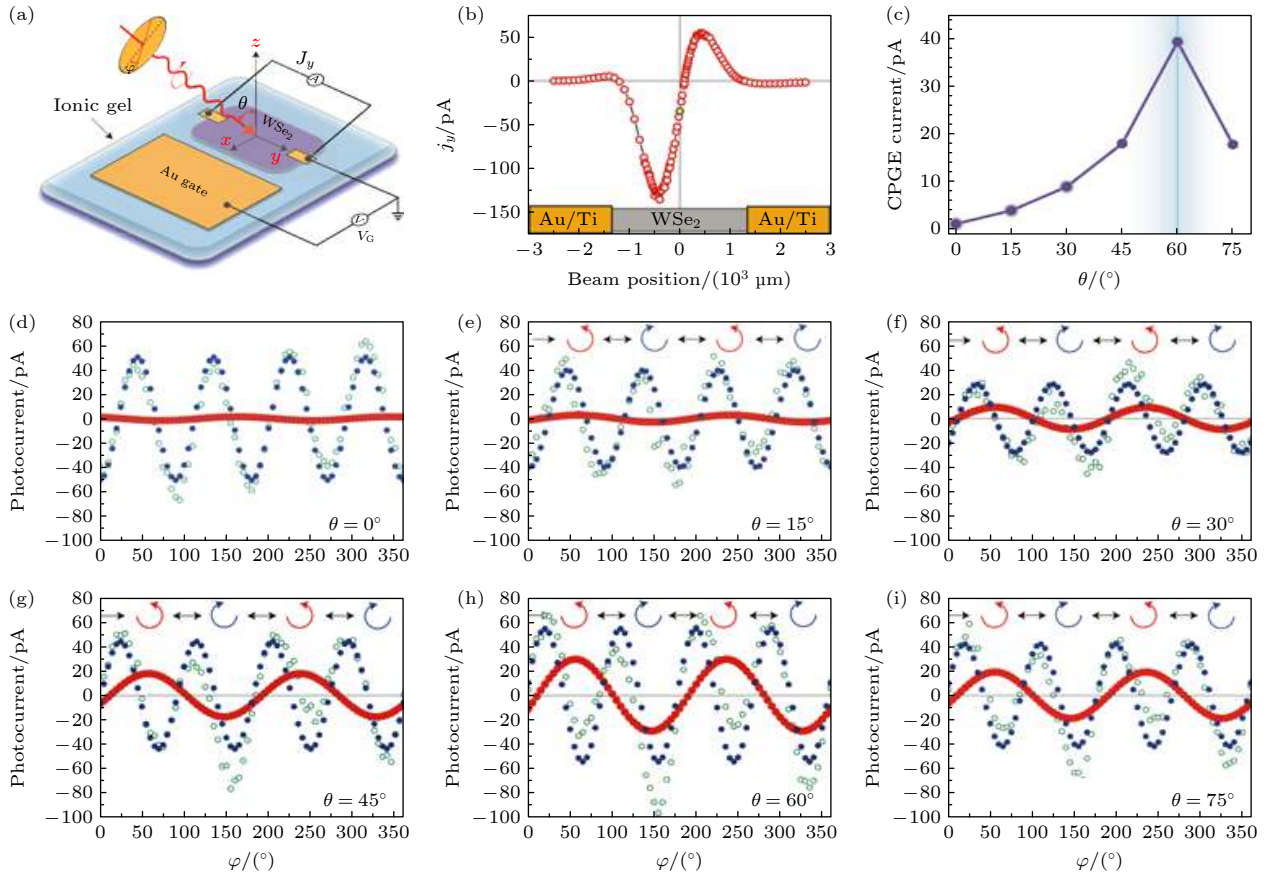


图 10 双层 WSe₂ 的晶体管示意图和与角度相关的 CPGE 测量^[58] (a) 离子液体栅控双层 WSe₂ 晶体管结构示意图; (b) 在零偏压 WSe₂ 晶体管器件中激光点位置依赖的光电流, 固定偏振的激光在两个电极 (底下的黄色矩形) 之间扫描; (c) CPGE 光电流与入射角 θ 的关系; (d)–(i) 在不同入射角 θ 下, 在 $y = 0$ 处测量的偏置 WSe₂ 晶体管中光电流的光偏振依赖性. 空心绿圈为 j_y , 其形式为 $j_y = C \sin 2\varphi + L \sin 4\varphi + A$. 实心蓝色圆是由线性光电效应产生的光电流, 由 $\pi/2$ 周期振荡项 $L \sin 4\varphi$ 拟合得到. 实心红点为 CPGE 光电流, 具有 π 周期振荡. 入射光在每四分之一波片角度下的偏振度 φ , 由每个图的插图中所显示的符号表示

Fig. 10. Schematic diagram and incident angle-dependent CPGE measurement of ambipolar WSe₂ electric-double-layer transistors^[58]: (a) Schematic structure of a typical WSe₂ transistor with ionic gel gating; (b) a position-dependent photocurrent from sweeping the laser spot across the two electrodes (yellow rectangles shown at the bottom) in the zero-biased WSe₂ transistor device with a fixed polarization; (c) CPGE photocurrent as a function of the incident angle, θ ; (d)–(i) light polarization dependence of photocurrent in a biased WSe₂ transistor, measured at $y = 0$ with different incident angles θ . The open green circles are the measured j_y following the form $j_y = C \sin 2\varphi + L \sin 4\varphi + A$. The filled blue circles are the photocurrent that originates from the linear photogalvanic effect and obtained from the $\pi/2$ -period oscillation term $L \sin 4\varphi$ by fitting. The filled red dots are the CPGE photocurrent with a π -periodic current oscillation. Polarization of the incident light at each quarter-wave plate angle, φ , is given by the symbols shown in the inset of each figure.

$V_{PC} = V_0 + C \sin(2\theta) + L_1 \sin(4\theta) + L_2 \cos(4\theta)$, C 来源于圆偏振光响应, L_1 来源于线偏振光响应, L_2 来源于光子拖拽效应. V_0 一般来自于器件结构的不均匀以及光生热电等常规光电效应, 与圆偏振光偏振角度无关. 如图 11(b) 所示, 光电压和偏振角度显著相关, 并同时包含 2θ 周期和 4θ 周期的振荡, 表明光电压同时来源于圆偏振光响应以及线偏光响应. 图 11(c) 提取的振荡曲线中的 C , L_1 以及 L_2 和光照功率之间的线性关系表明三者皆来自于入射光电场的二阶响应. 图 11(d) 为 C , L_1 和 L_2 与入射波长的关系, C 在 785 nm 附近到达最大值, 这

和 MoSe₂ A 激子和三激子的跃迁波长是一致的, 表明 MoSe₂ 圆偏振光伏效应主要来源于带间跃迁产生的空穴电子对. 当对器件施加偏压时, C 会随偏压显著增大, 如图 11(e), 而 L 几乎不变, 说明圆偏振光非常依赖于材料内部的对称性. 图 11(f) 为不同偏压下 C 与入射波长的关系, 零偏压下的 C 比 1 V 下的 C 峰值对应波长要长 5–10 nm, 这与 MoSe₂ 体系中 A 激子和三激子能级差相似, 在零偏压下, 圆偏振光伏的贡献可能主要来源于三激子, 在较大偏压下 A 激子空穴电子对主要参与圆偏振光伏响应.

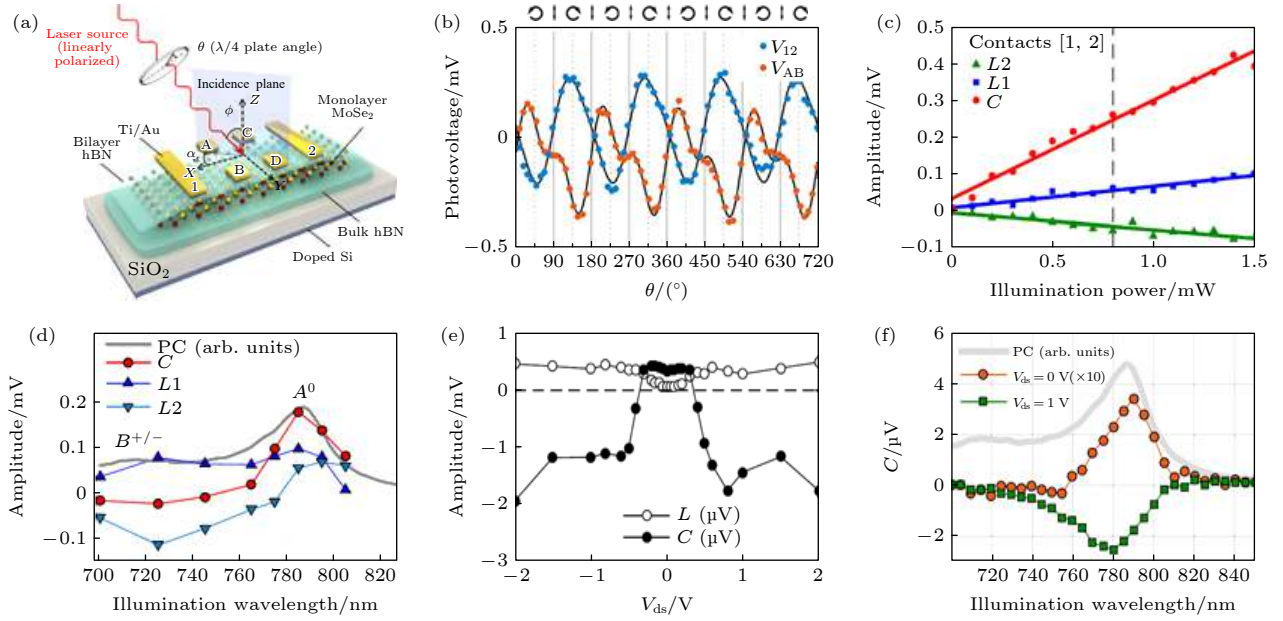


图 11 实验示意图以及圆偏振光响应^[59] (a) 实验设计示意图, 激发光的手性由旋转 1/4 玻片的角度 θ 来实现; (b) 在 $\lambda = 785 \text{ nm}$, $\phi = 20^\circ$, $V_{\text{ds}} = 0$, $V_{\text{gate}} = 0$, and $\alpha = 45^\circ$ 下, [1, 2] (蓝色) 和 [A, B] (橙色) 电极处随着四分之一玻片角度变化手性依赖的光生电压; (c) C , L_1 和 L_2 随功率的关系. 实线是对实验数据的线性拟合. 垂直线是实验过程中使用的功率: 0.8 mW ; (d) 1L-MoSe₂ 晶体的光电流谱图 (灰色实线), 以及 C , L_1 和 L_2 和光谱的关系 (红色、蓝黑以及浅蓝色, 如图例); (e) C 和 L 随着源流电压的关系; (f) 分别在 $V_{\text{ds}} = 0 \text{ V}$ (橙色) 和 $V_{\text{ds}} = 1 \text{ V}$ (绿色) 圆偏振光电流作为波长的函数, 为方便查看, $V_{\text{ds}} = 0 \text{ V}$ 的数据已乘 10

Fig. 11. Experiment geometry and helicity-dependent response^[59]: (a) Schematic experimental setup. The helicity of the laser excitation is controlled by rotating the quarter-waveplate angle, θ ; (b) helicity-dependent photovoltage of the contacts [1, 2] (blue) and [A, B] (orange) as a function of the quarter-waveplate angle θ for $\lambda = 785 \text{ nm}$, $\phi = 20^\circ$, $V_{\text{ds}} = 0$, $V_{\text{gate}} = 0$, and $\alpha = 45^\circ$; (c) power dependence of C , L_1 and L_2 . The solid lines are linear fits to the experimental data. The vertical dashed line indicates the power used during the experiments, 0.8 mW ; (d) photocurrent spectrum of the 1L-MoSe₂ crystal (grey, solid line) and spectral dependence of the fitting parameters C , L_1 and L_2 (red, dark blue and pale blue lines, see legend); (e) C and L parameters as a function of the drain-source voltage; (f) CPC amplitude, C , as a function of the wavelength for $V_{\text{ds}} = 0 \text{ V}$ (orange circles) and $V_{\text{ds}} = 1 \text{ V}$ (green squares). For an easier visualization, the data for $V_{\text{ds}} = 0 \text{ V}$ have been multiplied by 10.

同年, Xu 等^[60] 对 1T_d 相的单层 WTe₂ 进行双栅调控的圆偏振光电流探测. 圆偏振光电流依赖于材料晶向和电位移矢量, 结果表明 Berry 曲率偶极子是产生 CPGE 现象的关键. 如图 12 所示, 1T_d 的单层 WTe₂ 打破了 C_{2a} 的空间反演对称, 引入了能带反转和自旋劈裂, 在特定的方向上产生了 Berry 曲率偶极子 (图 12(c)). 而特定方向的 Berry 曲率偶极子导致材料只有在一个方向上由 CPGE 效应. CPGE 光电流:

$$J^{\text{CPGE}} = \frac{e^3 \tau}{\pi \hbar^2} \text{Im}[\mathbf{E}(-\omega) \times \hat{c}(\mathbf{A}^\Omega \cdot \mathbf{E}(\omega))],$$

其中

$$\mathbf{A}^\Omega = \oint d\mathbf{k} \times \boldsymbol{\Omega}(\mathbf{k})$$

为 Berry 曲率在布里渊区的积分, $\boldsymbol{\Omega}(\mathbf{k})$ 为 Berry 曲率. 可以看到 Berry 曲率直接作用到了 CPGE

光电流的产生. 理论计算表明材料中电位移矢量可以增强 Berry 曲率偶极子, 双栅调控电位移矢量显著地提升圆偏振光电流, 说明 WTe₂ 中的 CPGE 效应来自于 Berry 曲率偶极子.

2021 年, Sun 研究组^[61] 在 1T' 相的 MoTe₂ 中发现了基于三阶非线性响应的圆偏振光伏效应. 如图 13 所示, 1T' 相的 MoTe₂ 同时具有沿 c 轴的镜面对称, 沿 c 轴的二重旋转对称. 导致二阶 CPGE 张量为零, 也就是说, 在 1T' 相的 MoTe₂ 中是没有基于二阶光电响应的 CPGE 效应的. 然而通过 1/4 玻片在 MoTe₂ 的边界依然看到了比较明显的 CPGE 效应, 而在除了界面的其他地方没有看到 CPGE 效应. MoTe₂ 可能来源于平面内内建电场 E_{DC} 导致的三阶非线性效应. 这个工作表明在晶体空间反演对称没有打破的情况下, 通过内建电场或外加电场等其他因素, 依然可以实现 CPGE 现象.

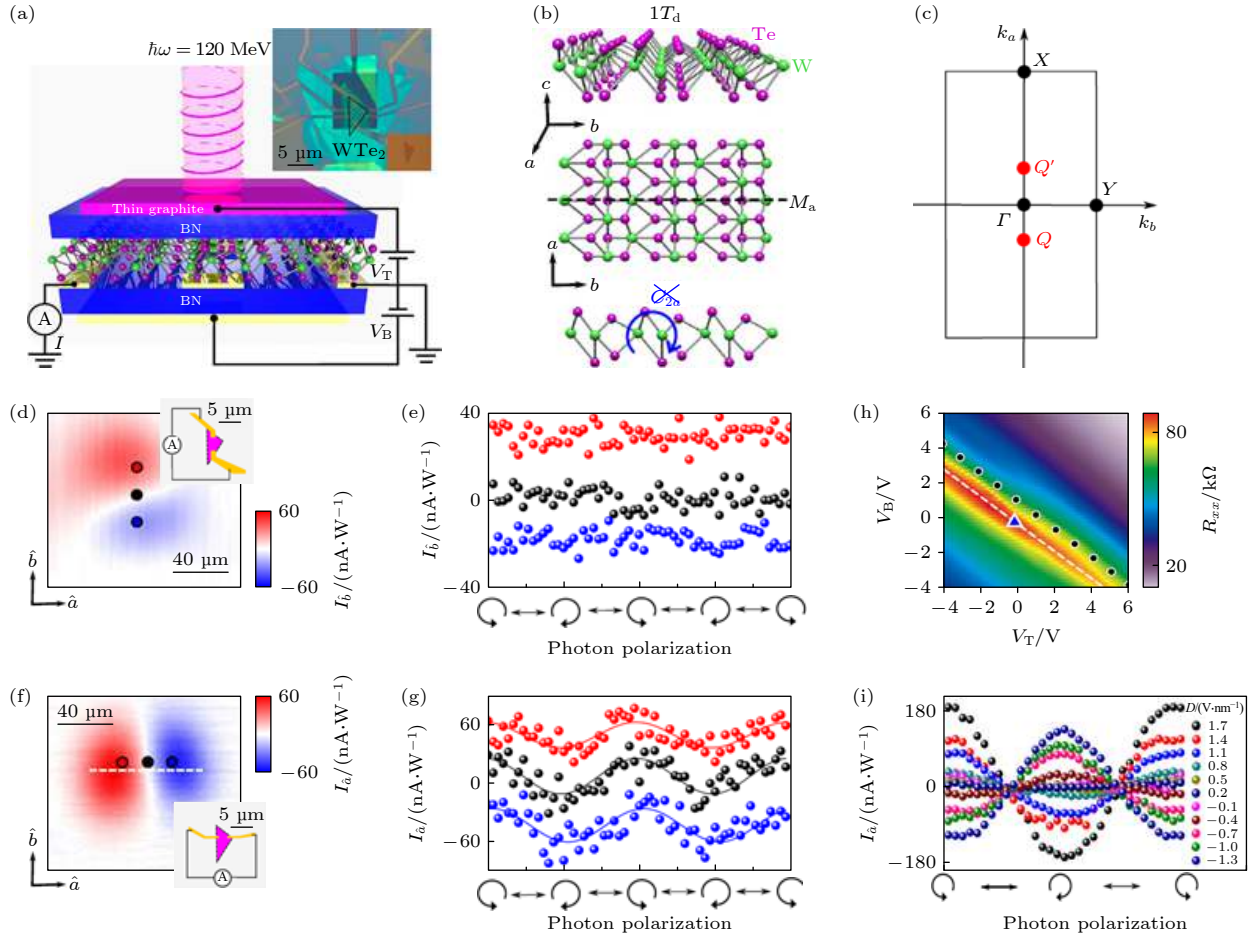


图 12 单层 WTe_2 中观察到的圆偏振光电响应^[60] (a) 双栅单层 WTe_2 器件中红外圆偏振光电效应实验原理图; (b) 1T_d 的结构只有 M_a 镜面对称, C_{2a} 旋转对称是打破的; (c) 第一布里渊区中重要的动量标识; (d) \hat{b} 方向的线性极化光电流, 激光斑点在 \hat{a} - \hat{b} 平面内逐点扫描; (e) 光斑位置在 (d) 中红点、黑点和蓝点位置处的光电流; (f), (g) 类似, 为 \hat{a} 方向; (h) 在温度为 20 K 下纵向直流电阻 R_{xx} 随上下栅压变化的函数; (i) 在 20 K 下不同电位移场下的 CPGE 光电流

Fig. 12. Observation of circular photogalvanic effect in monolayer WTe_2 ^[60]: (a) Schematic experimental set-up for detecting the midinfrared circular photogalvanic effect on a dual-gated monolayer WTe_2 device; (b) the 1T_d structure has only the mirror plane M_a . The rotational symmetry C_{2a} is broken (exaggerated); (c) the first Brillouin zone with important momenta labelled; (d) photocurrent along \hat{b} with linear polarized light as a function of the beam spot location in the \hat{a} - \hat{b} plane; (e) polarization-dependent $I_{\hat{b}}$ with the light spot fixed at the red, black and blue dots shown in Figure (d); (f), (g) same as panels (d)(e) but for the photocurrent along \hat{a} ($I_{\hat{a}}$); (h) longitudinal DC resistance (R_{xx}) as a function of the top and bottom gate voltages at $T = 20\text{ K}$; (i) Polarization-dependent circular photogalvanic effect (CPGE) currents for different displacement fields at $T = 20\text{ K}$.

5 展 望

CPGE 效应一直是非线性光电响应领域与自旋电子学领域研究的热门话题, 目前为止, 我们可以基本确定在 Rashba 的半导体量子阱, Weyl 费米子手性极化的 Weyl 半金属, 和谷极化和自旋轨道耦合共同作用的 TMDCs 这些材料体系中 CPGE 的起源和物理过程, 但依然需要进一步的研究, 例如建立统一的理论通过对谷极化、对称性、Berry 曲率偶极子以及三阶非线性效应对已知的晶体结构的 CPGE 效应进行预测. 除了以上的 CPGE 现

象, 还有另外其他基于不同机制的, 但仍在停留在理论上的 CPGE 现象, 例如转角石墨烯中的层间圆偏振光伏效应 (layer circular photogalvanic effect, LCPGE) 现象^[62]. 2020 年宾夕法尼亚大学的 Xiao 研究组提出了在转角石墨烯中可调控的层间圆偏振光伏效应, 圆偏振光会引起自旋相关的指向平面外的动量偶极子出现. 转角双层石墨烯层间圆偏振光伏效应出现的原因可能由量子公度张量或 Berry 曲率所表示的层间相互作用量造成. 他们计算了在双层石墨烯中的 LCPGE, 并且发现当转角调整时, 光的共振激发频率从可见光变换到了远红

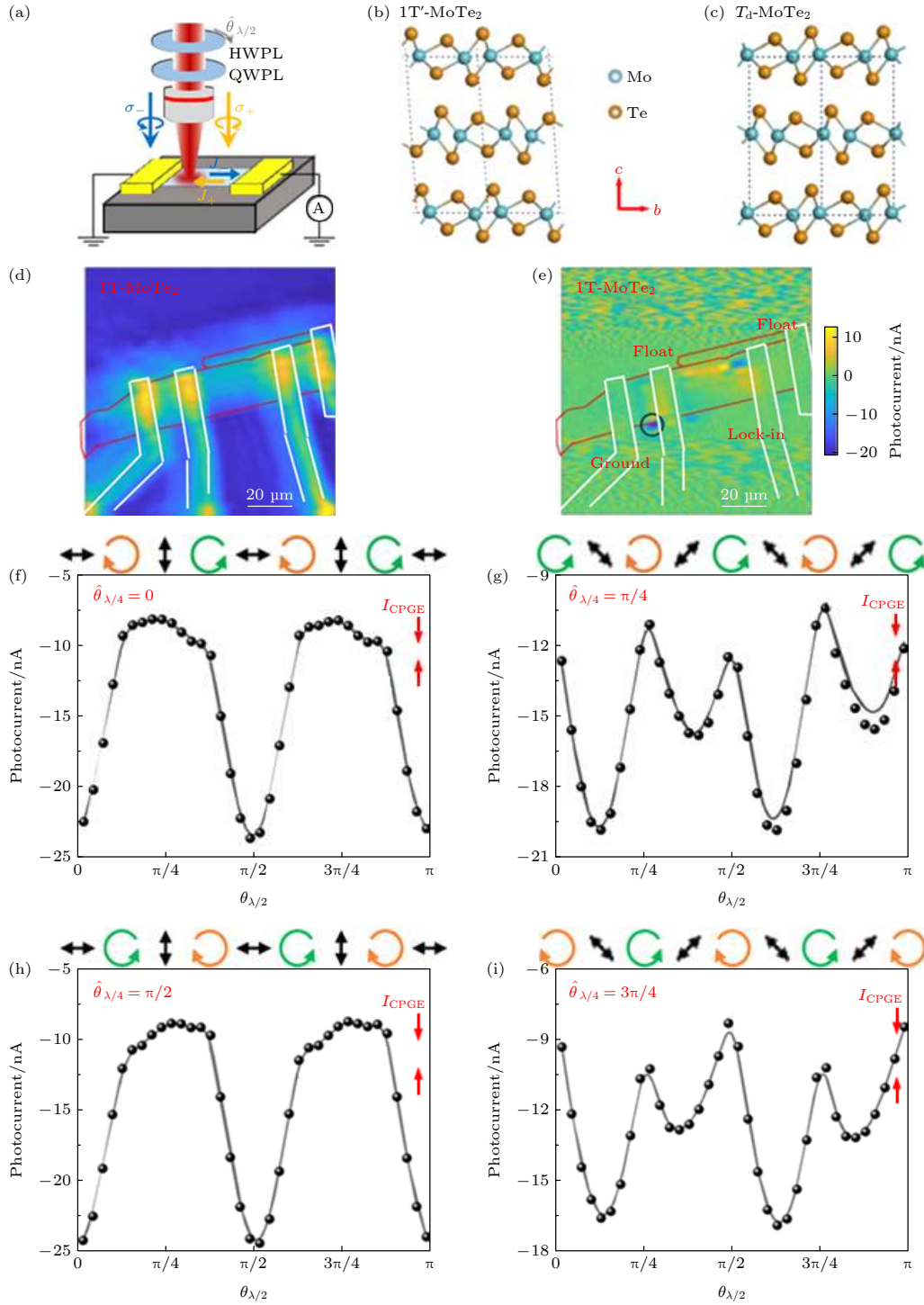


图 13 $1T'$ - MoTe_2 器件 CPGE^[61] (a) 空间分辨极化依赖的光电流测量示意图; (b), (c) $1T'$ - MoTe_2 和 T_d - MoTe_2 晶体结构, 面内晶体结构相同, 堆叠角不同, 分别为 93.9° 和 90.0° ; (d), (e) $1T'$ - MoTe_2 器件的扫描反射光电流谱, 没有冷却过程, 比例尺为 $20\ \mu\text{m}$; (f)—(i) 黑线为 $1/4$ 波片在 $0, \pi/4, \pi/2$ 和 $3\pi/4$ 下光电流随着半波片快轴角度变化的关系, 测量是在金属电极附近的负响应区的峰值处进行的. 四分之一波片旋转时的偏振度由图上的箭头表示. 所有的测试都在 $297\ \text{K}$ 温度下, $4\ \mu\text{m}$ 波长激光, 功率为 $660\ \mu\text{W}$ Fig. 13. $1T'$ - MoTe_2 device CPGE^[61]: (a) Schematic diagram of the spatial-resolved and polarization-dependent photocurrent measurement setup; (b), (c) crystal structures of $1T'$ - and T_d - MoTe_2 , with the same in-plane crystal structures and different stacking angles of 93.9° and 90.0° , respectively; (d), (e) scanning reflection and photocurrent images of the $1T'$ - MoTe_2 device without any cooling down process. Scale bars are $20\ \mu\text{m}$; (f)—(i) black dots show photocurrent dependent on the rotation angle of the fast axis of the half-wave plate, with the quarter wave-plate behind set at $0, \pi/4, \pi/2$, and $3\pi/4$, respectively. The measurement was carried on at the peak of the negative photo response region at the vicinity of metal electrodes. The strength of I_{CPGE} is marked by the red dashed lines. Polarization sequences during rotation of quarter wave-plate are shown by the arrows on top of each figure. All the measurement was under $4\ \mu\text{m}$ excitation of $660\ \mu\text{W}$ at $297\ \text{K}$.

外. 因此 LCPGE 现象可以用于在红外范围的, 对频率变化灵敏的圆偏振光探测器.

传统的 CPGE 现象发生在有特殊晶格结构的材料中, 而体 Si 由于其传统的金刚石结构而无法产生圆偏振光伏效应. 但是在 Si 的纳米线和金属的接触中, 通过电场打破反演对称性, 也可以产生 CPGE^[63], 通过调整栅压来调控 CPGE 的方向和大小, 预示着 CPGE 在硅基集成电子器件中也有着全新的应用. 在 Si 纳米线中生成的手性相关的光电流是来源于 Si 纳米线边缘的空间对称性的破缺. Si 纳米线中的 CPGE 效应可以由纳米线的边缘锐利程度, 晶格各向异性, 附加场来调控, 所以通过 Si 纳米线中的 CPGE 有可能实现基于轨道自由度的存储器件. 另外, 在二维的拓扑绝缘体中也分别由 CPGE 效应被提出, 也预示着 CPGE 未来更广泛的应用前景.

上世纪六十年代以来, 在能带理论和布洛赫电子学构建的框架下, 半导体物理产生了巨大的发展, 进而催生了蓬勃发展的半导体产业. 随着凝聚态物理的进一步发展, 人们对于半导体中电子的行为有了更加深刻的认知. 人们发现, 对于材料中电子一些微观属性的调控可以获得更大的自由度. 自旋电子学中对于材料中的电子自旋方向的检测与调控提供了一个新的维度; 新型的拓扑材料中, Weyl 半金属中来源于动量空间中电子波函数相位差形成极化的 Weyl 费米子, 为量子计算与存储提供了新的方向; 而近年来二维材料发展, 使人们意识到不同手性的能谷对于电子的选择性激发, 可以为电子的调控提供新的自由度, 从而产生了新兴学科谷电子学.

在对自旋、Weyl 费米子以及 TMDCs 中手性能谷的探测与调控方面, 圆偏振光是一个广泛使用的手段. 圆偏振光本身携带手性自由度, 左旋光和右旋光对应于自旋 -1 和 $+1$ 的光子, 而手性光子可以和材料中的特定属性相互作用, 例如激发自旋极化、和特定手性 Weyl 费米子相互作用, 以及 TMDCs 中激发特定的谷极化. 而通过对圆偏振光电流的分析, 就可以对材料中自旋和谷自由度进行探测和调控. 对于圆偏振光伏效应的研究, 对于进一步探索材料的微观属性有巨大的意义. 对于材料中自旋和谷自由度的探测和调控, 也将促进片上纳米光电器件的发展, 此外, 将谷自由度和自旋自由度作为基本计算单位, 将为新型逻辑器件与存储器

件开辟一个新的方向.

参考文献

- [1] Watanabe H, Yanase Y 2021 *Phys. Rev. X* **11** 011001
- [2] Ivchenko E L, Pikus G E 1978 *ZhETF Pisma Redaktsiiu* **27** 640
- [3] Belinicher V I 1978 *Phys. Lett. A* **66** 213
- [4] Ganichev S D, Ivchenko E L, Danilov S N, Eroms J, Wegscheider W, Weiss D, Prettl W 2001 *Phys. Rev. Lett.* **86** 4358
- [5] Ganichev S D, Prettl W 2003 *J. Phys. Condens. Matter* **15** R935
- [6] Ma Q, Xu S Y, Chan C K, Zhang C L, Chang G, Lin Y, Xie W, Palacios T, Lin H, Jia S, Lee P A, Jarillo-Herrero P, Gedik N 2017 *Nat. Phys.* **13** 842
- [7] Yuan H, Wang X, Lian B, Zhang H, Fang X, Shen B, Xu G, Xu Y, Zhang S-C, Hwang H Y, Cui Y 2014 *Nat. Nanotechnol.* **9** 851
- [8] Weyl H 1929 *Z. Phys.* **56** 330
- [9] McEuen P L, Bockrath M, Cobden D H, Yoon Y G, Louie S G 1999 *Phys. Rev. Lett.* **83** 5098
- [10] Wan X, Turner A M, Vishwanath A, Savrasov S Y 2011 *Phys. Rev. B* **83** 205101
- [11] Burkov A A, Balents L 2011 *Phys. Rev. Lett.* **107** 127205
- [12] Huang S M, Xu S Y, Belopolski I, Lee C C, Chang G, Wang B, Alidoust N, Bian G, Neupane M, Zhang C, Jia S, Bansil A, Lin H, Hasan M Z 2015 *Nat. Commun.* **6** 7373
- [13] Weng H, Fang C, Fang Z, Bernevig B A, Dai X 2015 *Phys. Rev. X* **5** 011029
- [14] Xu S Y, Belopolski I, Alidoust N, Neupane M, Bian G, Zhang C, Sankar R, Chang G, Yuan Z, Lee C C, Huang S M, Zheng H, Ma J, Sanchez D S, Wang B, Bansil A, Chou F, Shibaev P P, Lin H, Jia S, Hasan M Z 2015 *Science* **349** 613
- [15] Lü B Q, Xu N, Weng H M, Ma J Z, Richard P, Huang X C, Zhao L X, Chen G F, Matt C E, Bisti F, Strocov V N, Mesot J, Fang Z, Dai X, Qian T, Shi M, Ding H 2015 *Nat. Phys.* **11** 724
- [16] Yang L X, Liu Z K, Sun Y, Peng H, Yang H F, Zhang T, Zhou B, Zhang Y, Guo Y F, Rahn M, Prabhakaran D, Hussain Z, Mo S K, Felser C, Yan B, Chen Y L 2015 *Nat. Phys.* **11** 728
- [17] Belopolski I, Xu S Y, Sanchez D S, Chang G, Guo C, Neupane M, Zheng H, Lee C C, Huang S M, Bian G, Alidoust N, Chang T R, Wang B, Zhang X, Bansil A, Jeng H T, Lin H, Jia S, Hasan M Z 2016 *Phys. Rev. Lett.* **116** 066802
- [18] Jia S, Xu S Y, Hasan M Z 2016 *Nat. Mater.* **15** 1140
- [19] Parameswaran S A, Grover T, Abanin D A, Pesin D A, Vishwanath A 2014 *Phys. Rev. X* **4** 031035
- [20] Murakami S 2007 *New J. Phys.* **9** 356
- [21] Lü B Q, Xu N, Weng H M, Ma J Z, Richard P, Huang X C, Zhao L X, Chen G F, Matt C E, Bisti F, Strocov V N, Mesot J, Fang Z, Dai X, Qian T, Shi M, Ding H 2015 *Nature Physics* **11** 724
- [22] Xiong J, Kushwaha S K, Liang T, Krizan J W, Hirschberger M, Wang W, Cava R J, Ong N P 2015 *Science* **350** 413
- [23] Zhang C L, Xu S Y, Belopolski I, Yuan Z, Lin Z, Tong B, Bian G, Alidoust N, Lee C C, Huang S M, Chang T R, Chang G, Hsu C H, Jeng H T, Neupane M, Sanchez D S, Zheng H, Wang J, Lin H, Zhang C, Lu H Z, Shen S Q, Neupert T, Hasan M Z, Jia S 2016 *Nat. Commun.* **7** 10735
- [24] Huang X, Zhao L, Long Y, Wang P, Chen D, Yang Z, Liang

- H, Xue M, Weng H, Fang Z, Dai X, Chen G 2015 *Phys. Rev. X* **5** 031023
- [25] Lü B Q, Weng H M, Fu B B, Wang X P, Miao H, Ma J, Richard P, Huang X C, Zhao L X, Chen G F, Fang Z, Dai X, Qian T, Ding H 2015 *Phys. Rev. X* **5** 031013
- [26] Chan C K, Lindner N H, Refael G, Lee P A 2017 *Phys. Rev. B* **95** 041104
- [27] Taguchi K, Imaeda T, Sato M, Tanaka Y 2016 *Phys. Rev. B* **93** 201202
- [28] Ishizuka H, Hayata T, Ueda M, Nagaosa N 2016 *Phys. Rev. Lett.* **117** 216601
- [29] Morimoto T, Zhong S, Orenstein J, Moore J E 2016 *Phys. Rev. B* **94** 245121
- [30] de Juan F, Grushin A G, Morimoto T, Moore J E 2017 *Nat. Commun.* **8** 15995
- [31] Sodemann I, Fu L 2015 *Phys. Rev. Lett.* **115** 216806
- [32] Chan C K, Lee P A, Burch K S, Han J H, Ran Y 2016 *Phys. Rev. Lett.* **116** 026805
- [33] Chen Y, Wu S, Burkov A A 2013 *Phys. Rev. B* **88** 125105
- [34] Hosur P, Qi X L 2015 *Phys. Rev. B* **91** 081106
- [35] Goswami P, Sharma G, Tewari S 2015 *Phys. Rev. B* **92** 161110
- [36] Ma J, Pesin D A 2015 *Phys. Rev. B* **92** 235205
- [37] Xu X, Yao W, Xiao D, Heinz T F 2014 *Nat. Phys.* **10** 343
- [38] Mak K F, Shan J 2016 *Nat. Photonics* **10** 216
- [39] Murakami S 2007 *New Journal of Physics* **9** 356
- [40] Yu R, Weng H, Fang Z, Ding H, Dai X 2016 *Phys. Rev. B* **93** 205133
- [41] Ma J, Gu Q, Liu Y, Lai J, Yu P, Zhuo X, Liu Z, Chen J H, Feng J, Sun D 2019 *Nat. Mater.* **18** 476
- [42] Berry M V 1984 *Proc. R. Soc. London, Ser. A* **392** 45
- [43] Thouless D J, Kohmoto M, Nightingale M P, den Nijs M 1982 *Phys. Rev. Lett.* **49** 405
- [44] Xiao D, Shi J, Niu Q 2005 *Phys. Rev. Lett.* **95** 137204
- [45] Haldane F D M 1988 *Phys. Rev. Lett.* **61** 2015
- [46] Moore J E, Orenstein J 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 026805
- [47] Liu J, Xia F, Xiao D, Garcia de Abajo F J, Sun D 2020 *Nat. Mater.* **19** 830
- [48] de Juan F, Grushin A G, Morimoto T, Moore J E 2017 *Nature Communications* **8** 15995
- [49] Mak K F, He K L, Shan J, Heinz T F 2012 *Nat. Nanotechnol.* **7** 494
- [50] Xiao D, Yao W, Niu Q 2007 *Phys. Rev. Lett.* **99** 236809
- [51] Yao W, Xiao D, Niu Q 2008 *Phys. Rev. B* **77** 235406
- [52] Mak K F, Lee C, Hone J, Shan J, Heinz T F 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 136805
- [53] Splendiani A, Sun L, Zhang Y, Li T, Kim J, Chim C Y, Galli G, Wang F 2010 *Nano Lett.* **10** 1271
- [54] Lebegue S, Eriksson O 2009 *Phys. Rev. B* **79** 115409
- [55] Li T, Galli G 2007 *J. Phys. Chem. C* **111** 16192
- [56] Mattheis L F 1973 *Phys. Rev. B* **8** 3719
- [57] Xiao D, Liu G-B, Feng W, Xu X, Yao W 2012 *Phys. Rev. Lett.* **108** 196802
- [58] Yuan H, Wang X, Lian B, Zhang H, Fang X, Shen B, Xu G, Xu Y, Zhang S C, Hwang H Y, Cui Y 2014 *Nature Nanotechnology* **9** 851
- [59] Quereda J, Ghiasi T S, You J S, van den Brink J, van Wees B J, van der Wal C H 2018 *Nat. Commun.* **9** 3346
- [60] Xu S Y, Ma Q, Shen H, Fatemi V, Wu S, Chang T R, Chang G, Valdivia A M M, Chan C K, Gibson Q D, Zhou J, Liu Z, Watanabe K, Taniguchi T, Lin H, Cava R J, Fu L, Gedik N, Jarillo-Herrero P 2018 *Nat. Phys.* **14** 900
- [61] Ma J C, Muniz R A, Qi S M, Lai J W, Zhang K N, Liu Y N, Zhuo X, Chen S X, Chen J H, Zhou S Y, Sun D 2021 *2D Mater.* **8** 025016
- [62] Gao Y, Zhang Y, Xiao D 2020 *Phys. Rev. Lett.* **124** 077401
- [63] Dhara S, Mele E J, Agarwal R 2015 *Science* **349** 726

SPECIAL TOPIC—Toward making functional devices at an atomic scale:
Fundamentals and frontiersCircular photogalvanic effect^{*}Su Xin Huang Tian-Ye Wang Jun-Zhuan Liu Yuan
Zheng You-Liao[†] Shi Yi[‡] Wang Xiao-Mu^{††}*(School of Electric Science and Engineering, Nanjing University, Nanjing 210023, China)*

(Received 15 March 2021; revised manuscript received 8 June 2021)

Abstract

The spin and valley degree of freedom are a novel way to extend the functionalities of spintronic and valleytronic devices. A traditional, room-temperature way of examining the spin polarization generates the photocurrent whose magnitude and polarity depend on chirality of induced optical excitation. The circularly polarized photovoltaic effect is a kind of second-order nonlinear photoelectric response, which means that the photocurrent generated varies with the polarization angle of circularly polarized light. The generation of photocurrent depends on many factors such as spin, valley polarization, symmetry and Berry curvature, so it can reveal the fundamental physical properties of materials. In this review, we discuss the main mechanisms of circularly polarized photovoltaic effect in different material systems, including circularly polarized optical current caused by symmetry breakdown of Rashba spin-orbit coupling in semiconductor heterojunction, the electron momentum selection caused by Berry curvature and Pauli blocking in topological Weyl semimetals, and the valley polarization current generated by circularly polarized light in TMDC. Additionally, the recent progress of applications of circular photogalvanic effect is also presented.

Keywords: circular photogalvanic effect, Rashba effect, spin polarized, Berry curvature**PACS:** 85.35.-p, 05.30.Fk, 72.25.Fe**DOI:** 10.7498/aps.70.20210498

* Project supported by the National Key R&D Program of China (Grant No. 2018YFA0209100).

[†] Corresponding author. E-mail: ydzheng@nju.edu.cn

[‡] Corresponding author. E-mail: yshi@nju.edu.cn

^{††} Corresponding author. E-mail: xiaomu.wang@nju.edu.cn