

物理所发现范德华异质结间的强耦合超快电荷传输

近年来，以石墨烯为代表、靠层间范德华力结合的二维材料已经成长为一个非常大的家族。这些范德华材料呈现出从绝缘体、半导体、金属，到超导体等各不相同的电子性质。以二硫化钼(MoS₂)和二硫化钨(WSe₂)为代表的过渡族金属硫族化合物，因其合适的能带结构和光学性质，在光电子器件等用途中有着很好的应用前景。

二维材料异质结是由不同的二维材料通过范德华力结合在一起的，两层之间的堆叠模式比较容易调控，进而可以得到多样的电子性质。二维材料异质结中光激发产生电子-空穴对在界面处发生空间分离的过程（简称分离过程）在很多光电效应和光伏应用中起着重要的作用。MoS₂和WSe₂组成的异质结是第II类异质结：MoS₂的价带顶（VBM）比WSe₂能量低，同时WSe₂的导带顶（CBM）要比MoS₂高。由于MoS₂的带隙要比WSe₂的小，实验上可以选择性地光激发MoS₂中的电子-空穴对。由于能量差的原因，MoS₂中激发的空穴会传导到WSe₂层中，从而实现电子-空穴的分离。超快激光实验（F. Wang et al. Nat. Nanotechnol. 2014, 9, 682）发现，这个分离过程能在50fs超快时间尺度发生。人们一般认为，界面处电子-空穴分离过程是取决于异质结的层间堆叠方式和层间相互作用，但是，层间堆叠模式与电子-空穴分离过程的定量关系却一直没有解决。

中国科学院物理研究所/北京凝聚态物理国家实验室（筹）SF10组博士研究生张进、博士后廉超在研究员孟胜的指导下与北京大学物理学院教授刘开辉、洪浩等合作，运用基于含时密度泛函的第一性原理量子动力学模拟详细研究了MoS₂/WSe₂二维异质结中光激发的电子-空穴对层间分离过程与其层间堆叠模式的关系（图1）。他们发现对于实验上最稳定的堆叠方式（AB1-2H），光激发电子-空穴能在150 fs左右完成空间分离；而对于另外几种具有相似能量稳定性的堆叠方式（AB2-2H和AA1-3R），这个过程会在1000fs以上才会完成（图2）。进一步地，他们发现分离过程与MoS₂/WSe₂两层之间的层间距和整体层间耦合强度没有直接关系，而是取决于两层之间的空穴态在垂直方向上的耦合矩阵元（M）的大小。电子-空穴分离速度（分离时间的倒数）与跃迁矩阵元的e指数呈正比（图3），表明该体系是超出微扰近似的强耦合体系，可以以此对超快电荷分离过程进行极其敏感的调控。该过程决定了未来光电器件的时间响应极限。这为二维材料异质结中的超快光电子器件和高效率光伏应用提供了新的理解和发展基础。相关结果发表于Advanced Science, 2017, DOI:10.1002/advs.201700086。

该项研究工作得到国家自然科学基金项目（项目批准号11222431, 11474006和51522201）、科技部（项目批准号2016YFA0300903, 2012CB921403, and 2015CB921001）的资助。

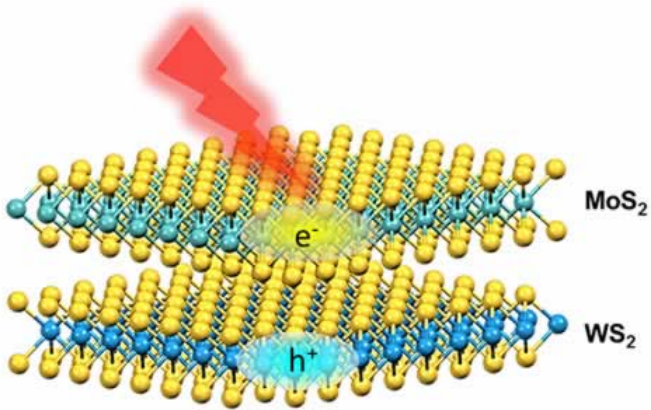


图1 范德华异质结层间超快电荷转移过程示意图。

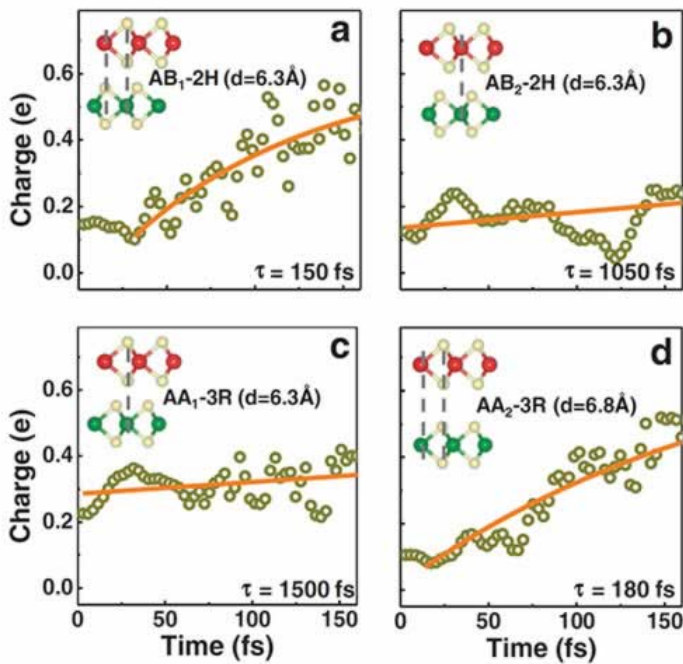


图2 不同层间堆垛导致不同的电荷转移时间。

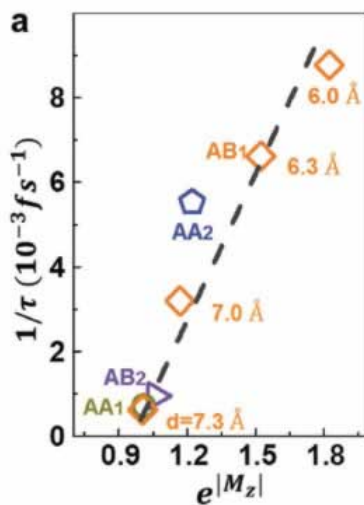


图3 电荷转移时间的倒数与空穴态耦合强度之间的定量关系。

原文地址：<http://www.china-nengyuan.com/tech/108697.html>