

ПОГЛОЩЕНИЕ СВЕТА В ДИХАЛЬКОГЕНИДАХ ПЕРЕХОДНЫХ МЕТАЛЛОВ В СКРЕЩЕННЫХ ПОЛЯХ

Л. И. Магарилл^{a,b}, А. В. Чаплик^{a,b**}*

^a *Институт физики полупроводников им. А. В. Ржанова
Сибирского отделения Российской академии наук
630090, Новосибирск, Россия*

^b *Новосибирский государственный университет
630090, Новосибирск, Россия*

Поступила в редакцию 9 мая 2023 г.,
после переработки 9 мая 2023 г.
Принята к публикации 31 мая 2023 г.

Найдены точные аналитические выражения для спектра и волновых функций электронов в монослое дихалькогенидов переходных металлов в скрещенных электрическом и магнитном полях. Рассчитана зависимость интенсивности межзонных переходов от электрического поля. Долинная селективность межзонного поглощения существенно зависит от электрического поля и может многократно менять знак при его увеличении

DOI: 10.31857/S0044451023110111

EDN: PKCVLM

1. ВВЕДЕНИЕ

Магнитопоглощение света, связанное с межзонными переходами, широко используется в физике полупроводников как метод определения параметров материала. Наложение сильного электрического поля перпендикулярно магнитному (скрещенные поля), как было показано еще Ароновым, а также Ароновым и Пикусом [1], позволяет получить дополнительное уравнение для эффективных масс в зонах, участвующих в переходах. Таким образом, оказывается возможным в одном эксперименте измерить оба этих независимых параметра.

Большой интерес к физике монослоев дихалькогенидов переходных металлов (ДХПМ), возникший в последние годы, привел и к развитию теории магнитооптических эффектов в этих материалах. Весьма интересной их особенностью является так называемая долинная селективность межзонного поглощения, т. е. избирательные переходы электронов из валентной зоны в зону проводимости в той или

иной долине (традиционное обозначение K и K') в зависимости от знака круговой поляризации падающей световой волны. Подробный анализ оптического магнитопоглощения монослоем ДХПМ содержится в работе Розе с соавторами [2]. В работе [3] найдены компоненты тензора высокочастотной проводимости в нормальном к монослою магнитном поле, причем учтены анизотропные поправки к зонной структуре ДХМП, а в работе [4] изучено влияние легирования на оптическое поглощение. Интересным оказался вывод авторов о наличии в случае легированного образца сильной долинной селективности также и при возбуждении линейно-поляризованным светом. Работы [2–4] основаны на принятой в литературе двухзонной двухдолинной модели ДХПМ с гамильтонианом дираковского типа для массивных частиц, в который дополнительно введен параметр $\tau = \pm 1$, отмечающий киральность долин. Электрическое поле в указанных теоретических исследованиях отсутствует. Оно учтено в работе [5] для случая параллельных магнитного и электрического полей (по нормали к слою). При этом в гамильтониане возникает постоянный член, перенормирующий щель в спектре. Таким образом, ситуация скрещенных полей остается пока не исследованной.

В предлагаемой работе получено точное аналитическое решение системы уравнений для спинов-

* E-mail: levni@isp.nsc.ru

** E-mail: chaplik@isp.nsc.ru

ных волновых функций электрона в двухзонной дираковской модели в скрещенных электрическом и магнитном полях. На основе полученного решения найдены интенсивности межзонных оптических переходов как разрешенных, так и запрещенных в отсутствие электрического поля. Исследовано влияние поля на долинную селективность. Ввиду большой громоздкости аналитических формул конечные результаты даны в виде графиков, полученных численными расчетами.

2. МОНОСЛОЙ ДИХАЛЬКОГЕНИДОВ ПЕРЕХОДНЫХ МЕТАЛЛОВ (ДХПМ)

Для описания монослоя ДХПМ воспользуемся простейшим вариантом двухзонной модели [6, 7], в котором пренебрегается спиновым расщеплением зон и введено однородное электрическое поле \mathbf{E} параллельное оси x . Гамильтониан используемой модели

$$\hat{H} = \gamma \sigma_\tau \left(\hat{\mathbf{k}} + \frac{e}{c} \mathbf{A} \right) + \frac{\Delta}{2} \sigma_z + e E x \sigma_0, \quad (1)$$

$$\sigma_\tau = (\tau \sigma_x, \sigma_y),$$

где $\tau = \pm 1$ — долинный индекс, $\sigma_{x,y,z}$ — матрицы Паули, σ_0 — единичная (2×2) -матрица, $\hat{\mathbf{k}}$ — 2D-импульс, Δ — ширина запрещенной зоны. Собственные функции гамильтониана (1) являются двухкомпонентными спинорами

$$\Psi(x, y) = \Phi(x) \exp\{i k y\} / \sqrt{L_y},$$

$$\Phi(x) = (\psi_1(t), \psi_2(t))^T,$$

вместо x вводится переменная

$$t = q(x/l + \kappa l)$$

(q и κ — подбираемые параметры).

Функции $\psi_{1,2}(t)$ удовлетворяют следующей системе уравнений:

$$\left[\frac{\Delta}{2} - \varepsilon + e E l \left(\frac{t}{q} - \kappa l \right) \right] \psi_1(t) -$$

$$- \frac{i \Omega}{\sqrt{2}} \left[\tau q \frac{d\psi_2(t)}{dt} + \left(\frac{t}{q} + \kappa l - \kappa l \right) \psi_2(t) \right] = 0, \quad (2)$$

$$\frac{i \Omega}{\sqrt{2}} \left[\tau q \frac{d\psi_1(t)}{dt} - \left(\frac{t}{q} + \kappa l - \kappa l \right) \psi_1(t) \right] -$$

$$- \left[\frac{\Delta}{2} + \varepsilon - e E l \left(\frac{t}{q} - \kappa l \right) \right] \psi_2(t) = 0.$$

Здесь ε — энергия, $\Omega = \gamma \sqrt{2}/l$.

Решение системы (2) может быть найдено таким же образом, как в работе [8], в которой решена задача о дираковском электроне в скрещенных полях. Ищем $\psi_1(t)$ и $\psi_2(t)$ в виде линейных комбинаций осцилляторных функций $f_n(t)$, $f_{n-1}(t)$:

$$\psi_{1,2}(t) = \alpha_{1,2} f_n(t) + \beta_{1,2} f_{n-1}(t). \quad (3)$$

Производные в (2) исключаются с помощью рекуррентных соотношений для функций f_n :

$$f'_n = \sqrt{2n} f_{n-1} - t f_n, \quad f'_{n-1} = t f_{n-1} - \sqrt{2n} f_n. \quad (4)$$

Далее приравняем нулю коэффициенты при всех содержащих t членах в обоих уравнениях (2). В результате приходим к системе восьми уравнений относительно четырех неизвестных $\alpha_{1,2}$ и $\beta_{1,2}$:

$$\left(\frac{\Delta}{2} - \varepsilon - \kappa v_d \right) \alpha_1 + i \gamma (\kappa - k) \alpha_2 +$$

$$+ i \Omega q \tau \sqrt{n} \beta_2 = 0, \quad (5)$$

$$v_d \alpha_1 - i \gamma (1 - q^2 \tau) \alpha_2 = 0, \quad (6)$$

$$\left(\frac{\Delta}{2} - \varepsilon - \kappa v_d \right) \beta_1 + i \gamma (\kappa - k) \beta_2 -$$

$$- i \Omega q \tau \sqrt{n} \alpha_2 = 0, \quad (7)$$

$$v_d \beta_1 - i \gamma (1 + q^2 \tau) \beta_2 = 0, \quad (8)$$

$$i \gamma (\kappa - k) \alpha_1 - \left(\frac{\Delta}{2} + \varepsilon + \kappa v_d \right) \alpha_2 +$$

$$+ i \Omega q \tau \sqrt{n} \beta_1 = 0, \quad (9)$$

$$i \gamma (1 + q^2 \tau) \alpha_1 + v_d \alpha_2 = 0, \quad (10)$$

$$i \Omega q \tau \sqrt{n} \alpha_1 + i \gamma (\kappa - k) \beta_1 +$$

$$+ \left(\frac{\Delta}{2} + \varepsilon + \kappa v_d \right) \beta_2 = 0, \quad (11)$$

$$i \gamma (1 - q^2 \tau) \beta_1 + v_d \beta_2 = 0, \quad (12)$$

где $v_d = cE/H$ — дрейфовая скорость. Нас интересуют величины $\alpha_{1,2}$ и $\beta_{1,2}$, дающие общее решение уравнений (5)–(12).

Из пары уравнений (6) и (10) находим

$$q = (1 - \bar{v}_d^2)^{1/4}, \quad (13)$$

где $\bar{v}_d = v_d/\gamma$. Тот же результат получается из другой пары (8) и (12). Одновременно находится связь α_1 с α_2 и β_2 с β_1 :

$$\alpha_1 = i \frac{\bar{v}_d}{1 + q^2 \tau} \alpha_2, \quad \beta_2 = -i \frac{\bar{v}_d}{1 + q^2 \tau} \beta_1. \quad (14)$$

Подставив (14) в оставшиеся уравнения системы (5)–(12), приходим к системе четырех уравнений для величин α_2 , β_1 :

$$\left(\frac{\bar{v}_d \left(\frac{\Delta}{2} - \varepsilon - \kappa v_d \right)}{(1 + q^2 \tau)} + \gamma(\kappa - k) \right) \alpha_2 - \frac{i \Omega q \bar{v}_d \tau \sqrt{n}}{(1 + q^2 \tau)} \beta_1 = 0, \quad (15)$$

$$\left(\frac{\Delta}{2} - \varepsilon - \kappa v_d + \frac{v_d(\kappa - k)}{1 + q^2 \tau} \right) \beta_1 - i \Omega q \tau \sqrt{n} \alpha_2 = 0, \quad (16)$$

$$\left(\frac{\Delta}{2} + \varepsilon + \kappa v_d - \frac{v_d(\kappa - k)}{1 + q^2 \tau} \right) \alpha_2 - i \Omega q \tau \sqrt{n} \beta_1 = 0, \quad (17)$$

$$\left(\frac{\bar{v}_d \left(\frac{\Delta}{2} + \varepsilon + \kappa v_d \right)}{(1 + q^2 \tau)} - \gamma(\kappa - k) \right) \beta_1 - \frac{i \Omega q v_d \tau \sqrt{n}}{\gamma(1 + q^2 \tau)} \alpha_2 = 0. \quad (18)$$

В этой системе q — уже известный параметр (формула (13)).

Далее берем пару уравнений (15) и (17), вычисляем соответствующий детерминант и ищем его корень относительно κ . Получаем

$$\kappa = \frac{k + \varepsilon v_d / \gamma^2}{q^4}. \quad (19)$$

Продельвая ту же процедуру с парой уравнений (16) и (18), приходим к такому же результату.

А теперь берем уравнения (16) и (17), подставляем в них найденное выражение для κ и ищем корень соответствующего детерминанта относительно ε . В результате получаем для спектра

$$\varepsilon_{\lambda,n}(k) = \lambda q^2 w_n - \kappa v_d, \quad w_n = \sqrt{\frac{\Delta^2}{4} + q^2 n \Omega^2}, \quad (20)$$

где $\lambda = \pm 1$ — зонный индекс (+1 соответствует зоне проводимости, -1 — валентной зоне). Отметим, что спектр не зависит от долинного индекса.

Теперь построим собственные функции $\Phi_{\lambda,n}^{(\tau)}$. Для долины $\tau = +1$ имеем

$$\Phi_{\lambda,n \geq 1}^{(\tau=+1)}(x) = \frac{1}{N_{\lambda,n}} \times \left(-\bar{v}_d \sqrt{n} q \Omega f_n(t) / (1 + q^2) + a_{\lambda,n} f_{n-1}(t) \right) \times \left(i \sqrt{n} q \Omega f_n(t) - i \bar{v}_d a_{\lambda,n} f_{n-1}(t) / (1 + q^2) \right). \quad (21)$$

Здесь

$$N_{\lambda,n} = \sqrt{2l(a_{\lambda,n}^2 + n q^2 \Omega^2) / (q(1 + q^2))},$$

$$a_{\lambda,n} = \Delta / 2 + \lambda w_n.$$

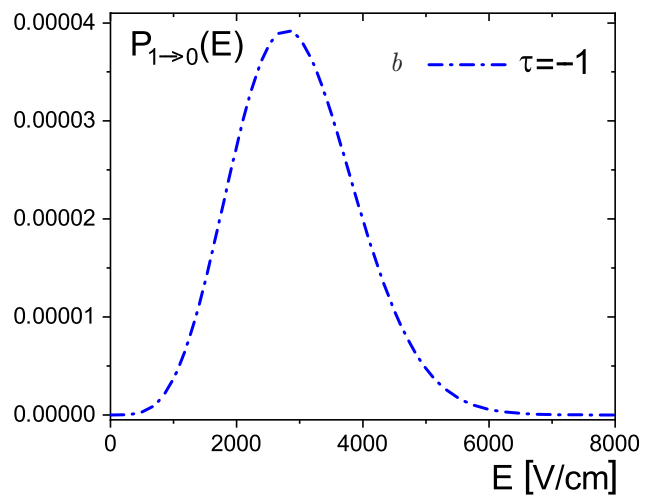
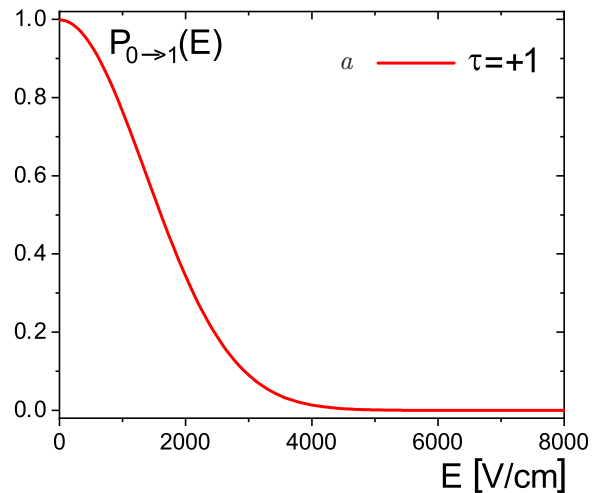


Рис. 1. Зависимость интенсивности поглощения от E на переходах $0 \rightarrow 1$ (в долине $\tau = +1$) и $1 \rightarrow 0$ (в долине $\tau = -1$)

Аргумент t в осцилляторных функциях зависит от λ и n и дается выражением

$$t_{\lambda,n} = q \left(\frac{x}{l} + \kappa l + \frac{\lambda v_d w_n l}{q^2 \gamma^2} \right). \quad (22)$$

Состояние с $n = 0$ в долине $\tau = +1$ имеется только в валентной зоне, его волновая функция имеет вид

$$\Phi_{-1,0}^{(\tau=+1)}(x) = \sqrt{\frac{1 + q^2}{2}} \begin{pmatrix} i \bar{v}_d / (1 + q^2) \\ 1 \end{pmatrix} f_0(t_{-1,0}). \quad (23)$$

Для волновых функций состояний в долине $\tau = -1$ получаем

$$\Phi_{\lambda,n \geq 1}^{(\tau=-1)}(x) = \frac{1}{N_{\lambda,n}} \times \left(a_{\lambda,n} f_n(t) - \bar{v}_d \sqrt{n} q \Omega f_{n-1}(t) / (1 + q^2) \right) \times \left(-i \bar{v}_d a_{\lambda,n} f_n(t) / (1 + q^2) + i \sqrt{n} q \Omega f_{n-1}(t) \right), \quad (24)$$

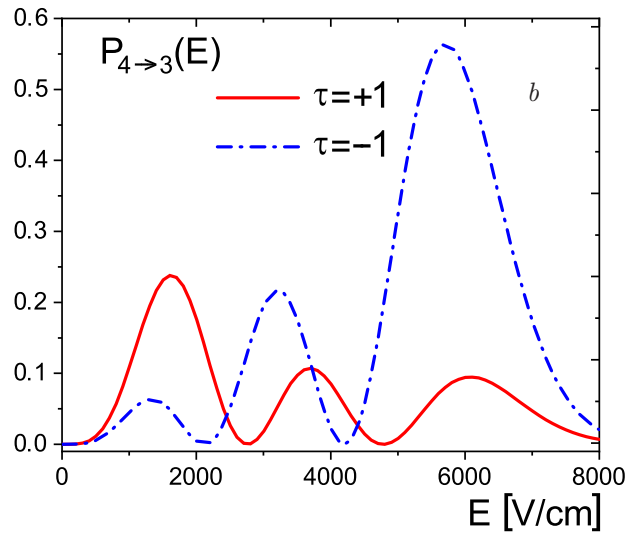
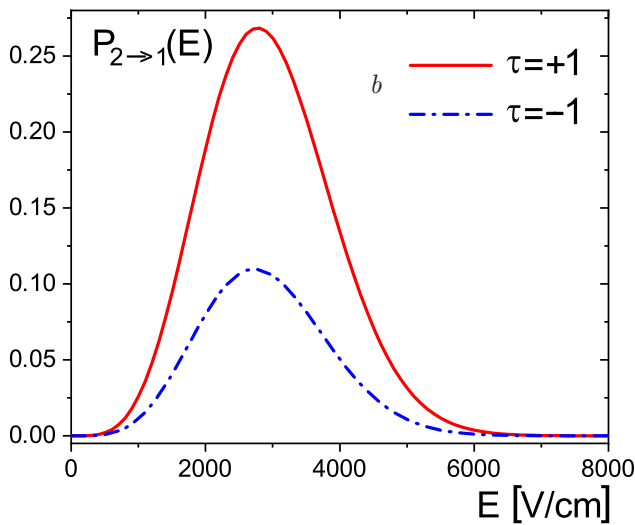
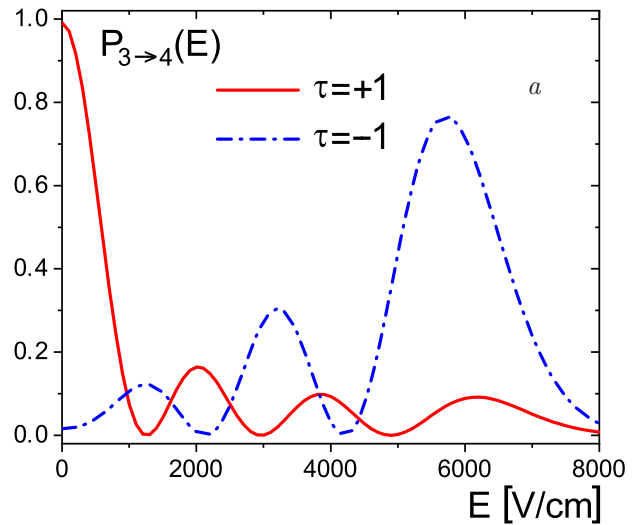
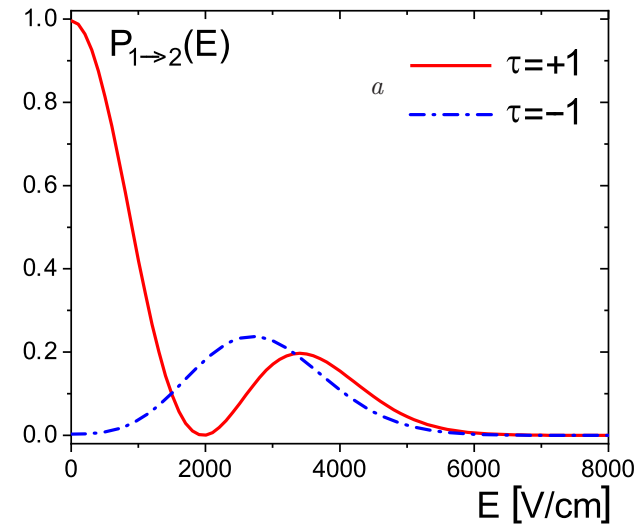


Рис. 2. Зависимость интенсивностей поглощения от E на переходах $1 \rightarrow 2$ (a) и $2 \rightarrow 1$ (b)

Рис. 3. То же, что на рис. 2, для переходов $3 \rightarrow 4$ (a) и $4 \rightarrow 3$ (b)

$$\Phi_{1,0}^{(\tau=-1)}(x) = \sqrt{\frac{1+q^2}{2}} \begin{pmatrix} 1 \\ -i\bar{v}_d/(1+q^2) \end{pmatrix} f_0(t_{1,0}). \quad (25)$$

При $E = 0$ выражения для собственных функций (21), (23), (24), (25) и для спектра (20) переходят в формулы, полученные в работе [2].

3. МЕЖЗОННЫЕ ПЕРЕХОДЫ

С полученными выражениями для спинорных собственных функций находим матричные элементы переходов, вызванных взаимодействием с падающей плоской электромагнитной волной.

Для пространственно-однородной волны оператора взаимодействия при круговой поляризации в

рамках используемой двухзонной модели имеет вид

$$\hat{H}_{int} = e\gamma\mathcal{A}_0\hat{h}_{\tau,\xi} \exp\{-i\omega t\} + \text{H. c.}, \quad (26)$$

$$\hat{h}_{\tau,\xi} = \frac{1}{2}(\tau\sigma_x + i\xi\sigma_y) = \frac{1}{2} \begin{bmatrix} 0 & \tau + \xi \\ \tau - \xi & 0 \end{bmatrix},$$

где $\xi = \pm 1$ — индекс поляризации, \mathcal{A}_0 — амплитуда волны.

Вероятность переходов $(\lambda, n) \rightarrow (\lambda', n')$, определяемая квадратом матричного элемента оператора взаимодействия (26), пропорциональна величине

$$P_{\lambda',n',\lambda,n}^{(\tau,\xi)} = \left| \left\langle (\Phi_{\lambda',n'}^{(\tau)})^* | \hat{h}_{\tau,\xi} | \Phi_{\lambda,n}^{(\tau)} \right\rangle \right|^2. \quad (27)$$

Здесь $\langle \dots \rangle$ означает интегрирование по координатам, $\Phi_{\lambda,n}^{(\tau)}$ — нормированные спиноры состояний (λ, n) в долине τ , которые даются формулами (21), (23)-(25).

Зависящая от электрического поля величина $P_{\lambda', n', \lambda, n}^{(\tau, \xi)}$ определяет интенсивность поглощения (или испускания) на резонансной частоте $\omega_{res} = \varepsilon_{+1, n'} - \varepsilon_{-1, n}$.

Общее выражение для $P(E)$ весьма громоздко. Далее мы приводим результаты численного расчета величин $P(E)$, которые определяют интенсивности поглощения при переходах на соответствующей каждому резонансной частоте. Построенные кривые показывают зависимость интенсивности от приложенного электрического поля при заданном значении магнитного. Параметры материала соответствуют MoS_2 , магнитное поле равно 10 Тл, поляризация везде $\xi = +1$. Валентная зона предполагается полностью заполненной, зона проводимости — полностью свободной.

Как и в обычных полупроводниках (см. [1]), электрическое поле уменьшает интенсивность разрешенных переходов (в ДХПМ это переходы с изменением номера уровня Ландау на +1 или -1 в зависимости от номера долины и знака круговой поляризации света) и снимает запрет на переходы, нарушающие это правило (см. рис. 1, 2, 3).

Обратим внимание на своеобразную «осциллирующую конкуренцию» интенсивностей переходов между уровнями с большими номерами на рис. 3*a, b*. Интенсивности разрешенного и запрещенного при $E = 0$ переходов практически выравниваются в полях порядка 2 кВ/см. Заметим еще, что, например, переход 2 в 1 при $E = 0$ запрещен в обеих долинах, однако разрешенный переход $1 \rightarrow 2$ происходит при точно такой же частоте и поляризации (с различной интенсивностью в разных долинах). При противоположной поляризации то же самое получается при перестановке долин. В итоге обе поляризации поглощаются на данной частоте с одинаковой вероятностью, т. е. поляризационной селективности в полном поглощении нет. Увеличение числа максимумов и минимумов величины $P(E)$ объясняется сложной зависимостью степени перекрытия волновых функций состояний, участвующих в переходе, от электрического поля: соответствующий интеграл берется от произведения полиномов Эрмита со сдвинутыми друг относительно друга аргументами. Величина сдвига зависит от E , что и приводит к осцилляциям интенсивности при изменении электрического поля.

Характерной особенностью ДХПМ является различная вероятность поглощения света одной и той же частоты электронами разных долин (долинная селективность). Результатом является дисбаланс неравновесных заселенностей долин, что может наблюдаться экспериментально. Такой эксперимент осуществлен в работе [9], где долинная селективность проявилась в поляризационном составе люминесцентного излучения из монослоя MoS_2 . Как следует из результатов данной статьи, электрическое поле существенно влияет на разность заселенностей долин, что открывает новые возможности для исследования оптической долинной селективности.

ЛИТЕРАТУРА

1. А. Г. Аронов, ФТТ **5**, 552 (1963), A. G. Aronov and G. E. Pikus, Sov. Phys. JETP **24**, 339 (1967) [Zh. Eksp. Teor. Fiz. **51**, 505 (1966)].
2. F. Rose, M. O. Goerbig, and F. Piechon, Phys. Rev. B **88**, 125438 (2013).
3. M. Tahir and P. Vasilopoulos, Phys. Rev. B **94**, 045415 (2016).
4. G. Catarina, J. Have, J. Fernandez-Rossier, and N. M. R. Peres, Phys. Rev. B **99**, 125405 (2019).
5. Nguyen D. Hien, Chuong V. Nguyen, Nguyen N. Hieu, S. S. Kubakaddi, C. A. Duque, M. E. Mora-Ramos, Le Dinh, Tran N. Bich, and Huynh V. Phuc, Phys. Rev. B **101**, 045424 (2020).
6. Di Xiao, Gui-Bin Liu, Wanxiang Feng, Xiaodong Xu, and Wang Yao, Phys. Rev. Lett. **108**, 196802 (2012).
7. A. Kormanyos, G. Burkard, M. Gmitra, J. Fabian, V. Zolyomi, N. D. Drummond, and V. Falko, 2D Materials **2**, 022001 (2015).
8. В. Г. Баргов, В. А. Бордовицын, Известия ТПИ **156**, 215 (1969).
9. Ting Cao, Gang Wang, Wenpeng Han, Huiqi Ye, Chuanrui Zhu, Junren Shi, Qian Niu, Pingheng Tan, Enge Wang, Baoli Liu, and Ji Feng, Nat. Commun. **3**, 887 (2012).