ЖЭТФ, 2023, том 164, вып. 5 (11), стр. 805–809

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 междузонными 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 спинор-

* E-mail: levm@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

$$\begin{gathered}\hat{\mathcal{H}} = \gamma\boldsymbol{\sigma}_\tau\Big(\hat{\mathrm{k}} + \frac{e}{c}\mathrm{A}\Big) + \frac{\Delta}{2}\sigma_z + eEx\sigma_0, \\ \boldsymbol{\sigma}_\tau = (\tau\sigma_x, \sigma_y),\end{gathered} \tag{1}$$

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

$$\Psi(x,y) = \Phi(x)\exp\{(iky)\}/\sqrt{L_y},$$
$$\Phi(x) = (\psi_1(t),\, \psi_2(t))^T,$$

вместо x вводится переменная

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

(q и κ — подбираемые параметры).

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

$$\begin{gathered}\left[\frac{\Delta}{2} - \varepsilon + eEl\left(\frac{t}{q} - \kappa l\right)\right]\psi_1(t) - \\ - \frac{i\Omega}{\sqrt{2}}\left[\tau q\frac{d\psi_2(t)}{dt} + \left(\frac{t}{q} + kl - \kappa l\right)\psi_2(t)\right] = 0, \\ \frac{i\Omega}{\sqrt{2}}\left[\tau q\frac{d\psi_1(t)}{dt} - \left(\frac{t}{q} + kl - \kappa l\right)\psi_1(t)\right] - \\ - \left[\frac{\Delta}{2} + \varepsilon - eEl\left(\frac{t}{q} - \kappa l\right)\right]\psi_2(t) = 0.\end{gathered} \tag{2}$$

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 $f_n(t)$, $f_{n-1}(t)$:

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

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

$$f_n' = \sqrt{2n}f_{n-1} - tf_n, \quad f_{n-1}' = tf_{n-1} - \sqrt{2n}f_n. \tag{4}$$

Далее приравниваем 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 $\beta_{1,2}$:

$$\left(\frac{\Delta}{2} - \varepsilon - \kappa v_d\right)\alpha_1 + i\gamma(\kappa - k)\alpha_2 + + i\,\Omega q\tau\sqrt{n}\beta_2 = 0, \tag{5}$$

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

$$\left(\frac{\Delta}{2} - \varepsilon - \kappa v_d\right)\beta_1 + i\gamma(\kappa - k)\beta_2 - - i\,\Omega q\tau\sqrt{n}\alpha_2 = 0, \tag{7}$$

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

$$i\gamma(\kappa - k)\alpha_1 - \left(\frac{\Delta}{2} + \varepsilon + \kappa v_d\right)\alpha_2 + + i\,\Omega q\tau\sqrt{n}\beta_1 = 0, \tag{9}$$

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

$$i\,\Omega q\tau\sqrt{n}\alpha_1 + i\gamma(\kappa - k)\beta_1 + + \left(\frac{\Delta}{2} + \varepsilon + \kappa v_d\right)\beta_2 = 0, \tag{11}$$

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

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

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

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:

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

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

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

Проделывая 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

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

где $\lambda=\pm1$ — зонный индекс ($+1$ соответствует зоне проводимости, -1 — валентной зоне). Отметим, что спектр не зависит от долинного индекса.

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

$$\Phi^{(\tau=+1)}_{\lambda,n\geqslant1}(x)=\frac{1}{N_{\lambda,n}}\times\\ \times\begin{pmatrix}-\bar{v}_d\sqrt{n}q\Omega f_n(t)/(1+q^2)+a_{\lambda,n}f_{n-1}(t)\\ i\sqrt{n}q\Omega f_n(t)-i\,\bar{v}_d a_{\lambda,n}f_{n-1}(t)/(1+q^2)\end{pmatrix}. \quad (21)$$

Здесь

$$N_{\lambda,n}=\sqrt{2l(a^2_{\lambda,n}+nq^2\Omega^2)/(q(1+q^2))},\\ a_{\lambda,n}=\Delta/2+\lambda w_n.$$

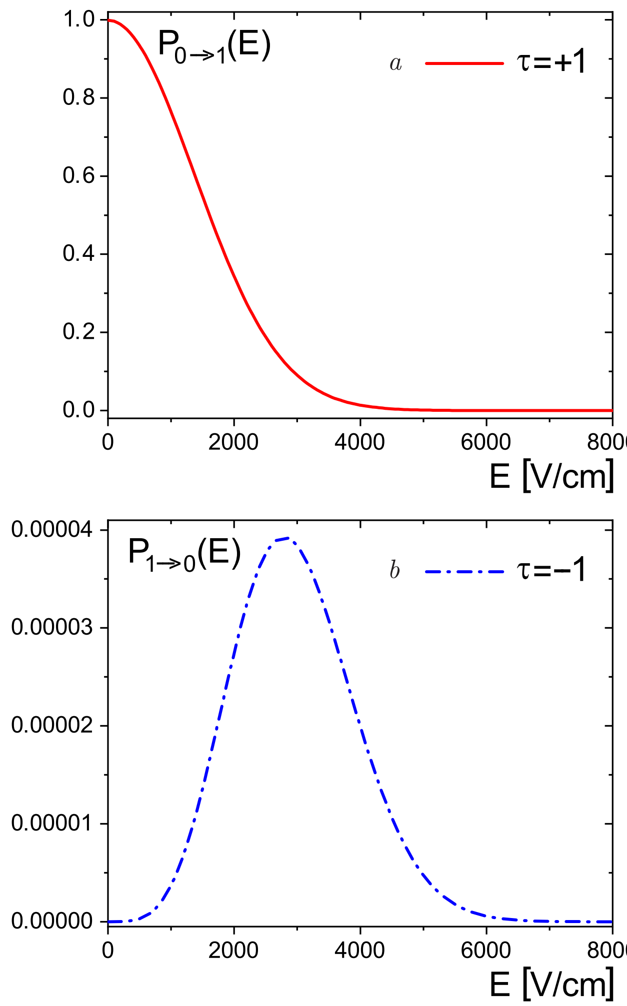

Рис. 1. Зависимость интенсивности поглощения от E на переходах $0\to1$ (в долине $\tau=+1$) и $1\to0$ (в долине $\tau=-1$)

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

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

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

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

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

$$\Phi^{(\tau=-1)}_{\lambda,n\geqslant1}(x)=\frac{1}{N_{\lambda,n}}\times\\ \times\begin{pmatrix}a_{\lambda,n}f_n(t)-\bar{v}_d\sqrt{n}q\Omega f_{n-1}(t)/(1+q^2)\\ -i\,\bar{v}_d a_{\lambda,n}f_n(t)/(1+q^2)+i\sqrt{n}q\Omega f_{n-1}(t)\end{pmatrix}, \quad (24)$$

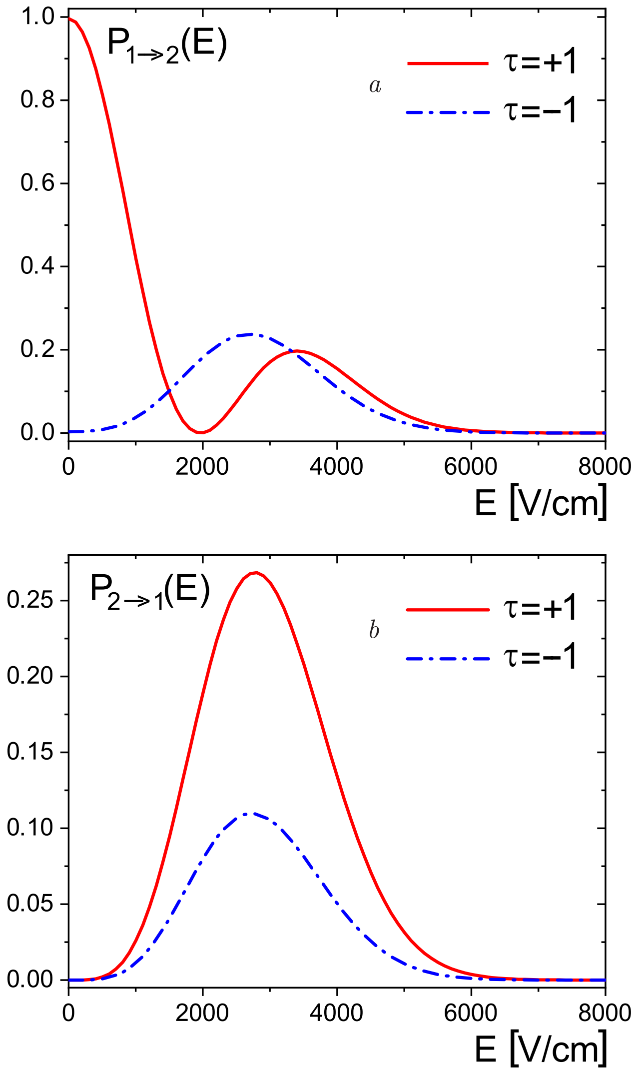

Рис. 2. Зависимость интенсивностей поглощения от E на переходах $1 \to 2$ (a) и $2 \to 1$ (b)

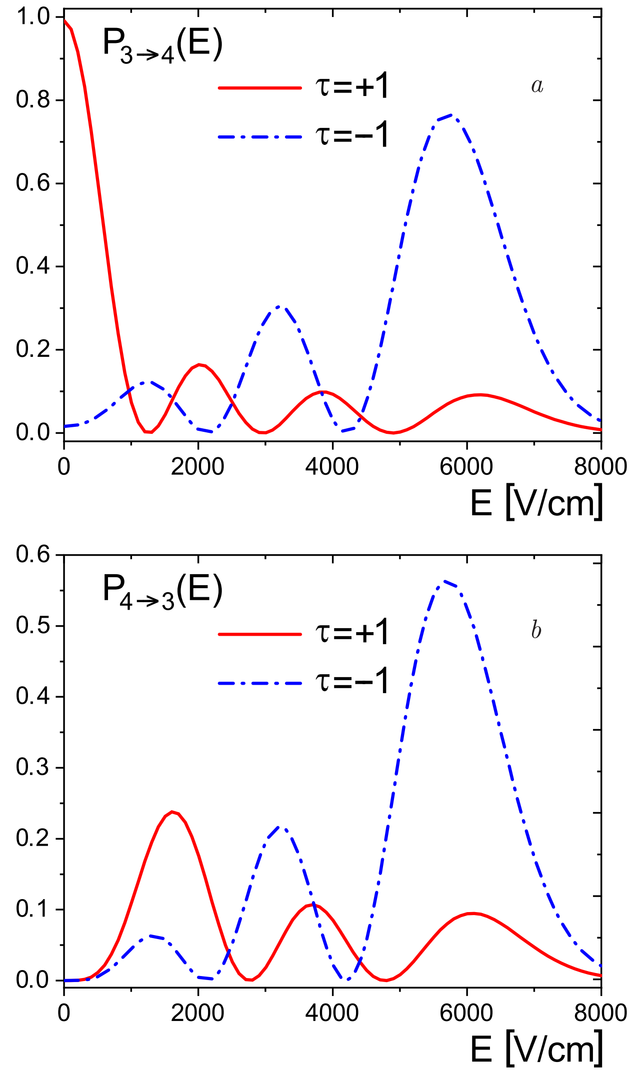

Рис. 3. То же, что на рис. 2, для переходов $3 \to 4$ (a) и $4 \to 3$ (b)

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

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 оператор взаимодействия при круговой поляризации в рамках используемой двухзонной модели имеет вид

$$\hat{H}_{int} = e\gamma\mathcal{A}_0\hat{h}_{\tau,\xi}\exp\{(-i\omega t)\} + \text{H. c.},$$
$$\hat{h}_{\tau,\xi} = \frac{1}{2}(\tau\sigma_x + i\xi\sigma_y) = \frac{1}{2}\begin{bmatrix} 0 & \tau+\xi \\ \tau-\xi & 0 \end{bmatrix}, \quad (26)$$

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

Вероятность переходов $(\lambda, n) \to (\lambda', n')$, 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 $\langle\ldots\rangle$ 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 $P^{(\tau,\xi)}_{\lambda',n',\lambda,n}$ 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 $1 \to 2$ 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. Багров, 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).