

国家纳米中心在MoS₂边缘态以及载流子扩散和解离动力学研究中取得进展

作者：writer 来源：中国科学院

本文原地址：<https://www.iikx.com/news/progress/19258.html>

本文仅供学习交流之用，版权归原作者所有，请勿用于商业用途！

中国科学院国家纳米科学中心研究员刘新风团队联合国家纳米科学中心研究员张勇团队和中科院物理研究所研究员孟胜团队合作，研究了球磨法制备的不同横向尺寸(10 nm-160 nm)的MoS₂的边缘态，激子扩散及解离的动力学过程，为光电子学和光捕获应用奠定了基础。相关成果发表在Nano Letters上。

材料的表面态具有特别的物理和化学性质，凝聚态材料的表面态一直是研究的焦点。其中，二维过渡金属硫属化合物(TMDC)的边缘状态也被广泛研究，研究发现其具有边缘导电、边缘等离子体、自旋保护传输以及高催化活性等性质，这些优异的性能表现加深了TMDC基础研究，丰富了其应用前景。边缘电子态的亚带隙分布、金属带、自旋非简并等部分特征已经被研究，而它们的动力学尚未被完全理解，特别是边缘状态如何以及如何快速填充，它们如何有助于整体电荷传输和重组？解决这些问题对于优化和扩展TMDC应用至关重要，然而微弱的边缘信号通常会被内部背景淹没或受到边缘杂质干扰，需要极度暴露和干净的边缘结构，因此研究仍然存在挑战。

研究团队使用球磨产生的10 nm MoS₂

纳米片，该方法产生的纳米片尺寸均一，更重要的是具有洁净的高锯齿形暴露边缘。结合电子能量损失光谱(EELS)和第一性原理计算，研究预测了亚带隙边缘态吸收覆盖范围为1.23 eV至1.78 eV，同时揭示了边缘态粒子和与激子的竞争，由于纳米尺寸，这些纳米片具有高度暴露的边缘，约占片面积的11%，便于边缘状态的直接瞬态吸收(TA)研究。在1.87 eV能量激发下，光激发激子首先通过带间填充并很快在约0.40 ps内解离成边缘电子态过渡。在低于带隙激发的情况下，由于通过非绝热耦合(NAC)分析减少了带内轨道耦合，边缘态的布居时间更长，最高可达1.0 ps。泵浦能量依赖TA数据揭示了空穴的带间跃迁速率决定了边缘态的产生。边缘态的形成过程分别受到了带间跃迁和带内驰豫的调控，在高于带隙时激发，存在带间跃迁决定的0.4 ps超快激子解离动力学过程；低于带隙能量激发时，边缘态能带上的驰豫决定了边缘态的形成。团队还研究了激子输运对边缘态种群动力学的影响。此外，研究团队发现，边缘状态引入了边界上的外部电位梯度，终止了激子从内部的激子扩散传输。研究通过测量激子解离寿命作为纳米片横向尺寸的函数，提取激子扩散系数为86.7 cm²

/s，进一步证实了边界阻挡激子扩散。这项研究从能量、时间和空间角度扩展了对TMDC半导体边缘态动力学的理解，为边缘态操纵和器件优化提供了途径。

研究工作得到中科院战略性先导科技专项（B类），科学技术部重点研发计划，中科院仪器开发项目，国家自然科学基金，洁净能源国家实验室（DNL）合作基金等项目的支持。

[论文链接](#)

图1 MoS₂纳米片单颗粒的边缘态EELS测量（A）典型10nm MoS₂纳米片HAADF-TEM图像；(B)EELS测量原理示意图；（C）MoS₂纳米片内部和边缘位置的EELS，MoS₂纳米片的光吸收作为参考；(D) MoS₂边缘态的能带结构和总电子态密度电子带结构。

图2(A)MoS₂激子态和边缘态的能级结构图；(B)具有1.87

eV激发（与A激子共振）和4.0 μJ/cm²

功率激发的TA光谱的二维伪彩色图；(C)激子态（记为EX）和边缘态（记为ES）通过SVD及其全局拟合的时间变化过程，插图突出了边缘状态和激子之间的相关上升和衰减过程。

图3能量依赖边缘态动力学。(A)激子态（记为EX）和边缘态（记为ES）的K-S轨道耦合的NAC矩阵；(B)依赖于激发能量的激子衰减动力学，对应于边缘状态的形成；(C)边缘态形成寿命作为泵浦能量的函数。

图4扩散受限边缘状态形成。(A)DFT计算了整个纳米片的局部电位分布；(B)激子解离作为纳米片平均尺寸的函数；(C)激子寿命与纳米片横向尺寸平方的关系，展示了扩散引起的线性依赖性，扩散系数为 $86.7\text{ cm}^2/\text{s}$ ，分别通过扩散模型拟合和蒙特卡罗方法的随机游走模拟进行了验证。

研究团队单位：国家纳米科学中心

更多 科学进展 请访问 <https://www.iikx.com/news/progress/>

本文版权归原作者所有，请勿用于商业用途，[爱科学iikx.com](https://www.iikx.com)转发