

# HẤP THỤ PHI TUYẾN HAI PHOTON TRONG $\text{MoS}_2$ đơn lớp DƯỚI ẢNH HƯỞNG CỦA TƯƠNG TÁC ELECTRON-PHONON ÂM DỌC-ÁP ĐIỆN

LÊ DÌNH<sup>1</sup>, TRẦN NGỌC BÍCH<sup>2</sup>, HUỖNH VĨNH PHÚC<sup>3</sup>

<sup>1</sup> Trường Đại học Sư phạm, Đại học Huế, Email: dinhle52@gmail.com

<sup>2</sup> Trường Đại học Quảng Bình, Email: tranngocbichdhqb@gmail.com

<sup>3</sup> Trường Đại học Đồng Tháp, Email: huynhvinhphuc2710@gmail.com

**Tóm tắt:** Trong bài báo này, chúng tôi khảo sát sự hấp thụ phi tuyến hai photon trong molybdenum disulfide ( $\text{MoS}_2$ ) đơn lớp khi xét đến tương tác electron-phonon âm dọc (longitudinal acoustic-LA) liên kết áp điện (piezoelectric coupling-PE). Sử dụng phương pháp nhiễu loạn chúng tôi thu được được biểu thức của hệ số hấp thụ quang từ (MOAC), từ đó sử dụng phương pháp profile thu được độ rộng vạch phổ (full width at half maximum-FWHM). Kết quả cho thấy rằng MOAC và FWHM phụ thuộc mạnh vào từ trường và nhiệt độ, cả MOAC và FWHM đều tăng theo từ trường và nhiệt độ đối với cả hai trường hợp hấp thụ một và hai photon. Kết quả được so sánh với trường hợp tương tác electron-phonon ngang áp điện.

**Từ khóa:**  $\text{MoS}_2$  đơn lớp, hệ số hấp thụ quang từ, độ rộng vạch phổ.

## 1 GIỚI THIỆU

Các vật liệu mỏng hai chiều (2D), một trong những loại vật liệu mới được khám phá gần đây, có nhiều hứa hẹn cho việc áp dụng trong các dụng cụ quang điện tử chất lượng cao [1]. Một trong số những vật liệu 2D được chế tạo gần đây là loại vật liệu 2D đơn lớp có dạng  $\text{MX}_2$  với  $\text{M} = \text{Mo}, \text{W}, \text{Nb}, \text{Ta}, \text{Ti}$ , và  $\text{X} = \text{S}, \text{Se}, \text{Te}$ . Các loại vật liệu 2D này được có cấu trúc đa lớp dạng X-M-X, trong đó các nguyên tử thuộc nhóm chalcogen nằm trong các mặt phẳng lục giác được ngăn cách bởi các mặt phẳng tạo nên bởi các nguyên tử kim loại [2, 3]. Các cấu trúc thuộc dạng di-chalcogen kim loại chuyển tiếp (transition metal dichalcogenides-TMDCs) có độ

rộng vùng cấm khá lớn. Độ rộng này thay đổi từ cấu trúc đa lớp đến cấu trúc đơn lớp [2]. Ví dụ, vật liệu molybdenum disulfide ( $\text{MoS}_2$ ) có độ rộng vùng cấm thay đổi từ 1.29 eV đối với vật liệu khối đến 1.90 eV đối với vật liệu có cấu trúc đơn lớp [3].

Gần đây,  $\text{MoS}_2$  đơn lớp đã được chứng minh là một bán dẫn có tương tác spin quỹ đạo (spin-orbit coupling-SOC) [4]. Đó là lý do vật liệu này đang được quan tâm nghiên cứu, đặc biệt là tính chất quang của hệ electron trong bán dẫn khi có mặt từ trường [5]. Trong một công trình được công bố gần đây [6] chúng tôi đã khảo sát hiệu ứng hấp thụ quang từ trong  $\text{MoS}_2$  đơn lớp do tương tác của electron với nhiều loại phonon đối với trường hợp spin hướng lên, cũng như do tương tác electron-phonon âm ngang (transverse acoustic-TA) liên kết áp điện [7]. Tuy nhiên, một nghiên cứu chi tiết hơn về tính chất quan trọng này do tương tác electron-phonon âm dọc có liên kết áp điện (kí hiệu là LA-PE phonon) đối với trường hợp spin hướng xuống vẫn còn bỏ ngỏ. Trong bài báo này chúng tôi nghiên cứu chi tiết quá trình hấp thụ phi tuyến hai photon trong  $\text{MoS}_2$  đơn lớp do tương tác electron-LA-PE phonon đối với trường hợp spin hướng xuống.

## 2 HỆ SỐ HẤP THỤ QUANG TỪ

Xét một từ trường đều  $\mathbf{B} = (0, 0, B)$  theo phương  $z$ , Hamiltonian của một hạt trong  $\text{MoS}_2$  đơn lớp (nằm trong mặt phẳng  $(xy)$ ) được cho bởi biểu thức [4, 8]:

$$\mathcal{H}_e = at(\tau k_x \sigma_x + k_y \sigma_y) + (\bar{\Delta} - s\tau\bar{\lambda})\sigma_z + s\tau\bar{\lambda}, \quad (1)$$

với  $a$  là hằng số mạng,  $t$  là tham số hopping,  $\bar{\Delta} = \Delta/2$ ,  $\bar{\lambda} = \lambda/2$  với  $\Delta$  và  $\lambda$  tương ứng là khe năng lượng và tham số SOC, chỉ số vùng  $\tau = \pm 1$  biểu diễn các vùng  $K$  và  $K'$ , chỉ số spin  $s = \pm 1$  tương ứng với spin hướng lên và spin hướng xuống,  $\mathbf{k} = (k_x, k_y)$  là xung lượng của hạt tải, và  $\sigma_i$  ( $i = x, y, z$ ) là các ma trận Pauli. Phổ năng lượng  $E_\alpha$  ứng với trạng thái của điện tử  $|\alpha\rangle = |n, s, v, \tau\rangle$  được cho như sau [6, 8]:

$$E_\alpha = E_{nsv\tau} \approx (1 - v)s\tau\bar{\lambda} + v\bar{\Delta} + vn \frac{\hbar^2 \omega_c^2}{2\bar{\Delta}_{s\tau}}, \quad (2)$$

với  $n$  là một số nguyên biểu thị hệ số mức Landau (LL),  $\bar{\Delta}_{s\tau} = \bar{\Delta} - s\tau\bar{\lambda}$ ,  $v = \pm 1$  là chỉ số các vùng dẫn và vùng hóa trị,  $\hbar\omega_c = at\sqrt{2}/a_c$  là năng lượng cyclotron với  $a_c = (\hbar/eB)^{1/2}$  là bán kính cyclotron. Biểu thức (2) cho thấy các mức Landau phụ thuộc tuyến tính vào  $n$  và  $B$ . Với  $n = 0$ , biểu thức của năng lượng có dạng [8]:

$$E_{0s\tau} = -\tau(\bar{\Delta} - s\bar{\lambda}) + s\bar{\lambda}. \quad (3)$$

Hàm sóng của vùng  $K$  ( $\tau = +1$ ) là:

$$\Phi_{n,s}^{v,+1}(\mathbf{r}, k_y) = \frac{e^{ik_y y}}{\sqrt{L_{n,s}^{v,+1}}} \begin{pmatrix} \Lambda_{n,s}^{v,+1} \phi_{n-1}(x - x_0) \\ \phi_n(x - x_0) \end{pmatrix}, \quad (4)$$

trong đó  $\phi_n(x - x_0)$  miêu tả hàm riêng dao động điều hòa có tâm tại  $x_0 = a_c^2 k_y$ , và  $L_{n,s}^{v,\tau} = (\Lambda_{n,s}^{v,\tau})^2 + 1$ , với  $\Lambda_{n,s}^{v,\tau} = \sqrt{n} \hbar \omega_c [(1 - v\tau) \bar{\Delta}_{s\tau} - nv\tau \hbar^2 \omega_c^2 / 2\bar{\Delta}_{s\tau}]^{-1}$ . Hàm sóng của vùng  $K'$  ( $\tau = -1$ ) được lấy từ biểu thức (4) bằng cách thay đổi  $\phi_n(x - x_0)$  thành  $\phi_{n-1}(x - x_0)$ .

Khi một sóng điện từ có năng lượng  $\hbar\Omega$  được đưa vào hệ thì hệ số hấp thụ quang từ do quá trình hấp thụ và phát xạ phonon được tính bởi biểu thức [6]:

$$K(\Omega) = \frac{g_s g_v \mathcal{A} e^2 \alpha_0^2}{32\pi n_r c \varepsilon_0 \hbar^2 \Omega a_c^2} \sum_{\alpha, \alpha'} |\mathcal{B}_{\alpha\alpha'}|^2 f_\alpha (1 - f_{\alpha'}) \int_0^\infty dq q^3 |g_{\mathbf{q}}|^2 |J_{\alpha, \alpha'}(q)|^2 \\ \times \left\{ N_{\mathbf{q}}^- \delta(X_1^-) + N_{\mathbf{q}, \nu}^+ \delta(X_1^+) + \frac{\alpha_0^2 q^2}{16} [N_{\mathbf{q}}^- \delta(X_2^-) + N_{\mathbf{q}, \nu}^+ \delta(X_2^+)] \right\}, \quad (5)$$

trong đó  $g_s = 2$  và  $g_v = 2$  tương ứng với hệ số suy biến spin và suy biến vùng,  $\mathcal{A}$  là diện tích của hệ,  $f_\alpha$  là hàm phân bố của electron và:

$$\mathcal{B}_{\alpha\alpha'} = (\Lambda_{n+1,s}^{p,\pm 1} \Lambda_{n'+1,s'}^{p',\pm 1} + 1) [x_0 \delta_{n',n} + (a_c / \sqrt{2}) (\sqrt{n} \delta_{n',n-1} + \sqrt{n+1} \delta_{n',n+1})], \quad (6)$$

$$X_\ell^\pm = E_{\alpha'} - E_\alpha - \ell \hbar \Omega \pm \hbar \omega_{\mathbf{q}}, \quad (\ell = 1, 2). \quad (7)$$

Đại lượng  $J_{\alpha, \alpha'}(q)$  trong công thức (5) được cho bởi:

$$|J_{\alpha, \alpha'}(q)|^2 = \frac{\delta_{ss'}}{L_{n,s}^{v,\tau} L_{n',s'}^{v',\tau}} u^j e^{-u} \frac{m!}{(m+j)!} \left[ \Lambda_{n,s}^{v,\tau} \Lambda_{n',s'}^{v',\tau} \sqrt{\frac{m+j}{m}} L_{m-1}^j(u) + L_m^j(u) \right]^2, \quad (8)$$

với  $u = a_c^2 q^2 / 2$ ,  $m = \min(n, n')$ ,  $j = |n' - n|$ , và  $L_m^j(u)$  là đa thức Laguerre liên kết. Đối với tương tác electron-phonon âm dọc (LA-phonon) áp điện (piezoelectric-PE), yếu tố ma trận tương tác được cho bởi biểu thức [9]:

$$|g_{\mathbf{q}}^{\text{LA}}|^2 = \frac{\hbar}{2\mathcal{A}\rho\omega_{\mathbf{q}}^{\text{LA}}} |M_{\mathbf{q},\text{LA}}^{\text{PE}}|^2, \quad (9)$$

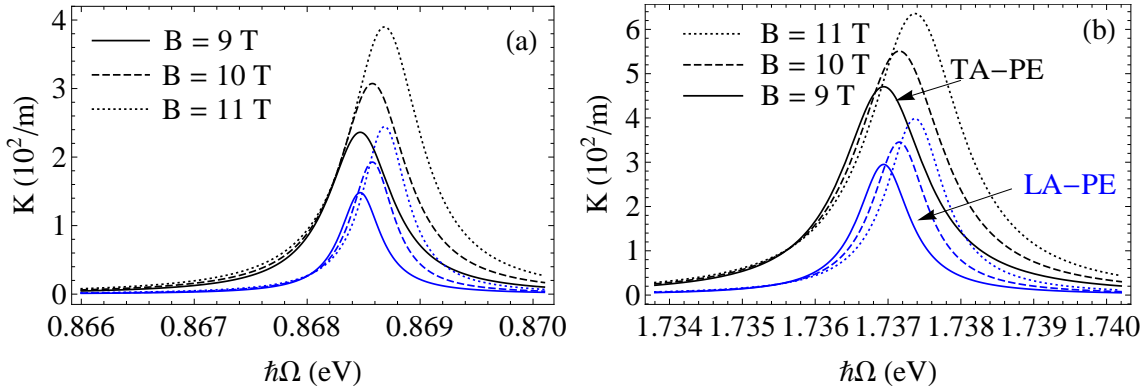
với  $\rho$  là mật độ khối lượng và  $M_{\mathbf{q},\text{LA}}$  là yếu tố ma trận tương tác,  $\omega_{\mathbf{q}} = v_{\text{LA}} q$  là năng lượng của phonon với  $v_{\text{LA}}$  là vận tốc của phonon âm LAPE. Đối với các phonon áp điện (piezoelectric-PE), hệ số tương tác được cho bởi biểu thức [9]

$$M_{\mathbf{q},\text{LA}}^{\text{PE}} \approx \frac{ee_{11}}{\varepsilon_0 \sqrt{2}} q, \quad (10)$$

trong đó  $e$  là điện tích của electron,  $e_{11}$  là hằng số áp điện, và  $\varepsilon_0$  là hằng số điện môi. Cuối cùng, thay các biểu thức (8) và (9) vào (5) và thực hiện tích phân theo biến  $q$  ta sẽ thu được biểu thức của hệ số hấp thụ quang từ do tương tác electron-LAPE phonon. Kết quả thu được sẽ được sử dụng để tính số và vẽ đồ thị.

### 3 KẾT QUẢ TÍNH SỐ VÀ THẢO LUẬN

Trong phần này chúng tôi sẽ sử dụng các kết quả giải tích thu được ở trên để thực hiện tính số và vẽ đồ thị. Các tham số đặc trưng để thực hiện tính số là [4, 10]:  $k_B = 1,3807 \times 10^{-23}$  J/K,  $a = 3,14$  Å,  $t = 1,1$  eV,  $m^* = 0,48 m_e$ ,  $\Delta = 1,66$  eV,  $\lambda = 75$  meV,  $\rho = 3,1 \times 10^{-7}$  g/cm<sup>2</sup>,  $c_{LA} = 6,7 \times 10^3$  m/s,  $e_{11} = 3,0 \times 10^{-11}$  C/m,  $n_e = 10^{13}$  cm<sup>-2</sup>, và năng lượng Fermi  $E_F = 25$  meV.

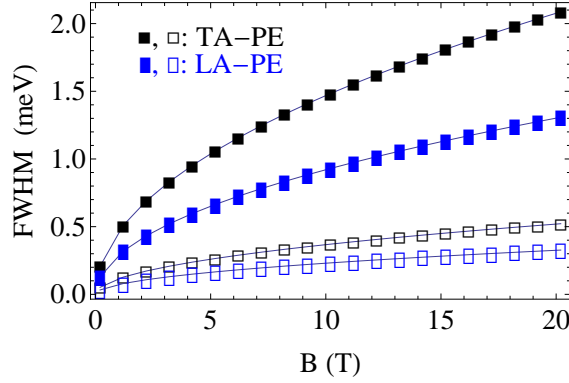


Hình 1: Sự phụ thuộc của MOAC vào năng lượng photon  $\hbar\Omega$  trong MoS<sub>2</sub> đơn lớp do tương tác electron-LA-PE phonon (các đường màu xanh) và TA-PE phonon (các đường màu đen) tại  $T = 77$  K với các giá trị khác nhau của từ trường  $B$ . Các hình (a) và (b) tương ứng với quá trình hấp thụ hai và một photon. Kết quả được tính cho quá trình spin hướng xuống.

Trong hình 1 chúng tôi mô tả sự phụ thuộc của MOAC vào năng lượng photon với các giá trị khác nhau của từ trường đối với trường hợp tương tác electron-LA-PE phonon (các đường màu xanh) đối với dịch chuyển  $n = 0 \rightarrow n' = 1$ . Các đường màu đen, tương ứng với tương tác electron-TA-PE phonon được vẽ thêm để thuận tiện trong việc so sánh. Từ hình vẽ ta thấy rằng vị trí của các đỉnh cộng hưởng đối với tương tác LA và TA phonon là trùng nhau, nghĩa là tương tác của electron đối với phonon âm áp điện là tương tự nhau đối với hai loại LA và TA phonon. Tuy nhiên tương tác của electron với TA phonon mạnh hơn với LA phonon, điều này được thể hiện thông qua việc giá trị của MOAC đối với tương tác TA phonon lớn hơn.

Bên cạnh đó, ta cũng thấy rằng khi từ trường tăng lên thì MOAC có đỉnh cộng

hường dịch chuyển về phía năng lượng cao, đồng thời giá trị của đỉnh cộng hưởng tăng lên. Nguyên nhân của sự dịch chuyển về phía năng lượng cao là do khoảng cách giữa hai mức năng lượng,  $E_{\alpha'} - E_{\alpha}$  tăng theo từ trường. Ngoài ra quá trình hấp thụ hai photon có giá trị khoảng 55.8% so với quá trình hấp thụ một photon cũng cho thấy rằng quá trình hấp thụ hai photon cho đóng góp đáng kể vào quá trình tổng và không thể bỏ qua khi khảo sát quá trình hấp thụ quang từ trong MoS<sub>2</sub> đơn lớp, cũng như trong một số vật liệu 2 chiều khác.

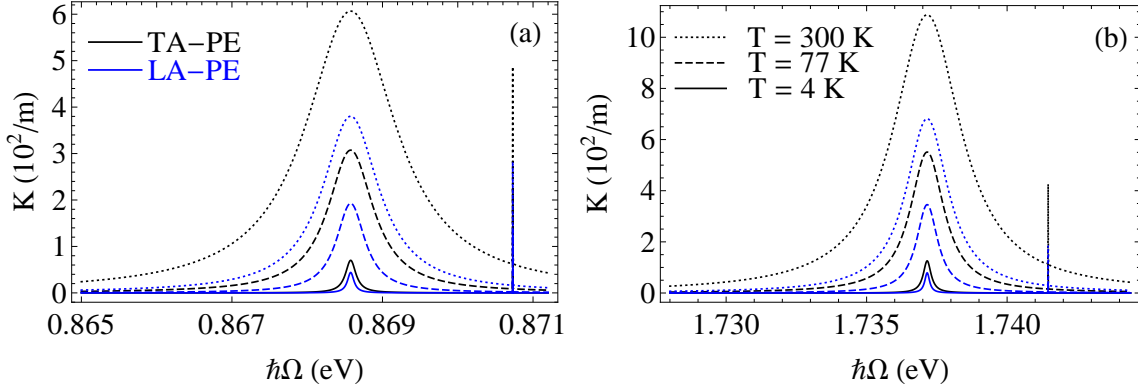


Hình 2: Sự phụ thuộc của FWHM vào từ trường tại  $T = 77$  K. Các chấm đầy và chấm trống tương ứng với quá trình một và hai photon.

Hình 2 mô tả sự phụ thuộc của FWHM vào từ trường tại  $T = 77$  K. Kết quả cho thấy FWHM tăng theo từ trường theo quy luật  $\sqrt{B}$  trong cả hai trường hợp hấp thụ một và hai photon. Kết quả này phù hợp với kết quả thu được cho tương tác electron-TA-PE phonon [7] cũng như đối với tương tác electron-LA-PE trong trường hợp spin hướng lên [6].

Hình 3 mô tả sự phụ thuộc của MOAC vào năng lượng photon đối với các giá trị khác nhau của nhiệt độ. Tuy rằng nhiệt độ không ảnh hưởng đến vị trí của đỉnh cộng hưởng, các đỉnh cộng hưởng chính (ứng với dịch chuyển  $n = 0 \rightarrow n' = 1$ ) xuất hiện tại vị trí  $\hbar\Omega = 0.8686$  và  $1.7372$  eV tương ứng với quá trình hấp thụ hai và một photon, nhưng nhiệt độ ảnh hưởng mạnh đến độ cao của đỉnh cộng hưởng: nhiệt độ càng cao thì độ cao của đỉnh cộng hưởng càng tăng. Một lần nữa kết quả này phù hợp với kết quả thu được đối với tương tác electron-TA-PE phonon [7] cũng như đối với tương tác electron-LA-PE tính cho trường hợp spin hướng lên [6]. Đỉnh nhỏ xuất hiện bên cạnh là do quá trình dịch chuyển  $n = 1 \rightarrow n' = 2$ , mà kết quả chi tiết không được khảo sát ở đây.

Trong hình 4 chúng tôi mô tả sự phụ thuộc của FWHM vào nhiệt độ tại  $B = 10$  T. Kết quả cho thấy rằng FWHM phụ thuộc vào nhiệt độ theo quy luật  $\sqrt{T}$ .

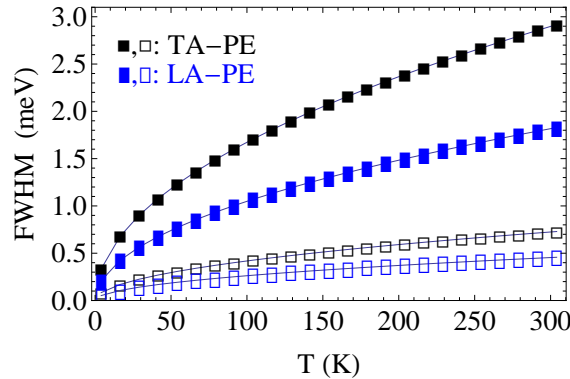


Hình 3: Sự phụ thuộc của MOAC vào năng lượng photon  $\hbar\Omega$  trong MoS<sub>2</sub> đơn lớp do tương tác electron-LA-PE phonon (các đường màu xanh) và TA-PE phonon (các đường màu đen) tại  $B = 10$  T với các giá trị khác nhau của nhiệt độ  $T$ . Các hình (a) và (b) tương ứng với quá trình hấp thụ hai và một photon. Kết quả được tính cho quá trình spin hướng xuống.

Sử dụng chương trình tính số, chúng tôi thu được  $\text{FWHM (meV)} = 0.1\sqrt{T[\text{K}]}$  đối với quá trình hấp thụ một photon do tương tác electron-LA-PE phonon và  $\text{FWHM (meV)} = 0.167\sqrt{T[\text{K}]}$  đối với tương tác electron-TA-PE phonon. Đáng tiếc là hiện nay chưa có các kết quả thực nghiệm để kiểm chứng các dự đoán của chúng tôi. Tuy nhiên, các kết quả này có thể là một định hướng tốt cho việc kiểm chứng bằng thực nghiệm mà chúng tôi hy vọng là sẽ được thực hiện trong một tương lai gần.

#### 4. KẾT LUẬN

Trong bài báo này chúng tôi đã đưa ra được biểu thức giải tích của hệ số hấp thụ quang từ trong MoS<sub>2</sub> đơn lớp khi có tương tác electron-phonon âm dọc với thế



Hình 4: Sự phụ thuộc của FWHM vào nhiệt độ tại  $B = 10$  T. Các chấm đầy và chấm trống tương ứng với quá trình một và hai photon.

áp điện (LA-PE phonon). Kết quả thu được cho thấy vị trí của các đỉnh cộng hưởng không phụ thuộc vào nhiệt độ mà chỉ phụ thuộc vào từ trường trong khi độ cao của chúng đều tăng theo nhiệt độ và từ trường nhưng. Khi từ trường tăng thì các đỉnh hấp thụ dịch chuyển về phía có năng lượng lớn hơn. Sử dụng phương pháp profile, chúng tôi thu được: FWHM tăng theo từ trường và nhiệt độ với cả trường hợp hấp thụ một và hai photon, nhưng FWHM đối với quá trình hấp thụ hai photon nhỏ hơn so với chúng trong trường hợp hấp thụ một photon. Kết quả dự đoán về quy luật thay đổi của FWHM theo nhiệt độ có là định hướng cho việc kiểm chứng bằng thực nghiệm trong tương lai.

#### Lời cảm ơn:

Nghiên cứu này được tài trợ bởi Quỹ phát triển Khoa học và Công nghệ Quốc gia (NAFOSTED) trong đề tài mã số 103.01-2015.93.

#### TÀI LIỆU THAM KHẢO

- [1] K. S. Novoselov, A. K. Geim, S. V. Morozov, D. Jiang, Y. Zhang, S. V. Dubonos, I. V. Grigorieva, A. A. Firsov (2004), *Science* **306**, 666–669.
- [2] Q. H. Wang, K. Kalantar-Zadeh, A. Kis, J. N. Coleman, M. S. Strano (2012), *Nature Nanotech.* **7**, 699–712.
- [3] K. F. Mak, C. Lee, J. Hone, J. Shan, T. F. Heinz (2010), *Phys. Rev. Lett.* **105**, 136805.
- [4] D. Xiao, G.-B. Liu, W. Feng, X. Xu, W. Yao (2012), *Phys. Rev. Lett.* **108**, 196802.
- [5] T. Ando, A. B. Fowler, F. Stern (1982), *Rev. Mod. Phys.* **54**, 437–672.
- [6] C. V. Nguyen, N. N. Hieu, N. A. Poklonski, V. V. Ilyasov, L. Dinh, T. C. Phong, L. V. Tung, H. V. Phuc (2017), *Phys. Rev. B* **96**, 125411.
- [7] T. T. L. Phi, H. V. Phuc (2017), *Proc. CYS, Hue Univ. Edu.* **1**, 456–463.
- [8] C. M. Wang, X. L. Lei (2015), *Phys. Rev. B* **92**, 125303.
- [9] K. S. Bhargavi, S. Patil, S. S. Kubakaddi (2015), *J. Appl. Phys.* **118**, 044308.
- [10] K. Kaasbjerg, K. S. Thygesen, K. W. Jacobsen (2012), *Phys. Rev. B* **85**, 115317.

**Title:** NONLINEAR TWO-PHOTON ABSORPTION PROCESS IN  $\text{MoS}_2$  MONOLAYER UNDER THE EFFECT OF ELECTRON-LA-PE PHONON SCATTERING

**Abstract:** In this work, we investigate the nonlinear two-photon absorption process in molybdenum disulfide monolayer under the effect of electron-longitudinal acoustic (LA) phonon with piezoelectric (PE) coupling. Using the perturbation method we obtain the expression for the magneto-optical absorption coefficient (MOAC), and then using the profile method to obtain the full width at half maximum (FWHM). The results show that MOAC and FWHM strongly depend on the magnetic and temperature in both cases one-photon and two-photon absorption processes. The obtained results are compared to those in case of electron-TA-PE phonon scattering.

**Keywords:**  $\text{MoS}_2$  monolayer, magneto-optical absorption coefficient, full width at half maximum.