

Pt 薄膜衬底 H 堆叠 WS₂/WSe₂ 层间激子的谷极化研究

王瑶瑶^{1,2}, 贺金坤^{1,2}, 裴沃野^{1,2}, 张桐耀^{1,2*}

(1. 量子光学与光量子器件国家重点实验室, 山西大学 光电研究所, 山西 太原 030006;

2. 极端光学协同创新中心, 山西 太原 030006)

摘要: 双层莫尔过渡金属硫族化合物(Transition metal dichalcogenides, TMDCs)可形成周期性的莫尔超晶格,是研究电子关联态和新型激子态的重要研究平台。具有II型能带匹配的转角TMDCs异质结形成的莫尔层间激子,其自旋-能谷自由度不仅能被静电感应、应力、衬底等因素调控,更受到莫尔势的深度调制,共同促进了高度可调谷电子学器件的研究。本文制备了分别位于铂(Pt)薄膜衬底和二氧化硅(SiO₂)衬底的H堆叠(60°转角)二硫化钨/二硒化钨(WS₂/WSe₂)异质结器件。通过低温下对两种衬底的莫尔异质结进行光致发光(Photoluminescence, PL)光谱、光致发光激发(Photoluminescence excitation, PLE)光谱以及谷极化的测试,发现在电荷掺杂可以忽略的情况下,层间激子在Pt衬底上更加局域化,并且其谷极化随激子浓度增加更容易饱和。本项工作中,Pt薄膜作为金属接触的同时也是一种人工引入的缺陷,其对异质结谷极化的影响为以莫尔层间激子为基础的光电子学应用提供了参考。

关键词: H堆叠 WS₂/WSe₂; 层间激子; 光致发光光谱; 谷极化

中图分类号: O472+.3

文献标志码: A

文章编号: 0253-2395(2025)04-0759-08

Valley Polarization of Interlayer Excitons in a H-stacked WS₂/WSe₂ on Pt Film Substrate

WANG Yaoyao^{1,2}, HE Jinkun^{1,2}, PEI Woye^{1,2}, ZHANG Tongyao^{1,2*}

(1. State Key Laboratory of Quantum Optics and Optical Quantum Devices, Institute of Optoelectronics, Shanxi University, Taiyuan 030006, China;

2. Extreme Optics Collaborative Innovation Center, Taiyuan 030006, China)

Abstract: Two-dimensional transition metal dichalcogenides (TMDCs) can form periodic moiré superlattice, offering an invaluable platform for the investigation of electron correlation states and novel exciton states. Moiré interlayer excitons in TMDCs heterostructures with type-II band alignment exhibit spin-valley degrees of freedom that are manipulated not only by electrostatic field, strain, and substrate, but also by the modulation of moiré potential, facilitating the exploration of highly tunable valleytronic devices. In this paper, a H-stacked (60° twisted) tungsten disulfide/tungsten diselenide (WS₂/WSe₂) heterostructure was prepared on platinum (Pt) thin film substrate and silicon dioxide (SiO₂) substrate, separately. By performing photoluminescence (PL) spectroscopy, photoluminescence excitation (PLE) spectroscopy and valley polarization measurements on both substrates at low temperatures, it was observed that, in the absence of significant charge doping, the interlayer excitons are more localized on the Pt substrate. Additionally, the valley polarization is more easily saturated with increasing exciton concentration on Pt substrate. Pt thin films, serving dual roles as metal contacts and artificially introduced defects, are shown to impact the valley polarization of the interlayer excitons. Our work

收稿日期: 2023-12-25; **接受日期:** 2024-03-20

基金项目: 国家自然科学基金(12204287)

作者简介: 王瑶瑶(1998-),女,山西大同人,硕士研究生,研究方向为低维材料与器件。E-mail: yaoyaow.sxu@gmail.com

* **通信作者:** 张桐耀(ZHANG Tongyao), E-mail: tongyao_zhang@sxu.edu.cn

引文格式: 王瑶瑶,贺金坤,裴沃野,等. Pt薄膜衬底H堆叠WS₂/WSe₂层间激子的谷极化研究[J]. 山西大学学报(自然科学版), 2025, 48(4): 759-766. DOI: 10.13451/j.sxu.ns.2024058.

provides insights for optoelectronics applications based on Moiré interlayer excitons.

Key words: H-stacked WS₂/WSe₂; interlayer excitons; photoluminescence spectroscopy; valley polarization

0 引言

对以单层二硫化钨(WS₂),二硒化钨(WSe₂)为代表的不同种过渡金属硫族化合物(TMDCs)进行晶格对齐的堆叠操作,由于晶格常数的失配,可以形成转角双层的莫尔超晶格结构^[1-2]。当莫尔超晶格形成的莫尔势相对动能占据主导作用,电荷之间的库伦相互作用将得到增强,进入强相互作用区间,会导致一系列关联态的出现,例如莫特绝缘态、广义维格纳晶体、量子反常霍尔效应、陈绝缘态等^[3-11]。另外,两层TMDCs半导体的能带结构往往有助于形成II型能带匹配,弱介电屏蔽效应和强量子限域效应使得分别来自上下两层的电子和空穴会产生较强的库伦吸引,形成了层间激子(电子-空穴对)^[12-18]。电子和空穴的空间分离导致层间激子具有数百纳秒甚至微秒量级的寿命^[19-22],同时也使层间激子具有平面外静电偶极矩,其光学和输运特性得以被电场调控,这些特性让层间激子成为研究多体物理的良好平台^[23-25]。莫尔周期势可捕获层间激子,形成近似量子点莫尔层间激子,莫尔势突出的可调性为莫尔层间激子在量子光电子方面的应用提供了独特的优势^[26-27]。

在单层TMDCs材料中,空间反演对称性破缺和自旋-轨道相互作用使得布里渊区边沿的K+能谷与K-能谷不同但能量简并^[28-29],能谷-自旋的锁定形成了谷依赖的光学选择定则,对荧光发射的极化率测量为激子谷极化提供了有效的探测方式^[30-33]。与单层TMDCs晶体不同,转角双层TMDCs中层间激子的谷极化则会受到堆叠方式和莫尔周期势场的强烈影响,产生显著的差异^[34-38]。对于R堆叠(0°转角)和H堆叠(60°转角)WS₂/WSe₂异质结而言,当采用圆偏光激发时,R堆叠下电中性和电子端掺杂时得到的圆偏振度(Degree of circular polarization, DOCP)大于0,H堆叠下不管处于何种电荷掺杂,测量得到的DOCP均小于0。即便对于相同的R堆叠WS₂/WSe₂异质结,在特定

的激发能量下,空间调制的莫尔势仍然可以将层间激子局域在莫尔晶胞的不同位置,展现出完全相反的光学选择定则^[39]。

转角双层TMDCs中层间激子的谷极化还会受到界面效应的调控,例如施加单轴应力会极大地增强莫尔激子的线偏振度^[40],而在与光学谐振腔耦合时则会限制莫尔激子的偏振模式^[41],界面的缺陷与无序可能导致能谷散射的增强从而影响极化率。另一方面,Pt作为一种重金属已被证明可以改善WSe₂、MoTe₂等二维原子半导体的欧姆接触,使得极端条件下二维TMDCs的电输运研究成为可能^[3,5,10]。然而,作为溅射或沉积在衬底上的金属薄层,Pt表面的平整度不仅无法与原子级平整的h-BN相比,也同样弱于SiO₂等致密的氧化层。基于莫尔激子容易受到外场或缺陷影响的事实,在减少肖特基势垒降低接触电阻的同时,Pt等金属层会对莫尔势调制层间激子的光学性质产生怎样的影响,成为一个有待探讨的问题。

本文主要研究了超薄Pt金属衬底对H堆叠WS₂/WSe₂器件的层间激子及其谷极化的影响。通过干法转移制备了部分位于Pt衬底,部分位于SiO₂衬底的H堆叠WS₂/WSe₂异质结,利用低温微区光致发光(Photoluminescence, PL)技术,研究了栅压对层间激子的电学调制作用,受到施加电压以及Pt金属静电屏蔽作用的限制,层间激子几乎处于电荷中性范围;功率依赖的PL光谱显示,受到界面缺陷影响,Pt衬底上异质结的层间激子相对于SiO₂衬底更加局域化。在光致发光光谱的基础上,进一步测试了偏振分辨,负向的DOCP随激发功率逐渐增强,然而,Pt衬底上的层间激子DOCP更容易达到饱和,体现出缺陷对极化率的抑制作用;而光致发光激发(Photoluminescence excitation, PLE)光谱的结果显示,当WSe₂层内激子近共振时出现最强的DOCP,这可能是激发光子能量趋向层内激子时,莫尔晶胞各位置跃迁之间发生竞争导致的。

1 器件的制备与实验方法

本文采用机械剥离的方式从块体材料解离出少数层六方氮化硼(h-BN)以及单层WS₂和单层WSe₂,通过标准的先进微纳加工技术,在电子束曝光后利用电子束蒸发在硅片(SiO₂/Si)上蒸镀约3 nm厚金属Pt薄层,并利用原子力显微镜(Atomic Force Microscopy, AFM)的Contact模式对其表面进行平整处理。然后使用电动转印平台通过干法转移的方式,利用二维材料层与层之间的范德瓦耳斯力,用h-BN依次拾取单层WS₂和WSe₂并使其实现H堆叠,最后将h-BN/WS₂/WSe₂异质结落在蒸镀有Pt的硅片上,使其部分置于平整处理后的Pt上,部分置于硅片上,以便对比测试。实验中通过硅栅实现电荷掺杂,图1(a)为器件结构示意图。用AFM的Tapping模式对h-BN、Pt以及单层WS₂和WSe₂进行表征确定其厚度以及干净表面,单层WS₂和WSe₂表征结果如图1(b)所示。在堆叠异质结时将自然剥离的单层WS₂和WSe₂齐边对齐,得到的异质结将会是R堆叠或者是H堆叠,后续通过二次谐波(Second Harmonic Generation, SHG)表征技术进行进一步确定。从如图1(c)看到WS₂/WSe₂异质结(蓝色)的二次谐波信号相对于单层WS₂(红色)相消,由此可确定本实验中所用器件为H堆叠(60°)^[42-43]。H堆叠的WS₂/WSe₂异质结同样具有II型能带排列,如图1(d)所示,在低温下晶格热扰动受到抑制,电子-声子相互作用较弱,这导致分别位于相邻的两个单层中电子和空穴有机会结合形成层间激子,其中,由于能带相对关系电子位于WS₂层,空穴位于WSe₂层。

因此,我们选择 $T = 5$ K的光学恒温室基础低温进行层间激子的光学测试。通过PL光谱技术研究了器件的光致发光特性,对在Pt衬底上的WS₂/WSe₂异质结进行PL光谱与栅极电压关系的测试,激发波长为532 nm,激发光功率为100 μ W。利用源表为样品提供直流电压,栅压范围为-30 V~30 V。在后续的实验中,我们改用波长连续可调的钛宝石激光器进行研究,在对Pt衬底和SiO₂衬底上层间激子PL光谱进行功率依赖对比测试中,激发光波长固定为720 nm。而在激发光能量对不同衬底上

WS₂/WSe₂层间激子的作用对比研究中,我们还进行了谷极化的测量。其原理是利用液晶延迟器调制激发光的旋光状态,从样品反射出来携带圆极化率信息的荧光光子通过四分之一玻片后经检偏器检测进入光谱仪探测。谷极化可以通过DOCP表征^[44],

$$\rho_{\text{DOCP}} = \frac{I(\sigma^+) - I(\sigma^-)}{I(\sigma^+) + I(\sigma^-)}, \quad (1)$$

其中 $I(\sigma^+)$ 表示左旋圆偏振PL强度, $I(\sigma^-)$ 表示右旋圆偏振PL强度。

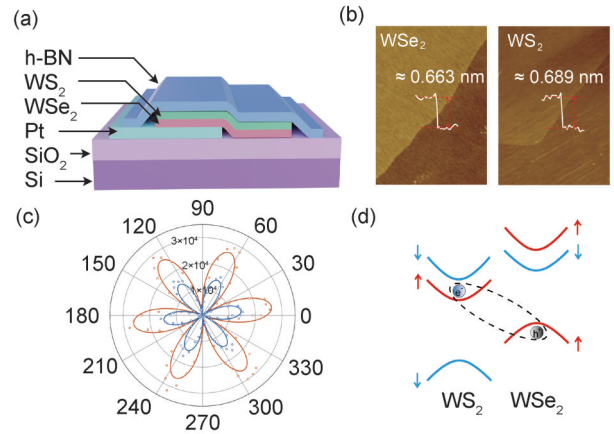


图1 H堆叠WS₂/WSe₂异质结

(a)H堆叠WS₂/WSe₂器件结构示意图;(b)单层WS₂和单层WSe₂ AFM形貌表征及厚度测量;(c)在WS₂/WSe₂器件的单层WS₂(红色)和结区(蓝色)测得偏振依赖的SHG信号强度随方位角变化的极坐标图;(d)H堆叠WS₂/WSe₂异质结II型能带排列示意图,黑色虚线表示层间激子,红线表示自旋向上,蓝线表示自旋向下

Fig. 1 H-stacked WS₂/WSe₂ heterostructure

(a) Schematic of H-stacked WS₂/WSe₂ device; (b) Morphology characterization and thickness of monolayer WS₂ and monolayer WSe₂, respectively; (c) Polarization resolved SHG in monolayer WS₂ (red) and junction region (blue) of the WS₂/WSe₂ device; (d) Schematic of H-stacked WS₂/WSe₂ heterostructures with type-II band alignment. The black dashed lines depict interlayer excitons, while the red and blue lines correspond to spin-up and spin-down states, respectively

2 实验结果及讨论

我们采用微区荧光光谱光学装置对H堆叠WS₂/WSe₂器件的层间激子进行电学调制研究。对Pt衬底上WS₂/WSe₂异质结进行栅压依赖的PL光谱测试,得到PL与 V_g 的二维映射关系,如图2(a)所示,看到随着栅压的变化层间激子

几乎始终处于电荷中性处,一方面是由于施加的栅压不高,电荷掺杂浓度不够,莫尔超晶格只被载流子部分填充;另一方面可能是因为层间激子受到金属Pt的静电屏蔽作用,施加电压后在金属Pt薄膜中产生了与外部电场相反的电场,抵消了外部电场的作用。图2(b)是 $V_g = 0$ V时层间激子的PL光谱,可以看到1.44 eV~1.49 eV处出现显著的层间激子PL峰,两个PL峰可能分别是自旋单态和自旋三重态的贡献。

在对不同衬底上 WS_2/WSe_2 异质结中层间激子荧光强度与激发功率的依赖关系测试中,我们依次增加激发功率从0.5 μ W到200 μ W。图3(a)和(b)分别为Pt衬底和 SiO_2 衬底上异质结层间激子的功率依赖PL光谱。两衬底上异质结层间激子的中心能量均随激发功率的增大而发生蓝移,这是因为增大激发光功率会产生更多的层间激子,激子-激子的排斥作用逐渐增强导致的。另外,Pt衬底上荧光强度明显比 SiO_2 衬底弱,这一方面是因为相对于 SiO_2 衬底,粗糙的Pt衬底会引入更多的界面缺陷,层间激子在空间上受到限制发生局域化,扩散距离和寿命缩短,这导致层间激子能量的损失和非辐射复合的增加;另一方面在金属-TMDCs界面可能会发生层间电荷转移,阻碍层间激子的形成,这两种机制都会引起PL在一定程度上的淬灭。进一步地,我们通过幂函数 $I \propto P^\alpha$ 对实验数据进行定量分析,其中 I 为层间激子荧光强度, P 为激发光功率, α 为指数因子,拟合结果如图3

(c)所示, SiO_2 衬底上的指数因子为0.31,Pt衬底上的指数因子则为0.24,均为远小于1的亚线性。Pt衬底上PL强度随激发功率更小的指数因子反映了更加局域化的层间激子行为。

随后对H堆叠 WS_2/WSe_2 异质结层间激子进行旋光分辨PL光谱测试,以研究两种衬底上的谷极化。实验中左旋圆偏光(σ^+)作为激发光。图4(a—h)分别展示了激发光波长为720 nm,不同激发功率下, SiO_2 衬底上异质结 σ^+ 和 σ^- 分辨PL光谱(左列)和相应的DOCP(右列)。与图3相似,随着激发功率的增加,荧光中心能量逐渐蓝移;而DOCP则逐渐向负方向增强。双层莫尔TMDCs系统的DOCP是由实空间的复合位置和自旋-谷决定的,对于H堆叠的 WS_2/WSe_2 异质结, WSe_2 的K+谷与 WS_2 的K-谷几乎在动量上对齐,受左旋圆偏振光激发后, WSe_2 K+谷处的光生电子主要会以直接隧穿的方式弛豫到 WS_2 K-谷的导带底,电子-空穴主要在 WS_2 和 WSe_2 的六边形中心对齐处复合,发射出右旋圆偏光子(σ^-),所以DOCP均为负值^[39,45]。随着激发功率的增加光诱导的层间激子密度越来越高,每个莫尔晶胞则至少被一个层间激子所占据,激子-激子将发生相互作用,导致层间激子在不同谷之间的散射过程被抑制,这意味着层间激子更倾向于留在原始的谷态,从而导致强烈的谷极化,即DOCP负向增强。由图4(i)可知,在Pt衬底上异质结进行相同条件的对比测试中,当功率低于20 μ W时,由于层间激子密度较低,两衬底处的DOCP值随

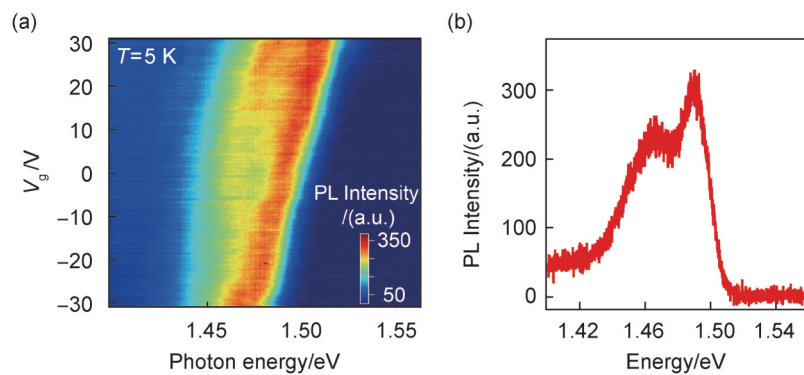


图2 Pt衬底区域 WS_2/WSe_2 异质结PL光谱

(a)Pt衬底区域PL强度与 V_g 、光子能量的二维映射关系图;(b) WS_2/WSe_2 异质结 $V_g = 0$ V时PL光谱

Fig. 2 PL spectra of the WS_2/WSe_2 heterostructure in Pt region

(a) Two-dimensional mapping PL between V_g and photon energy in Pt substrate region; (b) Typical PL spectrum at $V_g = 0$ V

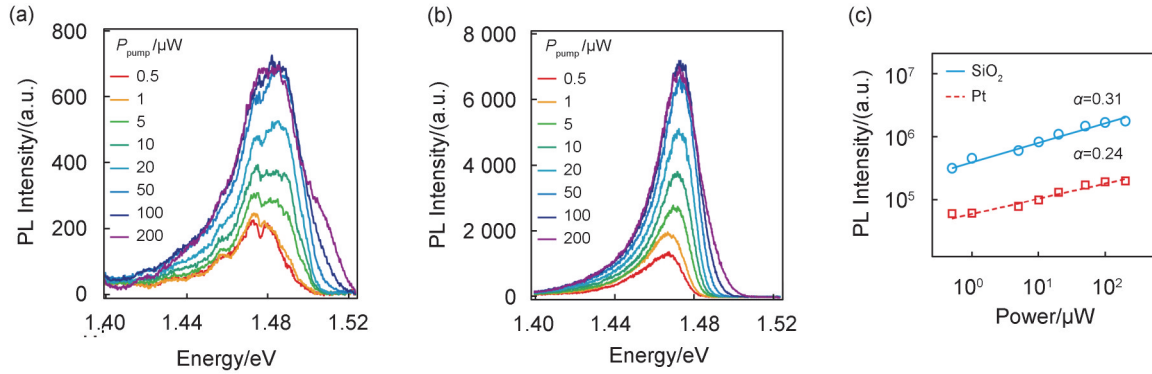


图3 Pt衬底和SiO₂衬底WS₂/WSe₂异质结功率依赖PL光谱

(a)Pt衬底WS₂/WSe₂异质结功率依赖PL光谱;(b)SiO₂衬底WS₂/WSe₂异质结功率依赖PL光谱;(c)Pt衬底和SiO₂衬底WS₂/WSe₂异质结激发功率与PL强度关系图

Fig. 3 Power-dependent PL spectra WS₂/WSe₂ heterostructure on Pt substrate and SiO₂ substrate

(a) Power dependent PL spectra on Pt substrate; (b) Power dependent PL spectra on SiO₂ substrate; (c) Relationship between PL strength and excitation power of WS₂/WSe₂ heterostructure on Pt substrate and SiO₂ substrate, respectively

功率增加的趋势几乎相同;但随着层间激子密度的持续增加, SiO₂衬底处的DOCP明显增强,最终在实验所用最强功率时达到约-0.33,而Pt衬底处DOCP并没有展现出明显变化。层间激子的寿命和能谷寿命都会影响DOCP,上述现象

可能是由于Pt衬底的粗糙界面导致WS₂/WSe₂异质结的能谷寿命受到抑制。

我们进一步改变激光器输出能量,得到H堆叠WS₂/WSe₂异质结层间激子DOCP随激发光能量的变化关系,如图4(j)所示,在激发光功率为

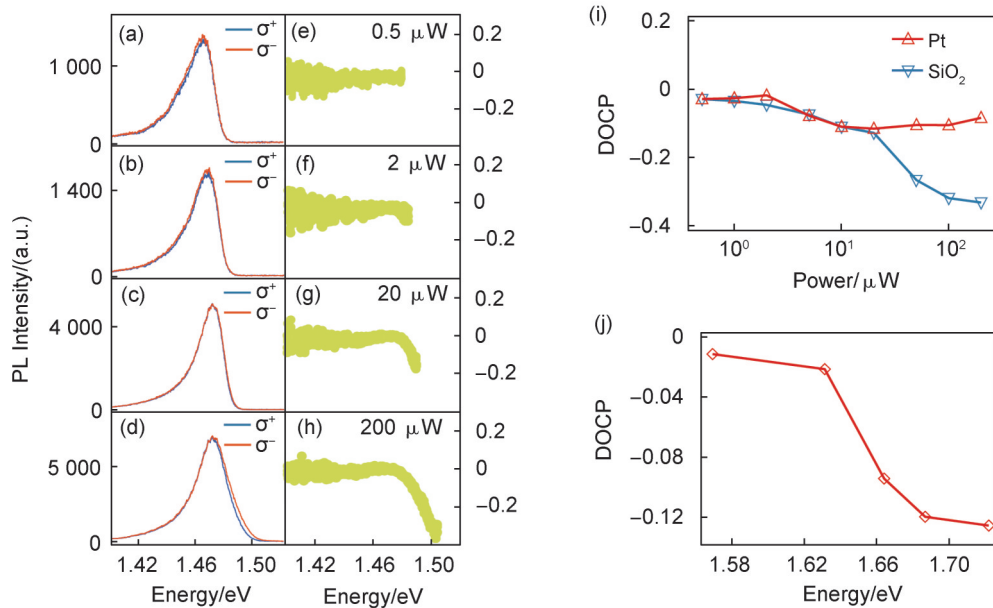


图4 WS₂/WSe₂异质结光学调控谷极化。所用激发光均为左旋圆偏振光

(a—d)激发光波长为720 nm时, SiO₂衬底区域不同功率PL光谱与相应的DOCP(e—h);(i)激发光波长为720 nm时WS₂/WSe₂异质结在Pt衬底和SiO₂衬底处DOCP随激发光功率变化关系图;(j)Pt衬底WS₂/WSe₂异质结DOCP随激发光光子能量变化关系图

Fig. 4 Optically manipulated valley polarization in WS₂/WSe₂ heterostructures. The polarization is controlled to be left-handed circularly polarized

(a—d) PL spectra of the WS₂/WSe₂ heterostructure on Pt substrate with different power and their corresponding DOCP (e—h); The wavelength of excitation is 720 nm; (i) The trends of DOCP as a function of excitation power on Pt substrate and SiO₂ substrate respectively; (j) Relationship between DOCP and excitation photon energy of the WS₂/WSe₂ heterostructure on Pt substrate

100 μW 时(激发光能量为 1.57 eV 除外,此时激发功率为 500 μW),DOCP 随着激发光能量的增加而增强,在与 WSe_2 层内激子近共振时 DOCP 最强。这可能是因为当激发光能量与 WSe_2 层内激子发生共振时,致使更多的层间激子形成,层间激子在占位莫尔超晶格时发生竞争,谷之间的跃迁受到抑制,从而增强了谷极化。

3 结论

本文设计了部分 Pt 衬底和部分 SiO_2 衬底的 H 堆叠 WS_2/WSe_2 转角器件,在 $T = 5\text{ K}$ 的低温下研究了两种衬底作用下层间激子的 PL 和 DOCP 特性。增强激发光的功率会使层间激子荧光发生蓝移,且 SiO_2 衬底区域 PL 强于 Pt 衬底区域;通过对层间激子谷极化的研究发现, SiO_2 衬底区域 DOCP 随着功率增加明显增加,Pt 衬底则会发生 DOCP 的饱和;此外,选择合适的激发光能量也会提高谷极化。此项研究成果为金属接触下双层 H 堆叠 TMDCs 的层间激子及其谷极化提供了实验依据,促进了基于激子莫特绝缘态的光电器件研究。

参考文献:

- [1] LUICAN A, LI G H, REINA A, *et al.* Single-layer Behavior and Its Breakdown in Twisted Graphene Layers[J]. *Phys Rev Lett*, 2011, **106**(12): 126802. DOI: 10.1103/PhysRevLett.106.126802.
- [2] YU H Y, LIU G B, TANG J J, *et al.* Moiré Excitons: From Programmable Quantum Emitter Arrays to Spin-orbit-coupled Artificial Lattices[J]. *Sci Adv*, 2017, **3**(11): e1701696. DOI: 10.1126/sciadv.1701696.
- [3] WANG L, SHIH E M, GHIOTTO A, *et al.* Correlated Electronic Phases in Twisted Bilayer Transition Metal Dichalcogenides[J]. *Nat Mater*, 2020, **19**(8): 861–866. DOI: 10.1038/s41563-020-0708-6.
- [4] HUANG X, WANG T M, MIAO S N, *et al.* Correlated Insulating States at Fractional Fillings of the WS_2/WSe_2 Moiré Lattice[J]. *Nat Phys*, 2021, **17**: 715–719. DOI: 10.1038/s41567-021-01171-w.
- [5] LI T X, JIANG S W, SHEN B W, *et al.* Quantum Anomalous Hall Effect from Intertwined Moiré Bands[J]. *Nature*, 2021, **600**(7890): 641–646. DOI: 10.1038/s41586-021-04171-1.
- [6] REGAN E C, WANG D Q, JIN C H, *et al.* Mott and Generalized Wigner Crystal States in WSe_2/WS_2 Moiré Superlattices[J]. *Nature*, 2020, **579**(7799): 359–363. DOI: 10.1038/s41586-020-2092-4.
- [7] SHIMAZAKI Y, SCHWARTZ I, WATANABE K, *et al.* Strongly Correlated Electrons and Hybrid Excitons in a Moiré Heterostructure[J]. *Nature*, 2020, **580**(7804): 472–477. DOI: 10.1038/s41586-020-2191-2.
- [8] TANG Y H, LI L Z, LI T X, *et al.* Simulation of Hubbard Model Physics in WSe_2/WS_2 Moiré Superlattices[J]. *Nature*, 2020, **579**(7799): 353–358. DOI: 10.1038/s41586-020-2085-3.
- [9] XU Y, LIU S, RHODES D A, *et al.* Correlated Insulating States at Fractional Fillings of Moiré Superlattices[J]. *Nature*, 2020, **587**(7833): 214–218. DOI: 10.1038/s41586-020-2868-6.
- [10] ZENG Y H, XIA Z C, KANG K F, *et al.* Thermodynamic Evidence of Fractional Chern Insulator in Moiré MoTe_2 [J]. *Nature*, 2023, **622**: 69–73. DOI: 10.1038/s41586-023-06452-3.
- [11] LI H Q, KUMAR U, SUN K, *et al.* Spontaneous Fractional Chern Insulators in Transition Metal Dichalcogenide Moiré Superlattices[J]. *Phys Rev Research*, 2021, **3**(3): L032070. DOI: 10.1103/physrevresearch.3.L032070.
- [12] CHIU M H, ZHANG C D, SHIU H W, *et al.* Determination of Band Alignment in the Single-layer $\text{MoS}_2/\text{WSe}_2$ Heterojunction[J]. *Nat Commun*, 2015, **6**: 7666. DOI: 10.1038/ncomms8666.
- [13] HILL H M, RIGOSI A F, RIM K T, *et al.* Band Alignment in MoS_2/WS_2 Transition Metal Dichalcogenide Heterostructures Probed by Scanning Tunneling Microscopy and Spectroscopy[J]. *Nano Lett*, 2016, **16**(8): 4831–4837. DOI: 10.1021/acs.nanolett.6b01007.
- [14] JIANG Y, CHEN S L, ZHENG W H, *et al.* Interlayer Exciton Formation, Relaxation, and Transport in TMD van Der Waals Heterostructures[J]. *Light Sci Appl*, 2021, **10**(1): 72. DOI: 10.1038/s41377-021-00500-1.
- [15] LIU Y P, GAO Y J, ZHANG S Y, *et al.* Valleytronics in Transition Metal Dichalcogenides Materials[J]. *Nano Res*, 2019, **12**(11): 2695–2711. DOI: 10.1007/s12274-019-2497-2.
- [16] MAK K F, XIAO D, SHAN J. Light-Valley Interactions in 2D Semiconductors[J]. *Nat Photonics*, 2018, **12**: 451–460. DOI: 10.1038/s41566-018-0204-6.
- [17] XU K, XU Y F, ZHANG H, *et al.* The Role of Anderson's Rule in Determining Electronic, Optical and Transport Properties of Transition Metal Dichalcogenide Heterostructures[J]. *Phys Chem Chem Phys*, 2018, **20**(48): 30351–30364. DOI: 10.1039/c8cp05522j.
- [18] ZHANG C X, GONG C, NIE Y F, *et al.* Systematic

- Study of Electronic Structure and Band Alignment of Monolayer Transition Metal Dichalcogenides in Van der Waals Heterostructures[J]. *2D Mater*, 2017, **4**: 015026. DOI: 10.1088/2053-1583/4/1/015026.
- [19] RIVERA P, SCHAIBLEY J R, JONES A M, *et al.* Observation of Long-lived Interlayer Excitons in Monolayer MoSe₂-WSe₂ Heterostructures[J]. *Nat Commun*, 2015, **6**: 6242. DOI: 10.1038/ncomms7242.
- [20] BARANOWSKI M, SURRENTE A, KLOPOTOWSKI L, *et al.* Probing the Interlayer Exciton Physics in a MoS₂/MoSe₂/MoS₂ van Der Waals Heterostructure[J]. *Nano Lett*, 2017, **17**(10): 6360–6365. DOI: 10.1021/acs.nanolett.7b03184.
- [21] MILLER B, STEINHOFF A, PANO B, *et al.* Long-lived Direct and Indirect Interlayer Excitons in van Der Waals Heterostructures[J]. *Nano Lett*, 2017, **17**(9): 5229–5237. DOI: 10.1021/acs.nanolett.7b01304.
- [22] KIEMLE J, SIGGER F, LORKE M, *et al.* Control of the Orbital Character of Indirect Excitons in MoS₂/WS₂ Heterobilayers[J]. *Phys Rev B*, 2020, **101**: 121404. DOI: 10.1103/PhysRevB.101.121404.
- [23] JAUREGUI L A, JOE A Y, PISTUNOVA K, *et al.* Electrical Control of Interlayer Exciton Dynamics in Atomically Thin Heterostructures[J]. *Science*, 2019, **366** (6467): 870–875. DOI: 10.1126/science.aaw4194.
- [24] NAGLER P, PLECHINGER G, BALLOTTIN M V, *et al.* Interlayer Exciton Dynamics in a Dichalcogenide Monolayer Heterostructure[J]. *2D Mater*, 2017, **4**(2): 025112. DOI: 10.1088/2053-1583/aa7352.
- [25] UNUCHEK D, CIARROCCI A, AVSAR A, *et al.* Room-temperature Electrical Control of Exciton Flux in a van Der Waals Heterostructure[J]. *Nature*, 2018, **560**(7718): 340–344. DOI: 10.1038/s41586-018-0357-y.
- [26] SHINOKITA K, MIYAUCHI Y, WATANABE K, *et al.* Resonant Coupling of a Moiré Exciton to a Phonon in a WSe₂/MoSe₂ Heterobilayer[J]. *Nano Lett*, 2021, **21**(14): 5938–5944. DOI: 10.1021/acs.nanolett.1c00733.
- [27] WANG X, ZHU J Y, SEYLER K L, *et al.* Moiré Trions in MoSe₂/WSe₂ Heterobilayers[J]. *Nat Nanotechnol*, 2021, **16**(11): 1208–1213. DOI: 10.1038/s41565-021-00969-2.
- [28] MAK K F, SHAN J. Photonics and Optoelectronics of 2D Semiconductor Transition Metal Dichalcogenides [J]. *Nat Photonics*, 2016, **10**: 216–226. DOI: 10.1038/nphoton.2015.282.
- [29] XU X D, YAO W, XIAO D, *et al.* Spin and Pseudospin in Layered Transition Metal Dichalcogenides[J]. *Nat Phys*, 2014, **10**: 343–350. DOI: 10.1038/nphys2942.
- [30] CAO T, WANG G, HAN W P, *et al.* Valley-selective Circular Dichroism of Monolayer Molybdenum Disulphide[J]. *Nat Commun*, 2012, **3**: 887. DOI: 10.1038/ncomms1882.
- [31] RIVERA P, YU H Y, SEYLER K L, *et al.* Interlayer Valley Excitons in Heterobilayers of Transition Metal Dichalcogenides[J]. *Nat Nanotechnol*, 2018, **13**(11): 1004–1015. DOI: 10.1038/s41565-018-0193-0.
- [32] YU H Y, CUI X D, XU X D, *et al.* Valley Excitons in Two-dimensional Semiconductors[J]. *Natl Sci Rev*, 2015, **2**(1): 57–70. DOI: 10.1093/nsr/nwu078.
- [33] ZENG H L, DAI J F, YAO W, *et al.* Valley Polarization in MoS₂ Monolayers by Optical Pumping[J]. *Nat Nanotechnol*, 2012, **7**(8): 490–493. DOI: 10.1038/nnano.2012.95.
- [34] DU L J, HASAN T, CASTELLANOS-GOMEZ A, *et al.* Engineering Symmetry Breaking in 2D Layered Materials[J]. *Nat Rev Phys*, 2021, **3**: 193–206. DOI: 10.1038/s42254-020-00276-0.
- [35] SCHAIBLEY J R, YU H Y, CLARK G, *et al.* Valleytronics in 2D Materials[J]. *Nat Rev Mater*, 2016, **1**: 16055. DOI: 10.1038/natrevmats.2016.55.
- [36] TRAN K, MOODY G, WU F C, *et al.* Evidence for Moiré Excitons in van der Waals Heterostructures[J]. *Nature*, 2019, **567**(7746): 71–75. DOI: 10.1038/s41586-019-0975-z.
- [37] SEYLER K L, RIVERA P, YU H Y, *et al.* Signatures of Moiré-trapped Valley Excitons in MoSe₂/WSe₂ Heterobilayers[J]. *Nature*, 2019, **567**(7746): 66–70. DOI: 10.1038/s41586-019-0957-1.
- [38] WU F C, LOVORN T, MACDONALD A H. Theory of Optical Absorption by Interlayer Excitons in Transition Metal Dichalcogenide Heterobilayers[J]. *Phys Rev B*, 2018, **97**(3): 035306. DOI: 10.1103/physrevb.97.035306.
- [39] JIN C H, REGAN E C, WANG D Q, *et al.* Identification of Spin, Valley and Moiré Quasi-angular Momentum of Interlayer Excitons[J]. *Nat Phys*, 2019, **15**(11): 1140–1144. DOI: 10.1038/s41567-019-0631-4.
- [40] BAI Y S, ZHOU L, WANG J, *et al.* Excitons in Strain-induced One-dimensional Moiré Potentials at Transition Metal Dichalcogenide Heterojunctions[J]. *Nat Mater*, 2020, **19**(10): 1068–1073. DOI: 10.1038/s41563-020-0730-8.
- [41] PAIK E Y, ZHANG L, BURG G W, *et al.* Interlayer Exciton Laser of Extended Spatial Coherence in Atomically Thin Heterostructures[J]. *Nature*, 2019, **576** (7785): 80–84. DOI: 10.1038/s41586-019-1779-x.
- [42] HSU W T, ZHAO Z A, LI L J, *et al.* Second Harmonic

- Generation from Artificially Stacked Transition Metal Dichalcogenide Twisted Bilayers[J]. *ACS Nano*, 2014, **8**(3): 2951–2958. DOI: 10.1021/nn500228r.
- [43] YUAN L, ZHENG B Y, KUNSTMANN J, *et al.* Twist-angle-dependent Interlayer Exciton Diffusion in WS₂-WSe₂ Heterobilayers[J]. *Nat Mater*, 2020, **19**(6): 617–623. DOI: 10.1038/s41563-020-0670-3.
- [44] MAK K F, HE K L, SHAN J, *et al.* Control of Valley Polarization in Monolayer MoS₂ by Optical Helicity[J]. *Nat Nanotechnol*, 2012, **7**(8): 494–498. DOI: 10.1038/nnano.2012.96.
- [45] YU H Y, LIU G B, YAO W. Brightened Spin-triplet Interlayer Excitons and Optical Selection Rules in van Der Waals Heterobilayers[J]. *2D Mater*, 2018, **5**(3): 035021. DOI: 10.1088/2053-1583/aac065.