

黑磷薄膜的贝利曲率及轨道磁化强度

周本良 谭哲昊 曾荣芳

(湖南师范大学物理系, 湖南 长沙 410081)

摘 要 本文从理论上研究了在非共振圆偏振光照射下, 黑磷薄膜的贝利曲率和轨道磁化强度。基于黑磷薄膜的 $k \cdot p$ 低能有效模型和弗洛凯理论, 我们推导出了黑磷薄膜直至双光子二阶过程的有效哈密顿量。我们发现光场会使得体系的带隙略有增大, 贝利曲率的绝对值会随着光照强度的增大而增大。轨道磁化强度在带隙内呈现出线性变化关系, 其变化区域随着薄膜层数的增加而减小, 而在价带和导带则呈现出“谷-峰”现象。随着光照强度的增大, 轨道磁化强度也随之增大。这些研究为在黑磷薄膜中获得非零的贝利曲率提供了一种有效可行的方法, 加深了对薄膜贝利曲率及轨道磁化强度的理解。

关键词 黑磷薄膜; 弗洛凯理论; 贝利曲率; 轨道磁化强度

BERRY CURVATURE AND ORBITAL MAGNETIZATION OF BLACK PHOSPHORUS THIN FILM

ZHOU Benliang TAN Zhehao ZENG Rongfang

(Department of Physics, Hunan Normal University, Changsha, Hunan 410081)

Abstract This paper theoretically investigates the Berry curvature and orbital magnetization of black phosphorus (BP) thin films under non-resonant circularly polarized light irradiation. Based on the $k \cdot p$ low-energy effective model of BP thin films and Floquet theory, we derive the effective Hamiltonian of BP thin films up to the two-photon second-order process. We find that the light field slightly increases the bandgap of the system, and the absolute value of the Berry curvature increases with the intensity of the light. The orbital magnetization shows a linear relationship within the bandgap, with the variation region decreasing as the number of layers in the thin film increases. In the valence and conduction bands, the orbital magnetization exhibits a “valley-peak” phenomenon. As the light intensity increases, the orbital magnetization also increases. These findings provide an effective and feasible method for obtaining non-zero Berry curvature in BP thin films and deepen the understanding of the Berry curvature and orbital magnetization in thin films.

Key words black phosphorus thin films; Floquet theory; Berry curvature; orbital magnetic moment

收稿日期: 2024-10-21

基金项目: 湖南师范大学校级教改项目“基于应用型人才培养的大学物理实验教学改革研究”; 湖南师范大学本科生创新创业计划项目(项目批准号: 2023151)。

通信作者: 周本良, blzhou@hunnu.edu.cn。

引文格式: 周本良, 谭哲昊, 曾荣芳. 黑磷薄膜的贝利曲率及轨道磁化强度[J]. 物理与工程, 2025, 35(3): 183-187.

Cite this article: ZHOU B L, TAN Z H, ZENG R F. Berry curvature and orbital magnetization of black phosphorus thin film[J]. Physics and Engineering, 2025, 35(3): 183-187. (in Chinese)

黑磷是磷最稳定的同素异形体之一^[1]。2014年,复旦大学张远波和中国科学技术大学陈仙辉课题组合作,成功将黑磷剥离至几个原子层^[2],极大地引起了人们对该材料的研究热潮。黑磷具有层数(厚度)依赖的直接带隙和高载流子迁移率,在零带隙的石墨烯^[3]和具有较大带隙 1.9 eV 的过渡金属硫化物^[4]之间架构了一座桥梁,在近红外和中红外波段的光电子学研究方面具有重要的科学意义^[5]。少层或者单层黑磷也被称为磷烯,与石墨烯的六角蜂窝状晶格不同,磷烯晶格中每个磷原子通过 sp^3 杂化与相邻的三个磷原子共价结合,形成具有铰链式的层状结构,各层通过范德华相互作用堆叠在一起。其独特的褶皱结构导致其机械和输运性能具有很强的各向异性^[6]。另一方面,贝利曲率是一个非常重要的物理量,它可以被看成动量空间的“磁场”,使得布洛赫电子获得反常的群速度,从而产生反常霍尔效应、轨道磁矩等^[7]。然而,磷烯由于具有空间反演对称性,其贝利曲率为 0^[8]。如要获得贝利曲率,需要打破磷烯的空间/时间反演对称性。众所周知,光场可以打破体系的时间反演对称性,是实验上调控低维材料物理性质常见且切实可行的方法。2023年,清华大学周树云课题组报道了黑磷在光场下的弗洛凯能带调控^[9],这项工作表明实验上可以成功实现在磷烯中加入光场调控。受此激励,本文我们将从理论上研究在非共振圆偏振光照射下,黑磷薄膜的贝利曲率和轨道磁化强度。

1 模型和方法

由于高频非共振的条件限制,我们的研究重点集中在黑磷薄膜的低能区域。只考虑最低导带和价带, $N(N>1)$ 层黑磷薄膜未加光场哈密顿量 H_0 的 $k \cdot p$ 有效哈密顿量为^[10-12]

$$H_0 = \begin{pmatrix} h_c & h_{cv} \\ h_{cv}^* & h_v \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} E_c^1 + \alpha_c k_x^2 + \beta_c k_y^2 & \gamma k_x \\ \gamma k_x & E_v^1 - \alpha_v k_x^2 - \beta_v k_y^2 \end{pmatrix} \quad (1)$$

其中导带边能量 $E_c^1 = 1/N^{0.73} \text{ eV} + 0.15 \text{ eV}$, 价带

边能量 $E_v^1 = -E_c^1$, 带间耦合参数 $\gamma = \hbar v_f$, 费米速度 $v_f = 3.5 \times 10^5 \text{ m/s}$, 与有效质量有关的参数

$$\alpha_c = \frac{\hbar^2}{2 \times 0.108 \times m_e}, \quad \beta_c = \frac{\hbar^2}{2 \times 1.062 \times m_e},$$

$$\alpha_v = \frac{\hbar^2}{2 \times 0.092 \times m_e}, \quad \beta_v = \frac{\hbar^2}{2 \times 0.708 \times m_e}$$

其中, m_e 为自由电子质量。

一束沿 z 方向的非共振圆偏振光垂直照射至黑磷薄膜,如图 1 所示。光矢量为 $A(t) = A_0 [\cos(\omega t), \sin(\omega t)]$ 。根据弗洛凯理论^[10],通过佩尔斯替换,即 $k_i \rightarrow k_i + eA_i/\hbar$ (i 表示 x, y) 可以将 $H(k)$ 简化为有效静态(时间无关)哈密顿量 H_{eff} 。无量纲光照参数 $\lambda_0 = (\gamma e A_0)/(\hbar^2 \omega)$ 表征光场与黑磷薄膜之间的耦合强度。这里的非共振光场指高频弱场 ($\hbar \omega \gg H_0, \lambda_0 \ll 1$), 不能产生真实的光子发射和吸收直接激发体系中的电子,而是通过光子的虚发射和吸收来改变体系的能带结构。本文光子能量取值 $\hbar \omega = 8 \text{ eV}$, 光照参数 $\lambda_0 \leq 0.1$, 这样保证圆偏振光处于非共振区域。

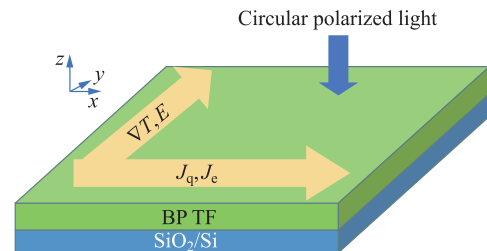


图 1 非共振圆偏振光沿 z 方向垂直照射黑磷薄膜示意图

考虑到单光子和双光子的二阶虚发射和吸收(这里,我们只考虑到了二阶项,之后的高阶项影响很小,可以忽略),非共振光场下体系的等效哈密顿量可写为^[13]

$$H_{\text{eff}} = H_0(k) + \sum_{n=1}^2 \frac{[V_n, V_{-n}]}{n \hbar \omega} + \left(\sum_{n=1}^2 \frac{[[V_n, H_0], V_{-n}]}{2(n \hbar \omega)^2} + \frac{1}{n!} \sum_{n,l=1}^2 \frac{[V_n, [V_l, V_{-n-l}]] - [V_n, [V_{-l}, V_{l-n}]]}{3(\hbar \omega)^2} + \text{H. c.} \right) \quad (2)$$

其中, H. c. 为共轭项, $V_{\pm n} = \frac{1}{T} \int_0^T e^{\mp i n \omega t} V(k, t) dt$,

$$V(k, t) = H(k, t) - H_0(t) = \begin{pmatrix} a_{11} & a_{12} \\ a_{21} & a_{22} \end{pmatrix}, a_{11} =$$

$\left(\frac{eA_0}{\hbar}\right)^2 (\alpha_c \cos^2 \omega t + \beta_c \sin^2 \omega t) + 2 \frac{eA_0}{\hbar} (\alpha_c k_x \cos \omega t + \beta_c k_y \sin \omega t), a_{12} = a_{21} = \gamma \frac{eA_0}{\hbar} \cos \omega t, a_{22} = -\left(\frac{eA_0}{\hbar}\right)^2 \cdot$
 $(\alpha_v \cos^2 \omega t + \beta_v \sin^2 \omega t) - 2 \frac{eA_0}{\hbar} (\alpha_v k_x \cos \omega t + \beta_v k_y \sin \omega t)。$
 通过进一步计算我们最终得到黑磷薄膜低能有效哈密顿量为

$$H_{\text{eff}} = \frac{H_c + H_v}{2} + H_{cv} \sigma_x + T_1 k_y \sigma_y + \frac{H_c - H_v}{2} \sigma_z \quad (3)$$

其中, $M = T_1 k_y$, σ_x, σ_y 和 σ_z 为泡利算符分量。
 $H_c = h_c + \gamma T_2 [2(\alpha_c + \alpha_v) k_x^2 - (h_c - h_v)] + \lambda T_3,$
 $H_v = h_v - \gamma T_2 [2(\alpha_c + \alpha_v) k_x^2 - (h_c - h_v)] - \lambda T_3,$
 $H_{cv} = h_{cv} - T_2 \{ [2(\alpha_c + \alpha_v) k_x^2 - (h_c - h_v)] (\alpha_c + \alpha_v) k_x + 2(\beta_c + \beta_v)^2 k_x k_y \} - T_3 k_x (\alpha_c + \alpha_v) - T_4 k_x,$
 其中, $T_1 = \lambda_0 c_0 (\beta_c + \beta_v) / \gamma, T_2 = \lambda_0^2 / (2\gamma), T_3 = \lambda_0^2 c_0^2 (\alpha_c + \alpha_v - \beta_c - \beta_v) / (8\gamma^3), T_4 = T_3 (\alpha_c + \alpha_v - \beta_c - \beta_v) / 8$, 且有 $c_0 = eA v_f$ 。通过对角化哈密顿量得到对应的能带和波函数为

$$E_\mu = \frac{1}{2} [(H_c + H_v) + \mu \sqrt{(H_c - H_v)^2 + 4(H_{cv}^2 + M^2)}] \quad (4)$$

$$|\psi_\mu\rangle = \frac{e^{ikr}}{\sqrt{(E_\mu - H_c)^2 + H_{cv}^2 + M^2}} \begin{pmatrix} H_{cv} - iM \\ E_\mu - H_c \end{pmatrix} \quad (5)$$

其中, $\mu = 1(-1)$ 表示导(价)带。

由于光场照射打破了体系的时间反演对称性, 产生了贝利曲率, 其表达式为^[7]

$$\Omega_\mu = -2\text{Im} \sum_{\mu \neq \mu'} \frac{\left\langle \psi_\mu \left| \frac{\partial H_{\text{eff}}}{\partial k_x} \right| \psi_{\mu'} \right\rangle \left\langle \psi_{\mu'} \left| \frac{\partial H_{\text{eff}}}{\partial k_y} \right| \psi_\mu \right\rangle}{(E_\mu - E_{\mu'})^2} \quad (6)$$

与贝利曲率相关的轨道磁化强度表达式如下^[14]

$$M_{\text{orb}} = M_m + M_\Omega$$

$$= \frac{1}{(2\pi)^2} \sum_\mu \int m_\mu f_\mu dk^2 +$$

$$\frac{1}{(2\pi)^2} \sum_\mu \frac{e}{\beta \hbar} \int \Omega_\mu \ln(1 + e^{-\beta(E_\mu - E_F)}) dk^2 \quad (7)$$

其中, 轨道磁矩 $m_\mu = \mu \frac{e}{2\hbar} (E_+ - E_-) \Omega_\mu$, f_μ 为费米分布函数。从上式中我们发现轨道磁化强度由载流子的轨道磁矩和贝利曲率的修正项组成。

2 结果讨论

首先我们根据式(4)计算得到了层数为 $N = 20$ 黑磷薄膜的能带结构等能线图, 如图 2 所示。图 2(a)与图 2(b)分别为无光场($\lambda_0 = 0$)的导带和价带, 图 2(c)与图 2(d)分别对应参数 $\lambda_0 = 0.1$ 的导带和价带。我们可以发现光场对能带结构的影响主要在低能区域, 能带带隙略有增大。具体来说, 对比图 2(a)和图 2(c), 我们可以发现导带底能量略有增大; 而根据图 2(b)和图 2(d), 同样发现价带顶能量略有减小, 故带隙略微增大。事实上, 根据式(4)我们也可以直接计算得到带隙为: $E_g = (E_c^1 - E_v^1)(1 - 2\gamma T_2) + 2\gamma T_3$, 从中我们可以发现光场对带隙的影响很小。

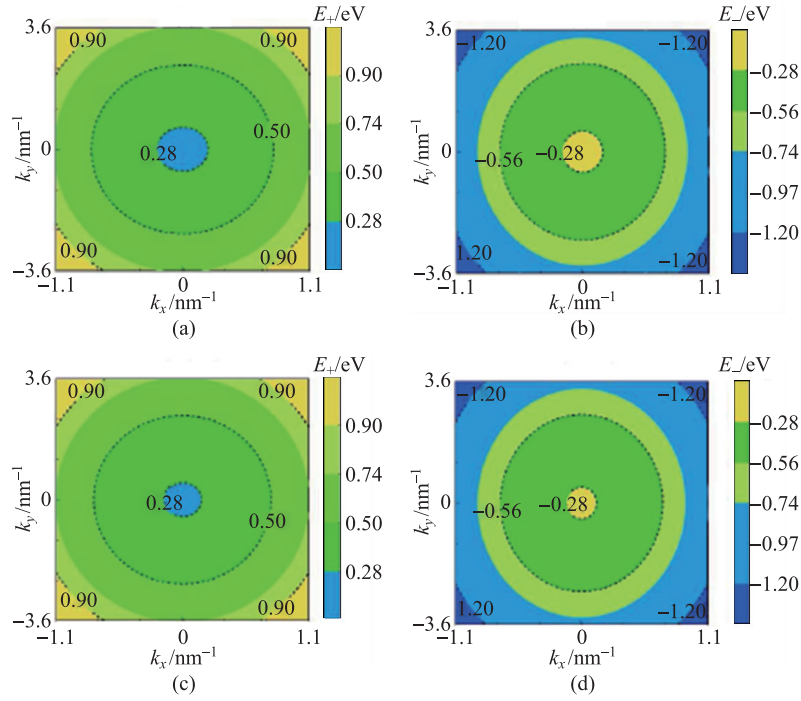
图 3 是不同光照强度下 $N = 20$ 黑磷薄膜的贝利曲率, 其中图 3(a)和图 3(b)分别为光照参数 $\lambda_0 = 0.8$ 的导带贝利曲率等能图和价带贝利曲率等能图, 图 3(c)和图 3(d)分别对应于图 3(a)和图 3(b)但是 λ_0 取值为 $\lambda_0 = 0.1$ 。首先我们注意到没加光场时, 由于空间反演对称性, 体系的贝利曲率为 0。从图 3 我们可以观察到贝利曲率的绝对值随着光照强度的增大而增大。具体分析, 结合图 2, 我们发现无论光照参数 λ_0 取 0.08 还是 0.1, 对于 $E_+ = 0.5\text{eV}$ 的导带, 其对应的贝利曲率 Ω_+ 近似为零。而对于 $E_+ < (>) 0.5\text{eV}$ 的导带, 贝利曲率 Ω_+ 几乎都小于(大于)0, 如图 3(a)和图 3(c)所示。对于 $E_- = -0.56\text{eV}$ 的价带, 贝利曲率 Ω_- 近似为零。而对于 $E_- > (<) -0.56\text{eV}$ 的价带, 贝利曲率 Ω_- 近似大于(小于)0, 如图 3(b)和图 3(d)所示。

轨道磁化强度 M_{orb} 随费米能 E_F 的变化如图 4 所示。我们发现当 E_F 处于能带带隙内时, M_{orb} 呈现出线性变化关系。根据式(7), 我们知道此时

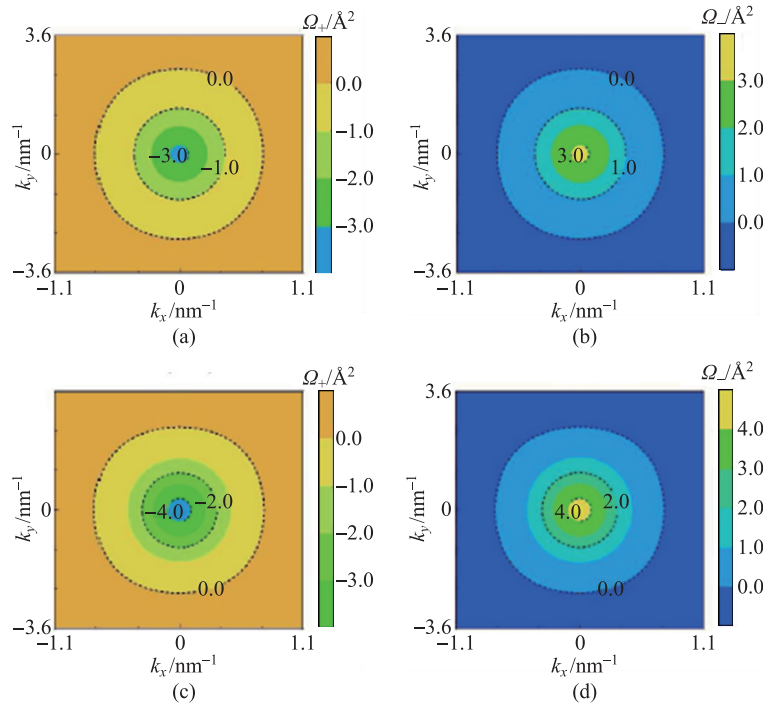
$$M_{\text{orb}} = -\frac{e}{2\hbar} \int \frac{dk^2}{(2\pi)^2} (E_+ - E_-) \Omega_- f_- +$$

$$\frac{e}{\beta \hbar} \int \frac{dk^2}{(2\pi)^2} \Omega_- \ln(1 + e^{-\beta(E_- - E_F)})$$

$$\approx \frac{e}{\hbar} \int \frac{dk^2}{(2\pi)^2} \Omega_- E_F,$$

图 2 $N=20$ 的黑磷薄膜能带结构等线图

(a)和(b)分别为光照参数 $\lambda_0=0$ 的导带和价带, (c)和(d)分别为 $\lambda_0=0.1$ 的导带和价带

图 3 $N=20$ 的黑磷薄膜贝利曲率等线图

(a)和(b)分别为光照参数 $\lambda_0=0.08$ 的导带和价带的贝利曲率, (c)和(d)分别为 $\lambda_0=0.1$ 的导带和价带的贝利曲率

从这式我们可以发现 M_{orb} 随 E_F 的变化呈现出线性变化关系。通过计算式(7)我们还发现只有在 E_F 附近的 $\pm 7k_B T$ 内的能带才对 M_{orb} 有贡献,故

当 E_F 位于价带内时,结合图 3 我们知道 M_{orb} 会出现一个负的极值尖峰;随着 E_F 继续减小, M_{orb} 会逐渐减小到 0。同理,当 E_F 位于导带内,随着

E_F 的增加, M_{orb} 首先会出现一个正的极值尖峰, 然后逐渐减小到 0。 M_{orb} 在价带和导带出现了“谷-峰”现象, 也验证了价带和导带的贝利曲率数值具有相反的符号。

随着 λ_0 增大, 体系的贝利曲率增大, 从而轨道磁化强度 M_{orb} 也随之增大, 如图 4 浅色实线、浅色虚线, 或深色实线、深色虚线所示。另外, 随着黑磷薄膜层数的增大, 量子限制效应会减弱, 体系的能带带隙会减少, 从而 M_{orb} 线性变化区域也会随之减小, 如图 4 浅色虚线、深色虚线, 或浅色实线、深色实线所示。

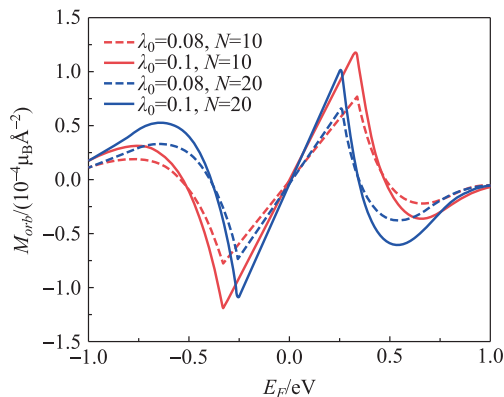


图 4 轨道磁化强度 M_{orb} 随费米能 E_F 的变化关系

3 结语

本文我们研究了黑磷薄膜在非共振圆偏振光下的贝利曲率和轨道磁化强度。我们发现光场会使得体系的带隙略为增大, 贝利曲率的绝对值会随着光照强度的增大而增大。轨道磁化强度在带隙内呈现出线性变化关系, 其变化区域随着薄膜层数的增加而减小, 而在价带和导带则呈现出“谷-峰”现象。随着光照强度的增大, 轨道磁化强度也随之增大。这些现象仅由外加光场引起, 不需要额外的外磁场。我们的研究结果为在黑磷薄膜中获得非零的贝利曲率提供了一种有效可行的方法, 加深了对黑磷贝利曲率及轨道磁化强度的理解。

参 考 文 献

- [1] BRIDGMAN P W. Two new modifications of phosphorus [J]. Journal of the American Chemical Society, 1914, 36(7): 1344-1363.
- [2] LI L, YU Y, YE G J, et al. Black phosphorus field-effect transistors[J]. Nature nanotechnology, 2014, 9(5): 372-377.
- [3] CASTRO N A H, GUINEA F, PERES N M R, et al. The electronic properties of graphene[J]. Reviews of Modern Physics, 2009, 81(1): 109.
- [4] MAK K F, LEE C, HONE J, et al. Atomically Thin MoS_2 : A New Direct-Gap Semiconductor[J]. Physical Review Letters, 2010, 105(13): 136805.
- [5] XIA F, WANG H, JIA Y. Rediscovering black phosphorus as an anisotropic layered material for optoelectronics and electronics[J]. Nature Communications, 2014, 5(1): 4458.
- [6] QIAO J, KONG X, HU Z X, et al. High-mobility transport anisotropy and linear dichroism in few-layer black phosphorus[J]. Nature Communications, 2014, 5(1): 4475.
- [7] XIAO D, CHANG M C, NIU Q. Berry phase effects on electronic properties[J]. Reviews of Modern Physics, 2010, 82(3): 1959.
- [8] RIBEIRO-SOARES J, ALMEIDA R M, CANÇADO L G, et al. Group theory for structural analysis and lattice vibrations in phosphorene systems[J]. Physical Review B, 2015, 91(20): 205421.
- [9] ZHOU S, BAO C, FAN B, et al. Pseudospin-selective Floquet band engineering in black phosphorus [J]. Nature, 2023, 614(7946): 75.
- [10] ZHOU X, LOU W K, ZHAI F, et al. Anomalous magneto-optical response of black phosphorus thin films [J]. Physical Review B, 2015, 92(16): 165405.
- [11] FEI R, TRAN V, YANG L. Topologically protected Dirac cones in compressed bulk black phosphorus [J]. Physical Review B, 2015, 91(19): 195319.
- [12] ZHOU X Y, ZHANG R, SUN J P, et al. Landau levels and magneto-transport property of monolayer phosphorene [J]. Scientific Reports, 2015, 5(1): 12295.
- [13] GOLDMAN N, DALIBARD J. Periodically Driven Quantum Systems: Effective Hamiltonians and Engineered Gauge Fields [J]. Physical Review X, 2014, 4(3): 031027.
- [14] XIAO D, YAO W, NIU Q. Valley-Contrasting Physics in Graphene: Magnetic Moment and Topological Transport [J]. Physical Review Letters, 2007, 99(23): 236809.