基于二维固态缺陷晶格的强局域、可调谐等离激元学

AliGhorashi[1], Nicholas Rivera[1,4], Bowen Shi[1,6], Ravishankar Sundararaman[2],EfthimiosKaxiras[3,4], John Joannopoulos[1,5], 和 Marin Solja˘ci´c[1] 美国马萨诸塞州剑桥市麻省理工学院物理系，邮编 *02139*[2] 美国纽约州特洛伊市第八街 *110* 号伦斯勒理工学院，邮编 *12180*[3] 美国马萨诸塞州剑桥市哈佛大学工程与应用科学学院，邮编 *02134*[4] 美国马萨诸塞州剑桥市哈佛大学物理系，邮编 *02134*[5] 美国马萨诸塞州剑桥市麻省理工学院士兵纳米技术研究所，邮编 *02139*，以及[6] 中国北京市北京大学物理系暨介观物理国家重点实验室，邮编 *100871*（日期：2023年4月）

arXiv:2305.01173v1 [physics.optics] 2 May 2023

等离激元是固体中电子的集体激发，与强局域的电磁场相关，其波长远小于自由空间中光子的波长。这种强局域特性有望实现光电器件，从而弥合光子器件与电子器件之间的尺寸差异。然而，尽管等离激元学已历经数十年的研究，许多应用仍受等离激元损耗限制，因此促使人们寻找损耗更低的新型人工设计等离激元材料。实现低损耗等离激元材料的一条有前景的途径，是设计具有平坦且在能量上彼此隔离的金属能带的材料，这可以大幅抑制声子辅助光学损耗——这是造成等离激元寿命较短的主要因素之一。通过在绝缘主体材料中精心引入有序缺陷晶格，可以构造出这类电子能带结构。在此，我们探索这一方法，介绍几种基于六方氮化硼（hBN）单层中碳取代原子阵列的低损耗、高局域且可调谐的等离激元材料。根据基于密度泛函理论（DFT）的第一性原理计算，我们发现了一些等离激元结构，其具有中红外等离激元、极高的局域程度（$\lambda_{\text{vacuum}}/\lambda_{\text{plasmon}}$ 超过 2000）以及超过 1000 的品质因数。我们系统地阐释了晶体结构、电子带宽和多体效应如何影响这些材料的等离激元色散与损耗。因此，这些结果对于其他平带系统中的低损耗等离激元工程也具有参考价值。

二维材料的光电特性备受关注，因为在低维体系中，电子与光子的相互作用呈现出截然不同的物理规律。因此，近年来，寻找具有特定光电特性的稳定二维材料已成为一个研究热点 [1–3]。尤其是，稳定二维材料种类的拓展已在三个方向上取得进展：

(i) 调控范德华（vdW）双层和三层材料的几何特性，最值得注意的是通过形成莫尔˙图案 [4]；

(ii) 天然存在的三维金属 [5, 6]的二维类似物的发现或预测；以及 (iii) 在常见二维材料中引入缺陷 [1]，以诱导所需的光电特性。

一个重要的研究动力是实现具有定制色散关系、高局域程度和/或低损耗 [11], 的集体激发，例如等离激元 [7], 、声子极化激元 [8, 9]和激子极化激元 [10], ，从而实现多种新型光与物质相互作用效应 [12, 13]。具体而言，对于等离激元，其电磁场可局域在远小于光子自由空间波长的范围内，但数十年前该领域设想的许多前景广阔的应用，至今仍受损耗所制约。强局域、低损耗的等离激元激发有望推动等离激元学在光伏 [14], 、光谱学 [15],、生物传感 [16], 和超高分辨率激光器 [17]等领域中实现大幅进展。

本研究旨在消除或大幅降低等离激元材料中普遍存在的固有损耗，尤其关注因缺 [18, 19]陷而呈现金属性的二维材料（即上述情形（*iii*）的一个例子）。为避免带间跃迁等损耗通道，我们将搜索范围限定在带隙较大的主体材料——六方氮化硼（*hBN*）（带隙为 *6* 电子伏特，见 [20]），以及能在带隙中间附近产生中等平坦能带的缺陷 [54]。对于缺陷，我们选择碳原子，因为其原子尺寸与硼和氮相近，能最大限度地减少缺陷引起的晶格应变。我们考虑的取代型缺陷结构记作 $C_X^{n\times n}$，表示 hBN 原胞的一个 $n\times n$ 超胞，其中一个标记为 X 的原子被碳原子取代（示例见图1(b)）。我们研究的超胞包括 $n=\sqrt{3}$、2、3、4 以及 X=硼或氮，共计八种含缺陷结构。通常，较大的超胞能够形成更平坦的能带，这更有利于实现低损耗等离激元。

这八种结构及其对应的电子能带结构见图1。我们的密度泛函理论计算表明，含有氮取代原子的弛豫结构完全呈平面状，而含有硼取代原子的结构则略微翘曲；参见补充信息（SI）。虽然这种结构差异很小，但我们将在后文表明，它会显著影响电子-声子相互作用的强度。除这两种 $C_X^{\sqrt{3}\times\sqrt{3}}$ 结构外，其余结构都具有完全自旋极化，这意味着它们必须经过掺杂才能支持等离激元激发。与此前的预测一致 [21, 22], ，我们发现，超胞较大的结构具有铁磁性，自旋带隙约为1 电子伏特。为了

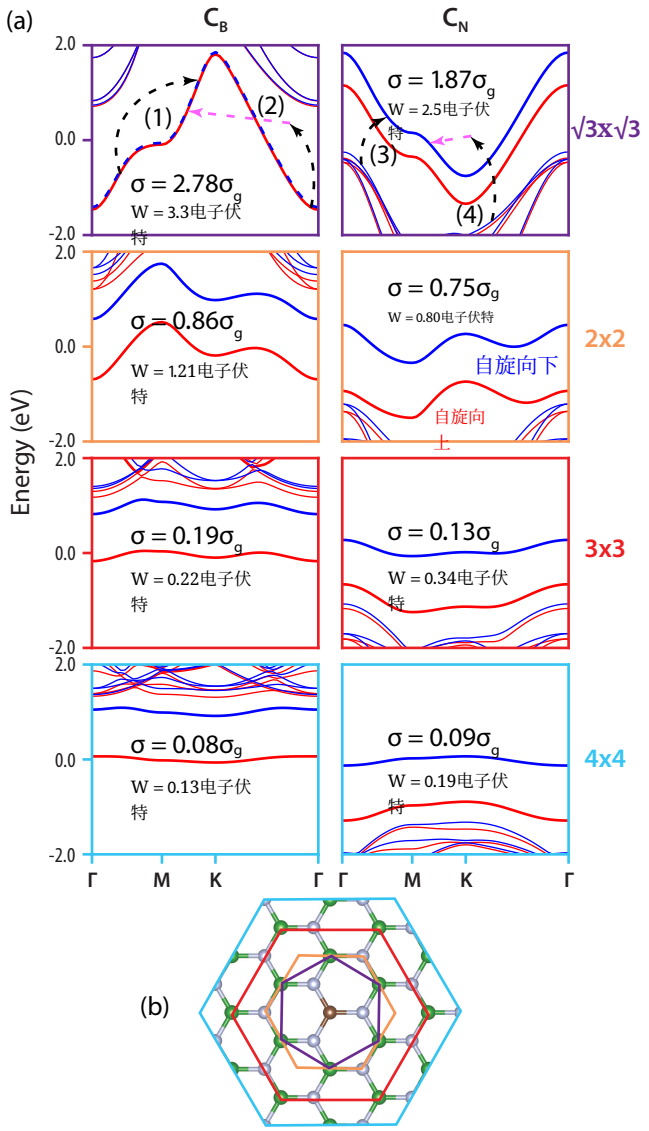

图1：**六方氮化硼中碳替位缺陷晶格的电子能带结构**。（a）$C_B^{n\times n}$（左列）和 $C_N^{n\times n}$（右列）结构的电子能带。能量以费米能级为基准。对于六个具有绝缘性和铁磁性的晶格，我们将费米能调整至最接近六方氮化硼带隙中点的缺陷能带的半填充位置。我们报告了每种结构的带宽、W和电导率 σ（σ_g 是石墨烯在0.5电子伏特掺杂下的电导率）。标记（1）和（3）分别表示带内和带间朗道阻尼过程。标记（2）和（4）分别表示带间和带间声子辅助阻尼过程。黑色虚线表示等离激元，粉色虚线表示声子。（b）我们所考虑的4种结构的维格纳–塞茨元胞，位于最大的 4×4 结构内。棕色圆表示元胞中心的碳缺陷。白色圆表示硼替位晶格中的氮原子，以及氮替位晶格中的硼原子。绿色圆表示硼替位晶格中的硼原子，以及氮替位晶格中的氮原子。配色方案与（a）相同，其中紫色、橙色、红色和浅蓝色分别对应 $\sqrt{3}\times\sqrt{3}$、2×2、3×3和 4×4。

验证其铁磁有序，我们计算了一个 2×2 超胞 $C_B^{2\times2}$ 的基态，发现铁磁态更稳定，磁化强度为 $4\mu_B$。我们报告的结构带宽范围从 3.3 电子伏特（$C_B^{\sqrt{3}\times\sqrt{3}}$）到 0.13 电子伏特（$C_B^{4\times4}$）。随着晶格尺寸增大，带宽随之减小，同时费米速度也相应降低，并出现铁磁性（自旋简并解除）；这些因素都会降低德鲁德电导率，如图1(a)所示。这使得较大的缺陷超胞对应的等离激元频率更低。

限制等离激元损耗几十年来一直是一个活跃的研究领域 [23]。在所有提出的低损耗等离激元候选方案中，都是通过抑制直接和间接（声子辅助）跃迁至电子-空穴连续体的相空间来降低损耗。例如，对于表面等离激元，早期一项避免损耗的方案是设计半导体超晶格，在能量上将表面等离激元能带与电子-空穴连续体分隔开 [23]。对于包含替位缺陷的结构，也应存在类似的能量分隔，因为周期性较大的结构具有平带，且这些平带与六方氮化硼的价带和导带明显分离。因此，我们计算了所提出结构中横磁（TM）偏振的等离激元色散及相关损耗。对于 $C_B^{\sqrt{3}\times\sqrt{3}}$ 和$C_N^{\sqrt{3}\times\sqrt{3}}$ 结构，由于它们在电荷中性时呈金属性，我们在不改变能带占据的情况下计算其等离激元特性。对于超胞较大的结构，我们将费米能级移至最接近六方氮化硼带隙中点的缺陷能带的半填充位置，并在刚性能带近似下计算等离激元特性 [24]，；该近似忽略了掺杂导致的能带结构变化（我们将在下文分析这一近似的有效性）。在实验中，可通过栅控或化学掺杂来调节费米能级。

为了获得每种情况下的等离激元色散，我们计算非局域、频率相关的电导率。用于计算电导率的能量和波函数取自一种从密度泛函理论能带结构的 Wannier 插值推导而来的第一性原理紧束缚模型 [5]。具体而言，我们通过逆介电函数的极点计算等离激元色散，$\varepsilon^{-1}(q,\ \omega)$；该函数在有限温度下的表达式为 [25]:

$$\frac{1}{\varepsilon(q,i\omega_n)}=1-\frac{V_q}{\Omega}\int_0^\beta e^{i\omega_n\tau}\left\langle\mathcal{T}\rho(q,\tau)\rho(-q,0)\right\rangle d\tau,\quad(1)$$

其中，Ω 为晶胞面积，$\mathcal{T}$为虚时间排序算符，q 为波矢，$V_q=\frac{e^2}{2\epsilon_0 q}$ 为二维体系中的库仑相互作用（其中 ϵ_0 为真空介电常数），β 为逆温度，而 $\rho(q,\ \tau)$为海森堡绘景中的密度算符。上述表达式给出了玻色子松原频率下的逆介电函数，ω_n。随后，通过对 $i\omega_n\to\omega+i\delta$进行解析延拓，计算推迟逆介电函数。

电子-电子相互作用通过

随机相位近似（RPA） [25], 得到标准结果（忽略局域场效应） [26] [55]:

$$\varepsilon(q,\omega) = 1 - \frac{e^2}{2\varepsilon_0 q\Omega}\mathcal{F}(q,\omega) \tag{2}$$

$$\mathcal{F}(q,\omega) = \sum_k \frac{f(\epsilon^n_{k+q}) - f(\epsilon^m_k)}{\epsilon^n_{k+q} - \epsilon^m_k - \hbar\omega - i\delta} |\langle k+q, n|k, m\rangle|^2, \tag{3}$$

其中， $\langle k+q, n|, |k, m\rangle$ 表示 Kohn-Sham 本征态的晶胞周期分量，其对应的能量本征值为 ϵ^n_{k+q}、 ϵ^m_k。 $f(\epsilon)$ 是费米占据数，其中 δ 是一个用于避免极点处出现奇异性的小量。我们注意到，在式（3）中，自旋指标并入能带指标中，即 m、n。我们根据式（2）和式（3）计算 $\varepsilon(q,\omega)$：首先求出该函数的虚部，随后利用 Kramers-Kronig 关系计算相应的实部。图 2(a) 展示了等离激元色散和局域程度，并将其与目前最成熟的二维等离激元平台——石墨烯——进行比较；石墨烯的掺杂能量为相对于狄拉克点的 0.5 电子伏特（0.5 电子伏特的掺杂会使等离激元处于中红外波段）。所提出结构中的等离激元覆盖从 0 到 $\sim$ 1.3 电子伏特的频率范围，其中低于 1 电子伏特的等离激元（见补充信息）不受带间和带内损耗影响。在所绘制的波矢范围内，这些等离激元的局域程度最高可达石墨烯的 ~ 8 倍（对于 $C_B^{4\times4}$ 结构）。我们还注意到，对于大多数所提出的结构，观察到的等离激元群速度普遍较低，这是带间屏蔽所致，而这在二维 [27]中几乎是普遍现象。 $C_B^{\sqrt{3}\times\sqrt{3}}$ 和 $C_N^{\sqrt{3}\times\sqrt{3}}$ 结构则并非如此，因为在这两种情况下，等离激元在大波矢处接近带间连续谱 q。

为考虑声子对介电函数虚部（等价地，电导率实部）的影响，我们采用 [25, 28,29] 中给出的方法，计算存在电子-声子相互作用时的电流-电流响应。随后在德鲁德极限下，利用以下关系将其转换为衰减时间：

$$\sigma(\omega) = \frac{e^2 v_F^2 g(\epsilon_F)\tau(\omega)}{2\Omega(1 - i\omega\tau(\omega))}, \tag{4}$$

其中， v_F 是费米速度， g（ϵ_F）是费米能级处每个晶胞的态密度， τ（ω）是输运衰减时间（见补充信息）。通过对电导率进行费曼图展开，衰减时间可改写为类似费米黄金定则 [30, 31]，的形式，得到的表达式本质上是对频率依赖的载流子衰减率在费米面上的平均值：

$$\tau^{-1}(\omega) = \frac{2\pi}{N_k N_{k'}\hbar^2\omega g(\epsilon_F)} \sum_{k,k'j\pm} |g^j_{k,k'}|^2 \Big(N^{j,\mp}_{k-k'} f_k - N^{j,\pm}_{k-k'} f_{k'} \pm f_k f_{k'} \Big) \delta(\epsilon_k + \hbar\omega \pm \hbar\omega^j_{k-k'} - \epsilon_{k'}) \left(1 - \frac{v_k \cdot v_{k'}}{|v_k||v_{k'}|}\right), \tag{5}$$

其中， v_k、 $v_{k'}$ 是分别对应于波矢 k和 k'处的带内动量矩阵元的电子速度， ω^j_q 是波矢 q处分支j 的声子频率，相应的 N^j_q 为玻色占据因子。为方便起见，在上述方程中，我们定义了以下量

$$N^{j,\pm}_q \equiv \frac{1}{2} + N^j_q \pm \frac{1}{2},$$

其中，正号对应声子发射，负号对应声子吸收。我们对声子能带求和，声子能带以 j为索引，但在利用式（5）计算衰减率时，只纳入缺陷相关的电子能带。该式在所关注的频率范围（0-1 电子伏特）内是精确表达式。我们指出，用费曼图的语言来说，表达式中的速度因子组合源于极化泡图的顶角修正。此外，我们指出，式（5）中的占据因子组合正确考虑了逆过程；这一点可从声子占据因子的时间导数中出现相同的占据因子组合看出，该导数由于详细平衡而在平衡态时为零 [32]。最后，我们提到，式（5）在以下极限下简化为费米面平均电子-声子衰减率 $\hbar\omega \to 0$。

在图 2 (b) 中，我们展示了等离激元衰减时间， $\tau(\omega)$。在高频下，$C_N^{\sqrt{3}\times\sqrt{3}}$ 和 $C_N^{2\times2}$ 晶格的等离激元寿命优于石墨烯，其中 $C_N^{\sqrt{3}\times\sqrt{3}}$ 等离激元在 ~ 1 电子伏特处的寿命约为石墨烯等离激元的四倍。B 取代结构的衰减时间较短，这是由于上述屈曲现象增强了 C_B 结构中的电子-声子相互作用。我们通过明确比较发生屈曲和未发生屈曲（未弛豫）的 C_B结构的衰减时间，验证了这一点（见补充信息 SI）。尽管两种 C_N 晶格存在一个等离激元品质得到改善的狭窄频率范围，但显然，总体而言，在大多数频率下，所提出的结构都比石墨烯具有更短的等离激元衰减时间。这可能归因于载流子衰减率的分子中电子态密度实际上出现了两次，而在分母中仅出现一次（SI）。因此，由于平带具有一个频率范围高度局域且态密度较高的区域，我们观察到低频下较短的衰减时间是可以预期的。此外，通常较平坦的能带承载频率较低的等离激元，这导致等离激元被推入高损耗状态。然而，这一事实也为解决损耗问题提供了思路，具体问题如下：如果较平坦的能带产生的低等离激元损耗频率范围高于实际等离激元频率，那么如何将等离激元频率推入这一低损耗区域？我们通过确定每种结构的最大理论等离激元频率来研究这一问题。对于每种 q，该频率定义为最高可能频率 ω；当引入一个正的常数因子 α，并将其乘以式（2）中定义的量 $\mathcal{F}(q,\omega)$ 时，式（2）中定义的介电函数 $\varepsilon(q,\omega)$ 恰好为零。

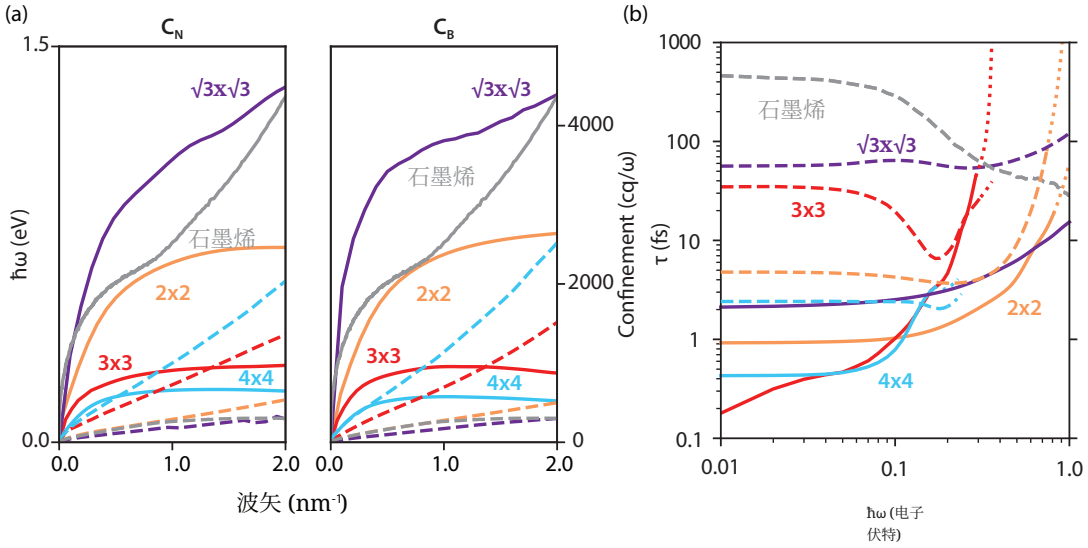

图 2：**六方氮化硼中碳取代晶格的等离激元色散、局域程度和损耗。**(a) 与石墨烯对比的等离激元色散（实线）和局域程度（虚线）。波矢选取为沿着 $\Gamma - M$ 方向。(b) $C_B^{n\times n}$ ($C_N^{n\times n}$) 的衰减时间，以实线（虚线）表示；并与掺杂浓度为 0.5 电子伏特的石墨烯（灰色虚线）对比。实线（虚线）转为点线的位置表示最高等离激元频率。点线的终止点表示最高理论等离激元频率（参见 公式（6））.

式（3）。请注意，对于沿垂直于平面（z轴）的方向堆叠的结构所形成的无限超晶格，这一参数的形式为

$$\alpha = \frac{\sinh(ql)}{\cosh(ql) - 1} \tag{6}$$

其中 l 为层间距 [23]。在图 2（b）中，我们用虚线标示出高于等离激元频率且低于最大理论等离激元频率的区域。有趣的是，对于周期性较大的结构，带间极化起主导作用，堆叠超晶格中的等离激元频率并未显著增强。只有在 $C_N^{2\times2}$ 和 $C_B^{2\times2}$ 堆叠超晶格的情况下，等离激元色散才会显著增强。为了更准确地确定增强幅度，我们计算了一个 $C_N^{2\times2}$ 超晶格在 $l = 1$ nm 时的等离激元色散，并确定等离激元频率可达到 ≈ 0.9电子伏特，品质因数为 1100。需要注意的是，这一结果有一个前提：要实现这一效果，需要较大的 l，原因在于，仅将掺杂结构以其平衡层间距 $l \approx 0.3$ nm 堆叠起来，就会彻底改变电子结构。因此，要在实验中真正实现这一效果，掺杂层需要由低介电常数的间隔层隔开，例如本征六方氮化硼。系统研究这些多层系统中的电子结构变化超出了本研究的范畴。

接下来，我们探讨刚性能带近似的有效性。有趣的是，我们发现，在所研究的结构中，电子掺杂和空穴掺杂会调节费米能级处的自旋带隙（见图 3（a）），这与能带发生刚性掺杂的假设相悖。我们将这一结果归因于交换势随掺杂发生的变化。具体而言，密度泛函理论中的交换势是自旋分辨电子密度的泛函。根据局域密度近似（LDA）下的一阶微扰理论，掺杂后产生的自旋带隙为（详见补充信息）：

$$\Delta(\rho_\uparrow(r), \rho_\downarrow(r)) = \left(\frac{6}{\pi}\right)^{1/3} \int (\rho_\uparrow^{1/3}(r) - \rho_\downarrow^{1/3}(r)) \times \frac{(|\psi_\uparrow(r)|^2 + |\psi_\downarrow(r)|^2)}{2} d^3r, \tag{7}$$

其中 $\rho_\uparrow$、$\rho_\downarrow$ 和 $\psi_\uparrow$、$\psi_\downarrow$ 分别是自旋向上（向下）的密度和波函数。我们通过对掺杂结构进行密度泛函理论计算来评估该模型的可靠性，如图 3（b）所示。对于每种材料，我们采用三种泛函：PBE [33], 不含关联的斯莱特局域密度近似 [34]和含关联的局域密度近似 [35]。对于每个掺杂量，我们在 Γ 点（倒易空间布里渊区中心）计算密度泛函理论得出的自旋劈裂。我们还利用缺陷能带的自洽密度和科恩-沈波函数，计算公式（7）给出的预测自旋劈裂值。在图 3（b）中，我们将预测值与密度泛函理论的精确值进行比较。图3（b）中的曲线采用结构 $C_B^{2\times2}$ 和 $C_B^{4\times4}$ 的 PBE广义梯度近似交换关联泛函得到。显然，我们的模型与密度泛函理论数值结果拟合得非常准确。补充信息中给出了采用另外两种交换关联泛函以及所有其他晶格得到的类似曲线。请注意，我们在图 3（b）中得到的准确拟合表明，关联效应和

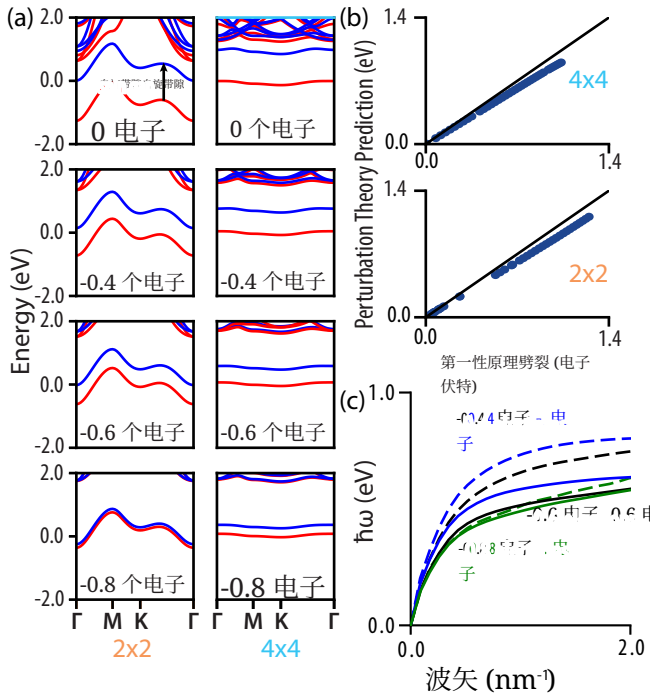

图 3：**掺杂对自旋依赖能带结构和等离激元色散的影响。**(a) 随掺杂变化的费米能级附近能带结构，其中 $C_B^{2\times2}$ （左列）和 $C_B^{4\times4}$ （右列）。（b）由式（7）给出的自旋劈裂模型精度。每个蓝点代表一次密度泛函理论计算，我们将模型预测的自旋劈裂与密度泛函理论计算结果进行对比。各点与 $y = x$ 直线（黑色）之间的接近程度表明微扰理论模型的有效性。（c）$C_B^{2\times2}$ 在不同掺杂量下的等离激元色散，分别通过刚性能带近似（虚线）和显式带电密度泛函理论计算（实线）获得。

科恩-沈哈密顿量中的梯度项大体上相互抵消。最后，我们指出，可以通过将密度分解为 $1s$、 $2s$和 $2p$ 轨道来对自旋劈裂进行纯解析估算。我们在补充信息中进行了这项计算，发现这种纯解析计算与我们的第一性原理结果吻合良好。

在图 3(c) 中，我们展示了等离激元色散随掺杂量的变化。我们发现，显式掺杂体系中的等离激元与通过刚性能带近似得到的结果在定性上有所不同。乍看之下，这似乎是自旋带隙变化所致；然而，我们对此进行了系统研究，发现主要因素实际上是带间波函数重叠显著增强。因此，图 3(c) 中的差异主要源于中和电荷背景。为了更好地理解掺杂如何影响等离激元能带，还需要研究其他具有物理依据的掺杂方案，例如通过锂插层实现的掺杂 [36], 。

总之，我们介绍了一系列具有新颖等离激元特性的候选二维材料，它们由在 B 位点或氮位点进行碳取代而掺杂的六方氮化硼构成。具体而言，我们预测这些结构能够支持局域程度最高可达石墨烯所能实现上限的八倍的等离激元，其衰减时间也可能超过石墨烯，且频率范围超过 ~ 0.4 电子伏特。我们已证明，堆叠这些结构有望获得极高的品质因数。我们预计，只要这些材料的缺陷密度与所研究的超晶格相近，其周期性中的不完美之处就不会造成定性影响。不过，这一问题以及杂质的影响 [37]仍有待未来研究。由于大多数所提出的结构具有较低的费米速度，其电子-电子相互作用可能需要采用超越 RPA 的方法。对于这些平带系统及其集体激发，随机相位近似的适用性仍值得进一步研究。针对石墨烯的超越 RPA 图示的类似研究 [38], 已经开展，但尚未应用于本文所考察的这类缺陷结构。为更准确地评估德鲁德衰减时间，还应考虑电子-等离激元相互作用对载流子寿命的影响 [39]。此外，即使没有掺杂，所提出的结构中也可能存在激子极化激元 [40], ，这一点仍需进一步研究。最后值得指出的是，近期涌现了大量关于建立二维材料数据库 [3, 41]的研究。对所有已收录材料的等离激元特性进行“盲目”枚举，任务过于繁重；不过，本文的结果表明，可以采用一种更简便的方法。具体而言，我们预计，筛选现有数据库，找出在费米能级处具有孤立平带且结构稳定性和热稳定性较高的材料，将是识别等离激元损耗较低的最有希望候选材料的第一步。

计算方法。 密度泛函理论计算使用 JDFTx 软件包 [42]进行，并采用适用于二维材料的守范赝势 [43]和库仑截断 [44]。用于计算等离激元特性的第一性原理紧束缚模型通过映射到最大局域化瓦尼尔基[45]获得。基态性质的计算采用 10^{-5} 哈特里的费米能级展宽，对应温度约为 3 K。对于两种金属晶格，由于存在费米面，采用了更大的展宽。除非另有说明，均使用 PBE 交换-相关泛函 [33]。在对掺杂依赖的自旋劈裂进行建模时，我们还采用纯斯莱特交换[34]和 Perdew-Zunger 局域密度近似 [35]，以比较不同泛函。基态性质通过自洽场方法 [46] 或电子最小化 [47]求得。我们在补充信息中展示了衰减时间结果随声子超胞尺寸变化的收敛性图。

致谢。 本研究基于空军科学研究办公室通过编号为 FA9550-21-1-0299 的奖项提供的支持，以及部分

来自美国陆军研究办公室通过麻省理工学院士兵纳米技术研究所，根据编号为 W911NF-18-2-0048 的合作协议提供的支持。A.G. 感谢美国国家科学基金会研究生研究奖学金在本文撰写期间提供的资助。N.R. 感谢哈佛学者学会初级研究员奖学金的支持，以及此前美国能源部计算科学研究生奖学金提供的支持

能源部（DE-FG02-97ER25308）以及麻省理工学院理学院院长奖学金的资助。E.K. 还获得了陆军研究办公室通过合作协议编号 W911NF-21-2-0147 提供的部分资助。作者还感谢 Ali Fahimniya、Cyprian Lewandowski、Thomas Christensen、Marinko Jablan 和 Jennifer Coulter 提供的宝贵讨论。

补充信息：基于二维固态缺陷晶格的高度局域且可调谐等离激元

主要公式和结果概要

本文推导了正文中使用的主要公式，并提供了额外的合理性检验，进一步佐证我们的结果。首先，我们严格证明了用于描述自旋系统介电函数的 RPA 表述。接着，我们推导了用于计算等离激元色散的表达式，公式 (S9)，以及局域程度。随后，我们将衰减时间公式与文献中报道的另一种表达式进行比较，公式 (S12)，见 [48]。最后，我们阐述了掺杂依赖的自旋劈裂表述，并在局域密度近似下得出公式 (S17) 。我们还提供了一幅图，展示衰减时间计算结果随声子超胞尺寸变化的收敛性（图 S8），并展示硼取代晶格的屈曲如何增强电子-声子耦合，见图 S7。

自旋系统的随机相位近似

由于随机相位近似通常以不区分自旋的方式推导，下面我们给出一种保留完整自旋结构的推导。先回顾精确的逆介电函数：

$$\epsilon^{-1}(q,i\omega_n) = 1 - \frac{V_q}{\Omega}\sum_{k,k'}\int_0^\beta \langle T(c^\dagger_{k+q,\uparrow}(\tau)c_{k,\uparrow}(\tau) + c^\dagger_{k+q,\downarrow}(\tau)c_{k,\downarrow}(\tau))(c^\dagger_{k'-q,\uparrow}(\tau')c_{k',\uparrow}(\tau') + c^\dagger_{k'-q,\downarrow}(\tau')c_{k',\downarrow}(\tau'))\rangle\, e^{i\omega_n(\tau-\tau')}d(\tau-\tau'), \tag{S1}$$

其中，$V_q = \frac{e^2}{2\epsilon_0 q}$ 是二维中的库仑相互作用，q 是波矢，Ω 是晶胞面积，$i\omega_n$ 是玻色子松原频率（我们取 $i\omega_n \to \omega + i\delta$ 以得到推迟逆介电函数），而 $c_{k,(\downarrow,\uparrow)}$、$c^\dagger_{k,(\downarrow,\uparrow)}$ 是自旋分辨的布洛赫态湮灭/产生算符。以上所有算符均处于海森堡绘景中。我们可以用对角和非对角（自旋指标）相互作用密度-密度关联函数来表示上述内容：

$$\epsilon^{-1}(q,\omega) = 1 + \frac{V_q}{\Omega}(\chi_{\uparrow\uparrow}(q,\omega) + \chi_{\downarrow\downarrow}(q,\omega) + \chi_{\downarrow\uparrow}(q,\omega) + \chi_{\uparrow\downarrow}(q,\omega)) \tag{S2}$$

我们将对角的上自旋-上自旋关联函数的随机相位近似戴森级数写为如下形式（将样品面积并入关联函数）：

$$\chi_{\uparrow\uparrow}(q,\omega) = \chi^0_{\uparrow\uparrow}(q,\omega) + V_q(\chi^0_{\uparrow\uparrow}(q,\omega))^2 + V_q^2(\chi^0_{\uparrow\uparrow}(q,\omega))^2(\chi^0_{\uparrow\uparrow}(q,\omega) + \chi^0_{\downarrow\downarrow}(q,\omega)) + \ldots \tag{S3}$$

在每一阶（零阶之后），我们都有两个非相互作用的上-上关联函数因子，以及一个 $(\chi^0_{\uparrow\uparrow}(q,\ \omega) + \chi^0_{\downarrow\downarrow}(q,\ \omega))$ 因子。用费曼图的语言来说，这仅仅意味着随机相位近似展开的端点具有受限的自旋指标，而中间顶点则不受限制。下-下关联函数也可以类似地展开为戴森级数，这里不再赘述。上-下关联函数可以写为：

$$\chi_{\uparrow\downarrow}(q,\omega) = V_q\chi^0_{\uparrow\uparrow}(q,\omega)\chi^0_{\downarrow\downarrow}(q,\omega) + V_q^2\chi^0_{\uparrow\uparrow}(q,\omega)\chi^0_{\downarrow\downarrow}(q,\omega)(\chi^0_{\uparrow\uparrow}(q,\omega) + \chi^0_{\downarrow\downarrow}(q,\omega)) + \ldots \tag{S4}$$

基于与上述相同的逻辑，我们可以用费曼图展开的端点顶点具有受限的自旋指标（分别为自旋向上和自旋向下）这一事实来解释戴森级数的由来。现在，我们可以轻松地对戴森级数求和：

$$\chi_{\uparrow\uparrow}(q,\omega)=\chi^0_{\uparrow\uparrow}(q,\omega)+\frac{V_q\chi^0_{\uparrow\uparrow}(q,\omega)^2}{1-V_q(\chi^0_{\uparrow\uparrow}(q,\omega)+\chi^0_{\downarrow\downarrow}(q,\omega))},\chi_{\uparrow\downarrow}(q,\omega)=\frac{V_q\chi^0_{\uparrow\uparrow}\chi^0_{\downarrow\downarrow}}{1-V_q(\chi^0_{\uparrow\uparrow}(q,\omega)+\chi^0_{\downarrow\downarrow}(q,\omega))} \tag{S5}$$

因此，我们有：

$$\epsilon^{-1}(q,\omega)=1+V_q\frac{\chi^0_{\uparrow\uparrow}(q,\omega)(1-V_q\chi^0_{\downarrow\downarrow}(q,\omega))+\chi^0_{\downarrow\downarrow}(q,\omega)(1-V_q\chi^0_{\uparrow\uparrow}(q,\omega))+2\chi^0_{\uparrow\uparrow}(q,\omega))\chi_{\downarrow\downarrow}(q,\omega))}{1-V_q(\chi_{\uparrow\uparrow}(q,\omega)+\chi_{\downarrow\downarrow}(q,\omega))} \tag{S6}$$

由此可得介电函数：

$$\epsilon(q,\omega)=1-V_q(\chi^0_{\uparrow\uparrow}(q,\omega)+\chi^0_{\downarrow\downarrow}(q,\omega)) \tag{S7}$$

这与 [26],中推导出的结果相同，不过在该工作中，戴森级数以矩阵形式表示：

$$\chi^{-1}_{ij}=(\chi^0)^{-1}_{ij}-V_q \tag{S8}$$

等离激元色散

我们计算 TM 偏振的等离激元，其电场模式分布如下所示（我们选择等离激元沿 x 方向传播——其他传播方向可直接类推）：

$$E(x,y,z)=\begin{cases}e^{iqx-Qz}(e_x+\frac{iq}{Q}e_z), & \text{if } z>0\\ e^{iqx+Qz}(e_x-\frac{iq}{Q}e_z), & \text{if } z<0\end{cases}$$

为建立频率 ω 与波矢 q 之间的关系，我们计算电流，其表达式为 $J_x(q,\ \omega)\ =\sigma(q,\ \omega)E_x(q,\ \omega)$。该电流对应的电荷密度为 $\rho(q,\ \omega)\ =\ \frac{q}{\omega}\sigma(q,\ \omega)E_x(q,\ \omega)$。利用高斯定理，我们得到：

$$\frac{2iq}{Q}=\frac{q}{\omega\epsilon_0}\sigma(q,\omega)\rightarrow\frac{2i}{\sqrt{q^2-\omega^2/c^2}}=\frac{\sigma(q,\omega)}{\omega\epsilon_0} \tag{S9}$$

原则上，必须计算完整的非局域且与频率相关的电导率——这正是我们在正文中获得所报告的等离激元色散的方法。不过，为了对等离激元色散进行数量级估算，我们可以计算德鲁德电导率，其表达式为：

$$\frac{ig_se^2}{N_k\omega\Omega}\sum_{k,n}\delta(\epsilon^n_k-\mu)|v^x_{n,k}|^2, \tag{S10}$$

其中 $v^i_{n,\ k}$ 表示波矢 k 沿方向 i时能带 n 的速度，Ω 为晶胞面积， g_s 为自旋简并度——对于大于 $\sqrt{3}\times\sqrt{3}$ 的缺陷晶格，该值为 1；对于两种 $\sqrt{3}\times\sqrt{3}$ 晶格，该值为 2——而 N_k 为布里渊区内采样的 k 点数。我们发现，在 0.5 电子伏特掺杂下， $C_B^{\sqrt{3}\times\sqrt{3}}$ 、 $C_B^{2\times2}$ 、 $C_B^{3\times3}$ 、 $C_B^{4\times4}$ 的局域 Drude 电导率分别为石墨烯的 278%、86%、18.5% 和 7.5%；在 电子伏特掺杂下， $C_N^{\sqrt{3}\times\sqrt{3}}$ 、 $C_N^{2\times2}$ 、 $C_N^{3\times3}$ $C_N^{4\times4}$ 187 75 13 8.7 0 5 的 Drude 电导率分别为石墨烯的 %、%、%、%。从物理上看，这一趋势反映出，超晶格越大，在化学势处形成的能带就越平坦——费米速度也越低。另需指出，我们的晶格具有如下背景有效介电反差：

$$\epsilon(q)\approx1+c\alpha_{BN}q \tag{S11}$$

其中 α_{BN} 在原子单位制下为 12.69 [2]，且 c 根据具体的超晶格不同，其取值范围为 1。6 至 3。5 。我们通过对纯六方氮化硼进行密度泛函理论计算，验证了 α_{BN} 的给定值，并通过计算带间跃迁对等离激元色散的影响，得到了 c 的取值范围，如图S5所示。

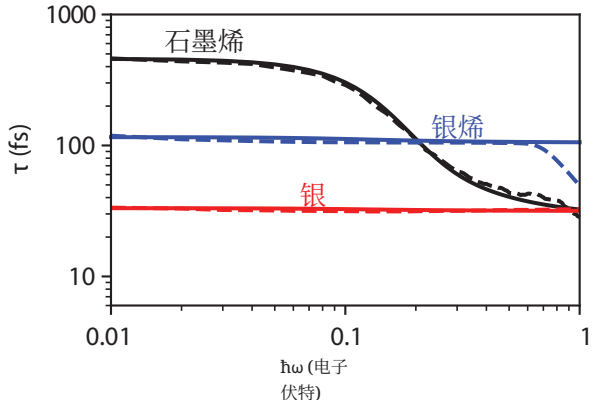

图 S1： **不同衰减时间的比较**。虚线根据正文中给出的公式 $\tau(\omega)$ 得出，而实线则由 $\tau_{FS}(\omega)$ 中方程 (S12)给出的另一种衰减时间公式得出。Argentene 在高频下的差异归因于使费米面近似失效的带间跃迁。

衰减时间

我们缺陷晶格中等离激元衰减的最低阶过程是电子-声子相互作用。这是因为六种等离激元色散均处于朗道无阻尼状态，如图 S4所示。为进一步验证正文中给出的衰减时间公式，我们将该公式计算得到的衰减时间与以下方法得到的结果进行比较：

$$\tau_{FS}^{-1}(\omega)=\frac{1}{\hbar g(\epsilon_F)}\frac{2\pi}{N_{k'}N_k}\sum_{k,k'}|g_{k,k'}^{n,m,\alpha}|^2\Big(1-\frac{v_k^n.v_{k'}^m}{|v_k^n||v_{k'}^m|}\Big)\delta(\epsilon_k^n-\epsilon_F)\delta(\epsilon_{k'}^m-\epsilon_F)\sum_{\pm}\frac{\pm b(\omega\pm\omega_q^\alpha)}{(e^{\pm\beta\hbar\omega_q^\alpha}-1)b(\omega)} \tag{S12}$$

其中 $\beta(\omega)=\frac{\beta\hbar\omega}{1-e^{-\beta\hbar\omega}}$， $g^{n,m,\alpha}_{k,k'}$，是对应于电子能带 n 和 m 在波矢 k 和 k'处的电子-声子矩阵元，分别对应于支 α 中波矢 $k'-k$ 处（频率为 $\omega_{k'-k}^\alpha$）的声子。 ϵ_k^n， $\epsilon_{k'}^m$ 是电子能量。该公式此前已被用于 [48] 计算频率依赖的载流子弛豫时间。我们将通过该方程得到的衰减时间与通过方程（S12）在图 S1中得到的结果进行比较，发现二者吻合良好。高频下 argentene 的差异归因于额外的带间跃迁，而这些跃迁未包含在方程（S12）中。

一个自然的问题是，上述衰减时间与 [49] 中定义的等离激元衰减时间有何关系。为了建立这种联系，我们将等离激元衰减率写为 [49]:

$$\frac{\Re(\sigma(\omega)/\omega)}{\frac{\partial\Im(\sigma(\omega)/\omega}{\partial\omega}}=1/2\tau(\omega) \tag{S13}$$

掺杂依赖的自旋劈裂模型

我们从局域密度近似（LDA）中的交换能表达式开始

$$E_x[\rho_\uparrow,\rho_\downarrow]=\frac{1}{2}\Big(E_x[2\rho_\uparrow]+E_x[2\rho_\downarrow]\Big), \tag{S14}$$

其中， $\rho_\uparrow$， $\rho_\downarrow$ 为自旋分辨的电子密度。以下将总电子密度记为 ρ 。在没有自旋极化的情况下，我们有 $\rho_\uparrow=\rho_\downarrow=\rho/2$，得到的交换能与忽略两种自旋态存在时的交换能相同。为了确定 Kohn-Sham 本征值如何随掺杂而变化，我们必须考察 Kohn-Sham 势的交换部分。交换势矩阵为 [50]:

$$V_x^{\alpha\beta}=\frac{\delta E_x}{\delta\rho_{\alpha\beta}}=\delta_{\alpha\beta}\frac{\delta E_x}{\delta\rho_\alpha}, \tag{S15}$$

定义如下：

$$\rho_{\alpha\beta} = \sum_i \psi^*_{i,\alpha}\psi_{i,\beta} \tag{S16}$$

其中，i 索引所有非自旋量子数（如能带和晶体动量），而 α，β 是自旋指标（另请注意，按照定义，$\rho_{\uparrow\uparrow} = \rho_\uparrow$ 和 $\rho_{\downarrow\downarrow} = \rho_\downarrow$。根据一阶微扰理论，自旋劈裂可表示为（以原子单位计）：

$$\Delta = \int \left(V^\uparrow(r) - V^\downarrow(r)\right)\frac{|\psi_\uparrow(r)|^2 + |\psi_\downarrow(r)|^2}{2}d^3r = \left(\frac{3}{\pi}\right)^{1/3}2^{1/3}\int(\rho_\uparrow^{1/3}(r) - \rho_\downarrow^{1/3}(r))\frac{|\psi_\uparrow(r)|^2 + |\psi_\downarrow(r)|^2}{2}d^3r \tag{S17}$$

我们首先利用这样一个事实，给出自旋劈裂的完全解析模型：在费米能级处与 2pz 轨道相互作用的电子密度，可以很好地描述为由 1s、2s 和 2pz 轨道自身贡献的密度之和。

$$\left(\frac{6}{\pi}\right)^{1/3}\int\left[\left(|\psi_{1s}(r)|^2 + |\psi_{2s}|^2 + (1-n)|\psi_{2pz}|^2\right)^{1/3} - \left(|\psi_{1s}(r)|^2 + |\psi_{2s}|^2\right)^{1/3}\right]|\psi_{2pz}|^2d^3r, \tag{S18}$$

其中，n 是过剩电荷绝对值。我们使用 1s、2s 和 2pz 轨道的类氢波函数对其进行数值积分，所得结果与我们的密度泛函理论计算结果吻合良好，如图 S2所示。

在图 S3中，我们针对全部六种缺陷晶格，将公式 (S17) 的结果与密度泛函理论自旋劈裂结果进行比较。我们采用了三种交换-关联泛函。毫不意外，未考虑关联的局域密度近似与我们的模型拟合得最好。这是因为我们的微扰理论模型采用局域密度近似交换，并忽略了关联的影响。然而，更令人意外的是，精度更高的 PBE 交换也与我们的模型吻合良好。

自旋劈裂的 Hubbard 模型

接下来，我们展示如何通过对 Hubbard U 参数进行半解析计算来预测自旋劈裂。具体而言，Hubbard U 定义如下：

$$U = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0}\int|\psi_{pz}(r_1)|^2\frac{1}{|r_1 - r_2|}|\psi_{pz}(r_2)|^2d^3r_1d^3r_2 \tag{S19}$$

然而，该模型高估了实际的 U 参数。这是因为我们尚未考虑屏蔽效应。为考虑屏蔽效应，我们研究自旋完全极化的情形，因此该体系为绝缘体。在这种情况下，屏蔽库仑相互作用为（使用公式 (S11)）：

$$W(\rho,\rho',z,z') = \frac{1}{(2\pi)^2}\int\frac{e^2e^{-iq|\rho-\rho'|\cos(\theta)}e^{-q|z-z'|}}{2\epsilon_0 q(1+\alpha q)}qdqd\theta \tag{S20}$$

我们对 θ积分，得到：

$$\frac{e^2}{4\pi\epsilon_0}\int\frac{J_0(q|\rho-\rho'|)e^{-q|z-z'|}}{(1+\alpha q)}dq \tag{S21}$$

因此，方程S19 的屏蔽形式为：

$$\frac{e^2}{4\pi\epsilon_0}\int|\psi_{pz}(r_1)|^2\frac{J_0(q|\rho-\rho'|)}{1+\alpha q}e^{-q|z-z'|}|\psi_{pz}(r_2)|^2d^3r_1d^3r_2dq \tag{S22}$$

取 $\alpha \approx 20$ 埃（这是我们缺陷晶格的典型值）进行计算，得到 $U \approx 1.1 - 1.2$ 电子伏特，与 ≈ 1 电子伏特的第一性原理结果吻合良好。

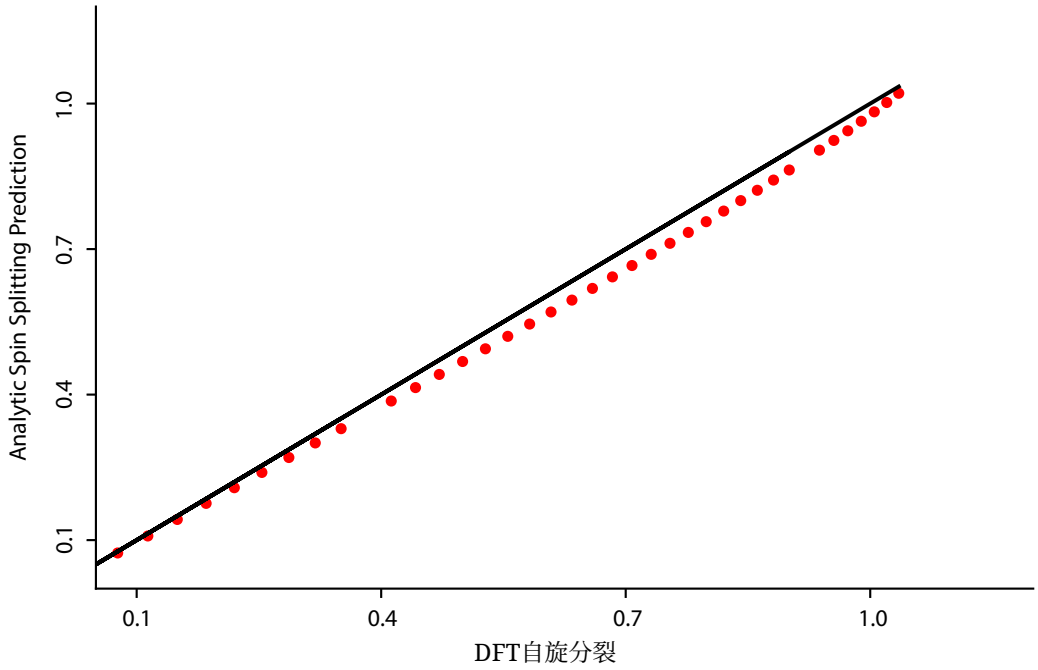

图 S2：**解析自旋分裂模型的准确性**。将解析自旋分裂模型与通过DFT结合PBE交换-相关泛函获得的结果进行对比。模型结果越接近45度线（黑线），表明模型的准确性越高。

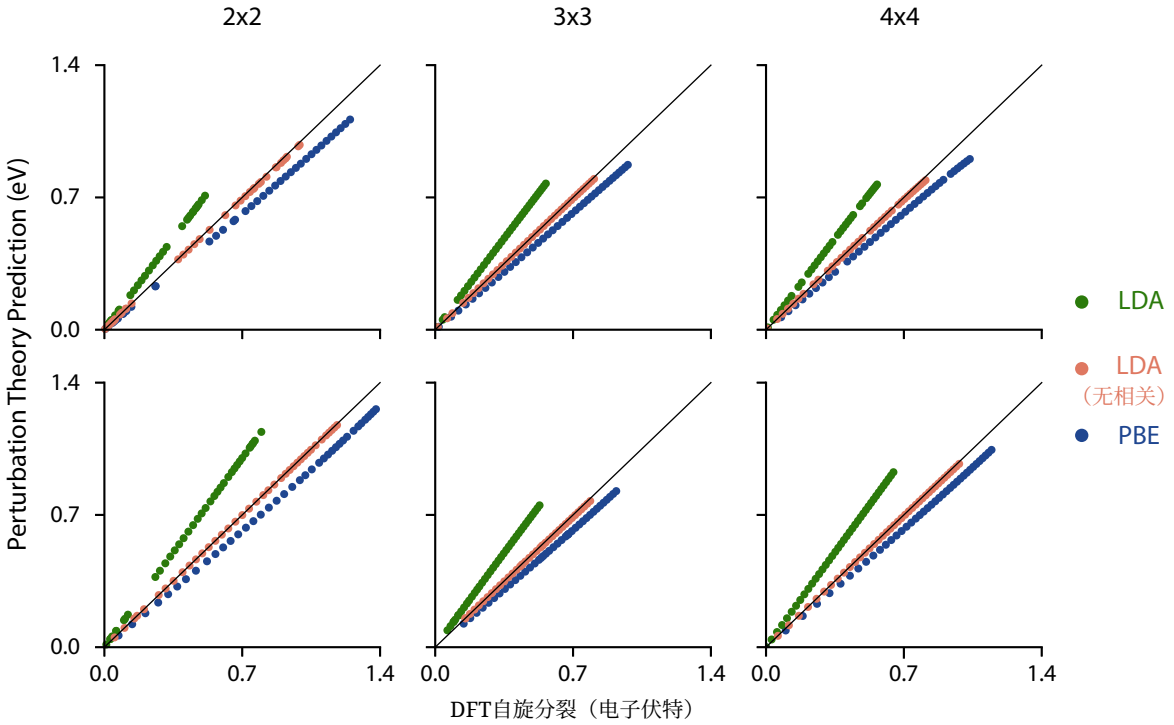

图 S3：**一阶微扰理论描述自旋分裂的准确性**。每个点代表一次独特的DFT计算。x轴表示通过DFT获得的自旋分裂，而y轴表示利用DFT获得的密度和波函数，通过一阶微扰理论得到的结果。模型的准确性取决于给定点与45度实线的接近程度。

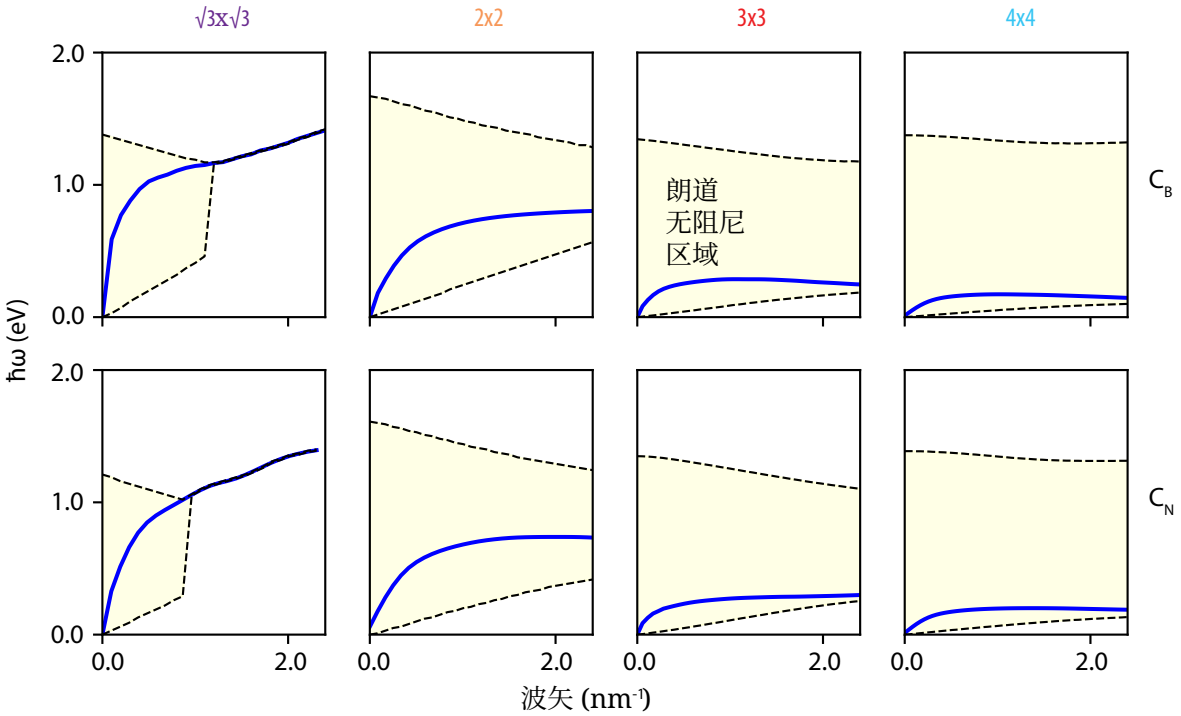

图 S4：**朗道无阻尼等离激元**。等离激元色散（蓝线）位于朗道阻尼区域的下限与上限之间。所有情况下，下限（上限）对应带内（带间）电子-空穴跃迁。

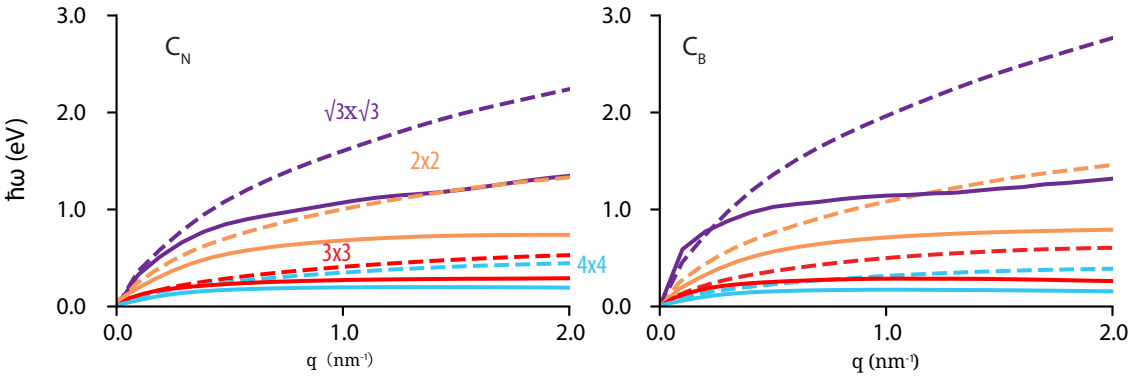

图 S5：**有效介电反差**。纯粹由带内跃迁（虚线）以及由带内跃迁和带间跃迁共同推导出的等离激元色散（实线）。

硼取代晶格中的屈曲

在图 S6中，我们展示了 $C_B^{n\times n}$ 在晶格优化仅限于 x-y 平面（上排）以及原子允许在平面外移动（下排）两种情况下的声子色散。上排子图中的虚声子频率（为方便起见，以负频率表示）表明，所有 $C_B^{n\times n}$ 晶格均发生了屈曲。我们在图 S7中展示了屈曲会导致衰减时间显著缩短。

层状系统中的等离激元色散

我们考虑无限多个等间距平面，这些平面由缺陷晶格构成（层状方向上的晶格常数为a）。为求得等离激元色散，只需考虑区域 1 和区域 2 之间的一个界面。我们采用如下试探形式

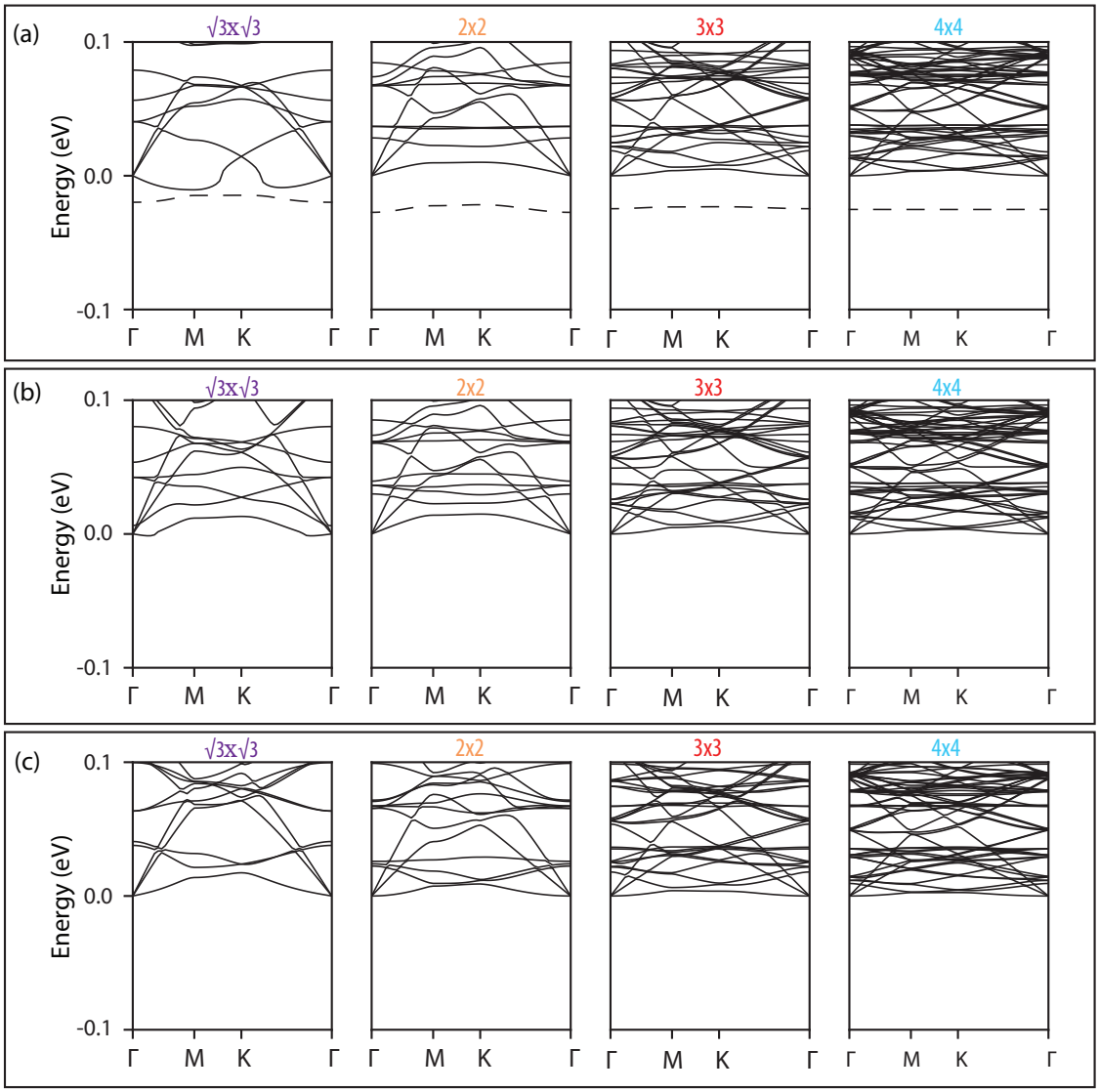

图 S6：**声子色散与稳定性**。(a) $C_B^{n\times n}$ 平面系统中的声子。虚声子模以虚线表示，说明平面系统不稳定。(b) 起伏$C_B^{n\times n}$ 晶格的声子。不存在虚声子频率，表明其具有结构稳定性。请注意，$C_B^{\sqrt{3}\times\sqrt{3}}$ 在 Γ 附近存在较小的虚声子频率，量级约为 1meV。由于这些频率出现在布里渊区的非公度点，且随着声子超胞增大，其幅值会减小，因此并不代表真正的不稳定性。(c) 与(a)相同，但对应 $C_N^{n\times n}$ 。不存在虚声子频率，表明平面 $C_N^{n\times n}$ 晶格具有动力学稳定性。

$E_2 = e^{ika}E_1$，其中$E_{1,\ 2}$ 分别是区域 1 和区域 2 中的电场。我们将区域 1 中的电场取为：

$$e^{iqx-i\omega t}(e^{-iQz}(Q,0,q) + Ee^{iQz}(Q,0,-q)) \tag{S23}$$

界面处电场横向分量的连续性要求：

$$e^{ika}(1+E) = e^{-iQa} + Ee^{iQa} \rightarrow E = \frac{e^{ika} - e^{-iQa}}{e^{iQa} - e^{ika}} \tag{S24}$$

区域 1 中的 H场为：

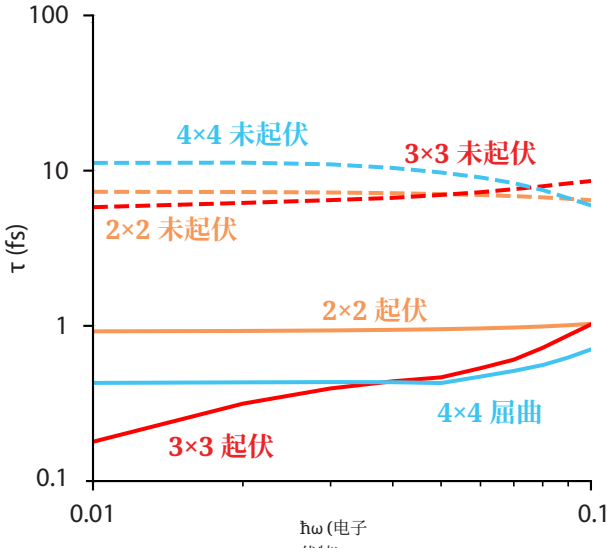

图 S7：**屈曲对电子-声子耦合的影响：**我们使用弛豫后的屈曲和未屈曲 $C_B^{n\times n}$ 系统的电子-声子矩阵元计算衰减时间。未屈曲系统普遍较长的衰减时间表明，屈曲增强了电子-声子耦合。

$$H = -\frac{1}{\omega\mu}e^{iqx-i\omega t}\frac{\omega^2}{c^2}(e^{-iQz}+Ee^{iQz})e_y = -\omega\epsilon e^{iqx-i\omega t}(e^{-iQz}+Ee^{iQz})e_y \tag{S25}$$

因此，H场横向分量的变化为：

$$\epsilon(e^{ika}-e^{-iQa}+E(e^{ika}-e^{iQa})) = -\frac{iQ}{q^2}\Pi(q,\omega)(1+E)e^{ika}, \tag{S26}$$

其中 $\Pi(q,\ \omega)$ 是极化率 [51]。代入 E 并令 $Q=iq$，可得：

$$2\epsilon(e^{ika}-e^{qa}) = \frac{1}{q}\Pi(q,\omega)\frac{e^{-qa}-e^{qa}}{e^{-qa}-e^{ika}}e^{ika} \to 1 = \frac{1}{2\epsilon q}\frac{e^{-qa}-e^{qa}}{e^{-qa}-e^{ika}-e^{-ika}+e^{qa}}\Pi(q,\omega) \tag{S27}$$

因此，我们得到最终方程：

$$1+\frac{\sinh(qa)}{\cosh(qa)-\cos(ka)}\frac{1}{2\epsilon q}\Pi(q,\omega) = 0 \tag{S28}$$

关于声子超胞尺寸的收敛性

在图 S8 w e 展示了我们所研究的两个缺陷晶格随超胞尺寸变化的收敛性 .

[1] P. Huang、M. Grzeszczyk、K. Vaklinova、K. Watanabe、T. Taniguchi、K. Novoselov 和 M. Koperski，《物理评论B》**106**，014107（2022年）。[2] I. Lonˇcari´c、Z. Rukelj、V. M. Silkin 和 V. Despoja，npj《二维材料与应用》**2**，1（2018年）。

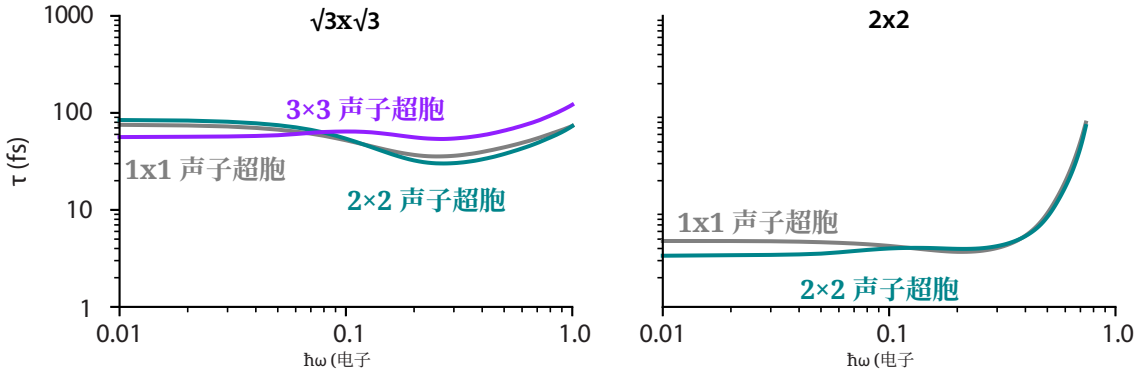

图 S8：**衰减时间随声子超胞尺寸的收敛性：**我们展示了两种 C_N 替位晶格的衰减时间差异。可以看出，结果不会随声子超胞尺寸发生定性变化。

[3] M. N. Gjerding、A. Taghizadeh、A. Rasmussen、S. Ali、F. Bertoldo、T. Deilmann、N. R. Knøsgaard、M. Kruse、A. H. Larsen、S. Manti 等，《二维材料》8，044002（2021年）。[4] C. Lewandowski 和 L. Levitov，《美国国家科学院院刊》116，20869（2019年）。[5] R. Sundararaman、T. Christensen、Y. Ping、N. Rivera、J. D. Joannopoulos、M. Solja˘ci ´ **4**, c 和 074011 2020 P. Narang，《物理评论：材料》（ ）。[6] K. S. Novoselov、D. Jiang、F. Schedin、T. Booth、V. Khotkevich、S. Morozov 和 A. K. Geim，《美国国家科学院院刊》102，10451（2005年）。[7] S. V. Boriskina、T. A. Cooper、L. Zeng、G. Ni、J. K. Tong、Y. Tsurimaki、Y. Huang、L. Meroueh、G. Mahan 和 G. Chen，《光学与光子学进展》9，775（2017年）。[8] S. Dai、W. Fang、N. Rivera、Y. Stehle、B.-Y. Jiang、J. Shen、R. Y. Tay、C. J. Ciccarino、Q. Ma、D. Rodan-Legrain 等，《先进材料》31，1806603（2019年）。[9] N. Rivera、T. Christensen 和 P. Narang，《纳米快报》19，2653（2019年）。[10] D. Novko、K. Lyon、D. J. Mowbray 和 V. Despoja，《物理评论B》104，115421（2021年）。[11] J. B. Khurgin，《法拉第讨论》178，109（2015年）。[12] N. Rivera、I. Kaminer、B. Zhen、J. D. Joannopoulos 和 M. Solja˘ci´c，《科学》353，263（2016年）。[13] N. Rivera 和 I. Kaminer，《自然评论：物理学》2，538（2020年）。[14] H. A. Atwater 和 A. Polman，《自然·材料》9，205（2010年）。[15] J. Langer、D. Jimenez de Aberasturi、J. Aizpurua、R. A. Alvarez-Puebla、B. Augui´e、J. J. Baumberg、G. C. Bazan、S. E. Bell、A. Boisen、A. G. Brolo 等，《ACS纳米》14，28（2019年）。[16] J. Homola，《分析与生物分析化学》377，528（2003年）。[17] M. Noginov、G. Zhu、A. Belgrave、R. Bakker、V. Shalaev、E. Narimanov、S. Stout、E. Herz、T. Suteewong 和 U. Wiesner，《自然》460，1110 2009( )。[18] J. B. Khurgin，《自然·纳米技术》10，2（2015年）。[19] M. N. Gjerding、M. Pandey 和 K. S. Thygesen，《自然·通讯》8，1（2017年）。[20] G. Cassabois、P. Valvin 和 B. Gil，《自然·光子学》10，262（2016年）。[21] L. Weston、D. Wickramaratne、M. Mackoit、A. Alkauskas 和 C. Van de Walle，《物理评论B》97，214104（2018年）。[22] W. Liu、N.-J. Guo、S. Yu、Y. Meng、Z. Li、Y.-Z. Yang、Z.-A. Wang、X.-D. Zeng、L.-K. Xie、J.-F. Wang 等，《量子技术材料》（2022年）。[23] G. F. Giuliani 和 J. Quinn，《物理评论快报》51，919（1983年）。[24] M.-S. Lee 和 S. D. Mahanti，《物理评论B》85，165149（2012年）。[25] G. D. Mahan，《多粒子物理学》（Springer Science & Business Media，2013年）。[26] A. Agarwal、M. Polini、G. Vignale 和 M. E. Flatt´e，《物理评论B》90，155409（2014年）。[27] F. H. da Jornada、L. Xian、A. Rubio 和 S. G. Louie，《自然·通讯》11，1013（2020年）。[28] T. Stauber 和 N. Peres，《凝聚态物理学杂志》20，055002（2008年）。[29] P. B. Allen，《物理评论B》92，054305（2015年）。[30] P. Allen，《物理评论B》3，305（1971年）。[31] A. M. Brown、R. Sundararaman、P. Narang、W. A. Goddard III 和 H. A. Atwater，《ACS纳米》10，957（2016年）。[32] D. Pines 和 J. R. Schrieffer，《物理评论》125，804（1962年）。[33] J. P. Perdew、K. Burke 和 M. Ernzerhof，《物理评论快报》77，3865（1996年）。[34] P. A. Dirac，载于《剑桥哲学学会数学学报》（剑桥大学出版社，1930年），第26卷，第376–385页。[35] J. Perdew、E. McMullen 和 A. Zunger，《物理评论A》23，2785（1981年）。[36] G. Profeta、M. Calandra 和 F. Mauri，《自然·物理学》8，131（2012年）。[37] N. Peres、T. Stauber 和 A. C. Neto，《EPL（欧洲物理学快报）》84，38002（2008年）。[38] S. Gangadharaiah、A. Farid 和 E. Mishchenko，《物理评论快报》100，166802（2008年）。

[39] M. Polini、R. Asgari、G. Borghi、Y. Barlas、T. Pereg-Barnea 和 A. MacDonald，《物理评论B》77，081411（2008年）。[40] J. Henriques、B. Amorim、R. Ribeiro 和 N. Peres，《物理评论B》105，115421（2022年）。[41] S. Haastrup、M. Strange、M. Pandey、T. Deilmann、P. S. Schmidt、N. F. Hinsche、M. N. Gjerding、D. Torelli、P. M. Larsen、A. C. Riis- Jensen 等，《二维材料》5，042002（2018年）。[42] R. Sundararaman、K. Letchworth-Weaver、K. A. Schwarz、D. Gunceler、Y. Ozhabes 和 T. Arias，SoftwareX 6，278（2017年）。[43] M. Schlipf 和 F. Gygi，《计算物理通讯》196，36（2015年）。[44] R. Sundararaman 和 T. Arias，《物理评论B》87，165122（2013年）。[45] I. Souza、N. Marzari 和 D. Vanderbilt，《物理评论B》65，035109（2001年）。[46] G. Kresse 和 J. Furthm¨uller，《物理评论B》54，11169（1996年）。[47] C. Freysoldt、S. Boeck 和 J. Neugebauer，《物理评论B》79，241103（2009年）。[48] S. Kumar、C. Multunas 和 R. Sundararaman，《物理评论：材料》6，125201（2022年）。[49] B. Wunsch、T. Stauber、F. Sols 和 F. Guinea，《新物理学杂志》8，318（2006年）。[50] F. Giustino，《使用密度泛函理论进行材料建模：性质与预测》（牛津大学出版社，2014年）。[51] M. Jablan、H. Buljan 和 M. Solja˘ci´c，《物理评论B》80，245435（2009年）。[52] S. L. Adler，《物理评论》126，413（1962年）。[53] N. Wiser，《物理评论》129，62（1963年）。[54] 真正的平带不支持等离激元激发，而高度色散的能带会增加带内损耗。[55] 在本研究中，我们忽略了局域场效应 [52, 53], ，而这类效应可能仅在 $|q| = |q + G|$时才显著，其中 G 是倒格矢。