MoS_2/WS_2中的光加速热载流子转移：

一项第一性原理研究

Zhi-Guo Tao[1,2], Guo-Jun Zhu[1,2*], Weibin Chu[1,2], Xin-Gao Gong[1,2], 和 Ji-Hui Yang[1,2†]*

[1]计算物理科学重点实验室（教育部）、表面物理国家重点实验室、复旦大学物理系，中国上海 200433[2]上海期智研究院，中国上海 200232

摘要： II 型异质结构中的电荷转移在决定光伏和光催化应用的器件性能方面发挥着重要作用。然而，目前关于电荷转移过程的理论研究未考虑光照等运行条件的影响，因此系统性地高估了 MoS_2/WS_2 中热电子的层间转移时间，与实验结果不符。在此，我们提出一种普遍图景：光照可在 II 型异质结构中诱导界面偶极，通过减小不同材料中电子态之间的能量差并增强非绝热耦合，加速热载流子转移。我们采用第一性原理计算和从头算非绝热分子动力学，以 MoS_2/WS_2 为原型验证了这一图景。计算得到的热电子层间转移过程（60 fs）和整体弛豫过程（700 fs）的特征时间与实验结果吻合良好。我们还发现，光照主要影响超快层间转移过程，而对相对缓慢的层内弛豫过程影响甚微。因此，整体弛豫

* 这些作者对本项研究的贡献相同。

† jhyang04@fudan.edu.cn

过程中，热电子的弛豫时间会随着光照强度增加而趋于饱和。预计光照加速的电荷转移将普遍存在于 II 型异质结构中。

关键词： MoS_2/WS_2 异质结构，光照，热载流子转移，非绝热分子动力学

I. 引言

具有 II 型能带排列的异质结构中，导带底（CBM）和价带顶（VBM）分别位于两种不同材料中，因此被广泛应用于太阳能电池和光探测器等光电子应用[1, 2, 3, 4], ，因为它们有助于高效分离光激发电子和空穴。在 II 型异质结构中，界面处的电荷转移在决定器件性能方面起着至关重要的作用，因此了解电荷转移过程非常重要。然而，由三维（3D）材料构成的传统异质结构通常存在晶格失配。因此，其界面结构非常复杂，存在缺陷且系统尺寸较大，这使得从实验和理论两方面研究电荷转移过程都十分困难。

得益于二维（2D）材料的兴起，由不同二维材料构成、具有洁净界面的范德华（VDW）异质结构为研究电荷转移过程以及探索超薄光探测器[5, 6], 隧穿晶体管[7, 8, 9] 和太阳能电池[10, 11]等新型器件提供了一个简单而崭新的平台。与传统认知相反，尽管 VDW II 型异质结构中的层间耦合较弱，仍观察到了超快层间电荷转移[12, 13, 14, 15] 。Wang等人[12] 通过实验报告称，热空穴在50飞秒（fs）内从MoS_2层转移到WS_2层。Chen等人[13] 观察到，热电子在50 fs内从WS_2层转移到MoS_2层，随后在约800 fs后弛豫至能带边缘。从理论上讲，Zhang等人[16] 使用含时密度泛函理论

（TDDFT）模拟了空穴的超快转移，并报告其时间尺度为100 fs。Zheng等人[17] 使用从头算非绝热分子动力学（NAMD）模拟电子弛豫，发现约3/4的电子在1000 fs后弛豫至能带边缘。我们发现，理论模拟的电荷转移时间系统性地长于实验结果。尽管实验与理论之间的差异可能有许多原因，例如衬底、界面缺陷、基态密度泛函理论能带结构不准确等，但以往的理论研究并未考虑这样一个事实：光诱导产生的电子和空穴必然会影响界面处的电子能带结构。因此，光照在界面电荷转移过程中是否以及如何发挥作用尚不清楚。揭示这一点不仅对理解光与物质的相互作用很重要，也有助于提升许多二维和三维器件的光电性能。

在本文中，我们首次研究了光照对 II 型异质结构中热电子超快转移和弛豫的影响。我们提出了一种普遍图景：在 II 型异质结构中，光诱导电子和空穴分别位于不同材料中，并形成界面偶极，从而减小不同材料间的能带能量差，进而加速热电子转移。我们在 WS_2/MoS_2 异质结构中验证了这一图景。利用第一性原理计算方法和 NAMD 模拟技术，我们系统地探究了不同光照强度下热电子的动力学。模拟结果表明，光照确实会加速热电子转移，且计算得到的转移时间与实验结果[13]高度吻合。我们预计，光照加速电荷转移的现象在二维和三维II型异质结构中具有普遍性。

II. 计算细节

密度泛函理论（DFT）计算使用维也纳从头算模拟程序包（VASP）[18, 19, 20]完成。电子与原子实相互作用采用冻结芯投影缀加波（PAW）方法[21]处理。所有计算均采用 Perdew、Burke 和 Ernzerhof（PBE）[22] 提出的广义梯度近似（GGA）。范德华（vdW）相互作用通过 DFT-D2[23] 方法处理。为模拟稳态光照条件，采用约束占据方法[24, 25]，从整个异质结构的价带顶移除分数电子并将其置于导带底。计算电子结构时，采用 400 eV 的能量截断和 18x18x1 的 k 点网格。为研究电荷转移过程，我们进行了 Hefei-NAMD 代码[26]中实现的非绝热分子动力学模拟（NAMD）。在正交的 MoS_2/WS_2 超胞（含 108 个原子）的从头算分子动力学（AIMD）模拟中，采用Γ 点。我们以 1 fs 的时间步长对1×10^4 条轨迹进行 1 ps 模拟。NAMD 结果取自对 100 种不同初始构型的平均。使用 CAnac 结合相位校正和态跟踪[27, 28, 29, 30]计算非绝热耦合。

III. 结果与讨论

典型 II 型异质结构的能带图如图 1 所示。在光照前，材料 B 的导带底和价带顶分别高于材料 A 的导带底和价带顶。导带底和价带顶的能带偏移分别为 ΔE_c 和 ΔE_v。在光照下，电子会根据光子能量和带隙，在材料 A 或 B 中的价带跃迁至导带，也可能在两者中同时发生跃迁。在热力学效应的驱动下，激发载流子最终会弛豫至整个异质结构的能带边缘，即电子会弛豫至材料 A 的导带底，而空穴会弛豫至材料 B 的价带顶。因此，界面偶极将会形成，使材料 A 中的能带分别向上移动，而材料 B 中的能带向下移动，

从而减小材料 A 中能带与材料 B 中能带之间的能量差，即 ΔE_c 和 ΔE_v 将会减小。在这种情况下，如果材料 B 中存在热电子，它将更容易转移至材料 A，层间电荷转移也会加速。这种图景预计普遍存在于 II 型异质结构中。

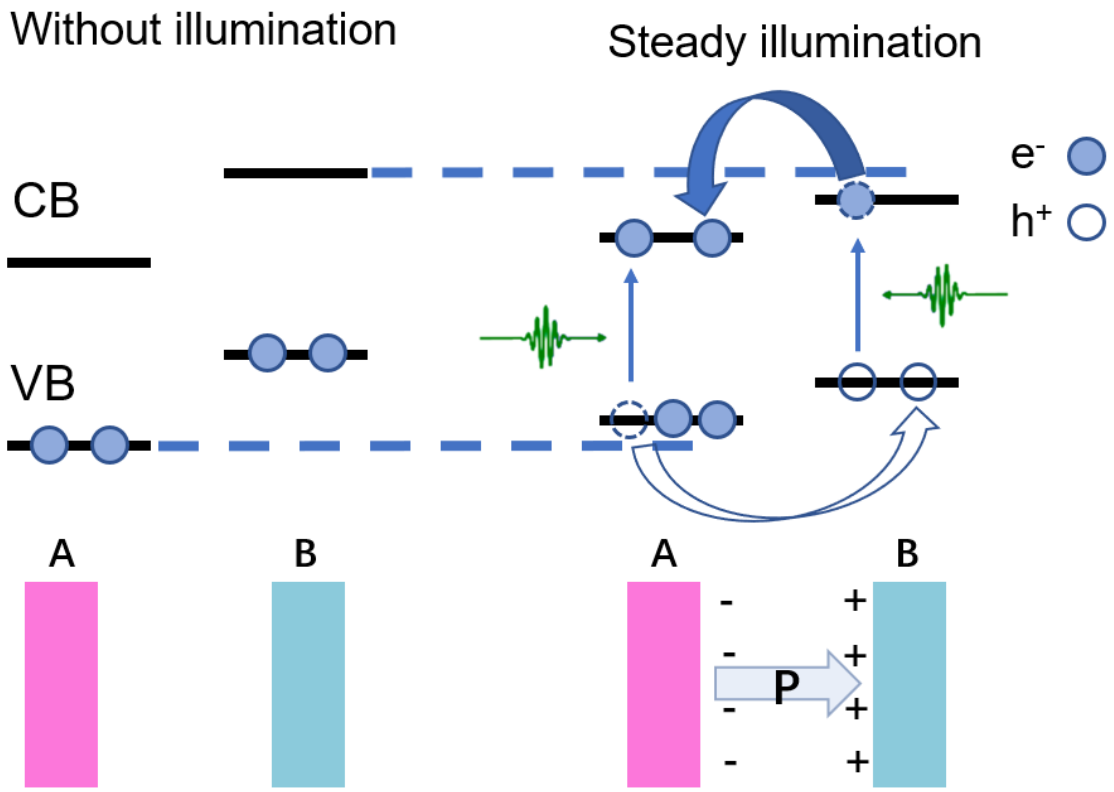

图 1. 示意图展示了 A/B 异质结构在有光照和无光照条件下的光激发与载流子转移。虚线圆圈表示载流子从 A（B）转移到 B（A）

为了展示上述图景并定量确定光诱导界面偶极对 II 型异质结构中电荷转移的影响，我们采用 NAMD 理论研究了考虑光照条件下 MoS_2/WS_2 中的电荷转移。在介绍模拟结果之前，我们首先讨论 MoS_2/WS_2 异质结构的能带结构。这里我们考虑 MoS_2 和 WS_2 的 C7 堆叠，因为先前的报告指出它是最

稳定[31, 32]。在 MoS_2 或 WS_2 单层中，价带顶（VBM）和导带底（CBM）态均位于 K 点。当两者堆叠时，K 点处的带边分别分布在不同的材料中。如图 2 所示，K 点处较低的导带边缘主要分布在 MoS_2 中（记为 CB@K_MoS_2），而较高的导带边缘主要分布在 WS_2中（记为 CB@K_WS_2）。类似地，K 点处较高（较低）的价带边缘主要分布在 WS_2 （MoS_2）中。这种带边分布特征清楚地表明，该体系属于 II 型异质结构。值得注意的是，与 MoS_2 或 WS_2 单层中的 VBM 位于 K 点不同，异质结构的整体 VBM 位于 Γ 点。这种差异主要源于层间相互作用引起的层间轨道杂化，因为我们发现 VBM 同时分布在 MoS_2 和 WS_2 中（见图 2）。由于该态更多地分布在 WS_2, 中，因此我们将其记为 VB @Γ_WS_2。 我们的能带结构计算结果与先前的研究[17, 33]高度吻合。

当能量略高于 MoS_2 或 WS_2, 能隙的低能光子照射时，电子会从 MoS_2 和/或 WS_2 中的价带边缘跃迁至导带边缘。随后，热电子（空穴）会弛豫，并最终转移至 MoS_2 的 CB@K_（WS_2 的 VB@Γ_）。本文主要关注热电子从 WS_2 的 CB@K_ 转移并弛豫至 MoS_2 的 CB@K_。需要注意的是，在 WS_2 的 CB@K_ 与 MoS_2, 的 CB@K_ 之间存在一个位于 T 谷的中间态。电子态特征分析表明，该态主要由 MoS_2 的电子态贡献，另有少部分分布在 WS_2, 中，说明它是一个杂化态。尽管如此，我们仍将此态记作 MoS_2 的 CB@T_。先前研究表明，这种中间态有助于电子沿着 WS_2–> 的 CB@K_ → MoS_2–> 的 CB@T_ → MoS_2 的 CB@K_ 这一途径转移和弛豫；而热电子难以从 MoS_2 的 CB@K_ 直接转移至 WS_2 的 CB@K_。它们的

结果表明，热电子从 WS_2 的 CB@K_ 弛豫至 MS_2，的 CB@K_ 需要 1000 fs 以上，长于实验结果（800 fs），因为未考虑光照条件。

施加光照后，会发生热载流子转移和弛豫。由于异质结构整体的导带底和价带顶分布在不同层中，空穴会富集于 WS_2，而电子会富集于 MoS_2。因此，我们可以通过约束不同态的电子占据来模拟光照条件。在室温下，光激发载流子密度[12, 13] 在 MoS_2/WS_2 异质结构中约为 10^{12}–10^{13} cm^{-2}，这相当于在我们模拟的 3x3x1 超胞中，将约 0.1 个电子从 VB@Γ_WS_2 激发至 CB@K_MoS_2 。为研究光照对热电子转移和弛豫的影响. 我们考虑了三种光照条件（α = 0、0.05、0.1），分别对应于光激发载流子密度 0、3.16 [illegible]

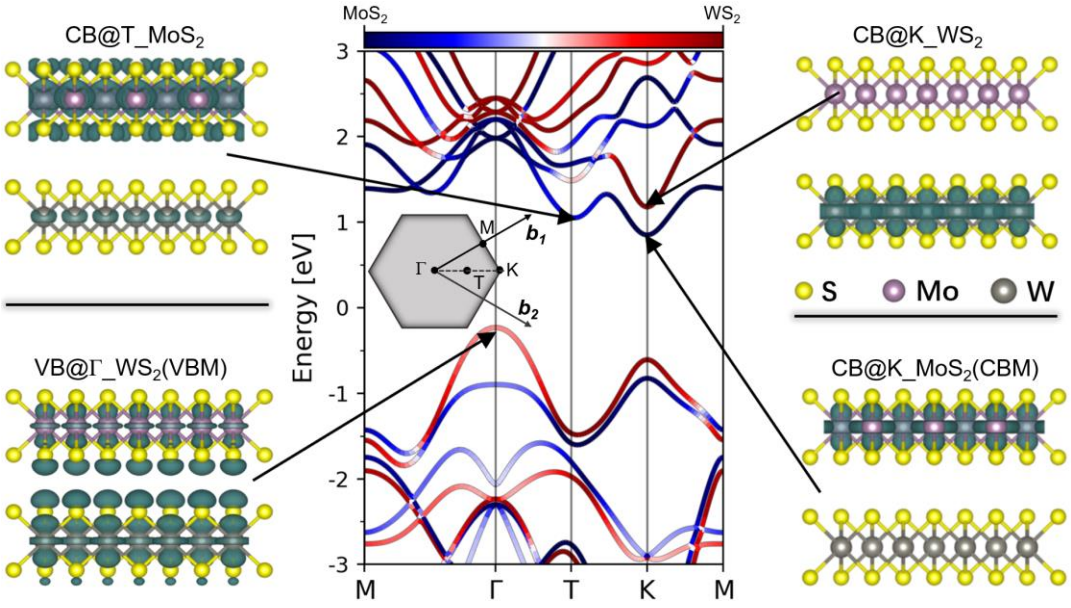

图 2. MoS_2/WS_2 异质结构的能带结构及所研究态的电子特征。插图显示了布里渊区。颜色映射表示来自不同材料的轨道贡献，即红色代表 WS_2，蓝色代表 MoS_2。

现在，我们考察不同光照条件下的热电子转移和弛豫。如上所述，热电子的整体弛豫路径，即 $CB@K\_WS_2 \rightarrow CB@T\_MoS_2 \rightarrow CB@K\_MoS_2$，可分为两个过程：层间热电子转移（$CB@K\_WS_2 \rightarrow CB@T\_MoS_2$），以及转移后在 MoS_2 中的电子弛豫（$CB@T\_MoS_2 \rightarrow$

结果如图3所示。初始时，一个热电子位于 $CB@K\_WS_2$ 态。若随时间演化后，有超过 0.5 个电子转移到另一态，我们便认为发生了转移或弛豫。在无光照条件下，我们的结果

$CB@K\_MoS_2$ 态的整体弛豫时间约为 1000 fs（见图3(a)）。虽然我们的结果与先前的理

图3(b)）。随着光照强度进一步增大，对应于光激发 0.1 个电子，热电子转移时间进一步

条件造成的。

我们进一步分别模拟层间电荷转移过程 $CB@K\_WS_2 \rightarrow CB@T\_MoS_2$ 和层内电荷弛豫过程 $CB@T\_MoS_2 \rightarrow CB@K\_MoS_2$，以进一步了解光照对异质结构中热电子行为的影响。

如图 S1 所示，我们的结果表明，光照可以加速热电子的层间转移，但对层内弛豫的影响可以忽略不计。后者的时间尺度远长于前者。因此，热电子整体弛豫过程的主要瓶颈实际上是层内弛豫。这解释了为何随着光照强度增加，热电子的整体弛豫趋于饱和。

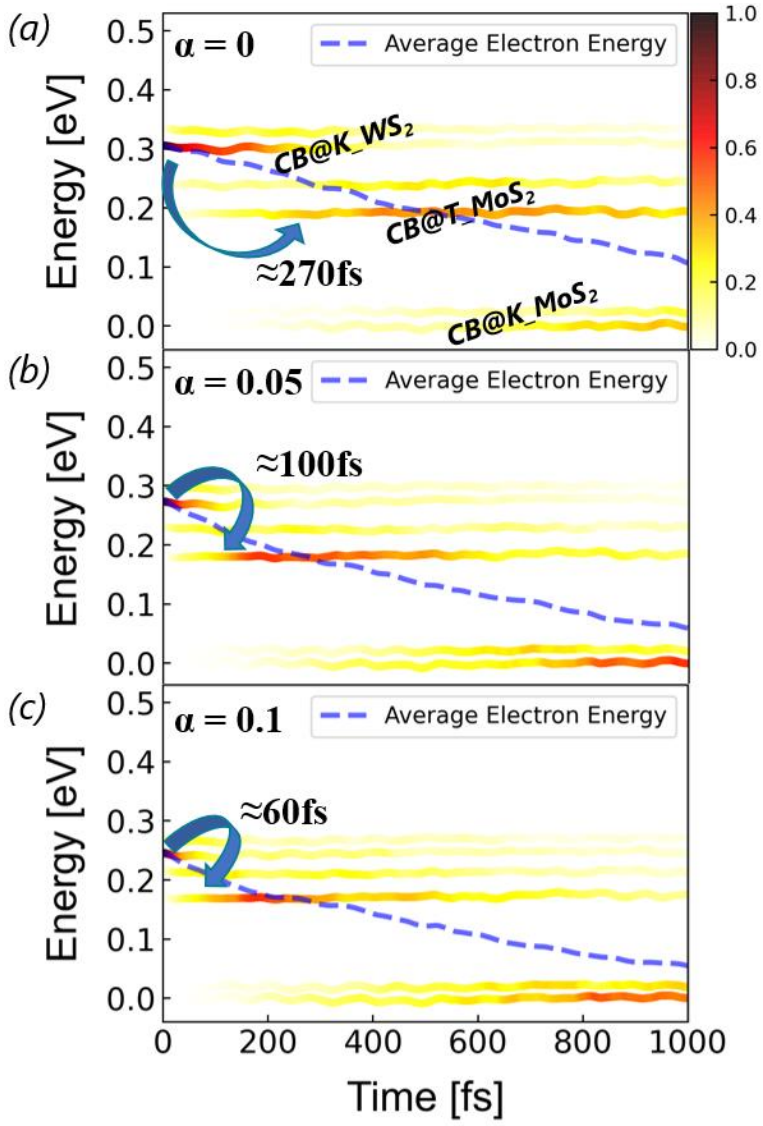

图3. 热电子从 CB@K_WS_2 态向 CB@K_MoS_2 态演化的模拟结果。 (a)、(b) 和 (c) 不同光照强度下，300 K 时电子占据和平均电子能量随时间的演化。彩色条带表示

相关能态的电子占据随时间的演化情况，虚线表示平均电子能量。能量参考为平均导带底（CBM）能量。

为了理解光照为何会加速热电子的层间转移，我们进一步分析由非绝热耦合（NAC）项[34, 35, 36, 37, 38, 39, 40]决定的不同能态之间的载流子动力学。该项由以下公式给出：

$$d_{ij} = \left\langle \varphi_i \left| \frac{\partial}{\partial t} \right| \varphi_j \right\rangle = \frac{\langle \varphi_i | \nabla_R H | \varphi_j \rangle}{\epsilon_j - \epsilon_i} \dot{R},$$

其中，H 为 Kohn–Sham 哈密顿量，[illegible]、[illegible]别为电子态 j 和 k 的波函数与本征值，[illegible]为原子核的速度。需要注意的是，电子跃迁概率与非绝热耦合的平方成正比，非绝热耦合越大，两个电子态之间的电子跃迁就越快。图 4(a) 中的结果表明，CB@K_WS$_2$ 态与 CB@K_MoS$_2$ 态之间的平均非绝热耦合较小，相比之下，CB@K_WS$_2$ 态与 CB@T_MoS$_2$ 态之间，以及 CB@T_MoS$_2$ 态与 CB@K_MoS$_2$ 态之间的平均非绝热耦合更大。这表明，从 CB@K_WS$_2$ 态直接跃迁至 CB@K_MoS$_2$ 态非常困难，而层间转移与层内弛豫相结合，即 CB@K_WS$_2$ → CB@T_MoS$_2$ → CB@K_MoS$_2$ [illegible]是异质结构中电子弛豫的主要机制。我们的分析与先前的研究[17]一致。

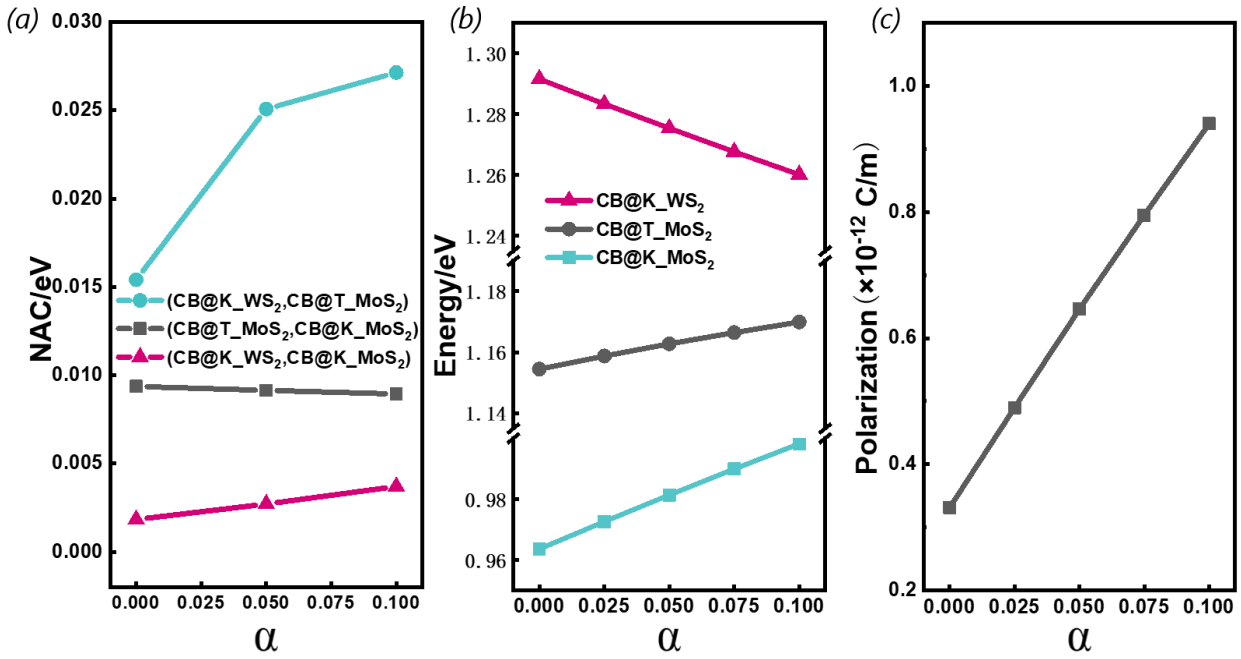

图 4。 界面 载流子动力学相关性质对光照强度的依赖关系。 (a) 不同光照强度下所考虑电子态之间非绝热耦合的绝对值平均值。(b) 和 (c) 分别表示能级和界面偶极对光照强度的依赖关系，分别。

现在来看光照如何影响非绝热耦合项。如图 4(a) 所示，CB@K_WS_2 态与 CB@T_MoS_2 态之间的平均非绝热耦合随光强增加而增大。相比之下，光照对 CB@T_MoS_2 态与 CB@K_MoS_2 态之间的非绝热耦合影响很小。因此，无照条件下非绝热耦合项的变化解

为理解光照对 NAC 项产生影响的潜在机制，我们注意到，NAC 值与两个态之间的能量差成反比，并与原子速度以及电子–声子耦合成正比。在分子动力学模拟中，电子–声子耦合可通过 Kohn–Sham 态的能量涨落体现（见图 S2(a)-S2(c)），也可通过相应的

傅里叶变换（FT）谱[35, 36]（见图 S2(d)-S2(f)）。如我们所见，在不同光照条件下，三个导带能量涨落的振幅基本相同，表明光照对电子–声子耦合强度的影响很小。这是可以理解的，因为在我们的模拟过程中，系统温度维持在 300 K，因此各个考虑热效应，光照对

光照主要通过影响带能级差来影响非绝热耦合项。事实上，从图 S2(a)-S2(c) 可以看出，随着光照强度变化，MoS_2 与 WS_2 能带之间的能量差发生了明显变化。

为了研究能级如何随光照强度变化，我们使用平衡结构计算了光照条件下异质结构的电子结构。如图 4(b) 所示，随着光照强度增加，CB@T_MoS_2 态和 CB@K_MoS_2 态的能级升高，而 CB@K_WS_2 态的能级降低。根据图 1，我们知道，在无照条件下，电子偏

极越大（如图 4(c) 所示）。这会降低 MoS_2 中的静电势，并提高 WS_2 中的静电势，从而导致 MoS_2 层的能级升高、WS_2 层的能级降低。因此，CB@K_WS_2 与 CB@T_MoS_2 之间

高达 1/3。因此，NAC 项增大，从而加快层间电子转移。相比之下，CB@T_MoS_2 与 CB@K_MoS_2 之间的能量差仅略有减小，因为 CB@T_MoS_2 是一个具有较小波尔兹曼

其中一部分分布在 WS_2 中。此外，随着光照增强，WS_2 层中 CB@T_MoS_2 轨道的分布略有增加（见表 S1），这可能会削弱 CB@T_MoS_2 与 CB@K_MoS_2 之间的耦合。因此，光照下 CB@T_MoS_2 与 CB@K_MoS_2 之间的 NAC 项几乎没有变化，因而层内电子弛豫级差大幅减小，但较大的能级差始终会导致 NAC 项非常小，无论系统是否处于光照下。因此，可以合理地忽略从 CB@K_WS_2 到 CB@K_MoS_2 的直接电子跃迁。

在此，我们以简单的 MoS_2/WS_2 体系为例，展示光照对 II 型异质结构中电荷转移的一般影响。请注意，热电子从 WS_2 层经由 CB@T_MoS_2 能级向 MoS_2 层的超快转移表明在 II 型异质结构中，位于两种材料带边态之间的杂化中间态能够加速载流子转移并增强插入某些窗口层），或可提升光电器件的性能。我们还想指出，尽管界面偶极通过减小分离层中的带能级差增强了电子转移，但 MoS_2 中的电子必须及时外移。否则，MoS_2 中积中），一旦转移速度超过外移速度，器件效率就可能降低[41, 42]。因此，通过调控

光照强度，使电荷转移与载流子外推过程相互协调，可以提升器件性能。

IV. 结论：

总之，我们首次研究了光照对 MoS_2/WS_2 异质结构中热电子超快转移和弛豫的影响。我们揭示了这样一种图景：光照诱导的界面偶极能够减小 MoS_2 中的态与 WS_2, 中的态之间的能量差，从而通过增强非绝热耦合加速热电子的层间转移。 我们预计，这一图景可广泛用于理解二维和三维II型异质结构中的载流子转移。』
通过调控光照强度，使电荷转移与载流子外推过程协同进行，或可为提升光电器件性能提供可行策略。

致谢

本研究部分由国家自然科学基金（项目编号：12188101）、国家重点基础研究专项资金（2022YFA1404603）以及国家自然科学基金（项目编号：11991061 和 11974078）资助。计算工作在复旦大学高性能计算中心完成。

参考文献：1. Deibel, C., Strobel

，T. 和 Dyakonov, V.，《先进材料》22，4097-4111（2010）。2. Heeger, A. J.，《先进材料》26，10-28（2014）。3. Zhou, H., Chen, Q., Li, G., Luo, S., Song, T., Duan, H., Hong, Z., You, J., Liu, Y. 和 Yang, Y.，《科学》345，542-546（2014）。4. Green, M. A., Ho-Baillie, A. 和 Snaith, H. J.，《自然·光子学》8，506-514（2014）。5. Britnell, L., Ribeiro, R. M., Eckmann, A., Jalil, R., Belle, B. D., Mishchenko, A., Kim, Y., Gorbachev, R. V., Georgiou, T. 和 Morozov, S. V.，《科学》340，1311-1314（2013）。6. Yu, W. J., Liu, Y., Zhou, H., Yin, A., Li, Z., Huang, Y. 和 Duan, X.，《自然·纳米技术》8，952-958（2013）。7. Britnell, L., Gorbachev, R. V., Jalil, R., Belle, B. D., Schedin, F., Mishchenko, A., Georgiou, T., Katsnelson, M. I., Eaves, L. 和 Morozov, S. V.，《科学》335，947-950（2012）。8. Georgiou, T., Jalil, R., Belle, B. D., Britnell, L., Gorbachev, R. V., Morozov, S. V., Kim, Y., Gholinia, A., Haigh, S. J. 和 Makarovsky, O.，《自然·纳米技术》8，100-103（2013）。9. Roy, K., Pad manabhan, M., Goswami, S., Sai, T. P., Ramalingam, G., Raghavan, S. 和 Ghosh, A.，《自然·

纳米技术》8，826-830（2013）。10. Li, X., Chen, W., Zhang, S., Wu, Z., Wang, P., Xu, Z., Chen, H., Yin, W., Zhong, H. 和 Lin, S.，纳米能源16，310-319（2015）。11. Rawat, A., Ahammed, R., Dimple, Jena, N., Mohanta, M. K. 和 De Sarkar, A.，《物理化学杂志C辑》123，12666-12675（2019）。12. Hong, X., Kim, J., Shi, S., Zhang, Y., Jin, C., Sun, Y., Tongay, S., Wu, J., Zhang, Y. 和 Wang, F.，《自然·纳米技术》9，682-686（2014）。13. Chen, H., Wen, X., Zhang, J., Wu, T., Gong, Y., Zhang, X., Yuan, J., Yi, C., Lou, J., Ajayan, P. M., Zhuang, W., Zhang, G. 和 Zheng, J.，《自然·通讯》7（2016）。14. Ji, Z., Hong, H., Zhang, J., Zhang, Q., Huang, W., Cao, T., Qiao, R., Liu, C., Liang, J. 和 Jin, C.，《ACS纳米》11，12020 12026 2017- ( )。15. Jin, C., Ma, E. Y., Karni, O., Regan, E. C., Wang, F. 和 Heinz, T. F.，《自然·纳米技术》13，994-1003（2018）。16. Wang, H., Bang, J., Sun, Y., Liang, L., West, D., Meunier, V. 和 Zhang, S.，《自然·通讯》7（2016）。17. Tian, Y., Zheng, Q. 和 Zhao, J.，《物理化学快报》11，586-590（2020）。18. Kresse, G. 和 Hafner, J.，《物理评论B》48，13115-13118（1993）。19. Kresse, G. 和 Furthmüller, J.，《物理评论B》54，11169-11186（1996）。20. Kresse, G. 和 Furthmüller, J.，《计算材料科学》6，15-50（1996）。21. Blöchl, P. E.，《物理评论B》50，17953-17979（1994）。22. Perdew, J. P., Burke, K. 和 Ernzerhof, M.，《物理评论快报》77，3865-3868（1996）。23. Grimme, S.，《计算化学杂志》27，1787-1799（2006）。24. Ramos, P. 和 Pavanello, M.，《化学物理杂志》148，144103（2018）。25. Kowalczyk, T., Yost, S. R. 和 Voorhis, T. V.，《化学物理杂志》134，54128（2011）。26. Zheng, Q., Chu, W., Zhao, C., Zhang, L., Guo, H., Wang, Y., Jiang, X. 和 Zhao, J.，《Wires. Comput. Mol. Sci.》9，e1411（2019）。27. Fernandez-Alberti, S., Roitberg, A. E., Nelson, T. 和 Tretiak, S.，《化学物理杂志》137，14512（2012）。28. Akimov, A. V.，《物理化学快报》9，6096-6102（2018）。29. Chu, W. 和 Prezhdo, O. V.，《物理化学快报》12，3082-3089（2021）。30. Chu, W., Zheng, Q., Akimov, A. V., Zhao, J., Saidi, W. A. 和 Prezhdo, O. V.，《物理化学快报》11，10073-10080（2020）。31. Kośmider, K. 和 Fernández-Rossier, J.，《物理评论B》87，075451（2013）。32. Gong, Y., Lin, J., Wang, X., Shi, G., Lei, S., Lin, Z., Zou, X., Ye, G., Vajtai, R. 和 Yakobson, B. I.，《自然·材料》13，1135-1142（2014）。33. Zheng, Q., Saidi, W. A., Xie, Y., Lan, Z., Prezhdo, O. V., Petek, H. 和 Zhao, J.，《纳米快报》17，6435-6442（2017）。34. Duncan, W. R., Stier, W. M. 和 Prezhdo, O. V.，《美国化学学会志》127，7941-7951（2005）。35. Guo, H., Chu, W., Zheng, Q. 和 Zhao, J.，《物理化学快报》11，4662-4667（2020）。36. Zhang, L., Zheng, Q., Xie, Y., Lan, Z., Prezhdo, O. V., Saidi, W. A. 和 Zhao, J.，《纳米快报》18，1592-1599（2018）。37. Zheng, Q., Xie, Y., Lan, Z., Prezhdo, O. V., Saidi, W. A. 和 Zhao, J.，《物理评论B》97，205417（2018）。38. Zhao, C., Zheng, Q., Wu, J. 和 Zhao, J.，《物理评论B》96，134308（2017）。39. Wang, Y., Shi, Y., Zhao, C., Zheng, Q. 和 Zhao, J.，《物理评论B》99，165309（2019）。40. Chu, W., Saidi, W. A., Zheng, Q., Xie, Y., Lan, Z., Prezhdo, O. V., Petek, H. 和 Zhao, J.，《美国化学学会志》138，13740 13749 2016- ( )。41. Harada, T., Miyashita, N., Ikari, T. 和 Fukuyama, A.，《日本应用物理学杂志》59，71002（2020）。42. Li, G., Lu, Y., Xuan, Q., Akhlaghi, Y. G., Pei, G., Ji, J. 和 Zhao, X.，《太阳能》202，316-325（2020）。

补充信息

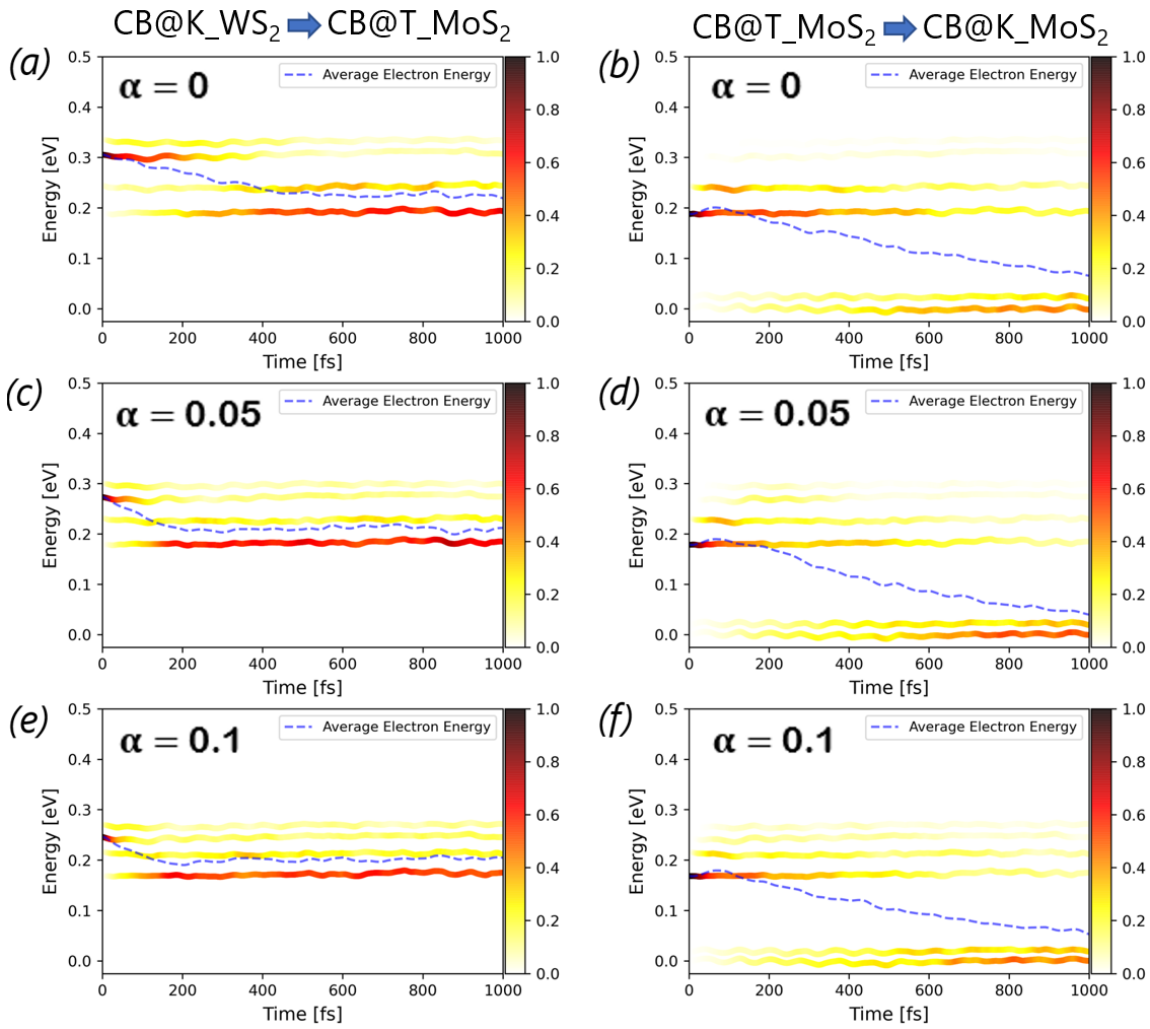

图 S1. 不同光强下 300K 时电子能量随时间的变化。 (a)、(c)、

(e) 对应于热电子从 CB@K_WS_2 向 CB@T_MoS_2 的转移。(b)、(d)、(f) 对应于热电子从 CB@T_MoS_2 向 CB@K_MoS_2 的转移。色带表示不同能态上的电子分布，虚线表示平均电子能量。能量参考为平均导带底能量。

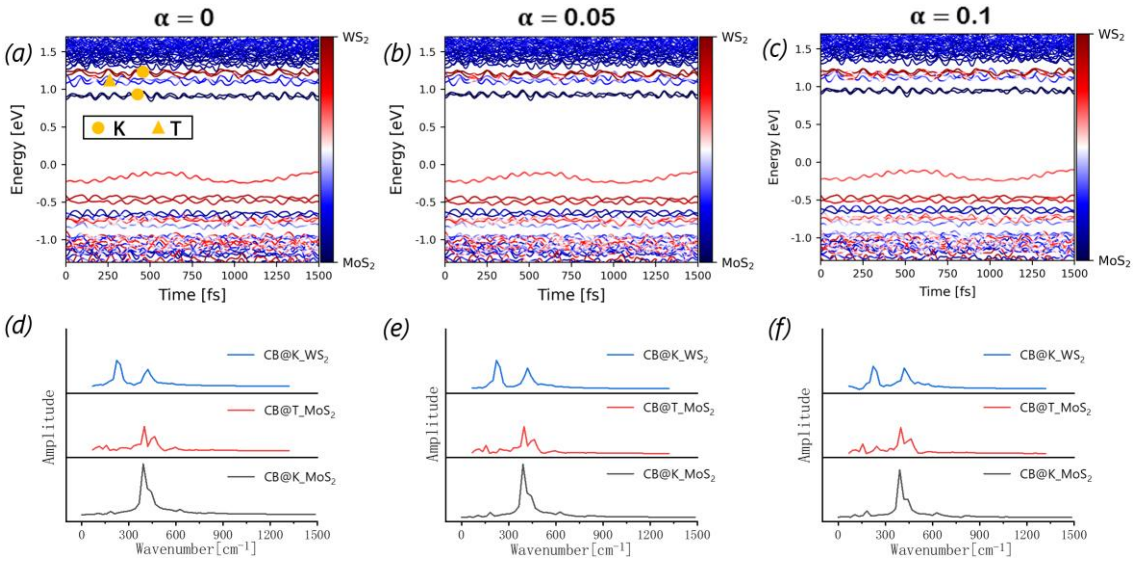

图 S2。能态随时间的演化 导带底附近能态（a-c）及其傅里叶变换谱（d-f）。The 面板 a 中的三角形和圆形表示不同能态的动量。

表 S1。不同光照下 CB@T_MoS_2 的轨道空间分布

	α=0	α=0.05	α=0.1
WS2	22.2%	23.7%	26.3%
MoS2	77.8%	76.3%	73.6%