

相干声子驱动的谷间散射和拉比振荡

作者：writer 来源：科学网

本文原地址：<https://www.iikx.com/news/progress/23889.html>

本文仅供学习交流之用，版权归原作者所有，请勿用于商业用途！

相干声子驱动的谷间散射和拉比振荡。 二维过渡金属硫族化合物因其能带具有多谷结构，赋予了电子谷自由度，因而成为研究多体相互作用的理想平台。作为退谷极化的主要机制，自由电子或束缚激子的谷间散射过程，对理解激发态电子-声子相互作用和谷电子器件的设计和实现都至关重要。目前，对谷间散射的理论和实验研究多基于热平衡态或准平衡态。而超短激光脉冲能够驱动晶格和电子远离平衡状态，体系的超快动力学过程和基本机制仍不明确。

最近，中国科学院物理研究所/北京凝聚态物理国家研究中心表面物理国家重点实验室SF10组博士生王晨宇、刘新豹、陈擎等在王亚娴副研究员、孟胜研究员的指导下，利用组内自主开发的非绝热含时密度泛函分子动力学方法和软件(TDAP)，研究了单层WSe₂中相干声子诱导的激发态电子K→Q的谷间散射过程(图1)，在飞秒时间尺度揭示了非平衡态电声耦合的规律。

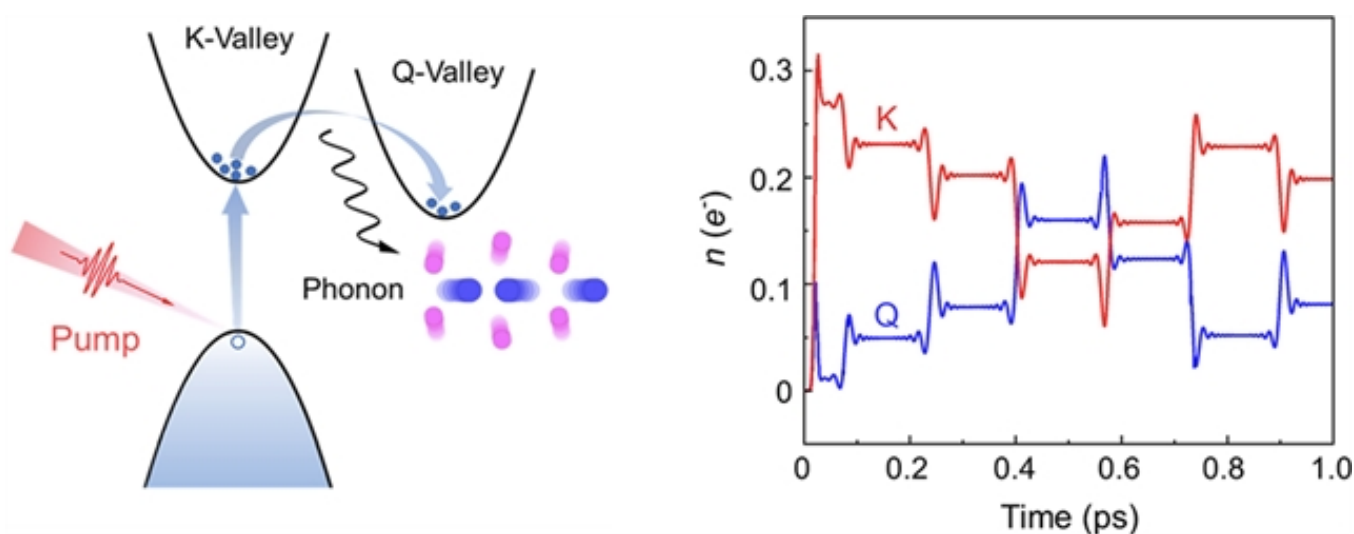


图1. WSe₂中光激发电子谷间散射示意图，及K/Q谷占据数的拉比振荡

研究表明，晶格沿布里渊区边界M点纵波声学声子[LA(M)]的相干振荡，可以诱导占据在K谷的光激发电子转移到较低能级的Q谷，散射过程时间尺度约为400fs，与实验结果相符。但与目前实验中观测到的电子占据数指数型衰减有明显不同的是，相干声子驱动的谷间散射呈现出阶梯式变化的新特征。一方面，谷间散射主要发生在相干声子振幅最小而晶格振动速度最大时；另一方面，电子在K谷散射至Q谷后，观察到由Q谷至K谷的逆散射，类似于周期场驱动下的拉比振荡过程(图1, 2)。这两个特征明显区别于热声子条件依从的费米黄金规则，阐明了非绝热效应的关键作用。这种非绝热电子-声子相互作用在二能级模型中得到了直接印证，即当原子接近平衡位置

时，非绝热耦合矩阵元达到峰值，促进谷间的电子转移，进而诱导出阶梯式的散射过程(图3)。

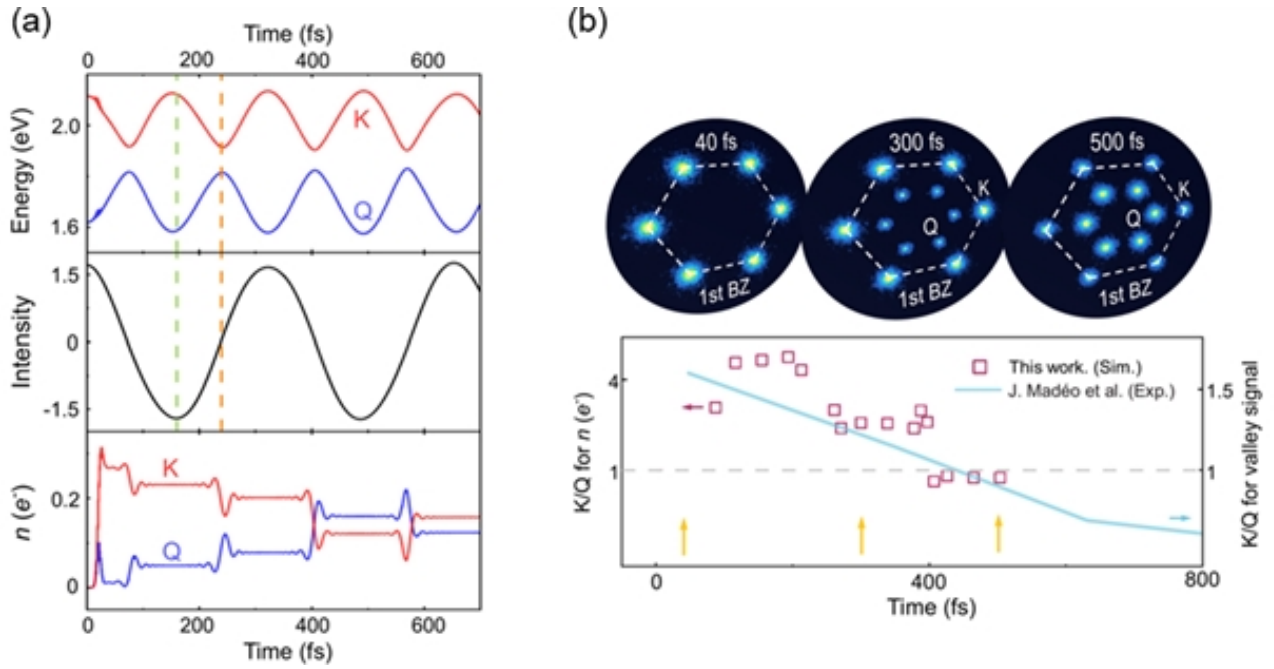


图2. (a) K/Q谷瞬时能级(上)和LA(M)声子的相干振动(中)。K/Q谷上电子占据数的演化。(b) 上图：40, 300, 500fs下模拟K/Q谷上的光发射信号。下图：实验[J. Madeo et al. Science 370, 1199 (2020)]及理论模拟中K谷与Q谷电子信号比值随时间的演化。灰色虚线标定为K谷与Q谷信号相当的临界时间。

图3. (a) 模型(红线)及TDDFT计算(黑线)中K/Q谷瞬时能级的时间演化。(b) 模型计算出的Q谷占据数及非绝热耦合矩阵元(NACME)(蓝色背景)的时间演化。

此外，作者探索了借助相干声子调制谷间散射的通用路径。首先，LA(M)声子振幅增加有利于提高电子K→Q的谷间散射速率;进一步的，借助超快激光脉冲结合声子间的非线性耦合，可以实现对短波LA(M)声子振幅的有效操控(图4)。

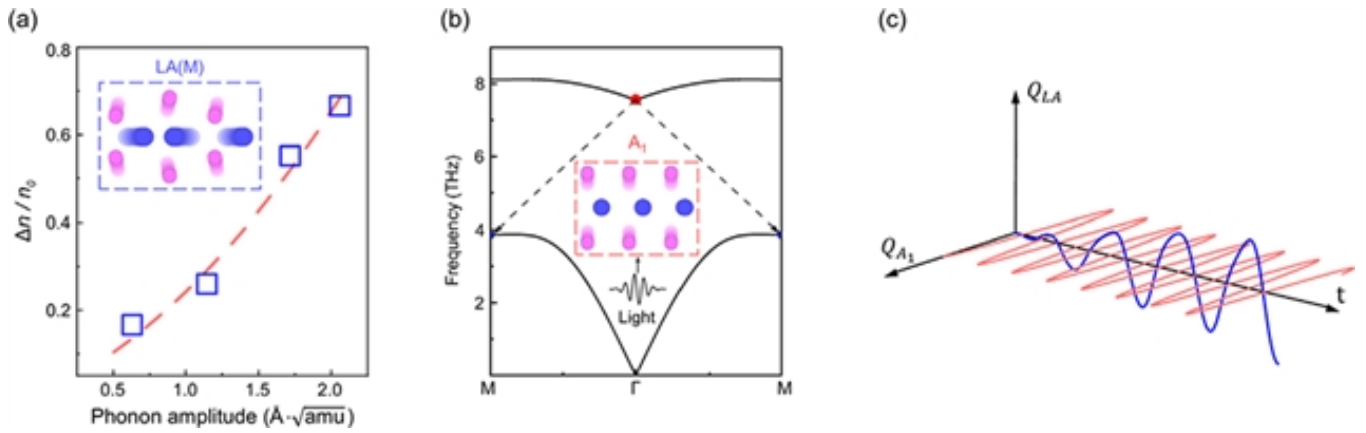


图4. (a) K谷至Q谷散射速率随LA(M)声子振幅的变化。(b) 长波A1声子与短波LA(M)声子间的耦合示意图。(c) A1声子驱动下，LA(M)声子的时间演化。

相关成果以Coherent-phonon-driven intervalley scattering and Rabi oscillation in multivalley 2D materials为题发表在Phys. Rev. Lett. 131, 066401(2023)。该研究得到了科技部重点研发计划、国家自然科学基金委项目、中国科学院的资助。(来源：中国科学院物理研究所)

相关论文信息：<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.131.066401>

作者：王亚娴等 来源：《物理评论快报》

更多 科学进展 请访问 <https://www.iikx.com/news/progress/>

本文版权归原作者所有，请勿用于商业用途，[爱科学iikx.com](https://www.iikx.com)转发