层状半导体材料的拉曼散射理论和实验研究取得进展

作者：writer 来源：中国科学院

本文原地址：https://www.iikx.com/news/progress/32223.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！

层状半导体材料的拉曼散射理论和实验研究取得进展。

拉曼散射是探测材料中元激发（如声子）和电子（激子）-光子、电子（激子）-声子相互作用的重要工具。在声子拉曼散射的量子图像中，入射光子激发一系列中间电子激发态，随后产生或吸收声子并放出能量移动的散射光子。这些中间电子激发态在拉曼散射量子路径中发挥重要作用，决定电子-光子、电子-声子相互作用矩阵元。由于光波长一般大于原子尺度，这些相互作用矩阵元可以用多级展开来估计。

20世纪60年代，英国物理学家R. Loudon保留上述多级近似中的第一项即电偶极近似，建立了基于群论对称性分析的拉曼张量，构成了拉曼选择定则的基础。基于这一近似的层间键极化率模型可以很好地理解超薄层状材料以及具有跨维度电声耦合属性的范德华异质结中层间声子的相对拉曼强度。在超薄层状半导体材料中，实验只能观察到拉曼活性的奇数支层间呼吸声子模，而无法观察到拉曼禁戒的偶数支层间呼吸声子模，这符合基于对称性的拉曼选择定则。在这种图像中，电子-光子矩阵元与光子波矢无关。因此，上述实验结果与激发光的波长无关。近60年来，正如超薄层状半导体材料所揭示那样，基于电偶极近似的理论框架几乎可以理解所有的拉曼散射结果。

中国科学院半导体研究所研究员谭平恒团队利用开发的低至2 cm^{-1} 的超低波数、超高光谱分辨的拉曼光谱技术，探讨了较厚层状半导体材料如WS_2、MoS_2、$MoSe_2$和$MoTe_2$等的层间呼吸声子模式。当激发光与层状半导体材料的C激子能量共振时，实验观察到传统拉曼禁戒的偶数支层间呼吸声子模，其强度受到材料厚度、激发光波长以及材料与衬底间折射率失配度调制。但是，这些实验结果无法通过基于电偶极近似的理论框架来解释。由于体系电子能带结构的复杂性，使得科学家难以分析拉曼散射理论相互作用矩阵元多级展开的高阶项并定性解释实验结果。

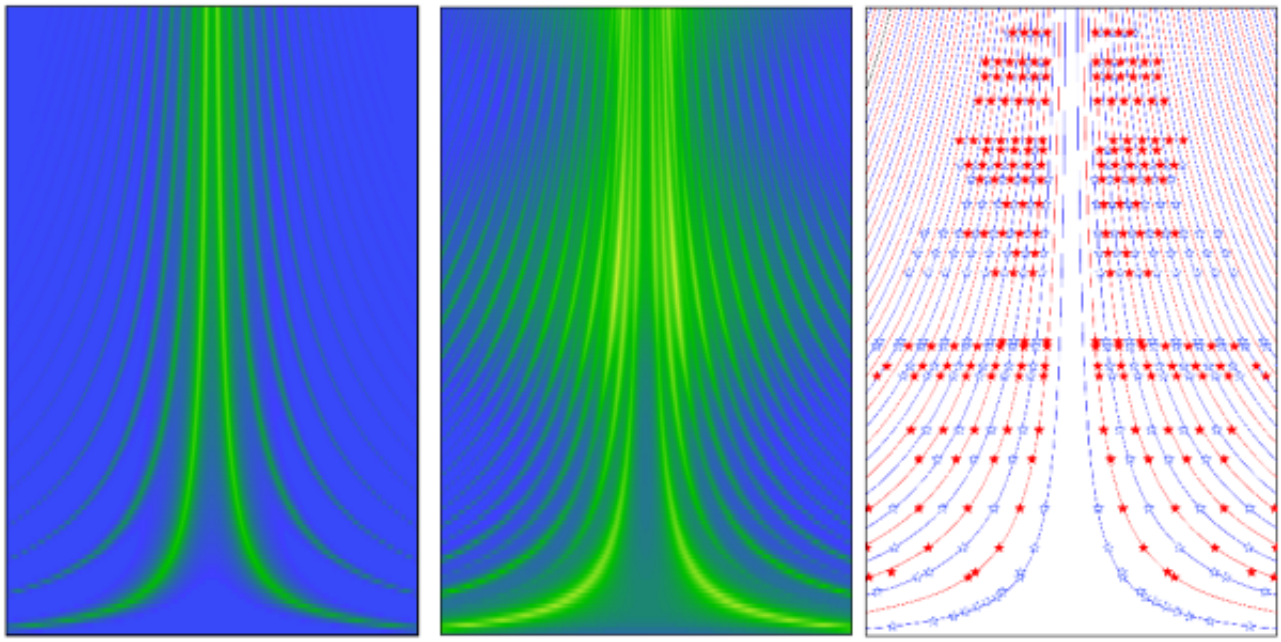
事实上，层状半导体材料层间呼吸模的原子位移场在沿着平面外*c*轴方向所形成驻波，使得层状半导体材料是天然的声子腔。随着层状半导体材料厚度增加，其声子腔的驻波波矢或与光子波矢大小相当。这使得R. Loudon提出电偶极近似理论的前提条件不再

成立，破坏了基于电偶极近似所确定的拉曼选择定则，从而在实验上观察到传统拉曼禁戒的偶数支层间呼吸声子模。层状半导体材料是天然的光学腔，激发光和拉曼信号在材料上下表面多次反射和折射，使得光场强度在空间上沿c
轴将重新分布。上述声子腔和光学腔效应的共同作用，致使空间调制的光子-电子相互作用和电子-声子相互作用，使得层间呼吸声子模的强度受到材料厚度、激发光波长以及材料与衬底间折射率失配度调制。

基于上述理论，该研究进一步提出了包括空间调制光子-电子和电子-声子相互作用的光子-声子耦合空间相干模型，考虑了声子腔驻波波矢与光子波矢的匹配度，以及包含光学腔中光子-电子相互作用和电子-声子相互作用的前向与背向传播分量的空间调制干涉增强和干涉相消效应。这一模型可对层状半导体材料拉曼禁戒声子模的强度与其材料厚度、激发光波长和衬底的依赖性进行定量解释。

该研究阐述了超越基于传统电偶极近似拉曼张量理论之外的全新光子-声子耦合拉曼散射理论，揭示了光子腔和声子腔工程所调控的光子和声子场空间相干性对声子激发的影响与重要性。

近期，相关研究成果入选编辑推荐文章，在线发表在《物理评论快报》上。研究工作得到国家重点研发计划、国家自然科学基金、中国科学院战略性先导科技专项（B类）等的支持。



（左）传统电
偶极近似理论计算的层间呼
吸声子拉曼强度随材料厚度的演化规律；（中）光子-
声子耦合空间相干
模型计算的层间呼吸声子拉曼强度随
材料厚度的演化规律；
（右）实验观察到奇数支（空五星，拉曼允许）和偶数支（实五星，传统理论拉曼禁戒而新理论拉曼允许）层间呼吸声子模

研究团队单位：半导体研究所

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转发