



科研进展

新进展

- 中国科学院半导体研究所的高功率密度光子晶体激光搭载“力箭一号”成功发射
- 半导体所在高效稳定钙钛矿太阳能电池方面取得进展

官方微信



扫描关注中科院半导体所

友情链接



--- 各分院 ---

--- 中科院各研究单位网站 ---

首页 > 新闻动态 > 科研进展

## 半导体所在半导体激子-声子耦合研究中取得系列进展

2022-08-25

中国科学院半导体研究所半导体超晶格国家重点实验室张俊研究员团队在半导体的激子-声子耦合的研究方面取得了一系列进展，相关工作分别以“锰掺杂氧化锌纳米线的多声子过程”（Multiphonon Process in Mn-Doped ZnO Nanowires），“卤化物双钙钛矿中自陷激子介导的高阶拉曼散射”（High-order Raman scattering mediated by self-trapped exciton in halide double perovskite）和“范德华半导体中晶格振动的激光冷却”（Laser Cooling of a Lattice Vibration in van der Waals Semiconductor）为题，在线发表于2022年6月24日的Nano Letters，8月22日的 Physical Review B，和Nano Letters上。

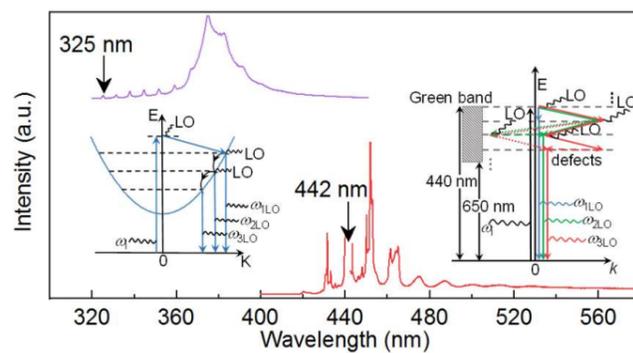


图1 ZnO纳米线中的高阶拉曼散射和热荧光光谱，以及相应的跃迁模型[1]。

多声子过程是理解半导体材料中电子-声子耦合的典型光物理过程，尽管过去已经有一些研究报道过强激子-声子耦合作用的材料（如II-VI半导体硫化镉，碲化锌等）中的多声子过程，但如何从光谱中直接区别高阶拉曼散射和声子参与的热荧光过程仍是一个有争议的问题。通过改变激发光能量与不同的电子态共振，张俊研究员团队在锰掺杂的氧化锌（ZnO）纳米线中观察到高达10阶的拉曼散射过程和11阶声子参与的热荧光过程。他们发现，高阶拉曼散射的强度随阶数呈现指数分布，而热荧光的强度分布可以通过共振因子修正的泊松分布来拟合，二者光谱的频率和线宽也表现出差异，并且可以很好地由跃迁模型来解释。这项工作为理解多声子参与的激发态电子弛豫过程提供了一个范例。2022年6月24日，研究成果以“锰掺杂氧化锌纳米线的多声子过程”（Multiphonon Process in Mn-Doped ZnO Nanowires）为题，在线发表于Nano Letters 22 (13), 5385-5391 (2022)上，张俊研究员为通讯作者，博士研究生来嘉敏为第一作者。该工作得到了半导体所谭平恒研究员的悉心指导与大力支持。

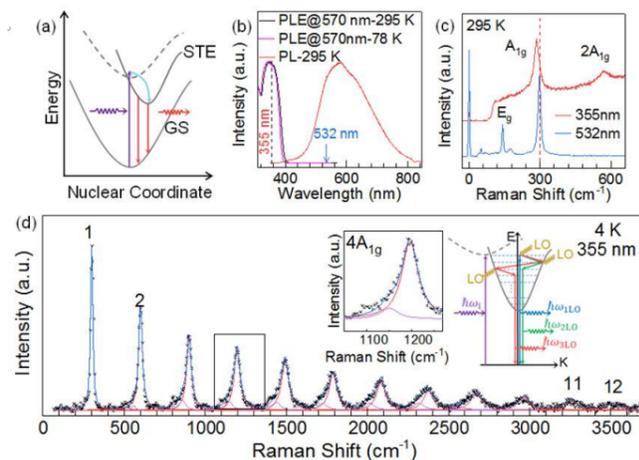


图2 双钙钛矿中的自限态调制的高阶拉曼散射过程[2]。(a)自陷激子形成原理，(b) Cs<sub>2</sub>Ag<sub>0.4</sub>Na<sub>0.6</sub>InCl<sub>6</sub>的荧光和光致荧光激发谱，(c) Cs<sub>2</sub>Ag<sub>0.4</sub>Na<sub>0.6</sub>InCl<sub>6</sub>的拉曼光谱，(d) 4 K下，355 nm激发下的共振拉曼光谱。

此外，他们在双钙钛矿中观察到了自陷态激子介导的高阶拉曼散射。在“软”极性晶格中，由于强电子-声子耦合，激发的电子-空穴对可以被晶格形势捕获，形成自陷激子（STE）。虽然理论上已经预测了STE参与的高阶拉曼散射，但很少有实验报道，尤其是具有高效白光发射的双钙钛矿Cs<sub>2</sub>Ag<sub>0.4</sub>Na<sub>0.6</sub>InCl<sub>6</sub>。4 K下，张俊研究员团队通过共振激发在Cs<sub>2</sub>Ag<sub>0.4</sub>Na<sub>0.6</sub>InCl<sub>6</sub>中观察到高达12阶的高阶拉曼模式。他们提出了由STE介导的高阶拉曼散射的物理图像，可以很好地解释频率和线宽与阶数的线性相关性。随着温度升高，电子-声子耦合的降低归因于高阶散射过程动量守恒的破坏和STE的退局域化。该工作对于双钙钛矿中自限态激子-声子相互作用的理解和激发态衰变过程的研究具有重要的意义。2022年8月22日，研究成果以“卤化物双钙钛矿中自陷激子介导的高阶拉曼散射”（High-order Raman scattering mediated by self-trapped exciton in halide double perovskite）为题，在线发表于Physical Review B 106, 085 205 (2022)上，张俊研究员为通讯作者，博士研究生徐开轩、来嘉敏为共同第一作者。华中科技大学唐江教授和罗家俊博士为本研究

提供了高质量样品。该工作得到了半导体所谭平恒研究员的悉心指导与大力支持，还得到了北京计算科学中心高世武教授和吴盛祥博士的帮助。

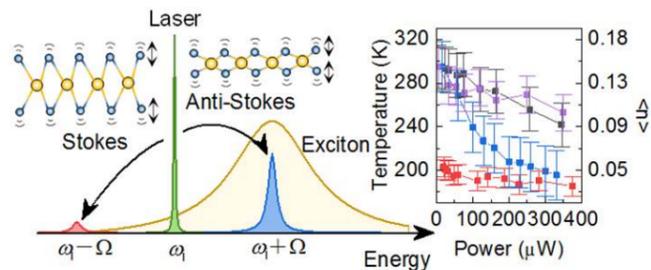


图3 二硫化钨 ( $WS_2$ ) 中的光学声子的冷却原理图及实验得到的激发光功率依赖的声子温度和占据数[3]。

电子-声子耦合对于调控声子态也具有重要作用。在过去近一百年中，激光冷却技术在原子热运动和分子振动、转动的冷却和调控方面已取得了重要的进展。在固体中，原子密度达到 $10^{23}/\text{cm}^3$ ，热能以原子集体振动（即声子）的形式储存在晶格中。声子辅助的上转换荧光可以将低能的激发光转换为高能的荧光发射，并伴随声子湮灭，因此可以实现整个样品的冷却。单个声子模式的冷却对于基于声子的量子调控技术具有重要意义。早在1975年诺贝尔奖得主David Wineland和Hans Georg Dehmelt提出可分辨边带拉曼冷却，1978年David Wineland在实验中实现了束缚离子的振动态的边带拉曼冷却。所谓可分辨是指，电子（或激子）能级的线宽小于声子频率，在吸收声子发生上转换发光的过程中，可以选择性地使某个声子被湮灭（或产生），而不影响其他声子的布居。边带拉曼冷却技术也被广泛应用于微腔光力体系，对光力谐振子的声学振动进行冷却和放大（加热），实现量子相干态和压缩态的制备等。继2016年在碲化锌（ZnTe）纳米带中利用激子-声子耦合首次实现了对单个光学声子的冷却之后，张俊研究员团队首次将单个光学声子模式的冷却推广至二维范德华（vdW）半导体。二维vdW材料由于维度降低，静电屏蔽效应等，表现出强的激子-声子耦合，其中过渡金属二硫族化合物由于谷偏振、自旋-轨道耦合等提供了多种调控维度，是研究电子-声子耦合的理想平台。他们通过改变激发光能量或者变温调节激子能量的方法，来调节入射光（ $\omega_0$ ）和激子（ $\omega_{\text{exciton}}$ ）之间的失谐 $\Delta = \omega_0 - \omega_{\text{exciton}}$ 情况。当激发光相对激子能量从蓝失谐（ $\Delta > 0$ ）变化到红失谐（ $\Delta < 0$ ）时，拉曼散射的能流方从Stokes散射大于anti-Stokes散射（即产生声子>吸收声子）变为Stokes散射小于anti-Stokes散射（即产生声子<吸收声子），说明可以实现声子的加热和冷却。红失谐情况下，改变激发光功率，实现了少数层 $WS_2$ 中单个光学声子模式的净冷却。他们的结果打开了激光冷却和控制范德华半导体中的单个光学声子的可能性，并且拉曼冷却机制为突破反斯托克斯荧光上转换激光制冷机制对极高荧光量子效率要求的限制来实现宏观样品的新型光学制冷提供了新的思路。2022年8月22日，研究成果以“范德华半导体中晶格振动的激光冷却”（Laser Cooling of a Lattice Vibration in van der Waals Semiconductor）为题，在线发表于Nano Letters(2022) DOI: 10.1021/acs.nanolett.2c02240上，张俊研究员为通讯作者，博士研究生来嘉敏为第一作者。该工作得到了半导体所谭平恒研究员的悉心指导与大力支持。

上述研究工作得到了国家重点研发计划，国家自然科学基金，中科院创新交叉团队和中科院战略先导项目的经费支持。

论文原文链接:

- [1] Lai, J.-M., Farooq, M. U., Sun, Y.-J., Tan, P.-H. & Zhang, J. Multiphonon Process in Mn-Doped ZnO Nanowires. Nano Lett. 22, 5385-5391 (2022). <https://doi.org/10.1021/acs.nanolett.2c01428>
- [2] Xu, K.-X.; Lai, J.-M.; Gao, Y.-F.; Song, F.; Sun, Y.-J.; Tan, P.-H. & Zhang, J. High-order Raman scattering mediated by self-trapped exciton in halide double perovskite. Phys. Rev. B 106 (2022). <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.106.085205>
- [3] Lai, J.-M., Sun, Y.-J., Tan, Q.-H., Tan, P.-H. & Zhang, J. Laser Cooling of a Lattice Vibration in van der Waals Semiconductor. Nano Lett. (2022). <https://doi.org/10.1021/acs.nanolett.2c02240>

## 关于我们



下载视频观看

## 联系方式

### 通信地址

北京市海淀区清华东路甲35号（林大北路中段）北京912信箱 (100083)

### 电话

010-82304210/010-82305052(传真)

### E-mail

semi@semi.ac.cn

### 交通地图

## 友情链接

中华人民共和国科技部

中国科学院

中国工程院

国家自然科学基金委员会

中国科学院大学

中国科学技术大学

中国科学院科技产业园



版权所有 中国科学院半导体研究所

备案号: 京ICP备05085259-1号 京公网安备110402500052 中国科学院半导体所声明

