

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、陈擎等在王亚娟研究员、孟胜研究员的指导下，利用组内自主开发的非绝热时密度泛函分子动力学方法和软件 (TDAP)，研究了单层 WSe_2 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。

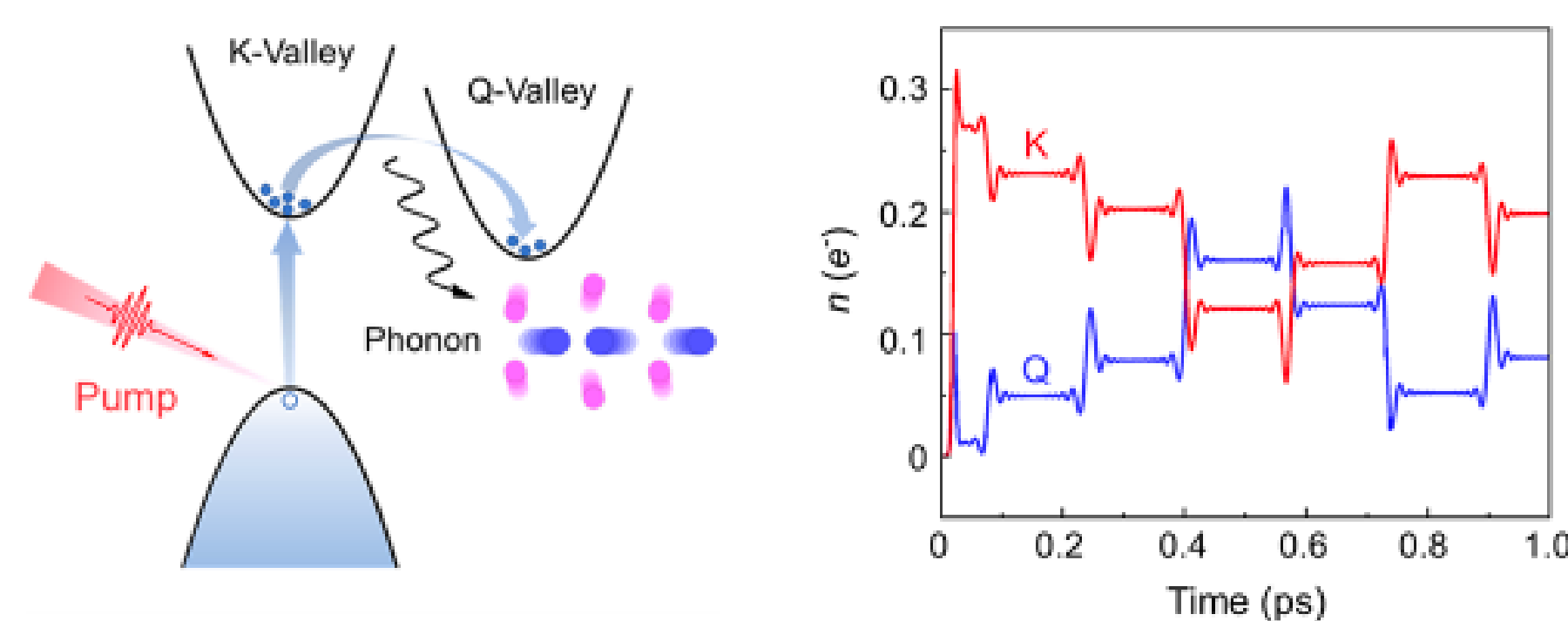


图1. WSe_2 中光激发电子谷间散射示意图，及K/Q谷占据数的拉比振荡

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”变化的新奇特征。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，进而诱导阶梯式的散射过程 (图3)。

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)。

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。

文章链接: <https://journals.aps.org/prl/abstract/10.1103/PhysRevLett.131.066401>

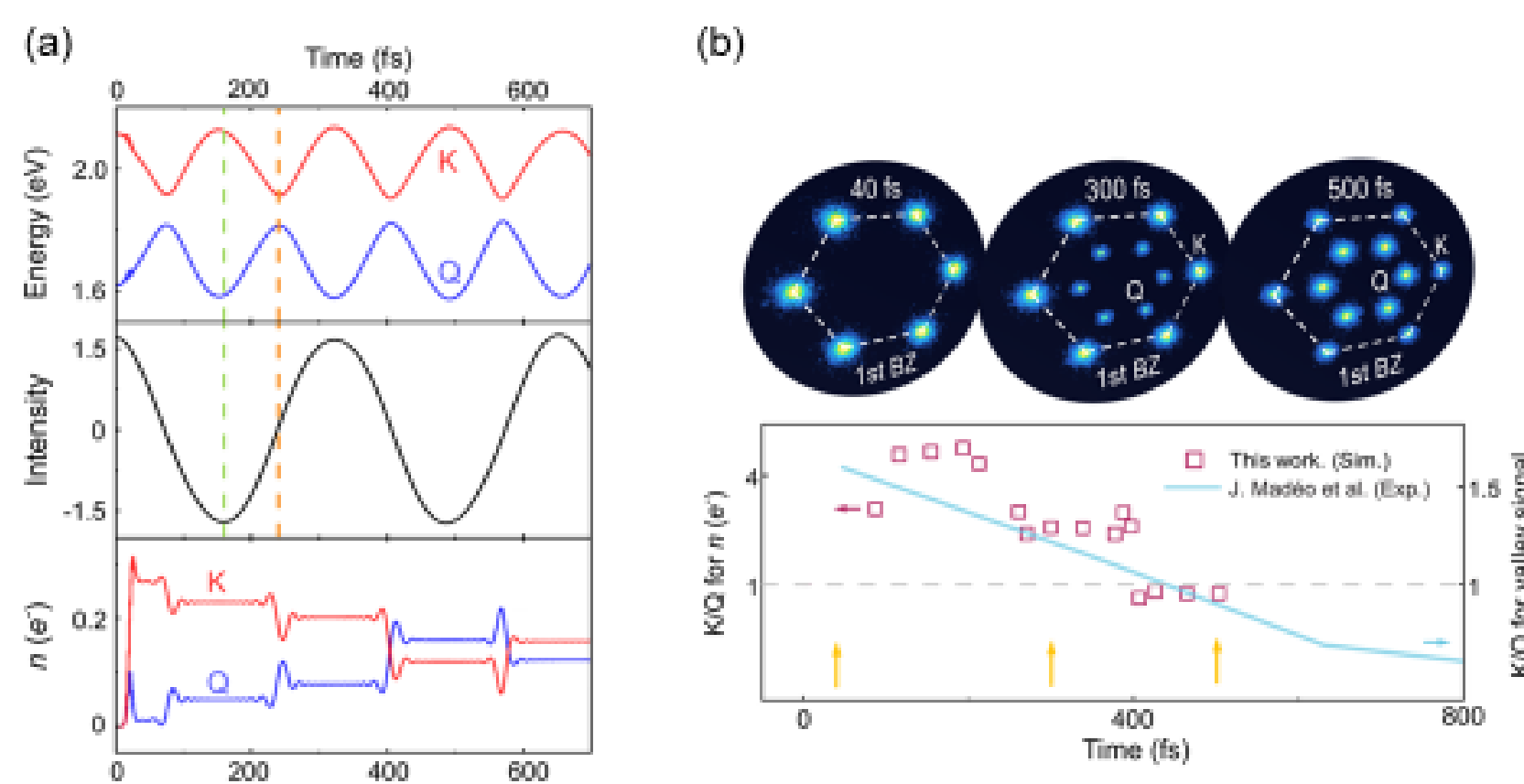


图2. (a) K/Q谷瞬时能级(上)和LA(M)声子的相干振动(中)。K/Q谷上电子占据数的演化。(b) 上图: 40, 300, 500fs下模拟K/Q谷上的光发射信号。下图: 实验[J. Madeo et al. Science 370, 1199 (2020)]及理论模拟中K谷与Q谷电子信号比值随时间的演化。灰色虚线标定为K谷与Q谷信号相当的临界时间。

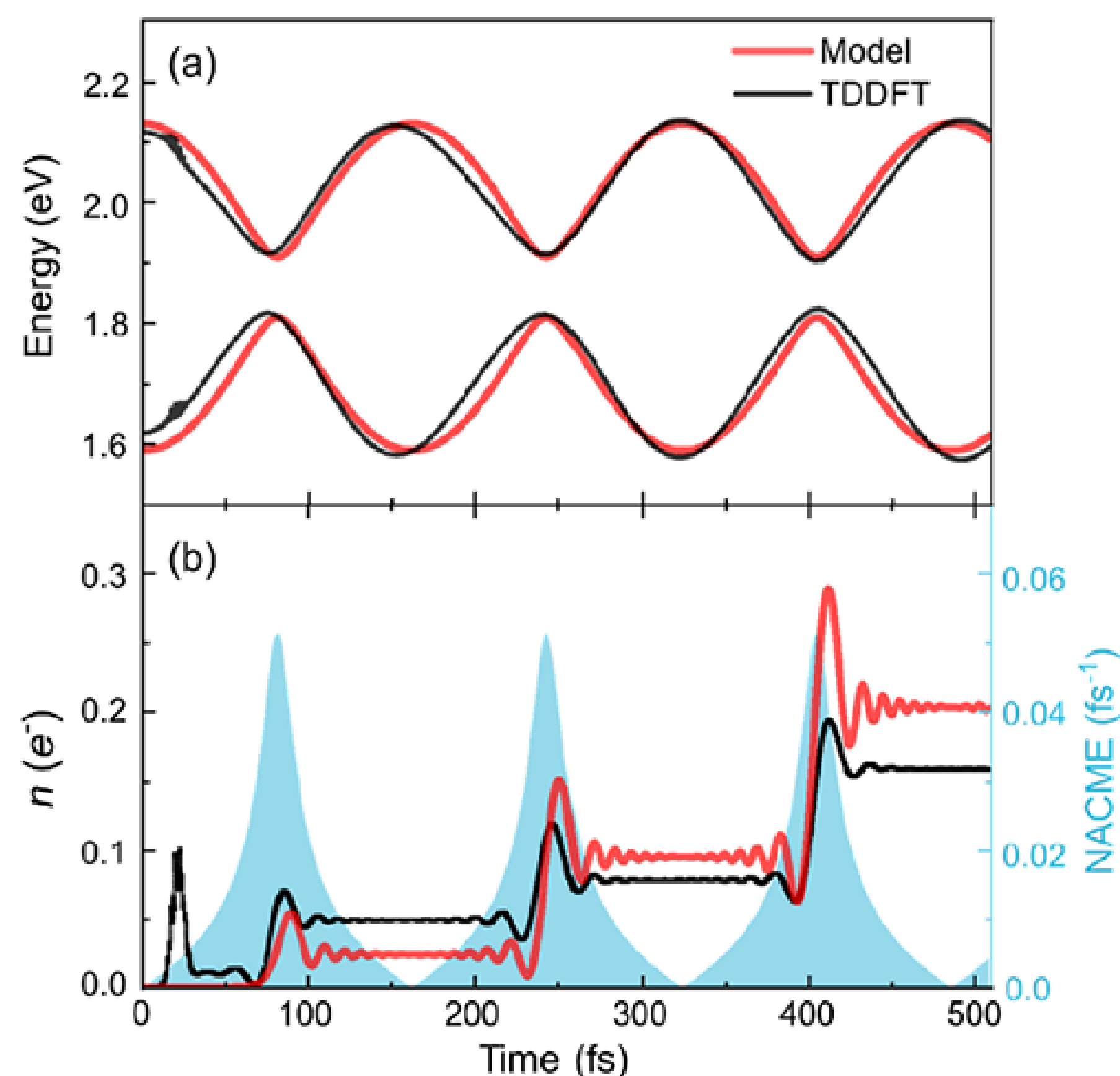


图3. (a) 模型 (红线) 及TDDFT计算 (黑线) 中K/Q谷瞬时能级的时间演化。(b) 模型计算出的Q谷占据数及非绝热耦合矩阵元(NACME) (蓝色背景) 的时间演化。

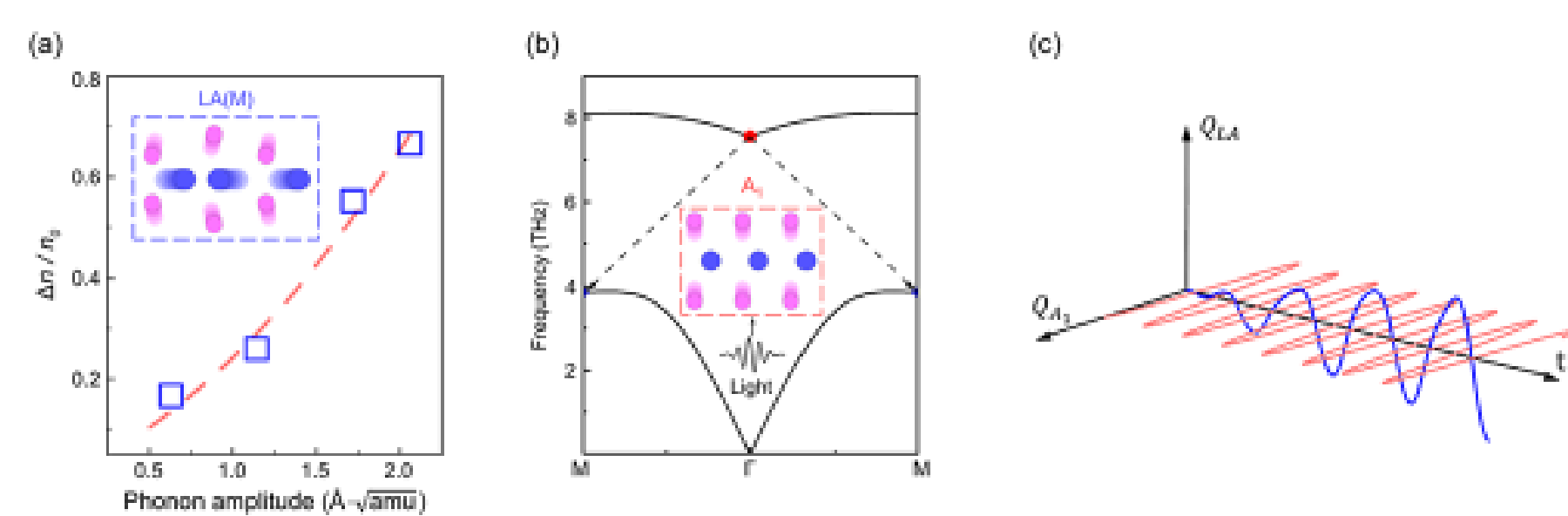


图4. (a) K谷至Q谷散射速率随LA(M)声子振幅的变化。(b) 长波 A_1 声子与短波LA(M)声子间的耦合示意图。(c) A_1 声子驱动下，LA(M)声子的时间演化。

PhysRevLett.131.066401.pdf

SM_final.pdf