

专题: 高压下的光电物性调控与原位表征

高压偏振拉曼光谱及其应用*

王泽瑜[#] 刘静仪[#] 王扬斌 王梦涵 李敬业 晏成熙 雷力[†]

(四川大学原子与分子物理研究所, 成都 610065)

(2025 年 10 月 12 日收到; 2025 年 11 月 10 日收到修改稿)

高压偏振拉曼光谱 (high-pressure polarized Raman spectroscopy, HPRS) 是一种能够定量提取拉曼张量元随压力变化的光谱表征方法. 通过调整金刚石对顶砧 (DAC) 的入射光与散射光的偏振方向, 测量角度依赖的高压拉曼光谱强度. 本文构建了一种基于 DAC 的原位偏振拉曼装置, 在背散射配置中引入半波片, 选取单晶 Si(100) 和二维薄片 Te(110) 为研究对象, 实现样品静止条件下的偏振角连续扫描. HPRS 分析显示, Si(100) 的 F_{2g} 拉曼活性模的拉曼张量元在低于 12 GPa 压力下呈反比例函数式减小, 反映了 Si 在无相变前提下的非线性压力响应; Te(110) 的面内各向异性随压力的增加而增强且部分模偏离理想形式, 其中 A_1 拉曼活性模的张量元比值 b/c 在约 1.5 GPa 附近出现由降转升的拐点, 与基于输运实验测量的电子结构相变点相近 (约 2 GPa). 本研究构建了 HPRS 原位测量与分析框架, 实现了从基准体系验证到物质的应用, 表明 HPRS 对微弱对称性扰动与电子结构重排的灵敏响应, 为判断物质在高压下的电极化性、键合特性等提供直接、量化的证据补充.

关键词: 高压偏振拉曼, 拉曼张量元, 电子结构相变**DOI:** 10.7498/aps.75.20251382**CSTR:** 32037.14.aps.75.20251382

1 引言

金刚石对顶砧 (diamond anvil cell, DAC) 高压技术与激光拉曼光谱结合的高压拉曼光谱已成为在高压下研究材料晶格动力学和结构相变不可或缺的手段^[1-6]. 然而, 通常高压拉曼在实验中以非偏振采集为主^[7-11], 使得与晶体对称性和面内各向异性密切相关的拉曼张量信息难以直接获取与定量解析. 获取张量信息对于理解材料的键合特性、电子极化率以及电子-声子耦合至关重要, 尤其在高压诱导的对称性变化过程中, 为识别对称性降低、选择定则演化与相变先兆提供定量判据.

将偏振分辨能力集成到高压拉曼装置中, 面临着几个突出的技术挑战. 在实验中固定并标定样品

晶面取向, 确保测量过程中样品保持静止、避免微倾或转动引发的选择定则漂移, 是进行定量对比和可靠数据分析的前提. 同时, 在 DAC 的密闭空间中, 固定并标定样品晶面取向, 维持近似静水压环境, 以避免微倾与应力各向异性造成的选择定则与强度漂移并非易事; 此外, 对于信号微弱且尺寸微小的样品, 如何在高压环境中获得高质量的角分辨信号, 并对张量元进行提取, 一直是该领域的关键问题.

高压偏振拉曼光谱 (high-pressure polarized Raman spectroscopy, HPRS) 是定量提取拉曼张量元随压力变化的一种光谱表征方法. 通过调整 DAC 中入射光与散射光的偏振方向, 测量角度依赖的高压拉曼光谱强度. HPRS 对微弱对称性扰动与电子结构重排的灵敏响应, 为判断物质在高压下

* 国家自然科学基金 (批准号: 12374013) 和中央高校基本科研业务费专项资金 (批准号: 2020SCUNL107) 资助的课题.

[#] 同等贡献作者.

[†] 通信作者. E-mail: lei@scu.edu.cn

的电极化性、键合特性以及细微电子结构提供直接、可量化的证据补充. 近年已有多项 HPRS 工作开展, 既包括离散角度的步进式旋转^[12], 也有基于半波片/样品转台的连续角度扫描^[13]; 部分研究还给出了角度标定与强度归一化策略^[14]. 尽管如此, 现有 HPRS 研究多聚焦于各向异性 (多为范德瓦耳斯层状) 材料的静态表征, 如黑磷 (BP)^[15], ReSe_2 ^[16], ReS_2 ^[13], WTe_2 ^[17], MoTe_2 ^[18] 和 InSe ^[19] 等主要强调面内张量构型与角分布的描绘; 对压致相变及其对称性演化的连续张量定量分析的研究相对匮乏.

基于以上背景, 本文系统地梳理了基于 DAC 的 HPRS 的实现思路与应用. 首先概述背散射平行/垂直配置 (vertical-vertical/vertical-horizontal, VV/VH) 几何与旋转半波片等偏振控制方案, 讨论样品取向与角度标定等关键环节; 随后总结角分辨采集、选择定则与张量表达的常用解析流程. 在材料维度, 以高对称性的单晶 $\text{Si}(100)$ 和低对称性的层状各向异性材料二维碲 $\text{Te}(110)$ 为代表, 归纳随压力演化的张量特征与判据. 通过上述梳理与对比, 旨在为高压下材料对称性、各向异性及相关物性的定量研究构建一套可复用的测量与数据分析的框架, 为判断材料在压力下的对称性演化、各向异性以及细微电子结构重排提供直接、可量化的证据补充.

另外本文所述 HPRS 主要适用于取向已知的单晶与取向良好的层状样品, 可在背散射 VV/VH 等配置下定量提取张量元随压强的演化. 对于随机取向的多晶样品, 探测光斑往往同时覆盖多个取向各异的晶粒, 测得的是不同取向贡献的角度平均结果, 选择定则易被弱化、偏振对比显著降低, 难以直接反演张量元. 本文后续实验与解析均据此范围展开.

2 研究方法

2.1 HPRS 实验

HPRS 实验在四川大学极端条件光谱平台 (ESL) 上完成. 高压实验采用的 DAC 砧面直径为 $500\text{ }\mu\text{m}$. 将 $250\text{ }\mu\text{m}$ 厚的 T-301 不锈钢片预压至 $40\text{ }\mu\text{m}$ 左右作为封垫, 在垫片中央激光切割出 1 个直径约 $200\text{ }\mu\text{m}$ 的圆形样品腔. 实验样品为晶面 (100) 的单晶 Si 薄片和晶面 (110) 的二维 Te 薄片.

光谱平台采用 532 nm 固态激光器 (RGB Nova Pro, 300 mW) 作为激发光源, 激光光斑大小约 $5\text{ }\mu\text{m}$. 共聚焦拉曼光谱系统采用成像光谱仪 (Andor SR-303i-B) 与电子增益 EMCCD (Andor DU970P-UVB). 采用体积比为 4:1 的甲-乙醇混合溶液 (M/E) 作为传压介质, 样品腔压力利用红宝石 R_1 线荧光峰位^[20] 进行标定.

实验装置如图 1(a) 所示, 起偏器与一块真零级二分之一波片 ($\lambda/2$ plate) 被放置于入射光路中, 起偏器用于确定入射光偏振方向; 半波片用来改变入射光偏振方向与样品晶轴之间夹角^[21]; 检偏器位于散射光收集光路中用于调整散射光的偏振方向, 当散射光偏振方向与入射光相同时为 VV 配置, 当散射光偏振方向与入射光垂直时为 VH 配置. 在本实验的背散射 VV 配置下, 沿 $\mathbf{k}_i$ 方向传播的线偏振光通过 DAC 的透明光学窗口照射到样品表面, 通过旋转半波片可以同时等效改变入射光的偏振方向 $\mathbf{e}_i$ 、散射光的偏振方向 $\mathbf{e}_s$ 与样品晶轴之间的夹角 θ (图 1(b)).

2.2 理论推导

由于单晶 $\text{Si}(Fd\bar{3}m)$ 在常压下的布里渊区 Γ 点一阶 F_{2g} 拉曼峰 (约 520 cm^{-1})^[22,23] 稳定且线宽窄 (图 1(c))、张量结构简单清晰, 常用于拉曼峰位校准标样. 同时在静水压压缩下其线性介电张量仍可视为各向同性^[24], 样品本征线性双折射可忽略, 便于严格对应实验几何与解析表达式. 因此, 本文以 (100) 晶面单晶 Si 为例进行选择定则与拉曼强度解析式的推导.

在非共振一阶拉曼散射近似下, 散射强度 I 可写为^[25]

$$I \sim |\mathbf{e}_s^T \mathbf{R} \mathbf{e}_i|^2, \quad (1)$$

其中 $\mathbf{R}$ 表示拉曼张量, $\mathbf{e}_i$ 与 $\mathbf{e}_s$ 分别为入射光与散射光的归一化偏振向量. 对于空间群 $Fd\bar{3}m$ 的 Si, Γ 点唯一的一阶拉曼活性模 F_{2g} 的张量在单位晶格坐标系中等价, 可写成一个 3×3 的矩阵^[26]:

$$\mathbf{R}_{F_{2g}}^{(x)} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & ae^{i\varphi_1} \\ 0 & ae^{i\varphi_2} & 0 \end{pmatrix}, \mathbf{R}_{F_{2g}}^{(y)} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & ae^{i\varphi_3} \\ 0 & 0 & 0 \\ ae^{i\varphi_4} & 0 & 0 \end{pmatrix},$$

$$\mathbf{R}_{F_{2g}}^{(z)} = \begin{pmatrix} 0 & ae^{i\varphi_5} & 0 \\ ae^{i\varphi_6} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}, \quad (2)$$

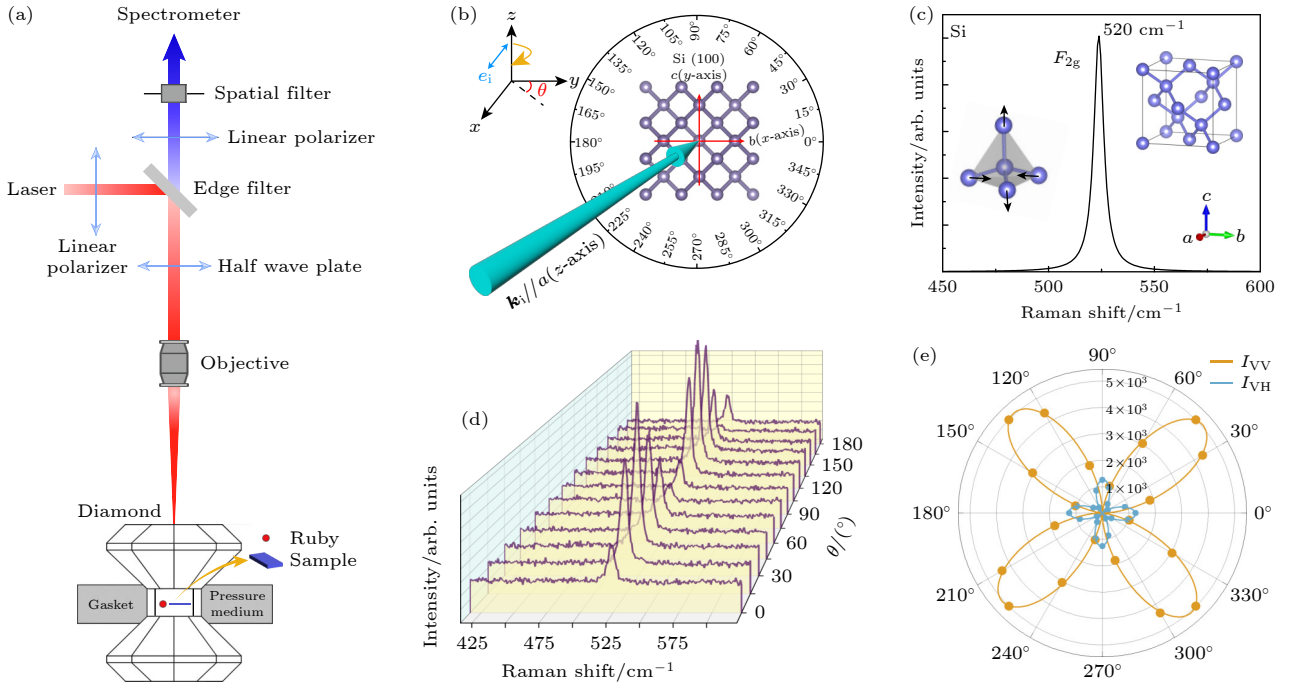


图 1 (a) 基于 DAC 的 HPRS 光路示意图; (b) 基于 Si(100) 的偏振拉曼测试的几何构型示意图; (c) Si 常压下 F_{2g} 拉曼峰、晶格结构及其拉曼振动模; (d) Si 常压下部分连续偏振角度的拉曼谱; (e) Si 常压下的 VV 与 VH 配置的偏振极坐标图

Fig. 1. (a) Schematic diagram of the HPRS experimental optical path based on DAC; (b) schematic diagram of the geometric configuration for polarization Raman testing based on Si(100); (c) Raman peak, lattice structure, and their Raman vibration mode F_{2g} of Si under normal pressure; (d) Raman spectra of Si at ambient pressure with partially continuous polarization angles; (e) polarization plots of VV and VH configurations of Si at ambient pressure.

其中 a 代表拉曼张量分量的振幅; φ 表示对应拉曼张量元的相位角. 在本研究采用的背散射 VV 配置下, 当入射光沿晶格 z 轴入射时, 偏振向量可分别表示为

$$e_i = \begin{pmatrix} 0 \\ \sin \theta \\ \cos \theta \end{pmatrix}, \quad e_s = \begin{pmatrix} 0 \\ \sin \theta \\ \cos \theta \end{pmatrix}, \quad (3)$$

其中 θ 表示入射光偏振方向与晶格 c 轴的相对偏转角. 根据 (1) 式中对拉曼散射强度的定义, 推导出 F_{2g} 模式的拉曼散射强度表达式为

$$I_{VV} \sim a^2 \sin^2(2\theta)(1 + \cos \Delta\varphi), \quad (4)$$

其中 $\Delta\varphi = \varphi_5 - \varphi_6$. 由于 Si 在本波段可视为无双折射, 因此强度公式可进一步化简为

$$I_{VV} \propto a^2 \sin^2(2\theta). \quad (5)$$

同理, 在背散射 VH 架构下推导出:

$$I_{VH} \propto a^2 \cos^2(2\theta). \quad (6)$$

3 拉曼张量元分析

常压下 Si 属高对称立方晶系 ($Fd\bar{3}m$), 群论分析表明, 其在布里渊区中心的不可约表示为

$\Gamma = F_{2g} + F_{1u}$, 其中仅 F_{2g} 模具有拉曼活性, 在拉曼光谱中对应约 520 cm^{-1} 的特征峰. 首先在常温常压下测量了 Si(100) 的角分辨拉曼强度 (图 1(d)). 在背散射条件下, 分别采用 VV 与 VH 两种偏振配置, 实验极坐标图呈标准四叶瓣分布 (图 1(e)), 其角度依赖与立方晶体 Si(100) 面的解析选择定则完全一致, 分别为 $I_{VV} \propto a^2 \sin^2(2\theta)$ 和 $I_{VH} \propto a^2 \cos^2(2\theta)$ [27].

随后在室温下施加轴向压力并首次测量了 Si 的 HPRS 光谱 (图 2). 由于 Si 在约 12 GPa 发生半导体 Si-I ($Fd\bar{3}m$) $\rightarrow$ 金属 Si-II ($I4_1/amd$) 的结构相变, 一阶拉曼峰显著减弱, 甚至消失 [28]. 因此本文仅探究低压立方相 Si(100) 的极化特性随压力演化关系. 图 2(a) 展示的 Si 在 6 个典型压力点下的偏振极坐标图表明各压力下散点均呈稳定的四瓣分布, 四叶瓣的角位置与周期性保持不变, 并与拟合曲线高度重合. 接着利用 (5) 式对每个压力点下的极坐标图进行解析拟合, 提取表征 F_{2g} 拉曼活性模散射强度的唯一独立拉曼张量幅值 a , 并在图 2(c) 中对拟合值 a 标注了误差棒, 所有数据点的误差范围均很小, 表明了数据的可靠性.

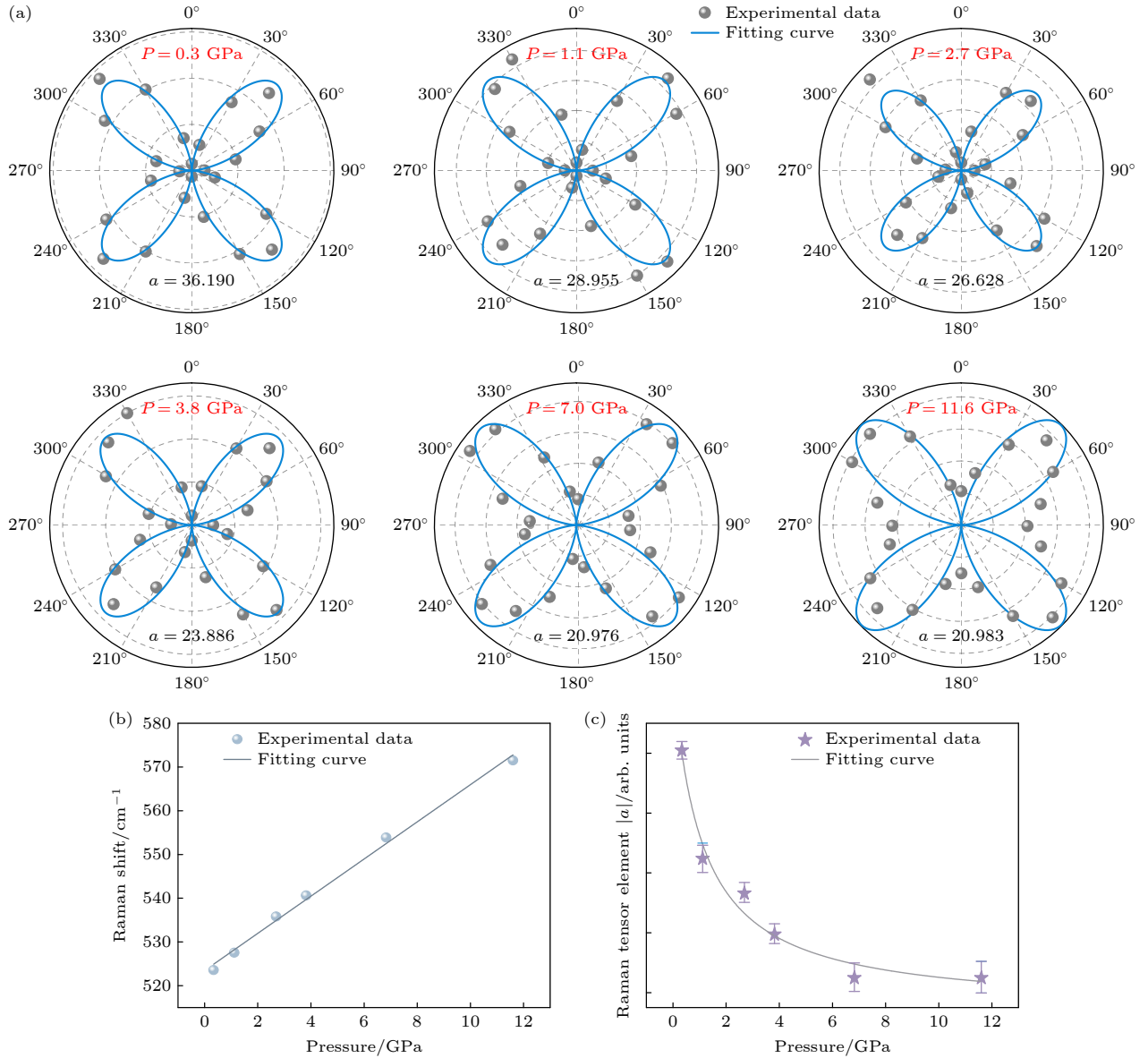


图 2 (a) 背散射 VV 配置下 Si(100) 在不同压强下的偏振极坐标图; (b) Si 一阶拉曼峰峰位随压力的变化, 拟合误差小于图标直径; (c) Si(100) 的拉曼张量元随压力的变化

Fig. 2. (a) Polarized Raman intensity polar plots of Si (100) under different pressures in the backscattering VV configuration; (b) pressure dependence of the first-order Raman peak position of Si, fitting error is smaller than the icon diameter; (c) evolution of the Raman tensor elements of Si (100) with increasing pressure.

为量化 Si 一阶拉曼峰峰位随压力的演化趋势, 采用线性函数 $y = a + b \cdot x$, $a = 523.47 \pm 0.86$, $b = 4.25 \pm 0.15$ 对图 2(b) 中的实验数据进行了拟合 (决定系数 $R^2 > 0.99$), 结果显示其呈近线性蓝移. 为量化 $a(P)$ 的演化趋势, 采用反比例函数 $y = b/(x + a) - c$, $a = 1.09 \pm 0.50$, $b = 24.46 \pm 9.77$, $c = -18.82 \pm 1.45$ 对 0—12 GPa 范围内的实验数据进行了拟合 (决定系数 $R^2 > 0.97$), 如图 2(c) 所示. 表明反比例函数能够准确地描述 $a(P)$ 的演化规律, 显示在无相变前提下的显著非线性压力响

应. 这种现象可从下面公式所含物理量得到一致解释:

$$R_{xy}^j = V_{\text{prim}} \sum_{\mu=1}^N \sum_{l=1}^3 \frac{\partial \varepsilon_{xy}}{\partial r_l(\mu)} \frac{e_l^j(\mu)}{\sqrt{M_\mu}}, \quad (7)$$

其中 M_μ 为第 μ 个原子的质量, $\partial r_l(\mu)$ 表示该原子沿第 l 个方向的振动位移, ε_{xy} 是介电函数, $e_l^j(\mu)$ 则是第 j 声子振动模式下该原子在 l 方向的本征振动分量.

其一, 原胞体积在相变前区间明显压缩^[29], 作为张量表达式中的体积因子直接造成了拉曼张量

元减小; 其二, 极化率导数随压强增大而降低, 这是因为随着 Si—Si 键长缩短与键合刚度提高, 轨道重叠增强使外加微位移对介电函数的有效扰动幅度减弱, 即单位位移诱发的电子极化响应变小^[30], 进而会降低拉曼张量元的大小. 上述因素协同作用, 使得 Si(100) 在低压立方相内, 拉曼张量元随压力增大呈反比例函数减小的总体趋势.

由于拉曼张量直接反映了底层对称性, 反映拉曼模式偏振依赖性的偏振拉曼光谱在识别面内各向异性方面具有独特优势. 面内各向异性是揭示此类材料物理性质与器件潜力的关键. 以二维 Te 为例, 其在消光、光电流响应、光-物质相互作用、热输运以及手性电磁响应等方面均表现出显著各向异性^[31–34]. 因此, 本文将研究对象从各向同性体系拓展至以二维 Te 薄片为代表的各向异性材料. 近年来, 二维材料压致电子能带拓扑结构相变研究的突破性进展, 揭示了 Te 在 2 GPa 附近压力诱导拓扑关系的潜在特征^[35,36], 再次从基础研究和技术的角度强调这种准二维材料的重要研究价值. 尽管角分辨光电子能谱可直接表征外场驱动的拓扑相变, 但其难以在高压腔体中原位实施; 因此, 开发适用于 DAC 的光学手段对于研究面内各向异性及其与电子-声子耦合、拓扑性质之间的耦合至关重要. 目前, 拉曼光谱已用于 Te 纳米片并观测到各向异性散射^[33,37], 但其偏振特性与压力之间的耦合机制尚不清晰.

常压下 Te 的原子结构为由螺旋原子链堆叠形成的六方密堆积晶格结构^[35,38]. 群论分析表明, 其在布里渊区中心的不可约表示为 $\Gamma = A_1 + 2A_2 + 3E$, 其中 A_1 与 E 类模具有拉曼活性, 在拉曼光谱中呈现出 $\sim 109.2 \text{ cm}^{-1}$ 、 $\sim 79.1 \text{ cm}^{-1}$ 与 $\sim 129.4 \text{ cm}^{-1}$ 的特征峰^[39]. 在激发光垂直于 Te (No. 152 $P3_121$) 平面入射的背散射配置下, 各个振动模的拉曼张量为

$$\begin{aligned} \mathbf{R}_{E_1} &= \begin{pmatrix} d_1 e^{i\varphi_{d_1}} & 0 & 0 \\ 0 & -d_1 e^{i\varphi_{d_1}} & f_1 e^{i\varphi_{f_1}} \\ 0 & f_1 e^{i\varphi_{f_1}} & 0 \end{pmatrix}, \\ \mathbf{R}_{A_1} &= \begin{pmatrix} b e^{i\varphi_b} & 0 & 0 \\ 0 & b e^{i\varphi_b} & 0 \\ 0 & 0 & c e^{i\varphi_c} \end{pmatrix}, \\ \mathbf{R}_{F_{2g}} &= \begin{pmatrix} 0 & -d_2 e^{i\varphi_{d_2}} & -f_2 e^{i\varphi_{f_2}} \\ -d_2 e^{i\varphi_{d_2}} & 0 & 0 \\ -f_2 e^{i\varphi_{f_2}} & 0 & 0 \end{pmatrix}. \quad (8) \end{aligned}$$

实验配置、拉曼模与含有拉曼张量元的 $I(\theta)$ 关系式如表 1 所列. 关系式中, I 和 θ 分别为因变量与自变量, 拉曼张量元为系数. 通过拟合实验 $I(\theta)$ 数据, 可以获得拉曼张量元的观测值. 实验所用的样品晶面为 (110), 激光垂直晶面入射. 此时偏振拉曼峰强贡献来源于前两种配置. 在平面入射的背散射 VV 配置下, A_1 振动模的拉曼强度始终为

$$I_{A_1} \propto b^2 \sin^4 \theta + c^2 \cos^4 \theta + 2bc \cos^4 \theta \sin^2 \theta \cos^4 (\varphi_b - \varphi_c). \quad (9)$$

图 3(a)–(c) 显示了压力对各拉曼模拉曼偏振极化关系的影响. 高压下, Te 的偏振拉曼光谱发生了显著变化 (图 3(b) 和图 3(c)). 与此同时, 压力改变了 E 模的对称性, 使其难以用简单三角函数关系直接描述 (图 3(a)), 这与 Te 独特的链状结构极易受到压力影响, 进而发生层间滑移有关^[36,37]. 通过 (9) 式拟合实验 $I(\theta)$ 数据可以获得拉曼张量元 b 和 c 的观测值. 对于 A_1 模, 拉曼张量元 b 和 c 源于 Te 的本征物理量. 从偏振拉曼极化图形描述上看, 它们分别影响了正余弦函数对 $I(\theta)$ 关系的贡献. 因此, 它们的比值是对偏振极化图形状的直观描述, 本质上代表了晶面内的光学各向异性性质.

图 3(d) 展示了 A_1 模的拉曼张量元比值 b/c 随压力变化关系. 在 $\sim 1.5 \text{ GPa}$ 时, 拉曼张量元比值随压力的增大由减小转为增大, 该压力值与 Ideue

表 1 不同实验配置下 Te 的各拉曼振动模的 $I(\theta)$ 关系式. 其中散射光矩阵 $\mathbf{e}_s$ 为入射光矩阵 $\mathbf{e}_i$ 的倒置矩阵
Table 1. Relationship for the $I(\theta)$ of various Raman vibration modes of Te under different experimental configurations. Here, the scattering light matrix $\mathbf{e}_s$ is the inverse matrix of the incident light matrix $\mathbf{e}_i$.

$\mathbf{e}_i$	E_1	A_1	E_2
$\begin{pmatrix} 0 & \sin \theta & \cos \theta \end{pmatrix}$	$ -d_1 \sin^2 \theta + f_1 \sin 2\theta ^2$	$ b \sin^2 \theta + c \cos^2 \theta ^2$	0
$\begin{pmatrix} \sin \theta & 0 & \cos \theta \end{pmatrix}$	$ d_1 \sin^2 \theta ^2$	$ b \sin^2 \theta + c \cos^2 \theta ^2$	$ -f_2 \sin 2\theta ^2$
$\begin{pmatrix} \sin \theta & \cos \theta & 0 \end{pmatrix}$	$ d_1 \cos^2 \theta ^2$	$ b ^2$	$ -d_2 \sin 2\theta ^2$

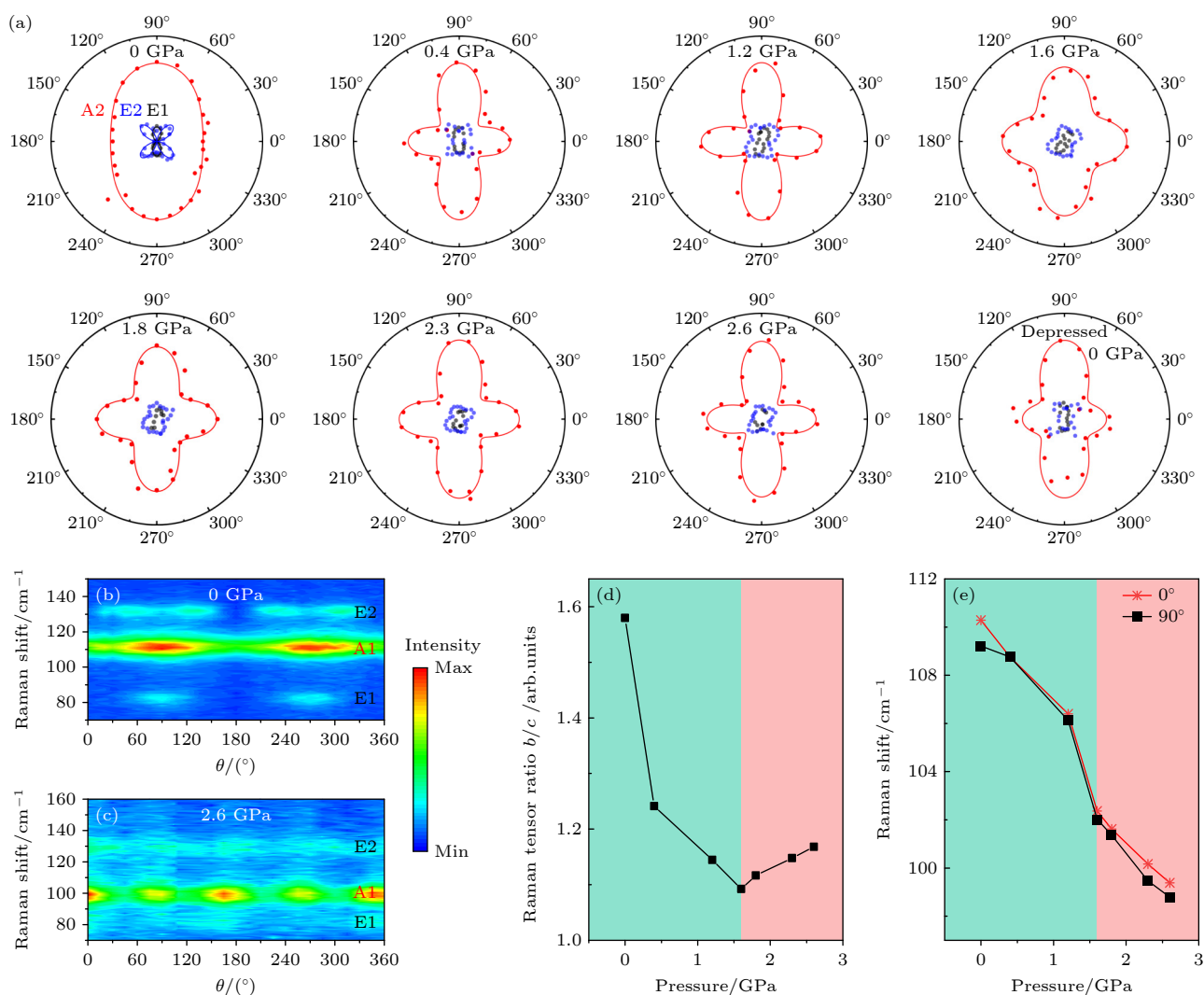


图3 (a) 背散射 VV 配置下 Te(110) 在不同压强下的偏振极坐标图; (b) Te 在 0 GPa 的偏振等高线图; (c) Te 在 2.6 GPa 的偏振等高线图; (d) Te 的 A_1 模拉曼张量元 b 与 c 的比值随压强变化; (e) Te(110) A_1 模的拉曼峰在 0° 和 90° 偏振角度时随压力的变化, 其中, 绿色和红色区域分别表示电子拓扑相变前后状态

Fig. 3. (a) Polarized Raman intensity polar plots of Te (110) under different pressures in the backscattering VV configuration; (b) polarization contour map of Te at 0 GPa; (c) polarization contour map of Te at 2.6 GPa; (d) pressure dependence of the Raman tensor element ratio b/c for the A_1 mode of Te; (e) the variation of Raman peak of Te (110) A_1 mode with pressure at 0° and 90° polarization angles, where the green and red regions indicate the states before and after the electronic topological phase transition, respectively.

等^[35]通过第一性原理计算在 0 K 条件下对 Te 从半导体向拓扑非平庸相转变、临界压力约 2 GPa 的理论预言非常接近. 在理论预测的基础上, Zou 等^[36]以输运实验为主体, 依据 Hall 系数/载流子浓度与温变电阻在 ~ 2 GPa 附近随压强增大的异常行为划定电子结构变化区间, 并在同一压力窗口内观测到 A_1 拉曼活性模的 FWHM 于 ~ 2.2 GPa 出现显著极小值、且在 E_1 拉曼模频率随压力变化的曲线中斜率发生突变, 为拓扑相变的存在提供了实验依据. 另外我们在偏振拉曼峰的压力响应中, 同样观察到 A_1 拉曼活性模在 1.2—1.6 GPa 出现显

著的斜率变化^[39], 如图 3(e) 所示.

4 结 论

本文构建了一套基于 DAC 的 HPRS 装置, 采用旋转半波片法实现样品静止条件的连续角度扫描, 并以极坐标拟合实现拉曼张量元的定量提取. 单晶 Si(100) 和二维薄片 Te(110) 的 HPRS 研究表明, HPRS 可判断材料在高压下的电子结构相变和极化各向异性变化等物性, 是一种有效的高压原位测量方法.

参考文献

- [1] Pu M F, Zhang F, Liu S, Irifune T, Lei L 2019 *Chin. Phys. B* **28** 053102
- [2] Liu S, Tang Q Q, Wu B B, Zhang F, Liu J Y, Fan C M, Lei L 2021 *Chin. Phys. B* **30** 016301
- [3] Wang Y J, Wu B B, Liu J Y, Fang L M, Liu B Q, Lei L 2025 *Spectrosc. Spectr. Anal.* **45** 59 (in Chinese) [王艺佳, 吴彬彬, 刘静仪, 房雷鸣, 刘本琼, 雷力 2025 *光谱学与光谱分析* **45** 59]
- [4] Zhang F, Liu S, Pu M F, Tang Q Q, Wu B B, Li L, Hu Q W, Xia Y H, Fang L M, Lei L 2021 *Spectrosc. Spectr. Anal.* **41** 807 (in Chinese) [张峰, 刘珊, 蒲梅芳, 唐琦琪, 吴彬彬, 李林, 胡启威, 夏元华, 房雷鸣, 雷力 2021 *光谱学与光谱分析* **41** 807]
- [5] Zhang F, Tao Y, Tang Q Q, Wu B B, Liu S, Lei L 2021 *J. Light Scatt.* **33** 40 (in Chinese) [张峰, 陶雨, 唐琦琪, 吴彬彬, 刘珊, 雷力 2021 *光散射学报* **33** 40]
- [6] Tao Y, Liu J Y, Wu B B, Lei L 2022 *J. Light Scatt.* **34** 261 (in Chinese) [陶雨, 刘静仪, 吴彬彬, 雷力 2022 *光散射学报* **34** 261]
- [7] Wu B B, Li Y, Lin Y R, Liu J Y, Tao Y, Chang X, Lei L 2025 *Appl. Phys. Lett.* **126** 112109
- [8] Wu B B, Lin Y R, Li Y, Chang X, Tao Y, Liu J Y, Lei L 2025 *Appl. Phys. Lett.* **126** 102103
- [9] Liu J Y, Tao Y, Fan C M, Wu B B, Tang Q Q, Lei L 2022 *Chin. Phys. B* **31** 037801
- [10] Liu J Y, Tao Y, Fan C M, Wu B B, Lei L 2022 *Chin. J. High Pressure Phys.* **36** 051102 (in Chinese) [刘静仪, 陶雨, 范春梅, 吴彬彬, 雷力 2022 *高压物理学报* **36** 051102]
- [11] Liu J Y, Wu B B, Zhang L L, Chang X, Zhao X Y, Fan C M, Pu M F, Zhou C Y, Wang X L, Lei L 2025 *J. Phys. Chem. C* **129** 9755
- [12] Wen T, Zhang M D, Li J, Jiao C Y, Pei S H, Wang Z H, Xia J 2023 *Nanoscale Horiz.* **8** 516
- [13] Yan Y T, Chen L Y, Hong Z A, Dai K, Li Y F, Jiang K, Zhang Z Y, Dong H L, Shang L Y, Hu Z G 2025 *Phys. Rev. B* **111** 195303
- [14] Antoniazzi I, Woźniak T, Pawbake A, Zawadzka N, Grzeszczyk M, Muhammad Z, Zhao W S, Ibáñez J, Faugeras C, Molas M R, Babiński A 2024 *J. Appl. Phys.* **136** 035901
- [15] Ribeiro H B, Pimenta M A, De Matos C J S, Moreira R L, Rodin A S, Zapata J D, De Souza E A T, Castro Neto A H 2015 *ACS Nano* **9** 4270
- [16] Yan Y T, Chen L Y, Dai K, Li Y F, Wang L, Jiang K, Cui A Y, Zhang J Z, Hu Z G 2023 *J. Phys. Chem. Lett.* **14** 7618
- [17] Song Q J, Pan X C, Wang H F, Zhang K, Tan Q H, Li P, Wan Y, Wang Y L, Xu X L, Lin M L, Wan X G, Song F Q, Dai L 2016 *Sci. Rep.* **6** 29254
- [18] Ma X L, Guo P J, Yi C J, Yu Q H, Zhang A M, Ji J T, Tian Y, Jin F, Wang Y Y, Liu K, Xia T L, Shi Y G, Zhang Q M 2016 *Phys. Rev. B* **94** 214105
- [19] Cheng X R, Huangfu Z B, Wang J B, Zhang H J, Feng S Q, Liang Y F, Zhu X, Wang Z, Wu X W, Yang K 2024 *J. Alloys Compd.* **970** 172636
- [20] Richet P, Xu J A, Mao H K 1986 *J. Geophys. Res. Solid Earth* **91** 4673
- [21] Liu X L, Zhang X, Lin M L, Tan P H 2017 *Chin. Phys. B* **26** 067802
- [22] De Wolf I 1996 *Semicond. Sci. Technol.* **11** 139
- [23] Menendez J, Cardona M 1984 *Phys. Rev. B* **29** 2051
- [24] Nye J F 1985 *Physical Properties of Crystals: Their Representation by Tensors and Matrices* (Oxford: Oxford University Press) pp75–76
- [25] Cardona M, Güntherodt G 1982 *Light Scatt. in Solids II* (New York: Springer-Verlag Berlin Heidelberg) p269
- [26] Mossbrucker J, Grotjohn T A 1996 *Diamond Relat. Mater.* **5** 1333
- [27] Chang Y, Fu D H, Sun M Y, He S S, Qiu W 2022 *Materials* **15** 4616
- [28] Mujica A, Rubio A, Munoz A, Needs R J 2003 *Rev. Mod. Phys.* **75** 863
- [29] Anzellini S, Wharmby M T, Miozzi F, Kleppe A, Daisenberger D, Wilhelm H 2019 *Sci. Rep.* **9** 15537
- [30] Cardona M 1959 *J. Phys. Chem. Solids* **8** 204
- [31] Tong L, Huang X Y, Wang P, Ye L, Peng M, An L C, Sun Q D, Zhang Y, Yang G M, Li Z, Zhong F, Wang F, Wang Y X, Motlag M, Wu W Z, Cheng G J, Hu W D 2020 *Nat. Commun.* **11** 2308
- [32] Yu J, Mu H R, Wang P, Li H Z, Yang Z X, Ren J, Li Y, Mei L Y, Zhang J N, Yu W Z, Cui N, Yuan J, Wu J, Lan S, Zhang G Y, Lin S H 2024 *ACS Nano* **18** 19099
- [33] Duan Y H, Zhao D M, Li Z L, Yu J, Liang Y, Wang Y Y 2025 *J. Appl. Phys.* **137** 024301
- [34] Qiao J, Pan Y, Yang F 2018 *Sci. Bull.* **63** 159
- [35] Ideue T, Hirayama M, Taiko H, Takahashi T, Murase M, Miyake T, Murakami S, Sasagawa T, Iwasa Y 2019 *Proc. Natl. Acad. Sci. U. S. A.* **116** 25530
- [36] Zou B Y, Wang S, Wang Q L, Wang G Y, Zhang G Z, Jiang J L, Cui J, He J R, Xi H Z, Fu H L, Wang Z C, Wang C, Wang Q S, Liu C L 2024 *Appl. Phys. Lett.* **124** 102105
- [37] Li H, Wu K D, Yang S J, Boland T, Chen B, Singh A K, Tongay S, 2019 *Nanoscale* **11** 20245
- [38] Zhao L X, Pei C Y, Wu J F, Zhao Y, Wang Q, Zhu B S, Li C H, Cao W Z, Qi Y P 2023 *Phys. Rev. B* **108** 214518
- [39] Yadav R A, Padma N, Sen S, Chandrakumar K R S, Donthula H, Rao R 2020 *Appl. Surf. Sci.* **531** 147303

SPECIAL TOPIC—High-pressure modulation and in situ characterization of optoelectronic properties

High-pressure polarized Raman device and its applications^{*}

WANG Zeyu[#] LIU Jingyi[#] WANG Yangbin WANG Menghan

LI Jingye YAN Chengxi LEI Li[†]

(*Institute of Atomic and Molecular Physics, Sichuan University, Chengdu 610065, China*)

(Received 12 October 2025; revised manuscript received 10 November 2025)

Abstract

High-pressure polarized Raman spectroscopy (HPRS) is a spectroscopic technique that uses a diamond anvil cell (DAC) as a pressure-generating device to systematically control the polarization directions of both incident and scattered light in order to measure the angular dependence of Raman spectral intensities under different pressures. This enables the quantitative extraction of the pressure evolution of Raman tensor elements. In this study, we develop an *in situ* high-pressure polarized Raman setup based on a backscattering configuration, which includes a half-wave plate that enables continuous variation of the polarization angle without rotating the sample. Quantitative determination of Raman tensor elements is achieved through polar coordinate fitting of the measured intensity profiles. Single-crystal Si (100), commonly used for Raman calibration, and two-dimensional Te (110) flakes exhibiting in-plane anisotropy are selected as model systems for investigation. Our results show that in a pressure range of 0–12 GPa, the angular distribution pattern and periodicity of Si (100) remain unchanged, while the main Raman peak exhibits an approximately linear blue shift as pressure increases. The Raman tensor element related to the active mode decreases according to an inverse power-law function, reflecting the response of the polarizability derivative to volume compression in the absence of phase transition. For two-dimensional Te (110), the in-plane anisotropy increases with the increase of pressure, accompanied by deviations of certain modes from ideal symmetry-predicted behavior. Notably, the ratio of Raman tensor elements exhibits a turning point near 1.5 GPa, transitioning from a decreasing to an increasing trend, with polarized Raman responses clearly changing within a range of 1.2–1.6 GPa range. It is very close to the electronic structure phase transition point determined by transport experiments (about 2 GPa). Overall, studies on single-crystal Si (100) and two-dimensional Te (110) demonstrate that HPRS is a robust *in situ* method for probing symmetry evolution, anisotropic behavior, and incipient electronic rearrangements in materials under compression.

Keywords: high-pressure polarized Raman, Raman tensor, electronic structural phase transition

DOI: [10.7498/aps.75.20251382](https://doi.org/10.7498/aps.75.20251382)

CSTR: [32037.14.aps.75.20251382](https://cstr.cn/32037.14.aps.75.20251382)

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 12374013) and the Fundamental Research Funds for the Central Universities, China (Grant No. 2020SCUNL107).

[#] These authors contributed equally.

[†] Corresponding author. E-mail: lei@scu.edu.cn



高压偏振拉曼光谱及其应用

王泽瑜 刘静仪 王扬斌 王梦涵 李敬业 晏成熙 雷力

High-pressure polarized Raman device and its applications

WANG Zeyu LIU Jingyi WANG Yangbin WANG Menghan LI Jingye YAN Chengxi LEI Li

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 75, 030804 (2026) DOI: 10.7498/aps.75.20251382

CSTR: 32037.14.aps.75.20251382

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.75.20251382>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

二硫化铼的原位高压偏振拉曼光谱

In-situ high pressure polarized Raman spectroscopy of rhenium disulfide

物理学报. 2022, 71(14): 140702 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220053>

高峰值功率Nd:YLF/BaWO₄正交偏振双波长拉曼激光器

High-peak-power orthogonally-polarized dual-wavelength Nd:YLF/BaWO₄ Raman laser

物理学报. 2022, 71(9): 094203 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20211727>

黑磷各向异性拉曼光谱表征及电学特性

Anisotropic Raman characterization and electrical properties of black phosphorus

物理学报. 2021, 70(3): 037801 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20201271>

层数依赖3R相MoS₂的拉曼光谱研究

Layer-dependent Raman spectroscopy study of 3R-phase MoS₂

物理学报. 2025, 74(22): 226301 <https://doi.org/10.7498/aps.74.20251222>

相干布居囚禁振荡与拉曼失谐的关系

Relationship between coherent population trapping oscillation and Raman detuning

物理学报. 2024, 73(2): 024203 <https://doi.org/10.7498/aps.73.20231408>

结合高分辨率X射线光电能谱和拉曼散射研究Ge_xGa₈S_{92x}玻璃结构

Structure of Ge_xGa₈S_{92x} glasses studied by high-resolution X-ray photoelectron spectroscopy and Raman scattering

物理学报. 2023, 72(1): 017101 <https://doi.org/10.7498/aps.72.20221653>