

---

# 超快电荷序形成的激子-声子自放大机制研究获进展

作者：writer 来源：中国科学院

本文原地址：<https://www.iikx.com/news/progress/8004.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！*

在完美晶格中，由于电子与其他集体激发的相互作用，晶格会发生周期性畸变，从而形成电荷密度波(charge density wave)或称电荷序。通常情况下，电荷密度波的形成可能来自于电子费米面嵌套、电声耦合或其他尚未探明的因素。电荷密度波的形成机理仍是凝聚态物理的热点问题，并与超导等量子现象息息相关。

材料中的电子是一个关联体系，有各种复杂的相互作用，蕴含着新型的电荷密度波机理。特别是层状材料二硒化钛( $\text{TiSe}_2$ )中，不仅存在由激子诱导的电荷密度波，而且会在掺杂和应力调制时出现超导态，因此受到了广泛的关注。对其电荷密度波机理的分析研究，既可以为研究“电荷密度波态-超导态”转变提供思路，又为可能存在的激子气体的玻色-爱因斯坦凝聚现象提供研究平台。

然而，在二硒化钛中，激子和声子存在复杂的耦合，现有的研究手段往往会“胡子眉毛一把抓”，无法明确区分二者在电荷密度波形成过程中所起的作用。近些年有人提出，可以用激光使激子和声子“动”起来，然后利用超快技术分别进行研究。由于激子的响应时间短，声子的响应时间长，在时域上就可以清晰地分辨出不同机理所起的作用。然而，超快谱学测量无法同时提供有超快时间分辨和原子级空间分辨的信息，致使二硒化钛中电荷密度波的形成机理仍然存在很多争议。

为解决这一争议，具有原子分辨率的第一性原理量子动力学模拟就体现出其独特优势，但同时又面临诸多挑战。二硒化钛中的电荷密度超快动力学，涉及到光子-电子-声子的相互作用。这几种粒子(准粒子)的响应时间从阿秒( $10^{-18}$ 秒)、飞秒( $10^{-15}$ 秒)到皮秒( $10^{-12}$ 秒)不等，跨度约为6个数量级。因此，模拟既需要精细的时间分辨率，又需要很高的计算效率和数值稳定性。同时，对二硒化钛的精确模拟需要利用到精确的第一性原理计算技术，例如自旋轨道耦合和投影缀加波方法等。这些困难对现有的计算方法提出了多项挑战。

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组的廉超(现为德州大学奥斯汀分校博士后)在研究员孟胜的指导下，利用数年时间，持续编写和测试了完全自主研发的含时密度泛函软件包TDAP，解决了一系列物理问题、效率问题和数值稳定性问题，将其发展为高效、稳定、精确的含时密度泛函模拟工具。利用这一软件包，在孟胜的指导下，廉超与张圣杰、关梦雪、胡史奇合作，对激光激发二硒化钛的超快动力学进行了同时具有超快时间分辨和原子精度空间分辨的第一性原理计算，发现了其电荷密度波形成的激子-声子的

Nature Communications 11, 43 (2020) 上。

在这项研究中，基态的二硒化钛中会出现自发的电荷密度波，如图2所示。激光激发后，其电荷序会瞬间 ( $<10$  飞秒) 被破坏，触发离子向其周期畸变 (periodic lattice distortion) 的反向运动。在较强的激光照射下，甚至可以实现晶格周期畸变的完全反转。这一发现证实了激子对电荷密度波的稳定性起作用。然而，单一的激子作用并不能完全产生电荷密度波：即使在能实现完全的周期畸变反转时，激光本身只能破坏20%而非100%的电荷序。

深入的第一性原理动力学模拟研究表明，传统的电声耦合会和激子机制形成自放大，从而共同形成稳定的电荷密度波，如图3所示。通过设计一个外部热浴对离子运动进行缓慢的退火，可以发现即使退火速度极低，周期畸变的运动也会被完全冻结。这就说明周期畸变的动力学过程对初始阶段的离子运动有着非常敏感的初值依赖：当初始时微小的离子运动被热浴耗散以后，后续的周期畸变的运动将无法发生。周期畸变的恢复和反转，需要“电荷序破坏--离子运动--加剧电荷序破坏--更大幅度的离子运动”这一自放大过程来实现。通过计算能带的含时演化，可以观测到这一过程的时间尺度约为100飞秒，并与含时角分辨电子谱的实验测量能够很好地吻合。这项研究提出了一种凝聚态物质中电荷序形成的新机制，为澄清一直处于争论之中的二硒化钛电荷密度波机理问题提供了新思路。

该工作得到科技部重点研发计划 (2016YFA0300902, 2015CB921001) 和国家自然科学基金委 (11774396, 91850120, 11934004) 的支持。

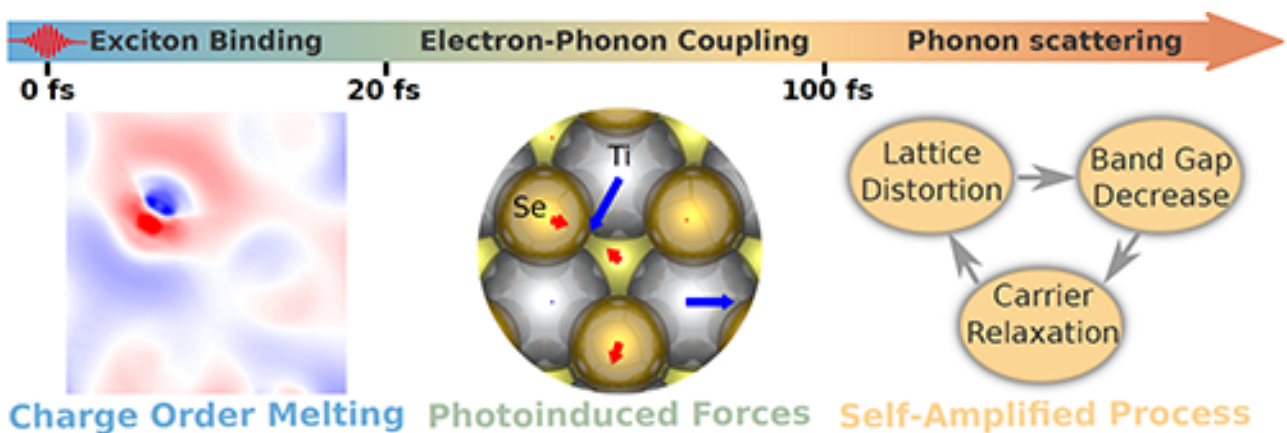


图1. 电荷密度波形成的自放大机制

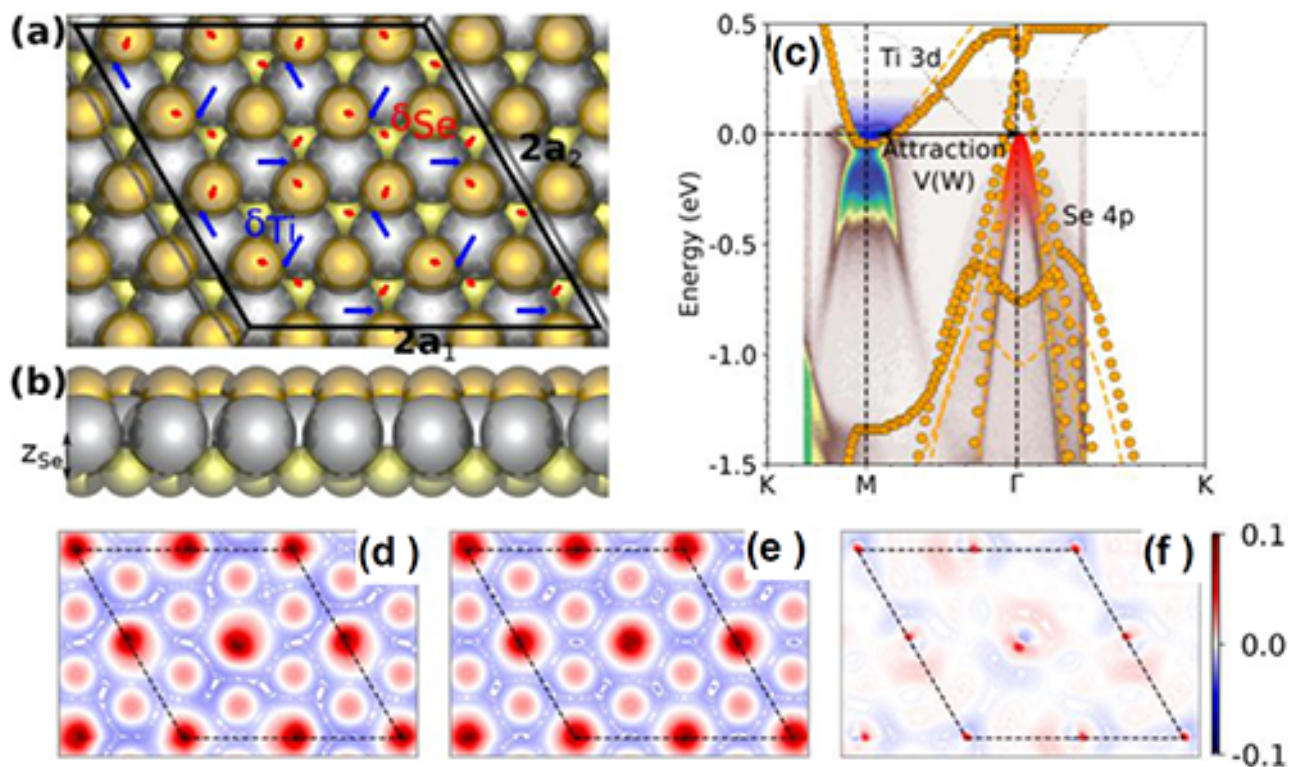
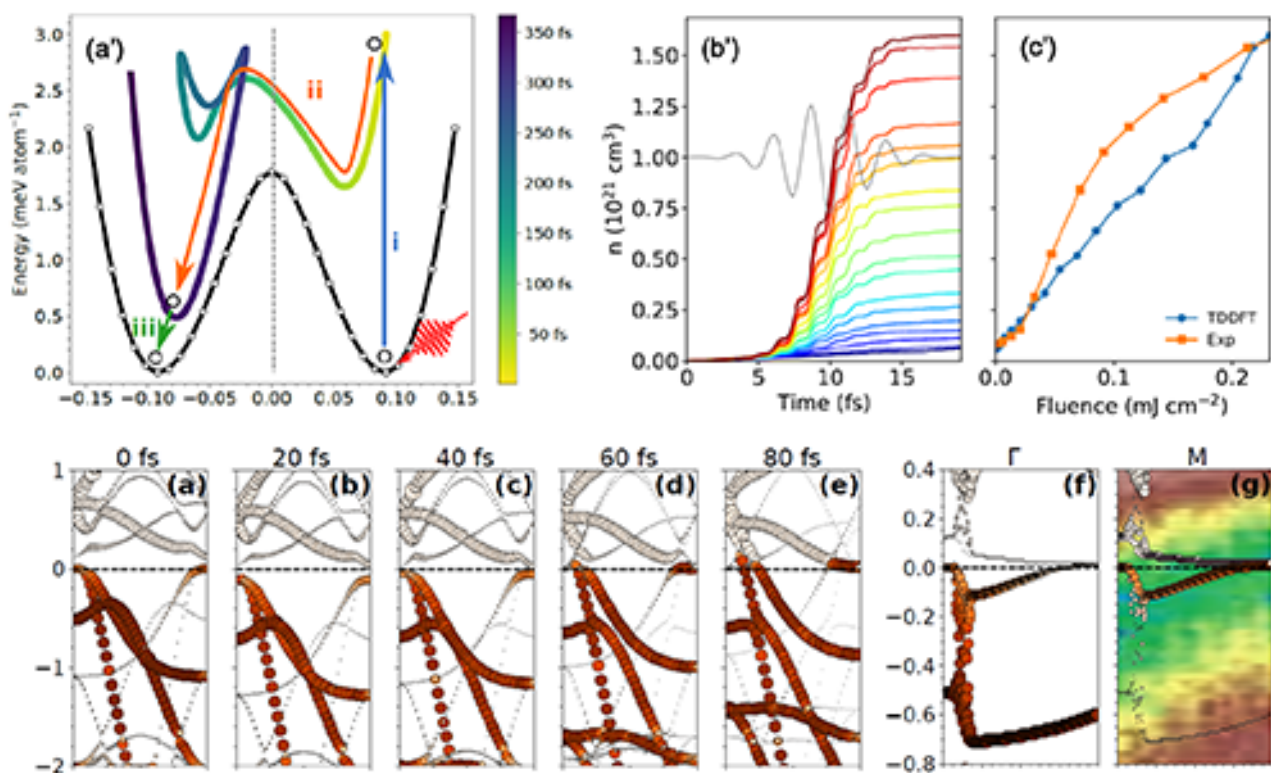


图2. 二硒化钛中的电荷序。(a)和(b)为原子结构图，箭头展示周期晶格畸变的大小和方向。(c)为电荷序形成前的能带图(背景为实验数据)，展示激子吸引效应。(d-f)显示光激发导致的电荷密度变化。(d)图和(e)图分别为考虑和不考虑晶格畸变的情况，(f)为两者之差。红色为得电子，蓝色为失电子。



---

图3. 二硒化钛中的离子势能 (a') 和能带 (a-g) 的含时演化。(b') 为不同激光强度下的载流子数随时间的变化, (c') 为最大载流子数与激光强度的关系 (方块: 实验数据; 圆点: 理论结果)。

研究团队单位: 物理研究所

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](http://www.iikx.com)转发