



强关联电子体系二维相干光谱的理论研究评述

李子龙 万源

**A theoretical survey of two-dimensional coherent spectroscopy in strongly-correlated electronic systems**

Li Zi-Long Wan Yuan

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 70, 230308 (2021) DOI: 10.7498/aps.70.20211556

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.70.20211556>

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

专题: 非平衡量子多体系统

## 强关联电子体系二维相干光谱的理论研究评述\*

李子龙<sup>1)2)</sup> 万源<sup>1)2)3)†</sup>

1) (中国科学院物理研究所, 凝聚态理论与材料计算重点实验室, 北京 100190)

2) (中国科学院大学物理科学学院, 北京 100049)

3) (松山湖材料实验室, 东莞 523808)

(2021年8月23日收到; 2021年9月30日收到修改稿)

非线性相干光谱是一种测量材料非线性光学响应的谱学手段. 相比线性光谱, 非线性相干光谱具有多个时间变量, 能够提供材料的更多信息. 作为非线性相干光谱的代表之一, 二维相干光谱在众多领域取得了丰硕的成果. 在化学、生物学等领域, 二维相干光谱已经展现出相比线性谱学的优越性. 随着太赫兹技术的发展, 二维相干光谱在强关联体系也显现出巨大潜力, 相关的理论与实验工作正在开展. 本文简要概括了强关联体系二维相干光谱的发展现状, 介绍了二维相干光谱的基本概念与理论工具, 分析了二维相干光谱的主要特点, 并重点总结了我们的研究组近几年关于强关联体系二维相干光谱的理论研究工作.

关键词: 二维相干光谱, 强关联体系

PACS: 05.45.-a, 03.65.Yz, 03.75.Kk, 05.30.Pr

DOI: 10.7498/aps.70.20211556

## 1 研究现状

凝聚态物理的进步与谱学手段的发展息息相关. 例如, 中子散射、扫描隧道光谱以及角分辨电子能谱的发展拓宽了我们对材料性质的认识. 在强关联电子学领域, 二维相干光谱作为一种新兴的谱学手段受到越来越多的重视. 二维相干光谱利用多束相干电磁波来探测材料的非线性响应, 因而在频域上产生一个二维的光谱来表征材料的非线性响应<sup>[1,2,3]</sup>.

相比传统的线性光谱, 二维相干光谱不仅能得到材料中光学激发的信息, 也能揭示激发之间的联系. 在红外以及高频波段, 二维相干光谱已经被广泛应用于化学、生物学等领域, 用来刻画化学反应以及生命活动的动力学过程<sup>[1-4]</sup>. 太赫兹技术的发展使这一谱学手段达到了强关联电子系统的能量窗口. 太赫兹波段的频率范围为 $0.1-10 \times 10^{12}$  Hz,

对应的能量范围大致为 $1 \text{ meV}-0.1 \text{ eV}$ . 高温超导体的能隙和超导转变温度对应的能量为几十个 $\text{mV}$ <sup>[5]</sup>, 几种量子磁性材料的磁激发对应的能量为几个 $\text{mV}$ <sup>[6-8]</sup>, 典型拓扑绝缘体的能隙也为几十个 $\text{mV}$ <sup>[9]</sup>. 这些强关联体系的特征能量尺度在太赫兹的波段范围, 因而可以用太赫兹二维相干光谱进行研究. 目前, 这一谱学手段被应用在量子阱<sup>[10]</sup>、反铁磁磁体<sup>[11]</sup>、电子玻璃<sup>[12]</sup>等强关联体系中.

与不断涌现的实验成果相比, 相关的理论仍然不成熟. 首先, 人们并不清楚强关联体系的非线性响应是否与体系的性质存在直截了当的关系; 其次, 目前大多数理论工作仍然使用能级的图像来描述非线性响应过程. 这样一套图像将非线性响应与量子系统在时间维度上的干涉现象联系起来, 为二维相干光谱提供了一个直观的物理解释. 然而, 量子多体系统具有空间上的广延性. 因此, 多体系统的非线性响应, 除了时间维度上存在干涉效应外, 还可能存在空间维度上的干涉效应. 因此, 针对强

\* 国家自然科学基金 (批准号: 11974396) 和中国科学院战略性先导科技专项 (B类)(批准号: XDB33020300) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: [yuan.wan@iphy.ac.cn](mailto:yuan.wan@iphy.ac.cn)

关联体系的非线性光谱研究需要一套新的物理图像。

理论工作者们利用数值和解析手段计算了一些重要强关联模型的非线性响应,并通过联系非线性光谱学中已有的分析手段,对这些模型的非线性响应光谱做出解释.与此同时,重整化、玻色化以及规范理论等多体物理的分析工具被引入并与原有的双边费曼图等方法结合,从而给出强关联体系二维相干光谱更深刻的理解。

Wan 与 Armitage<sup>[13]</sup>从理论上研究了一种典型的强关联自旋系统——一维横场伊辛 (Ising) 模型.自旋算符作用到基态激发两个分数激发——“自旋子”.线性光谱是不同动量“自旋子”的连续谱,体系的退相干时间等信息隐藏在谱内.在不引入耗散的前提下,退相干时间是无穷大,因而线性谱中的展宽与耗散无关.二维相干光谱通过光子回波将引起展宽的失相过程消除,因而重现了“自旋子”的尖峰结构.在引入耗散过程后,退相干时间有限,二维光谱的尖峰结构出现展宽.这说明二维光谱将耗散与非耗散过程引起的展宽区分开来,从而获得相比线性光谱关于激发更多的信息.虽然横场伊辛模型是一维模型,但由于分数激发是自旋液体中普遍存在的激发,因而他们认为二维相干光谱可以用来分析更高维的、具有连续谱结构的自旋液体模型。

随后,Choi 等<sup>[14]</sup>进行了 Kitaev 自旋液体的二维相干光谱的理论研究.利用 Kitaev 模型的严格可解性,他们计算了体系的三阶非线性响应,发现一个自旋算符可以从体系的基态中激发一个马约拉纳费米子与两个量子涡旋 (vison),但这两种激发在二维光谱中的特征不同,因而可以被区分出来.其中,二维光谱的对角线方向尖锐的峰代表了马约拉纳费米子的激发,这对实验上认证马约拉纳费米子有指导意义。

作为工作的延续,Nandkishore 等<sup>[15]</sup>对具有能隙的自旋液体进行了进一步研究.他们考虑了几种典型的有能隙的自旋液体模型,如伊辛模型、二维 toric code 模型、Haah's code 模型以及 X-cube 模型.对于常规自旋液体,各类激发在线性光谱中无法表现出显著的特征.但他们通过理论计算发现,这些激发在二维相干光谱上都有明显特征.对于非常规自旋液体,第 I 类分形相 (X-cube) 的激发在线性光谱以及二维相干光谱中都表现出明显尖峰特征.与之相比,第 II 类分形相 (Haah's code) 需

要更高阶的非线性响应来获取体系激发的特征,这也对实验提出了更大的挑战。

Parameswaran 和 Gopalakrishnan<sup>[16]</sup>从理论上研究了无序量子磁体的非线性响应.以一维无序量子横场伊辛模型为例,他们通过实空间重整化技术,说明在相变点附近该模型可以用一系列孤立二能级系统描述.紧接着,他们人为地引入声子与体系中二能级系统的相互作用,从而使体系的激发存在寿命.在这种情况下,他们考虑了对应于“泵浦-探测 (PP)”技术的非线性响应函数.通过分析他们发现,相比线性光谱,二维相干光谱不仅能够将弛豫过程与退相干过程区分开,也能够得到体系的态密度和重整化后的磁矩等物理信息。

Phuc 和 Trung<sup>[17]</sup>将二维相干光谱运用到一个典型的电子体系——双带哈伯德模型中.通过模拟计算,他们发现在没有占位能的情况下,二维光谱的峰都分布在对角线上.他们将这种特征归因于无相互作用的准激发.随着占位能增加,非对角峰开始显现,体系中相互作用的大小正比于非对角峰的强度;在体系进入莫特相后,二维相干光谱表现为一个原点位置单一的峰,这对应于基态到激发态的跃迁.此外,他们进一步发现,二维相干光谱也可以用来分析强关联体系中的含时演化问题。

可以发现,以上几个工作都局限于有能隙的体系.这些体系在经过一定处理后,都可以直接利用分析原子、分子体系非线性相干光谱的方法,因而无法说明二维相干光谱在强关联体系中的新特性.为了进一步说明二维相干光谱在强关联体系的巨大潜力,Li 等<sup>[18]</sup>讨论了一种典型的无能隙系统——拉廷格 (Luttinger) 液体.他们发现拉廷格液体的二维相干光谱中仍然存在光子回波信号.与其他光子回波产生的机理不同,他们将这一现象归因于一种特殊的时空间干涉过程.第 1 个自旋算符产生两个分数激发,第 2 和第 3 个自旋算符分别改变两个分数激发的手性,最终二者汇聚于原点并被湮灭掉.在这个过程中,两个分数激发的世界线犹如被一面透镜聚焦于焦点,因而这一过程又被命名为“透镜”效应.当体系存在色散或者耗散,这种“透镜”效应不再完美,因而光子回波信号随时间衰减.这一工作将非线性光谱的时间干涉图像扩展为时空间干涉图像,对于理解强关联体系的非线性光谱有启发性。

在接下来的部分中,本文将介绍如下内容:第 2 节以二能级系统为例,简要介绍二维相干光谱的

含义与方法; 第 3 节和第 4 节以本研究组发表的两篇工作为例, 说明强关联电子体系二维相干光谱的新特点. 其中, 第 3 节主要介绍二维相干光谱在有能隙体系——横场伊辛模型的应用<sup>[13]</sup>, 第 4 节主要介绍二维相干光谱在无能隙体系——拉廷格液体的应用<sup>[18]</sup>.

## 2 二维相干光谱基本概念——以二能级系统为例<sup>[1,2,12]</sup>

### 2.1 响应理论

考虑一个由二能级模型描述的分子体系:

$$\mathbf{H}_0 = -\frac{\Delta}{2}\boldsymbol{\sigma}^z, \quad (1)$$

其中,  $\boldsymbol{\sigma}^z$  是泡利矩阵,  $\Delta$  是二能级系统的激发能. 希尔伯特空间的任何一个态都可以由  $|0\rangle$  和  $|1\rangle$  展开. 假设交变电场的作用是使得二能级系统跃迁, 哈密顿量可以加入一项含时相互作用:

$$\mathbf{H} = \mathbf{H}_0 + \mathbf{W}(t) = \mathbf{H}_0 - \boldsymbol{\mu}E(t), \quad (2)$$

其中,  $E(t)$  是电磁场的电场分量,  $\boldsymbol{\mu}$  对应于分子体系中的偶极子算符,  $\boldsymbol{\mu} = \mu_{10}\boldsymbol{\sigma}^x$ . 假设体系初始处于基态, 其含时演化的薛定谔方程为

$$i\partial_t |\phi(t)\rangle = \mathbf{H} |\phi(t)\rangle. \quad (3)$$

假设含时相互作用  $\mathbf{W}(t)$  很弱, 电场表现为  $\delta$  函数的形式:  $E(t) = \epsilon\delta(t)$ . 将  $|\phi(t)\rangle = c_0(t)|0\rangle + c_1(t)|1\rangle$  代入 (3) 式  $O(\epsilon)$ , 得到:

$$\begin{aligned} c_0(t) &= e^{i\frac{\Delta}{2}t}, \\ c_1(t) &= ie^{i\frac{\Delta}{2}t}\epsilon\mu_{10}\Theta(t). \end{aligned} \quad (4)$$

在与电磁场相互作用后, 密度矩阵的形式为

$$\boldsymbol{\rho}(0^+) = \boldsymbol{\rho}^{(0)} + \boldsymbol{\rho}^{(1)} = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 0 \end{pmatrix} + i\epsilon \begin{pmatrix} 0 & -\mu_{10} \\ \mu_{10} & 0 \end{pmatrix}. \quad (5)$$

密度矩阵此后自由演化, 也就是

$$\begin{aligned} \boldsymbol{\rho}(t) &= \boldsymbol{\rho}^{(0)} + \boldsymbol{\rho}^{(1)} \\ &= \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 0 \end{pmatrix} + i\epsilon \begin{pmatrix} 0 & -\mu_{10}e^{i\Delta t} \\ \mu_{10}e^{-i\Delta t} & 0 \end{pmatrix}. \end{aligned} \quad (6)$$

从而得到任意时刻体系中电偶极矩的值:

$$\mu(t) = \text{Tr}(\boldsymbol{\rho}(t)\boldsymbol{\mu}) = 2\epsilon\mu_{10}\sin(\Delta t). \quad (7)$$

由麦克斯韦方程知, 周期运动的电偶极矩产生其运动频率的电磁场, 因而 (7) 式是一可测量. 响应的强度与电偶极子的跃迁矩阵元和电场强度的乘积

成比例, Hamm 等<sup>[19]</sup> 仔细讨论了不同体系电偶极矩的估计方法以及线性和非线性光谱实验需要的光场强度. 以上得出了线性响应理论的主要结果, 但与此同时, 物理图像在计算中并不清晰, 因而需要使用一套更恰当的描述方法.

从密度矩阵的刘维尔方程出发,

$$\frac{d}{dt}\boldsymbol{\rho}(t) = -i[\mathbf{H}(t), \boldsymbol{\rho}(t)]. \quad (8)$$

在相互作用绘景中, 密度矩阵表达为

$$\boldsymbol{\rho}_I(t) = \mathcal{T}e^{-i\int_{t_0}^t \mathbf{W}_I(t_1)dt_1}\boldsymbol{\rho}(t_0)\mathcal{T}e^{i\int_{t_0}^t \mathbf{W}_I(t_1)dt_1}, \quad (9)$$

式中下标 I 代表相互作用绘景. 将 (9) 式展开到电场的一阶, 得到:

$$\boldsymbol{\rho}_I^{(1)}(t) = \int_{t_0}^t dt_1 E(t_1)[\boldsymbol{\mu}_I(t_1), \boldsymbol{\rho}(t_0)]. \quad (10)$$

从而得到电偶极矩的时间演化:

$$\langle\mu(t)\rangle^{(1)} = \text{Tr}(\boldsymbol{\mu}_I(t)\boldsymbol{\rho}_I^{(1)}(t)). \quad (11)$$

将电场的具体形式  $E(t) = \epsilon\delta(t)$  代入 (11) 式再次得到 (7) 式, 这证明了两种描述方法的等价性. 更高阶的响应函数可以通过保留 (9) 式更高阶的项得到:

$$\begin{aligned} \boldsymbol{\rho}_I^{(n)}(t) &= i^n \int_{t_0}^t dt_1 \int_{t_0}^{t_1} dt_2 \cdots \int_{t_0}^{t_{n-1}} dt_n E(t_1) \cdots \\ &E(t_n) [\boldsymbol{\mu}_I(t_n), [\boldsymbol{\mu}_I(t_{n-1}), [\boldsymbol{\mu}_I(t_1), \boldsymbol{\rho}(t_0)]]]. \end{aligned} \quad (12)$$

因而, 电偶极矩的更高阶近似为

$$\langle\mu(t)\rangle^{(n)} = \text{Tr}(\boldsymbol{\mu}_I(t)\boldsymbol{\rho}_I^{(n)}(t)). \quad (13)$$

### 2.2 刘维尔路径

2.1 节给出了线性和非线性响应的具体形式, 但仍然缺乏清晰的物理图像. 为此, 将 (13) 式展开并按项分析其中的物理含义. 首先, 以线性响应为例, 将  $\langle\mu(t)\rangle^{(1)}$  分解为两项:

$$\begin{aligned} \langle\mu(t)\rangle^{(1)} &= i \int_{t_0}^t dt_1 E(t_1) \text{Tr}[\boldsymbol{\mu}_I(t)\boldsymbol{\mu}_I(t_1)\boldsymbol{\rho}(t_0)] \\ &\quad - i \int_{t_0}^t dt_1 E(t_1) \text{Tr}[\boldsymbol{\rho}(t_0)\boldsymbol{\mu}_I(t_1)\boldsymbol{\mu}_I(t)] \\ &= i \int_{t_0}^t dt_1 E(t_1) [R_1(t, t_1) - R_1^*(t, t_1)]. \end{aligned} \quad (14)$$

仍然假设体系初始处于基态, 即  $\boldsymbol{\rho}(t_0) = |0\rangle\langle 0|$ .  $R_1(t, t_1)$  代表密度矩阵的时间演化, 可以用如下刘维尔路径描述:

$$R_1(t, t_1) \left| \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 0 \end{pmatrix} \xrightarrow{\mu\rho} \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ 1 & 0 \end{pmatrix} \xrightarrow{t-t_1} \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ e^{-i\Delta(t-t_1)} & 0 \end{pmatrix} \right. \\ \left. \xrightarrow{\mu\rho} \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ e^{-i\Delta(t-t_1)} & 0 \end{pmatrix} \right. \quad (15)$$

以上的刘维尔路径描述了这样的过程: 二能级体系在  $t_1$  时刻与电磁场相互作用, 密度矩阵由  $|0\rangle\langle 0|$  激发到  $|1\rangle\langle 0|$ , 然后在  $H_0$  下自由演化并积累相位因子, 最终测量过程使  $|1\rangle\langle 0|$  重新回到  $|0\rangle\langle 0|$ , 对该矩阵取迹即得到  $R_1(t, t_1)$  的值. 时间上的自由演化贡献了刘维尔路径的相位, 最终的响应函数是所有刘维尔路径的求和 (图 1). Mukamel 等<sup>[1]</sup> 将之类比作为一种时间维度上的干涉行为. 这种分析方法优点在于演化过程的物理图像清晰, 可以容易地为体系添加衰减过程. 体系的衰减过程分为两种: 一种是激发态向基态自发弛豫, 其特征时间为  $T_1$ ; 另一种是体系的退相干过程, 其特征时间为  $T_2$ . 在加入这两种过程后,  $R_1(t, t_1)$  可以自然写作:

$$R_1(t, t_1) \left| \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 0 \end{pmatrix} \xrightarrow{\mu\rho} \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ 1 & 0 \end{pmatrix} \xrightarrow{t-t_1} \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ e^{-i\Delta(t-t_1)-(t-t_1)/T_2} & 0 \end{pmatrix} \right. \\ \left. \xrightarrow{\mu\rho} \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ e^{-i\Delta(t-t_1)-(t-t_1)/T_2} & 0 \end{pmatrix} \right. \quad (16)$$

在考虑进衰减过程后, 线性响应的电偶极矩为

$$\langle \mu(t) \rangle^{(1)} = 2\epsilon\mu_{10} \sin(\Delta t) e^{-t/T_2}. \quad (17)$$

若系统是由激发能  $\Delta$  各异的二能级体系组成的系综, 由 (17) 式知, 各二能级系统的电偶极矩正比于  $\sin(\Delta t)$ , 因而大小不同、正负各异. 系综平均使电偶极矩互相抵消, 这种过程被称为“失相”. 例如, 假设  $\Delta$  服从正态分布  $\Delta \sim (\Delta_0, \sigma^2)$ , 电偶极矩在系综平均后得到:

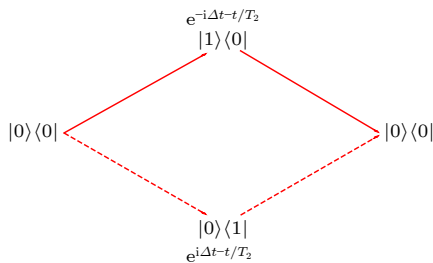


图 1 线性响应的刘维尔路径.  $R_1$  对应的路径为图中的红色实线

Fig. 1. Liouville paths of linear response.  $R_1$  is illustrated by the solid red line.

$$\overline{\langle \mu(t) \rangle^{(1)}}_{\Delta} \sim 2\epsilon\mu_{10} \sin(\Delta_0 t) e^{-t/T_2} e^{-\frac{\sigma^2 t^2}{2}}, \quad (18)$$

“失相”过程贡献了衰减因子  $e^{-\frac{\sigma^2 t^2}{2}}$ .

以上的分析可以自然推广到非线性响应. 由于 (2) 式具有粒子空穴对称性, 因而二阶非线性响应为 0. 三阶非线性响应是领头阶的非线性响应. 由 (11) 式知, 体系的三阶非线性响应为

$$\langle \mu(t) \rangle^{(3)} = -i \int_0^t dt_1 \int_0^{t_1} dt_2 \int_0^{t_2} dt_3 E(t_1) E(t_2) E(t_3) \\ \times \text{Tr}(\mu_1(t) [\mu_1(t_1), [\mu_1(t_2), [\mu_1(t_3), \rho_0]])]). \quad (19)$$

考虑图 2 所示的脉冲序列,  $E(t) = \epsilon_1 \delta(t) + \epsilon_2 \delta(t - t_1) + \epsilon_3 \delta(t - t_1 - t_2)$ . 扣除 (19) 式中体系仅与一个脉冲和两个脉冲相互作用的部分从而保留体系与 3 个光脉冲都相互作用的部分. 用  $\mu_{\text{NL}}^{(3)}$  代表这部分贡献.

$$\mu_{\text{NL}}^{(3)} = i^3 \epsilon_1 \epsilon_2 \epsilon_3 \text{Tr}(\mu_1(t_1 + t_2 + t_3) [\mu_1(t_1 + t_2), \\ [\mu_1(t_1), [\mu_1(0), \rho_0]])]) \\ = \epsilon_1 \epsilon_2 \epsilon_3 \chi^{(3)}(t_1, t_2, t_3), \quad (20)$$

其中

$$\chi^{(3)}(t_1, t_2, t_3) = i^3 \theta(t_3) \theta(t_2) \theta(t_1) \text{Tr}(\mu_1(t_1 + t_2 + t_3) \\ [\mu_1(t_1 + t_2), [\mu_1(t_1), [\mu_1(0), \rho_0]])]),$$

式中取迹的部分可以展开成 8 项, 每一项分别代表一条刘维尔路径:

$$\text{Tr}(\mu_3 [\mu_2, [\mu_1, [\mu_0, \rho_0]])]) = \\ \text{Tr}(\mu_3 \mu_1 \rho_0 \mu_0 \mu_2) - \text{Tr}(\mu_2 \mu_0 \rho_0 \mu_1 \mu_3) + \rightarrow R_1 - R_1^* \\ \text{Tr}(\mu_3 \mu_2 \rho_0 \mu_0 \mu_1) - \text{Tr}(\mu_1 \mu_0 \rho_0 \mu_2 \mu_3) + \rightarrow R_2 - R_2^* \\ \text{Tr}(\mu_3 \mu_0 \rho_0 \mu_1 \mu_2) - \text{Tr}(\mu_2 \mu_1 \rho_0 \mu_0 \mu_3) + \rightarrow R_4 - R_4^* \\ \text{Tr}(\mu_3 \mu_2 \mu_1 \mu_0 \rho_0) - \text{Tr}(\rho_0 \mu_0 \mu_1 \mu_2 \mu_3) \rightarrow R_5 - R_5^*, \quad (21)$$

其中,  $\mu_0, \mu_1, \mu_2, \mu_3$  分别是  $\mu_1(0), \mu_1(t_1), \mu_1(t_1 + t_2), \mu_1(t_1 + t_2 + t_3)$  的简写. 不失一般性, 在这里仅给出  $R_1$  的分析过程:

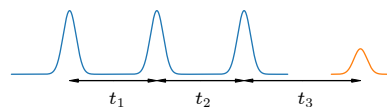


图 2 一个典型的脉冲序列

Fig. 2. A prototypical pulse sequence.

$$\begin{aligned}
 & |0\rangle\langle 0| \xrightarrow{\rho\mu_0} |0\rangle\langle 1| \xrightarrow{t_1} |0\rangle\langle 1| e^{i\Delta t_1 - t_1/T_2} \xrightarrow{\mu_1\rho} \\
 & |1\rangle\langle 1| e^{i\Delta t_1 - t_1/T_2} \xrightarrow{t_2} |1\rangle\langle 1| e^{i\Delta t_1 - t_1/T_2} e^{-t_2/T_1} \\
 & \xrightarrow{\rho\mu_2} |1\rangle\langle 0| e^{i\Delta t_1 - t_1/T_2} e^{-t_2/T_1} \xrightarrow{t_3} \\
 & |1\rangle\langle 0| e^{i\Delta(t_1-t_3) - (t_1+t_3)/T_2} e^{-t_2/T_1} \xrightarrow{\mu_3\rho} \\
 & |0\rangle\langle 0| e^{i\Delta(t_1-t_3) - (t_1+t_3)/T_2} e^{-t_2/T_1}. \quad (22)
 \end{aligned}$$

沿用线性光谱的分析方法, 以上刘维尔路径(图3)可做如下解释.

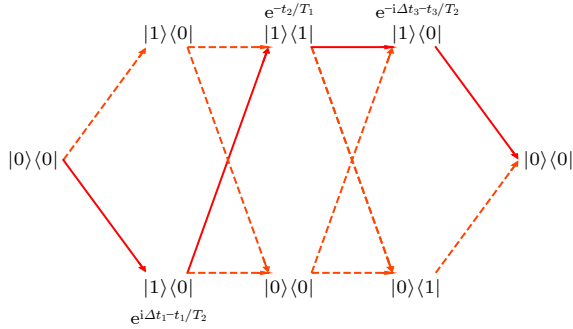


图3 非线性响应的刘维尔路径.  $R_1$  由图中红色实线表示  
Fig. 3. Liouville paths of non-linear response.  $R_1$  is illustrated by the solid red line.

体系在0时刻与电磁场相互作用, 由基态 $|0\rangle\langle 0|$ 激发到 $|0\rangle\langle 1|$ , 此后在 $H_0$ 作用下自由演化积累相位 $e^{i\Delta t_1}$ 并由此产生失相, 同时退相干过程引入一衰减因子 $e^{-t_1/T_2}$ . 在 $t_1$ 时刻, 体系再次与电磁场相互作用并被激发到激发态 $|1\rangle\langle 1|$ . 而后在激发态下演化, 并由于体系弛豫引进一个衰减因子 $e^{-t_2/T_1}$ . 在 $t_1 + t_2$ 时刻体系与电磁场相互作用, 密度矩阵由 $|1\rangle\langle 1|$ 转变为 $|1\rangle\langle 0|$ . 之后自由演化, 积累一个与失相过程符号相反的相位 $e^{-i\Delta t_3}$ , 此过程又被称为回相过程. 与此同时, 退相干过程产生另一个衰减因子 $e^{-t_3/T_2}$ . 当 $t_1 = t_3$ 时, 失相与回相的相位完全抵消, 因而由失相引起的信号衰减现象被移除, 这个效应又被称为“光子回波”. 最终体系在 $t_1 + t_2 + t_3$ 时刻被测量, 再次回到基态. 这里的“光子回波”与Hahn<sup>[20]</sup>首先提出并由Carr和Purcell<sup>[21]</sup>改进的“自旋回波”过程类似, 由Abella等<sup>[22]</sup>首次观测到. 综合以上可得:

$$R_1 \propto \langle e^{i\Delta(t_1-t_3)} \rangle_{\Delta} e^{-(t_1+t_3)/T_2} e^{-t_2/T_1}, \quad (23)$$

其中 $\langle \dots \rangle_{\Delta}$ 代表对整个系综做平均. 其他各项均可以通过这种方法得到:

$$\begin{aligned}
 R_2 & \propto \langle e^{i\Delta(t_1-t_3)} \rangle_{\Delta} e^{-(t_1+t_3)/T_2}, \\
 R_4 & \propto \langle e^{-i\Delta(t_1+t_3)} \rangle_{\Delta} e^{-(t_1+t_3)/T_2} e^{-t_2/T_1}, \\
 R_5 & \propto \langle e^{-i\Delta(t_1+t_3)} \rangle_{\Delta} e^{-(t_1+t_3)/T_2}. \quad (24)
 \end{aligned}$$

因为三阶非线性响应有3个时间指标, 可以选取任意两个进行二维相干光谱研究. 由(23)式和(24)式可知, 不同的衰减过程对应于不同的时间指标. 退相干引起的信号衰减正比于 $t_1 + t_3$ , 自发弛豫带来的信号衰减正比于 $t_2$ , 失相带来的信号衰减正比于 $|t_1 - t_3|$ . 通过选取特定的时间通道, 可以得到不同物理过程的特征时间. 与之相比, 线性光谱无法将3种物理过程区分开. 除此之外, 也可以采用双边费曼图的办法来分析非线性响应过程, 具体可参见文献[1, 2].

作为回顾, 本部分主要介绍了非线性响应理论, 并通过分析刘维尔路径将响应函数中的时间变量与不同的物理过程联系起来. 下面两部分将介绍这些分析技巧在具体例子中的应用.

### 3 一维横场伊辛模型的二维相干光谱<sup>[13]</sup>

Wan等<sup>[13]</sup>考虑了一个典型的强关联体系——一维横场伊辛模型<sup>[23]</sup>. 其哈密顿量为

$$H_0 = -J \left( \sum_n^{L-1} \sigma_n^z \sigma_{n+1}^z + \eta \sigma_L^z \sigma_1^z \right) - h \sum_n \sigma_n^x, \quad (25)$$

其中,  $\sigma_n^{x,y,z}$ 是泡利矩阵;  $J > 0$ 是铁磁相互作用;  $h > 0$ 是横场强度;  $L$ 是自旋链长度;  $\eta = 1$ 代表周期边界条件,  $\eta = 0$ 代表开放边界条件. 横场伊辛模型的基态有两个相, 作者考虑了铁磁相的行为. 利用约当-维格纳变换和玻戈留波夫变换等技巧, (25)式中的哈密顿量能够用安德森准自旋<sup>[24]</sup>写成二能级系综的形式:

$$H_0 = \sum_{k>0} \lambda_k \tau_k^z, \quad (26)$$

式中 $\lambda_k = \sqrt{\epsilon_k^2 + \Delta_k^2}$ , 其中

$$\epsilon_k = -2J \cos k - 2h, \quad \Delta_k = -2J \sin k.$$

为了与(25)式中的 $\sigma^z$ 区分开, 在这里使用 $\tau^z$ 代表泡利矩阵.  $x$ 方向的总磁矩在安德森准自旋表象下表达为

$$M^x = \sum_{k>0} m_k^x = \sum_{k>0} \cos \theta_k \tau_k^z + \sin \theta_k \tau_k^y, \quad (27)$$

其中 $\sin \theta_k = \Delta_k / \lambda_k$ . 若体系与 $x$ 方向偏振的光脉

冲耦合, 那么哈密顿量写作

$$\begin{aligned} \mathbf{H}(t) &= \mathbf{H}_0 - B(t)\mathbf{M}^x \\ &= \sum_{k>0} \lambda_k \tau_k^z - B(t)(\cos \theta_k \tau_k^z + \sin \theta_k \tau_k^y). \end{aligned} \quad (28)$$

由于不同动量的安德森准自旋的算符之间互相对易, 因而描述不同动量的二能级体系互相独立. 该模型是二能级体系的系综, 这也正是第 2 节中考虑的情形. 但要注意, 在第 2 节中偶极子算符仅有非对角元, 与之相比,  $m_k^x$  既有非对角元也有对角元. 但这种不同只增加了刘维尔路径的数量, 第 2 节中的分析方法仍然适用.

沿着这样的分析, 详细计算线性响应、二阶非线性响应以及三阶非线性响应等各阶响应函数. 线性响应的结果为

$$\chi_{xx}^{(1)}(t) = \frac{2\theta(t)}{L} \sum_{k>0} \sin^2 \theta_k e^{-t/T_2} \sin(2\lambda_k t), \quad (29)$$

退相干衰减与失相导致的衰减都与  $t$  有关, 因而无法被区分. 在频率空间, 线性谱描述了不同动量“自旋子”的连续谱, 而体系退相干时间的信息都隐藏在连续谱内 (图 4(a) 和图 4(f)).

由于 (28) 式不具有粒子-空穴对称性, 因而二阶非线性响应非零, 其具体形式为

$$\begin{aligned} \chi_{xxx}^{(2)}(t, t+\tau) &= \frac{4\theta(t)\theta(\tau)}{L} \sum_{k>0} \sin^2 \theta_k \cos \theta_k \{e^{-t/T_1} \cos(2\lambda_k \tau) \\ &\quad - e^{-(t+\tau)/T_2} \cos[2\lambda_k(\tau+t)]\}, \end{aligned} \quad (30)$$

其中右侧第一项不随  $\tau$  演化. 在频域空间, 这对应于  $w_t = 0$  并沿  $w_\tau$  方向分布的条带 (图 4(b)). 条带随着  $T_1$  的减小而增宽, 因而可以用来表征体系的弛豫时间. 右侧第二项随着  $t+\tau$  振荡, 这说明体系经历失相过程, 由此带来的衰减与退相干引起的衰减混合在一起无法区分, 在频域空间对应于第一象限弥散的信号 (图 4(g)).

三阶非线性响应函数荷载更多信息. 对于图 5(a) 表示的脉冲序列, 非线性响应函数表达为

$$\begin{aligned} \chi_{xxxx}^{(3)}(t_3, t_3+t_2, t_3+t_2+t_1) &= \\ &= -\frac{\theta(t_3)\theta(t_2)\theta(t_1)}{L} \sum_{k>0} A_k^{(1)} + A_k^{(2)} + A_k^{(3)} + A_k^{(4)}, \end{aligned} \quad (31)$$

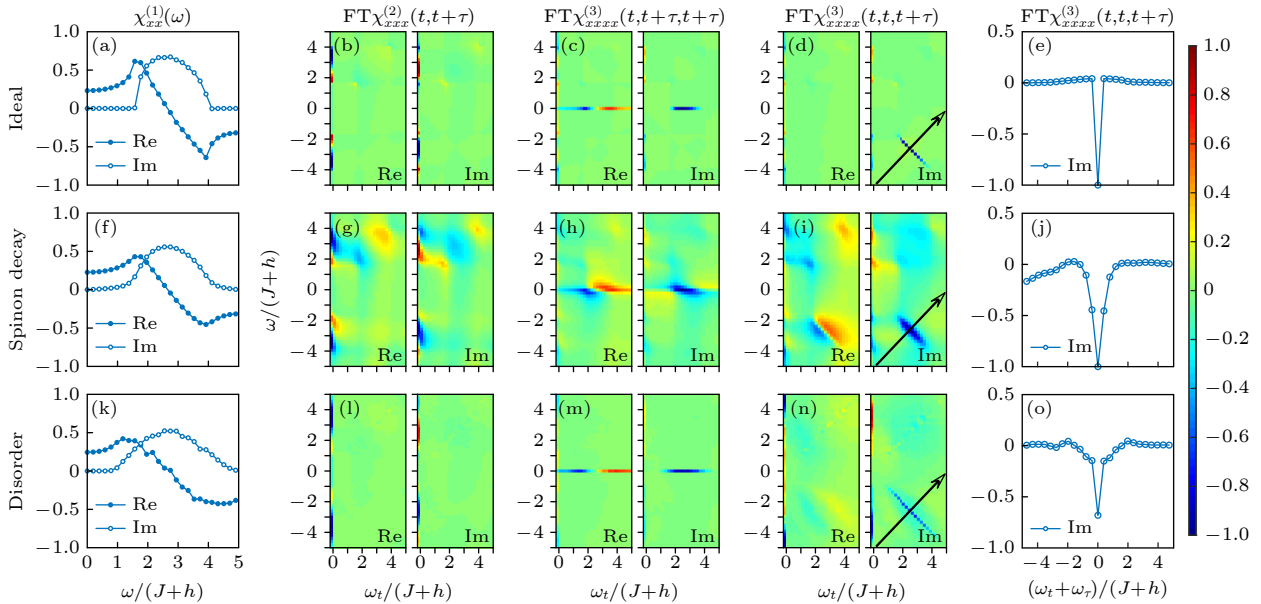


图 4 横场伊辛模型铁磁相 [ $h/(h+J) = 0.3$ ] 的一维和二维光谱. 从上到下, (a)–(e) 无耗散的结果 ( $1/T_{1,2} = 0$ ); (f)–(j) 有耗散的结果 ( $1/T_{1,2} = 0.2(J+h)$ ); (k)–(o) 添加无序后的结果. 从左到右, 每列分别是  $\chi_{xx}^{(1)}(\omega)$ , 以及  $\chi_{xxx}^{(2)}(t, t+\tau)$ ,  $\chi_{xxx}^{(3)}(t, t+\tau, t+\tau)$ ,  $\chi_{xxxx}^{(3)}(t, t, t+\tau)$  的傅里叶变换, 以及沿着黑色箭头方向的信号轮廓 (本图来自文献 [13])

Fig. 4. One dimensional (1D) and two dimensional (2D) spectra in the FM phase [ $h/(h+J) = 0.3$ ] of the TFIC. From the top to bottom, the rows show (a)–(e) the case with no dissipation ( $1/T_{1,2} = 0$ ), (f)–(j) with dissipation ( $1/T_{1,2} = 0.2(J+h)$ ), and (k)–(o) with quenched disorder. From the left to right, the columns show, respectively,  $\chi_{xx}^{(1)}(\omega)$ , and the FTs of  $\chi_{xxx}^{(2)}(t, t+\tau)$ ,  $\chi_{xxx}^{(3)}(t, t+\tau, t+\tau)$ ,  $\chi_{xxxx}^{(3)}(t, t, t+\tau)$ , and its profile along a cut indicated by the black arrow. (This figure is reprinted from ref. [13]).

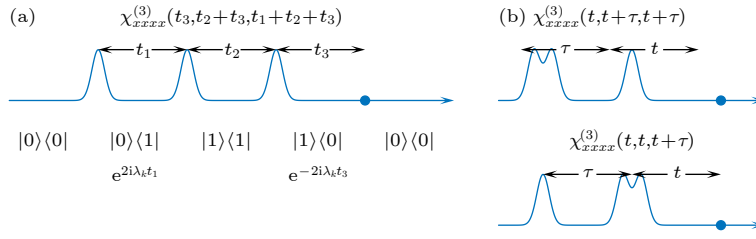


图5 脉冲序列 (a)  $\chi_{xxxx}^{(3)}(t_3, t_3 + t_2, t_3 + t_2 + t_1)$  对应的三脉冲过程以及“自旋子”回波过程  $A_k^{(4)}$  对应的刘维尔路径; (b) 作为三脉冲极限的两脉冲序列下的三阶响应  $\chi^{(3)}$  (本图来自文献 [13])

Fig. 5. Pulse sequences: (a) Three-pulse process associated with  $\chi_{xxxx}^{(3)}(t_3, t_3 + t_2, t_3 + t_2 + t_1)$ . The spinon echo process that produces the rephasing signal  $A_k^{(4)}$  is also shown. (b) The  $\chi^{(3)}$  terms measured in the two-pulse setup are special limits of the three-pulse process. (This figure is reprinted from ref. [13]).

其中

$$\begin{aligned}
 A_k^{(1)} &= 8 \sin^2 \theta_k \cos^2 \theta_k \sin[2\lambda_k(t_3 + t_2 + t_1)] \\
 &\quad \times e^{-(t_3+t_2+t_1)/T_2}, \\
 A_k^{(2)} &= -8 \sin^2 \theta_k \cos^2 \theta_k \sin[2\lambda_k(t_1 + t_2)] \\
 &\quad \times e^{-(t_1+t_2)/T_2} e^{-t_3/T_1}, \\
 A_k^{(3)} &= 4 \sin^4 \theta_k \sin[2\lambda_k(t_3 + t_1)] \\
 &\quad \times e^{-(t_3+t_1)/T_2} e^{-t_2/T_1}, \\
 A_k^{(4)} &= 4 \sin^4 \theta_k \sin[2\lambda_k(t_3 - t_1)] \\
 &\quad \times e^{-(t_3+t_1)/T_2} e^{-t_2/T_1}. \quad (32)
 \end{aligned}$$

Wan 等将刘维尔路径分为 4 类, 前 3 类中相因子没有抵消, 所描述的刘维尔路径中没有回波过程. 与之相比, 第 4 类中与  $t$  和  $\tau$  相关的相因子符号相反, 互相抵消, 说明相应的刘维尔路径中存在回波过程. 当  $t = \tau$  时, 失相和回相过程产生的相位完全抵消, 这是第 2 节中提及的“光子回波”过程. 由于体系中的准激发是自旋子, 因而文献 [13] 中又称之为“自旋子”回波.

“光子回波”能够敏感地探测体系中的耗散效应. 考虑一特殊的时间通道  $\chi_{xxxx}^{(3)}(t, t, t + \tau)$ , 对应于  $t_3 \rightarrow t, t_2 \rightarrow 0, t_1 \rightarrow \tau$  (图 5(b)). 在此时间通道中, 第 4 类刘维尔路径存在回波过程, 所以在频谱上位于第二、四象限, 而其他 3 类刘维尔路径均处于一、三象限或坐标轴附近. 如此一来, 二维相干光谱将“自旋子回波”同其他信号独立出来. 进一步地, 这种回波信号可以将退相干与失相引起的衰减区分开. 具体来说, 在频谱中, 尖锐的峰分布在频谱的第四象限的对角线并组成一条条带, 这是回波信号的重要特征. 在不引入退相干过程时, 这些峰沿反对角线方向的峰宽为零 (图 4(d) 和图 4(e)). 在加入退相干过程后, 反对角线的峰出现展宽

(图 4(i) 和图 4(j)), 并且展宽与退相干过程的特征时间  $T_2$  有关. 与之相比, 其他时间通道并不包含回波信号. 比如考虑  $\chi_{xxxx}^{(3)}(t, t + \tau, t + \tau)$  (图 5(b)), 此时第 3 类和第 4 类刘维尔路径的相因子只和  $t$  有关. 在二维相干光谱中, 对应的信号呈分布在  $\omega_\tau = 0$  的一条条带. 在不引入激发态向基态弛豫过程时, 该条带沿  $\omega_\tau$  方向峰宽为 0 (图 4(c)). 在引入这样的过程后, 沿  $\omega_\tau$  方向出现展宽 (图 4(h)), 并且展宽与弛豫时间  $T_1$  有关. 这些结果再一次印证了 (23) 式和 (24) 式后的分析.

除此之外, Wan 等还讨论了系统无序对结果的影响, 作者将相互作用常数  $J$  和横场  $h$  设置为位置相关  $J_n$  和  $h_n$ , 并假定其满足正态分布. 由于模型仍然可积, “自旋子”依然是体系的严格本征态, 因而二维相干光谱中回波信号的反对角线方向宽度为零 (图 4(m) — 图 4(o)). 这说明这种无序不影响二维相干光谱的主要结构, 无法为体系引入耗散过程.

#### 4 拉廷格液体的二维相干光谱 [18]

第 3 节讨论了一个有能隙的强关联体系, 但本质上该模型可以映射为二能级体系系综, 进而使用双边费曼图等技巧进行分析. 这样的体系在本质上并未脱离针对分子体系的非线性光谱的分析框架. 为了讨论更一般的情形, Li 等 [18] 考虑了  $S = 1/2$  的 XXZ 模型 (图 6(a),(b)), 这一模型在某些参数空间的激发是无能隙的, 自然不能简化为二能级体系系综:

$$\begin{aligned}
 \mathbf{H} &= \sum_j \frac{J_\perp}{2} (\mathbf{S}_j^+ \mathbf{S}_{j+1}^- + \text{H.c.}) \\
 &\quad + J_z \mathbf{S}_j^z \mathbf{S}_{j+1}^z - B \mathbf{S}_j^z, \quad (33)
 \end{aligned}$$

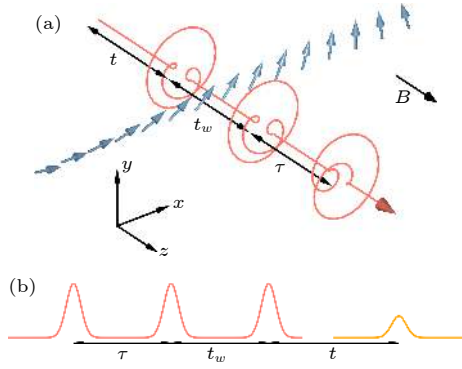


图 6 (a) 法拉第构型示意图. 磁场沿  $z$  方向. 3 个圆偏振短光脉冲通过自旋模型, 传播方向平行于  $z$  方向. 第 1 个光脉冲为右旋偏振, 第 2 和第 3 个光脉冲为左旋偏振. 第 1 和第 2 个光脉冲的时间间隔为  $\tau$ , 第 2 和第 3 个光脉冲的时间间隔为  $t_w$ , 第三个光脉冲和测量时间的间隔为  $t$ . (b)  $t \approx \tau$  时, 光子回波信号出现 (本图来自文献 [18])

Fig. 6. (a) The Faraday configuration. A magnetic field  $B$  is applied in the  $z$  axis. Three short electromagnetic pulses with circular polarizations pass through the  $S = 1/2$  spin chain. The propagation direction is parallel with the spin  $z$  axis. The first pulse is right-handed, whereas the second and the third are left-handed. The time delay between the first and the second pulse is denoted by  $\tau$ , the second and the third by  $t_w$ , and the third pulse and the time of detection by  $t$ . (b) When  $t \approx \tau$ , photon echo appears. (This figure is reprinted from ref. [18]).

其中  $J_{\perp}$  是自旋  $xy$  平面内的交换相互作用,  $J_z$  为  $z$  方向的交换相互作用. 此外, 还考虑了外磁场导致的塞曼项  $-BS_j^z$ .  $z$  方向的总磁矩在海森伯表象中不随时间演化, 因而仅考虑  $xy$  平面内的磁学响应. 这种构型在实验上也被称为法拉第构型 [25]. 模型的  $U(1)$  对称性决定其不存在二阶响应, 因而领头阶非线性响应为三阶非线性响应. 将参与相互作用的电磁波按照其偏振展开, 体系的对称性允许有 6 种三阶响应函数:  $\chi_{+--+}^{(3)}$ ,  $\chi_{+-+-}^{(3)}$ ,  $\chi_{-++-}^{(3)}$ , 其中  $+(-)$  代表右旋 (左旋) 圆偏振光, 以及三者的复共轭  $\chi_{-++-}^{(3)}$ ,  $\chi_{+-+-}^{(3)}$ ,  $\chi_{+--+}^{(3)}$ . Li 等 [18] 发现  $\chi_{+--+}^{(3)}$ ,  $\chi_{-++-}^{(3)}$  由于存在“光子回波”而蕴含更多信息, 因而他们集中讨论  $\chi_{+--+}^{(3)}$  的相关特征. 由于电磁波波长远大于格点间距, 可以认为自旋与空间上的均匀磁场相互作用. 综合以上,  $\chi_{+--+}^{(3)}$  具体表达为

$$\chi_{+--+}^{(3)}(t, t_w, \tau) = \int dx_1 \int dx_2 \int dx_3 \tilde{\chi}_{+--+}^{(3)}(t_1 = t, x_1; t_2 = t + t_w, x_2; t_3 = t + t_w + \tau, x_3). \quad (34)$$

$\tilde{\chi}_{+--+}^{(3)}$  是时空分辨的三阶响应函数, 其形式为

$$\begin{aligned} \tilde{\chi}_{+--+}^{(3)}(1, 2, 3) = & i^3 \Theta(t_1) \Theta(t_2 - t_1) \Theta(t_3 - t_2) \\ & \times \left\langle \left[ [S^+(0), S^-(-1)], S^-(-2) \right], S^+(-3) \right\rangle, \end{aligned} \quad (35)$$

其中  $0, -1, -2, -3$  是时空坐标  $(0, 0), (-t_1, -x_1), (-t_2, -x_2), (-t_3, -x_3)$  的简写. 为了得到 (35) 式的表达式, 首先利用约当-维格纳变换将  $XXZ$  模型映射为费米子模型 [26]. 在费米子的表象下, 自旋算符  $S_j^{\pm}$  不是局域算符, 因而 (35) 式仍难得到封闭表达式. 在自旋液体相, 进一步将费米子模型玻色化 [27–30], 忽略掉模型中重整化群意义下的无关项后, 玻色子哈密顿量由拉廷格自旋液体描述:

$$\mathbf{H} = \frac{v}{2\pi} \int \left[ \frac{1}{K} (\nabla \phi)^2 + K (\nabla \theta)^2 \right] dx, \quad (36)$$

其中的费米速度  $v$  和拉廷格参数  $K$  由模型的微观参数  $J_{\perp}, J_z$  以及外磁场  $B$  共同决定. 场算符的对易关系为

$$[\phi(x), \theta(y)] = -i\pi \Theta(x - y). \quad (37)$$

哈密顿量同样可以通过手征玻色场表达:

$$\mathbf{H} = \frac{v}{4\pi} \int dx (\nabla \phi_L)^2 + (\nabla \phi_R)^2, \quad (38)$$

其中手征玻色场定义为

$$\phi_L = \sqrt{K} \theta + \frac{1}{\sqrt{K}} \phi; \quad \phi_R = \sqrt{K} \theta - \frac{1}{\sqrt{K}} \phi. \quad (39)$$

$\phi_L$  仅是  $x^+ = vt + x$  的函数,  $\phi_R$  仅是  $x^- = vt - x$  的函数.

在玻色子的表象下, 自旋算符  $S_j^{\pm}$  由一类特殊的顶点算子表达:

$$S_j^{\pm} = \begin{cases} e^{i\theta(x)}, & J_{\perp} < 0, \\ e^{i\theta(x)} \cos(2\phi(x) - 2\pi m x), & J_{\perp} > 0, \end{cases} \quad (40)$$

其中  $m$  是由外磁场  $B$  诱导的磁密度,  $x$  是格点  $j$  的空间坐标. 注意到在铁磁情形下, 自旋算符在玻色场表象中与磁化密度无关, 因而沿  $z$  方向的外场不改变铁磁二维相干光谱的行为. 与之相比, 反铁磁情形的自旋算符在玻色场表象下与磁化密度有关, 哈密顿量中的塞曼项会明显改变反铁磁二维相干光谱的行为.

将 (40) 式代入 (35) 式中, 利用场论的相关技巧, 得到 (35) 式的具体表达式. 将结果代入 (34) 式并作适当近似, 得到三阶响应函数  $\chi_{+--+}(t, t_w, \tau)$  的渐近形式. 对于铁磁情形, 他们发现  $\chi_{+--+}(t, t_w, \tau)$  的渐近形式为

$$\chi_{+---}^{(3)} \sim \begin{cases} (\tau - t)e^{-\frac{\pi T(t-\tau)}{2K}}, & t \ll \tau, \\ -(t - \tau)^3 e^{-\frac{\pi T(\tau-t)}{2K}}, & t \gg \tau. \end{cases} \quad (41)$$

(41) 式说明  $\chi_{+---}^{(3)}(t, t_w, \tau)$  仅是  $t - \tau$  的函数, 这是回波信号的表现. 考虑到解析结果只适用于三阶响应函数的渐近行为, Li 等同时使用数值积分求解了 (35) 式. 在固定  $t_w$  的前提下, 保留  $t$  和  $\tau$  为时间变量, 并将结果表达为 (图 7(a)—图 7(c)) 中的二维光谱. Li 等发现铁磁的  $\chi^{(3)}$  是实的, 并且时域和频域的结果都说明  $\chi_{+---}^{(3)}$  中存在回波信号. 反铁磁的渐近行为也表明反铁磁  $\chi_{+---}^{(3)}(t, t_w, \tau)$  中存在回波信号.

$$\chi_{+---}^{(3)} \sim e^{-2\pi i \mu(t-\tau)} \times \begin{cases} e^{-\pi(\Delta-2)T(t-\tau)}, & t \ll \tau, \\ (t - \tau)e^{-\pi(\Delta-2)T(\tau-t)}, & t \gg \tau, \end{cases} \quad (42)$$

其中,  $\Delta = 2K + 1/(2K)$ . 相比铁磁情形, 反铁磁  $\chi^{(3)}$  在时域是复的, 这是因为磁化密度影响了自旋算符在玻色场中的表达. 同样, 数值积分的结果再一次确认了回波信号的存在 (图 8(a)—图 8(d)). 与横场伊辛模型不同, XXZ 模型不能写成二能级系综的形式, 因而二维相干光谱中的回波信号需要其他解释.

按照玻色化方法, 磁化密度算符写作:

$$\rho(x) = -\frac{1}{\pi} \nabla \phi(x). \quad (43)$$

由基本的对易关系 (37) 式以及手征玻色场定义

可知:

$$[\rho(x), \phi_L(y)] = [\rho(x), \phi_R(y)] = i\sqrt{K}\delta(x-y). \quad (44)$$

因而  $e^{-iQ_L\phi_L(y)/\sqrt{K}}$  在  $y$  处激发一磁荷为  $Q_L$  的左行准激发,  $e^{-iQ_R\phi_R(y)/\sqrt{K}}$  在  $y$  处激发一磁荷为  $Q_R$  的右行准激发. 在铁磁情形中, 自旋升算符用手征场表达为

$$\begin{aligned} S_j^+(t) &= e^{-i\theta(x,t)} = e^{-i\theta_L(x+vt) - i\theta_R(x-vt)} \\ &= e^{-i\frac{1}{2}\phi_L(x+vt)/\sqrt{K}} e^{-i\frac{1}{2}\phi_R(x-vt)/\sqrt{K}}, \end{aligned} \quad (45)$$

其中  $\theta_L$  定义为  $\frac{1}{2}\phi_L/\sqrt{K}$ ,  $\theta_R$  定义为  $\frac{1}{2}\phi_R/\sqrt{K}$ . 自旋升算符的作用是在  $x + vt$  和  $x - vt$  处分别激发一个携带  $1/2$  磁荷的左行和右行准激发. 这样的准激发按照其磁荷被命名为“自旋子”.  $S_j^-(t)$  的作用与之类似, 不同在于  $S_j^-(t)$  激发的准激发携带  $-1/2$  的磁荷, 因而是“反自旋子”. 因为  $e^{-i\theta_{L/R}(x)} e^{i\theta_{L/R}(x)} = 1$ , 所以“自旋子”和“反自旋子”路径重叠时互相抵消. 我们不妨将这样的图像首先应用于线性响应的分析. 以线性响应中一条刘维尔路径为例:

$$\begin{aligned} R &\sim \langle S^-(0) S^+(-1) \rangle \\ &= \langle e^{i\theta_L(0,0)} e^{i\theta_R(0,0)} e^{-i\theta_L(-x_1-vt_1)} e^{-i\theta_R(-x_1+vt_1)} \rangle \\ &\sim \left| \frac{\sinh(\pi T x_1^+)}{\pi T \epsilon} \right|^{-\frac{1}{4K}} \left| \frac{\sinh(\pi T x_1^-)}{\pi T \epsilon} \right|^{-\frac{1}{4K}}. \end{aligned} \quad (46)$$

该刘维尔路径用“自旋子”产生湮灭图像理解如下: 首先在  $(-x_1, -t_1)$  由  $S^+(-1)$  产生一对“自旋子”, 在演化时间  $t$  后, 这对“自旋子”在空间的位置分别为  $-x_1 - vt_1$  (左行) 以及  $-x_1 + vt_1$  (右行). 在 0 时刻,

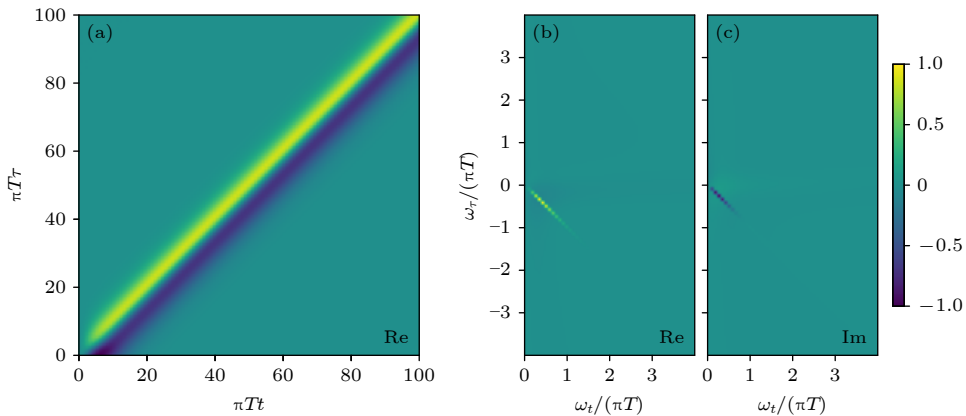


图 7 (a) 以  $\pi Tt, \pi T\tau$  为自变量, 铁磁链的三阶非线性响应  $\chi_{+---}^{(3)}$ . 固定  $\pi Tt_w = 1$ , 拉廷格参数  $K = 1$ . (b), (c) 分别是图 (a) 中数据傅里叶变换后二维光谱的实部和虚部 (本图来自文献 [18])

Fig. 7. (a) Nonlinear magnetic susceptibility  $\chi_{+---}^{(3)}$  of a ferromagnetic chain as function of  $\pi Tt$  and  $\pi T\tau$ . The waiting time  $\pi Tt_w = 1$ . The Luttinger parameter is  $K = 1$ . (b), (c) The real and imaginary parts of two dimensional spectrum, obtained by Fourier transforming the data of panel (a). (This figure is reprinted from Ref. [18]).

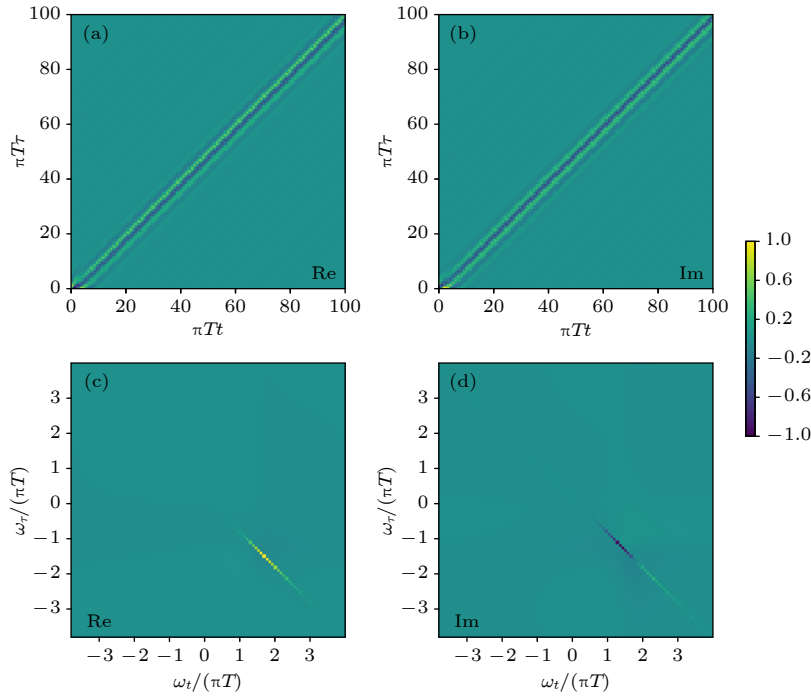


图 8 (a), (b) 以  $\pi T t$ ,  $\pi T \tau$  为自变量, 反铁磁链的三阶非线性响应  $\chi_{+--+}^{(3)}$  的实部和虚部. 固定  $\pi T t_w = 1$ , 拉廷格参数  $K = 1$ , 磁化密度  $2\mu/T = 1.15$ . (c), (d) 分别是二维相干光谱的实部和虚部 (本图来自文献 [18])

Fig. 8. (a), (b) The real and imaginary parts of Nonlinear magnetic susceptibility  $\chi_{+--+}^{(3)}$  of an antiferromagnetic chain as function of  $\pi T t$  and  $\pi T \tau$ . The waiting time  $\pi T t_w = 1$ . The Luttinger parameter is  $K = 1$ . The magnetization density  $2\mu/T = 1.15$ . (c), (d) The real and imaginary parts of the two-dimensional spectrum. (This figure is reprinted from Ref. [18]).

在原点位置由  $S^-(0)$  产生一对反自旋子. 如图 7(a), “自旋子”与“反自旋子”无法互相抵消, 并且“自旋子”与“反自旋子”的距离随  $t_1$  增加而增大, 初态演化后与末态的交叠积分减小, 因而该刘维尔路径随  $t_1$  衰减.

对于三阶非线性响应  $\chi_{+--+}^{(3)}$ , 仍以一条刘维尔路径为例,  $R_1 \sim \langle S^+(0) S^-(1) S^-(2) S^+(-3) \rangle$ . 在  $(0, 0)$  和  $(-x_3, -t_3)$  处分别激发一对“自旋子”, 在  $(-x_1, -t_1)$  和  $(-x_2, -t_2)$  处分别激发一对“反自旋子”. 与线性响应不同, 在满足回波条件  $t = \tau$  时, 当自旋算符的时空坐标满足:

$$x_1 = v\tau; x_2 = -v(\tau + t_w); x_3 = -vt_w. \quad (47)$$

刘维尔路径中产生的“自旋子”与“反自旋子”全部抵消掉 (图 9(c)), 所以这一刘维尔路径不随  $t$  衰减. Li 等将这一过程命名为“透镜效应”, 这一效应正是回波信号的起源. Li 等进一步检验了这一物理图像, 发现“透镜效应”对应的路径对响应函数贡献最大 (图 9(d)). 反铁磁也可做同样分析, 与铁磁不同,  $S_j^+$  产生一对“自旋子”和一对“劳弗林 (Laughlin) 准粒子”<sup>[31]</sup>. “透镜效应”在反铁磁情形中依然存在, 因而二维相干光谱中依然有回波信号.

当玻色场存在色散时, 空间中的“自旋子”波包

随时间扩散开. “透镜效应”说明, 波包扩散导致“光子回波”衰减. 具体来说,  $\tau$  很大时, 由  $S^+(-3)$  产生的左行自旋子的波包在  $-t_2$  时刻会非常平坦. 这一扩散开的波包无法与由  $S^-(-2)$  产生的左行反自旋子互相抵消. 这使得“透镜效应”不再完美, 从而导致“光子回波”信号的衰减. 联系第 2 节的讨论, 热弛豫引起的信号衰减仅与  $t_w$  有关, 而色散引起的“光子回波”衰减仅与  $t$  和  $\tau$  有关. 二维相干光谱将两种衰减方式区分开来.

我们已经注意到回波现象对于研究强关联电子体系的重要作用. 按照 Mukamel<sup>[1]</sup> 的物理图像, 二维相干光谱中的回波信号来源于不同刘维尔路径的时间维的干涉作用. “透镜效应”将这一图像进一步发展. 回波现象实际上描述了准激发的波包之间的时空干涉作用. 由电磁场激发的准激发以波包的形式在空间运动, 不同波包之间互相干涉. 当满足干涉最大条件时 (准激发的波包完全重叠), 二维相干光谱对应的响应强度最大. 这一图像自然解释了 XXZ 模型中的回波现象并预言了色散对回波的影响. 这种色散导致回波衰减的效应难以被传统的分析方法如双边费曼图所描述, 因而这种新图像涵盖了更多物理内容.

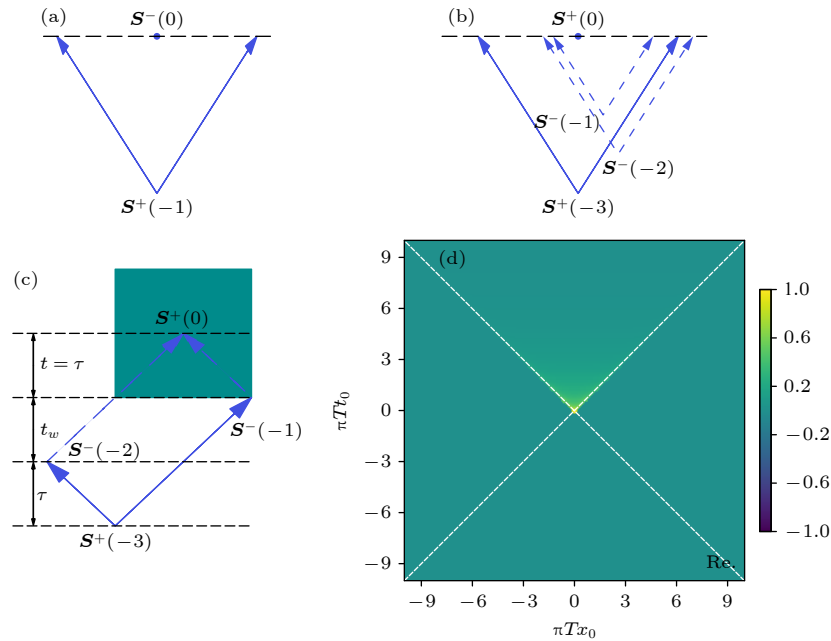


图 9 (a) 两点关联函数中的“自旋子”产生湮灭过程. 实线代表“自旋子”的动力学过程. 虚线代表“反自旋子”的动力学过程. (b) 四点关联函数中的“自旋子”产生湮灭过程. (c) 四点关联函数中的“透镜效应”构型. (d)  $\tilde{\chi}_{+-}^{(3)}$  在图 (c) 阴影部分的行为 (本图来自文献 [18])

Fig. 9. (a) The spinon creation/annihilation process in two-point correlation function. Solid and dashed lines represent dynamical processes of spinon and antispinon respectively. (b) The spinon creation/annihilation process in four-point correlation function. (c) The “Lensing” configuration in four-point correlation function. (d) The behavior of the shaded area in panel (c). (This figure is reprinted from ref. [18]).

## 5 总结与展望

本文通过本研究组的两个工作, 试图说明二维相干光谱在强关联电子体系的重大潜力. 这些理论工作为非线性谱学提供了新的概念与方法, 对未来的研究具有很大启发性. 与此同时, 强关联体系的二维相干光谱作为一个理论上崭新的方向, 也充满未知与挑战. 首先, 目前的理论工作局限于一些可以严格求解的解析模型, 并没有一套成熟的微扰方法对一般体系进行研究. 此外, 大部分理论工作集中于强关联系统的磁响应, 相比电响应, 磁响应实验难度更大 [19]. 最后, 仍然没有一个确定性的实验验证理论预言的结果. 未知也意味着可能性, 能否通过非平衡场论 [32] 发展出一套微扰方法? 能否将这样的方法应用到超导等体系中获得诸如库珀对的寿命等信息? 能否利用一些半经典方法 [33–35] 理解二维相干光谱? 我们相信, 未来对这些问题的研究会揭示强关联电子体系中更丰富的物理信息.

感谢与 Peter Armitage 和 Masaki Oshikawa 的有益合作.

## 参考文献

- [1] Mukamel S 1999 *Principle of Nonlinear Optical Spectroscopy* (Oxford: Oxford University Press) pp3–139
- [2] Hamm P, Zanni M 2011 *Concepts and Methods of 2D Infrared Spectroscopy* (Cambridge: Cambridge University Press) pp1–86
- [3] Weng Y X, Chen H L 2018 *Ultrafast Spectroscopy-Principles and Techniques* (Beijing: Chemical Industry Press) (in Chinese) [翁宇翔, 陈海龙 2018 超快激光光谱原理与技术基础 (北京: 化学工业出版社)]
- [4] Cundiff S, Mukamel S 2013 *Phys. Today* **66** 44
- [5] Hüfner S, Hossain M A, Damascelli A, Sawatzky G A 2008 *Rep. Prog. Phys.* **71** 062501
- [6] Breunig O, Garst M, Sela E, Buldmann B, Becker P, Bohaty L, Müller R, Lorenz T 2013 *Phys. Rev. Lett.* **111** 187202
- [7] Bitko D, Rosenbaum T F, Aeppli G 1996 *Phys. Rev. Lett.* **77** 940
- [8] Coldea R, Tennant D A, Wheeler E M, Wawrzynska E, Prabhakaran D, Telling M, Habicht K, Smeibidl P, Kiefer K 2010 *Science* **327** 177
- [9] Chen Y L, Chu J H, Analytis J G, Liu Z K, Igarashi K, Kuo H H, Qi X L, Mo S K, Moore R G, Lu D H, Hashimoto M, Sasagawa T, Zhang S C, Fisher I R, Hussain Z, Shen Z X 2010 *Science* **329** 5992
- [10] Woerner M, Kuehn W, Bowlan P, Reimann K, Elsaesser T 2013 *New J. Phys.* **15** 025039
- [11] Lu J, Li X, Hwang H Y, Ofori-Okai B K, Kurihara T, Suemoto T, Nelson K A 2017 *Phys. Rev. Lett.* **118** 207204
- [12] Mahmood F, Chaudhuri D, Gopalakrishnan S, Nandkishore

- R, Armitage N P 2021 *Nat. Phys.* **17** 627
- [13] Wan Y, Armitage N P 2018 *Phys. Rev. Lett.* **122** 257401
- [14] Choi W, Lee K H, Kim Y B 2020 *Phys. Rev. Lett.* **124** 117205
- [15] Nandkishore R M, Choi W, Kim Y B 2021 *Phys. Rev. Res.* **3** 013254
- [16] Parameswaran S A, Gopalakrishnan S 2020 *Phys. Rev. Lett.* **125** 237601
- [17] Phuc N T, Trung P Q 2021 *Phys. Rev. B* **104** 115105
- [18] Li Z L, Oshikawa M, Wan Y 2021 *Phys. Rev. X* **11** 031035
- [19] Hamm P, Meuwil M, Johnson S L, Beaud P 2017 *Struc. Dyn.* **4** 061601
- [20] Hahn E L 1950 *Phys. Rev.* **80** 580
- [21] Carr H Y, Purcell E M 1954 *Phys. Rev.* **94** 630
- [22] Abella I D, Kurnit N A, Hartmann S R 1966 *Phys. Rev.* **141** 391
- [23] Pfeuty P 1970 *Ann. Phys.* **57** 79
- [24] Anderson P W 1984 *Basic Notations of Condensed Matter Physics* (Benjamin Cummings) pp92–104
- [25] Zvezdin A, Kotov V 1997 *Modern Magneto-optics and Magneto-optical Materials* (New York: Taylor & Francis)
- [26] Lieb E, Schultz T, Mattis D 1961 *Ann. Phys.* **16** 407
- [27] Affleck I 1988 *Les Houches Summer School in Theoretical Physics: Fields, Strings, Critical Phenomena* pp563–640
- [28] Giamarchi T 2003 *Quantum Physics in One Dimension* (Oxford: Oxford University Press)
- [29] von Delft J, Schoeller H 1998 *Ann. Phys.* **7** 225
- [30] Shankar R 1993 *Acta Phys. Polonica B* **26** 12
- [31] Pham K V, Gabay M, Lederer P 2000 *Phys. Rev. B* **61** 16397
- [32] Kamenev A 2011 *Field Theory of Non-Equilibrium Systems* (Cambridge: Cambridge University Press)
- [33] Sachdev S, Young A P 1997 *Phys. Rev. Lett.* **78** 2220
- [34] Damle K, Sachdev S 1998 *Phys. Rev. B* **57** 8307
- [35] Damle K, Sachdev S 1998 *Phys. Rev. Lett.* **95** 187201

## SPECIAL TOPIC—Non-equilibrium quantum many-body systems

# A theoretical survey of two-dimensional coherent spectroscopy in strongly-correlated electronic systems\*

Li Zi-Long<sup>1)2)</sup> Wan Yuan<sup>1)2)3)†</sup>

1) (*Key Laboratory of Condensed Matter Theory and Computation, Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China*)

2) (*School of Physical Science, University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China*)

3) (*Songshan Lake Materials Laboratory, Dongguan 523808, China*)

( Received 23 August 2021; revised manuscript received 30 September 2021 )

### Abstract

Two-dimensional coherent spectroscopy (2DCS) diagnoses a material's nonlinear optical response with multiple time variables, thus offering information that is inaccessible with conventional linear optical spectroscopy. The 2DCS in the infrared, visible, and ultraviolet frequency range has yielded fruitful results in chemistry and biology. In the terahertz (THz) frequency window, 2DCS has shown its promise in the study of strongly-correlated electronic systems. As a guide to this rapidly developing field, we survey the current status of the theory of THz-2DCS in strongly-correlated electronic systems. We then introduce the basic concepts and theoretical methods of 2DCS, and analyze the main characteristics of the two-dimensional spectra. Finally, we summarize our latest theoretical research in this field.

**Keywords:** two-dimensional coherent spectroscopy, strongly-correlated electronic system

**PACS:** 05.45.-a, 03.65.Yz, 03.75.Kk, 05.30.Pr

**DOI:** 10.7498/aps.70.20211556

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 11974396) and the Strategic Priority Research Program of Chinese Academy of Sciences (Grant No. XDB33020300).

† Corresponding author. E-mail: [yuan.wan@iphy.ac.cn](mailto:yuan.wan@iphy.ac.cn)