

PdTe₂ 中的新等离子体类似模式：拉曼散射和记忆函数研究

Bharathiganesh Devanarayanan ^{a,b,*}, Sahil Rathi^{a,b}, Jalaja Pandya^a,
Sonika^c, C.S.Yadav^c, Navinder Singh^a, Satyendra Nath Gupta^{a,**}

^a Physical Research Laboratory,

Navrangpura Ahmedabad, India - 380009

^b Indian Institute of Technology, Gandhinagar, Palaj, Gujarat, India - 382355

^c School of Physical Sciences, Indian Institute of Technology Mandi,

Kamand, Mandi, Himachal Pradesh, India -175075

Corresponding authors: *dbharathiganesh@gmail.com, **satyendra@prl.res.in

摘要

PdTe₂ 是一种 II 型 Dirac 半金属，因其有趣的电子和拓扑性质而受到广泛关注。这里我们报道了在 10K 到 300K 温度范围内对 PdTe₂ 的温度依赖拉曼散射研究。我们的研究表明，在 100K 以下出现了一个新的未报告的峰值，中心位于 250 cm⁻¹。我们认为这种新模式不是声子模式，因为使用密度泛函理论计算得到的拉曼光谱只显示出两个强烈的峰值在 85 cm⁻¹ 和 128 cm⁻¹ 处。为了确定这个新峰值的起源，我们构建了一个电子与单一等离子体模在 250 cm⁻¹ 耦合的微观模型，并利用记忆函数形式主义，得出拉曼弛豫率与频率呈线性关系。我们还对实验数据进行了拉曼响应的经验分析，并计算了频率依赖的拉曼弛豫率，也发现它与频率呈线性相关。通过我们的理论和经验结果的一致性，我们可以确定在低温下观察到的新模式确实是一种等离子体模。此外，在 100K 以上，两种声子模的频率和线宽表现出异常行为。

1 介绍

狄拉克半金属是一种有趣的材料，在狄拉克点处，导带和价带相遇，并形成四个简并的能带交叉。在该狄拉克点附近的电子色散是线性的，并形成了位于狄拉克点上方和下方的“狄拉克锥”。如果狄拉克锥在动量空间中倾斜且各向异性，这种材料被称为第二类狄拉克半金属。其中一个例子是二碲化钼 (PdTe₂)，这是一种过渡金属双卤族化合物 (TMDC)，因其表现出的各种有趣的物理性质而最近受到了科学界的广泛关注 [1, 2]。它显示出超导性，T_c 为 1.7 K [3, 4]，并且据报道是一种具有倾斜狄拉克锥 [1, 5] 和非平凡拓扑表面态 [6, 7, 8] 的第二类狄拉克半金属。

尽管对 PdTe₂ 的电子性质进行了广泛的研究，但与晶格振动、电子声子耦合等相关性质仍研究不多。拉曼光谱学 [9, 10] 是一种强大的非破坏性分析工具，可以提供关于晶格振动

[11]、电子-声子相互作用 [12, 13]、等离子体激元 [14, 15] 以及拓扑绝缘体 [16, 17, 18]、量子自旋液体 [19]、高温超导体 [13]、二维材料 [20, 21, 22] 等材料的奇异量子激发的详细见解。低温下进行的拉曼光谱分析提供了可能在室温下被掩盖的额外光谱信息 [23, 24, 25, 26]。

在另一种 Dirac 材料 (Cd_3As_2) 上进行的低温拉曼散射实验报告称, 在特征温度 100 K [25] 以下, 大约 250cm^{-1} 处出现了一种新的拉曼模式。然而, 关于这种新拉曼模式起源的合理解释似乎在文献中缺失。还应注意的是, 在这些系统中的 100K 温度附近表现出异常行为的现象已在其他实验中被强调, 例如热传输实验 [27]。

在这里, 我们报告了对 PdTe_2 在不同温度下 (从低至 10K 到室温) 进行的依赖于温度的拉曼光谱详细研究。我们注意到在较低温度 ($\lesssim 100\text{K}$) 下, PdTe_2 的拉曼光谱中出现了一个新的峰值, 并分析了该峰值位置和宽度随温度的变化情况。这个新峰出现在大约 250cm^{-1} 处, 并且比另外两个以 125cm^{-1} 和 165cm^{-1} 为中心的声子峰要宽广。另外两种拉曼模式在其声子频率和线宽上也表现出在 100K 以上的异常行为。

我们的密度泛函理论 (DFT) 计算表明, PdTe_2 中只有两个声子模式, 这意味着新出现的峰值可能对应于在 100 K [25] 以下出现的一个类等离子体激元模式。为了确认这一点, 我们使用记忆函数形式和现象学分析 [28] 对电子与单个类等离子体激元模式 [29] 相耦合的简单微观模型进行了理论计算, 以从实验获得的拉曼光谱中得出拉曼弛豫率和质量增强因子。我们在理论分析和现象学分析中都观察到, 在存在第三个峰值的情况下, 温度低于 100 K 时, 拉曼弛豫率相对于频率表现出线性行为, 这显然表明系统中存在类等离子体激元模式, 这一点从简单微观模型的结果中可以明显看出。

文章组织如下。在 2 节中, 我们讨论了为获得本文报告的结果而进行的实验细节。然后我们在 3 节中展示了实验、计算、理论和现象学结果。接着我们在 4 节中详细讨论了我们的结果的影响。最后在 5 节中总结文章。

2 实验详情

钼碲₂ 的单晶是通过固态反应方法合成的。首先, 制备多晶样品, 取钼 (99.95%) 和碲 (99.999%) 颗粒, 并按正确的化学计量比比。然后将反应物研磨、压片, 并密封在真空石英管中, 压力低于 10^{-4}mbar 。在第二步中, 含有样品的管被加热到 850°C 温度持续 48h, 随后以非常缓慢的速度冷却至 550°C , 冷却速率为 $2.5^\circ\text{C per hour}$ 。然后保持在 550°C 温度持续 48h, 自然冷却到室温。获得的单晶尺寸为 $\sim 2 \times 5\text{mm}^2$, 定向于 ab 平面。化合物的相纯度和组成通过 x 射线衍射和 SEM-EDAX 进行了检查; 这些结果在其他地方报道了 [27]。

拉曼测量在背散射配置中使用配备有 Renishaw inVia 拉曼显微镜的微光学系统以及 Peltier 冷却电荷耦合检测器和 532-nm 二极管激光器, 在不同温度下进行。 PdTe_2 的单晶被放置在一个与闭循环氮压缩机系统相连的光学低温恒温器中。温度变化是通过一个控温加热器 (Lakeshore) 进行的, 其温度精度为 0.1 K。

3 结果

3.1 实验结果

图 1 显示了 PdTe₂ 在 300K 的拉曼光谱 (图 1a)。我们观察到了两种拉曼模式, 根据下文中的 DFT 计算部分所述, 这些模式被分配给 A_{1g} 和 E_g 模式。温度依赖的拉曼光谱演化显示在图 1 中。需要注意在 10K 附近以 250 cm⁻¹ 为中心出现了一个深刻的第三个峰值, 这个新峰明显比现有的两个拉曼模式更宽。对于一个特征温度值 (100 K), 前两个峰值的位置和形状相对保持不变, 但第三个峰值的强度显著下降。对于更高的温度 (300 K), 前两个峰值几乎没有变化地持续存在, 但第三个峰值已经完全消失。

这清楚地表明了在此较低温度下 PdTe₂ 出现了一个新的拉曼模式, 这一现象此前未见文献报道。为了进一步分析这个新模式并与另外两个模式进行比较, 我们使用洛伦兹线形拟合拉曼光谱以获得声子频率、半高宽 (FWHM) 和模式强度。这三个峰值的位置和宽度随温度的变化分别如图 2 和图 3 所示。很明显, 这个新模式的峰值位置随着温度升高向较低波数偏移。这个新模式的 FWHM 随着温度升高略有增加。这两个声子模式的频率和 FWHM 分别在温度升高时变软和变宽。我们使用简单的立方非谐性模型来模拟这些模式随温度的变化, 其中声子衰变为两个能量相等的声子, 从而给出了声子频率和 FWHM 的温度依赖性。

$$\omega^{cubic}(T) = \omega(0) + C[1 + 2n(\omega(0)/2)] \quad (3.1)$$

$$\Gamma^{cubic}(T) = \Gamma(0) + D[1 + 2n(\omega(0)/2)] \quad (3.2)$$

其中 $\omega(0)$ 是绝对零度下的频率, $n(\omega) = 1/(\exp(\hbar\omega/k_B T) - 1)$ 是玻色-爱因斯坦平均占据数。 $\hbar$ 和 k_B 分别是普朗克常数和玻尔兹曼常数。 $\Gamma(0)$ 是绝对零度下的线宽。这里, 假设 C 和 D 为取决于三个声子相互作用顶点的常数。系数 C 通常是负值, 即随着温度升高, 声子频率降低。系数 D 通常是正值, 即随着温度升高, 声子线宽增加。该模型很好地拟合了直到 100K 的频率和 FWHM 数据, 并在 100K 以上显示出轻微偏差。

3.2 DFT 计算

我们的基于密度泛函理论 (DFT) 的第一性原理计算使用了 QUANTUM ESPRESSO 软件包实现的投影增强波方法 [30]。模拟是在广义梯度近似 (GGA) 中进行的, 包含了自旋轨道耦合 (SOC)。PdTe₂ 的结构参数来自材料项目 [https://next-gen.materialsproject.org]。平面波动能截断取为 70 Ry。使用了 8x8x8 的 k 网格来采样布里渊区。声子和拉曼光谱通过密度泛函微扰理论 (DFPT) 计算得出。

为了分析 PdTe₂ 的声子性质, 我们首先优化了晶体结构。如第 1 节所述, 它是一种分层八面体结构, 空间群为 P-3m1 (编号 164)。一个 Pd 原子有 6 个 Te 原子作为其最近邻形成一个八面体 (该结构见图 4)。c/a 比值是 ~ 1.27 , 这小于典型的 hcp 结构的比值。

结构的动态稳定性通过声子计算得到确认, 这些计算给出了没有虚频的振动光谱。存在九种振动模式, 其中三种是声学模, 六种是光学模。在 Γ 处进行的声子计算揭示了两个拉曼

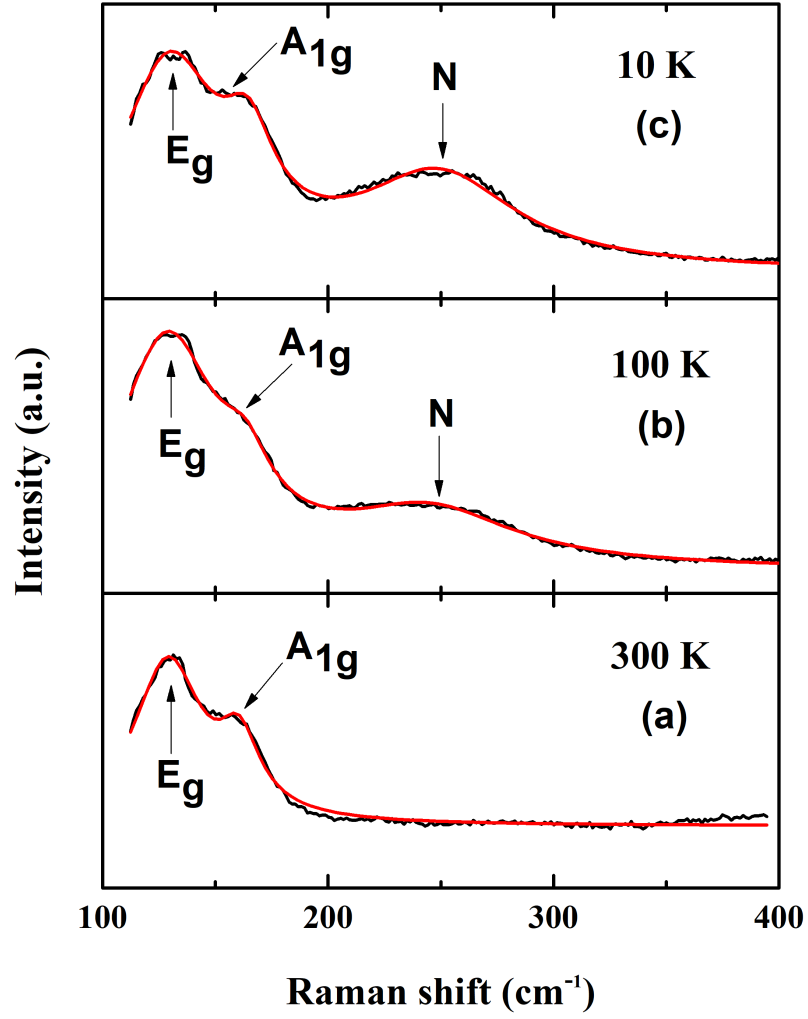


图 1: 测量强度 (任意单位) (黑色) 作为拉曼位移 (cm^{-1}) 的函数以及相应的洛伦兹拟合 (红色), 对应三个不同的温度值: (a) 300 K, (b) 100 K 和 (c) 10 K。两个峰 E_g 和 A_{1g} 已经在文献中有所报道。然而, 在较低温度下出现了一个新的峰, 我们将其标记为 “N”。

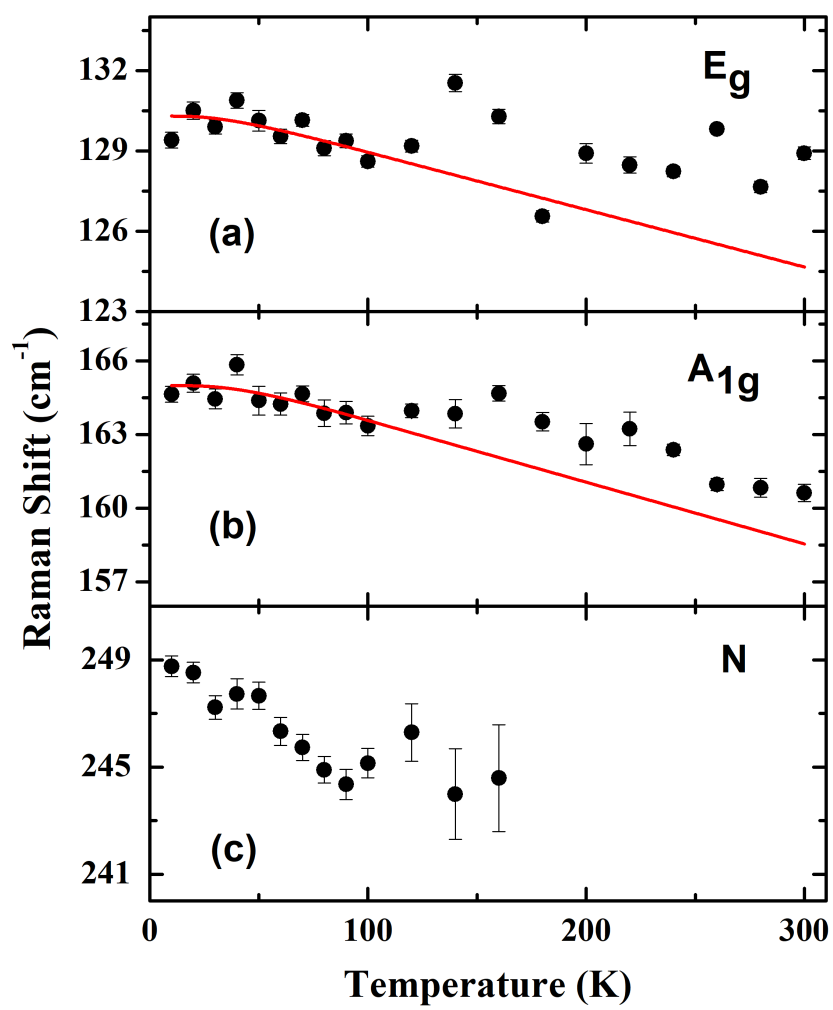


图 2: 从图 1 数据的洛伦兹拟合获得的峰位置中心作为温度的函数 (黑点) 对于 (a) E_g 峰, (b) A_{1g} 峰和 (c) N 峰。红线是非谐性拟合。

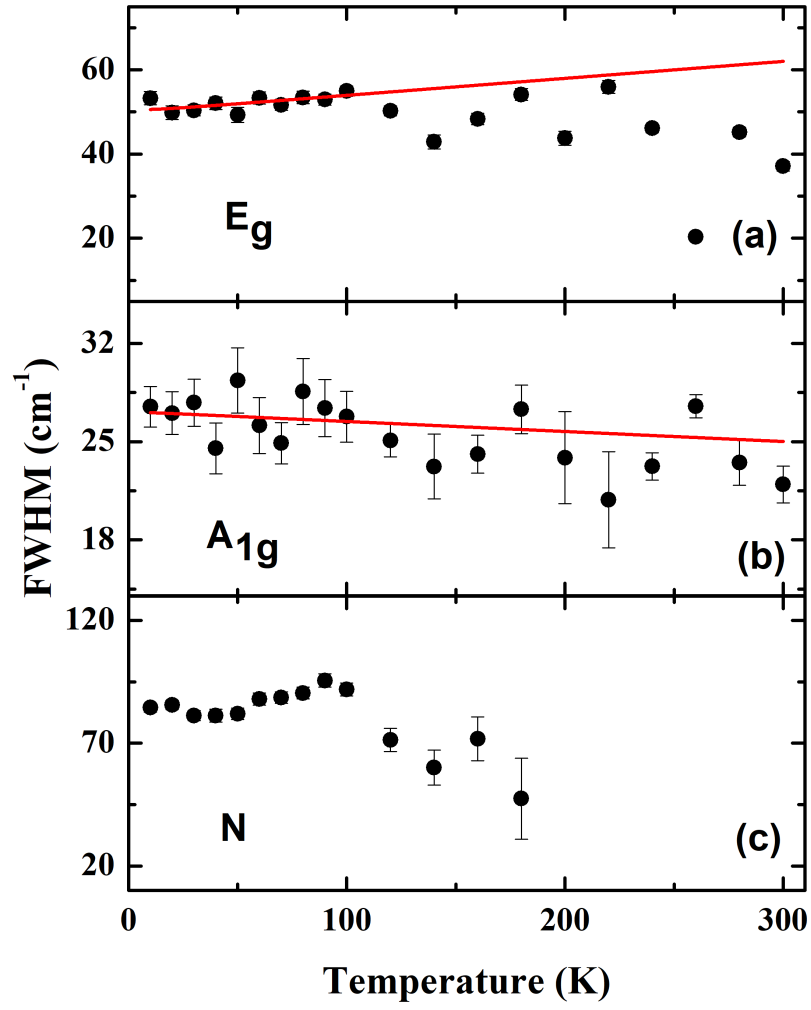


图 3: 半高全宽 (FWHM) 通过洛伦兹拟合从图 1 中获得的峰, 作为温度的函数 (黑色点), 对于 (a) E_g 峰, (b) A_{1g} 峰和 (c) N 峰。红线是非谐性拟合。

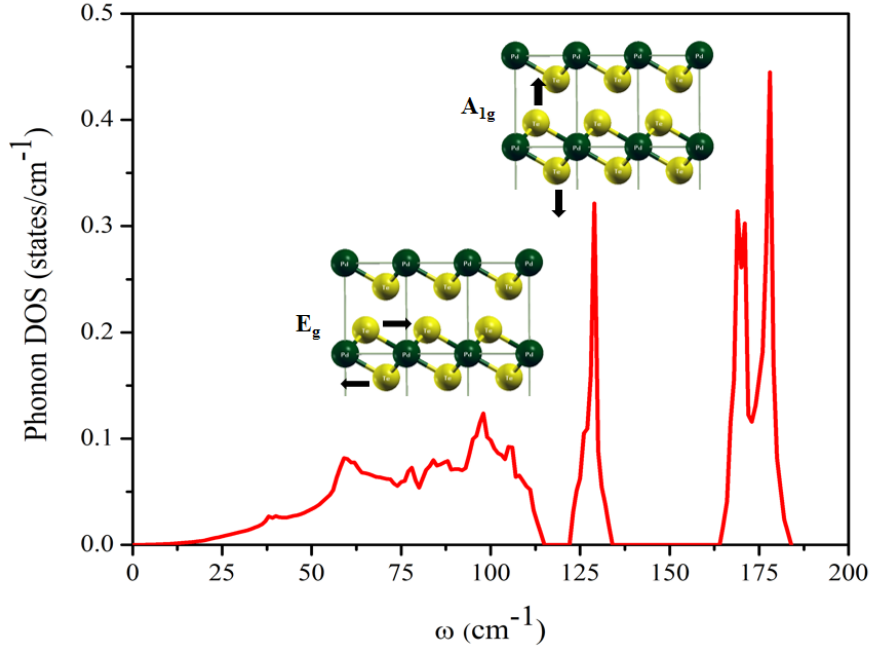


图 4: PdTe₂ 的 PhDOS 与拉曼模式本征向量。

模分别位于 85cm^{-1} 和 128cm^{-1} ，对应于 E_g 和 A_{1g} 模式。根据这些计算，我们将实验中观察到的两个拉曼模式分配为 E_g 和 A_{1g} 模式。在九种振动模式中，两种是 E_g 模式，一种是 A_{1g} 模式。相同的两种拉曼模式也在 2D-PdTe₂（单层）的 DFT 模拟 [31] 中被观察到。 E_g 模式与面内振动简并，而 A_{1g} 模式与面外振动非简并。对应于拉曼模式的本征向量显示在图 4 中，同时还包括了 PdTe 的声子态密度 (PhDOS)₂。

3.3 理论模型：记忆函数形式主义

基于我们对不同温度下拉曼光谱实验数据的分析，很明显在特征温度 100K 以下，光谱中出现了一个显著的第三个峰。我们在 3.2 节讨论的 DFT 计算表明，在 PdTe₂ 中只有两种拉曼模式 (E_g 和 A_{1g}) 可以分配给声子。这清楚地暗示第三个模式不是一个声子模式，由于系统是非磁性的，它也不能是磁元激发模式。对类似系统拉曼研究的文献回顾显示出现了一个类似的峰值，集中在 250cm^{-1} 周围，并被称为“类等离子体” [25]。然而，在文献中没有明确的微观或现象学模型来支持这一说法。我们打算继续这种假设并从记忆函数的虚部计算拉曼弛豫率。然后我们将它与实验直接获得的散射率（拉曼光谱）进行比较。理论上计算出的和通过现象学方法得到的拉曼弛豫率之间的合理一致将证明我们的假设的有效性。

在本节中，我们将讨论一个基于记忆函数形式 [29, 32] 的微观模型，在系统中存在单个等离子体模式。我们只考虑一种等离子体模式，因为我们事先从实验得知系统中仅有一个大约

250cm⁻¹ 波数的等离子体模式。该模型的哈密顿量如下：

$$H = H_0 + H_{el-plas}, \quad (3.3)$$

$$H_0 = \sum_K \varepsilon_k c_k^\dagger c_k, \quad (3.4)$$

$$H_{el-plas} = \sum_{k,k'} \lambda (c_k^\dagger c_{k'} b_{k-k'} + H.C.), \quad (3.5)$$

其中, H_0 是自由电子部分, $c_k^\dagger(c_k)$ 是电子创造(湮灭)算符, $b_k^\dagger(b_k)$ 是等离子体创造(湮灭)算符, λ 是电子-等离子体耦合强度。

在记忆函数形式主义中, 系统的动态响应是用弛豫或记忆函数 $M(z)$ 来表示的。对于拉曼响应的情况, 复数拉曼响应函数 $\chi(z)$ 作为记忆函数 $M(z)$ 的函数给出为 [29, 28, 32]:

$$\chi(z) = \frac{M(z)}{z + M(z)}. \quad (3.6)$$

由于记忆函数的渐近行为和对称性属性 ($M(z) = -M(-z)$ 和 $M^*(z) = M(z^*)$), 它可以表示为谱函数 $M''(\omega)$ 如下:

$$M(z) = \frac{1}{\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} d\xi \frac{M''(\xi)}{\xi - z}, \quad (3.7)$$

其中 $M''(\omega)$ 是 $M(z)$ 的解析延拓到实轴上, 意味着:

$$M(\omega \pm i\delta) = M'(\omega) \pm iM''(\omega). \quad (3.8)$$

对于真实频率 ω 的情况, 从记忆函数的对称性属性 ($M(z)$), 我们看到 $M'(\omega)$ 和 $M''(\omega)$ 分别是奇函数和偶函数。有了这一点, 通常遵循的 $M(\omega)$ 的符号是:

$$M(\omega) = \omega \lambda(\omega) + i\Gamma(\omega), \quad (3.9)$$

其中, 函数 $\lambda(\omega)$ 和 $\Gamma(\omega)$ 都是偶函数。 $\lambda(\omega)$ 描述了频率相关的质量增强, 其中 $1 + \lambda(\omega) = m^*/m_b$, 这里 m_b 是带质量。 $\Gamma(\omega)$ 可以解释为频率依赖的拉曼弛豫时间 (或拉曼弛豫率) 的逆。

通过这一介绍, 可以看出记忆函数的虚部给出了拉曼弛豫率。我们推导出的记忆函数虚部的计算表达式 (类似于系统中电子与声子耦合的情况) 如下所示 [29, 28, 32]:

$$M''(\omega) = \frac{2\pi}{3} \frac{\lambda^2}{ne^2 m^*} \sum_{k,k'} |k - k'|^2 (1 - f_k) f_{k'} n_{k-k'} \left(\frac{e^{\beta\omega} - 1}{\omega} \delta(\varepsilon_k - \varepsilon_{k'} - \omega_{k-k'} + \omega) - (terms with \omega \rightarrow -\omega) \right). \quad (3.10)$$

假设只存在一个等离子体模, 并且满足能量和动量守恒, 在进行一些进一步的简化后, 我们得到:

$$M''(\omega) = \frac{e^{\beta\omega} - 1}{\omega} \int_0^\infty d\varepsilon [\sqrt{\varepsilon} \sqrt{\varepsilon - \omega_0 + \omega} \theta(\varepsilon - \omega_0 + \omega) \left(1 - \frac{1}{e^{\beta(\varepsilon - \mu)} + 1} \right) \left(\frac{1}{e^{\beta(\varepsilon - \omega_0 + \omega - \mu)} + 1} \right) + (terms with \omega \rightarrow -\omega)]. \quad (3.11)$$

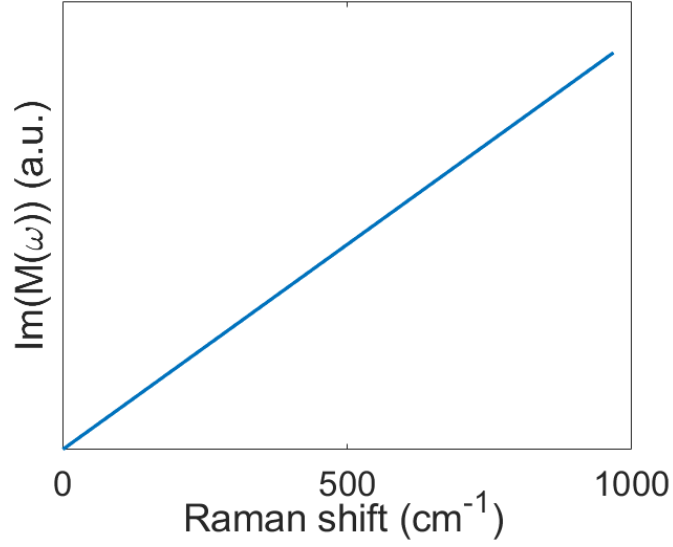


图 5: 记忆函数的虚部作为波数的函数表明两者之间存在线性关系。

数值积分方程 3.11 中的积分，我们可以得到记忆函数的虚部作为波数的函数。通过获得的记忆函数的虚部，在感兴趣的区域即在温度低于 100 K ($\sim 10\text{K}$) 时，在 $100\text{-}1000\text{cm}^{-1}$ 波数范围内绘制它，我们得到了记忆函数的虚部与波数之间的线性关系，如图 5 所示。

在此需要回忆的是，记忆函数的表达式为： $M(\omega) = \omega\lambda(\omega) + i\Gamma(\omega)$ (其中， $\Gamma(\omega)$ 是拉曼弛豫率而 $\lambda(\omega)$ 是质量增强因子)。从我们的微观模型中我们发现，在我们感兴趣的区域里，即我们在实验中获得结果的区域内，拉曼弛豫率与波数呈线性依赖关系。如果我们能够从实验数据出发现象学地计算出弛豫率，并且发现它与波数存在线性依赖关系，那么我们可以断定第三个峰起源于等离子体。为此，在下一节我们将讨论这一现象学分析。

3.4 现象学分析

在本节中，我们将讨论实验数据的现象学分析。我们将遵循 M.Opel 等人在 [28] 中引入的形式主义来分析电子拉曼光谱 (ERS) 数据，这与 Götze 和 Wölfle[29] 的原始公式不同。我们将展示弛豫率 ($\Gamma(\omega)$) 和质量增强因子 ($1 + \lambda(\omega) = m^*/m_b$) 的计算值，其中 m_b 是带质量。

在记忆函数形式中，相关函数 $I(\omega, T)$ 与所测量的拉曼光谱有关，定义如下：

$$I(\omega, T) = \frac{\dot{N}(\omega, T)}{\omega\{1 + n_B(\omega, T)\}}, \quad (3.12)$$

其中， $\dot{N}(\omega, T)$ 是实验测量的拉曼光谱，而 $n_B(\omega, T)$ 是玻色-爱因斯坦函数，定义为：

$$n_b(\omega, T) = 1/(\exp((\hbar\omega/k_B T) - 1)). \quad (3.13)$$

利用实验数据并获得 $I(\omega, T)$ 后，可以从以下表达式中得到拉曼弛豫率 ($\Gamma(\omega)$) 和质量增强因子 ($1 + \lambda(\omega)$)：

$$\Gamma(\omega) = R \frac{I(\omega)}{[I(\omega)]^2 + [\omega K(\omega)]^2}, \quad (3.14)$$

$$1 + \lambda(\omega) = R \frac{K(\omega)}{[I(\omega)]^2 + [\omega K(\omega)]^2}, \quad (3.15)$$

其中 $\omega K(\omega, T)$ 是 $I(\omega, T)$ 的克雷默-克龙尼格变换；因此 $K(\omega, T)$ 的表达式如下：

$$K(\omega) = -\frac{2}{\pi} \mathcal{P} \int_0^{\omega_c} d\xi \frac{I(\xi)}{\xi^2 - \omega^2}, \quad (3.16)$$

其中 $\mathcal{P}$ 表示主值积分，而归一化因子 R 由以下求和规则确定：

$$R = \frac{2}{\pi} \int_0^{\omega_c} d\omega I(\omega). \quad (3.17)$$

在上述积分中， ω_c 是执行数值积分的上限截止频率。

利用上述表达式，我们计算了 PdTe_2 在不同温度下的拉曼弛豫率和质量增强因子，这些数据来自于实验拉曼光谱。结果呈现在图 6 中。

在讨论图 6 和 7 所示的结果之前，我们将简要讨论一些用于验证数值计算合法性的基准。最重要的是，我们为 $\Gamma(\omega)$ 和 $\lambda(\omega)$ 获得的光谱依赖性应该能够通过足够光滑的函数来描述，在我们的结果中确实如此。此外，结果不应大幅度依赖于执行数值积分时使用的上限波矢值。一个合理的截断规定是感兴趣区域上限的 3 到 5 倍。我们取截断为上限的 10 倍 (1000 cm^{-1})。最后，在较高频率下，质量增强因子 ($1 + \lambda(\omega)$) 的值应该随着系统中自由非局域载流子的 $\lambda(\omega)$ 接近零而渐近地趋近于 1。

我们现在将讨论通过我们的现象学模型获得的结果。根据图中所示的 PdTe_2 在不同温度下的拉曼弛豫率和质量增强因子曲线（图 6 和 7），我们可以推断出以下内容：

- 我们划分的低温和高温分支是基于特征温度 ($\sim 100 \text{ K}$)，这对应于实验拉曼光谱数据中第三个峰值的出现。低于和高于特征温度的温度分别称为低温和高温。
- 拉曼弛豫率 ($\Gamma(\omega)$) 在较低温度 (10K、50K、100K) 下是频率 (ω) 的线性函数，直到 1000 cm^{-1} 。
- 拉曼弛豫率 ($\Gamma(\omega)$) 对于较高温度 (140 K, 200 K, 300 K) 不是频率 (ω) 的线性函数，并在约 1000 cm^{-1} 处开始饱和。这表明了声子散射。在声子散射中，弛豫率在德拜波数 (对于 PdTe_2 : 1408 cm^{-1} [33]) 处饱和，这一点可以从图 6 所示的上述温度范围内的弛豫率中看出。
- 质量增强因子 ($1 + \lambda(\omega)$) 随着频率 (ω) 的增加而减少，对于所有温度值都如此，并且渐近达到 1 的值。然而，较高的温度值 (140 K、200 K、300 K) 下降得比较低的温度值 (10 K、50 K、100 K) 更快。

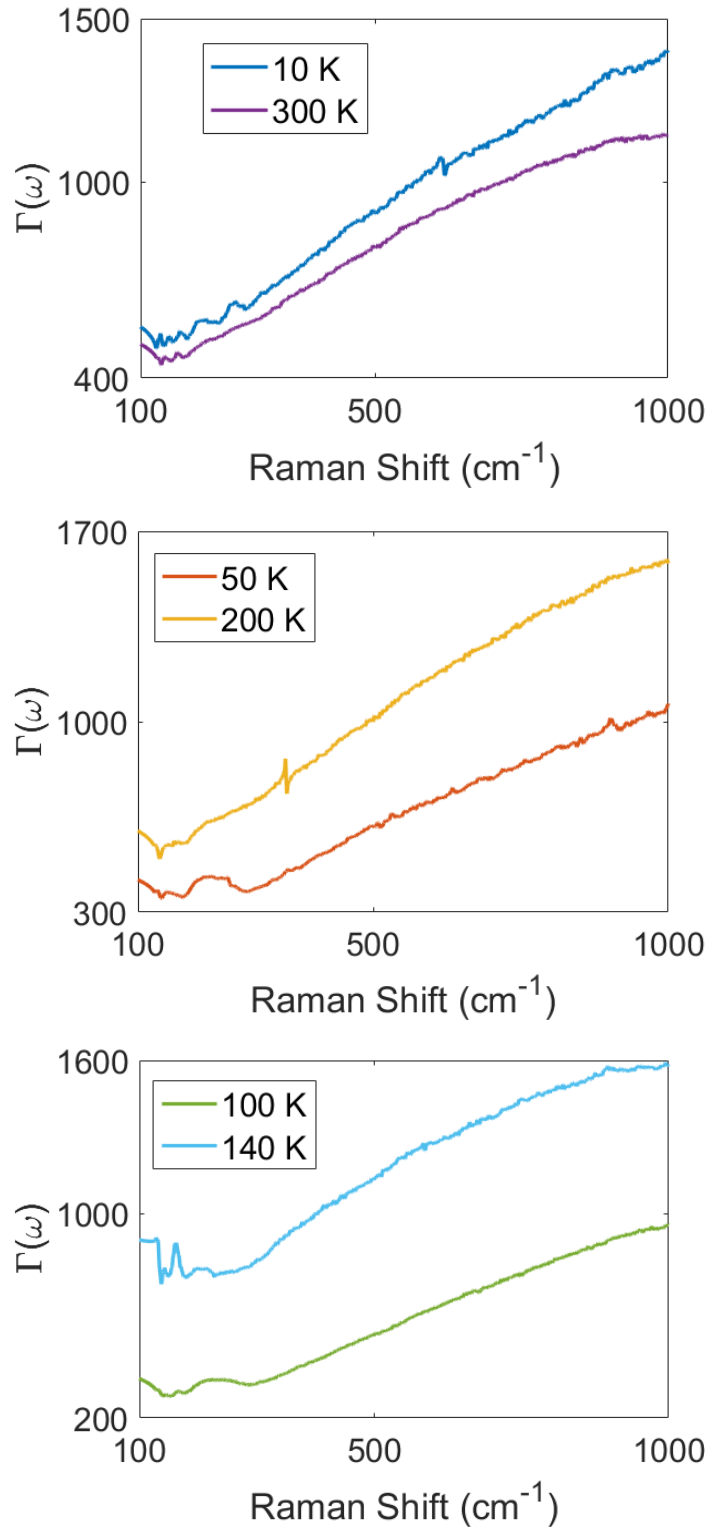


图 6: 来自记忆函数形式的弛豫率图。每个图比较了在拉曼光谱中存在或不存在新的峰值“N”时, 某一温度下的弛豫率作为频率的函数的变化。对于拉曼光谱中具有新的峰值“N”的温度值, 弛豫率呈线性关系, 这是等离子体散射的特征, 证实了“N”峰的等离子体起源。

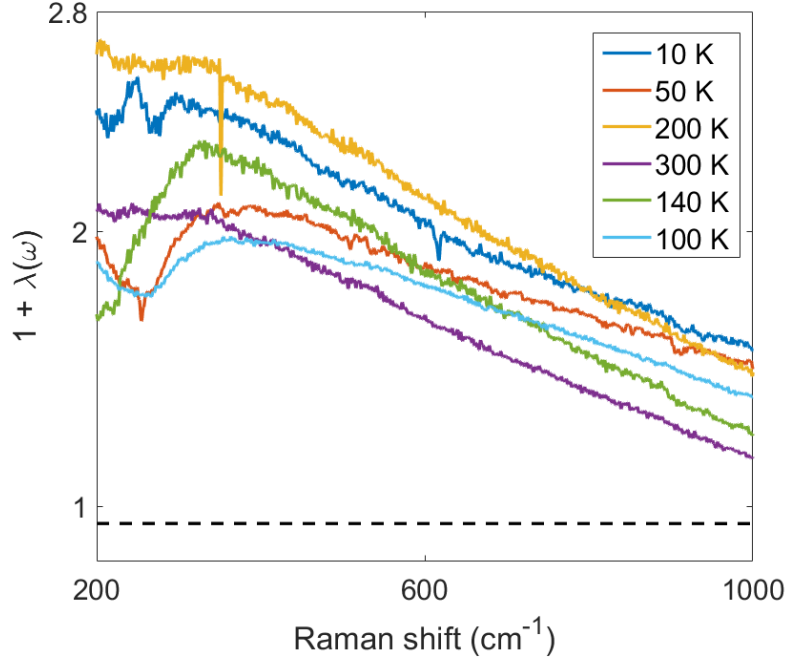


图 7: 质量增强因子作为不同温度下频率的函数。对于拉曼光谱中没有“N”峰的温度，质量增强因子迅速下降，而对于有“N”峰存在的温度则不然。

- 随着温度的变化，拉曼弛豫率和质量增强因子的行为发生了剧烈变化，并且这种变化与拉曼光谱中第三个峰值的出现直接相关，这一点非常有趣。特别是没有发现 $T \lesssim 100\text{ K}$ 存在 Drude 尺度 (ω_D) 的迹象。

将本节获得的结果与前几节获得的结果进行比较，我们可以果断得出结论，新的峰值对应于类似等离子体激元的模式。我们将在下一节详细讨论这一点。

4 讨论

基于 PdTe_2 的拉曼光谱的实验、计算和理论分析，我们得出以下结论：

钼碲₂ 的拉曼光谱在低温下揭示了一个新的峰（图 1 中标记为“N”），该峰值出现在 100 K 以下，与已报道的两个峰值“ E_g ”和“ A_{1g} ”一同出现。新峰比其他两个峰更宽，并且中心位于 250 cm^{-1} 波数附近。两个声子峰的频率和线宽在 100 K 以下遵循立方非谐性。在 100 K 以上，新的峰值消失，而另外两个声子模式表现出异常行为。

我们的 DFT 计算显示，在 PdTe_2 中只有两种声子模式，即已报道的“ E_g ”和“ A_{1g} ”模式。这使我们得出结论，第三个峰并非源自声子。它也不能是磁元激发模式，因为该系统是非磁性的。剩下的唯一可能性是它起源于类似等离子体激元的散射。

从电子拉曼散射 [25] 可能发出的新模式的提示中，我们构建了一个简单的微观模型，即电子与单个等离子体模式耦合。这是有道理的，因为我们从实验中得知只存在一个类似等离

子体的模式（在 250cm^{-1} 波数下 100 K 以下）。我们构建的模型类似于爱因斯坦的电子-声子耦合模型。我们的计算显示，在感兴趣的区域（ $100\text{-}1000\text{cm}^{-1}$ ），从记忆函数形式得出的拉曼弛豫率表明散射率与波数呈线性关系。

然后通过实验数据的现象学分析计算了拉曼弛豫率和质量增强因子。我们观察到，从现象学模型获得的拉曼弛豫率在 100 K 以下也具有与波数的线性依赖关系。对于高于 100 K 的温度，拉曼弛豫率饱和于德拜波数为 1400cm^{-1} 的 PdTe_2 附近。这是预料之中的，因为在 100 K 以上，我们只有声子模式且声子模式的散射率在德拜波数处饱和。这清楚地表明，在 100 K 以下，无论是在微观模型还是现象学分析中，我们都获得了拉曼弛豫率与频率的线性依赖关系。

我们从微观和现象学模型中获得的结果的一致性使我们得出结论，出现在特征温度（ $\sim 100\text{K}$ ）以下的新峰值是一种等离子体模。

5 结论

我们的研究在 PdTe_2 中发现了一些令人兴奋的结果，特别是在波数中心位于 250cm^{-1} 以下 100 K 的新模式的出现。这种模式已在类似材料（ Cd_3As_2 ）的低温拉曼光谱中报道过，但该拉曼模式的起源尚未被完全理解。我们的 DFT 计算显示系统中仅有两种声子模式，因此新模式应该有不同来源。由于系统是非磁性的，它不可能是磁元激发模式。这使我们有可能认为这是一种类等离子体激发模式。

在这一假设下，我们构建了一个电子与单个等离子体模耦合的简单微观模型，并从记忆函数形式出发得出，在我们感兴趣的区域（ $100\text{-}1000\text{cm}^{-1}$ ）内，拉曼弛豫率应与频率呈线性依赖关系。然后，我们通过实验获得的拉曼光谱来现象学地计算拉曼弛豫率，并发现由此得到的散射率也显示出与频率呈线性的依赖关系。从理论模型计算出的拉曼弛豫率和从实验中现象学得出的结果之间的吻合，使我们能够得出结论：在 PdTe_2 中的新拉曼模式是一种类等离子体的模式。

致谢

本工作得到印度政府空间部物理研究实验室 (PRL) 的支持。计算使用了 PRL 项目的 HPC 资源 (Param Vikram-1000 HPC)。B.D. 和 J.P. 感谢 Som Narayan 博士关于 DFPT 计算的讨论。

参考文献

- [1] O. J. Clark, M. J. Neat, K. Okawa, L. Bawden, I. Marković, F. Mazzola, J. Feng, V. Sunko, J. M. Riley, W. Meevasana, J. Fujii, I. Vobornik, T. K. Kim, M. Hoesch,

- T. Sasagawa, P. Wahl, M. S. Bahramy, and P. D. C. King. Fermiology and superconductivity of topological surface states in PdTe₂. *Phys. Rev. Lett.*, 120:156401, Apr 2018.
- [2] Sonika, M. K. Hooda, Shailja Sharma, and C. S. Yadav. Planar hall effect in Cu intercalated PdTe₂. *Applied Physics Letters*, 119(26):261904, Dec 2021.
- [3] Hancheng Yang, M. K. Hooda, C. S. Yadav, David Hrabovsky, Andrea Gauzzi, and Yannick Klein. Anomalous charge transport of superconducting Cu_x PdTe₂ under high pressure. *Phys. Rev. B*, 103:235105, Jun 2021.
- [4] Aastha Vasdev, Anshu Sirohi, M K Hooda, C S Yadav, and Goutam Sheet. Enhanced, homogeneously type-II superconductivity in Cu-intercalated PdTe₂. *Journal of Physics: Condensed Matter*, 32(12):125701, Dec 2019.
- [5] Han-Jin Noh, Jinwon Jeong, En-Jin Cho, Kyoo Kim, B. I. Min, and Byeong-Gyu Park. Experimental realization of type-II Dirac fermions in a PdTe₂ superconductor. *Phys. Rev. Lett.*, 119:016401, Jul 2017.
- [6] H. Leng, J.-C. Orain, A. Amato, Y. K. Huang, and A. de Visser. Type-I superconductivity in the Dirac semimetal PdTe₂ probed by μ SR. *Phys. Rev. B*, 100:224501, Dec 2019.
- [7] Yan Liu, Jian-Zhou Zhao, Li Yu, Cheng-Tian Lin, Ai-Ji Liang, Cheng Hu, Ying Ding, Yu Xu, Shao-Long He, Lin Zhao, Guo-Dong Liu, Xiao-Li Dong, Jun Zhang, Chuang-Tian Chen, Zu-Yan Xu, Hong-Ming Weng, Xi Dai, Zhong Fang, and Xing-Jiang Zhou. Identification of topological surface state in PdTe₂ superconductor by angle-resolved photoemission spectroscopy. *Chinese Physics Letters*, 32(6):067303, Jun 2015.
- [8] Fucong Fei, Xiangyan Bo, Rui Wang, Bin Wu, Juan Jiang, Dongzhi Fu, Ming Gao, Hao Zheng, Yulin Chen, Xuefeng Wang, Haijun Bu, Fengqi Song, Xiangang Wan, Baigeng Wang, and Guanghou Wang. Nontrivial Berry phase and type-II Dirac transport in the layered material PdTe₂. *Phys. Rev. B*, 96:041201, Jul 2017.
- [9] C. V. Raman and K. S. Krishnan. The negative absorption of radiation. *Nature*, 122(3062), Jul 1928.
- [10] Manish Jha, Amit K. Bhojani, Sachin Pathak, Vishakha Kaushik, and Dheeraj K. Singh. Chapter 22 - Raman spectroscopy: application to carbon-based nanomaterials. In *Applied Raman Spectroscopy*, pages 381–397. Elsevier, 2025.
- [11] R. Merlin, A. Pinczuk, and W. H. Weber. *Overview of Phonon Raman Scattering in Solids*, pages 1–29. Springer Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg, 2000.
- [12] Wei Ren, Helin Mei, Wenbo Sang, Mingshu Tan, Jianguo Si, Miao Liu, Jianting Ji, Feng Jin, Anmin Zhang, and Qingming Zhang. Raman scattering study of electron-phonon coupling in superconducting LaRu₂P₂. *Phys. Rev. B*, 110:144504, Oct 2024.

- [13] Zhang An-Min and Zhang Qing-Ming. Electron—phonon coupling in cuprate and iron-based superconductors revealed by Raman scattering. *Chinese Physics B*, 22(8):087103, Aug 2013.
- [14] Li-Lin Tay. *Surface Plasmons*, pages 1481–1489. Springer International Publishing, 2023.
- [15] Xiang Wang, Sheng-Chao Huang, Shu Hu, Sen Yan, and Bin Ren. Fundamental understanding and applications of plasmon-enhanced Raman spectroscopy. *Nature Reviews Physics*, 2(5):253–271, May 2020.
- [16] N. Kumar, N.V. Surovtsev, D.V. Ishchenko, P.A. Yunin, I.A. Milekhin, O.E. Tereshchenko, and A.G. Milekhin. Resonance Raman scattering of topological insulators Bi_2Te_3 and $\text{Bi}_{2-x}\text{Sb}_x\text{Te}_{3-y}\text{Se}_y$ thin films. *Journal of Raman Spectroscopy*, 56(3), Mar 2025.
- [17] Xiangyu Hou, Xiao Tang, Yunjia Wei, Shanshan Wang, Qi Hao, Jing-Min Hou, and Teng Qiu. Role of dispersion relation effect in topological surface-enhanced Raman scattering. *Cell Reports Physical Science*, 2(7):100488, Jul 2021.
- [18] V. Gnezdilov, Yu. G. Pashkevich, H. Berger, E. Pomjakushina, K. Conder, and P. Lemmens. Helical fluctuations in the Raman response of the topological insulator Bi_2Se_3 . *Phys. Rev. B*, 84:195118, Nov 2011.
- [19] J. Knolle, Gia-Wei Chern, D. L. Kovrizhin, R. Moessner, and N. B. Perkins. Raman scattering signatures of Kitaev spin liquids in A_2IrO_3 iridates with $\text{A} = \text{Na}$ or Li . *Phys. Rev. Lett.*, 113:187201, Oct 2014.
- [20] Fang Liang, Hejun Xu, Xing Wu, Chaolun Wang, Chen Luo, and Jian Zhang. Raman spectroscopy characterization of two-dimensional materials. *Chinese Physics B*, 27(3):037802, Mar 2018.
- [21] Leandro M. Malard, Lucas Lafeta, Renan S. Cunha, Rafael Nadas, Andreij Gadelha, Luiz Gustavo Cançado, and Ado Jorio. Studying 2D materials with advanced Raman spectroscopy: CARS, SRS and TERS. *Phys. Chem. Chem. Phys.*, 23:23428–23444, Nov 2021.
- [22] Dirk Wulferding, Peter Lemmens, Florian Büscher, David Schmeltzer, Claudia Felser, and Chandra Shekhar. Effect of topology on quasiparticle interactions in the Weyl semimetal WP_2 . *Phys. Rev. B*, 102:075116, Aug 2020.
- [23] William J. Taylor, A. Lee Smith, and Herrick L. Johnston. A low temperature Raman cryostat. *J. Opt. Soc. Am.*, 41(2):91–93, Feb 1951.
- [24] Yu. Pashkevich, V. Gnezdilov, P. Lemmens, T. Shevtsova, A. Gusev, K. Lamonova, D. Wulferding, S. Gnatchenko, E. Pomjakushina, and K. Conder. Phase separation in iron chalcogenide superconductor $\text{Rb}_{0.8+x}\text{Fe}_{1.6+y}\text{Se}_2$ as seen by Raman light scattering and band structure calculations. *Low Temperature Physics*, 42(6), Jun 2016.

- [25] A. Sharafeev, V. Gnezdilov, R. Sankar, F. C. Chou, and P. Lemmens. Optical phonon dynamics and electronic fluctuations in the Dirac semimetal Cd_3As_2 . *Phys. Rev. B*, 95:235148, Jun 2017.
- [26] Xiaoting Huang, Yang Gao, Tianqi Yang, Wencai Ren, Hui-Ming Cheng, and Tianshu Lai. Quantitative analysis of temperature dependence of Raman shift of monolayer WS_2 . *Scientific Reports*, 6(1):32236, Aug 2016.
- [27] Sonika, Sunil Gangwar, Nikhlesh Singh Mehta, Gargee Sharma, and C. S. Yadav. Chiral anomaly and positive longitudinal magnetoresistance in the type-II Dirac semimetals A_xPdTe_2 ($\text{A} = \text{Cu}, \text{Ag}$). *Phys. Rev. B*, 108:245141, Dec 2023.
- [28] M. Opel, R. Nemetschek, C. Hoffmann, R. Philipp, P. F. Müller, R. Hackl, I. Tüttő, A. Erb, B. Revaz, E. Walker, H. Berger, and L. Forró. Carrier relaxation, pseudogap, and superconducting gap in high- T_c cuprates: A Raman scattering study. *Phys. Rev. B*, 61, Apr 2000.
- [29] W. Götze and P. Wölfle. Homogeneous dynamical conductivity of simple metals. *Phys. Rev. B*, 6, Aug 1972.
- [30] Paolo Giannozzi, Stefano Baroni, Nicola Bonini, Matteo Calandra, Roberto Car, Carlo Cavazzoni, Davide Ceresoli, Guido L Chiarotti, Matteo Cococcioni, Ismaila Dabo, Andrea Dal Corso, Stefano de Gironcoli, Stefano Fabris, Guido Fratesi, Ralph Gebauer, Uwe Gerstmann, Christos Gougoussis, Anton Kokalj, Michele Lazzeri, Layla Martin-Samos, Nicola Marzari, Francesco Mauri, Riccardo Mazzarello, Stefano Paolini, Alfredo Pasquarello, Lorenzo Paulatto, Carlo Sbraccia, Sandro Scandolo, Gabriele Sclauzero, Ari P Seitsonen, Alexander Smogunov, Paolo Umari, and Renata M Wentzcovitch. QUANTUM ESPRESSO: a modular and open-source software project for quantum simulations of materials. *Journal of Physics: Condensed Matter*, 21(39):395502 (19pp), 2009.
- [31] Vaishali Sharma and Prafulla K Jha. Investigating the lattice dynamics and electronic structure of monolayer PdTe_2 . In *AIP Conference Proceedings*, volume 2265. AIP Publishing, 2020.
- [32] Navinder Singh. *Electronic Transport Theories: From Weakly to Strongly Correlated Materials*. CRC Press, 2016.
- [33] M. K. Hooda and C. S. Yadav. Electronic transport properties of intermediately coupled superconductors: PdTe_2 and $\text{Cu}_{0.04}\text{PdTe}_2$. *Europhysics Letters*, 121(1):17001, Mar 2018.