

利用飞秒激光实现量子材料中电子维度的操控

段绍峰 张文涛*

(上海交通大学物理与天文学院 上海 200240)

2021-07-28收到

* email: wentaozhang@sjtu.edu.cn

DOI: 10.7693/wl20210806

强激光与多体系统相互作用可以诱导非平衡态的新奇物理现象，例如光致超导^[1]、光致亚稳态^[2]、光激发相干声子模式^[3]和光致拓扑缺陷的产生^[4]等。激光脉冲泵浦激发固体材料中的电子提供了一种通过非热诱导产生新颖量子态的手段，可以在飞秒至皮秒级的时间尺度上操控材料的宏观属性。

二维电子态中存在众多奇异的量子现象，如量子霍尔效应(1985年诺贝尔物理学奖)、石墨烯中的狄拉克电子态(2010年诺贝尔物理学奖)和超导增强等。这些二维电子态通常通过机械剥离、人工异质结、分子束外延生长等方法制造人工结构来实现，本研究提出并实现了在量子材料中利

用超快激光调控产生二维电子态的新方法。该方法利用在特定激光强度下激发相干电子—声子相互作用所引起的材料晶格宏观周期性畸变，结合激光在材料中由于穿透深度引起的强度分布，从而导致这种晶格畸变在材料中分层出现，并在晶格畸变层与原始层之间实现了一种长程有序的二维电子态(图1(a))。

电荷密度波材料SmTe₃的超快X射线衍射实验^[5]、TbTe₃中超快光谱实验^[6]以及准一维电荷密度波材料K_{0.3}MoO₃的超快X射线衍射数据^[7]都表明，存在超快激光诱导的电荷密度波相的反转畸变。然而，这种光诱导的反转畸变层与原始层之间的二维电子态尚未在实际的材料中观测到，

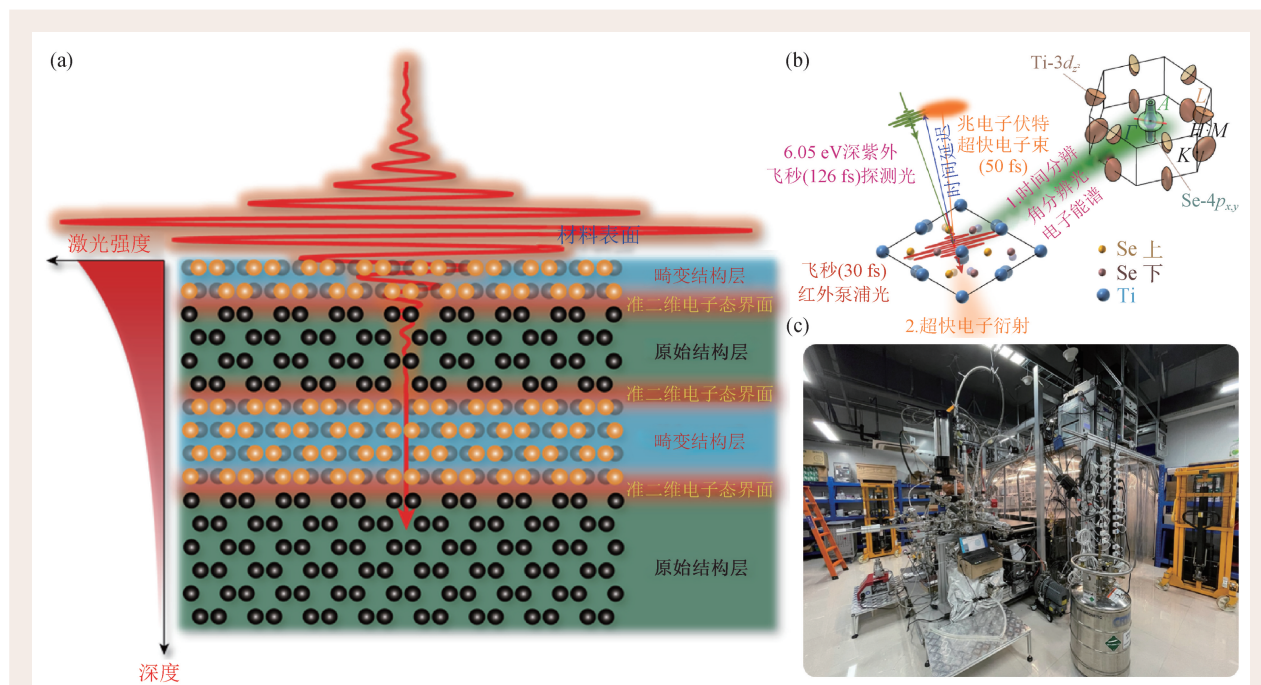


图1 实验原理及实验装置 (a)激光调控电荷密度波材料形成二维电子态示意图；(b)时间分辨实验示意图；(c)作者团队自主研发的时间分辨角分辨光电子能谱仪

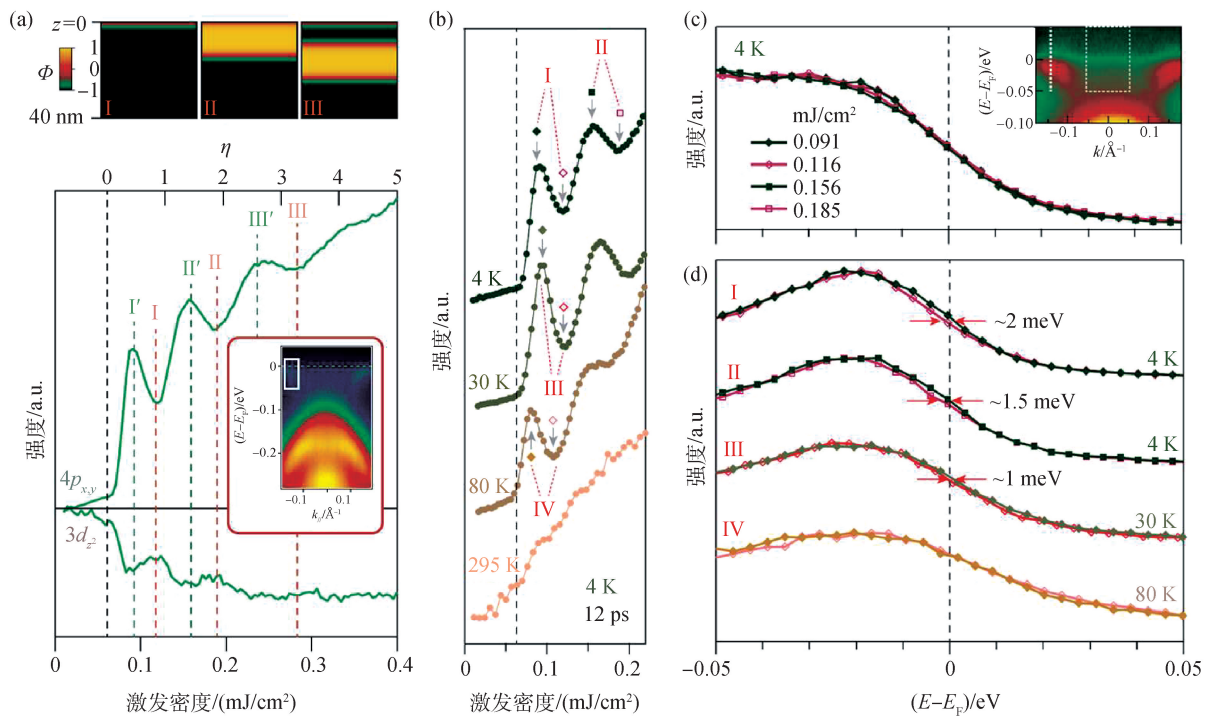


图2 光诱导的二维界面及所形成二维界面上的奇异电子态 (a)上图:理论模拟不同激发密度下的序参量随着厚度的变化,下图: Γ 点 $Se-4p_{xy}$ 光电子能谱强度随激发密度的变化,费米能级附近 $Ti-3d_{z^2}$ 轨道光电子能谱强度随泵浦激发密度的变化,积分范围为插图中白色矩形所示区域;(b) Γ 点光电子能谱强度在不同温度下随泵浦激发密度的变化,测量的时间延迟为12 ps;(c)4 K时,图(b)中峰和谷对应的激发密度处光电子能谱强度随着能量的变化,动量积分范围为插图中虚线矩形所示区域;(d)图(b)中峰和谷对应的泵浦激发密度在图(c)插图中虚线对应动量处的能量分布曲线

以及该二维电子态是否具有长程序在实验上都还未知。

我们对1T-TiSe₂这一传统的三维电荷密度波材料进行了高分辨率的光学操控。利用高分辨率的时间分辨角分辨光电子能谱和兆电子伏特超快电子衍射,分别对1T-TiSe₂中的电子和晶格的超快动力学进行了探测(图1(b))。通过时间分辨角分辨光电子能谱的测量,固定泵浦光和探测光之间的时间延迟并连续改变泵浦光的激发密度发现, Γ 点光电子能谱强度随着泵浦激发密度的增加略有增加,直到超过激子凝聚的临界激发密度时光电子能谱强度发生急剧增强(图2(a))。更有趣的是,光电子能谱强度随激发密度增加向上移动并在激发密度约为0.091 mJ/cm²时达到一个极大值(峰),随即在激发密度约为0.116 mJ/cm²时下降至一个极小值(谷)。随着泵浦激发密度的继续增加,光电子能谱强度中会交替出现峰—谷的特

征,直至到达一个激发密度,光电子能谱强度随着泵浦激发密度的增加而线性增加。此外,电子态的线宽在特定泵浦能量下也会出现交替减弱的反常现象,这种奇特的现象只有在电子维度从三维退变成二维时才能得到合理的解释,这也证实了可以通过调控激光的泵浦能量来操控电子体系的维度。后续的实验表明,该峰—谷的特征持续时间长度达到30 ps,表明可以通过利用飞秒激光操控电子体系的维度来实现新物质态的产生,并且可以在皮秒时间尺度内对量子材料的宏观属性进行调控。

在进一步的研究中,超快电子结构在高泵浦激发密度下表现出非简谐振动的行为,这意味着强激光作用可引起晶格畸变发生反转,从而在晶格畸变反转区和非反转区形成二维电子结构。通过高分辨率的兆伏特超快电子衍射实验,观察到与电荷密度波相有关的超晶格峰强度在强激光作

用下先消失再出现的特征,为激光作用下晶格畸变反转的存在提供了确定性证据。超快电子结构和超快电子衍射实验结果与含时的与空间分布有关的金兹堡—朗道双势阱模型模拟计算结果相吻合(图2(a)),这也证实了飞秒激光诱导晶格畸变反转可在三维材料中实现二维电子态。

近期的研究在加压、铜掺杂和电场控制的1T-TiSe₂中发现了超导电性。在1T-TiSe₂超导态中,不可公度的电荷密度波(CDW)相与局域可公度的CDW相被畴壁分开,畴壁处费米能级附近态密度的增强被认为是1T-TiSe₂中超导的起因。我们发现光诱导的2D电子态处Ti-3d_{z²}轨道在费米能级附近态密度存在明显的增强(图2(a)),这也可能导致光致超导现象的出现。仔细比较低温下4 K处泵浦激发密度依赖的光电子能谱强度在峰和谷处的能量分布曲线,从能量分布曲线的边缘移动,可以发现二维电子态处存在大约2 meV的能隙(图2(d))。随着泵浦能量的增加,潜在的能隙(约1.5 meV)在表面的第二个畴壁处也很明显,但在远离畴壁的区域没有发现能隙打开的迹象。之前的研究表明,在铜掺杂的1T-TiSe₂中预估的超导能隙大小为0.5 meV^[8],这与我们在光诱导的2D电子态处观测到的能隙大小在同一量级。更有趣的是,利用费米狄拉克分布函数卷积能量分辨率拟合费米能级处态密度分布,得到的电子温度大约为90 K,这远高于加压、铜掺杂和电场控制的1T-TiSe₂样品中超导出现的转变温度。

此外,在光诱导2D电子态中观测到的能隙当30 K时仍然是可以分辨的(约1 meV),但在更高的温度80 K不可分辨(图2(d))。实验中观测到的

光诱导能隙的打开可能与K₃C₆₀中观测到的光致超导^[9]现象类似,尽管电子温度很高,但光诱导的能隙大小与平衡态的超导能隙大小相当。这种由泵浦光引起的能隙打开可能具有相同的非平衡态物理性质,尽管它们可能具有不同的机理起源。然而,潜在的瞬态能隙的打开不是超导出现的专有证据,能隙的打开也可能是由瞬态CDW、半导体和其他具有能隙电子态的物相所导致,需要后续的实验和理论工作进一步阐述该能隙的起源和本质。

先进仪器的研制和实验精度的提升是获得此新发现的关键。我们自主研制了具有国际领先水平的时间分辨角分辨光电子能谱仪,时间分辨率(113 fs)和能量分辨率(16.2 meV)的乘积已接近物理极限,达到了国际上同类仪器的最高水平^[10]。并且我们合作研究组研制了目前世界上唯一一台时间分辨率优于50 fs(FWHM)的兆伏特超快电子衍射装置。本研究结合两台装置分别对电子和原子敏感的优势,分别从超快电子结构和超快晶格动力学两方面提供了相关发现的实验证据。

该工作创新性地实现了利用飞秒激光来操控电子体系的维度,在三维电荷密度波材料1T-TiSe₂中产生了皮秒量级时间尺度的瞬态2D电子态,并在二维电子结构中发现电子态密度增加和能隙打开的迹象,有可能出现光致非平衡高温超导现象。这些发现利用超快激光实现了对电子维度的操控,在皮秒时间尺度内对量子材料的宏观属性进行了调控,并产生奇异的量子现象,为超快科学的探索开辟了新窗口。该研究成果已于近期在*Nature*上发表^[11]。

参考文献

- [1] Fausti D, Tobey R I, Dean N *et al.* *Science*, 2011, 331: 189
- [2] Ichikawa H, Nozawa S, Sato T *et al.* *Nat. Mater.*, 2011, 10: 101
- [3] Horstmann J G, Böckmann H, Wit B *et al.* *Nature*, 2020, 583: 232
- [4] Zong A, Shen X, Kogar A *et al.* *Sci. Adv.*, 2018, 4: 1
- [5] Trigo M, Giraldo-Gallo P, Clark J N *et al.* *Phys. Rev. B*, 2021, 103: 1
- [6] Yusupov R, Mertelj T, Kabanov V V *et al.* *Nat. Phys.*, 2010, 6: 681
- [7] Huber T, Mariager S O, Ferrer A *et al.* *Phys. Rev. Lett.*, 2014, 113: 1
- [8] Li S Y, Wu G, Chen X H *et al.* *Phys. Rev. Lett.*, 2007, 99: 2
- [9] Mitrano M, Cantaluppi A, Nicoletti D *et al.* *Nature*, 2016, 530: 461
- [10] Yang Y, Tang T, Duan S *et al.* *Rev. Sci. Instrum.*, 2019, 90: 063905
- [11] Duan S, Cheng Y, Xia W *et al.* *Nature*, 2021, 595: 239