



利用激光在量子材料中实现寿命可调的亚稳新物态

吴旗仪, 孟建桥*

中南大学物理与电子学院, 长沙 410083

* 联系人, E-mail: jqmeng@csu.edu.cn

A novel photo-induced metastable state with a tunable lifetime in quantum materials

Qi-Yi Wu & Jian-Qiao Meng*

School of Physics and Electronics, Central South University, Changsha 410083, China

* Corresponding author, E-mail: jqmeng@csu.edu.cn

doi: [10.1360/TB-2023-0564](https://doi.org/10.1360/TB-2023-0564)

对宏观量子性质进行精确调控是量子材料实现工业应用的关键。利用超短脉冲激光共振激发量子材料内部某种集体模式, 宏观上产生亚稳态是目前凝聚态物理学中一个正在蓬勃发展的领域, 如光致超导^[1]、光增强超导以及电荷密度波序^[2]、光致铁电性^[3], 以及光致二维电子态^[4]等。过渡金属硫族化合物1T-TiSe₂作为一种典型的电荷密度波(charge density wave, CDW)材料存在许多新的量子相, 如Cu掺杂和压力诱导的超导电性、手性CDW, 以及光致二维电子态等。这些丰富的相使1T-TiSe₂成为研究非热方式诱导新量子物态的良好平台。

近日, 上海交通大学物理与天文学院张文涛研究组报道了一种超快激光诱导的亚稳新物态及其产生机制。超快实验已证实量子材料中普遍存在由激光诱导的相干声子, 即晶格中的原子宏观上发生同相位的振动。如果原子的这种光致相干运动可以停止在远离其平衡态的亚稳位置, 材料可能会进入一种新的亚稳态。该团队利用自行研制的高分辨率的时间分辨角分辨光电子能谱(time- and angle-resolved photoemission spectroscopy, TRARPES)对CDW材料1T-TiSe₂进行超快激光调控研究, 发现激光诱导出一个与平衡的正常态显著不同的亚稳金属态, 且这个亚稳态的寿命随着激发光通量的增加而增加, 在该工作所报道的最大光通量下超过1 ps。相关研究成果发表于*Physical Review Letters*^[5]。

TRARPES实验通过利用红外光将体系驱动到非平衡态, 随后利用紫外光将电子激发至真空并被半球能量分析仪接收以探测材料的电子结构。通过改变两束光之间的延迟时间来实现时间分辨。一直以来, TRARPES的技术难点在于得到更高的时间分辨率和能量分辨率以及样品移动等问题。张文

涛研究组研制了具有国际领先水平的高能量和高时间分辨率的TRARPES^[6], 并通过增加图像识别的双目视觉系统, 解决了测量过程中样品移动的问题, 为进行精细变温和时间分辨实验提供了可能。

对于在202 K发生CDW相变的1T-TiSe₂材料, 由于CDW序的影响, 低温下平衡态的角分辨光电子能谱显示在布里渊区中心存在4个能带, 分别对应于从L点折叠过来的L-Ti 3d₂能带、从A点折叠过来的A-Se 4p_{xy}能带, 以及原本在Γ点处的两个Se 4p_{xy}能带(Se1和Se2, 图1(a)最左边)。低温下, 在大于临界泵浦光通量 $F_c=0.12$ mJ/cm²的红外脉冲光激发后, 1T-TiSe₂的CDW序瞬间被熔化, Se1和Se2能带向费米能级移动约120 meV, 其中Se1能带穿越费米能级形成瞬态金属态。进一步的测量发现, Se2能带在系统重新建立电子关联前不随延迟时间(图1(a))和泵浦光通量(图1(b))变化, 意味着CDW序融化后系统进入了亚稳金属态。

详细的延迟时间和泵浦光通量依赖实验进一步表明, Se1和Se2能带在光激发后都存在平台的特征(图1(c)~(e)), 且平台的持续时间随泵浦光通量的增加而增加(图1(f), (g)), 表明亚稳金属态的寿命可以由泵浦光通量调控。此外, Se1和Se2能带在光激发后1 ps内都存在明显的振荡行为, 其非谐频率高于低泵浦通量下光诱导的相干A_{1g}-CDW声子模式的频率, 表明在平台现象持续的时间尺度内存在光诱导的超快结构相变。在样品温度为300 K时的TRARPES能谱中没有观察到相应的平台和非谐振荡的特征, 表明这个光致亚稳金属态只存在于CDW相。此外, 该工作利用含时Ginzburg-Landau模型进行数值模拟重现了实验结果(图1(h)~(j))。高泵浦光通量下观察到的光致亚稳态被归因于, 光激发后体系的势能面被

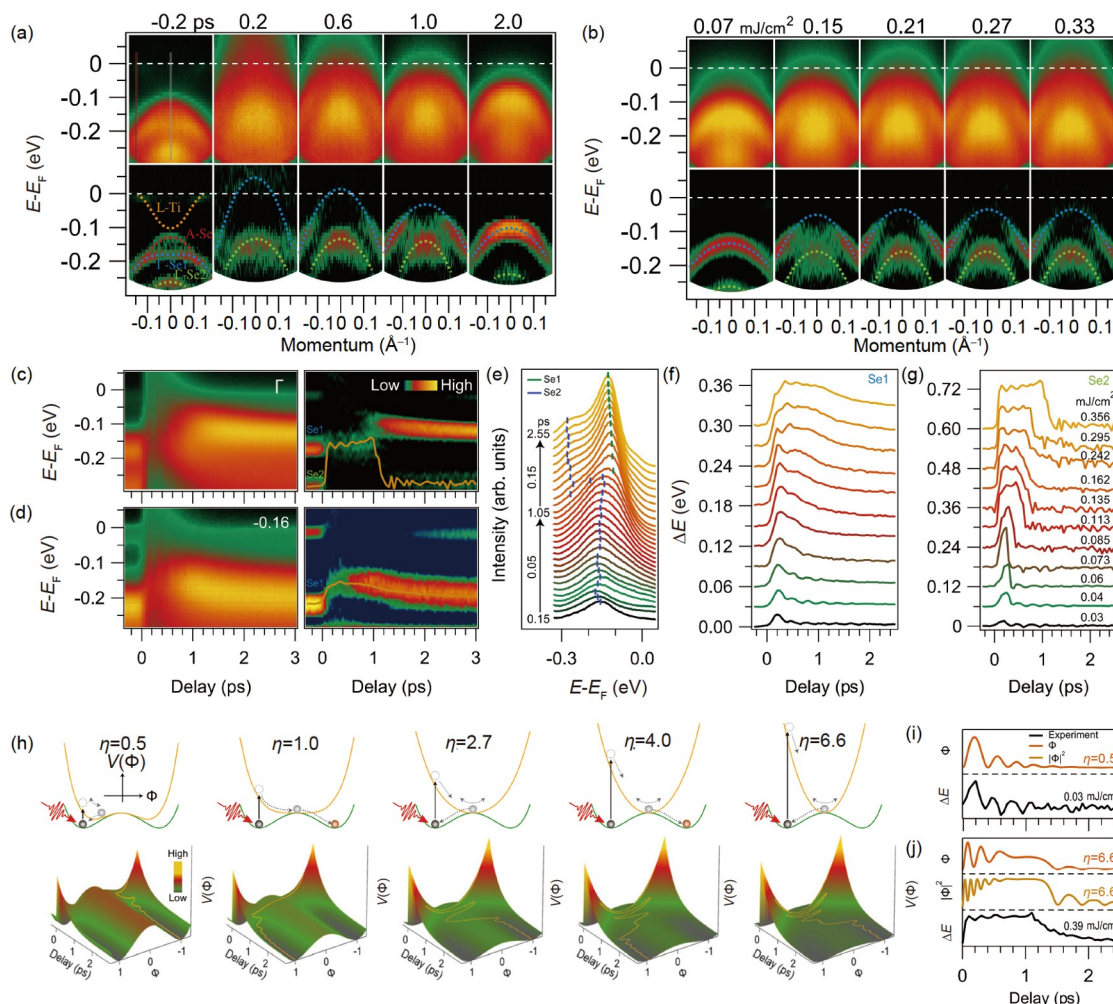


图 1 (网络版彩色)低温4 K时1T-TiSe₂中的超快电子相变^[5]. (a) 电子结构随时间的演化(0.356 mJ/cm²). (b) 延迟时间0.5 ps时的电子结构随泵浦光通量的变化. Γ 处(c)和动量为 $-0.16 \text{ \AA}^{-1}$ (d)的光电子能谱强度随结合能和延迟时间的变化(0.356 mJ/cm²). (e) 图(c)在选定延迟时间的EDCs. 选定泵浦光通量下Se1 $4p_{xy}$ 能带在动量为 $-0.16 \text{ \AA}^{-1}$ (f)和Se2 $4p_{xy}$ 能带在 Γ 处(g)的能量移动随延迟时间的变化. (h)~(j) 含时Ginzburg-Landau模型序参量动力学的数值解及其与实验数据的对比

Figure 1 (Color online) Ultrafast electronic phase transitions in 1T-TiSe₂ at 4 K^[5]. (a) Electronic structures as a function of time delay (0.356 mJ/cm²). (b) Electronic structures as a function of pump fluences at the delay time of 0.5 ps. Photoemission intensity as a function of binding energy and delay time at Γ point (c) and the momentum of $-0.16 \text{ \AA}^{-1}$ (d), respectively, with the pump fluence of 0.356 mJ/cm². (e) EDCs from (c) at selected delay times. Time-dependent energy shifts of the Se1 $4p_{xy}$ band at the momentum of $-0.16 \text{ \AA}^{-1}$ (f) and the Se2 $4p_{xy}$ band at Γ point (g), respectively, at selected pump fluence. (h)~(j) Numerical solution of the order parameter dynamics from the time-dependent Ginzburg-Landau model and comparison with experiment data

瞬间改变, 以及电子-声子相互作用引起的相干声子的振动导致晶格内的原子发生集体位移并停留在远离平衡态的位置.

总之, 该工作在电荷密度波材料1T-TiSe₂中发现了寿命可调的光致亚稳金属态. 该亚稳态不同于高温下正常态的电

子结构, 其物理机制可以唯象地解释为, 晶格中的原子在被泵浦光激发后发生相干运动, 随后可在一定时间尺度内稳定停止在远离平衡态的位置, 导致体系进入奇异的亚稳金属态. 该工作为调控量子材料的宏观性质提供了新的机制和途径, 进一步发展了激光调控在量子材料中的应用.

参考文献

- 1 Cavalleri A. Photo-induced superconductivity. *Contemp Phys*, 2018, 59: 31–46

- 2 Wandel S, Boschini F, da Silva Neto E H, et al. Enhanced charge density wave coherence in a light-quenched, high-temperature superconductor. [Science](#), 2022, 376: 860–864
- 3 Nova T F, Disa A S, Fechner M, et al. Metastable ferroelectricity in optically strained SrTiO₃. [Science](#), 2019, 364: 1075–1079
- 4 Duan S, Cheng Y, Xia W, et al. Optical manipulation of electronic dimensionality in a quantum material. [Nature](#), 2021, 595: 239–244
- 5 Duan S, Xia W, Huang C, et al. Ultrafast switching from the charge density wave phase to a metastable metallic state in 1T-TiSe₂. [Phys Rev Lett](#), 2023, 130: 226501
- 6 Yang Y, Tang T, Duan S, et al. A time- and angle-resolved photoemission spectroscopy with probe photon energy up to 6.7 eV. [Rev Sci Instruments](#), 2019, 90: 063905