

专题：拓扑物理前沿与应用

## 拓扑绝缘体中的超快电荷自旋动力学\*

向天<sup>1)2)</sup> 程亮<sup>1)</sup> 齐静波<sup>1)2)†</sup>

1) (电子科技大学, 电子薄膜与集成器件国家重点实验室, 成都 611731)

2) (电子科技大学广东电子信息工程研究院, 东莞 523808)

(2019年9月19日收到; 2019年11月2日收到修改稿)

拓扑绝缘体是根据动量空间的拓扑不变量来定义的一类区别于普通绝缘体的新兴拓扑非平庸材料, 其体态和表面态分别表现为绝缘和金属性质, 并且其表面态具有独特的自旋结构 (自旋-动量锁定), 因此该类材料在光电器件和自旋电子器件领域有很多潜在的应用. 由于开展这些应用研究首先需要对这类材料中的电荷与自旋动力学有全面的了解, 所以拓扑绝缘体中的非平衡物理性质的研究引起了人们极大兴趣. 本文对这一研究领域所作的研究工作做了一个较全面的描述, 特别是跟时间分辨超快光谱相关的实验工作. 并希望文中的讨论能激发研究者尤其是理论工作者对这一领域进一步的探讨, 同时期待目标研究对象也能扩展到其他拓扑材料体系.

关键词: 拓扑绝缘体, 超快抽运-探测, 电荷动力学, 自旋动力学

PACS: 72.20.Jv, 78.47.J-, 72.25.Rb, 67.30.hj

DOI: 10.7498/aps.68.20191433

## 1 引言

拓扑绝缘体作为一种体态绝缘、表面态导电的具有非平庸拓扑态的绝缘体<sup>[1-3]</sup>, 在凝聚态物理学等领域受到广泛的关注. 拓扑绝缘体载流子和自旋的动力学性质, 对基于它们的新型电子器件的研究十分重要. 近年来, 基于超快光学手段, 已经对拓扑绝缘体内的超快载流子动力学进行了很多研究<sup>[1-9]</sup>, 从中能够了解到拓扑绝缘体内基本的电子输运过程.

因为时间反演对称性的保护, 拓扑绝缘体的表面态具有无能隙的线性色散 (狄拉克锥) 能带结构<sup>[2]</sup>. 同时, 表面态的自旋-动量锁定<sup>[3]</sup>性质令其在自旋电子学、量子信息等前沿学科中有着巨大的应用前景. 比较典型的三维拓扑绝缘体有  $\text{Bi}_2\text{Se}_3$ ,  $\text{Bi}_2\text{Te}_3$ ,  $\text{Bi}_{1.5}\text{Sb}_{0.5}\text{Te}_{1.7}\text{Se}_{1.3}$  等, 它们有明显的体能隙, 以及无能隙的表面态<sup>[4]</sup>. 在实验上, 表面态的线性色散关系和自旋-动量锁定现象已被角分辨电子能谱

(angle-resolved photoemission spectroscopy, ARPES) 实验观测到<sup>[2,5,6]</sup>. 同时, 拓扑绝缘体中的载流子动力学过程也已被广泛地研究<sup>[4,7]</sup>, 揭示出非平衡载流子的动量和能量弛豫过程中电子-声子耦合的重要作用. 此外, 对电子自旋自由度敏感的时间分辨克尔效应也已阐释了拓扑绝缘体中的光诱导相干自旋动力学过程<sup>[8]</sup>. 本文首先介绍基于超快抽运-探测的实验方法, 包括时间分辨光学抽运-光学探测 (optical pump optical probe, OPOP) 反射率测量<sup>[9-11]</sup>, 光学抽运-太赫兹测量 (optical pump terahertz probe, OPTP)<sup>[9,12]</sup>, 时间分辨角分辨光电子能谱 (time-resolved ARPES, Tr-ARPES)<sup>[2,9,13]</sup>, 以及时间分辨克尔效应测量 (time-resolved Kerr rotation, TRKR)<sup>[9,14]</sup> 等实验方法; 然后给出已知拓扑绝缘体中超快动力学实验方面的结论与相关物理图像, 包括电荷、声子与自旋的动力学; 最后对目前的研究作出总结.

\* 国家自然科学基金 (批准号: 11974070, 11734006) 和广东东莞市核心技术攻关前沿项目 (批准号: 2019622101004) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: jbqi@uestc.edu.cn

## 2 超快抽运-探测技术

超快抽运-探测是一种基于飞秒激光的测量技术,可以用于探测材料中的各种(准)粒子在飞秒到纳秒尺度的超快动力学过程.一般而言,其主要工作方式是利用(飞秒时间尺度的)抽运脉冲激发样品,然后通过延时精确可调的(飞秒时间尺度的)探测脉冲来测量样品由激发态回到平衡态的弛豫过程.其中抽运和探测脉冲可以是飞秒激光脉冲或者由飞秒激光产生的飞秒、皮秒尺度的其他脉冲信号,例如太赫兹脉冲<sup>[15-17]</sup>,光电子<sup>[2,9,13]</sup>,X射线<sup>[18]</sup>等.

### 2.1 光学抽运-光学探测光谱

超快光学抽运-光学探测技术是最常见的超快抽运-探测技术,其中抽运和探测都是飞秒激光脉冲.在实验中,通常用抽运光脉冲激发样品,而较弱的探测光脉冲用于测量透射率( $\Delta T/T$ )或反射率在光激发下的变化( $\Delta R/R$ ),可以得到材料表面或内部的光学特性随时间的变化的关系.该技术可用于研究固体材料中的带间(inter-band)或带内(intra-band)的电子跃迁过程,已被广泛地应用到强关联及拓扑材料的研究中<sup>[7,9,10]</sup>.

图1(a)为反射式OPOP光路示意图:激光脉冲从钛-蓝宝石(Ti-sapphire)激光器射出,经过分光镜后分为抽运光和探测光,各自分别经过一些光学元件后被会聚到样品表面同一点.样品受抽运脉冲激发而处于非平衡态,而探测脉冲在被样品反射的同时会携带样品非平衡态的信息并最终被探测器测量.用于激发样品的抽运光也可以使用倍频晶体、光学参量放大器或光学参量振荡器等改变波

长,而抽运光波长的选取取决于研究对象和内容.图1(a)中位移延迟平台用于调整抽运光脉冲和探测光脉冲的相对延时,以探测样品在被抽运后不同时刻的非平衡状态.由于位移延迟平台的精度为亚微米,实验中的时间分辨率可以达到飞秒级.一般而言,由抽运光的激发引起的透射率或反射率的相对变化很小(约为 $10^{-6}$ 量级),为了能够探测如此小的信号,通常使用锁相放大器来进行信号的处理.在使用锁相放大器时,需要对抽运光进行调制,从而使得探测到的信号以调制频率变化.同时,在数据读取时,选取该频率作为锁相放大器的参考频率,即可提取信号中以此频率变化的分量,也就是由抽运光造成的样品反射率的微小变化<sup>[9]</sup>.

一般而言,在被飞秒抽运光激发时,样品处于非平衡态,并存在一系列激发和跃迁过程,包括远离费米面的电子的带间跃迁过程,及伴随光学声子和声学声子激发的弛豫过程.此外,在许多材料中,也存在着自旋、激子、极化子等准粒子的激发.这些过程会导致样品的介电常数( $\epsilon(t,\omega)$ )和电导率( $\sigma(t,\omega)$ )随时间变化,从而反射率和透射率等光学参量产生相应的变化,这样到达探测器的探测光携带样品的非平衡态(随时间变化的)信息,并最终被测量.而样品被激发后,其中产生的(准)粒子会在动量和能量上弛豫,并逐渐回归到平衡态.典型的反射式OPOP信号如图1(b)所示(另请参考文献<sup>[19]</sup>),样品被抽运光激发后,其反射率发生变化,并在约10—100 fs达到极值,此后逐渐弛豫回平衡态.

OPOP由于具有精确的时间分辨能力和对研究各种(准)粒子激发的敏感性,成为研究拓扑绝缘体中载流子和声子的有力工具<sup>[7,9,11]</sup>.

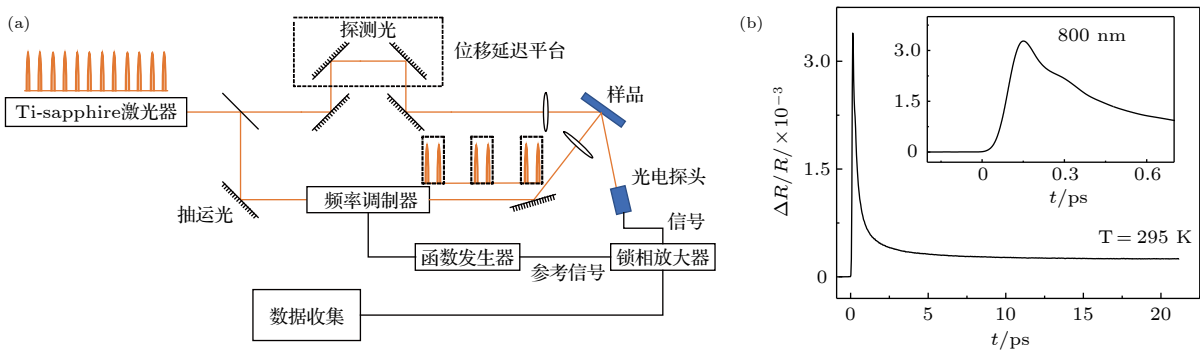


图1 (a) 反射式光学抽运-光学探测光路; (b) GaAs 的典型的光学抽运-光学探测信号

Fig. 1. (a) Experimental setup of optical pump-probe spectroscopy in reflection configuration; (b) typical optical pump-probe signal of GaAs.

## 2.2 光学抽运-太赫兹探测光谱

与 OPOP 相比, 若将探测脉冲换成皮秒/亚皮秒时间尺度的太赫兹脉冲, 即 OPTP 光谱. 材料中许多低能激发的能量尺度大约在 meV 量级, 这已超出了可见与红外波段的探测范围, 而太赫兹波正好能够探测该能量尺度下的物理过程<sup>[9,15]</sup>. 在飞秒激光脉冲的照射下, 能被激发出较强太赫兹脉冲辐射的材料主要包括光电导天线、非线性晶体 (如 GaP, ZnTe, LiNbO<sub>3</sub>, OH1 等)、铁磁金属与重金属多层纳米薄膜 (Fe/Pt, Co/Pt) 等<sup>[9,15]</sup>.

与 OPOP 不同的是, 太赫兹辐射目前无法用普通光电探测手段测量, 一般使用电光采样法 (如图 2(a))<sup>[15]</sup> 或者光电导天线<sup>[15,16]</sup>, 它们都要求使用额外的探测光对太赫兹辐射进行测量. 以太赫兹的电光采样法为例, 当太赫兹和探测脉冲同时通过光电晶体时, 由于二阶非线性效应, 探测脉冲的偏振态会受到太赫兹电场的调制 (在弱电场下, 偏振态的变化近似正比于太赫兹场强), 并被后续的偏振探测单元 (四分之一波片、偏振分束镜和平衡探测器) 测量. 同时, 可以通过改变探测光脉冲和太赫

兹脉冲的相对延时得到整个太赫兹波形. 太赫兹探测的优势为在无需 Kramers-Kronig 关系计算的情况下, 可直接通过实验测量得到材料的光学响应函数 (如介电常数或电导率) 的实部与虚部的数值, 从而更加准确与可信. 光电导天线法在功能上与光电探测法类似, 也可以得到太赫兹信号.

图 2(b) 为典型的 OPTP 光路示意图, 入射激光被分为 3 束, 它们分别被用作抽运、太赫兹产生以及探测. 在实验中, 抽运光用于激发样品, 而样品中的各种 (准) 粒子的激发则会改变透射过样品的太赫兹透射率, 从而改变太赫兹脉冲的强度和相位, 并被探测光所记录. 值得注意的是, 为了避免空气中的水蒸气对太赫兹的吸收, 太赫兹传输的区域需要放置在干燥环境或真空中<sup>[9]</sup>.

与 OPOP 相比, OPTP 可以直接测量得到样品在光激发下电导率 (介电常数) 在整个太赫兹探测频段内的相对改变. 同时, 在太赫兹频段内, OPTP 对材料内的载流子和声子较为敏感, 因此是研究拓扑绝缘体中载流子和声子动力学的极佳手段<sup>[9,15,17]</sup>.

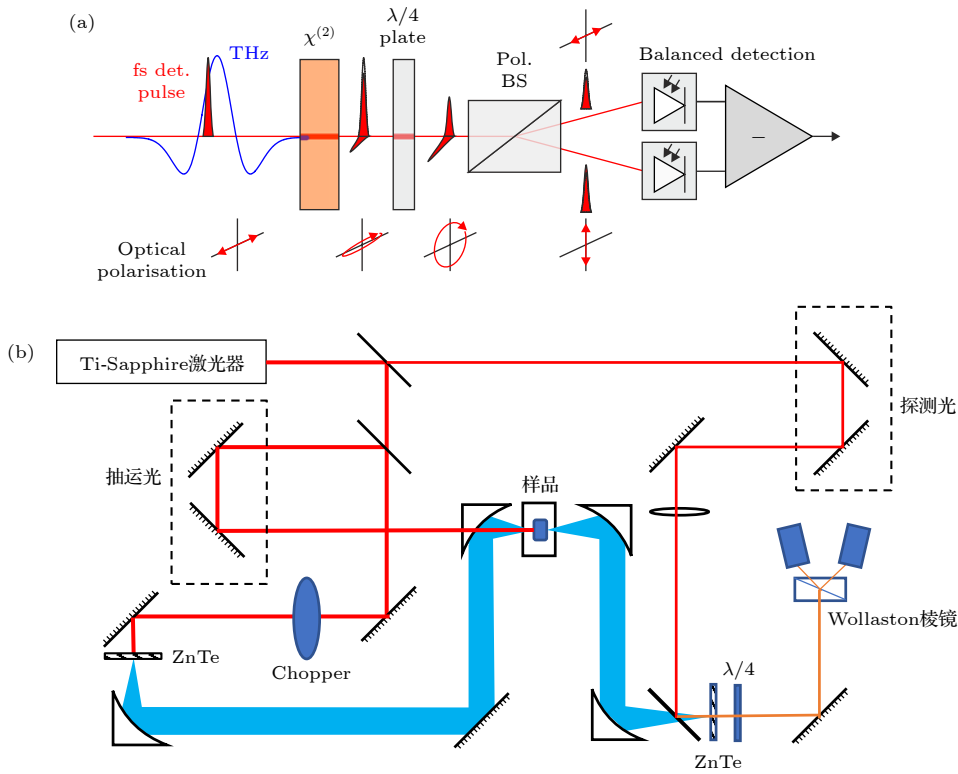


图 2 (a) 电光采样法<sup>[15]</sup>; (b) OPTP 光谱光路示意图

Fig. 2. (a) Electro-optic sampling<sup>[15]</sup>; (b) experimental setup of OPTP spectroscopy.

### 2.3 时间分辨克尔旋转光谱

光在磁性材料表面反射后其偏振或强度会发生变化, 这叫作磁光克尔效应<sup>[9]</sup>. 如图 3(a) 所示, 当材料具有不为零的净磁矩  $M$  时, 其介电常数张量存在与磁矩相关的反对称非对角项, 使得材料对不同圆偏振光的响应不同. 根据净磁矩在材料内的不同朝向, 可以将测量分为极向、纵向和横向磁光克尔效应<sup>[9]</sup>, 分别对应于磁化矢量垂直于材料的反射面并平行于光的入射面, 平行于材料的反射面和光的入射面, 以及平行于材料的反射面并垂直于光的入射面三种情况. 对于  $M$  在极向或纵向, 线偏振光经过该材料反射后会变成椭圆偏振光, 其长轴方向与入射光的偏振方向形成一个夹角  $\theta_K$ , 即克尔旋转<sup>[9]</sup>. 而将克尔转角测量与超快抽运-探测的探测结合, 则组成了时间分辨克尔旋转 (time resolved Kerr rotation, TRKR) 探测, 是研究材料自旋动力学的有效方法<sup>[8]</sup>.

如图 3(b)<sup>[8]</sup> 所示, TRKR 通过利用圆偏振光激发出样品表面的相干自旋态 (磁矩), 然后探测该自旋态对探测光造成的克尔旋转, 来研究拓扑绝缘体等材料中的自旋动力学<sup>[20]</sup>: 1) 拓扑绝缘体中由于有自旋-轨道锁定的狄拉克锥的存在, 在圆偏振光的激发下, 根据角动量守恒, 被吸收的圆偏振光的角动量会转移到样品, 从而在其表面产生非平衡态电子的自旋极化和自旋累积<sup>[21]</sup>; 2) 由于有被激发的相干自旋态, 线偏振探测光经样品反射后会变成有非零克尔转角的椭圆偏振光; 3) 通过改变抽运光脉冲与探测光脉冲的相对延时, 可以测量整个自旋极化的激发和弛豫过程, 从而得到样品被圆偏振光激发后的自旋动力学信息. 在实验上, 由于

被激发的自旋载体仍是电子或空穴, 因而自旋动力学与载流子动力学十分相关, 可以互为借鉴, 从而可以更准确地了解完整的弛豫过程.

### 2.4 时间分辨光电子能谱

ARPES 是利用光电效应来探测电子能带结构的一种实验技术<sup>[1,2,13,14]</sup>. 在 ARPES 实验 (图 4(a), 另可参考文献 [22]) 中, 高能光子入射到样品表面并激发电子, 当被激发电子的能量高于其逸出功时, 被激发电子脱离样品表面成为自由电子, 其动能与材料能带结构有关. 同时, 光电子能量分析仪可以在不同探测角度下探测逸出的电子, 然后依据能量守恒和动量守恒可确定材料内的电子结构<sup>[9]</sup>. 由于拓扑绝缘体表面态在表面的法向方向没有色散关系, 通过调节光子能量, 高分辨的 ARPES 能够从 3D 拓扑绝缘体的体态能带中分离出表面态<sup>[2,5]</sup>. 此外, 一些光电子分析仪还具有自旋分辨能力, 可以探测到表面态中的自旋螺旋结构<sup>[2,6]</sup>, 因此在研究拓扑绝缘体的能带结构中有重要作用.

结合超快抽运-探测技术, ARPES 可以具有时间分辨的能力, 即 Tr-ARPES<sup>[2,9,13,23]</sup>. 在 Tr-ARPES (图 4(b)<sup>[23]</sup>) 中, 光源为飞秒激光, 入射的激光脉冲被分为两束, 一束被用于激发样品, 另一束则在多倍频后作为 ARPES 的驱动光源来激发光电子, 用于能带结构和电子占据数 (Population) 的探测. 该技术可以探测到样品在被激发后电子占据和电子结构的变化, 以及随后的能量弛豫过程. 一些特殊设计的光电子分析仪还具有自旋分辨能力, 如果利用圆偏振光作为抽运光来对样品进行自旋注入, Tr-ARPES 还可以用来研究材料的自旋动力学<sup>[24]</sup>. 但是, 电子的自旋信号比电子的能量信号低 5 个数

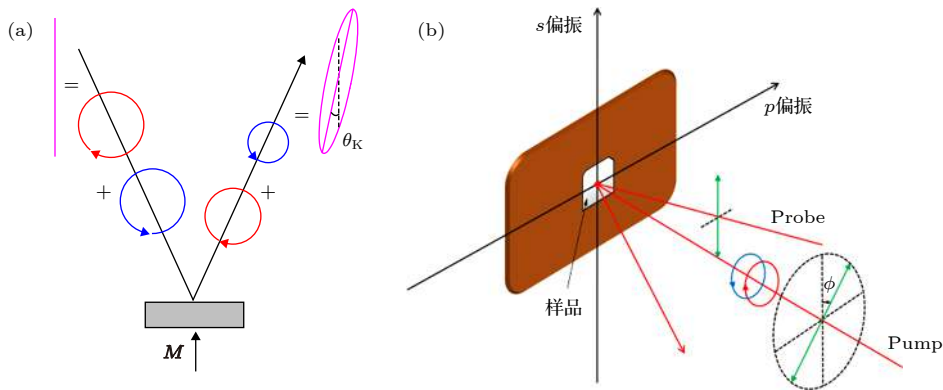


图 3 (a) 磁光克尔效应的原理<sup>[9]</sup>; (b) 基于抽运-探测技术的时间分辨克尔旋转光谱示意图<sup>[8]</sup>

Fig. 3. (a) Schematic of magneto-optic Kerr effect<sup>[9]</sup>; (b) TRKR<sup>[8]</sup> via pump-probe technique.

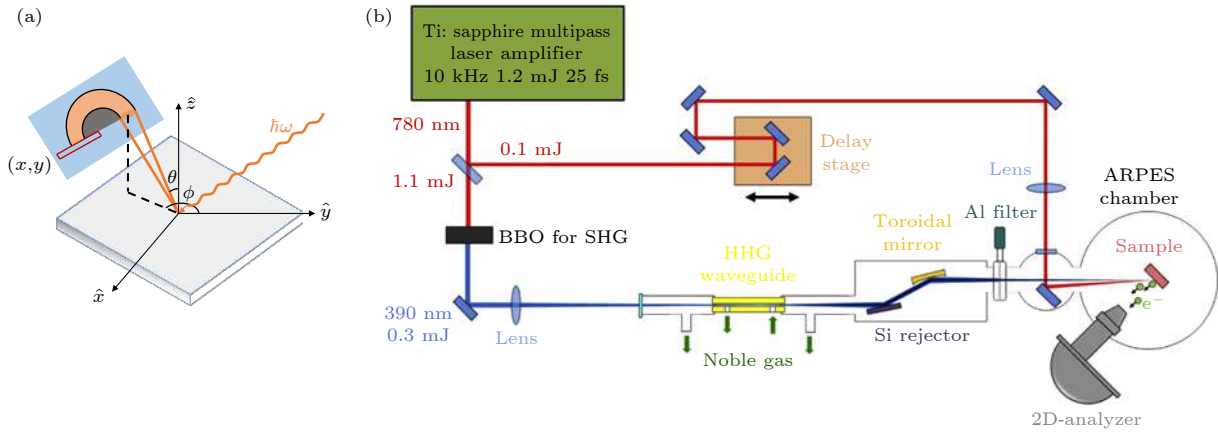


图 4 (a) ARPES 和 (b) Tr-ARPES<sup>[23]</sup> 实验平台示意图  
 Fig. 4. Schematic of (a) ARPES and (b) Tr-ARPES<sup>[23]</sup> setups.

量级左右, 获得高质量的实验数据比较困难<sup>[9]</sup>.

### 3 实验

#### 3.1 载流子动力学

载流子动力学主要是研究光激发后载流子的弛豫过程和相应的弛豫时间. 材料受光激发后, 在其载流子的弛豫过程中, 会有各种相互作用并伴随着能量的转移和耗散, 其中包括了电子-电子、电子-空穴、电子-声子的相互作用. 此外, 在特定材料中, 磁振子、电荷密度波、自旋密度波等准粒子也可以参与到这些过程中<sup>[21]</sup>. 这些过程对拓扑绝缘体中的载流子的研究十分重要, 根据前文的介绍, 可以使用 OPOP, OPTP 或 Tr-ARPES 来研究一些典型的三维拓扑绝缘体中的载流子动力学过程<sup>[7,9–11,15,17,23]</sup>.

使用 OPOP 研究拓扑绝缘体时, 由于采用可见光波段附近的脉冲激光用作抽运和探测 (最常见使用 800 nm 左右波长的钛-蓝宝石激光器作为激光光源), 因此可以用于探测样品中的带间跃迁过程<sup>[8–11,17,25–27]</sup>. 下面所述内容, 主要围绕以经典拓扑绝缘体 Bi<sub>2</sub>Se<sub>3</sub> 为例, 相关的结果大部分具有普遍性, 其他材料如 Bi<sub>2</sub>Te<sub>3</sub> 等的相关实验可参考文献<sup>[3,4,27,28]</sup>. 图 5 是单晶三维拓扑绝缘体 Bi<sub>2</sub>Se<sub>3</sub> 的 OPOP 信号<sup>[7]</sup>, 在抽运光的激发下, 拓扑绝缘体中费米能级以下的电子会吸收光子并跃迁到未占据态, 此后由于电子-电子散射, 短时间内 (< 100 fs) 电子系统会达到费米统计平衡, 此后系统的温度会有良好的定义, 该过程被称为电子热化<sup>[4,11]</sup>. 由于热化过程相对较快, 可以认为它是绝热的, 在实验

数据中表现为快速的上升沿<sup>[7,11]</sup>. 在信号达到极值之后, 热电子与晶格之间的相互作用会占主导, 此时由于电子具有较高的能量, 可以发射出较高能量的光学声子<sup>[29]</sup>, 从而降低自身的能量. 能量变低的非平衡态电子或空穴逐渐往费米能级靠拢. 这期间, 非平衡态载流子与低能声学声子的散射起到很重要的作用. 随后电子处于更低能量状态, 出现电子与空穴复合过程, 同时还会伴随热扩散及载流子扩散到非激发区域过程<sup>[25]</sup>. 在图 5 中除以上的过程外, 还伴随着 (高频和低频) 振荡, 它们来源于相干声子, 其弛豫时间尺度为 1–100 ps. 在很多类似的研究中, 都得到了相似的数据<sup>[7,8,11,25,26]</sup>.

电声相互作用主导的弛豫过程可以利用双温度模型 (two-temperature model, TTM) 来解释, 这是一种通过唯象的热力学模型来解释电子系统和声子系统的能量交换的方法, 其前提是两个系统都必须处在温度被良好定义的状态, 即电子和声子的热化时间尺度小于电声相互作用的时间尺度. 在拓扑绝缘体中, 由于电子-电子热化时间小于 100 fs, 而整个体系电子-声子能量弛豫的时间为皮秒量级, 所以该条件是成立的<sup>[9,26,30]</sup>. 通过 TTM 模型的拟合, 可以得到拓扑绝缘体的电声耦合强度 (主要是与 A<sub>1g</sub> 模式声子的耦合), 其数值与传统金属一致, 并且大于 Bi<sub>2</sub>Se<sub>3</sub> 表面态测量结果<sup>[30,31]</sup>, 这表明反射率变化的主要贡献来自于体态. 在更长的时间尺度下的载流子复合过程可以利用文献<sup>[25]</sup>中的模型讨论. 在讨论时, 可以认为载流子的复合过程主要由位于费米面之上的狄拉克锥上的表面态电子与费米面之下的狄拉克锥上的表面态空穴的复合主导 (包括辐射性和非辐射性的弛豫); 由于

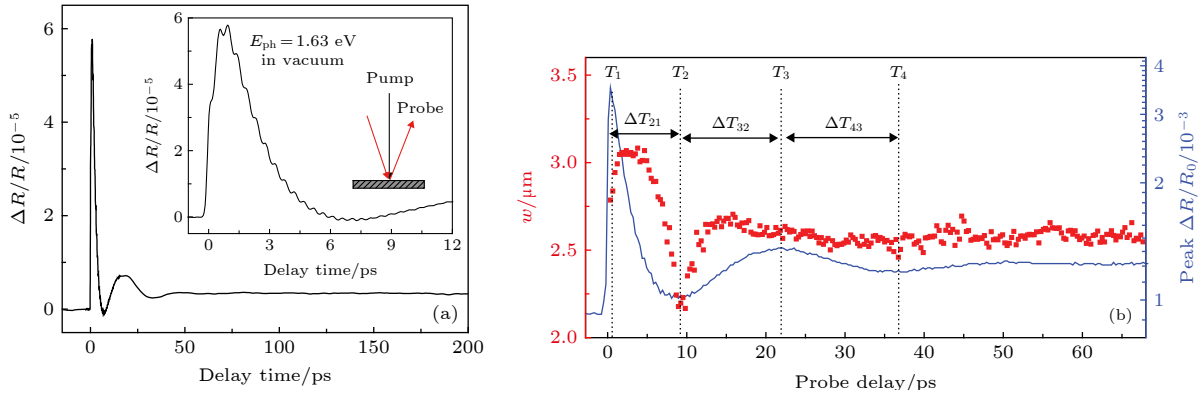


图 5 (a), (b) 室温下  $\text{Bi}_2\text{Se}_3$  单晶的 OPOP 信号<sup>[7,11]</sup>, 其中图 (b) 中红色方框为探测光在  $\text{Bi}_2\text{Se}_3$  样品表面上的光斑的半高全宽随时间延时的变化<sup>[11]</sup>

Fig. 5. (a), (b) Transient reflectivity of  $\text{Bi}_2\text{Se}_3$  measured via OPOP at room temperature<sup>[7,11]</sup>. The red squares in (b) show the full width half maximum of the probe light's spot as a function of delay time<sup>[11]</sup>.

载流子的复合需要自旋的翻转, 相比电子-光学声子弛豫过程而言, 载流子复合过程的弛豫时间要长许多. 再加上其他的假设, 可以认为对于薄膜样品而言, 载流子的复合过程主要是体态电子受表面缺陷的俘获所诱导的.

除 OPOP 外, 利用 OPTP 也可以用于测量拓扑绝缘体的载流子和声子的动力学过程. 图 6(a) 为  $\text{Bi}_2\text{Se}_3$  薄膜在未被光激发下的电导率的频谱<sup>[32]</sup>, 可以发现电导率由 Drude 项和峰值在 2 THz 附近的 Lorentz 项组成. 更详细的数据分析表明, Lorentz 峰主要来自于体态声子的贡献<sup>[33,34]</sup>. 因为对于绝大部分不受超高真空保护的  $\text{Bi}_2\text{Se}_3$  样品, 费米能级都位于体态能带的导带内 (n 型掺杂), 所以 Drude 项可能来自于体态和表面态载流子的共同贡献. 在有抽运光激发的条件下 (如图 6(b) 所示), 透射过样品的太赫兹电场的强度和相位发生改变, 主要是由于样品在抽运光激发下, 光生载流子和激发出的声子对太赫兹波的相互作用所致. 而电场强度随抽运光相对延时的变化如图 6(c) 和图 6(d) 所示, 激发后 3 ps 左右电场强度变化达到极值, 随后发生弛豫 (在 25 ps 左右的小峰为抽运光在衬底中的多重反射造成). 值得注意的是, 在不同厚度和不同抽运光强度下, 信号有明显的不同. 这种不同可以通过对在不同抽运延时下的复电导率  $\sigma(\omega)$  的 Drude-Lorentz 拟合来进一步解释 (图 6(e) 至图 6(h)): 对于较薄的样品, 光激发会增大载流子的散射率  $\gamma$ , 而等离子频率  $\omega_p$  (与载流子密度相关) 的变化却不明显, 因此样品的电导率降低, 对太赫兹光也变得更加透明, 并在 10 ps 内弛豫回平

衡态; 而对于较厚的样品,  $\omega_p$  和  $\gamma$  都会有明显的变化, 它们对电导率有相反的贡献 (对于 Drude 模型的贡献,  $\sigma_D = \varepsilon_D \omega_p^2 / (\gamma - i\omega)$ )<sup>[10]</sup>, 在高功率激发下, 载流子密度的增加对电导率增加的贡献会大于散射率增加对电导率减小的贡献, 因而样品对太赫兹吸收变大. 而厚样品与薄样品的不同则在于较厚的样品的体态可以在光激发下提供更多的载流子 ( $\omega_p$  变化更大).

类似的研究方法在也适用于研究  $\text{Bi}_{1.5}\text{Sb}_{0.5}\text{Te}_{1.7}\text{Se}_{1.3}$  (BSTS) 单晶<sup>[35]</sup>. 对 BSTS 的研究发现, 相较于  $\text{Bi}_2\text{Se}_3$ , BSTS 在光激发后的弛豫过程明显较长. 这是由于 BSTS 的表面电场驱使光生电子从体态转移到表面态, 使得电子空穴在空间上分离, 从而阻碍了体态中的载流子复合. 与  $\text{Bi}_2\text{Se}_3$  不同, BSTS 的费米能级位于体能隙内, 并靠近价带顶, 这样导致表面态有很多的未被占据态 (图 7(b)), 因而这一过程可以很容易发生.

由 OPOP 和 OPTP 的结果可知, 在较短的时间 ( $< 10$  ps) 内, 根据拓扑绝缘体  $\text{Bi}_2\text{Se}_3$  系列材料中测得的反射率变化, 主要可以分为 3 个不同的时间尺度<sup>[7,8,11,25-29]</sup>:  $< 0.1$  ps,  $\sim 0.4$  ps 和  $\sim 2$  ps. 下面将结合 Tr-ARPES 的实验结果, 详细讨论这 3 个时间尺度内发生的具体弛豫过程. 而更长时间尺度的弛豫过程主要被电子空穴复合过程及热扩散过程所主导.

在研究拓扑绝缘体时, 直接对其表面态的动力学研究比较困难, 而 Tr-ARPES 对能带结构的直接测量可以很方便地分辨出表面态与体态的信号, 测量结果非常直观<sup>[2,6,13]</sup>.

如图 8<sup>[13]</sup> 所示,  $\text{Bi}_2\text{Se}_3$  在经过抽运光激发后, 其体态的价带电子在极短的时间内 (激光脉冲宽度内) 跃迁到了较高能级 (图 8(d)), 而此时在费米面

附近的体导带和表面态的占据数较低. 然后经过约 700 fs 的时间, 电子经过弛豫接近导带底和表面态处 (图 8(e)). 在 2 ps 后, 表面态和体导带的占据

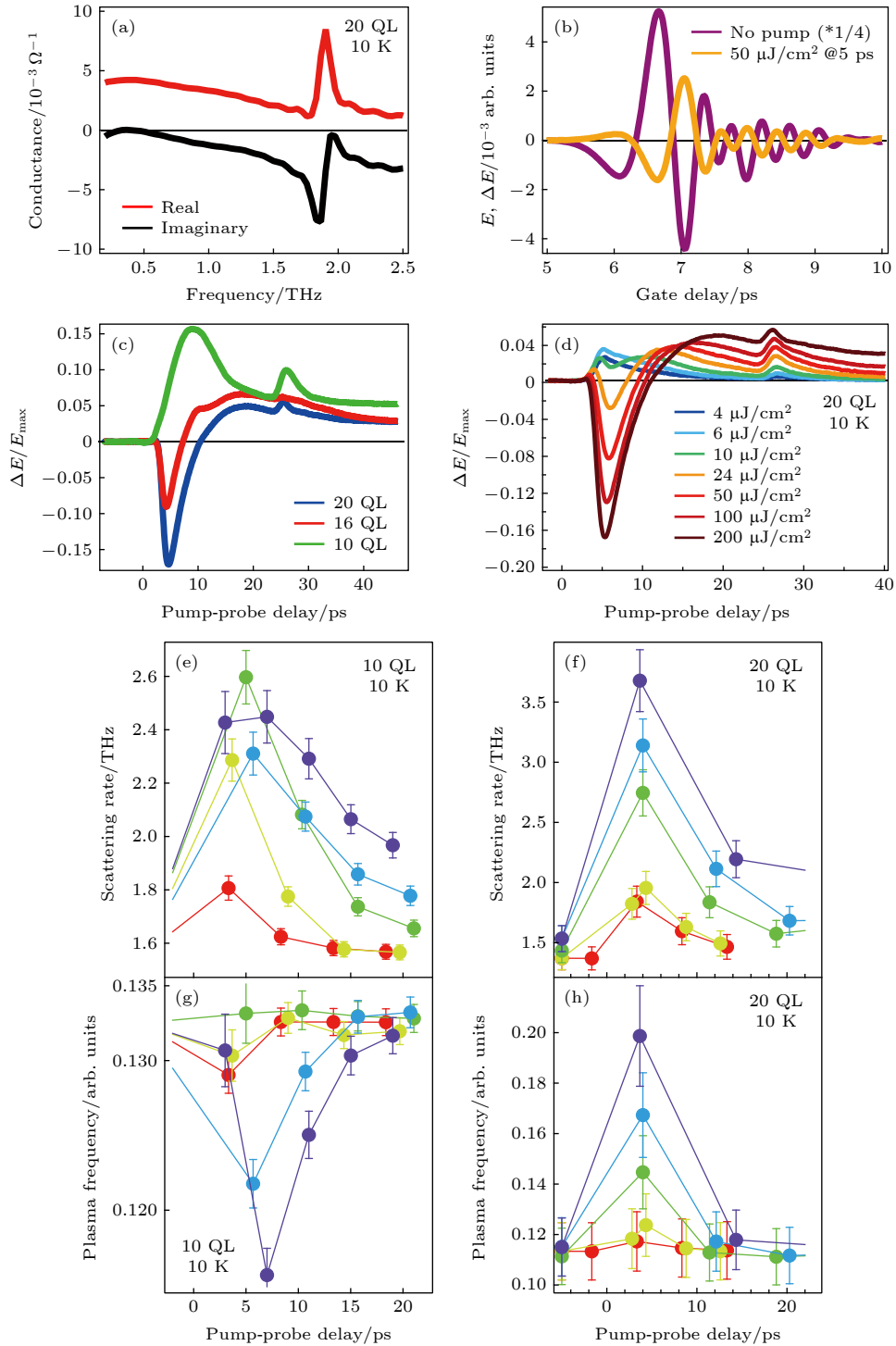


图 6  $\text{Bi}_2\text{Se}_3$  薄膜的 OPTP 信号<sup>[32]</sup> (a) 无光抽运下的  $\text{Bi}_2\text{Se}_3$  电导; (b) 有光抽运下透过  $\text{Bi}_2\text{Se}_3$  的大赫兹波形; (c), (d) 不同样品厚度以及不同功率下大赫兹电场峰值随着抽运延时变化; (e)—(h) 为在不同抽运延迟下, 通过用 Drude-Lorentz 拟合的对于不同厚度样品散射率和等离子频率

Fig. 6. OPTP signals of  $\text{Bi}_2\text{Se}_3$  thin film<sup>[32]</sup>: (a) Conductance of  $\text{Bi}_2\text{Se}_3$  without optical pump; (b) transmitted terahertz electric field after sample under optical pump; (c), (d) transient THz peak signal of samples with different thickness and pump power; (e)—(h) scattering rate and plasma frequency obtained from the fitting of conductance of  $\text{Bi}_2\text{Se}_3$  by Drude-Lorentz model with different sample thickness and pump delay.

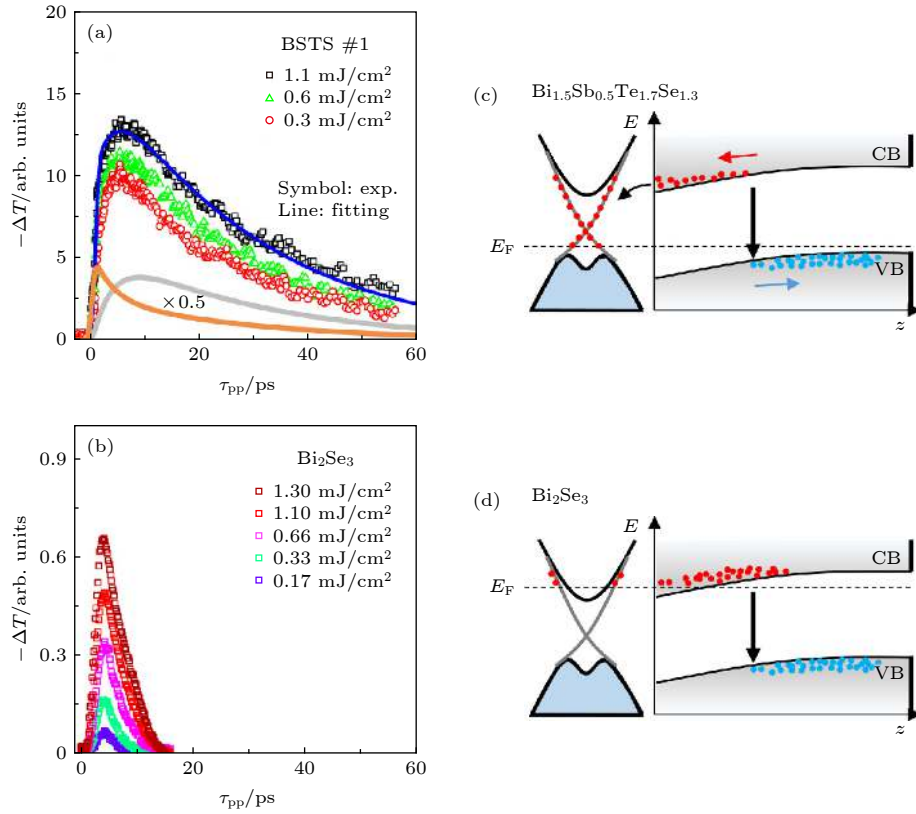


图 7 (a), (b)  $\text{Bi}_{1.5}\text{Sb}_{0.5}\text{Te}_{1.7}\text{Se}_{1.3}$  (BSTS) 和  $\text{Bi}_2\text{Se}_3$  的 OPTP 信号; (c), (d) BSTS 和  $\text{Bi}_2\text{Se}_3$  的能带结构示意图和电子转移<sup>[35]</sup>  
 Fig. 7. (a), (b) OPTP signals of  $\text{Bi}_{1.5}\text{Sb}_{0.5}\text{Te}_{1.7}\text{Se}_{1.3}$  (BSTS) and  $\text{Bi}_2\text{Se}_3$ ; (c), (d) schematic diagrams of energy bands and electron transfer in BSTS and  $\text{Bi}_2\text{Se}_3$ <sup>[35]</sup>.

数才开始有显著的衰减 (图 8(f)), 这主要是体导带和表面态内电子的进入体价带, 与空穴复合的过程. 而之后动力学时间尺度相比之前的时间尺度要长的多 ( $\geq 10$  ps).

利用 Tr-ARPES 测量到的初始  $\sim 2$  ps 内的动力学过程与前文的 OPOP 实验结果得到的时间尺度基本吻合<sup>[7,8,11,14,26]</sup>, 且由电子温度随时间演化的数据可以得到更细致的物理图像. 图 9 为不同研究团队<sup>[13,36]</sup> 在  $\text{Bi}_2\text{Se}_3$  上的电子温度测量结果, 二者十分一致. 可以看出, 由电子温度表征的电子热化过程在 100 fs 的时间尺度内 (电子温度  $T_e$  上升沿过程) 就已经建立. 很明显, 体导带 (bulk conduction band, BCB) 的电子温度经历了两个不同的弛豫过程, 这些数据可以很好地用两个指数衰减函数进行拟合 (见虚线), 得到的衰减常数分别为  $\tau_{\text{BCB}}^* \sim 400$  fs 和  $\tau_{\text{BCB}} \sim 1.75$  ps. 值得注意的是, 体价带 (bulk valence band, BVB) 的电子温度几乎只有一个弛豫过程, 利用单指数衰减函数拟合得到的弛豫时间  $\tau_{\text{BVB}}$  为  $\sim 1.75$  ps, 和体导带的  $\tau_{\text{BCB}}$  一样. 另外, 从 OPOP 的实验中可知,  $A_{1g}^1$  ( $\sim 2.2$  THz) 模式的

光学声子在观察到的声子中占主导地位, 所以电子与光学声子的散射弛豫过程也主要是与该模式的声子相互作用. 由于该声子对应可激发的电子温度约为  $T_p \sim 71$  K, 而当电子温度  $T_e$ , 即  $T_p$  与背景温度  $T_0$  ( $\sim 70$  K) 之和, 小于 141 K 时, 该模式的声子很难被激发. 因此在小于约 141 K 时, 光学声子对电声相互作用的贡献可以忽略, 此时的能量弛豫由载流子与声学声子的散射所主导. 由图 9 中结果可见,  $\tau_{\text{BVB}}$  基本上反映了电子-声学声子散射弛豫过程. 此外, 因为  $\tau_{\text{BVB}}$  与  $\tau_{\text{BCB}}$  几乎相同 ( $\sim 1.75$  ps), 所以体导带热电子在电子温度小于约 500 K 时, 电子-声学声子散射仍然主导了电子弛豫过程. 然而在更高的电子温度情况下, 热电子与光学声子的散射将起到主要作用.  $\tau_{\text{BVB}}^*$  ( $\sim 400$  fs) 这个时间尺度的弛豫过程就反映了这个过程, 其中  $A_{1g}^1$  模式的光学声子在散射中应该起到了决定性作用. 在 OPOP 实验中的确也得到了类似的弛豫时间尺度, 所以相关实验组对电子-声子弛豫详细描述都给出了类似上述结论<sup>[13,36]</sup>.

另外, 相比而言, Tr-ARPES 可以更加直观地



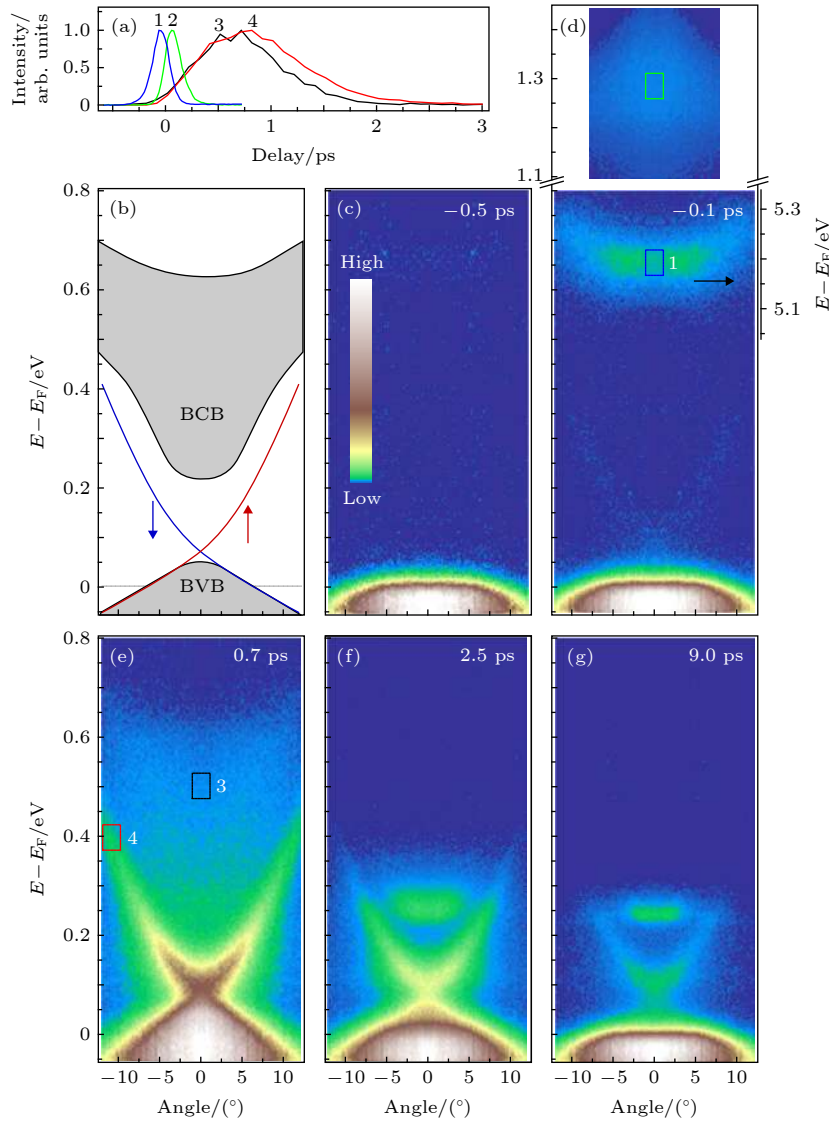


图 8  $\text{Bi}_2\text{Se}_3$  的 Tr-ARPES 信号<sup>[13]</sup> (a) p 型掺杂的  $\text{Bi}_2\text{Se}_3$  受光激发后不同能带的弛豫过程; (b) 用于参考的  $\text{Bi}_2\text{Se}_3$  的能带; (c) 平衡态  $\text{Bi}_2\text{Se}_3$  的能带结构, 由于掺杂导致费米能级较低, 表面态和体态导带并没有被占据; (d) 在刚刚被抽运光激发时, 电子被激发到较高能级处; (e)–(g) 则描述了较高能量的电子的弛豫过程

Fig. 8. Experimental Tr-ARPES data<sup>[13]</sup>: (a) The relaxation process for different bands of p-doped  $\text{Bi}_2\text{Se}_3$  excited by light; (b) schematic of the electronic band structures of  $\text{Bi}_2\text{Se}_3$  for reference; (c) electronic band structures for  $\text{Bi}_2\text{Se}_3$ , and the surface states and bulk conduction band are unoccupied due to the Fermi energy sitting inside the bulk valence band; (d) electrons are excited to high energy band after the excitation; (e)–(g) relaxation process of high energy electrons.

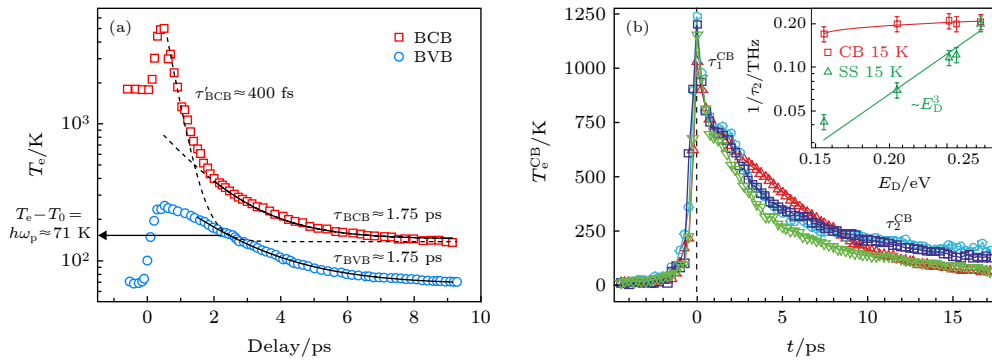


图 9 由 Shen 研究组 (a)<sup>[13]</sup> 和 Gedik 研究组 (b)<sup>[36]</sup> 利用 Tr-ARPES 所测得的  $\text{Bi}_2\text{Se}_3$  电子温度数据  
 Fig. 9. Electron temperature of  $\text{Bi}_2\text{Se}_3$  obtained by Tr-ARPES from Shen's group (a)<sup>[13]</sup> and Gedik's group (b)<sup>[36]</sup>.

分辨出体态和表面态的贡献, 从而揭示出令人更感兴趣的表面动力学过程. 结合双光子光电发射能谱 (two-photon photoemission spectroscopy, 2PEE) 的 Tr-ARPES 可以很明显地揭示出费米面上的第二个表面态; 同时发现, 光激发后, 在处于亚稳的体态导带电子的支持下, 第一表面态的电子处于较长的非平衡态. 亚稳的体态导带电子较长的寿命可能是由于中最高声子能量仅为 23 meV, 远小于禁带宽度 (200 meV), 因此电子和空穴的非辐射跃迁发生概率很低, 而辐射跃迁的时间尺度则通常大于 1 ns, 从而可以解释较长的时间尺度载流子复合过程 [37].

OPOP, OPTP 和 Tr-ARPES 等实验测量结果表明, 拓扑绝缘体中载流子弛豫过程主要有电子-电子作用, 电声相互作用和载流子复合 3 个过程 [9,13,26]. 其中, 电子-电子相互作用在最开始  $\sim 100$  fs 内占主导作用, 使得被激发的载流子达到准平衡态的费米-狄拉克统计, 即热化过程. 此后, 2 ps 左右内经历电子-光学声子、电子-声学声子相继作用后 (电声相互作用), 热电子通过发射声子的方式逐渐弛豫到接近导带底和表面态. 最后发生寿命在数十 ps 以上载流子复合以及更长时间尺度上的载流子扩散. 此外, 体态和表面态之间的载流子转移对弛豫过程也有影响. 在整个弛豫过程中, 表面态和体态都对材料内的输运过程有贡献, 但是表面态在薄膜材料中的贡献更为重要, 这在后续的拓扑绝缘体相关的材料研究有着重要作用. 这些关于载流子动力学过程与相关的理论工作可以互为印证 [38-41].

### 3.2 相干声子

相干声子是固体里的电子和晶格在光的激发下的原子的集体运动 [27]. 由于相干声子在短时间内能保持与脉冲激光接近的相干性, 因此 OPOP 实验中的探测光可以探测固体内受抽运光激发后的相干声子的动力学过程 [7,9,32,42-45]. 与非相干声子不同, 相干声子使得在被激发区域的晶格振动具有相同相位, 因此可以对介电函数、反射率等响应函数产生宏观可测的调制 (对于非相干情形, 由于相位随机, 来自不同部分的影响相互抵消), 在 OPOP 中测得的实验数据的振荡便来自于声子部分.

以  $\text{Bi}_2\text{Se}_3$  为例, 如图 10 所示, 对 OPOP 的实

验数据进行傅里叶变换可以得到在室温下的相干声子频谱 [8], 其中 3 个不同频率的声子约为 2.2, 4 和 5.2 THz. 与拉曼光谱的研究结果对比 [46], 可以发现它们分别对应着  $A_{1g}^1$ ,  $E_g^2$ ,  $A_{1g}^2$  光学声子模式, 其中  $A_{1g}^1$  的强度最高. 这些太赫兹的振荡来自于相干拉曼散射过程 [47] 和位移激发 [45], 与 Tr-ARPES 的结果一致 [48]. 除  $\text{Bi}_2\text{Se}_3$  外, 其他的拓扑绝缘体如  $\text{Bi}_2\text{Te}_3$  在室温下的  $A_{1g}$  声子频率约为 1.85 THz [42,44], 而  $\text{Sb}_2\text{Te}_3$  的  $A_{1g}$  声子频率约为 2.07 THz [43,44], 以及  $\text{Bi}_2\text{Te}_3/\text{Sb}_2\text{Te}_3$  组成的超晶格的声子频率约为 2.05 THz [44].

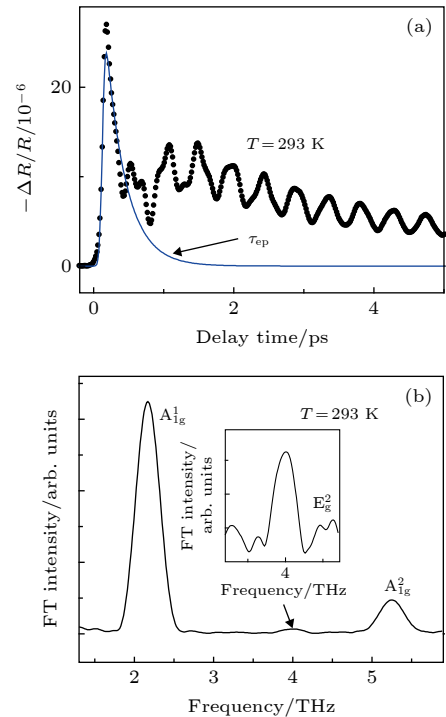


图 10  $\text{Bi}_2\text{Se}_3$  的 OPOP 实验数据及其傅里叶变换结果 [8]

Fig. 10. OPOP experimental data and Fourier transform of the oscillatory data for  $\text{Bi}_2\text{Se}_3$  at 293 K [8].

利用 OPOP 方法可以测量相干声子的动力学过程. 从图 5 所示的 OPOP 实验数据, 图 7 的 OPTP 数据和图 11 [48] 中的 Tr-ARPES 中可以发现, 测得的数据都存在着一个指数的衰减过程, 这是准粒子在高能声子散射影响下的快速弛豫过程. 激发的载流子通过电声相互作用快速地失去能量.

在此基础上, 可以发现数据随着延时表现出振荡, 这是相干声子的贡献. 由实验数据的傅里叶变换可知, 较为明显的高频振动频率约为 2.17 THz, 这对应于约 8.97 meV 的能量 [11], 这与利用拉曼光谱所测得的  $A_{1g}^1$  纵光学声子频率 (2.16 THz) [47] 和

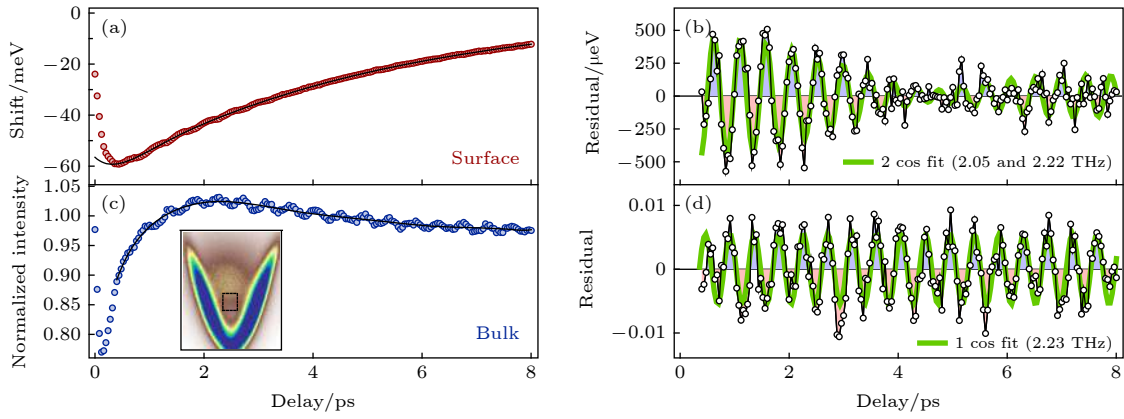

 图 11  $\text{Bi}_2\text{Se}_3$  的 Tr-ARPES 实验数据图<sup>[48]</sup>

 Fig. 11. Experimental Tr-ARPES data of  $\text{Bi}_2\text{Se}_3$ <sup>[48]</sup>.

之前的 OPOP 研究 (2.13 THz)<sup>[7]</sup> 一致, 表明高频振荡来源于光学声子, 其寿命大约为 3.2 ps<sup>[11]</sup>.

除了光学声子外, 被激发电子还可以通过不同的机制, 例如形变势、压电场和 Fröhlich 相互作用<sup>[29]</sup>, 发射不同强度的声学声子或极化光学声子. 其中, 通过 Fröhlich 相互作用与极化光学声子的耦合被认为要强于其他机制的电声耦合. 一般而言, 强耦合的声子模会积累较高的能量, 然后经过一段时间衰变为低能声子模<sup>[26]</sup>. 考虑之前载流子的弛豫, 因为光学声子与热电子之间的电声相互作用较强, 所以电子-光学声子作用便成为热电子弛豫的主要渠道<sup>[49,50]</sup>.

最后较长的弛豫过程来自于声学声子的贡献<sup>[7,11]</sup>. 声学声子的能量较低, 振动频率约为 0.033 THz<sup>[11,27]</sup> 部分是相干声学声子的贡献. 晶格声学模的相干振动同样会导致反射率的信号被调制. 从图 5 可以发现, 低频的振动持续时间超过 50 ps, 说明其弛豫过程可以持续很长时间. 通过相干声子的分析可以发现, 拓扑绝缘体的相干声子行为与拉曼过程<sup>[47]</sup> 的一致性, 从而可以通过相干声子的测量了解材料内的弛豫过程. 对于拓扑绝缘体中电子声子耦合的理论可以参考相关文献<sup>[51,52]</sup>.

### 3.3 自旋动力学

由于拓扑绝缘体有无能隙的表面态和自旋-动量锁定的性质, 拓扑绝缘体中在表面态能带的电子自旋的行为与普通材料有所不同, 而这对于研究和控制固体体系内的自旋自由度有重要的意义. 因此拓扑绝缘体的自旋动力学研究对于与自旋相关的电子学和器件的研究有重要作用<sup>[2,21]</sup>. 自旋动力学

主要研究自旋的弛豫过程. 在非磁性材料中, 自旋的弛豫机制主要有 Elliott-Yafet (EY) 散射, Dyakonov-Perel' (DP) 散射等机制<sup>[21]</sup>. EY 机制指的是在有自旋轨道耦合 (spin-orbit coupling, SOC) 的材料中, SOC 会使得电子的波函数为自旋向上和向下两种波函数的混合, 导致满足自旋守恒的电子与声子 (Elliott 过程) 或杂质 (Yafet 过程) 的散射而引起的自旋弛豫过程<sup>[21]</sup>. DP 机制则是在空间反演对称性破缺材料中的自旋弛豫过程, 其中反演对称破缺引起的 SOC 可以等效于与电子自旋相关的磁场, 而电子自旋则围绕此等效磁场进动, 在电子的动量散射过程中, 会导致自旋进动角度发生不可逆变化, 使得自旋被弛豫<sup>[21]</sup>.

拓扑绝缘体中的自旋动力学过程可以通过时间分辨克尔旋转光谱来研究<sup>[8,9,35]</sup>, 测量信号可以使用入射光基频的信号, 也可以使用非线性如二次谐波的信号, 后者可以得到纯表面的自旋动力学信息. 以  $\text{Bi}_2\text{Se}_3$  为例, 图 12 是在光激发之后电子自旋的弛豫过程<sup>[14]</sup>. 在圆偏振光激发下, 根据跃迁选择定则,  $\text{Bi}_2\text{Se}_3$  的体价带中的电子跃迁到体导带, 并带有净自旋极化 (磁化). 此后在 EY 机制和 DP 机制<sup>[8]</sup> 作用下, 载流子的自旋在电子-电子和电子-声子相互作用下逐渐弛豫, 同时从之前讨论的载流子动力学中可知, 载流子的能量也在降低, 最后伴随着缓慢的电子-空穴复合过程以及电子-声学声子的相互作用, 完成弛豫过程<sup>[13,14]</sup>.

图 13 为  $\text{Bi}_2\text{Se}_3$  的时间分辨克尔转角光谱的实验数据<sup>[8,14,53]</sup>, 从之前的讨论中可知, 克尔转角与材料内的磁化相关<sup>[9]</sup>. 这项工作研究了在圆偏振光的激发下, 材料光致磁化的两个不同机制<sup>[14]</sup>: 在靠近

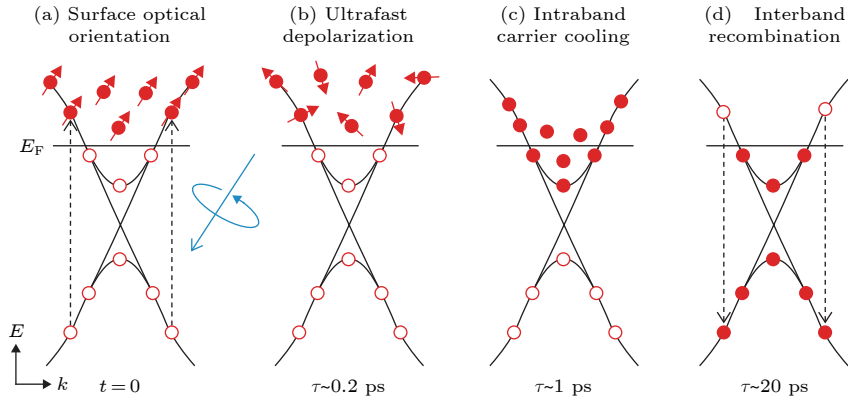


图 12  $\text{Bi}_2\text{Se}_3$  中载流子和自旋在光激发下的弛豫过程图示<sup>[14]</sup> (a)–(d) 不同时间尺度下的弛豫过程

Fig. 12. Photoinduced relaxation processes of carriers and spin in  $\text{Bi}_2\text{Se}_3$  <sup>[14]</sup>: (a)–(d) correspond to the relaxation processes of different time scales.

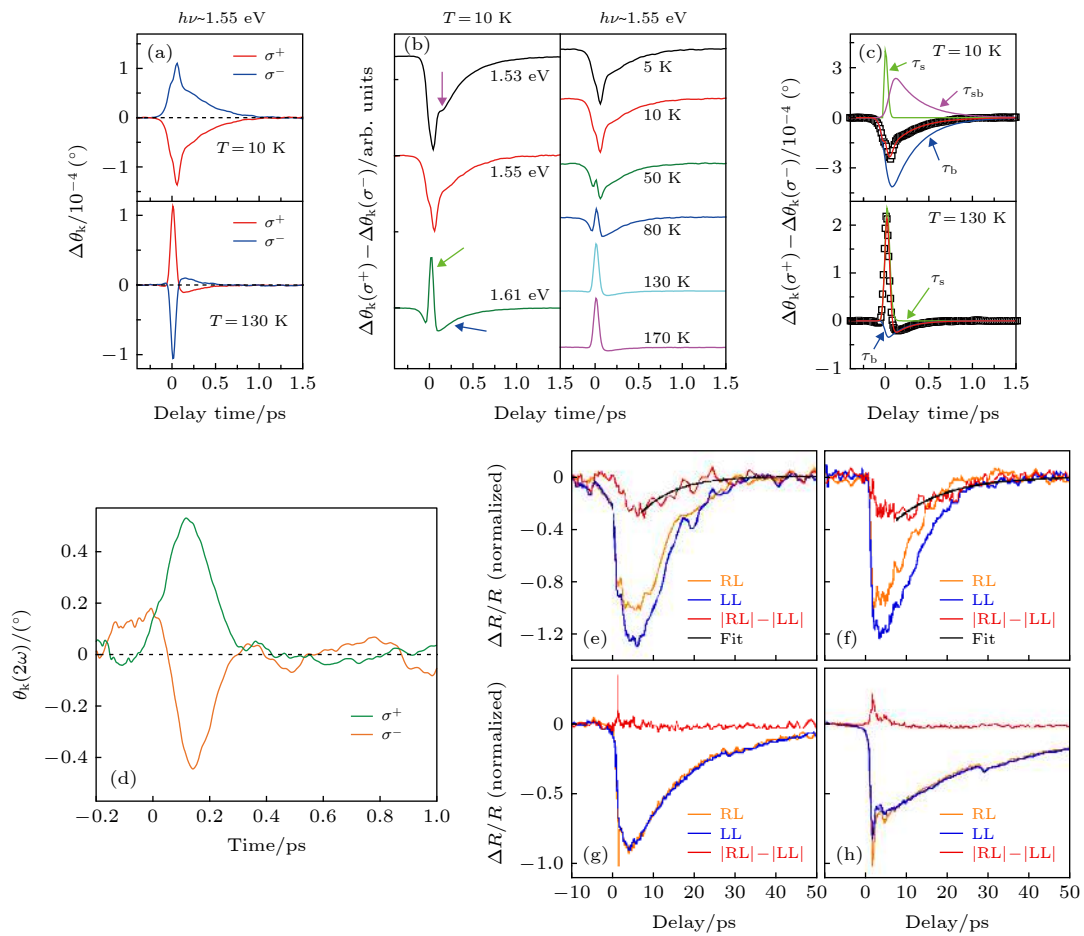


图 13 (a)  $\text{Bi}_2\text{Se}_3$  样品在 10 K 和 80 K 时的克尔转角光谱, 红线代表抽运激光为左旋圆偏振光, 蓝色实线代表右旋圆偏振光<sup>[8]</sup>; (b)  $\text{Bi}_2\text{Se}_3$  样品在不同光子能量和不同温度下的克尔转角光谱<sup>[8]</sup>; (c)  $\text{Bi}_2\text{Se}_3$  实验数据拟合<sup>[8]</sup>; (d) 二次谐波克尔光谱(斜入射抽运光)测得的实验数据<sup>[14]</sup>; (e)–(h) 左右圆偏振光激发后反射率变化随时间变化的实验数据<sup>[53]</sup>

Fig. 13. (a) Time-resolved Kerr rotation of  $\text{Bi}_2\text{Se}_3$  at 10 K and 80 K. Red line indicates that the pump laser is left circularly polarized while the blue one is right circularly polarized<sup>[8]</sup>. (b) Time-resolved Kerr rotation of  $\text{Bi}_2\text{Se}_3$  excited at different photon energies for different temperatures<sup>[8]</sup>. (c) fittings of the TRKR experimental data for  $\text{Bi}_2\text{Se}_3$ <sup>[8]</sup>. (d) Kerr rotation experimental data via second harmonic generation(oblique pump)<sup>[14]</sup>. (e)–(h) transient reflectivity corresponding to the left and right circularly polarized pump light<sup>[53]</sup>.

体态的表面态 (Bulk-like surface state) 的逆法拉第效应<sup>[54]</sup>和狄拉克表面态的光诱导磁化. 前者与材料内磁化导致的偏振光旋转的法拉第效应相反, 是由圆偏振的电磁场诱导的磁化. 两者本质上都由跃迁选择定则决定, 自旋-轨道锁定的表面态中, 具有特定自旋的电子被圆偏振光激发, 从而造成狄拉克锥的磁化.

在圆偏振光的激发下, 材料表面产生瞬态的磁化, 进而造成相应的克尔旋转角的变化. 结合 Tr-ARPES 的研究<sup>[8,23,55]</sup>可以发现 1.61 eV 抽运光激发下电子跃迁有 3 个过程 (图 14): 1) 从拓扑表面态  $SS_1$  跃迁至  $SS_2$  ( $SS_1 \rightarrow SS_2$ ); 2) 从  $SS_1$  跃迁至较高的体价带  $BVB_2$  ( $SS_1 \rightarrow BVB_2$ ); 3) 从较低的  $BVB_1$  跃迁至  $BVB_2$  ( $BVB_1 \rightarrow BVB_2$ )<sup>[8]</sup>. 这 3 种跃迁产生的处于不同能级电子的自旋极化的弛豫过程分别对应图 13(c) 中的拟合所用的 3 个指数衰减项, 其时间常数分别标记为  $\tau_s$ ,  $\tau_{sb}$  和  $\tau_b$ . 只有在较高的激发能量 (1.61 eV) 或者较低的能量下,  $SS_1 \rightarrow SS_2$  跃迁才能发生, 而  $\tau_b$  代表的自旋弛豫过程在可调控的光子能量和温度范围内都存在. 此

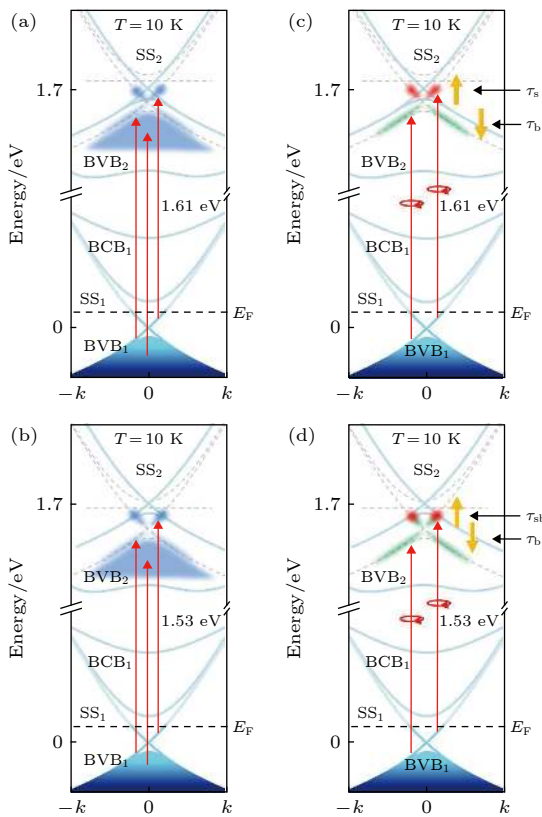


图 14  $Bi_2Se_3$  在不同光子能量激发下的能带跃迁示意图<sup>[8]</sup>  
 Fig. 14. Schematic of photo-excitation processes via light with different photon energies in  $Bi_2Se_3$ <sup>[8]</sup>.

外, 弛豫时间中  $\tau_s$  较快 (约 25 fs), 而  $\tau_b$  近似与  $\tau_{sb}$  相同 (约为 300 fs), 都较慢, 这是因为在  $SS_2$  中, 自旋弛豫主要受  $E_g^2$  光学声子与电子的散射的影响 (该散射过程同时包含了动量和能量散射弛豫), 而在体态则主要是受  $A_{1g}$  声子散射. 两种声子的能量差异很大, 从而导致了不同的自旋弛豫过程. 关于  $\tau_{sb}$  的弛豫过程, 还涉及到体态与表面态的耦合效应, 这种效应可以参考相关文献<sup>[8,38]</sup>. 而对于拓扑绝缘体中电声耦合相关的理论分析可以参考相关文献<sup>[38,41,51,52]</sup>.

可以发现, 拓扑绝缘体表面产生的净磁化有表面态的参与<sup>[8]</sup>, 并受到激发光子能量和环境温度的影响. 同时, 在表面态和体态的电子的自旋极化的弛豫时间有很大不同, 这些发现对以后的超快自旋电子学器件的研究有很大的帮助<sup>[8,21]</sup>.

#### 4 总结与结论

本文介绍了利用超快光谱研究拓扑绝缘体的载流子动力学、相干声子和自旋动力学的实验方法及通过实验得到的动力学过程. 载流子动力学通过 OPOP, OPTP 和 Tr-ARPES 可以探测到材料内的载流子首先在光激发下热化到准平衡 ( $\sim 10^{-1}$  ps), 再通过电声相互作用弛豫 ( $\sim 10^0$  ps), 最后复合的过程 ( $\sim 10^1$  ps). 此外, 还可以测得其拓扑绝缘体与传统金属接近的电声耦合强度. 通过 OPOP 和 Tr-ARPES 研究发现, 相干声子在相干拉曼过程和位移激发的机制下, 分为光学声子 ( $\sim 10^0$  ps) 和声学声子 ( $\geq 10^2$  ps) 两个过程. 通过时间分辨克尔转角光谱和 Tr-ARPES 研究发现, 自旋动力学伴随着载流子在体态和表面态中主要通过 EY 或 DP 机制弛豫.

拓扑绝缘体内的载流子和自旋动力学的研究对光自旋电子学和超快自旋电子学等有很大帮助, 除了本文介绍的实验方法外, 还有太赫兹发射谱、拉曼光谱等方法. 这些实验方法均可有效地从不同角度探测和研究不同材料的性质.

#### 参考文献

- [1] Qi X L, Zhang S C 2011 *Rev. Mod. Phys.* **83** 1057
- [2] Hasan M Z, Kane C L 2010 *Rev. Mod. Phys.* **82** 3045
- [3] Zhang H J, Liu C X, Qi X L, Dai X, Fang Z, Zhang S C 2009 *Nat. Phys.* **5** 438
- [4] Hajlaoui M, Papalazarou E, Mauchain J, Lantz G, Moisan N, Boschetto D, Jiang Z, Miotkowski I, Chen Y P, Taleb-

- Ibrahimi A, Perfetti L, Marsi M 2012 *Nano Lett.* **12** 3532
- [5] Xia Y, Wray L, Qian D, Hsieh D, Pal A, Lin H, Bansil A, Grauer D, Hor Y S, Cava R J, Hasan M Z 2008 *arXiv* **0812.2078**
- [6] Hsieh D, Xia Y, Qian D, Wray L, Dil J H, Osterwalder J, Patthey L, Checkelsky J G, Ong N P, Fedorov A V, Lin H, Bansil A, Grauer D, Hor Y S, Cava R J, Hasan M Z 2009 *Nature* **460** 1101
- [7] Qi J, Chen X, Yu W, Cadden-Zimansky P, Smirnov D, Tolks N H, Miotkowski I, Cao H, Chen Y P, Wu Y, Qiao S, Jiang Z 2010 *Appl. Phys. Lett.* **97** 182102
- [8] Wang M C, Qiao S, Jiang Z, Luo S N, Qi J 2016 *Phys. Rev. Lett.* **116** 036601
- [9] Wang M C 2017 Ultrafast optical spectroscopy research of strong correlated and topological materials (Mianyang: China Academy of Engineering Physics)(in Chinese) [王明聪 2017 强关联及拓扑材料的超快光谱研究 (绵阳: 中国工程物理研究院)]
- [10] Basov D N, Averitt R D, Van Der Marel D, Dressel M, Haule, K 2011 *Rev. Mod. Phys.* **83** 471
- [11] Kumar N, Brian A R, Butch N P, Syers P, Kirshenbaum K, Paglione J, Zhao H 2011 *Phys. Rev. B* **83** 235306
- [12] Luo L, Yang X, Liu X, Liu Z, Vaswani C, Cheng D, Mootz M, Zhao X, Yao Y, Wang C Z, Ho K M, Perakis I E, Dobrowolska M, Furdyna J K, Wang J 2019 *Nat. Commun.* **10** 607
- [13] Sobota J A, Yang S, Analytis J G, Chen Y L, Fisher I R, Kirchmann P S, and Shen Z X 2012 *Phys. Rev. Lett.* **108** 117403
- [14] Hsieh D, Mahmood F, McIver J W, Gardner D R, Lee Y S, Gedik N 2011 *Phys. Rev. Lett.* **107** 077401
- [15] Zouaghi W, Thomson M D, Rabia K, Hahn R, Blank V, Roskos H G 2013 *Eur. J. Phys.* **34** S179
- [16] Smith P R, Auston D H, Nuss M C 1988 *IEEE J. Quantum Electron.* **24** 255
- [17] Averitt R D, Taylor A J 2002 *J. Phys.: Condens. Matter* **14** R1357
- [18] Eschenlohr A, Battiato M, Maldonado P, Pontius N, Kachel T, Holldack K, Mitzner R, Föhlisch A, Oppeneer P M, Stamm C 2013 *Nat. Mater.* **12** 332
- [19] Demsar J, Sarrao J L, Taylor A J 2006 *J. Phys.: Condens. Matter* **18** R281
- [20] Kastler A 1957 *JOSA* **47** 460
- [21] Fabian J, Sarma S Das 2004 *Rev. Mod. Phys.* **76** 323
- [22] Richard P, Sato T, Nakayama K, Takahashi T, Ding H 2011 *Reports Prog. Phys.* **74** 124512
- [23] Eich S, Stange A, Carr A V, Urbancic J, Popmintchev T, Wiesenmayer M, Jansen K, Ruffing A, Jakobs S, Rohwer T, Hellmann S, Chen C, Matyba P, Kipp L, Rosnagel K, Bauer M, Murnane M M, Kapteyn H C, Mathias S, Aeschlimann M 2014 *J. Electron Spectros. Relat. Phenomena* **195** 231
- [24] Cacho C, Crepaldi A, Battiato M, Braun J, Cilento F, Zacchigna M, Richter M C, Heckmann O, Springate E, Liu Y, Dhesi S S, Berger H, Bugnon Ph, Held K, Grioni M, Ebert H, Hricovini K, Minár J, Parmigiani F 2015 *Phys. Rev. Lett.* **114** 097401
- [25] Glinka Y D, Babakiray S, Johnson T A, Holcomb M B, Lederman D 2014 *Appl. Phys. Lett.* **105** 171905
- [26] Lai Y P, Chen H J, Wu K H, Liu J M 2014 *Appl. Phys. Lett.* **105** 232110
- [27] Weis M, Balin K, Rapacz R, Nowak A, Lejman M, Szade J, Ruello P 2015 *Phys. Rev. B* **92** 014301
- [28] Sánchez-Barriga J, Battiato M, Krivenkov M, Golias E, Varykhalov A, Romualdi A, Yashina L V, Minár J, Kornilov O, Ebert H, Held K, Braun J 2017 *Phys. Rev. B* **95** 125405
- [29] Li Z Z 2002 Solid Theory (2nd Ed.) (Beijing: Higher Education Press) p40 (in Chinese) [李正中 2002 固体理论 (第2版) (北京: 高等教育出版社) 第 40 页]
- [30] Cheng L, La-O-Vorakiat C, Tang C S, Nair S K, Xia B, Wang L, Zhu J X, Chia Elbert E M 2014 *Appl. Phys. Lett.* **104** 211906
- [31] Pan Z H, Fedorov A V, Gardner D, Lee Y S, Chu S, Valla T 2012 *Phys. Rev. Lett.* **108** 187001
- [32] Valdés Aguilar R, Qi J, Brahlek M, Bansal N, Azad A, Bowlan J, Oh S, Taylor A J, Prasankumar R P, Yarotski D A 2015 *Appl. Phys. Lett.* **106** 011901
- [33] Wu L, Brahlek M, Aguilar R Valdés, Stier A V, Morris C M, Lubashevsky Y, Bilbro L S, Bansal N, Oh S, Armitage N P 2013 *Nat. Phys.* **9** 410
- [34] Valdés Aguilar R, Stier A V, Liu W, Bilbro L S, George D K, Bansal N, Wu L, Cerne J, Markelz A G, Oh S, Armitage N P 2012 *Phys. Rev. Lett.* **108** 087403
- [35] Choi Y G, Zhung C J, Park S H, Park J B, Kim J S, Kim S H, Park J H, Lee J S 2018 *Phys. Rev. B* **97** 075307
- [36] Wang Y H, Hsieh D, Sie E J, Steinberg H, Gardner D R, Lee Y S, Jarillo-Herrero P, Gedik N 2012 *Phys. Rev. Lett.* **109** 127401
- [37] Sobota J A, Yang S L, Leuenberger D, Kemper A F, Analytis J G, Fisher I R, Kirchmann P S, Devereaux T P, Shen Z X 2014 *J. Electron Spectros. Relat. Phenomena* **195** 249
- [38] Saha K, Garate I 2014 *Phys. Rev. B* **90** 245418
- [39] Shapourian H, Hughes T L, Ryu S 2015 *Phys. Rev. B* **92** 165131
- [40] Yazyev O V, Moore J E, Louie S G 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 266806
- [41] Liu C X, Qi X L, Zhang H J, Dai X, Fang Z, Zhang S C 2010 *Phys. Rev. B* **82** 045122
- [42] Kamaraju N, Sunil K, Sood A K 2010 *Europhys. Lett.* **92** 47007
- [43] Li Y W, Stoica Vladimir A, Endicott L, Wang G Y, Uher C, Clarke R 2010 *Appl. Phys. Lett.* **97** 171908
- [44] Wang Y, Xu X, Venkatasubramanian R 2008 *Appl. Phys. Lett.* **93** 113114
- [45] Cheng T K, Vidal J, Zeiger H. J, Dresselhaus G, Dresselhaus M S, Ippen E P 1991 *Appl. Phys. Lett.* **59** 1923
- [46] Richter W, Kohler H, Becker C R 1977 *Phys. Status Solidi* **84** 619
- [47] Merlin R 1997 *Solid State Commun.* **102** 207
- [48] Sobota J A, Yang S L, Leuenberger D, Kemper A F, Analytis J G, Fisher I R, Kirchmann P S, Devereaux T P, Shen Z X 2014 *Phys. Rev. Lett.* **113** 157401
- [49] Xu Y, Khafizov M, Satrapinsky L, Kúš P, Plecenik A, Sobolewski R 2003 *Phys. Rev. Lett.* **91** 197004
- [50] Taneda T, Pepe G P, Parlato L, Golubov A A, Sobolewski R 2007 *Phys. Rev. B* **75** 174507
- [51] Giraud S, Egger R 2011 *Phys. Rev. B* **83** 245322
- [52] Giraud S, Kundu A, Egger R 2012 *Phys. Rev. B* **85** 035441
- [53] Iyer V, Chen Y P, Xu X 2018 *Phys. Rev. Lett.* **121** 026807
- [54] Hertel R 2005 *arXiv:cond-mat* **0509** 0509060
- [55] Sobota J A, Yang S L, Kemper A F, Lee J J, Schmitt F T, Li W, Moore R G, Analytis J G, Fisher I R, Kirchmann P S, Devereaux T P, Shen Z X 2013 *Phys. Rev. Lett.* **111** 136802

SPECIAL TOPIC—The frontiers and applications of topological physics

Ultrafast charge and spin dynamics on topological insulators\*

Xiang Tian<sup>1)2)</sup> Cheng Liang<sup>1)</sup> Qi Jing-Bo<sup>1)2)†</sup>

1) (*State Key Laboratory of Electronic Thin Films and Integrated Devices, University of Electronic Science and Technology of China, Chengdu 611731, China*)

2) (*Guangdong Institute of Electronic Information Engineering, University of Electronic Science and Technology, Dongguan 523808, China*)

( Received 19 September 2019; revised manuscript received 2 November 2019 )

**Abstract**

Topological insulators (TIs), with unique bulk insulating and two-dimensional surface conducting states, show great promise of future optospintronics and spintronics applications, where a complete knowledge of the charge and spin dynamics is quite essential. Thus, the non-equilibrium properties inside TIs have attracted enormous attention. Here in this paper, we review the latest achievements in this field. The focus will be mainly on the experimental study, covering the ultrafast dynamical properties of charge, phonon, and spin. We hope that this review can stimulate further studies, especially theoretical research concerning the properties of topological insulators out of thermodynamic equilibrium.

**Keywords:** topological insulator, ultrafast pump-probe, charge dynamics, spin dynamics

**PACS:** 72.20.Jv, 78.47.J-, 72.25.Rb, 67.30.lhj

**DOI:** [10.7498/aps.68.20191433](https://doi.org/10.7498/aps.68.20191433)

---

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11974070, 11734006) and the Frontier Science Project of Dongguan, China (No. 2019622101004).

† Corresponding author. E-mail: [jbqi@uestc.edu.cn](mailto:jbqi@uestc.edu.cn)