

专题：拓扑物理前沿与应用

三重简并拓扑半金属磷化钼的时间分辨超快动力学*

姜聪颖¹⁾³⁾ 孙飞¹⁾²⁾ 冯子力¹⁾²⁾ 刘世炳³⁾ 石友国¹⁾⁴⁾ 赵继民^{1)2)4)†}

1) (中国科学院物理研究所, 北京凝聚态物理国家研究中心, 北京 100190)

2) (中国科学院大学, 物理科学学院, 北京 100049)

3) (北京工业大学激光工程研究院, 强场与超快光子学实验室, 北京 100124)

4) (松山湖材料实验室, 东莞 523808)

(2019年11月30日收到; 2019年12月27日收到修改稿)

拓扑半金属磷化钼 (MoP) 同时具有三重和二重简并费米子. 为了研究其费米面以上的激发态超快动力学特性, 对其进行了时间分辨超快泵浦-探测实验. 获得了 MoP 的准粒子动力学, 包含来源于电子-声子散射的快分量, 寿命为 0.3 ps, 以及来源于声子-声子散射的慢分量, 寿命为 150 ps. 温度依赖的研究表明, 快分量和慢分量的弛豫寿命均随着温度的增加产生微小增大. 同时还激发并探测到一支相干态声学支声子, 其由热应力引起, 频率为 0.033 THz 且不随温度而改变. 对于 MoP 激发态准粒子超快动力学以及相干态声子的研究为理解该体系总体的激发态超快动力学特性以及电子-声子相互作用对温度的依赖提供了有益实验依据.

关键词: 超快光谱, 三重简并费米子, 电子-声子耦合, 拓扑半金属**PACS:** 78.47.jg, 78.47.J-, 71.38.-k, 03.65.Vf**DOI:** 10.7498/aps.69.20191816

1 引言

过去二十余年, 拓扑量子态^[1] 研究在凝聚态物理领域取得了诸多进展, 尤其是具有四重简并特征的 Dirac 型拓扑半金属^[2,3] 和具有两重简并的 Weyl 半金属^[4,5] 相继被理论预测和实验证实. 由于凝聚态物质中存在丰富的对称性, 使得具有更丰富简并度的准粒子成为了可能. 2016 年 Bernevig 等^[6] 从空间群的对称性出发, 预言了可能存在于固体中的三重、六重以及八重简并态. 随后实验上在 MoP 单晶的动量空间中同时观测到受到旋转和镜像对称性保护的三重简并点^[7-9] 和两重简并的 Weyl

点, 这大大拓展和加深了人们对于拓扑量子态的理解. 为了探索该体系中存在的复杂拓扑能带结构对激发态准粒子可能的影响, 我们利用超快光谱学手段, 对其激发态准粒子动力学进行了温度依赖的实验研究.

超快时间分辨泵浦-探测实验是探测凝聚态体系中非平衡态准粒子动力学过程的有效手段. 在非规范高温超导体^[10-14]、拓扑量子材料^[15-17]、强关联材料^[18,19]、二维材料^[20-23]、磁性材料^[24,25]、半导体材料^[26,27] 等体系的玻色型元激发、能隙的打开、相干态声子的产生和探测等物理过程的研究中有重要的应用. 本文通过超快时间分辨泵浦-探测实验对具有三重简并费米子特征的拓扑半金属 MoP

* 国家重点研发计划 (批准号: 2017YFA0303603, 2016YFA0300303, 2017YFA0302901)、国家自然科学基金 (批准号: 11574383, 11774408, 11774399)、中国科学院战略性先导科技专项 B (批准号: XDB30000000)、中国科学院国际合作项目 (批准号: GJHZ1826)、北京市自然科学基金 (批准号: 4191003) 和中国科学院创新交叉团队资助的课题.

† 通信作者. E-mail: jmzhao@iphy.ac.cn

的激发态准粒子超快动力学和相干态声子进行了系统研究. 实验观测到两个特征寿命分别为 0.3 和 140 ps 的弛豫过程和一支频率为 0.033 THz 的相干态声学支声子. 值得一提的是, 温度依赖的研究揭示了温度在该体系的电子-声子耦合过程扮演了非常重要的角色^[16], 对全面理解该体系复杂的拓扑能带结构对于激发态准粒子动力学特性的影响以及人为调控其拓扑特性和相互作用等提供有效的思路.

2 实验方法

利用中心波长为 800 nm, 重复频率为 250 kHz, 脉宽为 75 fs 的掺 Ti-蓝宝石飞秒激光光源进行时间分辨超快动力学实验. 激光被分束片分为泵浦光和探测光两束, 经过聚焦后, 最终在样品表面重合. 其中泵浦光把样品处于基态的电子激发到激发态, 探测光通过电动延迟位移台, 精密控制其到达样品表面的时间. 通过测量探测光经过样品表面后的反

射光的瞬态变化率, 获得时间分辨的准粒子超快动力学信息. 由于该信号通常淹没在巨大的噪声背底中, 需要用到锁相放大技术, 即利用斩波器对泵浦光进行斩波调制再利用锁相放大器进行采样, 斩波频率为 1 kHz. 为了进一步提高信噪比, 反射光的信号采集使用了平衡探测技术, 在探测光入射到样品表面之前, 分出一束参考光, 将探测光的反射光和参考光同时通过平衡探测器进行收集, 记录两束光的差值. 通过平衡探测技术, 有效地抑制了激光功率涨落引起的噪声, 将信噪比提高了 1—2 个数量级. 实验中使用的泵浦光和探测光的功率分别为 3.0 mW 和 1.0 mW. 所用 MoP 单晶样品利用固态反应法合成.

3 结果与讨论

样品大小约为 1 mm × 1 mm. 图 1(b) 展示了固定在铜托上样品的扫描电子显微镜 (SEM) 图片, 由于 MoP 单晶是绝缘体, 进行 SEM 测量时电子

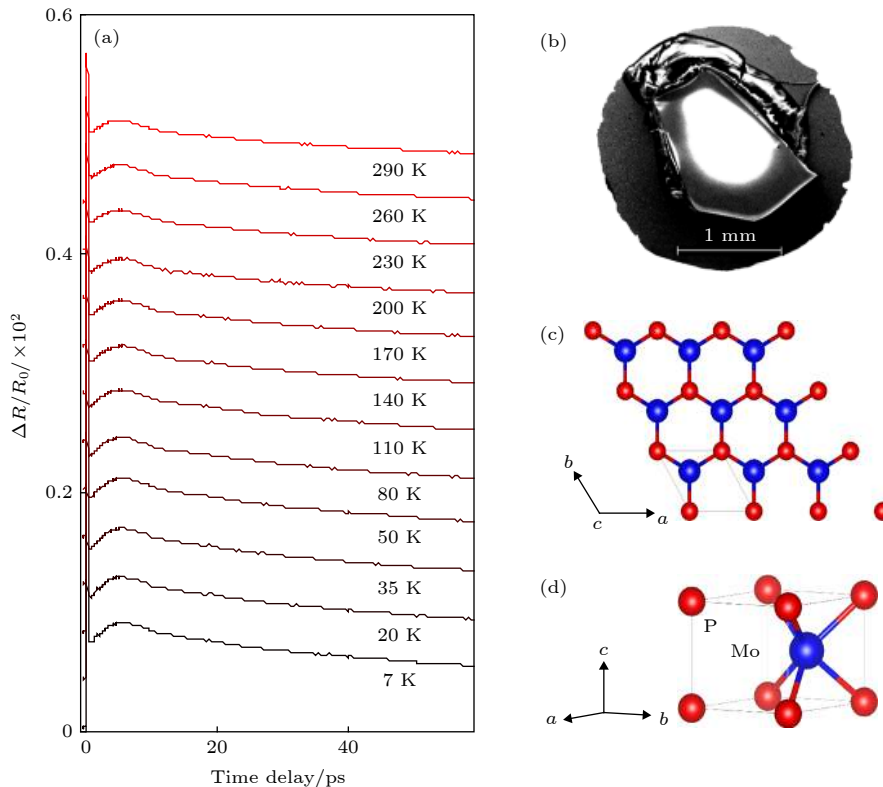


图 1 MoP 的时间分辨超快动力学过程 (a) 温度从 7 K 到 290 K 变化的 $\Delta R/R_0$ 曲线; (b) 进行泵浦探测实验所用 MoP 样品的 SEM 图片; (c) 和 (d) 分别为 MoP 样品在不同角度下的晶格结构. 蓝色和红色小球分别代表 Mo 原子和 P 原子

Fig. 1. Time-resolved pump-probe spectroscopy showing the ultrafast dynamics of MoP: (a) The $\Delta R/R_0$ of MoP at several typical temperatures from 7 to 290 K; (b) SEM image of our sample; (c) and (d) Schematic lattice structures of MoP. Blue and red balls: Mo and P atoms, respectively.

会富集在样品表面, 因此其 SEM 图片非常明亮. SEM 结果表明我们合成的样品表面平整光滑, 适合进行光学实验探测. MoP 的晶体具有 Pm2(编号 187) 空间群结构, 该结构具有旋转对称性 C_{3z} 和镜像对称性 M_y 和 M_z [7]. 图 1(c) 和图 1(d) 分别展示了不同角度下的晶格结构, 其中蓝色实心球为 Mo 原子, 红色实心球为 P 原子. 在 MoP 组成的基本六面体结构单元中, P 原子位于 (0, 0, 0) 的顶点位置, Mo 原子位于 (1/3, 2/3, 1/2) 的体内位置[7].

图 1(a) 展示了 MoP 单晶时间分辨的超快动力学原始数据, 其相对反射率瞬态变化值 ($\Delta R/R_0$) 信号由准粒子弛豫贡献的 e 指数衰减和相干态声子贡献的振荡两部分组成, 定量分析在后续段落中给出了详细讨论. 从图 1(a) 可以看出, 随着温度升高, 其动力学过程没有发生非常明显的变化. 为了更加清晰地展示温度依赖的动力学结果, 图 2 给出了原始数据的二维彩图, 从中同样可以看出, 随着温度的升高, 除了动力学曲线的绝对幅值(图中颜色)发生渐变外, 没有表现出其他明显的相变特征.

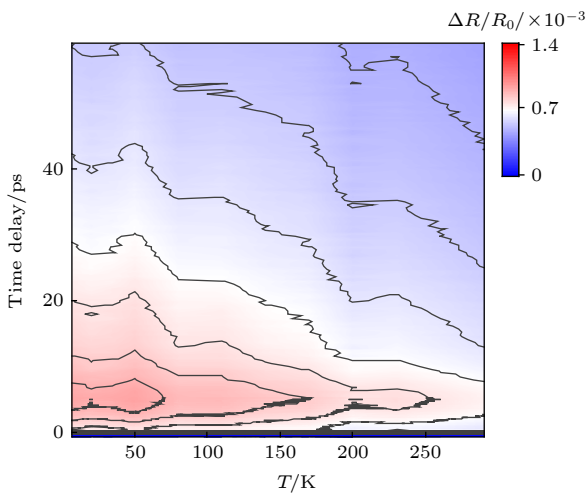


图 2 温度依赖的动力学二维彩图

Fig. 2. 2D mapping diagram of temperature-dependent dynamics.

在泵浦-探测实验中, 当泵浦光脉冲抵达样品表面时, 电子从基态被激发到激发态形成光生载流子, 其态密度正比于入射的泵浦光的光通量. 随后, 这些光生载流子通过电子-电子散射、电子-声子散射、声子-声子散射等过程逐渐弛豫回基态, 弛豫过程满足 e 指数衰减的规律. 一般地, 不同的 e 指数

对应不同的衰减通道, 具有不同的特征寿命. 本工作中 MoP 单晶超快动力学的定性表现出两个不同时间尺度的动力学弛豫分量, 并在准粒子弛豫过程的贡献之外还叠加有一个快速衰减的振荡分量, 可能来源于相干态声子. 同时考虑准粒子超快弛豫和相干态声子的贡献, $\Delta R/R_0$ 信号可以由如下函数定量描述:

$$\begin{aligned} \Delta R/R_0 = & A_0 \exp(-t/\tau_{ph}) \sin(2\pi f t + \varphi) \\ & + A_{fast} \exp(-t/\tau_{fast}) \\ & + A_{slow} \exp(-t/\tau_{slow}), \end{aligned} \quad (1)$$

其中 A_{fast} 和 A_{slow} 分别表示两个弛豫过程的幅值; τ_{fast} 和 τ_{slow} 分别表示两个弛豫过程的寿命; f , A_0 , φ , 和 τ_{ph} 分别表示相干态声子的频率、振幅、初相位以及寿命. 图 3 展示了 7 K 温度下利用 (1) 式对 $\Delta R/R_0$ 信号进行拟合的结果, 其中黑色圆圈代表原始数据, 蓝色曲线为拟合结果, 从中可以看出拟合结果与原始数据符合得较好. 据此获得了在 7 K 温度下, 两个准粒子弛豫过程的寿命分别为 0.16 ps 和 128 ps, 相干态声子的频率为 0.03 THz, 初相位为 -0.16π , 声子寿命大约为 4.7 ps. 由图 1(a) 易见, 动力学行为在各个温度下相似, 采用 (1) 式对各个温度均进行了拟合, 拟合结果也相似, 此处不再展示其它温度结果. 在图 3 的插图中展示相干

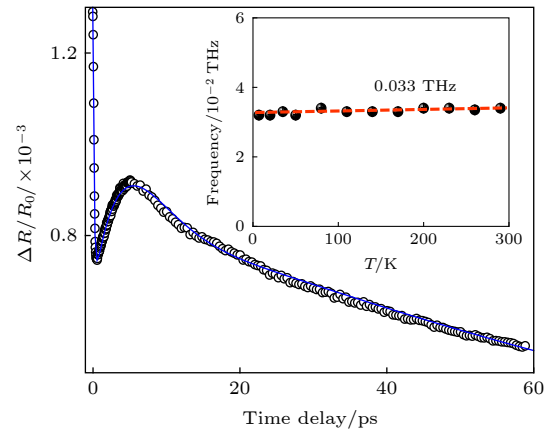


图 3 温度为 7 K 的 $\Delta R/R_0$ 的拟合结果, 其中空心圆圈代表原始实验数据, 蓝色实线代表拟合曲线. 插图为激发的相干态声学支声子的频率对温度的依赖, 在整个温区均为 0.033 THz

Fig. 3. Fitting of the $\Delta R/R_0$ at 7 K, where the black circles represent the raw data and the blue curve represents the fitting result, respectively. The inset illustrates the temperature dependence of the frequency of the coherent acoustic phonon, which stays 0.033 THz for the whole temperature range.

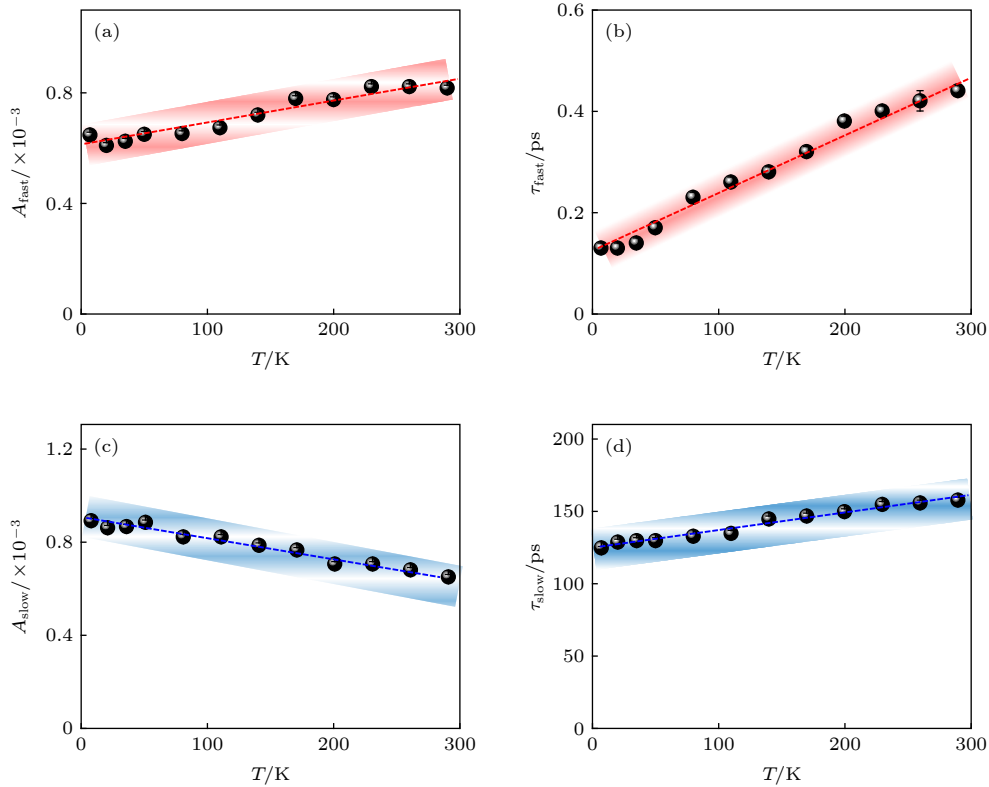


图 4 光激发载流子的弛豫过程对温度的依赖 (a) A_{fast} , (b) τ_{fast} , (c) A_{slow} 和 (d) τ_{slow} 分别表示快分量和慢分量的幅值和寿命随温度的变化. 红色和蓝色分别代表快分量和慢分量

Fig. 4. Temperature dependence of the amplitudes and lifetimes: (a) A_{fast} , (b) τ_{fast} , (c) A_{slow} 和 (d) τ_{slow} . The red and blue lines denote the fast and slow components, respectively.

态声子的频率对温度的依赖关系, 声子频率稳定在 0.03 THz 附近, 基本不随温度变化^[15].

进一步利用 (1) 式对不同温度下的 $\Delta R/R_0$ 信号进行了拟合, 拟合参数对温度的依赖汇总在图 4 中. 图 4(a) 和图 4(b) 分别展示了快分量的幅值与寿命对温度的依赖, 该过程的特征寿命为 0.18—0.42 ps, 该时间尺度下反应的物理过程一般为电子-声子散射弛豫通道. 图 4(a) 和图 4(b) 中的红色虚线表征了振幅和寿命随温度的变化趋势, 这两者都随着温度增加而增加.

图 4(c) 和图 4(d) 展示了慢分量的幅值和寿命对温度的依赖规律, 该分量的特征寿命为 125—158 ps, 该时间尺度下发生的物理过程一般是源于声子-声子散射过程. 其幅值随着温度的上升线性的减小, 这与通常所观察到的许多固体材料中的规律一致^[13,14]. 对温度的依赖关系表明声子-声子散射在研究的温度区间没有发生突变. 图 4(d) 表明慢分量的寿命随着温度的上升略有增加. 室温下该弛豫过程的特征寿命相比较液氮温度增加了大约 26%, 这与许多其它材料表现出特性不同^[10,13], 它

的物理起源值得进一步研究.

4 结 论

本文对 MoP 进行了超快时间分辨泵浦-探测实验, 得到了源于电子-声子散射和声子-声子散射两个不同特征寿命的弛豫过程, 同时还产生和探测到一支频率为 0.033 THz 的相干态声学支声子. 温度依赖的实验研究发现, 快分量和慢分量的寿命均随温度的增加而微小地增强. 变温实验研究给出了 MoP 的基础超快动力学特性, 为该材料在未来新一代电子、光子、信息等器件的应用提供了基础物性方面的有益信息.

参考文献

- [1] Armitage N P, Mele E J, Vishwanath A 2018 *Rev. Mod. Phys.* **90** 015001
- [2] Wang Z J, Weng H M, Wu Q S, Dai X, Fang Z 2013 *Phys. Rev. B* **88** 125427
- [3] Liu Z K, Jiang J, Zhou B, Wang Z J, Zhang Y, Weng H M, Prabhakaran D, Mo S K, Peng H, Dudin P, Kim T, Hoesch M, Fang Z, Dai X, Shen Z X, Feng D L, Hussain Z, Chen Y L

- 2014 *Nat. Mater.* **13** 677
- [4] Wan X G, Turner A M, Vishwanath A, Savrasov S Y 2011 *Phys. Rev. B* **83** 205101
- [5] Huang X C, Zhao L X, Long Y J, Wang P P, Chen D, Yang Z H, Liang H, Xue M Q, Weng H M, Fang Z, Dai X, Chen G F 2015 *Phys. Rev. X* **5** 031023
- [6] Bradlyn B, Cano J, Wang Z J, Vergniory M G, Felser C, Cava R J, Bernevig B A 2016 *Science* **353** 6299
- [7] Lv B Q, Feng Z L, Xu Q N, Gao X, Ma J Z, Kong L Y, Richard P, Huang Y B, Strocov V N, Fang C, Weng H M, Shi Y G, Qian T, Ding H 2017 *Nature* **546** 627
- [8] Chi Z H, Chen X L, An C, Yang L X, Zhao J G, Feng Zili, Zhou Y H, Zhou Y, Gu C C, Zhang B W, Yuan Y F, Curtis K B, Yang W G, Wu G, Wan X G, Shi Y G, Yang X P, Yang Z R 2018 *npj. Quantum. Materials* **3** 28
- [9] Zhu Z M, Winkler G W, Wu Q S, Li J, Soluyanov A A 2016 *Phys. Rev. X* **6** 031003
- [10] Tian Y C, Zhang W H, Li F S, Wu Y L, Wu Q, Sun F, Zhou G Y, Wang L L, Ma X C, Xue Q K, Zhao J M 2016 *Phys. Rev. Lett.* **116** 107001
- [11] Wu Q, Zhou H X, Wu Y L, Hu L L, Ni S L, Tian Y C, Sun F, Zhou F, Dong X L, Zhao Z X, Zhao J M 2019 *arXiv* **1910.09859**
- [12] Toda Y, Kawanokami F, Kurosawa T, Oda M, Madan I, Mertelj T, Kabanov V V, Mihailovic D 2014 *Phys. Rev. B* **90** 094513
- [13] Cao N, Long Y B, Zang Z G, Gao L J, Yuan J, Zhao B R, Zhao S P, Yang Q S, Zhao J M, Fu P M 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 2543 (in Chinese) [曹宁, 龙拥兵, 张治国, 高丽娟, 袁洁, 赵伯儒, 赵士平, 杨乾生, 赵继民, 傅盘铭 2008 *物理学报* **57** 2543]
- [14] Cao N, Wei Y F, Zhao J M, Zhao S P, Yang Q S, Zhang Z G, Fu P M 2008 *Chin. Phys. Lett.* **25** 2257
- [15] Sun F, Yang M, Yang M W, Wu Q, Zhao H, Ye X, Shi Y G, Zhao J M 2018 *Chin. Phys. Lett.* **35** 116301
- [16] Sun F, Wu Q, Wu Y L, Zhao H, Yi C J, Tian Y C, Liu H W, Shi Y G, Ding H, Dai X, Richard P, Zhao J M 2017 *Phys. Rev. B* **95** 235108
- [17] Wang M C, Qiao S, Jiang Z, Luo S N, Qi J 2016 *Phys. Rev. Lett.* **116** 036601
- [18] Hu L L, Yang M, Wu Y L, Wu Q, Zhao H, Sun F, Wang W, He R, He S L, Zhang H, Huang R J, Li L F, Shi Y G, Zhao J M 2019 *Phys. Rev. B* **99** 094307
- [19] Hsieh D, Mahmood F, Torchinsky D H, Cao G, Gedik N 2012 *Phys. Rev. B* **86** 035128
- [20] SieE J, MelverJ, Lee Y H, Fu L, Kong J, Gedik N 2015 *Nat. Mater.* **14** 290
- [21] Ge S F, Liu X F, Qiao X A, Wang Q S, Xu Z, Qiu J, Tan P H, Zhao J M, Sun D 2015 *Sci. Rep.* **4** 5722
- [22] Wang R, Wang T, Zhou Y, Wu Y L, Zhang X X, He X Y, Peng H L, Zhao J M, Qiu X H 2019 *2D Mater.* **6** 035034
- [23] Wang Y J, Chen H L, Sun M T, Yao Z G, Quan B G, Liu Z, Weng Y X, Zhao J M, Gu C Z, Li J J 2017 *Carbon* **122** 98
- [24] Zhao J M, Bragas A V, Lockwood D J, Merlin R 2004 *Phys. Rev. Lett.* **93** 107203
- [25] Zhao J M, Bragas A V, Merlin R, Lockwood D J 2006 *Phys. Rev. B* **73** 184434
- [26] Aku-Leh C, Zhao J M, Merlin R, Menéndez J, Cardona M 2005 *Phys. Rev. B* **71** 205211
- [27] Bragas A V, Aku-Leh C, Costantino S, Ingale A, Zhao J M, Merlin R 2004 *Phys. Rev. B* **69** 205306

SPECIAL TOPIC—The frontiers and applications of topological physics

Time-resolved ultrafast dynamics in triple degenerate topological semimetal molybdenum phosphide*

Jiang Cong-Ying¹⁾³⁾ Sun Fei¹⁾²⁾ Feng Zi-Li¹⁾²⁾ Liu Shi-Bing³⁾
 Shi You-Guo¹⁾⁴⁾ Zhao Ji-Min^{1)2)4)†}

1) (*Beijing National Laboratory for Condensed Matter Physics, Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China*)

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

3) (*Strong-Field and Ultrafast Photonics Lab, Institute of Laser Engineering, Beijing University of Technology, Beijing 100124, China*)

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

(Received 30 November 2019; revised manuscript received 27 December 2019)

Abstract

We employ the time resolved pump probe experiment to investigate the ultrafast dynamics in a topological semimetal molybdenum phosphide (MoP), which exhibits triple degenerate points in the momentum space. Two relaxation processes with the lifetime of 0.3 and 150 ps have been observed. We attribute the fast component to the electron-phonon scattering and the slow component to the phonon-phonon scattering, respectively. Temperature dependence investigation shows that both the lifetimes of the fast and slow components enhance slightly with increasing temperature. We also successfully generate and detect a thermal-stress-induced coherent acoustic phonon mode with a frequency of 0.033 THz, which does not vary with temperature. Our ultrafast spectroscopy investigation of the quasiparticle dynamics and the coherent phonon in MoP provides useful experimental facts and information about the overall excited state dynamics and the temperature dependence of electron-phonon coupling.

Keywords: ultrafast spectroscopy, triple degenerate fermions, electron-phonon coupling, topological semimetal

PACS: 78.47.jg, 78.47.J-, 71.38.-k, 03.65.Vf

DOI: 10.7498/aps.69.20191816

* Project supported by the National Key R&D Program of China (Grant Nos. 2017YFA0303603, 2016YFA0300303, 2017YFA0302901), the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11574383, 11774408, 11774399), the Strategic Priority Research Program(B) of the Chinese Academy of Sciences (Grant No. XDB30000000), the International Partnership Program of Chinese Academy of Sciences (Grant No. GJHZ1826), the Natural Science Foundation of Beijing, China(Grant No. 4191003), and the Interdisciplinary Innovation Team of CAS.

† Corresponding author. E-mail: jmzhao@iphy.ac.cn