

中国科学院物理研究所 SF10组供稿
北京凝聚态物理国家研究中心

第4期

2021年01月15日

固体中电子的阿秒动力学和激光显微照相

可见光显微镜使我们能够看到像活体细胞内的小器官那样小的微小物体。然而，它依然无法用来观测固体中电子在原子间的分布情况。最近，中国科学院物理研究所/北京凝聚态物理国家研究中心表面物理国家重点实验室孟胜研究组与罗斯托克大学极端光子学实验室以及德国马克斯普朗克量子光学研究所的研究人员合作，开发了一种新型的光显微镜，即“激光皮米显微镜(laser picoscopy)”，用以实现对固体中价电子分布的实时观测。

该技术是通过跟踪在激光辐照下固体发射的高次谐波来实现的。高次谐波是在超强激光场驱动下介质的一种极端非线性行为，其表现为材料发射出远紫外的相干谐波辐射。高次谐波对材料中电子尤其是价电子的状态非常敏感。因此对于固体材料，它不仅可用于产生具有极限性能的超短激光脉冲，也可以用作一种探测材料内部电子性质的有效手段。作为全光学的探测方法，利用高次谐波的固体材料测量不需要高的真空条件以及对样品的解理；同时，由于高次谐波脉冲时间短，产生的热效应少，所以对样品几乎没有损伤。相比于传统的探测手段，其时空分辨率更高，因此被逐渐应用到对电子能带结构、拓扑性质以及动态电导率等物性的测量上。

因为X射线、电子束等探针仅对材料的总电子分布敏感，利用传统方法实现价电子分布的直接空间成像依然很有难度，而高分辨的测量更是巨大的挑战。利用高次谐波在测量上的优势，孟胜研究组与实验研究人员合作，使用强大的激光闪光照射晶体材料薄膜，激光脉冲驱动晶体中的电子快速摆动。当电子与周围的电子反弹时，它们在光谱的极紫外部分发生高次谐波辐射。通过分析这种辐射的性质，可以制作一系列具有几十皮米分辨率的图片来说明电子云是如何分布在固体晶格中的原子之间的（图1）。

该研究团队利用自主发展的含时密度泛函理论方法，构建了强光场作用下电子-势垒的散射图像，实现了高次谐波对价电子空间分布的重构（图2）。他们发现，在光场强度达到一定程度时，由于强场对势垒强烈的压制作用，固体中电子呈现一定的准自由行为，由此建立起高次谐波产率与势场分布的关系，通过对高次谐波强度的拟合，固体价电子的势场以及电荷密度的空间分布被建立起来。

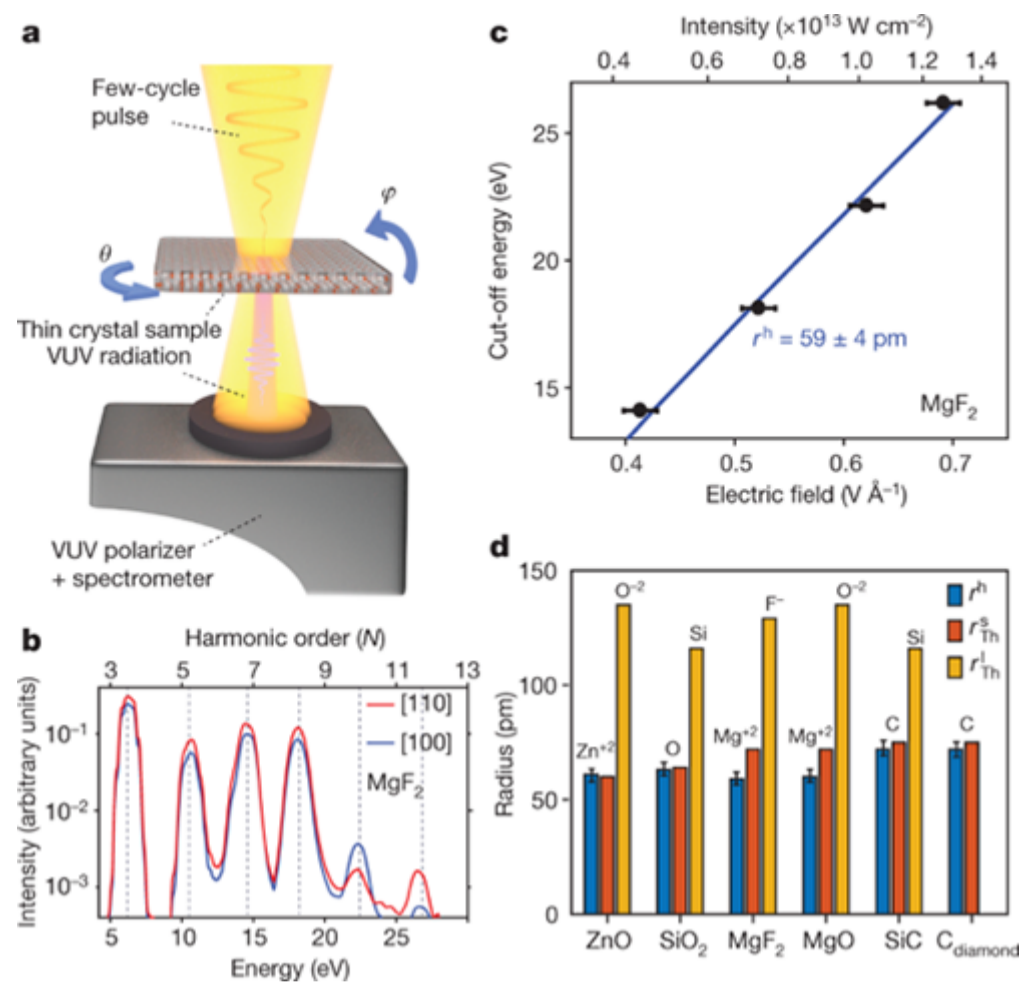


图1. 固体价电子的激光显微照相术。a)是实验装置图，b)是MgF₂晶体的高次谐波谱，c)是高次谐波截止频率与激光场的关系，其斜率即对应于体系中的最小离子半径，d)探测到的不同原子或离子的半径（蓝色）和经验值（红色、黄色）的比较。

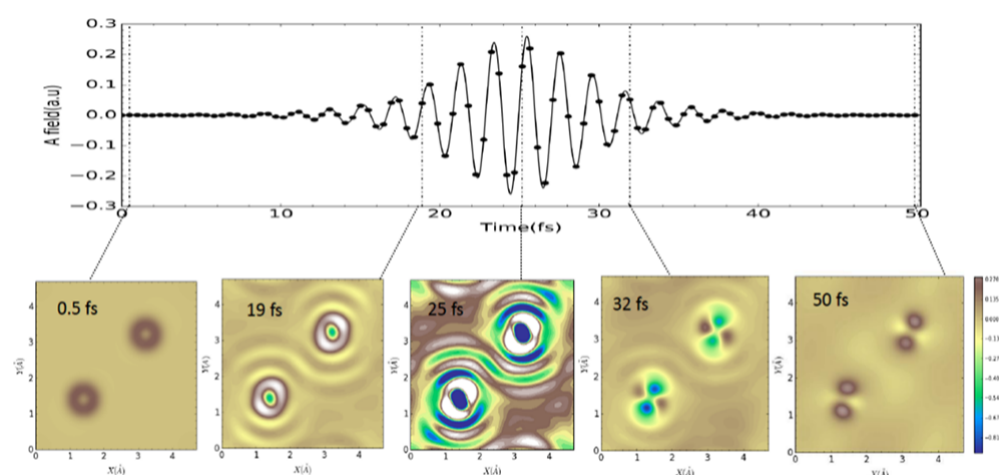


图2. 激光辐照下MgF₂晶体中的电子动力学。上图为激光场的波形，下图为不同时刻电子密度分布的变化。

值得注意的是，由于高次谐波具有极高的截止能量，这种价电子的空间成像可以达到皮米量级的超高空间分辨率（图3）。因此，借助高次谐波，不同元素价电子的空间分布尺度也能够被精确探测。结果表明，高次谐波对价电子的空间成像不依赖于驱动光的波长，这意味着这种测量手段拥有涵盖从太赫兹波段到可见光波段的广泛光源适应性。

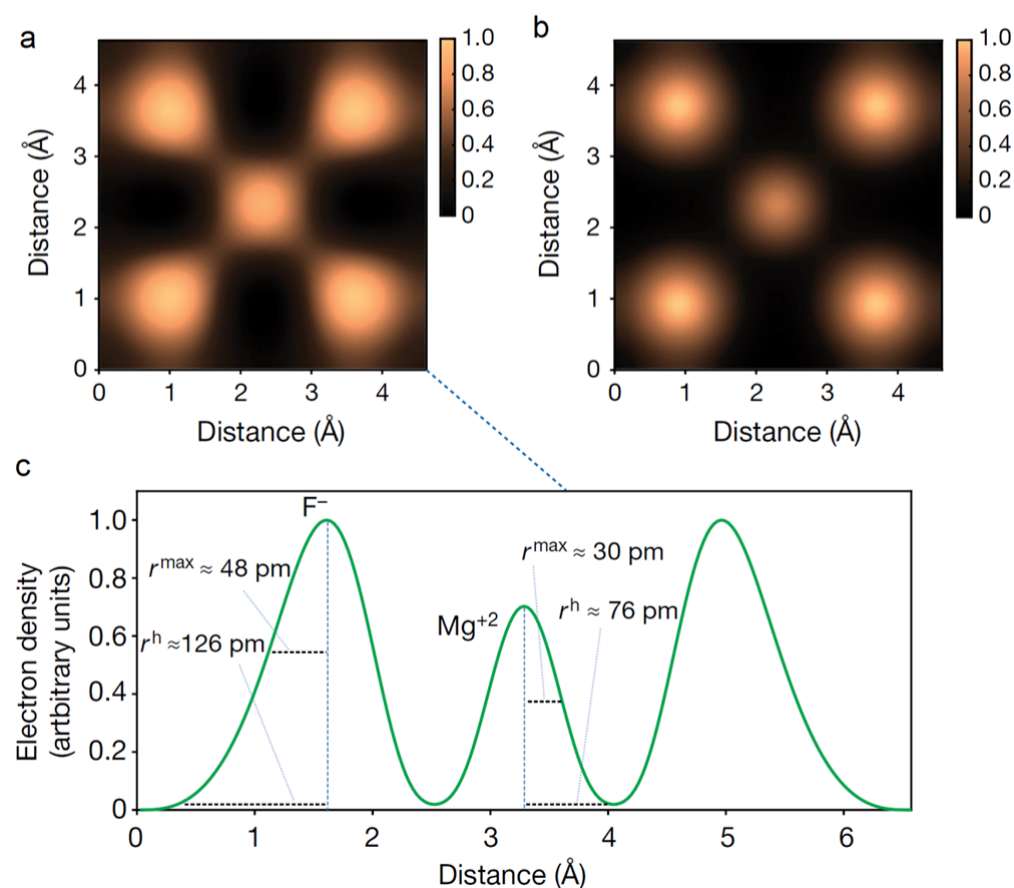


图3.a) 实验重构的价电子密度分布，b)理论计算的价电子密度分布。c)为对角线方向电子密度的轮廓。

此项研究为开发新型激光显微镜铺平了道路，使物理学家、化学家和材料科学家能够以前所未有的分辨率窥视微观世界的细节，深入理解并最终控制材料的化学和电子性质。能够探测价电子密度的显微镜也可以更好地为计算固态物理建立实验基准。相关研究成果发表在Nature 583, 55 (2020)上。

此外，由于高次谐波谱的形貌及其在外界扰动下的变化蕴含着材料内部丰富的电子动力学信息，人们可以通过改变光场波形实现对载流子运动的超快调控。孟胜研究组的博士生关梦雪等利用自主发展的含时密度泛函理论方法，通过调节双色光的强度、相位差等参数实现了对二维材料MoS₂中电子动力学及高次谐波产生的阿秒尺度超快调控（图4）。他们的研究表明，二维材料中的电子波包动力学及谐波辐射对光场波形高度敏感，通过改变双色光之间的相位差，载流子在动量空间中的运动轨迹可以被超快地调控，并且谐波截断能可以随光场幅值线性增加，同时伴随着谐波产率及谱形貌的改变。当双色光相位差为 π 时，可以在单层MoS₂中得到一个光滑连续、展宽较大的高次谐波谱，从而得到一个能量范围在极紫外区域（~20 eV）的近孤立的超短脉冲。虽然二维材料中高次谐波产生截断能对光强的依赖关系同体相材料相一致，但其谐波发射的时频特征却和原子气体中的情况相同，说明二维材料的结构特征介于体相及气相之间，因此提供了一个独特的研究平台。该工作发表在Appl. Phys. Lett. 116, 043101 (2020),并被选为封面论文。这些工作得到科技部重点研发计划(2016YFA0300902)和国家自然科学基金委(91850120, 11774396, 11934004)的资助。

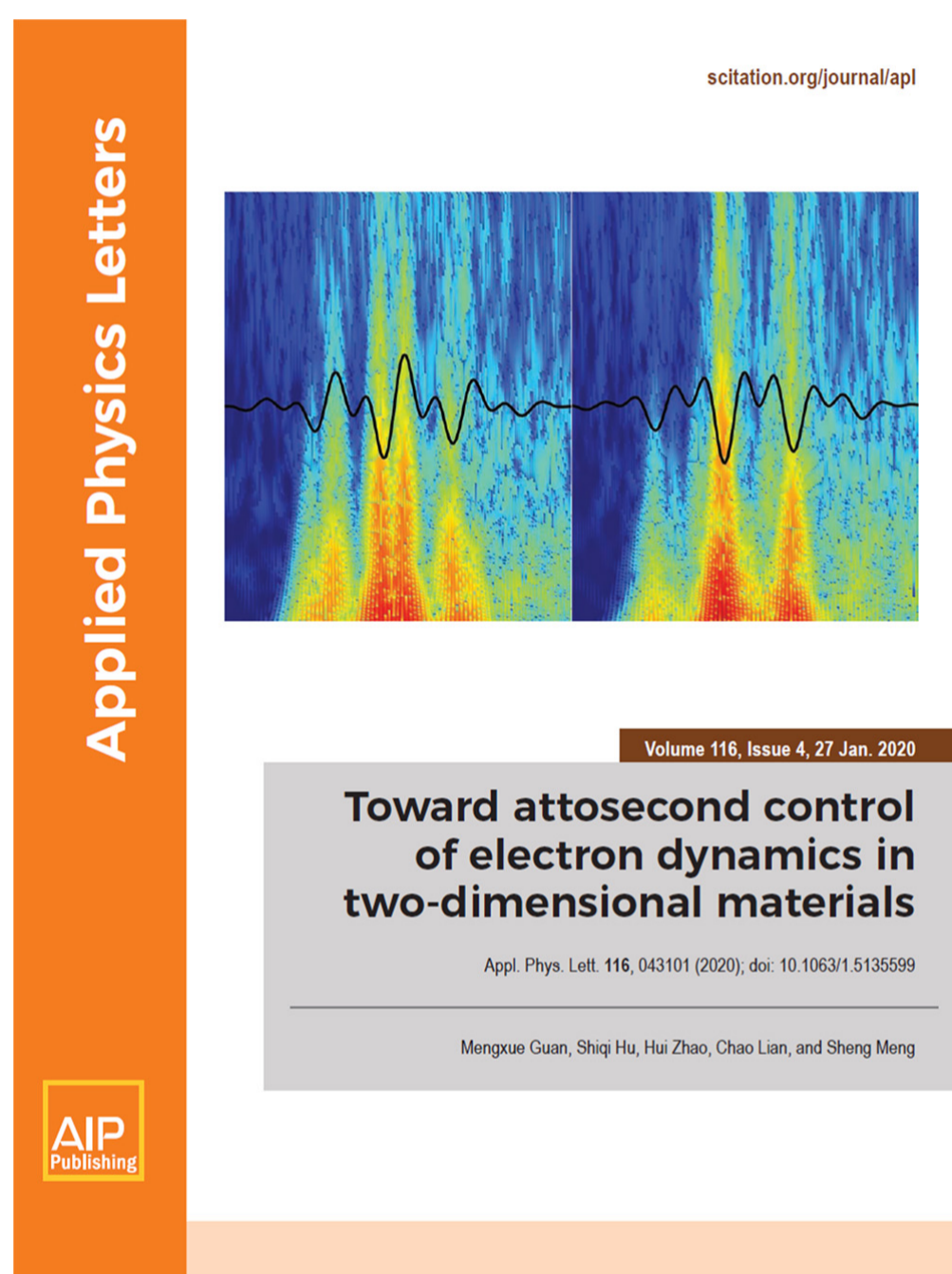


图4. 《Appl. Phys. Lett.》封面。图中展示的是二维固体在相位差分别为 $\pi/2$ 和 π 的双激光脉冲下（黑线）的辐射谱随时间的变化。

[Appl. Phys. Lett. 116, 043101 \(2020\).pdf](#)

[Nature 583, 55 \(2020\).pdf](#)

