

Ultrakurzzeitspektroskopie deckt Einzelschritte von Phasenübergängen auf

Photoemissionsspektroskopie mit ultrakurzen Röntgenpulsen deckt bisher unbekanntem mikroskopischen Mechanismus beim Isolator-Metall-Phasenübergang auf. Durch einen selbstverstärkenden Schmelzprozess - induziert durch photoangeregte Elektronen - wird der isolierende Zustand innerhalb weniger Femtosekunden aufgehoben.

Phasenübergänge sind Änderungen der Eigenschaften von Materialien, die z. B. bei Temperatur- und Druckänderungen auftreten. Der am besten bekannte Phasenübergang ist der von flüssigem Wasser zu Wasserdampf. Phasenübergänge liegen aber auch in anderen Materialien vor, z.B. wenn sie von einem supraleitenden zu einem normal leitenden Zustand oder von einem Isolator zu einem elektrischen Leiter übergehen. Bei allen diesen Phasenübergängen liegen der Änderung der makroskopischen Eigenschaften diverse mikroskopische Prozesse zugrunde. Bei der Supraleitung ist dies die Bildung von neuen Zuständen aus zwei Elektronen und beim Übergang vom Isolator zum metallischen Leiter ist dies die starke Zunahme der freien Ladungsträger, die bei einer Erwärmung eintritt. Bis vor wenigen Jahren konnte man Phasenübergänge nicht „genügend schnell“ detektieren, um den Zeitablauf dieser mikroskopischen Prozesse zu erkennen. In neuesten Untersuchungen konnten diese Einschränkungen mit Hilfe geeigneter optischer Pulse und mit Röntgenlichtpulsen durchbrochen werden.

Ein internationales Physikerteam aus Kaiserslautern, Göttingen, Kiel, sowie Boulder (Colorado, USA) hat nun einen Phasenübergang mit sehr hoher Zeitauflösung untersucht. Von dem verwendeten Material, Titan-Diselenid (TiSe_2), war ein Isolator-Metall-Phasenübergang bei einer Temperatur von ca. 200 Kelvin bekannt. Das Team berichtet nun in der renommierten Fachzeitschrift Nature Communications darüber, wie sie mit Echtzeitspektroskopie nach einer ultrakurzen optischen Anregung einen Phasenübergang charakterisieren konnten. Mit zeitaufgelöster Photoemissions-Spektroskopie mit ultrakurzen Röntgenpulsen konnte die Besetzung von elektronischen Energiezuständen auf Zeitskalen von Femtosekunden (10^{-15} s) verfolgt werden. Das Material wurde bei Temperaturen, bei denen es als Isolator wirkt, durch einen ultrakurzen Laserpuls sehr schnell auf Temperaturen jenseits des Phasenübergangs aufgeheizt. Die Photoemissions-Spektroskopie zeigte dann in Echtzeit, wie der Energieabstand zwischen besetzten und unbesetzten elektronischen Zuständen durch die ultraschnelle Dynamik der angeregten Elektronen zusehends geschlossen wird.

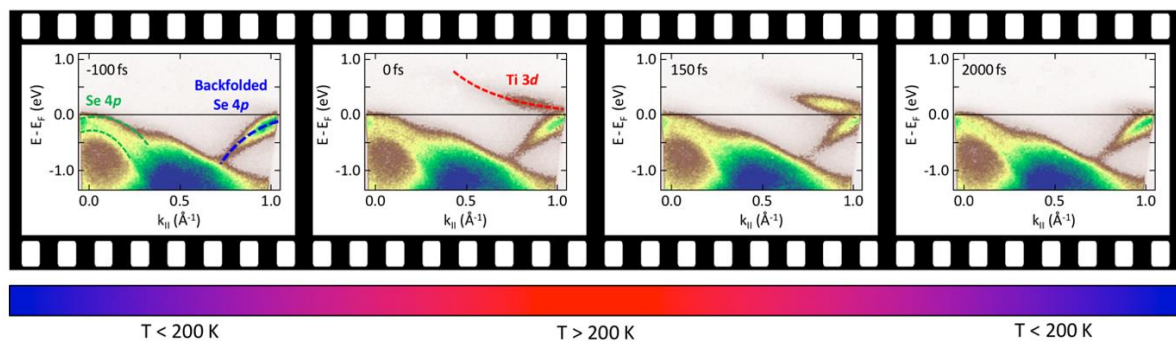
Zentrales Forschungsergebnis ist, dass eine optische Anregung des Materials einen sich selbst verstärkenden Schmelzprozess induziert, der den Übergang von isolierenden in metallischen Zustand erheblich beschleunigt. Nach Anregung von Elektronen über die elektronische Bandlücke hinweg kommt es durch Energieverlust-Prozesse dieser Elektronen zu einer weiteren, sehr starken Ladungsträgermultiplikation. Die Forscher konnten nachweisen, dass diese zusätzlichen Ladungsträger die Energiebandlücke weiter verkleinern, was wiederum den Multiplikationsprozess verstärkt. Mit Hilfe eines theoretischen Modells, das wesentliche Aspekte der elektronischen Dynamik abbildet, konnte dieser selbstverstärkende Effekt als zu Grunde liegende Ursache des ultraschnellen Phasenübergangs identifiziert werden.

Die hier erzielten Ergebnisse sind auch unter zwei weiteren Aspekten interessant. Zum einen ist Titan-Diselenid ein komplexes Material, das sich einer Beschreibung als reines Metall oder reiner Isolator/Halbleiter entzieht. Komplexe Materialien haben in den letzten Jahrzehnten

sehr stark an Bedeutung gewonnen und werden deshalb auch in der Grundlagenforschung intensiv untersucht. Titan-Diselenid ist deshalb komplex, weil elektronische und Gitterfreiheitsgrade in einer komplizierten Weise gekoppelt sind. Bei tiefen Temperaturen liegt dieses Material in einem sogenannten Ladungsdichtewellen-Zustand vor, bei dem die Kristallstruktur und die elektronische Struktur im Vergleich zu Temperaturen jenseits des Phasenübergangs verändert sind. Zum anderen betritt die Untersuchung von Phasenübergängen auf der hier untersuchten Zeitskala Neuland, weil durch die Anregungsbedingungen Phasen realisiert werden können, die im thermischen Gleichgewicht nicht vorkommen.

Der gefundene Mechanismus wird als universell für eine große Anzahl von Phasenübergangsmaterialien angesehen. Die Forschungsergebnisse eröffnen somit die Perspektive, Einzelschritte des Phasenübergangs gezielt zu kontrollieren und zu manipulieren.

Zentrale Teile der Forschung wurden durchgeführt im Rahmen zweier Sonderforschungsbereiche der Deutschen Forschungsgemeinschaft: SFB 1073 (Kontrolle von Energiewandlung auf atomaren Skalen) und SFB/TRR 173 (Spin+X), sowie dem Landesforschungszentrum OPTIMAS der TU Kaiserslautern. Die beteiligten Teams stammen von der Technischen Universität Kaiserslautern, der Georg-August-Universität Göttingen, der Christian-Albrechts-Universität Kiel, sowie der University of Colorado und dem National Institute of Standards in Boulder (Colorado, USA).



Photoemissionsspektren des Titan-Diselenid-Systems mit hoher Zeitauflösung (Femtosekunden, 10^{-15} s) ermöglichen, es die Ladungsträgerdynamik während eines optisch angeregten Phasenübergangs mikroskopisch zu untersuchen. In Echtzeit kann man eine ultraschnelle Ladungsträgermultiplikation beobachten und erkennen, wie durch einen selbstverstärkenden Effekt der isolierende Zustands aufgehoben wird. (Quelle: Stefan Mathias, Georg-August-Universität Göttingen)

Ansprechpartner:

Prof. Dr. Stefan Mathias (Georg-August-Universität Göttingen):

Ultrafast Phenomena, <http://www.mathias.physik.uni-goettingen.de>

Tel. 0551/ 39 7607 smathias@uni-goettingen.de

Prof. Dr. Martin Aeschlimann (Technische Universität Kaiserslautern):

Ultrafast Phenomena At Surfaces, <http://www.physik.uni-kl.de/aeschlimann/home/>

Tel. 0631 / 205 2273; ma@physik.uni-kl.de

Weitere Informationen:

S. Mathias, S. Eich, J. Urbancic, S. Michael, A.V. Carr, S. Emmerich, A. Stange, T. Popmintchev, T. Rohwer, M. Wiesenmayer, A. Ruffing, S. Jakobs, S. Hellmann, P. Matyba, C. Chen, L. Kipp, M. Bauer, H.C. Kapteyn, H.C. Schneider, K. Rossnagel, M.M. Murnane & M. Aeschlimann:

Self-amplified photo-induced gap quenching in a correlated electron material
Nature Communications 2016, AOP; Doi: [10.1038/ncomms12902](https://doi.org/10.1038/ncomms12902)