

受光激发的超导体中的啁啾振幅模式

Thomas Blommel,¹ Jason Kaye,^{2,3} Yuta Murakami,⁴ Emanuel Gull,¹ and Denis Golež^{5,6}

¹*Department of Physics, University of Michigan, Michigan, USA*

²*Center for Computational Quantum Physics, Flatiron Institute, 162 5th Avenue, New York, NY 10010, USA*

³*Center for Computational Mathematics, Flatiron Institute, 162 5th Avenue, New York, NY 10010, USA*

⁴*Center for Emergent Matter Science, RIKEN, Wako, Saitama 351-0198, Japan*

⁵*Jožef Stefan Institute, SI-1000, Ljubljana, Slovenia*

⁶*Faculty of Mathematics and Physics, University of Ljubljana, 1000 Ljubljana, Slovenia*

(10Dated: 2025 年 6 月 2 日)

采用最先进的数值方案，我们展示了在考虑涨落的情况下，希格斯模在激发下表现出啁啾振荡和指数衰减。这与传统的 BCS 无碰撞动力学形成鲜明对比，后者预测的是幂律衰减并且不存在啁啾现象。啁啾振幅模使我们能够确定有效势的局部修改，即使系统处于长寿命预热化状态也是如此。然后我们展示了这种啁啾振幅模式是一个可以通过实验观察到的量，因为在泵浦-探测实验中光诱导（超）电流可以作为序参数动力学的有效代理，包括啁啾动力学。我们的结果基于在激发跨越超导间隙后的对称性破缺状态下使用动态平均场理论的吸引 Hubbard 模型。由于集体响应涉及长时间尺度，我们扩展了非平衡格林函数的分层低秩压缩方法到对称性破缺状态，并展示了它即使在存在长时间记忆核的情况下也能作为一种有效的表示。

I. 介绍

很快，在关于 BCS 超导性的开创性论文之后 [1]，安德森指出超导体的电磁响应导致了集体响应 [2–4]。这一认识对凝聚态物理以及粒子物理产生了深远影响，预测了希格斯模式 [5, 6]。几乎花了二十年时间才在 2H-NbSe_2 中观察到这种激发，此时超导体和电荷密度波 [7–10] 相共存，并且又过了三十年才使用太赫兹光谱直接观测到这种情况，无论是采用泵浦探测设置 [11] 还是通过三次谐波生成 [12, 13]。

这一进展开启了希格斯谱学领域，该领域现已应用于众多超导材料中，包括具有运行超电流的超导体 [14–16] 和非常规超导体 [17–19]。越来越精确的集体模式响应测量使得能够在固体 [11] 以及量子模拟器 [20–22] 中研究它们激发后的长时间行为。

希格斯模的时间演化理论描述是困难的。时间依赖的朗道-金兹堡理论假设一个随意的有效势能快速修改，并在现象学层面上考虑了阻尼 [23, 24]。微观时间依赖的 BCS 理论预测了更丰富的动力学，包括幂律衰减 [25, 26] 或孤子解 [27–30]。然而，所有这些理论声明都假设无耗散电子动力学，在真实材料中这是值得怀疑的，并提出了在包含电子散射后集体模衰减的问题。

电子散射在集体模式动力学的理论描述中的主要

困难在于，集体响应涉及长时间尺度。这限制了之前的研究仅限于无耗散的动力学 $\sim$ [25–29]，或者当包含波动时，描述仅限于相对短的时间，并且只有少量相干振荡和关于幅度模寿命的有限信息 $\sim$ [31–34]。

仅最近，非平衡格林函数 [35] 数值求解器的进步，包括广义 Kadanoff-Baym 假设 [36–39] 和记忆核截断方法 [40, 41]，才使得能够访问足够长的时间来探讨这些问题。然而，由于长时间存在的幂律关联扮演着记忆核的角色，这些技术在对称性破缺相中的应用远未被充分理解。

在这项工作中，我们通过求解完整的卡达诺夫-拜姆方程 (KBE)，研究集体模式的长时间演化，并表明序参量表现出极缓慢地接近热态。在这样的非热状态下，振幅模表现出啁啾现象（频率的动态减小）。当我们用更大的场强激发系统时，啁啾的速度增加。我们证明了可以通过太赫兹泵浦-探测实验测量由探测引起的电流来获取序参量的动力学，这可以用来提取具有少量准粒子响应印记的动力学。

我们还强调了分层非对角低秩 (HODLR) 压缩方法在 KBE [42] 数值求解中的应用。直接求解 KBE 时，由于记忆项的影响，通常与时间步长 N 数量成正比的标准 $\mathcal{O}(N^3)$ 缩放关系会阻碍访问分析集体激发寿命所需的时间尺度 [31–33, 35]。最近提出了一类新的基于数据压缩的方法，包括 HODLR 方法，以克

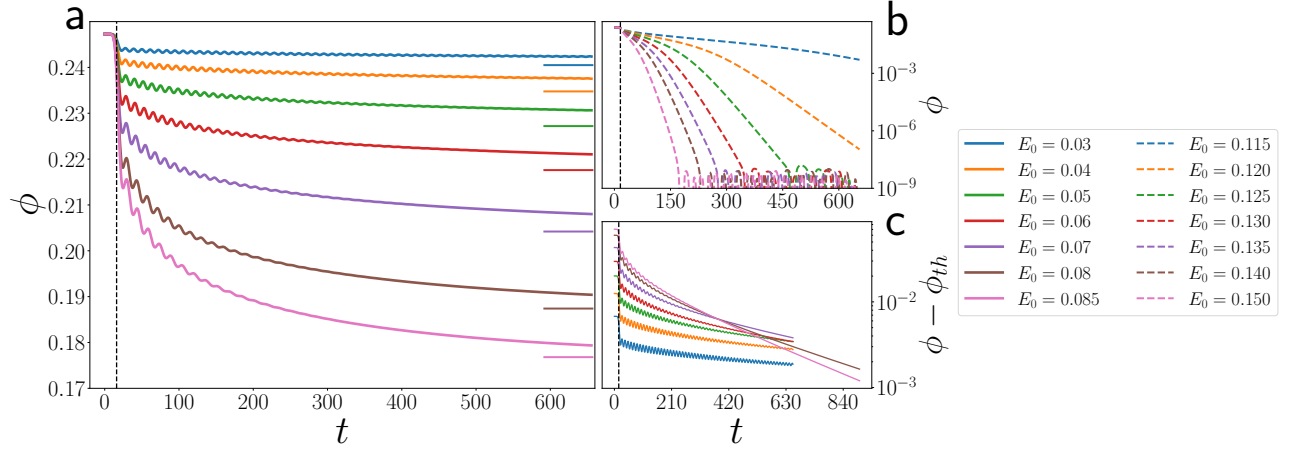


图 1. 序参量 ϕ 在光激发下随时间的演化, 泵浦幅度为 E_0 , (a) 在弱激发区域中存在振幅模式振动, 以及 (b) 强激发区域, 其中观察到了超指数衰减。(b) 中小值处的噪声与 HODLR 压缩方案中使用的截断容差 10^{-8} 一致。(c) 系统的序参量呈指数级接近预期的热力学值 ϕ_{th} , 这是具有相同能量 (a) 右侧的水平条) 平衡系统中的序参量值。 $E_0 = 0.08, 0.085$ 进一步随时间积分以强调指数衰减。

服这一瓶颈 [43–47]。将二时间格林函数视为矩阵时, HODLR 方法将其分解为向对角线细化的块, 在许多情况下这些块观察到数值低秩。这些块的截断奇异值分解在时间步进过程中被系统地实时更新, 并用于计算具有可控精度的历史积分, 从而得到一个计算复杂度为 $\mathcal{O}(k^2 N^2 \log N)$ 和内存复杂度为 $\mathcal{O}(k N \log N)$ 的结果, 其中 k 是最大块秩, 而无需修改底层的 KBE。使用这种方法, 与直接时间步进相比, 我们展示了在传播到所研究的时间尺度所需的计算成本减少了 100 倍, 并且内存减少了 50 至 200 倍。

II. 模型和方法

我们研究吸引型 Hubbard 模型中的超导性

$$H = -t_0 \sum_{\langle j,k \rangle \sigma} e^{iqA(t)} d_{j\sigma}^\dagger d_{k\sigma} - U \sum_j (n_{j\uparrow} - 1/2)(n_{j\downarrow} - 1/2), \quad (1)$$

其中 $d_{i\sigma}$ 是位于点 i 和自旋 σ 处的湮灭算符, $n_{i\sigma}$ 是自旋依赖密度算符, 而 q 是电荷。能量尺度通过跃迁幅度 $t_0 = 1$ 设置, 库仑吸引力设置为 $U = 2$, 并且我们将占据固定在半填充状态。单位以 $\hbar = q = 1$ 衡量

我们在时间依赖的动力学平均场理论 (DMFT) 中解决了这个问题, 使用 Nambu 形式主义在无限配位数的 Bethe 格子上描述 s 波超导体。这导致了具有 Nambu 旋量 $\psi = \{d_\uparrow, d_\downarrow^\dagger\}$ 的矩阵值格林函数

$G_{\alpha\beta}(t, t') = -i \langle \mathcal{T} \psi_\alpha(t) \psi_\beta^\dagger(t') \rangle$ 。对于杂质求解器, 我们使用被称为 second Born 或 GF2[48–50] 的自洽二阶微扰理论。关于详细实现信息, 请参见附录 A。集体序参数的动力学发生在长时间尺度上, 并且通过对格林函数进行压缩表示来减少计算和内存复杂度 [42], 从而使得 KBE 的长时间积分成为可能。

我们通过在方程 1 中引入 Peierls 替换的短泵脉冲来诱导动力学扰动。电场 $E_p = -\partial_t A$ 参数化为

$$E_P(t) = E_0 \exp\left(-\frac{(t-t_c)^2}{\sigma^2}\right) \sin(\omega(t-t_c)), \quad (2)$$

其中脉冲中心为 t_c , 脉冲宽度为 σ , 驱动频率为 ω , 振幅为 E_0 。

III. 结果

对于相互作用强度为 $U = 2$ 的平衡吸引胡伯模型, 在逆温度 $1/T_c = \beta_c \approx 10.6$ 处存在相变, 这在 GF2 近似中成立。跨越这个转变, 系统发展出一个非零的超导配对振幅 $\phi(t) = \sum_k \langle c_{k\downarrow} c_{-k\uparrow} \rangle$, 从此我们将其视为序参量。我们选择了一个深处于有序状态中的温度 $\beta = 18$, 并发现系统的带隙为 $2\Delta \approx 0.65$ 。

为了激发振幅模, 我们用一个频率是带隙两倍的脉冲对系统进行泵浦 ($t_c^{\text{Pump}} = 16, \sigma = 6.5, \omega = 4\Delta$)。序参数的时间演化如图 1 所示。在弱激发强度下, 序参数以极慢的指数速率衰减 [51, 52]。预期的热值 ϕ_{th} ,

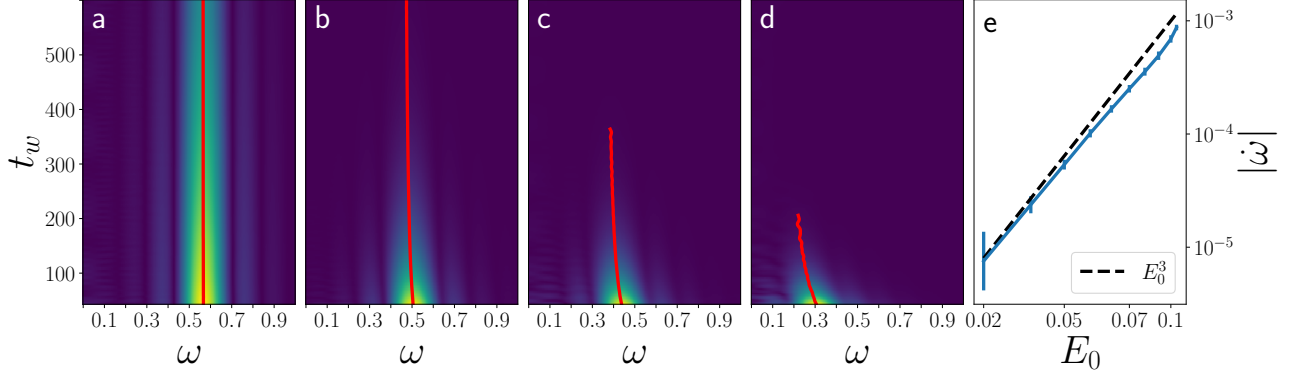


图 2. (a-d): 窗口傅里叶变换 $F[\tilde{\phi}](t_w)$, 中心位于 t_w , 并减去指数背景, 对于泵幅值 $E_0 = 0.02, 0.06, 0.08$ 和 0.105 。红线跟踪每个 t_w 值的最大值。(e) 初始啁啾速度, 定义为 (a-d) 中红线在泵脉冲之后的一小段时间窗口内的斜率。误差棒通过改变 FT 窗口的宽度和用于线性拟合的时间点数量获得。

用水平线标记, 在我们的模拟时间尺度上尚未达到; 另见图 1(c), 其中已减去热值。对于中等泵浦强度, 我们观察到序参数通过几个数量级衰减。除了指数弛豫之外, 良好的定义的振荡对应于幅度模激发 [10, 53]。随着泵强度增加, 这些振荡的初始振幅增大; 然而, 它们的寿命也变得更短。进一步增加泵振幅, 我们会达到一个点, 在这一点上, 这些振荡的寿命阻碍了我们研究其频率 [51, 54, 55], 见附录 B 中的图 6(a,b)。

我们观察到集体模式振荡的频率逐渐变小。为了提取这个变频速度, 我们首先从图 1 中的数据中减去背景指数衰减部分, 表示为 $\tilde{\phi}$, 然后计算一个窗口傅里叶变换 $\text{FT}[\tilde{\phi}](t_w) = \int_0^{T_{\text{max}}} dt \tilde{\phi}(t) e^{-i\omega t - (t-t_w)^6/\sigma_w^6}$ 。该窗口的宽度 $\sigma_w = 24$ 被设定为在任意时刻都能捕捉到至少 4 个阶参量振荡, t_w 。我们将啁啾速度 $\dot{\omega}$ 定义为 $\text{FT}[\tilde{\phi}](t_w)$ 最大值的斜率, 在图 2(a-d) 中跟踪了随着泵幅增加的情况。图 2(e) 显示啁啾速度遵循与泵幅呈幂律标度 $\dot{\omega} \propto E_0^3$ 的关系, 这与由于光诱导振幅模式震荡 [26, 53] 引起的电流的相同标度 $j \propto E_0^3$ 相同。

虽然无耗散的 BCS 动力学导致超导幅度随初始条件的不同而呈现出幂律衰减 [25, 56] 或持续振荡 [27–30], 但波动的引入将希格斯模的动力学转化为指数衰减, 请参见附录 B。这与热噪声对无耗散 BCS 动力学的影响一致 [27, 34]。幅度模式的寿命随着泵强度的增加而衰减 (请参见图 2(a-d)), 从弱激发到强激发区域变化超过一个数量级。

幅度模式的啁啾是本工作的主要结果。观察这种现象需要对超出平均场理论的涨落进行微观处理, 参

见附录 B 以作比较, 因为产生的状态高度非热态。此外, 啁啾现象不仅限于超导体, 而应该在许多具有破缺对称性的系统中被观测到。例如, 本工作中分析的超导解可以精确地映射到排斥 Hubbard 模型中的反铁磁态演化 [57], 并且与电荷密度波简并。这两个相位都已经通过实验得到研究 [58–61]。在实际的实验设置中, 啁啾速度和幅度模式寿命之间的泵强度存在权衡, 这取决于脉冲的具体细节以及所研究的材料。

现在, 我们在时间依赖的朗道-金兹堡理论中解释微观动力学。振幅模的啁啾对应于电子散射反馈对集体序的影响所导致的局部曲率的动力学减小。尽管人们可能倾向于将啁啾视为朗道-金兹堡理论中的加热效应来解释, 但我们强调系统是封闭的并且处于预热化状态, 温度变化无法描述这种情况。原则上, 可以构建时间依赖的朗道-金兹堡理论来解释啁啾。然而, 在实践中即使有微观动力学信息也很难提取朗道-金兹堡势能的全局结构演化。我们分析的一个重要结果是啁啾频率可以用作动态修改后的局部曲率的微观测量。

我们接下来讨论如何在实验中观测到这一物理现象。振幅模式不与光线线性耦合; 然而, 它可以在非线性过程中被观察到, 例如泵浦-探测装置 [11] 或三次谐波响应 [12, 26, 53]。我们的数值测试结果支持之前的观测结论, 由于与准粒子连续谱的重叠 [33], 从光学响应中提取振幅模式信号是困难的。根据之前的研究 [11], 我们更关注光诱导电流, 并表明它作为阶参数动力学的良好替代指标。虽然原则上, 光学电导率和光诱导电流携带类似的信息, 但我们发现实际上从

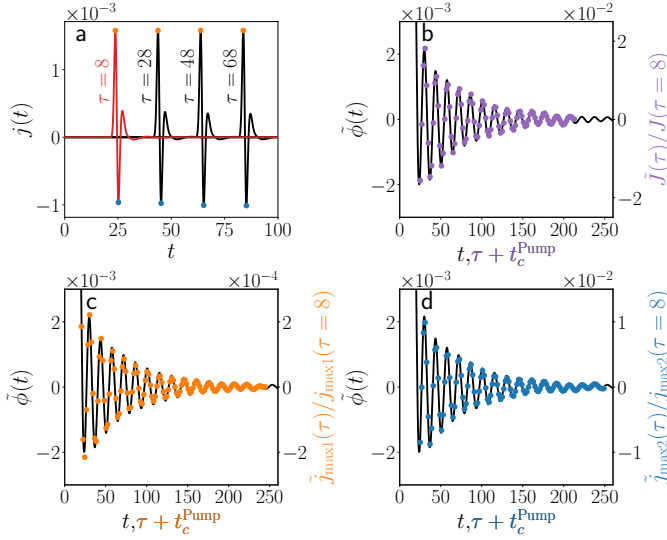


图 3. (a) 由参数为 j 的单周期探测脉冲诱导的电流, $E_0 = 0.1E_0^{\text{Pump}}$, $t_c = t_c^{\text{Pump}} + \tau$, $\sigma = 1$, $\omega = 1$, $E_0^{\text{Pump}} = 0.08$. 标记表示最大电流响应的位置。(b) 背景已被扣除的集成电流响应, $\tilde{J}$, 与阶参数振荡, $\tilde{\phi}$ 相比。(c) 探测场引起的电流响应的第一个极大值的振荡, j_{max1} , 对应于 (a) 中的橙色点。(d) 探测场引起的电流响应的第二个极大值的振荡, j_{max2} , 对应于 (a) 中的蓝色点。

时间依赖的电流中提取相干振荡要容易得多, 相比之下通过分析光学电导率谱则更为困难。

我们通过在泵脉冲之后的 τ 时间直接模拟一个额外的探测脉冲, 并测量诱导电流 [62–64]。这种方法理论上很方便, 因为它包含了响应函数的顶点修正, 这代表了集体模式贡献 [65, 66]。我们提出了两种测量方案, 并表明在两种情况下电流响应都与振幅模的集体动力学相关。探测脉冲被建模为一个小的单周期脉冲, 由方程 2 给出, 参数为 $\sigma = 1$, $t_c = t_c^{\text{Pump}} + \tau$, $\omega = 1$ 和 $E_0 = 0.1E_0^{\text{Pump}}$ 。图 3(a) 显示了对于几个不同的延迟时间 τ 的电流响应。我们追踪了最大电流响应 $j(t_{\text{max}})$ 随延迟时间的变化, 并观察到衰减振荡, 这些振荡与序参数动力学的高度精确地一致, 见图 3(c-d)。因此, 最大电流 $j(t_{\text{max}})$ 提供了关于调频频率和幅度模式寿命的信息。我们还确认, 时间平均电流响应 $J(\tau) = \hat{j}(\omega = 0; \tau)$ 与序参数动力学表现出极好的一致性, 如图 3(b) 所示。

基于这些结果, 我们提出直接测量光电流是一种方便的方法来测量振幅模的拍频以及希格斯模衰减包络, 这在无耗散 (波动) 描述中将是幂律 (指数) 形式。光诱导电流和拍频可以通过泵浦探测设置使用自由空间

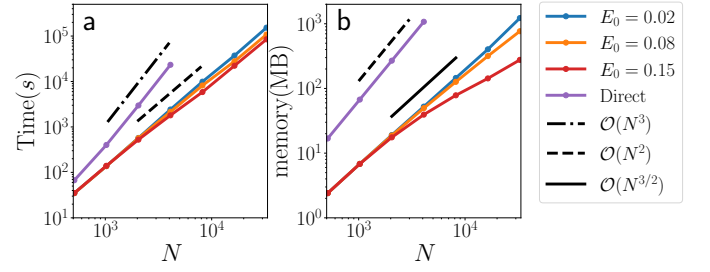


图 4. (a) 壁钟时间与 (b) 随着时间步长增加所需内存, HODLR 迭代方案相对于直接时间步进, 对于各种泵幅值 E_0 , 从平衡状态 $\beta = 18$ 开始。

光电采样或传输线实验进行测量, 前者如参考文献 [11] 中所示, 后者最近用于检测超导非线性传输 [67]、由于圆偏振光引起的光致异常霍尔效应 [68] 和 1T-TaS₂ 的超快电阻切换 [69]。在这些实验中, 测量的是材料中由探测场诱导的传输场变化。传输场的变化源于材料中微观极化的变化, 这与微观电流 [70–72] 相关联。

由于我们的分析得益于 HODLR 压缩技术对 KBE[42] 的数值解, 我们考虑了对称性破缺状态的动力学可压缩性和方案与直接求解 KBE 相比的性能。在图 4(a) 中, 我们在一系列泵浦强度和平衡态温度范围内观察到了计算成本随传播时间呈近似二次方缩放的现象。我们使用工作站的一个核心, 在 0.5 GB 内存的情况下大约一天内达到了 32768 个时间步长。相比之下, 我们推断出使用 NESSi 代码 [35] 进行三次方缩放的直接时间推进将会消耗 129 天的时间和 137 GB 的内存。图 4(b) 展示了全格林函数与 HODLR 表示之间的不同缩放关系。在 $N = 32768$ 处, 与直接存储在一个两时间网格上的情况相比, 格林函数和自能具有 50-200 倍的内存压缩率。附录 C 更详细地考虑了可压缩性。

我们已经表明, 上述间隙激发后的集体振幅模显示了啁啾动力学, 并基于泵浦-探测设置中的光诱导电流分析了响应的直接实验特征。未来应用包括非常规超导体的非线性响应 [17, 18] 以及超越动态平均场理论扩展以研究空间波动 [73] 和竞争有序系统中波动序参量的增长 [74, 75]。一个特别吸引人的问题是激发后形成不均匀图案的系统的不稳定性能否对本文提出的希格斯模衰减机制极其敏感 [76–78]。在方法上, 这项工作代表了 HODLR 压缩技术首次应用于 KBE 对称性破缺状态的应用, 并证明它可以访问足够长的时

间尺度以实际研究广泛的光诱导相变 [79–82]。

IV. 致谢

DG 感谢斯洛文尼亚研究机构的项目 J1-2463、N1-0318、MN-0016-106 和 P1-0044 的支持。TB 由能源部通过拨款号 DE-SC0020347 支持直至 2023 年

8 月。自 2023 年 8 月以来，TB 和 EG 得到了美国能源部科学办公室、先进科学研究处以及基础能源科学处的资助，该资助来源于高级计算中的科学发现 (SciDAC) 计划，拨款号为 DE-SC0022088。YM 得到了日本学术振兴会 (JSPS) 科研费的支持，KAKENHI 拨款号 JP20K14412、JP21H05017 和 JST CREST 拨款号 JPMJCR1901。Flatiron 研究所是 Simons 基金会的下属机构。

-
- [1] J. Bardeen, L. N. Cooper, and J. R. Schrieffer, Theory of superconductivity, *Phys. Rev.* **108**, 1175 (1957).
 - [2] P. W. Anderson, Coherent excited states in the theory of superconductivity: Gauge invariance and the meissner effect, *Phys. Rev.* **110**, 827 (1958).
 - [3] P. W. Anderson, Random-phase approximation in the theory of superconductivity, *Phys. Rev.* **112**, 1900 (1958).
 - [4] P. W. Anderson, Plasmons, gauge invariance, and mass, *Phys. Rev.* **130**, 439 (1963).
 - [5] P. Higgs, Broken symmetries, massless particles and gauge fields, *Physics Letters* **12**, 132 – 133 (1964).
 - [6] P. W. Higgs, Broken symmetries and the masses of gauge bosons, *Phys. Rev. Lett.* **13**, 508 (1964).
 - [7] R. Sooryakumar and M. V. Klein, Raman scattering by superconducting-gap excitations and their coupling to charge-density waves, *Phys. Rev. Lett.* **45**, 660 (1980).
 - [8] P. B. Littlewood and C. M. Varma, Gauge-invariant theory of the dynamical interaction of charge density waves and superconductivity, *Phys. Rev. Lett.* **47**, 811 (1981).
 - [9] P. B. Littlewood and C. M. Varma, Amplitude collective modes in superconductors and their coupling to charge-density waves, *Phys. Rev. B* **26**, 4883 (1982).
 - [10] D. Pekker and C. Varma, Amplitude/higgs modes in condensed matter physics, *Annual Review of Condensed Matter Physics* **6**, 269 (2015).
 - [11] R. Matsunaga, Y. I. Hamada, K. Makise, Y. Uzawa, H. Terai, Z. Wang, and R. Shimano, Higgs amplitude mode in the bcs superconductors $\text{Nb}_{1-x}\text{Ti}_x\text{N}$ induced by terahertz pulse excitation, *Phys. Rev. Lett.* **111**, 057002 (2013).
 - [12] R. Matsunaga, N. Tsuji, H. Fujita, A. Sugioka, K. Makise, Y. Uzawa, H. Terai, Z. Wang, H. Aoki, and R. Shimano, Light-induced collective pseudospin precession resonating with higgs mode in a superconductor, *Science* **345**, 1145 (2014).
 - [13] R. Matsunaga, N. Tsuji, K. Makise, H. Terai, H. Aoki, and R. Shimano, Polarization-resolved terahertz third-harmonic generation in a single-crystal superconductor NbN : Dominance of the higgs mode beyond the bcs approximation, *Phys. Rev. B* **96**, 020505 (2017).
 - [14] A. Moor, A. F. Volkov, and K. B. Efetov, Amplitude higgs mode and admittance in superconductors with a moving condensate, *Phys. Rev. Lett.* **118**, 047001 (2017).
 - [15] S. Nakamura, Y. Iida, Y. Murotani, R. Matsunaga, H. Terai, and R. Shimano, Infrared activation of the higgs mode by supercurrent injection in superconducting NbN , *Phys. Rev. Lett.* **122**, 257001 (2019).
 - [16] P. J. D. Crowley and L. Fu, Supercurrent-induced resonant optical response, *Phys. Rev. B* **106**, 214526 (2022).
 - [17] K. Katsumi, N. Tsuji, Y. I. Hamada, R. Matsunaga, J. Schneeloch, R. D. Zhong, G. D. Gu, H. Aoki, Y. Gallais, and R. Shimano, Higgs mode in the d -wave superconductor $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+x}$ driven by an intense terahertz pulse, *Phys. Rev. Lett.* **120**, 117001 (2018).
 - [18] H. Chu, M.-J. Kim, K. Katsumi, S. Kovalev, R. D. Dawson, L. Schwarz, N. Yoshikawa, G. Kim, D. Putzky, Z. Z. Li, *et al.*, Phase-resolved higgs response in superconducting cuprates, *Nature communications* **11**, 1793 (2020).
 - [19] N. R. Poniatowski, J. B. Curtis, A. Yacoby, and P. Narang, Spectroscopic signatures of time-reversal symmetry breaking superconductivity, *Communications Physics* **5**, 44 (2022).
 - [20] D. J. Young, A. Chu, E. Y. Song, D. Barberena, D. Wellnitz, Z. Niu, V. M. Schäfer, R. J. Lewis-Swan, A. M. Rey, and J. K. Thompson, Observing dynamical phases of bcs superconductors in a cavity qed simulator, *Nature* **625**, 679 – 684 (2024).
 - [21] R. J. Lewis-Swan, D. Barberena, J. R. K. Cline, D. J. Young, J. K. Thompson, and A. M. Rey, Cavity-qed

- quantum simulator of dynamical phases of a bardeen-cooper-schrieffer superconductor, *Phys. Rev. Lett.* **126**, 173601 (2021).
- [22] A. Behrle, T. Harrison, J. Kombe, K. Gao, M. Link, J.-S. Bernier, C. Kollath, and M. Köhl, Higgs mode in a strongly interacting fermionic superfluid, *Nature Physics* **14**, 781 (2018).
- [23] I. S. Aranson and L. Kramer, The world of the complex ginzburg-landau equation, *Rev. Mod. Phys.* **74**, 99 (2002).
- [24] A. Zong, P. E. Dolgirev, A. Kogar, E. Ergezen, M. B. Yilmaz, Y.-Q. Bie, T. Rohwer, I.-C. Tung, J. Straquadine, X. Wang, Y. Yang, X. Shen, R. Li, J. Yang, S. Park, M. C. Hoffmann, B. K. Ofori-Okai, M. E. Kozina, H. Wen, X. Wang, I. R. Fisher, P. Jarillo-Herrero, and N. Gedik, Dynamical slowing-down in an ultrafast photoinduced phase transition, *Phys. Rev. Lett.* **123**, 097601 (2019).
- [25] A. F. Volkov and S. M. Kogan, Collisionless relaxation of the energy gap in superconductors, *Zh. Eksp. Theor. Fiz.* **65**, 2038 (1973).
- [26] N. Tsuji and H. Aoki, Theory of anderson pseudospin resonance with higgs mode in superconductors, *Phys. Rev. B* **92**, 064508 (2015).
- [27] R. A. Barankov, L. S. Levitov, and B. Z. Spivak, Collective rabi oscillations and solitons in a time-dependent bcs pairing problem, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 160401 (2004).
- [28] E. A. Yuzbashyan, O. Tsyplatyev, and B. L. Altshuler, Relaxation and persistent oscillations of the order parameter in fermionic condensates, *Phys. Rev. Lett.* **96**, 097005 (2006).
- [29] R. A. Barankov and L. S. Levitov, Synchronization in the bcs pairing dynamics as a critical phenomenon, *Phys. Rev. Lett.* **96**, 230403 (2006).
- [30] E. A. Yuzbashyan, M. Dzero, V. Gurarie, and M. S. Foster, Quantum quench phase diagrams of an s-wave bcs-bec condensate, *Physical Review A* **91**, 033628 (2015).
- [31] A. F. Kemper, M. A. Sentef, B. Moritz, T. P. Devereaux, and J. K. Freericks, Review of the theoretical description of time-resolved angle-resolved photoemission spectroscopy in electron-phonon mediated superconductors, *Annalen der Physik* **529**, 1600235 (2017).
- [32] B. Nosarzewski, B. Moritz, J. K. Freericks, A. F. Kemper, and T. P. Devereaux, Amplitude mode oscillations in pump-probe photoemission spectra from a *d*-wave superconductor, *Phys. Rev. B* **96**, 184518 (2017).
- [33] A. Kumar and A. F. Kemper, Higgs oscillations in time-resolved optical conductivity, *Phys. Rev. B* **100**, 174515 (2019).
- [34] Y. Murakami, P. Werner, N. Tsuji, and H. Aoki, Damping of the collective amplitude mode in superconductors with strong electron-phonon coupling, *Phys. Rev. B* **94**, 115126 (2016).
- [35] M. Schüler, D. Golež, Y. Murakami, N. Bittner, A. Herrmann, H. U. Strand, P. Werner, and M. Eckstein, Nessi: The non-equilibrium systems simulation package, *Computer Physics Communications* **257**, 107484 (2020).
- [36] P. Lipavský, V. Špička, and B. Velický, Generalized kadanoff-baym ansatz for deriving quantum transport equations, *Phys. Rev. B* **34**, 6933 (1986).
- [37] R. Tuovinen, D. Golež, M. Eckstein, and M. A. Sentef, Comparing the generalized kadanoff-baym ansatz with the full kadanoff-baym equations for an excitonic insulator out of equilibrium, *Phys. Rev. B* **102**, 115157 (2020).
- [38] N. Schlünzen, J.-P. Joost, F. Heidrich-Meisner, and M. Bonitz, Nonequilibrium dynamics in the one-dimensional fermi-hubbard model: Comparison of the nonequilibrium green-functions approach and the density matrix renormalization group method, *Phys. Rev. B* **95**, 165139 (2017).
- [39] Y. Pavlyukh, E. Perfetto, D. Karlsson, R. van Leeuwen, and G. Stefanucci, Time-linear scaling nonequilibrium green's function methods for real-time simulations of interacting electrons and bosons. i. formalism, *Physical Review B* **105**, 125134 (2022).
- [40] M. Schüler, M. Eckstein, and P. Werner, Truncating the memory time in nonequilibrium dynamical mean field theory calculations, *Phys. Rev. B* **97**, 245129 (2018).
- [41] C. Stahl, N. Dasari, J. Li, A. Picano, P. Werner, and M. Eckstein, Memory truncated kadanoff-baym equations, *Physical Review B* **105**, 115146 (2022).
- [42] J. Kaye and D. Golež, Low rank compression in the numerical solution of the nonequilibrium Dyson equation, *SciPost Phys.* **10**, 091 (2021).
- [43] J. Yin, Y. hao Chan, F. H. da Jornada, D. Y. Qiu, S. G. Louie, and C. Yang, Using dynamic mode decomposition to predict the dynamics of a two-time non-equilibrium Green's function, *J. Comput. Sci.* **64**, 101843 (2022).
- [44] C. C. Reeves, J. Yin, Y. Zhu, K. Z. Ibrahim, C. Yang, and V. Vlček, Dynamic mode decomposition for extrapolating nonequilibrium green's-function dynamics, *Phys. Rev. B* **107**, 075107 (2023).

- [45] H. Shinaoka, M. Wallerberger, Y. Murakami, K. Nogaki, R. Sakurai, P. Werner, and A. Kauch, Multiscale space-time ansatz for correlation functions of quantum systems based on quantics tensor trains, *Phys. Rev. X* **13**, 021015 (2023).
- [46] M. Murray, H. Shinaoka, and P. Werner, Nonequilibrium diagrammatic many-body simulations with quantics tensor trains, arXiv preprint arXiv:2312.03809 (2023).
- [47] F. Meirinhos, M. Kajan, J. Kroha, and T. Bode, Adaptive numerical solution of Kadanoff-Baym equations, *SciPost Phys. Core* **5**, 030 (2022).
- [48] G. Stefanucci and R. Van Leeuwen, *Nonequilibrium many-body theory of quantum systems: a modern introduction* (Cambridge University Press, 2013).
- [49] X. Dong, E. Gull, and H. U. R. Strand, Excitations and spectra from equilibrium real-time green's functions, *Phys. Rev. B* **106**, 125153 (2022).
- [50] A. A. Rusakov and D. Zgid, Self-consistent second-order Green's function perturbation theory for periodic systems, *The Journal of Chemical Physics* **144**, 054106 (2016).
- [51] N. Tsuji, M. Eckstein, and P. Werner, Nonthermal antiferromagnetic order and nonequilibrium criticality in the hubbard model, *Phys. Rev. Lett.* **110**, 136404 (2013).
- [52] P. Werner, N. Tsuji, and M. Eckstein, Nonthermal symmetry-broken states in the strongly interacting hubbard model, *Phys. Rev. B* **86**, 205101 (2012).
- [53] R. Shimano and N. Tsuji, Higgs mode in superconductors, *Annual Review of Condensed Matter Physics* **11**, 103 (2020).
- [54] D. Golež, P. Werner, and M. Eckstein, Photoinduced gap closure in an excitonic insulator, *Phys. Rev. B* **94**, 035121 (2016).
- [55] A. Picano and M. Eckstein, Accelerated gap collapse in a slater antiferromagnet, *Phys. Rev. B* **103**, 165118 (2021).
- [56] V. Gurarie, Nonequilibrium dynamics of weakly and strongly paired superconductors, *Phys. Rev. Lett.* **103**, 075301 (2009).
- [57] H. Shiba, Thermodynamic properties of the one-dimensional half-filled-band hubbard model. ii, *Prog. Theor. Phys.* **48**, 2171 (1972).
- [58] T. Hong, M. Matsumoto, Y. Qiu, W. Chen, T. R. Gentile, S. Watson, F. F. Awwadi, M. M. Turnbull, S. E. Dissanayake, H. Agrawal, *et al.*, Higgs amplitude mode in a two-dimensional quantum antiferromagnet near the quantum critical point, *Nature Physics* **13**, 638 (2017).
- [59] J. Demsar, K. Biljaković, and D. Mihailovic, Single particle and collective excitations in the one-dimensional charge density wave solid $\text{k}_{0.3}\text{moo}_3$ probed in real time by femtosecond spectroscopy, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 800 (1999).
- [60] R. Yusupov, T. Mertelj, V. V. Kabanov, S. Brazovskii, P. Kusar, J.-H. Chu, I. R. Fisher, and D. Mihailovic, Coherent dynamics of macroscopic electronic order through a symmetry breaking transition, *Nature Physics* **6**, 681 (2010).
- [61] N. Yoshikawa, H. Suganuma, H. Matsuoka, Y. Tanaka, P. Hemme, M. Cazayous, Y. Gallais, M. Nakano, Y. Iwasa, and R. Shimano, Ultrafast switching to an insulating-like metastable state by amplitudon excitation of a charge density wave, *Nature Physics* **17**, 909 – 914 (2021).
- [62] Z. Lenarčič, D. Golež, J. Bonča, and P. Prelovšek, Optical response of highly excited particles in a strongly correlated system, *Phys. Rev. B* **89**, 125123 (2014).
- [63] C. Shao, T. Tohyama, H.-G. Luo, and H. Lu, Numerical method to compute optical conductivity based on pump-probe simulations, *Phys. Rev. B* **93**, 195144 (2016).
- [64] M. Eckstein and M. Kollar, Theory of time-resolved optical spectroscopy on correlated electron systems, *Phys. Rev. B* **78**, 205119 (2008).
- [65] Y. Murakami, P. Werner, N. Tsuji, and H. Aoki, Multiple amplitude modes in strongly coupled phonon-mediated superconductors, *Phys. Rev. B* **93**, 094509 (2016).
- [66] D. Golež, Z. Sun, Y. Murakami, A. Georges, and A. J. Millis, Nonlinear spectroscopy of collective modes in an excitonic insulator, *Phys. Rev. Lett.* **125**, 257601 (2020).
- [67] E. Wang, J. Adelinia, M. Chavez-Cervantes, T. Matsuyama, M. Fechner, M. Buzzi, G. Meier, and A. Cavalleri, Superconducting nonlinear transport in optically driven high-temperature k_3c_{60} , *Nature Communications* **14**, 7233 (2023).
- [68] J. W. McIver, B. Schulte, F.-U. Stein, T. Matsuyama, G. Jotzu, G. Meier, and A. Cavalleri, Light-induced anomalous hall effect in graphene, *Nature Physics* **16**, 38 (2020).
- [69] R. Venturini, A. Mraz, I. Vaskivskiy, Y. Vaskivskiy, D. Svetin, T. Mertelj, L. Pavlovič, J. Cheng, G. Chen, P. Amarasinghe, *et al.*, Ultraefficient resistance switching between charge ordered phases in 1t-tas_2 with a single picosecond electrical pulse, *Applied Physics Letters* **120** (2022).

- [70] I. Katayama, H. Aoki, J. Takeda, H. Shimosato, M. Ashida, R. Kinjo, I. Kawayama, M. Tonouchi, M. Nagai, and K. Tanaka, Ferroelectric soft mode in a SrTiO_3 thin film impulsively driven to the anharmonic regime using intense picosecond terahertz pulses, *Phys. Rev. Lett.* **108**, 097401 (2012).
- [71] M. Udina, T. Cea, and L. Benfatto, Theory of coherent-oscillations generation in terahertz pump-probe spectroscopy: From phonons to electronic collective modes, *Phys. Rev. B* **100**, 165131 (2019).
- [72] B. U. Felderhof and G. Marowsky, Linear optics of polarization sheets, *Applied Physics B* **43**, 161 (1987).
- [73] C. Stahl and M. Eckstein, Electronic and fluctuation dynamics following a quench to the superconducting phase, *Phys. Rev. B* **103**, 035116 (2021).
- [74] Z. Sun and A. J. Millis, Transient trapping into metastable states in systems with competing orders, *Phys. Rev. X* **10**, 021028 (2020).
- [75] A. Zong, A. Kogar, Y.-Q. Bie, T. Rohwer, C. Lee, E. Baldini, E. Ergeçen, M. B. Yilmaz, B. Freelon, E. J. Sie, H. Zhou, J. Straquadine, P. Walmsley, P. E. Dolgirev, A. V. Rozhkov, I. R. Fisher, P. Jarillo-Herrero, B. V. Fine, and N. Gedik, Evidence for topological defects in a photoinduced phase transition, *Nature Physics* **15**, 27 (2019).
- [76] M. Dzero, E. Yuzbashyan, and B. Altshuler, Cooper pair turbulence in atomic fermi gases, *Europhysics Letters* **85**, 20004 (2009).
- [77] G.-W. Chern and K. Barros, Nonequilibrium dynamics of superconductivity in the attractive hubbard model, *Physical Review B* **99**, 035162 (2019).
- [78] A. Barresi, A. Boulet, G. Wlazłowski, and P. Magierski, Generation and decay of higgs mode in a strongly interacting fermi gas, *Scientific Reports* **13**, 11285 (2023).
- [79] K. Nasu, *Photoinduced Phase Transitions* (WORLD SCIENTIFIC, 2004).
- [80] Y. Murakami, D. Golež, M. Eckstein, and P. Werner, Photo-induced nonequilibrium states in mott insulators (2023), [arXiv:2310.05201 \[cond-mat.str-el\]](https://arxiv.org/abs/2310.05201).
- [81] A. de la Torre, D. M. Kennes, M. Claassen, S. Gerber, J. W. McIver, and M. A. Sentef, Colloquium: Nonthermal pathways to ultrafast control in quantum materials, *Rev. Mod. Phys.* **93**, 041002 (2021).
- [82] C. Giannetti, M. Capone, D. Fausti, M. Fabrizio, F. Parmigiani, and D. Mihailovic, Ultrafast optical spectroscopy of strongly correlated materials and high-temperature superconductors: a non-equilibrium ap-

proach, *Advances in Physics* **65**, 58 (2016).

- [83] J. Kaye, K. Chen, and H. U. R. Strand, libdlr: Efficient imaginary time calculations using the discrete Lehmann representation, *Comput. Phys. Commun.* **280**, 108458 (2022).
- [84] J. Kaye, K. Chen, and O. Parcollet, Discrete lehmann representation of imaginary time green's functions, *Phys. Rev. B* **105**, 235115 (2022).
- [85] J. Kaye and H. U. R. Strand, A fast time domain solver for the equilibrium Dyson equation, *Adv. Comput. Math.* **49**, 10.1007/s10444-023-10067-7 (2023).

附录 A: 实现细节

方程 (1) 中的吸引哈伯德哈密顿量可以重写为

$$H = -t_0 \sum_{\langle j,k \rangle \sigma} \sigma e^{iqA(t)\sigma} \psi_{j\sigma}^\dagger \psi_{k\sigma} \quad (\text{A1})$$

$$+ U \sum_i \psi_{i\downarrow}^\dagger \psi_{i\downarrow} \psi_{i\uparrow}^\dagger \psi_{i\uparrow} - \frac{U}{2} \sum_{i\sigma} \psi_{i\sigma}^\dagger \psi_{i\sigma},$$

其中我们使用了 Nambu 自旋器

$$\psi_i = \begin{pmatrix} d_{i\uparrow} \\ d_{i\downarrow}^\dagger \end{pmatrix}. \quad (\text{A2})$$

我们再次使用 Nambu 旋量来定义异常格林函数

$$G(t, t') = \langle \psi(t) \psi^\dagger(t') \rangle = \begin{pmatrix} \langle d_{\uparrow}^\dagger d_{\uparrow} \rangle(t, t') & \langle d_{\uparrow}^\dagger d_{\downarrow} \rangle(t, t') \\ \langle d_{\downarrow}^\dagger d_{\uparrow} \rangle(t, t') & \langle d_{\downarrow}^\dagger d_{\downarrow} \rangle(t, t') \end{pmatrix}, \quad (\text{A3})$$

, 这是我们通过求解 KBE 所计算的量。

我们在 Bethe 格子上的 DMFT 近似中解决了这个系统, 给出了杂化函数

$$\Delta(t, t') = \Delta_R(t, t') + \Delta_L(t, t') \quad (\text{A4})$$

$$\Delta_R(t, t') = \frac{1}{2} \bar{t}_0(t) \sigma_z G(t, t') \sigma_z \bar{t}_0^*(t') \quad (\text{A5})$$

$$\Delta_L(t, t') = \frac{1}{2} \bar{t}_0^*(t) \sigma_z G(t, t') \sigma_z \bar{t}_0(t'), \quad (\text{A6})$$

, 跃迁矩阵元由

$$\bar{t}_0 = \begin{pmatrix} e^{iA(t)} & 0 \\ 0 & e^{-iA(t)} \end{pmatrix}, \quad (\text{A7})$$

$$A(t) = - \int_0^t E(s) ds \quad (\text{A8})$$

由于 Peierls 替换给出。我们将电荷和晶格距离设为单位, $q = a = 1$ 。

杂质问题通过完全自洽的二级玻恩近似得到解决。在这个近似中，福克项由

$$\Sigma_{ij}^F(t) = iU(t)G_{ij}^<(t, t^-)\delta_{i\bar{j}}, \quad (\text{A9})$$

给出，而哈特里项由于处于半填充状态而抵消了化学势。有两个二级图形：

$$\Sigma_{ij}^B(t, t') = U(t)U(t')G_{ij}(t, t')G_{i\bar{j}}(t, t')G_{i\bar{j}}(t', t), \quad (\text{A10})$$

$$\Sigma_{ij}^E(t, t') = -U(t)U(t')G_{i\bar{j}}(t, t')G_{i\bar{j}}(t, t')G_{i\bar{j}}(t', t). \quad (\text{A11})$$

杂化 $\Delta[G](t, t')$ 和自能 $\Sigma[G](t, t')$ 取决于格林函数，我们使用固定点迭代来保持自洽性，当后续迭代中的格林函数的最大差异小于 10^{-10} 时终止。

我们使用五阶向后差分公式多步法对 KBE 进行离散化。Gregory 求积公式被用来以五阶精度离散记忆积分。在 libdlr [83] 中实现的离散 Lehmann 表示 [84] 用于离散出现在 Keldysh 轮廓垂直腿上的虚时间变量，如 Ref.[85] 所示。我们确认使用 HODLR 方案压缩 Green 函数保留了守恒律，即密度和能量，在该方案中使用的奇异值分解截断容差范围内，我们将其设置为 10^{-8} 。

在泵-探针实验中，我们测量电流，由

$$j(t) = \text{Im}(\text{Tr}[\sigma_z(\Gamma_L(t) - \Gamma_R(t))]) \quad (\text{A12})$$

$$\Gamma_{R/L}(t) = -i[G * \Delta_{L/R}]^<(t, t), \quad (\text{A13})$$

给出，其中 $*$ 是三足 Keldysh 路径上的卷积算子。

附录 B: 哈特里-福克

求解 KBE 允许包含超导体中 Hartree-Fock 处理所缺失的动力学涨落。我们展示了包括这些相关性导致了定性不同的动力学，证明了超越平均场级别的计算的必要性。在主文中，我们在光激发后观察到了振幅模的啁啾现象，并将这种动力学与 Hartree-Fock 近似进行了对比，请参见图 5。即使在平衡态下，转变的临界逆温度是 $\beta_c = 2$ ，这比第 2 Born 近似中的值高得多。

我们可以使用这个序参量数据来确认 Hartree-Fock 处理的一个主要预测，即希格斯模式的幂律衰

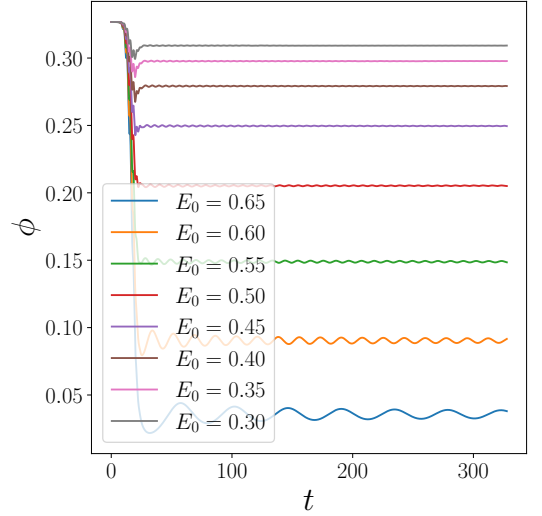


图 5. 序参量 ϕ 在哈特里-福克近似下随外部脉冲强度 E_0 增加的时间演化。

减 [25]。Hartree-Fock 和第二 Born 近似中的希格斯振荡幅度如图 6 所示。在 Hartree-Fock 情况下，预期的幂律衰减 $\phi \propto t^{-1/2}$ 被证明在两个数量级上成立。然而，当通过第 2 Born 自能引入涨落时，希格斯模式反而呈现指数衰减 [26]，其寿命强烈依赖于激发强度。

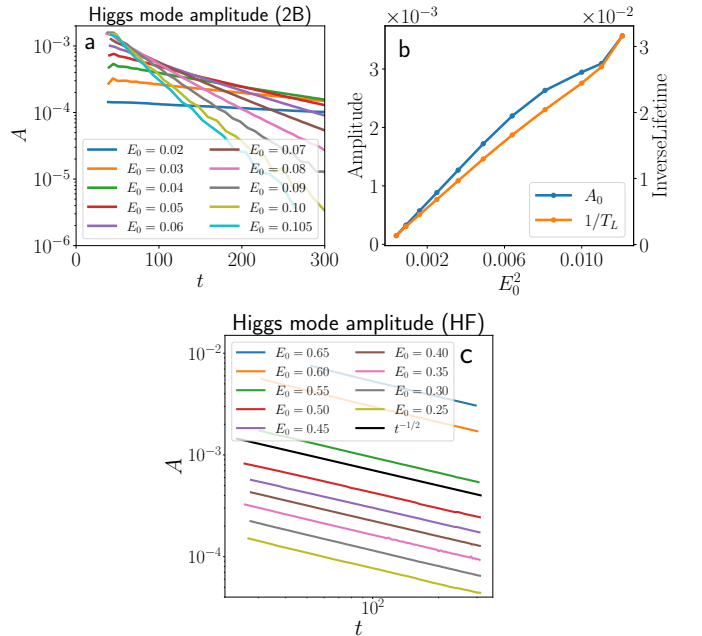


图 6. (a) 序参量 A 的振荡幅度衰减，对于不同的激发强度 E_0 ，在二阶玻恩近似 (a) 和哈特里-福克近似 (c) 中。哈特里-福克结果的幅度与幂律衰减 $t^{-1/2}$ 进行了比较。(b) 随着泵浦强度增加，对于 2B 结果，希格斯模式的初始幅度 A_0 和逆寿命 $1/T_L$ 。

图 5 显示, 当泵场关闭时, 序参数围绕一个固定值振荡, 这与二阶理论中存在的持续衰减形成鲜明对比。这表明系统内的势能面立即发生了改变, 暗示不存在啁啾现象。图 7 确认了这种啁啾的缺失, 在该图中展示了希格斯振荡频率的时间依赖性。对于所有泵强度, 频率保持恒定, 仅有小于原始频率 1% 的噪声。

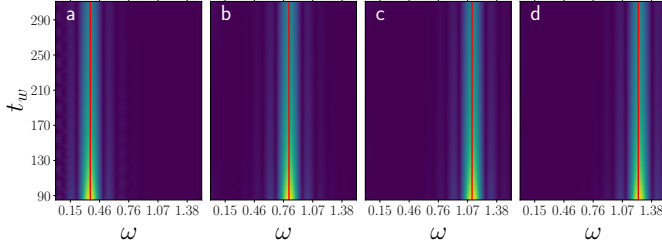


图 7. 窗函数傅里叶变换 $F[\phi](t_w)$, 中心位于 t_w , 从 Hartree-Fock 动力学中减去背景。泵幅值的结果为 (a) $E_0 = 0.6$, (b) $E_0 = 0.5$, (c) $E_0 = 0.4$, (d) $E_0 = 0.3$ 。红线追踪谱的最大值, 并且变化不超过一个频率分辨率单位。

附录 C: HODLR 方案中的数值秩

我们的时间传播方案使用 HODLR 分解压缩格林函数 [42]。对分解的每个块执行截断 SVD, 并实时更新, 舍弃低于 10^{-10} 的奇异值。这些块 (在此精度范围内) 的数值秩决定了格林函数的可压缩性和该方案的性能。

图 8(a) 显示了最大块秩 k 随时间步数的增长。在逆温度 $\beta = 6$ 下, 系统处于无序状态, 格林函数在其非对角线上呈指数衰减。这导致秩迅速饱和, 算法的计算复杂度为 $\mathcal{O}(N^2 \log N)$, 内存复杂度为 $\mathcal{O}(N \log N)$,

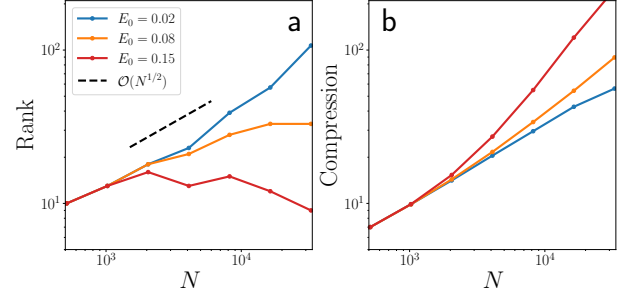


图 8. (a) 绿函数在时间步长 T 处的 HODLR 分解中最大块的截断 SVD 的秩。给出了几种不同泵强度的结果。(b) 所示泵强度下的绿函数和自能的压缩因子。

其中 N 为时间步数。对于用强泵浦 (即 $E_0 = 0.15$) 激发低温状态的模拟, 其行为类似, 破坏了超导态。在低温下, 有序状态下, 尽管块仍然是数值上的低秩, 为 $k \ll N$, 但它们的生长率为 $k \propto \sqrt{N}$, 导致计算复杂度为 $\mathcal{O}(N^3 \log N)$ 和内存复杂度为 $\mathcal{O}(N^{3/2} \log N)$ 。然而, 虽然图 8(b) 中显示的内存使用反映了预期的比例缩放, 但在图 4 中展示的实际运行时间反映的是大约 $\mathcal{O}(N^2)$ 比例缩放, 这表明算法中的低比例缩放步骤在整个模拟的时间尺度上占主导地位。