引用格式: TAO Zhensheng. Probing Intrinsic Attosecond Electron Dynamics and Interactions in Condensed Matters (Invited)[J]. Acta Photonica Sinica, 2021, 50(8):0850204

陶镇生. 探测凝聚态材料中电子的阿秒动力学以及相互作用过程(特邀)[J]. 光子学报, 2021, 50(8):0850204

# 探测凝聚态材料中电子的阿秒动力学 以及相互作用过程(特邀)

### 陶镇生

(复旦大学物理学系表面物理国家重点实验室,上海200438)

**摘 要:**随着高次谐波阿秒光源技术以及阿秒计量学的发展,对于凝聚态材料中的电子动力学探测也 进入了阿秒的领域,并在近15年的时间里取得了显著的进展和突破。新颖的阿秒测量方式为研究在极 短的时间尺度上,凝聚态材料中电子的运动、共振跃迁以及相互作用等重要物理问题提供了全新的研 究手段和重要创新机遇。本文介绍了探测凝聚态物质中本征阿秒动力学过程的重要工作,主要综述了 高次谐波、阿秒脉冲测量、凝聚态材料阿秒光电子能谱探测的关键技术和现状。最后对阿秒光电子动 力学测量技术的发展做出了展望。

关键词:超快光学;阿秒脉冲;高次谐波;阿秒脉冲测量;阿秒光电子能谱

**中图分类号:**O434.14 文献标识码:A

doi:10.3788/gzxb20215008.0850204

# Probing Intrinsic Attosecond Electron Dynamics and Interactions in Condensed Matters (Invited)

#### TAO Zhensheng

(State Key Laboratory of Surface Physics, Department of Physics, Fudan University, Shanghai 200438, China)

**Abstract:** As the development of attosecond sources and metrology technologies, the studies on ultrafast electron dynamics in condensed matter have entered the attosecond regime, leading to remarkable progress and breakthroughs in the past 15 years. Novel attosecond metrology has opened up new opportunities for the detection of ultrafast electron movement, resonant excitation, as well as complex electron–electron interactions on the attosecond timescale. This review surveys the important efforts aimed at probing intrinsic attosecond dynamics in condensed matters. The key technologies and status of attosecond sources enabled by high–harmonic generation, attosecond pulse measurements, and the detection of attosecond photoemission time delay on condensed matters are summarized. The development prospects are presented in the end.

**Key words**: Ultrafast optics; Attosecond pulses; High-harmonic generation; Attosecond pulse measurement; Attosecond photoelectron spectroscopy

OCIS Codes: 320.7120; 320.7130; 320.7110; 140.7240

# 0 引言

实时地跟踪和观测电子的运动及其相互作用一直以来是时间分辨物理研究的一个终极目标和巨大挑战。随着超快飞秒激光器的发展与普及,现在已经可以在实验室中通过成熟的泵浦探测技术,观察和研究

http://www.photon.ac.cn

基金项目:国家自然科学基金(No. 11874121),上海市科学技术委员会基础研究项目(No. 19JC1410900)

**第一作者:**陶镇生(1982—),男,教授,博士,主要研究方向为超快光与物质相互作用动力学过程。 Email: ZhenshengTao@fudan.edu.cn 收稿日期:2021-07-20;录用日期:2021-08-04

由激光脉冲激发引起的凝聚态材料电子态在飞秒时间尺度上的演化过程<sup>[1]</sup>以及电子在纳米尺度空间上的运动过程<sup>[2]</sup>。更进一步,当研究者试图探究电子在空间更小的原子级别上的运动细节并施加控制时,则在探测上需要达到更高的时间分辨率。考虑到材料大约为3埃(Å,10<sup>-10</sup> m)的晶格长度,以及电子的费米速度(~10<sup>6</sup> m/s),电子通过一个晶格长度所需的时间在1飞秒(fs,10<sup>-15</sup> s)以下。观察和研究这样短时间内电子的运动与相互作用过程能够揭示光与物质相互作用的最完整的信息,为实现新一代基于光频率的超快光电子器件奠定基础。

在实验上,电子在凝聚态材料中运动的时间尺度( $\Delta t$ )与激发能量尺度( $\Delta E$ )理论上可以由测不准原理推断: $\Delta E \Delta t \ge \frac{\hbar}{2}$ 。因此,阿秒(as,10<sup>-18</sup> s)过程所对应的超快过程往往与高能量深紫外甚至软X射线波段的 光子能量相关联。近年来,基于高次谐波(High-Harmonic Generation,HHG)技术产生的覆盖深紫外及软X 射线波段的阿秒脉冲与脉冲序列为探测凝聚态材料中电子的阿秒动力学与相互作用过程提供了强有力的 研究工具。结合光电子能谱(photoemission spectroscopy)技术,实验上已经可以探测和研究电子在阿秒的时 间尺度及在晶格长度的空间尺度上的超快运动过程,为研究光与物质相互作用提供最全面的信息。

本文将重点介绍高次谐波阿秒光源技术、阿秒光电子条纹相机技术、角分辨阿秒光电子能谱技术,以及 这些技术在凝聚态材料探测中的应用等,并提出相关的发展趋势和方向。

## 1 高次谐波阿秒光源

目前,最常用的产生阿秒脉冲或者脉冲序列的方法是通过飞秒激光驱动气体中的高次谐波产生过程。 采用的气体一般为惰性气体,包括氙(Xe)、氪(Kr)、氩(Ar)、氖(Ne)和氦(He)。实验中,可以将线性偏振的 飞秒激光脉冲聚焦在气体源上,当激光峰值强度达到10<sup>14</sup>~10<sup>15</sup> W/cm<sup>2</sup>量级时,高能量激光脉冲与气体相互 作用引起高次谐波过程。高次谐波过程是一种非微扰的高阶非线性过程,可以通过三步模型来解释<sup>[3-7]</sup>。如 图1所示,第一步,强激光场压低原子中库伦势,在 $t_0$ 时刻电子通过隧穿电离方式从原子核束缚中逃逸;第二 步,电离后的自由电子在外部激光场的驱动下振荡、加速并获得高能量;第三步,激光场将部分电子反向拉 回原子核附近,并在 $t_r$ 时刻与母核复合,所积累的能量以高能光子形式辐射。三步模型可以比较准确地预测 高次谐波的截止能量,即谐波辐射所能达到的最高光子能量: $E_{cutoff} = I_P + 3.17U_Po$ 、其中, $I_P$ 为气体原子的电 离能, $U_P$ 为激光场有质动力能(ponderomotive energy), $U_P(eV) = 0.0933I_L(TW cm^{-2})\lambda^2(\mu m^2)$ , 而 $I_L$ 为驱动 场峰值强度。



图 1 高次谐波三步模型示意图 Fig. 1 Illustration of the three-step model of HHG

由高次谐波过程产生的高亮度的相干深紫外及软X射线在超快实验探测上得到了广泛的应用。目前, 光源的发展展现出两个重要的趋势:

其一,通过实验室激光放大器以及光学参量放大器(optical parametric amplifier)产生的高能量长波长激

光脉冲驱动,产生单脉冲高亮度的高光子能量谐波源,可以应用于高分辨率极紫外相干成像<sup>[8-9]</sup>,元素分辨瞬态吸收谱测量<sup>[10-11]</sup>,甚至高脉冲能量可以开创全新的软X射线非线性光学研究<sup>[12]</sup>。根据截止能量公式,可以通过增加激光峰值强度与激发光波长的方式,获得更高能量的高次谐波光子发射。目前,国内外已有许多研究组应用该方法得到"水窗"波段(2.3~4.4 nm, 280~530 eV)的高次谐波辐射。如 2008年, TAKAHASHIEJ等利用中心波长为1.6 μm的超快激光在氦气和氖气高次谐波中分别得到了 300 eV 以及 450 eV 的光子能量<sup>[13]</sup>;2009年,XIONG H等使用中心波长为1.5 μm驱动光,成功将氖气高次谐波光子能量 提升至 420 eV<sup>[14]</sup>;2010年,CHEN M等通过中心波长为1.6 μm的超短脉冲在氦气和氖气高次谐波中分别得 到了 370 eV 以及 520 eV 的光子能量<sup>[15]</sup>;2018年,JOHNSON A S等使用中心波长为1.8 μm的超快激光在氦 气中达到 600 eV 光子能量<sup>[16]</sup>。另外,2012年,美国 Kapteyn-Murnane 研究组的 POPMINTCHEV T等通过 使用 3.9 μm波长驱动光,产生了光子能量高达1.6 keV 的高次谐波辐射<sup>[17]</sup>。

其二,由于高次谐波极紫外光源的光子能量高于气体的电离能以及固体材料的功函数,该光源也非常适用于超快光电子发射实验。而在该类实验中,能量和空间分辨率与发射电子的空间电荷效应(space-charge effect)有着密切的联系,因此要求实验中使用高重频(10 kHz~1 MHz)的极紫外谐波光源。这类实验包括用于研究气体原子分子的COLTRIMS(Cold Target Recoil Ion Momentum Spectrometer)实验与研究凝聚态材料的角分辨光电子能谱(angle-resolved photoemission spectroscopy)和光电子发射显微镜(photoemission electron microscopy)等。在这类实验中,往往需要的仅仅是20~50 eV的极紫外光子能量,单脉冲能量很低,以抑制空间电荷效应,但是要求光源的重频和单位时间通量很高,以提高测量信噪比。2012年,HEYLCM等实现了应用6µJ的低能量激光脉冲激发超过40 eV的高次谐波发射,重频达到100 kHz<sup>[18]</sup>。德国 Jena的LIMPERT J研究组利用其在高重频光纤激光器上的技术成就发展了多种不同能量的高重频高次谐波光源的发展奠定了基础<sup>[22]</sup>。

#### 1.1 阿秒脉冲序列的产生和测量

从上述三步模型的描述可以看出,一个时间宽度较长的线偏振激光脉冲被用于驱动气体中的高次谐波 过程时,这样的三步过程在驱动光的每半个周期都会发生一次。每次过程都会伴随一个亚周期(阿秒)光脉 冲的发射,且时间上是相干的。因此,在该条件下,高次谐波在时间上由一串阿秒脉冲序列构成,脉冲与脉 冲时间间隔为半个驱动光周期。相应地,在频率空间,这样的时间结构对应梳齿状分立的谐波阶次 (harmonic order),阶次与阶次间的能量间隔则为2倍的驱动光光子能量(*hw*<sub>lase</sub>,如图2所示)。每个谐波阶次 的带宽可以很窄(达到meV量级),取决于驱动光脉冲的时间长度,即谐波脉冲序列中的总脉冲数量。





对于这样一种独特的阿秒脉冲序列的时间结构,可以通过双光子干涉阿秒拍频重构(Reconstruction of Attosecond Beating by Interference of Two-photon Transition, RABBITT)的方法测量<sup>[23]</sup>。这种测量方法原理上是利用高次谐波过程所产生的阿秒脉冲序列和驱动激光脉冲共同电离原子。由于相邻两个谐波阶次的能量间隔恰好为驱动光能量的2倍,从而产生如图3所示的四条量子通道连接原子体系的初态和末态。

这里末态对应的是在光电子谱中相邻谐波阶次之间的边带(Sideband,SB)。这样的量子轨道图像可以形象 地和实空间的双缝干涉实验相类比,当研究者调节阿秒脉冲序列与驱动光脉冲之间的时间差(r)时,可以精 细地调节量子通道间的相对相位,从而在末态(边带)的光电子谱中,观察到光电子强度以频率为2倍的驱动 光载波频率振荡。边带强度的振荡可以描述为

$$S(\tau) = A_{f} \cos\left(2\omega_{\text{laser}}\tau + \varphi_{q-1} - \varphi_{q+1} + \Delta\varphi_{\text{atomic}}^{f}\right)$$
(1)



图 3 RABBITT测量过程中的量子通道干涉图像<sup>[23]</sup> Fig. 3 Illustration of the quantum-path interference in RABBITT measurements<sup>[23]</sup>

式中, $A_{f}$ 表示振荡振幅, $\varphi_{q}$ 表示第q阶谐波的相位,而 $\Delta \varphi_{atomic}^{f}$ 表示气体原子势所引起的原子相位。2001年, PAUL P M 等首次利用 RABBITT 技术成功重构了由 800 nm、40 fs激光脉冲在氩气中产生的阿秒脉冲序列 的时间结构<sup>[23]</sup>。实验装置结构如图 4 所示。该工作中测量用的气体原子也选择了氩气原子。原子相位  $\Delta \varphi_{atomic}^{f}$ 通过理论计算获得,并且发现该相位较小。因此,不同阶次边带强度振荡之间的相位差直接对应了 不同阶次谐波之间的相位差,从而使时域波形重构成为了可能。



图 4 RABBIT I 测 重 头 验 装 直 图<sup>[43]</sup> Fig. 4 The experimental setup of RABBITT<sup>[23]</sup>

RABBITT技术在发明之初主要用于对高次谐波脉冲序列的相位以及时间结构进行精密测量。而在 之后的许多实验中,该技术也被广泛应用于对气体原子分子<sup>[24-26]</sup>和固体材料的原子势相位的测量<sup>[27-30]</sup>。正 如式(1)中所示,边带的强度振荡相位中也带有与电离电子在原子势中运动相关的原子相位Δφ<sup>f</sup>atomic。如果 在同一激发过程中,观察到源于两个不同初态的边带振荡并互相作为参考,就可以从实验上测量不同激发 能量以及不同初态发射的原子势相位。在气体原子分子中,该原子势所引起的相位移动通常被理解为由 原子势对光电子的Wigner延时与驱动红外光场所产生的连续态-连续态延时所产生<sup>[24,31-32]</sup>。更有意思的 是,当跃迁通道与气体原子分子中的共振相耦合时,可以从时域上直接探测共振波函数的时域演化过 程<sup>[25]</sup>。而在凝聚态材料中,由于周期性势场以及光电子与其他基态电子间强相互作用,理论理解则变得更 为复杂。

#### 1.2 孤立阿秒脉冲的产生和测量

对于孤立阿秒脉冲的产生,理论上需要使用单周期驱动光驱动高次谐波过程<sup>[33-36]</sup>。与阿秒脉冲序列不同,孤立阿秒脉冲对应了一个连续谱。而在实际实验中,产生单周期驱动光脉冲在技术上十分困难,研究人员提出了多种不同的选通(gating)机制通过脉冲宽度较长(少周期)的驱动激光脉冲产生孤立阿秒脉冲<sup>[34,37]</sup>,包括振幅选通(amplitude gating)<sup>[38-43]</sup>、偏振选通(polarization gating)<sup>[44-49]</sup>、双色场选通(two-color gating)<sup>[50-54]</sup>、双光选通(double optical gating)<sup>[55-60]</sup>,以及空间选通(Noncollinear gating)<sup>[61-66]</sup>等。这些选通方法的基本思路是通过高次谐波辐射的电场强度依赖关系、偏振依赖关系以及波矢匹配关系等从多个光学周期中选择单个周期产生的高次谐波信号,其对应的就是孤立阿秒脉冲。图5显示了2017年GAUMNITZT等通过振幅选通的方式产生并测量了短至43 as的孤立阿秒脉冲,这也是迄今为止报道的最短的孤立阿秒脉冲<sup>[40]</sup>。





对于孤立阿秒脉冲时间结构的测量,最常用的方法是ITATANIJ等在2002年首先提出的阿秒条纹相 机技术(attosecond streaking camera)<sup>[67]</sup>。被高次谐波极紫外或者X射线孤立阿秒脉冲电离气体所得到的电 子在外加强激光场的驱动下会发生偏转和偏斜,其动量和能量都随着阿秒脉冲和激光驱动场之间的时间 延迟而发生变化,并可以通过电子能谱记录。通过分析发射电子的能量随时间延迟的变化关系,可以测量 小于100 as宽度的孤立阿秒脉冲的脉冲宽度和啁啾<sup>[67]</sup>。图6展示了文献[40]中的阿秒条纹相机的实验 架构。

阿秒条纹相机技术的实验架构和 1.1 节中介绍的 RABBITT 测量技术非常类似,唯一的区别是在前者实验中使用了阿秒脉冲序列电离气体原子,而在后者实验中应用的是孤立阿秒脉冲。两种非常类似的实验,却得到了迥异的实验观察结果(如图 7 所示)。然而,经过进一步的实验和理论研究表明,这两种实验方法,即双光子干涉阿秒拍频重构和阿秒条纹相机,所测量的关于阿秒脉冲或者气体原子相位的信息是完全一致的。CATTANEO L 等首先在实验上比较了两种方法的测量时间延迟,发现两者基本测量了相同的时间信息,而在实验技术上双光子干涉阿秒拍频重构技术对于阿秒脉冲啁啾产生的敏感度更小,因而非常适用于测量原子、分子和固体材料的物质相关时间延时<sup>[68]</sup>。进一步系统的理论模拟则在 2019年由 GEBAUER A 等给出<sup>[69]</sup>。如图 7 所示,阿秒条纹相机技术本质上也可以用量子通道干涉现象来解释。当阿秒脉冲的频谱宽度大于一个驱动场光子能量时,可以存在一条 X 射线单



图 6 孤立阿秒脉冲产生及阿秒条纹相机测量的实验架构<sup>[40]</sup> Fig. 6 The experimental setup for isolated-attosecond-pulse generation and attosecond streaking<sup>[40]</sup>



图 7 阿秒条纹相机技术和 RABBITT 测量技术比较<sup>[69]</sup> Fig. 7 Comparison between the attosecond streaking camera and RABBITT<sup>[69]</sup>

量产生频率为驱动光频率的强度振荡,从而得到条纹相机显示的图样。当阿秒脉冲频谱逐渐向阶梯状的脉冲序列频谱变化时,如图8所示,其产生的电子谱干涉图样也逐渐向双光子干涉阿秒拍频重构的结果演化。

与RABBITT测量类似,阿秒条纹相机技术既可以被应用于对孤立阿秒脉冲的时间宽度和啁啾的测量,也可以应用于对气体原子、分子体系和凝聚态材料体系的光电子阿秒动力学过程进行探测。



图8 理论模拟的四种不同极紫外光谱结构下的RABBITT或者阿秒条纹相机光电子能谱随延迟的变化<sup>[69]</sup>

Fig. 8 Simulated photoelectron spectra (color plots) of RABBITT and attosecond streaking camera, corresponding to four different EUV excitation spectra<sup>[69]</sup>

HENTSCHEL M 等第一次用阿秒条纹相机技术测量了氪气电子电离的超快过程,该实验也打开了阿秒探测电子动力学过程的大门<sup>[70]</sup>。而对于凝聚态体系,在2007年,CAVALIERIAL等第一次探测了由金属钨表面被孤立阿秒脉冲激发的光电子在阿秒时间尺度上从表面逃逸的过程,向人们揭示了光电子发射是需要时间的,而不是瞬间完成的<sup>[71]</sup>。

## 2 阿秒角分辨电子能谱探测凝聚态材料阿秒动力学本质

在许多对于凝聚态材料的初期实验研究中,研究者结合孤立阿秒脉冲和电子能谱技术探测了不同物质 材料的阿秒光电子发射延迟。2007年,CAVALIERIAL等首次测量了W(110)的深层能级电子和导带电 子发射时间,发现相比于导带电子,深层能级电子发射时间延迟了~110 as<sup>[71]</sup>。图9展示了通过阿秒条纹相 机技术测量的,从金属钨4f深能级和导带发射出来的光电子的条纹相机图样,并且可以清晰观察到上述时



图9 由阿秒条纹相机技术测量的金属钨深能级电子和导带电子的阿秒光电子发射延迟[71]

Fig. 9 The attosecond photoemission time delay between the W 4f core-level and conduction-band electrons measured by attosecond streaking camera<sup>[71]</sup>

间延迟。而2012年,在对另一种金属 Mg(0001)表面的深能级和价带光电子发射时间的比较实验中, NEPPL S等却意外发现在实验测量精度范围内(~20 as)并不存在这样一种时间延迟<sup>[72]</sup>。2015年,NEPPL S等进一步应用孤立阿秒脉冲的阿秒条纹相机技术,测量了从金属钨中发射的光电子在通过不同原子层的 金属镁覆盖层后的发射延时,揭示了光电子从固体表面发射过程中在时间和空间中运动的细节<sup>[73]</sup>。 2017年,SIEK F等测量了层状材料 WSe<sub>2</sub>中光电子发射时间,并研究了不同元素的不同深层核电子和半导 体价带电子相互间的电子发射时间延迟,第一次发现可能的电子轨道角动量所带来的发射时间延迟<sup>[74]</sup>。近 年来,结合孤立阿秒脉冲和电子能谱技术的阿秒条纹相机技术也在实验技术上得到了进一步提升,其中包 括引入自旋分辨能力<sup>[75]</sup>、高能量分辨和角分辨电子能谱技术<sup>[76]</sup>等。从固体表面发射光电子存在阿秒时间延迟级个问题,在理论学界也一直受到特别关注。理论物理学家们提出了许多不同的理论模型试图解释这样 一个光电子发射延迟,包括引入光电子输运时间<sup>[77-78]</sup>、光电子初态局域化程度<sup>[77,79]</sup>、固体能带效应<sup>[80-81]</sup>等。但 是,与孤立原子的光电子发射过程不同,对于材料中光电子发射时间的延迟的理论解释尤其复杂,需要考虑 复杂能带结构和多体相互作用等的影响。

然而,孤立阿秒脉冲在固体光电子能谱探测中的使用带来了严重困难。孤立阿秒脉冲在能量上对应了 一个很宽的光谱范围(通常 Δ*E*~5 eV),在光电子能谱实验中无法区分单个能带的贡献。因此,在测量材料 导带价带的光电子发射延时时,往往仅能得到由多个能带平均后的结果,无法深入揭示阿秒光电子发射延 迟的物理本质。为了克服这一挑战,在实验中可以使用阿秒脉冲序列以及RABBITT技术测量凝聚态材料 的阿秒光电子发射时间。这一技术改变可以带来以下几个测量优势:1)正如之前所讨论的,RABBITT技术 和阿秒条纹相机技术可以提供相同的光电子动力学信息;2)阿秒脉冲序列对应频谱上窄带且分立的高次谐 波阶次,可以提高能量分辨率至0.1 eV量级,分辨单个能带的光电子发射时间;3)由于能量分辨率的提高, 电子能谱的角分辨能力(即平行动量分辨能力)可以进一步得以实现;4)由于实验中阿秒脉冲序列的使用, 一次实验中可以测量多个不同光子能量的阿秒光电子发射时间,从而提供更加全面的光子能量依赖关系。 在 2015年,LOCHER R 等第一次在固体材料的探测上使用了双光子干涉阿秒拍频重构技术,探测了从 Ag(111)和Au(111)表面发射的光电子时间延迟,并发现可能的光电子发射时间的影响。2016年,TAO Z等进一步 提高了实验的能量分辨率,成功探测了从Ni(111)面单一价带发射的光电子的延迟,并第一次实现了角度 (动量)分辨的阿秒光电子能谱测量<sup>[30]</sup>。

#### 2.1 凝聚态材料能带结构对于阿秒光电子发射延迟的影响

阿秒角分辨电子能谱(Attosecond Angle-Resolved Photoelectron Spectroscopy, Atto-ARPES)实验装置

示意图如图 10 所示。由多个周期的近红外光驱动的高 次谐波阿秒脉冲序列在频谱上覆盖了广泛的极紫外光子 能量,且单个谐波阶次能量宽度约为 150 meV,足够分辨 一些物质材料的单个价带或者导带能谱。通过一个驱动 光路上的半波片,谐波的线性偏振状态也可以被调节,从 而允许进一步利用光电子发射的选择定则<sup>[82-83]</sup>,选择性 地激发光电子从不同初态能带逃逸。结合单阶谐波的高 能量分辨率以及偏振依赖的光电子发射选择定则,研究 者可以分辨单个能带逃逸的光电子的信号。被激发的光 电子能谱则通过一个半球分析器采集,从而提供了角度 (动量)分辨能力。进一步地,可以引入一个p偏振的近 红外光扰动光电子的发射过程,从而通过 RABBITT 测 量方法测量单个能带的光电子发射时间。





图 11 展示了由 Ni(111)表面发射的光电子的 RABBITT 干涉条纹<sup>[30]</sup>。这些数据积分了布里渊区 Γ 点附 近±2.5°的小角度范围,光电子接近垂直发射。根据光电子发射的选择定则,仅有两个带有 A<sub>3</sub>对称性的金属 镍导带被激发(Λ<sup>g</sup><sub>3</sub>和Λ<sup>g</sup><sub>3</sub>)。一个非常重要的现象是,在边带SB16位置,从低能量初态Λ<sup>g</sup><sub>8</sub>能带逃逸的光电子 比Λ<sup>g</sup><sub>3</sub>能带延迟了~200 as。并且,这个时间延迟τ<sub>PE</sub>(Λ<sup>g</sup><sub>3</sub>) - τ<sub>PE</sub>(Λ<sup>g</sup><sub>3</sub>)对于高次谐波激发光的光子能量存在一 种非单调变化的趋势,凸显出某种共振效应。进一步,TAOZ等分析了光电子能谱在相同能量共振所得到 的光电子寿命(lifetime)约为~180 as,与 atto-ARPES的时域测量结果相符。该结果第一次将对凝聚态材料 的阿秒时间域测量结果与光电子寿命这一光电子发射过程本征参数联系在了一起。



图 11 金属镍(111)表面导带电子发射时间延迟的 RABBITT 测量结果<sup>[30]</sup> Fig. 11 The photoemission time delay of the conduction electrons of Ni(111) measured by RABBITT<sup>[30]</sup>

图 12 进一步展示了从 Ni(111) 阿秒光电子延迟  $\tau_{PE}(\Lambda_3^{\beta}) - \tau_{PE}(\Lambda_3^{\beta})$ 随着发射角度和平行表面方向动量的 依赖关系。这里,实验应用了角分辨电子能谱的动量分辨能力。对于在图 11 中显示了能带共振的两个边带 (SB14和 SB16),图 12 的实验数据中展示了时间延迟对于发射角度极强的依赖关系。而这样的依赖关系对 于布里渊区中心  $\Gamma$ 点对称,说明其来源于光电子发射过程中的能带共振效应<sup>[81]</sup>。进一步的模型计算显示,材 料高能量未占据能带  $\Sigma_1$ 的色散可以很好地重现出阿秒时间延迟对角度的依赖关系,尤其是重现了 SB14 结 果的双峰结构(如图 12 所示)。

类似的角度依赖结果也在Cu(111)面上的测量中得到了进一步证实,说明该现象的普适性<sup>[84]</sup>。如图13 所示,从Cu(111)上测量的结果也可以很好地与高能量末态的色散相吻合<sup>[84]</sup>。当使用s偏振的深紫外光激 发Cu(111)表面的光电子发射时,与Ni(111)上结果略有不同的是,实验中除了观测到低能量 $\Lambda_3^{e}$ 初态到未占 据的 $\Sigma_1^{B}$ 末态( $\Lambda_3^{e} \rightarrow \Sigma_1^{B}$ )之间的跃迁之外,也可以观察到强烈的由 $\Lambda_3^{e}$ 初态向 $\Sigma_1^{A}$ 末态的跃迁( $\Lambda_3^{e} \rightarrow \Sigma_1^{A}$ )。而更有 意思的是,当谐波光偏振转换成p偏振后, $\Lambda_3^{e} \rightarrow \Sigma_1^{A}$ 的角度依赖关系消失了。而相应地,光电子能谱本身的角 度色散也被颠倒了,预示着另一个不同的初态( $\Sigma_4$ )被p偏振光所激发。这些结果都展示了固体的价带和导 带阿秒光电子延迟测量的复杂性,证明了单个能带以及共振跃迁对于测量结果的巨大影响,也凸显出在这 类实验中提高能量分辨率对于理解其背后物理本质的重要性。



图 12 金属镍(111)表面光电子发射时间延迟的角度依赖关系<sup>[30]</sup> Fig. 12 The angle-dependence of photoemission time delay from the Ni(111) surface<sup>[30]</sup>



(a) Angle-dependent photoemission time delay from Cu(111) for the SB 16 excited by different polarizations



 $\Sigma^{\prime}$ 

Σ,

Σ,



(c) Static photoelectron spectra expected by s- and p-polarized EUV fields. Different dispersion of the bands is highlighted by the dashed lines

图 13 金属铜(111)表面光电子发射时间延迟的角度依赖关系[84] Fig. 13 The angle-dependence of photoemission time delay from the Cu(111) surface<sup>[84]</sup>

#### 2.2 分辨阿秒尺度的电子-电子碰撞以及屏蔽作用

Atto-ARPES可以精确地测量固体发射光电子延迟随着能量和动量的依赖关系,从而清晰地提供了对这类 现象的物理解释,使实验上有可能从阿秒的时间尺度探究电子-电子相互作用过程,包括碰撞和屏蔽作用等。 2017年, CHENC等通过对比从Ni(111)和Cu(111)发射的光电子不同的能量和角度依赖关系, 第一次对这一问 题进行了研究<sup>[27]</sup>。图 14展示了从不同金属(Ni和Cu)相同能带发射的光电子时间延迟 $\tau_{
m pr}(\Lambda_{s}^{q}) - \tau_{
m pr}(\Lambda_{s}^{q})随着激$ 发光子能量的关系。除了2.1节讨论的共振跃迁影响以外,从金属铜的Λ<sup>®</sup>初态发射的光电子普遍比金属镍同一 能带发射的电子延迟了~100 as,意味着更长的光电子寿命。而该延迟并不能用2.1节所介绍的能带共振跃迁来 理解,因为实验中并没有观察到强烈的角度依赖关系(如图13所示)。进一步,CHENC等比较了实验结果与自由 电子气(Free-Electron Gas, FEG)模型的预测<sup>[85]</sup>,发现金属铜的实验结果可以和模型吻合,而金属镍的结果则显 示光电子寿命偏短。与此形成鲜明对比的是,对费米面以上<3 eV 能量范围的热电子测量显示,金属铜的 d 能带 存在强烈的屏蔽效应会极大延长热电子的寿命<sup>[86-87]</sup>。这一对比也说明,在高能量(>20 eV)光电子发射过程中,由 于电子逃逸时间极短,多电子体系的屏蔽场并没有足够的时间建立,从而电子屏蔽的影响可以忽略。





图 14 金属镍与铜光电子发射延迟的比较[27] Fig. 14 Comparison of attosecond photoemission time delay of Cu(111) and Ni(111)<sup>[27]</sup>

而在更广的能量范围内,CHENC等也进一步将实验结 果与Fermi's Golden Rule(FGR)模拟进行了对比<sup>[27]</sup>。这里, FGR模拟考虑了自旋分辨的电子-电子碰撞散射的过程所造 成的能级跃迁,并使用了随机-k近似。低能量的热电子寿命 是通过时间分辨双光子激发光电子能谱(Time-resolved two-Photon Photoemission, Tr-2PPE)测量的<sup>[88-89]</sup>(如图 15)所示。 通过比较,可以看出金属铜中激光激发的电子寿命在很大-个能量范围内(0.5~40 eV)基本可以用一个相同的库伦矩阵 元(M)来解释(M=1.3)。而对于金属镍,库伦矩阵元则需要 做重大的修正才能分别解释高能和低能光激发电子的寿命。 这样的区别主要可以通过两种金属的不同能带结构来理解。Fig. 15 Broadband lifetime of photo-excited electrons in 由于铜原子比镍原子多一个d电子,其费米面附近的d能带处



- 广谱的金属铜与镍中光激发电子寿命随光子 图 15 能量的变化关系[27]
  - Cu and Ni as a function of photon energy<sup>[27]</sup>

于全满状态,而金属镍处于半满状态,因此在FGR所描述的碰撞过程中,半满的d能带可以带来大量的碰撞 几率,从而降低了金属镍中被激发电子的寿命。这样的描述也与实验结果中,金属镍的电子寿命比金属铜 低许多相吻合(如图15所示)。

## 3 总结与展望

随着阿秒光源与阿秒探测技术的发展,对于凝聚态材料的超快研究也进入到了阿秒的领域。阿秒光源 与传统的凝聚态测量方法(例如角分辨电子能谱)相结合为复杂凝聚态体系电子动力学的探索提供了重要 的支撑。本文首先介绍了高次谐波技术,以及通过高次谐波技术获得单阿秒脉冲及阿秒脉冲序列的方法; 然后介绍了单阿秒脉冲和脉冲序列的时间测量方法,即阿秒条纹相机技术和RABBITT技术;通过比较两 种测量技术的区别,论述了利用两种方法测量凝聚态物质光电子发射阿秒延迟的优劣,并通过发射延迟对 于能量和发射角度(动量)的依赖关系,深入理解电子-电子相互作用在阿秒时间尺度上的新物理。

本文论述了高能量分辨率是探测凝聚态体系阿秒光电子发射延迟的关键,尤其是对于材料价带导带发射光电子过程的探测。因而,在此类实验中为了获得更窄的高次谐波阶次宽度,应当使用较长的驱动光脉冲驱动高次谐波过程,这也是比较反直觉的一点。另一方面,应用可变波长的驱动光产生高次谐波脉冲序列,进行 RABBITT 方法的实验测量,可以在实验上更全面、准确地观察单一能带的光电子阿秒发射时间的 共振现象,揭示其物理本质。这一方法已经在气体原子分子的电离探测实验中得到应用<sup>[90]</sup>。最后,应用自 旋分辨的光电子探测器,可以使上述实验装置具有探测凝聚态阿秒时间尺度的磁动力学能力,为阿秒磁学的研究奠定基础。

#### 参考文献

- SCHMITT F, KIRCHMANN P S, BOVENSIEPEN U, et al. Transient electronic structure and melting of a charge density wave in TbTe<sub>3</sub>[J]. Science, 2008, 321: 1649–1652.
- [2] LUDWIG M, AGUIRREGABIRIA G, RITZKOWSKY F, et al. Sub-femtosecond electron transport in a nanoscale gap[J]. Nature Physics, Springer US, 2020, 16: 341–345.
- [3] KRAUSE J L, SCHAFER K J, KULANDER K C. High-order harmonic generation from atoms and ions in the high intensity regime[J]. Physical Review Letters, 1992, 68: 3535-3538.
- [4] LEWENSTEIN M, BALCOU P, IVANOV M Y, et al. Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields [J]. Physical Review A, 1994, 49: 2117–2132.
- [5] MCPHERSON A, GIBSON G, JARA H, et al. Studies of multiphoton production of vacuum-ultraviolet radiation in the rare gases[J]. Journal of Optical Society of America B, 1987, 4: 595–601.
- [6] POPMINTCHEV T, CHEN M C, ARPIN P, et al. The attosecond nonlinear optics of bright coherent X-ray generation [J]. Nature Photonics, Nature Publishing Group, 2010, 4(12): 822-832.
- [7] CORKUM P B. Plasma perspective on strong-field multiphoton ionization [J]. Physical Review Letters, 1993, 71: 1994– 1997.
- [8] PORTER C L, TANKSALVALA M, GERRITY M, et al. General-purpose, wide field-of-view reflection imaging with a tabletop 13 nm light source[J]. Optica, 2017, 4: 1552–1557.
- [9] SEABERG M D, ZHANG B, GARDNER D F, et al. Tabletop nanometer extreme ultraviolet imaging in an extended reflection mode using coherent Fresnel ptychography[J]. Optica, 2014, 1: 39-44.
- [10] CAO W, WARRICK E R, NEUMARK D M, et al. Attosecond transient absorption of argon atoms in the vacuum ultraviolet region: Line energy shifts versus coherent population transfer[J]. New Journal of Physics, 2016, 18: 13041.
- [11] PERTOT Y, SCHMIDT C, MATTHEWS M, et al. Time-resolved X-ray absorption spectroscopy with a water window high-harmonic source[J]. Science, 2017, 355: 264-267.
- [12] TAKAHASHI E J, LAN P, MÜCKE O D, et al. Attosecond nonlinear optics using gigawatt-scale isolated attosecond pulses[J]. Nature Communications, 2013, 4: 2691.
- [13] TAKAHASHI E J, KANAI T, ISHIKAWA K L, et al. Coherent water window X ray by phase-matched high-order harmonic generation in neutral media[J]. Physical Review Letters, 2008, 101: 253901.
- [14] XIONG H, XU H, FU Y, et al. Generation of coherent X-rays in water window region using a midinfrared pump source [J]. Optics Letters, 2009, 34: 1747–1749.
- [15] CHEN M, ARPIN P, POPMINTCHEV T, et al. Bright, coherent, ultrafast soft X-Ray harmonics spanning the water window from a tabletop light source[J]. Physical Review Letters, 2010, 105: 173901.
- [16] JOHNSON A S, AUSTIN D R, WOOD D A, et al. High-flux soft X-ray harmonic generation from ionization-shaped

few-cycle laser pulses[J]. Science Advances, 2018, 4: eaar3761.

- [17] POPMINTCHEV T, CHEN M C, POPMINTCHEV D, et al. Bright coherent ultrahigh harmonics in the kev X-ray regime from mid-infrared femtosecond lasers[J]. Science, 2012, 336: 1287-1291.
- [18] HEYL C M, GÜDDE J, LHUILLIER A, et al. High-order harmonic generation with μJ laser pulses at high repetition rates[J]. Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics, 2012, 45(7): 074020.
- [19] HÄDRICH S, ROTHHARDT J, KREBS M, et al. Single-pass high harmonic generation at high repetition rate and photon flux[J]. Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics, IOP Publishing, 2016, 49: 172002.
- [20] HÄDRICH S, KLENKE A, ROTHHARDT J, et al. High photon flux table-top coherent extreme-ultraviolet source[J]. Nature Photonics, 2014, 8: 779-783.
- [21] HÄDRICH S, KREBS M, HOFFMANN A, et al. Exploring new avenues in high repetition rate table-top coherent extreme ultraviolet sources[J]. Light: Science and Applications, 2015, 4: e320.
- [22] HEYL C M, ARNOLD C L, COUAIRON A, et al. Introduction to macroscopic power scaling principles for high-order harmonic generation [J]. Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics, IOP Publishing, 2017, 50: 013001.
- [23] PAUL P M, TOMA E S, BREGER P, et al. Observation of a train of attosecond pulses from high harmonic generation [J]. Science, 2001, 292: 1689-1692.
- [24] KLÜNDER K, DAHLSTRÖM J M, GISSELBRECHT M, et al. Probing single-photon ionization on the attosecond time scale[J]. Physical Review Letters, 2011, 106: 143002.
- [25] GRUSON V, BARREAU L, JIMÉNEZ-GALAN, et al. Attosecond dynamics through a Fano resonance: Monitoring the birth of a photoelectron[J]. Science, 2016, 354: 734-738.
- [26] MAIRESSE Y, BOHAN A De, FRASINSKI L J, et al. Attosecond Synchronization of high-harmonic soft X-rays[J]. Science, 2003, 302: 1540-1543.
- [27] CHEN C, TAO Z, CARR A V, et al. Distinguishing attosecond electron-electron scattering and screening in transition metals[J]. Proceedings of the National Academy of Sciences, 2017, 114: E5300-E5307.
- [28] LOCHER R, CASTIGLIONI L, LUCCHINI M, et al. Energy-dependent photoemission delays from noble metal surfaces by attosecond interferometry[J]. Optica, 2015, 2: 405-410.
- [29] LUCCHINI M, CASTIGLIONI L, KASMI L, et al. Light-matter interaction at surfaces in the spatiotemporal limit of macroscopic models[J]. Physical Review Letters, 2015, 115: 137401.
- [30] TAO Z, CHEN C, SZILVÁSI T, et al. Direct time-domain observation of attosecond final-state lifetimes in photoemission from solids[J]. Science, 2016, 353: 62-67.
- [31] DAHLSTRÖM J M, CARETTE T, LINDROTH E. Diagrammatic approach to attosecond delays in photoionization[J]. Physical Review A-Atomic, Molecular, and Optical Physics, 2012, 86: 061402.
- [32] DAHLSTRÖM J M, LINDROTH E. Study of attosecond delays using perturbation diagrams and exterior complex scaling[J]. Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics, 2014, 47: 124012.
- [33] GOULIELMAKIS E, LOH Z H, WIRTH A, et al. Real-time observation of valence electron motion [J]. Nature, Nature Publishing Group, 2010, 466(7307): 739-743.
- [34] CHINI M, ZHAO K, CHANG Z. The generation, characterization and applications of broadband isolated attosecond pulses[J]. Nature Photonics, Nature Publishing Group, 2014, 8: 178–186.
- [35] CHRISTOV I P, MURNANE M M, KAPTEYN H C. High-harmonic generation of attosecond pulses in the "singlecycle" regime[J]. Physical Review Letters, 1997, 78: 1251–1254.
- [36] WANG H, CHINI M, CHEN S, et al. Attosecond time-resolved autoionization of argon[J]. Physical Review Letters, 2010, 105: 143002.
- [37] WANG Hushan, CAO Huabao, PI Liangwen, et al. Research progress of attosecond pulse generation and characterization (Invited)[J]. Acta Photonica Sinica, 2021, 50(1): 0132001.

王虎山,曹华保,皮良文,等.阿秒脉冲产生和测量技术研究进展(特邀)[J].光子学报,2021,50(1):0132001.

- [38] KIENBERGER R, GOULIELMAKIS E, UIBERACKER M, et al. Atomic transient recorder[J]. Nature, 2004, 246: 817-821.
- [39] GOULIELMAKIS E, SCHULTZE M, HOFSTETTER M, et al. Single-cycle nonlinear optics [J]. Science, 2008, 320: 1614-1617.
- [40] GAUMNITZ T, JAIN A, PERTOT Y, et al. Streaking of 43-attosecond soft-X-ray pulses generated by a passively CEP-stable mid-infrared driver[J]. Optics Express, 2017, 25: 27506.
- [41] ZHAN M J, YE P, TENG H, et al. Generation and measurement of isolated 160-attosecond XUV laser pulses at 82 eV[J]. Chinese Physics Letters, 2013, 30: 093201.
- [42] WITTING T, FRANK F, OKELL W A, et al. Sub-4-fs laser pulse characterization by spatially resolved spectral shearing interferometry and attosecond streaking[J]. Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics, 2012,

45:074014.

- [43] TIMMERS H, SABBAR M, KOBAYASHI Y, et al. Polarization assisted amplitude gating as a route to tunable, highcontrast single attosecond pulses[J]. Optica, 2016, 3: 707-710.
- [44] SANSONE G, BENEDETTI E, CALEGARI F, et al. Isolated Single-Cycle Attosecond Pulses [J]. Science, 2006, 314: 443-447.
- [45] SOLA I J, MÉVEL E, ELOUGA L, et al. Controlling attosecond electron dynamics by phase-stabilized polarization gating[J]. Nature Physics, 2006, 2: 319–322.
- [46] RYKOVANOV S G, GEISSLER M, MEYER-TER-VEHN J, et al. Intense single attosecond pulses from surface harmonics using the polarization gating technique[J]. New Journal of Physics, 2008, 10: 025025.
- [47] PLATONENKO V T, STRELKOV V V. Single attosecond soft-X-ray pulse generated with a limited laser beam [J]. Journal of the Optical Society of America B, 1999, 16: 435-440.
- [48] SHAN B, GHIMIRE S, CHANG Z. Generation of the attosecond extreme ultraviolet supercontinuum by a polarization gating[J]. Journal of Modern Optics, 2005, 52: 277–283.
- [49] CHANG Z. Single attosecond pulse and xuv supercontinuum in the high-order harmonic plateau[J]. Physical Review A, 2004, 70: 043802.
- [50] PFEIFER T, GALLMANN L, ABEL M J, et al. Single attosecond pulse generation in the multicycle-driver regime by adding a weak second-harmonic field[J]. Optics Letters, 2006, 31: 975–977.
- [51] OISHI Y, KAKU M, SUDA A, et al. Generation of extreme ultraviolet continuum radiation driven by sub-10-fs twocolor field[J]. Optics Express, 2006, 14: 7230-7237.
- [52] WANG Z, HONG W, ZHANG Q, et al. Efficient generation of isolated attosecond pulses with high beam quality by twocolor Bessel-Gauss beams[J]. Optics Letters, 2012, 37: 238-240.
- [53] LAN P, LU P, CAO W, et al. Isolated sub- 100 as pulse generation via controlling electron dynamics [J]. Physical Review A, 2007, 76: 011402(R).
- [54] ZENG B, YU Y, CHU W, et al. Generation of an intense single isolated attosecond pulse by use of two-colour waveform control[J]. Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics, 2009, 42: 145604.
- [55] ZHAO K, ZHANG Q, CHINI M, et al. Tailoring a 67 attosecond pulse through advantageous phase-mismatch [J]. Optics Letters, 2012, 37: 3891-3893.
- [56] XIANGLIN W, PENG X, JIE L, et al. Isolated attosecond pulse with 159 as duration measured by home built attosecond streaking camera[J]. Chinese Journal of Lasers, 2020, 47: 0415002.
- [57] MASHIKO H, GILBERTSON S, CHINI M, et al. Extreme ultraviolet supercontinua supporting pulse durations of less than one atomic unit of time[J]. Optics Letters, 2009, 34: 3337–3339.
- [58] MASHIKO H, GILBERTSON S, LI C, et al. Double optical gating of high-order harmonic generation with carrierenvelope phase stabilized lasers[J]. Physical Review Letters, 2008, 100: 130906.
- [59] MASHIKO H, JUSTINE BELL M, BECK A R, et al. Tunable frequency-controlled isolated attosecond pulses characterized by either 750 nm or 400 nm wavelength streak fields[J]. Optics Express, 2011, 18: 25887–25895.
- [60] FENG X, GILBERTSON S, MASHIKO H, et al. Generation of isolated attosecond pulses with 20 to 28 femtosecond lasers[J]. Physical Review Letters, 2009, 103: 183901.
- [61] VINCENTI H, QUÉRÉ F. Attosecond lighthouses: how to use spatiotemporally coupled light fields to generate isolated attosecond pulses[J]. Physical Review Letters, 2012, 108: 113904.
- [62] SILVA F, TEICHMANN S M, COUSIN S L, et al. Spatiotemporal isolation of attosecond soft X-ray pulses in the water window[J]. Nature Communications, 2015, 10: 1038.
- [63] HEYL C M, BENGTSSON S N, CARLSTRÖM S, et al. Noncollinear optical gating [J]. New Journal of Physics, 2014, 16: 052001.
- [64] BERTRAND J B, WÖRNER H J, BANDULET H C, et al. Ultrahigh-order wave mixing in noncollinear high harmonic generation[J]. Physical Review Letters, 2011, 106: 023001.
- [65] LOUISY M, ARNOLD C L, MIRANDA M, et al. Gating attosecond pulses in a noncollinear geometry [J]. Optica, 2015, 2: 563-566.
- [66] ZHONG S, HE X, JIANG Y, et al. Noncollinear gating for high-flux isolated-attosecond-pulse generation[J]. Physical Review A, 2016, 93: 033854.
- [67] ITATANI J, QUÉRÉ F, YUDIN G L, et al. Attosecond Streak Camera [J]. Physical Review Letters, 2002, 88: 173903.
- [68] CATTANEO L, VOS J, LUCCHINI M, et al. Comparison of attosecond streaking and RABBITT[J]. Optics Express, 2016, 24: 29060.
- [69] GEBAUER A, NEB S, ENNS W, et al. Equivalence of RABBITT and streaking delays in attosecond-time-resolved photoemission spectroscopy at solid surfaces[J]. Applied Sciences, 2019, 9: 592.

- [70] HENTSCHEL M, KIENBERGER R, SPIELMANN C, et al. Attosecond metrology[J]. Nature, 2001, 414: 509-513.
- [71] CAVALIERI A L, MÜLLER N, UPHUES T, et al. Attosecond spectroscopy in condensed matter.[J]. Nature, 2007, 449: 1029–1032.
- [72] NEPPL S, ERNSTORFER R, BOTHSCHAFTER E M, et al. Attosecond time-resolved photoemission from core and valence states of magnesium[J]. Physical Review Letters, 2012, 109: 087401.
- [73] NEPPL S, ERNSTORFER R, CAVALIERI A L, et al. Direct observation of electron propagation and dielectric screening on the atomic length scale[J]. Nature, 2015, 517: 342-346.
- [74] SIEK F, NEB S, BARTZ P, et al. Angular momentum induced delays in solid-state photoemission enhanced by intraatomic interactions[J]. Science, 2017, 357: 1274-1277.
- [75] FANCIULLI M, VOLFOVÁ H, MUFF S, et al. Spin polarization and attosecond time delay in photoemission from spin degenerate states of solids[J]. Physical Review Letters, 2017, 118: 067402.
- [76] RIEMENSBERGER J, NEPPL S, POTAMIANOS D, et al. Attosecond dynamics of sp-band photoexcitation [J]. Physical Review Letters, American Physical Society, 2019, 123: 176801.
- [77] ZHANG C H, THUMM U. Attosecond photoelectron spectroscopy of metal surfaces [J]. Physical Review Letters, 2009, 102: 123601.
- [78] LEMELL C, SOLLEDER B, TOKÉSI K, et al. Simulation of attosecond streaking of electrons emitted from a tungsten surface[J]. Physical Review A, 2009, 79: 062901.
- [79] KAZANSKY A K, ECHENIQUE P M. One-electron model for the electronic response of metal surfaces to subfemtosecond photoexcitation[J]. Physical Review Letters, 2009, 102: 177401.
- [80] KRASOVSKII E E. Attosecond spectroscopy of solids: Streaking phase shift due to lattice scattering[J]. Physical Review B, 2011, 84: 195106.
- [81] BORISOV A G, SÁNCHEZ-PORTAL D, KAZANSKY A K, et al. Resonant and nonresonant processes in attosecond streaking from metals[J]. Physical Review B, 2013, 87: 121110(R).
- [82] HÜFNER S. Photoelectron spectroscopy: principles and applications [M]. 3rd. edition, Springer-Verlag, Berlin Heidelberg, 2003.
- [83] HERMANSON J. Final-state symmetry and polarization effects in angle-resolved photoemission spectroscopy[J]. Solid State Communications, 1977, 22(1): 9–11.
- [84] SHI X, LIAO C T, TAO Z, et al. Attosecond light science and its application for probing quantum materials[J]. Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics, IOP Publishing, 2020, 53: 184008.
- [85] ECHENIQUE P M, PITARKE J M, CHULKOV E V, et al. Theory of inelastic lifetimes of low-energy electrons in metals[J]. Chemical Physics, 2000, 251: 1-35.
- [86] CAMPILLO I, PITARKE J M, RUBIO A, et al. Inelastic lifetimes of hot electrons in real metals[J]. Physical Review Letters, 1999, 83: 2230-2233.
- [87] LADSTÄDTER F, HOHENESTER U, PUSCHNIG P, et al. First-principles calculation of hot-electron scattering in metals[J]. Physical Review B, 2004, 70: 235125.
- [88] BAUER M, MARIENFELD A, AESCHLIMANN M. Hot electron lifetimes in metals probed by time-resolved two-photon photoemission[J]. Progress in Surface Science, 2015, 90: 319-376.
- [89] KNORREN R, BENNEMANN K H, BURGERMEISTER R, et al. Dynamics of excited electrons in copper and ferromagnetic transition metals: Theory and experiment[J]. Physical Review B, 2000, 61: 9427–9440.
- [90] SCHOUN S B, CHIRLA R, WHEELER J, et al. Attosecond pulse shaping around a cooper minimum [J]. Physical Review Letters, 2014, 112: 153001.

Foundation item: National Natural Science Foundation of China (No. 11874121), Shanghai Municipal Science and Technology Basic Research Project (No. 19JC1410900)