阿秒电子显微术

Dandan Hui†、Husain Alqattan†、Mohamed Sennary、Nikolay V. Golubev 和 Mohammed Th. Hassan*。

美国亚利桑那州图森市亚利桑那大学物理系，邮编 85721

*通讯作者。电子邮箱：mohammedhassan@arizona.edu
†这些作者对本研究的贡献相同。

摘要：

电子在原子和分子中的运动，是原子核之外自然界所有现象的核心。近年来，人们开

了解

正文：

过去二十年来，基于强场相互作用和高次谐波产生（HHG）过程的阿秒极紫外（

测量获得

自身的时间尺度上冻

。

在本研究中，我们通过光学门控（*18, 37*）生成了单个阿秒电子脉冲，并利用偏振门控的半周

阿秒显微术：生成单个阿秒电子脉冲

阿秒显微术（装置如图 1A 所示）通过光学门控方法在电子显微镜内部产生单个阿秒

该过程此前已用于产生单个孤立的阿秒极紫外脉冲（*38, 39*）——从而产生偏振门控激光

择铝作为门控介质，是

石墨烯中量子电子运动的成像

此前已有研究考察了石墨烯中的光诱导电流和超快载流子动力学（*42-44*）。这些动

在强光场下，石墨烯中会产生两种电子动力学（图 2A）：（i）由价带（VB）与导

动动力学。

在我们的实验中，驱动场的场强估计为 ~2.5 V/nm，并将光学门脉冲（OGP）设为较低功

分辨阿秒电子衍射结果——如 SM 第 IV 节所述，扣除暗场衍射图样（位于 = -1 fs）后——

此外，图 2C-E 中测得的衍射峰振荡携带了电场诱导的实空间电子运动的特征。为了

$$i\hbar\frac{\partial}{\partial t}\rho_{m,n}(k,t) = \left(E_m(k_t) - E_n(k_t)\right)\rho_{m,n}(k,t)$$
$$+E(t)\cdot\{D(k_t),\rho(k,t)\}_{m,n} - i\frac{1-\delta_{m,n}}{T_d}\rho_{m,n}(k,t), \qquad (1)$$

其中， 为施加的电场， $_{m,n}(k,t)$ 矩阵$\rho(k,t)$ 的矩阵元， ( ) 为能带的能量，

$$k_t = k + {}^{e}/_{\hbar} A(t),$$

(2)

其中，是电子在与施加的矢势$A(t)$ $-\int dt' E(t')$ $-\infty$ 相互作用之前的波矢。值得注意

计算得到的密度矩阵 $\rho(k,t)$ 于探测石墨烯的可观测性质，例如电子电流 $J(t)$ 和实空

可以分解为非相

因此，我们计算了带内和带间电流，并按照补充材料（第 VI 节）所述，将其拟合到图

此外，我们在不同场强下进行了阿秒衍射测量（SM，第 VII 节）。结果表明，平均衍射

图 2C-E 所示的实验结果为所开展的模拟研究指明了方向，以研究倒易空间和实空间中的

随时间演化的倒易空间动力学（如图 3B 所示）。起初，在场到达时（ =1 飞秒），激发

其次，通过量子力学模拟，我们获得了石墨烯碳原子周围实空间中的电子运动动力学。

度差局域化程度差异迁

此外，我们的模拟能够将计算得到的带内和带间动力学进行分解，从而解耦它们对石

这解释了我们在图2C-E的衍射测量中观察到的散射电子强度振荡。此外，我们还计算并

本研究展示了在透射电子显微镜中利用阿秒电子脉冲实现的阿秒成像分辨率，并建立

而推动材料

参考文献和注释

1. F. Krausz, 《运动中的电子：阿秒物理学探索最快的动力学》。（World Scientific Publishing Company Pte. Limited，2019）。2. P. Corkum、F. Krausz，阿秒科学。《自然·物理》**3**，381-387（2007）。3. F. Krausz、M. Ivanov，阿秒物理学。《现代物理评论》**81**，163 （ 2009 ）。4. F. Calegari 、 D. Ayuso 、 A. Trabattoni 、 L. Belshaw 、 S. De Camillis、S. Anumula、F. Frassetto、L. Poletto、A. Palacios、P. Decleva、J. B. Greenwood、F. Martín、M. Nisoli，阿秒脉冲引发的苯丙氨酸超快电子动力学。*Science* **346**，336 339 2014-（）。5. G. Sansone、F. Kelkensberg、J. Pérez-Torres、F. Morales、M. F. Kling、W. Siu、O. Ghafur、P. Johnsson、M. Swoboda、E. Benedetti，分子光电离后电子局域化。*Nature* **465**，763-766（2010）。6. F. Calegari、G. Sansone、S. Stagira、C. Vozzi、M. Nisoli，阿秒科学进展。《物理学杂志*B*：原子、分子与光学物理》 **49**，062001（2016）。7. D. Hui、H. Alqattan、S. Yamada、V. Pervak、K. Yabana、M. T. Hassan，电介质中的阿秒电子运动控制。《自然·光子学》 **16**，33-37（2022）。8. H. Alqattan、D. Hui、M. Sennary、M. T. Hassan，电介质材料中的阿秒电子延迟响应。《法拉第讨论》，（2022）。9. B. Wolter、M. G. Pullen、A.-T. Le、M. Baudisch、K. Doblhoff-Dier、A. Senftleben、M. Hemmer、C. D. Schröter、J. Ullrich、T. Pfeifer、R. Moshammer、S. Gräfe、O. Vendrell、C. D. Lin、J. Biegert，双电离乙炔化学键断裂的超快电子衍射成像。*Science* **354**，308-312（2016）。10. J. Duris、S. Li、T. Driver、E. G. Champenois、J. P. MacArthur、A. A. Lutman、Z. Zhang、P. Rosenberger、J. W. Aldrich、R. Coffee，来自自由电子激光器的可调谐孤立阿秒X射线脉冲，峰值功率达吉瓦级。《自然·光子学》 **14**，30-36（2020）。11. M. Garg、K. Kern，隧穿显微术中电子的阿秒相干操控。*Science* **367**，411-415。（2020）。12. A. H. Zewail，四维超快电子衍射、晶体学与显微术。《物理化学年度评论》 **57**，65-103（2006）。13. K. Amini、J. Biegert，载于《原子、分子与光学物理学进展， L. F. Dimauro、H. Perrin、S. F. Yelin 编。（Academic Press，2020），第69卷，第163-231页。14. J. Yang、X. Zhu、J. P. F. Nunes、K. Y. Jimmy、R. M. Parrish、T. J. Wolf、M. Centurion、M. Gühr、R. Li、Y. Liu，通过超快电子衍射同时观测核与电子动力学。*Science* **368**，885-889（2020）。15. R. J. D. Miller，利用超亮电子和X射线开展飞秒晶体学：捕捉化学反应过程。*Science* **343**，1108-1116（2014）。16. A. H. Zewail，四维电子显微术。*Science* **328**，187-193（2010）。17. L. Ma、H. Yong、J. D. Geiser、A. Moreno Carrascosa、N. Goff、P. M. Weber，自由分子的超快X射线与电子散射：比较评估。《结构动力学》 **7**，034102 2020（）。18. M. T. Hassan、J. S. Baskin、LiaoB、A. H. Zewail，用于成像超快电子动力学的高时间分辨率电子显微术。《自然·光子学》**11**，425-430 （ 2017 ）。19. M. T. Hassan，阿秒显微术：从飞秒到阿秒电子显微术。《物理学杂志*B*：原子、分子与光学物理》 **51**，032005（2018）。20. B. E. Warren，《X射线衍射》。（Courier Corporation，1990）。

21. H. Ihee, V. A. Lobastov, U. M. Gomez, B. M. Goodson, R. Srinivasan, C.-Y. Ruan, A. H. Zewail，以超快衍射直接成像瞬态分子结构。*Science* **291**, 458-462 (2001). 22. B. J. Siwick, J. R. Dwyer, R. E. Jordan, R. D. Miller，利用飞秒电子衍射观察熔化过程的原子级图像。*Science* **302**, 1382-1385 (2003). 23. R. Ernstorfer, M. Harb, C. T. Hebeisen, G. Sciaini, T. Dartigalongue, R. D. Miller，温稠密物质的形成：金中电子键硬化的实验证据。*Science* **323**, 1033-1037 (2009). 24. R. P. Chatelain, V. R. Morrison, C. Godbout, B. J. Siwick，利用射频压缩电子脉冲进行超快电子衍射。*Appl. Phys. Lett.* **101**, 081901 (2012). 25. M. Gao, C. Lu, H. Jean-Ruel, L. C. Liu, A. Marx, K. Onda, S.-y. Koshihara, Y. Nakano, X. Shao, T. Hiramatsu，利用超亮电子绘制导致电荷离域的分子运动。*Nature* **496**, 343-346 (2013). 26. T. Van Oudheusden, P. Pasmans, S. Van Der Geer, M. De Loos, M. Van Der Wiel, O. Luiten，压缩亚相对论、空间电荷主导的电子束团，实现单次飞秒电子衍射。*Phys. Rev. Lett.* **105**, 264801 (2010). 27. V. R. Morrison, R. P. Chatelain, K. L. Tiwari, A. Hendaoui, A. Bruhács, M. Chaker, B. J. Siwick，超快电子衍射揭示光诱导的单斜相 VO2 类金属相。*Science* **346**, 445-448 (2014). 28. A. Feist, K. E. Echternkamp, J. Schauss, S. V. Yalunin, S. Schäfer, C. Ropers，超快透射电子显微镜中的量子相干光学相位调制。*Nature* **521**, 200-203 (2015). 29. J. Yang, X. Zhu, T. J. Wolf, Z. Li, J. P. F. Nunes, R. Coffee, J. P. Cryan, M. Gühr, K. Hegazy, T. F. Heinz，利用超快电子衍射成像 CF3I 的圆锥交叉与光解离动力学。*Science* **361**, 64-67 (2018). 30. M. R. Otto, L. P. René de Cotret, M. J. Stern, B. J. Siwick，解决微波压缩超快电子衍射仪器中的抖动问题：稳健的亚 50 fs 腔体-激光相位稳定。《结构动力学》 **4**, 051101 (2017). 31. K. E. Priebe, C. Rathje, S. V. Yalunin, T. Hohage, A. Feist, S. Schäfer, C. Ropers，超快透射电子显微术中的阿秒电子脉冲列与量子态重构。《自然·光子学》 **11**, 793-797 (2017). 32. Y. Morimoto, P. Baum，利用阿秒电子脉冲列进行衍射与显微术。《自然·物理》 **14**, 252-256 (2018). 33. A. Ryabov, J. W. Thurner, D. Nabben, M. V. Tsarev, P. Baum，连续束透射电子显微镜中的阿秒计量。*Science advances* **6**, eabb1393 (2020). 34. H. W. Kim, N. A. Vinokurov, I. H. Baek, K. Y. Oang, M. H. Kim, Y. C. Kim, K.-H. Jang, K. Lee, S. H. Park, S. Park，迈向无抖动超快电子衍射技术。《自然·光子学》 **14**, 245-249 (2020). 35. M. Kozák, J. McNeur, K. Leedle, H. Deng, N. Schönenberger, A. Ruehl, I. Hartl, J. Harris, R. Byer, P. Hommelhoff，以亚光学周期精度对自由电子进行光学选通和条纹测量。*Nat. Commun.* **8**, 14342 (2017). 36. C. M. S. Sears, E. Colby, R. Ischebeck, C. McGuinness, J. Nelson, R. Noble, R. H. Siemann, J. Spencer, D. Walz, T. Plettner, R. L. Byer，阿秒电子束团列的产生与表征。*Phys. Rev. Accel. Beams* **11**, 061301 (2008). 37. M. T. Hassan, H. Liu, J. S. Baskin, A. H. Zewail，四维超快电子显微术中的光子选通。*Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.* **112**, 12944-12949 (2015).

38. G. Sansone, E. Benedetti, F. Calegari, C. Vozzi, L. Avaldi, R. Flammini, L. Poletto, P. Villoresi, C. Altucci, R. Velotta, S. Stagira, S. De Silvestri, M. Nisoli，孤立的单周期阿秒脉冲。*Science* **314**, 443 (2006). 39. M. Nisoli, G. Sansone，阿秒科学的新前沿。*Prog. Quantum. Electron.* **33**, 17-59 (2009). 40. M. I. Stockman，纳米等离激元学：过去、现在与未来展望。*Opt. Express* **19**, 22029 22106 2011- ( ). 41. G. M. Vanacore, G. Berruto, I. Madan, E. Pomarico, P. Biagioni, R. Lamb, D. McGrouther, O. Reinhardt, I. Kaminer, B. Barwick，通过手性等离激元近场超快生成并调控电子涡旋束。*Nature materials* **18**, 573-579 (2019). 42. T. Higuchi, C. Heide, K. Ullmann, H. B. Weber, P. Hommelhoff，石墨烯中的光场驱动电流。*Nature* **550**, 224-228 (2017). 43. T. Boolakee, C. Heide, A. Garzón-Ramírez, H. B. Weber, I. Franco, P. Hommelhoff，光场对真实和虚电荷载流子的调控。*Nature* **605**, 251-255 (2022). 44. M. Baudisch, A. Marini, J. D. Cox, T. Zhu, F. Silva, S. Teichmann, M. Massicotte, F. Koppens, L. S. Levitov, F. J. García de Abajo，石墨烯中狄拉克费米子的超快非线性光学响应。*Nat. Commun.* **9**, 1-6 (2018). 45. E. McCann, M. Koshino，双层石墨烯的电子性质。*Rep. Prog. Phys.* **76**, 056503 (2013). 46. J. Krieger, G. Iafrate，均匀电场中布洛赫电子的时间演化。*Physical Review B* **33**, 5494 (1986). 47. C. Liu, Y. Zheng, Z. Zeng, R. Li，石墨烯中高次谐波产生对驱动激光椭圆率的依赖。*Phys. Rev. A* **97**, 063412 (2018). 48. H. Alqattan, D. Hui, V. Pervak, M. T. Hassan，阿秒光场合成。*APL Photonics* **7**, 041301 (2022).

致谢：

本项目部分由戈登与贝蒂·摩尔基金会向 M. Hassan 提供的 GBMF7938号资助资助。此外，本材料基于空军科学研究办公室在 FA9550-19-1-0025号资助项下部分支持的工作。我们还感谢 W.M. Keck基金会通过向 M.Th.H.颁发科学与工程奖支持本项目。此外，N.V.G.感谢由苏黎世联邦理工学院管理的 Branco Weiss Society in Science奖学金提供的支持。

作者贡献：

D.H.、H.A. 和 M.Th.H. 搭建了阿秒电子显微术实验装置。D.H.、H.A.、M.S. 和 M.Th.H. 开展了实验并分析了数据。N.V.G. 建立了理论模型并进行了数值模拟。M.Th.H. 构思、监督并指导了这项研究。所有作者均讨论了研究结果及其解读，并撰写了手稿。

图和图注

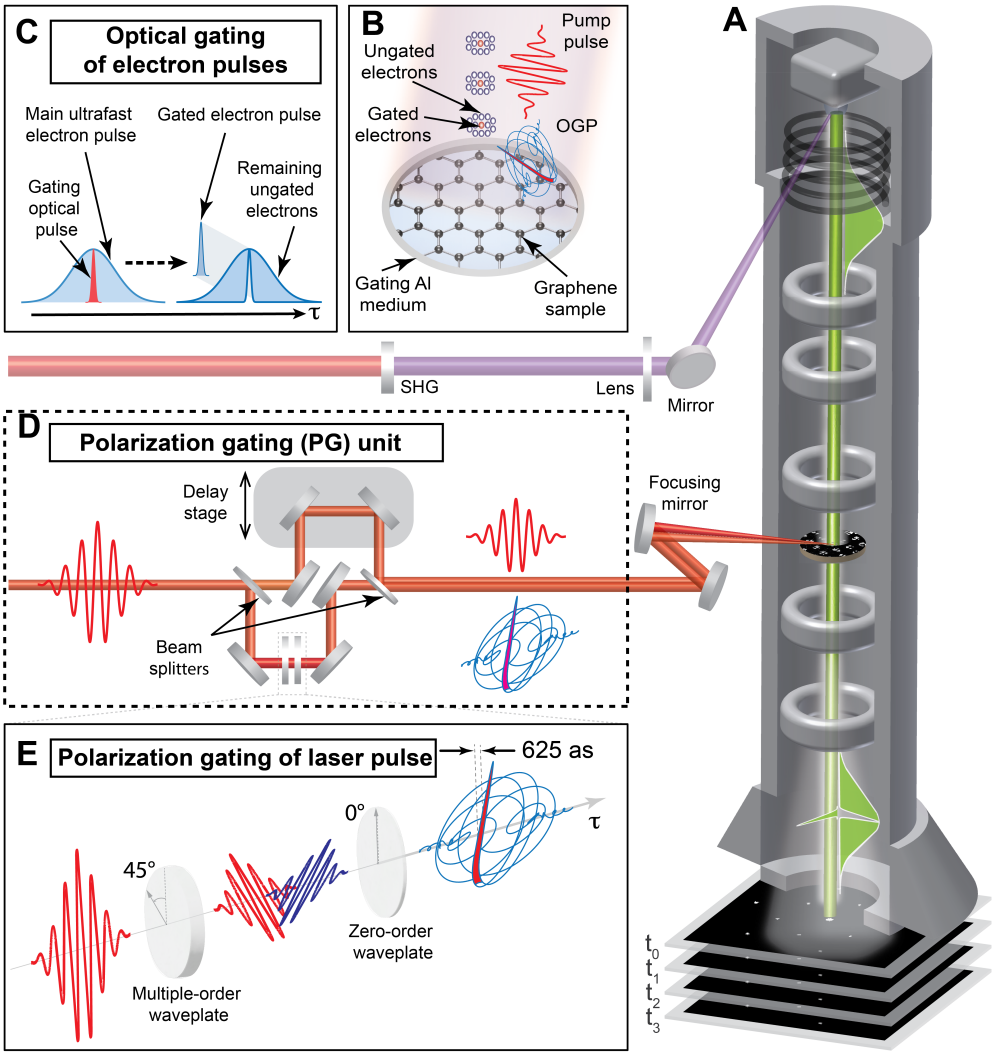

图 1。 阿秒显微术与阿秒电子脉冲的生成。 **A**，阿秒显微术装置。 **B**，样品上方门控介质（铝网格）中电子与激光脉冲相互作用的示意图。 **C**，利用光学激光脉冲对超快电子脉冲进行光学门控的基本原理。门控时间窗口和所生成门控电子的持续时间与激光脉冲持续时间相近。 **D**，偏振门控（PG）装置示意图。在 PG 中，一个 5 fs 激光脉冲经由分束器分成两束。第一束光经安装在纳米精度延迟台上的两面反射镜反射后，被送入显微镜。这束光用作泵浦脉冲，触发所研究系统中的电子运动。第二束光经历偏振门控过程，如 e 中所示。在此过程中，输入的线偏振激光脉冲依次通过设置为 45 度和 0 度的多级波片和零级波片。生成的脉冲在中间具有半周期线偏振场，在边缘具有圆偏振场。该脉冲用作显微镜内电子的光学门控脉冲（OGP）。OGP 光束被导向样品位置，在此发生电子门控并生成阿秒电子脉冲（AEP）。AEP 用于探测泵浦脉冲触发的样品中电子运动。通过记录一系列图像（直接成像/衍射），可以获得电子运动过程的动态影像。

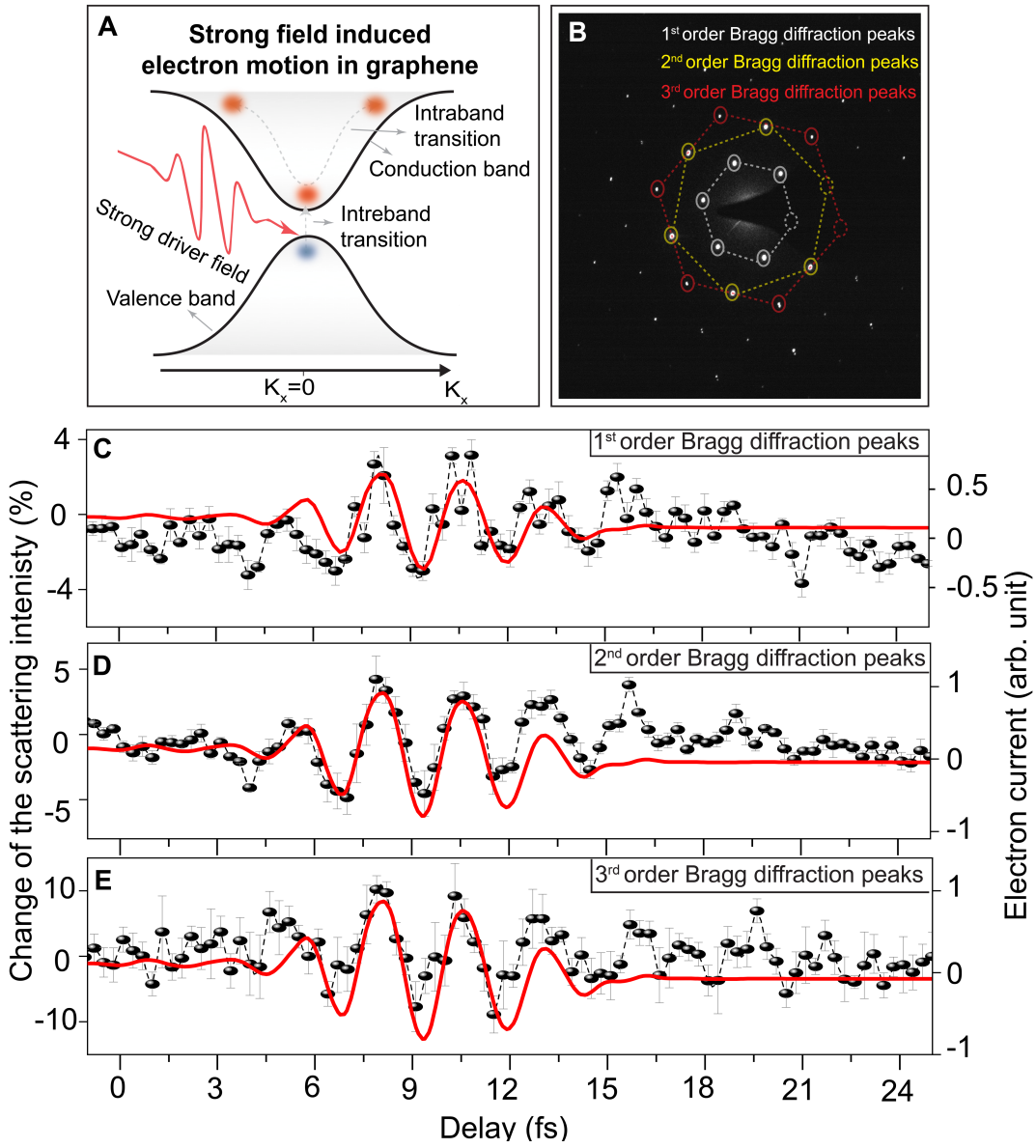

图 2。 石墨烯中电子运动动力学的阿秒电子衍射成像。A，石墨烯中强光场驱动电子运动机制的示意图。**B**，多层石墨烯样品的电子衍射图样。白色、黄色和红色虚线分别表示第 1、第 2 和第 3 阶衍射峰。**C-E**，1st、2nd和3rd阶衍射峰随时间演化的反演平均散射强度变化以黑点表示，并由黑色虚线连接。误差棒表示 7 次扫描所得相对散射峰强度的标准差不确定度。拟合计算得到的石墨烯中场诱导电子电流以红色实线表示。拟合曲线与测得的衍射强度振荡吻合良好。

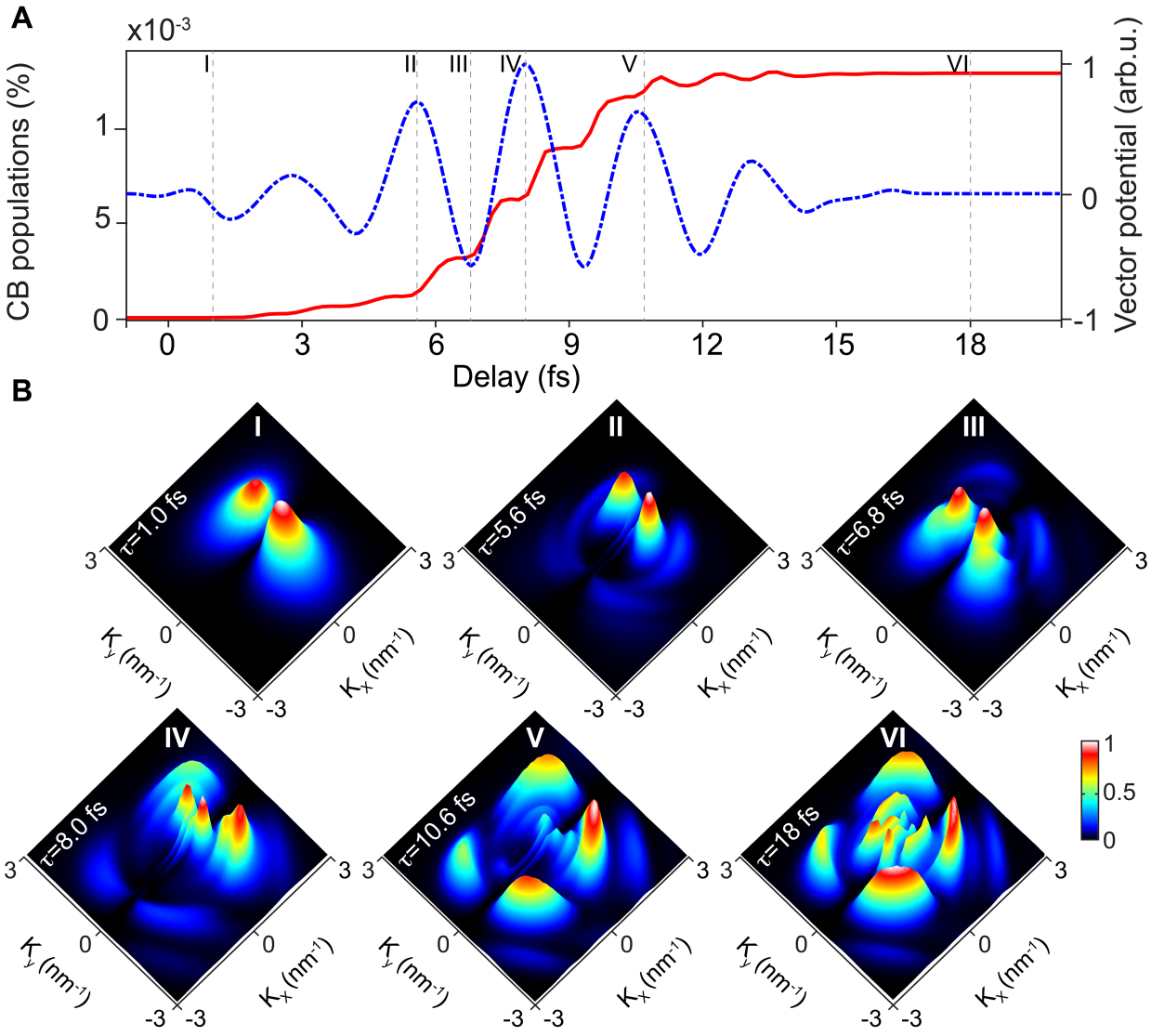

图 3。 光场诱导的石墨烯倒易空间中的电子运动动力学。 **A**，绘出了计算所得的导带总电子布居动力学（红色实线），并与驱动场的矢势（蓝色虚线）进行对比。**B(I-VI)**，展示了驱动场作用期间及其结束后不同时间点的电子密度分布快照（时间点由 A 中的灰色虚线标示）。为更清晰地显示电子密度分布，每张快照均以 BVI 中的快照为基准进行归一化（归一化因子标注在右侧插图中）。

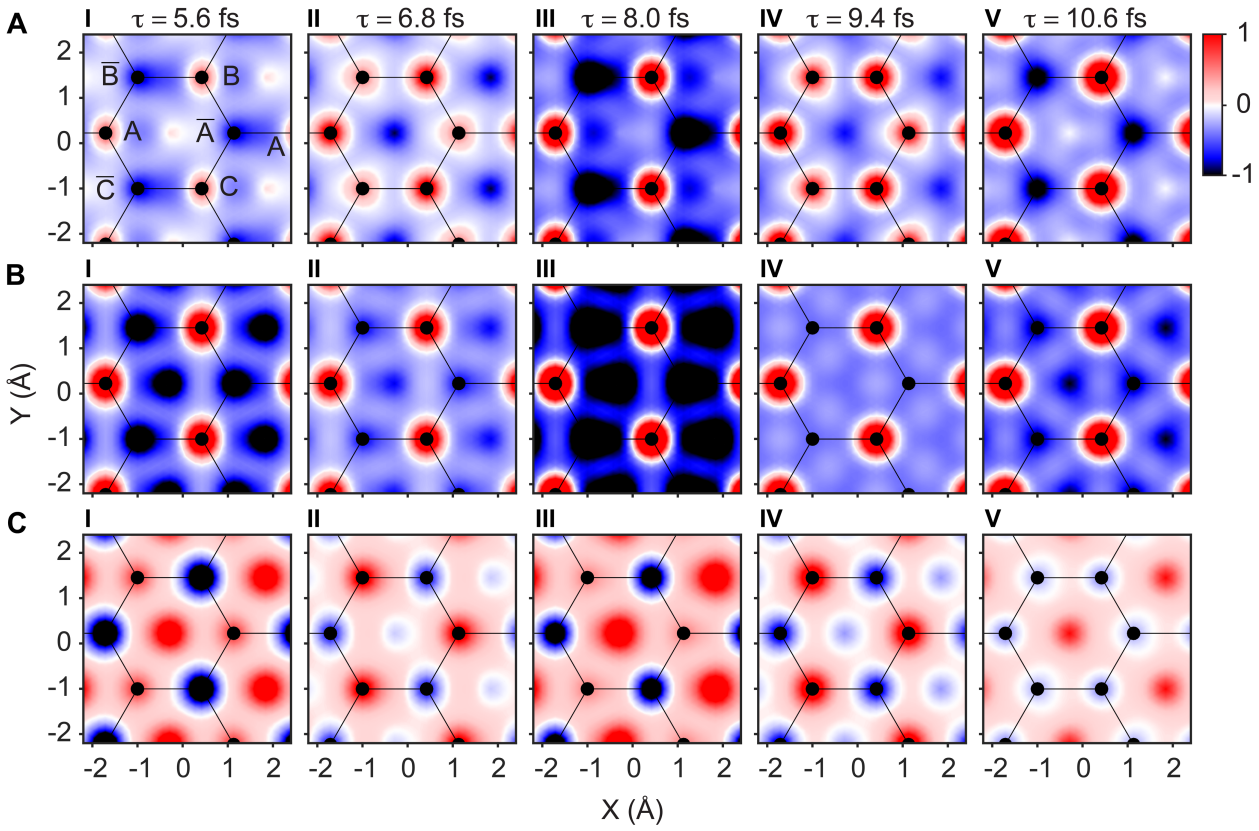

图4。 实时与空间中的石墨烯电子运动动力学。A(I-V)，不同时间点外场诱导电子运动的快照。这些快照展示了实空间中石墨烯碳原子周围及碳原子之间不同时间点的电子密度分布（EDD）变化——即减去外场到达前平衡态下的密度。红色、蓝色和白色分别表示EDD的高值（正值）、低值（负值）和零值。**B(I-V)**，仅由带内动力学引起的相应EDD动力学快照。EDD的变化主要发生在碳—碳原子之间。**C(I-V)**，由带间动力学引起的实空间EDD动力学。EDD强度以交替方式在碳原子周围局部发生变化。