



固体超快电子动力学的研究进展

黄思晨, 严蕾*, 张正龙*

陕西师范大学物理学与信息技术学院, 西安 710119

*联系人, 严蕾, E-mail: yanlei@snnu.edu.cn; 张正龙, E-mail: zlzhang@snnu.edu.cn

收稿日期: 2024-08-26; 接受日期: 2024-12-02; 网络出版日期: 2024-12-13

国家自然科学基金(编号: U22A6005, 12474389)、陕西省杰出青年基金(编号: 2024JC-JCQN-07)和陕西省科学技术协会青年人才托举计划项目(编号: 20240507)资助

摘要 物质的微观结构及内部电子的超快过程从根本上决定了其宏观物理性质及潜在应用. 因此, 深入研究电子的超快动力学对于揭示物质性质及状态变化起着至关重要的作用. 本文专注于阿秒科学的关键领域——固体中的超快电子动力学, 基于阿秒瞬态光谱技术和含时密度泛函理论, 概述了固体中电子激发、电子注入及电子屏蔽等超快动力学过程的研究进展, 最后对固体超快电子动力学的未来发展趋势进行了展望.

关键词 超快电子动力学, 电子激发, 电子注入, 电子屏蔽

PACS: 87.15.ht, 33.20.Xx, 31.15.ee, 32.80.-t

1 引言

电子、激子、极化子等粒子和准粒子的超快动力学是决定固体材料宏观物理性质和功能的关键. 这些超快动力学过程均发生在亚飞秒时间尺度上, 对材料的导电性、超导性、磁性及光电响应等关键特性起着决定性作用^[1,2]. 深入探索超快电子动力学过程对揭示微观量子世界的基本物理规律、开发新一代的电子器件、推动量子通信以及实现化学反应的精准控制等有着重大意义. 但是由于电子动力学的固有时间尺度位于阿秒量级, 传统的测量技术难以捕捉这些瞬态现象, 迫切需要具有超高时间和空间分辨率的测量技术^[3].

超快时间下多种粒子的非平衡动力学行为非常复杂, 通常多种行为共同发生, 超快尺度下的物理图像与

平衡态下的物理图像通常是不同的. 例如, 在光激发下, 半导体内部的电子被激发, 从价带跃迁到导带而进入非平衡状态. 随后, 会发生载流子的热化, 冷却和复合过程, 并伴随能量分布和转移^[4]. 光激发半导体, 产生电子空穴对即载流子. 随后在飞秒至皮秒的时间尺度内, 载流子经历弛豫过程, 包括电子-电子相互作用, 自旋轨道耦合, 以及电子-声子等相互作用, 将从光子获得的能量转移^[5]. 当载流子经历充分弛豫后, 能量分布达到热平衡状态, 使得热载流子满足费米-狄拉克统计. 在更长的时间尺度即皮秒到纳秒, 导带中电子回落价带与空穴复合, 可能发生辐射复合发射光子以及非辐射复合^[4]. 超快泵浦-探测技术能够在极短的时间尺度内捕捉到快速动态过程, 使时间尺度为飞秒甚至阿秒量级的超快动力学过程的探测成为可能.

引用格式: 黄思晨, 严蕾, 张正龙. 固体超快电子动力学的研究进展. 中国科学: 物理学 力学 天文学, 2025, 55: 214212

Huang S C, Yan L, Zhang Z L. Research progress on ultrafast electron dynamics in solids (in Chinese). Sci Sin-Phys Mech Astron, 2025, 55: 214212, doi: 10.1360/SSPMA-2024-0351

超快尺度下会出现一些有趣的物理现象, 如激光诱导的非平衡相变和退磁现象等^[6-8], 这些现象在平衡态下是不会出现的. 科学家已经观察到超快激光诱导下, 二氧化钒(VO_2)会发生 M1-VO_2 到 R-VO_2 的超快结构相变以及绝缘体-金属相变^[9]. Hu等人^[8]通过超快时间分辨的电子衍射技术观察到超快激光在相变材料GeTe中诱导的菱方-立方相变. Beaurepaire等人^[10]利用超快激光激发镍薄膜, 首次发现了脉冲激光诱导的超快退磁现象. 盛志高团队^[6]研究了超快激光激发下单层巡游铁磁体 Fe_3GeTe_2 发生的两步超快退磁过程. 阿秒技术以及含时密度泛函理论(TDDFT)为研究超快尺度下的动力学过程提供了新的可能性.

阿秒光脉冲是指脉冲宽度在阿秒($1 \text{ as} = 10^{-18} \text{ s}$)量级的光脉冲, 其产生方法获得了2023年的诺贝尔物理学奖, 这一成就引起了广泛关注. 伴随阿秒光脉冲而诞生的阿秒科学, 为在极端时间尺度实现对电子探测提供了可能. 基于阿秒光脉冲的测量技术主要有: 阿秒条纹相机(ACS)、双光子干涉阿秒拍频重构技术(RABBITT)、阿秒角分辨光电子能谱(atto-ARPES)和阿秒瞬态吸收/反射光谱(ATAS/ATRS)^[11,12]. 这些技术已经成功用于探索原子、分子以及固体的超快电子动力学过程, 推进了人们对电子动力学的认识^[2,13,14].

理论方面, TDDFT是模拟超快电子激发态动力学的第一性原理计算方法. 该方法是基于含时Kohn-Sham方程, 可以直接在非微扰的情况下提供电子波函数的时域演化动力学^[15]. 通过引入电磁场的长度规范和速度规范, 该方法的适用范围从低维结构拓展到固体材料, 实现了对大规模、真实凝聚态体系的电子动

力学的精确模拟. 这种方法的数值实现大多基于平面波、实空间网格点、数值原子轨道基等, 可以模拟电子在实空间与动量空间的动力学过程, 从而为固体中超快电子动力学的研究提供有力的工具^[15,16]. TDDFT计算过程中会使用到赝势文件. 科学家考虑到原子的最内壳层电子被原子核束缚得非常紧, 相对于外层电子来讲可以认为是不活跃的电子, 从而可以考虑将其作为原子核的屏蔽电子, 与原子核一起形成所谓赝势^[17]. 影响材料特性的电子主要是价电子, 在超快时间尺度下, 内层电子的改变可以忽略, 所以赝势的改变可以被忽略. 因此, 尽管赝势不变, TDDFT计算得到的结果依然可以模拟实验.

本文系统地阐述了固体中超快电子动力学的前沿研究. 基于阿秒瞬态光谱技术和含时密度泛函理论, 介绍了固体中电子激发、电子注入以及电子屏蔽等超快动力学过程的研究进展, 并且对固体超快电子动力学的未来发展趋势进行了展望.

2 电子激发动力学

电子激发动力学过程广泛存在于各种光物理和光化学过程中, 对太阳能转化、光电器件等应用有重要的意义^[18-20].

瞬态吸收光谱是研究电子激发动力学的有力实验手段, 可以捕获电子在极端时间尺度上的动态变化. Zürich等人^[21]使用超快瞬态吸收光谱直接观察了锗纳米晶体薄膜中的超快电子和空穴激发动力学过程. 实验装置如图1(a), 使用近红外(NIR)脉冲激发晶体薄膜,

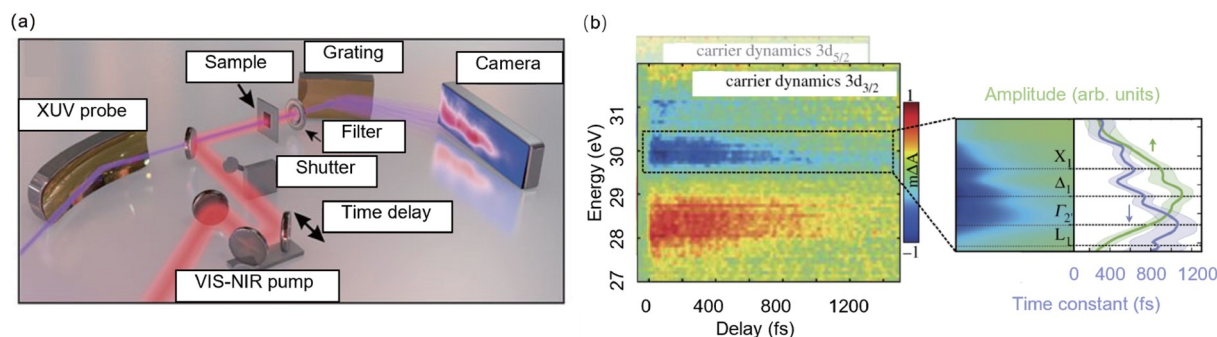


图 1 (网络版彩图) (a) XUV瞬态吸收实验装置图. (b) 由此获得的锗纳米晶体的载流子动力学以及载流子寿命与能量的关系^[21,22]

Figure 1 (Color online) (a) Experimental apparatus of the XUV transient absorption experiment. (b) Carrier dynamics and the relationship between the lifetime and energy of germanium. Reprinted with permission from refs. [21,22]. Copyright©2017, Springer Nature.

结合飞秒极紫外光(XUV)进行测量. 如图1(b)所示^[21,22], 采用迭代分解算法对原始瞬态吸收光谱进行分解, 可以得到导带电子和价带空穴的激发态动力学过程. 对动力学中的每个能量进行指数拟合, 得到相应的载流子寿命. 通过奇异值分析与电子相关的动力学, 发现越接近导带边缘, 电子寿命越长. 电子会弛豫到特定能谷(X_1 , A_1 , F_2 , L_1)并积聚在那里, 因此在导带谷具有更长的寿命. 分析瞬态信号, 振幅大且分布在带边缘的分量表示热化电子, 其衰减寿命为(1140 ± 50) fs, 这是载流子复合引起的衰减; 能量较高的分量代表热电子, 热电子从高能态回到低能态的弛豫时间为(110 ± 30) fs^[21].

阿秒科学的进步赋予了瞬态吸收光谱技术新的动力. 将阿秒光脉冲技术与瞬态光谱技术结合, 发展了阿秒瞬态吸收/反射光谱, 在原子、分子乃至固体的载流子动力学研究中展现出巨大的应用潜力^[23–25]. 2010年, 首次使用阿秒瞬态光谱技术在氦气^[26]和氩气^[27]中研究了超快电荷动力学过程. 随后进一步用于直接跟踪氩气的高激发态衰变, 观察到其 $5s5p^66p$ 和 $5s5p^67p$ 的衰

变时间分别为(21.9 ± 1.3)和(48.4 ± 5.0) fs^[28].

3 电子注入动力学

阿秒瞬态光谱技术不仅广泛应用于原子、分子^[29,30], 还成功扩展到对固体中电子动力学的研究^[31–33]. 2012年, 首次将阿秒瞬态光谱技术应用于二氧化硅固体中的载流子超快动力学研究^[34]. 随后, 相同的技术被应用在单晶硅中以研究载流子注入^[35]. 图2展示了硅L边缘的阿秒瞬态吸收光谱, 出现了全局展宽和导带处吸收的增强, 展宽是导带中电子-电子相互作用引起. 在100.35 eV处XUV透射率随NIR泵浦-探测延迟时间演变过程中, 存在激发脉冲周期一半时间的阶跃式上升, 每半个周期电子从价带激发到导带, 导致阶跃的发生. 通过拟合, 发现每个阶跃的上升时间为450 as, 即激发硅中电子-电子散射的时间尺度. 进一步通过含时密度泛函理论(TDDFT)模拟了在-8–12 fs范围内激发电子数以及电子密度的空间分布. 施加激光脉冲期间, 激发电子数逐渐增加, $t_1 = -1.5$ fs的电

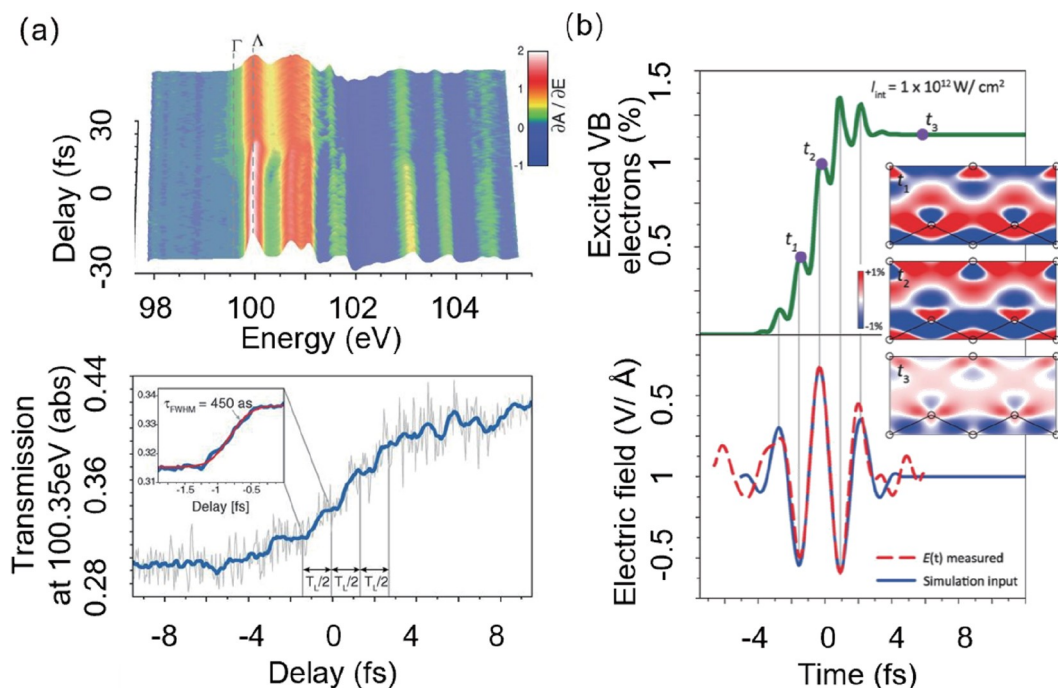


图2 (网络版彩图) (a) 硅XUV吸收率的能量导数与泵浦-探测延迟时间的函数关系图, 其中在100.35 eV处显示了振荡的上升时间450 as. (b) TDDFT模拟的激发电子数以及不同时刻的电子密度分布^[35]

Figure 2 (Color online) (a) Energy derivative of Si XUV absorbance is plotted as a function of the pump-probe delay, which shows a 450 as rise time of oscillations at 100.35 eV. (b) Number of electrons excited into the conduction band by the laser pulse and electron density distribution at different times are computed by TDDFT. Reprinted with permission from ref. [35]. Copyright©2014, American Association for the Advancement of Science.

子密度分布显示, 沿硅-硅键的偶极振荡占据主导地位; 在脉冲消失后, 激发电子数目保持在1.1%; 在 $t_3 = 6$ fs, 沿键的电子密度部分耗尽, 电子转移到代表晶体反键能带的区域^[35]. 动力学模拟表明载流子注入是光场诱导的电子隧穿所导致的.

2018年, Schlaepfer等人^[36]基于瞬态吸收光谱技术观测了共振强近红外激光脉冲诱导砷化镓载流子的亚飞秒响应. 为研究带内跃迁和带间跃迁各自的贡献, 将系统简化为三带模型. 发现仅考虑带间跃迁的情况未能重现实验结果, 而考虑带内跃迁的结果与实验结果吻合极好. 进一步计算了激光脉冲诱导下14 fs内从价带注入到导带的载流子数量 n , 仅考虑带内跃迁时, $n = 0$. 在仅考虑带间跃迁时, n 随着泵浦脉冲强度的增加而逐渐振荡增加, 随后由于拉比振荡部分消耗而减少. 在同时考虑两种激发机制时, n 比只考虑带间跃迁时增加了近3倍^[36]. 因此, 虽然带内运动本身并不会在价带中产生真正的载流子, 但它有助于激光泵浦载流子注入的发生. 此前的理论研究也证实, 带内跃迁能

够有效地增强载流子的产生^[37]. 此外, Liu等人^[38]发现带内周期性运动, 等同于将能带做了Floquet坠饰.

最近, Inzani等人^[39]利用阿秒瞬态反射光谱研究了单晶锗中的载流子超快注入过程. 在图3的瞬态差分反射率谱中, 观察到两倍于泵浦频率的超快振荡, 这些特征虽然与砷化镓中的相似, 但是源自不同的光-物质作用机制. 根据激发光子能量和带隙关系进行分类, 分为共振单光子吸收(橙/紫点)、隧穿(蓝点)和双光子吸收(红/绿点). TDDFT模拟表明, 在 $t = -4$ fs时, 脉冲强度较弱, 首先发生单光子注入; $t = 0$ fs接近激光脉冲最大值时, 单光子注入减少, 有利于电子隧穿; $t = 1.33$ fs时双光子注入增加; 在 $t = 19$ fs时, 隧穿随脉冲结束而消失. 在泵浦脉冲达到峰值之后, 双光子激发和单光子激发存在不同相位的振荡, 这可以用带内运动来解释. 由于激光极化沿着 k_y 方向, 电子将沿着该方向加速, 因此, 带内运动将表现为沿该轴的镜像对称性破缺. 在 $t = 1.33$ fs时, 在 $k_y > 0$ 的双光子注入相关能带区域(绿点), 受激电子大量聚集, 而在相同带隙的 $k_y < 0$

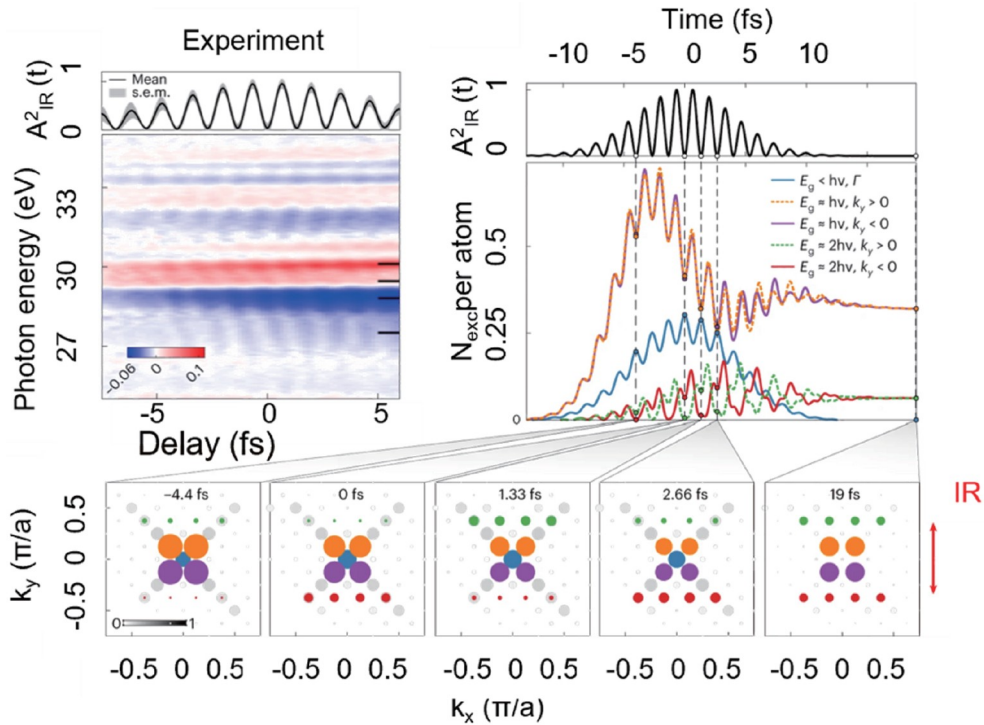


图3 (网络版彩图)锗的实验差分反射率 $\Delta R/R$, 模拟选定 k 点处激发电子数的含时演化, 以及不同时刻激发态电子沿 k_z 方向的投影^[39]

Figure 3 (Color online) Experimental differential reflectivity trace $\Delta R/R$ for the germanium sample. Simulation of the time-dependent excited electron population at the selected k -points and projection of the excited electron population along the k_z direction at different times. Reprinted with permission from ref. [39]. Copyright©2023, Springer Nature.

的区域(红点), 受激电子的数量可以忽略不计. 在泵浦场作用半个周期后($t = 2.66$ fs), 情况正好相反^[39]. 因此, 在超短强激光脉冲下载流子从价带注入导带是一个复杂的过程, 在脉冲包络的不同时间尺度有不同的注入机制.

4 电子屏蔽动力学

另一个令人关注的问题是电子的屏蔽动力学, 其会影响载流子的行为模式, 阿秒科学的进步推动了对电子屏蔽动力学的探究与发展. 2019年, Volkov等人^[40]在过渡金属钛(Ti)薄膜中, 结合带内跃迁对屏蔽效应的敏感性和瞬态吸收光谱, 揭示了光吸收和屏蔽之间的相互作用. 如图4(a)所示, 基于TDDFT, 施加平行于Ti晶体 c 轴的激光场, 模拟 c - a 平面Ti晶体的电荷密度演变. 在 $t = -3.9$ fs时, 电子分布在 p 轨道上, 随时间演化到 $t = 1.5$ fs时, 电荷密度已经展示出 d 轨道形状, 表明光诱导电子流入Ti的 d 轨道, 到脉冲结束一段时间 $t = 30.6$ fs时, 电子仍然分布在 d 轨道上, 这种电子局域化分布导致了瞬态吸收峰的出现. 相同的现象在过渡金属锆中也存在, 因此这种超快电子分布变化与 d 轨道特性相关, 与材料无关^[40]. 过渡金属价带中超快的电子局域, 允许人们在阿秒时间尺度实现宏观的光屏蔽操控.

值得注意的是, 这种屏蔽动力学即便在同一化合

物内也存在元素依赖性. Schumacher等人^[41]在半导体二硒化钼(MoSe₂)中发现, 光激发后的电荷载流子动力学表现出元素选择性. 如图4(b)所示, 根据探测光子能量可以区分不同核心能级的能量, 实现对特定元素响应的分离. 通过过渡金属钼(Mo)测量的动力学表现出多体特征, 同一类型的载流子之间具有很强的相互作用, 而通过硫族原子硒(Se)探测的动力学表明相互作用可被忽略. 通过TDDFT模拟了激光诱导的电荷分布, 施加近红外脉冲后, 电子主要分布在Mo原子周围的 d 轨道上, 较少地分布于Se原子周围的 p 轨道. 类似之前在Ti中, d 轨道局域性会产生强烈的局域场效应和更强的屏蔽. 尽管过渡金属 d 轨道和硫族元素 p 轨道有重叠, 但是硫族元素的光学响应几乎不受影响^[41].

这些动力学过程证明, 多体相互作用有效地调制了超快光-物质相互作用和电子性质. 了解多体和单粒子的贡献对于理解整个屏蔽动力学至关重要.

5 总结与展望

基于阿秒瞬态光谱技术和含时密度泛函理论, 本文系统地阐述了固体中超快电子动力学的前沿研究, 介绍了阿秒科学在电子激发、电子注入以及电子屏蔽等动力学过程中的应用.

超快光与物质耦合会出现一些有趣的行为. 相干

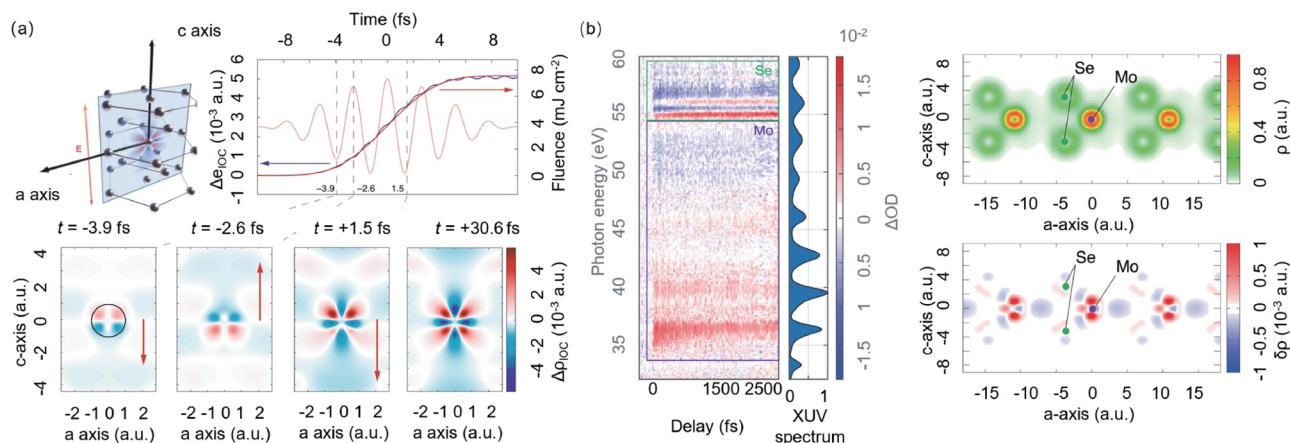


图 4 (网络版彩图) (a) 模拟的激光以及不同时刻 c - a 平面钛的差分电荷密度^[40]. (b) MoSe₂的阿秒瞬态吸收光谱, 其中从Mo 4p带和Se 3d带的跃迁响应被紫色和绿色框架包围; TDDFT模拟的近红外泵浦激光下实空间电子分布和变化^[41]

Figure 4 (Color online) (a) Simulated laser field and the charge density difference in Ti in the c - a plane at different times. Reprinted with permission from ref. [40]. Copyright©2019, Springer Nature. (b) ATAS measurement of MoSe₂ sample, where the response probed via the transitions from the Mo 4p states and Se 3d states is enclosed by a purple and green frame, respectively. Real-space electron distribution and change induced by excitation with the NIR pump pulse by TDDFT. Reprinted with permission from ref. [41]. Copyright©2023, Proceedings of the National Academy of Sciences.

声子是超快激光诱导导致的非平衡态动力学领域的特殊现象之一. 相干声子的存在会影响声子的传输效率, 进而影响材料的热导率^[42]. 通过激光调节相干声子的振幅, 可以加速极化子的传输, 提高载流子的迁移率^[43]. 相干声子还可以调控分子晶体中的光化学过程、氧化物VO₂绝缘-金属性以及MnBi₂Te₄材料的磁性等^[44–46]. 激子会影响很多半导体和绝缘体的电光特性^[47]. 光学微腔内激子与光子强耦合作用下会形成的激子极化激元, 通过极化激元弛豫诱导的非常规能量转移, 有利于荧光产率的提升^[48]. 通过改变激光功率和样品温度可以调控禁带宽度和激子形成过程, 控制材料的光电响应性能^[49]. 极化子的形成将极大地改变光生电荷的传输和迁移特性, 在高温超导、铁电、光催化中起到关键作用^[50].

固体超快电子动力学的研究可以加深对电子运动基本规律的理解, 为新一代量子器件、超高速磁性器件以及超快光电子器件的发展奠定基础. 固体阿秒超快动力学研究已经取得了丰富的进展, 接下来针对固体阿秒动力学的发展, 提出以下几点展望.

(1) 发展基础理论与模拟研究: 当前大多数实验对超快电子动力学的研究都需要高精度的理论建模和数据模拟的辅助^[51]. 要实现更复杂系统的精确模拟, 亟需进一步发展理论与计算模拟方法, 以构建更精确的理论框架. TDDFT作为一种基于电子密度的时间依赖方法, 具有处理多电子系统和大规模体系的优势, 能有效描述电子激发态^[52]. 然而, 其准确性受到交换-关联泛函现有近似值的限制^[53]. 此外, TDDFT在处理强关联体系中也面临诸多挑战, 强关联体系中的电子之间存在显著的相互作用, 简单的交换-关联泛函往往无

法准确描述其性质. 在处理涉及相对论效应的体系时, TDDFT也表现出一定的局限性. 对于开放体系动态性质的探究, 其可靠性尚存争议, 仍需进一步验证和完善^[53,54].

(2) 升级阿秒光源: 未来阿秒光源需要向更高的能量、更短的脉冲方向发展, 实现对更宽的电子能级, 更深的内层电子动力学研究以及追踪更细微的电子变化. 虽然阿秒光脉冲已经成功应用于在电子本征时间尺度上研究动力学过程, 但在空间分辨率上仍存在挑战, 要实现皮米-阿秒的双重极端尺度, 需要进一步突破现有阿秒技术^[55–57].

(3) 发展多维光谱技术: 非线性混合光谱技术已经广泛应用于飞秒脉冲, 需要将其扩展至阿秒领域^[58,59]. 实验上, 四波混频可以将阿秒脉冲与中等强度的飞秒近红外脉冲结合, 标志着多维相干光谱学发展的重要进步^[60], 进一步的发展是将阿秒多维光谱学扩展到固体或液体.

(4) 结合机器学习: 机器学习算法在阿秒超快电子动力学领域具有巨大的应用潜力, 目前已经在阿秒脉冲表征^[61]、电荷迁移动力学成像^[62]以及强场动力学分析^[63]等多个关键领域发挥作用, 进一步发展结合机器学习的阿秒物理的研究, 有助于更深入地理解和控制超快电子动力学过程.

(5) 拓展应用领域: 将阿秒脉冲技术进一步扩展到超导、磁性、量子材料等多种体系中研究超快电子动力学过程, 将推动人们发现基础物理中的新现象, 为材料性能优化、量子信息技术发展等提供指导^[64,65].

因此, 固体超快电子动力学的研究仍需要研究人员的协同努力, 共同推进相关研究的不断进步.

参考文献

- 1 Tyagi A, Mandal A, Singh K P. Attosecond physics in a nutshell. *Resonance*, 2024, 29: 227–245
- 2 Hu S, Meng S. Ultrafast condensed matter physics at attoseconds. *Chin Phys Lett*, 2023, 40: 117801
- 3 Zhong S Y, Teng H, Wei Z Y. From high-order harmonic generation to attosecond pulses—Review of the Nobel Prize in Physics 2023 (in Chinese). *Physics*, 2023, 12: 816–824 [钟诗阳, 滕浩, 魏志义. 从高次谐波到阿秒脉冲——2023年诺贝尔物理学奖评述. *物理*, 2023, 12: 816–824]
- 4 Sundaram S K, Mazur E. Inducing and probing non-thermal transitions in semiconductors using femtosecond laser pulses. *Nat Mater*, 2002, 1: 217–224
- 5 Chen Z, Luo J W, Wang L W. Revealing angular momentum transfer channels and timescales in the ultrafast demagnetization process of ferromagnetic semiconductors. *Proc Natl Acad Sci USA*, 2019, 116: 19258–19263
- 6 Sun T, Zhou C, Jiang Z, et al. Ultra-long spin relaxation in two-dimensional ferromagnet Cr₂Ge₂Te₆ flake. *2D Mater*, 2021, 8: 045040

- 7 Shao Z, Cao X, Luo H, et al. Recent progress in the phase-transition mechanism and modulation of vanadium dioxide materials. *NPG Asia Mater*, 2018, 10: 581–605
- 8 Hu J, Vanacore G M, Yang Z, et al. Transient structures and possible limits of data recording in phase-change materials. *ACS Nano*, 2015, 9: 6728–6737
- 9 Wang Z, Ji X, Dong N, et al. Femtosecond laser-induced phase transition in VO₂ films. *Opt Express*, 2022, 30: 47421–47429
- 10 Beaupaire E, Merle J C, Daunois A, et al. Ultrafast spin dynamics in ferromagnetic nickel. *Phys Rev Lett*, 1996, 76: 4250–4253
- 11 Huang Y Y, Xun X L. Application of attosecond spectroscopy and spectroscopic techniques in condensed matter physics (in Chinese). *Mod Phys*, 2023, 35: 9–14 [黄媛媛, 徐新龙. 阿秒能谱与光谱技术在凝聚态物理中的应用. *现代物理知识*, 2023, 35: 9–14]
- 12 Borrego-Varillas R, Lucchini M, Nisoli M. Attosecond spectroscopy for the investigation of ultrafast dynamics in atomic, molecular and solid-state physics. *Rep Prog Phys*, 2022, 85: 066401
- 13 Nisoli M, Decleva P, Calegari F, et al. Attosecond electron dynamics in molecules. *Chem Rev*, 2017, 117: 10760–10825
- 14 Lorient V, Boyer A, Nandi S, et al. Attosecond metrology of the two-dimensional charge distribution in molecules. *Nat Phys*, 2024, 20: 765–769
- 15 M X, Lian C, Meng S. Real-time time dependent density functional theory with numerical atomic orbital basis set: Methodology and applications. *Acta Phys Sin*, 2018, 67: 120201
- 16 Yan L, Wang F, Meng S. Quantum mode selectivity of plasmon-induced water splitting on gold nanoparticles. *ACS Nano*, 2016, 10: 5452–5458
- 17 Bachelet G B, Hamann D R, Schlüter M. Pseudopotentials that work: From H to Pu. *Phys Rev B*, 1982, 26: 4199–4228
- 18 Coulter J E, Manousakis E, Gali A. Optoelectronic excitations and photovoltaic effect in strongly correlated materials. *Phys Rev B*, 2014, 90: 165142
- 19 Ponseca Jr. C S, Chábera P, Uhlig J, et al. Ultrafast electron dynamics in solar energy conversion. *Chem Rev*, 2017, 117: 10940–11024
- 20 Clavero C. Plasmon-induced hot-electron generation at nanoparticle/metal-oxide interfaces for photovoltaic and photocatalytic devices. *Nat Photon*, 2014, 8: 95–103
- 21 Zürrh M, Chang H T, Borja L J, et al. Direct and simultaneous observation of ultrafast electron and hole dynamics in germanium. *Nat Commun*, 2017, 8: 15734
- 22 Geneaux R, Marroux H J B, Guggenmos A, et al. Transient absorption spectroscopy using high harmonic generation: A review of ultrafast X-ray dynamics in molecules and solids. *Phil Trans R Soc A*, 2019, 377: 20170463
- 23 Jager M F, Ott C, Kaplan C J, et al. Attosecond transient absorption instrumentation for thin film materials: Phase transitions, heat dissipation, signal stabilization, timing correction, and rapid sample rotation. *Rev Sci Instrum*, 2018, 89: 013109
- 24 Mashiko H, Oguri K, Yamaguchi T, et al. Petahertz optical drive with wide-bandgap semiconductor. *Nat Phys*, 2016, 12: 741–745
- 25 Ramasesha K, Leone S R, Neumark D M. Real-time probing of electron dynamics using attosecond time-resolved spectroscopy. *Annu Rev Phys Chem*, 2016, 67: 41–63
- 26 Goulielmakis E, Loh Z H, Wirth A, et al. Real-time observation of valence electron motion. *Nature*, 2010, 466: 739–743
- 27 Wang H, Chini M, Chen S, et al. Attosecond time-resolved autoionization of argon. *Phys Rev Lett*, 2010, 105: 143002
- 28 Bernhardt B, Beck A R, Li X, et al. High-spectral-resolution attosecond absorption spectroscopy of autoionization in XENON. *Phys Rev A*, 2014, 89: 023408
- 29 Liang J, Han M, Liao Y, et al. Attosecond-resolved non-dipole photoionization dynamics. *Nat Photon*, 2024, 18: 311–317
- 30 Chen Y, Haase D, Manz J, et al. From chiral laser pulses to femto- and attosecond electronic chirality flips in achiral molecules. *Nat Commun*, 2024, 15: 565
- 31 Mashiko H, Chisuga Y, Katayama I, et al. Multi-petahertz electron interference in Cr: Al₂O₃ solid-state material. *Nat Commun*, 2018, 9: 1468
- 32 Sabbar M, Timmers H, Chen Y J, et al. State-resolved attosecond reversible and irreversible dynamics in strong optical fields. *Nat Phys*, 2017, 13: 472–478
- 33 Lucchini M, Sato S A, Ludwig A, et al. Attosecond dynamical Franz-Keldysh effect in polycrystalline diamond. *Science*, 2016, 353: 916–919
- 34 Schultze M, Bothschafter E M, Sommer A, et al. Controlling dielectrics with the electric field of light. *Nature*, 2012, 493: 75–78
- 35 Schultze M, Ramasesha K, Pemmaraju C D, et al. Attosecond band-gap dynamics in silicon. *Science*, 2014, 346: 1348–1352
- 36 Schlaepfer F, Lucchini M, Sato S A, et al. Attosecond optical-field-enhanced carrier injection into the GaAs conduction band. *Nat Phys*, 2018, 14: 560–564
- 37 Sato S A, Lucchini M, Volkov M, et al. Role of intraband transitions in photocarrier generation. *Phys Rev B*, 2018, 98: 035202

- 38 Liu Y, Jiang S, Zhu B, et al. Investigation of spectro-temporal high-order sideband generation from transition metal dichalcogenides. *J Opt Soc Am B*, 2024, 41: B32
- 39 Inzani G, Adamska L, Eskandari-asl A, et al. Field-driven attosecond charge dynamics in germanium. *Nat Photon*, 2023, 17: 1059–1065
- 40 Volkov M, Sato S A, Schlaepfer F, et al. Attosecond screening dynamics mediated by electron localization in transition metals. *Nat Phys*, 2019, 15: 1145–1149
- 41 Schumacher Z, Sato S A, Neb S, et al. Ultrafast electron localization and screening in a transition metal dichalcogenide. *Proc Natl Acad Sci USA*, 2023, 120: e2221725120
- 42 Xie G, Ding D, Zhang G. Phonon coherence and its effect on thermal conductivity of nanostructures. *Adv Phys-X*, 2018, 3: 1480417
- 43 Wang H M, Liu X B, Hu S Q, et al. Giant acceleration of polaron transport by ultrafast laser-induced coherent phonons. *Sci Adv*, 2023, 9: eadg3833
- 44 Rich C C, Frontiera R R. Uncovering the functional role of coherent phonons during the photoinduced phase transition in a molecular crystal. *J Phys Chem Lett*, 2020, 11: 7502–7509
- 45 Morrison V R, Chatelain R P, Tiwari K L, et al. A photoinduced metal-like phase of monoclinic VO₂ revealed by ultrafast electron diffraction. *Science*, 2014, 346: 445–448
- 46 Padmanabhan H, Poore M, Kim P K, et al. Interlayer magnetophononic coupling in MnBi₂Te₄. *Nat Commun*, 2022, 13: 1929
- 47 Lucchini M, Sato S A, Lucarelli G D, et al. Unravelling the intertwined atomic and bulk nature of localised excitons by attosecond spectroscopy. *Nat Commun*, 2021, 12: 1021
- 48 Hu Z, Krisnanda T, Fieramosca A, et al. Energy transfer driven brightening of MoS₂ by ultrafast polariton relaxation in microcavity MoS₂/hBN/WS₂ heterostructures. *Nat Commun*, 2024, 15: 1747
- 49 Guo S, Zhao X, Nie Z, et al. Ultrafast spectral response of many-body effects during exciton formation in multilayer MoS₂. *Chin J Laser*, 2021, 48: 1111002
- 50 Xu Y, Wang Z, Weng Y. Defect states and polarons in photocatalytic semiconductors revealed via time-resolved spectroscopy. *J Phys Chem C*, 2024, 128: 16275–16290
- 51 Sato S A. First-principles calculations for attosecond electron dynamics in solids. *Comput Mater Sci*, 2021, 194: 110274
- 52 Liu W, Wang Z, Chen Z, et al. Algorithm advances and applications of time-dependent first-principles simulations for ultrafast dynamics. *WIREs Comput Mol Sci*, 2021, 12: 1577
- 53 Ullrich C A, Yang Z. A brief compendium of time-dependent density functional theory. *Braz J Phys*, 2013, 44: 154–188
- 54 Qin R. New developments of time-dependent density functional theory and its applications (in Chinese). *Chin J High Pressure Phys*, 2019, 33: 1–19 [覃睿. 含时密度泛函理论及应用的最新发展. 高压物理学报. 2019, 33: 1–19]
- 55 Chen Z, Wang L W. Role of initial magnetic disorder: A time-dependent *ab initio* study of ultrafast demagnetization mechanisms. *Sci Adv*, 2019, 5: eaau8000
- 56 Siegrist F, Gessner J A, Ossiander M, et al. Light-wave dynamic control of magnetism. *Nature*, 2019, 571: 240–244
- 57 Neufeld O, Tancogne-Dejean N, De Giovannini U, et al. Attosecond magnetization dynamics in non-magnetic materials driven by intense femtosecond lasers. *npj Comput Mater*, 2023, 9: 39
- 58 Paskover Y, Shalit A, Prior Y. Four wave mixing spectroscopy at the interface between the time and frequency domains. *Opt Commun*, 2010, 283: 1917–1923
- 59 Sugisaki M, Yanagi K, Cogdell R J, et al. Unified explanation for linear and nonlinear optical responses in β -carotene: A sub-20-fs degenerate four-wave mixing spectroscopic study. *Phys Rev B*, 2007, 75: 155110
- 60 Mukamel S, Healion D, Zhang Y, et al. Multidimensional attosecond resonant X-ray spectroscopy of molecules: Lessons from the optical regime. *Annu Rev Phys Chem*, 2013, 64: 101–127
- 61 Wang, Xiao F, Wang X, et al. Research progress of isolated attosecond pulse characterization. *Chin J Laser*, 2024, 51: 0701003
- 62 He L, Sun S, Lan P, et al. Filming movies of attosecond charge migration in single molecules with high harmonic spectroscopy. *Nat Commun*, 2022, 13: 4595
- 63 Liu X, Zhang G, Li J, et al. Deep learning for Feynman's path integral in strong-field time-dependent dynamics. *Phys Rev Lett*, 2020, 124: 113202
- 64 Ciappina M F, Pérez-Hernández J A, Landsman A S, et al. Attosecond physics at the nanoscale. *Rep Prog Phys*, 2017, 80: 054401

- 65 Zhang Z G. Development and potential applications of attosecond optical pulse technology (in Chinese). *Physics*, 2023, 12: 825–829 [张志刚. 阿秒光脉冲技术的发展和应. *物理*, 2023, 12: 825–829]

Research progress on ultrafast electron dynamics in solids

HUANG SiChen, YAN Lei^{*} & ZHANG ZhengLong^{*}

School of Physics and Information Technology, Shaanxi Normal University, Xi'an 710119, China

**Corresponding authors (YAN Lei, email: yanlei@snnu.edu.cn; ZHANG ZhengLong, email: zlzhang@snnu.edu.cn)*

The microstructure of matter and the ultrafast processes of electrons fundamentally determine its physical properties and potential applications. Therefore, the study of the ultrafast dynamics of electrons is crucial to reveal the physical properties and changes of matter. Attosecond technology with exceptional temporal resolution provides a new tool for the study of ultrafast electron dynamics in atoms, molecules, and solids. This article focuses on the important area of attosecond science: the ultrafast electron dynamics in solids, offering an overview of research progress of ultrafast dynamic processes of electronic excitation, electron injection, and electron screening in solids based on attosecond transient spectroscopy and time-dependent density functional theory. Furthermore, it provides a prospective on the future development of ultrafast electron dynamics.

ultrafast electron dynamics, electron excitation, electron injection, electron screening

PACS: 87.15.ht, 33.20.Xx, 31.15.ee, 32.80.-t

doi: [10.1360/SSPMA-2024-0351](https://doi.org/10.1360/SSPMA-2024-0351)