

X射线自由电子激光在物理学中的应用

泮丙莹¹ 叶茂² 封东来^{3,†}

(1 鲁东大学物理与光电工程学院 烟台 264025)

(2 中国科学院上海微系统与信息技术研究所 信息功能材料国家重点实验室 上海 200050)

(3 复旦大学物理学系 应用表面物理国家重点实验室 上海 200433)

2018-05-22收到

† email: dlfeng@fudan.edu.cn

DOI: 10.7693/wl20180702

The application of X-ray free electron lasers in physics

PAN Bing-Ying¹ YE Mao² FENG Dong-Lai^{3,†}

(1 School of Physics and Optoelectronic Engineering, Ludong University, Yantai 264025, China)

(2 State Key Laboratory of Functional Materials for Informatics, Shanghai Institute of Microsystem and Information Technology, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 200050, China)

(3 State Key Laboratory of Surface Physics, Department of Physics, Fudan University, Shanghai 200433, China)

摘要 在原子/分子空间尺度直接探测微观世界的飞秒量级动态复杂过程一直是科学家追求的梦想。2009年, X射线自由电子激光装置的出现使得这个梦想成为可能。文章将介绍近年来利用X射线自由电子激光装置在凝聚态物理、非线性光学、高压物理等研究领域取得的一些突破性进展, 并展望其未来在解决重大物理问题中的可能应用。

关键词 自由电子激光, 物理科学, 超快过程

Abstract The ability to probe the microscopic world with atomic spatial resolution on a femtosecond time scale is a long-sought dream of physicists. The inauguration of the first X-ray free electron laser (XFEL) in 2009 has made such a dream possible. This article will review several breakthroughs brought by XFEL in fields such as condensed matter physics, nonlinear optics, and warm dense matter. We will also present some perspective on future applications.

Keywords XFEL, physics, ultrafast processes

1 引言

从一百多年前量子力学的诞生到现代层出不穷的量子材料, 对微观世界的认识直接推动了物理学的革命和人类社会的发展, 微观探测手段的发展则是其中的关键一环。在众多的测量技术中, X射线是对物质的最直接探测手段之一, 它不仅能够精确测量晶体结构, 还能分辨物质电子结构、多种量子序和集体激发, 为科学发展带来过诸如确定DNA双螺旋结构等数次革命性突破。

X射线技术已经成为物质材料研究的发动机, 与X射线相关的研究已累计获得过25次诺贝尔奖。同步辐射光源能够提供波段连续可调的高亮度X射线, 是当今主要的X射线光源。然而, 由于物质中电荷与自旋的激发和弛豫时间尺度为百飞秒量级以下, 因此若要分辨原子尺度电子行为的超快过程必须要求达到飞秒水平的探测手段, 同步辐射光源提供的X射线的时间分辨率在百皮秒量级, 远不足以分辨这些关键的超快过程的信息。另外同步辐射X射线相干组分很低(第三代同步辐

射光源的相干光子组分小于10%)，严重限制了X射线相干实验手段的发展，因此同步辐射光源已经不能满足现代物理研究对微观世界超小超快过程探测的需求。

2009年，X射线自由电子激光(X-ray Free Electron Laser, 简称XFEL)装置的出现打破了这个长期以来的科学瓶颈。X射线自由电子激光装置的超短脉冲宽度小于100 fs，且每个脉冲有高达 10^{12} 的相干光子，并可以进行相干成像，因此能够在原子尺度上对物质进行超快探测，完成了由对微观世界从“拍照片”到“拍电影”的巨大飞跃。本文将简述基于X射线自由电子激光装置的先进探测手段在数个物理学研究领域内取得的一些重要成果，并展望未来可望取得的突破。

2 X射线自由电子激光在凝聚态物理中的应用

基于X射线自由电子激光的衍射、相干成像、谱学等方法为探测原子/分子尺度的动态复杂过程带来真正的可能性，其中，泵浦—探测方法是最常用的超快手段。泵浦—探测方法如图1所示，它首先利用泵浦激光脉冲使样品处于激发态，后利用延迟的X射线自由电子激光探测脉冲进行测量，通过调整两个脉冲之间的延迟时间探测超快动力学过程，另外通过调节X射线自由电子激光的光子能量还能实现特定元素分辨。超快泵浦—探测方法结合衍射学、谱学等可以发展成时间分辨的X射线衍射手段(Time-resolved X-ray diffraction, 简称tr-XRD)、时间分辨的共振X射线非弹性散射手段(Time-resolved resonant inelastic X-ray scattering, 简称tr-RIXS)、时间分辨的X射线磁圆二色性手段(Time-resolved X-ray Magnetic Circular Dichroism, 简称tr-XMCD)、时间分辨的角分辨光电能谱(Time-resolved Angle resolved photoemission spectroscopy, 简称tr-ARPES)等等。利用X射线自由电子激光光子的全相干性可以实现高效相干散射，极大提升了X射线光子关联谱手段(X-ray Photon Correlation Spectroscopy,

简称XPCS)的探测能力。这些实验手段的发展和已经在物理领域产生了大量有影响力的成果，并促使了一系列新现象和新物理的发现。

2.1 强关联电子体系

在强关联材料中，晶格、自旋、轨道、电荷等自由度之间的竞争和合作可以衍生出多种新奇的宏观量子现象，如铜基和铁基高温超导电性、重费米子行为、分数量子霍尔效应及锰氧化物中的巨磁阻效应等等。研究表明，主导这些特殊现象的是材料相图中存在的多种量子序或量子涨落。例如，在铜氧化物高温超导体的很多相图区域，电荷和自旋呈一维排列的条纹相，被认为与铜氧化物的超导电性直接关联^[1]。电荷序、自旋序和轨道序在庞磁阻锰氧化物材料中广泛存在并且其作用显著，人们普遍认为它们在包括庞磁阻效应在内的绝缘体—金属相变过程中发挥了重要的作用^[2]。在多铁性材料中，铁电的机制被认为是与过渡金属离子形成的自旋序和电荷序紧密相关^[3]。然而，由于强关联体系的复杂性，目前对很多现象还没有在微观上建立准确的描述，这些丰富的电子序的产生及它们与各种物态之间的关联是目前需要被深入研究的重要课题。基于X射线自由电子激光的实验手段为强关联电子体系的研究开辟了新的途径，近年涌现了很多重要成果，以下将阐述几个具体案例。

2.1.1 复杂氧化物中的电子序

铜氧化物复杂相图中电荷序的区域及其在超导中扮演的角色一直是一个重要的前沿问题。利

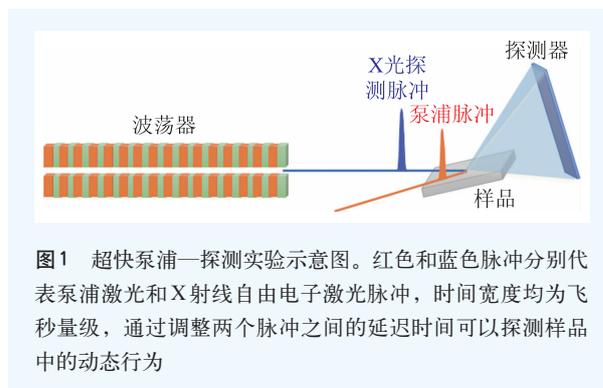


图1 超快泵浦—探测实验示意图。红色和蓝色脉冲分别代表泵浦激光和X射线自由电子激光脉冲，时间宽度均为飞秒量级，通过调整两个脉冲之间的延迟时间可以探测样品中的动态行为

用美国直线加速器相干光源(Linac Coherent Light Source, 简称LCLS)的超快X射线散射手段和脉冲强磁场的结合, Gerber等人首次研究了强磁场下铜氧化物超导体中的条纹相电荷有序态^[4]。在这个实验中, 磁场峰值可达28 T, 但每个磁场脉冲只持续约1ms, 每小时产生2个磁场脉冲。利用X射线自由电子激光的高亮度特性, 能在一个磁场周期内积累大量光子数, 从而可以高效探测磁场下的散射信号, 这是同步辐射光源难以做到的。通过这样极端条件的实验, 作者发现了YBa₂Cu₃O_{6.67}样品中不仅有在(0, 2-q, 0.5)处的二维电荷有序信号, 在磁场下还会出现位于(0, 2±q, 1)处的三维电荷有序信号, 这两种电荷有序态有截然不同的磁场依赖行为, 并且三维电荷有

序态出现的温度和零场超导转变温度相近, 表明其与超导可能有紧密关系(图2)。这个实验解释了以往通过核磁共振实验和X光散射在铜氧化物中观察到的电荷密度波不同, 有助于建立起铜氧化物超导体完整的图像。

类似的条纹相也存在与铜氧化物超导体具有类似结构但不具有超导电性的镧镍氧体系中, 在这个体系中, 电荷条纹相和自旋条纹相往往共存。利用基于X射线自由电子激光的时间分辨的软X光共振散射手段, 庄怡德等人测量了镧镍氧化物La_{1.75}Sr_{0.25}NiO₄中电荷条纹相和自旋条纹相随时间的演化^[5]。结果发现, 尽管这两种电子序的能量尺度不同, 它们在非平衡态过程中却强烈耦合在一起, 这为理解条纹相中电子自由度的关联提供了新的视角。

2.1.2 光诱导的瞬态现象

在强关联体系受到很强的扰动, 例如用强激光激发以后, 体系内的各自由度之间的相互作用(如电声子耦合、电子屏蔽效应、自旋关联等)在很大程度上被改变, 从而会导致一些新奇的瞬态现象。例如利用中红外激光选择性激发铜氧化物体系的特定声子模式, 增强铜氧面之间的耦合, 使体系出现了瞬态超导的迹象^[6, 7], 为室温超导带来了一种可能的实现途径。太赫兹泵浦光还能在强关联复杂量子材料中引起金属—绝缘体相变^[8, 9]、破坏轨道序^[10]、诱发磁有序和隐藏的电子序等^[11-15]。探究这些新奇非平衡态现象背后的微观机制是当前的重要课题。基于X射线自由电子激光的时间分辨实验手段为研究这类非平衡态现象提供直

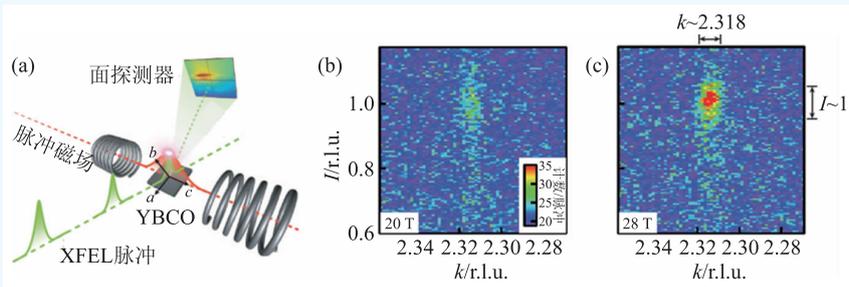


图2 结合X射线自由电子激光和脉冲强磁场观察到的YBCO样品中的三维电荷有序态 (a)实验装置示意图; (b, c)强磁场下出现在(0, 2±q, 1)处的三维电荷有序信号^[4]

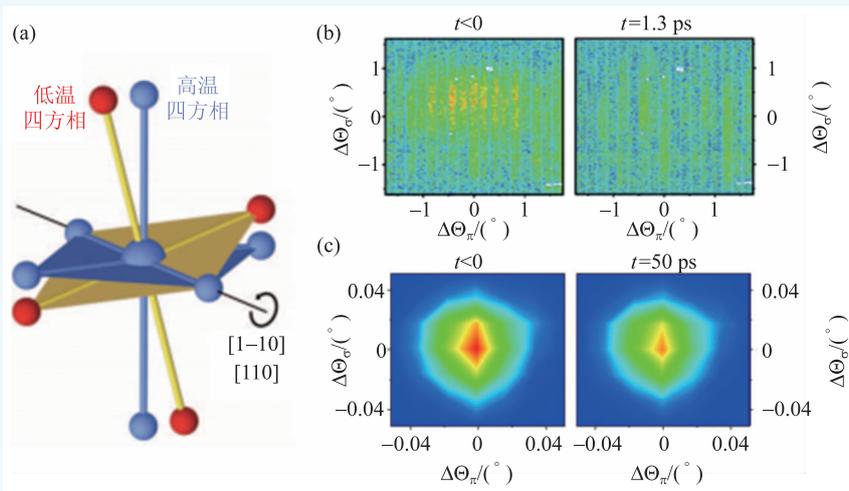


图3 利用时间分辨的X光衍射手段探测铜氧化物瞬态超导态中晶格畸变和电荷条纹相的演化 (a)太赫兹泵浦光导致的氧八面体畸变示意图^[7]; (b)电荷条纹相随时间的演化, 随瞬态超导的出现而迅速消失; (c)氧八面体畸变随时间的演化, 与瞬态超导的出现和消失无明显关联^[16]

接探测手段。Först等人利用X射线自由电子激光测量了铜氧化物中电荷有序态和氧八面体畸变在瞬态超导态中的演化,以澄清它们之间的关联(图3)。结果表明,电荷有序与瞬态超导表现为明显的竞争关系,而氧八面体畸变则在这个过程中没有明显变化,可能只是伴生现象^[6]。

2.1.3 莫特绝缘体的磁关联动力学

电子激发态的弛豫时间尺度小于几百飞秒,因此如果想研究材料中的电子关联现象如单粒子激发的瞬态行为、电荷集体激发等重要现象,就需要具备有时间分辨能力的谱学探测手段。2016年,Dean等人利用美国LCLS以及日本SACLA(Spring-8 Angstrom Compact free-electron LASer,简称SACLA)自由电子激光装置首次实现了时间分辨的tr-RIXS,观察到了莫特绝缘体 Sr_2IrO_4 中的磁关联的演化^[17](图4)。结果显示二维磁关联弛豫发生在2 ps以内,而三维磁关联弛豫则在100 ps量级,这是首次利用tr-RIXS方法对磁动力学进行探测,显示了X射线自由电子激光的强大能力。

2.2 磁性和自旋电子学

与电子自旋相关的磁性行为是功能信息材料中不可或缺的重要组成部分。利用超短脉宽的自由电子激光研究非平衡状态下的新型磁性材料中的自旋相互作用在飞秒时间尺度下的演化规律,进而在超快时域中对电子自旋的人工调控,将大大推动对磁行为本质的深入理解和新型磁材料的研发。

现代磁学研究中一个重点是对微观磁序的操纵。在激发和操控条件下,磁有序的破坏和重新建立的超快动

力学行为是最近20年来的研究热点。近年来的研究表明,飞秒激光与磁性材料相互作用可以在飞秒时间尺度对自旋进行操控,包括超快退(生)磁、自旋转动、自旋流产生、自旋翻转等,这些实验现象表明可以实现超快自旋信息存储与运算。理论上,远离平衡态的磁现象用常规的热力学方法已经失效,光子、电子、自旋以及声子间能量与角动量传输的超快通道方面的研究还基本处于唯象阶段。

通过使用超高亮度、超短脉宽的自由电子激光研究磁性材料中瞬态磁性性质、自旋散射过程等磁性材料的动力学,将为自旋电子学奠定重要的理论基础,并进一步为提升自旋信息材料中的自旋读写速度,促进超高速自旋电子学器件的发展提供重要的依据,为信息科技(超大容量信息储存与超快计算)带来革命性的影响。利用XFEL可以对自旋电子学器件背后的微观磁性作用机理进

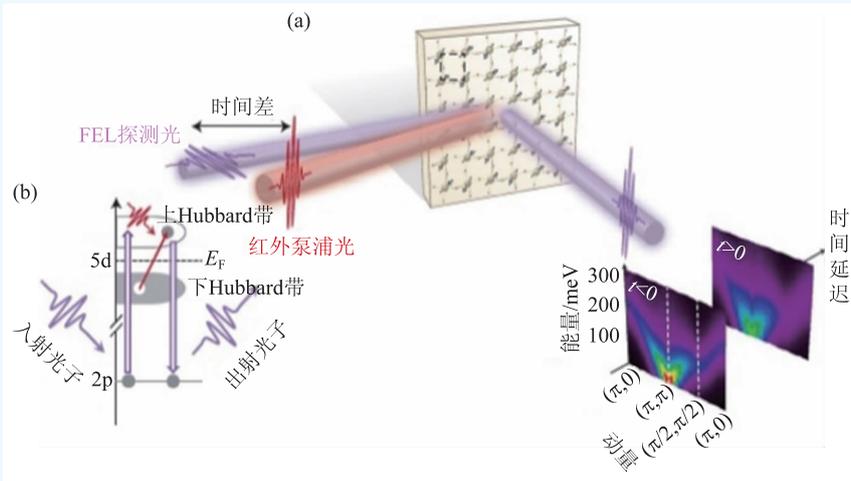


图4 (a)利用tr-RIXS对莫特绝缘体 Sr_2IrO_4 研究的实验过程示意图^[17]。样品中的自旋用箭头表示。探测器上横轴代表动量,纵轴代表能量;(b) Sr_2IrO_4 中2p和5d能级间发生的非弹性共振散射过程示意图



图5 自由电子激光在磁性材料领域的研究机遇

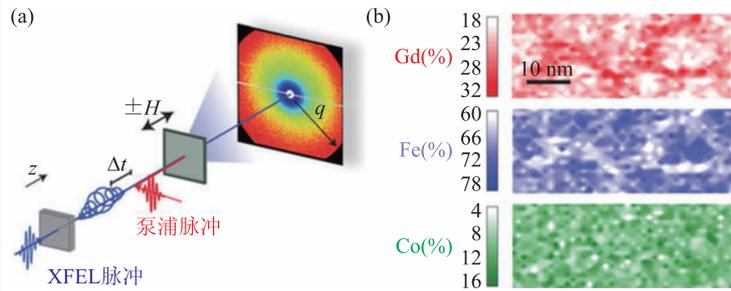


图6 利用X射线自由电子激光研究GdFeCo受激后的非平衡磁学过程^[18] (a)圆偏振极化的X射线脉冲通过共振激发可以选择性探测Fe或Gd的自旋取向,进而探测样品受激后自旋变化的超快过程;(b)由于元素空间分布对X射线的吸收调制,通过X射线衍射图案还可以得到各元素在纳米尺度的空间分布

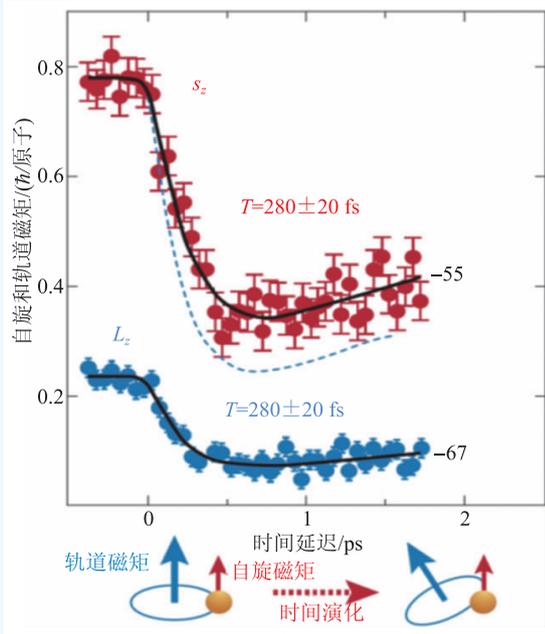


图7 利用超快激光对CoPd合金薄膜中轨道和自旋磁矩进行操控,实现对其磁性各向异性的超快调制^[19]

行充分的研究和探索,揭示材料体系中超快的自旋角动量传递过程、光子与电子的角动量传递的渠道等等,XFEL在磁性材料领域的研究机遇如图5所示。一些典型的科学案例如下。

2.2.1 光致磁化切换过程的微观机理

利用激光改变材料的磁性状态对高密度高速度的数据存储等应用领域有着广泛的前景。例如,利用飞秒超快激光可以对磁性材料进行超快磁化切换(magnetization switching),但由于缺少相关的实验探测手段,其中纳米尺度的非平衡磁

动力学过程一直未被很好地理解。2013年,Graves等人利用自由电子激光衍射手段,结合X射线磁圆二色性能谱(XMCD)测量了GdFeCo材料对激光的响应,首次在纳米尺度实现了对非平衡磁学过程的超快探测^[18](图6)。实验发现GdFeCo中的自旋动力学过程与纳米尺度的组分及磁不均匀性密切相关:富Fe区的非局域角动量可以在1 ps内扩散到富Gd区,进而造成了Gd的自旋翻转。这些结果为调控磁性微结构中的超快过程及实现更快的自

旋器件提供了实验依据。

2.2.2 磁各向异性的超快操控

磁性材料的各向异性以及易磁化轴的信息对于高密度、高速度的数据存储而言非常重要。有报道在Co/Pd的合金材料中,通过超快激光成功地在飞秒时域实现了易磁化轴的切换^[19]。如图7所示,通过时间分辨的XMCD手段,Boeglin等人直接观测到了Co/Pd合金材料中的轨道磁矩和自旋磁矩在受到飞秒激光激发后的瞬间变化,发现其决定磁性各向异性的轨道磁矩由面内的方向切换到垂直于表面的方向。此类工作将推动自旋电子学器件相关新型材料的探索 and 开发、性能的优化设计。

2.3 物质结构动态变化

物质的结构变化(相变)是自然界普遍存在和重要的现象,通过超快实验手段研究微观物质结构的演变一直是一个重要的课题。XFEL的脉冲特性和高亮度使得X波段的时间分辨实验延伸到飞秒量级,藉此就可以开展捕捉物质在微观层面演化的超快“电影”。XFEL不仅可以研究以前探测不到的结构动力学过程和相变行为,还可以进行相干成像,探测到材料纳米尺度结构演化的“3D电影”。自从LCLS 2009年首次实现X射线波段的自由电子激光以来,对物质结构相变的研究得到了极大推动。以下是利用XFEL研究结构动

态演化的几个实例。

2.3.1 纳米晶体结构的时空演化和水滴的结晶过程

纳米晶体是当今能源和功能材料的主要研究对象之一，尤其是可作为催化材料的贵金属纳米颗粒受到了广泛研究，具有重要应用价值。通过相干衍射和超快泵浦—探测实验的结合，

Clark 等人首次实现了对单个金纳米晶体的三维成像和受红外光激励后形变演化过程的探测(图8)^[20]，展示了自由电子激光在单纳米颗粒成像方面的强大能力，相关研究对理解纳米颗粒晶格动力学和催化功能具有重要意义。

水在地球上含量丰富，也是构成生命的基本物质，然而水的很多奇特性质和复杂相图中的很多区域依然是未解之谜。Sellberg 等人利用 LCLS 自由电子激光装置对速冷过程中的水滴进行 X 射线单脉冲相干衍射成像，显示了液态水的漫散射信号和冰晶的布拉格峰，实验发现了 227 K 温度下存在的亚稳态液态水，并且追踪了水的液固相变过程(图9)^[21]。这是首次对水的该相图区域的结构进行直接探测，对理解水的许多谜题有重要意义。

2.3.2 高压物态结构的动态演化

研究物质在高压下的物态对许多领域非常重要，如地球物理、星际物理、离子物理、核聚变、温稠密物质研究等，然而对高压下物质的动态演化进行研究还是一个挑战。如图 10(a)所示，可以采取 X 射线自由电子激光和高能激光冲击波的结合，利用高能激光冲击波在样品上加载超高压，再利用延迟 X 射线自由电子激光脉冲实现对其物态演化的超快探测。

利用超快 X 射线自由电子激光衍射手段和高能激光冲击波的结合，Milathianaki 等人测量了铜在超高压下发生在皮秒尺度下的结构弛豫过程^[22]。X 射线自由电子激光的不同衍射峰区域对应弹性形变或塑性形变，可以精确表征铜的屈服强度，如图 10(b)所示。研究发现，铜在高压下的

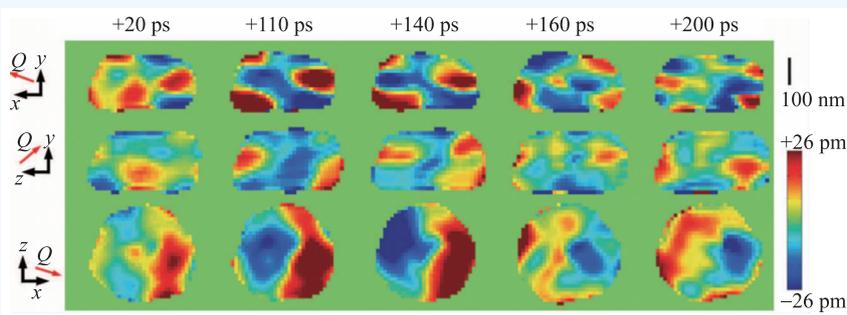


图8 金纳米晶体受红外光辐射后的晶格的时空变化过程^[20]。色标代表偏离平衡晶格常数的形变量。横向不同的图依次代表受激后不同时刻的成像，纵向3排代表3个不同的截面

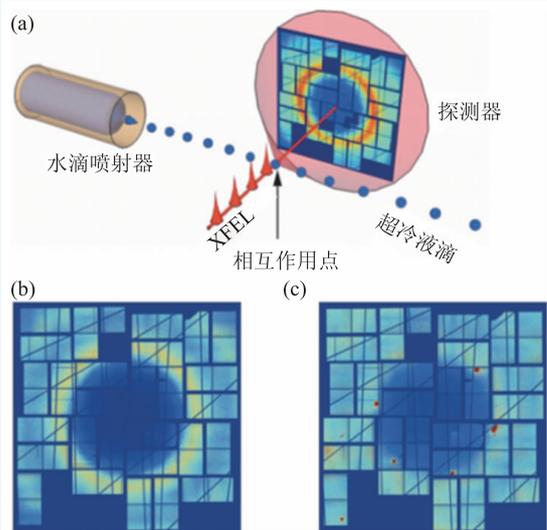


图9 用超快 X 射线自由电子激光研究速冷水滴中发生的动力学和结晶过程^[21] (a)实验过程示意图。一串微米尺寸大小的水滴在真空中沿着与 X 射线脉冲垂直的方向射出，在相互作用点处 X 射线被相干散射，在面探测器上形成衍射图像；(b)液态水滴的漫散射图像，呈环状；(c)冰晶的衍射图像，表现为分立尖锐的布拉格点

动态演化与分子动力学理论模拟吻合得非常好，使人们更进一步了解了物质在压力下的动力学行为。

2.4 声子的时域测量

声子谱测量一直是凝聚态物理的重要内容，对理解固体的电子结构性质等非常关键。一般测量声子谱的方法是中子散射或同步辐射 X 射线散射，然而前者的缺点是对样品的重量要求比较高，后者在能量分辨率上有所欠缺。XFEL 的出现使得可以对晶体在时域上直接测量声子谱，并

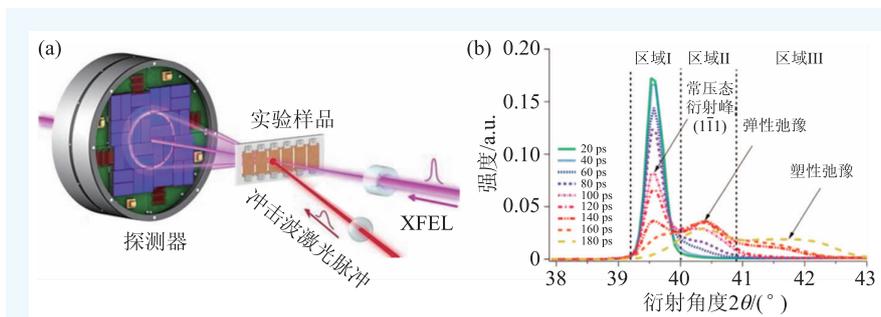


图10 用美国LCLS自由电子激光装置研究超高压下铜的结构演化行为^[22] (a)实验过程示意图。高能激光冲击波会为样品加载压力,随后压力下的样品被X射线脉冲衍射,在面探测器上成像;(b)不同衍射角度下的衍射强度分布,图中区域依次代表常压态的衍射峰、弹性弛豫信号和塑性弛豫信号

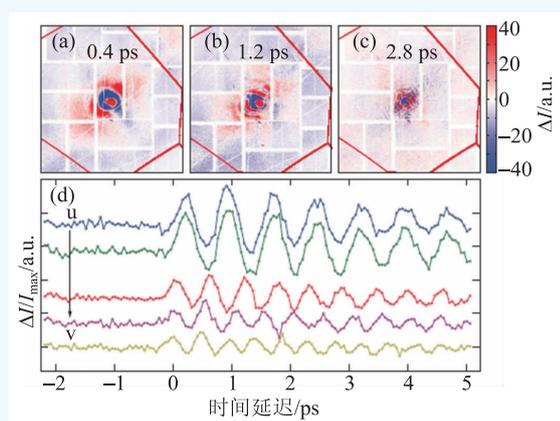


图11 在时域对Ge晶体中的声子谱进行测量 (a—c)(022)布里渊区几个不同延迟时间的散射图像;(d)晶格峰散射强度在时域上的演化^[23]

且能量分辨率高达0.1 meV。2013年,Trigo等人利用XFEL对锗晶体中的声子谱进行了测量(图11)。首先利用红外泵浦激光激发声子,然后利用XFEL测量大角度散射位置的晶格峰的时间演化,这样就可以在时域尺度测量声子频率,进而在大范围布里渊区和能量区间成功探测到了声子谱^[23]。

2.5 表面和界面物理

表面和界面有诸多新奇的效应,如界面超导、表面催化等,在半导体电路、太阳能电池等微纳功能器件中也起关键作用,一直备受关注。通过XFEL可以研究表面和界面的动力学过程和其中各自由度间的关联。如在NdNiO₃薄膜中,Nd和Ni离子各自形成一套反铁磁序,标记为 M_{Nd} 和 M_{Ni} 。

通过激光泵浦,诱导界面发生电荷转移,可以“消融”磁有序,结合XFEL衍射手段,可以测量 M_{Nd} 和 M_{Ni} 的磁衍射峰各自随时间的演化,进而得到磁性变化的动态信息。实验发现,在这样的非平衡态中 M_{Nd} 和 M_{Ni} 不再耦合在一起,并且它们的磁动力学也不相同,为理解其中微观图像提供了实验依据^[24]。

研究人员还利用泵浦光选择性激发LaAlO₃衬底中的声子模式来调节NdNiO₃薄膜中的磁性^[25]。具体过程为通过激发能量为82 meV的声子,使得界面发生结构畸变,进而改变了薄膜的磁结构,这为界面物理提供了新的光磁调控手段。

3 X射线自由电子激光在非线性光学中的应用

XFEL可以提供前所未有的超高亮度X射线波段激光,使得首次可以对这个波段的非线性过程展开研究,近年的研究发现了很多新现象,以下举两个这方面的研究案例。

3.1 X射线波段混频效应

高频与低频光波的混频效应已被研究了近50年,被认为有可能揭示原子尺度上光与物质的相互作用原理。其基本过程如下:低频光与物质发生作用,产生晶格或载流子的震荡,引起高频光的调制,因而可从后者的非弹性散射中获悉物质对光的响应。然而,由于缺乏理想的光源,使得该领域的研究多年来受到很多限制。近年来,随着高亮度光源的发展,相关的非线性光学效应再度引起广泛关注。2012年,Glover等人利用LCLS自由电子激光装置,以钻石作为混频晶体,将8000 eV和1.5 eV的光子混频得到了能量为8001.5 eV的光子,首次观察到了X射线波段的混频效应^[26]

(图12(a)), 初步展示了该领域的广阔研究前景。

3.2 反常非线性X射线康普顿效应

高亮度X射线自由电子激光还能产生许多反常的物理现象。例如, 高能光子可以和电子发生康普顿散射, 然而, 利用LCLS的X射线自由电子激光, 研究人员观察到当光子达到一定高亮度后, 两个光子可以和一个电子相互作用产生一个更高能量的光子, 即反常非线性X射线康普顿效应(图12(b))^[27]。

4 展望

近年来, XFEL 已经对物理研究产生重大影响。未来, XFEL 的发展方向是基于超导加速器的高重复频率装置(High Repetition XFEL, 简称HRXFEL), 与低重复频率自由电子激光装置相比, HRXFEL 将进一步把光子平均亮度提高3个量级左右。目前在建的上海硬X射线自由电子装置是世界上3个在建或运行的HRXFEL 装置之一, 重复频率高达1 MHz, 覆盖了从约0.3 keV到25 keV的广谱X射线光子波段范围, 这将大大提高探测水平和效率, 带动对新现象和新物理的研究。例如, 基于HRXFEL的tr-RIXS装置的能量分辨精度可望突破毫电子伏量级, 可直接探测以

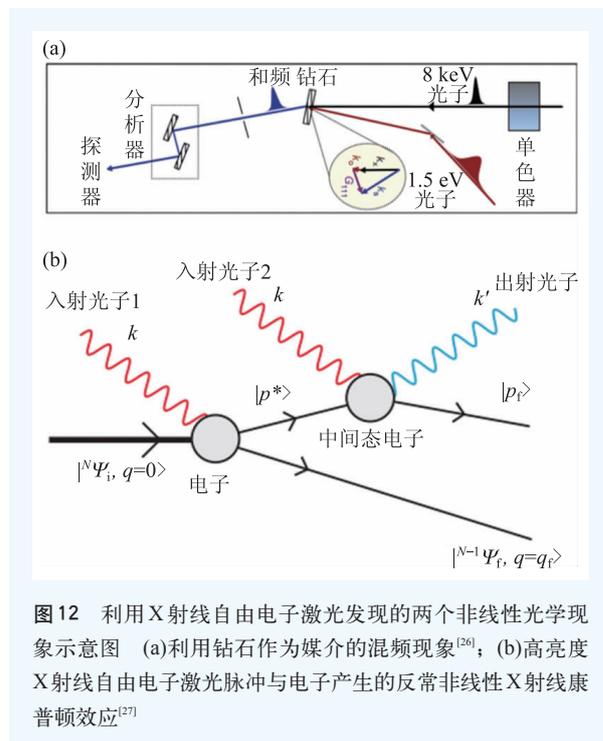


图12 利用X射线自由电子激光发现的两个非线性光学现象示意图 (a)利用钻石作为媒介的混频现象^[26]; (b)高亮度X射线自由电子激光脉冲与电子产生的反常非线性X射线康普顿效应^[27]

往观察不到的微弱集体激发信号。上海硬X射线自由电子激光装置还可以结合拍瓦激光器, 探测高能物理中的真空QED过程等, 这种实验目前还没有能在其他装置上进行。可以预见, 在不久的将来, X射线自由电子激光的发展将必然催生更多重要发现, 成为物理学发展不可或缺的强大工具。

致谢 作者感谢上海科技大学柳学榕研究员在本文撰写和修订过程中给予的意见。

参考文献

- [1] Keimer B *et al.* Nature, 2015, 518: 179
- [2] Tokura Y. Rep. Prog. Phys., 2006, 69: 797
- [3] Khomskii D. Physics, 2009, 2: 20
- [4] Gerber S *et al.* Science, 2015, 350: 949
- [5] Chuang Y D *et al.* Phys. Rev. Lett., 2013, 110: 127404
- [6] Mankowsky R *et al.* Nature, 2014, 516: 71
- [7] Fausti D *et al.* Science, 2011, 331: 189
- [8] Rini M *et al.* Nature, 2007, 449: 72
- [9] Ishikawa T *et al.* Nature Commun., 2014, 5: 5528
- [10] Tobey R I *et al.* Phys. Rev. Lett., 2008, 101: 197404
- [11] Först M *et al.* Phys. Rev. B, 2011, 84: 241104
- [12] Kim K W *et al.* Nature Mater., 2012, 11: 497
- [13] Stojchevska L *et al.* Science, 2014, 344: 177
- [14] Morrison V R *et al.* Science, 2014, 346: 445
- [15] Ichikawa H *et al.* Nature Mater., 2011, 10: 101
- [16] Först M *et al.* Phys. Rev. Lett., 2014, 112: 157002
- [17] Dean M P M *et al.* Nature Mater., 2016, 15: 601
- [18] Graves C E *et al.*, Nature Mater., 2013, 12: 293
- [19] Boeglin C *et al.* Nature, 2010, 465: 458
- [20] Clark J N *et al.* Science, 2013, 341: 56
- [21] Sellberg J A *et al.* Nature, 2014, 510: 381
- [22] Milathianaki D *et al.* Science, 2013, 342: 220
- [23] Trigo M *et al.* Nature Phys., 2013, 9: 790
- [24] Caviglia A *et al.* Phys. Rev. B, 2013, 88: 220401
- [25] Först M *et al.* Nature Mater., 2015, 14: 883
- [26] Glover T E *et al.* Nature, 2012, 488: 603
- [27] Fuchs M *et al.* Nature Phys., 2015, 11: 964