

引用格式: TIAN Ye, ZHOU Chuliang, FU Xuewen, et al. Research Progress of Generation and Control of Ultrafast and Coherent Electron Sources Based on Optical Fields (Invited)[J]. Acta Photonica Sinica, 2021, 50(8):0850202

田野,周楚亮,付学文,等. 基于光场的超快相干电子源产生及调控研究进展(特邀)[J]. 光子学报, 2021, 50(8):0850202

※封面论文※

基于光场的超快相干电子源产生及 调控研究进展(特邀)

田野^{1,2}, 周楚亮^{1,2}, 付学文³, 纪少政³, 冷雨欣^{1,2}, 李儒新^{1,2}

(1 中国科学院上海光学精密机械研究所 强场激光物理国家重点实验室 超强激光科学卓越创新中心,
上海 201800)

(2 中国科学院大学 材料科学与光电子工程中心, 北京 100049)

(3 南开大学 物理学院 超快电子显微镜实验室 弱光非线性光子学教育部重点实验室, 天津 300071)

摘 要:光与物质之间的相互作用是自然界中最基本的物质相互作用之一,这种动力学的完全可视化需要时间上的阿秒分辨率和空间上的原子级分辨率。超短相干电子源是实现这一目标的重要方法。本文介绍了利用各种光场如射频、太赫兹、可见光来产生、相空间调控甚至表征这种超短相干的高品质电子源的重要进展,并主要总结了其在四维超快电子显微镜方面的技术突破,为“阿秒显微镜”的建立开辟了道路,使对电子运动成像成为可能,最后对超快电子研究的发展进行了展望。

关键词:电子光学;相干电子源;电子光场调控;超短电子脉冲;时间分辨成像与显微;超快电子显微成像

中图分类号:O463

文献标识码:A

doi:10.3788/gzxb20215008.0850202

Research Progress of Generation and Control of Ultrafast and Coherent Electron Sources Based on Optical Fields (Invited)

TIAN Ye^{1,2}, ZHOU Chuliang^{1,2}, FU Xuewen³, JI Shaozheng³, LENG Yuxin^{1,2}, LI Ruxin^{1,2}

(1 State Key Laboratory of High Field Laser Physics and CAS Center for Excellence in Ultra-intense Laser Science, Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China)

(2 Center of Materials Science and Optoelectronics Engineering, University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

(3 Ultrafast Electron Microscopy Laboratory, the MOE Key Laboratory of Weak-Light Nonlinear Photonics, School of Physics, Nankai University, Tianjin 300071, China)

Abstract: The interaction between light and matter is one of the heart interactions in nature. The complete visualization of this kind of dynamics requires attosecond resolution in time and atomic resolution in space. Ultrashort and coherent electron pulses are central to achieve this goal. This review surveys the important efforts aimed at generation, phase-space control and characterization of ultrashort electron pulses using various optical fields such as microwave, terahertz radiation and visible light, and mainly summarizes its key breakthrough in four-dimensional ultrafast electron microscopy, which opens up the way for the

基金项目:国家自然科学基金(Nos.11874372, 11922412, 11974191),中国科学院基础前沿科学研究计划(No.ZDBS-LY-SLH018),中国科学院青年促进会项目,中科院海外人才引进计划,国家重点研发计划(No. 2020YFA0309300),中央高校基本科研业务费专项资金,天津市自然科学基金(Nos. 20JCZDJC00560, 20JCJJC00210)

第一作者(通讯作者):田野(1986—),男,研究员,博士,主要研究方向为超强超快激光物理及应用。Email: tianye@siom.ac.cn

通讯作者:付学文(1985—),男,教授,博士,主要研究方向为四维超快电子显微成像技术及应用。Email: xwfu@nankai.edu.cn

收稿日期:2021-05-30; **录用日期:**2021-06-30

<http://www.photon.ac.cn>

establishment of “attomicroscopy” to allow the imaging of electron motion in the act. Finally, the development prospects of ultrafast electron research is presented.

Key words: Electron optics; Coherent electron sources; Optical field control of electron pulses; Ultrashort electron pulses; Time-resolved image and diffraction; Ultrafast electron microscopy

OCIS Codes: 140.7090; 000.3110; 100.0118; 110.0180; 260.7120; 320.7160

0 引言

具有皮秒、飞秒或阿秒持续时间的超短电子脉冲是各种科学和技术应用的核心。例如,它们允许通过泵浦探针电子显微镜和衍射跟踪空间和时间中的原子和电子运动,可以在自由电子激光器中产生相干X射线脉冲,也是激光驱动粒子加速领域的中心,还可以充当电子量子动力学中的探针^[1]。

与飞秒脉冲同步的超快电子束是原子、分子和固体材料科学中的一种相对较新的动力学诊断工具。将超快激光与电子显微技术相结合,可发展出超快(皮秒、飞秒甚至阿秒)电子衍射(Ultrafast Electron Diffraction, UED)、超快电子显微术(Ultrafast Electron Microscope, UEM)和扫描超快电子显微术(Scanning Ultrafast Electron Microscopy, SUEM)等技术^[2-3],这些工具可以实时记录结构动力学和原子运动的图像,融合了目前两个非常成功的领域:超快科学和纳米物理。通过这些技术目前已经阐明了亚皮秒时间尺度上的许多超快现象^[4]。在这些研究中,要达到最佳性能通常需要尽可能短的电子脉冲宽度。

目前飞秒电子脉冲可以由激光驱动的平面光阴极^[2,5]或纳米针尖^[6-7]产生。通过射频(Radio Frequency, RF)压缩^[8-11]或全光学太赫兹压缩技术^[12],可以实现几飞秒的电子脉宽。在相对论激光能量下,通过逆自由电子激光过程^[13]和激光尾波场加速器,已得到了几飞秒甚至阿秒量级的电子脉宽。最近发展的阿秒脉宽的亚相对论电子脉冲可以由激光驻波中的有质动力^[14-15]或时变电场^[16-18]产生,这种亚相对论阿秒电子脉冲的极小德布罗意波长非常适合原子级成像,将把超快电子衍射和显微成像术推进到原子级电子动力学的时间范围,并可能把包括量子态重建^[18]在内的应用推进到新的分辨率范围。

在超短电子束的调控方面,数十年前利用随时间变化的电场来进行电子调控的技术推动了示波器和电子计算机的产生,该技术也是当前超快条纹相机、飞秒电子成像与衍射技术、自由电子激光技术等基石。理论上从微波、太赫兹波一直到光波电子调控技术,可分别具有皮秒、飞秒甚至阿秒时间尺度的调控速度,可以探测越来越短的微观过程。但目前直接由光波电场实现对电子的阿秒级调控还存在很多困难,主要是受到时间抖动和时间同步等问题的困扰。另阿秒电子源仍缺少主要应用场景所需的电流、发射度和平均亮度等参数。

本文将重点介绍各种具有不同特性的基于光场的超短相干电子源的产生方案及其相应的应用进展,特别是在四维超快电子显微成像方面的技术突破。回顾利用光场对超短电子束的调控、表征研究的发展现状,详细介绍四种超快电子显微技术及近年来所取得的重要研究进展,并进行展望及总结,因篇幅和水平有限,还有大量成果未提及。

1 超短电子束的产生及应用

基于真空中各种近场结构的激光加速电子方案是目前的一个研究热点,包括真空激光加速器^[19]、光子带隙加速器^[20]、电介质尾波场加速器^[21]以及“芯片上的加速器”^[22]等。这些不同的方案都有一个共同的需求,就是超短电子束。超快电子脉冲的产生对超快电子衍射和显微术等应用的建立也起了至关重要的作用,而如何实现超短又高度相干的电子源是其中的关键,这是因为超短时间特性决定了探测精度和探测极限,而相干性给出了能研究的样品的最大尺寸。

为了从固体中发射电子,必须要克服阻止它们离开的表面势垒,称为“功函数”(Φ_w),其大小约为几个电子伏特,与材料种类、晶体结构和表面修饰等关系很大。不同类型的电子发射体的区别主要在于它们克服势垒的方式(热激发、隧穿或光子吸收等)和降低“功函数”的方式(如特殊表面结构或外加电场)。将超短激光脉冲的光电发射与现有的电子枪技术相结合,能够产生高质量的飞秒脉冲电子束。

为了指导电子源的开发,需要一个相干性的定义。空间分辨率由源的横向和纵向相干长度决定。具体来说,横向动量分布决定了其空间分辨率。类似于光源的空间相干性被定义为在屏幕上仍然可以看到干涉的情况下,两个物体之间的最大距离,即杨氏干涉仪中的狭缝间距。对于沿 z 方向传输的电子束,纵向 L_z 和

横向相干长度 L_x 之间的关系可以写成 $L_z \approx L_x \left(p / \sigma_{p_x} \right)^{[23]}$, 其中 p 是电子 z 方向的动量, σ_{p_x} 是横向动量色散, 通常 $p \gg \sigma_{p_x}$, $L_z \gg L_x$, $L_z \gg w$ (w 为样本宽度)。对于最常用的电子能量, 纵向相干性通常在微米量级, 远大于一般常用的样品厚度。因此, 空间分辨率的限制主要是由电子束的横向相干长度施加的, 这是我们感兴趣的方面。横向相干长度通常表示为 $L_x \approx \lambda / 2\pi\sigma_\theta$, 其中 σ_θ 是电子束的发散角^[24]。根据德布罗意关系 $\lambda = 2\pi\hbar/p$, $\sigma_\theta \approx \sigma_{p_x}/p$, 横向相干长度变为 $L_x \approx \hbar/\sigma_{p_x}$ 。因此目前的工作主要集中在通过减小初始电子能量扩散、束斑尺寸和空间电荷效应等方面来增加电子束的横向相干长度(或减小发射度), 以便获得高质量的电子束。例如, 目前电子显微镜中最高空间分辨率是通过使用场发射电子枪来实现的, 这种电子枪使用具有纳米尺寸的尖端(理想情况下是原子尺寸)来获得完全相干的电子束。

由于速度色散效应, 电子脉冲在真空中传输时会逐渐改变其时间轮廓。同时, 电子之间的排斥力也会不可避免地导致其脉冲展宽, 这些都极大制约了时间分辨率。除了会破坏纵向和横向相干长度的空间电荷效应之外, 电子的费米子特性也使得相干电子源的设计成为一个挑战。作为费米子, 不允许电子处于“同一状态”, 这样一个等同于受激辐射(激光)光放大的过程对费米子来说是不可能的。由于电子的这种固有性质, 人们认为不可能会有足够高的电子密度来实现任何接近单粒子结构的分辨率。但在新千年开始时, ZEWAIL A H 组^[25-26], CAO J 等^[27]和 SIWICK B J 等^[28]纷纷致力于产生超短电子脉冲, 并获得了几皮秒到飞秒量级的时间分辨率, 使“分子电影”的记录成为可能。

近年来, 人们提出了多种方案来缩短电子束脉宽, 主要有: 紧凑型电子源, 如减小电子到样品的间距^[29]或增大加速电场(这样可以缩短传输距离, 增加能量后对于抑制空间电荷效应也有利)^[12, 30-38]、少电子脉冲^[5, 39-40](抑制空间电荷效应)、后压缩技术^[11, 24, 41-46]、能量过滤^[47]、条纹扫描^[48]以及动量-位置负啁啾电子脉冲^[47]等。目前, 直流型^[29]、射频压缩型^[11]和相对论型^[49]飞秒电子的时间分辨率都限制在 100 fs 左右, 一般还会受到时间抖动和时间同步的限制。这些类型电子的主要区别在于电子能量和总电荷量, 各有其适用的应用。因此, 迄今为止进行的超快动力学测量是在皮秒到数百飞秒的时间尺度上进行的^[26, 28, 50-52]。最近 HASSAN M T 等^[53]通过光学选通方法在 UEM 演示了最短电子脉冲(30 fs)的产生, 打破了电子脉冲的常规压缩极限, 并在超快电子显微镜中获得了电子动力学尺度的时间分辨率。在这种方法中, 产生的电子脉冲的持续时间仅受选通激光脉冲的限制, 这种选通激光脉冲原则上可以在阿秒时间尺度上^[54], 因此这种方法有望导致孤立阿秒电子脉冲的产生, 为建立一个新的“阿秒电子显微镜”领域开辟了道路。目前基于阿秒电子脉冲链的衍射和显微术^[16]表明了其分辨率可到阿秒-埃(0.1 nm)范围, 它将允许对原子、分子^[55]和凝聚态物质^[56]中理论研究的电子运动进行实时成像, 将极大地促进我们对化学、物理、生物和材料科学^[2-3, 51, 57-64]中的超快现象的理解和对客观世界的认识^[57]。

下面介绍几种典型的基于光场的超短高质量电子束的产生及应用。

1.1 平面光阴极光电发射电子源

光电阴极射频电子枪的电子束通常用于在加速后驱动自由电子激光器, 并产生从红外到 X 光的相干辐射。这种超短电子脉冲通常是通过飞秒激光前向或背向照射到薄金属层上, 利用光电效应产生的, 随后利用静电场来加速(如图 1 所示)。射频光阴极枪通常可产生 MeV 电子, 可在保持每个脉冲大量电子数目的同时, 提高时间分辨率^[36]。能量在 MeV 量级的近相对论电子的德布罗意波长比典型的 30 kV 左右的直流电子枪产生的电子波长短一个数量级, 因此, 对应的布拉格角也小一个数量级, 可与电子束的固有发散度相当, 不利于衍射图案的观察^[38]。但当电子是相对论性时, 由于空间电荷效应的显著降低, 射频阴极电子枪上的较高电场可以在更短的时间宽度内提供更多数量的电子, 这对不可逆过程的探测及提高探测信噪比是有利的; 此外电子的近相对论速度将进一步降低速度失配, 从而显著提高整体的时间分辨率。另外 MeV 能量的电子与 keV 的相比, 在样品中有更长的穿透深度。此外, 射频电子枪允许方便地控制电子束的纵向相空间, 利用射频对电子束进行再压缩的技术也非常成熟, 原则上产生低于 50 fs 电子束长度是可能的^[24]。

为了获得具有令人满意的信噪比的动态图像或衍射图案, 必须在确定瞬态结构的每个时间点收集大量电子(通常 $> 10^7$), 这可以通过高密度电子脉冲的单次曝光来实现, 也可以通过重复频率高达 0.55 MHz 的少电子脉冲来实现^[3, 40], 采用哪种工作模式取决于正在研究的动力学类型是不可逆或可逆过程。下面分别介绍这两种工作模式电子脉冲的发展现状。

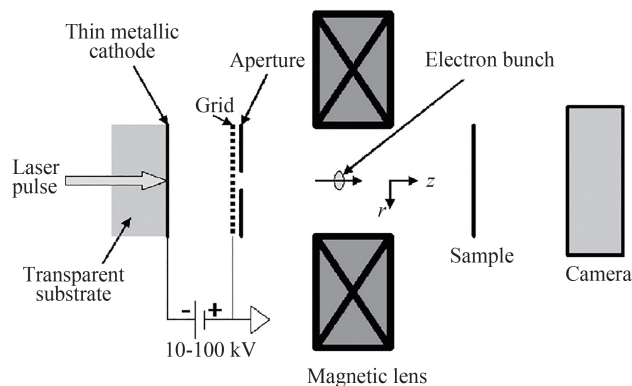


图1 用于超快电子衍射的光阴极电子枪示意图^[65]

Fig. 1 Schematic of a photocathode used for ultrafast electron diffraction^[65]. Reprinted from Ref. [65], with the permission of AIP Publishing

1.1.1 高电荷密度电子脉冲源

超快电子衍射的主要挑战是由空间电荷引起的电子脉冲的时间展宽。虽然可以通过使用少电子脉冲电子来解决这个问题,但是对于不可逆过程的研究,还是需要超短的高电荷量电子脉冲。

SIWICK B J等^[28]在2003年首次打破亚皮秒界限,就是利用高电荷量的电子脉冲成功地在相关时间尺度上观察到了原子的运动。随后SIWICK B J等^[66]使用紧凑的55 kV直流光阴极电子枪获得了包含约 10^4 个电子的脉冲,由HEBEISEN C T等^[67]完成了脉宽测量,约为550 fs。该装置产生的电子脉冲具有适当的相干特性,可用于金属和晶体中光致结构和电子相变的时间分辨研究^[28, 68-70]。2006年,SLAC国家加速器实验室^[36]用斯坦福直线加速器电子枪测试装置的5.4 MeV电子束首次观察了160 nm铝箔的单次衍射图,时间分辨率接近100 fs,验证了将射频枪产生的MeV电子脉冲用于时间分辨结构动力学测量的可行性。此后,加州大学洛杉矶分校^[71]通过高功率射频枪和聚束腔的结合将电子束长度缩短至了100 fs以下,压缩是通过反转空间电荷诱导的速度啁啾而实现的,并使用这种电荷数目约 10^7 的3.5 MeV电子束记录了单晶金样品的单次衍射图案。上海交通大学研制了一台小型超快电子衍射仪,利用s波段1.6 cell光阴极射频电子枪产生的MeV电子记录了高质量的单次透射电子衍射图,电子脉冲宽度约为300 fs^[32, 72]。大阪大学^[73]、布鲁克海文国家实验室^[58]、马普所^[74]等相继发展了新的基于光阴极射频枪的MeV UED系统,MAXSON J等^[10]利用加州大学洛杉矶分校Pegasus实验室的射频枪和聚束腔,产生了前所未有的束长(< 10 fs)和同时非常低的横向归一化发射度(≤ 20 nm)的电子束。这类电子源的能量一般都在1~5 MeV、电荷量在 $0.1\sim 10$ pC ($10^6\sim 10^8$),可用于单发成像来研究非可逆的超快动力学。

另外,还有一种将阴极上直流场和激光束的交流场相结合的超短电子产生方案已经在实验上得到了证明^[75-77],如图2所示,其中具有扁平尖端的阴极与阳极之间的间隙约1 mm,其间施加的直流电压约为40 kV,阴极和阳极都有圆形边缘,以防止在施加直流电压时击穿,阳极有一个供电子传输的小孔。这种方案基本上是对早期利用微波^[78]所做工作的扩展,可产生与光阴极相当的电流密度和稳定亮度。HOMMELHOFF P等^[77]证明了该方案的几个关键属性:1)在激光场的半周期期间发射电子;2)产生脉宽小于1 fs的电子脉冲;3)从钝阴极而不是从典型的针尖发射;4)对于正在使用的锁模1 GHz激光器,对应于每秒 $> 3 \times 10^{15}$ 个电子,每微束平均约200个电子。

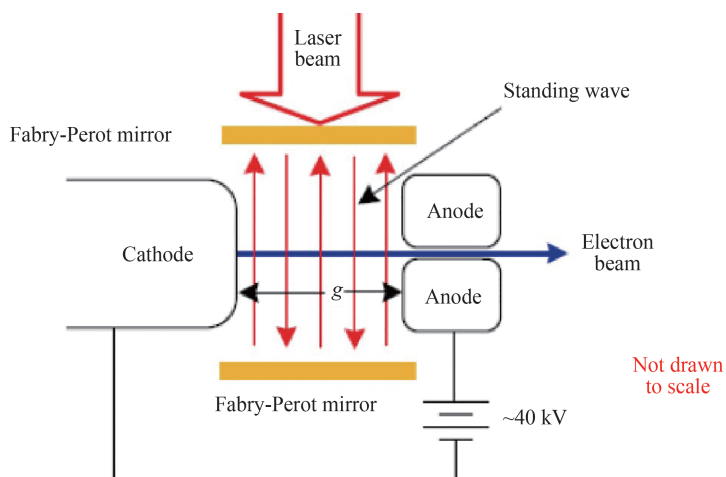


图2 超短微聚束电子源示意图^[75]

Fig. 2 Schematic layout of ultrashort microbunch electron source^[75]. Reprinted from Ref. [75], with the permission of AIP Publishing

1.1.2 高重频少电子脉冲源

使用单电子或低密度电子束是减少空间电荷效应最简单的方法,空间电荷效应在每个脉冲仅含一个电子的情况下变为零。在这种情况下,“有效”时间脉宽可以根据单个电子到达样品的时间统计分布来定义和确定^[64]。即使没有库仑排斥,在采用单电子脉冲的时间分辨电子衍射实验中也依赖于很多因素。通常是高重频采样,以便在合理的时间内获得具有足够信噪比($10^6\sim 10^8$ 个电子)的高质量衍射图案所需的电子总数,这一事实极大地限制了单电子脉冲的潜在应用。在最佳的情况下,样品必须能够经 $10^6\sim 10^8$ 个光激发周期,通常需要更长的平均信号,才能在此低信号阈值下获得高于背景的信号。为了在合理的时间内收集数据,可以使用高重频的激光,但这会导致热效应累积,随着时间的推移会显著改变样品。另外,能经历 10^7 个以上光子周期的样品非常少。所以这种方法主要适合气相研究,在气相研究中,不同激光发次之间可以进行样品替换。重复采样使单电子波包的使用具有统计性质,相当于使用高密度电子束,但其空间电荷效应被去除。然而,即使在无空间电荷效应的情况下,初始速度扩散引起的电子束展宽仍然对时间分辨率施加了最低的限制。

最近ZEWAIL A H的团队在加州理工大学^[3, 79]成功地实现了同时拥有纳米空间分辨率和亚皮秒级时间分辨率的超快显微技术。他们将局域电子源与飞秒激光光电发射^[77, 80-84]结合起来,进行了各种不同的研究,从时间分辨衍射^[79]到光子诱导近场电子成像^[85]和时间分辨电子能量损失光谱学^[86]。按照LOBASTOV V等^[87]提出的建议,即将脉冲电荷减少到几个电子,甚至每个脉冲一个电子,将电子脉冲的重复率相应增加,可消除空间电荷效应,显著提高时间分辨率。这需要一个重复频率约为100 MHz的激光器,且其能量足以激发电子脉冲,并在泵浦探针实验中激发样品。然而,新的限制出现了,其中最重要的是从光电阴极发射的电子的初始速度扩散。如果电子是直接通过光电发射释放的,初始电子能散在0.25~1 eV的范围内^[88],但是如果涉及多光子发射,初始电子能量分布会更大^[88-89]。KASMIL等^[5]报道了在50~100 kHz下,使用波长可调的40 fs可见光脉冲作为泵浦,通过双光子光电发射从平坦的金属表面发射飞秒单/少电子脉冲,证明了光电阴极“功函数”附近的光子能量对电子脉冲的相干性和时间脉宽的有益影响。在消除与驱动激光功率的二阶相关性后,电子源的稳定性接近散粒噪声极限。通过双光子光电发射可产生相干、超短和超稳定的单/少电子波包,适用于时间分辨结构动力学探测。

1.2 基于激光等离子体超短电子源

作为对基于射频的加速器^[90]的补充,超短高质量电子束也可以通过飞秒激光与等离子体的相互作用产生,如激光等离子体加速器^[91-93]或激光电介质结构加速器^[94]等。

1.2.1 激光—低密度等离子体超短电子脉冲

激光尾场加速(Laser Wakefield Acceleration, LWFA)是一种能将电子加速到相对论能量的技术,有可能产生飞秒量级或更短的超短电子束,加速原理及其主要特征如图3所示^[95]。由于驱动激光脉冲的超短脉宽特点,等离子体中的电子会受到较大有质动力而被排开,离子由于质量较大而在激光穿过的短时间内保

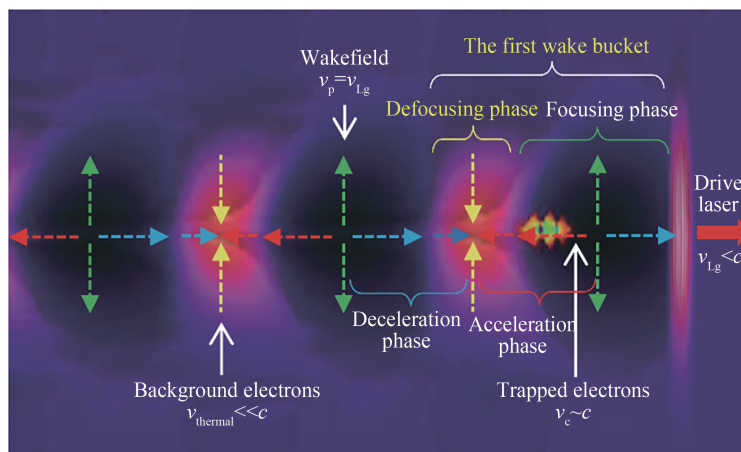


图3 激光等离子体尾波加速电子原理示意图^[95]

Fig. 3 Schematic of laser plasma wakefield acceleration^[95]. Reprinted from Ref. [95]

持静止,从而在驱动激光后面形成强的电荷分离场,电场分布如图3中箭头所示,纵向电场梯度可达GV/m。当激光能够产生强烈的飞秒脉冲后^[96-97],这一研究领域得到了迅速发展。自从第一次实验证明单能多兆电子伏电子束^[98-100]以来,加速得到的电子束的能量和品质迅速提高,目前可在几厘米长距离内就能将电子加速到GeV的能量^[101-105]。最近在利用拍瓦级激光装置产生高能电子束的同时,人们也在实验上实现了用mJ量级低能激光系统产生高重频单能电子束^[106-107],可用于超快电子衍射成像。LWFA产生的电子束的一个重要特征是它们的脉宽短,在飞秒量级^[92]。最近的理论研究提出了不同的从LWFA获得亚飞秒脉宽电子束的方法,包括等离子体密度剪裁^[108],交叉激光脉冲^[109]或磁场注入抑制^[110]等。

目前依赖于直接使用LWFA电子束的应用大概可以分为两种类型:一种用来作为超快探针,主要利用其飞秒持续时间,而且原则上,它们与激光脉冲之间的抖动非常小,即在飞秒范围内,有可能在依靠泵浦探测方案的超快探测实验中达到超高的时间分辨率。比如通过LWFA产生的飞秒电子束已经成功地用于探测等离子体中瞬态磁场^[111],揭示了膨胀等离子体的亚皮秒动力学。最近,LWFA电子束被用来探测等离子体尾波场的电场结构^[112],分辨率达到飞秒。另外由于其飞秒级的脉宽及与激光脉冲的内在同步特性,通过超快电子衍射在原子尺度探测材料的潜力很大。最近进行了一项原理验证实验,使用高重频工作的LWFA产生的电子束,以皮秒级分辨率成功揭示了硅纳米膜的晶格动力学。

另外是用其作为泵浦源。这种电子束也被提议作为与癌症治疗相关的电离辐射源。与MeV光子相比,电子束在深度上会实现更均匀的剂量沉积,从而减少对肿瘤体积周围健康组织的影响。目前已有实验证据,证明LWFA光束可以提供足够的剂量沉积分布,可以在感兴趣的穿透深度上提供足够高的剂量,从而用于深部肿瘤的电子束放射治疗。

这种电子束在尾波场中的横向振荡产生类似同步辐射的betatron X辐射^[113-114],可以作为准直、超快、高亮度的台面式新型辐射光源,这种X射线源继承了电子束的特征:具有台式化、飞秒脉宽(小于100 fs)、微小源尺寸(微米量级)^[115]、以及在毫弧度范围内的低发散度^[116]、高亮度等特性,在高品质成像、超快泵浦探测等领域有广泛应用前景,目前已开始成功应用在相衬成像^[117-118]、CT^[119-120]以及X射线吸收谱学^[121]相关研究中。

1.2.2 激光-稠密等离子体超短电子脉冲

通过相对论强度激光脉冲与固体密度靶相互作用产生的快速电子源,具有结构简单、电量大的优势,其潜在应用,如电子衍射等,也得到广泛研究。包括激光加速、等离子体传输和真空发射在内的快速电子发射过程高度复杂,并且受到激光脉冲和靶特性的强烈影响,科研人员已经进行了许多努力来改善电子束的强度、方向性和单色性。

近年来,已经在实验上用各种靶进行了准直电子束的产生演示。如KODAMA R等^[122]用0.3 PW激光脉冲照射锥形靶时,发现附着的短细导线可引导和准直锥体中产生的MeV能量范围内的电子,并且当激光强度足够高时,导引电子的电量可以达到纳库(nC)量级^[123]。当使用平面靶时,准直电子束的产生也已经得到证实^[124-127]。例如,对于 10^{18} W/cm²的激光强度,已经观察到沿金属箔靶表面发射的亚MeV电子束^[127]。

1.3 纳米尖端光电发射源

近年来,人们对尖端光电发射电子源(如图4所示)进行了大量研究^[6-7, 57, 76-77, 81, 84, 128-135],将紫外波段的触发激光脉冲聚焦到纳米级尖端,并在外电场的作用下可激发出电子束(用蓝色箭头描绘),其发射过程限制在亚飞秒尺度^[131-132],同时,与从目前最先进的平面光电阴极获得的电子束相比,尖端源^[77, 81]的发射区极小,在场增强效应的帮助下,还可大幅减小由于初始动量色散导致的展宽^[7],是目前拥有的具有最高相干度的一种电子源^[7, 84, 130, 132, 136]。

例如哥廷根大学FEIST A等^[137]采用了激光驱动的肖特基发射器(氧化锆包覆(100)取向的单晶钨尖),将光电发射限制在氧化锆/钨发射器尖端的纳米级正面^[138-139],发射器侧面用400 nm的激光照射,首次实现了基于纳米针尖光电阴极激光触发电子发射的超快透射电子显微镜,获得了高度相干的电子脉冲,电子脉冲持续时间低至200 fs,能量宽度为0.6 eV,样品处电子束可聚焦到0.9 nm。另外,HOMMELHOFF P等^[77]提出了一种基于低功率飞秒激光场发射尖端的电子脉冲源。电子脉冲短于70 fs,电子发射端直径低至2 nm,每个脉冲最多200个电子,重复频率可达1 GHz。随后,HOFFFROGGE J等^[7]针对超短电子脉宽进行了优化,利用直径为几十纳米的钨尖产生了30 keV的电子脉冲,估计脉冲持续时间为9 fs。

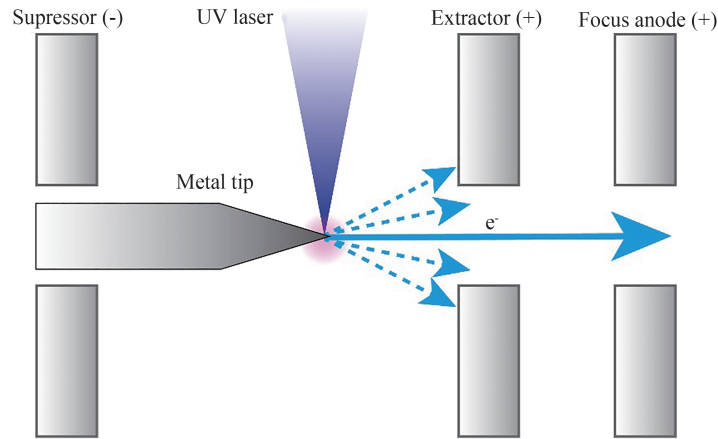


图4 金属尖端的局部光电发射
Fig. 4 Localized photoemission from a metal tip

除了短电子脉宽之外,基于尖端的源还具有大的横向相干性和纳米发射度。对纳米金属尖端施加强电场可使得电子能够通过隧道电离发射到真空中(场发射),产生具有高亮度和高相干性的连续电子束^[140-142]。通过飞秒激光脉冲照射这种尖端,结合直流电压,可实现具有飞秒和纳米分辨率的脉冲式场发射,使得它对基础研究和新的应用如时间分辨电子显微术、光谱、全息术以及自由电子激光器都具有吸引力^[135]。

1.4 冷原子电子源

目前基于飞秒激光的这些光电发射源表现出色,但它们的进展受到大电流电子源的有限横向相干性的限制,对于生物分子样品如蛋白质的单次成像研究来说通常电量不够。而通过激光冷却原子的光电离可以产生内在高相干性的电子,但是对于超快电子衍射来说太慢了。用飞秒激光电离原则上应该减少电子脉宽,但是短激光脉冲固有的高带宽预计会破坏横向相干性。MCCULLOCH A J等^[143]证明了飞秒激发和纳秒光电离的双色过程可以产生具有高横向相干性的皮秒电子束。

最新发展的冷原子电子源^[143-147]的独特性能,非常有希望成为平面光阴极发射源的补充。冷原子电子源的超快电离、高相干性和三维束成形能力的独特组合有可能实现晶体和生物分子单次电子衍射的亮度和相干性要求。超冷电子源基于激光冷却原子云的近阈值光电离和场电离^[148],提供了低发射度、高强度^[145]和高相干性^[144, 149]的独特组合,这对实现大分子的单次超快电子衍射至关重要。

首先GEER S B等^[145]提出的一种基于激光冷却和俘获原子气体的近阈值光电离的新型电子源,这些光源的电子温度可以低至10 K,这意味着亮度增加了几个数量级。在这种120 keV, 0.1 pC的装置中,可以产生1%的相对能散,而束长小于100 fs的电子束,发射度明显好于光电发射源。横向相空间的相关性表明横向发射率可以进一步提高,从而能够对生物分子样品进行单次研究。随后TABANG等^[150]提出了这种脉冲电子源有效温度的测量方法,并可通过电离激光的波长来控制电子源从200 K到10 K范围内的源温度调节,加上50 μm 的源尺寸,对于100 μm 的样品尺寸,可实现约为20 nm的横向相干长度。SALIBA S D等^[151]在源处测得了相干长度的下限 $l_c = 7.8 \text{ nm}$ 。2014年,荷兰科学家^[152]为了记录单个衍射图案,以100 Hz的重复频率将 10^3 发次、每次发射包含几百个电子的脉冲电子束发射至石墨样品,首次展示了单晶石墨样品的衍射图,实现了冷原子电子衍射的首次原理性验证。2015年,澳大利亚SPEIRS R W等^[153]使用冷原子电子源首次获得了单晶金的单发模式下纳秒级电子衍射图样,使用的5 ns电子束约包含 5×10^5 个电子。单发衍射的实现是冷原子电子源向着应用研究迈出的重要一步,有望成为用于超快单发电子衍射实验的固态光阴极源的有力补充。

2 超短电子束的调控

对于泵浦探测实验,时间分辨率受限于电子脉冲的脉宽及其相对于光激发的时间稳定性。即使没有任何空间电荷效应,由于色散,电子脉冲在加速后也不可避免地具有较长的脉宽。因此,电子脉冲压缩对于达到衍射中的亚光子或电子时标是必不可少的^[9]。电子脉冲压缩原理是要求电子分别在平均电子到达时间之

前或之后到达时减速和加速。对于像电子束压缩或横向偏转这样的应用,与传统的射频调控相比,更高的频率可提供更有效的依赖于时间的动量反冲。

对于电子束来说,其时间结构的调控可通过随时间变化的射频^[9, 11, 44]、太赫兹^[12, 154]或可见光场完成。值得注意的是,光场电子调控^[1, 17, 155]有望将超快透射电子显微镜(Ultrafast Transmission Electron Microscope, UTEM)^[3, 156]和超快电子衍射(UED)^[2, 33]的时间分辨率从几十飞秒^[9, 10, 137]提高到阿秒量级^[15-16, 53, 155, 157-158]。

电子波函数的纵向和横向相位调制在概念和技术上都是不同的。前者意味着时间修正,而后者可以通过使用静态或动态空间调制器来实现。从物理学的角度来看,逆自由演化的时间修正意味着能谱的修正。所以一般可通过记录电子能谱并与理论预测进行比较来获得纵向相位调制。从技术角度来看,采用适当的与时间相关的电磁场来实现想要的纵向调制,可以完成超短电子束的脉宽压缩。目前一种有潜力的方法是速度聚束方案^[159-160],在该方案中,通过在粒子束内(通常通过射频腔)建立负的纵向位置-速度啁啾关系,导致下游的纵向聚焦,此方案对低能电子(keV)^[24]最有效,迄今为止,对于非相对论^[9, 11]和相对论^[161]电子,速度聚束实验都证明了可实现低于100 fs的电子脉宽。

2.1 射频场纵向调制

在测量不可逆或部分可逆过程所需的高束电荷电子脉冲中,库仑排斥是传播过程中时间展宽的主要来源^[162-163]。对于静电加速方案,飞秒分辨率可通过缩短源和样品之间的距离^[61]或能量过滤^[47]达到;另一个方式是利用微波腔实现脉冲压缩。对于具有最亮/最密集电子包的时间分辨电子衍射旨在以数百飞秒的分辨率对大分子动力学进行单次成像^[2];这需要用基于微波的压缩或条纹技术来补偿空间电荷展宽^[11, 164-165]。最终可实现的脉冲持续时间和相干程度受到这些库仑相互作用的不可逆部分的限制。即使没有空间电荷效应,由于光电发射激光器的光子能量和光电阴极的功函数的不匹配、表面的不均匀性和飞秒光脉冲的带宽导致了电子能量的逐级变化,从而导致到达时间的变化,在样品上产生了延长的脉冲持续时间。最根本的是,光电阴极产生的脉冲不能比用于光电发射的光学飞秒脉冲短。因此,将电子脉冲持续时间推进到几飞秒甚至阿秒范围,除了单电子源之外,还需要额外的压缩。电子脉冲压缩的静态方法还包括反射器^[166]和磁压缩器^[45]。这些装置可以补偿色散,并将脉冲重新压缩到其初始持续时间,但不能进一步压缩。利用静态压缩方案,通常不可能将脉冲持续时间减小到低于源处的初始值,即飞秒激光脉冲的持续时间。相比之下,微波腔结合单电子脉冲有望达到几飞秒的范围^[37]。

图5(a)描绘了电子脉冲在进入微波腔压缩段前后时,其时间-能量相空间的演化,图5(b)是对应的实验装置。图5(a)中椭圆描绘了在相同条件下发射和传播的大量单电子脉冲的传播时间和能量的统计分布。非相对论电子脉冲在传输中会产生线性啁啾,这种速度-位置啁啾起源于激光激发的电子脉冲初始动量色

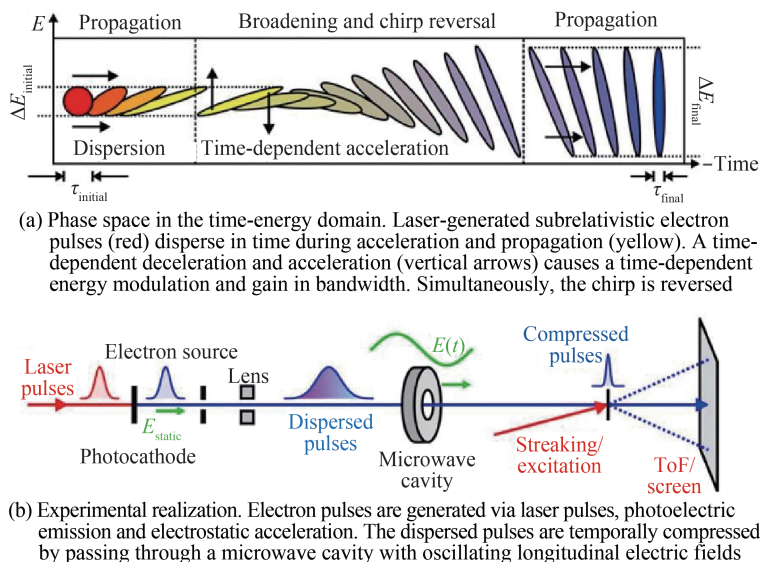


图5 利用光场实现亚相对论电子的产生、压缩及表征^[9]

Fig. 5 Generation, compression and characterization of subrelativistic electron pulses by light field^[9]

散。在多电子脉冲中,电子间的库仑排斥也会导致电子脉冲前沿的高能量电子经历更大的库仑排斥和加速,导致后沿的低能电子减速。不同的能量在空间上转变成高度线性的速度啁啾,使用简单的线性色散元件就可以很容易地压缩这样一个高度线性的啁啾。射频压缩腔的使用可提供精确的时间色散,实现在时间上聚焦电子束。射频压缩过可以解释如下:电子脉冲由光电阴极产生,然后被磁透镜聚焦,其纵向动量-位置分布在进入圆柱形结构之前变成线性,在圆柱形结构内,施加的电场影响电子脉冲,因此较快的电子被向后延迟,而较慢的电子被向前推动。因此,输出脉冲呈正线性啁啾,纵向动量-位置分布与进入之前相反。样品位置被精确地限定在纵向焦点上,以确保较慢和较快的电子在该位置相遇,从而获得电子脉冲的最大脉宽压缩。

射频压缩技术为开发脉冲持续时间为数百个飞秒的高亮度电子束源铺平了道路。射频电子脉冲压缩基于反转线性能量啁啾和在时间上聚焦电子脉冲,已经进行了许多电子传输理论研究和相关建模^[23, 65, 167]。此外在射频场中加速电子比在直流场中加速电子更有利于产生高亮度的超短电子脉冲^[168]。最近研究已经表明,在射频光枪中,非线性空间电荷力的有害影响可以通过适当成形光发射电子的空间轮廓来消除^[169],已被考虑用于电子衍射^[37]。对于射频压缩,依赖于时间的纵向电场用于减速领先的电子和加速落后的电子,在微波腔后面的某个位置压缩了脉冲。目前这一技术已在很多实验中得到了应用。最近 OUDHEUSDEN T 等^[11]通过射频压缩技术将数目达 10^6 的电子脉冲压缩到了 70 fs,从而为一系列原子尺度运动的观测提供足够的分辨率,并增加了用于探测更复杂系统中超快动力学的电子束的亮度^[43]。GAO M 等^[51]利用这种短的压缩电子脉冲成功研究了有机金属的相变。ERNSTORFER R 等^[52]利用这种高亮度电子脉冲研究了 20 nm 厚的多晶金膜熔化时的结构演变。KASSIER G H 等^[165]通过原理验证实验,实现了包含 2.6×10^4 个电子的电子束压缩,在装置的时间和空间焦点上持续时间低于 750 fs,束直径为 300 μm ,同时保持时间分辨电子衍射实验所需的良好束准直。CHATELAIN R P 等^[44]使用带有纵向电场的射频腔来压缩高电荷电子脉冲,得到了 0.1 pC 的束电荷 (6.24×10^5 电子/脉冲), 334 ± 10 fs 的稳定电子脉冲,与没有脉冲压缩的性能相比,是一个巨大的改进。最近 ZANDI O 等^[170]利用射频脉冲压缩建立了一个时间分辨率优于 400 fs、高平均束流的 90 keV 动能的气相电子衍射实验装置。FILL E 等基于一个圆柱形射频腔,提出可产生亚飞秒的亚相对论电子脉冲方案^[37],这样的电子脉冲将允许在阿秒时间尺度上研究原子核运动和电子动力学。将前面提到的单电子超短脉冲源也可与微波腔组合,实现脉冲压缩^[42],可使电子脉宽接近 10 fs,甚至可能更短。在这种方案中,电子脉冲可以变得比用于电子产生的激光脉冲短得多,但这一般是以能散增加为代价的。此外,已经提出使用超冷电子源来获得更高数量级的亮度^[147]。

2.2 太赫兹场纵向调制

到目前为止,GHz 的微波技术一直是超快电子脉冲控制的主力,应用范围从粒子加速到超快脉冲压缩和高分辨率条纹相机。但是,微波元件存在明显的相位漂移,10 fs 以下的激光微波同步在技术上具有挑战性^[171-173]。

电子脉冲压缩和计量的最新方法是使用太赫兹单周期脉冲^[12, 174]代替微波。这个概念在很大程度上回避了时间同步问题,因为整个实验可以通过单个激光源以全光学方式运行。此外,太赫兹辐射已经用于电子脉冲的加速^[12, 174-175]、条纹和偏转^[12, 174]、聚焦^[174]和倾斜^[176]。人们对将太赫兹技术应用于相对论电子束调制也越来越感兴趣^[177-179]。对于太赫兹场的脉冲压缩,利用特殊结构作为波导,波导或共振结构通常用于调解太赫兹电子相互作用,使得太赫兹激发的共振场提供平行于电子束的时间相关的作用力分量。类似于微波压缩^[9, 37, 44, 180],如图 6 所示^[181],与时间相关的纵向太赫兹场分量对电子脉冲的压缩可使其低于其初始脉宽。太赫兹驱动的压缩技术有可能产生高亮度超短束,其电荷足以在 UED 捕获单次拍摄的图像,从而可以在原子运动的时间尺度上表征不可逆过程。

最近 MORIMOTO Y 等^[157]结合平面薄膜太赫兹反射镜与电子源,其中调整镜面角度可提供电子与太赫兹场的横向速度匹配和空间均匀的纵向压缩,提供了一种可从几乎任意横向发射度的电子束中产生隔离的阿秒电子脉冲的途径,他们利用太赫兹提供的电场将产生于平面光阴极的少电子脉冲脉宽压缩到 28 fs,这些值可与使用最先进的微波压缩技术的效果相比拟^[9-10],但不需要主动同步^[182]。类似地,最近 KEALHOFER C 等^[12]使用少周期的 0.3 THz 辐射,通过在电子传输方向上提供随时间变化的纵向场,将由薄膜光阴极产生的

电子脉冲宽度压缩了12倍,时间稳定性 <4 fs,并通过场致电子束偏转(条纹)法进行了脉宽测量。而EH-BERGER D等^[181]通过使用单周期太赫兹辐射和简单的平面镜产生了75 keV、28 fs的电子脉冲。

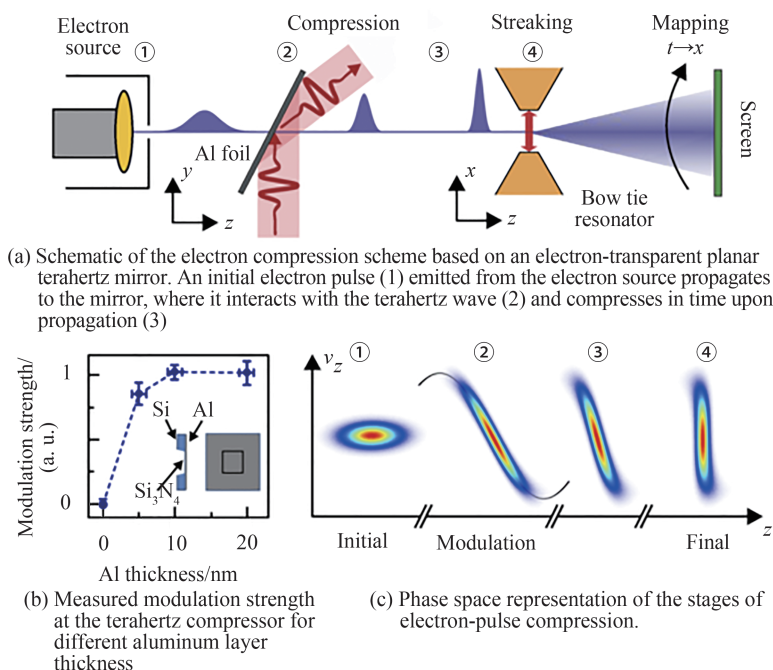


图6 太赫兹压缩电子脉冲概念和实验装置^[181]

Fig. 6 Concept and experimental setup of electron pulses compression by THz^[181]

2.3 近红外激光场纵向调制

进一步,利用近红外激光场在电子的纵向(电子传输方向)上对电子的能量进行周期性调制,可实现对电子的时间结构调控^[155],可以在经一段自由空间传播之后将进入的电子波包整形为阿秒脉冲串^[18]。通过这种方案已经证明实现对电子的亚光周期相干调控^[1, 17]以及产生阿秒电子脉冲链^[16, 18]是可行的。通过采用连续激光结合传统电子显微镜的高亮度连续电子脉冲,可调制产生高亮度的阿秒电子脉冲链,以达到阿秒、皮米分辨率。目前主要有两种技术可行,都是基于对电子引入随时间变化的能量调制,以及随后由于电子在真空中的色散导致的脉宽压缩。基于电子-激光能量耦合,实现自由电子与激光脉冲光子的有效能量交换,不同时刻入射的电子历经加速、减速过程,使电子被调制成阿秒电子脉冲链,并保持原始电子束的相干度和平均亮度。另外这种方法可实现超短电子与激光的天然同步,从而解决了时间抖动和时间同步问题等困扰。

第一种技术是基于各种纳米结构表面产生的光学近场对电子的非弹性散射^[17, 85, 183]。如图7所示^[184],首

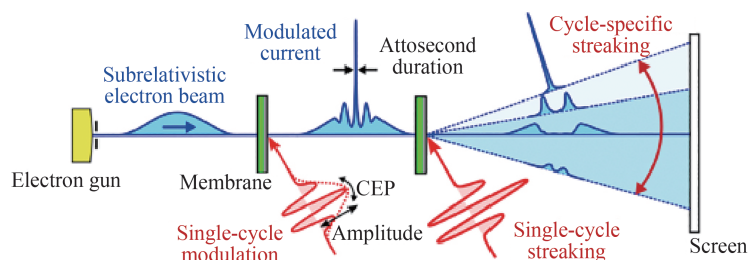


图7 光场调控电子束的概念图^[184]。电子束(蓝色)通过金属膜(绿色)时,被脉冲包络受控的光场(红色)调制,经时间调制的电子脉冲可通过第二个光场(红色)导致的在实空间的偏转来直接表征

Fig. 7 Concept of electron-beam control by optical field^[184]. An electron beam (blue) is modulated by a single field cycle (red) of a phase-controlled waveform when passing through a metallic membrane (green). The temporally modulated electron current is directly characterized by real-space streaking induced by a second single-cycle field (red). Reprinted figure with permission from Ref. [184] Copyright (2020) by the American Physical Society

先利用一束飞秒激光激发光阴极来产生一束中心能量为几十 keV、脉宽约为 1 ps 的电子束,并让这束电子与场强约 $10^6 \sim 10^7$ V/m 的调制激光脉冲在一约 50 nm 厚的介质或金属膜处实现时空同步,可用它来破坏激光束光学周期的对称性,此膜对电子是透明的,使得不同时刻入射电子历经加速、减速过程,透射电子经过几毫米的自由空间传输后将被调制成为阿秒电子脉冲链。

第二种方法是基于电子与真空中两个不同频率光场产生的共同传播的光学行波的有质动力势的相互作用^[14-15, 46, 158, 185],也可称其为“运动强度光栅”方案。这种方案里,在电子束附近不存在任何结构,行波的传播速度与电子速度同步,导致在电子的静止参考系中产生了光驻波。典型实验布局如图 8 所示,当这种行波与电子波包共同传输时,与光场的强度梯度成正比的有质动力,会使电子加速离开强光区域,朝低场强区域聚集,电子的纵向动量发生变化,这一物理过程已在最近通过观察相互作用后电子能谱的大幅度展宽在实验上得到了证明^[14]。这种驻波光场的强度分布可以以小于光速的速度运动,因此它的运动可以与非相对论电子的速度相匹配,有质动力作用可以在一段较长的时间内积累,对电子的传输有足够的影响,这些力会累积成宏观动量和速度分布,与原始电子位置直接相关。在自由空间中传播一段时间后导致自压缩,最初扩展的电子波包会被压缩成阿秒电子脉冲,脉冲间距由光场的波长给出。因此通过合成合适的光强度分布,有质动力可以被定制从而在空间和时间上调控电子波包。

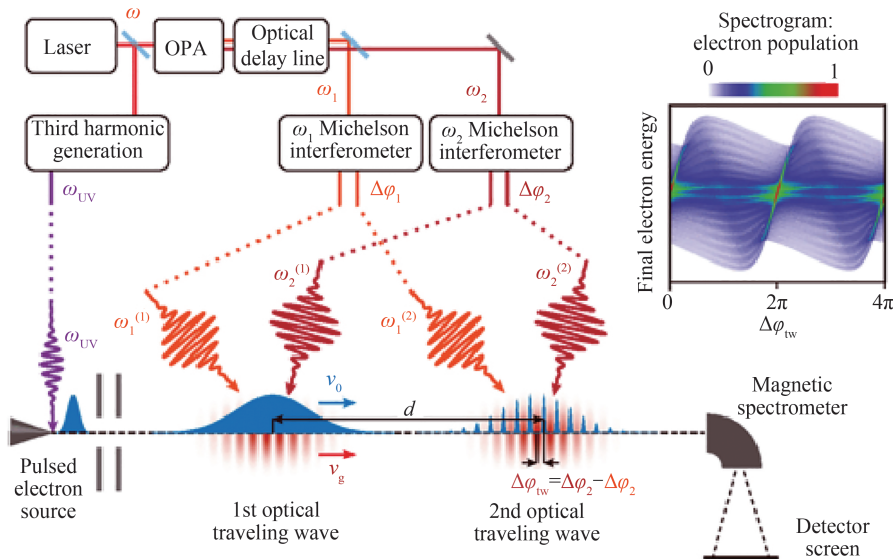


图 8 产生和探测阿秒电子脉冲链的实验装置布局^[185]。分别使用两个独立的迈克尔逊干涉仪产生的两个时空分离的光学行波来用于阿秒电子脉冲链的产生和分析

Fig. 8 Layout of the experimental setup for the generation and detection of attosecond electron pulse trains^[185]. The two spatio-temporally separated optical traveling waves—the first for the attosecond electron pulse train generation and the second for its analysis—are generated using two independent Michelson interferometers. Reprinted figure with permission from Ref. [185] Copyright (2018) by the American Physical Society

2.4 利用光场表征超短电子脉冲

为了直线加速器、自由电子激光器、逆康普顿散射 X 光源、太赫兹驱动先进加速、超快电子衍射和显微术等应用,已经产生了短至几百飞秒的电子束,能够可靠地表征这些超短电子束的完整信息(包括脉宽和到达时间)非常重要。测量电子脉宽的传统方法是施加垂直于传播方向的倾斜电场,这种条纹相机技术对于皮秒电子脉冲是足够的,对于低电荷密度电子束,也可以扩展到飞秒范围。在加速器领域,射频偏转腔已被广泛用于测量 MeV 到 GeV 的相对论电子束的时间分布。对于泵浦探针实验,相对于外部激光器的电子束到达时间的信息则不能用射频偏转腔直接测量。另外,当电子束的脉宽小于 100 fs 且其能量超过几十 keV 时,已远超条纹相机的分辨率,一般没有合适的电子仪器来测量它们。

BANERJEE S 等^[186]用相对论性有质动力偏转方法对激光产生的高能电子束的时间特性进行了实验研究,随后人们提出了一种通过有质动力散射测量飞秒级超短电子束的方法^[187-188]。而通过使用亚波长结构进行局域场增强^[189],上海交通大学 ZHAO L R 等利用太赫兹驱动的条纹技术实现了对相对论电子束完整时间

信息的飞秒级计量^[179]。此外 BAUM P 等^[190]借鉴测量光脉冲的自相关法(教科书上的案例),提出了一种无需外部探针(如强激光脉冲或条纹场)的方法,通过在自由空间中电子自相关方法测量电子脉宽,这种方法与采用快速变化电场的电子脉冲条纹技术相比(如图 5、7 所示),后者在技术上要求更高。另 KIRCHNER F O 等^[48]借鉴阿秒科学里阿秒条纹相机的概念,成功将光场驱动条纹相机技术扩展到用于能量为 25 keV 的自由电子脉冲表征,可提供以阿秒级分辨率表征高能自由电子脉冲的能力,并有望继续扩展到对 MeV 电子脉冲的表征。ZHOU C L 等^[191]则利用等离子体镜作为阿秒电子脉冲发射器(如图 9 所示),仔细分析了阿秒电子与激光作用的超快动力学过程如“真空直接加速”、“有质动力散射”、“阿秒条纹”等,将光场对电子的调制过程直观地呈现在了电子的空间分布上,通过近红外激光在实验上实现了激光直接度量“阿秒电子动力学”。

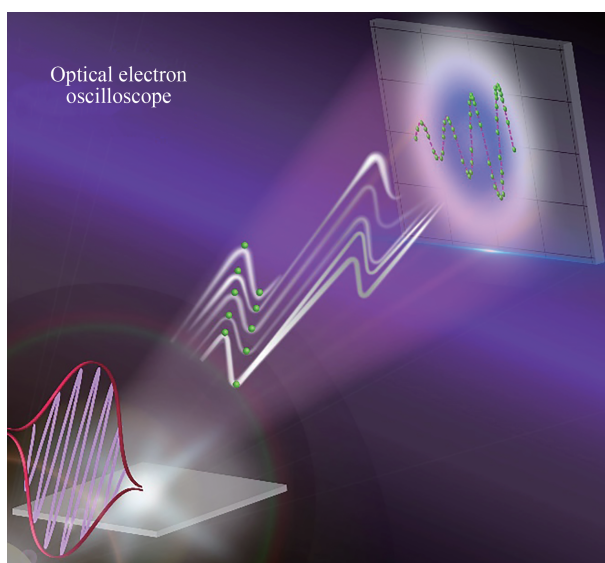


图 9 激光直接度量阿秒电子动力学^[191]。当强激光脉冲在等离子体反射镜上反射时,它会使电子在若干狭窄的特定相位窗口中发射。在合适激光参数下,一些亚周期阿秒电子脉冲会在激光电场中“冲浪”(激光条纹),其横向动量最终被调制,在远场中形成周期性条纹分布

Fig. 9 Direct mapping of attosecond electron dynamics with laser^[191]. As an intense laser pulse is reflected on the plasma mirror, it expels electrons at several narrow specific phase windows of the field. These subcycle attosecond electron pulses then experience an integrated momentum kick as they surf the laser electric field (laser streaking) and form the periodic fringes in the far field

在纳米结构存在的情况下,电子可以获得光子的能量。2009年, BARWICK B^[85]展示了一种超快电子显微镜变体—光子诱导近场电子显微镜(Photon-Induced Near Field Electron Microscopy, PINEM),当飞秒单电子包在纳米结构上与强光脉冲精确时空重叠时,能量-动量守恒条件可以满足,此时电子可直接吸收整数倍的光子,在能谱上表现为一系列离散的边带结构,边带峰的间隔能量对应于零损耗峰能量增益和损耗侧的泵浦光子能量。当只有获得能量的电子被过滤出来用于成像时,可在空间中直接成像近场电场分布,获得飞秒时间尺度上近场的时间行为,近场成像使得纳米级粒子和界面的可视化具有增强的对比度^[155, 192-194]。在此基础上,2020年南开大学 FU X W 等成功实现了一种双色近场调制的超快电子显微镜技术,并在纳米—飞秒尺度上探测了单个 VO₂ 纳米线从绝缘体到金属相变过程中的介电函数响应^[195]。PINEM效应的持续时间是激光脉冲和电子脉冲之间的互相关。电子脉冲的脉宽也可以使用 PINEM 实现原位测量^[196-197],与使用偏转器、有质动力或瞬态电场等方法相比更直接,2017年 HASSON M T 等^[53]借鉴这一方法在超快电镜上成功实现了孤立的脉宽低至 30 fs 的超短电子束的产生及测量。

3 在四维超快电子显微镜方面的应用

电子显微镜具有亚纳米甚至原子级的空间分辨能力,是研究材料、生物等显微结构的有效工具。将超短电子脉冲作为电子探针引入电子显微镜,发展出了超快电子衍射(UED)、四维超快透射电子显微镜

(UEM)、超快扫描电子显微镜(SUEM)以及超快阴极荧光(Time-Resolved Cathodoluminescence, TRCL)等动力学表征方法,可在微观尺度上实现对结构相变、表面等离子激元、磁结构及载流子动力学等超快过程的研究。理论上上文介绍的各种超快电子源均可应用于超快电子显微镜技术,但目前实践中通常采用基于半导体和金属平面光阴极(如LaB₆、铜等)或纳米尖端光阴极(如包裹氧化锆的钨针尖等)的飞秒光电发射技术产生超短电子脉冲。基于激光等离子体超短电子源和冷原子电子源的超快电子显微应用尚处于起步阶段,目前在超快电子衍射方面实现了原理性实验验证。以下将介绍四种超快电子显微技术及近年来所取得的重要研究进展。

3.1 超快电子衍射

超快电子衍射是一种利用超短电子脉冲,通过电子衍射在倒易空间研究气、液、固等体系结构动力学过程的实验方法。根据电子能量不同可细分为低能超快电子衍射(约为100 eV)和高能超快电子衍射(keV或MeV)。低能电子衍射多以背散射的形式获得衍射图谱。由于低能量的电子对材料表面结构敏感,非常适合用于研究材料表面结构的动态变化过程。其典型实验装置如图10(e)所示^[198]。一束紫外飞秒激光入射到电子枪中产生脉宽约为1 ps的低能电子脉冲。由微加工方法制得的电子枪外径尺寸小于100 μm,可尽量减小对背散射电子的阻挡作用,其结构如图10(h)所示。另一束飞秒激光入射到样品表面激发样品,探测器位于电子枪背面获得电子衍射图谱。GULDE M等^[128]利用超快低能电子衍射研究了聚合物/石墨烯超结构体系的结构动力学,阐明了聚合物与石墨烯结构动力学相互之间的影响。HORSTMANN J G等^[199]利用超快低能电子衍射成功研究揭示了硅单晶(111)表面铜原子超结构的光致绝缘-金属相变动力学过程,通过双脉冲飞秒激光实现了表面铜原子结构相变的相干调控。

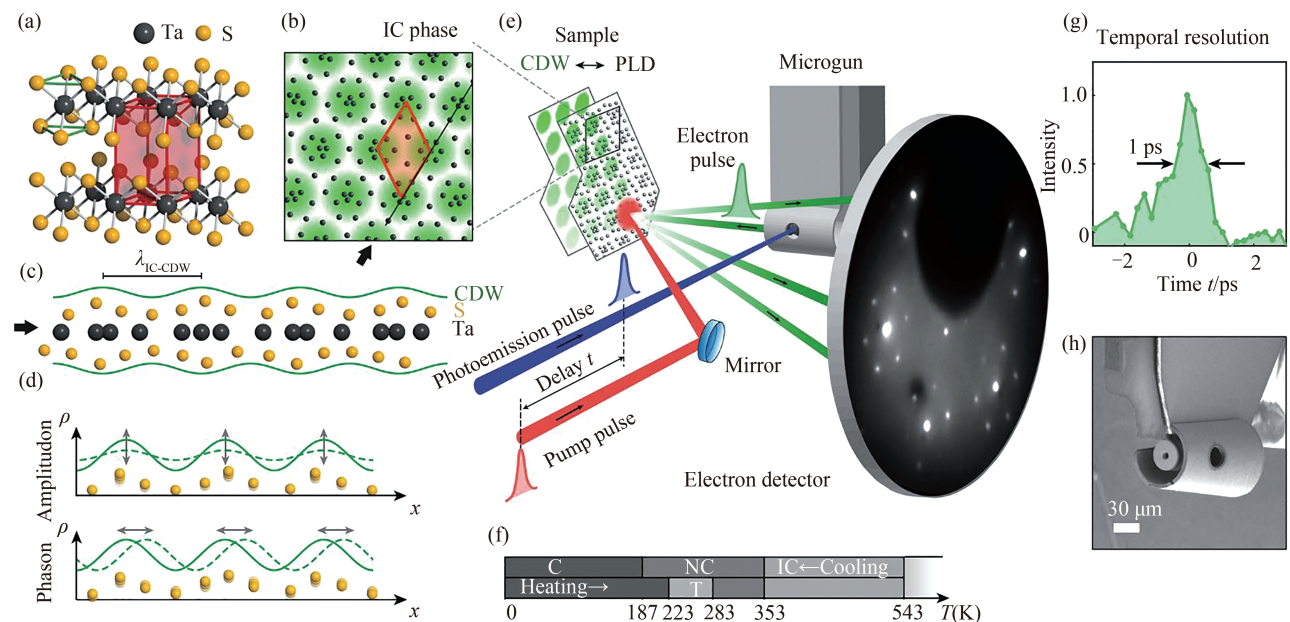


图10 超快低能电子衍射设备示意图^[198]。在背散射构型下,利用来自于微纳电子枪的超快低能电子脉冲(图(e)绿色)可探测由激光激发的表面结构的动态演化

Fig. 10 Set-up of ultrafast low energy electron diffraction in a backscattering geometry^[198]. Ultrashort electron pulses (green) from a nanofabricated electron gun probe the dynamical evolution of the laser-excited surface structure

电子的穿透深度随能量的增加而增加,因此对于高能超快电子衍射通常采用透射电子的方式形成衍射图谱。图11展示了位于SLAC的MeV超快电子衍射系统的示意图^[33],该系统的关键部件包括光电阴极射频枪、样品室、高效电子探测器、超稳定射频电源、钛宝石激光器和激光-射频计时系统等。最近,上海交通大学向导教授课题组结合双偏转消色差(Double Bend Achromat, DBA)技术与激光领域啁啾脉冲放大压缩技术将MeV超快电子衍射系统的时间分辨率提升至优于50 fs^[200]。MeV超快电子衍射可广泛应用于气态分子、固态物质等的结构动力学研究。例如YANG J等^[49]利用MeV超快电子衍射研究了气态碘分子的光致晶格振动模式,时间分辨率达到了230 fs。通过捕捉光化学反应中分子结构的动态变化,为研究光化学反应

机理提供了有效途径。此外, YANG J等^[201]还利用 MeV 超快电子衍射, 通过对非弹性散射的分析, 在超快电子衍射图中同时获得了吡啶分子的电子及原子结构的动力学信息。超快电子衍射也广泛应用于固态材料体系的光致相变、声子激发与散射等研究。例如, KOGAR A等^[202]利用 MeV 超快电子衍射, 观测到电荷密度波材料 LaTe_3 在超快光激发后出现了新的不同于平衡态的非平衡电荷密度波; SIE E J等^[203]通过超快电子衍射研究了外尔半金属材料 Td-WTe_2 在超快太赫兹光谱作用下的超快相变, 实现对外尔态的超快调控。

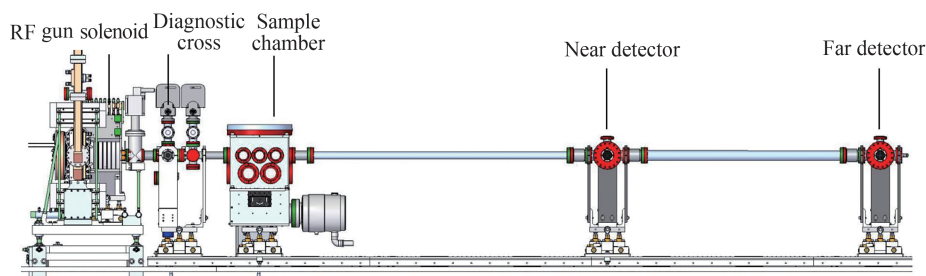


图 11 位于 SLAC 的 MeV 电子衍射系统示意图^[33]

Fig.11 Schematic of the MeV ultrafast electron diffraction beam line at SLAC^[33]. Reprinted from Ref. [33], with the permission of AIP Publishing

KeV 超快电子衍射与 MeV 超快电子衍射类似, 但其装置更为紧凑, 示意图如图 12 所示^[204], 利用紫外飞秒激光产生电子脉冲, 应用微波压缩技术实现电子脉冲的纵向压缩。KeV 超快电子衍射也广泛应用于结构动力学的研究。加州理工学院的 ZEWAIL A H 课题组基于 keV 超快电子衍射开展了大量的物质结构动力学方面的研究, 包括 VO_2 体系的光致金属-绝缘体相变过程^[69]、铜氧化物超导体中的电声耦合^[205]、水在亲水表面的结构动态变化^[206]以及脂肪酸双分子层的结构动力学^[207]等。MILLER R J D 课题组则利用超快电子衍射研究了铝的固液相变过程^[28]和有机盐中的分子运动过程^[51]等。近年来, SIWICK B J 课题组利用微波压缩技术对 keV 超快电子衍射装置中的电子脉冲进行压缩, 将其时间分辨率提升到了百飞秒以内^[8], 研究揭示了石墨中相干及非相干电子-声子耦合动力学特性, 并进一步对时间分辨的漫散射进行了深入研究, 观测到了石墨内电子-声子耦合及声子-声子散射的动力学过程^[208]。

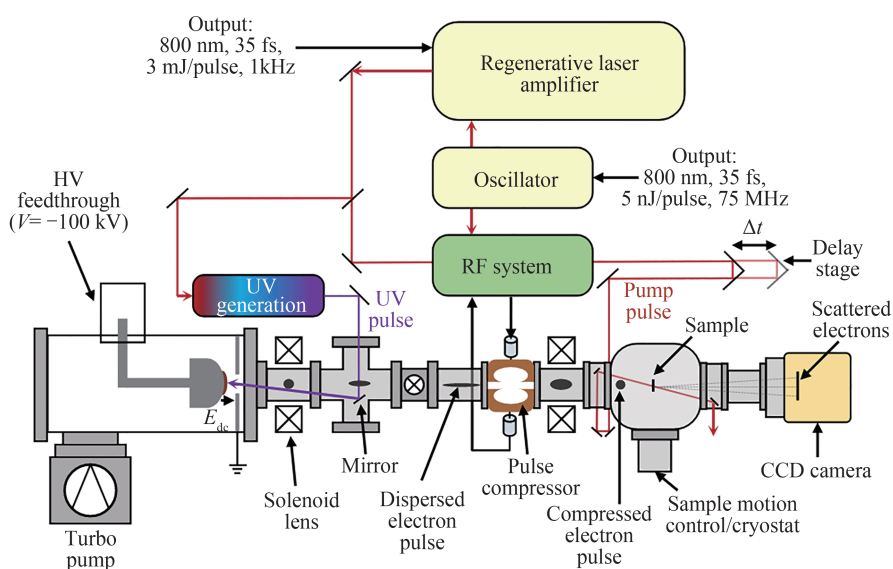


图 12 keV 超快电子衍射系统示意图^[204]

Fig.12 Schematic of keV ultrafast electron diffraction facility^[204]

3.2 四维超快透射电子显微镜

四维超快透射电子显微镜采用超短的飞秒脉冲电子束取代传统透射电子显微镜中的热发射或场发射的连续电子束, 对被飞秒脉冲激光激发后的薄样品进行探测和成像。其通常采用半导体平面光阴极(如

LaB₆等)或纳米尖端(如包裹氧化锆的钨针尖等)的飞秒光电发射产生超短电子脉冲。脉冲电子束经透射电子显微镜的加速系统和电磁透镜系统之后作用于薄样品,经下游的电子探测器进行探测和成像,有机地结合了透射电子显微镜的超高空间分辨率和飞秒激光的超快时间分辨率,突破了传统透射电子显微镜的单一空间分辨率的限制,可实现高时空分辨的超快电子显微成像、超快电子衍射以及超快电子能谱损失谱等测量功能。其典型实验装置如图13所示^[209],图中展示了光学、电子和磁性组件的示意图,一束紫外飞秒激光引入透射电镜的电子枪中激发产生电子脉冲,另一束飞秒激光引入样品位置激发样品。透射电子显微镜的电子光学设计基本保留。四维超快透射电子显微镜最早于2005年由加州理工学院ZEWAIL A H教授课题组成功设计开发,主要利用了紫外飞秒激光激发热发射LaB₆光阴极产生的超短脉冲电子束。通过控制紫外飞秒激光的能流量,ZEWAIL A H团队利用单电子或少电子脉冲获得了亚皮秒的时间分辨能力,并利用四维超快透射电子显微镜的不同功能和探测模式对多个体系进行了动力学研究^[3]。例如,利用选区超快电子衍射在亚皮秒时间尺度研究揭示了金薄膜和薄层石墨的结构动力学^[79],结合纳米尺度的超快暗场成像揭示了石墨薄膜在皮秒尺度纵向的相干晶格振荡、横向在纳秒尺度的机械鼓振荡以及其莫尔条纹动力学^[210];发展了汇聚束超快电子衍射技术,在皮秒尺度研究揭示了单晶硅薄膜结构动力学^[211],该超快汇聚束探测技术可扩展到扫描透射电子成像、纳米层析成像等技术,有望在单个晶胞内绘制出超快时间尺度的结构动力学图像;利用UEM的单发超快电子衍射研究揭示了无定形硅在纳秒尺度的不可逆结晶动力学过程^[212];结合电子能量损失谱(Electron Energy Loss Spectroscopy, EELS)发展了飞秒时间分辨的电子能量损失谱(Femtosecond resolved EELS, FEELS)测量技术,研究了石墨在飞秒激光激发下在飞秒时间尺度的表面等离激元和体等离激元动力学特性^[86];结合FEELS和电子能量过滤成像,利用纳米结构调制的自由电子-光子相互作用,发展了PINEM成像技术,并观测了碳纳米管在飞秒激光激发下的表面等离激元倏逝场^[85];此外,结合透射电子显微镜的三维重构技术,还发展了超快的三维重构与成像技术^[213]等。

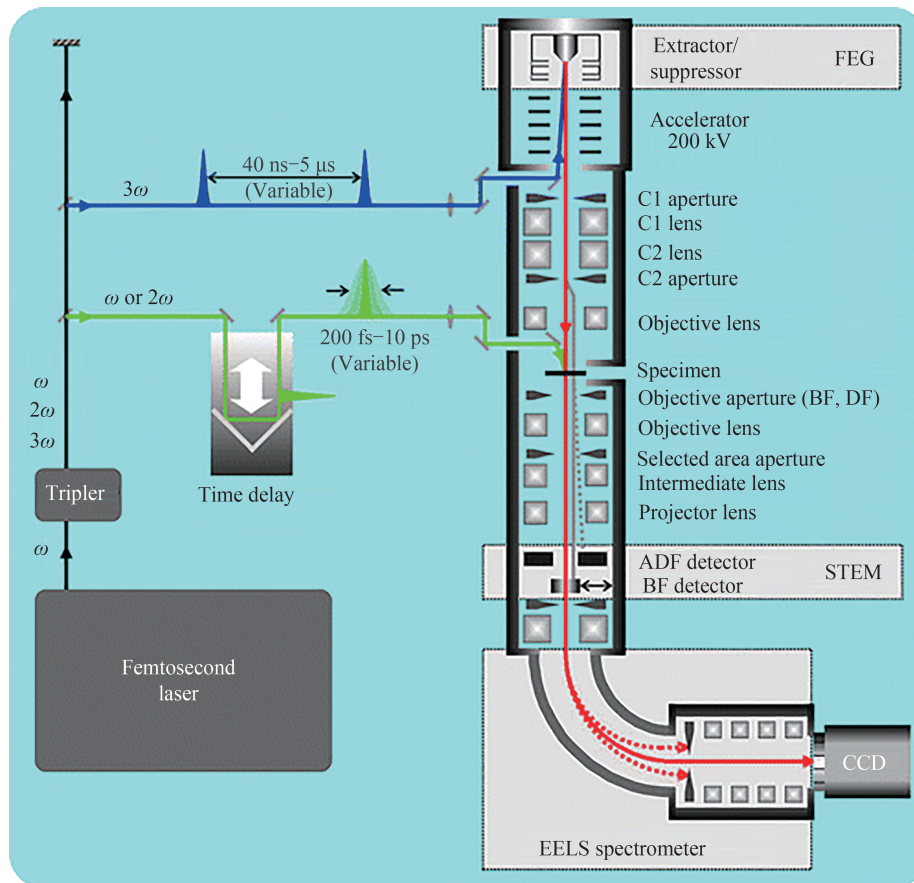


图13 四维超快透射电子显微镜的设备示意图^[209]

Fig. 13 Schematic of 4D ultrafast electron microscopy^[209]. Reprinted with permission from Ref. [209]. Copyright (2007) American Chemical Society

近年来,利用四维超快透射电子显微镜的成像优势,同时结合成像及衍射,人们将动力学的研究推进到了更多复杂的微纳尺度材料体系。FLANNIGAN D J课题组利用超快电子显微成像研究了二维材料中声子在实空间的产生及传播过程^[214-215]。中科院物理所李建奇团队结合超快透射电子显微镜的超快电子衍射和超快电子显微成像,研究揭示了形状记忆合金 $Mn_{50}Ni_{40}Sn_{10}$ 中的马氏体相变动力学过程^[216]。BAUM P 课题组基于局域电磁场对脉冲电子的偏转效应,利用超快电子显微镜获得了太赫兹波在金属微结构中的传播动力学图像^[217]。在 UEM 的单脉冲电子成像方面,LORENTZ U J 等^[218]研究揭示了铅金属纳米液滴在 ZnO 纳米管中的纳秒尺度的流动动力学行为;CHEN B 等^[219]研究了 GaAs 纳米线/金纳米球体系的多元共金反应不可逆动力学过程,揭示了该共金反应中的多种新物相和重要热力学参数;南开大学的 FU X W 团队利用单脉冲电子成像技术研究揭示了单个金纳米颗粒在气体-溶液界面的弹道输运动力学^[220]。最近,在 ZEWAIL A H 教授课题组发展的超快暗场像技术基础之上,DANZ T 等^[221]在超快透射电子显微镜中进一步发展了更为先进的暗场像成像技术,通过特制的可选择多衍射斑的物镜光阑套选特定的衍射斑系列用于提升超快暗场成像的质量,首次在纳米与亚皮秒时空尺度研究揭示了电荷密度波材料 1T-TaS₂ 在光致相变过程中电荷密度波畴壁的动态演化过程。此外,基于早期 ZEWAIL A H 教授课题组发现的光学近场与电子相互作用的 PINEM 效应^[85],近年来引申出了更多重要的研究工作。例如,利用 PINEM 效应对空间自由电子波函数的调制作用,FEIST A 等^[155]展示了利用纳米受限光场对自由电子波函数的量子相干调制;LUMMEN T T A 等^[222]利用 PINEM 效应观测到了表面等离子激元在金属绝缘体界面处的产生、传播及干涉过程;WANG K 等^[223]利用 PINEM 效应研究了光学微腔与自由电子的量子相互作用,解析了光学微腔的能带结构,并得到了空腔谐振模的实空间分布;KFIR O 等^[224]利用微米球光学回音壁谐振腔的光学回音壁模式对超快电子脉冲实现了高强度的相位调制,获得了高达 700 eV 的电子能量展宽调制效果;VANACORE G M 等^[225]利用手性近场等离子激元调控产生了电子涡旋束;南开大学 FU X W 团队则基于 PINEM 效应实现了一种双色近场调制的超快电子显微镜技术,实现了约 50 fs 的时间分辨率,并在纳米-飞秒尺度上探测了单个 VO₂ 纳米线从绝缘体到金属的相变过程中的介电函数响应^[195]。

四维超快透射电子显微镜也可用于磁结构的动力学研究,被称为超快洛伦兹电子显微镜。例如,NARA R D S 等^[226]利用超快洛伦兹电镜观测了坡莫合金圆盘中单个磁涡旋的光致退磁过程,实现了优于 100 nm 的空间分辨能力和 700 fs 的时间分辨能力;FU X W 等^[227]研究揭示了坡莫合金纳米磁盘结构中磁涡旋的反转磁化动力学行为以及其飞秒激光诱导产生的多种新奇亚稳态多涡旋磁畴结构;CAO G 等^[228]则利用超快洛伦兹电镜研究了坡莫合金中磁光栅结构的光致磁进动过程。

得益于近年来冷冻电镜技术的快速发展,四维超快透射电子显微镜也被拓展到生物分子的结构动力学研究,例如与冷冻电镜技术结合,使得超快冷冻电子显微镜技术成为可能。FITZPATRICK A W P 等^[229]利用超快电子衍射模式对冷冻状态下的淀粉蛋白进行了结构动力学研究,揭示了淀粉蛋白中氢键的作用强度;LORENTZ U J 等^[230]则利用超快明场像模式研究纳米纤维状 DNA 分子的生物机械动力学特性。相关工作初步展示了四维超快电子显微镜技术与冷冻电镜技术结合的可能性和应用前景。

原位四维超快电子显微镜技术也是四维超快电子显微镜技术发展的重要方向之一。通常情况下四维超快电子显微镜只能在高真空环境下运行,而相当多的物质动力学过程都是发生在溶液或气相等复杂环境中,例如晶体生长、液晶相变、光催化反应、细胞及蛋白分子发挥生理功能等过程,因此,原位四维超快电子显微镜技术一直备受关注,近年来也取得了一些研究进展。例如,FU X W 等将四维超快电子显微镜与超薄液体池技术进行结合,率先发展了液相四维超快透射电子显微镜技术,使得复杂溶液环境下的超快电子成像成为可能,并首次在纳秒和纳米时空尺度下捕捉到了液体中纳米颗粒二聚体的超快弹道旋转动力学过程及在长时间尺度下的随机扩散旋转行为,揭示了布朗运动在超短时间尺度下的弹道动力学特性^[231],并利用该技术进一步研究了水溶液中单个纳米金颗粒的瞬态表面等离子激元激发、光热能量转换等超快动力学过程^[232]以及金纳米颗粒之间的光致化学反应动力学过程^[233]。

除了使用飞秒激光激发透射电子显微镜电子枪产生脉冲电子束实现四维超快透射电子显微镜之外,近年来基于微波调制常规热发射或场发射连续电子束获得超短电子脉冲来实现四维超快透射电子显微镜也得到了迅速发展,并逐渐成为了四维超快电子显微镜技术发展的另一个新兴方向。2019年,布鲁克海文国

家实验室的ZHU Y M团队基于微波行波器实现了对传统透射电子显微镜连续电子束的调制,通过微孔光阑选通获得了皮秒量级的高相干性短电子脉冲,并利用该电子脉冲获得了高质量的纳米甚至原子级的空间成像和倒空间衍射^[234-235]。在此基础上,FU X W等^[236]进一步利用同步的微波对样品进行激发,利用微波调制产生的脉冲电子进行成像,实现基于微波调制、无需飞秒激光的新型四维超快电镜技术,并利用该技术在皮秒与纳米时空尺度下实时观测揭示了高频电磁波在微/纳天线等微型电子器件中的传播动力学特性,其实验装置如图14所示。将基于微波行波器的微波脉冲电子发生器安装于电子枪和聚光镜之间,通入微波信号对常规连续的场发射电子束或热发射电子束进行调制并经过选通小孔获得超短电子脉冲。如果采用更小的微孔电子选通光阑,该技术原则上可以获得几百飞秒量级的电子脉冲^[237-238],有望实现亚皮秒时间分辨的无需飞秒激光的四维超快电子显微镜。

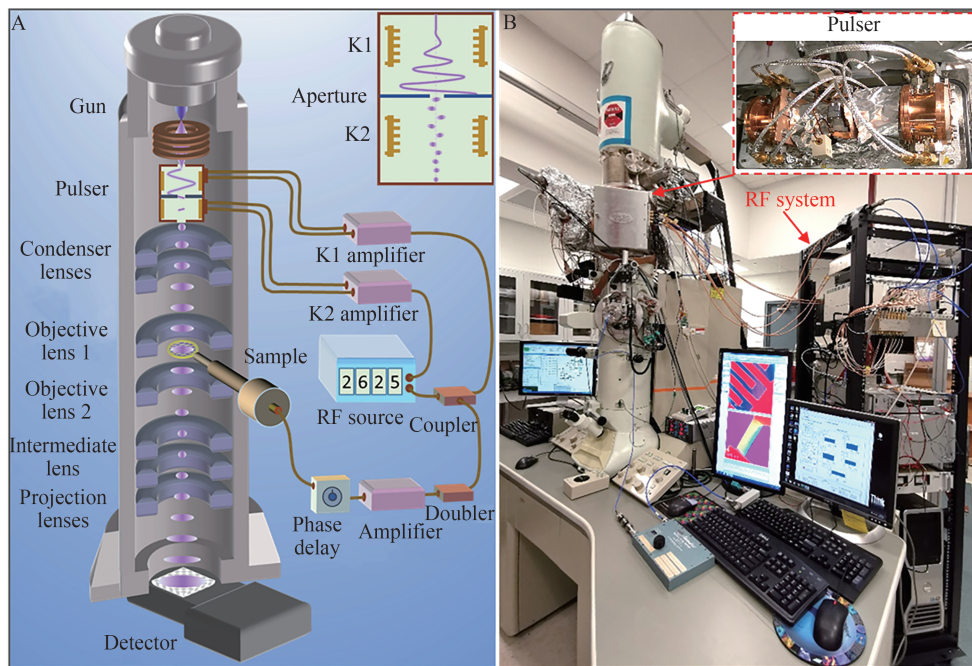


图14 基于微波脉冲电子发生器的四维超快透射电子显微镜设备示意图及实物图^[236]

Fig. 14 Schematic and photo of laser-free 4D ultrafast electron microscopy based on radio-frequency pulser^[236]

综上,四维超快透射电镜因集成了倒空间超快电子衍射、空间超快电子成像和超快电子能量损失谱等探测功能,在多个研究领域展现了强大的应用潜力,成为研究微观超快动力学的重要方法。与超快电子衍射系统相比,其应用领域更为广泛,不过目前四维超快透射电镜的时间分辨率约为亚皮秒量级,相较于超快电子衍射系统(~ 100 fs)还有待进一步提高。受单脉冲电子数的限制,四维超快透射电子显微镜多用于可逆过程的超快动力学研究,而超快电子衍射系统因脉冲压缩技术的应用,电子脉冲可具有更多的电子数,可进行单脉冲探测,用于研究非可逆的动力学过程。

3.3 在超快扫描电子显微镜方面的应用

超快扫描电子显微镜是将超短电子发射源应用于扫描电子显微镜,通过超短电子脉冲激发的二次电子或背散射电子进行成像分析,基于泵浦探测技术实现对动态过程的观测研究,其实验装置如图15所示^[239],泵浦激光激发样品,电子脉冲扫描样品表面激发产生二次电子或背散射电子,探测器收集二次电子或背散射电子进行成像,时间延迟通过控制泵浦光与电子探针脉冲的时间间隔来调节。与四维超快透射电子显微镜类似,超短电子脉冲主要来源于平面光阴极和纳米尖端的飞秒光电发射。超快扫描电子显微镜继承了扫描电镜纳米的空间分辨能力和电子脉冲亚皮秒的时间分辨率,在半导体的载流子动力学方面实现了重要应用,可以用于观测光激发载流子在材料表面的动态过程。2009年,美国加州理工学院ZEWAIL A H教授团队成功设计开发了世界上第一台超快扫描电子显微镜系统,并在皮秒-纳米时空尺度下成功捕捉到了硅、锗、GaAs等经典半导体材料中光生载流子的扩散及复合动力学过程^[240]。随后相关技术得到了进一步的发

展和应用。NAJAFIE等^[241]利用超快扫描电子显微镜研究了硅基p-n结区光生载流子的激发、电子空穴的分离以及复合的动力学过程,观测到了载流子的弹道传输方式。LIAO B等^[242]利用超快扫描电子显微镜观测到了黑磷中光激发空穴载流子面内扩散的各向异性动力学过程,沿扶手椅型方向的扩散速率比Zigzag方向的高15倍。MAURIZIO Z等^[243]观测了氧化铝薄膜的光生载流子动力学过程。杜普萨拉国王科技大学的MOHAMMED O F课题组则进一步发展了第二代超快扫描电子显微镜系统,深入研究了CdSe单晶、CdTe单晶、InGaN纳米线阵列等的光生载流子扩散动力学过程^[244-246],展示了超快扫描电子显微镜技术在半导体时空分辨载流子复合及扩散传输动力学方面广阔的应用前景。

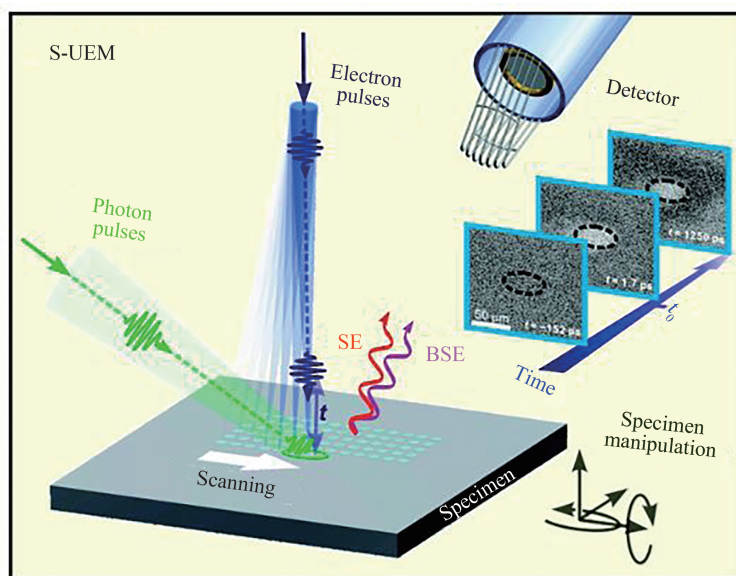


图15 超快扫描电子显微镜的装置示意图^[239]

Fig.15 Schematic of scanning ultrafast electron microscopy^[239]. Reprinted with permission from Ref. [239]. Copyright (2011) American Chemical Society

3.4 在超快阴极荧光方面的应用

阴极荧光技术通常集成于扫描电子显微镜,通过分析高能电子激发的荧光光谱信息,实现对半导体纳米结构的光学性质研究。超快阴极荧光通过超短电子脉冲来激发阴极荧光,利用条纹相机或时间相关单光子计数器测量时间分辨的荧光信号,获得阴极荧光的寿命信息。借助于扫描电子显微镜的空间分辨能力,可实现对纳米结构光学性质的动力学测试分析。与超快扫描电子显微镜技术有所不同,超快阴极荧光不需要超快激光泵浦,只用超短电子脉冲作为阴极荧光激发源。与之前介绍的超快电子显微镜所用的光激发相比,阴极荧光技术中采用的聚焦电子束对材料带隙能量没有限制。自20世纪80年代起,科学家便已经开始研究探索实现时间分辨的阴极荧光光谱测量技术^[247-249],主要采用静电电子束闸(Beam blanker)产生脉冲电子束,并结合时间相关单光子计数器或取样积分器进行时间分辨光谱测量。例如Steckenborn A等在扫描电子显微镜中加上一个脉冲偏转电场获得了几纳秒宽的脉冲电子,实现了纳秒时间分辨的阴极荧光测量^[247]。2005年,瑞士洛桑理工大学的DEVEAUD B教授课题组将飞秒激光和扫描电子显微镜进行结合,通过使用飞秒激光激发扫描电镜的平面光阴极获得了皮秒电子脉冲,并集成阴极荧光光谱仪和条纹相机,首次实现了皮秒时间分辨的阴极荧光测量,同时保持了扫描电子显微镜的纳米空间分辨率^[250]。图16为超快阴极荧光系统的典型装置示意图^[251],将飞秒激光导入到扫描电子显微镜的电子枪中产生电子脉冲,加速的电子脉冲聚焦到样品表面激发瞬态阴极荧光,通过抛物面镜将瞬态荧光依次导入光谱仪和条纹相机得到时间分辨的阴极荧光。MERANO M等^[250]利用超快阴极荧光技术研究了GaAs金字塔纳米结构的载流子动力学特性,发现了载流子在金字塔结构中传输的不同路径。为了使超快阴极荧光获得更高的时空分辨率,DEVEAUD B教授课题组进一步将平面金属膜光阴极改换成了镀金属膜的纳米光纤光阴极(尖端球面直径小于1 μm),将产生脉冲光电子的区域大幅减小,有效提高了脉冲电子的相干性和时空分辨率^[252]。FU X W等^[253]利用改进后的

皮秒超快阴极荧光技术研究了弯曲应变对 ZnO 微米线激子动力学的影响规律,发现弹性应变梯度可以驱动激子流向弯曲微米线受拉应力的一侧,该过程发生在皮秒时间尺度。随着高时空相干脉冲电子技术和条纹相机技术的发展,如基于热场发射枪的脉冲光电子发射技术,未来可进一步提升超快阴极荧光技术的时空分辨性能。由于超快阴极荧光主要用于高时空分辨的能量载流子(电子、空穴、激子等)辐射复合发光动力学测量,而超快扫描电子显微镜技术主要用于时空分辨的载流子复合(包含辐射复合及非辐射复合)及扩散动力学测量,两者在能量载流子动力学探测功能上形成一定互补,因此将两者进行有机结合可广泛应用于探测半导体光电材料中全面的能量载流子动力学信息。

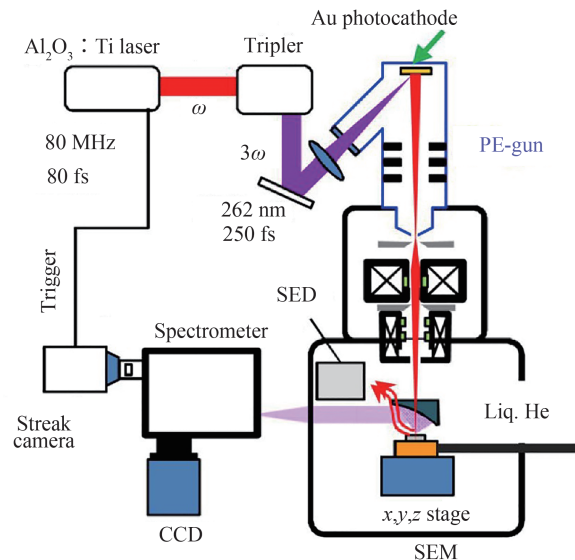


图 16 超快阴极荧光设备示意图^[251]

Fig. 16 Schematic of ultrafast cathodoluminescence^[251]. Reprinted with the permission from Ref. [251]. Copyright 2013 AIP Publishing LLC

4 结论与展望

本文详细回顾了基于光场的超短相干电子脉冲的产生及调控相关问题,介绍了各种具有不同特性的超短相干电子源的产生方案及其相应的应用进展,特别是在四维超快电子显微成像方面的技术突破。随后详细论述了各种光场包括射频、太赫兹、近红外光场等对超短电子束的纵向调制及最新进展,并介绍了利用光场对超短电子脉冲的横向调制来表征其时间信息的进展,以及四种超快电子显微技术及近年来所取得的重要研究进展。利用超快光场不仅可实现超短相干电子脉冲的产生,保证超快激光脉冲与超短相干电子脉冲间的同步性,还可实现电子脉冲的光场调控,其调控精度取决于所施加光场的振荡周期,为进一步实现时空分辨率接近电子运动尺度的超快电子衍射和显微术提供了重要途径。具有皮秒、飞秒或阿秒脉宽的超短电子脉冲是各种科学和技术应用的核心。目前超短电子源仍缺少阿秒电子显微成像及衍射、亚纳米电子显微表征对所需的电子脉宽(亚飞秒)、低能散(0.5 eV)、电子电流、发射度和平均亮度等要求。因此,如何有效产生高品质阿秒电子源是实现飞秒甚至阿秒时间分辨率的重要前提。目前超快电子显微时间分辨率的另一大限制因素是泵浦激光与电子探针间的时间抖动和同步问题,这直接限制了超快电子显微技术的时间分辨率。目前对于超快电子衍射中的电子探针来说,传输几飞秒甚至阿秒量级的高亮度电子束,且到达目标样品时的时间稳定性良好,仍是非常具有挑战性的目标。库仑膨胀也是限制高品质阿秒电子脉冲产生的一个重要因素,需要发展变革性技术解决这一长期存在的困难。阿秒电子源的时间特性对于应用来说非常重要,因此还需要建立有效的针对阿秒电子脉冲的表征方法。未来将阿秒电子与具有受控波形的激光场相结合将为光波电子学铺平道路,在光波电子学中,可直接由光的电场控制电子。在此基础上发展起来的现代四维超快电子显微镜和衍射技术有着巨大的应用范围,几乎没有样品类型或形态的限制。因此,随着阿秒电子的发展,阿秒电子衍射和显微术可与传统阿秒光谱学形成互补,来用于观察空间和时间中的基本光-物质相互作用。

参考文献

- [1] ECHTERNKAMP K E, FEIST A, SCHAFFER S, et al. Ramsey-type phase control of free-electron beams[J]. *Nature Physics*, 2016, 12(11): 1000-1004.
- [2] MILLER R J D. Femtosecond crystallography with ultrabright electrons and X-rays: capturing chemistry in action[J]. *Science*, 2014, 343(6175): 1108-1116.
- [3] ZEWAİL A H. Four-dimensional electron microscopy[J]. *Science*, 2010, 328: 187-193.
- [4] FRIGGE T, HAFKE B, WITTE T, et al. Optically excited structural transition in atomic wires on surfaces at the quantum limit[J]. *Nature*, 2017, 544(7649): 207-211.
- [5] KASMI L, KREIER D, BRADLER M, et al. Femtosecond single-electron pulses generated by two-photon photoemission close to the work function[J]. *New Journal of Physics*, 2015, 17(3): 033008.
- [6] BORMANN R, STRAUCH S, SCHÄFER S, et al. An ultrafast electron microscope gun driven by two-photon photoemission from a nanotip cathode[J]. *Journal of Applied Physics*, 2015, 118(17): 173105.
- [7] HOFFROGGE J, STEIN J P, KRUEGER M, et al. Tip-based source of femtosecond electron pulses at 30 keV[J]. *Journal of Applied Physics*, 2014, 115(9): 094506.
- [8] CHATELAIN R P, MORRISON V R, KLARENAAR B L M, et al. Coherent and incoherent electron-phonon coupling in graphite observed with radio-frequency compressed ultrafast electron diffraction[J]. *Physical Review Letters*, 2014, 113(23): 235502.
- [9] GLISERIN A, WALBRAN M, KRAUSZ F, et al. Sub-phonon-period compression of electron pulses for atomic diffraction[J]. *Nature Communications*, 2015, 6: 8723.
- [10] MAXSON J, CESAR D, CALMASINI G, et al. Direct measurement of sub-10 fs relativistic electron beams with ultralow emittance[J]. *Physical Review Letters*, 2017, 118(15): 154802.
- [11] OUDHEUSDEN TVAN, PASMANS P, GEER S B VAN DER, et al. Compression of subrelativistic space-charge-dominated electron bunches for single-shot femtosecond electron diffraction[J]. *Physical Review Letters*, 2010, 105(26): 264801.
- [12] KEALHOFER C, SCHNEIDER W, EMBERGER D, et al. All-optical control and metrology of electron pulses[J]. *Science*, 2016, 352(6284): 429-433.
- [13] SEARS C M S, COLBY E, ISCHEBECK R, et al. Production and characterization of attosecond electron bunch trains[J]. *Physical Review Special Topics-Accelerators and Beams*, 2008, 11(6): 061301.
- [14] KOZAK M, ECKSTEIN T, SCHONENBERGER N, et al. Inelastic ponderomotive scattering of electrons at a high-intensity optical travelling wave in vacuum[J]. *Nature Physics*, 2018, 14(2): 121-125.
- [15] BAUM P, ZEWAİL A H. Attosecond electron pulses for 4D diffraction and microscopy[J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 2007, 104(47): 18409-18414.
- [16] MORIMOTO Y, BAUM P. Diffraction and microscopy with attosecond electron pulse trains[J]. *Nature Physics*, 2018, 14(3): 252-256.
- [17] KOZAK M, MCNEUR J, LEEDLE K J, et al. Optical gating and streaking of free electrons with sub-optical cycle precision[J]. *Nature Communications*, 2017, 8: 14342.
- [18] PRIEBE K E, RATHJE C, YALUNIN S V, et al. Attosecond electron pulse trains and quantum state reconstruction in ultrafast transmission electron microscopy[J]. *Nature Photonics*, 2017, 11(12): 793-797.
- [19] PLETTNER T, BYER R L, COLBY E, et al. Visible-laser acceleration of relativistic electrons in a semi-infinite vacuum[J]. *Physical Review Letters*, 2005, 95(13): 134801.
- [20] COWAN B M. Two-dimensional photonic crystal accelerator structures[J]. *Physical Review Special Topics-Accelerators and Beams*, 2003, 6(10): 101301.
- [21] SCHÄCHTER L, BYER R L, SIEMANN R H. Wake field in dielectric acceleration structures[J]. *Physical Review E*, 2003, 68(3): 036502.
- [22] PERALTA E A, SOONG K, ENGLAND R J, et al. Demonstration of electron acceleration in a laser-driven dielectric microstructure[J]. *Nature*, 2013, 503(7474): 91-94.
- [23] MICHALIK A M, SIPE J E. Evolution of non-gaussian electron bunches in ultrafast electron diffraction experiments: comparison to analytic model[J]. *Journal of Applied Physics*, 2009, 105(8): 084913.
- [24] OUDHEUSDEN T V, JONG E F D, GEER S B V D, et al. Electron source concept for single-shot sub-100 fs electron diffraction in the 100 keV range[J]. *Journal of Applied Physics*, 2007, 102(9): 093501.
- [25] WILLIAMSON J C, CAO J, IHEE H, et al. Clocking transient chemical changes by ultrafast electron diffraction[J]. *Nature*, 1997, 386(6621): 159-162.
- [26] IHEE H, LOBASTOV V A, GOMEZ U M, et al. Direct imaging of transient molecular structures with ultrafast diffraction[J]. *Science*, 2001, 291(5503): 458-462.
- [27] CAO J, HAO Z, PARK H, et al. Femtosecond electron diffraction for direct measurement of ultrafast atomic motions[J]. *Applied Physics Letters*, 2003, 83(5): 1044-1046.
- [28] SIWICK B J, DWYER J R, JORDAN R E, et al. An atomic-level view of melting using femtosecond electron diffraction[J]. *Science*, 2003, 302(5649): 1382-1385.

- [29] WALDECKER L, BERTONI R, ERNSTORFER R. Compact femtosecond electron diffractometer with 100 keV electron bunches approaching the single-electron pulse duration limit[J]. *Journal of Applied Physics*, 2015, 117(4): 044903.
- [30] CARBAJO S, NANNI E A, WONG L J, et al. Direct longitudinal laser acceleration of electrons in free space[J]. *Physical Review Accelerators and Beams*, 2016, 19(2): 021303.
- [31] ZHU P, ZHU Y, HIDAKA Y, et al. Femtosecond time-resolved MeV electron diffraction[J]. *New Journal of Physics*, 2015, 17: 063004.
- [32] ZHU P F, FU F C, LIU S G, et al. Time-resolved visualization of laser-induced heating of gold with meV ultrafast electron diffraction[J]. *Chinese Physics Letters*, 2014, 31(11): 116101.
- [33] WEATHERSBY S P, BROWN G, CENTURION M, et al. Mega-electron-volt ultrafast electron diffraction at slac national accelerator laboratory[J]. *Review of Scientific Instruments*, 2015, 86(7): 073702.
- [34] LI R, HUANG W, DU Y, et al. Note: Single-shot continuously time-resolved MeV ultrafast electron diffraction[J]. *Review of Scientific Instruments*, 2010, 81(3): 036110.
- [35] YANG J, KAN K, NARUSE N, et al. 100-femtosecond MeV electron source for ultrafast electron diffraction[J]. *Radiation Physics and Chemistry*, 2009, 78(12): 1106-1111.
- [36] HASTINGS J B, RUDAKOV F M, DOWELL D H, et al. Ultrafast time-resolved electron diffraction with megavolt electron beams[J]. *Applied Physics Letters*, 2006, 89(18): 184109.
- [37] FILL E, VEISZ L, APOLONSKI A, et al. Sub-fs electron pulses for ultrafast electron diffraction[J]. *New Journal of Physics*, 2006, 8(11): 272.
- [38] WANG X J, XIANG D, KIM T K, et al. Potential of femtosecond electron diffraction using near-relativistic electrons from a photocathode RF electron gun[J]. *Journal of the Korean Physical Society*, 2006, 48(3): 390-396.
- [39] LAHME S, KEALHOFER C, KRAUSZ F, et al. Femtosecond single-electron diffraction[J]. *Structural Dynamics*, 2014, 1(3): 034303.
- [40] AIDELSBURGER M, KIRCHNER F O, KRAUSZ F, et al. Single-electron pulses for ultrafast diffraction[J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 2010, 107(46): 19714-19719.
- [41] WANG C, KANG Y. Double-mode electrostatic dispersing prism for electron pulse time-domain compression[J]. *Optik*, 2014, 125(21): 6352-6356.
- [42] GLISERIN A, APOLONSKI A, KRAUSZ F, et al. Compression of single-electron pulses with a microwave cavity[J]. *New Journal of Physics*, 2012, 14: 073055.
- [43] GAO M, JEAN-RUEL H, COONEY R R, et al. Full characterization of RF compressed femtosecond electron pulses using ponderomotive scattering[J]. *Optics Express*, 2012, 20(11): 12048-12058.
- [44] CHATELAIN R P, MORRISON V R, GOUBOUT C, et al. Ultrafast electron diffraction with radio-frequency compressed electron pulses[J]. *Applied Physics Letters*, 2012, 101(8): 081901.
- [45] TOKITA S, HASHIDA M, INOUE S, et al. Single-shot ultrafast electron diffraction with a laser-accelerated sub-MeV electron pulse[J]. *Physical Review Letters*, 2009, 95(11): 111911.
- [46] BAUM P, ZEWAİL A H. 4D attosecond imaging with free electrons: diffraction methods and potential applications[J]. *Chemical Physics*, 2009, 366(1-3): 2-8.
- [47] BAUM P, ZEWAİL A. Femtosecond diffraction with chirped electron pulses[J]. *Chemical Physics Letters*, 2008, 462(1-3): 14-17.
- [48] KIRCHNER F O, GLISERIN A, KRAUSZ F, et al. Laser streaking of free electrons at 25 keV[J]. *Nature Photonics*, 2014, 8: 52-57.
- [49] YANG J, GUEHR M, SHEN X, et al. Diffractive imaging of coherent nuclear motion in isolated molecules[J]. *Physical Review Letters*, 2016, 117(15): 153002.
- [50] MORRISON V R, CHATELAIN R P, TIWARI K L, et al. A photoinduced metal-like phase of monoclinic VO₂ revealed by ultrafast electron diffraction[J]. *Science*, 2014, 346(6208): 445-448.
- [51] GAO M, LU C, JEAN-RUEL H, et al. Mapping molecular motions leading to charge delocalization with ultrabright electrons[J]. *Nature*, 2013, 496(7445): 343-346.
- [52] ERNSTORFER R, HARB M, HEBEISEN C T, et al. The formation of warm dense matter: Experimental evidence for electronic bond hardening in gold[J]. *Science*, 2009, 323(5917): 1033-1037.
- [53] HASSAN M T, BASKIN J S, LIAO B, et al. High-temporal-resolution electron microscopy for imaging ultrafast electron dynamics[J]. *Nature Photonics*, 2017, 11: 425-430.
- [54] HASSAN M T, LUU T T, MOULET A, et al. Optical attosecond pulses and tracking the nonlinear response of bound electrons[J]. *Nature*, 2016, 530(7588): 66-70.
- [55] SHAO H C, STARACE A F. Detecting electron motion in atoms and molecules[J]. *Physical Review Letters*, 2010, 105(26): 263201.
- [56] YAKOVLEV V S, STOCKMAN M I, KRAUSZ F, et al. Atomic-scale diffractive imaging of sub-cycle electron dynamics in condensed matter[J]. *Scientific Reports*, 2015, 5(1): 14581.
- [57] VANACORE G M, FITZPATRICK A W P, ZEWAİL A H. Four-dimensional electron microscopy: ultrafast imaging, diffraction and spectroscopy in materials science and biology[J]. *Nano Today*, 2016, 11(2): 228-249.

- [58] CHASE T, TRIGO M, REID A H, et al. Ultrafast electron diffraction from non-equilibrium phonons in femtosecond laser heated Au films[J]. *Applied Physics Letters*, 2016, 108(4): 041909.
- [59] FITZPATRICK A W P, VANACORE G M, ZEWEIL A H. Nanomechanics and intermolecular forces of amyloid revealed by four-dimensional electron microscopy[J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 2015, 112(11): 3380-3385.
- [60] ZEWEIL A H. 4D visualization of matter: Recent collected works of Ahmed H Zewail, Nobel Laureate [C]. London: Imperial College Press, 2014
- [61] SCIAINI G, MILLER R J D. Femtosecond electron diffraction: Heralding the era of atomically resolved dynamics[J]. *Reports on Progress in Physics*, 2011, 74(9): 096101.
- [62] MILLER R J D, ERNSTORFER R, HARB M, et al. 'Making the molecular movie': First frames [J]. *Acta Crystallographica a-Foundation and Advances*, 2010, 66: 137-156.
- [63] ZEWEIL A H, THOMAS J M. 4D ultrafast electron imaging: developments and applications[M]. 4D electron microscopy, London: Imperial College Press, 2010: 179-273.
- [64] ZEWEIL A H. 4D ultrafast electron diffraction, crystallography, and microscopy[J]. *Annual Review of Physical Chemistry*, 2006, 57(1): 65-103.
- [65] REED B W. Femtosecond electron pulse propagation for ultrafast electron diffraction[J]. *Journal of Applied Physics*, 2006, 100(3): 034916.
- [66] SIWICK B J, DWYER J R, JORDAN R E, et al. Femtosecond electron diffraction studies of strongly driven structural phase transitions[J]. *Chemical Physics*, 2004, 299(2): 285-305.
- [67] HEBEISEN C T, SCIAINI G, HARB M, et al. Grating enhanced ponderomotive scattering for visualization and full characterization of femtosecond electron pulses[J]. *Optics Express*, 2008, 16(5): 3334-3341.
- [68] EICHBERGER M, SCHAEFER H, KRUMOVA M, et al. Snapshots of cooperative atomic motions in the optical suppression of charge density waves[J]. *Nature*, 2010, 468(7325): 799-802.
- [69] BAUM P, YANG D S, ZEWEIL A H. 4D visualization of transitional structures in phase transformations by electron diffraction[J]. *Science*, 2007, 318(5851): 788-792.
- [70] PARK H, WANG X, NIE S, et al. Direct and real-time probing of both coherent and thermal lattice motions[J]. *Solid State Communications*, 2005, 136(9): 559-563.
- [71] MUSUMECI P, MOODY J T, SCOBY C M, et al. Laser-induced melting of a single crystal gold sample by time-resolved ultrafast relativistic electron diffraction[J]. *Applied Physics Letters*, 2010, 97(6): 063502.
- [72] FU F, LIU S, ZHU P, et al. High quality single shot ultrafast MeV electron diffraction from a photocathode radio-frequency gun[J]. *Review of Scientific Instruments*, 2014, 85(8): 083701.
- [73] GIRET Y, NARUSE N, DARASZEWICZ S L, et al. Determination of transient atomic structure of laser-excited materials from time-resolved diffraction data[J]. *Applied Physics Letters*, 2013, 103(25): 253107.
- [74] MILLER R J D. Mapping atomic motions with ultrabright electrons: the chemists' gedanken experiment enters the lab frame[J]. *Annual Review of Physical Chemistry*, 2014, 65(1): 583-604.
- [75] SCHÄCHTER L, KIMURA W D, BEN-ZVI I. Ultrashort microbunch electron source[J]. *AIP Conference Proceedings*, 2016, 1777(1): 080013.
- [76] YANAGISAWA H, HAFNER C, DONA P, et al. Laser-induced field emission from a tungsten tip: Optical control of emission sites and the emission process[J]. *Physical Review B*, 2010, 81(11): 115429.
- [77] HOMMELHOFF P, SORTAIS Y, AGHAJANI-TALES H, et al. Field emission tip as a nanometer source of free electron femtosecond pulses[J]. *Physical Review Letters*, 2006, 96(7): 077401.
- [78] NEIDERT R E, PHILLIPS P M, SMITH S T, et al. Field emission triodes[J]. *IEEE Transactions on Electron Devices*, 1991, 38(3): 661-665.
- [79] BARWICK B, PARK H S, KWON O H, et al. 4D imaging of transient structures and morphologies in ultrafast electron microscopy[J]. *Science*, 2008, 322(5905): 1227-1231.
- [80] HOMMELHOFF P, KEALHOFER C, KASEVICH M A. Reaching the resolved tunnel regime for a femtosecond oscillator driven field emission electron source[J]. *Laser Physics*, 2009, 19(4): 736-738.
- [81] ROPERS C, SOLLI D R, SCHULZ C P, et al. Localized multiphoton emission of femtosecond electron pulses from metal nanotips[J]. *Physical Review Letters*, 2007, 98(4): 043907.
- [82] ROPERS C, ELSAESSER T, CERULLO G, et al. Ultrafast optical excitations of metallic nanostructures: From light confinement to a novel electron source[J]. *New Journal of Physics*, 2007, 9: 397.
- [83] BARWICK B, CORDER C, STROHABER J, et al. Laser-induced ultrafast electron emission from a field emission tip[J]. *New Journal of Physics*, 2007, 9: 142.
- [84] HOMMELHOFF P, KEALHOFER C, KASEVICH M A. Ultrafast electron pulses from a tungsten tip triggered by low-power femtosecond laser pulses[J]. *Physical Review Letters*, 2006, 97(24): 247402.
- [85] BARWICK B, FLANNIGAN D J, ZEWEIL A H. Photon-induced near-field electron microscopy[J]. *Nature*, 2009, 462(7275): 902-906.
- [86] CARBONE F, KWON O H, ZEWEIL A H. Dynamics of chemical bonding mapped by energy-resolved 4D electron

- microscopy[J]. *Science*, 2009, 325(5937): 181-184.
- [87] LOBASTOV V A, SRINIVASAN R, ZEWAİL A H. Four-dimensional ultrafast electron microscopy[J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 2005, 102(20): 7069-7073.
- [88] AESCHLIMANN M, HULL E, CAO J, et al. A picosecond electron gun for surface analysis[J]. *Review of Scientific Instruments*, 1995, 66(2): 1000-1009.
- [89] BANFI F, GIANNETTI C, FERRINI G, et al. Experimental evidence of above-threshold photoemission in solids[J]. *Physical Review Letters*, 2005, 94(3): 037601.
- [90] ZEITLER B, FLOETTMANN K, GRÜNER F. Linearization of the longitudinal phase space without higher harmonic field[J]. *Physical Review Special Topics-Accelerators and Beams*, 2015, 18(12): 120102.
- [91] BUCK A, NICOLAI M, SCHMID K, et al. Real-time observation of laser-driven electron acceleration[J]. *Nature Physics*, 2011, 7: 543.
- [92] LUNDH O, LIM J, RECHATIN C, et al. Few femtosecond, few kiloampere electron bunch produced by a laser-plasma accelerator[J]. *Nature Physics*, 2011, 7(3): 219-222.
- [93] ESAREY E, SCHROEDER C B, LEEMANS W P. Physics of laser-driven plasma-based electron accelerators[J]. *Reviews of Modern Physics*, 2009, 81(3): 1229-1285.
- [94] ENGLAND R J, NOBLE R J, BANE K, et al. Dielectric laser accelerators[J]. *Reviews of Modern Physics*, 2014, 86(4): 1337-1389.
- [95] CHEN Min, LIU Feng, LI Boyuan, et al. Development and prospect of laser plasma wakefield accelerator[J]. *High Power Laser and Particle Beams*, 2020, 32(9): 092001.
陈民, 刘峰, 李博原, 等. 激光等离子体尾波加速器的发展和展望[J]. *强激光与粒子束*, 2020, 32(9): 092001.
- [96] PERRY M D, MOUROU G. Terawatt to petawatt subpicosecond lasers[J]. *Science*, 1994, 264: 917-924.
- [97] STRICKLAND D, MOUROU G. Compression of amplified chirped optical pulses[J]. *Optics Communications*, 1985, 56: 219-221.
- [98] MANGLES S P, MURPHY C D, NAJMUDIN Z, et al. Monoenergetic beams of relativistic electrons from intense laser-plasma interactions[J]. *Nature*, 2004, 431(7008): 535-538.
- [99] GEDDES C G R, TOTH C, TILBORG J VAN, et al. High-quality electron beams from a laser wakefield accelerator using plasma-channel guiding[J]. *Nature*, 2004, 431(7008): 538-541.
- [100] FAURE J, GLINEC Y, PUKHOV A, et al. A laser-plasma accelerator producing monoenergetic electron beams[J]. *Nature*, 2004, 431(7008): 541-544.
- [101] GONSALVES A J, NAKAMURA K, DANIELS J, et al. Petawatt laser guiding and electron beam acceleration to 8 GeV in a laser-heated capillary discharge waveguide[J]. *Physical Review Letters*, 2019, 122(8): 084801.
- [102] LEEMANS W P, GONSALVES A J, MAO H S, et al. Multi-GeV electron beams from capillary-discharge-guided subpetawatt laser pulses in the self-trapping regime[J]. *Physical Review Letters*, 2014, 113(24): 245002.
- [103] KNEIP S, NAGEL S R, MARTINS S F, et al. Near-GeV acceleration of electrons by a nonlinear plasma wave driven by a self-guided laser pulse[J]. *Physical Review Letters*, 2009, 103(3): 035002.
- [104] HAFZ N A M, JEONG T M, CHOI I W, et al. Stable generation of GeV-class electron beams from self-guided laser-plasma channels[J]. *Nature Photonics*, 2008, 2(9): 571-577.
- [105] LEEMANS W P, NAGLER B, GONSALVES A J, et al. GeV electron beams from a centimetre-scale accelerator[J]. *Nature Physics*, 2006, 2: 696-699.
- [106] GUÉNOT D, GUSTAS D, VERNIER A, et al. Relativistic electron beams driven by kHz single-cycle light pulses[J]. *Nature Photonics*, 2017, 11(5): 293-296.
- [107] SCHMID K. Few-cycle laser-driven electron acceleration[J]. *Physical Review Letters*, 2009, 102: 124801.
- [108] TOOLEY M P, ERSFELD B, YOFFE S R, et al. Towards attosecond high-energy electron bunches: controlling self-injection in laser-wakefield accelerators through plasma-density modulation[J]. *Physical Review Letters*, 2017, 119(4): 044801.
- [109] HORN V, PETRILKA V, KRUS M. Short electron bunches from injection by perpendicularly crossing pulses[J]. *Plasma Physics and Controlled Fusion*, 2019, 61(8): 085018.
- [110] ZHAO Q, WENG S M, CHEN M, et al. Sub-femtosecond electron bunches in laser wakefield acceleration via injection suppression with a magnetic field[J]. *Plasma Physics and Controlled Fusion*, 2019, 61(8): 085015.
- [111] SCHUMAKER W, NAKANII N, MCGUFFEY C, et al. Ultrafast electron radiography of magnetic fields in high-intensity laser-solid interactions[J]. *Physical Review Letters*, 2013, 110(1): 015003.
- [112] ZHANG C J, HUA J F, WAN Y, et al. Femtosecond probing of plasma wakefields and observation of the plasma wake reversal using a relativistic electron bunch[J]. *Physical Review Letters*, 2017, 119(6): 064801.
- [113] ROUSSE A. Production of a keV X-ray beam from synchrotron radiation in relativistic laser-plasma interaction[J]. *Physical Review Letters*, 2004, 93(13): 135005.
- [114] ESAREY E, SHADWICK B A, CATRAVAS P, et al. Synchrotron radiation from electron beams in plasma-focusing channels[J]. *Physical Review E*, 2002, 65(5): 056505.
- [115] SHAH R C, ALBERT F, PHUOC K T A, et al. Coherence-based transverse measurement of synchrotron X-ray

- radiation from relativistic laser-plasma interaction and laser-accelerated electrons[J]. *Physical Review E*, 2006, 74(4): 045401.
- [116] KNEIP S, MCGUFFEY C, MARTINS J L, et al. Bright spatially coherent synchrotron X-rays from a table-top source[J]. *Nature Physics*, 2010, 6(12): 980-983.
- [117] KNEIP S, MCGUFFEY C, DOLLAR F, et al. X-ray phase contrast imaging of biological specimens with femtosecond pulses of betatron radiation from a compact laser plasma wakefield accelerator[J]. *Applied Physics Letters*, 2011, 99: 093701.
- [118] FOURMAUX S, CORDE S, PHUOC K T, et al. Single shot phase contrast imaging using laser-produced betatron X-ray beams[J]. *Optics Letters*, 2011, 36(13): 2426-2428.
- [119] COLE J M, SYMES D R, LOPES N C, et al. High-resolution μ CT of a mouse embryo using a compact laser-driven X-ray betatron source[J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 2018, 115(25): 6335-6340.
- [120] WENZ J, SCHLEEDE S, KHRENNIKOV K, et al. Quantitative X-ray phase-contrast microtomography from a compact laser-driven betatron source[J]. *Nature Communications*, 2015, 6(1): 7568.
- [121] MAHIEU B, JOURDAIN N, PHUOC K T, et al. Probing warm dense matter using femtosecond X-ray absorption spectroscopy with a laser-produced betatron source[J]. *Nature Communications*, 2018, 9(1): 3276.
- [122] KODAMA R, SENTOKU Y, CHEN Z L, et al. Plasma devices to guide and collimate a high density of MeV electrons[J]. *Nature*, 2004, 432(7020): 1005-1008.
- [123] NAKAJIMA H, TOKITA S, INOUE S, et al. Divergence-free transport of laser-produced fast electrons along a meter-long wire target[J]. *Physical Review Letters*, 2013, 110(15): 155001.
- [124] WANG W, LIU J, CAI Y, et al. Angular and energy distribution of fast electrons emitted from a solid surface irradiated by femtosecond laser pulses in various conditions[J]. *Physics of Plasmas*, 2010, 17(2): 023108.
- [125] HU G Y, LEI A L, WANG W T, et al. Collimated hot electron jets generated from subwavelength grating targets irradiated by intense short-pulse laser[J]. *Physics of Plasmas*, 2010, 17(3): 033109.
- [126] BRANDL F, HIDDING B, OSTERHOLZ J, et al. Directed acceleration of electrons from a solid surface by sub-10-fs laser pulses[J]. *Physical Review Letters*, 2009, 102(19): 195001.
- [127] LI Y T, YUAN X H, XU M H, et al. Observation of a fast electron beam emitted along the surface of a target irradiated by intense femtosecond laser pulses[J]. *Physical Review Letters*, 2006, 96(16): 165003.
- [128] GULDE M, SCHWEDA S, STORECK G, et al. Ultrafast low-energy electron diffraction in transmission resolves polymer/graphene superstructure dynamics[J]. *Science*, 2014, 345(6193): 200-204.
- [129] QUINONEZ E, HANDALI J, BARWICK B. Femtosecond photoelectron point projection microscope[J]. *Review of Scientific Instruments*, 2013, 84(10): 103710.
- [130] KEALHOFER C, FOREMAN S M, GERLICH S, et al. Ultrafast laser-triggered emission from hafnium carbide tips[J]. *Physical Review B*, 2012, 86(3): 035405.
- [131] HERINK G, SOLLI D R, GULDE M, et al. Field-driven photoemission from nanostructures quenches the quiver motion[J]. *Nature*, 2012, 483(7388): 190-193.
- [132] KRÜGER M, SCHENK M, HOMMELHOFF P. Attosecond control of electrons emitted from a nanoscale metal tip[J]. *Nature*, 2011, 475(7354): 78-81.
- [133] BORMANN R, GULDE M, WEISMANN A, et al. Tip-enhanced strong-field photoemission[J]. *Physical Review Letters*, 2010, 105(14): 147601.
- [134] SCHENK M, KRÜGER M, HOMMELHOFF P. Strong-field above-threshold photoemission from sharp metal tips[J]. *Physical Review Letters*, 2010, 105(25): 257601.
- [135] YANAGISAWA H, HAFNER C, DONÁ P, et al. Optical control of field-emission sites by femtosecond laser pulses[J]. *Physical Review Letters*, 2009, 103(25): 257603.
- [136] EMBERGER D, HAMMER J, EISELE M, et al. Highly coherent electron beam from a laser-triggered tungsten needle tip[J]. *Physical Review Letters*, 2015, 114(22): 227601.
- [137] FEIST A, BACH N, RUBIANO D A SILVA N, et al. Ultrafast transmission electron microscopy using a laser-driven field emitter: Femtosecond resolution with a high coherence electron beam[J]. *Ultramicroscopy*, 2017, 176: 63-73.
- [138] YANG D S, MOHAMMED O F, ZEWAİL A H. Scanning ultrafast electron microscopy[J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 2010, 107(34): 14993-14998.
- [139] COOK B, BRONGEEST M, HAGEN K, et al. Improving the energy spread and brightness of thermal-field (Schottky) emitters with PHAST-photo assisted Schottky tip[J]. *Ultramicroscopy*, 2009, 109(5): 403-412.
- [140] FURSEY G. Field emission in vacuum microelectronics[M]. 1st ed. *Microdevices*. Boston, MA: Springer, 2005.
- [141] CHO B, ICHIMURA T, SHIMIZU R, et al. Quantitative evaluation of spatial coherence of the electron beam from low temperature field emitters[J]. *Physical Review Letters*, 2004, 92(24): 246103.
- [142] NAGAOKA K, YAMASHITA T, UCHIYAMA S, et al. Monochromatic electron emission from the macroscopic quantum state of a superconductor[J]. *Nature*, 1998, 396(6711): 557-559.
- [143] MCCULLOCH A J, SHELUDKO D V, JUNKER M, et al. High-coherence picosecond electron bunches from cold

- atoms[J]. *Nature Communications*, 2013, 4(1): 1692.
- [144] ENGELEN W J, HEIJDEN M AVAN DER, BAKKER D J, et al. High-coherence electron bunches produced by femtosecond photoionization[J]. *Nature Communications*, 2013, 4(1): 1693.
- [145] GEER S BVAN DER, DE LOOS M J, VREDENBREGT E J D, et al. Ultracold electron source for single-shot, ultrafast electron diffraction[J]. *Microscopy and Microanalysis*, 2009, 15(4): 282-289.
- [146] LUITEN O J, CLAESSENS B J, GEER S BVAN DER, et al. Ultracold electron sources[J]. *International Journal of Modern Physics A*, 2007, 22(22): 3882-3897.
- [147] CLAESSENS B J, GEER S BVAN DER, TABAN G, et al. Ultracold electron source[J]. *Physical Review Letters*, 2005, 95(16): 164801.
- [148] METCALFHAROLD J., STRATEN P V D. *Laser cooling and trapping*[M]. 1st ed. Graduate texts in contemporary physics. New York, NY:Springer, 1999.
- [149] ENGELEN W J, SMAKMAN E P, BAKKER D J, et al. Effective temperature of an ultracold electron source based on near-threshold photoionization[J]. *Ultramicroscopy*, 2014, 136: 73-80.
- [150] TABAN G, REIJNDERS M P, FLESKENS B, et al. Ultracold electron source for single-shot diffraction studies[J]. *EPL*, 2010, 91(4): 46004.
- [151] SALIBA S D, PUTKUNZ C T, SHELUDKO D V, et al. Spatial coherence of electron bunches extracted from an arbitrarily shaped cold atom electron source[J]. *Optics Express*, 2012, 20(4): 3967-3974.
- [152] MOURIK M W V, ENGELEN W J, VREDENBREGT E J D, et al. Ultrafast electron diffraction using an ultracold source[J]. *Structural Dynamics*, 2014, 1(3): 034302.
- [153] SPEIRS R W, PUTKUNZ C T, MCCULLOCH A J, et al. Single-shot electron diffraction using a cold atom electron source[J]. *Journal of Physics B-Atomic Molecular and Optical Physics*, 2015, 48(21): 214002.
- [154] WIMMER L, HERINK G, SOLLI D R, et al. Terahertz control of nanotip photoemission[J]. *Nature Physics*, 2014, 10(6): 432-436.
- [155] FEIST A, ECHTERNKAMP K E, SCHAUSS J, et al. Quantum coherent optical phase modulation in an ultrafast transmission electron microscope[J]. *Nature*, 2015, 521(7551): 200-203.
- [156] FLANNIGAN D J, ZEWAIL A H. 4D electron microscopy: Principles and applications[J]. *Accounts of Chemical Research*, 2012, 45(10): 1828-1839.
- [157] MORIMOTO Y, BAUM P. Attosecond control of electron beams at dielectric and absorbing membranes[J]. *Physical Review A*, 2018, 97(3): 033815.
- [158] HILBERT S A, UITERWAAL C, BARWICK B, et al. Temporal lenses for attosecond and femtosecond electron pulses[J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 2009, 106(26): 10558-10563.
- [159] FERRARIO M, ALESINI D, BACCI A, et al. Experimental demonstration of emittance compensation with velocity bunching[J]. *Physical Review Letters*, 2010, 104(5): 054801.
- [160] ANDERSON S G, MUSUMECI P, ROSENZWEIG J B, et al. Velocity bunching of high-brightness electron beams[J]. *Physical Review Special Topics-Accelerators and Beams*, 2005, 8(1): 014401.
- [161] LU X H, TANG C X, LI R K, et al. Generation and measurement of velocity bunched ultrashort bunch of pC charge[J]. *Physical Review Special Topics-Accelerators and Beams*, 2015, 18(3): 032802.
- [162] GAHLMANN A, PARK S T, ZEWAIL A H. Ultrashort electron pulses for diffraction, crystallography and microscopy: theoretical and experimental resolutions[J]. *Physical Chemistry Chemical Physics*, 2008, 10(20): 2894-2909.
- [163] SIWICK B J, DWYER J R, JORDAN R E, et al. Ultrafast electron optics: propagation dynamics of femtosecond electron packets[J]. *Journal of Applied Physics*, 2002, 92(3): 1643-1648.
- [164] SCOPY C M, LI R K, THRELKELD E, et al. Single-shot 35 fs temporal resolution electron shadowgraphy[J]. *Applied Physics Letters*, 2013, 102(2): 023506.
- [165] KASSIER G H, ERASMUS N, HAUPT K, et al. Photo-triggered pulsed cavity compressor for bright electron bunches in ultrafast electron diffraction[J]. *Applied Physics B-Lasers and Optics*, 2012, 109(2): 249-257.
- [166] KASSIER G H, HAUPT K, ERASMUS N, et al. Achromatic reflectron compressor design for bright pulses in femtosecond electron diffraction[J]. *Journal of Applied Physics*, 2009, 105(11): 113111.
- [167] MICHALIK A M, SHERMAN E Y, SIPE J E. Theory of ultrafast electron diffraction: the role of the electron bunch properties[J]. *Journal of Applied Physics*, 2008, 104(5): 054905.
- [168] ROSENZWEIG J B. *Fundamentals of beam physics*[M]. Oxford University Press, 2003.
- [169] LUITEN O J, GEER S BVAN DER, DE LOOS M J, et al. How to realize uniform three-dimensional ellipsoidal electron bunches[J]. *Physical Review Letters*, 2004, 93(9): 094802.
- [170] ZANDI O, WILKIN K J, XIONG Y, et al. High current table-top setup for femtosecond gas electron diffraction[J]. *Structural Dynamics*, 2017, 4(4): 044022.
- [171] WALBRAN M, GLISERIN A, JUNG K, et al. 5-femtosecond laser-electron synchronization for pump-probe crystallography and diffraction[J]. *Physical Review Applied*, 2015, 4(4): 044013.
- [172] SCHULZ S, GRGURAŠ I, BEHRENS C, et al. Femtosecond all-optical synchronization of an X-ray free-electron laser[J]. *Nature Communications*, 2015, 6(1): 5938.

- [173] BRUSSAARD G J H, LASSISE A, PASMANS P L E M, et al. Direct measurement of synchronization between femtosecond laser pulses and a 3 GHz radio frequency electric field inside a resonant cavity[J]. Applied Physics Letters, 2013,103(14): 141105.
- [174] ZHANG D, FALLAHI A, HEMMER M, et al. Segmented terahertz electron accelerator and manipulator (STEAM)[J]. Nature Photonics, 2018,12(6): 336-342.
- [175] NANNI E A, HUANG W R, HONG K H, et al. Terahertz-driven linear electron acceleration[J]. Nature Communications, 2015,6:8486.
- [176] EHBERGER D, RYABOV A, BAUM P. Tilted electron pulses[J]. Physical Review Letters, 2018,121(9):094801.
- [177] LI R K, HOFFMANN M C, NANNI E A, et al. Terahertz-based subfemtosecond metrology of relativistic electron beams[J]. Physical Review Accelerators and Beams, 2019,22(1):012803.
- [178] CURRY E, FABBRI S, MAXSON J, et al. Meter-scale terahertz-driven acceleration of a relativistic beam[J]. Physical Review Letters, 2018,120(9): 094801.
- [179] ZHAO L, WANG Z, LU C, et al. Terahertz streaking of few-femtosecond relativistic electron beams[J]. Physical Review X, 2018,8(2):021061.
- [180] OUDHEUSDEN T V, PASMANS P L E M, GEER S B V D, et al. Compression of sub-relativistic space-charge-dominated electron bunches for single-shot femtosecond electron diffraction [J]. Physical Review Letters, 2010, 105: 264801.
- [181] EHBERGER D, MOHLER K J, VASILEIADIS T, et al. Terahertz compression of electron pulses at a planar mirror membrane[J]. Physical Review Applied, 2019,11(2):024034.
- [182] OTTO M R, COTRET L P R D, STERN M J, et al. Solving the jitter problem in microwave compressed ultrafast electron diffraction instruments; Robust sub-50 fs cavity-laser phase stabilization[J]. Structural Dynamics, 2017, 4(5): 051101.
- [183] BREUER J, HOMMELHOFF P. Laser-based acceleration of nonrelativistic electrons at a dielectric structure [J]. Physical Review Letters, 2013, 111(13): 134803.
- [184] MORIMOTO Y, BAUM P. Single-cycle optical control of beam electrons[J]. Physical Review Letters, 2020,125(19): 193202.
- [185] KOZAK M, SCHOENENBERGER N, HOMMELHOFF P. Ponderomotive generation and detection of attosecond free-electron pulse trains[J]. Physical Review Letters, 2018,120(10): 103203.
- [186] BANERJEE S, SEPKE S, SHAH R, et al. Optical deflection and temporal characterization of an ultrafast laser-produced electron beam[J]. Physical Review Letters, 2005,95(3):035004.
- [187] LIU Y, ZHANG J, WU H, et al. Ponderomotive scattering of electrons and its application to measure the pulse duration of ultrafast electron beams[J]. Journal of Applied Physics, 2008,103(4): 044905.
- [188] HEBEISEN C T, ERNSTORFER R, HARB M, et al. Femtosecond electron pulse characterization using laser ponderomotive scattering[J]. Optics Letters, 2006,31(23): 3517-3519.
- [189] FABIAŃSKA J, KASSIER G, FEURER T. Split ring resonator based THz-driven electron streak camera featuring femtosecond resolution[J]. Scientific Reports, 2014,4(1): 5645.
- [190] BAUM P, ZEWEIL A H. Breaking resolution limits in ultrafast electron diffraction and microscopy[J]. Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America, 2006,103(44): 16105-16110.
- [191] ZHOU C, BAI Y, SONG L, et al. Direct mapping of attosecond electron dynamics[J]. Nature Photonics, 2021, 15: 216-221.
- [192] PARK S T, LIN M, ZEWEIL A H. Photon-induced near-field electron microscopy (PINEM): theoretical and experimental[J]. New Journal of Physics, 2010,12:123028.
- [193] YURTSEVER A, VEEN R M VAN DER, ZEWEIL A H. Subparticle ultrafast spectrum imaging in 4D electron microscopy[J]. Science, 2012,335(6064): 59-64.
- [194] PIAZZA L, LUMMEN T T A, QUINONEZ E, et al. Simultaneous observation of the quantization and the interference pattern of a plasmonic near-field[J]. Nature Communications, 2015,6:6407.
- [195] FU X, BARANTANI F, GARGIULO S, et al. Nanoscale-femtosecond dielectric response of mott insulators captured by two-color near-field ultrafast electron microscopy[J]. Nature Communications, 2020,11(1): 5770-5770.
- [196] PARK S T, O-HKWON, ZEWEIL A H. Chirped imaging pulses in four-dimensional electron microscopy: femtosecond pulsed hole burning[J]. New Journal of Physics, 2012,14:053046.
- [197] PLEMMONS D A, PARK STAE, ZEWEIL A H, et al. Characterization of fast photoelectron packets in weak and strong laser fields in ultrafast electron microscopy[J]. Ultramicroscopy, 2014,146: 97-102.
- [198] STORECK G, HORSTMANN J G, DIEKMANN T, et al. Structural dynamics of incommensurate charge-density waves tracked by ultrafast low-energy electron diffraction[J]. Structural Dynamics, 2020,7(3):034304.
- [199] HORSTMANN J G, BÖCKMANN H, WIT B, et al. Coherent control of a surface structural phase transition [J]. Nature, 2020,583(7815): 232-236.
- [200] QI F, MA Z, ZHAO L, et al. Breaking 50 femtosecond resolution barrier in MeV ultrafast electron diffraction with a double bend achromat compressor[J]. Physical Review Letters, 2020,124(13): 134803.

- [201] YANG J, ZHU X, NUNES J P F., et al. Simultaneous observation of nuclear and electronic dynamics by ultrafast electron diffraction[J]. *Science*, 2020, 368(6493): 885-889.
- [202] KOGAR A, ZONG A, DOLGIREV P E, et al. Light-induced charge density wave in LaTe_3 [J]. *Nature Physics*, 2020, 16(2): 159-163.
- [203] SIE E J, NYBY C M, PEMMARAJU C D, et al. An ultrafast symmetry switch in a weyl semimetal[J]. *Nature*, 2019, 565(7737): 61-66.
- [204] [EB/OL]. [2021-05-30]. <http://www.physics.mcgill.ca/siwicklab/hardware.html>
- [205] CARBONE F, YANG D S, GIANNINI E, et al. Direct role of structural dynamics in electron-lattice coupling of superconducting cuprates[J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 2008, 105(51): 20161-20166.
- [206] RUAN C Y, LOBASTOV V A, VIGLIOTTI F, et al. Ultrafast electron crystallography of interfacial water[J]. *Science*, 2004, 304(5667): 80-84.
- [207] CHEN S, SEIDEL M T, ZEWAIL A H. Atomic-scale dynamical structures of fatty acid bilayers observed by ultrafast electron crystallography[J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 2005, 102(25): 8854-8859.
- [208] DE COTRET L P R, POHLS J H, STERN M J, et al. Time- and momentum-resolved phonon population dynamics with ultrafast electron diffuse scattering[J]. *Physical Review B*, 2019, 100(21): 214115.
- [209] PARK H S, BASKIN J S, O-HKWON, et al. Atomic-scale imaging in real and energy space developed in ultrafast electron microscopy[J]. *Nano Letters*, 2007, 7(9): 2545-2551.
- [210] PARK H S, BASKIN J S, BARWICK B, et al. 4D ultrafast electron microscopy: Imaging of atomic motions, acoustic resonances, and moire fringe dynamics[J]. *Ultramicroscopy*, 2009, 110(1): 7-19.
- [211] YURTSEVER A, ZEWAIL A H. 4D nanoscale diffraction observed by convergent-beam ultrafast electron microscopy[J]. *Science*, 2009, 326(5953): 708-712.
- [212] KWON O H, BARWICK B, PARK H S, et al. 4D visualization of embryonic, structural crystallization by single-pulse microscopy[J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 2008, 105(25): 8519-8524.
- [213] KWON O H, ZEWAIL A H. 4D electron tomography[J]. *Science*, 2010, 328(5986): 1668-1673.
- [214] CREMONS D R, PLEMMONS D A, FLANNIGAN D J. Defect-mediated phonon dynamics in TaS_2 and WSe_2 [J]. *Structural Dynamics*, 2017, 4(4): 044019.
- [215] ZHANG Y, FLANNIGAN D J. Observation of anisotropic strain-wave dynamics and few-layer dephasing in MoS_2 with ultrafast electron microscopy[J]. *Nano Letters*, 2019, 19(11): 8216-8224.
- [216] ZHANG M, CAO G, TIAN H, et al. Picosecond view of a martensitic transition and nucleation in the shape memory alloy $\text{Mn}_{50}\text{Ni}_{40}\text{Sn}_{10}$ by four-dimensional transmission electron microscopy[J]. *Physical Review B*, 2017, 96(17): 174203.
- [217] RYABOV A, BAUM P. Electron microscopy of electromagnetic waveforms[J]. *Science*, 2016, 353(6297): 374-377.
- [218] LORENZ U J, ZEWAIL A H. Observing liquid flow in nanotubes by 4D electron microscopy[J]. *Science*, 2014, 344(6191): 1496-1500.
- [219] CHEN B, FU X, TANG J, et al. Dynamics and control of gold-encapped gallium arsenide nanowires imaged by 4D electron microscopy[J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 2017, 114(49): 12876-12881.
- [220] FU X, LIU S, CHEN B, et al. Observation and control of unidirectional ballistic dynamics of nanoparticles at a liquid-gas interface by 4D electron microscopy[J]. *ACS Nano*, 2021, 15(4): 6801-6810.
- [221] DANZ T, DOMRÖSE T, ROPERS C. Ultrafast nanoimaging of the order parameter in a structural phase transition[J]. *Science*, 2021, 371(6527): 371-374.
- [222] LUMMEN T T A, LAMB R J, BERRUTO G, et al. Imaging and controlling plasmonic interference fields at buried interfaces[J]. *Nature Communications*, 2016, 7: 13156.
- [223] WANG K, DAHAN R, SHENTCIS M, et al. Coherent interaction between free electrons and a photonic cavity[J]. *Nature*, 2020, 582(7810): 50-54.
- [224] KFIR O, LOURENÇO-MARTINS H, STORECK G, et al. Controlling free electrons with optical whispering-gallery modes[J]. *Nature*, 2020, 582(7810): 46-49.
- [225] VANACORE G M, BERRUTO G, MADAN I, et al. Ultrafast generation and control of an electron vortex beam via chiral plasmonic near fields[J]. *Nature Materials*, 2019, 18(6): 573-579.
- [226] SILVA N R D A, MOELLER M, FEIST A, et al. Nanoscale mapping of ultrafast magnetization dynamics with femtosecond lorentz microscopy[J]. *Physical Review X*, 2018, 8(3): 031052.
- [227] FU X, POLLARD S D, CHEN B, et al. Optical manipulation of magnetic vortices visualized in situ by lorentz electron microscopy[J]. *Science Advances*, 2018, 4(7): eaat3077.
- [228] CAO G, JIANG S, AKERMAN J, et al. Femtosecond laser driven precessing magnetic gratings[J]. *Nanoscale*, 2021, 13(6): 3746-3756.
- [229] FITZPATRICK A W P, LORENZ U J, VANACORE G M, et al. 4D cryo-electron microscopy of proteins[J]. *Journal*

- of the American Chemical Society, 2013, 135(51): 19123–19126.
- [230] LORENZ U J, ZEWAİL A H. Biomechanics of DNA structures visualized by 4D electron microscopy[J]. Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America, 2013, 110(8): 2822–2827.
- [231] FU X, CHEN B, TANG J, et al. Imaging rotational dynamics of nanoparticles in liquid by 4D electron microscopy[J]. Science, 2017, 355(6324): 494–498.
- [232] FU X, CHEN B, TANG J, et al. Photoinduced nanobubble-driven superfast diffusion of nanoparticles imaged by 4D electron microscopy[J]. Science Advances, 2017, 3(8): e1701160.
- [233] FU X, CHEN B, LI C, et al. Direct visualization of photomorphic reaction dynamics of plasmonic nanoparticles in liquid by four-dimensional electron microscopy[J]. Journal of Physical Chemistry Letters, 2018, 9(14): 4045–4052.
- [234] JING C, ZHU Y, LIU A, et al. Tunable electron beam pulser for picoseconds stroboscopic microscopy in transmission electron microscopes[J]. Ultramicroscopy, 2019, 207: 112829.
- [235] LAU J W, SCHLIEP K B, KATZ M B, et al. Laser-free GHz stroboscopic transmission electron microscope: Components, system integration, and practical considerations for pump-probe measurements[J]. Review of Scientific Instruments, 2020, 91(2): 021301.
- [236] FU X, WANG E, ZHAO Y, et al. Direct visualization of electromagnetic wave dynamics by laser-free ultrafast electron microscopy[J]. Science Advances, 2020, 6(40): eabc3456.
- [237] LASSISE A, MUTSAERS P H A, LUITEN O J. Compact, low power radio frequency cavity for femtosecond electron microscopy[J]. Review of Scientific Instruments, 2012, 83(4): 043705.
- [238] VERHOEVEN W, RENS J F M VAN, KIEFT E R, et al. High quality ultrafast transmission electron microscopy using resonant microwave cavities[J]. Ultramicroscopy, 2018, 188: 85–89.
- [239] MOHAMMED O F, YANG D S, PAL S K, et al. 4D scanning ultrafast electron microscopy: visualization of materials surface dynamics[J]. Journal of the American Chemical Society, 2011, 133(20): 7708–7711.
- [240] LIAO B, NAJAFI E. Scanning ultrafast electron microscopy: A novel technique to probe photocarrier dynamics with high spatial and temporal resolutions[J]. Materials Today Physics, 2017, 2: 46–53.
- [241] NAJAFI E, SCARBOROUGH T D, TANG J, et al. Four-dimensional imaging of carrier interface dynamics in p-n junctions[J]. Science, 2015, 347(6218): 164–167.
- [242] LIAO B, ZHAO H, NAJAFI E, et al. Spatial-temporal imaging of anisotropic photocarrier dynamics in black phosphorus[J]. Nano Letters, 2017, 17(6): 3675–3680.
- [243] ZANI M, SALA V, IRDE G, et al. Charge dynamics in aluminum oxide thin film studied by ultrafast scanning electron microscopy[J]. Ultramicroscopy, 2018, 187: 93–97.
- [244] SUN J, MELNIKOV V A, KHAN J I, et al. Real-space imaging of carrier dynamics of materials surfaces by second-generation four-dimensional scanning ultrafast electron microscopy [J]. Journal of Physical Chemistry Letters, 2015, 6(19): 3884–3890.
- [245] EL-ZOHRY A M, SHAHEEN B S, BURLAKOV V M, et al. Extraordinary carrier diffusion on CdTe surfaces uncovered by 4D electron microscopy[J]. Chem, 2019, 5(3): 706–718.
- [246] BOSE R, ADHIKARI A, BURLAKOV V M, et al. Imaging localized energy states in silicon-doped InGaN nanowires using 4D electron microscopy[J]. ACS Energy Letters, 2018, 3(2): 476–481.
- [247] STECKENBORN A, MUNZEL H, BIMBERG D. Cathodoluminescence lifetime pattern of GaAs-surfaces around dislocations[J]. Journal of Luminescence, 1981, 24–25(NOV): 351–354.
- [248] HASTENRATH M, KUBALEK E. Time-resolved cathodoluminescence in scanning electron-microscopy[J]. Scanning Electron Microscopy, 1982, 1: 157–173.
- [249] MYHAJLENKO S, KE W K. Time-resolved cathodoluminescence by delayed coincidence[J]. Journal of Physics E-Scientific Instruments, 1984, 17(3): 200–203.
- [250] MERANO M, SONDEREGGER S, CROTTINI A, et al. Probing carrier dynamics in nanostructures by picosecond cathodoluminescence[J]. Nature, 2005, 438(7067): 479–482.
- [251] FURUSAWA K, ISHIKAWA Y, TASHIRO M, et al. Local carrier dynamics around the sub-surface basal-plane stacking faults of GaN studied by spatio-time-resolved cathodoluminescence using a front-excitation-type photoelectron-gun[J]. Applied Physics Letters, 2013, 103(5): 052108.
- [252] SHAHMOHAMMADI M, JACOPIN G, FU X, et al. Exciton hopping probed by picosecond time-resolved cathodoluminescence[J]. Applied Physics Letters, 2015, 107(14): 141101.
- [253] FU X, JACOPIN G, SHAHMOHAMMADI M, et al. Exciton drift in semiconductors under uniform strain gradients: Application to bent ZnO microwires[J]. ACS Nano, 2014, 8(4): 3412–3420.

Foundation item: National Natural Science Foundation of China (Nos. 11874372, 11922412, 11974191), Key Research Program of Frontier Sciences, CAS (No. ZDBS-LY-SLH018), Youth Innovation Promotion Association of Chinese Academy of Sciences, Overseas Talent Introduction Program of Chinese Academy of Sciences, National Key Research and Development Program of China (No. 2020YFA0309300), Fundamental Research Funds for the Central Universities, Natural Science Foundation of Tianjin (Nos. 20JCZDJC00560, 20JCQJC00210)