

高相干超快电子源研究进展

罗端 惠丹丹 温文龙 刘蓉 王兴 田进寿

Recent progress of high-coherence ultrafast electron sources

Luo Duan Hui Dan-Dan Wen Wen-Long Liu Rong Wang Xing Tian Jin-Shou

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, **66**, 152901 (2017) DOI: 10.7498/aps.66.152901

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.152901>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2017/V66/I15>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

超快电子衍射技术及其应用

Ultrafast electron diffraction technique and its applications

物理学报.2015, 64(3): 034101 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.034101>

碳纳米管阴极强流脉冲发射放气特性研究

Outgassing property of carbon nanotube cathode with intense pulsed emission

物理学报.2012, 61(7): 072901 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.61.072901>

基于库仑定律的二极管空间电荷限制效应研究

Investigations of space charge limited effects in diode with Coulomb's law

物理学报.2012, 61(16): 165204 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.61.165204>

综 述

高相干超快电子源研究进展*

罗端¹⁾²⁾³⁾ 惠丹丹¹⁾²⁾³⁾ 温文龙¹⁾ 刘蓉⁴⁾ 王兴^{1)†} 田进寿^{1)3)‡}

1) (中国科学院西安光学精密机械研究所, 超快诊断技术重点实验室, 西安 710119)

2) (中国科学院大学, 北京 100049)

3) (山西大学, 极端光学协同创新中心, 太原 030006)

4) (西安工业大学光电工程学院, 西安 710032)

(2017年1月2日收到; 2017年5月24日收到修改稿)

以原子级时空分辨监测物质的动力学行为并从最根本层面理解自然界中的微观基本过程一直是飞秒物理、飞秒化学以及飞秒生物学研究的目标. 时间分辨电子衍射巧妙地结合了抽运-探测技术和电子衍射技术, 可实现直接“观察”和“冻结”类似的超快过程. 然而, 目前常用的超快电子探针的横向相干性仍受到电子源的初始尺寸、有效温度、能量弥散以及电子间固有序列排斥的限制, 还很难分辨化学和生物相关的复杂有机分子. 近年来大量研究工作都集中在发展高相干的超短电子源, 其不仅对时间分辨电子衍射研究起到推动作用, 也将极大地促进超快电子显微镜、相干衍射成像以及叠层成像等的发展. 本综述以相干性为主线, 介绍了几种常用平面阴极光电发射源的研究进展, 并从产生机理、独有特性和实验成果方面讨论了尖端发射源和冷原子电子源这两类新型的高相干超快电子源, 最后对衍射技术的相干性发展和未来应用进行了展望.

关键词: 时间分辨电子衍射, 分子电影, 尖端发射源, 冷原子电子源**PACS:** 29.25.Bx, 41.75.Fr, 52.59.Sa, 07.78.+s**DOI:** 10.7498/aps.66.152901

1 引 言

自从2001年Hentschel等^[1]首次实现阿秒脉冲计量以来, 现今记录原子甚至电子运动的时间尺度已近乎实现, 但进一步的应用却受到光学探针空间分辨率的限制. 传统的电子衍射装置虽然很容易获得原子尺度的空间分辨^[2], 却又不具备超快动力学研究所需的时间分辨. 为了实现“分子电影”^[3,4]这一宏伟目标, 基于抽运-探测和电子衍射技术的超快电子衍射 (ultrafast electron diffraction, UED) 或时间分辨电子衍射 (time-resolved electron diffraction, TRED) 应运而生^[5]. 利用这种技术可以探测到更微观世界的超快变化过程, 极大地促进了我们对物理^[6]、化学^[7]以及生物学^[8]中的超快现象的理解和对客观世界的深入

认识^[9].

如何获取兼具超短和高相干的脉冲电子源是TRED的关键, 前者决定了我们对微观世界动力学过程的探测精度和探测极限, 后者限制了我们所能研究的散射结构的最大尺寸. 探测电子脉冲的时间分辨特性是实现超快过程四维可视化研究的先决条件. 从电子本身来看, 电子在真空中传播会因色散效应改变其时间轮廓, 即真空色散展宽. 同时, 由于电子为负电粒子, 不可避免地存在空间电荷驱动脉冲展宽, 严重制约了时间分辨. 近年来, 国内外相关学者一直致力于不断发展具有更高时间分辨的电子衍射技术, 提出了多种可有效缩短电子束脉宽的方案, 如: 减小电子传播距离^[10–16]、采用单电子脉冲^[17–20]、增大加速场强^[21–30]、脉冲压缩技术^[31–39]、能量滤波^[40]、条纹扫描技术^[41]以及啁啾

* 国家自然科学基金青年科学基金 (批准号: 11304374, 61501363) 和陕西省自然科学基金基础研究计划项目 (批准号: 2016JQ6013) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: wangxing@opt.ac.cn

‡ 通信作者. E-mail: tianjs@opt.ac.cn

电子脉冲^[40]等. 目前, 直流型^[10]、射频压缩型^[36]和相对论型^[42]飞秒电子衍射以及飞秒单电子衍射^[17,18]系统的时间分辨率均已接近 100 fs 的时间分辨屏障, 这些典型系统的不同之处主要在于电子能量和潜在的总电量各有其适用的研究目标, 已初步具备了“分子电影”的时间分辨能力. 因此, 本文重点讨论 TRED 实验中电子源的另一重要特性, 即相干性.

所有的衍射实验都是基于样品散射波的相长干涉, 因而散射波的相干性至关重要, 这也是 TRED 进一步扩大应用范围所面临的巨大挑战, 特别是有机分子或非晶样品的超快过程研究^[9,13]. 为了形成相长干涉, 除了要满足布拉格条件, 电子束还必须在样品处相干. 换言之, 要想直接分辨所有原子及其运动, 待测区域应被相干电子波完全覆盖以免丢失重要信息^[43], 也即电子的横向相干长度需大于样品的待测区域尺寸. 探测脉冲内电子的空间电荷效应和费米特性以及亚原子德布罗意波长极大地限制了高相干电子束的形成. 同时, 初始源尺寸、有效温度和能量弥散进一步约束了电子源质量. 目前用于 TRED 实验的平面阴极多电子和单电子发射源在样品处分别可获得最大 11 nm^[22]和 20 nm^[19]的横向相干长度. 然而, 许多与生物和化学相关的复杂分子具有几十纳米的晶胞尺寸^[43], 并且大量非晶样品的研究须采用高相干电子源, 故仍需要继续提升电子源的横向相干长度以满足探究更复杂样品的要求.

简而言之, 高相干、高时间分辨的电子束是 TRED 的理想电子源. 最新发展的尖端发射源^[44–57]和冷原子电子源 (cold atom electron source, CAES)^[58–67]极具潜力, 有望作为平面发射源的补充, 引起了广泛的关注和研究. 本文首先介绍了超快电子探针的历史及其优势, 然后从理论上分析了提高超短电子脉冲相干性的条件, 进一步以电子源的相干性为主线介绍了平面阴极光电发射源、尖端发射源和 CAES 的最新进展, 最后对衍射技术的相干性发展和未来应用进行了展望.

2 超快电子探针

2.1 历史由来

自 1897 年 J. J. 汤姆逊发现电子以来, 科学家们就不断地研究并应用电子. 1924 年, 德布罗意预

测运动的电子也具有波动性. 短短三年之后, 分别由 G. P. 汤姆逊和 C. J. 戴维森-L. H. 革末完成的两个独立的电子衍射实验均证实了电子的波动性, 这奠定了采用电子探测物质结构的基础. 1982 年, 借助于飞秒激光技术, Mourou 和 Williamson^[68]率先使用条纹相机产生了 100 ps 的电子脉冲并记录了铝膜的透射模式衍射图像, 紧接着又于 1984 年首次完成了皮秒级 TRED 实验, 观察到了激光诱导铝膜在 20 ps 内发生固-液相变^[69]. Elsayed-Ali 和 Mourou^[70]开展了进一步的工作, 尤其是表面熔化工作. 随后, Williamson 和 Zewail^[5]将飞秒化学研究方法中的探针光脉冲更换成超快电子脉冲, 开创了 TRED 在气相结构动力学研究中的应用的先河, 并在 1992 年成功地完成了孤立分子束 CCl₄, I₂ 和 CF₃I 的 UED 实验^[71], 证明了利用该方法研究超快反应过程的可行性. 然而空间电荷效应和速度失配等难题限制了 TRED 时间分辨的进一步提升, Ihee 和 Zewail 通过近 10 年的努力, 于 2001 年实现了直接成像分子结构的壮举^[72]. 自此, TRED 技术逐渐发展成为动力学研究的有力工具. 2003 年, 多伦多大学 Miller 研究组^[14]利用 600 fs 电子脉冲研究了铝膜的强驱动热熔化, 首次完成了飞秒级电子衍射实验. 2016 年, 内布拉斯加大学林肯分校 Yang 等^[73]首次实现了振动的碘分子的分子电影, 这一突破为生物学、化学、医学和材料科学中的动力学过程的精确研究创造了新机遇. 上述里程碑式的发展如图 1 所示. 目前 UED 已成功用于气相分子^[42,72–75]、激光诱导熔化^[14,76,77]、石墨的晶格动力学^[20,78]、电荷密度波^[79]、有机盐的分子运动^[7]和超结构动力学^[57]等超快过程的研究.

2.2 优势所在

目前, X 射线和电子是各大研究中心广为采用的两种超快过程探测源, 与之对应的两种代表性的原子级时空分辨技术被称为超快 X 射线衍射 (ultrafast X-ray diffraction, UXD)^[80,81]和 UED^[10,13,16,82]. 这两种互补技术均是基于抽运-探测原理, 即利用超短激光脉冲激励样品, 随之而来的超快变化由另一束超快探测脉冲分辨. 最新发展的 X 射线自由电子激光 (X-ray free electron laser, XFEL)^[83]是飞秒 X 射线的主要产生方法之一, 可获得集高亮度、高相干和飞秒时间特性于一体的 X 射线, 但其需要昂贵且复杂的吉电子伏特 (GeV) 粒

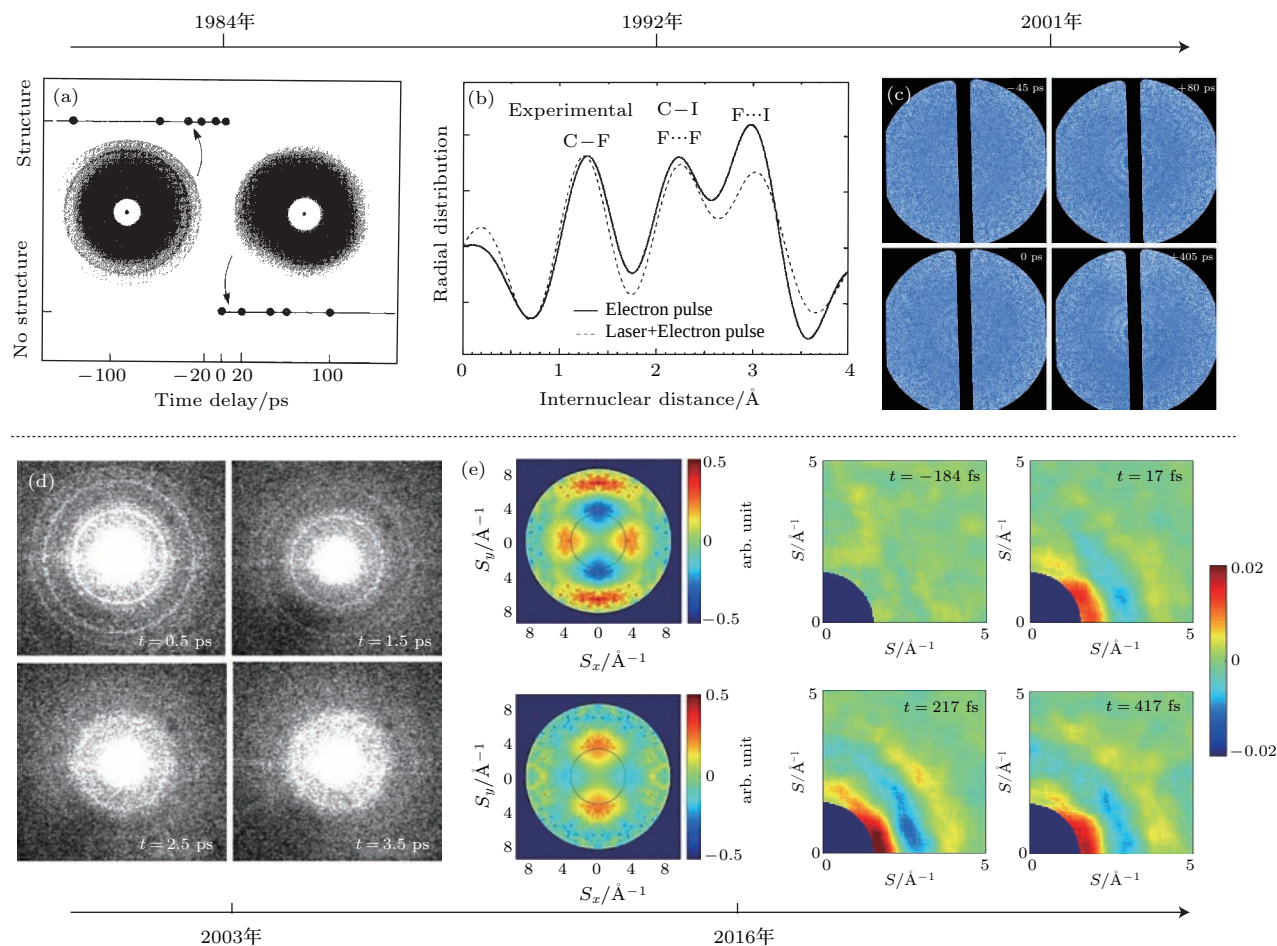


图1 (网刊彩色) UED 里程碑式的发展 (a) 首次皮秒级实验 [69]; (b) CF₃I 的光解离过程 [71]; (c) C₂F₄I₂ 的衍射差分图像 [72]; (d) 首次飞秒级实验 [14]; (e) 第一次实现的分子电影 [42,73]

Fig. 1. (color online) Milestones in the progression of ultrafast electron diffraction: (a) The first picosecond electron diffraction experiment [69]; (b) photodissociation of CF₃I [71]; (c) diffraction difference images of C₂F₄I₂ [72]; (d) the first femtosecond electron diffraction experiment [14]; (e) the first molecular movie of vibrating iodine molecules [42,73].

子加速器, 到目前为止全世界也只有为数不多的几个装置 [84,85]. 相比之下, 超短脉冲电子源造价较低且结构更紧凑, 同时, 电子的小质量使得它可轻易地经电场加速至高能态且很容易通过电磁透镜和偏转设备等操纵. 电子的德布罗意波长与其能量紧密相关, 在低能态 (1 keV) 时便可与第四代光源产生的 X 射线波长相比拟, 而在常见的衍射条件下 (>100 keV) 将会比之短两个数量级. 进一步的区分是, 电子散射截面更高 (比 X 射线散射截面大 10⁶), 故只需要很少的单脉冲电子数目即可获得与 X 射线相同的信噪比, 并且具有一个更小的穿透深度, 非常适合于气体、表面和薄膜的动力学研究. 另外, 电子的非弹性弹性散射比远小于 X 射线且其每非弹性碰撞能量沉积仅为 X 射线的 1/400, 因此辐射损伤阈值低得多, 而超短 X 射线脉冲往往损坏样品, 常常仅允许单发实验 [31]. 总之, 与 UXD 相比,

UED 有其独特的优势, 详见表 1.

表1 电子和 X 射线探针的特性对比 [86]

Table 1. Comparison of properties of electron and X-ray probes [86].

特性	电子	X 射线
非弹性弹性散射比	3	10
每非弹性碰撞能量沉积	20 eV	8000 eV
散射截面	$1 \times 10^{-18} \text{ cm}^2$	$(1-10) \times 10^{-24} \text{ cm}^2$
穿透深度	$\approx 10^{-9} \text{ m}$	$\approx 10^{-4} \text{ m}$
聚焦和操纵	容易, 可由电磁场轻松控制	困难, 不易操作
空间分辨 ($\Delta x/x$)	10^{-4} (衍射)	10^{-2} (衍射)
复杂性和花费	UED: 较紧凑, 造价低	UXD: XFEL, 复杂且昂贵

3 超短电子脉冲的相干性

为了观察瞬态结构变化并获得高质量的衍射数据, 电子束的横向相干长度至少应在晶格间距 a 量级^[65], 即从简单原子系统的亚纳米到生物样品的几十纳米. 原则上, 可以通过简单的纵向和横向扩张电子束实现任意相干长度, 但这牺牲了时间分辨率和与样品相互作用的粒子数. 如果保持最短的电子脉宽, 纵向相干长度 $L_{//}$ 基本固定在 $10^3\lambda$ — $10^4\lambda$ (λ 为德布罗意波长), 即 10—100 nm, 可见纵向相干性在晶体衍射应用中不是主要的限制因素^[87], 故以下讨论将集中于横向相干性.

目前, 电子衍射中相干性的描述方法主要有三种: 范西特-泽尼克定理^[88]、不确定关系^[43]和直接定义^[35]. 对于电子束通过光阑的情况, 比如电子显微镜, 可以采用范西特泽尼克定理, 而不确定关系一般用于描述单电子脉冲相干性. 直接定义是 UED 领域广为接受的定义^[13,18,19,35,62], 束腰处的横向相干长度 $L_{\perp}$ 可类比光学可见度表示为

$$L_{\perp} = \frac{\lambda}{2\pi\sigma_{\theta}}, \quad (1)$$

其中, σ_{θ} 为均方根角度弥散.

$L_{\perp}$ 更一般的描述是基于横向归一化均方根发射度 $\varepsilon_{n,x}(\varepsilon_{n,y})$. 在束腰处, $\varepsilon_{n,x}$ 可由均方根电子束半径 σ_x 和横向均方根动量弥散 σ_{p_x} 表示为 $\varepsilon_{n,x} = \frac{1}{m_e c} \sigma_x \sigma_{p_x}$. 结合 (1) 式, 则横向相干长度可进一步表示为

$$L_{\perp} = \frac{\hbar}{m_e c \varepsilon_{n,x}}, \quad (2)$$

其中, $\hbar$ 为普朗克常数, m_e 为电子质量, c 为光速. 虽然理想的 $\varepsilon_{n,x}$ 为守恒量, 但 $L_{\perp}$ 不是守恒量, 而是依赖于 σ_x . 在无空间电荷作用时, 电子光学系统以同一因子放大横向相干长度和电子束尺寸, 也就是说相干长度与电子束直径的比值是守恒的^[89], 该比值定义为全局相干度 (global degree of coherence, GDC)^[19,43], 表示为

$$G_{\perp} = \frac{L_{\perp}}{2\sigma_x} \rightarrow C_{\perp} = \frac{L_{\perp,0}}{\sigma_{x_0}} = \frac{L_{\perp,t}}{\sigma_{x_t}}, \quad (3)$$

此处, $G_{\perp}$ 被定义成完全相干束时取值为 1, $C_{\perp}$ 为相对相干长度; σ_{x_0} 和 σ_{x_t} 分别为源处和样品处电子束斑尺寸; $L_{\perp,0}$ 和 $L_{\perp,t}$ 分别为源处和样品处横向相干长度.

在实验中, 衍射样品的尺寸 (尤其是对于复杂材料) 限制了最大可利用的电子束直径. 为了避免浪费电子, 电子束应整体穿过所研究的样品, 这就需要样品处的电子束斑尺寸 σ_{x_t} 不得超过样品的尺寸 σ_s , 即样品处横向相干长度 $L_{\perp,t}$ 应小于

$$L_{\perp,\max} = \frac{\hbar}{mc \varepsilon_{n,x}} = 2G_{\perp} \sigma_s = C_{\perp} \sigma_s, \quad (4)$$

$G_{\perp}$ 或 $C_{\perp}$ 从样品方面描述了所需电子束的品质, 即要求 $L_{\perp,\max} > a$, 则 $G_{\perp} > a/(2\sigma_s)$. 鉴于样品的尺寸有限 (通常为 10—100 μm), 全局相干长度 $G_{\perp} \approx 10^{-3}$ 足以分辨微晶 (蛋白质) 结构^[65]. 此外, 根据有效电子温度 T 和初始束斑尺寸 σ_{x_0} 刻画样品处横向相干长度^[62], 则

$$L_{\perp,t} = L_{\perp,0} \frac{\sigma_{x_t}}{\sigma_{x_0}} = \frac{\hbar}{\sqrt{mk_B T} \sigma_{x_0}} \frac{\sigma_{x_t}}{\sigma_{x_0}}, \quad (5)$$

其中, k_B 为玻尔兹曼常数, T 为有效电子温度. (5) 式蕴含着增加横向相干长度可采取的方法之一就是减小源的尺寸, 即发展尖端源; 方法之二为降低有效电子温度, 即发展超冷源. 因此, 当前 TRED 实验中的超短电子源主要分三个发展方向: 平面阴极光电发射源^[11,12,17]、尖端发射源^[55,57] 和 CAES^[90,91].

4 平面阴极光电发射源

平面阴极光电发射源制备简单且性能稳定, 是 TRED 最常用的电子源^[11,16,38], 然而电子源尺寸、有效温度、空间电荷效应以及能量弥散等^[13] 因素限制了其可实现的横向相干长度^[35,92]. 根据经验法则, $L_{\perp}$ 至少应等于待测量目标晶胞尺寸且最好是其 3 倍以上^[13], 故需要进一步优化电子源品质.

4.1 光电发射过程

平面阴极光电发射过程可由 Berglund 和 Spicer^[93] 的三步模型描述, 单个电子随机发射, 服从泊松分布律. 当电子从阴极发射时, 剩余能 E_{kin} 被转移到电子的动能而造成角度发散, 此时电子束所具有的初始发射度 ε_{n,x_0} 由阴极的热发射度 $\varepsilon_{\text{thermal}}$ 支配, 即

$$\varepsilon_{n,x_0} \approx \varepsilon_{\text{thermal}} = \sigma_r \sqrt{\frac{E_{\text{kin}}}{m_e c^2}},$$

故样品处横向相干长度可表示为

$$L_{\perp,t} = \frac{\hbar}{\sqrt{m_e E_{\text{kin}}} \sigma_r} \frac{\sigma_{x_t}}{\sigma_r}, \quad (6)$$

其中, σ_r 为均方根激光光斑尺寸. 由于 $\sigma_{x_t} \leq \sigma_s$, 为了获得高的横向相干长度, 就需要入射激光的光子能量匹配阴极材料的有效功函数即 $E_{\text{kin}} \approx 0$, 且入射激光的束斑尺寸尽可能小.

4.2 直流型飞秒电子源

直流场加速 UED 因无需压缩而具有最简单的几何结构, 已发展成动力学研究最有力的工具之一. 2003 年, Siwick 等^[14] 利用紧凑型光电子枪设计, 极大地削弱了空间电荷效应的影响, 首次获得了亚皮秒电子束. 然而该装置以牺牲亮度为代价, 简单地通过阳极小孔约束电子束斑尺寸和发散角来增加相干长度, 仅限于小晶胞样品的动力学研究. 随后, Harb 等^[15] 利用非共线光参量放大 (noncollinear optical parametric amplifier, NOPA) 输出的 510 nm 飞秒激光减小电子初始能量弥散, 显著地提升了相干性. 如图 2 所示, NOPA 输出的飞秒激光照射到 -55 kV 的金阴极发生双光子光电发射, 产生的超短电子脉冲被瞬间加速至接地阳极, 然后由磁透镜聚焦至样品处形成衍射图样并成像在荧光屏上. 该装置可在样品处获得束斑尺寸 150 μm 、单脉冲电子数目约 6000 且时间分辨为 200 fs 的电子脉冲. 即便如此, 较大的源尺寸 (取决于激光焦斑尺寸) 仍限制了相干性远不足以分辨大晶胞分子样品.

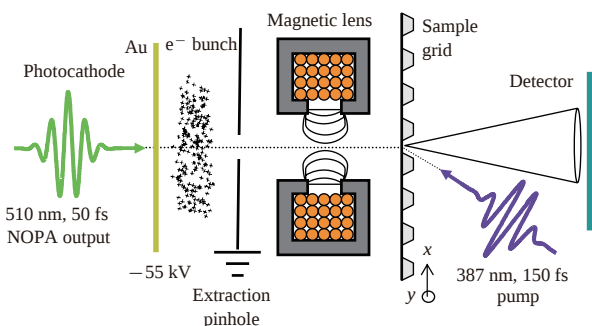


图 2 (网刊彩色) 紧凑型 UED 装置示意图^[15]

Fig. 2. (color online) Schematic of compact femtosecond electron diffraction^[15].

考虑到研究样品的多样性, 2015 年, Baumert 等^[12] 通过引入凹角观察窗结构和短焦距透镜 ($f = 60 \text{ mm}$) 提供了 2.3—30 μm 范围内可调的紧聚焦激光脉冲, 大幅地减小了初始源尺寸, 在 2.3 μm 源尺寸下横向相干长度可达 10 nm 以上. 实验装置如图 3 所示. 对比 Harb 等^[15] 的结构, 新设计的超紧凑型飞秒电子衍射系统产生的电子脉冲未经磁聚焦就直接入射到样品发生衍射, 而后经位

于样品后的磁透镜聚焦至探测器, 最大程度地减小了电子束传播距离, 使得真空色散和库仑排斥造成的展宽最小化, 同时也避免了磁线圈本身带来的时间展宽和畸变. 多粒子仿真表明样品处单脉冲电子数目约 50 个时可获得短至 130 fs (半高全宽, FWHM) 的电子脉冲.

另外, Baumert 等^[12] 分别利用 N 体仿真法 ($L_{\perp,t} = \frac{\hbar}{m_e c \varepsilon_{n,x_0}} \sigma_{x_t}$)、源扩展法 ($L_{\perp,t} \leq L_{\perp,0} \frac{\sigma_{x_t}}{\sigma_{x_0}}$)、TEM 载网阴影法和布拉格峰宽度法 ($L_{\perp,t} = 1/\sigma_k$, 其中 σ_k 为高斯分布布拉格峰的标准偏差) 研究了横向相干长度与三种高斯型紧聚焦紫外激光脉冲束斑尺寸 (半径 2.3, 9.5 和 28.0 μm) 的依赖关系. 表 2 总结了四种方法获得的三种不同尺寸电子源的横向相干长度. 通过对比可以发现减小源尺寸可大幅地提升横向相干长度, 预示着超紧凑电子源设计有望在样品处提供高达 20 nm 的横向相干长度, 这将为研究大晶胞的生物分子或固体样品提供支撑. 但是如此之小的源尺寸 (2.3 μm) 造成电子间的库仑排斥作用更加显著, 从而导致时间分辨受限. 为了达到所需的时间分辨率, 该超紧凑飞秒电子源只能以牺牲横向相干长度为代价, 因此需要进一步发展其他高相干的超快电子源.

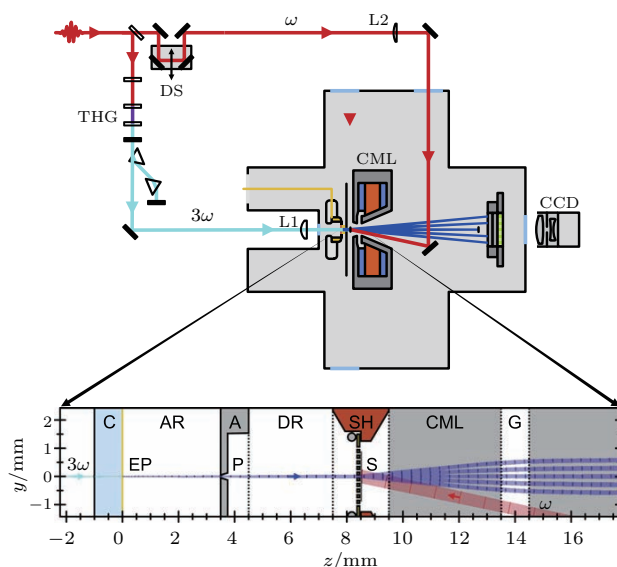


图 3 (网刊彩色) 超紧凑型 UED 示意图, 其中, THG 表示三倍频, DS 表示延迟线, L 表示透镜, CML 表示制冷型磁透镜, C 为阴极, AR 为加速区, A 为阳极, DR 为漂移区, SH 为样品托, S 表示样品, G 表示磁隙^[12]

Fig. 3. (color online) Schematic of the highly UED setup abbreviation: third harmonic generation (THG) delay stage (DS), lens (L), cooled magnetic lens (CML) cathode (C), acceleration region (AR), anode (A), drift region (DR), sample holder (SH) sample (S) pole piece gap (G)^[12].

表2 不同方法下三种尺寸电子源的横向相干长度对比^[12]

Table 2. Comparison of different approaches and their corresponding results to the transverse coherence lengths for three altered electron pulse source sizes^[12].

源尺寸/ μm	横向相干长度/ nm			
	源扩展法 (上限)	N 体仿真法	TEM 载网法 (下限)	布拉格峰宽度法
2.3 ± 0.5	24.7 ± 14.8	19.2 ± 2.6	14.6 ± 6.2	10.0 ± 14.4
9.5 ± 1.3	4.5 ± 2.5	3.8 ± 0.6	2.9 ± 0.2	1.6 ± 0.1
28.0 ± 1.2	1.2 ± 0.6	1.45 ± 0.04	1.3 ± 0.1	0.85 ± 0.01

4.3 飞秒单电子源

单电子脉冲的两个独特优势决定了其出色的横向相干性. 其一, 单电子的横向动量弥散非常低. 在多电子脉冲中, 大量电子集中在飞秒脉宽内^[82], 库仑力造成了显著的径向弥散, 从而降低了横向相干性. 单电子体系不存在这种效应, 其横向动量弥散完全由光电发射过程的物理机理^[18]决定. 其二, 它可以最大限度地减小发射区而不受镜像电荷效应将多电子波包拉回发射面^[62,87]的影响.

4.3.1 最小化电子源尺寸

Kirchner 等^[19]利用飞秒脉冲紧聚焦至金阴极上实现每脉冲提取至多单个电子^[18,94]消除了由于空间电荷带来的展宽且大幅缩减了电子源尺寸, 最终得到了极高相干长度的飞秒单电子脉冲. 图4(a)为飞秒单电子衍射实验装置示意图, 利用焦距 $f = 20\text{ mm}$ 的透镜紧聚焦 266 nm 的紫外激光脉冲至 1—4 μm 的光斑半径, 然后照射到阴极上发射平均单脉冲十分之一电子, 多发飞秒激光产

生的电子累积形成电子束, 经加速和磁聚焦后会聚至样品处形成尖锐的衍射图. 在单电子领域无空间电荷力, 横向相干长度与电子束直径的比值是守恒的, 见图4(b). 因此, 最大化源的相干性且最小化其尺寸可增加样品处的相干性. 图4(c)为累积约 10^9 发激光共约 10^8 个单电子而获得的衍射图, 衍射斑的锐度即束斑宽度与衍射斑间距之比证明了单电子脉冲具有极好的相干性.

利用该方法可获得均方根源尺寸 $\sigma_{x_0} = 3\text{ }\mu\text{m}$, 结合 $\sigma_{x_t} = 77\text{ }\mu\text{m}$ 、横向速度弥散 $\sigma_{v_\perp} = 143.2\text{ km/s}$, 则样品处横向相干长度为 $L_{\perp,t} = \frac{\hbar}{m_e \sigma_{v_\perp}} \frac{\sigma_{x_t}}{\sigma_{x_0}} \approx 20\text{ nm}$, 此 $L_{\perp,t}$ 值能有效地分辨大晶胞材料以及小的生物样品^[95]. 但在 Kirchner 等^[19]的实验中, 激光的光子能量并未完全匹配阴极的功函数, 产生了横向速度弥散^[18]. 如果 $\sigma_{v_\perp}$ 减小为原来的二分之一, 则样品处横向相干长度 $L_{\perp,t}$ 有望再增大一倍(约 40 nm). 该弥散一定程度上可通过调节飞秒光发射激光波长来控制, 即利用匹配功函数的光子能量激励阴极^[17,18]而优化.

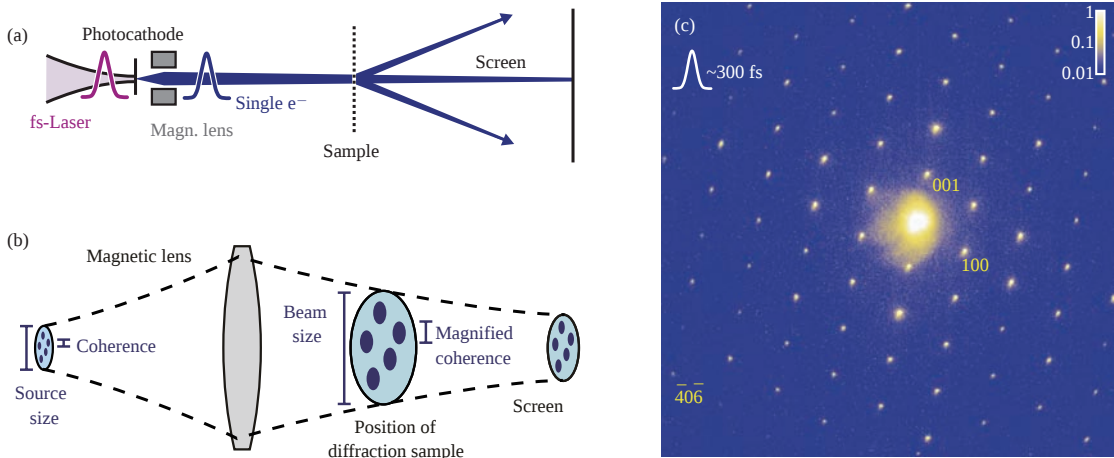


图4 (网刊彩色) 飞秒单电子脉冲的高度相干性 (a) 实验装置示意图; (b) 源处和样品处相干长度关系; (c) 高相干单电子脉冲的衍射图^[19]

Fig. 4. (color online) High coherence of single-electron pulses: (a) Experimental arrangement; (b) global degree of coherence; (c) diffraction snapshot obtained with single-electron pulses^[19].

4.3.2 最小化能量弥散

2010年, Aidelsburger等^[18]利用宽带连续谱经偏硼酸钡(BBO)晶体倍频产生240—350 nm范围内的可调谐紫外飞秒脉冲,将传统的激发光波长(266 nm)优化至286 nm,大幅地削减了剩余能,从而减小了电子源束斑尺寸和脉宽(见图5),证明了可调谐激励是一种既可降低波包持续时间也能提升相干性的方法,但是保持发射率的稳定和产生高重频的超短可调谐紫外脉冲极具挑战.而后Lahme等^[20]通过利用二倍频激光脉冲诱导双光子光电发射进一步改善了单电子源的发射度和阴极老化问题,于2014年首次完成了飞秒单电子衍射动力学论证实验,确认了单电子抽运-探测技术在研究可逆动力学方面的可行性.虽然利用400 nm的倍频光激发阴极产生双光子光电发射^[43]($3.1 \text{ eV} \times 2 = 6.2 \text{ eV}$)的方案实用且相对稳定^[20],但光电子的能量弥散(光子能量 $6.2 \text{ eV} >$ 功函数 4.3 eV ^[18])通常大于驱动激光的能量弥散(几十毫电子伏特)^[39,41],这将导致在加速和传播期间单电子波包的色散展宽^[41].此外,初始电子束通常也显示出比激光脉冲更大的横向动量,从而引起电子束发散并降低样品处的相对相干长度,限制了分辨复杂材料的能力^[19].这两类相空间展宽主要归因于激光光子能量和阴极材料功函数之间的失配^[18]以及发射材料的瑕疵.

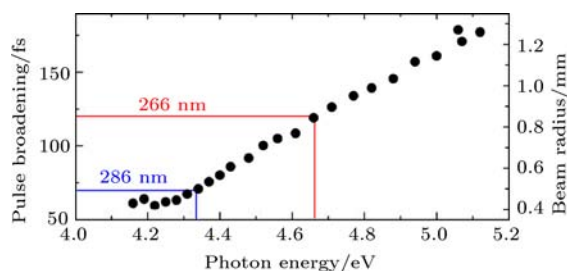


图5 (网刊彩色) 电子束半径和脉宽与激发光波长的关系^[18]

Fig. 5. (color online) Photoelectron statistics for tunable excitation^[18].

最近, Kasmi等^[17]利用接近功函数的双光子光电发射最小化能量弥散并结合更紧的聚焦缩小激励光斑尺寸有效地提升了相干性.为了匹配20 nm金阴极的功函数(4.3 eV ^[18], 对应290 nm的光波长),双光子光电发射条件需要激光脉冲在580 nm及以下的可见光谱范围可调谐. Kasmi等^[17]采用优化的NOPA^[96]产生了连续覆盖505—580 nm光谱范围的可调谐脉冲,对应

2.1—2.5 eV光子能量.利用该可调谐脉冲,获得了如图6所示的电子束斑和对应的初始横向速度弥散与激发光波长(光子能量)的依赖关系.当光子能量向着功函数的一半(虚线)减小时,束斑尺寸明显收缩且横向速度弥散大幅减小,说明发射度随着剩余能减小而降低,该结果与两倍光子能量的单光子发射相似且接近功函数一半时发射度存在下限阈值.同时假设纵向速度弥散类似于横向弥散^[18],则在不需微波压缩下即可获得小于100 fs的电子脉冲,预示着可调谐NOPA脉冲诱导双光子发射可产生集高相干、超短和长时间稳定于一体的高质量单电子波包.这有助于更好地理解光电发射机理且在电子衍射或显微方面具有广泛的应用前景.但飞秒单电子衍射单脉冲内电子数极少,而一幅高信噪比的大晶胞样品的衍射图至少需要约 10^6 个电子^[4].因此,利用单电子脉冲进行衍射测量往往要求所研究的过程可以重复实验数百万次^[35]或者样品可探测区域足够大.这使得该方法不适用于研究易受抽运激光损坏的样品和不可逆过程^[4,97],故需要发展高亮度的相干单发超短电子源.

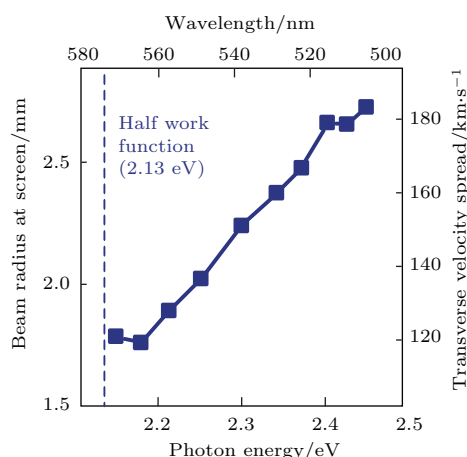


图6 (网刊彩色) 电子束发散的波长依赖性^[17]

Fig. 6. (color online) Experimental results on wavelength-dependent electron beam divergence^[17].

4.4 超快单发电子源

目前典型的实现高亮度的途径有直流加速结合射频压缩和射频场加速两种,前者最大可获得约 10^6 电子/脉冲,而后者涉及加速器技术可获得 $> 10^7$ 电子/脉冲.虽然二者皆可满足单发实验要求,但应用时却受到相干性的限制.由 $L_{\perp} = \frac{\hbar}{m_e c} \frac{\sigma_x}{\varepsilon_{n,x}}$ 和归一化亮度 $B_n = \frac{I}{8\pi^2 \varepsilon_{n,x} \varepsilon_{n,y}}$ (I 为峰值电流)可知,同时增加相干长度和亮度的

惟一方法就是减小横向发射度, 故如何控制库仑扩张即减小发射度成为获得高质量超快单发电子源的关键.

4.4.1 均匀填充的椭球束

为了能够横向和纵向压缩电子束至所需的尺寸且避免发射度增长, 就需要实现电子束完全线性传输. 然而, 由于空间电荷力以及射频场效应等使得维持发射度远非易事. 均匀的三维椭球分布因其线性的内部作用场是保持传播期间发射度的理想粒子分布, 因而发射度增长难题可通过产生空间电荷密度分布完全可控的电子束而解决. 如图 7 所示, 利用三维椭球状整形的激光束①或其他整形的飞秒激光②照射阴极. 目前有三种方式可能实现这种分布: 1) 短脉冲照射阴极且利用纵向空间电荷扩张, 即煎饼束 (pancake beam) [98], 其特点是束团长度小于束团半径, 即 $L \ll r$; 2) 长而细的脉冲照射阴极且利用横向空间电荷扩张, 即雪茄束 (cigar beam) [99], 其特点是束团长度大于束团半径 $L \gg r$; 3) 直接激光脉冲三维椭球状整形 [100].

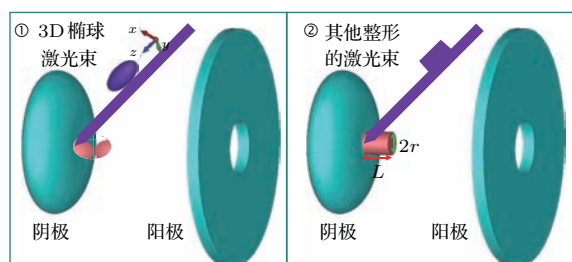


图 7 (网刊彩色) 电子束分布示意图

Fig. 7. (color online) Schematic diagram of generation of three-dimensional (3D) ellipsoidal and quasi-ellipsoidal electron beams.

4.4.1.1 煎饼束

2004 年, Luiten 等 [98] 提出可利用径向整形的飞秒激光辐照阴极获得径向半圆分布的椭球束, 即煎饼束. 图 8(a) 为激发阴极后 50 ps 时仿真电子束的 x - p_x 横向相空间投影, 可见该线性椭球分布与煎饼束理论预测 (黑线) 符合, 椭球束分布的线性行为与平顶束和高斯束特别是高斯束的非线性变化形成了鲜明的对比. 图 8(b) 为三种径向分布沿纵向的均方根发射度 $\varepsilon_{n,x}$ 变化, 其中平顶束和高斯束激发产生的光电子的均方根发射度在激发后迅速增加, 而椭球束分布 $\varepsilon_{n,x}$ 保持其初始值约 $0.4 \mu\text{m}$ 不变. 可以发现, 高斯束和平顶束内存在非线性空间电荷力, 往往造成不可逆的库仑扩张, 极大地增加

了发射度, 而椭球束是维持发射度行之有效的电子分布.

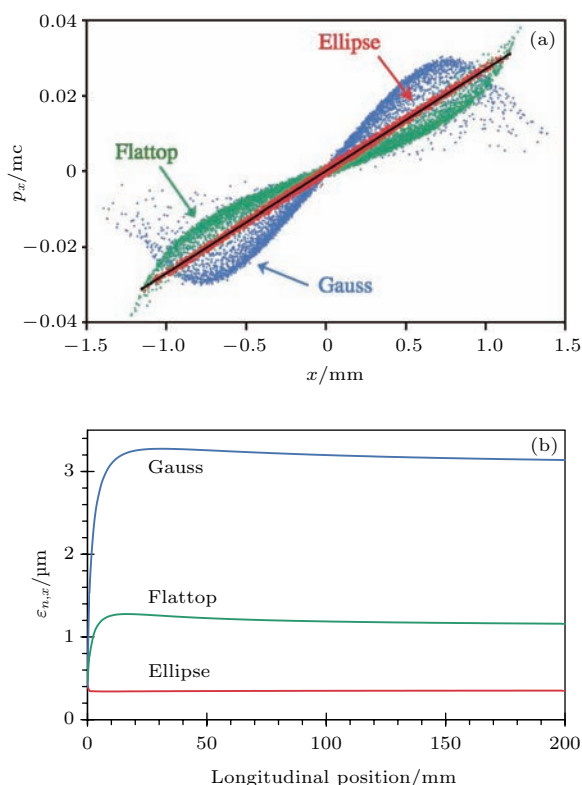


图 8 (网刊彩色) 平顶束、高斯束和椭球束条件下的电子分布 (a) x - p_x 相空间分布的仿真图; (b) 相应的均方根发射度 [98]

Fig. 8. (color online) Bunch distribution after initiation with an ellipsoidal (red dots), a flattop (green dots), and a Gaussian (blue dots) initial radial profile: (a) General particle tracer simulations of the distribution in x - p_x phase space; (b) the $\varepsilon_{n,x}$ as a function of z [98].

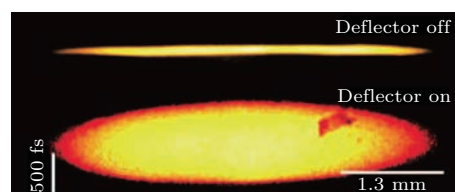


图 9 (网刊彩色) 偏转电压开或关的电子束图像 [101]

Fig. 9. (color online) Beam images after vertically focusing lens and radio-frequency deflector, cases with deflecting voltage off and on [101].

2008 年, Musumeci 等验证了 Luiten 提出的煎饼束方案的可行性 [101], 并对其进行了优化 [102]. 通过使用四极透镜将电子束垂直 (y 方向) 聚焦至如图 9 所示的长横条状, 对比射频偏转开、关前后的电子束分布, 可以发现最显著的特征就是锋利的椭球束边界 ($L \ll r$), 其将投影在 (x, t) 面的粒子分布函数包围在内. 这一椭圆形边界的直接证实为超短激光脉冲照射阴极产生椭球束的理论预测提供了

强有力的支撑, 将极大地促进电子源的亮度和相干性的提升. 然而大的初始激光光斑需求造成了较大的阴极热发射度, 这限制了煎饼束可获得的最小发射度.

4.4.1.2 雪茄束

为了有效降低热发射度以满足衍射成像所需的相干性要求, 区别于煎饼束, Li等^[103]提出使用纵向长(10 ps)且横向窄($< 30 \mu\text{m}$ 束斑尺寸)的雪茄束作为电子源. 通过整形激光脉冲至雪茄状纵横比和抛物型时间轮廓实现了均匀填充的椭球分布, 图10(a)为1 pC和0 pC(无空间电荷效应)雪茄束横向束斑尺寸的动力学仿真. 对于 $\leq 30 \mu\text{m}$

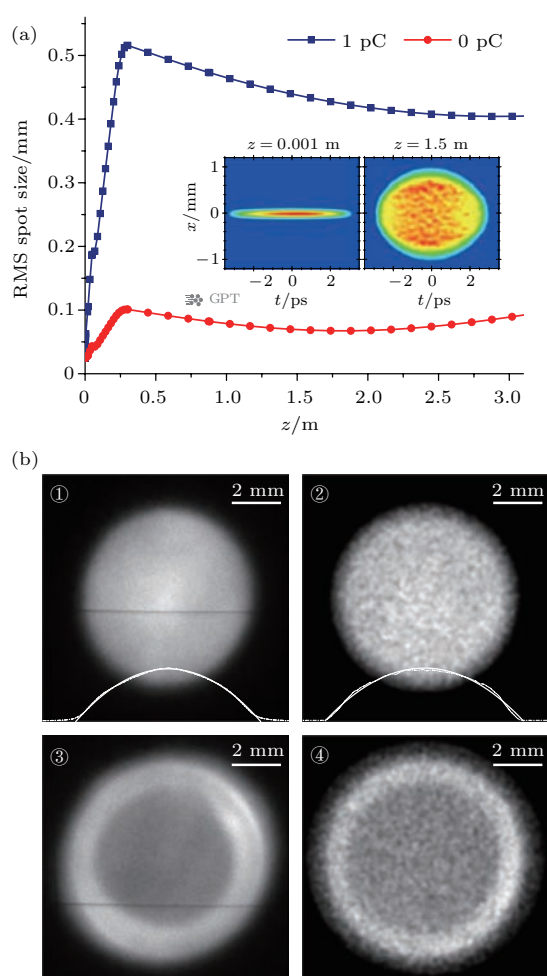


图10 (网刊彩色) 雪茄状电子束的特性研究 (a) 横向尺寸的动力学仿真; (b) 离阴极3 m处测得的横向电子束轮廓, ①表示长激光脉冲条件, ③表示短激光脉冲条件, ②和④为相应的仿真结果^[99]

Fig. 10. (color online) Study of cigar beam dynamics: (a) transverse beam sizes for 1 pC and 0 pC; (b) measured transverse beam profiles at $z = 3 \text{ m}$ from the cathode for ① a stretched laser pulse and ③ a short laser pulse on the cathode and corresponding simulation results ② and ④^[99].

(均方根RMS)的横向激光光斑, 产生的电子动力学完全由线性空间电荷力支配, 剧烈地横向扩展使得雪茄状电子束演变成一个近乎理想的均匀填充的椭球分布(图10(a)插图). 仿真显示可产生超低归一化发射度($< 50 \text{ nm}\cdot\text{rad}$)的高亮度相对论电子束. 图10(b)中①为长激光脉冲条件下阴极后方3米处的雪茄状电子束分布, 其对应的仿真结果如图10(b)中②所示. 电子束分布在一个轴上的投影(虚线)极好地与抛物线分布(实线)符合, 这与预期的均匀填充的椭圆束分布一致. 当紫外光脉冲不进行拉伸时(非雪茄状), 实验和仿真的电子束横向分布分别如图10(b)中③和④所示, 可以观察到一个亮的束晕, 这预示着非线性空间电荷力的作用出现, 将导致不可逆的发射度增长和束团质量退化. 对比①和③或②和④可以明显地发现雪茄束在控制空间电荷力驱动扩张方面的重要作用. 雪茄状电子束具有非常小的阴极固有发射度且横向和纵向动力学基本解耦(横向尺寸和纵向尺寸相近时, 两者之间会发生耦合), 如果结合射频或磁减速弯压缩, 能实现极低发射度, 可使诸多应用受益, 包括UED、超快电子显微、先进光源以及尾波场加速器的外注入剂等. 然而, 由于较小的初始激光束斑尺寸以及阴极提取场的限制, 减少了可获得的电荷量, 仅可实现0.1—1 pC的低束团电量(与典型的兆电子伏特(MeV)电子源相比).

4.4.1.3 三维椭球状激光脉冲

2016年, Mironov等^[100]通过直接激光脉冲整形实验第一次获得了三维椭球激光分布, 大幅地提升了电子源的质量, 有望进一步减小发射度. 虽然这些均匀椭球分布的电子束因其近似线性的空间电荷场减小了发射度的增长, 有利于获得更短的高相干、高亮度的电子脉冲, 但这种分布的电子源的产生极其复杂^[101].

4.4.2 射频压缩型飞秒电子源

2007年, Luiten研究组^[35]首次将煎饼束引入到TRED中, 提出了基于椭球状电子束线性扩张结合射频场压缩的新方法, 通过逆转库仑排斥, 单发UED有可能在非相对论能量实现. 仿真显示样品处0.1 pC、100 keV、均方根半径0.2 mm的电子束的横向相干长度可达3 nm, 满足小晶格周期样品单发TRED实验的要求. 2010年, 该小组在实验上实现了压缩方案^[36], 演示了95 keV, 0.25 pC的电子

束可被压缩到亚 100 fs 均方根脉宽, 并进行了多晶金膜的单发实验. Gao 等 [38] 进一步优化设计混合型直流-射频 (DC-RF) 压缩系统, 在样品处获得约 5 nm 的横向相干长度, 并利用压缩后的超亮电子脉冲进行了绝缘体导体相变材料 (EDO-TTF)₂PF₆ 的光诱导超快结构变化研究 [7], 证明了射频压缩型电子探针观察分子反应的能力.

2014 年, Siwick 等对石墨中的相干和非相干电声子耦合机理 [78] 以及光诱导二氧化钒 (VO₂) 半导体-金属相变 [104] 进行了研究, 实验装置如图 11 (a) 所示. 得益于射频压缩带来的时间分辨和亮度的显著提升, 可以在图 11 (b) 中清楚地看到, VO₂ 相变过程中存在多重时间尺度的在 20 mJ/cm² 光激发后, (302) 衍射峰的强度有一个与周期性晶格畸变相关的快速衰减 (时间常数 (310 ± 160) fs), 其次是 (220) 和 (200) 衍射峰强度的缓慢增加 (时间常数 (1.6 ± 0.2) ps). 这些结果展现出射频压缩 TRED 在探测分子系统原子运动方面的巨大潜力. 但是, 库仑排斥和能量弥散仍限制了电子脉冲的亮度和相干性, 制约着其在单发成像复杂分子系统方面的应用.

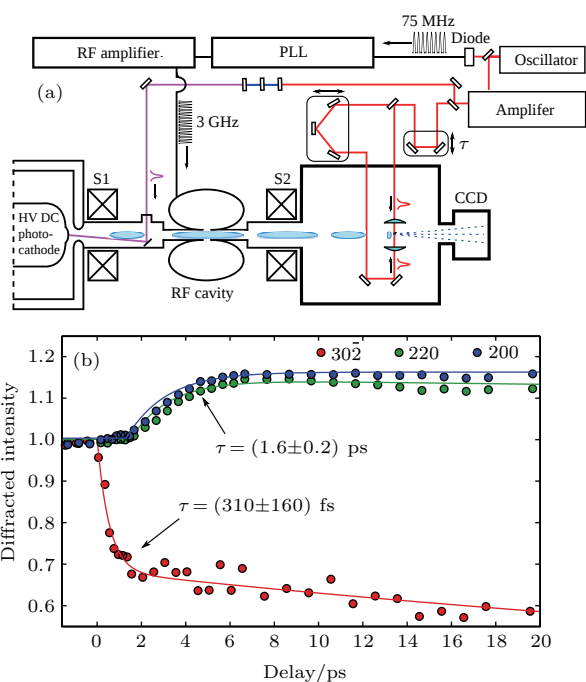


图 11 (网刊彩色) 混合型飞秒电子衍射 (a) 装置示意图 [37]; (b) VO₂ 的衍射峰变化 [104]

Fig. 11. (color online) Schematic diagram of the radio-frequency compressed UED: (a) Experimental arrangement [37]; (b) structural dynamics during the semiconductor-to-metal transition in VO₂ [104].

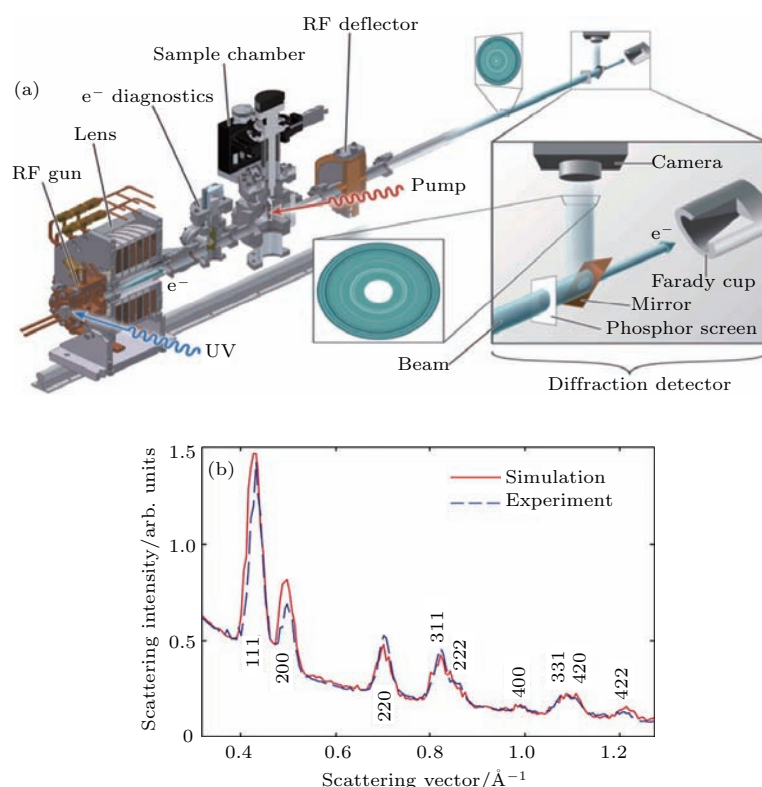


图 12 (网刊彩色) MeV UED 及其衍射特性 (a) 实验装置; (b) 多晶铝的散射强度变化 [22]

Fig. 12. (color online) Brookhaven National Lab MeV UED with its diffraction patterns: (a) Schematic of the experimental set-up; (b) simulated and experimental scattering intensities as a function of scattering vector for polycrystalline Al [22].

4.4.3 相对论飞秒电子源

为了抑制非相对论 TRED 中电子间库仑排斥作用, 结合不可逆过程和样品损坏以及穿透深度等因素对电子探针的要求, 将高亮度的相对论电子源应用到 TRED 中引起了广泛关注, 汇集了加速器和电子衍射领域研究人员的共同努力. 2006 年, 王西杰研究组^[26]提出将射频枪产生的 MeV 电子脉冲用于 TRED. 同年, SLAC 国家加速器实验室 Hastings 等^[25]首次实验演示了 MeV UED 并观察到 160 nm 铝膜的单发射衍射图, 验证了该技术的可行性. 此后, 加州大学洛杉矶分校^[97]、清华大学^[105]、大阪大学^[106,107]、布鲁克海文国家实验室^[6]、上海交通大学^[21]和马普所/汉堡大学/德国电子同步加速器实验室^[108]等相继发展了新的基于光阴极射频枪的 MeV UED 系统. 所有装置几乎都采用能量 1—5 MeV、电荷量 0.1—10 pC (10^6 — 10^8 e^-) 的超短电子束, 允许单发射衍射成像且可研究当前非相对论 TRED 装置所不能及的非可逆超快过程.

2015 年, 王西杰研究组^[22]通过仔细控制从电子产生到探测之间的每一步 (RF 腔体优化、铜阴极、紫外激光形状和尺寸、螺线管磁铁、准直孔、光阑、探测器), 在约 100 μm 的紫外激光照射下获得了约 11 nm 和 2.5 nm 的横向和纵向相干长度. 该 MeV UED 实验装置如图 12(a) 所示, 其获得的多晶铝的散射强度变化见图 12(b), 这些衍射特征证实了电子束具有高的横向相干长度. 虽然该装置可完成多晶铝和单晶 1 T-TaS₂ 的单发射衍射实验且具有约 130 fs (RMS) 的高时间分辨, 但单脉冲仅有 3×10^4 个电子且产生于射频枪的电子具有高于 1000 K 的温度、较大的初始能量弥散和极小的德布罗意波长, 这使得其横向相干长度和亮度均不足以单发成像大分子或纳米晶体.

5 尖端型光电发射源

平面阴极的横向相干长度受限于电子源尺寸和能量弥散^[13], 最大可成像低于 20 nm 的完整晶胞^[19]. 另一方面, 多电子脉冲的空间电荷效应^[14,92]和单电子脉冲的到达时间差^[18,33,94]分别制约着这两类电子源的脉宽. 进一步缩减脉宽并提升相干性是利用电子衍射记录原子级动力学过程的两大挑战. 近年来, 尖端脉冲电子源被广为研究^[44–49], 其发射过程能控制在亚飞秒时间尺度^[51,52], 可实现超短的电子脉宽. 同时, 准点状纳

米尖端源^[45,46]的有效发射区极度局域化结合尖端处场增强效应大幅地减小了色散展宽^[55]从而可获得极高的相干性和亮度. 迄今为止, 尖端电子源^[44,51,53,55,109]具有最高的 GDC^[55]. 这不仅有利于 TRED 在成像大晶胞晶体方面的应用拓展, 也吸引着超快电子显微等^[110]领域的研究.

5.1 尖端源电子发射机理

飞秒激光脉冲诱导金属纳米尖端电子发射的微观机理^[44–51,111,112]可根据尖端的大小、形状、材料、施加电压以及激光强度和极化方向进行研究. 随着光强的增加, 电子发射过程可依次解释为光辅助场发射^[47,50,112]、多光子光电发射^[46,111]、超阈值光电发射^[49,51]和光学场发射^[44,48,52], 见图 13. 这些分类通常由 Keldysh 参数 γ 量化, 定义如下^[113]:

$$\gamma = \sqrt{\frac{\Phi}{2U_p}}, \quad (7)$$

其中, $U_p = \frac{e^2 E^2}{4m_e \omega^2}$ 为振荡频率 ω 的光场 E 的有质动力势, Φ 为材料功函数. U_p 描述了电子 (电量 e 、质量 m_e) 在振荡电磁场 E 中的周期平均颤动能.

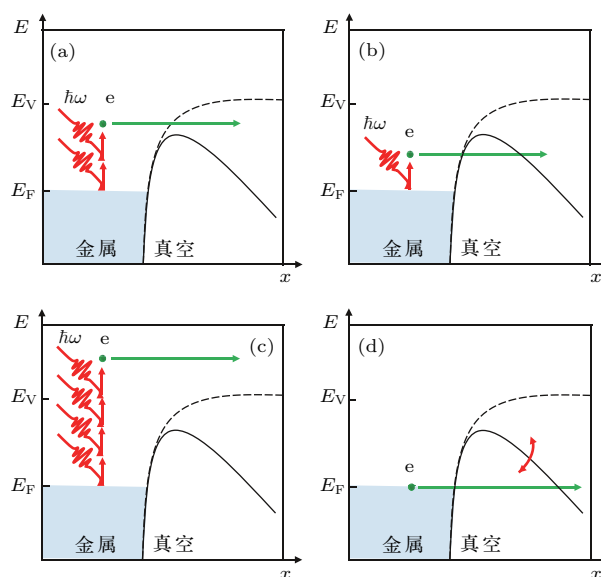


图 13 (网刊彩色) 非线性电子发射机理 (直流场偏压存在) (a) 多光子光电发射; (b) 光辅助场发射; (c) 超阈值光电发射; (d) 光学场发射

Fig. 13. (color online) Mechanisms of nonlinear photoemission with a bias voltage: (a) Multiphoton photoemission; (b) photofield emission; (c) above-threshold photoemission; (d) optical field emission.

根据场强变化, 不同电子发射过程成为主导^[50,114]. 对于弱场区 ($\gamma \gg 1$), 光场可被看作

是结合势的微扰, 单个电子经多光子或单光子吸收激励占主导, 光激发电子越过表面势垒或隧穿过势垒而发射, 即多光子光电发射^[46,111] (图 13(a)) 和光辅助场发射^[47,50,112] (图 13(b)). 当过渡到 $\gamma \approx 1$ 时, 光场的有质动力能与电子的束缚能已经可比拟, 预示着强场区的开始, 电子吸收多于逃逸出金属所需的最小光子数而发射, 即超阈值光电发射^[49,51] (图 13(c)). 当光场进一步增加至 $\gamma \ll 1$ 时, 与光场相关的非常强的局域场瞬间大幅度地修改隧穿势垒, 并直接从费米能级处激发场发射, 出现光学场发射^[44,48,52] (图 13(d)).

在平面光电发射源中, 低能电子脉冲即使在窄电子能量分布和无空间电荷效应时也极易色散展宽, 故而基于平面阴极的超快低能电子衍射 (ultra-fast low-energy electron diffraction, ULEED) 在实验中遇到了挑战. 而对于尖端电子源, 为了避免形成破坏性的弧光放电^[115] 并契合纳米尖端的优势特点, 通常被应用于低能区. 此时, 场发射结构的尖端电子发射恰好可最小化展宽效应, 在低能电子衍射和成像中具有不可替代的重要作用. 值得注意的是场发射的工作原理不能直接转移至脉冲电子源, 特别是利用能量 $\hbar\omega > \Phi$ 的光子照射尖端型阴极不会产生强烈的局部发射. 为了实现选择性电子发射, 纳米源反而可通过光子能量低于材料功函数的低功率光脉冲照射, 吸收多个能量 $\hbar\omega < \Phi$ 的光子克服真空势垒所需的最小能量, 这也是目前 ULEED 常用的尖端电子源产生机理 (弱场区 $\gamma \gg 1$). 而在强场区 ($\gamma \ll 1$), 驱动光场起支配作用, 隧穿仅在半光周期内发生且极度非线性, 可能带来更短且更高空间相干性的电子脉冲. 因此, 光学场发射电子枪原则上可在低电子能量提高时间分辨. 然而这个方案虽在原理上可行, 但具有极大的技术挑战且需要相当复杂的实验装置. 总之, 尖端源的发射特性需要更多的发展研究, 例如去评估能量弥散、有效源尺寸和不同发射过程电子产量间的权衡, 去证明其长期稳定性.

5.2 尖端发射源的特性

5.2.1 纳米级尖端源的优势

典型的尖端源结构如图 14 所示, 高空间相干的超快电子源将金属尖端处的光场增强和非线性光电效应结合起来^[45,46], 借助电场加速和磁场聚焦已实现了飞秒和纳米级时空分辨的非线性光电发射, 尤其适合于 TRED 和成像^[56,116].

尖端型光电发射源的第一个优点就是在尖端处可产生极大的加速场强 (约 2 GV/m^[50]). 较之平面发射源 (DC UED 最大梯度约 10 MV/m, MeV UED 最大梯度约 100 MV/m^[25]), 数量级提升的高初始场强有助于缩短加速区长度进而减小初始能量弥散导致的脉冲展宽, 因而尖端源理论上可以产生比平面发射源脉宽更短的电子脉冲. 第二个优点是具有极小的有效电子源半径 r_{eff} , 其不再取决于激光束斑大小而是由尖端本身给出^[55]. 根据 $L_{\perp} \propto 1/r_{\text{eff}}$ 可知, 纳米尖端发射源具有极高的固有横向相干长度. 然而尖端型光电发射虽可被局域在亚周期激光脉冲内^[51,52], 但初始轨迹和近场加速的非均匀性以及电子的能量弥散导致了传播过程中电子束的快速发散和拉长^[114]. 此时, 必须精心设计静电或磁透镜准直电子脉冲才有可能实现样品处几十飞秒的电子脉宽^[55].

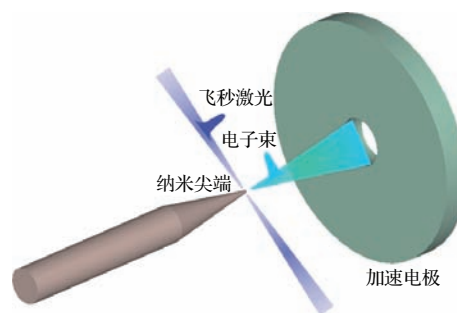


图 14 (网刊彩色) 纳米尖端源示意图

Fig. 14. (color online) Schematic of the tip-based source.

5.2.2 空间相干性的定量研究

虽然激光驱动金属纳米针尖能够提供最高时间分辨的相干电子脉冲, 但其空间相干性的定量研究一直难以实现. Ehberger 等^[109] 研究了近紫外激光触发尖端光电发射的相干性, 并将其与典型的高相干直流场发射^[117] 进行了比较. 实验中将碳纳米管 (carbon nanotube, CNT) 紧贴尖端充当静电双棱镜, 激光触发和直流场发射模式下的电子干涉条纹分别如图 15(a) 和图 15(b) 所示, 均观察到平行于 CNT 的干涉条纹. 两种模式的空间相干宽度可分别从图 15(c) 和图 15(d) 中标记区域的线轮廓图获得, 从而得到激光触发下有效电子源半径 r_{eff} 为 (0.80 ± 0.05) nm, 直流场发射模式下 r_{eff} 为 (0.55 ± 0.02) nm. 电子源的空间相干性通常用其 r_{eff} 量化 ($L_{\perp} \propto 1/r_{\text{eff}}$). 由此而论, Ehberger 等^[109] 的研究结果清楚地揭示了激光诱导光电发射电子束保持了尖端场发射电子束出色的相干特性, 表明

配备场发射几何结构的电子衍射和成像设备可以通过飞秒激光触发获得优异的相干和成像性能。

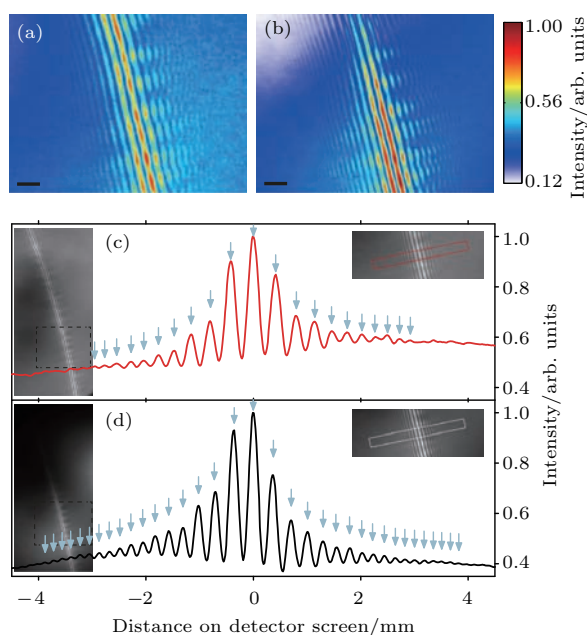


图 15 (网刊彩色) 电子干涉条纹 (a), (b) 分别为激光触发和直流场发射模式下的干涉图; (c), (d) 分别为激光触发和直流场发射模式下干涉条纹的线轮廓图^[109]

Fig. 15. (color online) Electron interference fringes: (a) Laser-triggered electron emission; (b) DC-field emission; corresponding line profiles of the interference fringes are shown in (c) and (d)^[109].

5.3 尖端源的应用拓展

尖端脉冲电子源已分别在以飞秒激光触发钨尖端发射^[44–46]作为超快单电子源的飞秒点投影显微镜 (femtosecond point-projection microscopy,

fsPPM)^[54,116]、ULEED^[57]和二者结合^[118]中得到应用。极佳的源特性还可能服务于介质激光加速器^[119,120]、激光辅助原子探针断层扫描^[121]以及全息相干衍射^[122]。

5.3.1 fsPPM

最新的研究已将电子显微镜的时间分辨率扩展至飞秒量级。现在可以通过这一技术以极高的时空分辨观察如熔化、加热、机械振动、化学修饰、等离子体激发以及许多基本物理现象^[94]，这个新的领域被称为四维超快电子显微镜 (ultrafast electron microscopy, UEM)^[94]。但 UEM 往往是基于传统的透射电子显微镜 (TEM)^[94]，而依靠投影成像的替代方案更有利于研究等离子体和光电子密度分布过程^[123–125]。这些技术具有皮秒和飞秒时间分辨率，但空间分辨率被限制在百微米量级。2013 年，Barwick 等^[54]将纳米超快电子源引入到点投影显微镜中，实现了 100 nm 的空间分辨率。

fsPPM 的原理如图 16 (a) 所示，直径约 100 nm 量级的场发射尖端被放置在可三轴移动的样品前，经飞秒激光照射后产生发散的准点状电子源，形成的样品放大图像由样品后方的微通道板和荧光屏以及电荷耦合器件俘获。尖端至探测器的距离 D 固定在 0.1 m，但尖端样品间距 d 可以在 10^{-5} — 10^{-2} m 之间变化，对应于 1000 倍—10 倍的放大率 ($M = D/d$)。为了量化该电子显微镜的成像能力，在直流场发射 (CW) 和脉冲发射两种模式下探测了 TEM 载网支撑的银纳米线，获得的图像

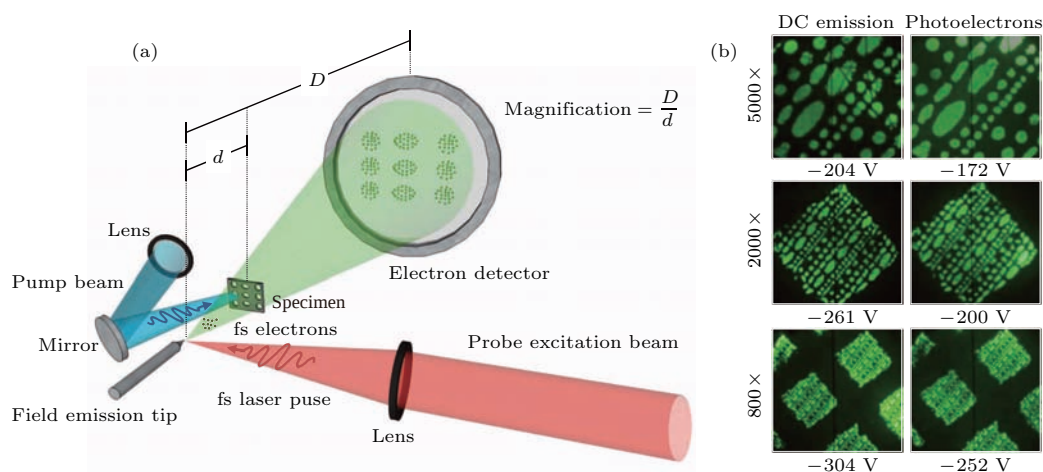


图 16 (网刊彩色) fsPPM 及其显微图 (a) fsPPM 示意图; (b) 基于 DC 电子发射 (左) 和飞秒电子波包 (右) 的点投影显微图^[54]

Fig. 16. (color online) Femtosecond photoelectron point projection microscope: (a) Schematic of the microscope; (b) point projection images based on DC electron emission (left) and with femtosecond photoelectron packets (right)^[54].

如图 16(b) 所示. 在 5000 倍放大时, 最小的孔 (直径为 $1\ \mu\text{m}$) 在 CW 和脉冲模式下均清晰可见, 银纳米线 (直径为 $100\ \text{nm}$) 在 CW 模式很容易看到且在脉冲模式也可以部分观察到 (图 16(b) 的右上角). 这些结果充分说明了无透镜且非常紧凑的点投影 UEM 的巨大潜力, 其将超快尖端电子源与点投影电子显微技术相结合可作为昂贵和复杂的传统电子显微的替代. 但是由于显微镜的机械振动, 空间分辨被限制在约 $100\ \text{nm}$ 量级, 要达到标准点投影显微镜 $10\ \text{nm}$ 左右的空间分辨仍需要继续优化.

5.3.2 超快低能电子衍射

时间分辨表面研究已经展示了大量准二维系统中的超快现象, 如薄膜的声子限制效应^[126], 表面弛豫重建和单层吸附系统中的复杂结构^[127], 表面预熔化^[128]和电子与晶格系统之间的强耦合形成的温稠密物质^[76]. 尽管近年来不断发展各种实验技术来进一步提高时间分辨率, 表面形貌的平整度、大的探测区域以及超薄样品的制备等却使得实现高表面灵敏度十分困难.

低能电子衍射因其衍射电子仅探测顶层原子而非常适合于确定晶体材料的表面结构. 2014 年, 德国哥廷根大学 Gulde 等^[57]开发了一种电子能

量 $450\ \text{eV}$ 、时间分辨 $2\ \text{ps}$ (FWHM) 的透射式 ULEED 系统, 具有极高的表面灵敏度, 已经成功用于研究聚合物在石墨烯基底如何移动和熔化, 得到了吸附于石墨烯衬底的聚甲基丙烯酸甲酯 (PMMA) 层的超快熔化过程. 该 ULEED 系统基于抽运-探测原理, 如图 17(a) 所示, 电子脉冲通过二次谐波照射钨纳米尖端 ($50\ \text{nm}$ 的曲率半径) 而产生, 超短抽运激光脉冲加热 PMMA 层, 而后熔化过程产生的结构变化由几皮秒的电子脉冲在不同时间延迟下探测其衍射图案所记录. 聚合物和石墨烯双层系统激发前后衍射斑如图 17(b) 和图 17(c) 所示, 对比可知石墨烯衍射峰值没有显著变化, 而超结构衍射斑强度大幅衰减 (图 17(c) 白色方框内). 该 ULEED 的独特之处在于利用超短脉冲照射钨纳米尖端产生电子脉冲, 与最近得以实现的高能衍射方法相比大幅地缩小了电子衍射装置^[4,94], 然而皮秒级的时间分辨限制了动力学研究的范围.

5.3.3 飞秒低能电子衍射 (femtosecond low-energy electron diffraction, fsLEED)

低维系统如纳米线和二维材料的超快结构动力学研究需要飞秒探针具备高空间分辨率和与小体积样品的强相互作用. 低能电子展现出大的散射截面和高表面灵敏度, 但是明显的真空色散限制了其在飞秒时间分辨衍射实验中的应用^[57]. Gulde 等^[57]证明了低能电子具备以皮秒时间分辨研究双层薄膜结构动力学的能力. 为了实现更高时间分辨以强化 ULEED 的探测能力, Müller 等^[118]设计了一种飞秒点投影显微和 fsLEED 相结合的紧凑型混合装置并进行了单层石墨烯的低能电子衍射研究, 其微米尺度的电子传播距离大幅地减小了电子脉冲展宽, 并结合使用单电子脉冲达到了飞秒时间分辨.

图 18(a) 为飞秒时间分辨低能电子衍射和成像装置原理图. 该装置电子能量在 $20\text{--}1000\ \text{eV}$ 范围, 激光触发金属纳米尖端提供了高相干飞秒^[51,52]点状电子源, 如图 18(b) 和图 18(c) 所示, 可选择空间发散用于显微 (fsPPM) 或准直用于衍射 (fsLEED)^[54]. 图 18(d) 为尖端-样品间距 $d = 500\ \mu\text{m}$ 和 $650\ \text{eV}$ 电子能量以透射模式记录的衍射图样, 可以观察到石墨烯二维六方晶格的六次对称性. 值得注意的是, 即使是单层样品, 极高质量的衍射图案也可在非常低的电子剂量率 ($< 1\ \text{e}^-\cdot\text{\AA}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$) 下获得, 这归功于亚 keV 电子的高

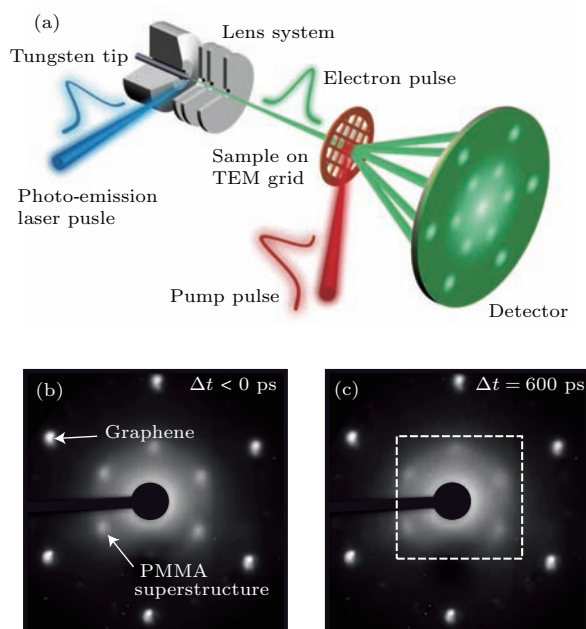


图 17 (网刊彩色) 聚合物/石墨烯双层系统的 ULEED (a) 装置示意图; (b) 激发前的衍射图; (c) 激发后的衍射图^[57]

Fig. 17. (color online) ULEED in transmission and polymer/graphene bilayer system: (a) Schematic of the pump-probe setup; (b) and (c) diffraction images for negative delay (left) and $600\ \text{ps}$ (right)^[57].

散射截面^[129]. 因此, 与传统的高能飞秒电子衍射^[13]相比, 利用 fsLEED 研究单层和几层系统的结构动力学显然是有利的.

由于不存在空间电荷效应以及极小的发射区, 样品处电子脉冲可被聚焦至几微米, 见图 18(e), 径向平均强度分布揭示了 1.4 μm (FWHM) 的准直束斑尺寸. 图 18(f) 为计算所得的电子束斑尺寸 (FWHM), 其随着间距 d 降至几微米而线性减小. 斜率则表示电子束的散度, 其取决于尖端电压. 根据图 18(e) 和图 18(f), 在 15 μm 初始束斑尺

寸、-100 V 尖端电压和 200 μm 间距下, 可获得约 38 nm 的极高横向相干长度. 结合飞秒时间分辨和高表面灵敏度, fsLEED 是研究二维晶体材料的理想工具, 有望提供单层二维材料和无机^[130]及有机^[131]异质结的结构动力学和能量传递过程的实时信息. 然而, 尖端的弧线发射导致大的发散角和时间畸变且可实现的尖端样品间距受限于电子透镜处的真空打火(最短约 150 μm), 使得时间分辨被限制在约 300 fs, 实现 100 fs 级的时间分辨率是 fsLEED 面临的一大挑战.

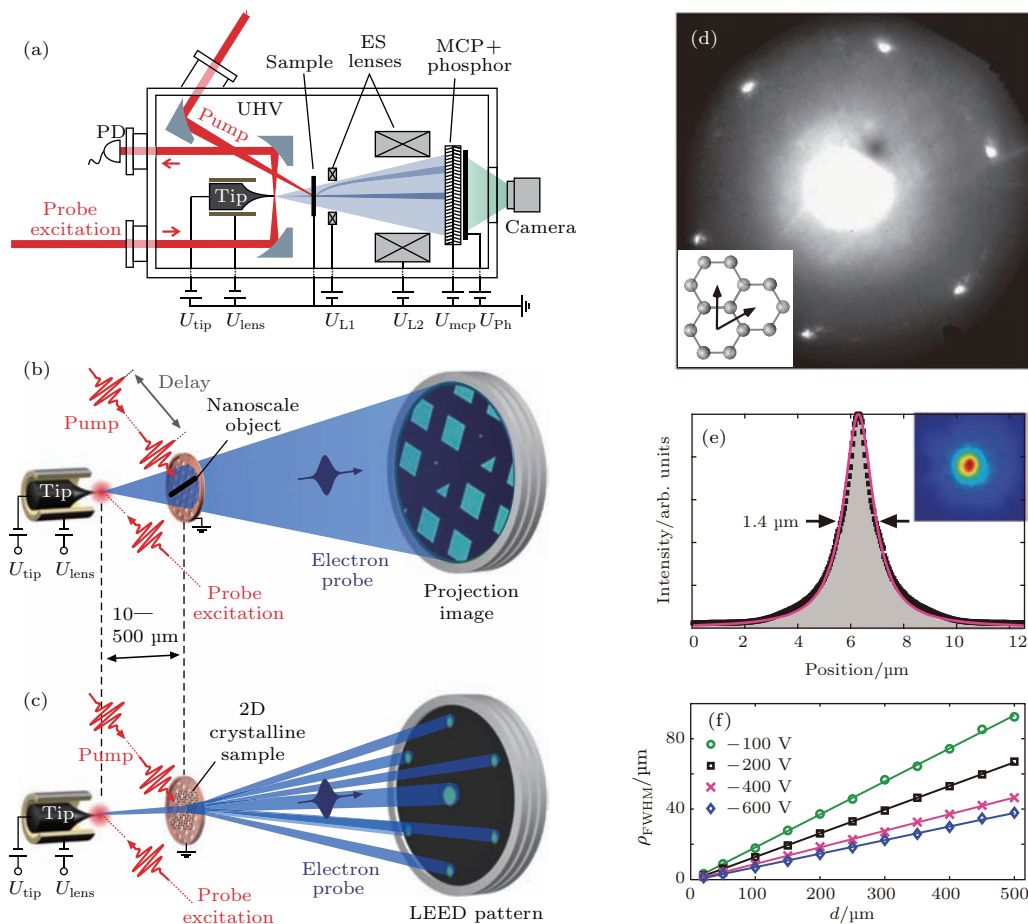


图 18 (网刊彩色) fsLEED 和成像装置及实验研究 (a) 装置原理图; (b) fsPPM 模式; (c) fsLEED 模式; (d) 自支撑单层石墨烯的低能电子衍射图; (e) 样品处束斑大小; (f) 电子束斑尺寸与尖端样品间距 d 的依赖性^[118]

Fig. 18. (color online) Setup for time-resolved low-energy electron imaging and diffraction: (a) Schematic of the experimental setup; (b) fsPPM mode; (c) fsLEED mode; (d) LEED of free-standing monolayer graphene; (e) the electron spot size at the sample; (f) the dependence of the electron spot size on various tip-sample distances^[118].

6 冷原子电子源(CAES)

目前 TRED 所用的电子源几乎都是基于固态阴极的飞秒光电发射源^[13,36,77]. 这些光电发射源运行良好, 但对于研究如生物分子般的样品很难满足相干性^[62]. 传统的场发射或光电发

射源典型的有效电子温度可由 $k_{\text{B}}T \approx 0.5$ eV 推出, 即 $T \approx 5000$ K. 而电子脉冲的横向相干长度 $L_{\perp} \propto 1/\sqrt{T}$, 可见电子温度是决定电子源相干性的重要因素, 温度越低, 横向相干长度就越大. 基于此, Luiten 等^[58]于 2005 年提出了一个全新的电子脉冲产生方案, 即从超冷等离子体中脉冲提取电

子从而取代传统的光电阴极. 这种新型的电子源被称作 CAES, 其电子温度可低至 10 K, 比常用的光电发射源小三个数量级, 意味着源处相干性和亮度数量级的增加, 即预示着可获得生物分子样品的高质量单发衍射图, 有望替代 TRED 中的传统电子源^[63]. 最近, 超低温的超快电子源已成功用于衍射实验, 并获得了初步的结果^[132].

6.1 CAES 的产生

激光冷却和陷俘技术^[133,134]的出现预示着从内部和外部操纵原子运动的新时代的到来, 其关键在于提供了一种同时冷却和陷俘中性原子的方法. 为了产生超冷等离子体电子源, Luiten 等提出了如图 19 所示的四步过程^[58]: ① 首先利用激光冷却得到高密度的冷原子云, 并将其囚禁在磁光阱 (magneto-optical trap, MOT) 中, MOT^[135]是实现中性原子冷却与囚禁的最重要手段; ② 部分冷原子云被激光脉冲激发至中间态; ③ 然后, 另一与激励光成直角传播的脉冲激光束离化两束激光交汇处的激发态原子, 形成超冷等离子体; ④ 产生的电子和离子束由电场提取加速, 该电场至少应比将电子和离子拉离所需的最小电场大一个数量级.

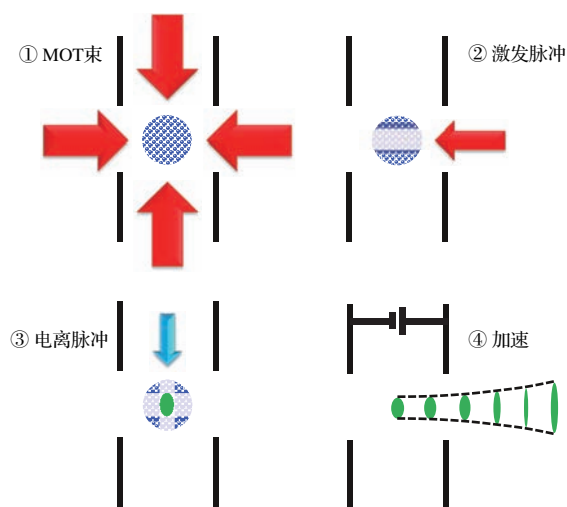


图 19 (网刊彩色) 产生脉冲超冷等离子体 (UCP) 电子源的四个步骤示意图^[58]

Fig. 19. (color online) Schematic of the four-step procedure to realize a pulsed ultracold plasma electron source^[58].

这种超冷源受控于电离体积而具有相当大的尺寸且重复率受限于冷却光电发射后气体云所需的时间, 但却能实现极低的温度和能量弥散^[43]. 2007 年, Claessens 等^[59]利用铷原子首次实现了基于激光冷却原子的电子源. 2008 年, Hanssen

等^[136]利用铬原子首次获得了基于激光冷原子的离子源. 随后, van der Geer 等^[62]利用粒子跟踪模拟研究了超冷电子源用于 TRED 的可行性. 仿真结果表明超冷气体的光致电离可产生温度低至 10 K、发射度 10 nm 左右的电子束, 有望大幅地提升电子束的亮度和相干长度.

6.2 典型的激光冷却源装置

超冷源的研究是一大热点, 目前主要研究单位有: 荷兰埃因霍芬理工大学 Luiten 组^[132]、澳大利亚墨尔本大学 Scholten 组^[90]、英国曼切斯特大学^[91]、法国国家科学研究院^[137]、美国国家标准与技术研究院^[138]以及英国杜伦大学^[139]等. Luiten 组的超冷源系统以 MOT 为中心, 而用于加速和提取电子的电场由围绕陷俘原子的同轴结构提供, 其装置示意图如图 20 (a) 所示. 除了研究电离动力学外^[140], 该系统还用于证明 CAES 单发衍射的适用性^[63]、超快电子束的产生^[65]和 UED 实验^[132]. Scholten 组^[95]采用另一种设计来产生 CAES, 特别之处在于将加速结构作为形成 MOT 的光学系统的一部分, 如图 20 (b) 所示. 加速结构包含一个透明的氧化铟锡 (ITO) 电极和一个用于反射 MOT 所需冷却激光束的金电极. 该装置演示了 CAES 的电子束整形^[95]、超快的 CAES 的产生^[66]、详细观察了带电粒子束的空间电荷动力学^[141]以及首次演示了 CAES 单发电子衍射实验^[90]. 如图 20 (c) 所示为曼切斯特大学设计的新型 CAES, 其以交流型 MOT (AC-MOT)^[61]为核心, 在 AC-MOT 中的原子冷却和陷俘将被激发光脉冲选择性地电离^[91].

上述三种常见装置均是基于中性原子的激光冷却、激发和电离而形成的 MOT 源, 其基本结构都是以耦合加速结构至三维 MOT 周围为基础. 最近, 产生更高亮度的电子和离子束的迫切需要也推动着基于激光冷却和压缩原子束电子和离子源的发展 (图 20 (d) 所示)^[137,138,142]. 高亮度主要是由于较之 MOT 源, 其原子通量更大, 这种新的电子和离子源仍处于发展中.

各种典型的 CAES 装置电子最低温度均为 10 K, 相应的源处横向相干长度约 10 nm, 结合几十微米的电子源尺寸, 其相对横向相干长度为 $C_{\perp} \approx 10^{-3}$, 这正是成像蛋白质微晶所需的量级^[65]. 迄今为止报道的最大的束团电荷量为 80 fC ($5 \times 10^5 e^-$)^[90], 足以获得金的单发超快衍射图.

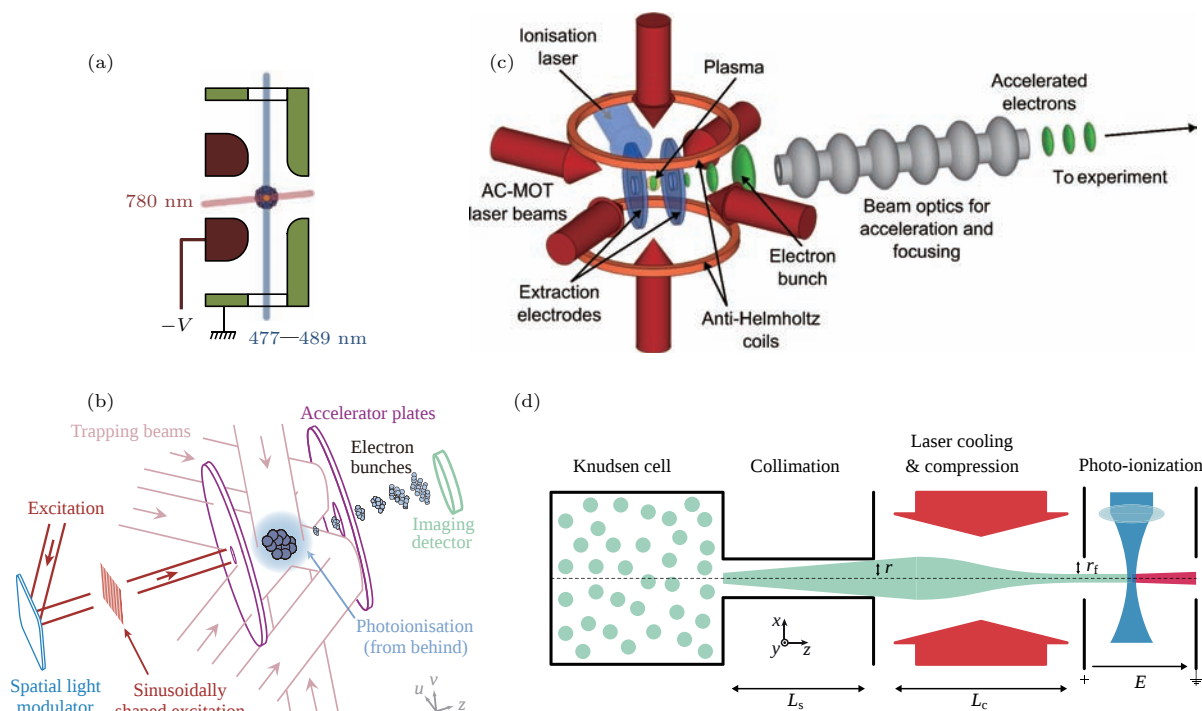


图 20 (网刊彩色) 不同的超冷源装置示意图 [64,65,91,142] (a) 加速场快速开关型; (b) 横向整形型; (c) AC-MOT; (d) 高亮度冷原子源

Fig. 20. (color online) Different implementations of the cold atom electron source [64,65,91,142]: (a) Design optimised for rapid switching of the accelerator field; (b) using accelerators as part of the optical system with the potential for transverse bunch shaping; (c) based upon an AC-MOT; (d) laser cooled atomic beams.

6.3 CAES的特性

6.3.1 超冷电子束的任意整形

高相干性是实现电子衍射所需空间分辨率的必要前提, 但却受限于传统电子源的热性质和电子间库仑排斥引起的发散. 如果电子被塑造成均匀填充的椭球束, 则可重新压缩和逆转库仑扩张以在目标处产生最小的发射度 [98,101]. 这一想法最初是针对光阴极发射源提出的 [98], 但它也同样适用于超冷源 [58]. CAES的独特性质之一就是其电子束的任意整形能力, 可通过更换空间光调制器 (spatial light modulator, SLM) 相位掩模板改变初始电子空间分布 (见图 2 (b)), 也可通过控制正交的电离激光光强分布沿着电子传播方向整形 [95] 产生煎饼束, 其自然演变成理想的均匀椭球分布以减小由于非线性库仑作用造成的相干性丢失 [60,98].

2011年, Scholten课题组 [95] 首次演示了任意且实时控制超冷电子束形状的实验, 其方法是利用 SLM 对 780 nm 入射光进行整形从而产生相应形状的电荷分布, 然后电子束在离开气体时保留了该形状. 图 21 (a) 展示了电离激光波长逐渐减小即逐渐

升高温度时空间分辨率依次退化, 直到结构不再明显. 在低温下详细复杂图案的保存印证了可用 CAES 获得极佳的相干性. 为了更精确地量化温度对空间相干性的影响, 激发光光束轮廓被调整以产生边缘清晰的准均匀电子束. 随着剩余激发能的增加, 边缘逐渐模糊, 可提供结构随电子温度丢失的精确测试 (图 21 (b)), 提取的最小电子温度上限 $T_0 < (10 \pm 5)$ K, 间接地预示着固有横向相干长度 $L_{\perp,0} < (10 \pm 3)$ nm. 该测量表明 CAES 的横向相干长度足以衍射成像许多纳米晶体和感兴趣的固态结构, 甚至是小病毒 [35]. 空间相干长度可以通过减小温度而增加, 这一证明呈现出了一条通往克服由于空间电荷效应引起的库仑扩张和提高电子束亮度的康庄大道 [98].

6.3.2 横向相干性的直接测量

为了直接测量任意形状的 CAES 的横向相干长度, Saliba 等 [64] 引入了准均匀模型, 通过利用 SLM 直接改变干涉条纹间距并探测不同条纹频率的相干函数获得了如图 22 (a) 所示的电子束可见度与空间频率的关系. 相干长度可由测得的电子分布

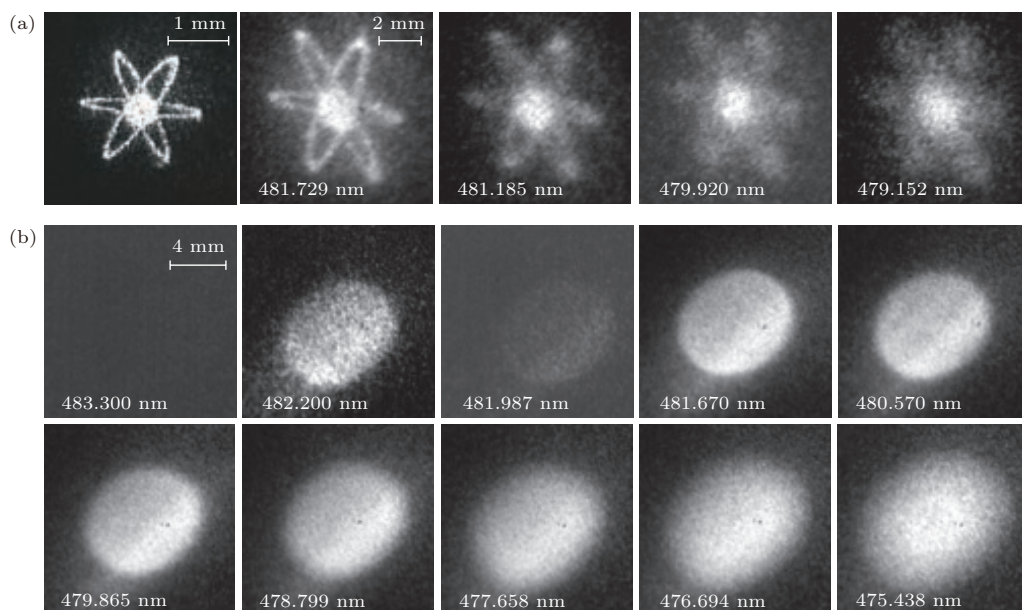


图 21 电子温度对电子分布结构退化的影响 (a) 激发光的光强分布 (左一) 和以各种过剩电离能提取的探测电子束序列; (b) 不同电离激光波长产生的准均匀电子束序列 [95]

Fig. 21. Effect of electron temperature on structural degradation: (a) Excitation-laser intensity profile (left) and sequence of detected electron bunches extracted with varying excess ionization energies; (b) sequence of quasi-uniform electron bunches for varying ionization-laser wavelength [95].

的可见度决定. 根据空间频率对可见度进行高斯拟合, 测得了 $L_{\perp,0} = (7.8 \pm 0.9)$ nm 的初始横向相干长度 (电子温度 $T = (14 \pm 2)$ K), 此处的横向相干长度测量是一个下限值, 因为可见度降低不能仅归咎于相干效应. 由于紧随电离的额外内部加热过程使得电子温度进一步增加 T_0 [143], 最终的电子温度为 $T_L + T_0$, 相干长度随之变为

$$L_{\perp,0} = \frac{\hbar}{\sqrt{mk_B(T_L + T_0)}}.$$

图 22 (b) 表明了过剩电离能 T_L (光电离激光波长控制的额外的超阈值加热) 与相干长度的变化关系, 电子束温度的增加使得相干长度不断减小, 其中红色虚线是没有额外的内部加热过程 ($T_0 = 0$ K) 下相干长度的变化. 从以自由参数 T_0 拟合的相干长度 (图 22 (b) 中实线) 发现 $T_0 = (9.9 \pm 3)$ K. 零剩余能离化 ($T_L = 0$ K) 可以通过调节电离激光波长和加速电场至里德伯共振态而实现, 然后产生的横向相干长度为 $L_{\perp,0} = 9.5$ nm, 与先前的间接估计符合 [95]. CAES 的任意整形能力提供了一个简单易行的电子束横向相干性测量方法. 相比于电子温度 $T = 10^4$ K 量级的光电发射电子源 $L_{\perp,0} = 0.3$ nm 的相干长度, 测得的 CAES 相干长度以及潜在的高亮度有望应用于生物和其他纳米晶体的相干衍射成像.

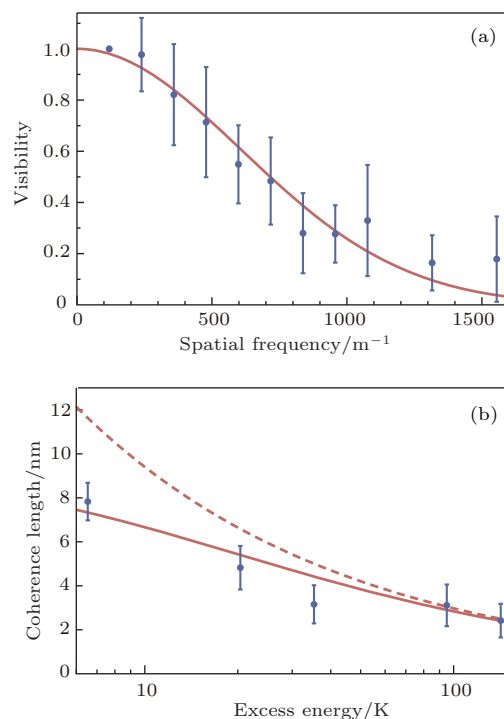


图 22 (网刊彩色) 超冷源相干性的直接测量 (a) 电子束图案可见度与空间频率的关系; (b) 过剩电离能与相干长度的依赖关系 [64]

Fig. 22. (color online) Direct measurements of the transverse coherence length of a cold atom electron source: (a) Visibility of electron bunch pattern as a function of spatial frequency; (b) variation of coherence length with excess ionization energy [64].

6.3.3 飞秒激光驱动的光致电离

在冷原子源中, 电子通常是由冷原子以两步过程光电离产生, 首先由微秒激光将原子激发到中间态, 再由纳秒激光电离激发态原子^[59,95], 由于CAES驱动激光脉宽的限制, 只能产生纳秒级的电子束脉冲, 这对于观察超快动力学过程来说太长. 一束短的电离激光脉冲原则上可以产生对应的短电子束, 但当脉宽 Δt 减小, 脉冲频谱宽度 $\Delta\omega$ 必然增大. 乍一看, 可能会认为电离脉冲的能量不确定性被转移到电子动量弥散, 从而降低横向相干性. 但是Scholten研究组^[95]和Luiten研究组^[65]最近分别独立证明了事实并非如此, 两个研究组都是将铷原子 ^{85}Rb 激发到5P态, 再用另一束脉冲激光电离, 不同之处在于一个采用110 fs的飞秒脉冲激发、5 ns的脉冲电离(图23(a)), 另一个采用长脉冲激光激发、58 fs的飞秒脉冲电离(图23(b)), 但均证明了冷原子可在飞秒激光作用下产生皮秒级高空间相干^[65,66]的超短电子束. 剩余动能 E_{exc} 并不是被均匀地重新分配在所有自由度之间, 而是大部分贡献给电子的纵向运动. 这项证明为CAES用于结构动力学研究提供了可能, 结合最新发展的射频压缩技术^[36,38]还有可能将束团长度再降低三个数量级. 该工作是实现生物材料等UED的重要环节, 表明了尽管激光脉冲带宽较大, 依旧可获得高达 $L_{\perp,0} = 4.0 \text{ nm}$ 的横向相干长度和 $C_{\perp} = 2 \times 10^{-4}$ 的相对相干长度, 足以成像部分纳米晶体.

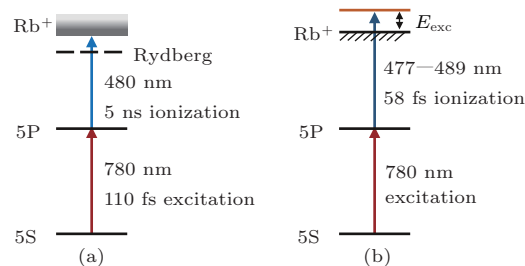


图23 (网刊彩色) 电离方案 (a) 双色光电离^[66]; (b) 近阈值电离^[65]

Fig. 23. (color online) Ionization schemes: (a) Two-colour sub-threshold photoionization scheme^[66]; (b) photoionizing laser-cooled Rb atoms near the ionization threshold^[65].

6.3.4 超冷源的空间电荷动力学

带电粒子束库仑扩张的控制对于诸如UED^[14]、电子和离子显微^[144]、粒子加速器^[145]和高亮度X射线源^[80]等应用至关重要. 然而, 逆转空间电荷驱动扩张技术的发展却受限于热扩散的掩蔽效应(masking effect). 2014年, Murphy等^[141]研究了近阈值光电离产生的冷离子束的空间电荷效应. 在此基础上, Thompson等^[146]利用超冷带电粒子(采用具有更低温度的冷离子源, 温度1 mK^[147])可忽略热扩散的特性详细地观察了冷离子源的空间电荷效应, 明确地表明了三维整形会使得库仑力驱动发射度增长减小, 第一次清楚地分辨出不同初始粒子分布的非线性增长变化.

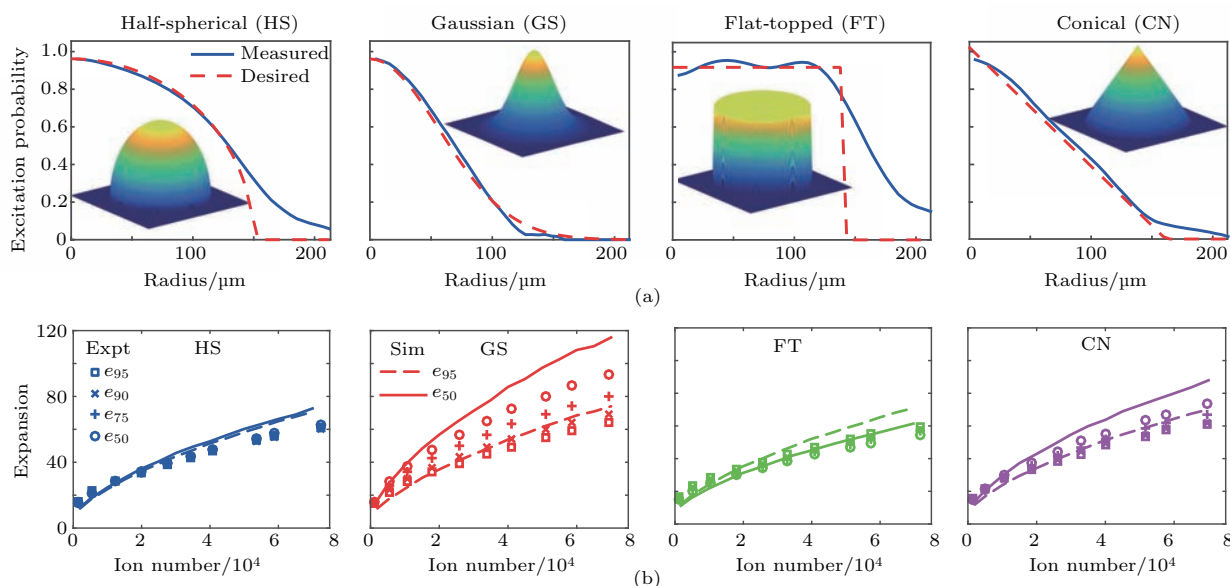


图24 (网刊彩色) 四种离子束分布及其空间电荷扩张 (a) 激发光形状与相对激发概率的关系; (b) 径向扩张因子与离子数的关系^[146]

Fig. 24. (color online) Four ion bunch distributions and their expansion properties: (a) Measured radially averaged excitation laser profiles (solid lines) and desired profiles (dashed lines), plotted as the relative excitation probability; (b) radial expansion factors against ion number for each shape individually^[146].

图 24(a) 所示分别为所研究的四种离子束分布: 半球型(HS)、高斯型(GS)、平顶束(FT)以及圆锥型(CN). 为了评估冷原子电子和离子源(cold atom electron and ion source, CAEIS)扩张的自相似性, 在探测器处测量了含 50%, 75%, 90% 和 95% 束团电荷量的不同分布的横向半径, 然后把这些半径比上其初始值得到了扩张因子 e_{50} , e_{75} , e_{90} 和 e_{95} . 由图 24(b) 可知, 在低离子数时, 束团扩张主要由加速极小孔处的透镜作用决定, 因而各种形状均近似为扩张因子 20 的线性扩张. 随着离子数增加, 空间电荷效应变得更加显著, GS 和 CN 分布的初始中心密度较大, 造成中央半径扩张因子 e_{50} 和 e_{75} 比外半径扩张因子 e_{90} 和 e_{95} 增长更快. FT 分布恰好相反, 由于初始中心密度较小, e_{50} 和 e_{75} 增长慢于 e_{90} 和 e_{95} . 对于 HS 分布, 膨胀因子不随离子数增加而改变, 意味着线性自相似空间电荷扩张和所需的均匀椭球束的形成^[98]. 同时从粒子跟踪软件仿真中提取了预期的扩张因子, 与实验数据符合良好, 特别是对于 HS 分布.

在 CAEIS 中, 加速区内重离子束比低质量电子分散慢得多, 因此表现出更强的空间电荷效应^[141], 从而纳秒级离子束电荷分布的测量可直接类推到皮秒级超冷电子束^[140,141]. 初始束轮廓整形抑制空间电荷诱导发射度增长的证明是冷电子源发展的一个重要里程碑, 是利用超冷源固有相干性和亮度进行非晶目标单发超快衍射的必要条件, 相关应用涵盖飞秒化学^[74]、材料科学^[14]和物理生物学^[9].

6.4 冷原子电子衍射

通过将近 10 年的超冷电子源特性探索, 研究人员终于开始将其用于实验研究. 2014 年, 埃因霍芬理工大学 Luiten 研究组^[132]通过增加磁透镜, 发射了 100 Hz 的脉冲电子束至石墨薄片, 首次展示了 CAES 的 TRED 实验, 产生的衍射图样提供了冷原子电子衍射的原理性论证. 该实验装置如图 25(a) 所示, 电子束首先由激光冷却和陷阱的铷原子云的近阈值光电离产生, 然后被迅速加速到高能态, 再由两个磁透镜聚焦到石墨样品(虚线左侧)或者探测器(虚线右侧)上. 图 25(b) 为在 100 Hz 重频下累积大约 1000 发而获得的单晶石墨样品的超冷电子衍射图: 其中①为电子在微通道板处聚焦时的衍射

图; ②和③所示分别为电子温度 250 K 和 10 K 下在样品处聚焦时的衍射图; ④, ⑤和⑥分别为图中蓝色方块内衍射斑的均方根尺寸. 图 25(b) ⑤与⑥中不同的衍射斑宽度很好地证明了低电子温度可以提高图像分辨率. 应用的电场和电离激光脉冲共同决定了所释放电子的动能分布, 从而决定了它们的有效温度. 通过在运行中不断改变电离激光的波长(477—500 nm), 将电子温度从 300 K 降到 10 K, 可发现衍射峰的宽度逐渐变窄, 与预期相符. 图 25(b) ③中所示的衍射图是由 10 K 的电子束聚焦到 100 μm 时获得的, 估算其相干长度不小于 15 nm, 这样的相干长度足以进行复杂大分子的衍射研究. 然而该实验没有解决超冷电子源通量问题, 为了缓解空间电荷效应恶化相干性, 离子化激光脉冲仅产生包含几百个电子的电子束.

墨尔本大学 Scholten 研究组的 Speirs 等^[90]于 2015 年第一次获得了基于 CAES 的单发电子衍射图样. 实验装置如图 26(a) 所示, 可分别工作在透射(i)和反射模式(ii), 通过使用更大的电离区域产生了单脉冲约 5×10^5 个电子, 随后被加速到 8 keV, 再利用磁透镜将之聚焦到金膜样品上, 并由探测器接收. 较大的束团电荷量使得在单发模式下就可以获得足够的信号从而得到有用的衍射数据. 图 26(b) 所示为 11 nm 厚的金膜的单发衍射图. 为了获得更高的信噪比, 采集 2000 发后直接取平均, 见图 26(c). 当和单发图像对比时可以发现衍射斑被显著地加宽, 表明时间平均的电子束的横向相干性较之单发时减小. 这种相干性损失源于电子束的漂移, 可理解为发与发之间的不稳定性导致布拉格峰的加宽. 高信噪比的单发衍射可以实现单个图像的自动配准(automatic registering). 为了说明并补偿电子束抖动, 对连续的单发图像进行了配准, 由此产生的配准平均图像(2000 幅平均)如图 26(d) 所示, 显示出了更清晰的布拉格点. 单发、直接平均和配准平均三种情况下单个布拉格反射峰的比较如图 26(e) 所示, 图中显示单发衍射图和配准平均衍射图具有更高的峰值强度和更窄的反射峰宽度, 阐明了实现单发衍射的重要性. 单发衍射的实现是 CAES 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电阴极源的有力补充.

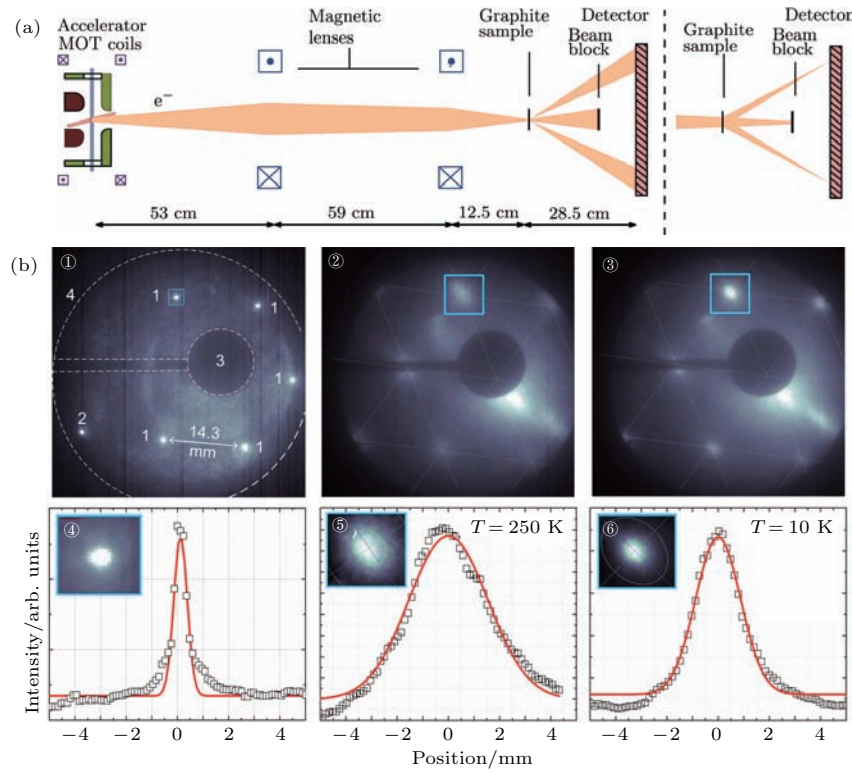


图 25 (网刊彩色) Luiten 研究组的冷原子电子衍射 (a) 实验装置; (b) 超冷电子衍射图: ①探测器处聚焦; ②样品处聚焦, 电子温度 $T = 250$ K; ③样品处聚焦, 电子温度 $T = 10$ K; ④探测器上的均方根束斑尺寸; ⑤和⑥分别为②和③中蓝色方块内的电子斑尺寸^[132]

Fig. 25. (color online) Eindhoven University of Technology CAES: (a) Experimental set-up; (b) ultrafast diffraction images for: ① focusing at the detector plane; ②, ③ focusing at the sample plane with $T = 250$ K and $T = 10$ K electrons respectively; ④ the line profile along the minor axis of one of the spots and its Gaussian fit; ⑤, ⑥ line profiles of ② and ③ respectively^[132].

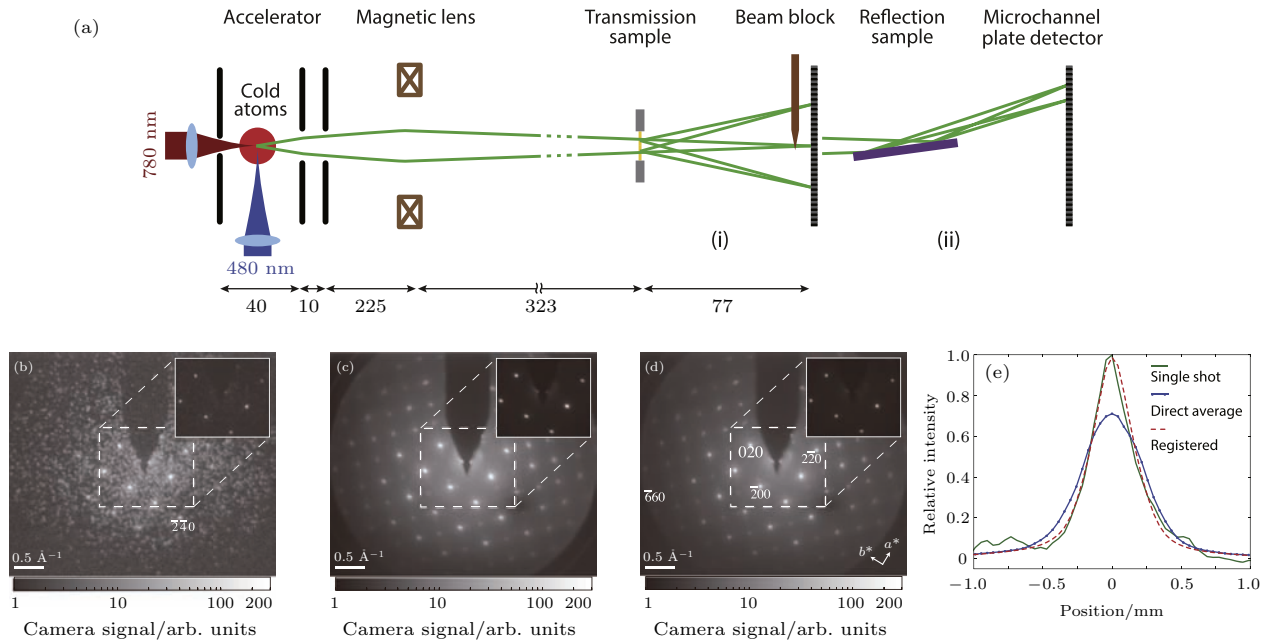


图 26 (网刊彩色) Scholten 研究组的冷原子电子衍射 (a) 实验装置 (i) 透射或 (ii) 反射模式; (b) 金的单发透射电子衍射图; (c) 2000 幅金衍射图直接平均; (d) 2000 幅配准图像的平均; (e) 布拉格反射峰的比较^[90]

Fig. 26. (color online) University of Melbourne CAES: (a) Experimental set-up, (i) transmission (ii) reflection geometries; (b) single-shot diffraction pattern from gold; (c) direct average of 2000 diffraction shots; (d) registered average of 2000 individual images; (e) the difference between single-shot, registered average and direct averages in term of peak intensity and width^[90].

7 总结与展望

电子衍射是纳米尺度物质结构研究的重要技术手段, 辅之以原子级时间分辨可实现对超快动力学过程的直接观察. 电子束的横向相干性是TRED技术的关键参量, 与电子源的初始尺寸、有效温度、能量弥散以及电子间固有的库仑排斥密切相关. 为了满足各种样品对相干性的要求, 需要不断发展高相干的超快电子探针. 本文重点讨论了平面阴极光电发射源横向相干性的研究进展, 并详细介绍了最新发展的尖端发射源和CAES的独有特性和典型应用.

对比以上三种电子源, 可以总结出限制电子源相干性发展的因素以及相应的提升方法. 通过减小激光束斑尺寸和热发射度, 结合三维激光整形技术, 平面阴极单发电子源的横向和纵向相干长度有望同时达到10 nm以上. 不断优化初始能量弥散且进一步限制入射光斑尺寸, 直流型飞秒电子源可获得20 nm以上的横向相干长度, 而飞秒单电子源有望提供100 nm的极高横向相干长度. 总体而言, 平面阴极发射源的高相干长度往往是以牺牲电流为代价的. 纳米尖端源具有最高的相干长度, 但与飞秒单电子源类似, 必须一次至多发射一个电子以消除电子间的库仑作用, 因此, 只能通过频闪模式累积上百万发以形成衍射图样. CAES具有大于15 nm的横向相干度且峰值亮度与很多传统电子源相当, 足以进行部分复杂大分子的衍射研究. 随着冷原子离子源正在快速地进入商业化阶段, 我们完全有理由期待在不久的将来CAES会有类似的激动人心的进展.

得益于传统电子源相干性的不断提升以及新型电子源的出现, 未来有可能在揭示复杂有机、无机和生物结构, 特别是蛋白质的动力学行为方面取得突破性的进展, 促进对纳米尺度的能量输运、固-液和固-气界面动力学、量子材料的光子控制、化学反应(气体、液体和纳米材料)的分子动力学过程的理解以及实现介观材料的动力学研究.

参考文献

- [1] Hentschel M, Kienberger R, Spielmann C, Reider G A, Milosevic N, Brabec T, Corkum P, Heinzmann U, Drescher M, Krausz F 2001 *Nature* **414** 509
- [2] Li R T, Li Z, Dong Z L, Khor K A 2016 *Crystals* **6** 105
- [3] Dwyer J R, Hebeisen C T, Ernstorfer R, Harb M, Deyirmenjian V B, Jordan R E, Miller R J D 2006 *Philos. T. Roy. Soc. A* **364** 741
- [4] Miller R J D 2014 *Science* **343** 1108
- [5] Williamson J C, Zewail A H 1991 *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* **88** 5021
- [6] Chase T, Trigo M, Reid A H, Li R, Vecchione T, Shen X, Weathersby S, Coffee R, Hartmann N, Reis D A, Wang X J, Durr H A 2016 *Appl. Phys. Lett.* **108** 041909
- [7] Gao M, Lu C, Jean-Ruel H, Liu L C, Marx A, Onda K, Koshihara S, Nakano Y, Shao X F, Hiramatsu T, Saito G, Yamochi H, Cooney R R, Moriena G, Sciaini G, Miller R J D 2013 *Nature* **496** 343
- [8] Fitzpatrick A W P, Vanacore G M, Zewail A H 2015 *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* **112** 3380
- [9] Vanacore G M, Fitzpatrick A W P, Zewail A H 2016 *Nano Today* **11** 228
- [10] Waldecker L, Berton R, Ernstorfer R 2015 *J. Appl. Phys.* **117** 044903
- [11] Robinson M S, Lane P D, Wann D A 2015 *Rev. Sci. Instrum.* **86** 013109
- [12] Gerbig C, Senftleben A, Morgenstern S, Sarpe C, Baumert T 2015 *New J. Phys.* **17** 043050
- [13] Sciaini G, Miller R J D 2011 *Rep. Prog. Phys.* **74** 96101
- [14] Siwick B J, Dwyer J R, Jordan R E, Miller R J D 2003 *Science* **302** 1382
- [15] Harb M, Ernstorfer R, Hebeisen C T, Sciaini G, Peng W, Dartigalongue T, Eriksson M A, Lagally M G, Kruglik S G, Miller R J D 2008 *Phys. Rev. Lett.* **100** 155504
- [16] Badali D S, Gengler R Y N, Miller R J D 2016 *Struct. Dyn.* **3** 034302
- [17] Kasmi L, Kreier D, Bradler M, Riedle E, Baum P 2015 *New J. Phys.* **17** 033008
- [18] Aidelsburger M, Kirchner F O, Krausz F, Baum P 2010 *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* **107** 19714
- [19] Kirchner F O, Lahme S, Krausz F, Baum P 2013 *New J. Phys.* **15** 063021
- [20] Lahme S, Kealhofer C, Krausz F, Baum P 2014 *Struct. Dyn.* **1** 034303
- [21] Zhu P F, Fu F C, Liu S G, Xiang D, Zhang J, Gao J M 2014 *Chin. Phys. Lett.* **31** 116101
- [22] Zhu P F, Zhu Y, Hidaka Y, Wu L, Cao J, Berger H, Geck J, Kraus R, Pjerov S, Shen Y, Tobey R I, Hill J P, Wang X J 2015 *New J. Phys.* **17** 063004
- [23] Carbajo S, Nanni E A, Wong L J, Moriena G, Keathley P D, Laurent G, Miller R J D, Kartner F X 2016 *Phys. Rev. Accel. Beams* **19** 021303
- [24] Kealhofer C, Schneider W, Ehberger D, Ryabov A, Krausz F, Baum P 2016 *Science* **352** 429
- [25] Hastings J B, Rudakov F M, Dowell D H, Schmerge J F, Cardoza J D, Castro J M, Gierman S M, Loos H, Weber P M 2006 *Appl. Phys. Lett.* **89** 184109
- [26] Wang X J, Xiang D, Kim T K, Ihse H 2006 *J. Korean Phys. Soc.* **48** 583
- [27] Fill E, Veisz L, Apolonski A, Krausz F 2006 *New J. Phys.* **8** 272
- [28] Yang J F, Kan K, Naruse N, Yoshida Y, Tanimura K, Urakawa J 2009 *Radiat. Phys. Chem.* **78** 1106

- [29] Li R K, Huang W H, Du Y C, Yan L X, Du Q, Shi J R, Hua J F, Chen H B, Du T B, Xu H S, Tang C X 2010 *Rev. Sci. Instrum.* **81** 036110
- [30] Weathersby S P, Brown G, Centurion M, Chase T F, Coffee R, Corbett J, Eichner J P, Frisch J C, Fry A R, Guhr M, Hartmann N, Hast C, Hettel R, Jobe R K, Jongewaard E N, Lewandowski J R, Li R K, Lindenberg A M, Makasyuk I, May J E, McCormick D, Nguyen M N, Reid A H, Shen X, Sokolowski-Tinten K, Vecchione T, Vetter S L, Wu J, Yang J, Durr H A, Wang X J 2015 *Rev. Sci. Instrum.* **86** 073702
- [31] Tokita S, Hashida M, Inoue S, Nishoji T, Otani K, Sakabe S 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 215004
- [32] Wang C, Kang Y F 2014 *Optik* **125** 6352
- [33] Baum P, Zewail A H 2009 *Chem. Phys.* **366** 2
- [34] Veisz L, Kurkin G, Chernov K, Tarnetsky V, Apolonski A, Krausz F, Fill E 2007 *New J. Phys.* **9** 97
- [35] van Oudheusden T, de Jong E F, van der Geer S B, Root W P E M O, Luiten O J, Siwick B J 2007 *J. Appl. Phys.* **102** 093501
- [36] van Oudheusden T, Pasmans P L E M, van der Geer S B, de Loos M J, van der Wiel M J, Luiten O J 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 264801
- [37] Chatelain R P, Morrison V R, Godbout C, Siwick B J 2012 *Appl. Phys. Lett.* **101** 081901
- [38] Gao M, Jean-Ruel H, Cooney R R, Stampe J, de Jong M, Harb M, Sciaini G, Moriena G, Miller R J D 2012 *Opt. Express* **20** 12048
- [39] Gliserin A, Apolonski A, Krausz F, Baum P 2012 *New J. Phys.* **14** 073055
- [40] Baum P, Zewail A 2008 *Chem. Phys. Lett.* **462** 14
- [41] Kirchner F O, Gliserin A, Krausz F, Baum P 2013 *Nat. Photon.* **8** 52
- [42] Yang J, Guehr M, Vecchione T, Robinson M S, Li R K, Hartmann N, Shen X Z, Coffee R, Corbett J, Fry A, Gaffney K, Gorkhover T, Hast C, Jobe K, Makasyuk I, Reid A, Robinson J, Vetter S, Wang F L, Weathersby S, Yoneda C, Centurion M, Wang X J 2016 *Nat. Commun.* **7** 11232
- [43] Baum P 2013 *Chem. Phys.* **423** 55
- [44] Hommelhoff P, Kealhofer C, Kasevich M A 2006 *Phys. Rev. Lett.* **97** 247402
- [45] Hommelhoff P, Sortais Y, Aghajani-Talesh A, Kasevich M A 2006 *Phys. Rev. Lett.* **96** 77401
- [46] Ropers C, Solli D R, Schulz C P, Lienau C, Elsaesser T 2007 *Phys. Rev. Lett.* **98** 43907
- [47] Yanagisawa H, Hafner C, Dona P, Klockner M, Leuenberger D, Greber T, Hengsberger M, Osterwalder J 2009 *Phys. Rev. Lett.* **103** 257603
- [48] Bormann R, Gulde M, Weismann A, Yalunin S V, Ropers C 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 147601
- [49] Schenk M, Kruger M, Hommelhoff P 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 257601
- [50] Yanagisawa H, Hafner C, Dona P, Klockner M, Leuenberger D, Greber T, Osterwalder J, Hengsberger M 2010 *Phys. Rev. B* **81** 115429
- [51] Kruger M, Schenk M, Hommelhoff P 2011 *Nature* **475** 78
- [52] Herink G, Solli D R, Gulde M, Ropers C 2012 *Nature* **483** 190
- [53] Kealhofer C, Foreman S M, Gerlich S, Kasevich M A 2012 *Phys. Rev. B* **86** 035405
- [54] Quinonez E, Handali J, Barwick B 2013 *Rev. Sci. Instrum.* **84** 103710
- [55] Hoffrogge J, Stein J P, Kruger M, Forster M, Hammer J, Ehberger D, Baum P, Hommelhoff P 2014 *J. Appl. Phys.* **115** 094506
- [56] Bormann R, Strauch S, Schafer S, Ropers C 2015 *J. Appl. Phys.* **118** 173105
- [57] Gulde M, Schweda S, Storeck G, Maiti M, Yu H K, Wodtke A M, Schafer S, Ropers C 2014 *Science* **345** 200
- [58] Claessens B J, van der Geer S B, Taban G, Vredendregt E J D, Luiten O J 2005 *Phys. Rev. Lett.* **95** 164801
- [59] Claessens B J, Reijnders M P, Taban G, Luiten O J, Vredendregt E J D 2007 *Phys. Plasmas* **14** 093101
- [60] Luiten O J, Claessens B J, van der Geer S B, Reunders M P, Taban G, Vredendregt E J D 2007 *Int. J. Mod. Phys. A* **22** 3882
- [61] Harvey M, Murray A J 2008 *Phys. Rev. Lett.* **101** 173201
- [62] van der Geer S B, de Loos M J, Vredendregt E J D, Luiten O J 2009 *Microsc. Microanal.* **15** 282
- [63] Taban G, Reijnders M P, Fleskens B, van der Geer S B, Luiten O J, Vredendregt E J D 2010 *Epl. Europhys. Lett.* **91** 46004
- [64] Saliba S D, Putkunz C T, Sheludko D V, McCulloch A J, Nugent K A, Scholten R E 2012 *Opt. Express* **20** 3967
- [65] Engelen W J, Heijden M A V D, Bakker D J, Vredendregt E J D, Luiten O J 2013 *Nat. Commun.* **4** 1693
- [66] McCulloch A J, Sheludko D V, Junker M, Scholten R E 2013 *Nat. Commun.* **4** 1692
- [67] Viteau M, Reveillard M, Kime L, Rasser B, Sudraud P, Bruneau Y, Khalili G, Pillet P, Comparat D, Guerri I, Fioretti A, Ciampini D, Allegrini M, Fuso F 2016 *Ultra-microscopy* **164** 70
- [68] Mourou G, Williamson S 1982 *Appl. Phys. Lett.* **41** 44
- [69] Williamson S, Mourou G, Li J C M 1984 *Phys. Rev. Lett.* **52** 2364
- [70] Elsayed-Ali H E, Mourou G A 1988 *Appl. Phys. Lett.* **52** 103
- [71] Williamson J C, Dantus M, Kim S B, Zewail A H 1992 *Chem. Phys. Lett.* **196** 529
- [72] Ihee H, Zewail A H 2001 *Science* **291** 458
- [73] Yang J, Guehr M, Shen X Z, Li R K, Vecchione T, Coffee R, Corbett J, Fry A, Hartmann N, Hast C, Hegazy K, Jobe K, Makasyuk I, Robinson J, Robinson M S, Vetter S, Weathersby S, Yoneda C, Wang X J, Centurion M 2016 *Phys. Rev. Lett.* **117** 153002
- [74] Williamson J C, Cao J M, Ihee H, Frey H, Zewail A H 1997 *Nature* **386** 159
- [75] Park S T, Gahlmann A, He Y G, Feenstra J S, Zewail A H 2008 *Angew. Chem. Int. Edit* **47** 9496
- [76] Ernstorfer R, Harb M, Hebeisen C T, Sciaini G, Dartigalongue T, Miller R J D 2009 *Science* **323** 1033

- [77] Sciaini G, Harb M, Kruglik S G, Payer T, Hebeisen C T, Heringdorf F J M Z, Yamaguchi M, Hoegen M H V, Ernstorfer R, Miller R J D 2009 *Nature* **458** 56
- [78] Chatelain R P, Morrison V R, Klarenaar B L M, Siwick B J 2014 *Phys. Rev. Lett.* **113** 235502
- [79] Erasmus N, Eichberger M, Haupt K, Boshoff I, Kassier G, Birmurske R, Berger H, Demsar J, Schwoerer H 2012 *Phys. Rev. Lett.* **109** 167402
- [80] Woerner M, Holtz M, Juve V, Elsaesser T, Borgschulte A 2014 *Faraday Discuss* **171** 373
- [81] Elsaesser T, Woerner M 2014 *J. Chem. Phys.* **140** 020901
- [82] Sciaini G, Gao M, Lu C, Jeanruel H, Liu L C, Marx A, Onda K, Koshihara S, Nakano Y, Shao X 2015 *Microsc. Microanal.* **21** 1207
- [83] McNeil B W J, Thompson N R 2010 *Nat. Photon.* **4** 814
- [84] Pile D 2011 *Nat. Photon.* **5** 456
- [85] Park J, Kim S, Nam K H, Kim B, Ko I S 2016 *J. Korean Phys. Soc.* **69** 1089
- [86] Ziegler A 2011 *Mrs. Bull.* **36** 121
- [87] Carbone F, Musumeci P, Luiten O J, Hebert C 2012 *Chem. Phys.* **392** 1
- [88] Zernike F 1938 *Physica* **5** 785
- [89] McMorran B, Cronin A D 2008 *Phys. Rev. A* **78** 013601
- [90] Speirs R W, Putkunz C T, McCulloch A J, Nugent K A, Sparkes B M, Scholten R E 2015 *J. Phys. B: At. Mol. Opt.* **48** 214002
- [91] Xia G, Harvey M, Murray A J, Bellan L, Bertsche W, Appleby R B, Mete O, Chattopadhyay S 2014 *J. Instrum.* **9** P06011
- [92] Gahlmann A, Park S T, Zewail A H 2008 *Phys. Chem. Chem. Phys.* **10** 2894
- [93] Berglund C N, Spicer W E 1964 *Phys. Rev.* **136** A1030
- [94] Zewail A H 2010 *Science* **328** 187
- [95] McCulloch A J, Sheludko D V, Saliba S D, Bell S C, Junker M, Nugent K A, Scholten R E 2011 *Nat. Phys.* **7** 785
- [96] Homann C, Schriever C, Baum P, Riedle E 2008 *Opt. Express* **16** 5746
- [97] Musumeci P, Moody J T, Scoby C M, Gutierrez M S, Westfall M 2010 *Appl. Phys. Lett.* **97** 063502
- [98] Luiten O J, van der Geer S B, de Loos M J, Kiewiet F B, van der Wiel M J 2004 *Phys. Rev. Lett.* **93** 094802
- [99] Li R K, Roberts K G, Scoby C M, To H, Musumeci P 2012 *Phys. Rev. Spec. Top.-Accelerators and Beams* **15** 090702
- [100] Mironov S Y, Poteomkin A K, Gacheva E I, Andrianov A V, Zelenogorskii V V, Vasiliev R, Smirnov V, Krasilnikov M, Stephan F, Khazanov E A 2016 *Laser Phys. Lett.* **13** 055003
- [101] Musumeci P, Moody J T, England R J, Rosenzweig J B, Tran T 2008 *Phys. Rev. Lett.* **100** 244801
- [102] Musumeci P, Faillace L, Fukasawa A, Moody J T, O'Shea B, Rosenzweig J B, Scoby C M 2009 *Microsc. Microanal.* **15** 290
- [103] Li R K, Musumeci P 2014 *Phys. Rev. Appl.* **2** 024003
- [104] Morrison V R, Chatelain R P, Tiwari K L, Hendaoui A, Bruhacs A, Chaker M, Siwick B J 2014 *Science* **346** 445
- [105] Lu X H, Du Y C, Huang W H, Tang C X 2014 *Chin. Phys. C* **38** 128201
- [106] Muro'oka Y, Naruse N, Sakakihara S, Ishimaru M, Yang J, Tanimura K 2011 *Appl. Phys. Lett.* **98** 251903
- [107] Giret Y, Naruse N, Daraszewicz S L, Murooka Y, Yang J F, Duffy D M, Shluger A L, Tanimura K 2013 *Appl. Phys. Lett.* **103** 253107
- [108] Miller R J D 2014 *Annu. Rev. Phys. Chem.* **65** 583
- [109] Ehberger D, Hammer J, Eisele M, Kruger M, Noe J, Hogege A, Hommelhoff P 2015 *Phys. Rev. Lett.* **114** 227601
- [110] Yang D S, Mohammed O F, Zewail A H 2010 *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* **107** 14993
- [111] Barwick B, Corder C, Strohaber J, Chandler-Smith N, Uiterwaal C, Batelaan H 2007 *New J. Phys.* **9** 142
- [112] Yanagisawa H, Hengsberger M, Leuenberger D, Klockner M, Hafner C, Greber T, Osterwalder J 2011 *Phys. Rev. Lett.* **107** 087601
- [113] Fedorov M V 2016 *J. Exp. Theor. Phys.* **122** 449
- [114] Paarmann A, Gulde M, Muller M, Schafer S, Schweda S, Maiti M, Xu C, Hohage T, Schenk F, Ropers C, Ernstorfer R 2012 *J. Appl. Phys.* **112** 113109
- [115] Ganter R, Bakker R, Gough C, Leemann S C, Paraliyev M, Pedrozzi M, Le Pimpec F, Schlott V, Rivkin L, Wrulich A 2008 *Phys. Rev. Lett.* **100** 064801
- [116] Bainbridge A R, Myers C W B, Bryan W A 2016 *Struct. Dyn.* **3** 023612
- [117] Cho B, Ichimura T, Shimizu R, Oshima C 2004 *Phys. Rev. Lett.* **92** 246103
- [118] Müller M, Paarmann A, Ernstorfer R 2014 *Nat. Commun.* **5** 5292
- [119] Mcneer J, Kozak M, Ehberger D, Schönenberger N, Tafel A, Li A, Hommelhoff P 2016 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **49** 034006
- [120] Breuer J, Hommelhoff P 2013 *Phys. Rev. Lett.* **111** 134803
- [121] Vella A 2013 *Ultramicroscopy* **132** 5
- [122] Longchamp J N, Latychevskaia T, Escher C, Fink H W 2013 *Phys. Rev. Lett.* **110** 255501
- [123] Raman R K, Tao Z, Han T R, Ruan C Y 2009 *Appl. Phys. Lett.* **95** 181108
- [124] Li J J, Wang X, Chen Z Y, Clinite R, Mao S S, Zhu P F, Sheng Z M, Zhang J, Cao J M 2010 *J. Appl. Phys.* **107** 083305
- [125] Scoby C M, Li R K, Threlkeld E, To H, Musumeci P 2013 *Appl. Phys. Lett.* **102** 023506
- [126] Krenzer B, Hanisch-Blicharski A, Schneider P, Payer T, Möllenbeck S, Osmani O, Kammler M, Meyer R, Hoegen H V 2009 *Phys. Rev. B* **80** 024307
- [127] Hanisch-Blicharski A, Janzen A, Krenzer B, Wall S, Klasing F, Kalus A, Frigge T, Kammler M, Hoegen H V 2013 *Ultramicroscopy* **127** 2
- [128] Hagège S 2004 *Philos. Magazine* **84** 2651
- [129] Seah M P, Dench W A 1979 *Surf. Interface Anal.* **1** 2
- [130] Geim A K, Grigorieva I V 2013 *Nature* **499** 419
- [131] Schlierf A, Samori P, Palermo V 2014 *J. Mater. Chem. C* **2** 3129

- [132] van Mourik M W, Engelen W J, Vredenburg E J D, Luiten O J 2014 *Struct. Dyn.* **1** 034302
- [133] Wineland D J, Itano W M 1979 *Phys. Rev. A* **20** 1521
- [134] Phillips W D, Prodan J V, Metcalf H J 1985 *J. Opt. Soc. Am. B* **2** 1751
- [135] Wu S J, Plisson T, Brown R C, Phillips W D, Porto J V 2009 *Phys. Rev. Lett.* **103** 173003
- [136] Hanssen J L, Hill S B, Orloff J, McClelland J J 2008 *Nano Lett.* **8** 2844
- [137] Kime L, Fioretti A, Bruneau Y, Porfido N, Fuso F, Viteau M, Khalili G, Santic N, Gloter A, Rasser B, Sudaud P, Pillet P, Comparat D 2013 *Phys. Rev. A* **88** 033424
- [138] Knuffman B, Steele A V, McClelland J J 2013 *J. Appl. Phys.* **114** 044303
- [139] Ates C, Lekanovsky I, Adams C S, Weatherill K J 2013 *Phys. Rev. Lett.* **110** 213003
- [140] Engelen W J, Vredenburg E J D, Luiten O J 2014 *Ultramicroscopy* **147** 61
- [141] Murphy D, Speirs R W, Sheludko D V, Putkunz C T, McCulloch A J, Sparkes B M, Scholten R E 2014 *Nat. Commun.* **5** 4489
- [142] Wouters S H W, Haaf G T, Notermans R P M J W, Debernardi N, Mutsaers P H A, Luiten O J, Vredenburg E J D 2014 *Phys. Rev. A* **90** 063817
- [143] Gupta P, Laha S, Simien C E, Gao H, Castro J, Killian T C, Pohl T 2007 *Phys. Rev. Lett.* **99** 075005
- [144] Orloff J 1993 *Rev. Sci. Instrum.* **64** 1105
- [145] Bernal S, Li H, Godlove T, Haber I, Kishek R A, Quinn B, Reiser M, Walter M, Zou Y, O'Shea P G 2004 *Phys. Plasmas* **11** 2907
- [146] Thompson D J, Murphy D, Speirs R W, van Bijnen R M W, McCulloch A J, Scholten R E, Sparkes B M 2016 *Phys. Rev. Lett.* **117** 193202
- [147] Debernardi N, Reijnders M P, Engelen W J, Clevis T T J, Mutsaers P H A, Luiten O J, Vredenburg E J D 2011 *J. Appl. Phys.* **110** 024501

REVIEW

Recent progress of high-coherence ultrafast electron sources*

Luo Duan¹⁾²⁾³⁾ Hui Dan-Dan¹⁾²⁾³⁾ Wen Wen-Long¹⁾ Liu Rong⁴⁾
 Wang Xing^{1)†} Tian Jin-Shou^{1)3)‡}

1) (Key Laboratory of Ultra-fast Photoelectric Diagnostics Technology, Xi'an Institute of Optics and Precision Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Xi'an 710119, China)

2) (University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

3) (Collaborative Innovation Center of Extreme Optics, Shanxi University, Taiyuan 030006, China)

4) (School of Optoelectronic Engineering, Xi'an Technological University, Xi'an 710032, China)

(Received 2 January 2017; revised manuscript received 24 May 2017)

Abstract

Microscopic dynamic process of material structure which determines the inherent property of substance takes place on a molecular and atomic scale. Understanding the underlying mechanisms of the various fundamental processes has always been the goal of chemistry, physics, biology and materials science. With Ahmed Zewail's pioneering work in the field of femtoscience, the time-resolved electron diffraction, combining the pump-probe and electron diffraction technique, has become an excellent tool with sufficient temporal precision to directly deliver insights into ultrafast phenomena on an atomic level. Central to this method is the ultrashort electron pulses generated from a metal photocathode.

However, up to now, owing to the initial size, effective temperature, energy dispersion and inherent coulomb repulsion of electron source, the state-of-the-art transverse coherence of conventional planar cathode photoemission source is still insufficient to resolve the complex chemical and biological organic molecules. Hence, in recent years, many efforts have focused on developing high-coherence ultrashort electron sources. The main methods include minimizing the initial beam size, weakening the space charge, reducing the effective temperature, and matching the photon energy of laser with the work function of cathode material.

In this review, we firstly summarize the history and advantages of the electron probe, secondly sketch out the figure of merit of the electron source. And then taking coherence as the main line, we review recent progress in common planar photoemission sources, and discuss the latest development of tip-based electron sources and cold atom electron sources in terms of their generation mechanisms, unique properties and research progress. Finally, the development and future applications of the diffraction technique are prospected. In general, the high-coherence length of photoelectric surface source is often at the expense of the current. The needle source can obtain the highest coherence length, but it is similar to femtosecond single-electron pulse, which must be less than one electron per pulse to eliminate the electron-electron coulomb interaction. Thus, a diffraction pattern can only be formed by accumulating millions of shots. The cold atom electron source, which has a transverse coherence greater than 15 nm and a peak brightness similar to conventional electron source's, is sufficient for some molecular systems in biochemistry. In short, with the improvement of coherence and the emergence of new electron sources, it is possible to reveal complex organic and inorganic structures, especially the dynamic behaviors of protein, and promote the understanding of nanoscale energy transport, solid-liquid and solid-gas interfacial dynamics and chemical reaction and so on. High-coherence electron sources not only serve in the diffraction experiments, but also play a key role in developing ultrafast electron microscopy, coherent diffraction imaging and ptychography.

Keywords: time-resolved electron diffraction, molecular movie, nanotip electron sources, cold atom electron sources

PACS: 29.25.Bx, 41.75.Fr, 52.59.Sa, 07.78.+s

DOI: 10.7498/aps.66.152901

* Project supported by the Young Scientists Fund of the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11304374, 61501363) and the Natural Science Basic Research Plan in Shaanxi Province of China (Grant No. 2016JQ6013).

† Corresponding author. E-mail: wangxing@opt.ac.cn

‡ Corresponding author. E-mail: tianjs@opt.ac.cn