

专题: 阿秒物理

基于相对论自由电子的量子物理*

李靖 刘运全†

(北京大学物理学院, 人工微结构和介观物理国家重点实验室, 北京 100871)

(2022年6月30日收到; 2022年7月18日收到修改稿)

光和物质的相互作用是物理学中一个基础研究领域. 电子是最早被发现组成物质的基本粒子, 因此电子与光场(光子)的相互作用很早就引起人们的研究兴趣. 电子分为束缚电子与自由电子. 束缚电子系统的跃迁会受到能级固定、选择定则等约束, 自由电子则不然. 近十多年来, 随着超快电子显微镜技术的发展, 人们提出并发展了用于描述量子自由电子(电子波包)和光场相互作用的理论——基于光子诱导近场电子显微成像过程, 成功展示了许多新奇量子效应以及新应用. 目前, 人们把光子诱导近场电子显微拓展量子光学中并展示了许多新奇现象, 包括自由电子和腔光子的纠缠、自由电子和自由电子的纠缠、自由电子量子比特、新奇光量子态制备等, 从而开启了基于自由电子的“量子光学”时代. 本文首先概述了电子与光子的相互作用研究, 随后综述了光子诱导近场电子显微成像的理论、实验进展, 介绍了其应用场景. 最后, 我们对基于自由电子的量子物理研究目前遇到的困难进行了总结, 并对未来发展进行了展望.

关键词: 光子诱导近场电子显微成像, 自由电子, 量子光学, 时间分辨成像**PACS:** 42.50.Hz, 03.65.-w, 41.75.Fr, 42.50.-p**DOI:** 10.7498/aps.71.20221289

1 引言

光和物质的相互作用是物理学中一个古老且长盛不衰的研究领域. 电子是组成物质的基本粒子之一, 光子是电磁辐射的基本单位. 由于它们分别是费米子和玻色子的代表粒子, 在量子力学建立初期, 人们就已经开始研究二者的相互作用^[1,2].

光与电子的相互作用受电子所处环境的影响. 电子所处的环境通过势能分布描述, 根据薛定谔方程的势能项 $V(r, t)$ 是否为零, 可以将其分为束缚电子和自由电子. 束缚电子, 指受到库仑势限制的电子, 这种限制起源于正电荷对电子的吸引力. 由于势能项的存在, 束缚电子能级往往是分立的、有限的, 只有特定能量量子态才能存在^[1]. 激子系统^[3]、原子能级跃迁系统^[4-6]和量子点与量子阱系统^[2]就是典型的束缚电子系统. 不同系统势能项 $V(r, t)$

的形式差异, 造就了这类系统和光场相互作用中很多新奇的物理现象, 目前已经有全面而深刻的综述回顾了电磁场和束缚电子系统的相互作用^[7]. 自由电子是指薛定谔方程中势能项 $V(r, t) = 0$ 的电子. 广义地说, 金属、掺杂半导体、等离子体中的电子都可视为自由电子^[2]. 在非相对论近似下常采用“自由电子气”模型来描述这类自由电子^[8]. 当自由电子以接近光速运动时, 其动力学过程应采用狄拉克方程描述, 这种电子被称为相对论自由电子.

本文主要涉及相对论性自由电子和光场的相互作用. 在半个多世纪以前, 人们就已经开始探究如何耦合自由电子和光场, 如在卡皮查-狄拉克效应(Kapitza-Dirac effect)中, 自由电子被光学波段的驻波弹性散射, 经历等虚光子数的吸收/受激发射过程^[9]. 当吸收光子和发射光子的能量不同时, 频率发生上转换或下转换.

自由电子的相干辐射是光场和自由电子相互

* 国家重点研发计划(批准号: 2022YFA1604301)和国家自然科学基金(批准号: 92050201, 92250306)资助的课题.

† 通信作者. E-mail: yunquan.liu@pku.edu.cn

作用研究的一个方面,也是自由电子激光 (free electron laser, FEL) 的基本原理. 然而自由电子对单光子的散射是十分微弱的, 定量地说, 对于可见光波段汤姆孙散射截面仅有 10^{-29} m^2 [10]. 同时, 电子辐射需满足辐射光子和电子间的能量、动量匹配. 切伦科夫辐射 (Cherenkov radiation, CR) 和史密斯-普塞尔辐射 (Smith-Purcell radiation, SPR) 是最主要的两种自由电子相干辐射. CR 是一种激波辐射, 需要电子的运动速度超过光的相速度 [11–19]. 在真空中由于光子和电子动量不匹配, 无法发生 CR. SPR 及其推广是利用具有周期性结构的光栅匹配光子和电子的能量、动量, 靠近光栅结构的自由电子被局域模式非弹性散射, 释放出高频光子, 因此这种辐射也被作为紫外甚至 X 光波段新型光源的候选者 [20–31].

利用自由电子成像近场是光场和自由电子相互作用研究的另一方面. 为了探究近场的动力学, 人们发展了空间分辨率突破衍射极限的近场显微镜, 然而这种显微镜无法提供原子层面的电子动力学显微 [32]. 超快电子透镜 (ultrafast electron transmission microscopy, UTEM) 的问世, 使得在时间、空间上成像微纳尺度的动力学成为可能. 2009 年, Barwick 等 [33] 利用 UTEM 探究了自由电子脉冲与光场激发的碳纳米管近场倏逝波相互作用的动力学过程. 揭开了光子诱导近场电子显微术 (photon induced near-field electron microscopy, PINEM) 理论及其实验发展的序幕.

在首次发现 PINEM 现象的实验中, 作者希望利用近场来增强电子显微镜的显微效果. 后来发现, PINEM 可以更广泛地视为自由电子与耦合到材料上的强场相互作用的过程. 由于在该过程中自由电子被描述为量子电子波包 (quantum electron wavepacket, QEW), 而不是经典带电粒子, 且该过程本质上是一种受激非弹性电子-光散射 (inelastic electron-light scattering, IELS), 电子波函数在与近场相互作用后, 会受到一个正弦型的相位调制. 因此, 也可以认为 PINEM 是利用近场来塑造自由电子波函数的过程. 最近, 为了研究自由电子在量子信息方面的应用, 人们将光场进行量子化进一步发展了全量子 PINEM 理论, 即量子 PINEM (quantum-PINEM, Q-PINEM) [34–49]. 在所谓宏观量子电动力学 (macroscopic QED, M-QED) 的理论框架下 [7,50,51], Q-PINEM 是目前描述光和自由

电子相互作用最精确的理论. 近场模式往往由光脉冲激发材料产生, 在 M-QED 中, 这些满足介质中的麦克斯韦方程组的模式被以“光学准粒子 (photonic quasiparticles, PQs)”的形式统一描述. 这种描述不仅适用于近场, 还可描述包括声子极化激元 (phonon-polariton, PhP)、甚至磁场等这些不是由光激发的场分布. 因此, 总的来说 PINEM 实际上涉及自由电子、PQs 以及材料样品的相互作用, 其中材料给出边界条件以及作为 PQs 的媒介. 在这个过程中, 自由电子吸收或者辐射出多个光子. 相互作用结束后, 通过分析电子的损失能谱 (electron energy loss spectrum, EELS), 不仅可以实现实空间成像, 也可以实现倒空间成像, 特别是使得以亚原子尺度的分辨率成像被激发样品的近场分布成为可能. 截至目前, PINEM 已经可以实现 1 nm 空间分辨率 [52]、 μeV 能量分辨率 [52] 以及 10^2 fs 时间分辨率 [53–55], 进而可以直接测量近场模式寿命、模式体积等.

本文首先介绍相对论自由电子的量子物理的实验平台 (PINEM), 综述 PINEM 相关的理论和实验工作进展; 随后介绍 PINEM 在各领域中的应用; 最后讨论基于自由电子的量子物理目前面临的挑战, 提出展望.

2 PINEM 实验平台、理论研究进展

2.1 PINEM 实验平台

PINEM 的典型实验装置与实验原理如图 1 所示. PINEM 的实验平台主要基于 UTEM 装置 [56]. UTEM 是一种时间分辨电子显微镜, 它在电子显微镜具有超高空间分辨成像能力的基础上引入了第四维度——时间 [57], 因此也被称为四维 (4D) 电子显微镜.

UTEM 的工作方式基于超快激光泵浦-超快电子束探测, 使用飞秒激光激发样品, 随后以电子脉冲作为延时探针探测样品的瞬态物理过程. 为此, 需要将激光器产生的脉冲分成两束, 分别激发样品和激发阴极光电子发射. 用于激发样品的超快激光脉冲常需经过光参量放大 (optical parametric amplification, OPA) 过程, 对泵浦激光进行调谐, 并进一步压缩脉冲使得脉冲持续时间更短; 为了激发光电子, 通常需要利用倍频过程将光电子激发脉冲转化到紫外频率. 超快电子脉冲和激光脉冲之间

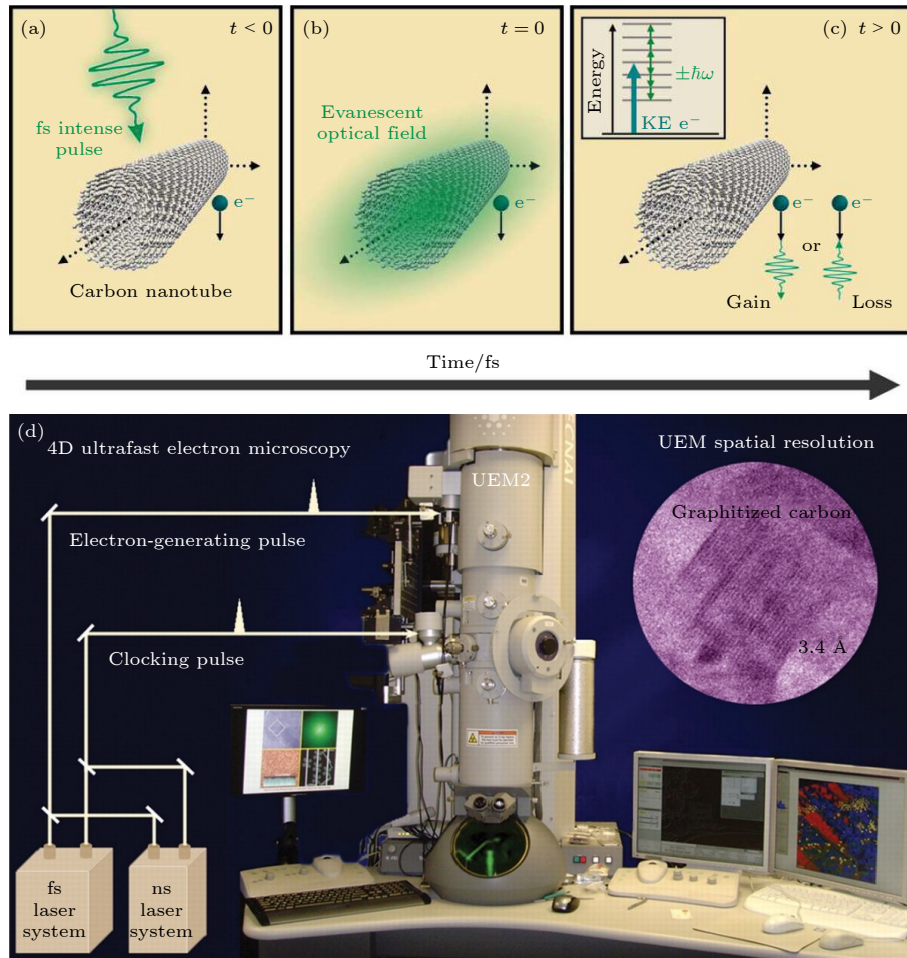


图 1 电子、光子和倏逝场相互作用的物理描述^[33]及实验装置^[56] (a) 飞秒激光脉冲到达前 ($t < 0$), 电子就已经过纳米管时的情况, 目前二者还没有发生时空重叠; (b) QEW、飞秒激光脉冲和倏逝场在碳纳米管上具有最大重叠时 ($t = 0$); (c) 在相互作用期间和随后瞬间 ($t > 0$), 电子获得/失去的能量等于单光子能量的整数倍. 插图是在飞秒激光脉冲中成像电子和光子之间的自由-自由跃迁, 在连续体中可能的最终能量. KE 表示动能; (d) UTEM 实验装置的实物图

Fig. 1. Physical depiction of the interaction among the electron, photon, and the evanescent field^[33], and the picture of experimental set-up^[56]. (a) A frame when the electron packet arrives at the nanotube before the femtosecond laser pulse ($t < 0$), no spatial-temporal overlap has yet occurred. (b) The precise moment when the electron packet, femtosecond laser pulse, and evanescent field are at maximum overlap at the carbon nanotube. (c) Illustration of the process during and immediately after the interaction ($t > 0$) when the electron gains/loses energy equal to integer multiples of femtosecond laser photons. Inset, the possible final energies in the continuum due to the free-free transitions between the imaging electron and the photons in the femtosecond laser pulse. KE, kinetic energy. (d) Photograph of the UTEM.

的延迟, 可通过调节两个脉冲之间的延迟线来精确控制. 阴极发射的电子脉冲经过加速和准直等过程入射到样品表面与近场相互作用. 相互作用完成后, 电子波函数在能量空间中的分布发生了变化, 利用 EELS 可以分析这种变化. 通过 EELS 系统的能量滤波, 对相互作用后能量发生增益的电子进行成像, 得到的 PINEM 能谱就能反映纳米结构或界面周围被激发近场的强度和拓扑结构^[54,57]. 基于相对论自由电子的 EELS, PINEM 可以探测样品内部的光场^[55]. 因此 PINEM 是对其他超高空间分辨成像方式, 如扫描近场显微镜 (scanning near-

field optical microscopy, SNOM)^[58,59]、光电子发射显微镜 (photon-emission electron microscopy, PEEM)^[60,61]、时间分辨的光子隧道显微镜 (time-resolved photon tunneling microscopy, TR-PTM)^[62]、阴极发光显微镜 (cathodoluminescence microscopy, CM)^[63] 的重要补充.

2.2 PINEM 的理论进展

Garcia 等^[64] 及 Park 等^[65] 于 2010 年分别提出了解释 PINEM 实验结果的两套等价理论. Garcia 等^[64] 采用量子散射方法, 将相互作用后的电子波

函数按散射阶展开, 每个散射阶分解为具有未知系数的动量本征函数的线性组合. 通过考虑相互作用哈密顿量和格林函数的传播, 将单个散射事件中的 N 阶项与 $N + 1$ 阶项联系起来. 这样, 系数之间就建立了递归关系, 可以递归地计算; Park 等^[65] 则给出了描述该过程的含时薛定谔方程的解, 得到了电子的波函数解析式. 利用电子的波函数解析式, 可以分析相互作用及随后自由演化过程中电子的状态; 在探索 PINEM 应用时, 使用解析解的形式会方便很多. 值得注意的是, PINEM 实验是基于相对论自由电子的, 因此严格来说, 应该考虑相对论效应, 采用狄拉克-泡利方程来描述电子的状态演化, 然而这两种理论都忽略了相对论效应.

在电子显微镜的典型工作条件下 (即电子动能 E_0 约为 40—300 keV, 速度 v 约为 $0.5c$ — $0.7c$), 电子的相对论效应 (特别是电子的自旋修正) 是否会对 PINEM 的实验产生显著影响是上述两个理论工作没有完全解答的问题. 2012 年, Park 和 Zewail^[66] 从狄拉克方程出发, 建立了一套电子-光子-纳米结构相互作用的 PINEM 理论, 并且和非相对论形式进行了比较. 由于此时电子波函数中包含有高频项 ($|+\omega^+| = |-\omega^-| \geq mc^2/\hbar$), 利用高频近似可以对狄拉克方程进行解析求解到第一阶, 求解过程中忽略了波包的色散和有质相互作用. 在典型的 PINEM 相互作用时间尺度下, 忽略波包的色散 (即 QEWS 的包络函数对空间的二阶导数)(\sim fs) 是合理的; 另一方面, 由于 PINEM 实验中电子的辐射效应非常小, 因此忽略有质相互作用也是合理的. 在这些近似下, 只需将电子的相对论速度及相应的经典动量 ($\hbar k_c$)、经典能量 ($\hbar \omega_c$) 代入非相对论 PINEM 理论给出的公式中, 就可以得出与狄拉克方程的一阶近似精确等价的解.

Park 和 Zewail^[66] 给出的 PINEM 理论的解析解表明, PINEM 场耦合了自由电子的运动和光场. PINEM 场通常被定义为

$$g\left(\frac{\omega_p}{v_e}\right) \equiv \frac{e}{2\hbar\omega_p} \int_{-\infty}^{+\infty} dz'' E_z(z'', 0) \times \exp\left[-i\left(\frac{\omega_p}{v_e}\right)z''\right], \quad (1)$$

其中, e 是基本电荷量; ω_p 代表光子的频率; v_e 代表电子的运动速度; E_z 是电场在电子运动方向 (设为 z 方向) 的分量; $\Delta k = \omega_p/v_e$ 对应于以 v_e 运动的

电子和光子相互作用过程中得到或者失去能量 $\hbar\omega$ 后, 电子的动量改变, 其单位与空间频率一致. 从 (1) 式可以看出, g 因子是关于近场纵向分量 E_z 空间频率为 Δk 的傅里叶分量, 表征了自由电子和光场整体的耦合强度, 后续 PINEM 的理论发展基本沿用了“PINEM”场的形式, 并将其称作耦合系数或者拉比参数^[53]. 根据耦合系数, 可以计算出自由电子吸收/发射 N 个光子的概率:

$$P_N(|g|) = J_N^2(2|g|), \quad (2)$$

其中, J_N 是第一类贝塞尔函数的第 N 阶. 在 $|g| \gg 1$ 的极限下, 相互作用后, 电子能谱的展宽约为单光子能量的 $4|g|$ 倍. 实验中 $|g| \gg 1$ 很容易满足, 因此耦合系数的大小可以通过 EELS 能谱的展宽反推出来.

2015 年, Feist 等^[67] 和 Kociak^[68] 利用纳米针尖作为样品实现了皮秒 (约 3.4 ps) 量级的近场持续时间. 当近场持续时间远大于电子脉冲持续时间 (实验中典型值约 700—900 fs) 时, 可以观察到由激光功率调制的相干布居 Rabi 振荡 (Rabi oscillation, RO), 这再次证明了 PINEM 是一个量子过程, 必须对自由电子采用量子波包的描述. 如图 2 所示, 纳米尖端光电发射产生的超短电子脉冲被加速并聚焦, 与纳米结构的光学近场发生相互作用, 电子脉冲的相位将被调制; 从动能角度看, 在电子和近场相互作用的过程中, 电子只能吸收或者发射整数个光子, 因此其能量空间中, 以初始能量 E_0 (具有一定宽度) 为原点, 形成了以单光子能量 $\hbar\omega$ 为间隔的“能量阶梯”, 在电子能谱中则呈现出相对于零损耗峰 (zero loss peak, ZLP) 等间隔分布的边带, 边带 $E_0 \pm n\hbar\omega$ 称为第 n 光子阶, 表明 PINEM 可以用于演示自由电子“量子行走”. 电子获得能量 $\hbar\omega$ 的结果可能是直接吸收一个光子导致的, 也可能是连续吸收两个光子, 随后又放出一个光子导致的, 这两个量子路径之间会发生量子干涉. 路径量子干涉以及多级布居转移引起了多能级 RO 现象. Feist 等^[67] 采用对易的阶梯算符描述 PINEM, 得到了和实验符合的结果. 相较于之前解释 PINEM 的理论, 阶梯算符描述更加简洁, 物理图像更加清晰.

当近场与自由电子发生强耦合时, 会有更多新奇的现象产生, 这意味着更广阔的应用. 因此, 探索如何增强近场和自由电子的相互作用, 是近期 PINEM 研究的一条主线. 通过增加激发样品的

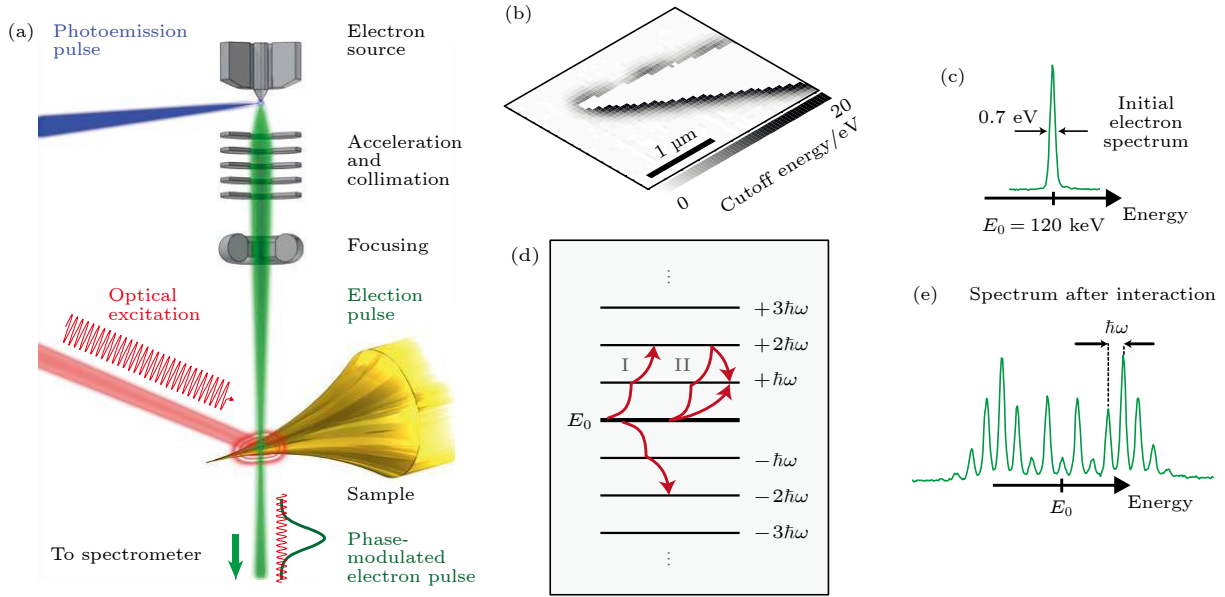


图 2 光学近场相干非弹性电子散射原理与示意图^[67] (a) 实验示意图; (b) 非弹性电子散射谱中能量截断的光栅扫描图像; (c) 入射动能谱, 峰位于 $E_0 = 120$ keV, 其半高全宽 (full-width at half-maximum, FWHM) 为 0.7 eV; (d) 梯状能级图, 箭头表示连续的多态布居转移 (类型 I) 和量子干涉路径 (类型 II); (e) 近场相互作用后的能谱示例

Fig. 2. Schematic and principles of coherent inelastic electron scattering by optical near-fields^[67]: (a) Experimental scheme; (b) raster-scanned image of the energy cutoff in the inelastic electron scattering spectra; (c) incident kinetic energy spectrum (full-width at half-maximum, 0.7 eV) centered at $E_0 = 120$ keV; (d) energy level diagram of ladder states, arrows indicate sequential multistate population transfer (type I) and interfering quantum paths (type II); (e) example of kinetic energy spectrum after the near-field interaction.

激光功率可以增大耦合强度, 但是激光功率过大可能会对样品造成不可逆损伤, 影响实验可信度. 考虑到之前的 PINEM 实验都是自由电子和局域近场的相互作用, 为了进一步增大耦合强度, 可以将局域近场改为行波, 该过程将需要满足相位匹配. 由于相对论电子的速度与在介质中行波的相速度相接近, 实现相位匹配比较容易. 2020 年, Kammer 等^[69] 将局域 PINEM 场的概念推广到了扩展的 PINEM 场, 给出了自由电子与棱镜全内反射倏逝波相互作用的 PINEM 场解析表达式. 理论计算和实验表明, 在相位匹配的条件下, 自由电子与行波相互作用可以有效地增强耦合. 扩展的 PINEM 场定义为

$$g\left(\frac{\omega_p}{v_e}, T\right) = \frac{e}{\hbar\omega} \int_{-\infty}^{+\infty} \tilde{E}_z(z, T + z/v_e) e^{-i\omega_p z/v_e} dz, \quad (3)$$

相比于 (1) 式, 扩展的 PINEM 场依赖于时间 T , 它表示在自由电子的轨迹上, 行波光场会随着时间变化.

在满足相位匹配的条件下, 自由电子和光场之间的能量交换效率可以通过延长相互作用长度而增加. 因此, 理论上即使是单光子的效应也可以在

传播过程中形成相干性, 并接近强耦合. 2019 年, Kfir^[35] 从理论上研究了单电子-单光子的强耦合效应, 将 PINEM 扩展到了 Q-PINEM. 利用量子光学描述, 即相干态 $|\alpha\rangle$ 来表示经典光场, 引入新的参数 g_{Qu} 来表示单电子-单光子耦合强度, 给出了电子-腔光子纠缠相互作用的解析模型. 该模型中定义的耦合系数和传统的 PINEM 理论中的耦合系数的关联为

$$g = g_{\text{Qu}}\alpha, \quad (4)$$

由于在量子光学中, $|\alpha|^2$ 表示光场的平均光子数 \bar{n} , 因此直觉上可将 g_{Qu} 解释为单个光子的 PINEM 效应强度. Kfir^[35] 指出, 虽然强耦合的判据为 $g_{\text{Qu}} \geq 1$, 但是在中度耦合中, 已经出现了一些强耦合现象, 如多个量子的能量转移等. 通过理论推导, Kfir 证实了无论是对于强耦合还是弱耦合, 有无激光泵浦 (无激光泵浦时, 电子和腔真空态相互作用), 电子能谱总是满足 $E_0 - \langle E \rangle = |g_{\text{Qu}}|^2$. 即电子能量损失谱的中心总是偏离 ZLP 的位置, 只是在耦合极弱的情况下偏移不明显. 图 3(a), (b) 所示分别为强耦合情况下 ($g_{\text{Qu}} = 3$) 腔处于真空态 $|0\rangle$ 、相干态 $|\alpha\rangle = |3\rangle$ 时, 电子-光子联合概率 $|c_{n,k}|^2$ 随电子单光

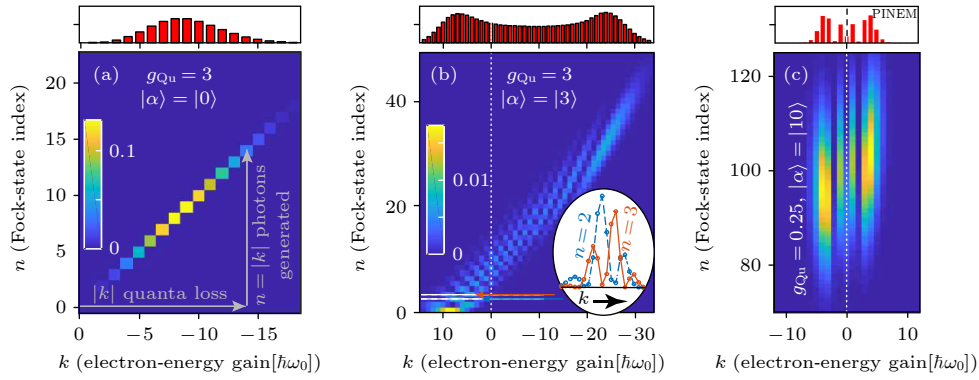


图3 电子和光子的纠缠模式^[35] (a) 腔处于真空态时; (b) 腔处于相干态 $|\alpha\rangle = |3\rangle$ 时出现了丰富的纠缠现象; (c) 腔处于 $|\alpha\rangle = |10\rangle$ 且 $g_{Qu} = 0.25$ 时的弱耦合情况

Fig. 3. Electron-photon entanglement patterns^[35]: (a) When the cavity is in a vacuum state; (b) rich entanglement features for an initial coherent state $|\alpha\rangle = |3\rangle$ in the cavity; (c) weak coupling and highly populated cavity ($g_{Qu} = 0.25$, $|\alpha\rangle = |10\rangle$).

子能量增益 k 以及腔光子数 n 的变化, 其中插图给出了 $n = 2$ 和 $n = 3$ 的状态. 首先考虑的是自由电子和空腔的相互作用, 此时光学腔处于真空态, 自由电子与之相互作用后, 电子将以 $\hbar\omega_0$ 为能量子, 改变动能, 并且其能量损失谱中心位于 $-|g_{Qu}|^2$ 处, 更高阶的光子态需要更强的耦合. 其次, 腔中存在少量光子的状态, 即处于 $|\alpha\rangle = |3\rangle$ 态时腔中会出现丰富的纠缠特征, 如当微腔处于某一个具体的光子数态时, 电子的能谱会发生振荡 (如图3中的插图所示). 对于积分电子能谱而言, 这种振荡会由于 Fock 态的正交而消失. 最后, 考虑弱耦合. $\alpha = 10$, $g_{Qu} = 0.25$ 时的电子能谱如图3(c)所示, 此时 $|c_k|^2 = |J_k(2|g|)|^2$ 且 $|g| = |g_{Qu}\alpha|$, 电子态几乎已经独立于光子态, 出现了以贝塞尔函数形式振荡的电子谱, 且电子能量损失谱偏离 ZLP 很小, 回归到了传统的 PINEM 理论.

尽管 PINEM 效应的理论研究已经看似趋于完备, 有一些基本问题却尚未解答. PINEM 效应只是自由电子和光场相互作用的其中一种效应, 它与其他效应, 如自由电子在光场中的加速等有无联系? 在 PINEM 效应和量子 FEL (quantum free electron laser, QFEL) 中, 不再将自由电子处理为平面波; 在 FEL 的经典电动力学模型中或者加速器中, 也不再将自由电子处理为点粒子. 上述效应统一用满足有限持续时间、有限能量展宽的相干 QEWS 处理, 可以揭示这几种不同相互作用机制的联系. 利用满足海森伯最小不确定度原理的 QEW, 即波包能量 (动量) 的不确定度 σ_{E_0} ($\sigma_{p_0} = \sigma_{E_0}/v_0$), 以及高斯束腰处持续时间 (空间尺度) 不确定度

σ_{t_0} (σ_{z_0}) 满足 $\sigma_{E_0}\sigma_{t_0} = \hbar/2$ ($\sigma_{p_0}\sigma_{z_0} = \hbar/2$) 的 QEW. Pan 等^[70] 于 2019 年揭示了自由电子与辐射相互作用的不同机制. 首先, 为了能区分群速度 v_0 的自由电子 PINEM 谱中的边带, 单光子能量需超出电子束的能量色散^[33,71], 即

$$\Delta E < \hbar\omega \text{ or } \Delta p < \frac{\hbar\omega}{v_0}, \quad (5)$$

该条件等价于 QFEL 中的“强反弹”条件^[72], 其中 $\hbar\omega/v_0$ 是吸收/发射光子后, 电子的反弹动量; $\Delta p = \Delta E/v_0$ 则表示能量-动量展宽. 其次, 考虑到波包在自由空间中漂移过程中, 波包的空间尺寸随漂移时间 t_D 展宽, 即

$$\sigma_z(t_D) = \sqrt{\sigma_{z_0}^2 + \left[\left(\frac{\lambda_c^*}{4\pi} \right) \left(\frac{ct_D}{\sigma_{z_0}} \right) \right]^2}, \quad (6)$$

其中利用康普顿波长 $\lambda_c = h/(mc)$ 定义了 $\lambda_c^* = \lambda_c/\gamma^3$, 即量子电子束的自由传播导致轴向的空间拉伸以及能量的啁啾效应. 这种展宽引出了 Q-PINEM 机制的条件, 即 QEW 足够长, 可以视作平面波, 与近场的光波没有相位关系, 称为“长波包”条件^[72],

$$2\sigma_t(t_D) > T \text{ or } 2\sigma_z(t_D) > \frac{\beta\lambda}{2\pi}, \quad (7)$$

其中 $T = 2\pi/\omega$, $\beta = v_0/c$, 且 λ 是光波长. 这样, 利用“强反弹”条件 (5) 式以及“长波包”条件 (7) 式, 即可对自由电子-光子相互作用进行分类. 在相空间中的分类结果如图4(a)所示, 其中出现了之前未报道过的反常 PINEM 效应 (APINEM), 它与传统 PINEM 效应的区别体现在相空间分布中, 如图4(b), (c), (e)所示. 结果表明, 相互作用后,

电子是加速还是产生 PINEM 或 APINEM 只取决于 QEWE 的初始状态. 图 4(b)—(e) 给出了 4 种不同初始条件下, 相互作用前后的相空间表示.

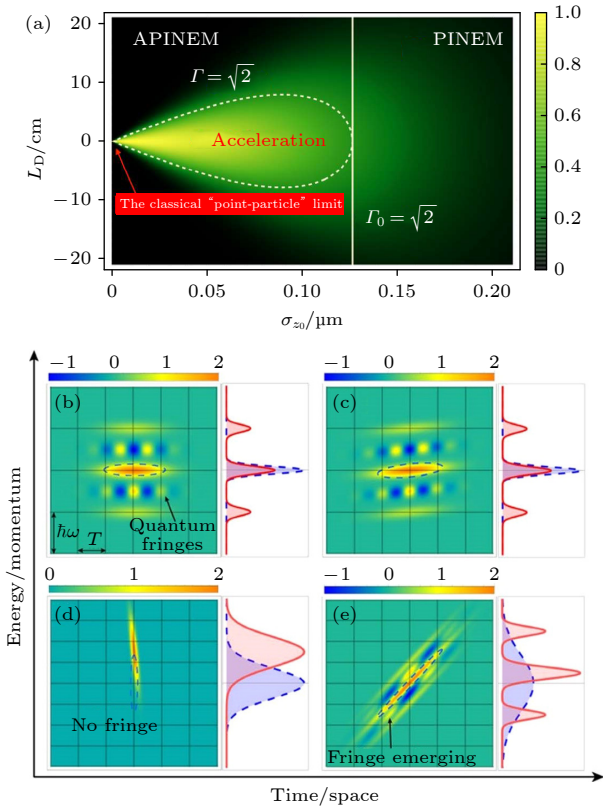


图 4 (a) 根据量子电子波函数初始参数 (σ_{z_0} , L_D) 对光与电子相互作用的分类. (b)—(e) PINEM、加速和 APINEM 在相互作用前 (折线椭圆) 后 (红色和黄色表示正值, 蓝色表示负值) 的相空间表示及其能量 (动量) 分布. QEWE 的初始分布 $W^{(00)}$ 的面积是 $h/2$, 单元格面积为普朗克常量 h . PINEM 情况下, 初始分布在时间方向扩展, 而其能量展宽较窄, 其中 (b) 为无啁啾, (c) 为预啁啾; (d) 类粒子加速, 初始时间短且相位明确的 QEWE 具有净动量转移; (e) APINEM 情况. 初始量子电子束进行了强啁啾, 产生了量子干涉条纹^[70]

Fig. 4. (a) Universal classification of light-matter interaction regimes in terms of the initial parameters of the quantum electron wave function: its minimal axial waist size σ_{z_0} and the pre-interaction drift length from this point, L_D . (b)–(e) Illustrations of PINEM, acceleration, and APINEM processes in phase-space representation before (broken-line ellipses) and after (positive, red and yellow; negative, blue) interaction and their energy (momentum) distributions. The initial distributions $W^{(00)}$ of the QEWE of area $h/2$ are overlaid over a grid of area h (Planck constant) tiles: PINEM case, the initial distribution is temporally (or longitudinally) expanded, and its energy spread is narrow: (b) unchirped; (c) prechirped; (d) particle-like acceleration with net momentum shift for an initially temporally short QEWE with well-defined phase; (e) APINEM case. Expanded and strongly prechirped initial QEWE, with quantum interference fringes emerging^[70].

3 PINEM 的实验进展及应用

PINEM 实验技术的进步与理论的进展是相辅相成的, 各种潜在应用也被不断发掘. 从 PINEM 诞生起, 人们就已经设想将其应用在超快动力学成像等方面^[54–56,73–75]. Ropers 等实现了皮秒量级的近场, 揭示了 PINEM 效应中电子的量子行走的本质, 为 PINEM 在量子信息中的应用奠定了基础^[36,39,40,43]. 另外, 通过模拟实验条件发现, 在相互作用后, 光驱动的电子动量相干叠加态演化成一系列阿秒电子脉冲, 这又引起了人们对于其在阿秒相干控制、电子波包整形和电子梳中的应用的研究兴趣^[10,67,76–92]. 2016 年, Zewail 等^[57] 实现了红外波段 (1038 nm) 的 PINEM 成像, 在这之前的 PINEM 实验中, 用于激发样品的激光脉冲均为 500–800 nm, Zewail 等发现红外脉冲只需要使用很低的光通量便可实现 PINEM 边带显著的振幅; 红外泵浦还使得 PINEM 的能量分辨率提高到了 0.63 eV. 2017 年, Kaminer 研究组^[92] 利用红外泵浦进一步实现了 meV 的能量分辨率, 如果牺牲一部分时间分辨率, 能量分辨率甚至可以达到 1 meV 以下, 这种方法不同于传统 IELS 方法, 它并不受限于电子束初始的能量展宽. 此外, 基于相位匹配^[69]、回音壁模式^[53]、集成光子芯片^[52] 等实现的相互作用的增强不仅带来了诸如电子能量梳等物理现象, 而且提高了 PINEM 成像的分辨率. 因此 PINEM 可以使用红外泵浦且具有高分辨成像的能力, 被应用于 PhP 动力学成像^[55]、光子晶体腔模式寿命以及品质因子^[54] 等研究中. Q-PINEM 理论被发展以应用于光量子态的产生和表征、光子-电子纠缠等方面^[35,37,38,44–47,49,93].

3.1 阿秒脉冲、电子波包整形与电子的相干控制

探究原子尺度物质动力学过程是物理学正蓬勃发展的领域. 研究超快动力学的途径往往是通过将样品的性质“刻印”在辐射、透射光场或者是透射电子束上, 通过接收光子或者电子信号来获取物质中的动力学信息, 因此超快电子和 X 射线成像的光谱学是这一领域发展成熟的基础, 但这些技术在很大程度上依赖于激光束以产生和表征更短的脉冲. 除了激光, 近期研究显示通过超快电子与近场的相互作用有望实现产生、控制和表征阿秒脉冲.

2015年 Ropers 等^[67]通过数值模拟发现,当自由电子和纳米针尖上的近场相互作用后,由于其波函数会受到一个正弦的相位调制,在随后自由空间中的传播过程中,不同光子阶的边带会获得不同的相位,这导致电子波函数的色散重构,并在一定的传播距离下,在时间上聚焦成一串阿秒脉冲,如图 5(a) 所示. 在实验条件下,通过模拟计算得出,时域聚焦的阿秒脉冲长度约 80 as,两个脉冲之间的时间间隔约为 2.25 fs,这种电子脉冲在时域上的聚焦出现在和样品相互作用后 1.88 mm 距离处. 由于该脉冲是等间隔分布的电子动量态的相干叠

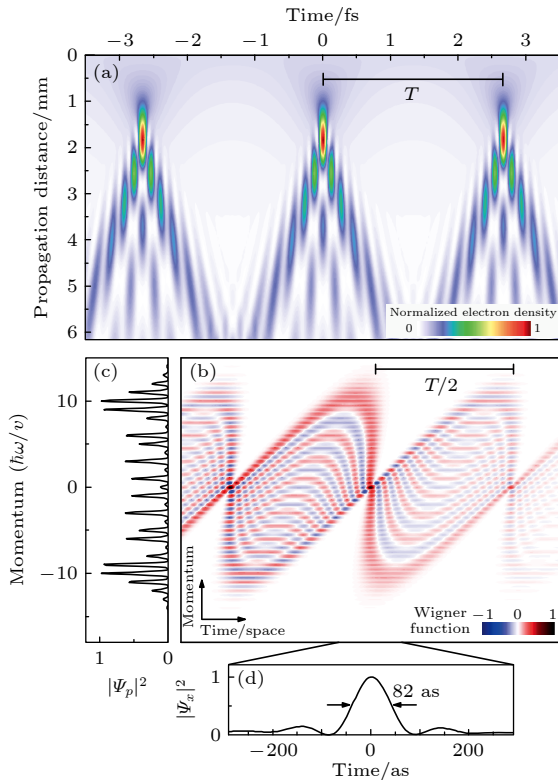


图 5 (a) 周期调制的电子脉冲结构的演化成阿秒脉冲,其中电子密度作为近场相互作用后传播距离的函数(数值模拟采用 $|g| = 5.7$); (b) 电子量子态在时间焦点位置处(图(a)中传播距离为 1.8 mm 处)光调制一个周期的相空间表示; (c) Wigner 函数的动量投影; (d) Wigner 函数空间投影的中心部分,脉冲持续时间(FWHM)仅为 82 as^[67]

Fig. 5. (a) A periodically modulated electron pulse structure evolved into attosecond pulse (electron density) as a function of the propagation distance after the near-field interaction (numerical simulation for $|g| = 5.7$); (b) phase space (Wigner) representation of one period of the light-modulated electron quantum state at the temporal focus position (propagation distance of 1.8 mm in panel (a)); (c) momentum projection of Wigner function exhibiting spectral modulations as observed in the experiments; (d) central part of spatial projection. A peak with a duration of only 82 as (FWHM) is produced^[67].

加,在通过时间焦点后,电子脉冲将在时域扩散开,但仍有复苏的可能,如图 5(b) 所示. 在光学中,这种电子阿秒脉冲等效于光束的相位被正弦光栅调制后在空间形成的菲涅耳近场衍射条纹. 为研究这种阿秒脉冲的起源,利用相空间表示是必要的. 由于传播距离 $x = vt$, v 是电子的速度, x 与 v 可以等价起来. 从相空间中,可以看到由于自由传播,相位受到的正弦调制剪切了相空间中 Wigner 函数的分布,在时间上形成了一个高度局域的投影. 另一方面,进一步的研究表明,这种阿秒电子脉冲的产生对初始时刻电子脉冲具体时域结构和动量结构的改变不敏感.

尽管数值模拟中得到的电子束焦距达到了毫米量级,但由于重复频率过高,阿秒电子脉冲仍然无法代替阿秒光脉冲完成时间分辨的实验. 实验中能否产生阿秒量级的时域聚焦,能否产生可用于对样品相干激发进行相位分辨的时间电子梳仍然未知.

除产生阿秒脉冲之外,如何对电子波函数进行相干控制也是一个非常重要的问题. PINEM 中,阶梯状能级之间的量子干涉、电子波函数相位受到的正弦调制、以及自由空间中的相干演化为控制电子波函数提供了必要条件. 拉姆齐分离振荡场方法是由拉姆齐提出的利用分子束磁共振测量核磁矩的方法,精度比拉比装置更好^[94],这种分离场方法为电子束的相位控制提供了新的思路. 2016年, Ropers 等^[76]将一束自由电子脉冲分别和两个分离的近场进行相互作用,实现了拉姆齐型自由电子干涉仪,如图 6 所示. 通过控制泵浦光的偏振,可以实现图 6(a) 所示的对电子能谱的进一步拉伸或者压缩,其中①是入射时的能谱. 在第一次相互作用期间,一个正弦相位调制被刻印到电子波函数上,导致②所示 EELS 边带的产生. ③和④则分别记录了双重相互作用后的相消性能谱和相长性能谱. 相互作用的相对相位决定最终态的相位调制. 未来实验可能利用这种类型的“电子-光干涉仪”,通过在间隙中插入光激发材料,以亚周期分辨率精确测量电子退相干. 进一步的应用包括近场相位分辨成像,基于自由电子的量子计算等.

2017年, Ropers 等利用定制的实验平台,实现了自由电子量子态的制备、相干控制和表征^[78]. 特别是,作者将量子态层析法 (quantum state tomography, QST) 用于重构自由电子的量子态,成功

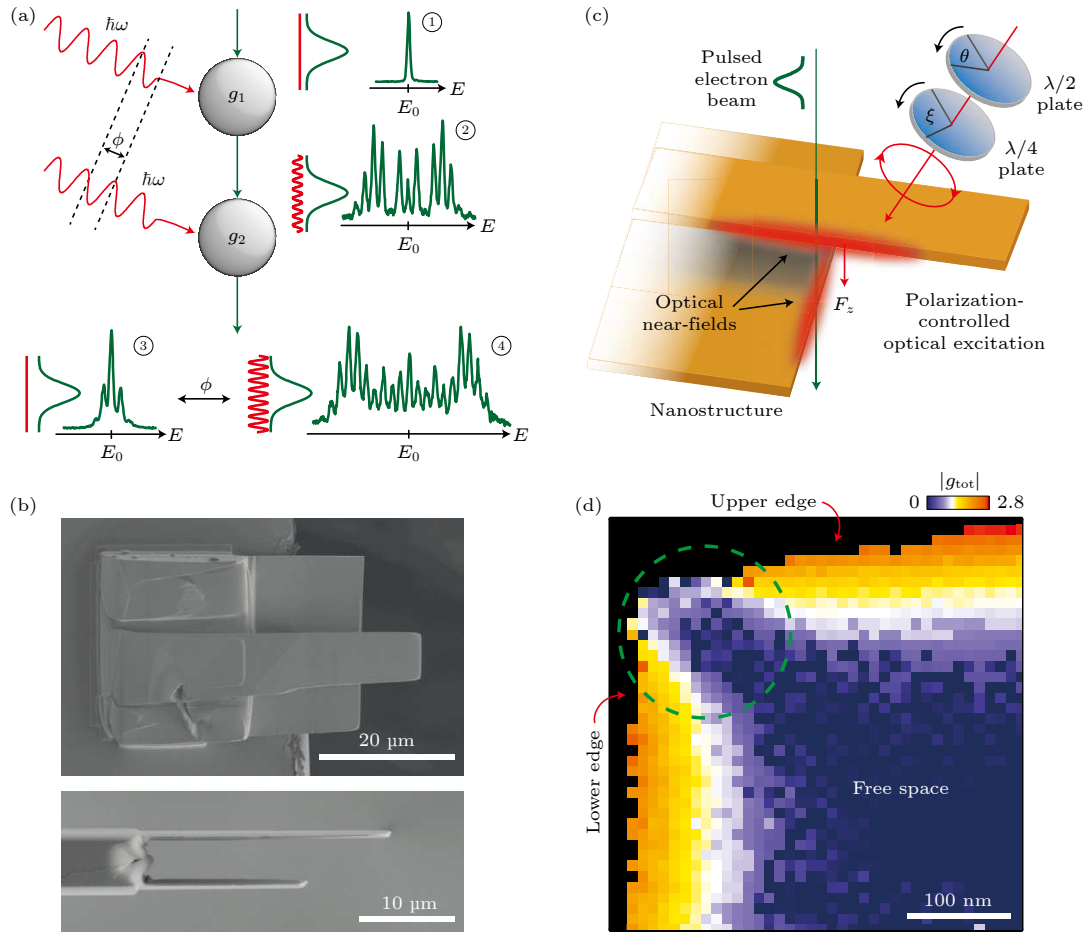


图 6 (a) 拉姆齐型自由电子干涉仪的工作原理: 同一个电子脉冲 (绿色) 依次作用于空间分离的两个场 g_1 和 g_2 ; (b) 具有两个相互作用区域的纳米结构的扫描电子显微镜 (俯视图和侧视图), 金片间距 $5 \mu\text{m}$; (c) 控制激发纳米结构的实验场景示意图; (d) 局域耦合强度 $|g_{\text{tot}}|$ 的空间分布图像, 此时激励条件几乎满足角落区域对电子能谱进行完全再压缩^[76]

Fig. 6. (a) Working principle of the Ramsey-type free electron interferometer: an electron pulse (green) is acted on at two spatially separated nodes g_1 and g_2 ; (b) scanning electron micrographs of the nanostructure featuring two interaction zones (top and side view), distance between gold paddles is $5 \mu\text{m}$; (c) sketch of the experimental scenario displaying polarization-controlled excitation of the nanostructure; (d) raster-scanned image of the local coupling strength $|g_{\text{tot}}|$ for excitation conditions near complete recompression in the corner region^[76].

将适用于纯态情况的理论推广到混合态情况, 不仅分别用重构的密度矩阵与 Wigner 函数表征了自由电子能谱的干涉效应, 而且首次实验观察到了 655 as 的电子脉冲的产生. 具体而言, 实验中采用了两种不同的实验装置. 首先利用一束激光及其二次谐波激发石墨片, 随后自由电子和近场相互作用并穿过石墨片. 自由电子和单色场相互作用后, 会受到正弦调制, 即

$$\begin{aligned} \psi(z) &= \exp\left\{-2i|g_\omega| \sin\left[\frac{\omega z}{v} + \arg(g_\omega)\right]\right\} \cdot \psi_{\text{in}}(z) \\ &=: A(g_\omega, \omega) \cdot \psi_{\text{in}}(z), \end{aligned} \quad (8)$$

式中, $\psi_{\text{in}}(z)$ 表示相互作用前的电子量子波函数, 为了简化删去了对横向坐标的依赖, z 是电子运动轨迹的空间坐标, g_ω 表示与频率为 ω 的单色光场的

耦合系数, v 是电子速度. 利用 Wigner 函数可以更清晰地看到这种正弦型的相位调制, 图 7 所示为 $g_{\text{pump}} = 3.95$ 及 $g_{\text{probe}} = 3.52$ 的条件下进行模拟得到能谱. 如果考虑和双色场 (频率分别为 ω 与 2ω) 相互作用, 对电子波函数的相位调制就不再是正弦调制:

$$\psi_{\text{out}}(z) = A(g_\omega, \omega) \cdot A(g_{2\omega}, 2\omega) \cdot \psi_{\text{in}}(z), \quad (9)$$

此时, 通过调整两束泵浦光之间的相对相位 $\theta = \arg(g_\omega) - \arg(g_{2\omega})/2$ 可以相干地控制自由电子和光场的相互作用, 实现形态丰富的 PINEM 谱.

其次, 利用定制的实验平台, 使两束具有可控相对相位的光分别激发空间分离的两片石墨片, 然后自由电子分别与两个近场相互作用, 如图 8(a)

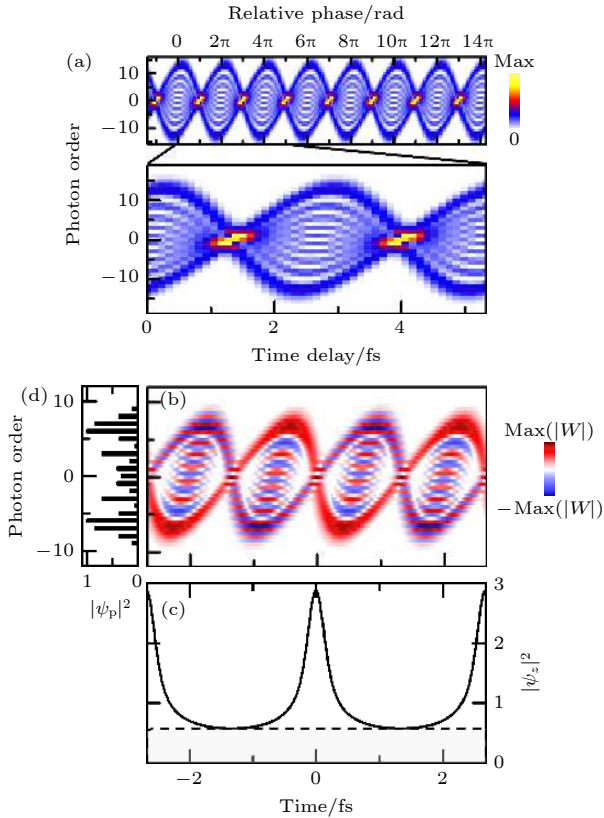


图 7 时域阿秒脉冲整形的模拟 (a) 模拟所得能谱图, 每个光周期中有 80 as 的时间聚焦, 约占光周期 3%; (b) 相应的 Wigner 函数; (c) Wigner 函数的时间投影显示出对密度函数的调制, 脉冲持续时间 (FWHM) 为 531 as (减去阴影部分顶部的基线后, 脉冲持续时间有效值为 296 as); (d) 对应的电子能谱 (动量投影) [78]

Fig. 7. Simulation of attosecond temporal reshaping a simulated spectrogram assuming: (a) Energy spectrum obtained by simulation, including a small timing jitter of 80 as (3% of the optical period); (b) corresponding Wigner function; (c) temporal projection of the Wigner function exhibits density modulations with a FWHM pulse duration of 531 as (after baseline subtraction, rms pulse duration: 296 as); (d) corresponding electron energy spectrum (momentum projection) [78].

所示. 该实验中, 调整了两片石墨片间的距离, 分别是 5 μm 和 1.5 mm, 这段距离中自由电子波函数将自由演化. 此过程可以视为量子态的制备, 与第二个近场相互作用的过程则视为量子态的探测. 通过调整泵浦和探测之间的延时, 可得到以光周期循环的电子谱, 如图 8(b) 所示. 通过“用于自由电子的量子态正则重构的光谱量子干涉 (spectral quantum interference for the regularized reconstruction of free-electron states, SQUIRRELS)”在 $g_{\text{probe}} = 3.52$ 条件下重构量子态的 Wigner 函数, 可见由于电子在分离场之间自由传播, 导致最终

Wigner 函数出现明显的剪切特征. 将 Wigner 函数进行时域投影可得到半高全宽 655 as 的脉冲序列, 比文献 [67] 模拟的要宽一个数量级左右, 并且重复周期依然只有 2.5 fs 左右.

2018 年, Garcia 等 [10] 利用反射镜打断了光在自由空间中的传播, 构造了一个半无限光场, 这时对光场场强的空间傅里叶变换得到的波矢与自由电子吸收/发射单光子造成的动量改变 Δk 匹配起来, 实现了在真空中自由电子和光场 (而不是光介质诱导的近场) 直接耦合. 同时, 如果反射镜能够支持表面等离激元传播, 这种相互作用会变得更强烈. 在该工作中, 厚约 30 nm 的氮化硅薄膜上沉积了 43 nm 的银薄膜作为反射镜, 反射镜被安装在一个支架上, 支架能够围绕两个不同的轴进行旋转, 光的入射角度及偏振角可调. 自由电子与两个光脉冲在同一位置相互作用, 通过调节两个光脉冲间的相对延时 $\Delta_2 - \Delta_1$ 可以对电子波函数进行相干控制. 实验中, 以 500 as 为步长调整两个光脉冲延时, 可以相干地控制电子的能量-动量分布, 电子的边带布居以 2.6 fs 的周期振荡, 该周期正是光学周期 $2\pi/\omega$, 和解析的表达式给出的结果一致. 除了对电子与半无限光场的相互作用的阿秒相干调控, 该工作还展示了对自由电子与表面等离极化激元 (surface plasmon polariton, SPP) 的相互作用的阿秒-纳米相干控制, 如图 9 所示. 由于 SPP 行波和半无限光场之间的干涉, 产生了一个驻波分布, 被自由电子采样从而形成了实空间中的“快照”. 利用纳米等离激元法布里-珀罗 (Fabry-Perot, FP) 谐振腔, 同时采用阻止自由电子和半无限光场相互作用的几何构型, 可以单独成像 FP 腔中的等离激元谐振模式. 通过以 334 as 为步长改变两个光脉冲的相对延时, 可以间接地控制光激发等离激元的相对相位, 从而形成依赖于时间的干涉相长-相消的序列. 这种成像方式不会受到 EELS 能量分辨率的限制. 文献 [10] 中指出, 利用离子研磨、聚焦离子束刻蚀加工等技术, 可以设计出对自由电子透明, 但是部分反射 X 光的结构, 通过调整脉冲延时, 有可能实现泽秒 (zeptosecond, zs, 10^{-21} s) 相干控制. 该工作通过模拟两个有相对延时的 X 光脉冲 (单光子能量为 777 eV, 脉宽为 100 fs) 被镜面样品以 35% 的反射率反射, 展示了实现泽秒相干控制的可能性. 模拟中, 采用的延时调整步长为 30 as, 模拟

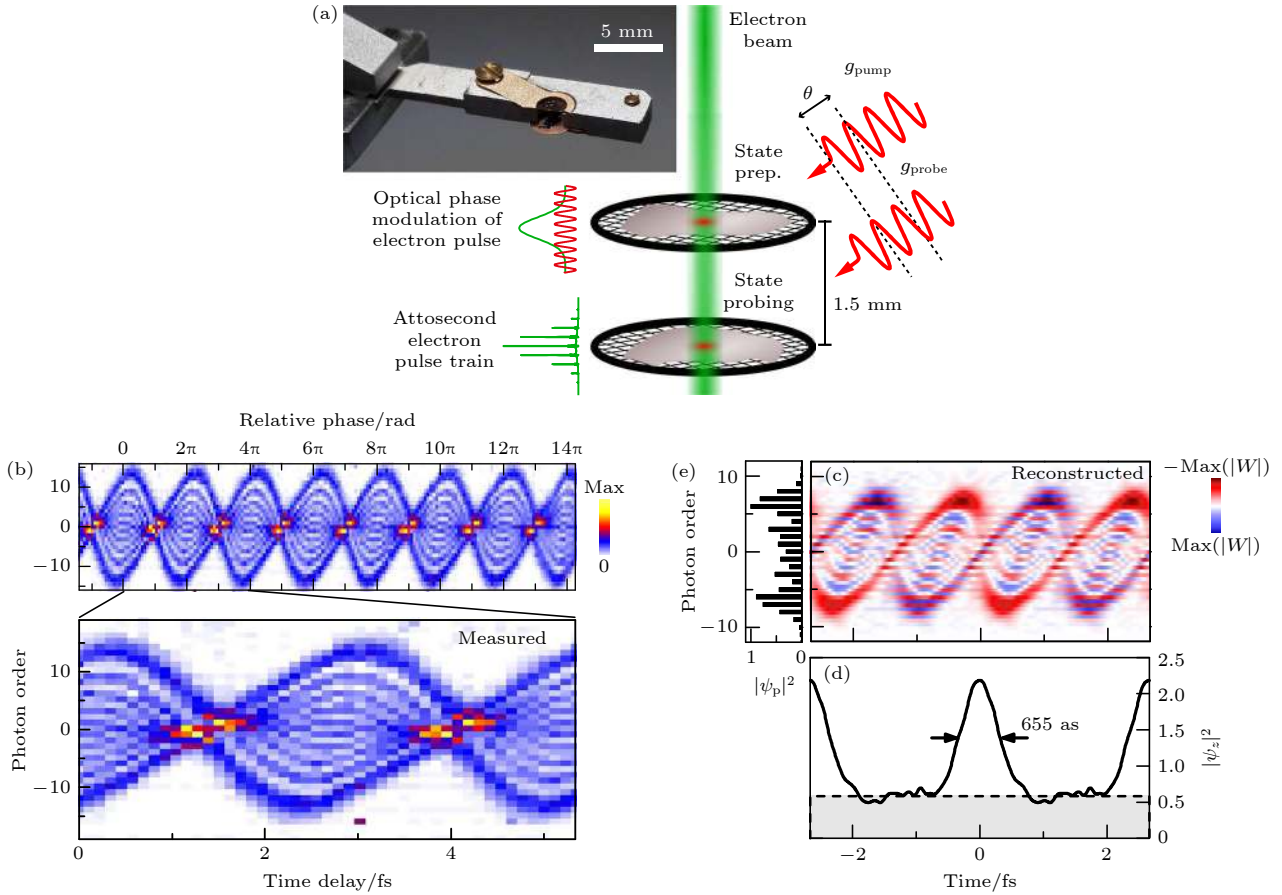


图 8 阿秒电子脉冲序列的实验演示 (a) 使用两个石墨薄片来制备阿秒电子脉冲序列的实验装置示意图, 插图定制为 TEM 样品架; (b) 多个光周期的实验光谱图 (上) 以及其中两个周期的特写 (下); (c) 重构的 Wigner 函数; (d) Wigner 函数的时间投影展示了对密度的调制, FWHM 为 655 as (减去阴影区域上部基线后, 脉冲有效持续时间 277 as); (e) 对应的电子能谱 (动量投影)^[78]

Fig. 8. Experimental demonstration of attosecond electron pulse trains: (a) Sketch of the experimental set-up employing two graphite flakes for the preparation (upper plane) and characterization (lower plane) of attosecond electron pulse trains, and the inset is photograph showing the custom-built TEM sample holder; (b) experimental spectrogram recorded over multiple optical cycles (top) and close-up of two cycles (bottom); (c) reconstructed Wigner function; (d) temporal projection of the Wigner function exhibits density modulations with a FWHM of 655 as (after subtraction of a baseline indicated by the grey-shaded area; r.m.s. pulse duration of 277 as); (e) corresponding electron energy spectrum (momentum projection)^[78].

预测一阶光子阶边带比 ZLP 低 10^{-5} 数量级左右, 同时, 电子能谱边带相位被以 X 光的光周期调制, 强度则每 511 zs 下降 1%。因此, 该框架可以将相干控制推广到泽秒机制中, 在未来有望成为泽秒科学研究的平台之一。

以上都是对电子波函数进行纵向相位调制, 利用轨道角动量 (orbital angular momentum, OAM) 的传递可以改变电子波函数的横向相位。考虑到当圆偏光与纳米腔相互作用时, 能够激发出具有非零拓扑电荷和螺旋相位分布的表面 SPP。2019 年, Garcia 等^[83] 利用与文献 [10] 相同的实验框架, 实现了从近场手性等离激元向自由电子传递 OAM, 如图 10 所示。沿 z 轴传播的 200 keV 的超短电子脉冲冲击银/氮化硅薄膜, 其中银层上刻有直径为 0.8 μm 纳

米孔。其中光脉冲在 $y-z$ 平面传播, 与电子束方向形成 δ 角, 通过控制光脉冲的延时, 可以控制手性等离激元近场, 从而实现对涡束性质的阿秒精度调控。这套实验框架也适用于其他带电粒子的物质波如质子束等, 有望为解决强子物理中的基本问题的提供新思路。

2020 年, Reinhardt 和 Kaminer 等^[85] 提出了一套利用光对自由电子波包进行整形和优化的理论。通过设计光脉冲并利用梯度下降算法进行优化, 可以实现电子能量梳、电子能量移动、阿秒电子脉冲等电子波包的整形; 此外, 这种波包整形技术理论上可以将电子叠加态转移到相干材料的激发中, 有望在阿秒科学中得到更多的应用。

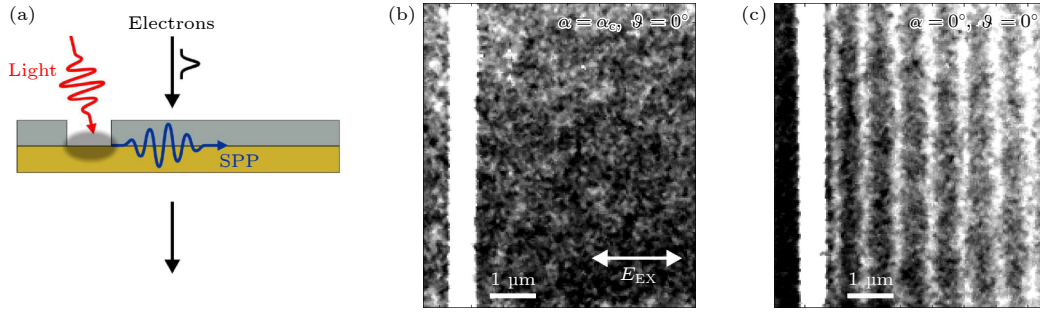


图 9 自由电子与光激发的 SPP 相互作用的示意图 (a) 在银层中雕刻的一维纳米腔通过光照明产生 SPP 的示意图; (b) 旋转样品方向, 使得实验测量中电子-光相互作用为零时的能量滤波图像; (c) 实验测量中具有不可忽略的电子-光相互作用的能量过滤图像. 只有在后一种构型中, 传播光和 SPP 场才会在电子束的作用下产生位置相关的干涉, 从而产生一个空间振荡的场振幅, 可以在真实空间中成像^[10]

Fig. 9. Visualization of propagating surface-plasmon polaritons: (a) Schematic representation of the generation of surface plasmon polaritons by optical illumination at the edge of a nanocavity carved in the Ag layer; (b) experimentally measured energy-filtered image for a sample orientation such to have a vanishing electron-light interaction; (c) experimentally measured energy-filtered image for a sample orientation such to have a non-negligible electron-light interaction. Only in the latter configuration a position-dependent interference of the propagating light and SPP fields as mediated by the electron beam occurs giving rise to a spatially oscillating field amplitude that can be imaged in real-space^[10].

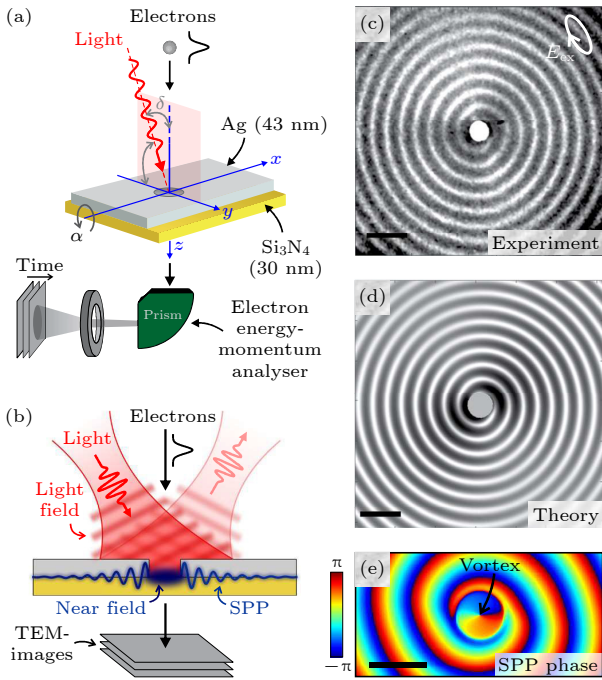


图 10 (a) 实验过程示意图; (b) 非局域全息法的示意图; (c) 电子-SPP 相互作用后非弹性散射电子的空间分布, 比例尺为 $2\ \mu\text{m}$; (d) 利用文中详细介绍的半解析理论计算的实空间电子强度分布, 比例尺为 $2\ \mu\text{m}$; (e) FDTD 模拟得到的界面总电场 z 分量的相位图 (比例尺为 $1\ \mu\text{m}$)^[83]

Fig. 10. (a) Schematic representation of the experimental geometry; (b) schematic representation of the non-local holographic method; (c) experimentally measured spatial distribution of the inelastically scattered electrons following the electron-plasmon interaction, scale bar, $2\ \mu\text{m}$; (d) calculated real-space electron intensity distribution using the semi-analytical theory detailed in the text (scale bar, $2\ \mu\text{m}$); (e) simulated phase map of the z component of the total electric field at the interface obtained from FDTD simulations (scale bar, $1\ \mu\text{m}$)^[83].

3.2 PINEM 成像

最初 PINEM 是作为一种近场成像方法提出的, 2009 年 Zewail 等^[33]通过飞秒激光激发碳纳米管的近场, 根据能量滤波后的 EELS 成像碳纳米管近场. 随着 PINEM 理论和实验技术的不断发展, 人们先后实现了对银纳米线^[95]、纳米颗粒^[96,97]、纳米针尖^[67]、多层石墨烯^[98]、光子晶体^[54]等的近场成像. 此外, 还实现了由反射镜诱导的半无限光场 (而不是近场 PQs)^[10]、SPP^[83,84]、PhP^[55]等的成像. PINEM 成像的应用范围从实空间中近场模式分布的表征^[54]扩展到记录时间分辨动力学演化^[55]、重构倒空间色散关系^[54]与测量模式寿命^[53,54]等. 根据现有的报告, PINEM 已经可以实现 $1\ \text{nm}$ 的空间分辨率^[52]、微电子伏特的能量分辨率^[52]以及百飞秒的时间分辨率^[53–55].

由于低品质因子和本征光损耗的影响, 早期人们并没有意识到纳米腔的存在是否会影响到自由电子-PQs 的相互作用. 2021 年, Kaminer 等^[55]利用 UTEM 实现了当时最强的电子-腔光子相干相互作用, 这种强度的相互作用使得仅利用 pJ 量级的光脉冲能量实现 PINEM 成像成为可能, PINEM 在对脆弱样品成像时将更具有优势. 由于实验装置可以调整泵浦-探测延时、泵浦光的波长和偏振、样品的倾斜角以及电子相互作用后的能量滤波共 5 个自由度 (如图 11(a) 所示), 所以可对光子腔进行更完备的描述. 通过以 $5\ \text{nm}$ 步长改变泵浦波长, 以及改变泵浦光的偏振, 可以重构出样品的能带分布.

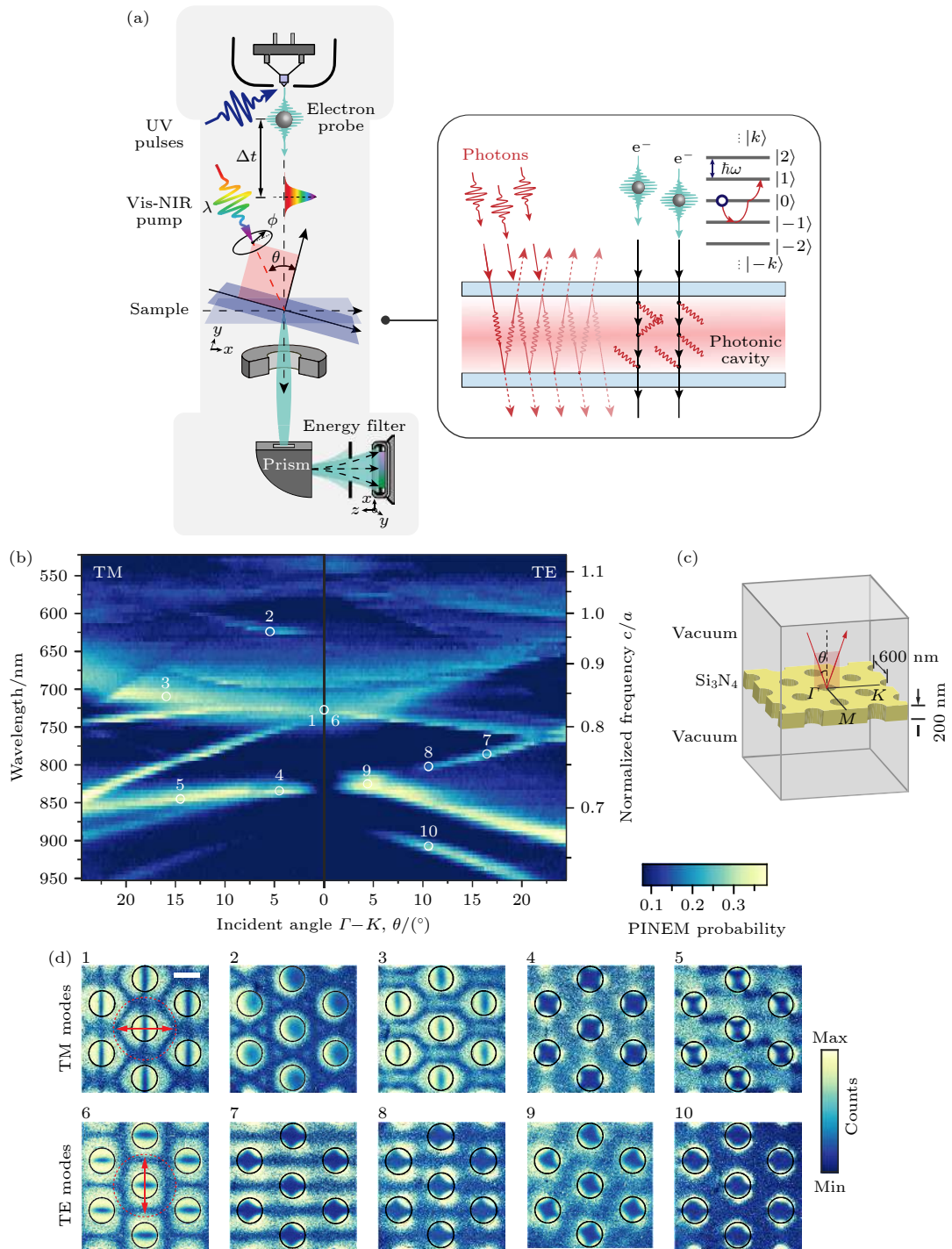


图 11 (a) UTEM 中自由电子与光子腔的量子相互作用的五个自由度. (b)–(d) 光子晶体能带结构的重建与 Bloch 模的直接成像 (b) 通过扫描入射光角度和波长而测得的能带结构; (c) 光子晶体和入射泵浦激光脉冲的示意图; (d) 在 (b) 中标记的角度和波长处测得的光子晶体的 Bloch 模式. 比例尺: 300 nm [54]

Fig. 11. (a) The UTEM setup offers five degrees of freedom to measure the interactions. (b)–(d) Reconstruction of band structure and direct imaging of the Bloch modes of the photonic crystal: (b) Band structure measured by scanning over incident laser angles and wavelengths; (c) layout of the photonic crystal and incident pump laser pulse; (d) Bloch modes of the photonic crystal measured at the angles and wavelengths marked in panel (b). Scale bar, 300 nm [54].

其中的色散关系是通过电子相互作用后的 EELS 谱中 2 倍于 ZLP 半高宽外的相互作用概率积分得到的, 表示为概率随波长、泵浦光入射角变化. 同

时, 能带图上任意一点所代表的 Bloch 模式也能通过 PINEM 相互作用概率表示出来, 如图 11(b) 所示. 利用电子探针脉冲对样品上的空气孔进行扫

描, 会得到耦合系数 $|g|$ 随着空间位置发生 RO 现象, 这体现了 PINEM 相互作用的量子本质. 另一方面, 光子晶体腔较高的品质因子也使得成像腔内时间动力学成为可能, 通过调整泵浦探测延时可以直接得到腔模式寿命. 实验表明, 低 Q 值 (腔模寿命更短) 与高 Q 值 (腔模寿命更长) 的光场模式和自由电子耦合时, 具有不同的动力学效应. 具体而言, 高 Q 值的光场模式和自由电子相互作用后得到的电子损失能量谱中边带的增强更明显, 意味着相互作用更强; 同时, 高 Q 值的腔对电子色散 (electron-chirp, EC) 产生的时间-能量倾斜效应的抑制作用更明显. 该工作中的光子晶体腔是刻蚀了

空气孔的氮化硅样品, 实验发现相比于穿过空气孔的电子, 直接穿过氮化硅薄膜的电子会减少 87.5%. 当样品对自由电子几乎透明时, PINEM 甚至可以以几乎无伤的方式探测到样品内部的电场分布. 此外, PINEM 可以使用中红外激光泵浦, 从而探测更小能量尺度的动力学, 而时间分辨的光子隧道扫描显微镜与时间分辨的光发射电子显微镜 (PEEM) 则还未应用于中红外波段. 随着 EELS 的发展, EELS 的能量分辨率越来越高, 目前已经实现从极薄的样品中提取出 PhP 的色散关系, 还可以测量介质体内和表面的纯振动模式 (声子模式), 只需利用电子衍射提取色散关系. 然而, 这些

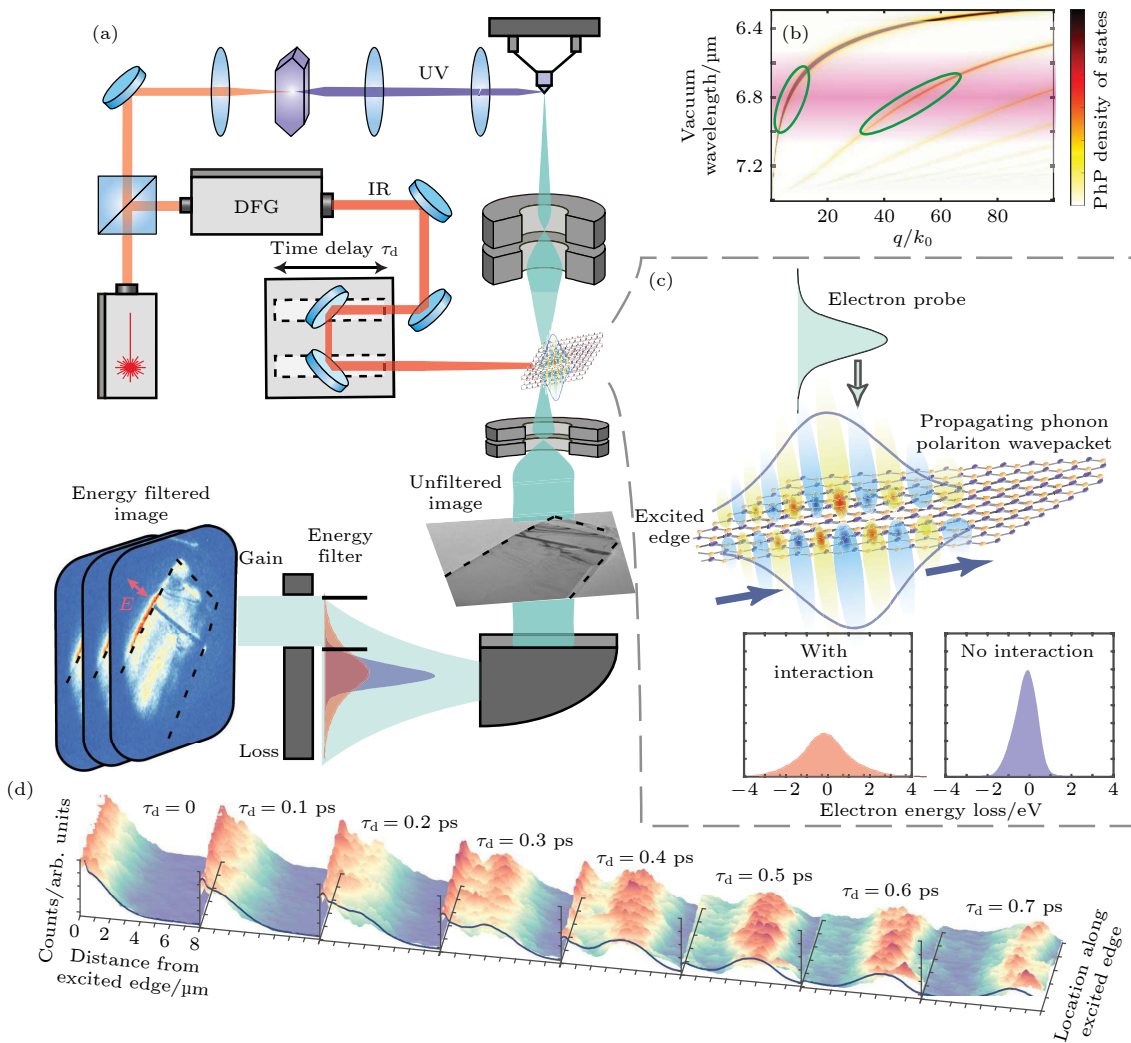


图 12 由 UTEM 观测二维极化激元波包^[55] (a) 实验装置以及实验过程示意图; (b) 样品的色散关系; (c) 自由电子探测 hBN 内部 (TM 偏振) 传播的 PhP 波包, 插图分别为激光开启 (左) 和关闭 (右) 时的 EELS; (d) 测量不同时间延迟 τ_d 下的电子的能量滤波, 显示了 PhP 波包的传播动力学

Fig. 12. Direct observation of two dimensional (2D) polariton wave packets using UTEM^[55]: (a) Experimental setup and the process; (b) dispersion relation of the sample; (c) free electron probing the (TM polarized) propagating PhP wave packet inside the hBN, and the insets show EELS spectra with the laser on (left) and off (right); (d) measurement of the energy-filtered electrons for different time delays τ_d showing the propagation dynamics of the PhP wave packets.

EELS 实验只能得到极化激元的静态信息, 不能得出极化激元波包的演化动力学等. 考虑到 PhP 的群速度较慢, 而自由电子和 PQs 的相互作用时间很短, PINEM 是实现时间分辨动力学成像的优质候选者.

2021 年, Kamminer 等^[55] 利用 PINEM 的上述优势实现了对二维双曲色散材料 hBN 样品中 PhP 波包的时间分辨动力学成像 (图 12), 该工作为电子束成像和显微添加了新工具. 图 12(b) 所示为样品的色散关系, 该样品为氮化硅基底上生长的 55 nm 厚的纯 hBN 同位素薄片, 其每个频率对应多个色散分支, 每个分支又对应一个不同的波包. 红外脉冲 (粉色) 的光谱带宽激发了一系列极化激元模式 (图中用绿色线圈出). q/k_0 为 PhP-光子波数比; 由于使用中红外波段的激光泵浦, 最后得到的 PQs 的能量量子小于电子波包初始的能量宽度, 这使得电子的 PINEM 谱是连续的能量分布而不是离散的峰, 如图 12(c) 所示. 利用 PINEM 首次观察到了 PhP 群速度的加速和减速过程, 还观察到了波包在传播过程中的分裂等行为.

3.3 量子光学与量子信息

Q-PINEM 理论表明, 在量子极限下存在与传统 PINEM 效应迥异的新现象. 自由电子波函数与光子量子态相互作用可以产生诸如加速电子时域聚焦、电子的双脉冲现象以及与光 Talbot 效应相似的周期性崩塌与复苏^[37]、电子束中两个连续电子间的纠缠等效^[35]; 另一方面, 在经典极限下 (强光场 $\alpha \gg 1$ 且弱耦合 $g_{\text{Qu}} \ll 1$) Q-PINEM 理论会回归到原始的结论. 利用 Q-PINEM, 可以实现对自由电子波函数的进一步调制^[37]、自由电子和光子之间甚至是自由电子间的纠缠^[35,40]、自由电子量子比特^[36,43,45,47]、自由电子对量子态光的塑形等新奇的应用.

2019 年, Kfir^[35] 探究了依次穿过同一近场的两个电子的纠缠, 这种纠缠可以抑制两个电子之间的库仑相互作用. 两个自由电子间光子阶的符合测量概率图如图 13 所示. 当耦合系数满足 $g_{\text{Qu}} = 1$ 时, 仍允许电子对处于互斥状态 (图中圈处), 即当第一个电子失去一个量子, 第二个电子必有能量变化. 更强的耦合 ($g_{\text{Qu}} = 3$ 时) 将引起更丰富的纠缠现象, 插图显示 $n = 12$ 时的符合概率. 在这样的电子对实验中, 能量增益对于第二个电子是独一无二的,

因此无需对两个电子的路径进行分别测量即可得知第二个电子的状态.

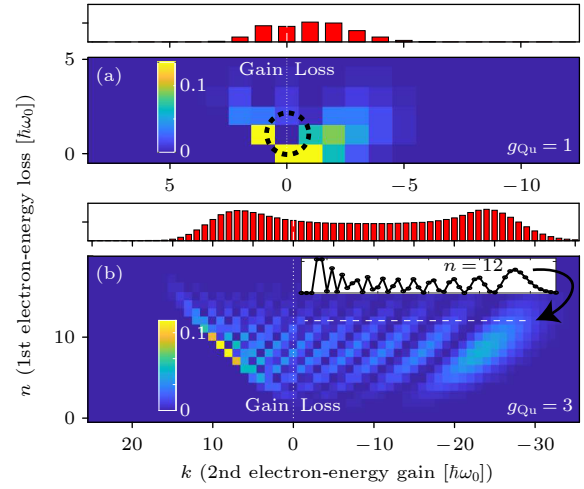


图 13 强耦合的纠缠特性, 由符合测量概率 $|c_{n,k}^{e-e}|^2$ 表示^[35] (a) 耦合系数 $g_{\text{Qu}} = 1$; (b) 耦合系数 $g_{\text{Qu}} = 3$

Fig. 13. Electron-electron interaction for two distant electrons in a beam, mediated by long-lived photons^[35]. The color map $|c_{n,k}^{e-e}|^2$ is the coincident probability: (a) $g_{\text{Qu}} = 1$; (b) $g_{\text{Qu}} = 3$.

此外, 2020 年, Di Giulio 和 García de Abajo^[37] 利用分束镜实现了两个自由电子的自相干, 展示了新奇的量子特性, 如图 14(a) 所示. 两个自由电子先后与近场相互作用, 其组成的系统的状态可以表示为概率密度分布的叠加:

$$\left(\frac{L}{2}\right) \sum_n |\psi_n(z, t) + e^{i\varphi} \psi_n(z', t)|^2 = \frac{\tilde{\rho}(z, \tau, \tau) + \tilde{\rho}(z, \tau', \tau')}{2} + \text{Re}\{e^{-i\varphi} \tilde{\rho}(z, \tau, \tau')\}, \quad (10)$$

其中 φ 是引入的相位, 与不同光量子态相互作用后, 电子系统的密度矩阵 $\tilde{\rho}(z, \tau, \tau')$ 的实部和虚部随着位移时间 τ 和 τ' 变化的图像如图 14(b)–(i) 所示, 其中假设两个电子之间的位移总是电子波长整数倍, 自由电子的动能为 100 keV, 近场光子的能量为 1.5 eV, 单光子耦合系数为 $|g_{\text{Qu}}| := |g_0| = 0.2$, 光场耦合系数 $|g| = 5$. 涉及压缩态时, 压缩参数 s 取为 2.

2019 年, Di Giulio 等^[34] 利用 Q-PINEM 从理论上证明了自由电子和近场的相互作用取决于样品的激发是玻色系统还是费米系统, 也取决于布居的统计性质. 其中对于玻色体系, 不同的光量子态 (光子数态、相干态以及热态) 对应的电子能谱分布差别明显. 文献^[34] 的作者提出可以通过光泵浦的

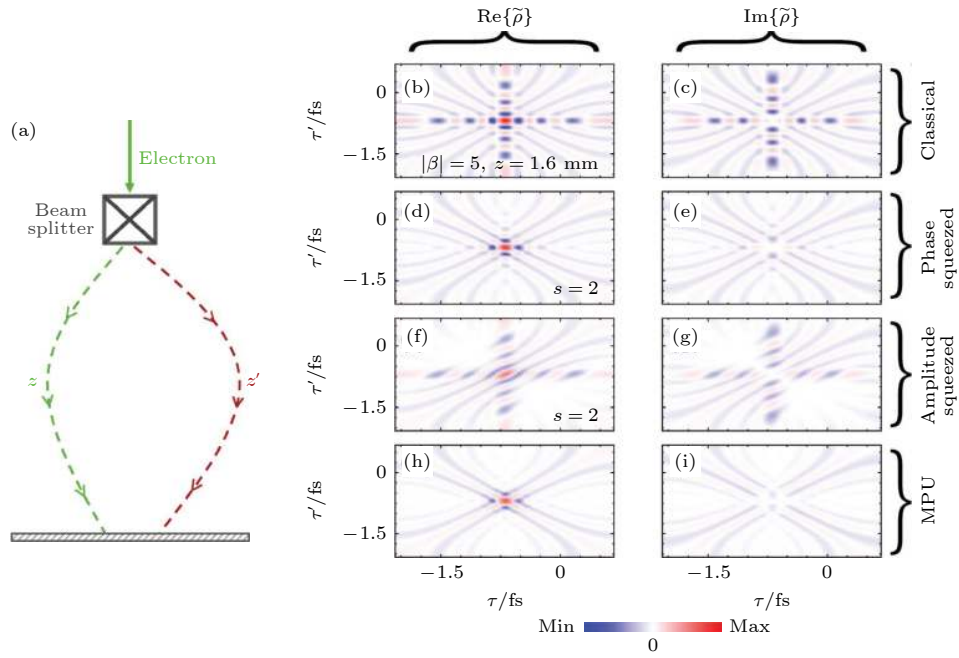


图 14 用自干涉法测量电子密度矩阵^[37] (a) 通过分束器后沿两条不同长度 (z 和 z') 的电子路径探索电子自相关的实验示意图; (b)—(i) 对不同的 PINEM 光场而言, 电子密度矩阵的实部 (左) 和虚部 (右) 作为两个电子各自的位移时间 τ, τ' 的函数

Fig. 14. Measuring the electron density matrix through self-interference^[37]: (a) Sketch of an experimental arrangement to explore electron auto-correlation by means of a beam splitter and different lengths (z and z') along the two electron paths before recombination at the detection region; (b)–(i) real (left panels) and imaginary (right panels) parts of the electron density matrix as a function of shifted times τ and τ' for different statistics of the PINEM light.

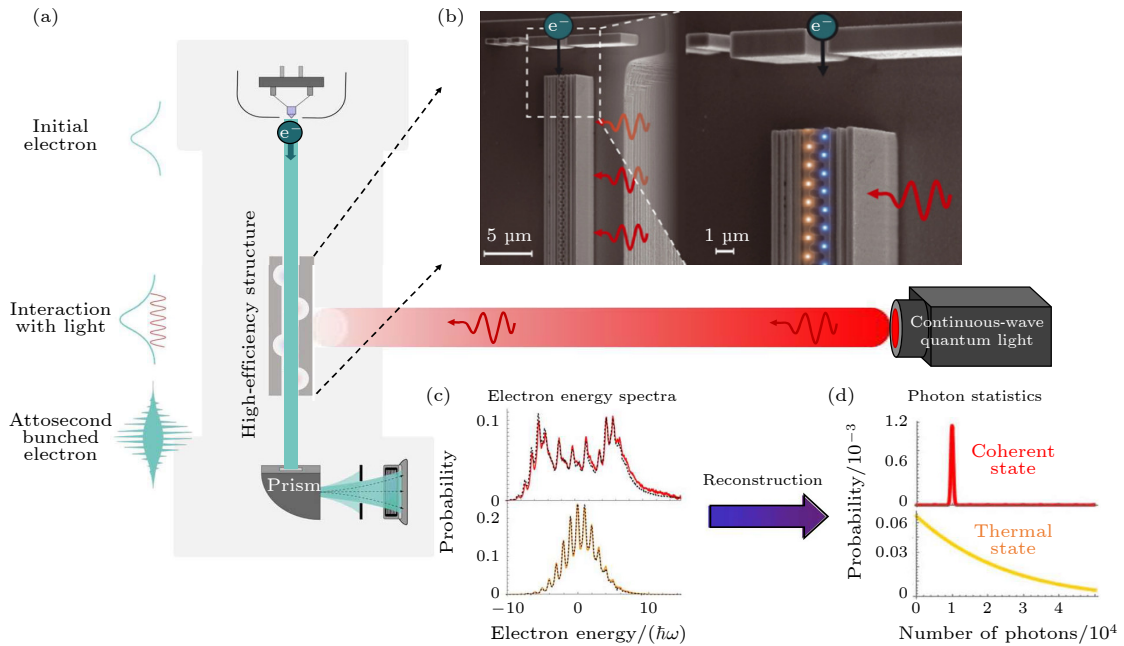


图 15 集成在电子显微镜中的硅光子器件提供了有效的电子与连续波光的相互作用, 使量子光子统计的检测成为可能^[40] (a) 透射电镜中电子波函数的连续波调制; (b) 硅-光子纳米结构 (扫描电子显微镜图像), 包括一个布拉格镜和一个周期通道; (c) 与相干光态和热光态相互作用后的电子能谱; (d) 由测量光谱重构的相应光子统计量

Fig. 15. A silicon-photonics device integrated in an electron microscope provides efficient electron interactions with CW light, enabling the detection of the quantum photon statistics^[40]: (a) CW modulation of electron wave functions in transmission electron microscopy; (b) silicon-photonics nanostructure (scanning electron microscope image), consisting of a Bragg mirror and a periodic channel; (c) electron energy spectrum after the interaction with two types of light states: coherent and thermal; (d) corresponding photon statistics reconstructed from the measured spectra.

量子发射器 (quantum emitters, QEs) 来布居光学腔, 在与自由电子相互作用之后, 通过自由电子能谱峰强度可直接复现腔布居的统计量, 如自关联函数. 这种方法很可能被用于分辨复杂材料中的多体激发, 如强关联体系等. 同时, 也为超快等离子激元、纳米结构等的动力学提供了一种新的研究方式.

至此, Q-PINEM 相关的应用研究仍仅限于理论计算, 很大程度上是由于其他光量子态的脉冲强度达不到相干态光脉冲的强度, 从而导致自由电子和光场耦合较弱. 2021 年, Kammerer 等^[40] 利用准相位匹配和逆向设计等方法, 实现了一个能高效耦合电子和量子态光的硅光子平台, 可以通过改变光纤放大器的状态改变输出的光量子态, 证明了光的量子统计性质会改变它们与自由电子的相互作用, 如图 15 所示. 因此, 在量子极限下, 不能把光当作一种经典波来描述, 另一方面, 利用相互作用后电

子的能谱, 可以重构出光的量子统计性质, 这得益于在相互作用过程中自由电子和光子之间产生的纠缠, 与之前理论研究的结论一致.

该工作提出了“自由电子的量子行走”理论, 将 PINEM 相互作用过程视为自由电子行走的过程, 在每一个无穷小的步骤, 有三种可能: i) 电子保持在当前的能级; ii) 电子发射光子, 移动到较低的能级; iii) 电子吸收光子, 移动到更高的能级. 如果光场处于热态, 那么自由电子的每一次行走都是完全退相干的, 结果等效于经典随机行走; 当自由电子是与完全相干光相互作用时, 电子的每一次发射与吸收都能在能态间保持明确的相位, 是量子行走过程; 当自由电子和部分相干光相互作用时, 则有概率会发生坍塌, 能态间的相位被清除, 如图 16(a) 所示. 从量子行走到随机行走的转变是一个退相干的过程, 是通过将光子统计从相干态逐渐变到超泊

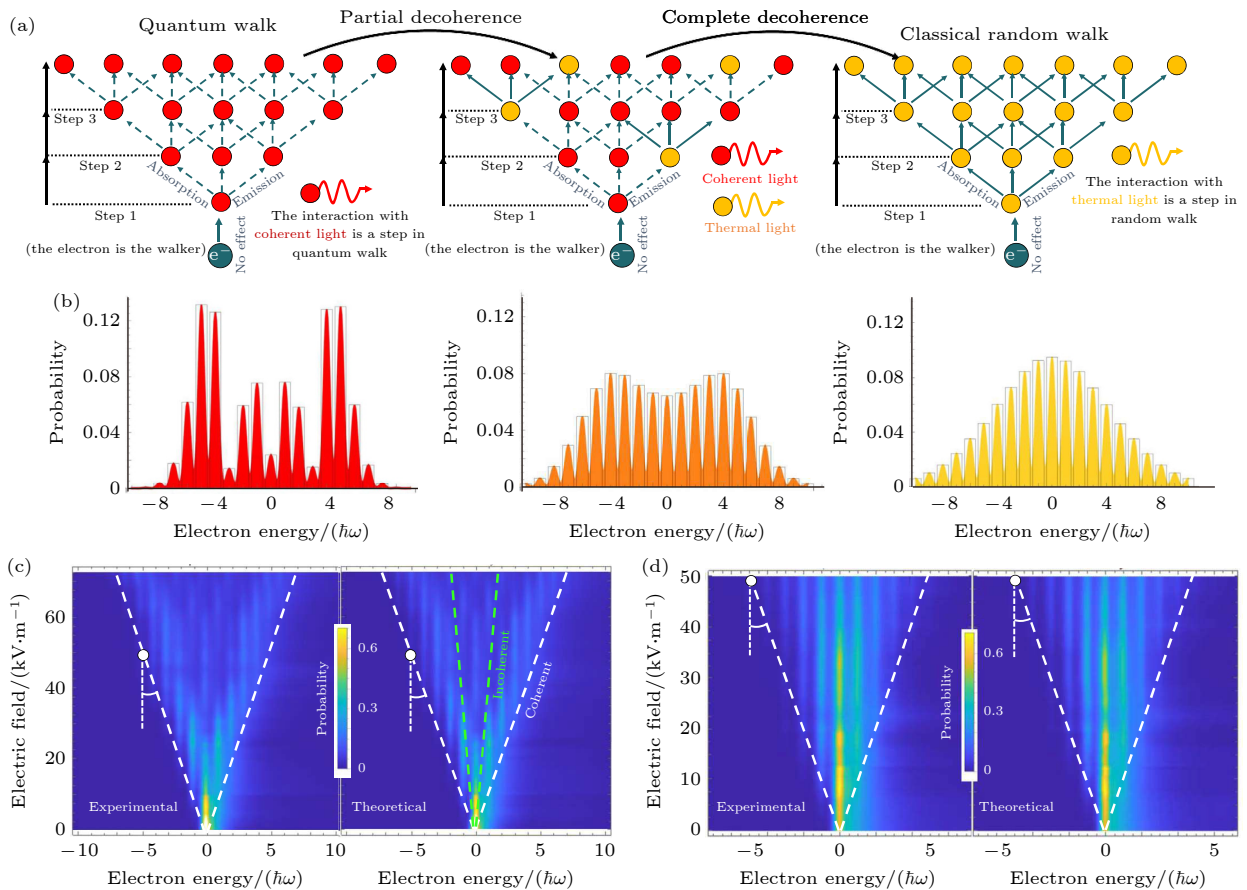


图 16 自由电子-光相互作用在电子能谱上刻印了光子的量子统计^[40] (a) 电子行走者与光子进行连续的相互作用; (b) 电子行走理论与 Q-PINEM 理论完全匹配; (c) 相干态和 (d) 热态的电子能谱随电场振幅的变化

Fig. 16. Free-electron-light interactions imprint the quantum photon statistics on the electron energy spectra, demonstrating the transition from quantum walk to classical random walk of a free electron^[40]: (a) Electron walker performs consecutive interactions with the photons; (b) electron walker theory exactly matches with the Q-PINEM theory; (c) experimental and theoretical electron energy spectra for (c) coherent and (d) thermal states evolving with the electric field amplitude.

松态,再变到热态的连续过程来实现的,而非无序诱导^[99-103].相互作用后,电子的能谱如图16(b)所示,与热态和完全相干态相互作用的结果刚好分别对应于随机行走、量子行走的特征.与相干光和热光相互作用后电子的能谱随着光场功率改变的理论、实验结果如图16(c)和图16(d)所示.实验发现,对于固定的光场功率而言,相干光和热光造成的电子能谱展宽接近,即图16(c)和图16(d)中的斜率因子相等,因此电子与热光和与相干光的相互作用同样有效.通过调整相干态的相干长度 l_c ,只会导致斜率增大,能谱宽度变窄.故造成与热光和相干光的作用后电子能谱差异的原因应该是更高阶的相干性(即光子统计性质)而不是相干长度或者相干时间.

根据 Q-PINEM 理论,相互作用后电子吸收/发射 k 个光子的概率为

$$P_k = \sum_n |c_{-k}^{n+k}|^2 \rho_{\text{ph}}(n+k, n+k), \quad (11)$$

其中 c_{-k}^{n+k} 是系数,而 $\rho_{\text{ph}}(n, m)$ 是光子态在 Fock 表象下的密度矩阵.利用(11)式,就能通过电子能谱重构光子的统计关联度 $g^{(n)}$.在这个过程当中,自由电子被作为量子弱测量的探针,而光则是待测系统. EELS 是强投影测量方式,可以通过一组投影算符进行建模,即

$$\mathbf{M}_k = |E_0 - k\hbar\omega\rangle \langle E_0 - k\hbar\omega|, \quad (12)$$

光的初始密度矩阵 ρ_{ph} 与经过投影测量后的密度矩阵 ρ_{ph}^k 之间的差异取决于和自由电子纠缠的程度,可由保真度表示:

$$F_k = \left[\text{tr} \left\{ \sqrt{\rho_{\text{ph}} \rho_{\text{ph}}^k} \sqrt{\rho_{\text{ph}}} \right\} \right]^2, \quad (13)$$

当保真度接近 1 时,测量几乎不改变光的状态,自由电子和相干光相互作用属于这种情况,因此该过程被称为量子弱测量;热光则相反,保真度大幅降低,这意味着电子探针的行为更像是能改变光状态的投影测量.因此自由电子的作用可根据待测系统的状态不同分为两个极端——量子弱测量和投影测量.电子波函数永远不会在时间和空间中坍缩,只在能量域中坍缩.如果电子波函数在时间空间和实空间坍缩,那么结果将表现为带电点粒子和光场相互作用的非相干叠加,不会出现 PINEM 谱中离散的峰;相比之下,能量空间的坍缩将导致电子波函数分裂为多个扩展了数个光周期的子波函数,

在系统的联合态中表现为和光子态的纠缠.

除了利用量子光场为电子波函数塑形,还可以通过自由电子获得目标光子态.2021 年 Kaminer 等^[38]发展了 Q-PINEM 理论的密度矩阵形式,同时提出了一种用于处理电子和腔模连续相互作用的鲁棒性方案,如图 17 所示.通过电子枪和一些外部光源(如激光脉冲)分别产生具有特定能量分布的电子输入态和光子输入态,随后腔模场和电子脉冲之间发生相互作用,输出纠缠态,再用 EELS 对电子进行测量.图 17(a)的插图列出了几种适合于强耦合的 Q-PINEM 相互作用的可选光子结构.为了表征产生的光子态,可以使用传统的量子光学检测方案,如符合计数^[104]和零差检测^[105,106].至于实验的可行性则取决于空腔寿命和连续电子相互作用时间之间的差异.Kaminer 等^[93]从理论上提出了利用 Q-PINEM 产生猫态以及在连续变量的量子计算和通信中起着关键作用的 GKP 态的方法,该方法能够在 10% 的后选择概率下生成超过 10 dB 压缩和 90% 以上保真度的光学 GKP 态.

2021 年 Baum 等^[45]提出了实验实现自由电子量子比特的设想,如图 18 所示.如果激光的入射角度和偏振选择合适,电子束穿过被激光照亮的薄膜时,以光周期变化的电场就会对电子的动量施加周期性的调制.从能量空间上看,电子吸收/放出光子会造成能量的改变,从时域上看,运动速度较快的电子会逐渐追上运动速度较慢的电子,电子束转变为一系列持续时间为飞秒甚至是阿秒的超短脉冲,在经过时域焦点之后,超短脉冲再次分散,时域结构瓦解.然而,当传播距离超过某个范围时,每个脉冲的加速部分将赶上其减速部分.因此,量子干涉可能可以恢复原始的波函数,形成时间对比度优化的阿秒电子脉冲或为后续的多束激光操作制备特殊的时间结构.在特殊的传输距离下,通过激光调制可以形成自由电子量子比特.图 18(b)显示了能谱和边带相位的演化,从顶部到底部分别为初始相位、半复苏相位以及完全恢复时的相位,使用高斯包络来描述电子有限的时间相干性,在动能为 75 keV 时,电子的波包如图 18(d)所示, L 为传播距离, t 为时间.

2022 年, Kaminer 等^[47]从理论上探究了利用自由电子在两个空间分离的光子态之间引入纠缠的可能性.这之前,所有基于 PINEM 的纠缠,都只涉及在物质中创造纠缠,如自由电子自身的纠

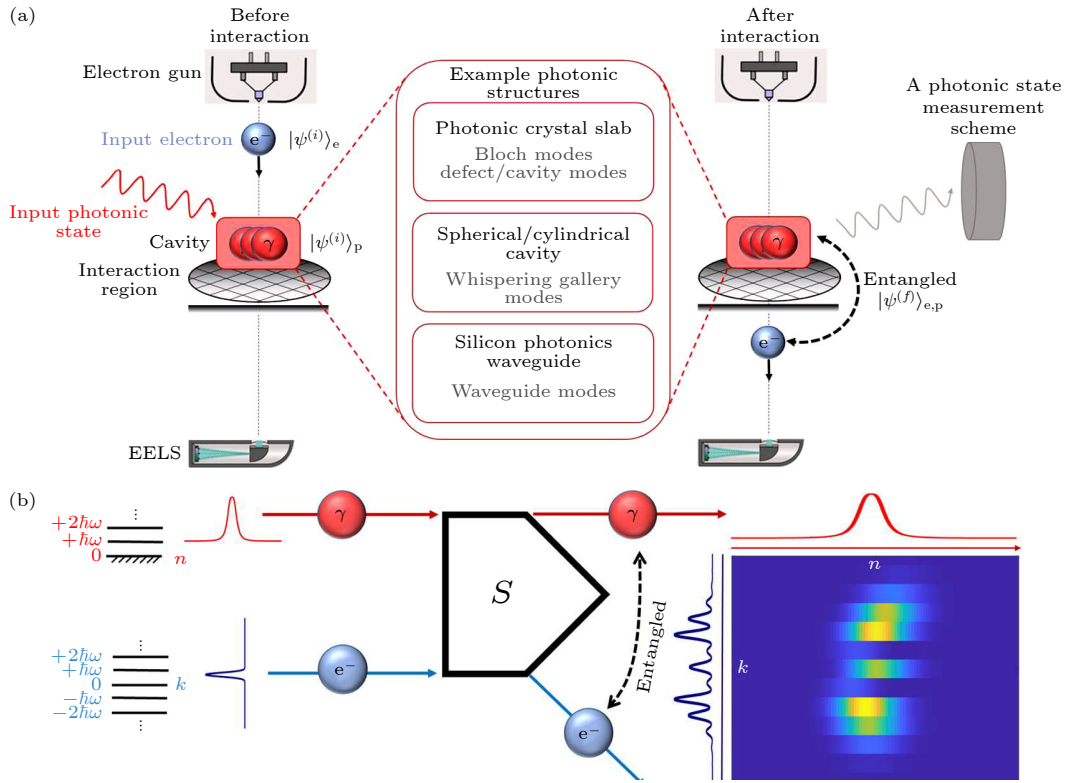


图 17 利用 Q-PINEM 塑造具有新奇量子统计的光子态^[38] (a) Q-PINEM 相互作用的物理实现示意图; (b) 单次 Q-PINEM 相互作用的方案

Fig. 17. Shaping photonic states of novel quantum statistics using Q-PINEM interactions^[38]: (a) Schematic for a physical realization of a Q-PINEM interaction; (b) interaction scheme of a single Q-PINEM interaction.

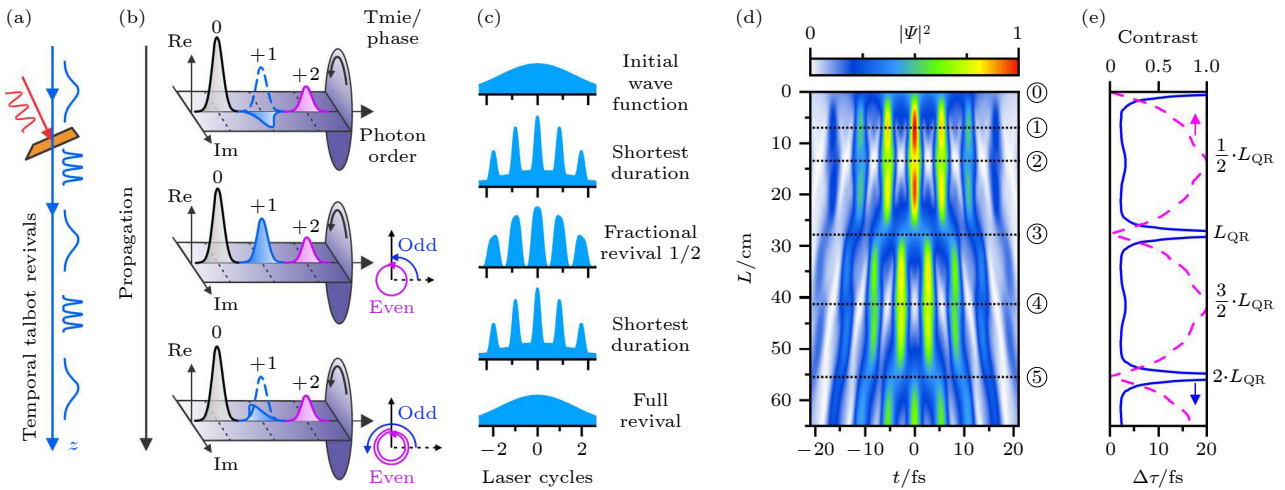


图 18 最大对比度下的量子复苏和亚光周期电子显微示意图^[45] (a) 阿秒电子脉冲的示意以及自由电子量子比特的概念; (b) 能谱和边带相位的演化; (c) 电子的时域波包脉冲; (d) 模拟的电子波包 $|\Psi|^2$; (e) 电子脉冲持续时间 τ (实线) 和时间对比度 (虚线) 作为 L 的函数

Fig. 18. Quantum revivals and sub-light-cycle electron microscopy at maximum contrast^[45]: (a) Concept for exploiting quantum revivals for generating attosecond electron pulses and qubits; (b) evolution of the energy spectrum and sideband phases; (c) wave packets and pulses in the time domain; (d) simulated quantum carpet $|\Psi|^2$ of an electron wave packet; (e) electron pulse duration $\Delta\tau$ (solid) and temporal contrast (dashed) as a function of L .

缠^[107,108]. 两个空间分离的光子态可以通过各种系统实现, 如光子晶体腔、硅光子波导等, 因此这种概念可以很容易地被拓展到其他 PQs 系统中, 如

PhP 等. 只需要测量电子便可获得是否成功创造纠缠、光的聚束与反聚束等信息, 如图 19 所示. 其中一个电子与两个 Fock 态光场进行相互作用,

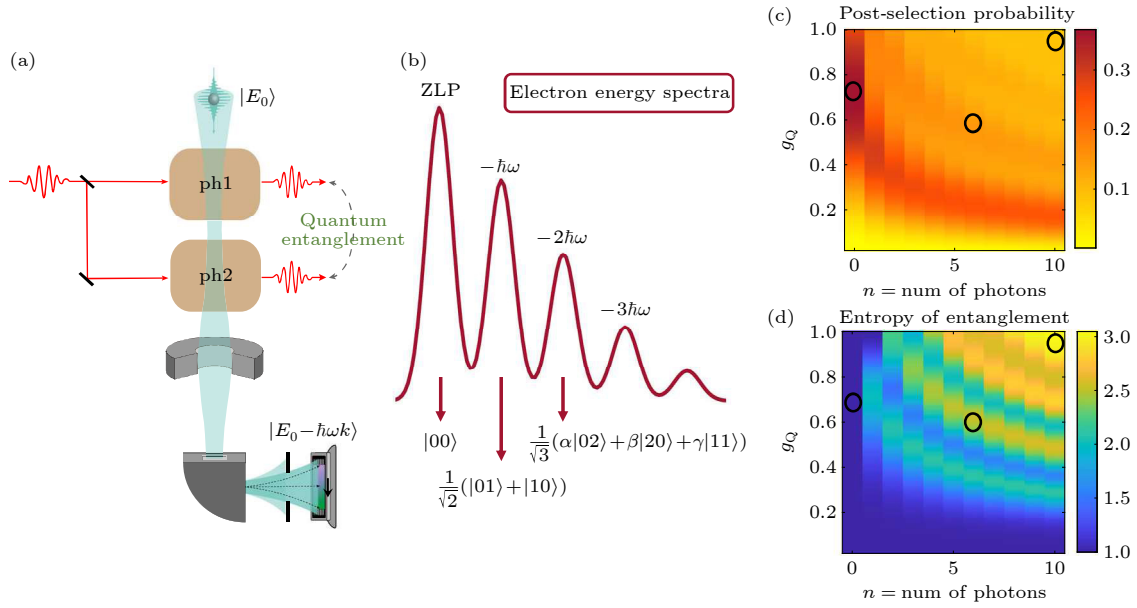


图 19 (a) 实验方案; (b) 相互作用后, 每个电子能态被纠缠到不同的光子态; (c) 对于不同的初始参数, 一次相互作用后对能量为 $E_0 - \hbar\omega$ (即 $k = 1$) 的电子进行后选择的概率图; (d) 对能量为 $E_0 - \hbar\omega$ 的电子 (即 $k = 1$) 进行后选择后两个光子态之间纠缠熵的图^[47]

Fig. 19. (a) A scheme of the proposed experiment; (b) each electron energy is entangled to a different photonic state after the interaction; (c) a map of the probability to post-select the electron with energy $E_0 - \hbar\omega$ (i.e., $k = 1$) after one interaction for different initial parameters; (d) a map of the entropy of entanglement between the two states of light after post-selecting on electrons with energy $E_0 - \hbar\omega$ (i.e., $k = 1$)^[47].

再进入带有能量滤波的 EELS. 自由电子可以通过与两个光子态之间的纠缠传递信息, 当然, 这其中最重要的是实现量子信息交换的必要条件, 即自由电子的能量相干不确定度必须小于单个光子的能量, 同时也需要两个光子态在空间上分离足够的距离, 使得电子可以通过自由空间传播过程改变其空间形状.

4 总结与展望

本文介绍了近年来, PINEM 从首次实验演示到迅速发展的过程, 综述了自由电子与 PQs 相互作用的理论与实验进展. PINEM 在经典光场、量子光场中的应用都有了令人振奋的成果. 然而, 目前 PINEM 的实验需要进一步深入, 例如从 Q-PINEM 来看, 实验上还未实现令人满意的单光子-单电子强耦合 ($g_{Qu} > 1$). 从自由电子波函数的塑形来看, 还可以进一步地探索波函数中其他自由度的调控, 以及各个自由度之间的组合, 甚至引入类似光场合成维度的概念. 当完全掌握对自由电子波函数的塑形能力之后, 可以将塑形后的自由电子波函数应用于成像、量子信息等领域. 这将依赖于相关

技术的进步, 如强度更高的连续激光、效率更高的单光子源、更先进的探测手段和样品制作技术等.

PINEM 在成像方面具有很大优势, 不仅可以无伤探测对电子透明的样品, 还可以反映出样品内部电场的强度分布情况. 对于无法通过其他近场成像方式实现的元激发动力学成像, 也可以通过中红外泵浦的 PINEM 实现. PINEM 的实空间分辨率、时间分辨率、能量分辨率等也在不断进步, 测量模式寿命、模式体积等也成为了可能. 未来有望联合自由电子的其他自由度, 对特殊的近场模式进行成像.

由于单电子-单光子之间耦合较弱, 在量子光学领域还有许多未知的问题等待的探索. 这些未知问题的发现来源于前瞻性实验和理论. Q-PINEM 在量子信息中的应用也还有待人们的发掘, 这包括制备新的光子态、自由电子与光子之间甚至自由电子之间的纠缠、电子和光之间的强关联^[48]、以及以自由电子作为信息载体进行传递^[89]等. 由于自由电子与光场相互作用本身具有量子行走的特性, Q-PINEM 也有望成为量子行走研究的重要平台.

除本文提到的应用, 基于自由电子的量子光学方面还有很多新奇的研究^[88,109–113], 如在 SEM 中

实现对 PINEM 的量子相干操纵^[114]、通过特定光场进行自由电子的超快调制^[86,90,91,115]、量子自由电子的非线性过程^[116,117]、PINEM 实现一维的鬼成像^[82]、自由电子与光子时间晶体相互作用^[109]等。相关的理论和模拟进展还包括利用第一性原理的直接计算^[118]、利用光子的平带共振或者连续体中的束缚态 (bound-state in the continuum, BIC) 等增强电子和光的耦合^[24,30]、将自由电子扩展到其他基本粒子物质波^[119,120] 等有趣的探索。此外, 人们关于 PQs 和自由电子的相互作用的研究远不止于 PINEM。基于自由电子的 CR、SPR 及 FEL、自由电子加速器等中的量子效应也引起了人们广泛的关注。有理由相信, 随着实验技术的进步以及新的实验方案的提出, 未来的自由电子与 QPs 的相互作用不仅能成为高能光源的基本理论、探究阿秒甚至泽秒科学的有力工具, 也将成为探索量子光学和量子信息的重要平台。

参考文献

- [1] Dirac P A M 1981 *The Principles of Quantum Mechanics* (London: Clarendon Press) pp204–207
- [2] Fox A M, Fox D P A M 2001 *Optical Properties of Solids* (New York: Oxford University Press) pp180–211
- [3] Vasa P 2020 *Adv. Phys. X* **5** 1749884
- [4] Scully M O, Zubairy M S 1997 *Quantum Optics* (Cambridge: Cambridge University Press) pp145–217
- [5] Fox M, Fox D P A M 2006 *Quantum Optics: An Introduction* (New York: Oxford University Press) pp165–240
- [6] Walls D F, Milburn G J 2007 *Quantum Optics* (Heidelberg: Springer) pp197–211
- [7] Rivera N, Kammer I 2020 *Nat. Rev. Phys.* **2** 538
- [8] Ashcroft N W, Mermin N D 1976 *Solid State Physics* (New York: Holt, Rinehart and Winston) pp131–150
- [9] Freimund D L, Aflatooni K, Batelaan H 2001 *Nature* **413** 142
- [10] Vanacore G M, Madan I, Berruto G, Wang K, Pomarico E, Lamb R J, McGrouther D, Kammer I, Barwick B, Garcia de Abajo F J, Carbone F 2018 *Nat. Commun.* **9** 2694
- [11] Kammer I, Katan Y T, Buljan H, Shen Y, Ilic O, Lopez J J, Wong L J, Joannopoulos J D, Soljacic M 2016 *Nat. Commun.* **7** 11880
- [12] Kammer I, Mutzafi M, Levy A, Harari G, Herzig Sheinfux H, Skirlo S, Nemirovsky J, Joannopoulos J D, Segev M, Soljacic M 2016 *Phys. Rev. X* **6** 011006
- [13] Gover A, Pan Y 2018 *Phys. Lett. A* **382** 1550
- [14] Lin X, Easo S, Shen Y, Chen H, Zhang B, Joannopoulos J D, Soljacic M, Kammer I 2018 *Nat. Phys.* **14** 816
- [15] Pan Y, Gover A 2018 *J. Phys. Commun.* **2** 115026
- [16] Roques-Carmes C, Rivera N, Joannopoulos J D, Soljacic M, Kammer I 2018 *Phys. Rev. X* **8** 041013
- [17] Pan Y, Gover A 2019 *Phys. Rev. A* **99** 052107
- [18] Lin X, Hu H, Easo S, Yang Y, Shen Y, Yin K, Blago M P, Kammer I, Zhang B, Chen H, Joannopoulos J, Soljacic M, Luo Y 2021 *Nat. Commun.* **12** 5554
- [19] Adiv Y, Hu H, Tsesses S, Dahan R, Wang K, Kurman Y, Gurlach A, Chen H, Lin X, Bartal G, Kammer I 2022 arXiv: 2203.01698 [quant-ph]
- [20] Mizuno K, Ono S, Shimoe O 1975 *Nature* **253** 184
- [21] Tsesses S, Bartal G, Kammer I 2017 *Phys. Rev. A* **95** 013832
- [22] Massuda A, Roques-Carmes C, Yang Y, Kooi S E, Yang Y, Murdia C, Berggren K K, Kammer I, Soljacic M 2018 *ACS Photonics* **5** 3513
- [23] Rosolen G, Wong L J, Rivera N, Maes B, Soljacic M, Kammer I 2018 *Light Sci. Appl.* **7** 64
- [24] Yang Y, Massuda A, Roques-Carmes C, Kooi S E, Christensen T, Johnson S G, Joannopoulos J D, Miller O D, Kammer I, Soljacic M 2018 *Nat. Phys.* **14** 894
- [25] Remez R, Karnieli A, Trajtenberg-Mills S, Shapira N, Kammer I, Lereah Y, Arie A 2019 *Phys. Rev. Lett.* **123** 060401
- [26] Roques-Carmes C, Kooi S E, Yang Y, Massuda A, Keathley P D, Zaidi A, Yang Y, Joannopoulos J D, Berggren K K, Kammer I, Soljacic M 2019 *Nat. Commun.* **10** 3176
- [27] Jing L, Lin X, Wang Z, Kammer I, Hu H, Li E, Liu Y, Chen M, Zhang B, Chen H 2021 *Laser Photonics Rev.* **15** 2000426
- [28] Karlovets D V, Pupasov-Maksimov A M 2021 *Phys. Rev. A* **103** 012214
- [29] Wong L J, Kammer I 2021 *Appl. Phys. Lett.* **119** 130502
- [30] Yang Y, Roques-Carmes C, Kooi S E, Tang H, Beroz J, Mazur E, Kammer I, Joannopoulos J D, Soljacic M 2021 arXiv: 2110.03550 [physics. optics]
- [31] Zhu J F, Du C H, Zhang Z W, Liu P K, Zhang L, Cross A W 2021 *Opt. Lett.* **46** 4682
- [32] Betzig E, Trautman J K 1992 *Science* **257** 189
- [33] Barwick B, Flannigan D J, Zewail A H 2009 *Nature* **462** 902
- [34] Di Giulio V, Kociak M, de Abajo F J G 2019 *Optica* **6** 001524
- [35] Kfir O 2019 *Phys. Rev. Lett.* **123** 103602
- [36] Reinhardt O, Mechel C, Lynch M, Kammer I 2019 *Conf Lasers Electro-Opt San Jose, California, USA, May 5, 2019* pFF1F.6
- [37] Di Giulio V, Garcia de Abajo F J 2020 *Optica* **7** 1820
- [38] Ben Hayun A, Reinhardt O, Nemirovsky J, Karnieli A, Rivera N, Kammer I 2021 *Sci. Adv.* **7** eabe4270
- [39] Braiman G, Reinhardt O, Levi O, Mechel C, Kammer I 2021 *Conf Lasers Electro-Opt San Jose, California, USA, May 9, 2021* pFTh1N.6
- [40] Dahan R, Gurlach A, Haeusler U, Karnieli A, Eyal O, Yousefi P, Segev M, Arie A, Eisenstein G, Hommelhoff P, Kammer I 2021 *Science* **373** eabj7128
- [41] Gover A, Ran D, Zhang B, Pan Y M, Ianconescu R, Scheuer J, Friedman A, Yariv A 2021 *Front Opt. Laser Sci.* Washington DC, USA, November 1, 2021 pFTh6 D.1
- [42] Karnieli A, Rivera N, Arie A, Kammer I 2021 *Phys. Rev. Lett.* **127** 060403
- [43] Reinhardt O, Mechel C, Lynch M, Kammer I 2021 *Ann. Phys.* **533** 2000254
- [44] Rivera N, Sloan J, Kammer I, Soljacic M 2021 arXiv: 2111.07010 [quant-ph]
- [45] Tsarev M V, Ryabov A, Baum P 2021 *Phys. Rev. Res.* **3** 043033
- [46] Zhang B, Ran D, Ianconescu R, Friedman A, Scheuer J, Yariv A, Gover A 2021 arXiv: 2111.13130
- [47] Baranes G, Ruimy R, Gurlach A, Kammer I 2022 *npj Quantum Inf.* **8** 32
- [48] Bloch J, Cavalleri A, Galitski V, Hafezi M, Rubio A 2022

- Nature* **606** 41
- [49] Feist A, Huang G, Arend G, et al. 2022 arXiv: 2202.12821 [quant-ph]
- [50] Feist J, Fernández-Domínguez A I, García-Vidal F J 2021 *Nanophotonics* **10** 477
- [51] Scheel S, Yoshi Buhmann S 2009 arXiv: 0902.3586 [quant-ph]
- [52] Henke J W, Raja A S, Feist A, et al. 2021 *Nature* **600** 653
- [53] Kfir O, Lourenco-Martins H, Storeck G, Sivis M, Harvey T R, Kippenberg T J, Feist A, Ropers C 2020 *Nature* **582** 46
- [54] Wang K, Dahan R, Shentcis M, Kauffmann Y, Ben Hayun A, Reinhardt O, Tsesses S, Kaminer I 2020 *Nature* **582** 50
- [55] Kurman Y, Dahan R, Sheinfux Hanan H, et al. 2021 *Science* **372** 1181
- [56] Barwick B, Park H S, Kwon O-H, Baskin J S, Zewail A H 2008 *Science* **322** 1227
- [57] Liu H, Baskin J S, Zewail A H 2016 *Proc. Natl. Acad. Sci. U. S. A.* **113** 2041
- [58] Sternbach A J, Chae S H, Latini S, et al. 2021 *Science* **371** 617
- [59] Yoxall E, Schnell M, Nikitin A Y, et al. 2015 *Nat. Photonics* **9** 674
- [60] Petek H, Ogawa S 1997 *Prog. Surf. Sci.* **56** 239
- [61] Davis T J, Janoschka D, Dreher P, Frank B, Heringdorf F J M z, Giessen H 2020 *Science* **368** eaba6415
- [62] Balistreri M L M, Gersen H, Kortkerik J P, Kuipers L, Hulst N F v 2001 *Science* **294** 1080
- [63] Yamamoto N 2016 *Microscopy* **65** 282
- [64] Garcia de Abajo F J, Asenjo-Garcia A, Kociak M 2010 *Nano Lett.* **10** 1859
- [65] Park S T, Lin M, Zewail A H 2010 *New J. Phys.* **12** 123028
- [66] Park S T, Zewail A H 2012 *J. Phys. Chem. A* **116** 11128
- [67] Feist A, Echterkamp K E, Schauss J, Yalunin S V, Schäfer S, Ropers C 2015 *Nature* **521** 200
- [68] Kociak M 2015 *Nature* **521** 166
- [69] Dahan R, Nehemia S, Shentcis M, Reinhardt O, Adiv Y, Shi X, Be'er O, Lynch M H, Kurman Y, Wang K, Kaminer I 2020 *Nat. Phys.* **16** 1123
- [70] Pan Y, Zhang B, Gover A 2019 *Phys. Rev. Lett.* **122** 183204
- [71] Kling P, Giese E, Endrich R, Preiss P, Sauerbrey R, Schleich W P 2015 *New J. Phys.* **17** 123019
- [72] Friedman A, Gover A, Kurizki G, Ruschin S, Yariv A 1988 *Rev. Mod. Phys.* **60** 471
- [73] Fu X, Barantani F, Gargiulo S, Madan I, Berruto G, LaGrange T, Jin L, Wu J, Vanacore G M, Carbone F, Zhu Y 2020 *Nat. Commun.* **11** 5770
- [74] Mkhitarian V, Dias E J C, Carbone F, García de Abajo F J 2021 *ACS Photonics* **8** 614
- [75] Ruimy R, Gorlach A, Mechel C, Rivera N, Kaminer I 2021 *Phys. Rev. Lett.* **126** 233403
- [76] Echterkamp K E, Feist A, Schäfer S, Ropers C 2016 *Nat. Phys.* **12** 1000
- [77] Morimoto Y, Baum P 2017 *Nat. Phys.* **14** 252
- [78] Priebe K E, Rathje C, Yalunin S V, Hohage T, Feist A, Schäfer S, Ropers C 2017 *Nat. Photonics* **11** 793
- [79] Cai W, Reinhardt O, Kaminer I, de Abajo F J G 2018 *Phys. Rev. B* **98** 045424
- [80] Kozak M, Schonenberger N, Hommelhoff P 2018 *Phys. Rev. Lett.* **120** 103203
- [81] Morimoto Y, Baum P 2018 *Phys. Rev. A* **97** 033815
- [82] Polman A, Kociak M, Garcia de Abajo F J 2019 *Nat. Mater.* **18** 1158
- [83] Vanacore G M, Berruto G, Madan I, et al. 2019 *Nat. Mater.* **18** 573
- [84] Harvey T R, Henke J W, Kfir O, Lourenco-Martins H, Feist A, Garcia de Abajo F J, Ropers C 2020 *Nano Lett.* **20** 4377
- [85] Reinhardt O, Kaminer I 2020 *ACS Photonics* **7** 2859
- [86] Garcia de Abajo F J, Konecna A 2021 *Phys. Rev. Lett.* **126** 123901
- [87] Kozák M 2021 *ACS Photonics* **8** 431
- [88] Wong L J, Rivera N, Murdia C, Christensen T, Joannopoulos J D, Soljacic M, Kaminer I 2021 *Nat. Commun.* **12** 1700
- [89] Zhang B, Ran D, Ianconescu R, Friedman A, Scheuer J, Yariv A, Gover A 2021 arXiv: 2111.13130 [quant-ph]
- [90] Constantin Chirita Mihaila M, Weber P, Schneller M, Grandits L, Nimmrichter S, Juffmann T 2022 arXiv: 2203.07925 [physics. optics]
- [91] Madan I, Leccese V, Mazur A, Barantani F, La Grange T, Sapozhnik A, Gargiulo S, Rotunno E, Olaya J-C, Kaminer I, Grillo V, García de Abajo F J, Carbone F, Vanacore G M 2022 arXiv: 2206.02221 [quant-ph]
- [92] Pomarico E, Madan I, Berruto G, Vanacore G M, Wang K, Kaminer I, García de Abajo F J, Carbone F 2017 *ACS Photonics* **5** 759
- [93] Dahan R, Baranes G, Gorlach A, Ruimy R, Rivera N, Kaminer I 2022 arXiv: 2206.08828 [quant-ph]
- [94] Ramsey N F 1950 *Phys. Rev.* **78** 695
- [95] Piazza L, Lummen T T, Quinonez E, Murooka Y, Reed B W, Barwick B, Carbone F 2015 *Nat. Commun.* **6** 6407
- [96] Yurtsever A, Baskin J S, Zewail A H 2012 *Nano Lett.* **12** 5027
- [97] Yurtsever A, Veen R M v d, Zewail A H 2012 *Science* **335** 59
- [98] Park S T, Yurtsever A, Baskin J S, Zewail A H 2013 *Proc. Natl. Acad. Sci. U. S. A.* **110** 9277
- [99] Schreiber A, Cassemiro K N, Potoček V, Gábris A, Jex I, Silberhorn C 2011 *Phys. Rev. Lett.* **106** 180403
- [100] Broome M A, Fedrizzi A, Lanyon B P, Kassar I, Aspuru-Guzik A, White A G 2010 *Phys. Rev. Lett.* **104** 153602
- [101] Harris N C, Steinbrecher G R, Prabhu M, et al. 2017 *Nat. Photonics* **11** 447
- [102] Dadras S, Gresch A, Groiseau C, Wimberger S, Summy G S 2018 *Phys. Rev. Lett.* **121** 070402
- [103] Karski M, Förster L, Choi J M, Steffen A, Alt W, Meschede D, Widera A 2009 *Science* **325** 174
- [104] Hong C K, Ou Z Y, Mandel L 1987 *Phys. Rev. Lett.* **59** 2044
- [105] Leonhardt U, Knight P L, Miller A 1997 *Measuring the Quantum State of Light* (Cambridge: Cambridge University Press)
- [106] Lvovsky A I, Raymer M G 2009 *Rev. Mod. Phys.* **81** 299
- [107] Asban S, García de Abajo F J 2021 *npj Quantum Inf.* **7** 42
- [108] Mutzafi M, Kaminer I, Harari G, Segev M 2017 *Nat. Commun.* **8** 650
- [109] Dikopoltsev A, Sharabi Y, Lyubarov M, Lumer Y, Tsesses S, Lustig E, Kaminer I, Segev M 2022 *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.* **119** 6 e21197051
- [110] Feist J, Fernández-Domínguez A I, García-Vidal F J 2020 *Nanophotonics* **10** 477
- [111] Konecna A, de Abajo F J G 2020 *Phys. Rev. Lett.* **125** 030801
- [112] Schlawin F, Cavalleri A, Jaksch D 2019 *Phys. Rev. Lett.* **122** 133602
- [113] Turner A E, Johnson C W, Kruit P, McMorrnan B J 2021 *Phys. Rev. Lett.* **127** 110401
- [114] Shiloh R, Chlouba T, Hommelhoff P 2022 *Phys. Rev. Lett.* **128** 235301

- [115] Tsesses S, Dahan R, Wang K, Reinhardt O, Bartal G, Kaminer I 2022 arXiv: 2203.08518 [quant-ph]
- [116] Cox J D, Garcia de Abajo F J 2020 *Nano Lett.* **20** 4792
- [117] Konečná A, Di Giulio V, Mkhitarian V, Ropers C, García de Abajo F J 2020 *ACS Photonics* **7** 1290
- [118] Talebi N 2020 *Phys. Rev. Lett.* **125** 080401
- [119] Luski A, Segev Y, David R, et al. 2021 *Science* **373** 1105
- [120] Akbari K, Di Giulio V, García de Abajo F J 2022 arXiv: 2203.07257 [physics. optics]

SPECIAL TOPIC—Attosecond physics

Relativistic free electrons based quantum physics*Li Jing Liu Yun-Quan[†]

(State Key Laboratory for Mesoscopic Physics and Collaborative Innovation Center of Quantum Matter,
School of Physics, Peking University, Beijing 100871, China)

(Received 30 June 2022; revised manuscript received 18 July 2022)

Abstract

The light-matter interaction is one of the fundamental research fields in physics. The electron is the first discovered elementary particle that makes up matter. Therefore, the interaction between electron and light field has long been the research interest of physicists. Electrons are divided into two kinds, i.e. bounded electrons and free electrons. The quantum transition of bounded electron system is constrained by the selection rules with the discrete energy levels, while the free electron systems are not. In the last decade, the experiments of photon-induced near-field electron microscopy (PINEM) have been demonstrated. The experimental setup of PINEM is based on ultrafast electron transmission microscopy (UTEM). The theoretical frameworks have also been developed to describe the interaction between quantum free electrons and optical fields. Within macroscopic quantum electrodynamics, the concept of photon is extended to photonic quasi-particles. Solutions of Maxwell's equations in medium that satisfy certain boundary conditions are called photonic quasiparticles, such as surface plasmon polaritons, phonon polaritons, or even magnetic field. The different dispersion relations of photonic quasi-particles produce abundant phenomena in the interaction between light and matter. The underlying information about the PINEM interaction can be inferred from the electron energy loss spectrum (EELS). It has been used for implementing the near-field imaging in its infancy. By now it is capable of not only realizing time-resolved dynamic imaging, reconstructing the dispersion relation of photonic crystal and its Bloch mode, but also measuring the mode lifetime directly. The PINEM has also been used to study free electron wavepacket reshaping, free electron comb, free electron attosecond pulse train, etc. Recently, this field has entered into the era of quantum optics, and people use PINEM to study novel phenomena in quantum optics, such as entanglement between free electrons and cavity photons, entanglement between free electrons and free electrons, free electron qubits, and preparation of novel light quantum states. In this paper, the theoretical and experimental development of free-electron quantum physics are reviewed. We have discussed the application scenarios of quantum free electron system. The current difficulties and future development are envisaged.

Keywords: photon-induced near field electron microscopy, free electron, quantum optics, time-resolved imaging

PACS: 42.50.Hz, 03.65.-w, 41.75.Fr, 42.50.-p

DOI: 10.7498/aps.71.20221289

* Project supported by the Key R&D Program of China (Grant No. 2022YFA1604301) and the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 92050201, 92250306).

[†] Corresponding author. E-mail: yunquan.liu@pku.edu.cn



基于相对论自由电子的量子物理

李靖 刘运全

Relativistic free electrons based quantum physics

Li Jing Liu Yun-Quan

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 71, 233302 (2022) DOI: 10.7498/aps.71.20221289

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.71.20221289>

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

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

新型超导量子比特及量子物理问题的研究

Novel superconducting qubits and quantum physics

物理学报. 2018, 67(22): 228501 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180845>

一维超导传输线腔晶格中的拓扑相变和拓扑量子态的调制

Modulation of topological phase transitions and topological quantum states in one-dimensional superconducting transmission line cavities lattice

物理学报. 2022, 71(19): 194203 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220675>

基于可调频光力晶格中声子-光子拓扑性质的模拟和探测

Simulation and detection of the topological properties of phonon-photon in frequency-tunable optomechanical lattice

物理学报. 2022, 71(22): 224202 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20221286>

连续变量纠缠态光场在光纤中传输特性的实验研究

Experimental investigation of transmission characteristics of continuous variable entangled state over optical fibers

物理学报. 2018, 67(2): 024203 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20171542>

音频段1.34 μm 压缩态光场的实验制备

Generation of audio-band frequency squeezed light at 1.34 μm

物理学报. 2018, 67(17): 174203 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180301>

基于深紫外激光-光发射电子显微技术的高分辨率磁畴成像

High resolution imaging based on photo-emission electron microscopy excited by deep ultraviolet laser

物理学报. 2020, 69(9): 096801 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200083>