



阿秒电子显微技术

张曼玉^{1,2,3}, 赵立功^{1,2}, 惠丹丹^{1,2*}, 付玉喜^{1,2*}

1. 中国科学院西安光学精密机械研究所, 超快光科学与技术重点实验室, 西安 710000;

2. 中国科学院西安光学精密机械研究所, 阿秒科学与技术研究中心, 西安 710000;

3. 中国科学院大学, 北京 100049

*联系人, 惠丹丹, E-mail: huidandan@opt.ac.cn; 付玉喜, E-mail: fuyuxi@opt.ac.cn

收稿日期: 2024-09-24; 接受日期: 2024-11-07; 网络出版日期: 2024-12-06

国家自然科学基金面上项目(编号: 12474320)、中国科学院稳定支持基础研究领域青年团队计划(编号: YSBR-091)和西安光机所自主部署重大项目(编号: S19-020-III)资助

摘要 为了实现对物质内部微观粒子运动过程的直接可视化, 研究人员不断探索具有更高时间与空间分辨率的新实验方法与技术. 阿秒电子显微技术结合超短光脉冲与电子脉冲, 基于泵浦-探测方案, 旨在同时提供阿秒时间分辨率与原子级空间分辨率, 从而为深入理解物质微观机理和动力学规律提供关键实验参数和技术手段, 进而实现物质宏观属性与微观底层运动的有效融合. 阿秒电子显微技术自诞生之日起便成为国际上的研究热点, 本文将简要介绍超快电子显微镜、阿秒电子脉冲的产生及阿秒电子显微技术的前沿研究进展.

关键词 光场选通, 阿秒电子脉冲, 超快电子显微镜, 阿秒电子显微镜

PACS: 61.05.J-, 41.75.Jv, 87.15.ht

1 引言

显微镜是人类探索微观世界必不可少的一种技术手段, 包括光学显微镜、超分辨荧光显微镜、扫描电子显微镜以及透射电子显微镜等. 其中, 透射电子显微镜(Transmission Electron Microscope, TEM)是最强大的成像仪器之一^[1], 它的工作原理与光学显微镜类似, 但区别在于TEM不是使用光, 而是采用加速后的电子束, 当电子能量较大时, 其波长远小于可见光波, 比如能量为100 keV的电子, 波长仅为3.7 pm, 根据阿贝衍射极限定理^[2], 利用更短波长的电子束做光源可

以提供远高于光学显微镜的分辨率. 目前, 随着探测相机的不断发展与优化, 结合球差色差校正技术, 高分辨TEM可以实现清晰的原子级分辨成像^[3], 广泛应用于材料、生物、化学、物理、医学等各个科学领域, 同时也在前沿基础科学的创新性发展中发挥着重要的作用. 然而, 物质的微观结构大都处于动态演化过程中, 例如, 分子的转动发生在皮秒量级时间尺度($1\text{ ps}=10^{-12}\text{ s}$)^[4], 原子的振动则发生在更快的飞秒量级时间尺度($1\text{ fs}=10^{-15}\text{ s}$)^[5-7], 而原子内部电子的运动则达到了人类目前可探测的最高时间分辨——阿秒量级时间尺度($1\text{ as}=10^{-18}\text{ s}$)^[8], 这些动态过程的探测都属于

引用格式: 张曼玉, 赵立功, 惠丹丹, 等. 阿秒电子显微技术. 中国科学: 物理学 力学 天文学, 2025, 55: 214211

Zhang M Y, Zhao L G, Hui D D, et al. Attosecond electron microscopy (in Chinese). Sci Sin-Phys Mech Astron, 2025, 55: 214211, doi: [10.1360/SSPMA-2024-0405](https://doi.org/10.1360/SSPMA-2024-0405)

超快科学的范畴. 超快科学研究的物理过程通常是指在纳秒(ns)以下的动力学过程^[9]. 如果探测时间分辨能力不够, 各种超快运动过程被重叠在一起, 并不能完全展现微观结构的真实形貌和演化过程. 而TEM的时间分辨率主要取决于探测相机的记录速率, 传统CCD或CMOS探测速率在毫秒量级, 目前新型的直接电子探测相机帧频可以达到纳秒量级^[10], 但依旧无法分辨分子、原子、电子尺度的动力学过程.

2 超快电子显微镜

为了进一步提高时间分辨率, 2000年左右, Bostanjoglo等人^[11]将超短激光脉冲引入TEM, 最早提出了单发模式的超快电子显微镜(Ultrafast Electron Microscope, UEM)方案, 后也被称为动态电子显微镜(Dynamic Transmission Electron Microscope, DTEM), 其采用泵浦-探针(Pump-Probe)的方案克服了TEM的时间分辨限制. 单发UEM^[11,12]是利用一束超快光脉冲作为泵浦光激发样品动力学过程, 用另一束超快光脉冲激发阴极产生超短电子脉冲作为探针记录不同时间延迟下的动力学图像, 其时间分辨率不再取决于相机速率, 而是由超短电子脉冲、激发样品的泵浦光脉冲以及二者之间的时间同步等因素决定. 此处“单发”是指单个电子脉冲中就包含了足够多的电子以形成一幅完整的图像(一般 10^8 电子/脉冲), 单发模式的UEM为了获得较多的电子数, 需要采用更大的阴极源, 所以空间相干性变差, 此外电子间库仑排斥作用严重, 时空分辨率

限制在纳秒-纳米量级. 随后, “飞秒化学之父”哈迈德·泽维尔(Ahmed H. Zewail)^[13]将高重频飞秒激光引入TEM, 进一步发展了频闪式UEM技术, 将UEM的时间分辨率推进到亚皮秒量级. 图1(a)为典型的UEM装置示意图. 在“频闪”模式下, 每个电子脉冲中仅包含单个甚至更少的电子, 通过累积多个脉冲后实现一幅完整的图像采集. 频闪模式UEM的优点是每个脉冲包含极少量的电子数目, 一方面有效避免了电子间的库仑排斥作用, 另一方面可以采用更小的阴极, 对电子束空间相干性的影响减小, 但频闪UEM需要累积多个脉冲, 所以采集图像时间较长, 对系统稳定性要求很高. 相对于单发UEM, 频闪UEM可以实现更高的时空分辨率, 因此, 受到了更多的关注, 经过多年的发展, 目前典型的频闪式UEM可以实现百飞秒级的时间分辨率^[14-18].

虽然UEM技术显著提高了显微成像的时间分辨率, 但电子间存在空间电荷效应(单发或多电子模式下)、长积分时间下系统稳定性影响(频闪单电子模式下), 以及光发射电子能量弥散更大等因素, 导致UEM的空间分辨率相比于TEM严重降低. 此外, 要获得样品被激发后一系列不同时刻下的动态演化图像, 需要多次改变泵浦与探针的延时重复实验, 这种方案无法观测不可逆的动力学过程. 为此, 研究人员提出其他方案以改善UEM的时空分辨率、扩展样品探测模式等. 图1(b)和(c)分别为电影模式动态电子显微镜(Movie-Mode Dynamic Transmission Electron Microscope, MM-DTEM)^[19]与引入射频偏转腔的无激光超快电子显微镜(RF Cavity Based Laser-Free UEM)^[20].

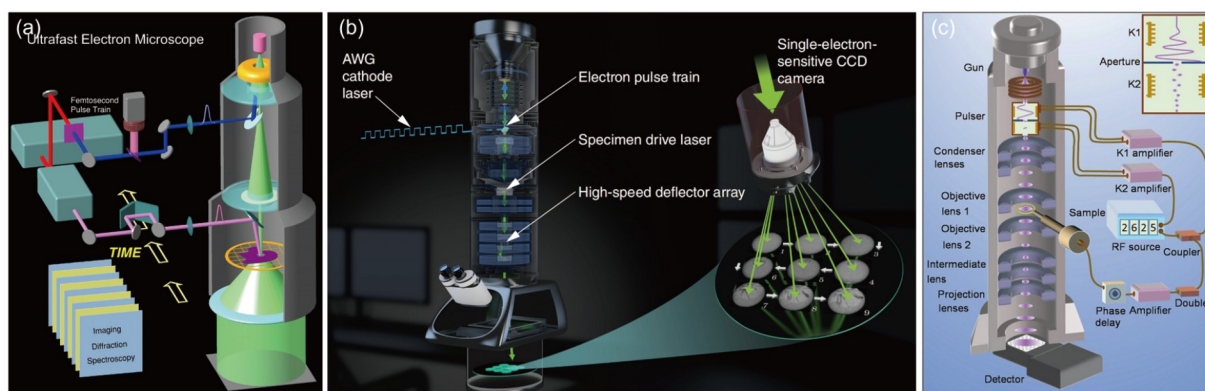


图 1 (网络版彩图)不同方案的超快电子显微镜. (a) 典型的UEM^[13], Copyright©2005, National Academy of Sciences, USA; (b) 电影模式的动态TEM^[19]; (c) 基于RF偏转腔的无激光UEM^[20]

Figure 1 (Color online) Various types of ultrafast electron microscopy. (a) A typical UEM [13], Copyright©2005, National Academy of Sciences, USA; (b) a Movie-Mode Dynamic TEM [19]; (c) a RF Cavity Based Laser-Free UEM [20].

MM-DTEM(图1(b))是基于单发模式UEM发展的一种新方案,其原理是基于任意波形发生器的激光器(AWG Laser)产生激光脉冲序列并激发电阴极产生一串电子脉冲,在电子穿过样品后使用偏转器将每个电子脉冲偏转到相机的不同位置,通过优化设置偏转板电压,该方案可在一次采集中收集多达16–25帧图像. MM-DTEM在一个泵浦光脉冲激发下就可以采集到样品瞬态变化过程的多幅图像,这对于不可逆动力学过程的探测具有重要意义. 但MM-DTEM每发脉冲中电子数都要达到 10^8 量级才能采集一幅高质量的图像,所以存在与DTEM相同的电子光学问题,即空间相干性差、空间电荷效应影响严重等,时空分辨率依旧限制在纳秒-纳米量级.

基于RF偏转腔的无激光UEM(图1(c))其突出优势在于无需激光器,直接采用TEM的直流电子源,随后利用两个RF偏转腔和小孔组成的脉冲发生器调制和斩切输入的直流电子束,将其转换为一定重复频率的皮秒或亚皮秒电子脉冲序列. 该方案无需强大的激光器,同时保留了传统透射电子显微镜的高相干电子源的特性,可以实现更高的空间分辨率,具有很好的应用前景,据悉,美国赛默飞世尔科技公司已经将该类UEM商业化,但时间分辨率限制在纳秒量级. 此外,该方案对射频腔的稳定性以及与激光的同步性要求较高. 埃因霍温理工大学的Luiten等人^[21–23],密歇根州立大学的Williams等人^[24]和Sun等人^[25]分别基于RF腔开展了高重频超快透射电子显微镜的相关研究,实现了百飞秒左右的时间分辨率和极高的重复频率.

UEM结合了超快激光、电子显微技术、电子光学、超快动力学等多个学科,可谓是一种跨越学科界限的工具,它提供了一种超高时空分辨下研究原子和分子系统及其超快运动过程的有效方案,在化学、物理、材料科学和生物学等多个领域都有着重要的应用. 近年来,多个课题组不断努力提高UEM时间分辨率,引入了PINEM技术^[26]、THz压缩技术^[27]、额外设置参考样品^[28]以及阿秒光脉冲^[29]等,以实现阿秒级时间分辨率,从而为物质内电子运动过程的探测提供崭新的技术手段(关于阿秒电子显微镜将在第4节详细介绍).

3 阿秒电子脉冲的发展

阿秒电子脉冲的产生是实现阿秒电子显微镜的前

提. 多年来,研究人员不断尝试产生更短的电子脉冲,并取得了一定成果. 本节主要介绍阿秒电子脉冲的发展. 基于泵浦-探测的超快电子探测技术中,泵浦光脉冲与探测电子脉冲的脉宽对探测时间分辨率起着决定性作用. 图2为超短电子脉冲宽度的发展. 自1984年Williamson等人^[30]首次利用激光诱导光电阴极发射电子技术产生了脉宽20 ps的电子脉冲以来,研究人员提出了多种方案来缩短电子束脉宽,例如,通过射频腔^[31]或太赫兹波导技术^[32,33]调制电子速度,使早到的电子减速、晚到的电子加速,从而实现电子脉冲的时间压缩;采用由反向弯转磁铁^[34,35]组成的消色差压缩器来改变不同能量的电子传播路径,从而补偿能量弥散,压缩电子脉宽;提高电子能量到相对论领域^[36,37],减弱空间电荷效应导致的脉冲展宽;以及设计超紧凑型结构^[38,39],缩短电子传播长度,减小空间电荷效应和能量弥散导致的脉冲展宽等. 这些方案都有效地压缩了电子脉冲,但仍然由于电子存在的空间电荷效应、时间抖动、同步稳定性及其他技术因素等影响,超短电子脉冲多年来难以突破10 fs的限制. 考虑到超快电子脉宽、激光脉宽、速度失配等时间分辨率影响因素,目前一般可以长期稳定工作的超快电子衍射仪时间分辨率限制在50 fs左右^[34].

为了进一步提高超快电子成像技术的时间分辨率,突破亚飞秒电子脉宽的瓶颈,多个研究团队提出并尝试了多种新型方案,目前阿秒电子脉冲的产生方法主要有两个方向,一是直接产生孤立阿秒电子脉冲,二是产生阿秒电子脉冲串.

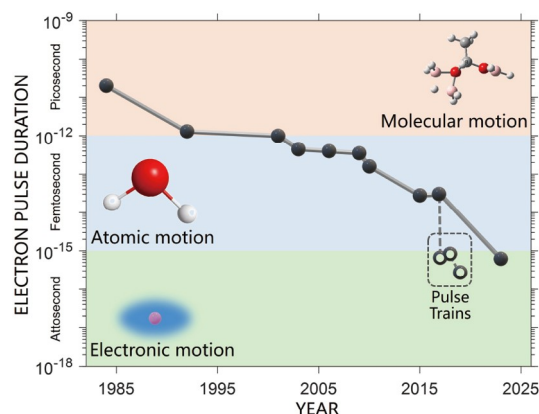


图2 (网络版彩图)超短电子脉冲宽度的发展

Figure 2 (Color online) Development of the ultrafast electron pulse duration.

在直接产生孤立阿秒电子脉冲的方向, 研究人员提出了有质动力势的纵向和横向调制相结合^[40]、单周期场调制结合横向偏转扫描^[41], 以及前面提到的阿秒光场选通法^[26]等. 目前, 实验中成功实现孤立阿秒电子脉冲产生的是基于阿秒光场选通技术, 即光学近场与电子相互作用来产生孤立阿秒电子脉冲的方案. 该方法是基于非弹性电光散射(Inelastic Electron-Light Scattering, IELS)的原理, 当超快电子脉冲与纳米结构表面的光诱导倏逝光场之间相互作用时, 产生非弹性散射, 从而使电子获得或失去多个光子能量, 通过能量分析仪可将增益或损耗能量的电子筛选出, 这种相互作用只发生在电子与激光脉冲时空重叠的情况下. 因此, 经过能量调制的电子与光脉冲具有相同的时间分布, 且本质上与之重叠, 通过采用孤立阿秒光脉冲对电子进行选通作用, 则可以实现孤立阿秒电子脉冲的产生. 基于有质动力技术, 2019年, Kozák^[40]通过理论计算证明了采用三束激光脉冲形成的两个不同频率的光行波与电子束相互作用, 可以实现对电子束纵向动量的高频调制和横向动量的低频调制, 当每个子脉冲电子束在横向移动距离大于束斑直径, 就可以在横向上将电子束分开, 得到孤立阿秒电子脉冲, 计算结果表明可以实现90 as的孤立电子脉冲, 但该方案目前仅停留在理论计算. 2020年, Morimoto和Baum^[41]提出利用单周期光场调制结合横向偏转扫描产生孤立阿秒电子脉冲的方法, 首先第一束单周期光场纵向调制电子脉冲获得一个脉宽在阿秒量级的子脉冲, 再用另一束光脉冲对电子进行横向偏转, 分离出阿秒电子脉冲, 不过该方案在实验中尚未实现孤立阿秒电子脉冲的产生.

在产生阿秒电子脉冲串的方向, 近年来, 多个课题组利用几十飞秒驱动激光脉冲产生了一系列阿秒电子脉冲“串”. 主要方法包括有质动力压缩^[42]、光诱导纳米材料近场能量调制^[43,44]、激光驱动微结构的能量调制^[45-47]、逆自由电子激光相互作用^[48]等. 但都限于产生阿秒电子脉冲“串”, 并没有成功分离出单个孤立阿秒电子脉冲. 而阿秒电子脉冲串只能用于研究少数在每个光周期循环可逆的过程, 例如, 激光驱动的带间/带内布洛赫振荡、样品的光场响应、高次谐波产生等, 而对于所有非周期重复的电子动力学过程将无法分辨, 每个子脉冲获得的图像将会被堆叠起来, 形成一个动态过程的平均图像, 其时间分辨率仍然取决

于电子脉冲串的整体包络脉宽. 此外, 对于大部分在阿秒脉冲串多次泵浦后易损伤的样品也只能采用“孤立”的阿秒脉冲.

4 阿秒电子显微镜

阿秒电子显微镜是目前最具前景的兼具超高时间与空间分辨的探测技术方案, 有望实现在原子、电子本征时空尺度上的微观动力学实时、实空间观测, 为基础研究的原始创新突破提供有效支撑. 目前基于孤立阿秒电子脉冲与阿秒电子脉冲串的阿秒电子显微镜都取得了重要突破. 主要的代表研究单位有: 美国亚利桑那大学Mohammed Hassan阿秒显微组、德国康斯坦茨大学Peter Baum课题组、德国Erlangen-Nürnberg大学Peter Hommelhoff课题组, 以及哥廷根大学和马普生物物理化学研究所的Claus Ropers课题组.

美国亚利桑那大学Mohammed Hassan阿秒显微组专注于研究孤立阿秒光/电子脉冲的产生及其应用, 特别是阿秒电子显微成像领域. 他们致力于开发光场选通型阿秒电子显微镜技术, 能够以极高的时间分辨率捕捉到物质内部电子的运动. 2024年, Hui等人^[26]将偏振选通法产生的孤立阿秒光脉冲与阿秒光场选通法结合获得了偏振门控法的阿秒电子显微成像, 实现了孤立阿秒电子脉冲的产生, 并采用电子衍射技术开展了基于石墨烯的阿秒电子动力学过程的研究, 结合量子力学计算实现了阿秒时间尺度与原子空间尺度的电子动力学过程解析(图3(a)-(c)), 不过由于超快电子源空间相干性较差的因素, 实空间的分辨率仍然有限.

德国康斯坦茨大学Peter Baum课题组专注于阿秒脉冲序列的产生及太赫兹驱动电子加速与偏转的研究. 2023年5月, Nabben等人^[29]发表的成果是将连续激光与透射电子显微镜结合, 将连续电子束调制成阿秒量级的超短电子脉冲序列, 探测了材料在光激发下的电磁近场响应(图3(d)和(e)). 该方案采用的是TEM原有的连续型电子源, 保持了电子束的空间相干性, 因此保留了TEM的较高空间分辨率, 但由于所产生的阿秒脉冲并非孤立的, 只能研究在每个光学周期重复的动力学过程, 而且其时间分辨本质上仅是由两束光脉冲的延时, 在原子尺度阿秒电子动力学探测的实际应用中受到了很多限制. 2024年, 该组Kuttruff等人^[27]最新报告了UEM中通过激光产生的太赫兹脉冲在单个

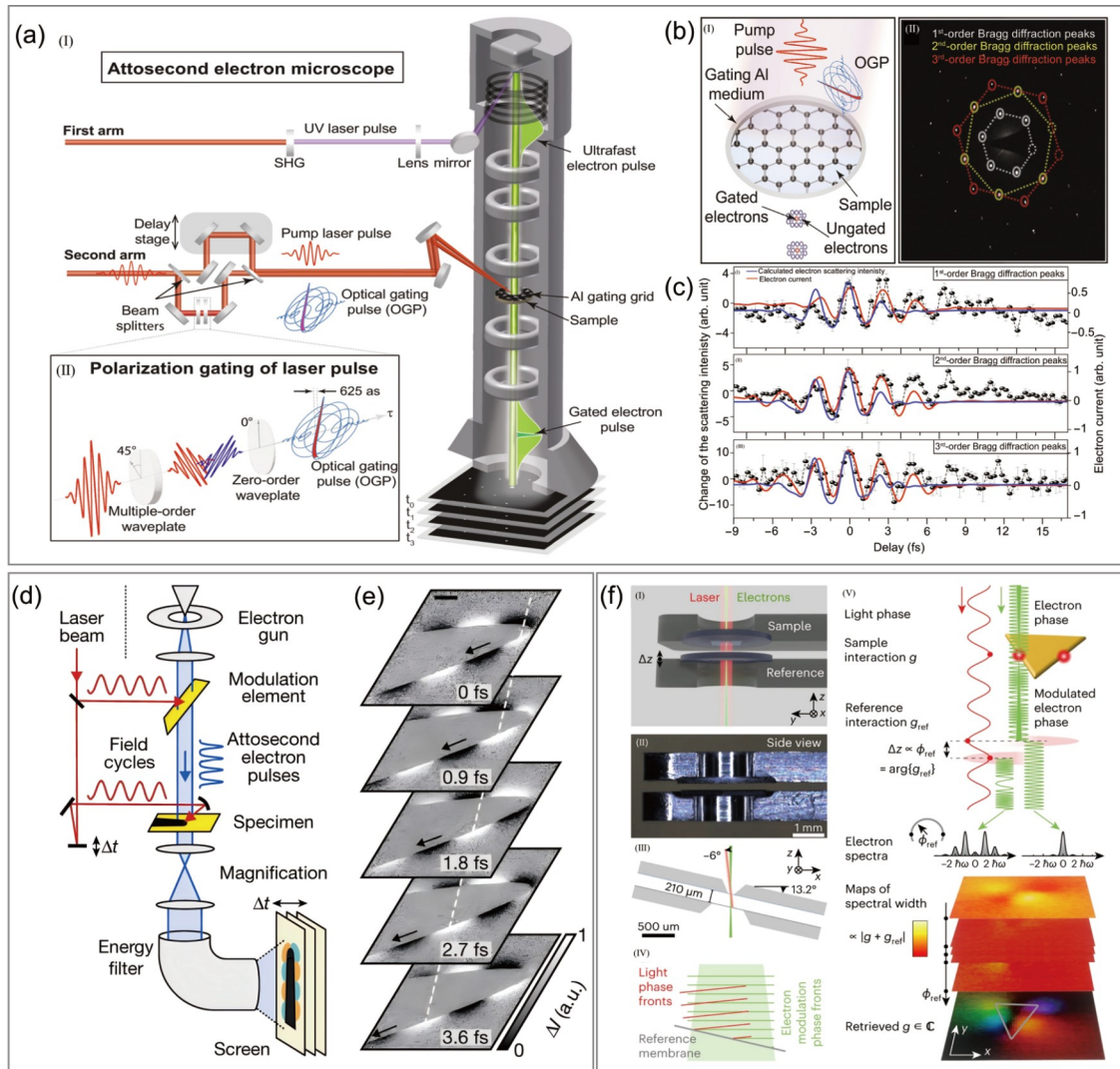


图 3 (网络版彩图)阿秒电子显微镜. (a) (I) 阿秒电子显微镜装置, (II) 偏振门控法产生阿秒光脉冲^[26]. (b) (I) 在石墨烯样品上的电子和激光脉冲相互作用示意图, (II) 实验测量的多层石墨烯样品衍射图案^[26]. (c) 石墨烯的阿秒电子衍射实验、计算结果^[26]. (d) 连续光场与透射电子显微镜装置的结合^[29]. (e) 在激发光的一个光学周期内测量样品对光场响应的图像^[29]. (f) 自由电子的零差检测(FREHD)装置原理示意图^[28]. (I) 聚焦电子束和同向传播激光束穿过样品和参考样品的示意图, (II) 压电控制支架的侧视图, (III) 实验配置的几何形状, (IV) 激光和调制电子波函数的相位前沿在参考膜处匹配, (V) 顶部: 纳米结构(此处为等离子体纳米棱镜)处受激非弹性散射导致量子相干电子相位调制, 底部: 通过光栅扫描测量总相位调制的幅度, 记录每个平面位置和一组参考相位的动能谱

Figure 3 (Color online) Attosecond electron microscopy. (a) (I) The attosecond electron microscopy setup, (II) the method of generating attosecond laser pulse combining the polarization-gating scheme^[26]. (b) (I) Schematic of the interaction between electrons and laser pulse on a graphene film, (II) the measured diffraction pattern of a multilayer graphene sample^[26]. (c) Attosecond electron diffraction experiments and calculations for the graphene^[26]. (d) The combination of a continuous optical field with a transmission electron microscope^[29]. (e) Measured images for the sample's response to the optical field within one cycle^[29]. (f) Schematic illustration of the principle of the FREHD^[28]. (I) Schematic of the focused electron beam and the co-propagating laser beam passing through the sample and the reference sample, (II) side view of the piezoelectric-controlled holder, (III) the geometry of the experimental configuration, (IV) matching of the phase fronts of the laser and the modulated electron wavefunction at the reference membrane, (V) top: quantum coherent electron phase modulation caused by stimulated inelastic scattering at the nanostructure (here, a plasmonic nanoprism); bottom: the amplitude of the total phase modulation is measured by raster scanning, and the kinetic energy spectrum is recorded for each plane position and a set of reference phases.

光学周期内对电子脉冲进行全光学控制、压缩和表征, 提供了小于20 fs的孤立电子脉冲.

德国Erlangen-Nürnberg大学Peter Hommelhoff课题组主要集中对量子增强电子显微镜、有质动力势、

强场物理进行研究. Schönerberger等人^[45]于2019年使用电介质激光加速(Dielectric Laser Acceleration, DLA)方法, 实验获得了脉宽为 (270 ± 80) as的电子脉冲串. 该技术进步对于未来开发紧凑型电子源及超快电子显微镜具有重要意义. 2024年, 该团队与以色列希伯来大学Chlouba等人^[49]合作, 报道了一种通过微型纳米光子结构来实现电子加速的新方案, 该结构能够在 $500 \mu\text{m}$ 长、 225 nm 宽的通道内实现电子的纵向加速与横向约束, 并且能够把初始动能为 28.4 keV 的电子加速到 40.7 keV , 电子动能增加了43%. 片上粒子加速器将极大提高结构紧凑性, 未来如果可以集成并实现超高时空分辨的超快电子成像, 将在医学、工业、材料研究和前沿科学领域实现变革性应用.

以色列理工学院Ido Kaminer课题组主要关注于量子光学和纳米光子学的研究, 特别是在基于超快电子显微镜开展光子-电子的量子相互作用方面有深入的研究. 2020年, Reinhardt和Kaminer^[50]揭示了自由电子与激光脉冲之间的量子相互作用的内在守恒定律, 并理论提出通过对激光脉冲的振幅和相位进行特别设计可以实现对自由电子波包、能谱以及阿秒电子脉冲等的整形与优化. Kaminer课题组^[51]与Tsarev等人^[52]分别提出利用自由电子与光子的相互作用来使得自由电子成为量子信息的载体, 理论展示了如何在自由电子上创建量子比特的不同方法. 这两个概念的提出为基于自由电子-光子相互作用来研究量子信息处理迈出了重要的一步, 激励了对结合自由电子的新量子现象和先进量子技术的进一步探索. 2023年, Bucher等人^[53]利用自由电子的Ramsey型干涉技术来增强近场的幅度和相位成像. 通过干涉效应, 增加图像对比度, 从而使得细微结构更加明显, 有助于提高空间分辨率.

哥廷根大学和马普生物物理化学研究所的Claus Ropers课题组主要研究固体、纳米结构和表面中的超快电子和结构动力学以及阿秒电子脉冲序列的产生. 该课题组将光学零差检测方案引入超快电子显微镜(图3(f)), 实现了自由电子的零差检测(Free-electron Homodyne Detection, FREHD)^[28]. FREHD通过引入参考样品, 可以探测样品在光场激发下的相位信息, 为解决电子显微技术中长期以来困扰的相位缺失问题提供了新的思路.

这些突破无疑都将对光与物质相互作用的基础理

论研究有重要的推动作用, 在近场光学、无源和有源超材料、光子集成、光化学等领域有很好的应用潜力. 基于阿秒电子显微镜的研究近年来发展迅猛, 涌现出大量的新成果、新突破, 甚至已经与量子光学、量子调控相结合, 提供了一个探索自由电子量子光学的通用平台, 为光子与电子相互作用提供了新的思路和途径, 在强耦合、局域量子探测和电子-光子纠缠方面具有广阔的应用前景.

5 总结及展望

UEM在过去多年的发展里, 时空分辨率不断提高、成像模式趋于多样化、技术方案不断改进创新, 可同时实现超高的时间与空间分辨率, 在物理、化学、材料和信息科学方面取得了许多重大新发现. 然而飞秒量级的时间分辨能力限制其仅可以观测原子、晶格等动力学过程, 无法研究在阿秒时间尺度的电子运动过程, 而阿秒电子显微镜的出现则进一步将动力学探测推进到电子尺度, 在多个领域具有广泛的应用前景, 将带来更多的原始创新突破.

例如, 在信息科学领域, 阿秒电子显微技术可用于探测新型二维材料器件或光波电子学器件的电子-空穴对的激发和输运机制以及光场对电子各内禀自由度的影响, 为发展新型信息处理技术提供关键技术支撑, 有效推动下一代光电器件的创新性发展. 在凝聚态物理领域, 高温超导体中电子配对的物理机制一直是研究热点和难点. 实验上, 在高温超导电子配对中关于电子是直接与声子耦合还是通过与其他集体振动模式耦合尚不清楚, 尽管能量最终是以热能的形式传递给晶格, 而材料内部真实的超快时间尺度的电子和晶体结构变化, 尤其是与电子-声子相互作用有关的对称性和方向性结构畸变以及阿秒量级的电子态分布变化仍是未解之谜. 阿秒电子成像技术的超高时空分辨率有望实时观察物质内部原子和电子运动过程, 是研究强关联电子材料精细结构的有效工具, 可为厘清高温超导体中电子配对的物理机制提供实验上的依据和参考. 通过对不同配对机制的理解, 结合电子光场调控, 以期拓展超导温度甚至探索室温超导, 这势必大大推动超导技术的实用化进程^[54]. 在生物医学领域, 超快电荷迁移、转移过程在DNA生物信号传递、蛋白质结构变化等生物学机制中起到重要作用, 但受限与现

有技术时空分辨率, 一直无法观测微观电子运动过程, 而阿秒电子显微技术有望实现在原子、电子本征时空尺度上观测导致生物分子病变、DNA损伤的内在电子动力学过程, 这无疑将为癌症、阿尔茨海默病等世界共性难题的解决提供指导, 将为人类疾病预防和治疗等带来重大突破. 另外, 还有许多基础科学和前沿应用领域的问题, 都需要阿秒电子显微技术对原子和电子的动态演化同时进行高时空分辨测量(阿秒时间精度与皮米空间精度).

目前, 阿秒电子显微镜虽然成功获得了阿秒级的时间分辨率, 但空间分辨率仍然受限, 无法突破亚纳米量级, 只能通过电子衍射以及结合计算来间接探测电子的实空间运动过程. 因此, 进一步提高阿秒电子显微镜的空间分辨率将成为后续主要努力的方向. 近年来, 机器学习、叠层成像技术方向发展迅速, 如

果可以将阿秒电子显微技术与这些新兴技术结合, 再配以高速低噪声的直接电子探测器, 也许可为突破阿秒电子显微镜的空间分辨率提供新的思路. 基于光场调控场发射直流电子源的连续型阿秒电子脉冲序列, 保留了TEM电子源的高相干性, 可以实现较高空间分辨率, 如果可以解决电子脉冲在时域的分离问题, 则可同时实现超高时间与空间分辨的阿秒电子显微镜. 此外, 阿秒电子显微镜也将继续不断突破时间分辨率, 并与其他成像模式相融合以扩展更多可能性, 最终实现真正在原子、电子本征时空尺度上的超高分辨探测技术, 获得对原子-亚原子微观世界中的极端超快动力学过程的全面探测、解析与操控, 为推动基础物理、新型光电子器件、超快化学、生物安全、量子科学、清洁能源等重要科技前沿领域的高速发展提供有效的技术支撑.

参考文献

- 1 Yücelen E, Lazić I, Bosch E G T. Phase contrast scanning transmission electron microscopy imaging of light and heavy atoms at the limit of contrast and resolution. *Sci Rep*, 2018, 8: 2676
- 2 Abbe E. Beiträge zur theorie des mikroskops und der mikroskopischen wahrnehmung. *Archiv Für Mikrosk Anatomie*, 1873, 9: 413–468
- 3 Biran I, Houben L, Weissman H, et al. Real-space crystal structure analysis by low-dose focal-series TEM imaging of organic materials with near-atomic resolution. *Adv Mater*, 2022, 34: 2202088
- 4 Karamatskos E T, Raabe S, Mullins T, et al. Molecular movie of ultrafast coherent rotational dynamics of OCS. *Nat Commun*, 2019, 10: 3364
- 5 Dantus M, Bowman R M, Zewail A H. Femtosecond laser observations of molecular vibration and rotation. *Nature*, 1990, 343: 737–739
- 6 Feenstra K A, Hess B, Berendsen H J C. Improving efficiency of large time-scale molecular dynamics simulations of hydrogen-rich systems. *J Comput Chem*, 1999, 20: 786–798
- 7 Olesen K, Awasthi N, Bruhn D S, et al. Faster simulations with a 5 fs time step for lipids in the CHARMM force field. *J Chem Theor Comput*, 2018, 14: 3342–3350
- 8 Ramasesha K, Leone S R, Neumark D M. Real-time probing of electron dynamics using attosecond time-resolved spectroscopy. *Annu Rev Phys Chem*, 2016, 67: 41–63
- 9 Hao W J, Zhai Y N, Dai Z J, et al. Ultrafast condensed matter physics: Classification of excited state electrons and nonequilibrium states (in Chinese). *Chin Sci Bull*, 2024, 69: 3177–3184 [郝文杰, 翟燕妮, 代卓君, 等. 超快凝聚态物理中激发态电子分类及其非平衡态. 科学通报, 2024, 69: 3177–3184]
- 10 Paterson G W, Lamb R J, Ballabriga R, et al. Sub-100 nanosecond temporally resolved imaging with the Medipix3 direct electron detector. *Ultramicroscopy*, 2020, 210: 112917
- 11 Bostanjoglo O, Elschner R, Mao Z, et al. Nanosecond electron microscopes. *Ultramicroscopy*, 2000, 81: 141–147
- 12 Campbell G H, LaGrange T, Kim J S, et al. Quantifying transient states in materials with the dynamic transmission electron microscope. *J Electron Microsc*, 2010, 59: S67–S74
- 13 Lobastov V A, Srinivasan R, Zewail A H. Four-dimensional ultrafast electron microscopy. *Proc Natl Acad Sci USA*, 2005, 102: 7069–7073
- 14 Piazza L, Masiel D J, LaGrange T, et al. Design and implementation of a fs-resolved transmission electron microscope based on thermionic gun technology. *Chem Phys*, 2013, 423: 79–84
- 15 Yoo B K, Su Z, Thomas J M, et al. On the dynamical nature of the active center in a single-site photocatalyst visualized by 4D ultrafast electron microscopy. *Proc Natl Acad Sci USA*, 2016, 113: 503–508

- 16 Su Z, Baskin J S, Zhou W, et al. Ultrafast elemental and oxidation-state mapping of hematite by 4D electron microscopy. *J Am Chem Soc*, 2017, 139: 4916–4922
- 17 Fu X, Sun Z, Ji S, et al. Nanoscale-femtosecond imaging of evanescent surface plasmons on silver film by photon-induced near-field electron microscopy. *Nano Lett*, 2022, 22: 2009–2015
- 18 Zhu C, Zheng D, Wang H, et al. Development of analytical ultrafast transmission electron microscopy based on laser-driven schottky field emission. *Ultramicroscopy*, 2020, 209: 112887
- 19 Simon A J. High-speed movies at the nanoscale. *Sci Technol Rev*, 2013, October/November: 8–9
- 20 Fu X, Wang E, Zhao Y, et al. Direct visualization of electromagnetic wave dynamics by laser-free ultrafast electron microscopy. *Sci Adv*, 2020, 6: eabc3456
- 21 Van Oudheusden T, Pasmans P L E M, van der Geer S B, et al. Compression of subrelativistic space-charge-dominated electron bunches for single-shot femtosecond electron diffraction. *Phys Rev Lett*, 2010, 105: 264801
- 22 Lassise A, Mutsaers P H A, Luiten O J. Compact, low power radio frequency cavity for femtosecond electron microscopy. *Rev Sci Instrum*, 2012, 83: 043705
- 23 Franssen J G H, Luiten O J. Improving temporal resolution of ultrafast electron diffraction by eliminating arrival time jitter induced by radiofrequency bunch compression cavities. *Struct Dyn*, 2017, 4: 044026
- 24 Williams J, Zhou F, Sun T, et al. Active control of bright electron beams with RF optics for femtosecond microscopy. *Struct Dyn*, 2017, 4: 044035
- 25 Sun S, Sun X, Williams J, et al. Development of RF-compressed high-throughput femtosecond electron microscope. *Microsc Microanal*, 2020, 26: 430–433
- 26 Hui D, Alqattan H, Sennary M, et al. Attosecond electron microscopy and diffraction. *Sci Adv*, 2024, 10: eadp5805
- 27 Kuttruff J, Nabben D, Zimmermann A C, et al. Terahertz control and timing correlations in a transmission electron microscope. *Sci Adv*, 2024, 10: eadl6543
- 28 Gaida J H, Lourenço-Martins H, Sivils M, et al. Attosecond electron microscopy by free-electron homodyne detection. *Nat Photon*, 2024, 18: 509–515
- 29 Nabben D, Kuttruff J, Stolz L, et al. Attosecond electron microscopy of sub-cycle optical dynamics. *Nature*, 2023, 619: 63–67
- 30 Williamson S, Mourou G, Li J C M. Time-resolved, laser-induced phase transformation in aluminum. *MRS Proc*, 1984, 35: 87–96
- 31 Pei M J, Qi D L, Qi Y P, et al. Compressing ultrafast electron pulse by radio frequency cavity. *Chin Phys B*, 2017, 26: 044102
- 32 Zhao L, Tang H, Lu C, et al. Femtosecond relativistic electron beam with reduced timing jitter from THz driven beam compression. *Phys Rev Lett*, 2020, 124: 054802
- 33 Ying J, He X, Su D, et al. High gradient terahertz-driven ultrafast photogun. *Nat Photon*, 2024, 18: 758–765
- 34 Qi F, Ma Z, Zhao L, et al. Breaking 50 femtosecond resolution barrier in MeV ultrafast electron diffraction with a double bend achromat compressor. *Phys Rev Lett*, 2020, 124: 134803
- 35 Yang X, Wan W, Wu L, et al. Toward monochromated sub-nanometer UEM and femtosecond UED. *Sci Rep*, 2020, 10: 16171
- 36 Leedle K J, Fabian Pease R, Byer R L, et al. Laser acceleration and deflection of 96.3 keV electrons with a silicon dielectric structure. *Optica*, 2015, 2: 158–161
- 37 Tang H, Zhao L, Zhu P, et al. Stable and scalable multistage terahertz-driven particle accelerator. *Phys Rev Lett*, 2021, 127: 074801
- 38 Turnár S, Hebling J, Fülöp J A, et al. Design of a THz-driven compact relativistic electron source. *Appl Phys B*, 2021, 127: 38
- 39 Freelon B, Rohwer T, Zong A, et al. Design and construction of a compact, high-repetition-rate ultrafast electron diffraction instrument. *Rev Sci Instrum*, 2023, 94: 053305
- 40 Kozák M. All-optical scheme for generation of isolated attosecond electron pulses. *Phys Rev Lett*, 2019, 123: 203202
- 41 Morimoto Y, Baum P. Single-cycle optical control of beam electrons. *Phys Rev Lett*, 2020, 125: 193202
- 42 Kozák M, Eckstein T, Schönenberger N, et al. Inelastic ponderomotive scattering of electrons at a high-intensity optical travelling wave in vacuum. *Nat Phys*, 2018, 14: 121–125
- 43 Priebe K E, Rathje C, Yalunin S V, et al. Attosecond electron pulse trains and quantum state reconstruction in ultrafast transmission electron microscopy. *Nat Photon*, 2017, 11: 793–797
- 44 Morimoto Y, Baum P. Diffraction and microscopy with attosecond electron pulse trains. *Nat Phys*, 2018, 14: 252–256

- 45 Schöenberger N, Mittelbach A, Yousefi P, et al. Generation and characterization of attosecond microbunched electron pulse trains *via* dielectric laser acceleration. *Phys Rev Lett*, 2019, 123: 264803
- 46 Black D S, Niedermayer U, Miao Y, et al. Net acceleration and direct measurement of attosecond electron pulses in a silicon dielectric laser accelerator. *Phys Rev Lett*, 2019, 123: 264802
- 47 Niedermayer U, Black D S, Leedle K J, et al. Low-energy-spread attosecond bunching and coherent electron acceleration in dielectric nanostructures. *Phys Rev Appl*, 2021, 15: L021002
- 48 Sears C M S, Colby E, Ischebeck R, et al. Production and characterization of attosecond electron bunch trains. *Phys Rev ST Accel Beams*, 2008, 11: 061301
- 49 Chlouba T, Shiloh R, Kraus S, et al. Coherent nanophotonic electron accelerator. *Nature*, 2023, 622: 476–480
- 50 Reinhardt O, Kaminer I. Theory of shaping electron wavepackets with light. *ACS Photonics*, 2020, 7: 2859–2870
- 51 Reinhardt O, Mechel C, Lynch M, et al. Free-electron qubits. *Annalen der Physik*, 2021, 533: 2000254
- 52 Tsarev M V, Ryabov A, Baum P. Free-electron qubits and maximum-contrast attosecond pulses via temporal talbot revivals. *Phys Rev Res*, 2021, 3: 043033
- 53 Bucher T, Ruimy R, Tsesses S, et al. Free-electron ramsey-type interferometry for enhanced amplitude and phase imaging of nearfields. *Sci Adv*, 2023, 9: eadi5729
- 54 Hao W J, Zhai Y N, Zhang Q Y, et al. Attosecond light source in material science investigation (in Chinese). *Chin Sci Bull*, 2021, 66: 856–864 [郝文杰, 翟燕妮, 张倩瑜, 等. 阿秒光源在材料领域的应用. 科学通报, 2021, 66: 856–864]

Attosecond electron microscopy

ZHANG ManYu^{1,2,3}, ZHAO LiGong^{1,2}, HUI DanDan^{1,2*} & FU YuXi^{1,2*}

¹ Key Laboratory of Ultrafast Light Science and Technology, Xi'an Institute of Optics and Precision Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Xi'an 710000, China;

² Center for Attosecond Science and Technology, Xi'an Institute of Optics and Precision Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Xi'an 710000, China;

³ University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China

*Corresponding authors (HUI DanDan, email: huidandan@opt.ac.cn; FU YuXi, email: fuyuxi@opt.ac.cn)

To achieve direct visualization of the dynamic motion of microscopic particles inside matter, researchers are constantly exploring new experimental methods and technologies with higher temporal and spatial resolution. Attosecond electron microscopy combines ultrafast laser pulses and electron pulses, based on a pump-probe scheme, to provide both attosecond temporal resolution and atomic-level spatial resolution simultaneously, thereby providing key experimental parameters and technical methods for in-depth understanding of the microscopic mechanism and dynamics of matter, and achieving a fundamental understanding, manipulation and application of macroscopic physical properties. Attosecond electron microscopy has become an international research hotspot since its inception. In this study, the cutting-edge research progress of ultrafast electron microscopy, the generation of attosecond electron pulses and the attosecond electron microscopy will be briefly introduced.

optical gating, attosecond electron pulse, ultrafast electron microscope, attosecond electron microscope

PACS: 61.05.J-, 41.75.Jv, 87.15.ht

doi: [10.1360/SSPMA-2024-0405](https://doi.org/10.1360/SSPMA-2024-0405)