中国科学: 物理学 力学 天文学 2023 年 第 53 卷 第 10 期: 100003
SCIENTIA SINICA Physica, Mechanica & Astronomica physcn.scichina.com
《中国科学》杂志社 SCIENCE CHINA PRESS
评 述 北京大学物理学科建立110周年专辑

超高时空和能量分辨光电子成像研究进展

秦榆禄[1], 王睿[1], 刘运全[1,2,3*]

1. 纳米光电子前沿科学中心, 量子物质协同创新中心, 介观物理国家重点实验室, 北京 100871;
2. 北京大学长三角光电研究院, 南通 226010;
3. 山西大学极端光学协同创新中心, 太原 030006
*联系人, E-mail: yunquan.liu@pku.edu.cn

收稿日期: 2022-11-14; 接受日期: 2023-01-17; 网络出版日期: 2023-09-15
国家重点基础研究发展计划(编号: 2022YFA1604301)和国家自然科学基金(编号: 92050201, 92250306, 12204018)资助项目

摘要 测量并操控新材料和新器件中极端时空小尺度电子的超快动力学过程, 是后摩尔时代柔性半导体和微纳超快响应器件研发的核心. 时空和能量分辨的光发射电子显微技术将光学的泵浦-探测方案与电子显微成像技术巧妙结合, 兼具飞秒-纳米极端时空和高能量分辨本领, 已经成为探索纳米光子学和低维半导体器件等领域超快光物理过程的普适显微手段, 推动了等离激元学、半导体材料科学及其相关交叉学科在基础和应用研究领域的革命性发展. 本篇综述将重点介绍超快光电子成像技术在等离激元功能器件、高阶等离激元涡旋场、等离激元斯格明子和低维半导体材料方面的应用. 最后, 我们将展望超快光电子成像技术在未来基础研究和应用研究中的新机遇.

关键词 时空-能量分辨光发射电子显微镜, 等离激元功能器件, 高阶等离激元涡旋, 等离激元斯格明子, 低维半导体材料

PACS: 78.47.J-, 71.45.Gm, 74.25.Jb, 78.67.-n

1 引言

伴随着摩尔定律失效, 介观物理和微观物理之间的壁垒已经被打破. 从经典行为到量子行为的跨越, 势必孕育出颠覆性的新材料、新原理和新器件. 测量和掌握新材料和新器件中电子在极端时空小尺度的物理规律和机制, 并进一步实现对单分子、纳米结构和低维材料的微观理解, 是推动未来材料和信息技术发展的关键.

目前, 国际上发展了几种超快显微成像方案, 主要包括: 瞬态吸收(反射)光谱[1–3]、时间分辨扫描近场光学显微[4–6]、时间分辨阴极荧光[6]、超快透射电子显微[6,7]、反冲离子动量谱仪[8,9]、超快时间分辨-角分辨光电子显微[10–12]和时空-能量分辨光发射电子显微(Photoemission Electron Microscopy, PEEM)[13–15]. 其中, 时空-能量分辨PEEM是一种复合的超快电子显微成像技术, 能够将光学激发与电子成像巧妙的结合. 一方面, 时空-能量分辨PEEM具备飞秒至阿秒泵浦-探

引用格式: 秦榆禄, 王睿, 刘运全. 超高时空和能量分辨光电子成像研究进展. 中国科学: 物理学 力学 天文学, 2023, 53: 100003
Qin Y L, Wang R, Liu Y Q. Ultrafast photoelectron imaging with high spatiotemporal and energy resolution (in Chinese). Sci Sin-Phys Mech Astron, 2023, 53: 100003, doi: 10.1360/SSPMA-2022-0442

© 2023 《中国科学》杂志社

测时间分辨能力[2,4], 另一方面, PEEM基于光电效应原理对样品表面出射的光电子进行实空间成像, 其典型的横向空间分辨率优于50 nm, 装配像差校正装置甚至可以实现亚10 nm的横向空间分辨[6,13,14]. 该成像方式无需引入扫描探针, 不会对探测目标样品中的超快光物理过程产生干扰, 且具备强大的数据并行采集能力, 可实现高速-实空间原位成像. 同时, PEEM光电子信号处理系统中配备了半球能量分析器(ELMITEC, AC-LEEM/PEEM III)或延时线探测器(OMICRON, FOCUS TOF-PEEM) [6,13], 能够形成兼具飞秒-纳米时空分辨和高能量分辨本领(优于150 meV)的时空-能量分辨PEEM成像系统. 该系统将为不同类型低维材料中等离激元、激子极化激元和电子的运动提供前所未有的空间、时间和能量维度的超快演化图像. 此外, PEEM具有斜入射(与法线夹角>65°)、法向入射、背入射等多个光源注入窗口, 使得实验设计更加灵活[16–18]. 更重要的是, PEEM是宽频适用的, 激发光源可以从真空极紫外到通信波段[18–21]. 时空和能量分辨PEEM已经成为探索纳米光子学和低维半导体器件等领域中极端时空小尺度超快光物理过程的普适显微手段, 推动了等离激元学、半导体材料科学及其相关交叉学科在基础和应用研究领域的革命性发展[13–15].

迄今为止, 时空和能量分辨PEEM技术, 在飞秒等离激元场的时空演化成像及其寿命的测量和调控[22–30]、等离激元斯格明子等拓扑缺陷的时空表征[14,31,32]、微纳等离激元器件的功能表征及操控[33–36]、等离激元涡旋光场时空演化成像[37,38]和二维半导体材料中载流子的动力学特性[15,39–41]等研究方面已经取得了突破性的进展.

本文将聚焦于时空和能量分辨PEEM技术在微纳等离激元功能器件、高阶等离激元涡旋场、等离激元斯格明子和低维半导体材料方面的应用. 综述的安排如下: (1) 简要介绍了时空和能量分辨PEEM的原理以及主要的应用进展; (2) 介绍PEEM在表征微纳米器件功能方面的研究, 并讨论了它的优势和不足; (3) 归纳了等离激元涡旋时空成像及拓扑荷的操控方面的创新性成果, 并给出了涡旋场灵活操控和高效激发的潜在方案; (4) 展示了等离激元斯格明子超快时空成像方面的开创性成果; (5) 详细介绍了PEEM在表征二维半导体材料载流子超快动力学研究的代表性成果, 并分析了当前的局限性; (6) 在上述基础上, 讨论了未来时空和能量分辨PEEM在(i) 探究深能级电子动力学; (ii) 谷电子器件中超快光物理过程的时空表征; (iii) 单层过渡金属硫化物半导体中暗激子态超快载流子动力学的测量和操控; (iv) 激子极化激元(等离激子极化激元)时空成像、超快操控低维半导体材料中准粒子如激子、电子、等离激元和激子极化激元之间的多体相互作用等领域的新机遇. 我们省略了对PEEM装置成像原理的介绍, 以及与其他实验技术之间的比较, 因为已有几篇综述文章对这几个方面做了全面的介绍和讨论[6,13,17–18].

2 微纳等离激元功能器件的近场表征

等离激元功能器件兼具半导体器件的小尺寸(纳米量级)和光子器件的超宽带传输(太赫兹带宽), 有望用于构建高集成度-小型化-超快光电子信号处理系统[42–46]. 近年来研究人员已经设计和验证了多种等离激元概念器件, 包括等离激元纳米谐振腔、波导、开关、分束器、色散元件、多路复用器和聚焦透镜等[47–53]. 作为一种卓越的近场显微技术, PEEM已经被广泛应用于上述等离激元器件的近场表征. 图1展示了几种典型的等离激元功能元件. 如图1(a)所示, 研究者在纳米尺度上, 利用PEEM对金纳米线上诱导产生的SPP进行近场成像研究. 结果表明, SPP沿着纳米线传播并建立稳定的驻波模式且等离激元热点的数量强烈依赖于纳米线的长度. 该结果证实了金纳米线能够用于构建等离激元纳米谐振腔[33]. 图1(b)表示不同偏振条件下, Y形波导中等离激元模式的激发、传播和干涉的PEEM图像. 该结果证明法向入射PEEM能够实现等离激元纳米回路中的近场强度分布的直接图像[34].

等离激元定向耦合器件的原理图, 如图1(c)所示. 为了准确可视化器件的定向耦合功能, 研究者采用泵浦和探测光斑空间分离的实验方案, 规避了入射光与自身诱导产生的SPP干涉形成的静态光电子信号的干扰[25]. 如图1(d), 当入射光为45°偏振时, 探测光在凹槽左右两侧对称位置记录的PEEM图像. 结果显示只能在凹槽的右侧观察到清晰的干涉图案. 这一现象意味着在入射光偏振为45°时, fs-PSP优先在凹槽的右侧激发[48], 并且凹槽左侧和右侧干涉信号强度强烈依赖于激发光偏振方向. 结果表明贵金属薄膜上刻蚀的凹槽结构可以用于构建SPP定向耦合器件.

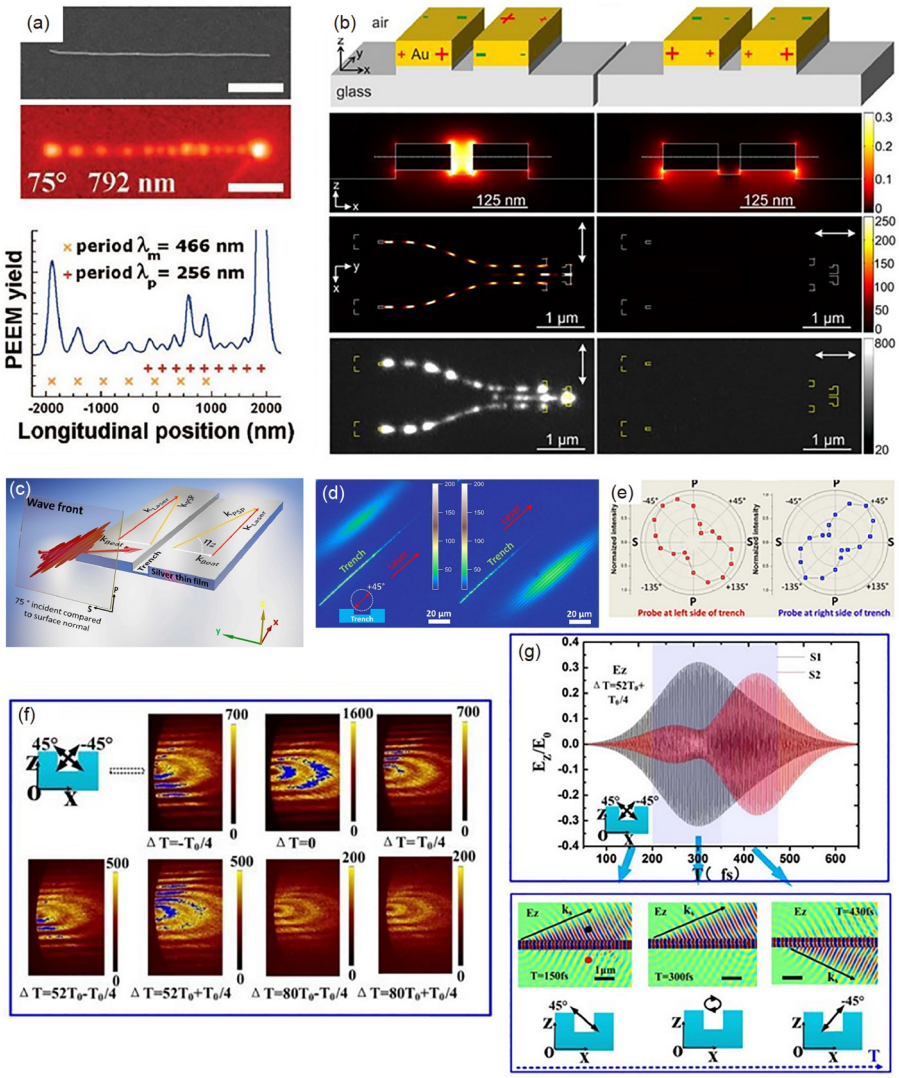


图 1 (网络版彩图)常见的等离激元功能元件. (a) 纳米谐振腔[33]; (b) 波导[34]; (c)–(e) 等离激元开关[48]; (f)–(g) 超快时空操控等离激元纳米-定向耦合器中SPP的传播方向[35]

Figure 1 (Color online) Typical plasmonic functional elements. (a) Nano-resonator [33]; (b) waveguide [34]; (c)–(e) plasmonic switch [48]; (f)–(g) ultrafast spatiotemporal control of directional launching of surface plasmon polaritons in a plasmonic nano coupler [35].

为了满足未来超快信息传输和处理的需求, 研究者在SPP的超快时空操控方面也进行了尝试. 图1(f)和(g)分别表示两束垂直偏振脉冲(45°和−45°线偏振)照射定向耦合结构时的时间分辨PEEM图像和FDTD模拟的SPP场随时间的超快演化. 结果表明通过调整两束正交偏振入射飞秒光脉冲的延迟, 可以在飞秒时间尺度上实现定向耦合元件中SPP优先激发方向的切换. 这种SPP传播方向的超快切换源自入射光偏振态在飞秒时间尺度的瞬时变化. 该研究成果能够用于发展等离激元纳米回路中的超快速信息处理系统[35].

此外, 由于在超快纳米电子点源[54,55]、超分辨率成像[56,57]、光镊[58–61]和纳米光刻[62]等领域广阔的应用前景, 等离激元聚焦透镜的近场表征和时空演化成像也是研究者关注的焦点.

图2(a)为不同延时下PEEM实验和模拟的椭圆形聚焦透镜中SPP的时空演化图像[63]. 结果表明, 在结构边沿激发的SPP场逐渐汇聚为一个微米量级的焦斑, 在之后传输过程中逐渐发散. 该研究首次证实时间分

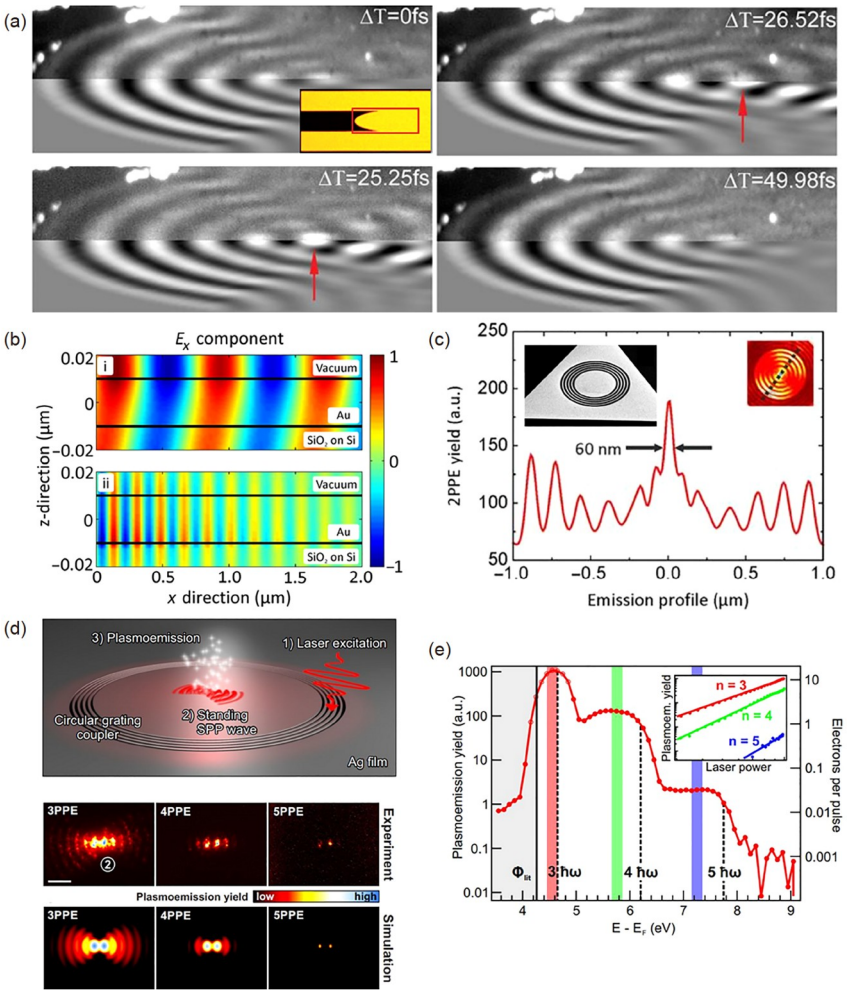


图 2 (网络版彩图) PEEM近场表征等离激元聚焦透镜. (a) 椭圆聚焦结构中SPP的时空演化图像[63]. (b) FDTD模拟的短程SPP电场分布. (c) 短程SPP聚焦[64]. 插图表示同心圆环等离激元聚焦透镜的SEM图. (d) SPP诱导光电子出射. (e) 光电子能谱[65]. 插图表示光电子产额与激光功率在电子能量上依赖关系的对数图

Figure 2 (Color online) Near field imaging of SPP focusing lens using PEEM. (a) Spatial-temporal evolution of SPP in elliptical focusing lenses [63]; (b) distribution of the E_x component of the short-range SPP field simulated by FDTD; (c) short-range SPP focus [64]. Insert: SEM image of concentric ring plasmonic focusing lens. (d) SPP induces electron emission; (e) photoelectron spectroscopy [65], insert: Log-log plot of the PE signal intensity as a function of the laser power.

辨PEEM能够用于表征等离激元聚焦器件的时空特性. 图2(b)和(c)分别为FDTD模拟的短程SPP电场E_x分量的近场分布和同心圆环透镜中短程SPP的聚焦. 结果表明利用等离激元透镜能够将短程SPP聚焦到60 nm. 插图分别为同心圆环透镜的SEM图和PEEM图像[64]. 图2(d)和(e)展示了在少周期飞秒脉冲照射下, 同心圆环透镜中SPP诱导产生的光电子发射图像及其电子能谱. 结果表明, 利用超短脉冲实现激发光与SPP场时空分离能够实现等离激元诱导光电子发射, 且通过对SPP场聚焦, 电场强度能达到强场量级. 同时, 上述结果体现了SPP的量子特性[65].

尽管时空和能量分辨PEEM在近场表征微纳等离激元器件功能方面取得了诸多进展, 但由于成像系统的制约, PEEM注入光源的光斑面积被限制在40–100 μm (横向宽度). 因此在表征等离激元纳米器件的功能时, 只能采取全局照射的方式, 即器件的输出和输入端口都将被入射光激发. 由凸起的纳米结构(纳米颗粒链、纳米线、Y形劈裂等)构成的等离激元器件的输入/输出端口都可以诱导产生SPP, 全局照射的方式极易掩盖器件原有的功能[34,49–51].

3 等离激元涡旋时空成像及拓扑荷的操控

基于光与物质相互作用对自旋和轨道角动量的依赖性, 作为一种基本探针, 携带自旋和轨道角动量的光子在研究光的自旋霍尔效应[66]、飞秒涡旋电子脉冲的产生和操控[67,68]、纳米粒子操纵以及光信息传输和计算等方面扮演着至关重要的角色. 近年来, 随着纳米光子学研究的不断深入, 研究者发现借助于阿基米德螺旋结构, 通过激发等离激元涡旋场能够在飞秒-纳米极端时空尺度实现自旋和轨道角动量的转化[69,70]. 开展等离激元涡旋场的时空成像及拓扑荷的超快操控研究, 对手性分子光谱学、纳米激光器、量子发射器和手性纳米粒子操纵等科学研究领域有着重要的战略支撑意义.

近年来, 凭借时空分辨PEEM的飞秒-纳米时空分辨本领, 研究者在高阶等离激元涡旋场的近场时空成像和拓扑荷的操控方面取得了突破性进展. 图3(a)是利用时空分辨PEEM捕获的高阶等离激元涡旋场的超快演化图像, 从中直接可视化了涡旋场在飞秒时间尺度的超快演化过程. 结果表明, 从捕获的等离激元涡旋场时空演化图像中可以直接读取等离激元涡旋场的拓扑电荷数[37]. 最近, 为了克服涡旋场旋向和拓扑电荷数对阿基米德螺旋结构的依赖, 该研究组将超表面结构与阿基米德螺旋结构结合, 构建了复合等离激元涡旋场发生器, 通过调节入射光圆偏振光的旋向, 可实现对涡旋场拓扑电荷大小和涡旋场方向的灵活操控[71], 如图3(b)所示. 上述研究聚焦于对涡旋场拓扑电荷的空间操控, 忽略了操控拓扑电荷所需的时间, 而实

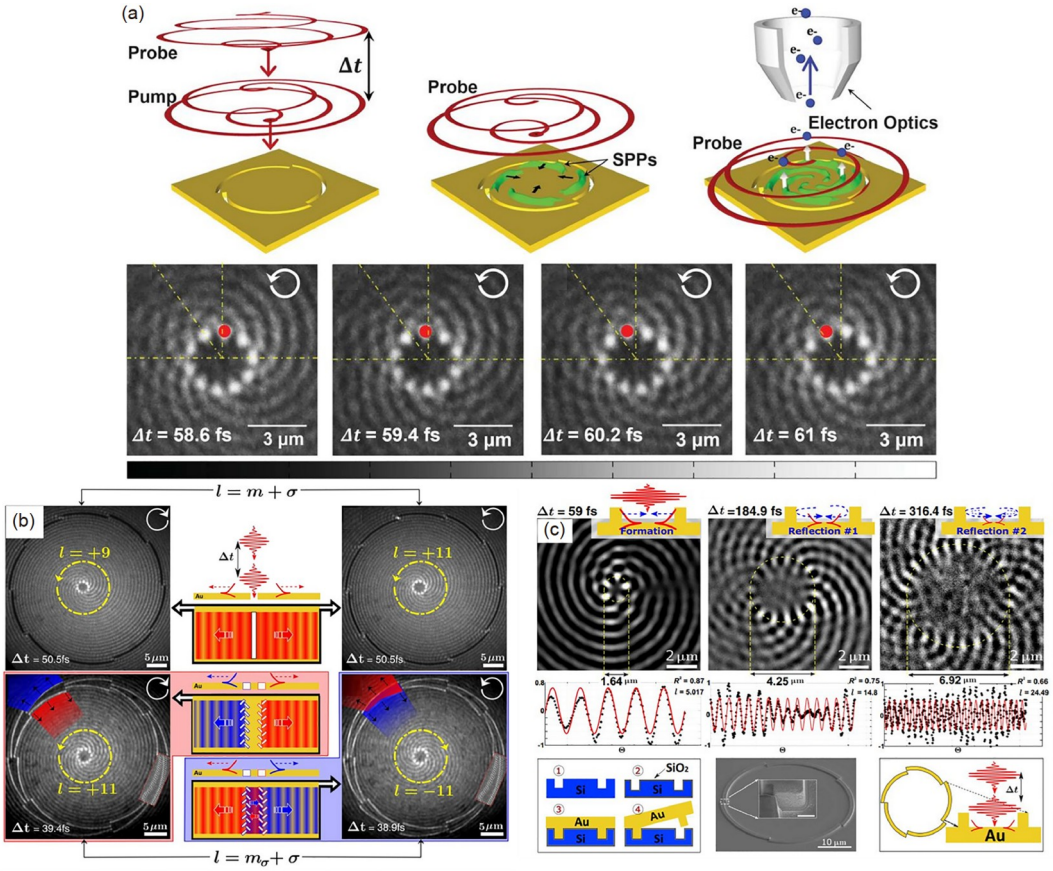


图 3 (网络版彩图)高阶等离激元涡旋场时空成像和操控. (a) 时空成像高阶等离激元涡旋场[37]; (b) 等离激元复合透镜操控涡旋场拓扑电荷[71]; (c) 高阶等离激元涡旋场拓扑电荷的超快操控[38]

Figure 3 (Color online) Spatiotemporal imaging and manipulation of higher-order plasmonic vortex fields. (a) Spatiotemporal imaging of higher-order plasmonic vortex fields [37]; (b) plasmonic composite lenses manipulate vortex field topological charges [71]; (c) ultrafast manipulation of topological charges in higher-order plasmonic vortex fields [38].

现等离激元涡旋场拓扑电荷的超快操控是信息超快传输和处理的先决条件. 如图3(c)所示, 研究者通过构建凸起的高阶等离激元涡旋腔, 将结构边界的反射作为一个新的自由度, 实现了对高阶涡旋场拓扑电荷(轨道角动量)的超快时空操控[38]. 实验结果表明, 等离激元涡旋腔产生了一系列涡旋脉冲, 演化过程中与腔体反射的涡旋场叠加, 使得等离激元涡旋场的拓扑电荷成倍数增长.

为了满足手性分子光谱学、纳米激光器、手性纳米粒子操纵等领域对等离激元涡旋场灵活操控的实际需求, 高阶等离激元涡旋场拓扑电荷的操控有必要引入新的自由度, 例如, 可以在阿基米德螺旋结构中引入PB位相[72,73]和构建等离激元涡旋晶格[32,74]等. 此外, 由于在传统阿基米德螺旋透镜中SPP为对称激发, 得以汇聚形成涡旋场的SPP最多占激发总能量的一半. 将定向耦合元件的基本单元与阿基米德螺旋结构结合构建的复合等离激元涡旋透镜, 将为提高等离激元涡旋场的激发效率提供新的思路[75].

4 等离激元斯格明子的超快时空成像

拓扑学是物理学中一个独特的分支, 它探索的是由内部和外部相互作用的、几何学所定义的物质所涌现的性质[76]. 拓扑特性是介观和微观、原子甚至亚原子尺度之间的桥梁. 在等离激元学中, 基于近场干涉, 研究者成功构建了光学拓扑绝缘体: 等离激元斯格明子(Skyrmions) [77], 其本质上是连续等离激元矢量场中拓扑缺陷的光学表现. 等离激元斯格明子具有特征性矢量结构. 它们存在于亚100 nm和几飞秒的极端时空小尺度中, 因此很难直接用实验表征. 最近, 研究者采用优化的TR-PEEM技术, 对等离激元斯格明子进行超快显微成像研究, 通过解析电场的所有矢量分量及其动力学特性, 实验演示了自旋动量耦合以及斯格明子数随时间的动态变化[14]. 图4(a)和(b)分别为等离激元斯格明子超快矢量成像的原理图和等离激元场斯格明子的时空演化图像. 实验在飞秒-纳米极端时空尺度展现了等离激元斯格明子完整超快的演化过程, 并且发现等离激元斯格明子数在几个飞秒时间尺度由+1变为−1.

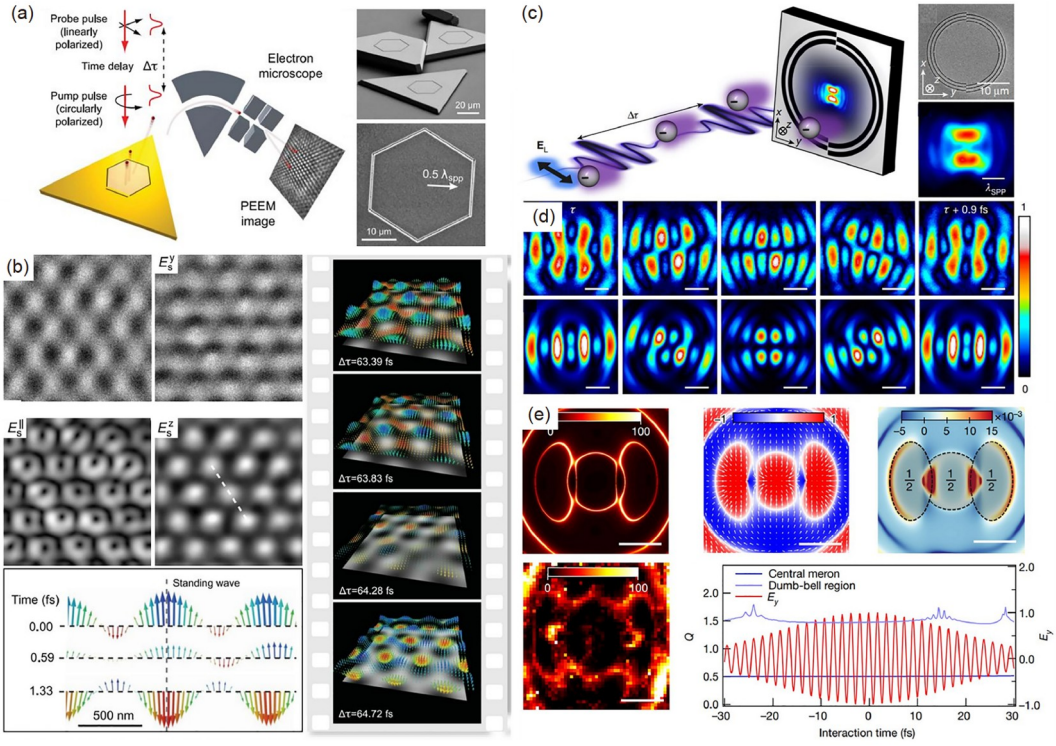


图 4 (网络版彩图)等离激元场和自旋斯格明子的超快时空成像. (a), (b) 超快矢量成像等离激元斯格明子[14]; (c)–(e) 纳米和飞秒等离激元拓扑准粒子[31]

Figure 4 (Color online) Ultrafast spatiotemporal imaging of plasmonic fields and spin skyrmion dynamics. (a), (b) Ultrafast vector imaging of plasmonic skyrmion dynamics [14]; (c)–(e) plasmonic topological quasiparticle on the nanometre and femtosecond scales [31].

同年, 鉴于手性磁体中的半子和斯格明子源于原子的自旋-轨道相互作用, 研究者利用在银纳米薄膜上刻蚀的圆环结构, 基于光的自旋轨道相互作用, 通过激发等离激元涡旋场, 在涡旋场的核心创建了单极刺猬型等离激元自旋斯格明子. 紧接着, 该研究组利用入射光的自旋角动量与具有几何相位的阿基米德耦合结构相互作用, 通过三个涡旋场的叠加形成了类似磁性准粒子的非平庸拓扑准粒子[31]. 图4(c)为等离激元拓扑准粒子时空成像的原理图. 图4(d)展示了时空分辨PEEM和FDTD模拟的涡旋场随时间的演化图像. 结果表明, SPP场围绕涡旋中心的相位奇点旋转, 其自旋纹理和拓扑荷数如图4(e). 实验和模拟结果表明整个哑铃区域拓扑荷数为3/2, 且具有拓扑稳定性. 此外, 等离激元自旋半子晶格也相继被证实[32]. 综上, 时空分辨PEEM技术为揭示光学拓扑中极端时空小尺度超快光物理研究开辟了新方向.

5 二维半导体材料中载流子的超快动力学

基于量子约束效应, 二维半导体材料展现出了卓越的光学、光电子和拓扑等特性, 在太阳能电池、发光二极管、生物传感器等光电器件领域有巨大的应用潜力, 是探索光电应用和半导体光学的理想材料[78–80]. 光电子器件的性能依赖于半导体及其异质结构中载流子的超快弛豫过程. 解析载流子在空间、时间和能量上的动力学过程以及半导体异质结构中电子的输运, 将帮助研究者们更好地深入了解太阳能电池、光电探测器和其他半导体器件的物理机制. 这对于二维半导体在未来高速电子和光电子器件中的应用至关重要, 也是推进后摩尔时代半导体器件的小型化和集成化的基础[81–83]. 因而, 对二维半导体及其异质结构中载流子超快动力学演化的表征和调控研究是目前人们关注的热点之一.

由于光学衍射极限对空间分辨率的制约, 传统的光学显微技术通常只能获得几微米到十几微米探测区域上二维半导体载流子动力学演化的平均响应[15,39], 这势必会掩盖由结构异质性所引起的载流子动力学多样性.

近年来研究者利用多色时空和能量分辨PEEM技术, 开展了对半导体异质结构中电子输运过程的时空

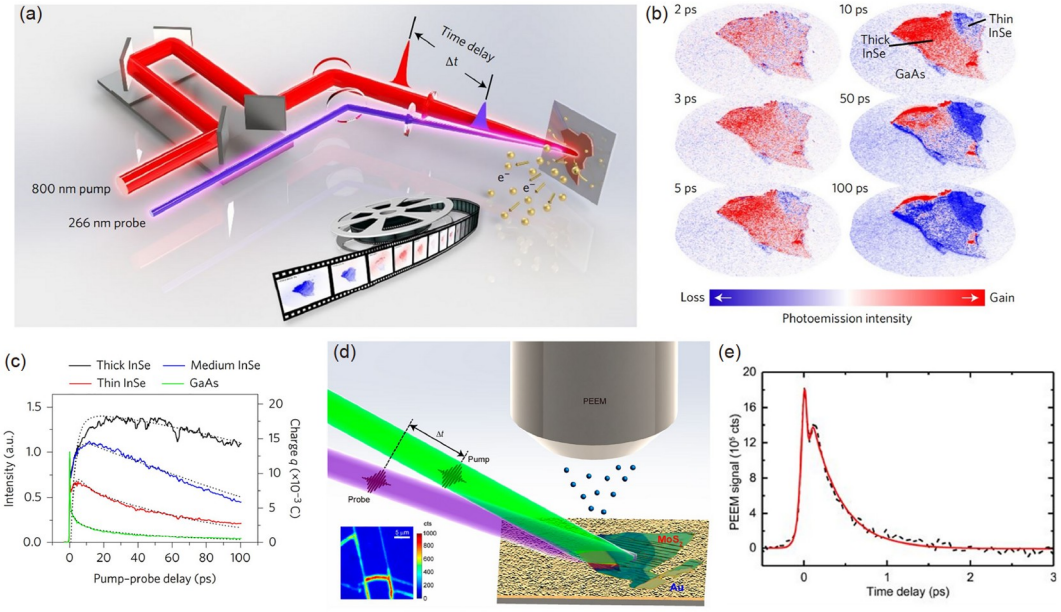


图 5 (网络版彩图)半导体异质结构中载流子的超快时空演化. (a) 时空和能量分辨PEEM原理图[15]; (b), (c) 时空成像砷化镓和硒化铟之间电子的超快转移; (d) 时空成像单层MoS_2/Au间电子超快转移的原理图, 插图表示PEEM采集的光电子图像; (e) 光发射电子信号随时间延时的变化曲线[41]

Figure 5 (Color online) Ultrafast spatiotemporal evolution of carriers in semiconductor heterostructures. (a) Schematic diagram of spatiotemporal- and energy-resolved PEEM [15]; (b), (c) spatiotemporal imaging of ultrafast electron transfer between GaAs and InSe; (d) schematic diagram of spatiotemporal imaging of the ultrafast electron transfer between gold and monolayer WSe_2, insert: photoelectronic image captured by PEEM. (e) The curve of photoemission signal with time delay [41].

成像研究. 图5(a)为多色时空分辨PEEM的原理图. 实验结果清晰展示了II型InSe/GaAs半导体异质结构中电子自发从GaAs向InSe转移的过程, 如图5(b)和(c)所示[15]. 最近, 通过进一步优化系统的时间分辨率, 研究人员利用时空分辨PEEM (时间分辨率为60 fs)研究了单层MoS_2/Au界面的热电子转移的动力学. 图5(d)表示时空成像单层MoS_2/Au间电子超快转移的原理图. 图5(e)为异质结构中光发射电子信号随时间延时的变化曲线. 与单层MoS_2动力学信号不同的是, 异质结构中光电子信号在约120 fs时间尺度上衰减后, 产生了二次峰值, 最终以指数衰减直至完全弛豫. 该现象反映了从Au薄膜向探测窗口中单层MoS_2导带区域注入热电子的过程. 该研究进一步结合原子力显微镜实验测量了单层MoS_2与Au的间距不同时电子的转移速率. 结果表明单层MoS_2和Au纳米薄膜间的热电子转移速率呈现较弱距离依赖[41].

此外, 该研究组探究了单层WSe_2载流子动力学的空间异质性, 如图6(a)和(b)所示. 结果表明单层WSe_2载流子动力学演化具有空间依赖性, 需要借助于超高时空分辨测量, 以准确理解结构异质性对二维材料载流子动力学的影响[39]. 作者所在的北京大学极端光学团队利用时空和能量PEEM系统开展了单层WS_2中电子冷却和超快衰减的超快动力学研究[40]. 图6(c)为悬空在圆孔阵列上的单层WS_2的光学和PEEM图像. 图6(d)为不同空间位置单层WS_2的载流子动力学曲线. 结果表明超快电子冷却主导的快弛豫过程的寿命在不同空间位置基本一致, 而皮秒量级的慢弛豫过程由缺陷态捕获主导. 同年, 我们进一步开展了共面金属1T′-$MoTe_2$/半导体2H-$MoTe_2$异质结构中电子的弛豫和转移过程的时空成像研究. 实验结果表明1T′-$MoTe_2$中的非平衡电子比2H-$MoTe_2$中的非平衡电子具有更高的能量, 并且非平衡光电子在皮秒时间尺度弛豫到较低能级[84].

迄今为止国内外研究人员利用时空和能量分辨PEEM仅对体半导体异质结构或单层半导体材料中载流子动力学的时空演化过程做了初步的探索. 单层或少层半导体异质结构中载流子超快层间转移和弛豫过程的物理图像有待进一步揭示. 此外, 目前的工作大多聚焦于对材料价带和导带低能量区域电子动力学的探测, 亟待发展针对价带中更深层高能电子动力学的探测的方案.

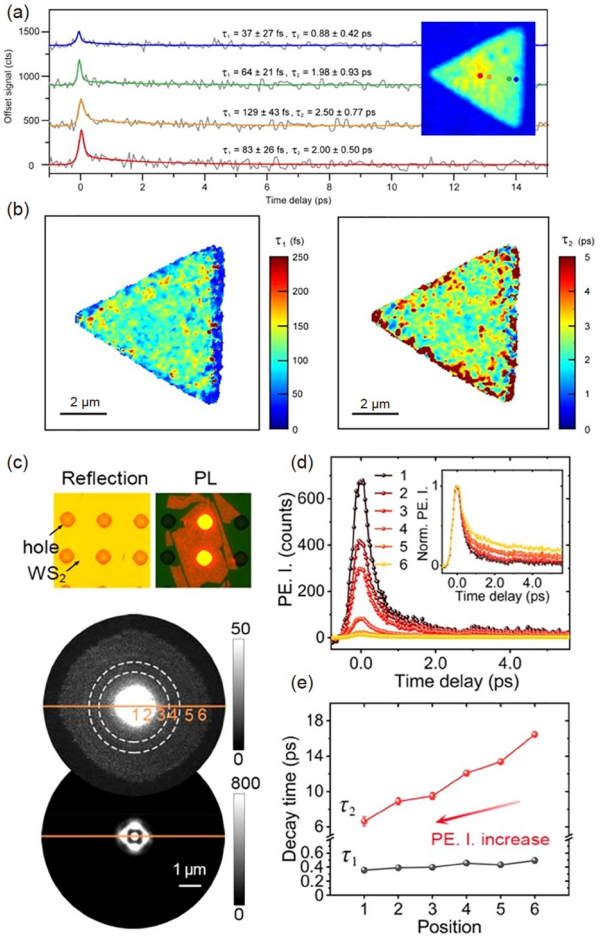


图 6 (网络版彩图)单层TMD半导体中载流子的超快动力学时空演化. (a) 单层WSe_2载流子动力学的空间异质性[39], 插图中的PEEM图像显示了提取动力学信号的位置; (b) 快和慢弛豫过程载流子寿命的空间分布; (c) 单层WS_2光学和PEEM图像; (d) 不同空间位置单层WS_2的载流子动力学, 插图表示归一化的动力学信号; (e) 不同位置快和慢弛豫过程载流子的寿命[40]

Figure 6 (Color online) Ultrafast spatiotemporal evolution of carriers in monolayer TMD semiconductors. (a) Spatial heterogeneity of the carrier dynamics in monolayer WSe_2 [39], insert: the position of extracting dynamic signal; (b) spatial distribution of carrier relaxation lifetime in fast and slow processes; (c) the monolayer WS_2 optical and PEEM images; (d) carrier dynamics of monolayer WS_2 at different spatial locations, insert: normalized dynamic signal; (e) the carrier lifetime of fast and slow relaxation processes at different positions [40].

6 总结和展望

凭借飞秒-纳米时空和能量分辨本领, 超快光电子成像在探索纳米光子学、拓扑学、半导体器件物理等相关领域极端时空小尺度超快光物理过程中发挥着越来越重要的作用. 尤其在飞秒等离激元场的时空演化

成像及其寿命的测量和调控、等离激元斯格明子、自旋半子等拓扑缺陷的时空表征、微纳等离激元器件的功能表征及操控、等离激元涡旋光场时空演化成像和二维半导体材料中热载流子的动力学特性等研究方面取得了开创性成果. 并且可以预见, 高时空和能量分辨超快光电子成像将为以下几个领域提供新的机遇. 其中包括探究深能级电子动力学[85]、谷电子器件[85]中超快光物理过程的时空表征、单层过渡金属硫化物半导体中暗激子态超快载流子动力学的测量和操控[12,86]、激子极化激元(等离激子极化激元)时空成像[4,87]、超快操控低维半导体材料中准粒子如激子、电子、等离激元和激子极化激元之间的多体相互作用[88,89]. 具体内容如下: (i) 发展高重复频率的极紫外光源, 与光电子成像相结合, 拓展深能级电子动力学研究; (ii) 近场表征单层过渡金属硫化物半导体中的谷效应, 进一步从极端时空尺度可视化谷电子器件中谷光子模式的传播、损耗并对其操控; (iii) 时空成像二维半导体材料中层间激子和暗激子态的动力学过程, 发展远程操控其超快载流子动力学的手段; (iv) 探究光学和等离激元模式与二维半导体材料耦合形成的准粒子的超快动力学演化, 进一步探究准粒子之间多体相互作用在半导体器件物理中扮演的角色.

参考文献

1 Kobayashi Y, Chang K F, Zeng T, et al. Direct mapping of curve-crossing dynamics in IBr by attosecond transient absorption spectroscopy. Science, 2019, 365: 79–83

2 Han M, Ge P, Wang J, et al. Complete characterization of sub-Coulomb-barrier tunnelling with phase-of-phase attoclock. Nat Photon, 2021, 15: 765–771

3 Davydova D, de la Cadena A, Akimov D, et al. Transient absorption microscopy: Advances in chemical imaging of photoinduced dynamics. Laser Photon Rev, 2016, 10: 62–81

4 Sternbach A J, Latini S, Chae S, et al. Femtosecond exciton dynamics in WSe_2 optical waveguides. Nat Commun, 2020, 11: 1–6

5 Vitalone R A, Sternbach A J, Foutty B A, et al. Nanoscale femtosecond dynamics of mott insulator $(Ca_{0.99}Sr_{0.01})_2RuO_4$. Nano Lett, 2022, 22: 5689–5697

6 Barwick B, Flannigan D J, Zewail A H. Photon-induced near-field electron microscopy. Nature, 2009, 462: 902–906

7 Barwick B, Park H S, Kwon O H, et al. 4D imaging of transient structures and morphologies in ultrafast electron microscopy. Science, 2008, 322: 1227–1231

8 Ullrich J, Moshammer R, Dorn A, et al. Recoil-ion and electron momentum spectroscopy: Reaction-microscopes. Rep Prog Phys, 2003, 66: 1463–1545

9 Guo Z, Ge P, Fang Y, et al. Probing molecular frame wigner time delay and electron wavepacket phase structure of CO molecule. Ultrafast Sci, 2022, 2022: 980291

10 Werdehausen D, Takayama T, Höppner M, et al. Coherent order parameter oscillations in the ground state of the excitonic insulator Ta_2NiSe_5. Sci Adv, 2018, 4: eaap8652

11 Na M X, Mills A K, Boschini F, et al. Direct determination of mode-projected electron-phonon coupling in the time domain. Science, 2019, 366: 1231–1236

12 Madéo J, Man M K L, Sahoo C, et al. Directly visualizing the momentum-forbidden dark excitons and their dynamics in atomically thin semiconductors. Science, 2020, 370: 1199–1204

13 Dabrowski M, Dai Y, Petek H. Ultrafast photoemission electron microscopy: Imaging plasmons in space and time. Chem Rev, 2020, 120: 6247–6287

14 Davis T J, Janoschka D, Dreher P, et al. Ultrafast vector imaging of plasmonic skyrmion dynamics with deep subwavelength resolution. Science, 2020, 368: eaba6415

15 Man M K L, Margiolakis A, Deckoff-Jones S, et al. Imaging the motion of electrons across semiconductor heterojunctions. Nat Nanotech, 2017, 12: 36–40

16 Klick A, Großmann M, Beewen M, et al. Femtosecond time-resolved photoemission electron microscopy operated at sample illumination from the rear side. Rev Sci Instrum, 2019, 90: 053704

17 El-Khoury P Z, Abellan P, Gong Y, et al. Visualizing surface plasmons with photons, photoelectrons, and electrons. Analyst, 2016, 141: 3562–3572

18 Douillard L, Charra F. Photoemission electron microscopy, a tool for plasmonics. J Electron Spectr Relat Phenomena, 2013, 189: 24–29

19 Word R C, Könenkamp R. Photonic and plasmonic surface field distributions characterized with normal- and oblique-incidence multi-photon PEEM. Ultramicroscopy, 2017, 183: 43–48

20 Mårsell E, Larsen E W, Arnold C L, et al. Photoemission electron microscopy of localized surface plasmons in silver nanostructures at telecommunication wavelengths. J Appl Phys, 2015, 117: 083104

21 Zheng W, Jiang P, Zhang L, et al. Ultrafast extreme ultraviolet photoemission electron microscope. Rev Sci Instrum, 2021, 92: 043709

22 Cinchetti M, Gloskovskii A, Nepjiko S A, et al. Photoemission electron microscopy as a tool for the investigation of optical near fields. Phys Rev Lett, 2005, 95: 047601

23 Kubo A, Pontius N, Petek H. Femtosecond microscopy of surface plasmon polariton wave packet evolution at the silver/vacuum interface. Nano Lett, 2007, 7: 470–475

24 Leißner T, Lemke C, Fiutowski J, et al. Morphological tuning of the plasmon dispersion relation in dielectric-loaded nanofiber waveguides. Phys Rev Lett, 2013, 111: 046802

25 Gong Y, Joly A G, Hu D, et al. Ultrafast imaging of surface plasmons propagating on a gold surface. Nano Lett, 2015, 15: 3472–3478

26 Qin Y, Ji B, Song X, et al. Characterization of ultrafast plasmon dynamics in individual gold bowtie by time-resolved photoemission electron microscopy. Appl Phys B, 2019, 125: 3

27 Yang J, Sun Q, Ueno K, et al. Manipulation of the dephasing time by strong coupling between localized and propagating surface plasmon modes. Nat Commun, 2018, 9: 4858

28 Li Y, Sun Q, Zu S, et al. Correlation between near-field enhancement and dephasing time in plasmonic dimers. Phys Rev Lett, 2020, 124: 163901

29 Qin Y, Ji B, Song X, et al. Disclosing transverse spin angular momentum of surface plasmon polaritons through independent spatiotemporal imaging of its in-plane and out-of-plane electric field components. Photon Res, 2020, 8: 1042–1048

30 Sun Q, Yu H, Ueno K, et al. Dissecting the few-femtosecond dephasing time of dipole and quadrupole modes in gold nanoparticles using polarized photoemission electron microscopy. ACS Nano, 2016, 10: 3835–3842

31 Dai Y, Zhou Z, Ghosh A, et al. Plasmonic topological quasiparticle on the nanometre and femtosecond scales. Nature, 2020, 588: 616–619

32 Ghosh A, Yang S, Dai Y, et al. A topological lattice of plasmonic merons. Appl Phys Rev, 2021, 8: 041413

33 Douillard L, Charra F, Korczak Z, et al. Short range plasmon resonators probed by photoemission electron microscopy. Nano Lett, 2008, 8: 935–940

34 Razinskas G, Kilbane D, Melchior P, et al. Normal-incidence PEEM imaging of propagating modes in a plasmonic nanocircuit. Nano Lett, 2016, 16: 6832–6837

35 Qin Y, Ji B, Song X, et al. Ultrafast spatiotemporal control of directional launching of surface plasmon polaritons in a plasmonic nano coupler. Photon Res, 2021, 9: 514–520

36 Podbiel D, Kahl P, Frank B, et al. Spatiotemporal analysis of an efficient fresnel grating coupler for focusing surface plasmon polaritons. ACS Photon, 2019, 6: 600–604

37 Spektor G, Kilbane D, Mahro A K, et al. Revealing the subfemtosecond dynamics of orbital angular momentum in nanoplasmonic vortices. Science, 2017, 355: 1187–1191

38 Spektor G, Prinz E, Hartelt M, et al. Orbital angular momentum multiplication in plasmonic vortex cavities. Sci Adv, 2021, 7: eabg5571

39 Wang L, Xu C, Li M Y, et al. Unraveling spatially heterogeneous ultrafast carrier dynamics of single-layer WSe_2 by femtosecond time-resolved photoemission electron microscopy. Nano Lett, 2018, 18: 5172–5178

40 Li Y, Liu W, Wang Y, et al. Ultrafast electron cooling and decay in monolayer WS_2 revealed by time-and energy-resolved photoemission electron microscopy. Nano Lett, 2020, 20: 3747–3753

41 Xu C, Yong H W, He J, et al. Weak distance dependence of hot-electron-transfer rates at the interface between monolayer MoS_2 and gold. ACS Nano, 2020, 15: 819–828

42 Barnes W L, Dereux A, Ebbesen T W. Surface plasmon subwavelength optics. Nature, 2003, 424: 824–830

43 Ozbay E. Plasmonics: Merging photonics and electronics at nanoscale dimensions. Science, 2006, 311: 189–193

44 Atwater H A, Polman A. Plasmonics for improved photovoltaic devices. Nat Mater, 2010, 9: 205–213

45 Clavero C. Plasmon-induced hot-electron generation at nanoparticle/metal-oxide interfaces for photovoltaic and photocatalytic devices. Nat Photon, 2014, 8: 95–103

46 Jang Y H, Jang Y J, Kim S, et al. Plasmonic solar cells: From rational design to mechanism overview. Chem Rev, 2016, 116: 14982–15034

47 Rodríguez-Fortuño F J, Marino G, Ginzburg P, et al. Near-field interference for the unidirectional excitation of electromagnetic guided modes. Science, 2013, 340: 328–330

48 Gong Y, Joly A G, El-Khoury P Z, et al. Polarization-directed surface plasmon polariton launching. J Phys Chem Lett, 2017, 8: 49–54

49 Sukharev M, Seideman T. Phase and polarization control as a route to plasmonic nanodevices. Nano Lett, 2006, 6: 715–719

50 Fang Y, Li Z, Huang Y, et al. Branched silver nanowires as controllable plasmon routers. Nano Lett, 2010, 10: 1950–1954

51 Rewitz C, Razinskas G, Geisler P, et al. Coherent control of plasmon propagation in a nanocircuit. Phys Rev Appl, 2014, 1: 014007

52 Qin Y, Song X, Ji B, et al. Demonstrating a two-dimensional-tunable surface plasmon polariton dispersion element using photoemission electron microscopy. Opt Lett, 2019, 44: 2935–2938

53 Bozhevolnyi S I, Volkov V S, Devaux E, et al. Channel plasmon-polariton guiding by subwavelength metal grooves. Phys Rev Lett, 2005, 95: 046802

54 Ciappina M F, Pérez-Hernández J A, Landsman A S, et al. Attosecond physics at the nanoscale. Rep Prog Phys, 2017, 80: 054401

55 Müller M, Kravtsov V, Paarmann A, et al. Nanofocused plasmon-driven sub-10 fs electron point source. ACS Photon, 2016, 3: 611–619

56 Willets K A, Wilson A J, Sundaresan V, et al. Super-resolution imaging and plasmonics. Chem Rev, 2017, 117: 7538–7582

57 Fang N, Lee H, Sun C, et al. Sub-diffraction-limited optical imaging with a silver superlens. Science, 2005, 308: 534–537

58 Wang X, Zhang Y, Dai Y, et al. Enhancing plasmonic trapping with a perfect radially polarized beam. Photon Res, 2018, 6: 847–852

59 Xiang Y, Tang X, Fu Y, et al. Trapping metallic particles using focused Bloch surface waves. Nanoscale, 2020, 12: 1688–1696

60 Kotsifaki D G, Chormaic S N. Plasmonic optical tweezers based on nanostructures: Fundamentals, advances and prospects. Nanophotonics, 2019, 8: 1227–1245

61 Juan M L, Righini M, Quidant R. Plasmon nano-optical tweezers. Nat Photon, 2011, 5: 349–356

62 Srituravanich W, Pan L, Wang Y, et al. Flying plasmonic lens in the near field for high-speed nanolithography. Nat Nanotech, 2008, 3: 733–737

63 Lemke C, Schneider C, Leißner T, et al. Spatiotemporal characterization of SPP pulse propagation in two-dimensional plasmonic focusing devices. Nano Lett, 2013, 13: 1053–1058

64 Frank B, Kahl P, Podbiel D, et al. Short-range surface plasmonics: Localized electron emission dynamics from a 60-nm spot on an atomically flat single-crystalline gold surface. Sci Adv, 2017, 3: e1700721

65 Podbiel D, Kahl P, Makris A, et al. Imaging the nonlinear plasmoemission dynamics of electrons from strong plasmonic fields. Nano Lett, 2017, 17: 6569–6574

66 Bliokh K Y, Smirnova D, Nori F. Quantum spin Hall effect of light. Science, 2015, 348: 1448–1451

67 Fang Y, Han M, Ge P, et al. Photoelectronic mapping of the spin-orbit interaction of intense light fields. Nat Photon, 2021, 15: 115–120

68 Fang Y, Guo Z, Ge P, et al. Strong-field photoionization of intense laser fields by controlling optical singularities. Sci China-Phys Mech Astron, 2021, 64: 274211

69 Biagioni P, Huang J S, Duò L, et al. Cross resonant optical antenna. Phys Rev Lett, 2009, 102: 256801

70 Gorodetski Y, Niv A, Kleiner V, et al. Observation of the spin-based plasmonic effect in nanoscale structures. Phys Rev Lett, 2008, 101: 043903

71 Prinz E, Spektor G, Hartelt M, et al. Functional meta lenses for compound plasmonic vortex field generation and control. Nano Lett, 2021, 21: 3941–3946

72 Du L, Xie Z, Si G, et al. On-chip photonic spin Hall lens. ACS Photon, 2019, 6: 1840–1847

73 Tan Q, Guo Q, Liu H, et al. Controlling the plasmonic orbital angular momentum by combining the geometric and dynamic phases. Nanoscale, 2017, 9: 4944–4949

74 Tsesses S, Cohen K, Ostrovsky E, et al. Spin-orbit interaction of light in plasmonic lattices. Nano Lett, 2019, 19: 4010–4016

75 Qin Y, Ji B, Song X, et al. Efficient plasmonic functional lens constructed via a nano-dichroic element. J Opt Soc Am B, 2021, 38: C58

76 Nagaosa N, Tokura Y. Topological properties and dynamics of magnetic skyrmions. Nat Nanotech, 2013, 8: 899–911

77 Tsesses S, Ostrovsky E, Cohen K, et al. Optical skyrmion lattice in evanescent electromagnetic fields. Science, 2018, 361: 993–996

78 Xia F, Wang H, Xiao D, et al. Two-dimensional material nanophotonics. Nat Photon, 2014, 8: 899–907

79 Schneider C, Glazov M M, Korn T, et al. Two-dimensional semiconductors in the regime of strong light-matter coupling. Nat Commun, 2018, 9:

2695

80 Mak K F, Xiao D, Shan J. Light-valley interactions in 2D semiconductors. Nat Photon, 2018, 12: 451–460

81 Mai C, Barrette A, Yu Y, et al. Many-body effects in valleytronics: Direct measurement of valley lifetimes in single-layer MoS_2. Nano Lett, 2014, 14: 202–206

82 Zheng S W, Wang H Y, Wang L, et al. Layer-dependent electron transfer and recombination processes in MoS_2/WSe_2 multilayer heterostructures. J Phys Chem Lett, 2020, 11: 9649–9655

83 Jin C, Ma E Y, Karni O, et al. Ultrafast dynamics in van der Waals heterostructures. Nat Nanotech, 2018, 13: 994–1003

84 Hu A, Xu X, Liu W, et al. Relaxation and transfer of photoexcited electrons at a coplanar few-layer 1 T′/2H-$MoTe_2$ heterojunction. Commun Mater, 2020, 1: 61

85 Chen Y, Qian S, Wang K, et al. Chirality-dependent unidirectional routing of WS_2 valley photons in a nanocircuit. Nat Nanotechnol, 2022, 17: 1178–1182

86 Ohta R, Okamoto H, Tawara T, et al. Dynamic control of the coupling between dark and bright excitons with vibrational strain. Phys Rev Lett, 2018, 120: 267401

87 Mrejen M, Yadgarov L, Levanon A, et al. Transient exciton-polariton dynamics in WSe_2 by ultrafast near-field imaging. Sci Adv, 2019, 5: eaat9618

88 Zhou L, Huang J, Windgaetter L, et al. Unconventional excitonic states with phonon sidebands in layered silicon diphosphide. Nat Mater, 2022, 21: 773–778

89 Tempelaar R, Berkelbach T C. Many-body simulation of two-dimensional electronic spectroscopy of excitons and trions in monolayer transition metal dichalcogenides. Nat Commun, 2019, 10: 1–7

Ultrafast photoelectron imaging with high spatiotemporal and energy resolution

QIN YuLu[1], WANG Rui[1] & LIU YunQuan[1,2,3*]

[1] *State Key Laboratory for Mesoscopic Physics, Collaborative Innovation Center of Quantum Matter, Frontiers Science Center for Nano-Optoelectronics, Beijing 100871, China;*
[2] *Yangtze Delta Institute of Optoelectronics, Peking University, Nantong 226010, China;*
[3] *Collaborative Innovation Center of Extreme Optics, Shanxi University, Taiyuan 030006, China*

The foundation of the development of flexible semiconductor and micro-nano ultrafast response devices in the post-Moore era is to measure and manipulate ultrafast optical physical processes in new materials and devices with extreme spatiotemporal small-scale. The spatiotemporal- and energy-resolved photoemission electron microscopy (PEEM) combines the pump-probe optical scheme with the electron microscopic imaging technology and possesses femtosecond-nanometer time-space resolution. It has evolved into an excellent ultrafast microscopy technique for investigating nanophotonics and low-dimensional device physics, leading to the revolutionary development of plasmonics, semiconductor science and related cross-disciplinary studies. In this review, we have summarized the application of PEEM in micro-nano plasmonic function devices, high-order plasmonic vortex fields, plasmonic skyrmion, and low-dimensional semiconductors. Finally, we discussed the future opportunities of PEEM.

the spatiotemporal and energy-resolved photoemission electron microscope, plasmonic function devices, high-order plasmonic vortices, plasmonic skyrmion, low dimensional semiconductor materials

PACS: 78.47.J-, 71.45.Gm, 74.25.Jb, 78.67.-n

doi: 10.1360/SSPMA-2022-0442