强场中的相干性证据
半导体的电子光发射

Marie Froidevaux[1], *, Ludovic Douillard[2], Willem Boutu[3], Milutin Kovacev[4], Philippe Zeitoun[1]和 Hamed Merdji[1], **

[1]应用光学实验室，法国国家科学研究中心，巴黎综合理工学院，巴黎国立高等先进技术学院，巴黎理工学院，帕莱索，法国[2]巴黎-萨克雷大学，法国原子能和替代能源委员会，法国国家科学研究中心，SPEC，91191，吉夫叙尔伊维特，法国[3]巴黎-萨克雷大学，法国原子能和替代能源委员会，法国国家科学研究中心，LIDYL，91191，吉夫叙尔伊维特，法国[4]汉诺威莱布尼茨大学，量子光学研究所，Welfengarten 1，D-30167，汉诺威，德国 *marie.froidevaux@ensta-paris.fr **hamed.merdji@polytechnique.edu

摘要
强场量子电子学正逐渐成为信息处理领域的潜在方向，但相干性与退相干仍是这一概念面临的主要问题。过去十年间，带隙材料中的强场相干过程推动了半导体高次谐波产生、拍赫兹电子学以及强场量子态的发展。然而，亚光学周期驱动电子的相干行为从未被直接观测到。本文报告了纳米结构半导体中热电子相干超短发射的实验证据。我们的方法利用亚波长电场增强，将电子发射局域在纳米尺度光斑内。我们发现，这种现象与强场区金属纳米尖端的电子发射具有相似之处；过去十年间，这一研究方向催生了广泛的应用。电子谱中呈现出驱动飞秒激光频率的奇次和偶次谐波级次，这是电子发射具有相干性及阿秒定时特征的标志。我们的发现完善了对半导体中相干强场过程所涉及现象的认识，并为开发未来在强场区运行的量子器件开辟了前景。

半导体科学与超快光子学的发展为探索新物理提供了广泛的可能性，尤其是在极端激光-物质相互作用区。其中，强场区是一个新兴研究领域，具有诸多前景广阔的应用，例如拍赫兹光波电子学[1–3]、量子信息[4, 5,]或强场拓扑[6, 7]。强场驱动的电子态控制可用于存储和处理量子信息，速度前所未有，方式也不同于经典光子学。低维材料等各类半导体以及功能化纳米结构的应用，为开发由激光完全控制的紧凑、可集成量子器件开辟了新的实践研究方向。我们在此研究强飞秒激光作用下热电子发射脉冲串的相干性。这种电子发射可能伴随着一种十年前在氧化锌半导体中发现的相干现象：高次谐波产生（HHG）[8]。谐波光子的相干性已实际应用于纳米尺度相干衍射实验[9,10]，也用于产生纳米结构拓扑光束[11]。然而，与半导体高次谐波发射在现象学上相关的电子发射相干本质，至今仍未被直接揭示。大多数关于纳米尺度电子发射的研究都涉及金属，尤其是金属针尖[11–18]。例如，Hommelhoff 等人报道了对钨针尖电子发射的阿秒控制[11]。关于半导体超快电子场发射的研究则很少。Borz 等人报道了一种基于单晶金刚石针的高效、无热损伤热电子光源[19]。这些研究均具有一个共同特征：电子能量分布曲线（EDC）上出现离散能量峰，峰间距等于驱动激光的一个光子能量。这是电子多光子场发射的标志，在原子阈上电离（ATI）中广为人知[20,21]。

在此，我们研究强场区内飞秒激光照射氧化锌（ZnO）纳米结构所产生的电子发射特性。这种称为阈上光电子发射（ATP）的电子发射现象，在测得的光谱中呈现出特征性的离散峰，相邻峰之间的间隔等于驱动激光的光子能量，对应于电子吸收的光子数；同时还呈现出特征性的强度依赖截止信号。ATP 峰的弹性特征表明，该过程由亚光学周期尺度上的强激光场驱动。

结果

电子发射的纳米尺度定位

通过对驱动激光进行亚波长聚焦，在半导体中达到强场区。实验示意图如图1**a**所示。用波长在680–1080纳米光谱范围内可调的飞秒激光从纳米结构ZnO晶体的底部（晶体背面）进行照射（见方法）。纳米锥结构化在光传播穿过结构的过程中产生波导效应，从而实现电场的亚波长增强[9]。利用聚焦镓离子束铣削加工的半导体结构，从两个视角展示于图1b、c中，图像由

扫描电子显微镜（SEM）。圆锥截断的顶部浅层发射的电子由光电子发射电子显微镜（PEEM）收集，该显微镜可进行空间成像和电子动能谱模式测量（见方法）。

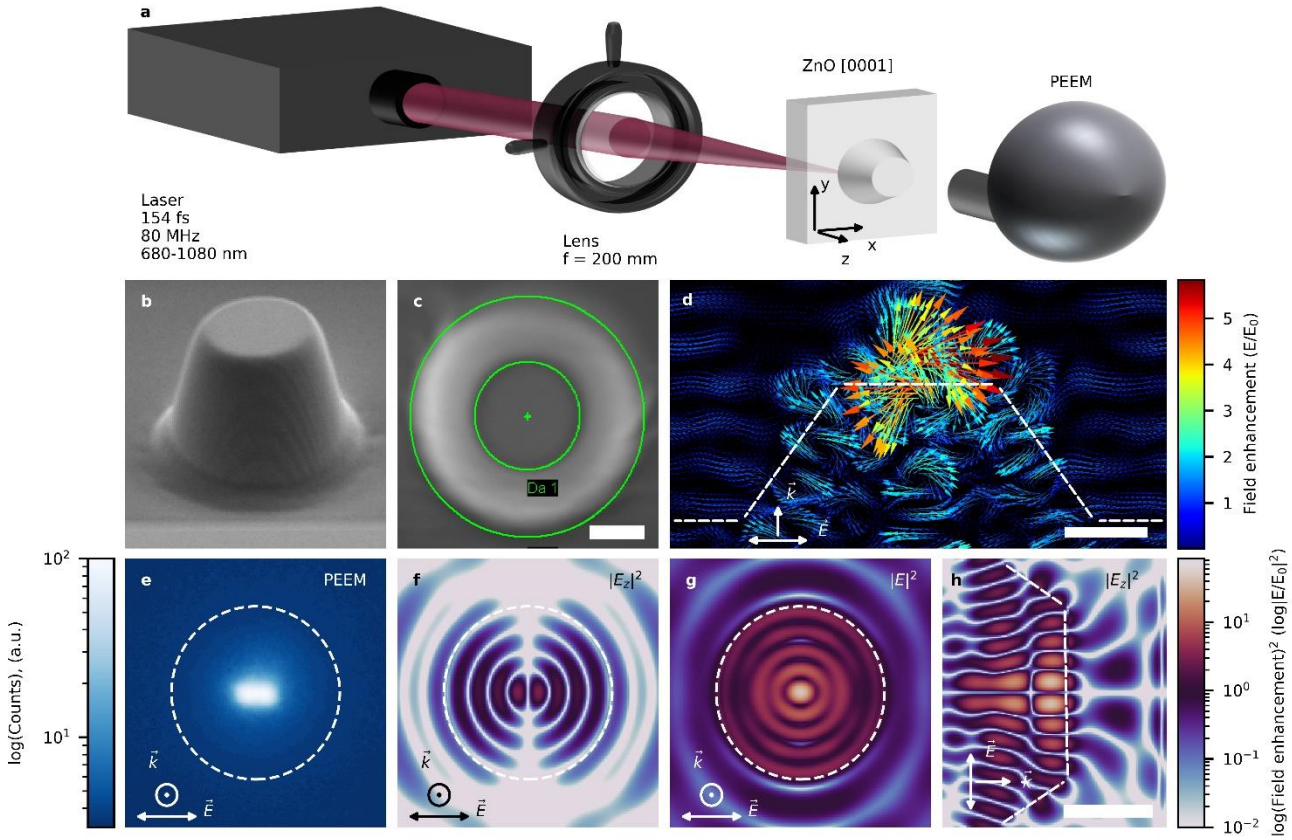

图1. 纳米结构半导体的场发射。a，实验装置示意图：强红外飞秒激光束以透射几何聚焦于刻蚀在500 μm厚[0001]氧化锌基底上的纳米结构圆锥中。发射的电子由光电子发射电子显微镜探测。b，截断纳米圆锥的60°视图（扫描电子显微镜）。c，纳米圆锥的扫描电子显微镜俯视图，白色标尺为1 μm。d，局部偏振方向的FDTD仿真，以颜色编码箭头表示（右侧显示相应色标）。白色标尺为1 μm。e，使用光电子发射显微镜测得的截断纳米圆锥顶部电子场发射（在802 nm辐照下）。f-h，针对用聚焦离子束制备的优化实际截锥，在802 nm激光波长下进行的线偏振电场分布FDTD仿真。f，xy出口平面上电场z分量的模平方；g，xy出口平面上总电场的模平方。h，沿xz截面的电场z分量模平方。f和h显示了e中两个细长波瓣的成因。E和k分别为电场和k矢量。图h右下角的白色标尺表示1 μm，适用于图f-h中的所有图像。图f-h共用相同的对数色标，范围为0.01至85。

有限差分时域法（FDTD）计算预测，电场振幅的局域增强接近两个数量级（见方法）。因此，聚焦后的入射激光光场在数十GW/cm^2 强度范围内，在氧化锌结构的顶部出口表面、亚微米区域内局部增强至数TW/cm^2 。简而言之，纳米结构圆锥可用作亚波长聚焦透镜。FDTD仿真可估算激光源在整个光谱范围内、采用任意定制偏振时的局域场增强。纳米结构圆锥实现的最大局域电场增强约为数V/nm。

光发射电子的实验空间分布显示出明显的局部电场约束（图1**e**）。对发射电子斑点空间轮廓的分析表明，其呈细长的双叶形，尺寸为 300x80 nm^2 （见图1**d**）。事实上，发射电子来自位于截锥顶点的发射区域，其对称性遵循不同激光激发偏振状态下提取电场 z 分量的分布，如图1**f**所示。两叶之间相距 55 nm，表明存在电场节点面，这与 FDTD 仿真结果一致。

半导体势垒弯曲

引入无量纲凯尔迪什参数 $\gamma = \sqrt{\frac{W}{2U_p}}$，以探究电子发射过程的主要机制。其中，W 为功函数，即从固体中移除一个电子所需的最低能量；$U_p = e^2E^2/4m_e\omega^2$ 为有质动力能；e 为电子电荷，E 为局部电场振幅，ω 为激光角频率，m_e 为电子质量。对于此处考虑的局部场强（最高达 TW/cm^2, γ~1），电子发射发生在多光子吸收与场发射同时进行的混合区间[18,22,23]。因此，电子发射机制采用场发射现象的框架来处理，与金属表面处于强静电场时的情况类似，即福勒-诺德海姆过程。电子信号源自电子隧穿势能垒。局部强度最高为 1 TW/cm^2 时，势垒降低了 3.31 eV。因此，有效势垒很低，不到 0.01 eV。估算得出，氧化锌在 300 K 下的电子平均自由程约为 3 纳米，约等于局部激光强度下势能垒的厚度（见图 2a）。从物理角度看，施加的电场可以动态影响势能垒（见图 2a）。事实上，在多周期区间内，脉冲期间势能垒可在不同光学周期之间发生变化，从而形成曲线的不同部分，分别对应于电子在表面势垒顶部以下（隧穿）和以上发射的情况[24]。

电子动能 ATP 特征

图2**b** 展示了圆锥的顶部热点处发射的电子的动能分布曲线。多光子光电子发射（MPPE）峰右侧的各个峰之间的间隔约为一个激光光子能量。

这是光电子发射过程具有 ATP 特性的明确证据[11,13,18]。 在此，多光子吸收辅助了动态场发射现象（见图2**a**），该现象发生在阿秒时间尺度上，并产生拍赫兹电子电流[1–3]。除离散的 ATP 峰外，氧化锌的电子能量分布曲线还呈现出高能平台特征，随后电子信号急剧下降。在金属中，这种平台是电子在固体表面发生散射过程的明确标志。再散射现象是指在一个光学周期内，电场反向后，场发射电子波包返回表面的过程。这一现象决定了可达到的最大动能，即电子的高截止能量。

图2**d** 展示了由在 784 nm 波长下记录、并通过可变阻滞电势（RP）调节的部分光谱拼接而成的动能分布。实验测得的电子动能曲线（图2**d** ）在视觉上可分为四个部分，暂且认为它们分别对应不同的物理过程：(1) 约 1.4 eV 处明显的多光子光电发射参考峰；(2) 参考峰左侧的多光子辅助场电子发射；(3) 主多光子光电峰右侧的平台（可直接观察到 4 个离散的次级峰）；(4) 高动能处的截止——这是强场发射和弹性散射（ATP 峰）的特征。平台 (3) 和高能量截止 (4) 的存在，与气体和带隙晶体中高次谐波产生光谱的观测结果相似。这体现了氧化锌半导体的强光场电子响应。

为进一步分析电子动能曲线，我们分别对多光子光电子发射（MPPE）峰下方和上方的 ATP 峰位置进行了线性拟合。如图2c、d 所示，最多可识别出 15 个多光子 ATP 峰（拟合结果以图2**d**中的灰色虚线表示），其中一半位于参考光电子发射峰（红色实线）下方或上方。原始数据中清晰可见前几个峰，其余峰则部分模糊。我们在图2b、d 中观察到，ATP 峰部分向低能量方向偏移，这可能有多种原因。Krueger 等人[13] 报告称，载波包络相位会导致弹性发射峰的可见度降低，但这种效应不适用于我们的长脉冲。在本研究中，为解释弹性散射峰的模糊，我们可以考虑 Schultze 等人报告的、每个光学周期内载流子注入导致的动态带隙缩小[25]，这会使光电子在多周期脉冲期间发生能量偏移。弹性峰模糊和偏移的另一种可能原因是非弹性过程，例如电子-电子碰撞；这类过程在氧化锌带隙附近相当显著[9]。此外，电子从价带态隧穿至导带态时可能会引起晶格变化，从而导致带隙缩减。然而，晶格对激光脉冲的响应发生在远长于电子过程的时间尺度上，因此不太可能影响脉冲期间 ATP 峰的发射。最后，ATP 峰’的能量展宽可能源于电子向探测器传播过程中的库仑相互作用。发射电子云会使较慢的电子后退、较快的电子前进，分别导致初始电子动能降低和增加，从而使 ATP 峰展宽[17]。

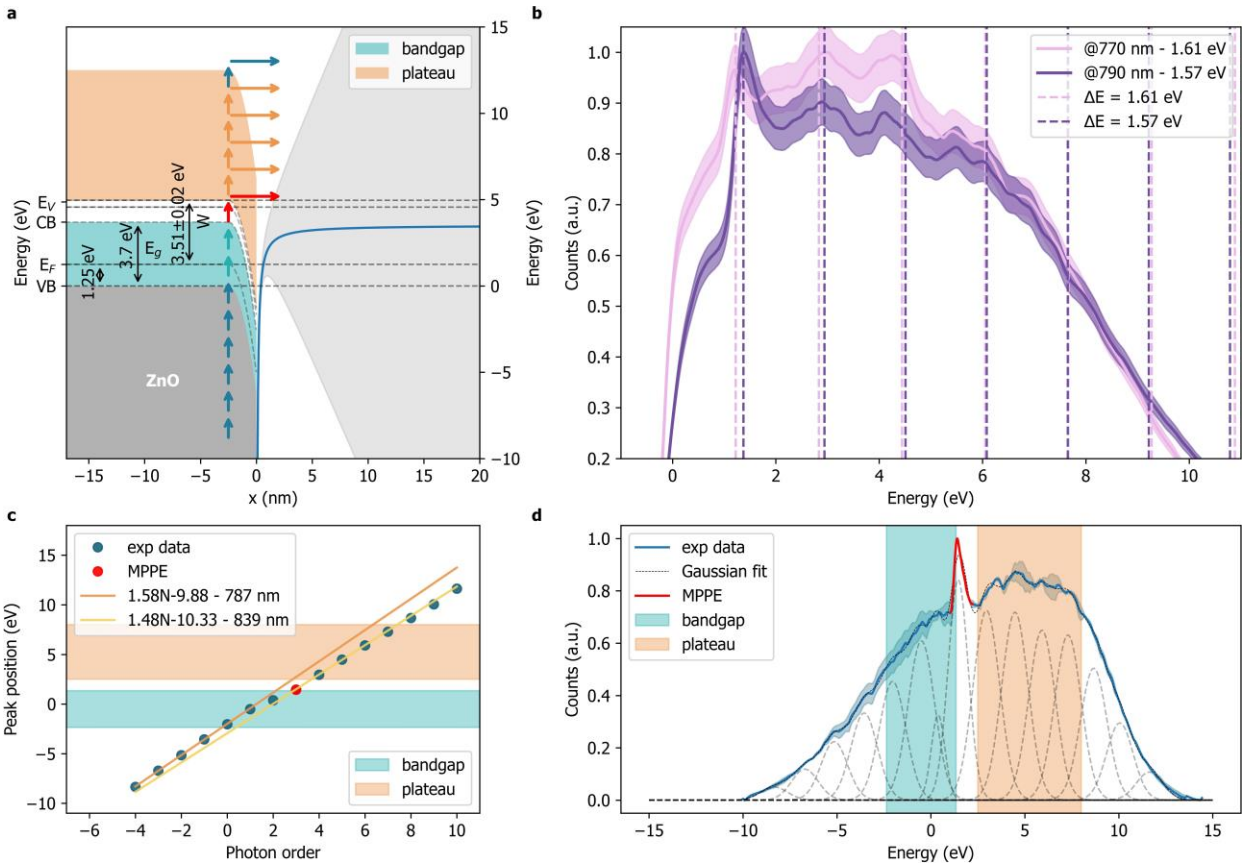

图2. 电子动能分布。a，氧化锌能级图示意图。电子所受势能用圆角准三角势垒建模，即肖特基-诺德海姆势垒模型（蓝线）。电场随 ±1.9 V/nm 的强度范围变化（灰色填充区域）。箭头和区域的颜色含义如下：红色——对应多光子光电子发射峰的电子（见正文）；橙色——从导带上方逸出并在 d 中形成平台的电子；青色——从带隙区域的虚能级逸出的电子。VB——价带，CB——导带，E_F——费米能级，W——功函数。箭头表示 1.58 eV（784 nm）。b，使用线性激光偏振测得的 770 nm（淡紫色）和 790 nm（紫色）下的电子能量曲线，激光强度分别为 0.48 和 0.46 TW/cm^2 。曲线周围的浅色区域表示 5% 的噪声区域。青色虚线与紫色虚线之间的距离分别对应于 770 nm（1.61 eV）和 790 nm（1.57 eV）下的一个激光光子能量，起点为多光子光电子发射峰。c，通过对多光子光电子发射峰之前以及平台区的实验数据进行多重高斯分布最小二乘拟合，从 d 中的电子能量分布曲线提取出的离散能量峰位置。d，784 nm 波长、0.51 TW/cm^2 激光辐照度下测得的完整线偏振电子能量分布曲线。光子能量在脉冲持续时间内相干叠加；势垒在灰色区域内变化时，电子从材料中逸出并形成电子能量分布曲线。蓝色实线为实验数据；实验数据周围的半透明蓝色区域是根据多个 RP 位置得到的平均曲线、最小曲线和最大曲线。灰色虚线和点线分别表示多个高斯拟合之和以及单独的高斯分布。

将中央峰归因于相干多光子吸收，基于两个物理依据。首先，在低激光辐照度下，电场效应并不显著，电子能量分布曲线仅呈现一个窄而单一的峰。其次，通过测量氧化锌的电子反射率曲线，已在原位测定其功函数[26–29]。

实验值（3.51±0.20 eV）与文献报道[30, 31]吻合良好。多重光电子发射峰低能侧的信号被解释为光电吸收辅助场发射现象的结果。Yanagisawa 等人[32] 研究了光辅助场发射条件下金属尖端超快电子场发射的效应。场发射电流主要取决于两个因素：（i）电子占据数；（ii）电子穿过表面势垒的透射概率。在金属中，电子分布遵循费米–狄拉克分布。激光照射时，多光子吸收导致单电子激发，从而改变电子分布，形成一种非平衡分布，其特征是阶梯状轮廓，并会在特征时间尺度为 100 fs 的电子-电子散射作用下逐渐变得模糊（相比之下，脉冲持续时间为 154 fs）。尽管这一相互作用机制是在金属体系中建立的，但只要考虑带隙特征，它应同样适用于半导体。因此，预计带隙内电子态数量较少会抑制多光子吸收过程。然而，电子信号的上升沿并未显示出材料带隙[33]的任何迹象。这一观察结果表明存在中间虚态（见图2**c**、**d**），并支持氧化锌纳米结构内部存在强电场振幅这一观点。请注意，仅考虑了直接（非线性）光电子发射峰之后的前四个峰。这样做的原因是，在动能较高时，能量展宽较大且峰强度较低，因此难以确定这些峰的确切位置。对峰值振幅的分析揭示了 6 个电子发射级次（阶梯状特征），对应于发生在多光子光电子峰能量以下的相干多光子吸收事件，因此其来源位于价带深处。由此，与激发电子主要来自费米能级的金属情况不同，这里的整个价带中的电子都参与了电子信号。再次，价带电子的信号表明晶体内部存在强电场，并且纳米结构几何形貌在局部增强了该电场。

电子截止能量

研究了局域光场对动能电子能量曲线截止能量的影响。在强场区，金属中原子电离所产生的电子表现出截止能量，按经典规律与有质动力能成正比，为 $10U_p$[34]。Seiffert 等人[35] 对介电纳米球强场光发射的分析揭示了短程俘获场的影响；若能量来自背向散射，截止能量可延伸至 $14.5U_p$，若来自再碰撞，则可延伸至 $9U_p$。在此，我们测量

截止能量与局部激光辐照度呈线性关系（见图3），这是纳米结构圆锥几何效应所致。截止能量取电子计数率最大值的 10%。通过参数β 对局部增强强度进行修正后，其延伸值为 14。5βU_P。我们对有质动力能应用显式的局域电场增强因子α, $U_p = \alpha^2 U_p^0$，其中 U_p^0 为初始激光强度，$\alpha = |E/E_0|$ 为总电场增强因子，通过 FDTD 仿真获得（因为电子在三维电场中获得能量），其值为 5.32。对截止能量 E_{cutoff} ~14.5βU_p 进行线性拟合，得到β 17.4±2.4（见图3）。

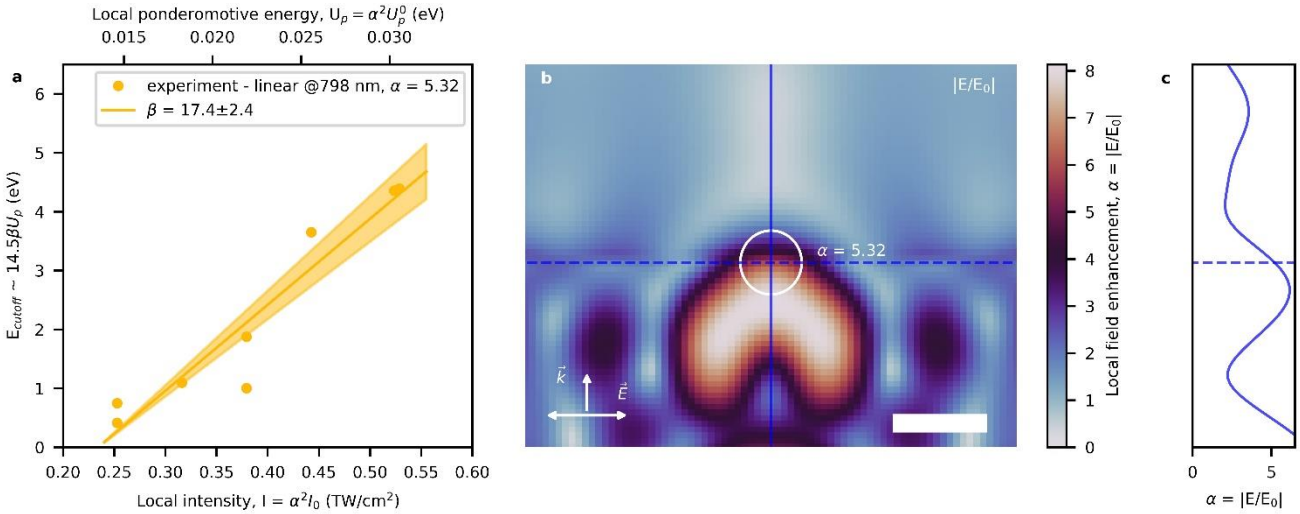

图3. 电子动能分布的截止能量。a，利用光电子发射显微镜（PEEM）实验测得的结构表面在不同辐照度下的电子动能分布。曲线周围的浅色区域表示 10% 的误差。b，沿 xz截面放大的总电场模平方图。蓝色虚线表示纳米结构的出口表面，白色圆圈表示通过时域有限差分模拟估算参数 α 的位置。蓝色实线描绘了 c 中电场的局域增强。白色比例尺表示 300 nm。c，沿激光场传播方向的总电场局域增强。蓝色虚线和实线的含义与 b 中相同。

高能量截止（最高可达氧化锌带隙的6倍）是以下两种因素共同作用的结果：(1)先前隧穿电离的电子在表面附近的增强近场中发生再散射；(2)残余离子和其他自由电子同样在表面附近产生的俘获势，这与Zherebtsov等人在介电纳米粒子中的研究类似。[36]在这里，我们认为这种效应源于驱动激光的多周期特性，因此电子在脉冲期间会多次加速，同时还会在纳米结构截锥附近的俘获场中加速，从而导致截止能量发生巨大移动。图2**b** 显示了两种不同波长下电子能量分布曲线的一部分（~12 eV宽度）。随着波长变化，可以观察到多光子光电子峰相对减弱，而高阶多光子峰

变得更加明显，这是金属中ATP里一种已知的现象[12]。这种现象称为通道关闭起始或阈值移动，发生在激光场存在时；激光场会移动连续态并提高电离势。因此，如果光致移动后的势垒超过某一光子阶数的能量，相应的峰将因交流斯塔克效应而受到抑制。

讨论

总之，我们报道了在飞秒激光脉冲驱动的纳米结构半导体中观测到 ATP。纳米结构化使氧化锌纳米锥出口平面的电场增强了近两个数量级，从而达到实现热电子发射所需的强场区。与金属尖端的电子发射相比，所提出的利用局域场增强实现相干脉冲热电子产生的方法不受热负荷影响。因此，电子发射随时间变化相对平稳，不会遭受快速材料退化。我们观测到弹性电子发射峰，其间隔等于驱动激光场的光子能量，这是发生在亚光学周期尺度上的相干散射过程的直接特征。我们还观测到 ATP 峰部分向低能量移动，这可归因于脉冲期间带隙缩减。除出现 ATP 峰外，相干光波电子发射还呈现出与强场区运行的金属纳米尖端相似的特征，例如较高激光能量下的峰抑制、平台以及能量截止。然而，在半导体中，电子源自价带。我们表明，电子发射显著增强，在局域强度为 1 TW/cm^2 时达到 6 eV 的截止能量。较大的截止能量可用半导体表面累积电荷引发的多光学周期多体效应来解释。与高次谐波产生类似，我们预计高带隙半导体会产生更高的 ATP 截止能量。

作为一种展望，我们的方法有望用于创建阿秒纳米尺度电子源，或为拍赫兹光电子学开辟新的方向。在更基础的层面上，我们的研究结果还可应用于其他强场效应，例如半导体中的再碰撞物理；这些效应可用于探测超快电子动力学。事实上，每个 ATP 峰都携带着电子波包在发射前传播过程中积累的信息，因此可用作探针，并有望达到阿秒和原子分辨率。最后，半导体中光电子发射的相干性质为强场量子信息开辟了途径，例如利用复杂激光波形研究强场拓扑或谷电子学[37]。事实上，对 ATP 峰作为读出观测量进行精细分析，可能会编码有关系统量子态的信息。

方法

FDTD 仿真

场增强模拟采用 LUMERICAL Solutions (Ansys Canada Ltd) 完成。有限差分频域 (FDTD) 方法能够模拟三维空间中可靠的光场分布，同时考虑材料的光学性质（如介电常数）以及光场参数：脉冲持续时间、波长、偏振和入射角。纳米结构波导中的电磁场局域增强针对光源的中心波长——800 nm 进行了优化，从而在截断纳米圆锥顶部（电子即从此处产生）获得最高的局域场强度。氧化锌的光学参数取自 Bond 等人[38]。周围介质为真空。该结构由样品背面入射的 800 nm 波长平面波照明。针对中心波长优化结构后，进一步在 750–850 nm 范围内重复模拟，以估算局域电场增强。边界条件采用完美匹配层。在 *x*、y、和*z* 方向上采用了 15 nm 的有限网格。每个结构的计算时间约为 3 小时，使用双处理器 Intel Haswell 10C E5-2650V3（10 核、20 线程、最高频率 3 GHz、总线速度 9.6 GT/s QPI、768 GB 寄存式 SDRAM（DDR4 2133，68 GB/s 带宽））。所得几何结构及增强结果如表 1 所示。

偏振 h (FDTD/SEM) θ (FDTD/SEM)		α (FDTD)	β (光电子发射显微镜)
线性	1.6 μ米/1.68 μ米	$35^0/36.4^0$	17.4±2.4

表 1. 针对线偏振态优化的纳米结构圆锥几何参数，其中 α 是氧化锌晶体纳米结构化所带来的局域电场增强因子，β 是电子截止能量增强因子，h 是圆锥从底部到顶部的高度，θ 是底部直径与圆锥侧边之间的角度，而总场增强是表示局域电场放大程度的相对值。

PEEM 装置

用于 PEEM 测量的激发光源是一套脉冲锁模 Ti:Al_2O_3 激光系统（Chameleon Ultra II，Coherent Inc.），可在 680–1080纳米光谱范围内提供可调谐光子（1.15–1.82 eV）（见图1**a**）。脉冲重复频率固定为 80 MHz。每个脉冲的脉宽为 154 fs。光束经一枚焦距为 200 mm 的透镜聚焦，以法向入射方式（0^0）照射样品背面。样品表面处的峰值功率密度处于亚 TW/cm^2范围。所用的光电子发射电子显微镜为商用仪器（Elmitec GmbH LEEM/PEEM III），在超高

真空下运行，压力处于低10^{-10}毫巴范围。低能电子显微镜（LEEM）和光电子发射显微镜（PEEM）成像模式下，通常可分别实现 10 nm 和 25 nm 的横向空间分辨率。仪器可在总电子产额模式（不进行能量过滤）或光谱模式下运行；光谱模式使用半球形能量色散分析器（能量分辨率为 150 meV）。实空间图像由电荷耦合器件相机（CCD）记录。在 PEEM 成像模式下，图像中给定区域的亮度与该区域的电子发射量成正比。积分光电子发射显微镜信号分两步计算：（1）背景扣除，即去除回归平面；（2）对代表性图像区域内的像素值进行积分。采集到的电子发射反映了纳米结构物体[26–29]表面的光学近场，[39]。

样品制备与表征

氧化锌 [0001] 晶体的表面通过聚焦离子束（FIB）铣削制备出彼此孤立的截断波导结构。研究人员制备了数种针对线偏振优化的结构。在 LEEM 成像模式下，通过测量电子反射率来确定氧化锌的功函数[26–29]，[39]。通过在新鲜解理的高定向热解石墨表面采集参考电子反射率曲线，确定功函数的绝对值。以高定向热解石墨表面 4.67 eV 的参考值为基准，可得到 3.51±0.02 eV 的数值。对于半导体而言，该能量是将电子从费米能级提取至真空所需的能量。

参考文献

1. Krausz, F. 与 Stockman, M. I. 阿秒计量学：从电子捕获到未来的信号处理。《自然·光子学》 **8**, 205, https://doi.org/10.1038/nphoton.2014.28 （2014）。

2. Schoetz, J. 等. 关于拍赫兹电子学和阿秒纳米显微术的展望。《ACS 光子学》**6**, 12,3057–3069 https://doi.org/10.1021/acsphotonics.9b01188 (2019).

3. Sederberg, S. 等. 固体中的阿秒光电子场测量。《自然·通讯》**11**, 1,https://doi.org/10.1038/s41467-019-14268-x (2020).

4. Tsatrafyllis, N. 等. 半导体与强激光脉冲相互作用后的量子光学特征 《物理评论快报》 122, 193602,

https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.122.193602 (2019).

5. Lewenstein, M. 等. 强激光–物质相互作用中光学薛定谔猫态的生成 《自然·物理》 17, 1104,

https://doi.org/10.1038/s41567-021-01317-w (2021).

6. Silva, R. E. F., Jiménez-Galán, A., Amorim, B., Smirnova, O. & Ivanov. 亚激光周期时间尺度上的拓扑强场物理。《自然·光子学》**13**, 849, https://doi.org/10.1038/s41566-019-0516-1 (2019)。

7. Jiménez-Galán, A., Silva, R. E. F., Smirnova, O. & Ivanov. 光波控制二维材料中的拓扑性质，实现亚周期和非共振谷操控。《自然·光子学》**14**, 728,https://doi.org/10.1038/s41566-020-00717-3 (2020)。

8. Ghimire, S. 等。块体晶体中高次谐波产生的观测。《自然·物理》**7**, 138,https://doi.org/10.1038/nphys1847 (2011)。

9. Franz, D. 等。单个纳米结构圆锥实现的全半导体增强高次谐波产生。《科学报告》**9**, 5663, https://doi.org/10.1038/s41598-019-41642-y （2019）。

10. Frohlich 等。通过半导体高次谐波产生实现的自探测拼接成像。arXiv 物理学https://doi.org/10.48550/arXiv.2206.08333 （2019）。

11. Hommelhoff、P.、Sortais、Y.、Aghajani-Talesh、A. 和 Kasevich、M. A. 场发射尖端作为纳米级自由电子飞秒脉冲光源。《物理评论快报》**96**, 077401, https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.96.077401 （2006）。

12. Schenk、M.、Krueger、M. 和 Hommelhoff、P. 尖锐金属尖端产生的强场阈上光电子发射。《物理评论快报》**105**, https://doi.org/10.1103/physrevlett.105.257601 （2010）。

13. Krueger, M., Schenk, M. & Hommelhoff, P. 纳米尺度金属尖端发射电子的阿秒控制。《自然》

475, 78–81, https://doi.org/10.1038/nature10196 (2011).

14. Yanagisawa, H. 等。超快激光诱导场发射的能量分布曲线及其对电子动力学的启示。《物理评论快报》 **107**,https://doi.org/10.1103/physrevlett.107.087601 (2011).

15. Yanagisawa, H. 利用飞秒激光脉冲实现位点选择性场发射源及其发射机制。《物理学年鉴》 **525**, 126–134, https://doi.org/10.1002/andp.201200251(2012).

16. Piglosiewicz, B. 等。载波包络相位效应对金属纳米结构中电子强场光发射的影响。《自然·光子学》 **8**, 37, https://doi.org/10.1038/nphoton.2013.288(2013).

17. Yanagisawa, H. 等。多电子 regime 下金属纳米尖端强场驱动隧穿中的延迟电子发射。《科学报告》 **6**, https://doi.org/10.1038/srep35877 (2016).

18. Krueger, M., Lemell, C., Wachter, G., Burgdörfer, J. & Hommelhoff, P. 纳米尺度尖端处的阿秒物理现象。《物理学杂志B：原子、分子与光学物理》 **51**, 172001, https://doi.org/10.1088/1361-6455/aac6ac (2018).

19. Borz, M. 等。单晶金刚石针的光辅助发射与多光子发射。《纳米尺度》**11**, 6852–6858, https://doi.org/10.1039/c9nr01001g (2019).

20. Agostini, P., Fabre, F., Mainfray, G., Petite, G. & Rahman, N. K. 氩原子经六光子电离后的自由-自由跃迁。《物理评论快报》 **42**, 1127–1130,https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.42.1127 (1979).

21. Freeman, R. R. 等. 亚皮秒激光脉冲引发的阈上电离。《物理评论快报》**59**,1092– 1095, https://doi.org/10.1103/physrevlett.59.1092 (1987).**22.** Keldysh, L. 关于半导体中碰撞电离理论。*JETP* **21**, 1135 (1965).**23.** Keldysh, L. 强电磁波场中的电离。*JETP* **20**, 1307 (1965).**24.** Zhou, S. 等. 基于纳米材料的超快场发射电子源。《先进材料》**1805845**,https://doi.org/10.1002/adma.201805845 (2019).

25. Schultze, M. 等. 硅中的阿秒带隙动力学。《科学》**346**, 1348,https://doi.org/10.1126/science.1260311 (2014)

26. Uenal, B. 等。准晶表面的功函数：二十面体 Al–Pd–Mn。《真空、表面与薄膜》 **27**, 1249–1250, https://doi.org/10.1116/1.3168561 (2009).

27. Anderson, M., Nakakura, C.Y., Saiz, K.F., & Kellogg, G.L. 使用低能电子显微镜成像氧化物覆盖的掺杂硅结构。使用低能电子显微镜成像氧化物覆盖的掺杂硅结构。MRS 会议录 1026, 1026-C15-03,

https://doi.org/10.1557/PROC-1026-C15-03 (2007).

28. Back, T. C. 等。定向凝固 LaB6–VB2共晶的功函数表征，Ultramicroscopy 183，67–71，https://doi.org/10.1016/j.ultramic.2017.05.006（2017）。29. Cauduro, A. L. 等。用于电子器件的MoOx薄膜功函数成像。Ultramicroscopy 183，99–103，https://doi.org/10.1016/j.ultramic.2017.03.025（2017）。30. Janotti, A. & de Walle, C. G. V. 氧化锌作为半导体的基础。Reports on Prog. Phys. 72，126501，https://doi.org/10.1088/0034-4885/72/12/126501（2009）。31. Krzywiecki, M. 等。氧化锌作为薄膜中的缺陷主导材料，用于光伏应用——缺陷能级的实验测定、组成的定量分析及能带图的构建。Phys. Chem. Chem. Phys. 17，10004–10013，https://doi.org/10.1039/c5cp00112a（2015）。32. Yanagisawa, H. 等。利用飞秒激光脉冲对场发射位点进行光学控制。《物理评论快报》103，257603，https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.103.257603（2009）。33. Calzolari, A. & Nardelli, M. B. 基于第一性原理有限差分/有限场方法的氧化锌介电性质和拉曼光谱。《科学报告》3，https://doi.org/10.1038/srep02999（2013）。34. Paulus, G. G., Nicklich, W., Xu, H., Lambropoulos, P. & Walther, H. 高于阈值电离光谱中的平台。《物理评论快报》72，2851–2854，https://doi.org/10.1103/physrevlett.72.2851（1994）。

35. Seiffert, L. 等：介电纳米球强场光发射中俘获场辅助的背向散射。 *J. Mod. Opt.* **64**, 1096–1103, https://doi.org/10.1080/09500340.2017.1288838(2017).

36. Zherebtsov, S. 等：强少周期激光场作用下介电纳米球近场增强电子加速的控制。《自然·物理》**7**, 656–662, https://doi.org/10.1038/nphys1983(2011).

37. Priebe, K. E. 等. 超快透射电子显微术中的阿秒电子脉冲串与量子态重构。《自然·光子学》 **11**, 793–797,https://doi.org/10.1038/s41566-017-0045-8 (2017).

38. Bond, W. L. 几种晶体折射率的测量。 *J. Appl. Phys.* **36**, 1674–1677,https://doi.org/10.1063/1.1703106 (1965).

39. Babout, M., Guittard, C., Guivarch, M., Pantel, R. & Bujor, M. 应用于功函数变化连续局部测量的镜面电子显微术。 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **13**, 1161–1167,https://doi.org/10.1088/0022-3727/13/7/011 (1980).

致谢

PETACom（拍赫兹光电子通信）FET Open H2020 项目，资助编号 829153 / OPTOLogic（光拓扑逻辑）FET Open H2020 项目，资助编号 899794 / TSAR项目（反铁磁体中的拓扑孤子）FET Open H2020 项目，资助编号 964931。我们感谢法国国家研究署通过 PACHA（编号 ANR-17-CE30-0008-01）、FLEX-UV（编号 ANR-20-CE42-0013-02）和 ATTOCOM（ ANR-21-CE30-0036-02）项目提供的资金支持。我们感谢法国ASTRE计划通过“NanoLight”项目提供的资金支持。作者感谢 Jocelyne Leroy（CEA Saclay/DRF/IRAMIS/NIMBE）对氧化锌进行 XPS测量。

作者贡献声明

作者贡献

H.M. 提出了这一想法并监督了项目。M.F. 进行了模拟。W.B. 使用聚焦离子束制备了样品。L.D. 进行了 PEEM 测量。M.F.、L.D.、P.Z. 和 M.K. 进行了数据分析。所有作者均讨论了研究结果，并参与撰写了论文。