

原子尺度電子全像術

魏金明

遠自1948年Gabor¹就曾提出電子全像術(electron holography)的概念，希望利用此方式達到突破電子顯微鏡因電鏡色散所伴隨之解析度瓶頸，而進一步達到原子尺度的要求。Gabor借用可見光全像術的概念，認為使用「單色電子」，亦即單一能量高度相干的電子物質波為參考波(reference wave)，而經原子散射之電子波為對物波(object wave)，則此二者的干涉圖像即形成電子全像(electron hologram)。然而由於單色電子之難以製備，一直到70年代的後期Tonomura²使用場發射(field-emission)產生單一能量高度相干的電子源，才使得電子全像術的產生成為可能。Bartell和Ritz³則利用樣品內部產生之電子參考波，來image稀有氣體原子之電子雲。

1986年，Szoke⁴首先推測固體內部局部發射之電子源（例如光電子或歐傑電子）具有產生原子尺度三度空間全像的可能性。Szoke提議經由測量及重建一個光電子全像(photoelectron hologram)，此種原子尺度的電子顯微術可利用光電子來完成。到1988年，Barton⁵進一步說明Szoke的理念，指出光電子繞射(photoelectron diffraction)現象可詮釋為光電子全像術(photoelectron holography)。當一個光電子經由不同路徑到達偵測器，就形成光電子繞射。一個基本路徑是光電子被激發出來以後直接到達偵測器，其它的路徑則是光電子經由鄰近原子彈性散射之後到達偵測器。此兩種不同路徑可分別視為參考波及對物波

，因此光電子繞射圖案可視為一全像。亦即二維之光電子繞射圖案，是可利用數學的傅立葉轉換，重建產生固體三度空間影像的光電子全像。為了測試光電子全像重建產生三度空間影像的可能性，Barton利用量子力學多重散射理論，計算模擬C(2×2)S/Ni(001)系統中S原子(1s)光電子的繞射圖案，並將此以S原子為局部發射電子源所形成之光電子全像，經由二維之傅立葉轉換以重建產生Ni原子三度空間的影像。Barton的理論模擬得到某種程度的成功，因此使得原子尺度電子全像術(atomic-scale electron holography)新技術的開發，逐漸受到人們的重視。

1990年，Saldin和Andres⁶指出含有無序不規則排列吸附原子的單晶表面系統，經由入射電子產生的擴散性低能電子繞射圖案(diffuse LEED pattern)可視為一電子全像。擴散性低能電子繞射圖案的產生，乃是入射電子受到單晶表面的彈性散射以及吸附原子至少一次的彈性散射所形成。Saldin和Andres指出可將經由不同的多重散射路徑到達偵測器的電子分為兩大類：一類是經由單晶表面及吸附原子的多重散射後，最後經由吸附原子的彈性散射後直接到達偵測器；另一類則是經由單晶表面及吸附原子的多重散射後，最後經由單晶表面原子的彈性散射後直接到達偵測器。此兩類不同路徑所形成之電子波，可分別視為參考波及對物波，因此擴散性低能電子繞射圖案可視為一電子全像。Saldin和Andres利用量子力學多重散

射理論，計算模擬O/Ni(001)系統的擴散性低能電子繞射圖案，並嘗試將此圖案作傅立葉轉換以得到Ni原子三度空間的影像。雖然Saldin和Andres的理論模擬並不成功，但是這種將擴散性低能電子繞射詮釋為一電子全像的理念，卻引起了人們的注意，並使得原子尺度電子全像術的研究，成為近年來表面科學研究中一個相當熱門的課題。

原子尺度電子全像術所以會引起廣泛的興趣與重視，乃是這種新技術是一個完全直接的方法(direct method)，僅需使用非常簡單的傅立葉轉換，即可得到原子三度空間的影像，完全不需複雜的多重散射理論計算。長久以來，使用電子繞射研究表面結構的方法是以一種嘗試與錯誤的方式在進行。經由假設許多不同的表面結構，使用量子力學的方法及多重散射的技術，計算電子的繞射圖案及能量曲線，並將所有的理論計算與實驗測量結果，依據R-factor的理論相比較，從而找出與實驗測量最接近之理論結果，以決定正確的表面結構。這種嘗試與錯誤的方法，由於所需計算表面結構的數目至少需要數千多乃至數十萬，因此需要大量的電腦使用時間及可觀的人力資源。又由於此種理論計算之複雜性及困難度，僅有少數的專家可以勝任，因此可以想見利用這種嘗試與錯誤的方法決定表面結構的困難程度。然而原子尺度電子全像術僅需將實驗數據作傅立葉轉換，即有可能到正確無誤地原子尺度三度空間的表面結構，因此令人們感到特別的興奮與期待！

然而理論發展至今，對於如何重建電子全像以得到正確的表面結構，卻有極大的爭議。一般而言，電子全像重建過程中產生假效應(artifacts)的原因有下列三種：

- 一、電子參考波的非等向性波前；
- 二、原子散射因子的相位移及非等向性振幅；
- 三、電子的多重散射效應。

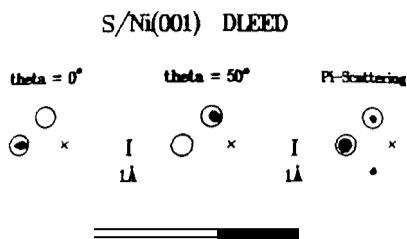
由Saldin⁷和由Fadley⁸領導的研究群，經由修正電子參考波的非等向性波前效應以及修正被鄰近原子散射

產生的相位移、非等向性振幅效應，從事於單一能量流程(single energy inversion algorithm)電子全像重建之研究。他們宣稱使用這種單一能量流程，應用於已知之晶體表面結構，可以得到滿意的結果。因此他們進而推論只需使用單一能量電子全像重建之流程，即可成為威力強大的表面結構分析工具。然而似乎只有少數的表面結構在特殊的能量下，或因其鄰近原子散射能力非常微弱且其電子參考波的波前近乎圓形波前，單一能量流程或許能幸運地產生正確的表面結構。最重要的原因乃是電子的多重散射效應在影像重建過程中產生的假效應，無法經由單一能量流程全像重建的方式來消除。事實上，由Tong⁹、由Stuck¹⁰和由King¹¹領導的研究群，經由理論計算模擬及實驗測量分析，證明單一能量電子全像重建之流程，無法正確而有效地重建表面結構。

在理論方面，最重要的問題是如何處理電子多重散射所造成的假效應。為了解決這個問題，Tong¹²、Barton¹³和Wei¹⁴乃分別提出「多重能量相位疊加」的流程(multiple-energy phase-summing algorithm)，以重建出高真實度及高解析度的三度空間影像。多重能量相位疊加流程之所以能消除電子多重散射產生的假效應，是因為不同能量之真實影像的振幅經相位疊加可以累積起來，然而多重散射所造成之假效應的振幅在相位疊加時則會彼此相消。因此多重能量相位疊加流程可以得到正確的原子三度空間影像，而多重散射產生的假效應，則在相位疊加時隨著能量點的增加而逐漸消失。

圖一¹⁵顯示的是筆者利用量子力學多重散射理論，模擬(2×1)Na/Si(001)系統中Na原子(1s)電子的繞射圖案，並將其經傅立葉轉換重建產生的Si原子三度空間的影像。圖一的左上、右上及左下是電子能量在60，100及176eV，經由單一能量流程所得到的影像，在不同能量下的影像都有許多的假效應。圖一右下則顯示電子能量在60至220eV的範圍，經由多重能量相位疊加流程重建出的影像，在Na原子下Si(001)表面第

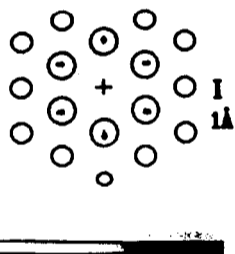
物理雙月刊(十四卷六期)1992年



圖一 利用量子力學多重散射理論，模擬(2×1)Na/Si(001)系統中，Na原子(1s)電子的繞射圖案經傅立葉轉換重建產生的第一層Si原子的影像。左上(60eV)、右上(100eV)及左下(176eV)是由單一能量流程所得到的影像，右下(60至220eV)則是由多重能量相位疊加流程重建出的影像。

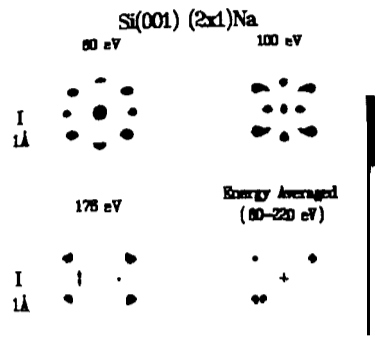
一層的四個Si原子的影像可以完全清楚地被看到而沒有任何其它的假效應。比較單一能量流程和多重能量相位疊加流程所重建出的影像，可以毫無疑問地看出多重能量相位疊加流程的優點。然而多重能量相位疊加流程所須要付出的代價，則是將近十倍於單一能量流程的實驗數據，因此我們可以簡單地說「天下絕對沒有白吃的午餐」。圖二¹²所顯示的是理論模擬(1×1)Co/Cu(111)系統中，Co原子(3p)光電子全像重建產生Co原子表面同一層18個Co原子的影像。圖三¹⁴則顯

Cu(111) (1x1)Co



圖二 利用量子力學多重散射理論，模擬(1×1)Co/Cu(111)系統中，Co原子(3p)光電子全像重建產生Co原子表面同一層18個Co原子的影像。圓圈中心代表Co原子的位置。

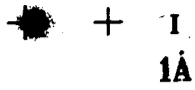
示理論模擬C(2×2)S/Ni(001)系統擴散性低能電子全像，電子在不同的入射條件下重建產生的Ni原子的影像。從以上的量子力學多重散射理論模擬，可以看出利用多重能量相位疊加流程的原子尺度電子全像術之解析度可小於1Å，此種具有次原子尺度解析能力的新技術，無疑地將對今後表面科學之研究與應用產生重大的影響。



圖三 利用量子力學多重散射理論，模擬C(2×2)S/Ni(001)系統擴散性低能電子全像，在不同的入射條件下重建產生Ni原子的影像。圓圈中心代表Ni原子的位置。

以上所顯示的原子重建影像，似乎只是理論模擬的結果，然而在真實世界中，是否如此地美好呢？答案應是完全肯定的！在此顯示筆者在今年十月底分析出來的世界上第一個使用擴散性低能電子繞射實驗結果及多重能量相位疊加流程，重建出來的高真實度原子影像。圖四¹⁶顯示在K/Ni(001)系統中，電子在垂直入射的條件下，利用實驗測量的擴散性低能電子全像，重建產生的Ni(001)表面第二層Ni原子的影像。此項實驗結果毫無疑問地可以證實原子尺度電子全像術，即將發展成爲一威力強強大且直接的表面結構研究之新技術，對今後表面科學之研究與應用的影響是完全無法估計的。

K/Ni(001) DLEED (exp)



圖四 在K/Ni(001)系統中，電子在垂直入射條件下，利用實驗測量的擴散性低能電子全像，重建產生的Ni(001)表面第二層Ni原子的影像。

原子尺度電子全像術的理論基礎已完全建立起來，而其可行性亦已經實驗結果加以證實。然而這種新技術所需要的實驗數據，卻至少是傳統嘗試與錯誤方法所需要實驗數據的數十倍，因此在實驗上如何有效地測量實驗數據或發展新而快速的實驗測量技巧，已成為原子尺度電子全像術發展為成熟技術的要件之一。

參考文獻：

- (1) D. Gabor, Nature (London) 161, 777 (1948); Proc. Roy. Soc. London A 197, 45 (1949).
- (2) A. Tonomura, Rev. Mod. Phys. 59, 639 (1987); A. Tonomura, T. Maatsuda, J. Jindo, H. Todokoro and t. Komoda, J. Electron Microsc. 28, 1 (1979).
- (3) L. S. Bartell and C. L. Ritz, Science, 185, 1163 (1974).
- (4) A. Szoke, in Short Wavelength Radiation: Generation and Applications, edited by D. T. Attwood and John Boker, AIP conference Proceedings No. 147 (American Institute of Physics, New York, 1986).
- (5) John J. Barton, Phys. Rev. Lett., 61, 1356 (1988).
- (6) D. K. Saldin and P. L. de Andres, Phys. Rev. Lett., 64, 1270 (1990).
- (7) D. K. Saldin, G. R. Harp, B. L. Chen and B. P. Tonner, Phys. Rev. B44, 2480 (1991); M. A. Mendez, C. Gluck, J. Guerrero, P. L. de Andres, K. Heinz, D. K. Saldin and J. B. Pendry, Phys. Rev. B45 9402 (1992).
- (8) S. Theuvthasen, G. S. Herman, A. P. Kaduwela, R. S. Saiki, Y. J. Kim and C. S. Fadley, Phys. Rev. Lett., 67, 469 (1991).
- (9) S. Y. Tong, H. Huang and Li Hua, in Advanced in Surface and Thin Film Diffraction, eds. T. C. Huang, P. I. Cohen and D. J. Eaglesham, MRS Symp. Proc. 208, p.13 (MRS, Pittsburgh, 1991); H. Huang, Hua Li and S. Y. Tong Phys. Rev. B44, 3240 (1991).
- (10) A. Stuck, D. Naumovic, H. A. Aebischer, T. Greber, J. Osterwalder and L. Schlapback, Surf. Sci. 264, 380 (1992).
- (11) P. Hu, C. J. Barnes and D. A. King, Phys. Lett., 183, 521 (1991).
- (12) S. Y. tong, Hua Li and H. Huang, Phys. Rev. Lett., 67, 3102 (1991); S. Y. Tong, H. Huang and C. M. Wei, Phys. Rev. B46, 2452 (1992).
- (13) J. J. Barton, Phys. Rev. Lett., 67, 3106 (1991); J. J. Barton and L. J. Terminello, in The Structure of Surfaces-III, eds. S. Y. Tong, M. A. Van Hove, X. Xie and K. Takayanagi, Springer, Berlin (1991).
- (14) C. M. Wei and S. Y. Tong, Surf. Sci. Lett., 274, L577 (1992).
- (15) C. M. Wei and S. Y. Tong (unpublished).
- (16) C. M. Wei, S. Y. Tong, M. A. Mendez, C. Gluck and K. Heinz (to be published).

作者 魏金明，現任職於中央研究院物理研究所

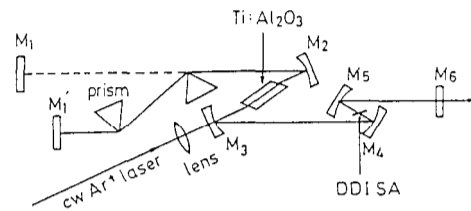
連續波與短脈衝鈦藍寶石雷射 的一些特性

潘屏靈

最早的微微秒(10^{-12} 秒)光脈衝是由Q開關/被動鎖模的紅寶石及鈹玻璃雷射產生的。1980年後飛秒(10^{-15} 秒)級碰撞脈衝鎖模(colliding pulse mode-locking, 簡稱CPM)染料雷射成為超快光學研究的主要工具, 獨領風騷約十年之久。最近兩三年來由於固態雷射材料上的突破, 許多科學家開始再度嘗試利用固態雷射產生飛秒脈衝, 其中尤以鈦藍寶石(Ti:sapphire)雷射最受矚目—它的波長可調範圍為680-1050nm, 具高飽和強度使其適合作為雷射放大器, 而其雙折光特性與非線性效應更提供了多種可產生短脈衝的可能鎖模機制。

最近一年來我們也研究了連續波及鎖模鈦藍寶石雷射的一些有趣的物理現象。首先我們探討了以DDI染料溶液為飽和吸收體的被動鎖模鈦藍寶石雷射(圖一)的脈衝形成動力學[1]。此雷射可輸出數微微秒或150飛秒(腔內加一對補償色散用稜鏡對後)的光脈衝。

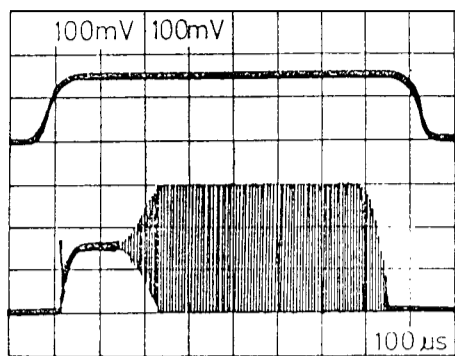
當此雷射輸出穩態(steady state)微微秒脈衝時, 其動態特性如下(圖二): 一開始飽和吸收體只扮演共振腔中光損耗元件的角色, 雷射輸出仍為連續波, 此一階段(階段I)經歷時間約為 $140\mu\text{s}$ (相當於光子在腔內走了14,000週), 在此段時間內, 腔內光強度作弛張式振盪(relaxation oscillation)並急劇增加, 最終光強度足以將吸收體漂白(bleached, 變成透明之意), 雷射輸出被調制, 開始以脈衝輸出。脈衝



圖一 被動鎖模鈦藍寶石雷射架構圖: 微微秒輸出時光路在 M_2 鏡經虛線至 M_1 , 飛秒輸出光路由 M_2 經稜鏡對又 M_1' ; DDI SA是作為飽和吸收體的DDI染料溶液。

衝寬度在 $60\mu\text{s}$ 內由約60微微秒降至約10微微秒, 達到穩態微微秒脈衝總共約耗時 $370\mu\text{s}$ (階段II)。在階段(II)中, 脈衝寬度有振盪現象, 這是由於腔內使脈衝縮短的力量(主要是飽和性增益與吸收)與使脈衝變寬的力量(自相調制, self-phase modulation及群速擴散, group velocity dispersion)的聯合作用。在脈衝建立的同時, 雷射輸出頻譜也在變化。首先在階段(I), 即連續波工作區變窄, 因為鈦藍寶石雷射躍遷屬均質性擴張(homogeneous broadening), 造成不同雷射模彼此競爭雷射可提供的增益。在階段(II), 雷射輸出頻譜的藍光區(即短波長部分)逐漸增強, 頻譜也隨之變寬, 頻寬與脈衝寬乘積 $\tau_p \Delta\nu$, 遠大於轉換極限(transform limit), 顯示輸出脈衝因鈦藍寶石棒的色散及自相調制而有相當大的啁啾(chirping)效應。再者飽和性增益有削尖脈衝後緣的

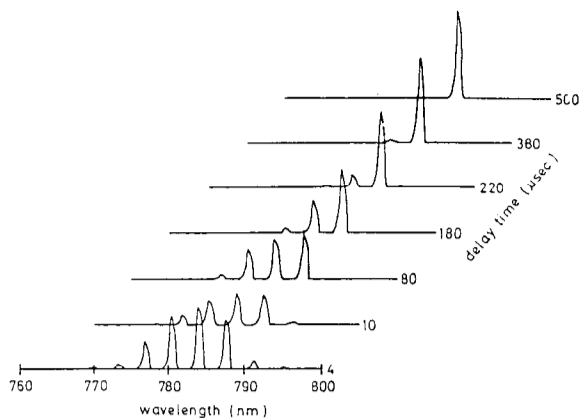
作用，使觀測到的穩態微微秒脈衝頻譜顯示藍偏移 (blue shift)現象。



圖二 上半的曲線是用來泵鈦藍寶石雷射的氬離子脈衝，半高寬約800 μ s，上昇時間約30 μ s。下半的曲線是用高速PIN光偵測器量得的鈦藍寶石雷射輸出。

連續波雷射輸出如何趨近穩態也是一個很有趣的課題。一般雷射教科書都有討論雷射輸出功率如何經弛張振盪趨近穩態值，輸出頻譜的演變在文獻中並無報導。由於鈦藍寶石雷射躍遷的激態生命期長達3.2 μ s，穩態建立所須時間很長，作此實驗比較容易。我們發現雷射輸出光譜在初期由數個尖峯（相距約3.6nm）組成（圖三）。每個尖峯事實上是由一叢雷射模（模間距100Hz，本實驗中無法解析）組成。這些尖峰在雷射起動時都進行弛張式振盪且週期均為6 μ s左右。中心波長在787.5nm的尖峯強度逐漸增強，而其他的尖峯則逐漸減弱，最後消失，離787.5nm愈遠的尖峯衰滅的愈快。由雷射起動至穩態單一尖峯約耗時500 μ s，而雷射輸出功率在20 μ s內就達到穩態值。在頻譜因增益競爭而變窄時（即尖峯數減少），總輸出功率並無變化。輸出功率及頻譜趨於穩態時間相差達一個數量級以上。我們的解釋是增益最强的尖峯隨時間的演變和各尖峯間增益的差有關，相差愈小，所須建立穩態頻譜分布的時間愈長，這結果與由速率方程式模擬的結果吻合[2]。

• 622 •

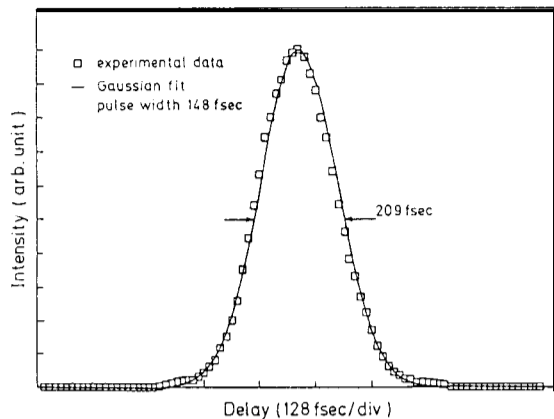


圖三 連續波鈦藍寶石雷射輸出頻譜演變情形延遲時間等於零時對應雷射剛起動(laser onset)

一般相信作為飽和吸收體的染料溶液具自行起動 (self-starting)功能，使鈦藍寶石雷射開始鎖模，但飽和吸收體對穩態脈衝寬度的影響還不是很清楚，DDI染料的激態生命期約17微微秒，但實驗證明我們能使用此雷射產生3-5微微秒乃至於150飛秒的光脈衝。為探討此現象我們觀察了DDI濃度對雷射輸出的影響[3]。首先，不論輸出為微微秒或飛秒脈衝，起動濃度範圍均為 2×10^{-4} M至 1.2×10^{-3} M。飛秒脈衝的脈衝寬度與頻寬不受染料溶解濃度的影響，脈衝波形是高斯狀而頻譜則呈對稱的Sech²函數狀分布，此時 $\tau_p \Delta \nu = 0.58$ ，比脈衝及頻譜分佈均為高斯或均為Sech²時的轉換極限值都大。微微秒脈衝的頻譜有數個尖峯，相距約3.3nm。當濃度增加時，頻譜中心頻率有紅偏移現象，頻譜不再對稱並變窄，這可由DDI的吸收光譜與鈦藍寶石的增益頻譜中心波長分別在710與800nm解釋。當DDI濃度由 2.5×10^{-4} M增至 1×10^{-3} M時，脈衝寬度由約8微微秒降至3微微秒，對應的自相關函數 (autocorrelation function)由Lorentz分布逐漸演變為雙邊指數函數形式。我們的解釋如下：此雷射產生的微微秒脈衝波形是非對稱的，因為飽和型吸收使脈衝的前緣變陡而濃度增加時使得前緣更為陡峭，因此脈衝波形會隨著濃度改變。上述實驗證據顯示，雖然DDI的激態生命期僅17微微秒，在我們的微微秒被動

物理雙月刊（十四卷六期）1992年

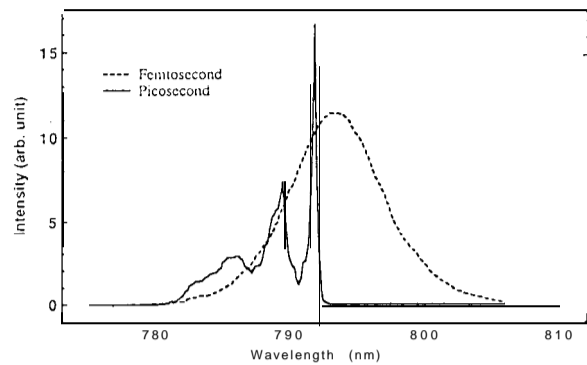
鎖模鈦藍寶石雷射裡，它的行為類似“慢”型飽和吸收體。濃度對脈衝寬度的影響顯示非線性的脈衝縮短力，即雷射棒中的Kerr效應，對微微秒脈衝並不重要，而對飛秒脈衝形成則居主導地位。



圖四 被動鎖模鈦藍寶石雷射輸出150飛脈波的光強度自相關函數，□是實驗數據，實線是高斯曲線。

前述實驗中連續波及短脈衝雷射暫態頻譜中觀察到的由一叢叢的縱向模組成的數個尖峰狀頻譜是由鈦藍寶石雷射棒的雙折光性造成的。若雷射晶體的C-軸與腔內光場偏極化方向不同，則兩端面切成Brewster角的鈦藍寶石雷射棒相當於置於兩偏光器中的雙折光性材料。此組合具有濾光功能，用20mm長的雷射棒時，此等效濾光器的自由頻譜間距（Free Spectral Range，簡稱FSR）應為3.9nm，而用8mm雷射棒時，FSR應為9.6nm，與連續波實驗結果相當吻合。就脈衝雷射而言，是否看到這個現象則與脈衝寬度，雷射棒長均有關。以20mm長的雷射棒為例，P及S偏極化的光通過晶體的時間差約1微微秒，若脈衝寬度短於此，脈衝的P及S偏光分量間的干涉就不復存在，因此穩態飛秒脈衝的頻譜完全看不到尖峰。對數微微秒寬的光脈衝，尚有部份干涉效應，仍能看到由濾光作用產生的數個尖數，但其對比則較連續波的情形為低（圖五）。我們也測量了飛秒雷射物理雙月刊（十四卷六期）1992年

射脈衝的頻譜演變情形，的確在雷射起動初期（即仍在階段(I)，雷射輸出為連續波時）可觀察到兩個由雙折光現象產生的尖峰，分別在788.6及785.3nm，證實了我們的模型。[4]



圖五 被動鎖模鈦藍寶石雷射穩態輸出的頻譜，實線：微微秒脈衝，虛線：飛秒脈衝。

本文報導了最近我們對鈦藍寶石雷射研究的一些結果，就鎖模鈦藍寶石雷射而言，其脈衝形成動力學及自行起動特性還有許多待探討的課題，我們目前正積極研究中，希望不久之後有進一步的結果在此報告。

參與本文報導之研究工作的人員包括交大光電所的賴暎杰及張振雄教授，電物系的吳光雄教授，甫畢業自交大光電所的郭建成博士（現任職於中山科學）及光電所博士班研究生黃欽德與謝嘉民。8mm雷射棒借自中研院原分所張大釗博士，謹致謝忱。這項研究是國科會工程處資助的。

參考文獻：

- (1) J.-C. Kuo, J.-M. Shieh, C.-D. Hwang, C.-S. Chang, and C.-L. Pan, K.-H. Wu, "Pulse-forming dynamics of a CW passively mode-locked Ti:sapphire/DDI laser" *Opt. Lett.* **17**(5),pp.334-336, 1992.
- (2) C.-L. Pan, J.-C. Kue, C.-D. Hwang, J.-M. Shieh, Y. Lai, and C.-S. Chang, K.-H. Wu, "Buildup

dynamics of the spectrum and the average output power of a nomo-geneously broadened continuous-wave Ti:sapphire laser” , *ibid.* 17(14), pp.994-996, 1992.

(3) C.-L. Pan, C.-D. Hwang, J.-C. Kuo, and J.-M. Shieh, K.-H. Wu, “ Effect of dye concentration on pica-second and femtosecond passively mode-locked Ti:sapphire/DDI lasers” , *ibid.*, 17(20), Oct. 15, 1992.

(4) C-L. Pan, C-D. Hwang, J.-C. Kuo, and J.-M. Shieh, K. H. Wu, “ Birefringence-induced spectral features in continuous-wave and passively mode-locked Ti:sapphire lasers” , *ibid.* 17(21), Nov. 1, 1992.

作者 潘犀靈，現任教於國立交通大學光電工程研究所