

# 角析式光電子能譜的時間外掛

林秉慧 博士

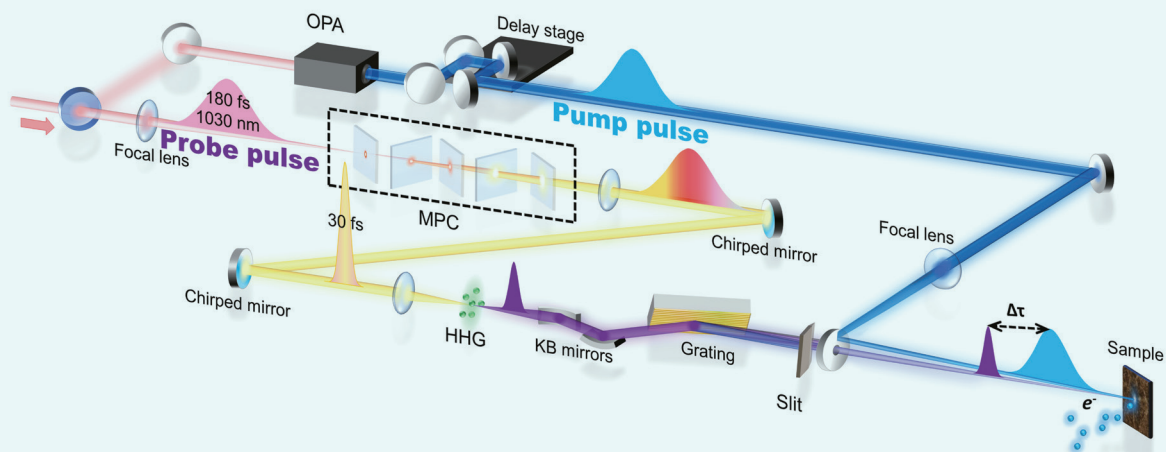
國家同步輻射研究中心 凝態物理小組

角析式光電子能譜 (Angle-Resolved Photoemission Spectroscopy, ARPES) 是研究材料電子結構的主要工具之一。它能夠研究動量空間中，費米能量附近的費米面拓樸與能帶結構訊息。使物理學家可直接觀察到新穎凝態材料，如複合氧化物、石墨烯相關系統、過渡金屬硫化物二維材料 (TMDs)、拓樸材料、量子磁性材料、重費米子材料、超導體與強關聯系統等，在不同相 (態) 下相關的電子結構現象，如能隙的形成與能帶摺疊等等。

時間解析 - 角析式光電子能譜技術結合了激發 - 探測技術 (pump-probe) 和角析式光電子能譜技術，利用超快雷射光源的脈衝特性，為物質電子結構與物理性質的研究，提供了時間視角。激發脈衝將熱電子激發到費米能階以上，使樣品進入非平衡態，可以幫助物理學家一窺未滿能態 (unoccupied state) 的能帶結構。在某些情況下，甚至可以定義能隙的大小。透過延遲平移台 (delay stage) 調控激發與偵測兩道超短雷射脈衝到達樣品的光程，極紫外 (EUV) 偵測脈衝可記錄在激發發生前後，系統弛豫過程中不同時間點電子結構變化的“瞬時快照”(如圖一)。此 Tr-ARPES 系統使用 Yb-KGW 7.5 W 雷射脈衝光源，重複頻率 (Repetition Rate) 為 10 kHz；利用光學參數放大器 (OPA)，我們可調變激發脈衝的波長 (350-2600 nm)；同時，利用非線性高階諧波產生 (High Harmonic Generation, HHG) 33 – 70 eV 的 ARPES 探測脈衝，最高強度諧波的探測光通量可達

$10^{11}$  光子 / 秒。系統時間解析度  $\Delta t=184$  fs, 能量解析度為 176 meV [1]。一般來說，系統經歷一系列從激發態返回到平衡態的弛豫過程，需要數皮秒 (ps) 到奈秒 (ns) 的時間。

傳統的角析式光電子能譜，可詳細記錄系統在不同物理相 (態) 中，平衡態下電子結構的細節。當飛秒脈衝被引入 ARPES 實驗，由於超短脈衝的性質，實驗的能量解析度將會被測不準原理所限制，但脈衝光源帶來的時間解析能力，使得電子結構在激發前後的超快動態可以被詳細描述。因此，物理學家可將不同時間尺度中發生的事件，從能量、動量和時間解析的綜合訊息把樣品的物理狀態與相應的多體效應 (many body effect) 或集體激發 (collective excitations) 聯繫起來，即電子 - 電子相互作用與電子 - 聲子相互作用或激子等等。或可選擇激發脈衝波長，誘導光學共振激發，以揭示能帶內散射激子動力學。通常電子 - 電子與電子 - 聲子的交互作用會在數十飛秒和皮秒的時間尺度上依次發生，而激子的弛豫則可能是非常快的數個飛秒，或是很長的數十到數百皮秒 [2]。舉例來說，物理學家曾利用激發脈衝破壞了過渡金屬二硫化物家族中不同樣品的電荷密度波 (charge density wave) 狀態，並利用 ARPES 的動量與能量解析能力直接觀測與電荷密度波態相應的電子結構的熔化時間 (melting time)，來識別出個別樣品中主導電荷密度波的驅動機制 [3]。



圖一 國家同步輻射研究中心的 HHG-EUV Tr-ARPES 裝置光學路徑示意圖 (TLS E169)。



圖二 TPS 30A 潔淨室中 80 W Yb-KGW 高功率雷射光源系統照。

2022 年起，我們獲得國科會“突破物理極限專案計畫”支持，在中心經費與光束線小組與真空小組同仁的大力幫助下，在 TPS 開始使用 80 W Yb-KGW 高功率雷射光源為基礎的時間解析－角析式光電子能譜系統的架設（如圖二）。此一系統的主要光學設計，沿用了現有小系統的形態。但由於雷射光源功率為原系統的十倍，對光學零件、真空系統與冷卻系統的設計都更為嚴格。重複頻率的設定從小系統的 10 kHz 拉高到 100 kHz，可改善由於大量光子在極短的脈衝時間中入射到樣品造成的空間電荷效應 (space charging effect)。TPS 30A 的時間解析－角析式光電子能譜系統的架設任務，除執行 Tr-ARPES 的常規實驗需求外，團隊對於 TPS 30 系統的工作定位，也包含了雷射光源的技術發展，更將 Tr-ARPES 的設計，往前沿的實驗條件。例如高能量密度的 THz 與 mid-IR 的激發光波長與圓偏振 HHG-EUV 探測光等做嘗試。

圖二是 TPS 30A 潔淨室中 80 W Yb-KGW 高功率雷射光源系統，HHG 的探測脈衝光能量 50-100 eV、光斑直徑可聚焦到 80 微米，最高強度諧波的探測光通量提高到  $10^{12}$

光子 / 秒。值得一提的是，清大光電所陳明彰教授團隊在這個系統中已經實現了 HHG-EUV 光源圓偏振的生成。另外，在 THz 激發脈衝光部份，則由陽明交通大學電物系羅志偉教授團隊架設中（圖三）。

超快光譜學的起飛，可以追溯到 1985 年 Strickland 與 Mourou 教授將啾啾脈衝 (chirp) 放大技術應用於放大雷射超短脈衝功率。隨著雷射光源技術的快速發展，時間解析－角析式光電子能譜技術在近十年成為研究凝態系統電子結構最強大的技術之一。近期，時間解析－角析式光電子能譜技術也己不再只限於利用激發光“擾動”平衡態，隨後探測紀錄系統的超快動態變化，而是利用高強度的脈衝光來操控量子材料的性質，生成相干光引起的瞬態能帶結構，如 Floquet-Bloch 態和 Volkov 等新的量子態。這個概念，使時間解析－角析式光電子能譜技術的使用，不再只是基礎物理的重要研究手段，更讓量子材料的物理性質控制，進一步成為可能 [4]。

### 參考文獻：

1. H.-H. Jia, T.-T. Yeh, C.-M. Cheng, C.-W. Luo, M.-C. Chen, and P.-H. Lin, *Rev. Sci. Instrum.* **94**, 055106 (2023).
2. J. Lloyd-Hughes, P. M. Oppeneer, T. Pereira dos Santos, A. Schleife, S. Meng, M. A. Sentef, M. Ruggenthaler, A. Rubio, I. Radu, M. Murnane, X. Shi, H. Kapteyn, B. Stadtmüller, K. M. Dani, F. H. da Jornada, E. Prinz, M. Aeschlimann, R. L. Milot, M. Burdanova, J. Boland, T. Cocker and F. Hegmann, *J. Phys.: Condens. Matter* **33**, 353001 (2021).
3. S. Hellmann, T. Rohwer, M. Kalläne, K. Hanff, C. Sohr, A. Stange, A. Carr, M. M. Murnane, H. C. Kapteyn, L. Kipp, M. Bauer and K. Rossnagel, *Nat. Comm.* **3**, 1069 (2012).
4. D. N. Basov, R. D. Averitt and D. Hsieh, *Nat. Mater.* **16**, 1077 (2017).



圖三 Tr-ARPES 團隊。(陽明交通大學電物系羅志偉教授 (前排左二)、清華大學光電所陳明彰教授 (右二)、國家同步輻射研究中心凝態物理小組鄭澄懋 (後排左一) 與林秉慧 (後排左四))。