

激光与同步辐射结合的技术及其应用*

丁大军

(吉林大学原子与分子物理研究所 超硬材料国家重点实验室 长春 130023)

Joseph Nordgren

(乌普萨拉大学物理系 瑞典 乌普萨拉)

摘要 综述了同步辐射光源与激光结合的实验技术及其在物理、化学、材料科学等方面的一些应用。
关键词 同步辐射,激光,原子分子

LASERS COMBINED WITH SYNCHROTRON RADIATION SOURCES AND THEIR APPLICATIONS

DING Da-Jun

(Institute of Atomic and Molecular Physics, National Laboratory for Superhard Materials, Jilin University, Changchun 130023)

Joseph Nordgren

(Department of Physics, Uppsala University, Sweden, Uppsala)

Abstract The technology of combining synchrotron radiation with lasers is reviewed. Its applications in physics, chemistry and materials science are discussed.

Key words synchrotron radiation, lasers, atoms and molecules

1 引言

自40年代人们在电子储存环上偶然发现加速电子的同步辐射以来,同步辐射技术迅速发展,并在科学和技术领域得到了越来越广泛的应用.作为大型的科学研究设施,现在全世界正在运转的同步辐射装置已经超过40个,其中大约四分之一是新型第三代同步辐射装置.这些第三代同步辐射装置是以提供高亮度的光辐射为目的,在其上采用了摆动器(wiggler)和波动器(undulator)等先进的插入装置,使得出射的光辐射的空间发散度大大地被压缩,因而产生出高亮度的光辐射[可达 10^{21} photons \cdot s $^{-1}$ \cdot mm $^{-2}$ \cdot mrad $^{-2}$ (0.1% bandwidth) $^{-1}$].同时,围绕同步辐射装置所发展的光束线(beamline)和单色化技术在过去的几年里也有非常大的发展.在用户实验站上,人们可以根据各自特定的实验目的获得由同步辐射装置产生的光辐射中所需部分(不同的波长、偏振状态、带宽等),在样品位置上获得的光子流密度可高达 10^{13} — 10^{16} 光子/秒,能量分辨率 $E/\Delta E$ 可达 10^4 .在表1中列举了国际上几个典型的第三代

同步辐射装置的一些参数.毫无疑问,第三代同步辐射装置为科学家提供了从红外到硬X射线广阔光谱范围内可调谐、高亮度、高空间分辨、高能量分辨、偏振的光源,因此吸引了各国大批科学家,同步辐射及其相关技术在科学发展中的重要推动作用越来越明显地显示出来.

表1 典型的第三代同步辐射装置的参数

	ALS (美国)	MAX II (瑞典)	ESRF (法国)	ELETTRA (意大利)
能量	1.5 GeV	1.5 GeV	6 GeV	1.5—2 GeV
周长	197 m	90 m	844 m	259 m
能流密度	<10 nm \cdot rad	8.8 nm \cdot rad	4 nm \cdot rad	4—7 nm \cdot rad
注入器	同步加速器	同步加速器	同步加速器	直线加速器
直线部分个数	10	10	32	11
波动器长度	4.5 m	0.9—2.65 m	5 m	6 m
电子束长度	35—50 ps	20 ps	20 ps	12—20 ps
光束寿命	4—6 h	10 h	8 h	4—10 h

同步辐射装置在真空紫外和X射线光谱区域可以提供目前其他光源难以提供的、极为优异的连续可调谐光辐射.虽然激光技术和非线性光学的发

* 国家自然科学基金资助项目

1999-04-30 收到初稿,1999-06-21 修回

展使得人们已经可以在实验室内获得从近红外到紫外光谱区域各种各样的相干光源,但是它们大多都运行在窗口材料截止波长以下的能量区域(可见至近紫外,光子能量小于 11eV)。基于激光的等离子体光源一般只能在个别波长提供短波长辐射,与此相反,由于同步辐射输出峰值光子能量是由存储环内电子能量决定的(与电子能量的4次方成正比),对应于 1.5GeV 电子的同步辐射光谱分布的峰值能量在 10^3eV 。因而同步辐射光源无疑为真空紫外和X射线光谱波段的科学研究提供了强有力的工具。表2中对同步辐射光源和激光光源的一些特点进行了比较^[1],可以看出,同步辐射光源具有上述的高光子能量、宽可调谐范围等一些优点,激光光源则在其峰值功率、相干性、光谱分辨率等方面具有优越性

表2 同步辐射的某些参数与激光比较

光源	可调谐范围	带宽/ $\Delta E/E$	光子通量或功率	脉冲宽度	重复频率
同步辐射	红外—X射线	$10^{-3}-10^{-5}$	10^5-10^6 光子/脉冲	10^{-10}s	10^6-10^8Hz
连续染料激光	红外—可见	10^{-9}	1 W		
脉冲染料激光	红外—近紫外	10^{-6}	$10^{-3}-1\text{J}$ /脉冲	$10^{-14}-10^{-5}\text{s}$	$10^{-1}-10^8\text{Hz}$
准分子激光	近紫外	10^{-3}	$10^{-1}-10\text{J}$ /脉冲	10^{-8}s	100 Hz
谐波发生器	可见—真空紫外	$10^{-3}-10^{-7}$	$10^{-9}-10^{-4}\text{J}$ /脉冲	$10^{-14}-10^{-8}\text{s}$	$10^{-1}-10^2\text{Hz}$

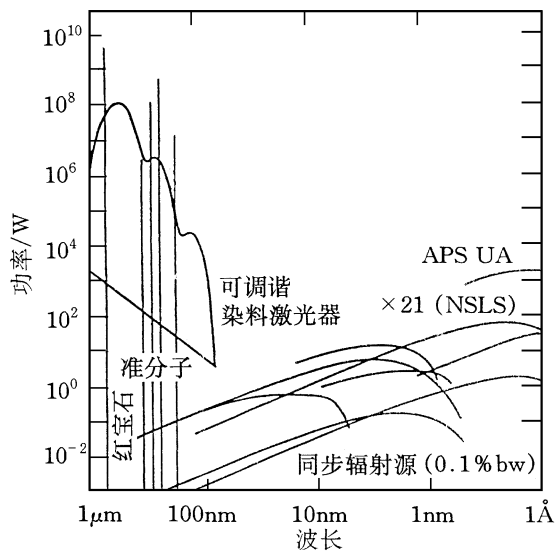


图1 激光和同步辐射的峰值功率比较^[2]

2 光源的同步化技术

同步辐射与激光结合的实验主要为所谓的双色类型试验,即某一波长的激光(或同步辐射)光子激发样品后由另一波长的同步辐射(或激光)光子进行探测。由于激光和同步辐射都是脉冲光源,实验要求将激光与同步辐射进行同步化。

图1是目前的同步辐射与激光的功率比较^[2]。例如,一台商用的可调谐染料激光器(纳秒脉宽,光谱范围在近红外到紫外),可以输出峰值功率约为 10^6-10^8W 的相干光脉冲,比同步辐射光源提供的辐射峰值功率高出3—5个数量级。此外,激光的光谱分辨率、光束的方向性等一般也优于同步辐射光(对脉冲激光, $E/\Delta E \approx 10^5-10^6$,光束发散度大约为 10^{-3}rad)。这些激光的特性在原子分子的选择激发、高分辨光谱、非线性光学等研究中都是非常重要的。因此,将同步辐射和激光结合起来使用,不仅在波长范围上,而且在光谱选择性、高功率密度上,都将使其各自的特点出现互补,为物理学、表面科学、化学、材料科学、生物科学等许多领域的研究提供了一个非常有用的实验技术。

同步辐射光的脉冲性质是由电子储存环中电子的束结构所决定的。对于单一电子束运转情况,脉冲周期 t 由电子储存环周长 L 可以估算出: $t = L/c$,其中 c 为光速。在大多数第三代同步辐射装置上,由于高辐射亮度要求多电子束运转,这时同步辐射光脉冲周期 t 相应地缩短 n 倍(n 为电子束数)。目前同步辐射光源的典型脉宽是几十皮秒,多束运转脉冲周期多为几个纳秒,占空因子 $\Delta t/t$ 约为 $10^{-2}-10^{-3}$ 。如果使用一个连续激光光源,一般希望同步辐射的电子储存环内注入较多的电子束运转,使同步辐射光源的重复工作频率尽可能地提高,以产生大的占空因子 $\Delta t/t$ 和连续激光相适应。在脉冲激光的情况下,激光脉冲和同步辐射光脉冲的同步是非常关键的。对于像锁模激光器或者飞秒激光振荡器这类工作在高重复率(典型重复率是 80MHz)的激光器而言,它的输出光脉冲与高重复率的同步辐射光脉冲可能产生部分重叠,即发生偶然同步,满足某些实验要求。如果同步辐射光源与一个低重复的激光光源(如准分子激光器或 Nd:YAG 激光器)相结合,则需要严格的脉冲同步化以提高实验效率。脉冲同步化的时间基准通常取自同步辐射装置中用于补充电子束能量的射频源。射频源的时间信号往往需要通过一个电子学分频器分频后作为脉冲信号

输出,触发激光器振荡.这时同步辐射光脉冲重复频率与激光脉冲频率恰为整数倍,使得某些同步辐射的光脉冲完全和激光脉冲发生重叠.由于同步辐射电子束注入运转一定时间后电子束发散度的变化会带来同步辐射光脉冲结构的变化,实际在实验上还需进一步监测两个脉冲的时间、空间重叠情况.并且为了提高信噪比,测量电子学系统也往往采用时间门电子学计数技术,扣除各种背景噪音.

同步辐射与激光相结合可以应用在光电子能谱、质谱、吸收、发光光谱等谱学中.结合同步辐射和激光的双色实验具有一些其他方法不能比拟的优点.例如,两光子可以达到很宽的激光能量范围,产生与单光子过程完全不同的终态,进而大大扩展了以往的实验研究范围和补充了单一光源的单光子过程所能得到的信息.另外,由于双色实验基本上是一个两步过程,使用的光源都是脉冲的,如果同步两个光源并改变两个光脉冲的相对时间延迟,则可以进行时间分辨激发态过程的研究.

3 应用

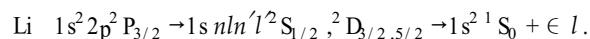
3.1 物理科学

早期研究主要是气态或固态样品双色光子产生的吸收谱测量.第一个利用同步辐射和激光结合的实验是1980年Saile在德国汉堡同步辐射装置(DORIS)上完成的^[3].Saile通过测量同步辐射激发吸附在金属表面的Kr原子的激子态,并用N₂激光器光脉冲电离所产生的光电子产额,研究稀有气体固体Kr的激子结构及其弛豫过程.由于选择定则的不同,这一实验观察到了多个新的激子态.这种双色实验也可以通过虚中间态共振实现.由于同步辐射的光子能量很高,这种结合技术特别适用于研究像KI, KCl, NaCl和BaF₂等一类宽带隙的介电体的电子结构.此外,这一方法还被应用在研究高能光子在晶体中产生的色心^[4]、有机染料分子的瞬态弛豫^[5],等等.

同步辐射与激光结合在原子分子激发态结构、特性和动力学的研究中有着广泛的应用.对于自由原子分子,利用激光优异的偏振、光谱分辨和可调谐性能,可以实现原子分子的态选择激发或特定瞬态产物的产生,然后利用同步辐射的高能光子将其电离.这种泵浦-探测(pump-probe)实验可以提供丰富的高分辨的态选择信息.

例如,原子光电离过程电子发射强度和空间

分布很强烈地依赖于中间态、终态的性质,为验证光电离动力学过程的全量子力学理论描述,需要大量的态选择角分辨光电子能谱实验数据. Sonntag和Zimmermann等人在德国同步辐射BESSY上研究了三电子原子Li的光电离过程(图2)^[6,7].实验中使用的窄带环状染料激光器,选择激发自旋取向的 $1s^2 2p^2 P_{3/2}$ 态,然后利用由同步辐射产生的真空紫外光子激光Li的原子实共振,最后自电离导致电子发射,即



实验结果与已有的理论计算(图中实线所示)相符很好,表明理论的能级认定和计算的能值的正确以及合理地处理了电子关联效应.类似的方法还应用于研究自旋取向的Ca原子的自电离过程^[8], Na原子激发态-自电离共振跃迁的振子强度^[9],等等.

对于自由分子,这种双色共振实验测量由同步

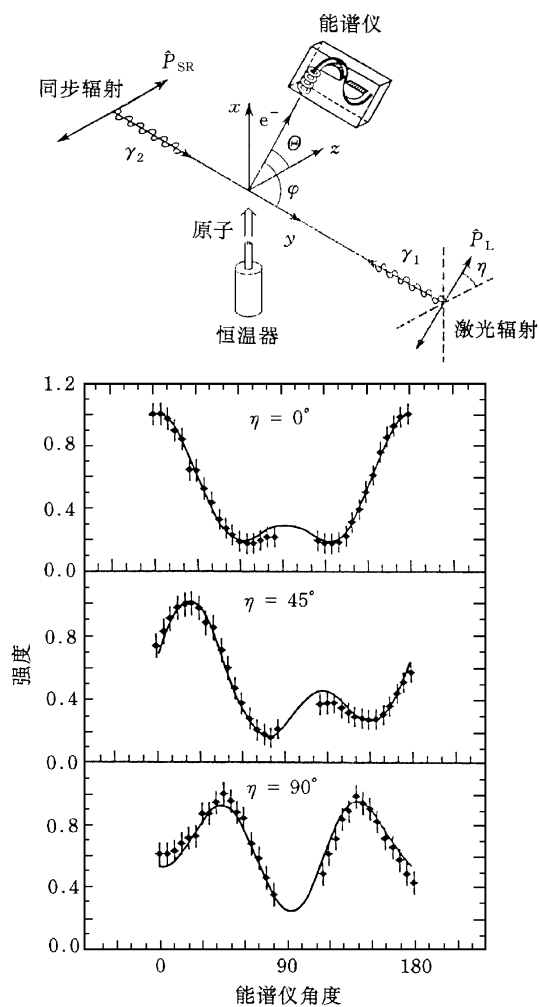


图2 BESSY的取向Li原子激发态光电离实验^[7]

辐射产生的分子瞬态产物的激光诱导荧光和电离, 或者用同步辐射来观察激光产生的瞬态产物的光电子能谱, 由得到的谱中电子和振动结构, 直接给出有关光吸收和光解离过程中能量分布、电子-振动耦合、反应通道等的信息, 而这些信息对于理解分子光激发动力学和控制化学反应过程是很重要的^[10,11], 例如, 由连续氙离子激光解离分子 $C_2N_4H_2$ 产生的碎片通过同步辐射紫外光电子能谱分析表明, 碎片 HCN 存在较大的弯曲模式的激发而基本不存在拉伸模式激发. 这一结果与三体解离模型的理论计算一致, 即 $C_2N_4H_2 + h\nu \rightarrow N_2 + 2HCN$. 因而实验结果解决了这一多原子分子光解离机制的争论^[10].

3.2 表面科学

Long 等人在美国 NSLS 同步辐射上利用这一技术研究了半导体 GaAs(110) 表面激发态发射光电子的角分辨能谱^[12] (见图 3). 激光脉冲激发足够数量的电子 ($> 10^{18} \text{ cm}^{-3}$) 到正常时未占有的表面态 C3, 然后 Ga 3d 内壳层电子共振吸收同步辐射的真空紫外光子产生表面芯态激子 (surface core exciton). 表面芯态激子衰变时, 释放的能量将在激光产生的表面态上的布居电子发射出来. 这个电子发射过程类似于 Auger 过程 (如图 4 所示), 有效地给出了激发态能量、动量分布等信息.

Hertel 等人测量了表面吸附系统 $C_{60}/Ni(110)$ 的光电子发射^[13]. 单层 $C_{60}/Ni(110)$ 中接近费米能级 E_F 的电子被用 1.6eV 的皮秒激光脉冲激发到未占有的 $s-Tetrazine: C_2N_4H_2$

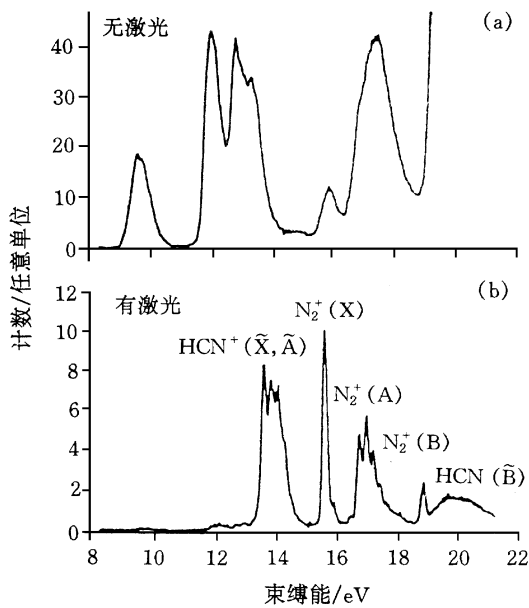


图 3 $C_2N_4H_2$ 的光电子能谱^[10]
(当激光作用时, 碎片光电子能谱出现)

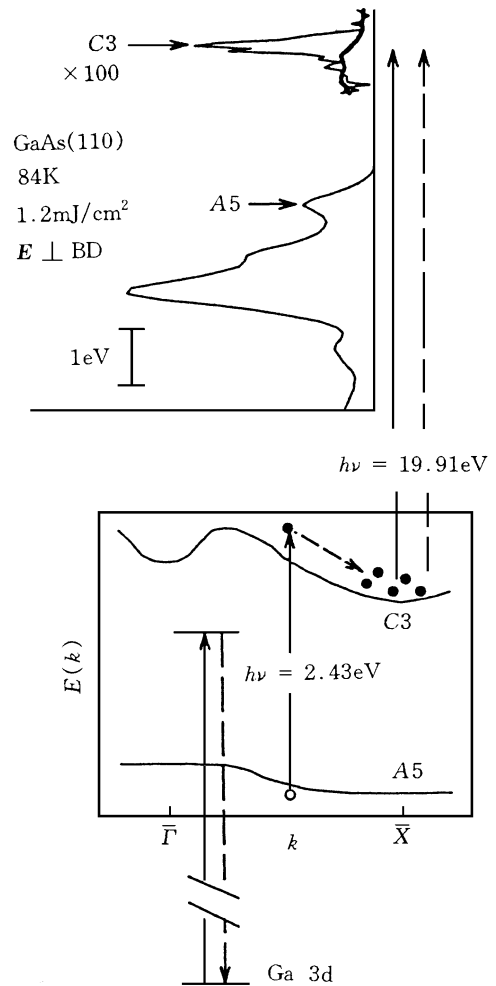


图 4 GaAs(110) 表面态 C3 的电子发射^[12]

占有的 $C_{60} t_{2u}, h_g$ 能带, 在时间相关的 55eV 同步辐射光电子能谱中, 能量 $E_F + 1.8\text{eV}$ 位置附近产生了一个对应于它的新特征峰.

在半导体表面电压效应的研究中, 脉宽为 20ns 的 510nm 激光脉冲激发 Si(111) 表面后, 观察 Si 2p 芯能级同步辐射光电离的电子能谱峰移动 100 μs 后仍然存在, 反映了表面激发载流子的复合过程, 并由此确定其表面复合速率和近表面空间电荷动态^[14].

另外, 利用同步辐射作为高强度连续 X 射线源应用于脉冲激光与表面相互作用研究中, 产生的时间分辨的 X 射线衍射或成像结果实时地给出了激光烧蚀表面出现的相变、融化等信息^[15].

3.3 材料科学

近年来, 激光和同步辐射作为高等光源越来越多地被应用于材料加工过程中. 结合这两个光源研究光诱导的材料过程 (如脱附、退火、熔化、分解、聚合等) 已有一系列工作^[16-18]. 除 X 射线衍射和成像方法以外, 激光诱导荧光方法也被应用于对过程的监测上^[19]. 这些研究给出的光与材料表面的相互作用

用基本物理图像,提供了大量进一步理解和掌握材料处理技术所需的知识.如利用激光加热在金刚石对顶砧中产生类似于地球中心高温高压条件(上千度和几十兆帕),由此出现的物质相变可以通过同步辐射 X 射线衍射的测量获得^[20].这种极端条件下物质结构、性能、相变等数据对寻找新的材料和探索在非平衡态条件下合成新材料的方法都是非常重要的.

4 结束语

激光与同步辐射相结合发展成为一个新的研究技术,进一步的应用仍在开拓.例如,利用具有特定偏振的激光,来研究同步辐射高能光子产生的原子实能级激发在原子、分子、团簇以及固体中诱导的有关过程,对认识电子关联效应是十分有效的方法;另外,各种过程的时间分辨泵浦-探测实时监测的研究,时间分辨可以达 10^{-11} s,测量的时间窗口由于同步辐射脉冲结构的限制一般在 10^{-8} s 区间.这一方法可以应用于纳米尺度器件近表面传输特性的表征,这时,预期表面效应和电子的非平衡态分布对过程的影响都是非常重要的.新一代同步辐射光源-自由电子激光将集激光和同步辐射这两种光源的优异特性于一体,在不久的将来,它的诞生将不仅是技术上的革命,而且有可能带来新的科学.

参 考 文 献

- [1] Nenner I *et al.* Two - color experiment in molecules . In : Schlachter A S , Wuilleumier F J eds . NATO ASI Series E , Vol . 254 . Dordrecht : Kluwer Academic Publishers , 1994 . 129 — 160
- [2] Winick H . In : Haase A , Landwehr G , Umbach E eds . Röntgen Centennial — X - Ray in Natural and Life Sciences . Singapore : World Scientific , 1997
- [3] Saile V . *Appl . Opt .* , 1980 , 19 : 4115 — 4122
- [4] Brow F , Sever B R , Stott J P . *Phys . Rev . Lett .* , 1986 , 57 : 2279 — 2282
- [5] Mitani T *et al.* *Rev . Sci . Instrum .* , 1989 , 60 : 1569 — 1572
- [6] Meyer M *et al.* *Phys . Rev . Lett .* , 1985 , 59 : 2963 — 2966
- [7] Pahler M *et al.* *Phys . Rev . Lett .* , 1992 , 68 : 2285 — 2288
- [8] Wedowski M *et al.* *Phys . Rev . A* , 1997 , 55 : 1922 — 1936
- [9] Bizau J M *et al.* *Phys . Rev . Lett .* , 1985 , 55 : 1281 — 1284
- [10] Nahon L *et al.* *J . Chem . Phys .* , 1992 , 96 : 3628 — 3635
- [11] Mizutani M *et al.* *J . Synchrotron Rad .* , 1997 , 4 : 6 — 13
- [12] Long J P *et al.* *J . Opt . Soc . Am . B* , 1996 , 13 : 201 — 207
- [13] Quast T *et al.* *J . Appl . Phys .* , 1998 , 83 : 1624 — 1648
- [14] Long J P *et al.* *Phys . Rev . Lett .* , 1990 , 64 : 1158 — 1161
- [15] Heimann P A *et al.* *Proc . SPIE* , 1997 , 3151 : 102
- [16] Larson B C *et al.* *Phys . Rev . Lett .* , 1982 , 48 : 337 — 340
- [17] Long J P *et al.* *Phys . Rev . Lett .* , 1992 , 68 : 1014 — 1017
- [18] Kamada M , Hirose S . *Surf . Sci .* , 1997 , 390 : 194 — 198
- [19] Kamada M *et al.* *J . Synchrotron Rad .* , 1998 , 5 : 1035 — 1037
- [20] Saxena S . K *et al.* *Science* , 1995 , 269 : 1703 — 1704

(上接第 99 页)

- [4] 李成基等 . 金属材料研究 , 1976 , 4(7) : 505 — 510 [LI Cheng - Ji *et al.* *Research of Metal Materials* . 1976 , 4(7) : 505 — 510 (in Chinese)]
- [5] Yasushi Muranaka , Hisao Yamashita , Hiroshi Miyadera . *Thin Solid Films* , 1991 , 199 : 299 — 311
- [6] FU Zhu - Xi , LIN Bi - Xia , LIAO Gu - Hong *et al.* *J . Crystal Growth* , 1998 , 193 : 316 — 321
- [7] FU Zhu - Xi , GUO Chang - Xin , LIN Bi - Xia *et al.* *Chin . Phys . Lett .* , 1998 , 15 : 457 — 459
- [8] GUO Chang - Xin , FU Zhu - Xi , SHI Chao - Shu . *Chin . Phys . Lett .* , 1999 , 16 : 146
- [9] Bimberg D *et al.* *Vac . Sci . Technol .* , 1987 , JB5 : 1191 — 1197
- [10] PAN Wu - Gen , Hiroyuki Yaguchi , Kentaro Onabe *et al.* *J . Crystal Growth* , 1994 , 145 : 702 — 706
- [11] PAN Wu - Gen , Hiroyuki Yaguchi , Kentaro Onabe *et al.* *Appl . Phys . Lett .* , 1995 , 67 : 959 — 961
- [12] PAN Wu - Gen , Hiroyuki Yaguchi , Kentaro Onabe *et al.* *J . Crystal Growth* , 1996 , 158 : 205 — 209
- [13] Nazarova T A , Saparin G V , Obyden S K *et al.* *Scanning* , 1997 , 19 : 48 — 54
- [14] Nazarova T A , Nazarov M V . *England , Philosophical Magazine A* , 1996 , 74(5) : 1311 — 1318