

专题: 极端条件原子分子动力学

内壳层体系的 X 射线腔量子光学*

汪书兴¹⁾²⁾ 李天钧¹⁾ 黄新朝^{3)†} 朱林繁^{1)‡}

1) (中国科学技术大学近代物理系, 合肥 230026)

2) (I. Physikalisches Institut, Justus-Liebig-Universität Gießen and Helmholtz Forschungsakademie Hessen für FAIR (HFHF), Campus Gießen, GSI Helmholtzzentrum für Schwerionenforschung, Gießen 35392, Germany)

3) (FXE Instrument, European XFEL, Schenefeld 22869, Germany)

(2024 年 8 月 30 日收到; 2024 年 10 月 25 日收到修改稿)

随着 X 射线光源品质的提升, X 射线波段的量子调控成为了新兴的前沿领域, 基于薄膜平面腔的 X 射线腔量子光学是其中一个重要分支. X 射线腔量子光学研究始于原子核跃迁体系, 近期兴起了调控原子内壳层跃迁的研究工作. 原子内壳层跃迁存在丰富的候选体系和退激通道, 极大地拓宽了 X 射线腔量子光学的研究范围. 此外, 内壳层激发及其退激通道对应着多种 X 射线谱学表征技术, 促进 X 射线腔量子光学和谱学技术的融合, 有望促成 X 射线谱学新技术的出现. 本文概述了基于原子内壳层跃迁的 X 射线腔量子光学, 介绍了基本的实验体系和实验方法、经典和量子理论模型以及已经实现的一些量子光学现象. 最后, 本文简要介绍了内壳层 X 射线腔量子光学仍需要解决的一些问题, 同时展望了未来的发展方向.

关键词: X 射线量子光学, 薄膜平面腔, 同步辐射, 原子内壳层跃迁**PACS:** 61.05.cm, 33.15.Vb, 98.52.Cf, 78.47.dc**DOI:** 10.7498/aps.73.20241218**CSTR:** 32037.14.aps.73.20241218

1 引言

量子光学是研究光场的量子性质以及光与物质相互作用的学科. 在过去的半个世纪里, 量子光学已经发展成为现代物理学中最活跃的研究领域之一. 在微波和可见光波段, 量子光学受益于激光器提供的高单色性和高相干性光源, 衍生出了量子通信、量子计算、量子精密测量等前沿技术, 已经成为各国争相抢占的制高点^[1]. 然而, 高频段尤其是 X 射线波段的量子光学研究远不及低频波段活跃. 直到最近十几年, X 射线量子光学的概念才逐渐引起人们的关注^[2-6]. 限制 X 射线量子光学研究的主要因素是光源的品质. 1895 年伦琴首次发现

X 射线^[7], 这甚至早于 1900 年量子力学奠基性理论——黑体辐射定律^[8]的提出. 然而, 早期的 X 射线只能由 X 射线管产生, 过高的阳极温度等技术限制, 导致光源亮度 (photons/(s·mm²·mrad²·0.1%BW)) 难以提升. 经过近 60 年的发展, 才缓慢提升了 1—2 个数量级 (10^6 — 10^7). 此外, 基于阳极靶产生的 X 射线还存在发散度大、无偏振、能量可调性差等缺陷. 到 20 世纪 60—70 年代, 寄生于高能加速器装置的第一代同步辐射 (synchrotron radiation), 将 X 射线光源亮度跃升至 10^{12} , 其出色性能促使各国竞相推动同步辐射设施建设, 加速了同步辐射技术的迭代发展. 20 世纪 90 年代, 随着以欧洲同步辐射光源 (European synchrotron radiation facility, ESRF)^[9]、美国先进光源 (adv-

* 国家自然科学基金 (批准号: 12334010, U1932207) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: xinchao.huang@xfel.eu

‡ 通信作者. E-mail: lfzhu@ustc.edu.cn

anced photon source, APS)^[10]、日本 SPring-8 光源 (super photon ring-8 GeV)^[11]、德国 PETRA-III 光源^[12] 为代表的专用第三代高能同步辐射装置的落成, 光源亮度提升到了 10^{20} 量级. 第三代同步辐射出色的准直性、偏振性、能量可调性以及稳定性, 催生出了种类丰富的谱学、散射和成像技术. 经过近 20 年的发展, 历经三代同步辐射光源品质的提升和诊断技术的不断完善, 为开展 X 射线波段量子光学研究奠定了技术基础.

近年来, 采用衍射极限环技术方案的第四代同步辐射光源, 例如欧洲 ESRF-EBS^[13]、中国高能同步辐射光源 (high energy photon source, HEPS)、美国 APS-II 等升级或全新装置将进一步缩小光束的横向发散度, 光源亮度可以再提升 1—2 个数量级. 此外, 近十几年 X 射线自由电子激光 (X-ray free electron laser, XFEL) 发展迅速^[14], 其中自受激放大 (self-amplified spontaneous emission, SASE)、自种子 (self-seeding) 等相对成熟的技术方案, 将 X 射线脉冲的峰值亮度提升了 6—8 个数量级. 光源的发展不仅使得平均亮度得以提升, 光子简并度 (能级寿命、自然线宽内的光子数) 也得到了大幅度提高. 例如, 在约 10 fs 的脉冲宽度和 1 eV 带宽范围内, SASE 可以提供 10^9 — 10^{10} 个光子, 这为 X 射线波段的多光子激发、非线性研究等提供了广泛的前景. 此外, 外种子 (externally-seeding)^[15] 和 XFEL 谐振腔 (XFEL oscillator, XFELO)^[16,17] 等新颖的技术方案, 通过压缩能量带宽的方式还可以将光子简并度进一步提升 2 个数量级以上^[18]. X 射线光源技术的突飞猛进, 很容易诱发人们联想到 20 世纪激光技术进步对量子光学学科的推动作用. 新光源除了促成 X 射线成像、谱学、超快等新诊断技术的发展外, X 射线量子光学这一新兴学科也应运而生^[2-6].

除了光源品质的提升, 寻找合适的量子系统也是 X 射线量子光学的核心之一, 其中最简单的就是由基态和某个激发态构成的二能级系统. 在硬 X 射线 (~ 10 keV) 能区, 可以构成二能级的体系主要包括原子分子的内壳层 (inner-shell) 跃迁和穆斯堡尔核 (Mössbauer) 跃迁. 在原子分子内壳层体系中, 很多元素的 K 边、 L_2 和 L_3 等吸收边附近存在非常强的共振结构, 被称为白线跃迁^[19,20]. 白线是内壳层电子到价壳层未占据束缚态之间的电偶极共振跃迁, 因而强度可观. 在 Mössbauer 核体

系中, 其激发态就是原子核的同质异能态. 1958 年, Mössbauer^[21] 发现原子核无反冲共振吸收现象, 随后该现象被命名为 Mössbauer 效应. 相应地, 存在 Mössbauer 效应的原子核被称为 Mössbauer 核. Mössbauer 核跃迁激发能量一般大于内壳层跃迁, 且有很好的环境解耦性. 另一方面, 原子核跃迁的自然线宽非常窄, 通常为纳电子伏特 (neV), 这对应着较长的退相干时间 (百纳秒—百微秒)^[22], 但也导致实验技术难度较大, 实验方法较为单一. 相对而言, 内壳层能级体系更为丰富, 自然线宽也大很多 (亚 eV—eV), 因此实验方法更加多样, 但较短的退相干时间 (百阿秒—飞秒) 也限制了在现有技术条件下探索时域中的量子光学现象.

基于同步辐射的量子光学研究一般为单光子激发, 属于线性范畴. 随着高精度纳米制样技术的进步, 将多层纳米尺度的薄膜平面腔与同步辐射高准直、高分辨、高稳定性等优点相结合, 作为 X 射线量子光学其中一个分支的腔量子光学, 在近十几年进入了快车道. 2005 年, Röhlberger 等^[23] 设计了多层纳米薄膜, 将 ^{57}Fe 制备到这种薄膜结构中, 在时域谱上观察到了辐射速率增强现象, 实现了 X 射线波段的腔 Purcell 效应^[24]. 这种多层纳米尺度薄膜与光学腔 (optical cavity) 作用类似, 因此也被称为薄膜平面腔. 由于 Röhlberger 等^[23] 当时所用腔的传导层为 ^{56}Fe , 损耗较大. 2010 年, Röhlberger 等改进了平面腔设计, 借鉴了波导管结构, 使用高 Z 材料充当反射镜, 低 Z 材料充当传导层, 提升了腔的调控能力, 并首次观察到了原子核系统的单光子超辐射^[25] 及集体兰姆移位现象^[26]. 随后, 通过设计双层原子核薄膜结构, 利用原子核系综之间的耦合作用, 在实验上实现了 X 射线波段的电磁诱导透明现象^[27]. 这些实验工作表明, 薄膜平面腔可以作为在 X 射线波段研究腔效应和集体效应的出色平台. 随后, Evers 课题组、Pálffy 课题组、Lohse 课题组相继在理论上发展出了基于 Jaynes-Cummings 模型的唯象量子光学模型^[28,29]、多模理论^[30,31]、量子格林函数方法^[31-33] 等较为完备的理论工具. 这些理论框架的建立也进一步启发了一些新的 X 射线量子光学研究, 例如, 真空诱导的自相干^[34]、法诺效应探测腔内干涉相位^[35]、类光学晶格的集体强耦合^[36]、X 射线波段慢光^[37,38]、串联双腔实现强耦合条件下的拉比振荡^[39]、多模

光场与物质相互作用的判据^[40]、结合 X 射线光频梳的量子存储^[41]等量子光学现象在 X 射线波段得以实现. 这些前沿的理论和实验工作, 推动 X 射线腔量子光学逐渐发展成熟. 需要指出的是, 现阶段大部分 X 射线腔量子光学的研究对象为原子核体系. 这主要是因为原子核体系具有较长的相干时间, 且核跃迁具有更简洁的能级体系和较强的共振跃迁, 更易与可见光和微波波段存在的诸如价壳层跃迁、里德伯态、超导比特节等量子系统类比, 因此也更易再现一些低频段典型的量子光学现象. 然而, 较为单一的调控手段和诊断方法限制了核体系 X 射线腔量子光学的进一步发展.

在线性弱激发条件下, 腔的作用可以被看作是为光场设置特定的边界条件^[42], 从而实现对光场与原子(核)相互作用的调控. 从普适的角度看, X 射线腔同样可以调控内壳层电子的跃迁行为. 在硬 X 射线波段, 特定边界条件下的光场与原子内壳层的相互作用研究由来已久, 例如晶体^[43]和多层周期膜人造光子晶体中存在的驻波场^[44,45]、Kossel 效应^[46-50]等, 可以在布拉格角附近观察到特殊的原子辐射行为, 实现荧光产额调控、荧光辐射取向调控^[51,52]等类似可见光波段的腔效应. 然而, 这种周期性晶体结构在 X 射线波段的调控能力较弱, 例如晶体驻波场效应仅能在布拉格角度附近实现约百分之几的荧光产额调整; 多层周期膜上观测到的 Kossel 效应在布拉格角度附近能实现约 10% 的强度调整. 在这些体系中, 还未观测到谱线增宽和能量移动等更可观的腔效应现象, 因此利用内壳层体系研究 X 射线波段的腔效应一直未引起广泛关注. 相对于晶体结构, 类“三明治”结构的薄膜平面腔有着强得多的调控能力, 例如腔模式角度下可以实现约 10^2 倍的光场强度调整^[53-57], 类似的 Kossel 效应在腔模式角度附近能实现 10 倍的强度增益^[58]. 2019 年, Röhlsberger 课题组^[59]首次利用 Ta 内壳层 L_3 边附近的白线峰, 再现了原子核体系中的辐射速率增强和腔调控跃迁能量移位. 2021 年, Vassholz 和 Salditt^[58]利用类似的腔结构实现了角度取向的荧光自发辐射. 同年, 本课题组利用 X 射线薄膜平面腔实现了内壳层空穴寿命调控^[60]. 随后, 我们课题组在薄膜平面腔体系中首次观察到了直线型法诺线形^[61]. 这些实验工作表明 X 射线腔量子光学同样可以应用于内壳层体系. 理论方面,

Mukamel 课题组^[62,63]提出了强耦合条件下会形成空穴态极化子, 并研究了其非定域性.

相对于原子核体系, 内壳层体系仍有耗散大、能级结构复杂等特点. 为此, 本课题组发展了适用于内壳层跃迁的半经典矩阵和量子格林函数方法^[64], 简而言之, X 射线腔量子光学同样适用于内壳层体系. 针对在两个体系中已经实现的量子光学现象, 该理论工作系统地总结了内壳层体系的特点. 首先, 腔模式与原子的相互作用强度和原子的跃迁偶极矩有关, 内壳层跃迁的偶极矩与原子核跃迁相比约小 1 个数量级^[22,64], 因此腔效应较弱, 这导致了包括原子系综间交换相互作用、强耦合等现象难以在一般的腔结构中观测到. 此外, 内壳层的共振跃迁常与吸收边交叠在一起, 反射谱受此影响, 谱线线形更加复杂. 另外, 与原子核共振体系不同的是, 内壳层跃迁的背景吸收和散射并不弱, 粒子数的增加会对腔整体带来较大的耗散, 反而弱化集体效应. 正因如此, 即使已有上述多个实验工作报告, 关于内壳层跃迁是否存在集体效应仍存有争议. 以内壳层体系常用的 WSi_2 为例^[64], 为了观测到明显的集体效应, 需制备原子层厚度小于 1 nm 的腔结构, 技术难度较大. 除此之外, 内壳层跃迁的优势在于更丰富的体系和能级结构, 以及更多样的诊断技术. 在薄膜平面腔较好的工作能量范围 ($\sim 5-20$ keV) 内, 大量元素存在较强的白线跃迁, 而且不同的价态、配位场、晶体场等使得白线能级结构更加丰富多样. 另外值得提及的是, X 射线腔效应可以直接调控中间空穴态. 依托空穴态已经发展出了比较成熟且多样的谱学表征技术, 例如共振弹性散射 (resonant elastic X-ray scattering, REXS)^[65,66]、共振发射谱 (resonant X-ray emission spectroscopy, RXES)^[67,68]、共振非弹性散射 (resonant inelastic X-ray scattering, RIXS)^[69-71]等, 能够为 X 射线腔效应调控提供更加丰富的信息, 例如 RXES 可以解决共振跃迁和吸收边交叠的问题. 反过来, X 射线腔量子光学的调控手段也可以改进这些谱学技术, 促进学科间的融合并具有巨大的潜在应用前景. 本文将概述基于原子内壳层跃迁的 X 射线腔量子光学, 包括实验体系和方法、理论模型与框架以及已经实现的一些经典量子光学现象. 最后, 将总结内壳层跃迁 X 射线腔量子光学尚存在的一些问题, 对未来的发展方向做出展望.

2 实验体系与方法

X 射线腔量子光学的发展不仅得益于 X 射线光源和探测技术的进步,也依赖于高品质薄膜平面腔制备工艺的提升.在 X 射线波段,一般材料的折射率可以表示为实部略小于 1 的复数 ($1 - \delta + i\beta$).例如,即使对 Pt 等重元素材料,在 10 keV 附近,其实部偏差值 δ 仅为 10^{-5} 量级 [72].因此, X 射线的全反射角 ($\sim \sqrt{2\delta}$) 一般很小,约在毫弧度 (mrad) 量级,这直接导致在 X 射线波段难以使用类似可见光波段的平面腔结构.完美晶体在布拉格角附近同样可以实现很高的反射率,但只能工作在极窄的达尔文宽度内 (μrad) [73,74],现在一般用于提升 X 射线的单色性和相干性品质 [16,17],尚未有用于研究 X 射线与原子相互作用的工作.薄膜平面腔则是基于现有技术条件下,在 X 射线波段研究腔效应的较优选择.在掠入射或端面入射的条件下, X 射线可以耦合进入薄膜平面腔形成驻波光场.同时,在腔内场强极大处嵌入合适的二能级系统,就可以探索特定条件下的 X 射线量子光学效应 [75–81].

因此,薄膜平面腔需要设计多层膜结构,在腔结构制作过程中也需要使用多靶材制样,并根据不同的实验需求调整构型.对于掠入射类型的实验,一般要求高准直性的 X 射线光束 (约 $5 \mu\text{rad}$);对于端面入射类型的实验,一般要求强聚焦 X 射线光束 (样品处亚 μm 光斑).如图 1 所示,通常情况下,在 X 射线薄膜平面腔实验中,有反射光、透射光、荧光等可观测量.其中反射光和透射光都工作在极小的角度范围内,因此一般要求探测器到样品有较远的距离 ($\sim 1 \text{ m}$).荧光可以在掠出射或大角度下采集.此外,还可以使用在 X 射线吸收谱中已经发展相对成熟的探测技术收集荧光,例如荧光谱和发射谱.本节将介绍薄膜平面腔的基本构型,并讨论最常见的反射谱和荧光谱实验方法.

2.1 实验体系

基于薄膜平面腔的 X 射线研究最早始于 X 射线波导管 [83],其基本结构包括上下两层由高电子密度材料 (Pt/Pd/Ta 等) 组成的 X 射线反射镜.一般底部的镜子层比较厚 (大于 10 nm),充当

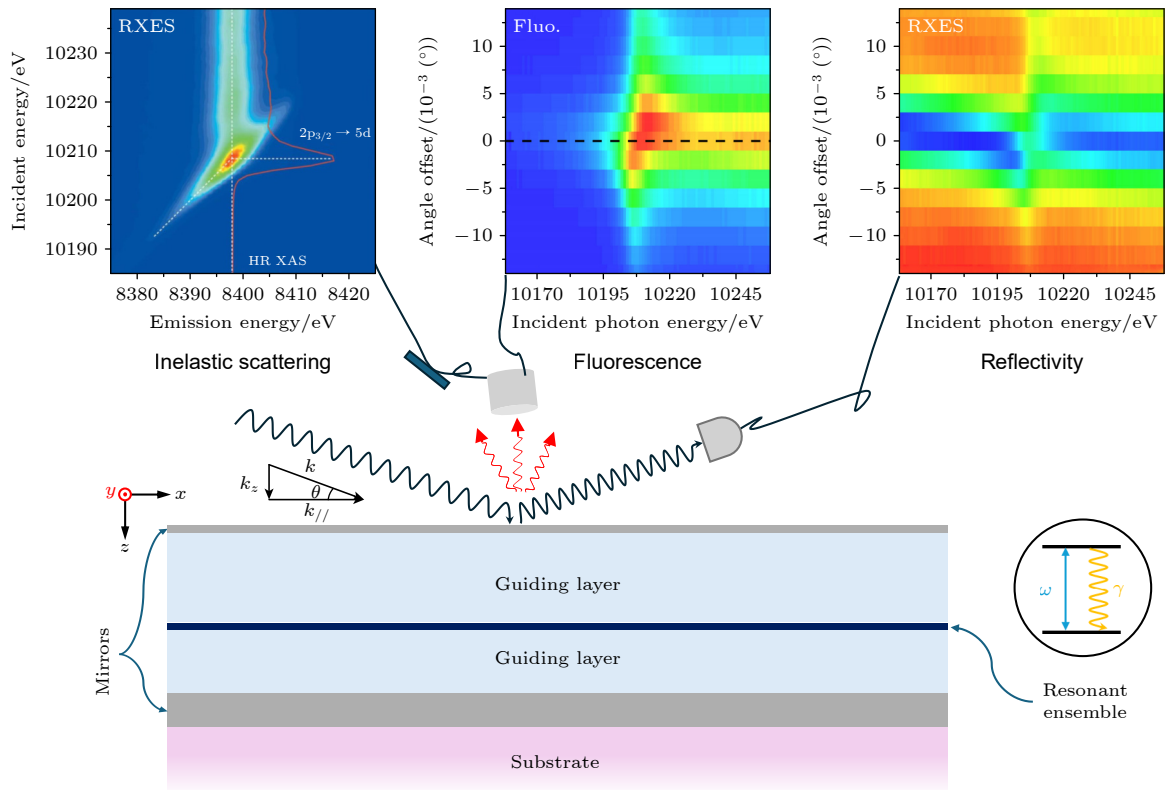


图 1 实验体系原理图,反射谱和荧光谱插图取自文献 [61],共振发射谱插图取自文献 [82]

Fig. 1. Sketch of the experimental scheme, the reflectivity and fluorescence maps refer to Ref. [61], and the emission spectra map following inelastic scattering is taken from Ref. [82].

全反射镜;而顶层的反射镜层则比较薄(约 2 nm),充当半反半透镜.中间由低电子密度材料(C/B/B₄C)作为传输层.在这种“三明治”结构中,合理选取多层膜组合尤为重要.高电子密度材料的折射率实部偏差量较大,因此具有更大的全反射角,这样可以降低对 X 射线光斑尺寸、样品表面平整度的要求,但高电子密度材料也造成了更大的损耗.使用低电子密度材料作为传输层是为了尽可能地降低腔结构的整体损耗.而且它们的全反射角比高电子密度材料小得多,在薄膜平面腔的工作角度下,可以很好地撑开上下两层反射镜层所需的距离(约几十纳米),以满足形成驻波的条件.在这种特殊的设计和合适的掠入射角度下, X 射线以倏逝波形式耦合入平面腔,并在镜面层之间多次反射干涉形成驻波,即 X 射线光场某个特定的模式.根据不同的需求,原子层内嵌在腔内不同的位置.此外,由于原子层的原子序数一般较大,因此其自身会带来较强的耗散;另一方面,原子层的厚度也应满足等效亚波长条件,也就是说其厚度应小于在 z 方向(厚度方向)形成的驻波场的尺度.因此,原子层一般也比较薄(< 3 nm)^[81].此外,由于薄膜平面腔工作在掠入射角度,样品表面的光斑尺寸会被放大,这要求薄膜平面腔的样品尺寸较大,一般需要几十毫米.

常见的薄膜制备方法有化学气相沉积、原子层沉积、分子束外延、热蒸镀、磁控溅射等^[84-87].其中磁控溅射方法能较好满足薄膜平面腔的多个要求,包括多靶材、厚度差别较大的多层膜交替溅射、亚纳米的精度和粗糙度、大尺寸样品等.因此,人们常用该方法制备此类样品.磁控溅射的基本原理是,高真空腔体内,高速电子轰击惰性气体产生离子,在电场加速和磁场约束下离子轰击靶材.当被轰击的原子有足够高的动能时,就会从靶材表面逃逸,在基底上沉积成膜.因此,薄膜的沉积速率以及表面粗糙度,与惰性原子离子的数量、能量、基底与靶材的距离以及溅射室的本底真空等条件密切相关.实验中,一般在靶距确定的情况下,通过调节通入惰性气体的流量、溅射功率以及溅射时间等控制薄膜厚度和成膜质量.需要提及的是,无论是对原子核体系还是原子内壳层体系,薄膜平面腔的制备均采用了磁控溅射.也正是随着薄膜制备技术的发展与成熟, Röhlsberger, Evers 及 Pálffy 等课题组得以在近二十年不断提升薄膜平面腔的设计和制备,相继实现了原子核体系的自发辐射速率

增强^[23]、集体兰姆移位^[26]、电磁诱导透明^[27]、法诺干涉^[35]、拉比振荡^[36]等一系列重要的量子光学现象,逐渐形成了 X 射线腔量子光学这一研究方向.

前面提到,除了原子核体系,重元素的 K 边和 L 边附近也有较强的白线(white line)跃迁^[19,20].当然,内壳层跃迁与穆斯堡尔核跃迁有着一些显著的区别^[64]: 1) 核跃迁体系中,集体效应十分显著,超辐射速率与原子核数目有明确的关系,而原子内壳层体系的跃迁辐射速率与原子数目之间的关系并不明显.其内在原因可能在于较强的耗散、较弱的共振、内壳层空穴态寿命过短($\sim$ fs)等.原子内壳层跃迁体系是否可以实现可观测的集体效应,仍待进一步研究. 2) 原子内壳层空穴态存在多种退激通道,除了共振通道之外,还可以通过辐射非共振荧光或俄歇电子退激,更复杂的退激通道也带来了更丰富的物理内容. 3) 白线跃迁的自然线宽($\sim$ eV)比穆斯堡尔核跃迁的自然线宽高 9 个数量级, X 射线脉冲内会有更多共振光子.不过目前的同步辐射脉冲宽度远大于内壳层空穴态寿命,因此同样属于线性激发范畴. 4) 白线跃迁中,价壳层的能带依赖于价态、配位场、晶体场等,可能存在多个偶极跃迁,例如 WO₃^[88], CeO₂^[89]等. Haber 等^[59,77]首先在薄膜平面腔体系中实现了 Ta 元素白线跃迁的谱线增宽和移位,证明了薄膜平面腔结合白线跃迁也有类似的腔电动力学(cavity-QED)现象.本课题组自 2018 年起基于内嵌 WSi₂ 的薄膜平面腔体系,开展了一系列 X 射线量子光学研究,实现了空穴态寿命调控^[60]、法诺干涉调控及直线型法诺线形^[61]等.图 2 所示为 WSi₂ 的跃迁示意图,其中 L_{III} 边与 5d 能带之间的偶极跃迁即为所关注的白线跃迁,其跃迁能量约为 10208.5 eV.样品制备完成后,通过多种方法对薄膜厚度和表面粗糙度进行了表征:利用原子力显微镜(atomic force microscope, AFM)扫描样品表面形貌得到的均方根粗糙度约

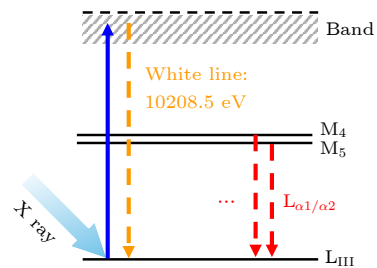


图 2 WSi₂ 内壳层白线跃迁示意图

Fig. 2. Schematic diagram of inner-shell transitions in WSi₂.

为 0.2 nm; 透射电子显微镜 (transmission electron microscope, TEM) 对样品截面测量同样表明样品各层厚度均匀、界面清晰, 且厚度与设计值误差小于 0.2 nm; 利用 X 射线反射法 (X-ray reflectivity, XRR) 得到了和 AFM 与 TEM 吻合的厚度及粗糙度结果.

2.2 实验方法

X 射线量子光学的实验研究依赖同步辐射和自由电子激光, 二者均为依托于加速器的大科学装置. 相对论速度的电子经磁场调制, 产生高亮度的 X 射线. 这种调制高能电子辐射 X 射线的装置被称为插入件, 例如弯铁 (bending magnetic)、增频磁铁 (wiggler)、波荡器 (undulator) 等. 如图 3 所示, PETRA-III 光源的 P23 线站上^[90], 长度约为 2 m 的波荡器, 可以产生 5—35 keV 的高亮度 X 射线. 多组狭缝、准直透镜 (compound X-ray refractive lenses, CRL) 和环形面镜 (toroidal mirror) 可以降低束流的发散并缩小光斑尺寸. 由于 X 射线腔效应对角度非常敏感, 因此束流的准直性非常重要, 例如我们在 P23 线站使用的光束发散度约为 5—10 μrad . 对部分类型的实验, 例如端面入射耦合, 需要使用强聚焦光, 一般可以使用聚焦透镜 (focusing CRL) 或反射镜 (Kirkpatrick-Baez mirror) 实现. 由于入射角度很小, 光斑在样品表面的长度会被放大 $1/\sin\theta$ 倍, 因此需要限制光斑尺寸, 例如我们在 P23 线站使用的光斑尺寸约为 50 μm . 插入件产生的 X 射线一般带宽较大, 例如波荡器产生的光带宽为几百电子伏特, 需要经过单色光学器件^[73,74], 例如双晶单色器、四晶单色器、色散单色

器^[91]、核单色器^[92]以提供从 eV 到 neV 的带宽, 满足从内壳层跃迁到原子核跃迁的不同能量分辨要求. 具体而言, 对于内壳层类型实验, 一般研究其能域谱, 常见的热耗载双晶单色器 ($\Delta E/E \sim 10^{-5} - 10^{-4}$) 即能满足需求, 例如 Si(111), Si(311), Si(333) 等. 核跃迁体系对能量分辨的要求极高, 一般使用非对称切割的高阶指数面单色器将入射光带宽压缩至亚 meV 量级, 并配合高时间分辨 (百皮秒) 的探测系统在时域上收集样品的拍信号^[93]; 或使用核单色器将带宽压缩至 10 neV 量级, 利用多普勒频移完成能量扫描^[92]. 由于原子核体系的技术方法较为特殊, 在本文中不再赘述. 此外, 薄膜平面腔样品和探测器对角度控制有很高的要求, 也需要多轴调样平台, 一般需要配有五圆衍射仪. 例如 P23 配置的 Huber 5+2 圆衍射仪, 可以提供 $< 1 \mu\text{rad}$ 的角度控制精度. 除了这些对准直性、光斑尺寸和能量分辨率的高精度要求, X 射线腔量子光学还有一些技术挑战. 例如, 样品的平整性也会等效地贡献角度发散, 这对测试平台的平整性和样品的安装方式提出了要求. 另外, 不同的测量信号间强度差别较大, 需要精细地调整和控制不同探测器都是线性响应.

图 1 展示了 X 射线腔样品常用的探测手段, 包括反射光、荧光及非弹性散射信号的收集. 其中, 反射光对应的是共振和非共振的 X 射线弹性散射. 收集其信号可以使用不具备位置分辨的二极管, 例如 PN 结二极管 (PN diode) 和雪崩二极管 (avalanche photodiode, APD), 但需要配合高精度狭缝系统使用. 也可以使用具有位置分辨的二维探测器, 不仅总的动态范围较大, 还可以探测反射或

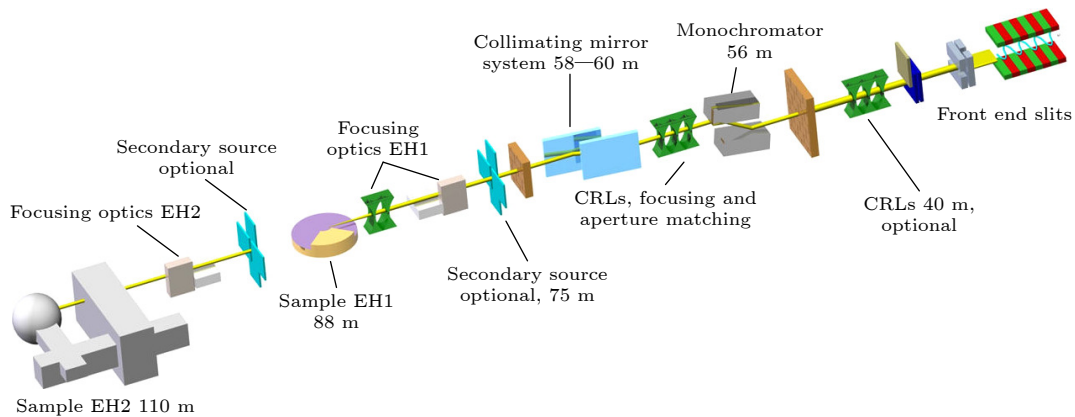


图 3 PETRA III 光源 P23 线站布局示意图^[90]

Fig. 3. Layout of the P23 beamline of the PETRA III synchrotron^[90].

透射光分布, 例如 Medipix 和 LAMBDA 探测器, 像素尺寸 $55\text{ }\mu\text{m}$, 能较好满足内壳层体系的探测需求. 此外, 二维探测器可以收集腔样品不同位置的反射光, 可以用来进一步降低角度发散的影响. 至于荧光信号的探测, 可以使用立体角较大、探测效率较高但不具备能量分辨的 PN 结二极管, 也可以使用具有一定能量分辨的硅漂移探测器 (silicon drift detector, SDD). 为了限制荧光的收集范围, 一般在探测器前装有小孔^[94]. 这两种点探测器可以获得荧光的强度信息, 但由于能量分辨较差, 无法获得荧光的细节信息. 具有更高能量分辨的发射谱方法可以分析荧光的细节信息, 例如共振 X 射线发射谱可以提供不同入射能量下的荧光峰型. 图 1 插图中展示了金属钨 L_{III} 边不同入射光下发射谱的二维图^[82]. 发射谱的采集需要使用晶体谱仪, 例如色散型的 von Hamos 谱仪^[95]、单色型的 Johann 谱仪^[96]、适用于高能 X 射线的劳厄谱仪^[97]等. 此外, 晶体谱仪还可以分析其他不同的非弹性散射通道. 然而, 由于腔样品中的原子层厚度仅有纳米尺度, 因此发射谱分析是光子饥饿 (photon hungry) 型实验. 而且一般同步辐射的谱学线站为了追求 X 射线的高通量, 光束发散较大, 而平面腔实验要求高准直, 这势必会降低入射束流的光通量; 此外, 掠入射角度下的尺寸光斑对谱仪的工作构型也提出了苛刻要求, 以确保足够高的能量分辨率. 除了这些 X 射线谱学上的技术挑战, 由于 X 射线平面腔实验还依赖高精度的多圆衍射仪, 一般在衍射、散射和成像线站较为常见, 而在谱学线站多不配备, 因此这种现实因素的限制也需要多方资源的调动和多团队合作.

图 1 插图给出了反射谱和荧光谱的二维图, 二者收集了不同入射角度和不同入射光能量下的反射谱和荧光谱. 实验过程中, 入射 X 射线的方向不变, 通过旋转样品改变入射角度 θ , 同时反射谱探测器在 2θ 摆臂上联动. 除了能给出超辐射增宽、能量移位、法诺干涉等物理信息, 反射谱还可以确定腔模式角度、腔结构及膜层粗糙度等信息. 在掠入射条件下, 由于光斑在样品表面被放大, 样品在厘米尺度内的均匀性和平整性也会影响腔效应, 因此需要考虑大于光束发散的角度分布. 荧光谱不受多通道干涉影响, 可以更直观地给出能量移位和增宽. 此外, 通过调节入射角度至远离腔模式的大角度, 荧光谱还可以给出不含腔效应的吸收谱

信息, 可以用于定量提取腔效应、制备折射率数据以及矫正反射谱信息. 自 2018 年以来, 已经逐步建立了使用二维反射谱和荧光谱测量 X 射线腔效应的标准流程, 在英国 Diamond 光源 B16 线站^[98]、德国 PETRA-III 光源 P23 线站^[90]、瑞士 SLS 光源 SuperXAS 线站^[99]和法国 SOLEIL 光源 GALAXIES 线站^[100]多次成功表征了不同物理内容的 X 射线腔样品.

3 理论模型与框架

处理 X 射线与薄膜平面腔相互作用的理论模型主要包括经典 Parratt 迭代方法^[101]、半经典传输矩阵方法^[102]、唯象量子光学模型^[29,34]和基于量子光学的格林函数方法^[32,64,103]. Parratt 方法依赖于膜层材料的折射率, 可以方便地得到腔内场强分布和反射率的数值结果, 在腔结构设计和优化过程中有着十分重要的作用, 但数值结果很难体现更深层次的物理内容. 半经典传输矩阵方法通过累乘电磁场在界面和介质内传输的关系矩阵, 可以得到平面腔反射率和腔内场幅度的解析表达式. 进一步, 结合唯象 X 射线量子光学模型, 可以解释平面腔中的集体量子效应, 如超辐射速率和集体兰姆移位, 以及腔连续反射的非共振散射与内嵌原子层共振散射的法诺干涉. 然而, 唯象量子光学模型和传输矩阵方法在处理更复杂的多层薄膜和多模光场时, 其解析形式十分复杂, 且不能给出一些基本物理参数的数值结果, 甚至与实验结果存在定性或定量的差异. 量子格林函数理论则提供了一种既可以揭示内部物理过程又十分高效的理论方法, 可以给出任意多层薄膜平面腔的数值结果. 因此, 格林函数方法逐渐成为了 X 射线腔量子光学领域的主流方法. X 射线腔量子光学理论发展始于原子核体系, 近期本课题组改进了唯象量子模型^[61]、半经典矩阵方法和量子格林函数方法^[64], 使其同样适用于原子内壳层体系, 本节将介绍这几个重要的理论模型.

3.1 Parratt 迭代方法

Parratt 迭代方法基于菲涅尔公式, 通过计算多层膜中不同膜层边界的反射和透射系数, 确定平面腔的 X 射线反射率及内部场强分布^[101]. 图 4 所示为 Parratt 方法进行迭代计算的示意图, 入射

X 射线在介质 $i-1$ 和 i 的界面处会发生反射或透射, 多层膜对 X 射线反射包括界面处的直接反射 ($r_{i-1,i}$), 以及透射光经下一层薄膜界面的反射后, 从下往上传播回到界面处的透射部分 ($t_{i,i-1}$). 需要注意的是, 每次反射都会引入一个与路径相关的额外相位 ϕ_i . 最终, 总的反射系数 $r'_{i-1,i}$ 可以表示为

$$r'_{i-1,i} = \frac{r_{i-1,i} + r'_{i,i+1} \cdot e^{2i\phi_i}}{1 + r_{i-1,i} \cdot r'_{i,i+1} \cdot e^{2i\phi_i}}, \quad (1)$$

其中, $r_{i-1,i}$ 为界面处的直接反射系数, ϕ_i 为 X 射线在介质 i 中沿着 z 方向传输 d_i 距离引入的额外相位. 菲涅尔反射和折射系数可以由 X 射线在介质中的波矢得到:

$$r_{i,j} = \frac{k_z^i - k_z^j}{k_z^i + k_z^j}, \quad (2)$$

$$t_{i,j} = \frac{2k_z^i}{k_z^i + k_z^j}, \quad (3)$$

其中, k_z^i 为 X 射线在介质 i 中沿着 z 方向的波矢大小. 由于连续性, 在穿过不同介质时 X 射线波矢 k 沿着平面腔表面方向的分量不会发生改变, 而垂直于表面方向的分量与介质的折射率有关:

$$k_z^i = k \sqrt{n_i^2 - \cos^2 \theta}. \quad (4)$$

X 射线在通过介质 i 传输时的累积相位正比于其在 z 方向的传输距离 d_i :

$$\phi_i = k_z^i d_i. \quad (5)$$

在掠入射条件下, 忽略 X 射线的极化和薄膜的粗糙度, 则反射和透射光场幅度分别为

$$E_-^i(\omega, z_i) = \beta_i^2 \alpha_i E_+^i(\omega, z_i), \quad (6)$$

$$E_+^j(\omega, z_j) = \frac{\beta_i t_{ij} E_+^i(\omega, z_i)}{2(1 + \beta_j^2 \alpha_j r_{ij})}, \quad (7)$$

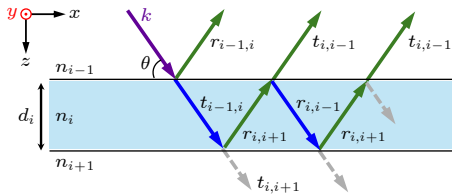


图 4 Parratt 迭代方法示意图. 其中 n_i 为第 i 层介质对 X 射线的折射率, d_i 为第 i 层介质的厚度, $r_{i-1,i}$ 和 $t_{i-1,i}$ 为 X 射线在介质 $(i-1)$ 与 i 界面处的反射和透射系数

Fig. 4. Illustration of Parratt's method. n_i and d_i are the refractive indices and thickness of the i -th layer, $r_{i-1,i}$ and $t_{i-1,i}$ are the Fresnel coefficients for reflection and transmission at the interface between $(i-1)$ and i -th layers.

其中, 系数 α 和 β 由 Parratt 迭代方法得到:

$$\alpha_i = \frac{r_{i,i+1} + \beta_{i+1}^2 \alpha_{i+1}}{1 + \beta_{i+1}^2 \alpha_{i+1} r_{i,i+1}}, \quad (8)$$

$$\beta_i = \exp(-ik_z^i d_i). \quad (9)$$

图 5 所示为平面腔中场幅度分布示意图. 为了方便, 可以认为薄膜平面腔顶层 (第 0 层) 是折射率为 1 的“真空层”, 而底层是无限厚的基底. 此时, 光场满足两组边界条件: 顶层的光场幅度等于入射 X 射线光场; 基底层没有反射光场. 通过求解以上迭代方程, 可以得到平面腔内部任意位置的场幅度和场强:

$$a(\omega, z) = \frac{E_+(\omega, z) + E_-(\omega, z)}{E^0(\omega)}, \quad (10)$$

$$I(\omega, z) = |a(\omega, z)|^2. \quad (11)$$

平面腔整体对 X 射线的反射系数即为反射光场幅度与入射光场幅度之比:

$$r(\omega, \theta) = \frac{E_-^0(\omega, \theta)}{E^0(\omega, \theta)}. \quad (12)$$

反射率 $|r|^2$ 即为实验中的反射光强度与入射光强度之比.

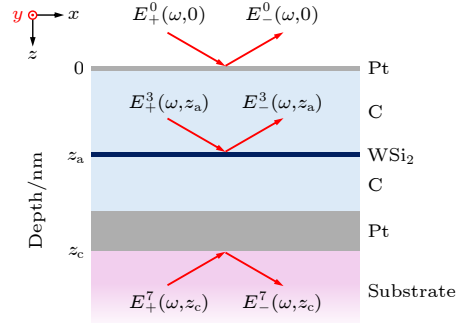


图 5 平面腔中场幅度分布示意图

Fig. 5. Sketch map of field amplitudes in the cavity.

在 Paratt 迭代方法中, 获取薄膜材料的折射率是其中的关键. 一般而言, 薄膜对 X 射线的折射可以理解入射光场和散射光场的相干叠加, 均匀介质的折射率可以由材料中的原子散射长度 (scattering length) 得到:

$$n = 1 - \frac{2\pi\rho_a}{k^2} f_A. \quad (13)$$

其中, ρ_a 为材料中原子的数密度. 散射长度 f_A 包含了非共振的汤姆逊弹性散射 f_T 以及电子或核共振散射的贡献 Δf_A , 即 $f_A = f_T + \Delta f_A$. 共振散射长

度的虚部可以由相应的 X 射线吸收截面得到:

$$\text{Im}[\Delta f_A] = \frac{k}{4\pi} \sigma_{\text{abs}}. \quad (14)$$

实部可以通过 Kramers-Kronig 关系计算:

$$\text{Re}[\Delta f_A(\omega)] = \frac{2}{\pi} \mathcal{P} \int_0^\infty \frac{\omega' \text{Im}[\Delta f_A(\omega')]}{\omega'^2 - \omega^2} d\omega', \quad (15)$$

$$\text{Im}[\Delta f_A(\omega)] = -\frac{2\omega}{\pi} \mathcal{P} \int_0^\infty \frac{\text{Re}[\Delta f_A(\omega')]}{\omega'^2 - \omega^2} d\omega', \quad (16)$$

其中 $\mathcal{P} \int_0^\infty$ 为柯西主值. 由此, 可以将一般材料的折射率表示为

$$n = 1 - \delta + i\beta, \quad (17)$$

其中, δ 和 β 是依赖于 X 射线能量的实数 ($\sim 10^{-5}$ — 10^{-6}). 对于从真空层入射到材料表面的 X 射线, 在掠入射角度大于临界角时, X 射线几乎全部透射入材料内部, 而当掠入射角小于临界角时则几乎发生全反射. 临界角度可以由折射率粗略估计为 $\phi_c = \sqrt{2\delta}$, 对 5d 区等重元素, 大约为几个毫弧度.

3.2 唯象量子光学

利用 Parratt 方法, 可以得到 X 射线被薄膜平面腔反射的反射率曲线以及荧光谱的数值结果, 但无法给出腔内驻波光场与二能级系统相互作用的物理图像. 为了进一步理解该相互作用过程, 需要建立相应的量子光学模型, 求解实验中的可观测量 [28,77]. 薄膜平面腔在频率为 ω 的外场驱动下, 相互作用表象下腔模式的哈密顿量为

$$\mathcal{H}_c = \Delta_c \hat{a}^\dagger \hat{a} + i\sqrt{2\kappa_R}(a_{\text{in}} \hat{a}^\dagger - a_{\text{in}}^* \hat{a}), \quad (18)$$

其中, a_{in} 为驱动光场幅度, $\hat{a}$ ($\hat{a}^\dagger$) 为腔模式的产生 (湮灭) 算符, κ_R 表示 X 射线驱动场与腔模式的耦合强度. 腔模式相对驱动光场的能量失谐依赖于入射角 θ 和腔模式角 θ_{st} :

$$\Delta_c = \left(\frac{\sin \theta_{\text{st}}}{\sin \theta} - 1 \right) \omega. \quad (19)$$

在 X 射线能量约为 10 keV 的条件下, 入射角在模式角附近微小的变化都会引起显著的能量失谐. 例如在 2 mrad 模式角度附近, 每 1 μ rad 的角度失谐可以带来 5 eV 的腔失谐, 这也说明了实验中准直的入射 X 射线光束和精准的角度控制的重要性. 在腔内嵌原子 (核) 层的情况下, 系统的哈密顿量还应包括光场与共振跃迁之间的相互作用:

$$\mathcal{H}_N = -\Delta \hat{\sigma}_z + g_N (\hat{\sigma}_+ \hat{a} + \hat{\sigma}_- \hat{a}^\dagger), \quad (20)$$

式中, Δ 为入射 X 射线与共振跃迁之间的能量失谐; $\hat{\sigma}_{z/+/-}$ 为描述内嵌原子薄膜层基态与集体单激发态构成二能级系统的泡利算符; g_N 为光场与集体激发之间的耦合强度, 与发生相互作用的有效粒子数 N 相关, 即 $g_N = \sqrt{N}g$, 其中 g 为光场与单个原子 (核) 跃迁之间的耦合强度.

X 射线驱动场与平面腔之间的非相干演化行为可以由 Lindblad 算符描述. 为了方便, 对任意算符 $\mathcal{O}$ 定义如下函数:

$$\mathcal{L}[\rho, \mathcal{O}^\dagger, \mathcal{O}] = \mathcal{O}^\dagger \mathcal{O} \rho + \rho \mathcal{O}^\dagger \mathcal{O} - 2\mathcal{O} \rho \mathcal{O}^\dagger. \quad (21)$$

则腔的固有损耗和内嵌原子 (核) 层自发辐射的 Lindblad 算符分别为

$$\mathcal{L}_c[\rho] = -\kappa \mathcal{L}[\rho, \hat{a}^\dagger, \hat{a}], \quad (22)$$

$$\mathcal{L}_a[\rho] = -\frac{\Gamma}{2} \mathcal{L}[\rho, \hat{\sigma}_+, \hat{\sigma}_-], \quad (23)$$

其中, ρ 为系统的密度矩阵, κ 为腔的固有损耗, Γ 为自发辐射速率. 系统的演化过程可以由主方程描述:

$$\dot{\rho} = -i[\mathcal{H}, \rho] + \mathcal{L}[\rho]. \quad (24)$$

对于空腔系统, $\mathcal{L}[\rho] = \mathcal{L}_c[\rho]$, $\mathcal{H} = \mathcal{H}_c$. 有内嵌层的腔系统有 $\mathcal{L}[\rho] = \mathcal{L}_c[\rho] + \mathcal{L}_a[\rho]$, $\mathcal{H} = \mathcal{H}_c + \mathcal{H}_N$.

考虑到腔的固有损耗较大, 腔模的演化动力学主要由耗散主导, 海森伯运动方程为

$$\dot{\hat{a}} = i[\mathcal{H}, \hat{a}] - \kappa \hat{a}. \quad (25)$$

在绝热近似 ($\dot{\hat{a}} = 0$) 下, 可以求得定态解为

$$\hat{a} = \frac{\sqrt{2\kappa_R} a_{\text{in}} - i g \hat{\sigma}_-}{\kappa + i \Delta_c}. \quad (26)$$

将定态解代入 (20) 式的哈密顿量和 (23) 式中, 可得

$$\mathcal{H}^{\text{eff}} = -(\Delta - \Delta_{\text{LS}}) \hat{\sigma}_z + [g_N \Omega a_{\text{in}} \hat{\sigma}_+ + \text{h.c.}], \quad (27)$$

$$\mathcal{L}_c^{\text{eff}}[\rho] = -\frac{\Gamma_{\text{SR}}}{2} \mathcal{L}[\rho, \hat{\sigma}_+, \hat{\sigma}_-]. \quad (28)$$

其中:

$$\Omega = \frac{\sqrt{2\kappa_R}}{\kappa + i \Delta_c}, \quad (29)$$

$$\Delta_{\text{LS}} = |g_N|^2 \times \text{Im} \left[\frac{1}{\kappa + i \Delta_c} \right], \quad (30)$$

$$\Gamma_{\text{SR}} = 2|g_N|^2 \times \text{Re} \left[\frac{1}{\kappa + i \Delta_c} \right]. \quad (31)$$

实验中的可观测量, 例如反射率系数, 可以由输入-输出关系给出:

$$\hat{a}_{\text{out}} = -\hat{a}_{\text{in}} + \sqrt{2\kappa_R}\hat{a}. \quad (32)$$

通过求解主方程可以得到反射系数为

$$R = \frac{\langle \hat{a}_{\text{out}} \rangle}{a_{\text{in}}} = R_c + R_N, \quad (33)$$

$$R_c = -1 + \frac{2\kappa_R}{\kappa + i\Delta_c}, \quad (34)$$

$$R_N = -i \frac{|g_N|^2 \Omega^2}{\Delta - \Delta_{\text{LS}} + i(\Gamma + \Gamma_{\text{SR}})/2}. \quad (35)$$

容易看出, 空腔反射与能量的关系非常平坦, 共振散射的贡献为洛伦兹函数, 但腔效应造成了一定的能量移动和谱线增宽, 即集体兰姆移位 Δ_{LS} 和超辐射速率增强 Γ_{SR} .

3.3 传输矩阵方法

传输矩阵是 Parratt 迭代方法的一种表现形式, 但其可以结合薄膜近似, 将原子 (核) 层的非共振散射、背景耗散与共振散射分离开来, 得到腔效应项 [22,78]. 在掠入射角度下, X 射线在多层膜腔结构中的场幅度包括反射 (+) 和透射 (-) 两个分量, 其在界面处和介质内的传播行为可以通过二维矩阵描述:

$$\mathbf{M}_{ij} = \begin{pmatrix} \frac{1}{t_{ij}} & \frac{r_{ij}}{t_{ij}} \\ \frac{r_{ij}}{t_{ij}} & \frac{1}{t_{ij}} \end{pmatrix}, \quad (36)$$

$$\mathbf{M}_i = \begin{pmatrix} e^{ik_i d_i} & 0 \\ 0 & e^{-ik_i d_i} \end{pmatrix}. \quad (37)$$

累乘各薄膜层的传输矩阵即可计算入射光场在平面腔内的场强分布:

$$\begin{pmatrix} A_+^{\text{bot}} \\ A_-^{\text{bot}} \end{pmatrix} = \mathbf{M} \begin{pmatrix} A_+^{\text{top}} \\ A_-^{\text{top}} \end{pmatrix}. \quad (38)$$

与迭代方法中类似, 考虑边界条件 $A_+^{\text{top}} = A^0$ 和 $A_-^{\text{bot}} = 0$, 反射系数可以表示为

$$r_0 = \frac{A_-^{\text{top}}}{A^0} = -\frac{\mathbf{M}_{21}}{\mathbf{M}_{22}}. \quad (39)$$

此外, 平面腔内位置 z 处的归一化场幅度可以由矩阵元给出:

$$a(z) = \frac{A_+(z) + A_-(z)}{A^0} = p(z) - q(z) \cdot \frac{\mathbf{M}_{21}}{\mathbf{M}_{22}}, \quad (40)$$

其中,

$$p(z) = \mathbf{M}_{11}^z + \mathbf{M}_{21}^z, \quad (41)$$

$$q(z) = \mathbf{M}_{12}^z + \mathbf{M}_{22}^z, \quad (42)$$

分别表示从上往下和从下往上传播的场幅度分量, $\mathbf{M}^z$ 为光场从顶层传播至位置 z 处的传输矩阵.

进一步, 对于包含共振原子或原子核层的平面腔, 还需要包括共振跃迁的贡献. 对于纳米尺度的原子层, 在薄膜近似条件下, 共振跃迁对传输矩阵的贡献可以表示为 $\mathbf{M}^a \approx \exp(i\Delta \mathbf{F} d)$, 其中 d 为原子层厚度, 矩阵 $\Delta \mathbf{F}$ 具有如下形式:

$$\Delta \mathbf{F} = \begin{pmatrix} \Delta f & \Delta f \\ -\Delta f & -\Delta f \end{pmatrix}. \quad (43)$$

矩阵元 Δf 可以由原子或原子核的散射长度得到:

$$\Delta f = \frac{2\pi\rho_a}{k_z} \Delta f_A. \quad (44)$$

容易看出, $\mathbf{M}^a$ 可以展开为

$$\mathbf{M}^a \approx \exp(i\Delta \mathbf{F} d) = \mathbf{I} + i\Delta \mathbf{F} d. \quad (45)$$

因此, 包含共振散射的平面腔传输矩阵为

$$\mathbf{M} = \mathbf{M}^{zc} [\mathbf{I} + i d (\mathbf{M}^{za})^{-1} \cdot \Delta \mathbf{F} \cdot \mathbf{M}^{za}]. \quad (46)$$

总的反射系数可以表示为空腔反射 (r_0) 和共振散射之和, 其中共振散射部分的贡献为

$$r_a = \frac{id\Delta f |a(z_a)|^2}{1 - id\Delta f p(z_a)q(z_a)}. \quad (47)$$

对于原子内壳层跃迁或核跃迁, 散射长度的能域谱表现为洛伦兹线形, 即

$$\Delta f = \frac{f_0}{\varepsilon + i}, \quad (48)$$

其中, $\varepsilon = 2\Delta/\Gamma$, $\Delta = \omega - \omega_0$ 为入射 X 射线相对于共振跃迁能量 ω_0 的失谐, Γ 为共振跃迁的自然线宽, f_0 为共振散射幅度. 代入 (47) 式整理可得

$$r_a = \frac{idf_0 |a(z_a)|^2}{\Delta + \Delta_c + i(\Gamma + \Gamma_c)/2}, \quad (49)$$

其中:

$$\Delta_c = df_0 \Gamma / 2 \times \text{Im}(\eta), \quad (50)$$

$$\Gamma_c = df_0 \times \text{Re}(\eta), \quad (51)$$

$$\eta = p(z_a)q(z_a). \quad (52)$$

容易看出, (49) 式中的能量响应仍然是一个洛伦兹函数, 但腔效应造成了 Δ_c 的能量移动和 Γ_c 的谱线增宽. η 和腔内场幅度直接相关, 厚度 d 则与粒子数直接相关. 因此传输矩阵方法指出, 整体的腔效应由腔内场幅度和粒子数有关的集体效应决定.

3.4 格林函数方法

宏观量子电动力学 (macroscopic quantum electrodynamics, M-QED)^[104] 提供了一种描述电磁场与宏观物质相互作用的理论框架. 薄膜体系中, 入射 X 射线在掠入射角度下耦合进入平面腔并与嵌在腔内的原子或原子核层相互作用. 其中, 薄膜平面腔的内部场强由经典光场处理, 因此不用区分场模式. 对于腔模式与腔内原子的相互作用物理过程, 采取类似唯象量子光学模型的方法处理, 给出相互作用哈密顿量. 因此该方法兼顾了经典方法给出准确数值结果, 以及量子光学模型可以给出深层次物理图像的优点^[32,79,80]. 在偶极近似下, 考虑 N 粒子构成的二能级体系, 系统的哈密顿量可以表示为

$$\begin{aligned} \hat{\mathcal{H}} = & \int d^3\mathbf{r} \int_0^\infty d\omega \hbar\omega \hat{\mathbf{f}}^\dagger(\mathbf{r}, \omega) \hat{\mathbf{f}}(\mathbf{r}, \omega) \\ & + \sum_{j=1}^N \frac{1}{2} \hbar\omega_0 \hat{\sigma}_j^+ \hat{\sigma}_j^- - \sum_{j=1}^N \int_0^\infty d\omega [\hat{\sigma}_j^+ \mathbf{d}_j^* + \hat{\sigma}_j^- \mathbf{d}_j] \\ & \times \hat{\mathbf{E}}(\mathbf{r}_j, \omega). \end{aligned} \quad (53)$$

其中, $\hat{\mathbf{f}}^\dagger(\mathbf{r}, \omega)$ 和 $\hat{\mathbf{f}}(\mathbf{r}, \omega)$ 分别为玻色子的产生和湮灭算符, $\hbar\omega_0$ 为共振跃迁能量, $\hat{\sigma}^{+/-}$ 为共振跃迁的升降算符, $\mathbf{d}$ 为偶极跃迁矩阵元. 薄膜平面腔中的电磁场可以视为由等效电流源所产生的场在全空间的积分:

$$\begin{aligned} \hat{\mathbf{E}}(\mathbf{r}, \omega) = & \hat{\mathbf{E}}^+(\mathbf{r}, \omega) + \hat{\mathbf{E}}^-(\mathbf{r}, \omega) \\ = & i\omega\mu_0 \int d\mathbf{r}' \mathbf{G}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) \cdot \hat{\mathbf{j}}(\mathbf{r}', \omega) + \text{h.c.}, \end{aligned} \quad (54)$$

其中, μ_0 是真空磁导率, h.c. 代表厄密共轭 (Hermitian conjugate), 格林函数 $\mathbf{G}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega)$ 为满足以下波动方程的解:

$$\left[\nabla \times \nabla \times - \frac{\omega^2}{c^2} \varepsilon(\mathbf{r}, \omega) \right] \mathbf{G}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) = \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}'). \quad (55)$$

对于薄膜平面腔中的非共振场, 由如下等效电流源产生:

$$\hat{\mathbf{j}}(\mathbf{r}, \omega) = \omega \sqrt{(\hbar\varepsilon_0/\pi) \text{Im}[\varepsilon(\mathbf{r}, \omega)]} \hat{\mathbf{f}}(\mathbf{r}, \omega). \quad (56)$$

对于共振弹性散射, 白线跃迁可以近似视为偶极源:

$$\hat{\mathbf{j}}(\mathbf{r}, \omega) = -i\omega \mathbf{p} \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}'). \quad (57)$$

所产生的散射场为

$$\hat{\mathbf{E}}^s(\mathbf{r}, \omega) = \mu_0\omega^2 \mathbf{G}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) \cdot \mathbf{p}. \quad (58)$$

因此, 总的输出场为

$$\hat{\mathbf{E}}_{\text{out}}^+(\mathbf{r}, \omega) = \hat{\mathbf{E}}^+(\mathbf{r}, \omega) + \mu_0\omega^2 \sum_{j=1}^N \mathbf{G}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_j, \omega) \cdot \hat{\sigma}_j^- \mathbf{d}_j. \quad (59)$$

忽略光的极化, 腔系统中共振部分的有效哈密顿量和 Lindblad 算符写作:

$$\begin{aligned} \hat{\mathcal{H}}^{\text{eff}} = & -\hbar\Delta \sum_{j=1}^N \hat{\sigma}_j^+ \hat{\sigma}_j^- - \hbar \sum_{i,j=1}^N g_{ij} \hat{\sigma}_i^+ \hat{\sigma}_j^- \\ & - \sum_{j=1}^N [\mathbf{d}_j^* \cdot \mathbf{E}_{\text{in}}(\mathbf{r}) \hat{\sigma}_j^+ + \text{h.c.}], \end{aligned} \quad (60)$$

$$\mathcal{L}^{\text{eff}}[\rho] = \sum_{i,j=1}^N -\frac{\Gamma_{ij}}{2} \mathcal{L}[\rho, \hat{\sigma}_i^+, \hat{\sigma}_j^-], \quad (61)$$

式中, 耦合强度和衰减系数分别为

$$g_{ij} = \frac{\mu_0\omega^2}{\hbar} \mathbf{d}^* \cdot \text{Re}[\mathbf{G}(\mathbf{r}_i, \mathbf{r}_j, \omega)] \cdot \mathbf{d}, \quad (62)$$

$$\Gamma_{ij} = \frac{2\mu_0\omega^2}{\hbar} \mathbf{d}^* \cdot \text{Im}[\mathbf{G}(\mathbf{r}_i, \mathbf{r}_j, \omega)] \cdot \mathbf{d}. \quad (63)$$

由于薄膜平面腔只在 z 方向产生驻波, 因此在求解格林函数时只考虑一维结构特性, 即对 x - y 平面的波矢积分为

$$\begin{aligned} \mathbf{G}(\mathbf{r}_i, \mathbf{r}_j, \omega) = & \frac{1}{4\pi} \int \mathbf{G}_{\text{ID}}(z_i, z_j, \omega) \\ & \times e^{i\mathbf{k}_{x,y} \cdot (\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j)} d^2\mathbf{k}_{x,y}, \end{aligned} \quad (64)$$

其中, $\mathbf{k}_{x,y}$ 和 $\mathbf{r}$ 为原子 (核) 所处 x - y 平面的波矢和位置矢量. 对于掠入射角度下工作的平面腔, z 方向的格林函数可以近似为

$$\begin{aligned} \mathbf{G}_{\text{ID}}(z_i, z_j, \omega) \approx & \frac{i}{2k_z} [p(z_i)q(z_j)\Theta(z_i - z_j) \\ & + p(z_j)q(z_i)\Theta(z_j - z_i)]. \end{aligned} \quad (65)$$

在内嵌薄膜厚度很薄的情况下, 可以近似认为这些原子 (核) 所处的场相同. 而当内嵌薄膜较厚时, 可以将薄膜划分为足够薄的亚层, 对于每个亚层中的 N_l 个原子 (核), 认为其所处的场是相同的. 每个亚层的集体自旋算符为

$$\hat{\sigma}_l^-(\mathbf{k}_{x,y}) = \frac{1}{\sqrt{N_l}} \sum_{j=1}^{N_l} \hat{\sigma}_j^- e^{-i\mathbf{k}_{x,y} \cdot \mathbf{r}_j}. \quad (66)$$

并将哈密顿量和 Lindblad 算符简化为

$$\begin{aligned} \hat{\mathcal{H}}_{\text{eff}} = & -\hbar\Delta \sum_l \hat{\sigma}_l^+ \hat{\sigma}_l^- - \hbar \sum_{ll'} J_{ll'} \hat{\sigma}_l^+ \hat{\sigma}_{l'}^- \\ & - \hbar \sum_l [\Omega_l \hat{\sigma}_l^+ + \text{h.c.}], \end{aligned} \quad (67)$$

$$\mathcal{L}_{\text{eff}}[\rho] = -\sum_{ll'} \frac{\Gamma_{ll'}}{2} \mathcal{L}[\rho, \hat{\sigma}_{l'}^+, \hat{\sigma}_l^-] - \sum_l \frac{\Gamma_0}{2} \mathcal{L}[\rho, \hat{\sigma}_l^+, \hat{\sigma}_l^-], \quad (68)$$

其中,

$$J_{ll'} = \frac{\sqrt{N_l N_{l'}}}{A} \frac{\mu_0 \omega^2}{\hbar} \mathbf{d}^* \cdot \text{Re}[\mathbf{G}(z_l, z_{l'}, \omega)] \cdot \mathbf{d}, \quad (69)$$

$$\Gamma_{ll'} = \frac{\sqrt{N_l N_{l'}}}{A} \frac{2\mu_0 \omega^2}{\hbar} \mathbf{d}^* \cdot \text{Im}[\mathbf{G}(z_l, z_{l'}, \omega)] \cdot \mathbf{d}. \quad (70)$$

集体自旋算符满足方程:

$$\dot{\hat{\sigma}}^- = i \left(\Delta + i \frac{\Gamma}{2} \right) \hat{\sigma}^- + i \Omega_l + i \sum_{l'} \mathbf{G}_{ll'} \hat{\sigma}^-. \quad (71)$$

其定态解为

$$\hat{\sigma}^- = -\sum_{l'} (\mathbf{M}^{-1})_{ll'} \Omega_{l'}, \quad (72)$$

其中,

$$\mathbf{M} = \left(\Delta + i \frac{\Gamma}{2} \right) \mathbf{I}^{N_l} + \mathbf{G}. \quad (73)$$

矩阵 $\mathbf{G}$ 和 $\mathbf{I}^{N_l}$ 是 N_l 维矩阵, 且:

$$\mathbf{G}_{ll'} = J_{ll'} + i\Gamma_{ll'}/2 = \frac{\sqrt{N_l N_{l'}}}{A} \frac{\mu_0 \omega^2}{\hbar} \mathbf{d}^* \cdot \mathbf{G}(z_l, z_{l'}, \omega) \cdot \mathbf{d}. \quad (74)$$

最终, 可以求出平面腔中任意位置 z 处的反射场为

$$\hat{\mathbf{E}}_{\text{out}}^+(z) = \hat{\mathbf{E}}_1^+(z) + \frac{\mu_0 \omega^2}{A} \sum_l \sqrt{N_l} \mathbf{G}(z_l, z, \omega) \cdot \mathbf{d} \hat{\sigma}^-, \quad (75)$$

式中两项分别来自于空腔的汤姆逊散射和原子(核)的共振散射. 可以看出, 格林函数给出了与矩阵方法及唯象量子光学模型数学形式相同的反射幅, 原子(核)层对光场的响应都可以表示为包含集体效应和腔效应的洛伦兹峰形. 在使用格林函数方法计算观测量时, 只需要计算出薄膜平面腔的空腔场幅度, 再叠加上原子(核)的共振散射后, 就可以得到总散射幅. 对于单个共振原子层的腔结构, 格林函数方法的优势并不明显. 但对于多原子层等更加复杂的腔结构, 格林函数在给出反射谱的同时还可以解释内部物理机理, 例如原子层之间的交换相互作用等, 进一步地指导腔结构设计, 预测新的物理现象.

4 结果与讨论

目前, 内壳层 X 射线腔量子光学的可观测量主要有反射谱和荧光谱, 本节将介绍这两类结果,

并引出一些已经实现的量子光学现象.

4.1 反射谱

反射信号是 X 射线薄膜平面腔的一个主要可观测量, 对反射信号的不同测量和不同分析方法被广泛应用在原子及原子核体系的腔量子光学研究中. 在采集反射信号时, 可以扫描入射光角度得到 θ - 2θ 摇摆曲线 (rocking curve), 用来确定腔模式角度、矫正角度发散、获得腔多层膜结构参数等, 代表性的应用是用来观测 X 射线腔的 Purcell 效应; 也可以扫描入射能量得到反射谱 (reflectivity spectrum), 用来分析共振和非共振弹性散射通道以及提取腔效应和集体效应等, 代表性的工作包括超辐射和集体兰姆移位、法诺干涉等现象.

反射光的测量可以直观表现出样品表面曲率的影响. 图 6 展示了表面平行度较好 (图 6(a)) 和有较大表面曲率 (图 6(b)) 的反射光图像. 在图 6(a) 中, 反射光的光斑形状均匀、强度集中、边缘平行, 意味着薄膜平面腔如同平行度很好的反射镜, 对入射 X 射线的发散无明显影响. 在图 6(b) 中, 反射光斑形状扭曲、强度发散、边缘不平行, 意味着此时薄膜平面腔样品表面有较大的曲率. 由于腔效应敏感地依赖入射光角度, 反射光斑形状的判断对采集正确的实验结果至关重要. 除了入射光本身引入的极小的发散之外 (一般控制在 $10 \mu\text{rad}$ 左右), 表面曲率将贡献最主要的角度分辨. 一旦表面曲率过大, 腔效应将被显著弱化. 摇摆曲线的测量即通过扫描 X 射线的入射角度, 采集反射光的强度. 在理论模型中提到, 反射光来源于弹性散射, 既包含了原子层的共振弹性散射, 也包含了多层膜的非共振弹性散射, 后者一般被称为空腔散射. 在实验中仅记录强度信息, 无法区分这两个通道.

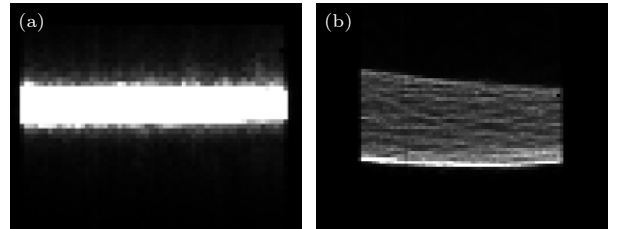


图 6 表面平行度较好 (a) 和较差的 (b) 的反射光图像, 入射光斑尺寸横向大于纵向

Fig. 6. Reflected X-ray patterns from the cavity samples with (a) flat surface and (b) distorted surface, respectively. The horizontal beam size is larger than the vertical one.

4.1.1 X 射线腔 Purcell 效应

X 射线腔量子光学的核心是将空腔响应和原子(核)的共振响应剥离开,对空腔场模式量子化后,构建光子和原子的相互作用哈密顿量,讨论其对原子共振行为的调控作用.然而,X 射线腔是一体制样的多层膜结构,共振原子层位于中间夹层,因此需要用巧妙的方式获得空腔响应.实验中,一般将入射光能量调至远离共振能量,获得几乎不含共振弹性散射的反射信号.图 7(a) 给出了一条典型的摇摆曲线,即薄膜平面腔的反射率随入射角的变化关系.反射率曲线主要取决于腔结构,即各薄膜层的材料和厚度.换言之,通过拟合实验测量的反射率曲线,可以得到平面腔各层薄膜的厚度及其粗糙度.极小值所对应的角度为薄膜平面腔的模式角,即光场极大程度地耦合入腔内形成驻波.不同模式角度下平面腔内场强随着 z 方向深度的变化如图 7(b) 所示.当入射角为模式角度时,腔内的场强分布存在极大值,而当入射角度远离模式角度时,大部分 X 射线被腔反射,腔内场强分布近乎为零.因此,在模式角度下可以更好地观察驻波光场与内嵌原子(核)的相互作用.当腔内嵌入原子层时,场强分布在原子层处会受到一定扰动,因此,原子层厚度不宜超过 3 nm.这些腔结构设计过程中的细节在早期的研究中并未受到重视,致使可观测的腔效应不够显著.

θ - 2θ 摇摆曲线能直观反映腔效应.在 X 射线腔量子光学早期研究工作中,一个代表性的工作实现了 X 射线波段的腔 Purcell 效应^[23].腔的 Purcell 效应是弱耦合条件下的一个经典现象,指的是原子的辐射速率受腔调控而加快,其伴随现象是退激发强度的提升,也即共振弹性散射强度在反射方向上被大幅提高.2005 年, Röhlsberger 等^[23]首次在原子核体系的摇摆曲线中,观测到在共振能量下反射强度在腔模式角度下被增强,报道了 X 射线腔的 Purcell 效应.在最初的设计中,腔结构除了反射镜层,中间夹层设计为 $^{56}\text{Fe}/^{57}\text{Fe}/^{56}\text{Fe}$,引入的耗散较强,致使仅能在一阶模式角度下观测到反射强度的增强.图 8 所示为入射能量为共振能量和偏离共振能量下的摇摆曲线,腔结构夹层设计为 $\text{C}/^{57}\text{Fe}/\text{C}$, ^{57}Fe 位于整体腔结构的中间位置.这种设计是现阶段薄膜平面腔最常见的结构,低原子序数的传到层可以极大地减少腔的耗散.可以看出,共

振时奇数阶(1 阶、3 阶和 5 阶)的反射率从几乎为 0 的反射谷被急剧抬高,偶数阶(2 阶、4 阶、6 阶)则几乎不变.这是由于奇数阶的驻波波峰位置恰是偶数阶的驻波波节.在内壳层体系中,这种共振弹

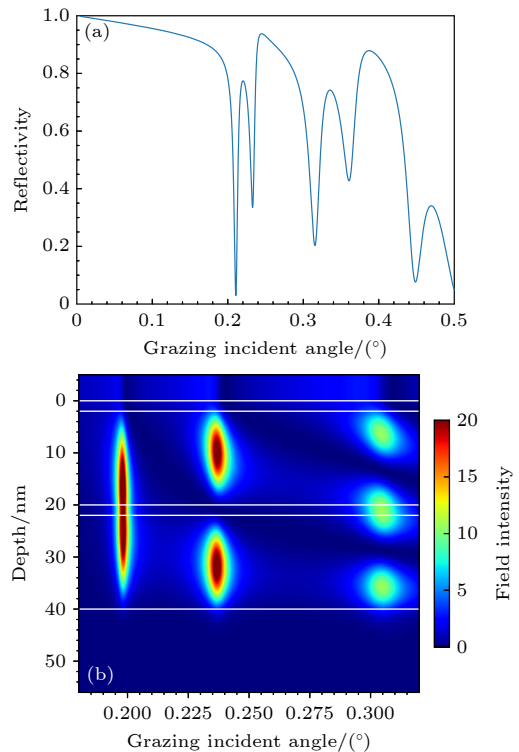


图 7 (a) 结构 $\text{Pt}(2.0\text{ nm})/\text{C}(18.0\text{ nm})/\text{WSi}_2(2.0\text{ nm})/\text{C}(18.0\text{ nm})/\text{Pt}(16.0\text{ nm})/\text{Si}_{100}(\text{infinitely thick})$ 的薄膜平面腔的 X 射线反射率曲线; (b) 不同角度下腔内场强随着 z 方向深度的分布,其中白色实线描绘了不同膜层的边界

Fig. 7. (a) Rocking curve of the cavity with the structure of $\text{Pt}(2.0\text{ nm})/\text{C}(18.0\text{ nm})/\text{WSi}_2(2.0\text{ nm})/\text{C}(18.0\text{ nm})/\text{Pt}(16.0\text{ nm})/\text{Si}_{100}(\text{infinitely thick})$; (b) the field intensity distribution inside the cavity. The white solid lines depict the boundaries of different layers.

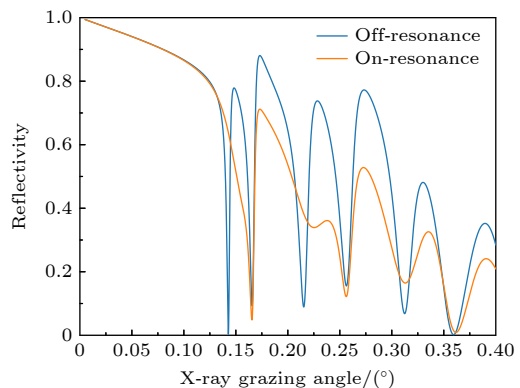


图 8 入射 X 射线在共振能量和偏离共振能量下的摇摆曲线

Fig. 8. Rocking curves under on-resonance and off-resonance X-ray energies.

性散射强度增强的现象应同样存在^[60], 但共振和非共振能量下的摇摆曲线暂未有实验报道. 可以预测的是, 由于内壳层共振散射幅较小, 反射谷的强度抬升应弱于原子核体系. 同时, 实验结果的解读也会因为没有精确的振子强度数据而更加复杂.

4.1.2 超辐射和集体兰姆移位

在 X 射线腔量子光学的萌芽阶段, 受限于腔效应较弱, 且没有合适的理论工具, 人们将反射方向散射强度增强和辐射速率增快的现象称为 X 射线波段的 Purcell 效应, 并未深入研究其内在机理. 与可见光和微波波段不同的是, X 射线腔结构中的原子(核)薄膜层含有大量的原子(核), 并不符合单粒子受腔调控的简单耦合图像. Scully 等^[105]在 2006 年提出了单光子超辐射的概念, 给 X 射线腔量子光学提供了基本的物理图像. 实验方面, 通过改进优化的三明治结构使得 X 射线腔效应明显变强, 为底层机制研究提供了验证平台. 在含有 N 个原子的体系中, 虽然只有单激发, 但由于原子的全同性, 无法区分是哪个原子被激发. 因此, 这种单光子激发态需要写成集体激发态, 将所有可能性相干叠加, 致使整体原子系综的辐射速率会随着粒子数的增加而增大. 这种典型的集体效应在 2010 年被实验证实. Röhlberger 等^[26]将腔结构改进为反射层、传导层、原子核层这种三明治结构, 很大程度上降低了 X 射线腔耗散. 利用 ^{57}Fe 原子核的共振跃迁, 首次观测到了超辐射和集体兰姆移位. 值得一提的是, 这是包括可见光和微波波段的腔研究中, 实验上首次观测到集体兰姆移位. 此后, 该课题组从普适性出发, 利用内壳层体系 (Ta 的 L_3 边共振跃迁), 再现了超辐射和集体兰姆移位现象^[59].

在集体效应的实验观测中, 反射谱是非常重要的可观测量. 和摇摆曲线不同的是, 反射谱是在固定腔失谐的入射角度下, 通过扫描入射光的能量得到的. 在原子核体系中, 由于共振线宽很窄, 反射谱的计数率很低. 在有限的实验时间内, 很难获得完备的二维反射谱 (改变入射角度和入射 X 射线能量), 因此已经报道的实验数据中大多仅收集了有限角度下的反射谱. 在内壳层体系中, 反射谱的计数率高很多, 因此已经报道的实验数据大都展示了完整的二维反射谱^[59-61]. 理论方面, 最新发展的量子格林函数模型较为完备, 能够很好地解释超辐射和集体兰姆移位这两个典型的集体效应.

关注入射角在模式角度附近的情况, 即角度失谐很小的范围内, 分别利用 Parratt 迭代方法、传输矩阵方法和格林函数方法计算了图 7 中腔结构对应的 X 射线反射谱. 图 9 所示为该薄膜平面腔在一阶模式角度附近的反射率二维谱, 不同方法给出的结果一致. 反射率在模式角度下趋近于零, 而当入射 X 射线能量与内嵌原子跃迁共振时, 反射率受共振散射影响而增大. 图 10 给出了一阶模式角度下以及正负偏移 10^{-3} 度情况下反射率的能量响应, 3 种方法的结果彼此符合较好. 内壳层跃迁会受到吸收边的影响, 高能量端和低能量端不对称, 但仍能清晰地观察到在不同的角度失谐下, 跃迁能量有移动的现象, 即集体兰姆移位. 此外, 由于内壳层跃迁自然线宽较宽, 谱线增宽的现象并不明显. 在相同的腔结构中, 将 WSi_2 替换成 ^{57}Fe , 图 11 所示为一阶模式角度下的反射谱, 可观察到 14.4 keV 处穆斯堡尔跃迁明显的集体兰姆移位和超辐射速率增强^[26]. 值得一提的是, 内壳层体系中的单光子集体效应仍存在争论, 这主要是因为内壳层体系的

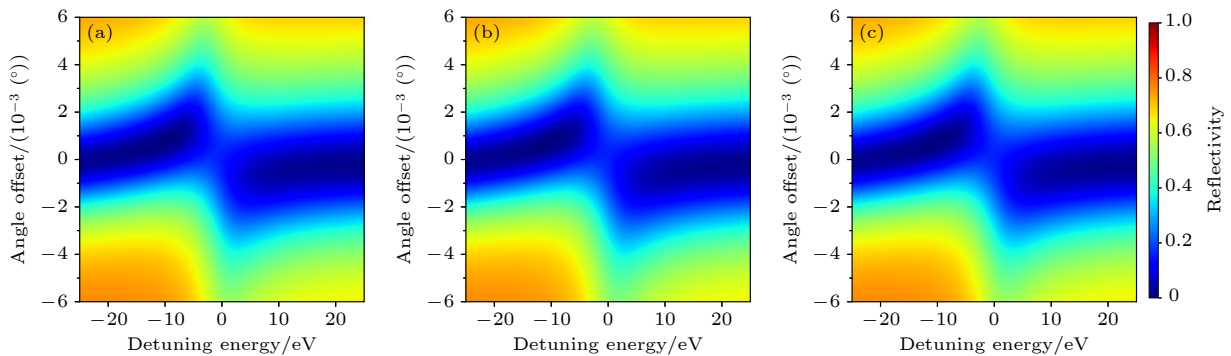


图 9 (a) Parratt 迭代、(b) 传输矩阵以及 (c) 格林函数方法模拟的平面腔一阶模式角附近的反射率二维谱

Fig. 9. Simulated two-dimensional reflectivity maps of the cavity around the first mode angle using (a) the Parratt's recursion, (b) the transfer matrix method, and (c) the Green's function framework, respectively.

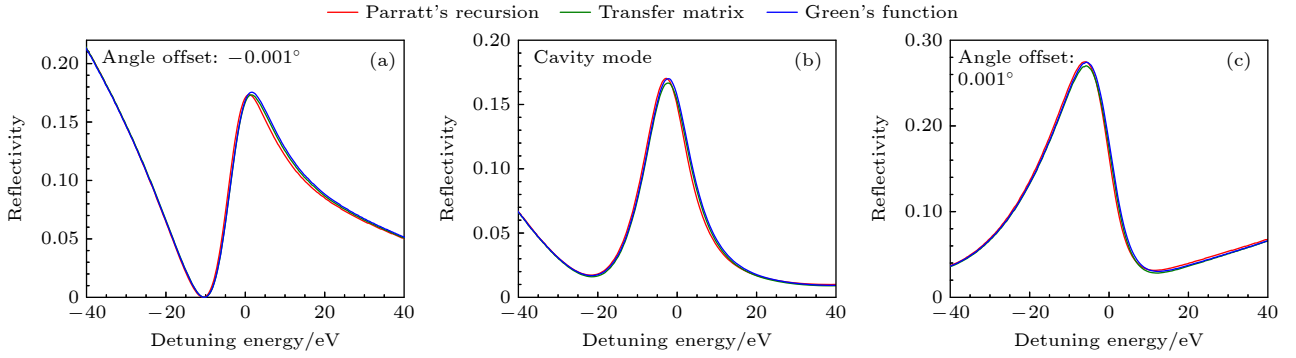


图 10 3 种方法计算的反射谱对比, 入射角度相对于一阶模式角分别为 (a) -0.001° 角失谐、(b) 0° 以及 (c) 0.001° 角失谐

Fig. 10. Comparisons of reflectivity spectra at (a) -0.001° , (b) 0° and (c) 0.001° offsets deviate from the first mode angle.

共振散射幅较低, 且原子层自身引入的耗散较强. 随着粒子数增加, 虽然集体效应变强, 但腔的调控能力却变弱, 导致比较难观察到随着粒子数 N 增加, 集体效应等比例增强的确凿证据. 在近期基于原子内壳层跃迁的格林函数理论中, 提出了验证集体效应的临界粒子数概念^[64]. 当粒子数低于临界值时, 集体效应随着粒子数增加而增强; 当粒子数超过临界值时, 集体效应几乎不变或轻微减弱. 常用的 Ta 和 WSi_2 原子层, 其临界粒子数对应小于 1 nm 的临界膜层厚度, 从实验制备 X 射线腔样品角度来看, 这几乎是不现实的. 因此临界粒子数的实验验证, 需要改进腔结构并寻找更为合适的内壳层跃迁体系.

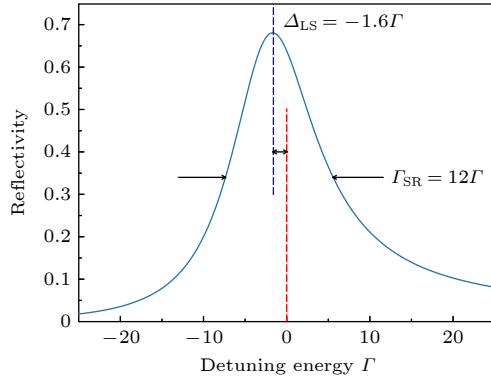


图 11 薄膜平面腔内的 ^{57}Fe 核跃迁的集体兰姆移位与超辐射速率增强效应, 腔结构与图 8 中使用的一致

Fig. 11. Collective Lamb shift and superradiance of Mössbauer transition of ^{57}Fe due to the cavity effect. The cavity structure used here is same to Fig. 8.

4.1.3 法诺干涉

前文提到, 反射方向的信号是空腔的非共振弹性散射和原子 (核) 层的共振弹性散射的共同作用. 从 (33) 式—(35) 式的反射系数可以看出, 腔效应

除了造成内嵌原子 (核) 共振跃迁的集体兰姆移位和超辐射速率增强外, 总反射系数可以被视为共振弹性散射与空腔连续散射的相干叠加. 而且, 空腔散射的能量响应非常平缓, 类似自电离态中的连续态通道; 共振散射的能量响应为洛伦兹线形, 类似自电离态中的分立态通道. 因此, 这两个通道的相干叠加可以很好地近似为著名的法诺干涉^[106,107]. 为了方便, 将 (33) 式的反射幅写成如下形式:

$$R = A \left(1 + \frac{q - i}{\varepsilon + i} \right), \quad (76)$$

其中, $\varepsilon = 2(\Delta - \Delta_{\text{LS}})/(\Gamma + \Gamma_{\text{SR}})$ 为约化能量, 振幅 A 和法诺因子 q 分别为

$$A = -\frac{\kappa - 2\kappa_{\text{R}} + i\Delta_{\text{c}}}{\kappa + i\Delta_{\text{c}}}, \quad (77)$$

$$q - i = i \frac{\Gamma_{\text{SR}}}{\Gamma_{\text{SR}} + \Gamma} \frac{2\kappa_{\text{R}}}{\kappa} \frac{\kappa - i\Delta_{\text{c}}}{\kappa - 2\kappa_{\text{R}} + i\Delta_{\text{c}}}. \quad (78)$$

可以看出法诺因子 q 受超辐射速率 Γ_{SR} 、耗散系数 κ 、腔耦合强度 κ_{R} 以及腔失谐 Δ_{c} 调控. 这种对法诺因子的大范围、多维度调控能力, 表明 X 射线腔是研究法诺干涉的出色平台. 进一步, 可将反射率的能量响应写成经典的法诺公式:

$$|R|^2 = \sigma_0 \frac{|q + \varepsilon|^2}{1 + \varepsilon^2}. \quad (79)$$

与经典法诺理论不同的是, 这里的法诺因子 q 一般为复数, 其虚部表征了系统的非相干损耗通道, 此时, 可以将反射率改写成经典法诺线形与洛伦兹线形的非相干叠加:

$$|R|^2 = \sigma_0 \left[\frac{(\text{Re}[q] + \varepsilon)^2}{1 + \varepsilon^2} + \frac{(\text{Im}[q])^2}{1 + \varepsilon^2} \right]. \quad (80)$$

可以看出, 法诺因子的虚部贡献了一个额外的非相干洛伦兹线形, 其幅度受法诺因子虚部大小控制, 而反射谱峰型的非对称部分取决于法诺因子的实

部, 即

$$\text{Re}[q] = \frac{\Gamma_{\text{SR}}}{\Gamma_{\text{SR}} + \Gamma} \frac{2\kappa_{\text{R}}}{\kappa} \frac{2(\kappa - \kappa_{\text{R}})\Delta_{\text{c}}}{(\kappa - 2\kappa_{\text{R}})^2 + \Delta_{\text{c}}^2}. \quad (81)$$

对于薄膜平面腔, 非相干散射以及驻波场与输出模式之间的耦合会造成固有损耗 κ 始终大于耦合强度 κ_{R} , 即 $(\kappa - \kappa_{\text{R}}) > 0$. 因此, 腔失谐决定了法诺因子实部的符号 (腔失谐为负则 $\text{Re}[q]$ 为负, 腔失谐为正则 $\text{Re}[q]$ 为正). 特别地, 在腔模式下, 法诺因子的实部为零, (80) 式中第 1 项的贡献为窗共振, 它所形成的谷结构与虚部贡献的洛伦兹峰结构在特定情况 ($\text{Im}[q] = \pm 1$) 下会相互抵消, 形成特殊的直线线形. 在实际情况下, 腔顶层对 X 射线会有一定程度的吸收并且带来微小的相移, 对谱线会造成轻微扭曲, 这些因素在拟合实验数据时都需要考虑. 此外, 对于内壳层跃迁, 还需要考虑 X 射线能量大范围扫描造成的模式角度偏移.

耗散系数 κ 与腔耦合强度 κ_{R} 主要取决于腔结构, 两者之间相互耦合, 难以实现对其中一个参数的调控, 依据两者之间相对大小 $\eta = 2\kappa_{\text{R}}/\kappa$, 可以把

薄膜平面腔分为 3 类: 欠临界耦合 (undercritical, $\eta < 1$)、临界耦合 (critical, $\eta = 1$) 和过临界耦合 (overcritical, $\eta > 1$). 通过设计不同的腔结构 (主要包括镜子层的材料和厚度), 可以构造出耦合程度不同的薄膜平面腔. 对于特定的腔结构, 改变入射角度调节腔失谐 Δ_{c} 是行之有效的反射谱线形调控手段, 这在内嵌 ^{57}Fe 核薄膜的平面腔系统中得到了充分的证实. 在腔模式下, 腔失谐 $\Delta_{\text{c}} = 0$, 法诺因子 q 为纯虚数^[108]:

$$q = i \left(1 + \Pi \frac{2\kappa_{\text{R}}}{\kappa - 2\kappa_{\text{R}}} \right), \quad (82)$$

此时, 当 $|q|^2 < 1$ 时, 反射谱呈现为对称的谷, 即窗共振; 当 $|q|^2 > 1$ 时, 反射谱为正常的洛伦兹线形; 特别地, 当 $|q|^2 = 1$ 时, $|R|^2 = \sigma_0$, 反射率的响应为与能量无关的直线线形. 注意到 Π 和 κ_{R} 均为正实数, 纯虚数的法诺因子在欠耦合腔 ($2\kappa_{\text{R}} < \kappa$) 中, 始终有 $\text{Im}[q] > 1$. 而在过耦合腔中, $\text{Im}[q] = -1$ 是有解的. 因此, 直线线形只会在模式角度下的过耦合腔中出现. 图 12 给出了腔结构为 $\text{Pt}(1.0 \text{ nm})/$

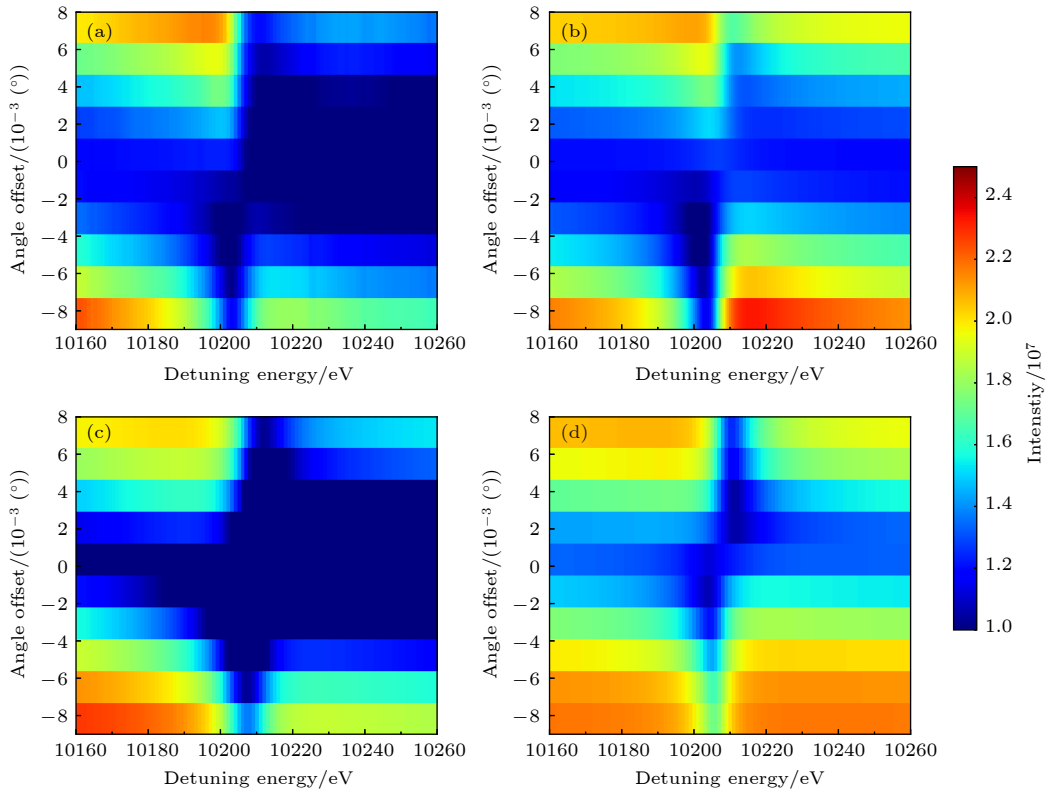


图 12 实验测量与理论模拟的 X 射线反射二维谱 (a) 实验测量结果; (b) 实验数据扣除吸收边; (c) 理论模拟结果; (d) 理论模拟扣除吸收边

Fig. 12. X-ray reflection two-dimensional spectrum of experimental measurements and theoretical simulations: (a) Experimental reflectivity map; (b) experimental data by exclusion of the absorption edge; (c) simulated reflectivity map; (d) simulated map by exclusion of the absorption edge.

C(17.8 nm)/WSi₂(2.1 nm)/C(18.2 nm)/Pt(15.6 nm)/Si₁₀₀(infinitely thick) 时一阶模式角附近的反射谱, 分别为实验测量的反射 X 射线的强度与基于量子光学模型模拟的反射率谱以及扣除边结构之后的实验与模拟数据. 可以看出, 模拟结果基本重现了实验观测结果, 表明唯象模型可以较好地描述平面腔中的白线跃迁二能级系统. 然而, 吸收边的存在阻碍了对共振跃迁谱线的观测, 通过拟合去除吸收边之后, 可以得到白线跃迁对反射谱的贡献, 即法诺线形.

图 13 给出了 3 种不同顶层 Pt 膜厚度的腔结构在一阶模式角度时的反射谱^[61], 结合理论模型拟合实验数据可以提取出法诺线形并得到法诺因子 q . 在模式角度下, q 的实部为零, 考虑到实际中有限的角分辨和精度, 在拟合时考虑了较小的实部因子. 图 13 中绿色实线为实验数据减去吸收边的贡献, 可以看出其基本呈现对称线形, 特别地, 在顶层厚度为 1.0 nm 时, 该响应几乎为直线线形. 直线线形作为一种特殊的法诺干涉, 造成了一种共振响应不存在的错觉. 这种特殊的法诺线形只存在于法诺因子 q 为纯虚数且模值为 1 的特殊情况,

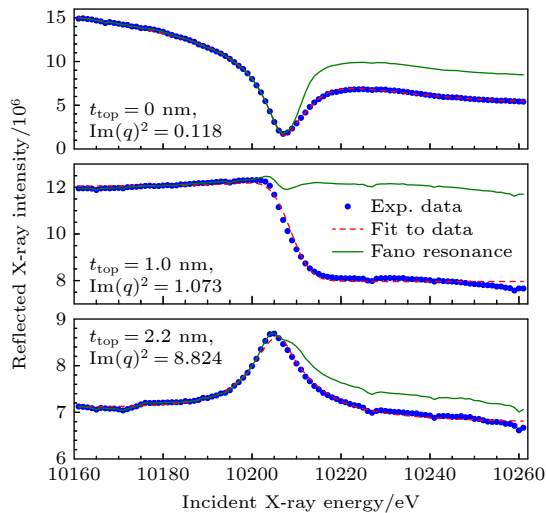


图 13 3 种腔结构下实验测量的模式角度下的反射谱及拟合曲线, 其中数据点和红色虚线分别为实验测量结果与拟合结果, 绿色实线为实验数据去除拟合的吸收边得到的法诺线形, 数据引自文献^[61]

Fig. 13. Measured reflectivity spectra at the first mode angle. The dots are experimental data, and the dashed lines are the fit to data according to the theoretical model. The solid lines present the Fano profiles in the reflectivity spectra by subtracting the fitted edge components from the experimental data. The squares of $\text{Im}(q)$ for each data set are also presented. Data are quoted from Ref. [61].

也即来源于分立态和连续态之间的特定的相位差和幅度比值. 换言之, 对于具有一定散射幅度的分立态跃迁, 可以通过调控连续态的相位和幅度, 实现对该分立态的“隐身”效果. X 射线薄膜平面腔即具备该能力, 其散射幅度和相位可以在较大的范围内调节. 在图 13 中, 只有白线实现了直线线形, 吸收边台阶仍存在. 这是由于白线与吸收边跃迁强度有差别, 而腔贡献的连续态通道的相位和幅度在该能量范围内几乎不变. 这种利用法诺干涉实现直线线形的技术可能为 X 射线谱学提供一种新的思路. 例如在 K 边吸收谱中一个由来已久的问题是如何有效地探测边前结构 (pre-edge). 对 K 边吸收谱而言, 边前一般为 s 壳层到 d 壳层的电四极跃迁, 其强度比偶极跃迁的主边 (main-edge), 例如白线弱很多. 因此边前的探测常受主边的干扰. 但正是因为主边和边前有很大的跃迁强度区别, 若通过法诺直线线形的手段将主边变得不可见的同时, 边前仍能保持其结构, 从而变得易于探测. 从这个例子可以看出, X 射线腔量子光学可为内壳层谱学提供一些新思路.

利用超辐射速率, 可以通过改变 $\Pi = \Gamma_{\text{SR}} / (\Gamma_{\text{SR}} + \Gamma)$ 的大小, 进而调控法诺因子^[109], 因此这也是一种实现直线法诺线形的手段. 原则上, 可以通过调节内嵌层的厚度改变共振散射的有效粒子数, 进而实现对峰型的调控. 然而不幸的是, 厚度的改变会同时造成腔损耗等其他参数的变化, 干扰调控效果. 但是对于核跃迁, 还可以通过控制原子层中穆斯堡尔核的元素丰度实现调控. 图 14(a) 所示为欠耦合腔的反射谱模拟结果, 在腔模式下, 反射谱呈现为对称的洛伦兹线形, 且谱线线宽随着丰度增大而增大, 这是由于有效粒子数增加使得耦合强度变大, 腔增强辐射速率随之增大. 在失谐角度下, 反射谱呈现为典型的法诺线形, 且在负失谐时, 线形为左谷右峰 ($\text{Re}[q] < 0$), 而在正失谐时恰好相反, 为左峰又谷 ($\text{Re}[q] > 0$). 图 14(b) 所示为含有不同丰度 ⁵⁷Fe 的过耦合腔的反射谱. 在模式角度下, 反射谱均为对称线形, 随着丰度的增大, 反射谱从窗共振逐渐演化为洛伦兹线形, 且谱线的半高全宽逐渐变大, 在特定丰度下, 呈直线线形. 对于丰度相同的平面腔, 从负失谐角度到正失谐角度, 反射谱由左谷右峰逐渐演化为左峰右谷, 在模式角度为对称的窗共振或洛伦兹线形. 这些现象与前文由法诺因子预测反射谱线形是一致的.

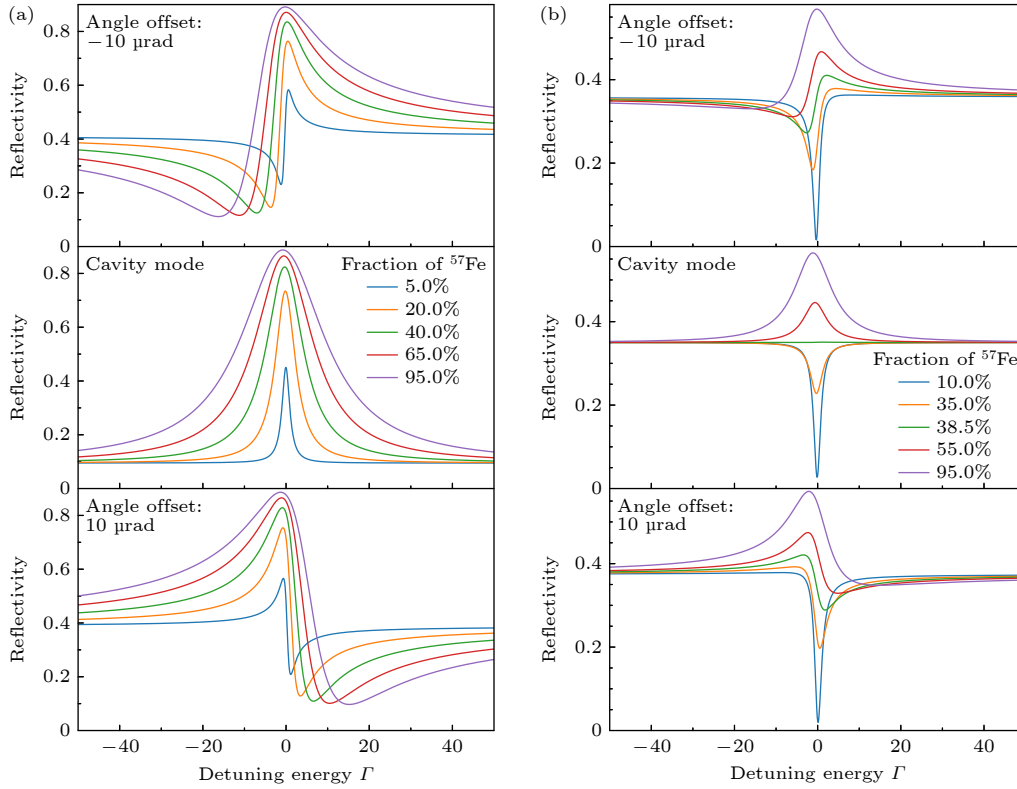


图 14 不同 ^{57}Fe 占比的原子核层在 (a) 欠耦合腔和 (b) 过耦合腔中对入射角度为 $10\ \mu\text{rad}$ 负失谐、模式角与 $10\ \mu\text{rad}$ 正失谐的反射谱
Fig. 14. Reflectivity spectra at the first mode angle and $\pm 10\ \mu\text{rad}$ offsets of (a) undercritical cavities and (b) overcritical cavities with different fractions of ^{57}Fe .

总而言之, 反射率是薄膜平面腔体系中一类十分重要的可观测量. 在非共振能量下, 反射率曲线主要取决于薄膜层材料的厚度与折射率, 反射谷所在的角度为驱动腔的模式角, 即 X 射线以倏逝波的形式与腔耦合, 在腔内形成场分布的极大值, 这对薄膜平面腔的设计具有重要意义. 在材料折射率已知的前提下, 通过拟合实验测量的反射率曲线, 还可以得到薄膜层的厚度和粗糙度. 在腔模式与内嵌层某个跃迁共振时, 可以通过反射率的能量响应探索 X 射线光场与二能级系统之间的相互作用, 观察集体兰姆移位和超辐射效应. 另一方面, 平面腔的反射幅可以看作空腔连续反射与内嵌层共振反射的相干叠加, 反射率的能量响应由于分立态与连续态干涉形成法诺线形, 因此薄膜平面腔系统为线形调控提供了丰富的手段. 在临界耦合条件下, 通过改变入射角度调节反射谱的法诺因子, 进一步还可以从线形中提取相位因子. 特别地, 对于穆斯堡尔核跃迁, 还可以通过改变元素丰度调节法诺因子, 探索法诺因子在复空间的行为轨迹^[108,109]. 而在模式角度下, 法诺因子为纯虚数, 反射谱退化为洛伦兹线形, 当 $|q|^2 = 1$ 时, 呈现为特殊的直线线

形^[61]. 此外, 在多层膜平面腔中还可以实现 X 射线光场与三能级系统的相互作用, 在反射谱中观察电磁诱导透明^[27] 和拉比振荡^[39] 等量子光学现象.

4.2 荧光谱

伴随白线跃迁自然产生了不稳定的内壳层空穴中间态, 它可以通过辐射或者非辐射通道退激, 即通过辐射荧光或俄歇过程退激到低能量的稳定状态. 相应地, 空穴态寿命 (core-hole lifetime) 由所有通道的辐射速率决定. 其中, 辐射退激的荧光强度 and 发射谱可以利用具有能量分辨的探测器或晶体谱仪收集. 例如图 15 展示了实验中 SDD 采集的荧光全谱, 阴影部分为 L_α 线. SDD 探测器能量分辨能力有限, 并不能区分 $L_{\alpha 1}$ 和 $L_{\alpha 2}$. 对该范围内的荧光计数进行积分即可得到该入射能量下 L_α 荧光的强度. 根据互易定理, 荧光谱可以由原子 (核) 层位置处的场强 $I(\omega, \theta, z_a)$ 计算:

$$\mathcal{F}(\omega, \theta) = c(\phi_F, z_a) \mu(\omega) I(\omega, \theta, z_a) I_f(\omega_f, \theta_f, z_a), \quad (83)$$

其中, $c(\phi_F, z_a)$ 是描述荧光产额、探测效率以及荧光传输路径上吸收的常数, $\mu(\omega)$ 为吸收系数, $I_f(\omega_f, \theta_f, z_a)$ 为在荧光探测器位置处假设的虚拟光源在原

子(核)层处的场强. 通常荧光发射角度 θ_f 较大, 因此 I_f 也约为常数. 此外, θ_f 为掠出射角度时, 也有很强的角度调制效应, 即 Kossel^[46–50] 或定向辐射^[51,52] 效应. 图 16 所示为一阶模式角度附近荧光强度随角度与入射 X 射线能量变化的二维谱. 尽管有吸收边的存在, 仍然可以清楚地看出荧光谱的线宽在模式角度下最大, 随着角度偏离模式角, 线宽逐渐变小, 与根据场强分布预测的行为一致. 相较于反射谱, 荧光是共振非弹性散射过程, 不存在与腔非共振弹性散射通道的干涉, 因此更能直观地反映空穴态的行为. 例如, 其线宽即为空穴寿命展宽.

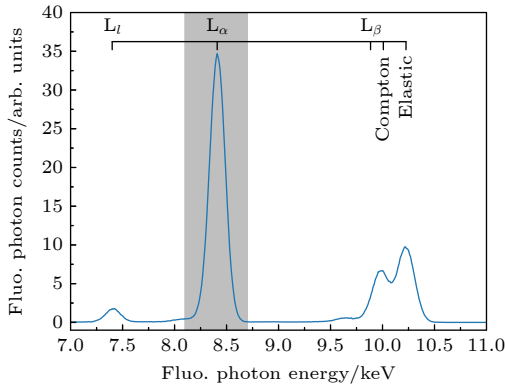


图 15 SDD 探测器采集的荧光全谱

Fig. 15. Full fluorescence spectrum collected by the SDD detector.

4.2.1 空穴寿命调控

一般情况下, 尤其是对于原子的 L 和 M 壳层, 空穴态寿命被认为是原子的固有性质, 是不可改变

的, 且主要由俄歇过程决定. 然而, 可调控的空穴态寿命对于 X 射线波段的非线性研究非常重要, 空穴寿命与自由电子激光脉冲宽度的比例, 是决定多光子电离、双光子吸收、粒子数翻转等现象的关键参数. 此外, 空穴寿命也是 X 射线谱学中非常重要的物理参数, 例如在 RIXS 中, 空穴与价电子之间的相互作用的时间尺度与空穴寿命相当, 基元激发的时间尺度与空穴寿命的比例决定着间接 RIXS 技术的有效性, 尤其是电荷与磁子激发, 其谱线线形依赖于空穴寿命的大小. 此外, RIXS 中间态存在的时间窗口同样取决于空穴寿命, 在时间分辨 RIXS 技术中, 这个时间窗口需要远小于 X 射线脉宽, 因此在追求更高时间分辨时, 需要对空穴寿命进行调控. 尽管在 X 射线非线性以及谱学研究中非常重要, 实验上实现可调控的空穴态寿命却异常困难.

基于薄膜平面腔, 原则上可以通过调制环境中外场的强度改变辐射速率, 进而实现对空穴态寿命的调控. 对于 WSi_2 , 所关注的白线跃迁源于 2p 与 5d 轨道之间的电偶极允许跃迁, 其辐射速率与腔和二能级之间的耦合强度直接相关, 而耦合强度依赖于 WSi_2 膜层所在位置处的场强度. 通过选择不同的腔模式以及入射角度, 可以对场强进行调控, 进而观察辐射速率与场强的依赖关系. 图 16(a) 所示为平面腔中原子层所在位置场强随着角度以及入射 X 射线能量的变化关系. 在模式角度下, 原子层位置处的场强达到极大值, 随着入射角度偏离模

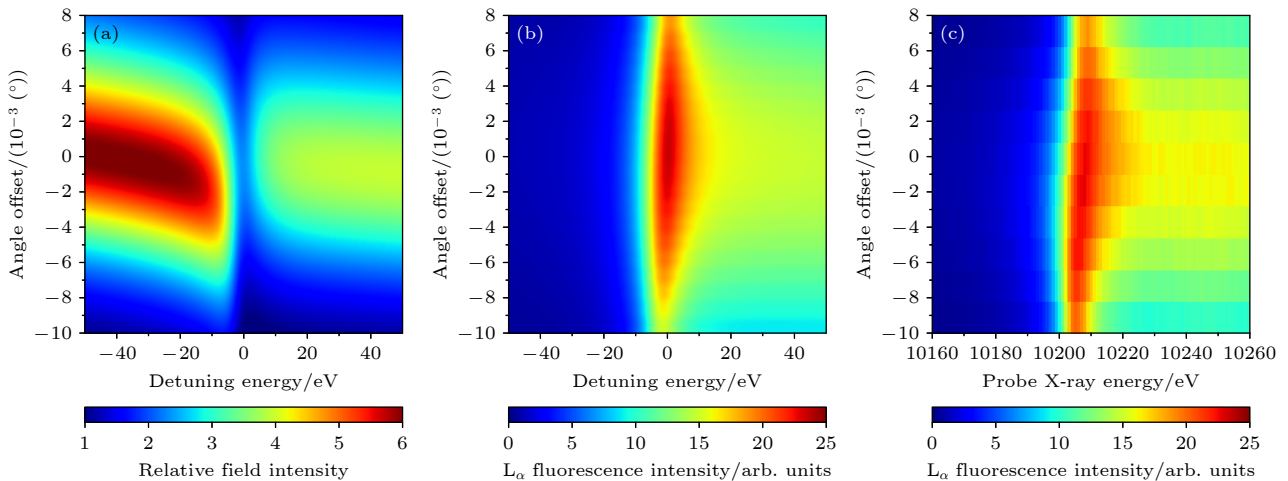


图 16 (a) 原子层位置处的场强模拟值与 X 射线能量及入射角度的关系, 使用的腔结构与图 7 相同; (b) 根据互易定理模拟的荧光二维谱; (c) 实验测量的荧光二维谱

Fig. 16. (a) Simulated field intensity at the atom position for the cavity in Fig. 7; (b) simulated fluorescence 2D map according to the reciprocal theory; (c) the measured fluorescence 2D map.

式角, 场强逐渐变小. 当入射 X 射线能量与原子跃迁共振时, 原子层的存在会对场强的分布造成极大的扰动, 扭曲的场强分布造成洛伦兹响应的两翼增强, 即造成谱线增宽.

内壳层空穴态的寿命一般为亚飞秒尺度, 实验上直接测量该寿命实现起来非常困难, 但荧光谱中的非弹性散射强度和能域谱峰宽间接反映了空穴态寿命的变化. 例如, 当空穴态寿命受共振通道调控而变短时, 空穴通过非共振通道湮灭的概率不受影响, 即非共振荧光线的分支比变小, 强度变弱. 另外, 荧光谱中所测的宽度也即空穴寿命引起的谱线增宽, 线宽的变化反映了空穴态寿命的大小. 非弹性散射可以看作是光子进光子出的两步过程, 散射幅可以写成:

$$F_{\text{if}}(\mathbf{k}, \mathbf{k}', \omega, \omega') = \frac{\langle f | \hat{D}' | n \rangle \langle n | \hat{D} | i \rangle}{\Delta + i\Gamma_n/2}, \quad (84)$$

其中, $|i\rangle = |g, \mathbf{k}\rangle$, $|f\rangle = |f, \mathbf{k}'\rangle$ 和 $|n\rangle = |e, 0\rangle$ 分别为初、末态以及中间态. $\mathbf{k}$ 是波矢, $\hat{D}$ 为跃迁算符. 对于特定的荧光线例如 L_α , 初末态以及中间态都是确定的. 总辐射速率 Γ_n 包括原子本征辐射速率

γ 以及腔调控辐射速率增强 γ_c , 其中 γ 包括自发辐射速率、非弹性荧光速率以及非辐射俄歇速率, 即

$$\Gamma_n = \gamma + \gamma_c. \quad (85)$$

原子的本征速率与腔效应无关, 如图 17(d) 所示, 通过拟合远离腔模式下的荧光谱可以得到 $\gamma/2 = 3.6 \text{ eV}$. 而在模式角度下, 腔效应造成了荧光谱的显著增宽. 另外, 跃迁能量移位在腔模式下恰好为 0. 因此通过调控不同阶数的腔模式, 可以实现仅对空穴寿命调控, 而不改变跃迁能量. 尤其是在第一阶腔模式下, 腔效应引起的谱线增宽甚至大于本征自然线宽, 说明在腔内, 内壳层的退激通道不再被俄歇过程主导. 另外, 空穴寿命调控仅发生在奇数阶次的腔模式下, 这是由于原子层恰在腔的中间位置, 处于奇数阶驻波波腹, 与传输矩阵和格林函数理论中的预测吻合.

4.2.2 荧光定向辐射

X 射线荧光本质上是高轨道电子退激填充低轨道空穴的自发辐射过程. 薄膜平面腔的腔模式选择能力不仅仅针对共振弹性散射的光子, 对同样处

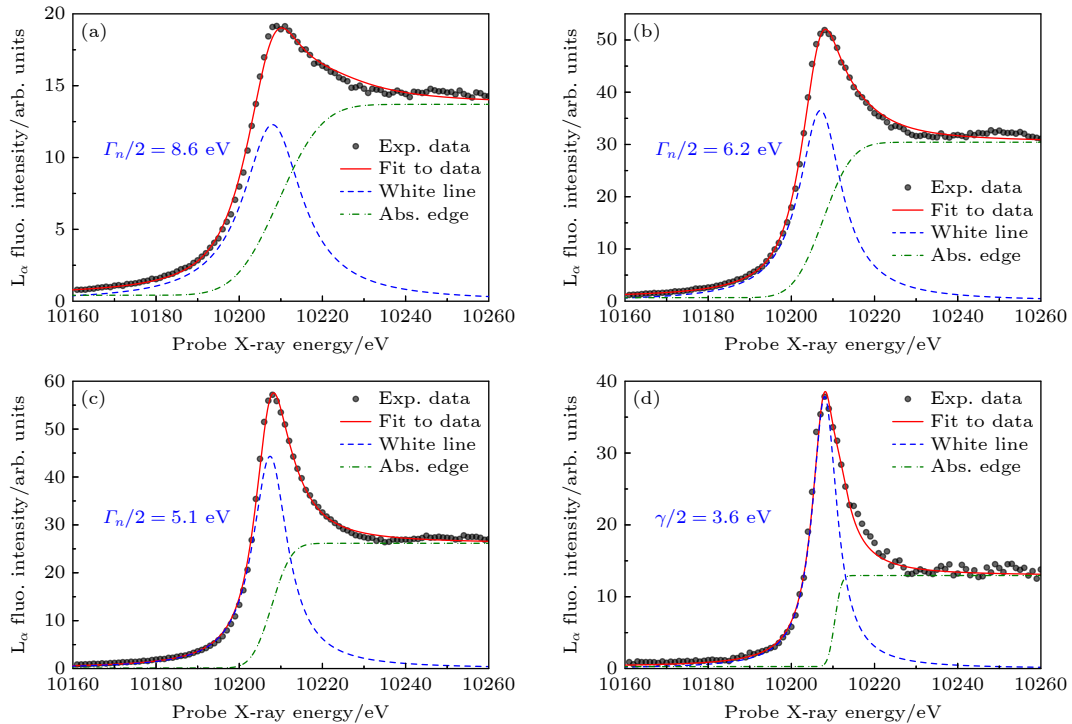


图 17 (a) 一阶、(b) 三阶、(c) 五阶模式角以及 (d) 远离腔模式角度下的荧光谱及拟合曲线, 远离腔模式时, 洛伦兹响应的线宽为原子本身的线宽 3.6 eV , 而在模式角度下, 辐射速率受到腔效应增强, 线宽显著增大, 数据引自 [60]

Fig. 17. Selected fluorescence spectra at the (a) 1st, (b) 3rd, (c) 5th mode angles, and (d) offset angle far from the mode angles. The experimental spectra are fitted by the theoretical model, and the widths of the Lorentzian response are presented. Note that the response features as the natural linewidth of the atomic transition at off-resonant angles while the width is strongly altered by the cavity effect at mode angles. Data are quoted from Ref. [60].

于硬 X 射线波段不同能量的荧光同样适用. 自发辐射的辐射特性依赖激发态原子所处的真空场模式. 例如, 在自由空间内, 真空场模式分布均匀, 这正是一般情况下荧光在 4π 角度上均匀发射的内在机制. 在 X 射线腔内, 由于特定的场模式, 自发辐射将具有方向倾向性. 这种定向辐射效应是腔中的典型现象, 在低频段已经开展了广泛的研究^[110]. X 射线波段的定向辐射在薄膜平面腔体系中同样存在. 定向辐射产生的大量光子进入特定的模式, 可以减小连续模式的损耗, 有助于降低粒子数翻转阈值并提高 X 射线激光的产率. 另外, 自发辐射的角分布信息直接对应腔内的场分布信息, 对研究薄膜平面腔本身特性也非常有用.

早期的研究工作指出, X 射线多层周期膜中存在一种定向辐射现象, 被称为 Kossel 效应^[46–50]. 在布拉格角度附近, 荧光产额相对于连续角度有 10% 左右的差别, 其调控能力较弱, 因此在 Kossel 效应的研究工作中, 并未将其归纳到腔效应中. 2021 年 Vassholz 和 Salditt^[58] 利用薄膜平面腔, 首次观测到了在腔模式角度下约 10 倍左右的荧光强度增强. 在该工作中, 空穴态可以使用高于吸收边能量的 X 射线电离激发, 或使用电子束碰撞激发. 腔结构中的原子层为金属 Co 或金属 Cu, 测量的荧光为 K_α . 图 18 所示为其中 Co K_α 的定向辐射结果, 可以看出在关键的模式角度, 相较于较大的出射角度 (腔调控能力几乎不存在), 荧光强度大大增强, 其增强效果远高于多层周期膜中的 Kossel 效应. 在这项工作中, 研究者也提到了利用薄膜平面腔调控荧光定向辐射的应用场景. 例如, 在 X 射线光机中, 由于特征 X 射线 4π 立体角均匀发射, 其亮度难以提升. 但在定向辐射中, 荧光辐射角度与腔模式的角度半高宽相当, 仅为千分之几度, 可以大幅度提升光源亮度. 除此之外, 与共振弹性散射在反射方向增强的机制类似, 定向辐射中的强度增强和辐射速率增快是两个伴随的现象. 在后续的实验, 还可以进一步提升角度分辨率并使用晶体分析器, 证实发射谱的线宽同样存在角度依赖性.

总而言之, 不同于原子核体系常常依赖于反射谱的测量, 荧光是内壳层 X 射线腔量子光学中另一个重要的可观测量. 一方面, 它不受法诺干涉影响, 可以直观地反映线宽和跃迁能量, 同样可以用来研究集体效应和腔效应, 是反射谱的有力补充. 另一方面, 荧光也可以提供额外的信息, 例如其宽

度和空穴寿命对应, 可以用来研究腔效应对空穴态的影响; 同样因为荧光能量也处于硬 X 射线波段, 其自身也受腔模式调控, 可以用来实现定向辐射等经典现象. 除此之外, 相对于反射信号的测量方法, 荧光的分析手段更加多样, 除了本文中介绍的简单的强度积分, 其细节信息可通过晶体分析器给出. 共振条件下的荧光满足共振非弹性 X 射线散射的物理图像, 例如对荧光的细节分析也被称为共振发射谱或共振 X 射线非弹性散射谱. 相信在后续的研究工作中, 荧光将能提供更加丰富的物理内容, 提升对 X 射线腔量子光学的认知.

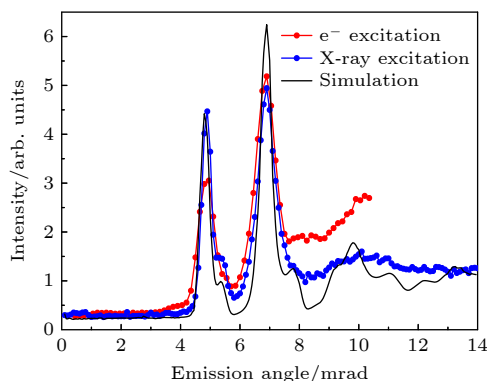


图 18 远场下不同出射角度的 Co K_α 荧光辐射强度, 在第 1 阶和第 3 阶腔模式角度下观测到了明显的荧光强度增强. 黑色实线为基于互易定理的模拟结果, 蓝色点线是使用 X 射线激发空穴态, 红色点线是使用电子束激发空穴态, 数据引自^[58]

Fig. 18. Far-field fluorescence intensities at different emission angles. The directional emission is observed at the first and third cavity modes. The blue and red dotted lines are experimental data resulted from X-ray excitation and electron beam excitation, respectively. The solid black line is the simulation based on the reciprocity theorem. Data are digitized from^[58].

5 总结与展望

X 射线腔量子光学是新的学科方向, 它的出现得益于高品质 X 射线光源在近年来取得的巨大进步. 最初的 X 射线腔量子光学研究集中在原子核共振跃迁体系, 它具有能级体系简单、环境解耦、相干时间长等特点, 但受限于较为单一的候选体系和技术方案, 存在一定的瓶颈. 随后, 基于内壳层共振跃迁体系的实验工作证实腔量子光学效应同样适用于内壳层跃迁. 本文概述了 X 射线腔量子光学的发展脉络, 并对基本的实验体系、实验方法、理论模型和几个经典的 X 射线波段量子光学

现象做了介绍. 本综述侧重于内壳层体系, 并介绍了它与原子核体系的一些相同和差异之处, 包括吸收边干扰的法诺线形、较弱的腔效应和集体效应等. 内壳层共振跃迁在硬 X 射线波段范围内广泛存在, 基于空穴态诞生的众多谱学技术为 X 射线腔量子光学提供了更加丰富的诊断手段. 此外, 内壳层较为复杂的能级结构, 也为 X 射线腔量子光学提供了新的物理内容. 我们研究组近年来专注于内壳层跃迁体系, 逐渐凝炼出了 X 射线腔量子光学调控内壳层 X 射线谱学这一概念, 预期除了发掘更多的量子光学现象外, 还可以反哺 X 射线谱学领域, 发展新的谱学方法. 依托 X 射线腔量子光学效应对空穴态的调控能力, 可以展望一些具体的应用场景. 例如, 对共振通道的直接调控, 可以用来增强共振弹性散射信号. 将其应用到非对称衍射峰, 还可以提高弱衍射峰 (如电荷密度波等) 的测量. 再如, 间接调控非弹性散射过程, 实现对诸如共振发射谱的线形和强度调制. 共振发射谱的完备信息, 可以提取出高分辨吸收谱 (high energy resolution fluorescence detection, HERFD)^[111]、高分辨失谐发射谱 (high energy resolution off-resonant spectroscopy, HEROS)^[112] 等种类丰富的谱学信息. 另一方面, 共振发射谱包含的拉曼-斯托克斯移位 (Raman-Stokes shift) 效应^[113] 还可以将共振跃迁与吸收边部分剥离开来, 以便更加清晰地观测腔效应. 由于 X 射线腔只能工作在掠入射角度, 且原子层只有纳米尺度, 从技术层面这将对 X 射线的亮度、稳定性和谱仪的工作模式提出更高的要求.

另一方面, 虽然已经成功在实验上观测到内壳层跃迁的能量移位、谱线增宽、法诺干涉等确凿的腔效应, 但较强的耗散导致是否具有可观测的集体效应仍有争论. 这主要是因为, 内壳层体系与原子核不同, 随着粒子数的增加, 原子层引起的耗散更加明显, 从而削弱腔效应, 导致集体效应较难观测. 为了观测到集体效应, 一方面可以提高腔样品的制备工艺, 将原子层厚度降低到 1 nm 以下; 另外还可以搜寻更为合适的原子内壳层跃迁体系, 以及设计新的腔结构, 例如利用合金方式制备原子层、使用硬 X 射线波段更锐利的共振跃迁体系等. 此外, 由于内壳层跃迁较弱的共振强度和薄膜平面腔较强的耗散, 原子层间的交换相互作用同样未被实验证实. 依托于交换相互作用, 可以实现层间强耦合, 给空穴态极化子^[62,63] 等新颖的物理概念提供

实验平台. 这也依赖于寻找更合适的内壳层体系, 以及设计新的腔结构, 提升腔的品质因子, 例如串联腔结构^[39]、光子晶体结构^[36] 等. 除了新的腔结构之外, 光场与腔的耦合方式也同样重要. 近期, Lohse 等^[114] 对比了薄膜平面腔端面耦合和掠入射耦合两种不同的模式对原子核体系超辐射速率的影响. 但由于技术限制, 未能获得能域谱峰形、对比不同腔模式等细节信息. 原子内壳层跃迁对特殊耦合模式的技术兼容性更高, 更适用于寻找更丰富的腔耦合模式. 同时, X 射线腔结构也不应受限于一维薄膜结构, 二维腔结构的引入也势必会带来新的物理内容^[55].

至今, X 射线腔量子光学的研究均局限在线性激发范围内, 这主要是因为同步辐射的光子简并度较低. 自由电子激光脉冲强度一般比同步辐射高 5—6 个数量级 (同等能量带宽下), 脉冲宽度比同步辐射小约 3 个数量级. 脉冲光子简并度的提高, 可以将研究内容拓展至非线性和多光子激发范围. 例如, 在原子核体系中实现多光子激发 Dicke 态超辐射^[115]; 内壳层体系由于自然线宽更大, 光子简并度更高, 更容易实现非线性过程, 例如多电离^[116]、多光子激发^[117,118]、布居数反转^[119]、受激辐射^[120–122]、超荧光^[123] 和强场 X 射线拉比振荡^[124,125] 等典型的量子光学现象已经被实验验证. 这部分研究内容与传统原子分子非线性物理交叉, 并已经逐渐形成了非线性 X 射线谱学这一方向^[126–128]. 此外, 基于 X 射线光学器件的几个典型非线性现象, 例如参量下转换^[129–131] 和 X 射线瞬态光栅四波混频^[132,133] 也在实验中相继实现. 另一方面, 利用 XFEL 中 SASE 谱的随机性 (stochastic), 一些研究工作者利用 HBT (Hanbury Brown and Twiss interference) 方法实现了经典的量子光学现象: 强度干涉成像^[134]、X 射线自相干法测量 XFEL 的脉冲宽度^[135]; 以及与压缩感知 (compressive sampling) 算法结合提出的鬼谱学 (ghost spectroscopy)^[136] 概念也在近期的实验中得到验证. 然而, 这些非线性谱学研究均使用简单的气相原子分子或固相靶材样品, 不含腔的调制作用. 例如, X 射线腔内可以增强集体效应和原子系综间交换相互作用, 是非线性 X 射线谱学领域缺少的调控手段. 可以预期, 非线性与多光子激发及 X 射线腔量子光学的结合, 将会带来更加广阔的研究内容.

感谢曾在本课题组学习和工作过的马子茹博士的贡献, 以及李波、王希源、赵喆芊、苏洋等同学的工作. 感谢多次束流实验中, 欧洲自由电子激光超快实验站 (European XFEL FXEInstrument) 的 Y. Uemura 博士、F. Alves Lima 博士和汪皓博士, DESY 光子科学的王碧涵博士和唐敏学博士, 以及亥姆霍兹 HZDR 的潘夏云博士等合作者的参与和讨论. 感谢同济大学的李文斌教授课题组在样品制备上的协助, 复旦大学孔祥进研究员在量子光学理论上的帮助. 感谢 PETRA-III 光源 P23 线站的 A. Khadiev 博士和 D. Novikov 博士, Diamond 光源 B16 线站的王洪昌博士、O. Fox 博士、胡凌飞博士和 V. Dhamgaye 博士, SOLEIL 光源 GALAXIES 线站的 J.-P. Rueff 博士和 A. James 博士, SLS 光源 SuperXAS 线站的 G. Smolentsev 博士, ESRF 光源 ID18(14) 线站的 A. Chumakov 博士、D. Bessas 博士和 R. Rüffer 博士, SPring-8 光源 BL35 XU 线站 R. Masuda 博士和 Y. Yoshitaka 博士, 上海同步辐射 BL15U 线站的杨科研究员和闫帅研究员, 北京高能同步辐射光源的徐伟研究员、张玉骏研究员等线站科学家在束流实验中的帮助.

参考文献

- [1] Pan J W 2024 *Acta Phys. Sin.* **73** 010301 (in Chinese) [潘建伟 2024 物理学报 **73** 010301]
- [2] Adams B W, Buth C, Cavaletto S M, Cavaletto, Evers J, Harman Z, Keitel C H, Pálffy A, Picón A, Röhlberger R, Rostovtsev Y, Tamasaku K 2013 *J. Mod. Opt.* **60** 2
- [3] Kuznetsova E, Kocharovskaya O 2017 *Nat. Photonics* **11** 685
- [4] Röhlberger R, Evers J, Shwartz S 2020 *Synchrotron Light Sources and Free-Electron Lasers: Accelerator Physics, Instrumentation and Science Applications, chap. Quantum and Nonlinear Optics with Hard X-Rays* (Cham: Springer International Publishing) pp1399–1431
- [5] Röhlberger R, Evers J 2021 *Modern Mössbauer Spectroscopy, chap. Quantum Optical Phenomena in Nuclear Resonant Scattering* (Topics in Applied Physics, Vol. 137) (Singapore: Springer) pp105–171
- [6] Wong L J, Kaminer I 2021 *Appl. Phys. Lett.* **119** 130502
- [7] Röntgen W C 1895 *Sitzung Physikal-Medicin Gesellschaft* **137** 132
- [8] Planck M 1901 *Annalen der physik* **4** 553
- [9] ESRF website. <https://www.esrf.fr/> [2024-8-30]
- [10] APS website. <https://www.aps.anl.gov/> [2024-8-30]
- [11] SPring-8 website. <http://www.spring8.or.jp/ja/> [2024-8-30]
- [12] PETRA-III website. https://photon-science.desy.de/facilities/petra_iii/index_eng.html [2024-8-30]
- [13] Raimondi P, Carnignani N, Carver L R, Chavanne J, Farvacque L, Le Bec G, Martin D, Liuzzo S M, Perron T, White S 2021 *Phys. Rev. Accel. Beams* **24** 110701
- [14] Bostedt C, Boutet S, Fritz D M, Huang Z, Lee H J, Lemke H T, Robert A, Schlotter W F, Turner J J, Williams G J 2016 *Rev. Mod. Phys.* **88** 015007
- [15] Yu L H, Babzien M, Ben-Zvi I, DiMauro L F, Doyuran A, Graves W, Johnson E, Krinsky S, Malone R, Pogorelsky I, Skaritka J, Rakowsky G, Solomon L, Wang X J, Woodle M, Yakimenko V, Biedron S G, Galayda J N, Gluskin E, Jagger J, Sajaev V, Vasserman I 2000 *Science* **289** 932
- [16] Huang Z, Ruth R D 2006 *Phys. Rev. Lett.* **96** 144801
- [17] Margraf R, Robles R, Halavanau A, Kryzysinski J, Li K, MacArthur J, Osaka T, Sakdinawat A, Sato T, Sun Y, Tamasaku K, Huang Z, Marcus G, Zhu D 2023 *Nat. Photonics* **17** 878
- [18] Adams B, Aeppli G, Allison T, Baron A Q, Bucksbaum P, Chumakov A I, Corder C, Cramer S P, DeBeer S, Ding Y, Evers J, Frisch J, Fuchs M, Grübel G, Hastings J B, Heyl C M, Holberg L, Huang Z, Ishikawa T, Kaldun A, Kim K J, Kolodziej T, Krzywinski J, Li Z, Liao W T, Lindberg R, Madsen A, Maxwell T, Monaco G, Nelson K, Pálffy A, Porat G, Qin W, Raubenheimer T, Reis D A, Röhlberger R, Santra R, Schoenlein R, Schünemann V, Shpyrko O, Shvyd'ko Y, Shwartz S, Singer A, Sinha S K, Sutton M, Tamasaku K, Wille H C, Yabashi M, Ye J, Zhu D 2019 *arXiv: 1903.09317 [physics.ins-det]*
- [19] Brown M, Peierls R E, Stern E A 1977 *Phys. Rev. B* **15** 738
- [20] Wei P S P, Lytle F W 1979 *Phys. Rev. B* **19** 679
- [21] Mössbauer R L 1958 *Zeitschrift für Physik* **151** 124
- [22] Röhlberger R 2004 *Nuclear Condensed Matter Physics with Synchrotron Radiation: Basic Principles, Methodology and Applications* (Springer Science & Business Media) pp1–312
- [23] Röhlberger R, Schlage K, Klein T, Leupold O 2005 *Phys. Rev. Lett.* **95** 097601
- [24] Purcell E 1946 *Phys. Rev.* **69** 681
- [25] Scully M O 2009 *Phys. Rev. Lett.* **102** 143601
- [26] Röhlberger R, Schlage K, Sahoo B, Couet S, Rüffer R 2010 *Science* **328** 1248
- [27] Röhlberger R, Wille H C, Schlage K, Sahoo B 2012 *Nature* **482** 199
- [28] Heeg K P, Evers J 2013 *Phys. Rev. A* **88** 043828
- [29] Heeg K P, Evers J 2015 *Phys. Rev. A* **91** 063803
- [30] Lentrodt D, Heeg K P, Keitel C H, Evers J 2020 *Phys. Rev. Res.* **2** 023396
- [31] Lentrodt D, Evers J 2020 *Phys. Rev. X* **10** 011008
- [32] Kong X, Chang D E, Pálffy A 2020 *Phys. Rev. A* **102** 033710
- [33] Andrejić P, Lohse L M, Pálffy A 2024 *Phys. Rev. A* **109** 063702
- [34] Heeg K P, Wille H C, Schlage K, Guryeva T, Schumacher D, Uschmann I, Schulze K S, Marx B, Kämpfer T, Paulus G G, Röhlberger R, Evers J 2013 *Phys. Rev. Lett.* **111** 073601
- [35] Heeg K P, Ott C, Schumacher D, Wille H C, Röhlberger R, Pfeifer T, Evers J 2015 *Phys. Rev. Lett.* **114** 207401
- [36] Haber J, Schulze K S, Schlage K, Loetzsch R, Bocklage L, Guryeva T, Bernhardt H, Wille H C, Rüffer R, Uschmann I, Paulus G G, Röhlberger R 2016 *Nat. Photonics* **10** 445
- [37] Heeg K P, Haber J, Schumacher D, Bocklage L, Wille H C, Schulze K S, Loetzsch R, Uschmann I, Paulus G G, Rüffer R, Röhlberger R, Evers J 2015 *Phys. Rev. Lett.* **114** 203601
- [38] Kong X, Pálffy A 2016 *Phys. Rev. Lett.* **116** 197402
- [39] Haber J, Kong X, Strohm C, Willing S, Gollwitzer J, Bocklage L, Rüffer R, Pálffy A, Röhlberger R 2017 *Nat. Photonics* **11** 720
- [40] Lentrodt D, Diekmann O, Keitel C H, Rotter S, Evers J 2023 *Phys. Rev. Lett.* **130** 263602
- [41] Velten S, Bocklage L, Zhang X, Schlage K, Panchwancee A, Sadashivaiah S, Sergeev I, Leupold O, Chumakov A I, Kocharovskaya O, Röhlberger R 2024 *Sci. Adv.* **10** eadn9825
- [42] Raimond J M, Brune M, Haroche S 2001 *Rev. Mod. Phys.* **73** 565
- [43] Ivchenko E, Poddubny A 2013 *Phys. Solid State* **55** 905
- [44] Cowan P L, Golovchenko J A, Robbins M F 1980 *Phys. Rev. Lett.* **44** 1680

- [45] Zegenhagen J, Kazimirov A 2013 *X-ray Standing Wave Technique: Principles and Applications* (Vol. 7) (Singapore: World Scientific) pp122–131
- [46] Kossel W, Loock V, Voges H 1935 *Zeitschrift für Physik* **94** 139
- [47] Jonnard P, André J M, Bonnelle C, Bridou F, Pardo B 2002 *Appl. Phys. Lett.* **81** 1524
- [48] André J M, Jonnard P 2010 *E. Phys. J. D* **57** 411
- [49] André J, Jonnard P, Le Guen K, Bridou F 2015 *Phys. Scr.* **90** 085503
- [50] Li W B, Yuan X F, Zhu J T, Zhu J, Wang Z S 2014 *Phys. Scr.* **90** 015804
- [51] Feng X P, Ujihara K 1990 *Phys. Rev. A* **41** 2668
- [52] Ujihara K 1993 *Opt. Commun.* **101** 179
- [53] de Boer D K G 1991 *Phys. Rev. B* **44** 498
- [54] Ghose S K, Dev B N, Gupta A 2001 *Phys. Rev. B* **64** 233403
- [55] Pfeiffer F, David C, Burghammer M, Riekel C, Salditt T 2002 *Science* **297** 230
- [56] Salditt T, Krüger S P, Fuhse C, Bähz C 2008 *Phys. Rev. Lett.* **100** 184801
- [57] Okamoto K, Noma T, Komoto A, Kubo W, Takahashi M, Iida A, Miyata H 2012 *Phys. Rev. Lett.* **109** 233907
- [58] Vassholz M, Salditt T 2021 *Sci. Adv.* **7** eabd5677
- [59] Haber J, Gollwitzer J, Francoual S, Tolkiehn M, Stempffer J, Röhlberger R 2019 *Phys. Rev. Lett.* **122** 123608
- [60] Huang X C, Kong X J, Li T J, Ma Z R, Wang H C, Liu G C, Wang Z S, Li W B, Zhu L F 2021 *Phys. Rev. Res.* **3** 033063
- [61] Ma Z R, Huang X C, Li T J, Wang H C, Liu G C, Wang Z S, Li B, Li W B, Zhu L F 2022 *Phys. Rev. Lett.* **129** 213602
- [62] Gu B, Cavaletto S M, Nascimento D R, Khalil M, Govind N, Mukamel S 2021 *Chem. Sci.* **12** 8088
- [63] Gu B, Nenov A, Segatta F, Garavelli M, Mukamel S 2021 *Phys. Rev. Lett.* **126** 053201
- [64] Huang X C, Li T J, Lima F A, Zhu L F 2024 *Phys. Rev. A* **109** 033703
- [65] Vettier C 2012 *Eur. Phys. J. Spec. Top.* **208** 3
- [66] Fink J, Schierle E, Weschke E, Geck J 2013 *Rep. Prog. Phys.* **76** 056502
- [67] Bergmann U, Glatzel P 2009 *Photosynth. Res.* **102** 255
- [68] Van Bokhoven J A, Lamberti C 2016 *X-Ray Absorption and X-Ray Emission Spectroscopy: Theory and Applications* (Vol. 1) (John Wiley & Sons) pp125–149
- [69] Kotani A, Shin S 2001 *Rev. Mod. Phys.* **73** 203
- [70] Schülke W 2007 *Electron Dynamics by Inelastic X-Ray Scattering*, vol. 7 (Oxford University Press) pp377–485
- [71] Ament L J P, van Veenendaal M, Devereaux T P, Hill J P, van den Brink J 2011 *Rev. Mod. Phys.* **83** 705
- [72] CXRO website. https://henke.lbl.gov/optical_constants/. [2024-11-12]
- [73] Shvyd'ko Y 2004 *X-Ray Optics: High-Energy-Resolution Applications*, vol. 98 (Springer Science & Business Media) pp 215–286
- [74] Als-Nielsen J, McMorrow D 2011 *Elements of Modern X-Ray Physics* (John Wiley & Sons) pp207–238
- [75] Heeg K P 2014 *Ph. D. Dissertation* (Heidelberg: Ruperto-Carola-Universität of Heidelberg)
- [76] Kong X 2016 *Ph. D. Dissertation* (Heidelberg: Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg)
- [77] Haber J F A 2017 *Ph. D. Dissertation* (Hamburg: Universität Hamburg)
- [78] Huang X C 2020 *Ph. D. Dissertation* (Hefei: University of Science and Technology of China) (in Chinese) [黄新朝 2020 博士学位论文 (合肥: 中国科学技术大学)]
- [79] Lentrodt D 2021 *Ph. D. Dissertation* (Heidelberg: Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg)
- [80] Li T J 2023 *Ph. D. Dissertation* (Hefei: University of Science and Technology of China) (in Chinese) [李天钧 2023 博士学位论文 (合肥: 中国科学技术大学)]
- [81] Ma Z R 2023 *Ph. D. Dissertation* (Hefei: University of Science and Technology of China) (in Chinese) [马子茹 2023 博士学位论文 (合肥: 中国科学技术大学)]
- [82] Wach A, Sá J, Szlachetko J 2020 *J. Synchrotron Radiat.* **27** 689
- [83] Spiller E, Segmüller A 1974 *Appl. Phys. Lett.* **24** 60
- [84] Tang W Z 1998 *Principles, Technologies, and Applications of Thin Film Material Preparation* (Beijing: Metallurgical Industry Press) pp1–323 (in Chinese) [唐伟忠 1998 薄膜材料制备原理, 技术及应用 (北京: 冶金工业出版社) 第 1—323 页]
- [85] Zheng W T 2004 *Thin Film Materials and Thin Film Technology* (Beijing: Chemical Industry Press) pp1–962 [郑伟涛 2004 薄膜材料与薄膜技术 (北京: 化学工业出版社) 第 1—962 页]
- [86] Liu X H, Yan X C, Luo M D, Li W 2002 *Chin. J. Nat.* **24** 36 (in Chinese) [刘小虹, 颜肖慈, 罗明道, 李伟 2002 自然杂志 **24** 36]
- [87] Phua L, Phuoc N, Ong C 2013 *J. Alloys Compd.* **553** 146
- [88] Khyzhum O Y, Solonin Y M, Dobrovolsky V 2001 *J. Alloys Compd.* **320** 1
- [89] Shahin A M, Grandjean F, Long G J, Schuman T P 2005 *Chem. Mater.* **17** 315
- [90] P23 bealene of PETRA-III. https://photon-science.desy.de/facilities/petra_iii/beamlines/p23_in_situ_x_ray_diffraction_and_imaging/beamline_layout/index_eng.html [2024-11-12]
- [91] Chumakov A I, Shvyd'ko Y, Sergueev I, Bessas D, Rüffer R 2019 *Phys. Rev. Lett.* **123** 097402
- [92] Potapkin V, Chumakov A I, Smirnov G V, Celse J P, Rüffer R, McCammon C, Dubrovinsky L 2012 *J. Synchrotron Radiat.* **19** 559
- [93] Rüffer R, Chumakov A I 1996 *Hyper. Int.* **97** 589
- [94] Li W B, Zhu J T, Ma X Y, Li H C, Wang H C, Sawhney K J, Wang Z S 2012 *Rev. Sci. Instrum.* **83** 053114
- [95] Hoszowska J, Dousse J C, Kern J, Rhéme C 1996 *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. A* **376** 129
- [96] Kleymenov E, Bokhoven J A V, David C, Glatzel P, Janousch M, Alonso-Mori R, Studer M, Willi-mann M, Bergamaschi A, Henrich B, Nachttegaal M 2011 *Rev. Sci. Instrum.* **82** 065107
- [97] Jagodzinski P, Szlachetko J, Dousse J C, Hoszowska J, Szlachetko M, Vogelsang U, Banaś D, Pakendorf T, Meents A, van Bokhoven J A, Kubala-Kukuś A, Pajek M, Nachttegaal M 2019 *Rev. Sci. Instrum.* **90** 063106
- [98] Sawhney K J S, Dolbnya I P, Tiwari M K, Alianelli L, Scott S M, Preece G M, Pedersen U K, Walton R D 2010 *AIP Conf. Proc.* **1234** 387
- [99] Frahm R, Nachttegaal M, Stötzl J, Harfouche M, van Bokhoven J A, Grunwaldt J 2010 *AIP Conf. Proc.* **1234** 251
- [100] Rueff J P, Ablett J M, Céolin D, Prieur D, Moreno T, Balédent V, Lassalle-Kaiser B, Rault J E, Simon M, Shukla A 2015 *J. Synchrotron Radiat.* **22** 175
- [101] Parratt L G 1954 *Phys. Rev.* **95** 359
- [102] Röhlberger R, Klein T, Schlage K, Leupold O, Rüffer R 2004 *Phys. Rev. B* **69** 235412
- [103] Tomaš M S 1995 *Phys. Rev. A* **51** 2545
- [104] Scheel S, Buhmann S Y 2008 *Acta Phys. Slovaca* **58** 675
- [105] Scully M O, Fry E S, Ooi C H R, Wódkiewicz K 2006 *Phys. Rev. Lett.* **96** 010501
- [106] Fano U 1961 *Phys. Rev.* **124** 1866
- [107] Fano U, Cooper J W 1965 *Phys. Rev.* **137** A1364

- [108] Li T J, Huang X C, Ma Z R, Li B, Zhu L F 2022 *Phys. Rev. Res.* **4** 023081
- [109] Li T J, Huang X C, Ma Z R, Li B, Wang X Y, Zhu L F 2023 *Phys. Rev. A* **108** 033715
- [110] Dutra S M, Knight P L 1996 *Phys. Rev. A* **53** 3587
- [111] Bauer M 2014 *Phys. Chem. Chem. Phys.* **16** 13827
- [112] Błachucki W, Szlachetko J, Hoszowska J, Dousse J C, Kayser Y, Nachtegaal M, Sá J 2014 *Phys. Rev. Lett.* **112** 173003
- [113] Gel'mukhanov F, Ågren H 1999 *Phys. Rep.* **312** 87
- [114] Lohse L M, Andrejić P, Velten S, Vassholz M, Neuhaus C, Negi A, Panchwance A, Sergeev I, Pálffy A, Salditt T, Röhlberger R 2024 *arXiv: 2403.06508 [quant-ph]*
- [115] Chumakov A I, Baron A Q, Sergueev I, Strohm C, Leupold O, Shvyd'ko Y, Smirnov G V, Rüffer R, Inubushi Y, Yabashi M, Tono K, Kudo T, Ishikawa T 2018 *Nat. Phys.* **14** 261
- [116] Fukuzawa H, Son S K, Motomura K, Mondal S, Nagaya K, Wada S, Liu X J, Feifel R, Tachibana T, Ito Y, Kimura M, Sakai T, Matsunami K, Hayashita H, Kajikawa J, Johnsson P, Siano M, Kuk E, Rudek B, Erk B, Foucar L, Robert E, Miron C, Tono K, Inubushi Y, Hatsui T, Yabashi M, Yao M, Santra R, Ueda K 2013 *Phys. Rev. Lett.* **110** 173005
- [117] LaForge A C, Son S K, Mishra D, Ilchen M, Duncanson S, Eronen E, Kuk E, Wirok-Stoletow S, Kolbasova D, Walter P, Boll R, De Fanis A, Meyer M, Ovcharenko Y, Rivas D E, Schmidt P, Usenko S, Santra R, Berrah N 2021 *Phys. Rev. Lett.* **127** 213202
- [118] Tamasaku K, Shigemasa E, Inubushi Y, Inoue I, Osaka T, Katayama T, Yabashi M, Koide A, Yokoyama T, Ishikawa T 2018 *Phys. Rev. Lett.* **121** 083901
- [119] Yoneda H, Inubushi Y, Nagamine K, Michine Y, Ohashi H, Yumoto H, Yamauchi K, Mimura H, Kitamura H, Katayama T, Ishikawa T, Yabashi M 2015 *Nature* **524** 446
- [120] Wu B, Wang T, Graves C E, Zhu D, Schlotter W, Turner J, Hellwig O, Chen Z, Dürr H, Scherz A, Stöhr J 2016 *Phys. Rev. Lett.* **117** 027401
- [121] Chen Z, Higley D J, Beye M, Hantschmann M, Mehta V, Hellwig O, Mitra A, Bonetti S, Bucher M, Carron S, Chase T, Jal E, Kukreja R, Liu T, Reid A H, Dakovski G L, Föhlisch A, Schlotter W F, Dürr H A, Stöhr J 2018 *Phys. Rev. Lett.* **121** 137403
- [122] Liu J, Li Y, Wang L, Zhao J, Yuan J, Kong X 2021 *Phys. Rev. A* **104** L031101
- [123] Mercadier L, Benediktovitch A, Weninger C, Blessohl M A, Bernitt S, Bekker H, Dobrodey S, Sanchez-Gonzalez A, Erk B, Bomme C, Boll R, Yin Z, Majety V P, Steinbrügge R, Khalal M A, Penent F, Palaudoux J, Lablanquie P, Rudenko A, Rolles D, Crespo López-Urrutia J R, Rohringer N 2019 *Phys. Rev. Lett.* **123** 023201
- [124] Nandi S, Olofsson E, Bertolino M, Carlström S, Zapata F, Busto D, Callegari C, Di Fraia M, Eng-Johnsson P, Feifel R, Gallician G, Gisselbrecht M, Maclot S, Neoričić L, Peschel J, Plekan O, Prince K C, Squibb R J, Zhong S, Demekhin P V, Meyer M, Miron C, Badano L, Danailov M B, Giannessi L, Manfreda M, Sottocorona F, Zangrando M, Dahlström J M 2022 *Nature* **608** 488
- [125] Cui J J, Cheng Y, Wang X, Li Z, Rohringer N, Kimberg V, Zhang S B 2023 *Phys. Rev. Lett.* **131** 043201
- [126] Kayser Y, Milne C, Juranić P, Sala L, Czapla-Masztafiak J, Follath R, Kavčič M, Knopp G, Rehanek J, Błachucki W, Delcey M G, Lundberg M, Tyrälä K, Zhu D, Alonso-Mori R, Abela R, Sá J, Szlachetko J 2019 *Nat. Commun.* **10** 4761
- [127] Rohringer N 2019 *Philos. Trans. R. Soc. A* **377** 20170471
- [128] Matsuda I, Arafune R 2023 *Nonlinear X-Ray Spectroscopy for Materials Science* (Springer) pp1–160
- [129] Shwartz S, Harris S E 2011 *Phys. Rev. Lett.* **106** 080501
- [130] Shwartz S, Coffee R N, Feldkamp J M, Feng Y, Hastings J B, Yin G Y, Harris S E 2012 *Phys. Rev. Lett.* **109** 013602
- [131] Shwartz S, Fuchs M, Hastings J B, Inubushi Y, Ishikawa T, Katayama T, Reis D A, Sato T, Tono K, Yabashi M, Yudovich S, Harris S E 2014 *Phys. Rev. Lett.* **112** 163901
- [132] Bencivenga F, Cucini R, Capotondi F, Battistoni A, Mincigrucci R, Giangrisostomi E, Gessini A, Manfreda M, Nikolov I, Pedersoli E, Principi E, Svetina C, Parris P, Casolari F, Danailov M B, Kiskinova M, Masciovecchio C 2015 *Nature* **520** 205
- [133] Rouxel J R, Fainozzi D, Mankowsky R, Rösner B, Seniutinas G, Mincigrucci R, Catalini S, Foglia L, Cucini R, Döring F, Kubeck A, Koch F, Bencivenga F, Haddad A A, Gessini A, Maznev A A, Cirelli C, Gerber S, Pedrini B, Mancini G F, Razzoli E, Burian M, Ueda H, Pamfilidis G, Ferrari E, Deng Y, Mozzanica A, Johnson P J M, Ozerov D, Izzo M G, Bottari C, Arrell C, Divall E J, Zerdane S, Sander M, Knopp G, Beaud P, Lemke H T, Milne C J, David C, Torre R, Chergui M, Nelson K A, Masciovecchio C, Staub U, Patthey L, Svetina C 2021 *Nat. Photonics* **15** 499
- [134] Trost F, Ayer K, Prasciolu M, Fleckenstein H, Barthelmess M, Yefanov O, Dresselhaus J L, Li C, Bajt S C V, Carnis J, Wollweber T, Mall A, Shen Z, Zhuang Y, Richter S, Karl S, Cardoch S, Patra K K, Möller J, Zozulya A, Shayduk R, Lu W, Braue F, Friedrich B, Boesenberg U, Petrov I, Tomin S, Guetg M, anders M, Timneanu N, Coleman C, Röhlberger R, von Zanthier J, Chapman H N 2023 *Phys. Rev. Lett.* **130** 173201
- [135] Inoue I, Tamasaku K, Osaka T, Inubushi Y, Yabashi M 2019 *J. Synchrotron Radiat.* **26** 2050
- [136] Klein Y, Tripathi A K, Strizhevsky E, Capotondi F, De Angelis D, Giannessi L, Pancaldi M, Pedersoli E, Prince K C, Sefi O, Kim Y Y, Vartanyants I A, Shwartz S 2023 *Phys. Rev. A* **107** 053503

SPECIAL TOPIC—Dynamics of atoms and molecules at extremes

X-ray cavity quantum optics of inner-shell transitions*

Wang Shu-Xing¹⁾²⁾ Li Tian-Jun¹⁾ Huang Xin-Chao^{3)†} Zhu Lin-Fan^{1)‡}

¹⁾ (Department of Modern Physics, University of Science and Technology of China, Hefei 230026, China)

²⁾ (I. Physikalisches Institut, Justus-Liebig-Universität Gießen and Helmholtz Forschungsakademie Hessen für FAIR (HFHF), Campus Gießen, GSI Helmholtzzentrum für Schwerionenforschung, Gießen 35392, Germany)

³⁾ (FXE Instrument, European XFEL, Schenefeld 22869, Germany)

(Received 30 August 2024; revised manuscript received 25 October 2024)

Abstract

Over the past decade, X-ray quantum optics has emerged as a dynamic research field, driven by significant advancements in X-ray sources such as next-generation synchrotron radiation facilities and X-ray free-electron lasers, as well as improvements in X-ray methodologies and sample fabrication techniques. One of the most successful platforms in this field is the X-ray planar thin-film cavity, also known as the X-ray cavity QED setup. To date, most studies in X-ray cavity quantum optics have focused on Mössbauer nuclear resonances. However, this approach is constrained by the limited availability of suitable nuclear isotopes and the lack of universal applicability. Recently, experimental realizations of X-ray cavity quantum control in atomic inner-shell transitions have demonstrated that cavity effects can simultaneously modify transition energies and core-hole lifetimes. These pioneering studies suggest that X-ray cavity quantum optics based on inner-shell transitions will become a promising new platform. Notably, the core-hole state is a fundamental concept in various modern X-ray spectroscopic techniques. Therefore, integrating X-ray quantum optics with X-ray spectroscopy holds the potential to open new frontiers in the field of core-level spectroscopy.

In this review, we introduce the experimental systems used in X-ray cavity quantum optics with inner-shell transitions, covering cavity structures, sample fabrications, and experimental methodologies. We explain that X-ray thin-film cavity experiments require high flux, high energy resolution, minimal beam divergence, and precise angular control, necessitating the use of synchrotron radiations. Grazing reflectivity and fluorescence measurements are described in detail, along with a brief introduction to resonant inelastic X-ray scattering techniques. The review also outlines simulation tools, including the classical Parratt algorithm, semi-classical matrix formalism, quantum optical theory based on the Jaynes-Cummings model, and the quantum Green's function method. We discuss the similarities and unique features of electronic inner-shell transitions and highlight recent advancements, focusing on cavity-induced phenomena such as collective Lamb shift, Fano interference, core-hole lifetime control, etc. Observables such as reflectivity and fluorescence spectra play a central role in these studies. Finally, we review and discuss potential future directions for the field. Designing novel cavities is crucial for addressing current debates regarding cavity effects in inner-shell transitions and uncovering new quantum optical phenomena. Integrating modern X-ray spectroscopies with X-ray cavity quantum optics represents a promising research frontier with significant application potential. Furthermore, X-ray free-electron lasers, with much higher pulse intensity and shorter pulse duration, are expected to propel X-ray cavity quantum optics into the nonlinear and multiphoton regimes, opening new avenues for exploration.

Keywords: X-ray quantum optics, X-ray planar thin-film cavity, synchrotron radiation, inner-shell transition

PACS: 61.05.cm, 33.15.Vb, 98.52.Cf, 78.47.dc

DOI: 10.7498/aps.73.20241218

CSTR: 32037.14.aps.73.20241218

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 12334010, U1932207).

† Corresponding author. E-mail: xinchao.huang@xfel.eu

‡ Corresponding author. E-mail: lfzhu@ustc.edu.cn



内壳层体系的X射线腔量子光学

汪书兴 李天钧 黄新朝 朱林繁

X-ray cavity quantum optics of inner-shell transitions

Wang Shu-Xing Li Tian-Jun Huang Xin-Chao Zhu Lin-Fan

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 73, 246101 (2024) DOI: 10.7498/aps.73.20241218

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.73.20241218>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

多晶体光路配置的X射线衍射特性及在表征同步辐射光束线带宽上的应用

Characteristics of multi-crystals monfiguration X-ray diffraction and application in characterizing synchrotron beamline bandwidth

物理学报. 2020, 69(10): 104101 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200165>

晶体X射线劳厄衍射分束特性研究

Beam splitting characteristics of crystal X-ray Laue diffraction

物理学报. 2022, 71(4): 046101 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20211674>

上海光源硬X射线相干衍射成像实验方法初探

Preliminary exploration of hard X-ray coherent diffraction imaging method at SSRF

物理学报. 2020, 69(3): 034102 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20191586>

采用薄靶方法测量低能电子致Al, Ti, Cu, Ag, Au元素K壳层电离截面与L壳层特征X射线产生截面

Measurements of K-shell ionization cross sections and L-shell X-ray production cross sections of Al, Ti, Cu, Ag, and Au thin films by low-energy electron impact

物理学报. 2022, 71(17): 173402 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220162>

数百MeV/u高能区C⁶⁺离子激发W的L壳层 X射线

W L-shell X-ray emission induced by C⁶⁺ ions with several hundred MeV/u

物理学报. 2022, 71(11): 113201 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20212322>

毫秒时间分辨同步辐射X射线衍射和高压快速加载装置及应用

Millisecond time-resolved synchrotron radiation X-ray diffraction and high-pressure rapid compression device and its application

物理学报. 2022, 71(10): 100702 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20212360>