

封面文章

WSi₂ 的 W-L₃ 边高分辨共振非弹性 X 射线散射研究*

赵喆芊¹⁾ 汪书兴²⁾ 王希源¹⁾ 苏洋¹⁾
马子茹³⁾ 黄新朝^{4)†} 朱林繁^{1)‡}

1) (中国科学技术大学近代物理系, 合肥微尺度物质科学国家研究中心, 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) (中国工程物理研究院核物理与化学研究所, 绵阳 621999)

4) (FXE instrument, European XFEL, Schenefeld 22869, Germany)

(2025 年 5 月 20 日收到; 2025 年 7 月 15 日收到修改稿)

随着 X 射线光源的进步和量子光学的发展, 形成了 X 射线量子光学这一前沿分支学科. 原子内壳层跃迁是重要的 X 射线量子光学体系, 它具有跃迁种类丰富和表征手段多样、覆盖波段范围宽等优势. 但内壳层空穴的自然线宽较宽且受局域电子结构影响, 使得实验上缺乏纯粹的二能级跃迁, 成了制约 X 射线量子光学发展的瓶颈之一. 本文利用共振非弹性 X 射线散射技术, 在实验上分离了 WSi₂ 中 W-L₃ 边的白线, 从而为基于原子内壳层跃迁的 X 射线量子光学体系提供了二能级方案, 也为这一领域的发展提供了强有力的实验技术支持.

关键词: X 射线量子光学, 内壳层跃迁, 共振非弹性 X 射线散射, 二能级

PACS: 32.30.Rj, 61.05.cf, 61.05.cj, 95.30.Ky

DOI: 10.7498/aps.74.20250659

CSTR: 32037.14.aps.74.20250659

1 引言

随着 X 射线光源技术的持续进步, X 射线量子光学 (X-ray quantum optics) 成为了一个新兴的前沿研究领域^[1-3]. 这一领域的发展得益于新一代同步辐射和 X 射线自由电子激光提供的高亮度、高单色性和高相干性的光源^[4], 以及在光源上发展出的高分辨、高灵敏的探测技术^[5,6]和样品制备水平的提升. 近年来, X 射线量子光学的实验和

理论研究边界不断被拓宽, 演示再现了众多量子光学的经典现象. 总体来看, 与可见光和微波波段的量子光学领域类似, X 射线量子光学的研究类型强烈依赖于光源的特性. X 射线自由电子激光 (X-ray free electron laser, XFEL) 单脉冲内的光子简并度高于同步辐射, 因此相关研究集中在多光子和非线性现象, 如内壳层激光^[7]、受激拉曼散射^[8]、拉比振荡^[9]等. 另一方面, XFEL 有难以规避的样品损伤和稳定性问题, 因此所使用的样品种类较为简单, 一般为气体靶 (软 X 射线) 或薄金属箔 (硬 X 射

* SOLEIL 光源批准的用户实验 (批准号: 20220927)、国家自然科学基金 (批准号: 12404313, 12334010) 和欧洲自由电子激光 HELIOS 项目资助的课题.

† 通信作者. E-mail: xinchao.huang@xfel.eu

‡ 通信作者. E-mail: lfzhu@ustc.edu.cn

线). 相对而言, 利用同步辐射开展的 X 射线量子光学研究集中在线性范畴, 充分利用了其更加丰富的表征技术和稳定的测试条件. 和高精度纳米制样技术结合, 衍生出了 X 射线量子光学的一个重要分支——X 射线腔量子光学. 近年来依托 X 射线腔, 实现了超辐射^[10]、电磁诱导透明^[11]和强耦合^[12]等众多量子光学现象, 并在理论层面相继发展出了基于 Jaynes-Cummings 框架的唯象量子光学模型^[10,13]、多模理论^[14,15]、量子格林函数方法^[15-17]等较为完备的理论工具. 这些研究不仅开辟了量子光学在 X 射线波段应用的新前景, 也为 X 射线技术发展提供了新方向.

光与物质的相互作用是量子光学的核心内容. 在 X 射线波段, 常见的研究对象包括原子内壳层和原子核能级体系. 其中, 原子核激发态具有较长的相干时间, 更容易类比可见光波段的研究体系, 因此最初的研究工作大多使用原子核跃迁作为基本的量子系统^[18]. 然而, 有限的实验方法限制了原子核系统的研究内容^[3]. 与原子核不同, 原子内壳层的能级结构极其丰富, 且其跃迁波段与同步辐射和自由电子激光提供的光子能量匹配良好, 可提供更加丰富的探测手段, 也能进一步拓宽 X 射线量子光学研究的物理边界. 在近期的研究中, 人们利用 Ta, W 等 L_3 边附近的偶极允许跃迁, 相继实现了法诺干涉^[19,20]、空穴寿命调控^[21]等重要的物理现象. 此外, 利用 Fe, Mo, Co 等材料的 K 边荧光实现了定向辐射^[22]. 这些工作表明, 内壳层体系同样是优异的 X 射线量子光学系统^[23], 也为探索新的 X 射线量子光学现象提供了参考.

尽管原子内壳层的量子光学研究取得了显著进展, 但仍有诸多问题有待解决. 例如, 极短的空穴寿命导致能峰展宽严重, 常规的吸收谱 (X-ray absorption spectroscopy, XAS) 和反射谱 (X-ray reflectivity, XRR)^[24]等实验手段无法有效地区分内壳层的精细跃迁. 实际研究中, X 射线波段的内壳层体系一般为高 Z 元素, 样品一般为薄膜样品. 在固体材料中, 内壳层的能级结构通常受到晶体场、配位场劈裂效应^[25]的影响, 例如在 WO_3 ^[26], V_2O_5 ^[27], CeO_2 ^[28]等金属氧化物中, 由于激发态可能存在精细结构, 对应的内壳层跃迁能峰包含多个跃迁. 因此, 为了准确探测和调控内壳层的精细激发态结构, 需要采用更为先进的谱学技术. 近年来发展出的共振 X 射线发射谱 (resonant X-ray

emission spectroscopy, RXES), 也被称为内壳层共振非弹性 X 射线散射 (resonant inelastic X-ray scattering, RIXS)^[29], 能够克服空穴寿命引起的谱线展宽问题. 特别是在 5d 轨道的共振态结构测量中, RXES 可以高精度地识别精细结构. RXES 具体的实验操控手段包括固定能量损失谱线扫描入射光、通过远低于吸收边的入射能量激发得到非共振荧光谱 (high energy resolution off-resonant spectroscopy, HEROS) 或通过固定较小的荧光能量范围得到高分辨荧光探测吸收谱 (high-energy resolution fluorescence detected XAS, HERFD-XAS) 等. 以常用的 X 射线量子光学内壳层体系 Ta 样品为例, 已有相关 RXES 研究表明其晶体场劈裂效应较弱, 内壳层跃迁在约 0.5 eV 分辨的 RXES 二维谱上表现为一条固定能量转移的发射峰^[30], 是较好的二能级系统. 对于 WSi_2 , Pan 等^[31]通过理论计算显示 WSi_2 的 L_3 边白线跃迁呈现较好的二能级跃迁特性, 但目前尚未有其共振发射谱实验的相关报道.

本文利用色散型的 von Hamos 光谱仪^[32], 测量了 WSi_2 样品中 W 原子 L_3 边 2p 至 3d 的共振非弹性散射谱 (2p3d-RIXS), 精确识别出了共振非弹性荧光线和超过电离阈后的 $L\alpha_1$ 荧光. 在实验的 RXES 二维图中只观察到了一条固定能量损失的谱线, 证实 WSi_2 样品的 W- L_3 边白线呈现单跃迁特性. 此外还从 RXES 二维图中提取了 HERFD-XAS 谱, 并利用 Kramers-Heisenberg 方程和低于共振能量的发射谱 (HEROS) 重构了 X 射线吸收谱 (XAS), 它们均表现出单共振峰特征.

将 RIXS 技术与 X 射线腔量子光学相结合, 不仅可以进一步丰富腔效应的研究手段, 还能促进新的 X 射线谱学技术的诞生. 通过这些探索, X 射线腔量子光学有望开辟出更广阔的应用前景.

2 理论背景

吸收边附近的共振跃迁普遍存在于 X 射线波段的内壳层体系中, 例如非偶极的前边, 或偶极的白线结构. 以白线为例, 它最早发现于 1935 年的吸收谱测量中^[33]. 这种共振条件下的荧光发射被称为共振发射谱, 表现出与非共振荧光谱不同的特征. 例如在 1981 年, Briand^[34]在实验上发现 $KMnO_4$ 在 Mn 的 K 边附近有一个强跃迁的白线结构, 较

强的白线跃迁使得探测到的荧光发射谱出现新的特征峰. Tulkki 和 Åberg^[35] 在 1982 年利用广义 Kramers-Heisenberg 方程, 从共振散射角度描述了强共振白线的发射谱特征. W 的 L_3 边附近存在一个由 2p 到 5d 的强共振白线, 该共振白线激发产生荧光的 RIXS 过程示于图 1(a), 其微分截面由 Kramers-Heisenberg 方程给出:

$$\frac{d\sigma(\omega_1)}{d\omega_2} = 2\pi r_0^2 \frac{\omega_2}{\omega_1} \frac{(\omega_{2p} - \omega_{3d})g_{3d2p}(\omega_{2p} - \omega_{5d})g_{2p5d}}{(\omega_{2p} - \omega_{5d} - \omega_1)^2 + \Gamma_{2p}^2/4\hbar^2} \times \delta(\omega_1 - \omega_{3d} + \omega_{5d} - \omega_2), \quad (1)$$

$$\frac{d\sigma(\omega_1)}{d\omega_2} = 2\pi r_0^2 \int_0^\infty \left(\frac{\omega_2}{\omega_1}\right) \frac{(\omega_{2p} - \omega_{3d})g_{3d2p}(\omega_{2p} + \omega)}{(\omega_{2p} + \omega - \omega_1)^2 + \Gamma_{2p}^2/4\hbar^2} \times \left(\frac{dg_{2p}}{d\omega}\right) \delta(\omega_1 - \omega_{3d} - \omega - \omega_2) d\omega. \quad (2)$$

(1) 式描述了 2p 与离散共振能级 5d 共振随后发射荧光的过程, (2) 式对应 2p 电离到连续态之后的荧光发射. 其中, r_0 是电子的经典半径, $\hbar\omega_1$ 和 $\hbar\omega_2$ 分别是入射和散射光子能量, $\hbar\omega$ 是电离电子的动能, $\hbar\omega_{2p}$ 和 Γ_{2p} 分别给出了 2p 电子的束缚能及其空穴宽度, $\hbar\omega_{3d}$ 和 $\hbar\omega_{5d}$ 代表 3d 和 5d 电子的束缚能, g 表示能级间跃迁的振子强度. 在实验过程中 von Hamos 色散谱仪一次采集 $\hbar\omega_2$ 约 100 eV 的能量范围, 扫描 $\hbar\omega_1$ 用于收集完整的二维能量谱.

图 1 展示了共振非弹性散射的电子跃迁过程. 若 5d 壳层的自旋-轨道耦合和晶体场劈裂很小, 则上能级为较好的单能级, 对应的内壳层跃迁为单一的二能级共振. 此时, 发射谱能量 $\hbar\omega_2$ 会随着入射光的能量变化而变化, 能量损失值为常数. 图 1(b) 展示了内壳层电子被电离后发射荧光的过程, 此时吸收和发射是近乎独立的两步过程, 发射的荧光能量固定, 例如本文测量到的 $L\alpha_1$ 荧光. 对于更普遍的情况, 固体材料中的原子会受到自旋-轨道耦合、配位、晶体场等的影响, 5d 能级会发生移动和劈裂, 此时共振跃迁过程不再符合二能级假设. 然而, 这种精细的能级结构会被空穴寿命展宽效应所掩盖, 需要用高分辨的实验来区分精细结构, 例如前面提及的 HEROS 和 HERFD-XAS 方法, 本文就是利用这两种方法研究了 WSi_2 中 W- L_3 边的白线跃迁.

由 (1) 式和 (2) 式可知, 散射强度由三个函数的乘积决定, 即自然线宽为 Γ_{2p} 的洛伦兹函数; 保

证能量守恒的 δ 函数; 单一或多个上能级分立态的强度和连续态密度分布 $dg_{2p}/d\omega$, 在我们的体系中其可以简化为 W 的 5d 分立态和电离连续区的交叠. 在常规的吸收谱测量中, 受限较大的 Γ_{2p} , 未占据态的细节会被抹平, 这被称为空穴寿命展宽效应. 在共振发射谱技术中, 散射光谱的带宽主要由 Γ_{3d} (远小于 Γ_{2p}) 和仪器分辨决定, 因此可以用更高的能量分辨测量未占据态^[36]. 例如, 在入射光能量较低时, 未占据态的态密度分布坐落在宽洛伦兹的尾巴段, 通过扫描发射谱能量, 可以用高分辨的方式测量 $dg_{2p}/d\omega$ 的形状^[37]. 另外, 固定较窄的荧光能量范围, 扫描入射光能量同样可以以高分辨的方式获得 $dg_{2p}/d\omega$ 的分布^[38]. 这两种方法即前面提及的 HEROS 和 HERFD-XAS 方法, 常被用来克服空穴寿命展宽的影响^[39].

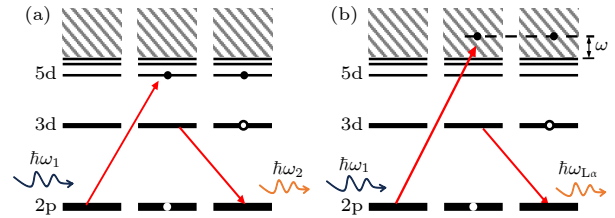


图 1 W 原子 2p-3d 共振非弹性 X 射线散射 (RIXS) 过程示意图 (两图中由左至右分别展示散射过程中的初始态、中间态和末态) (a) 经由 $2p^{-1}5d$ 中间态, 吸收和散射是不可分离的两步过程; (b) 经由 $2p^{-1}ed$ 中间态, 表现为吸收和发射两步过程

Fig. 1. Schematic illustration of the W atom 2p-3d resonant inelastic X-ray scattering (RIXS) process with its initial, intermediate and final states shown from left to right: (a) Via the $2p^{-1}5d$ intermediate state, during which absorption and scattering are inseparable; (b) via the $2p^{-1}ed$ intermediate state, manifested as a two-step process of absorption and emission.

3 实验方法

本工作的实验测量是在法国 SOLEIL 光源的 GALAXIES 谱学线站完成的. 实验过程中, 为了获得更高的光通量和较好的能量分辨, 我们使用了双晶单色器, 分辨率约为 1.2×10^{-4} . 使用的样品为 1 mm 厚的 WSi_2 单晶块材. W 的发射谱由色散型 von Hamos 谱仪收集. 谱仪使用了 8 块 Si(111) 晶体以提高探测立体角, 在 W- $L\alpha_1$ 荧光能量处匹配第四阶衍射指数, 布拉格角度约为 71° . 荧光由 von Hamos 谱仪色散并聚焦后, 由二维探测器 (Medipix) 记录发射谱图像. 考虑到探测器有限的

尺寸以及为了提升单像素的信噪比, 8 块 Si(111) 晶体的发射谱图像在色散和聚焦两个维度均被重叠. 图 2 给出了实验所用装置的示意图.

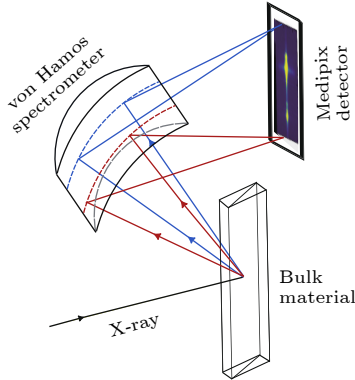


图 2 von Hamos 谱仪原理示意图, 所测光子能量约为 8397 eV. 谱仪的能量色散方向由图中 X 射线颜色标识, 红色示意低能方向

Fig. 2. Schematic illustration of the von Hamos spectrometer, set to measure photon energies around 8397 eV. The energy dispersion direction is indicated by the color gradient of the X-ray beam, with red representing lower photon energies.

WSi₂ 的 W-L α_1 能量约为 8397 eV, 为此 von Hamos 谱仪设定的工作条件即在这一能区, 相应的定标利用材料对 8310—8450 eV 入射光的

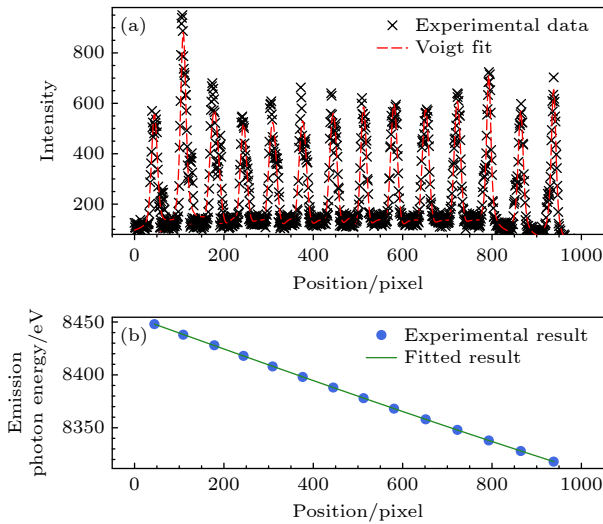


图 3 (a) 弹性散射标定发射谱能量以及 (b) 对标定峰位的拟合结果. 图 (a) 每个峰为不同入射光能量下的弹性散射信号, 代表了出现在色散方向的不同位置, 通过提取峰位代入 (b) 中拟合得到色散关系

Fig. 3. (a) Elastic scattering spectra measured at different incident photon energies; (b) each peak corresponds to a distinct position on detector along the energy-dispersive axis of the spectrometer. The dispersion relation derived by fitting the peak positions from panel (a) to panel (b), establishing the energy calibration function.

弹性散射来完成. 入射光能量展宽约为 1 eV, 在 Medipix 探测器上表现为分立峰. 标定过程中扫描入射光能量, 提取不同能量下入射光经分析器后打在探测器上的不同位置, 经由三次函数拟合即可得到位置-能量的函数关系, 完成谱仪的定标, 见图 3.

4 实验结果与讨论

实验测量中, 在 10140—10250 eV 范围扫描入射光, 在每一光子能量下采集 8310—8450 eV 能量范围的发射谱. 为了提高信噪比, 我们并道处理了发射谱, 步长为 1 eV, 并将这一系列的发射谱组合成二维 RIXS 谱图, 见图 4. 由图 4(a) 可知, 10 keV 附近 W-L₃ 边的 2p-5d 共振跃迁发射谱存在一条“斜线”(黑色虚线) 和一条“横线”(白色虚线), 前者对应能量损失固定为 $\hbar(\omega_{3d} - \omega_{5d})$ 的共振非弹性 X 射线散射过程, 如图 1(a) 所示, 后者对应电离后的 W-L α_1 荧光过程, 如图 1(b) 所示. 显然, 低于 10208 eV (能量偏移为 0) 入射光激发以共振通道跃迁为主, 高于 10208 eV 入射光激发以电离通道为主. 图 4(a) 还可以转换为以入射光能量和能量损失为维度的二维谱图, 见图 4(b). 图 4(b) 中来源于共振非弹性散射过程的荧光表现为固定能量损失的水平线 (黑色虚线), L α_1 则表现为“斜线”(白色虚线). 图 4(b) 清楚显示, 共振激发 2p-5d 只有一个固定能量损失的峰, 表明 2p-5d 是单跃迁态.

定量的 RIXS 谱如图 5 所示, 蓝色虚线和红色虚线分别标示 2p-5d 共振跃迁过程、2p 电子的电离过程, 分别记为 A, B. 由图 5 可以发现, 在较大入射能量 (10218 eV) 激发下, 存在两个峰, 分别对应 8397.6 eV 的 W-L α_1 非共振荧光峰 (B 峰) 和一个弱的 2p-5d 共振荧光峰 (A 峰). 随着入射光能量的降低, A 峰峰位随之左移, 强度逐渐升高. 当入射光能量降低到 10208 eV 时, A 峰和 B 峰完全交叠无法区分. 随着入射光能量降低到小于 L 吸收边, L α_1 荧光消失, 仅留下共振通道跃迁荧光, 即 A 峰.

以能量转移为横坐标的二维 RIXS 谱图见图 6, 图中蓝色虚线是与图 5 中蓝色虚线同源的 2p-5d 共振荧光峰. 随着入射光能量的增加, 在大能量转移一侧出现 W-L α_1 非共振荧光峰.

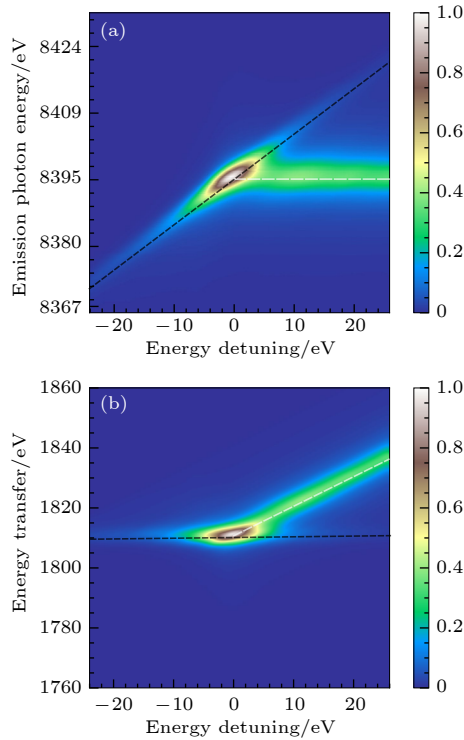


图4 W 的 L_3 吸收边 (10208 eV) 附近的 RIXS 二维图 (a) 及能量转移图 (b). 白色虚线对应发射光能量为 8397.6 eV, 对应 2p 电子电离产生 $2p^{-1}\epsilon d$ 中间态过程. 此时随入射光能量的增加发射光子能量不变, 能量转移变大. 黑色虚线对应能量转移约为 1809 eV, 对应 2p-5d 共振产生 $2p^{-1}5d$ 中间态过程. 此时随入射光能量的增加, 发射光子能量增加但能量转移保持不变

Fig. 4. (a) Two-dimensional RIXS map near the W- L_3 absorption edge (10208 eV); (b) corresponding energy transfer. The white dashed line indicates an emission photon energy of 8397.6 eV, corresponding to the ionization of a 2p electron and the formation of a $2p^{-1}\epsilon d$ intermediate state. In this process, the emission energy remains constant as the incident photon energy increases, leading to a progressive increase in energy transfer. The black dashed line indicates a constant energy transfer of 1809 eV, corresponding to the 2p-5d resonant scattering process via a $2p^{-1}5d$ intermediate state, where the emission energy increases with increasing the incident energy while the energy transfer remains fixed.

普通的 X 射线吸收谱相当于积分所有能量的荧光, 即将图 4(a) 中纵向计数积分, 得到随入射光能量变化的荧光强度 (如图 7 黑色曲线), 此时, 无法区分不同荧光的能量, 导致共振跃迁与电离通道叠加在一起, 且共振跃迁的峰宽由 2p 空穴的自然线宽决定. 峰宽较大使得所观测到的实验谱图复杂难辨, 见图 7 中 TFY 曲线. 本课题组之前的薄膜实验得到的就是吸收谱^[21], 因其复杂的谱结构及无法证实单一跃迁, 导致实验结果解释困难.

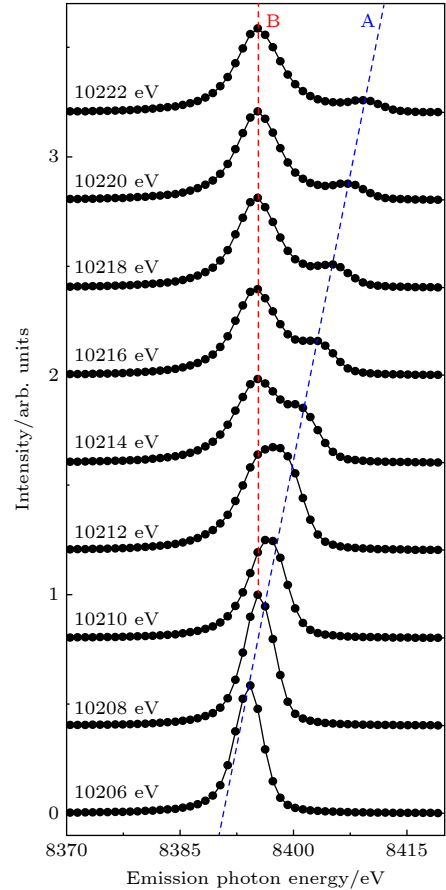


图5 WSi_2 在 10206—10222 eV 入射光能量激发下的荧光谱, 对应图 4(a) 垂直剖面. 其中蓝色虚线对应 2p-5d 共振荧光峰 (A 峰); 红色虚线对应 8397.6 eV 的 W- $L\alpha_1$ 非共振荧光峰 (B 峰)

Fig. 5. Fluorescence spectra of WSi_2 excited by incident photon energies from 10206 to 10222 eV, corresponding to the vertical cut shown in Fig. 4(a). The blue dashed line corresponds to the 2p-5d resonance fluorescence peak (Peak A); the red dashed line corresponds to the non-resonance fluorescence peak of W- $L\alpha_1$ at 8397.6 eV (Peak B).

与全荧光产额方法不同的是, HERFD 谱只收集 $L\alpha_1$ 能量附近很窄范围的荧光能量 (见图 7 红色曲线), 因此也被称为部分荧光产额法 (partial fluorescence yield). 从图 4 和图 7 可以看出, 由于 HERFD 只积分了 $L\alpha_1$ 中心很小区域, 使得共振峰变得更加锐利, 从而提高了能量分辨, 减小了空穴寿命展宽的影响. 对比图 7 中的红线和 black 线, 白线特征变得更加明显. 和图 4 中得到的信息类似, WSi_2 样品中的 W- L_3 边共振在 HERFD 谱中表现出良好的二能级跃迁特征. 值得注意的是, HERFD 和 TFY 都无法避免厚样品导致的自吸收展宽效应, 因此图 7 的谱线仍然不够锐利.

由 (1) 式可知, 当固定入射光能量, 仅分析发射谱时, 同样可减小内壳层的寿命展宽. 考虑远低

于吸收边能量入射得到的 HEROS 发射谱, 利用广义 Kramers-Heisenberg 方程:

$$I_{\text{XES}}(\hbar\omega_2) \sim \int_0^\infty \left[\frac{\hbar\omega_2}{\hbar\omega_1} \frac{(|E_i| - |E_f|)(E + |E_i|)}{(E + |E_i| - \hbar\omega_1)^2 + \Gamma_i^2/4} \times I_{\text{XAS}}(E) \delta(\hbar\omega_1 - |E_f| - E - \hbar\omega_2) \right] dE, \quad (3)$$

可以从 HEROS 谱重构出 XAS 峰. 重构的 XAS 谱不仅可以压低寿命展宽问题, 理论上还可以消除自吸收效应; 其中 $I_{\text{XES}}(\hbar\omega_2)$ 表示发射光谱, $I_{\text{XAS}}(E)$ 代表作为激发光电子能量 E 函数的 XAS 光谱, Γ_i 是初始态展宽, E_i 是初始能级, E_f 是末态能级, E 是入射光激发电子到的能级, 其余符号的含义与 (1) 式中相同. 由图 8(b) 可以看出, 相对于图 7 中的荧光产额吸收谱, 使用共振发射谱重构出的吸收谱中白线峰形更窄, 这是因为 HERFD-XAS 受积分荧光宽度和自吸收效应的影响. 和吸收边相

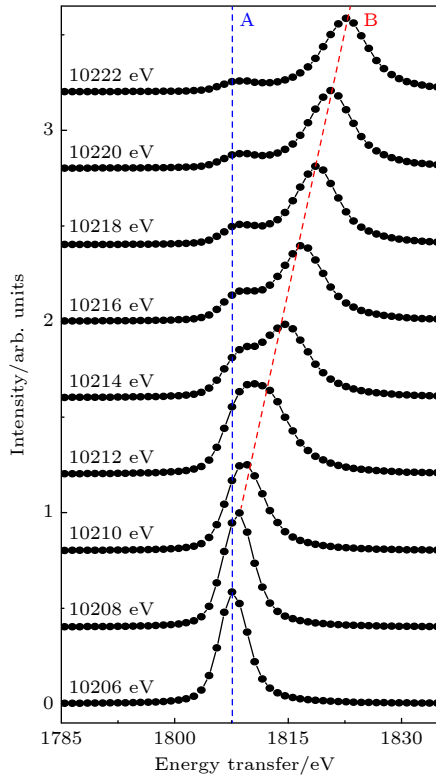


图 6 WSi_2 在 10206—10222 eV 入射光能量激发下以能量转移为横坐标的荧光谱, 对应图 4(b) 垂直剖面. 红蓝虚线与图 5 中含义相同

Fig. 6. Fluorescence spectra of WSi_2 excited with incident photon energies from 10206 to 10222 eV, displayed as a function of energy transfer, corresponding to the vertical cut shown in Fig. 4(b). The red and blue dashed lines represent the same as those in Fig. 5.

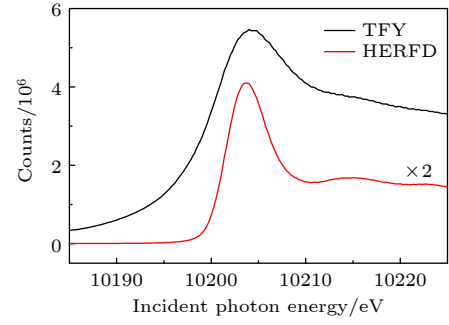


图 7 荧光模式下的总荧光产额谱与 HERFD 谱. 高能量分辨率的 HERFD 光谱是积分 W 的 $L\alpha_1(L_3M_5)$ 荧光 (8397.6 eV) 中心 (图 4(a) 白色虚线) 处 0.6 eV 能量窗口 (8397—8398.4 eV) 的 XES 数据得到的. 值得注意的是, 积分能量区间比初态能级的自然线宽 7.2 eV 要小很多. 而 TFY-XAS 光谱则是积分 XES 整个 W- $L\alpha_1(L_3M_5)$ 范围得到的

Fig. 7. Total fluorescence yield (TFY) spectrum and high-energy resolution fluorescence detected (HERFD) spectrum in fluorescence mode. The high-resolution HERFD spectrum is obtained by integrating the X-ray emission spectroscopy (XES) data within a 0.6 eV energy window (8397—8398.4 eV) centered at the W- $L\alpha_1(L_3M_5)$ fluorescence line at 8397.6 eV (indicated by the white dashed line in Fig. 4(a)). Notably, the integrated energy window is much narrower than the natural linewidth 7.2 eV of the initial state. The TFY-XAS spectrum, on the other hand, is obtained by integrating the XES intensity over the entire W- $L\alpha_1(L_3M_5)$ emission range.

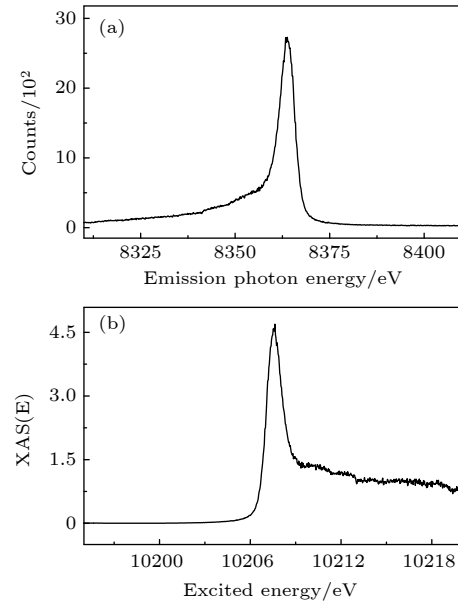


图 8 (a) 在入射 X 射线能量为 10172 eV 下记录了样品的非共振 XES 谱; (b) 利用 (3) 式重构的 W- L_3 吸收边的重构 XAS 谱

Fig. 8. (a) Off-resonant X-ray emission spectrum (HEROS) of the sample recorded at an incident photon energy of 10172 eV; (b) reconstructed X-ray absorption spectrum (XAS) at the W- L_3 edge with Eq. (3).

比, 白线强度更加突出, 且重构出的吸收谱仍然表现出良好的单峰特征, 再次印证了 WSi_2 的 L_3 边具有二能级跃迁特性.

5 总结与展望

本文利用高分辨 von Hamos 谱仪测量了 WSi_2 单晶样品 $W-L_3$ 边附近的共振发射谱. 共振发射谱二维图的固定能量转移仅表现出单条斜线, 确定了在 W 体系中 $2p$ 到 $5d$ 共振能级为单通道跃迁, 反映出其良好的二能级跃迁特性. 还使用了高分辨荧光产额法提取了高分辨吸收谱和利用 HEROS 谱重构出了不受自吸收效应影响的高分辨吸收谱, 同样展示出单一的白线结构. 除此之外, 还证实了共振发射谱技术可以区分共振和电离通道, 为未来内嵌 WSi_2 层的薄膜腔研究提供了实验参考.

感谢本课题组李波等同学的讨论和建议. 感谢欧洲自由电子激光超快实验站 (European XFEL FXE instrument) 的 Yohei Uemura 博士, PETRA-III 光源 P23 线站的 Azat Khadiev 博士等合作者在束流实验中的支持, 感谢 SOLEIL 光源 GALAXIES 线站 James Michael Ablett 博士和 Jean-Pascal Rueff 博士等线站科学家在实验中的支持和提供的单晶样品.

参考文献

- [1] Kuznetsova E, Kocharovskaya O 2017 *Nat. Photonics* **11** 685
- [2] Wong L J, Kaminer I 2021 *Appl. Phys. Lett.* **119** 130502
- [3] Wang S X, Li T J, Huang X C, Zhu L F 2024 *Acta Phys. Sin.* **73** 246101 (in Chinese) [汪书兴, 李天钧, 黄新朝, 朱林繁 2024 物理学报 **73** 246101]
- [4] 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
- [5] Ablett J M, Prieur D, Céolin D, et al. 2019 *J. Synchrotron Radiat.* **26** 263
- [6] 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
- [7] Linker T M, Halavanau A, Kroll T, et al. 2025 *Nature* **642** 934
- [8] Kroll T, Weninger C, Alonso-Mori R, et al. 2018 *Phys. Rev. Lett.* **120** 133203
- [9] Nandi S, Olofsson E, Bertolino M, et al. 2022 *Nature* **608** 488
- [10] Heeg K P, Evers J 2013 *Phys. Rev. A* **88** 043828
- [11] Röhlberger R, Wille H C, Schlage K, Sahoo B 2012 *Nature* **482** 199
- [12] Haber J, Schulze K S, Schlage K, Loetzsch R, Bocklage L, Gurieva T, Bernhardt H, Wille H C, Rüffer R, Uschmann I, Paulus G G, Röhlberger R 2016 *Nat. Photonics* **10** 445
- [13] Heeg K P, Evers J 2015 *Phys. Rev. A* **91** 063803
- [14] Lentrodt D, Heeg K P, Keitel C H, Evers J 2020 *Phys. Rev. Res.* **2** 023396
- [15] Lentrodt D, Evers J 2020 *Phys. Rev. X* **10** 011008
- [16] Kong X, Chang D E, Pálffy A 2020 *Phys. Rev. A* **102** 033710
- [17] Andrejić P, Lohse L M, Pálffy A 2024 *Phys. Rev. A* **109** 063702
- [18] Röhlberger R, Schlage K, Klein T, Leupold O 2005 *Phys. Rev. Lett.* **95** 097601
- [19] 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
- [20] Heeg K P, Ott C, Schumacher D, Wille H C, Röhlberger R, Pfeifer T, Evers J 2015 *Phys. Rev. Lett.* **114** 207401
- [21] 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
- [22] Vassholz M, Salditt T 2021 *Sci. Adv.* **7** eabd5677
- [23] Huang X C, Li T J, Lima F A, Zhu L F 2024 *Phys. Rev. A* **109** 033703
- [24] Kettenoglu D 2022 *X-Ray Spectrom.* **51** 422
- [25] Dorenbos P 2003 *J. Phys.: Condens. Matter* **15** 6249
- [26] Wach A, Sá J, Szlachetko J 2020 *J. Synchrotron Radiat.* **27** 689
- [27] Khyzhun O Y, Strunskus T, Grünert W, Wöll C 2005 *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.* **149** 45
- [28] Kotani A, Kvashnina K O, Butorin S M, Glatzel P 2012 *Eur. Phys. J. B* **85** 257
- [29] Maganas D, DeBeer S, Neese F 2017 *Inorg. Chem.* **56** 11819
- [30] Blachucki W, Szlachetko J, Hoszowska J, Dousse J C, Kayser Y, Nachttegaal M, Sá J 2014 *Phys. Rev. Lett.* **112** 173003
- [31] Pan Y, Jing C, Wu Y 2019 *Vacuum* **167** 374
- [32] Szlachetko J, Nachttegaal M, de Boni E, Willmann M, Safonova O, Sa J, Smolentsev G, Szlachetko M, van Bokhoven J A, Dousse J C, Hoszowska J, Kayser Y, Jagodzinski P, Bergamaschi A, Schmitt B, David C, Lücke A 2012 *Rev. Sci. Instrum.* **83** 103105
- [33] Veldkamp J 1935 *Physica* **2** 25
- [34] Briand J P 1981 *Phys. Rev. Lett.* **46** 1625
- [35] Tulkki J, Aberg T 1982 *J. Phys. B* **15** L435
- [36] Bergmann U, Glatzel P 2009 *Photosynth. Res.* **102** 255
- [37] Blachucki W, Hoszowska J, Dousse J C, Kayser Y, Stachura R, Tyrała K, Wojtaszek K, Sá J, Szlachetko J 2017 *Spectrochim. Acta B* **136** 23
- [38] Hayashi H, Takeda R, Udagawa Y, Nakamura T, Miyagawa H, Shoji H, Nanao S, Kawamura N 2003 *Phys. Rev. B* **68** 045122
- [39] Hayashi H, Udagawa Y, Caliebe W A, Kao C C 2003 *Chem. Phys. Lett.* **371** 125

COVER ARTICLE

High-resolution resonant inelastic X-ray scattering study of W-L₃ edge in WSi₂^{*}

ZHAO Zheqian¹⁾ WANG Shuxing²⁾ WANG Xiyuan¹⁾ SU Yang¹⁾
 MA Ziru³⁾ HUANG Xinchao^{4)†} ZHU Linfan^{1)‡}

1) (*Hefei National Research Center for Physical Sciences at the Microscale, 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) (*Institute of Nuclear Physics and Chemistry, China Academy of Engineering Physics, Mianyang 621999, China*)

4) (*FXE instrument, European XFEL, Schenefeld 22869, Germany*)

(Received 20 May 2025; revised manuscript received 15 July 2025)

Abstract

With the advancement of synchrotron and free-electron laser, X-ray quantum optics has emerged as a novel frontier for exploring light-matter interactions at high photon energies. A significant challenge in this field is achieving well-defined two-level systems through atomic inner-shell transitions, which are often hindered by broad natural linewidths and local electronic structure effects. This study aims to explore the potential of tungsten disilicide (WSi₂) as a two-level system for X-ray quantum optics applications. Utilizing high-resolution resonant inelastic X-ray scattering (RIXS) near the W-L₃ edge, in this work, the white line of bulk WSi₂ is experimentally distinguished, overcoming the spectral broadening caused by short core-hole lifetime. The measurements are conducted by using a von Hamos spectrometer at the GALAXIES beamline of the SOLEIL synchrotron. The results reveal a single resonant emission feature with a fixed energy transfer, confirming the presence of a discrete 2p-5d transition characteristic of a two-level system. Additional high-resolution XAS spectra, obtained via high energy resolution fluorescence detection method and reconstructed from off-resonant emission (free from self-absorption effect for bulk WSi₂ sample) method, further support the identification of a sharp white line. These findings demonstrate the feasibility of using WSi₂ as a model system in X-ray cavity quantum optics and establish RIXS as a powerful technique to resolve fine inner-shell structures.

Keywords: X-ray quantum optics, inner-shell transition, resonant inelastic X-ray scattering, two-level system

PACS: 32.30.Rj, 61.05.cf, 61.05.cj, 95.30.Ky

DOI: 10.7498/aps.74.20250659

CSTR: 32037.14.aps.74.20250659

* Project supported by the User Experiment Approved by the SOLEIL Light Source (Grant No. 20220927), the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 12404313, 12334010), and the European Free-Electron Laser HELIOS Project.

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

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



WSi₂的W-L₃边高分辨共振非弹性X射线散射研究

赵喆芊 汪书兴 王希源 苏洋 马子茹 黄新朝 朱林繁

High-resolution resonant inelastic X-ray scattering study of W-L₃ edge in WSi₂

ZHAO Zheqian WANG Shuxing WANG Xiyuan SU Yang MA Zirui HUANG Xinchao ZHU Linfan

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 74, 183201 (2025) DOI: 10.7498/aps.74.20250659

CSTR: 32037.14.aps.74.20250659

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.74.20250659>

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

内壳层体系的X射线腔量子光学

X-ray cavity quantum optics of inner-shell transitions

物理学报. 2024, 73(24): 246101 <https://doi.org/10.7498/aps.73.20241218>

共振非弹性X射线散射在量子材料领域的应用

Resonant inelastic X-ray scattering applications in quantum materials

物理学报. 2024, 73(19): 197301 <https://doi.org/10.7498/aps.73.20241009>

铜氧超导材料电荷密度波和元激发的共振非弹性X射线散射研究

Resonant inelastic X-ray scattering study of charge density waves and elementary excitations in cuprate superconductors

物理学报. 2024, 73(19): 197401 <https://doi.org/10.7498/aps.73.20240983>

铜氧化物超导体电荷序的共振X射线散射研究进展

Research progress of resonant X-ray scattering of charge order in cuprate superconductors

物理学报. 2025, 74(8): 087402 <https://doi.org/10.7498/aps.74.20241402>

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>

结合高分辨率X射线光电子能谱和拉曼散射研究Ge_xGa₈S_{92x}玻璃结构

Structure of Ge_xGa₈S_{92x} glasses studied by high-resolution X-ray photoelectron spectroscopy and Raman scattering

物理学报. 2023, 72(1): 017101 <https://doi.org/10.7498/aps.72.20221653>