

自由电子激光与凝聚态物理

李印华 李士

(中国科学院高能物理研究所)

【摘要】 本文简要介绍了70年代末80年代初发展起来的自由电子激光高技术,以及它在凝聚态物理中的可能应用,展望了它的应用前景和发展趋势,并讨论了自由电子激光在凝聚态物理基础研究方面的深远意义。

一、引言

现今,激光已经广泛地应用于科学研究和技术科学等各个领域。然而,随着科学技术的发展,传统激光器的弱点和不足越来越显著。例如,一般激光器只是工作在不同的波段上,激光能量不可调,激光器的峰值功率和平均功率都不高。此外,不同波段激光输出的功率还相差很大,也给实验增加了复杂性。因此,激光器的功率低和频率不可调,限制了它应用的深度和广度。虽然也有一些可调频率激光器,但是它们的频率覆盖范围太小,还是留下了许多频段空区。

在凝聚态物理的动力学研究中,凝聚态中的许多元激发,比如声学声子、磁子、极子等等,其能量都在远红外区。由于传统激光器的功率和频率可调性的限制,能够激发的元激发是很有限的,限制了其动力学研究工作的深入。近年来,国际上发展了一种频率可调、高功率的新型激光光源——自由电子激光,使凝聚态物理的研究又开辟了新的途径。这里,我们将讨论远红外自由电子激光对研究凝聚态物理动力学的前景。

二、自由电子激光基本原理

自由电子激光是一种可调频、高功率、相干辐射的光源。其工作原理如下:利用电子加速器加速电子,从电子加速器中出来的高能电子束,紧接着在周期性变化的磁场中进行电子束—光波的能量转换,产生自发辐射的电磁波,经过谐振腔谐振后,输出一定频率的高功率激光。我们可以通过改变电子束的能量或振荡器参数,就能方便地改变输出激光的频率。由于输入的电子束具有脉冲性,因此,输出的激光还具有时间结构。

自由电子激光具有传统激光器所没有的长处,即波长可调性和大功率,从而拓宽了激光的应用领域,开辟了新的应用方向。因此,世界各地都在建造不同类型的自由电子激光器。目前,国内已将自由电子激光装置作为“863”高技术跟踪课题。待我国建造的自由电子激光装置完工后,将会对自由电子激光的应用研究工作作出贡献。

三、在凝聚态物理中的可能应用

1. 能级动力学

电子激发的动力学过程一直是科学工作者感兴趣的课题。在光学区域,一个研究能级动

力学的基本方法是用时间分辨荧光光谱学。在远红外能区,气相状态的物质的荧光谱还能有效地标记分子。而在凝聚态,尤其在固体中,电子激发后的退激过程主要是通过发射声子退激发,辐射光子退激发处于次要地位,因此,直接测量荧光谱的方法受到了限制。对于单个体系而言,另有一个更好的方法即用饱和法。利用自由电子激光可调频性和大功率,使待研究的激发能级的电子达到饱和,再用泵浦的方法,使电子向更高能级跃迁,测量它的退激光学荧光。这样,免除了对微弱远红外荧光的测量,使光谱学技术能用来对远红外能级动力学进行研究。

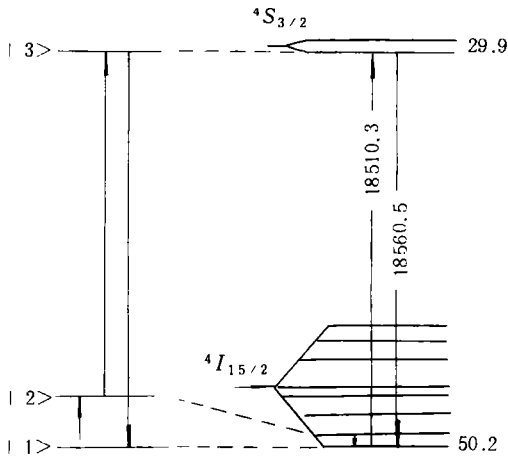


图1 三能级泵浦示意图,右侧是 $LaF_3:Er^{3+}$ 能级

测量过程如图1所示。比如我们感兴趣的是能态 $|2\rangle$ 上的动力学过程,首先调谐自由电子激光的频率,使光子能量恰好为能级 $|2\rangle$ 的激发能量,把基态 $|1\rangle$ 上的电子饱和和激发到 $|2\rangle$ 态。同时用分子激光器把 $|2\rangle$ 态的电子再激发到 $|3\rangle$ 态,测量 $|3\rangle$ 态辐射出的光学荧光。假设基态 $|1\rangle$ 的电子占有率为 n_1 , $|2\rangle$ 态的电子占有率为 n_2 , 声子占有数为 P , 则可得如下方程组:

$$\frac{dn_1}{dt} = \frac{\sigma I}{h\nu} (n_2 - n_1) + \frac{1}{T_1} [(1 + P) n_2 - Pn_1]$$

$$\frac{dn_2}{dt} = -\frac{dn_1}{dt}$$

$$\frac{dP}{dt} = -\frac{P}{T_p} + \frac{N}{\Sigma T_1} [(1 + P) n_2 - Pn_1]$$

式中 Σ 为共振声子模总数, N 为每立方厘米原子的个数, T_1 为 $|2\rangle$ 态电子的寿命, T_p 为声子的寿命,在强声子情况即 $(N/\Sigma) > 1$ 时, T_p 代表共振声子的非简谐衰减时间,其余符号取通常的含义。

方程组的解表明, $|2\rangle$ 态的电子数从特征时间 T_1 开始弛豫,其缓慢下降的尾部为 $[T_1 + (1 + N/\Sigma) T_p]$ 。因此可以得到能级 $|2\rangle$ 的电子和声子弛豫时间,并得到它的饱和电子、声子占有率 n_2 和 P 。

W.M.Dennis^[1]在加利福尼亚大学的自由电子激光器上作了这一工作,对 $LaF_3:Er^{3+}$ 的能级的电子-声子相互作用进行了动力学研究。他在 LaF_3 晶体中注入 1% 的 Er^{3+} , $LaF_3:Er^{3+}$ 的 $I_{15/2}$ 能级在晶场中分裂成多重态,待研究的能级在图1中标为 $|2\rangle$ 。实验中,把自由电子激光调谐到 $50.2cm^{-1}$, 聚焦到置于 6K 冷阱中的样品上,使基态电子共振激发到多重态的 $|2\rangle$ 态,逆向照射的 Nd:YAG 干激光器使处于 $|2\rangle$ 的电子再激发到 $^4S_{3/2}$ 上的 $|3\rangle$ 态。测量样品从 $|3\rangle$ 态辐射的光学荧光积分谱。为保证测得的是饱和谱,改变自由电子激光脉冲和光学激光

脉冲间的延迟时间,发现荧光强度取决于自由电子激光脉冲,这表明自由电子激光的驻留时间远大于电子和声子的弛豫时间,测得的是饱和和静态效果。计算还得到 n_2 和 P 均为 10^{-3} 左右。

这个实验很方便地得到了远红外能级电子和声子的弛豫时间,其时间分辨极限则由自由电子激光脉冲宽度限定。另一方面,如果减小自由电子激光的脉宽和增加脉冲重复率,可以使低能级激发态的动力学研究有更高的灵敏度。若改变两激发光束的相对位置,还能作非平衡声子传播的研究等。

2. 磁性材料的动力学研究

大部分磁性材料的电子自旋激发能量在 $10^5-100\mu\text{m}^{[2]}$ 。对于磁性材料部分的研究,诸如磁激子、杂质模、对模型的一些现象等等,其研究只局限于布里渊区中心,即均匀、静态磁模式。在激发磁子的手段上,利用分子激光器带边泵浦技术也可激发磁子,但由于每个被吸收的光子会产生一个激子-磁子对,当发射声子时,产生的激子就向低能态陷阱衰变,增加了问题的复杂性。另一个方法是通过双磁子吸收(TMA)过程,用远红外光激发。TMA 指一个角频率为 ω 的远红外光子,激发出角频率为 $\omega/2$, 角动量分别为 k 和 $-k$ 两个磁子的过程。由于远红外光子不能与单个声学声子耦合,并且在中心反转晶体中双声子吸收也是禁戒的,因此只有磁子在激发过程中产生。由于自由电子激光具有的大功率脉冲和可调波长的特性,将能够在整个布里渊区激发磁子,研究磁子和声子模的传播及相互作用。

研究反铁磁材料 $\text{FeF}_2:\text{Mn}$ 中施主和杂质模的线性和非平衡谱^[3],是自由电子激光首次应用于磁性材料,对自由电子激光的独特优点——可调频和强功率进行检验。该实验有两项内容,第一是调谐自由电子激光频率,使 Mn 杂质模处在高于、低于以及与施主极子共振的三种模式,对布里渊区中心(波矢 $k=0$)和磁杂质模进行磁场扫描和频率扫描,测量透射率随磁场强度的变化。这个实验观察到了杂质模与施主磁能带作用引起的曲线宽度变化,同时也观察到了磁极化率实部快速变化引起的干涉(图 2)。第二项实验是透射率与功率的关系,观察到了热非平衡和饱和非线性。

利用自由电子激光,还可研究自旋传输的问题。比如在反铁磁物质 MnF_2 中,轨道角动量对基态角动量的贡献为零,只有自旋角动量。用自由电子激光激发大量的磁子,就能研究自旋的传输。

图 3 是用远红外激光作的 MnF_2 中磁子的飞行时间谱^[4],上下两条曲线所使用的是不同

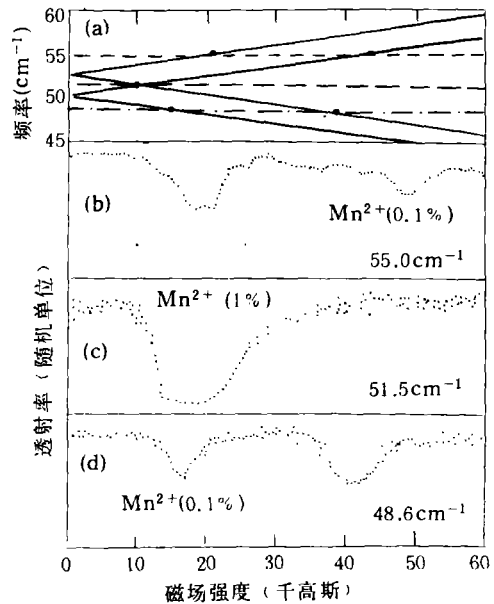


图 2 不同激发频率处透射率与磁场强度关系: (a)计算得到的 $\text{FeF}_2:\text{Mn}$ 中施主和杂质磁子模在布里渊区中心的频率随磁场强度的分裂; (b)、(c)和(d)在(a)虚线所示频率处观察到的劈形 $\text{FeF}_2:\text{Mn}$ 晶体中透射率与磁场强度关系。

的远红外激发频率。测量点距激发点 1mm,晶体的 C 轴同时垂直激发光束和记录仪。图中尖锐的上升(标注 M 处)表明最先到达的磁子,对于上条曲线来说,飞行时间为 $1.6\mu\text{s}$ 。从这些数据可计算得到布里渊区边缘磁子的传播速率为 0.32km/s 。与磁子色散弛豫微分得到的结果很吻合。

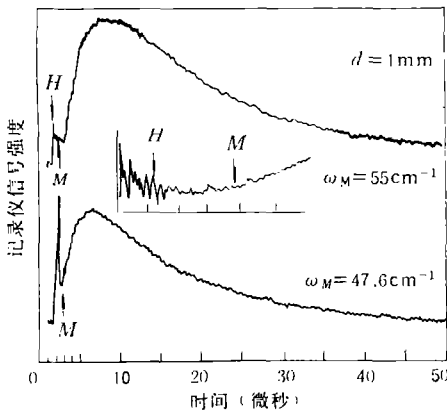


图3 激发磁子飞行时间谱。上下两迹迹的激发能量分别为 110cm^{-1} 和 95.2cm^{-1} , ω_M 是磁子能量, H 表示激发开始, M 表示最先到达的磁子。插入图是上条迹迹前部分的放大, M 表示从 H 开始发射的磁子经 1.6 微秒后到达。

强功率自由电子激光激发磁子,还可以得到磁子传播函数作为波矢的一个连续函数,在整个布里渊区内完整的磁子传播和弛豫图像,可检验已有的建立在有限数据上的磁弛豫理论^[5]。

3. 远红外非线性光学研究

光学非线性研究需要强功率光源。在非线性和混合过程中,激发束的强度与 ω^n 成正比,其中 n 是非线性的级次。这表明了在远红外区域,混合效率比可见光区域低得多,这就要求更强功率的光源才能研究远红外区的非线性光学。

在可见光区域,只有电子对非线性有贡献,而离子对非线性不起作用,因为当频率远高于共振阈值时,晶格振动频率跟不上。在远红外区,电子和离子对非线性都有贡献。Malier 已得到几种物质离子非线性的二倍频^[6]。远红外区同样存在三倍频^[7],一方面是由于非抛物线型能带的非简谐运动,另一方面

是由于与人射光共振增强的电子的非简谐运动,相当于载子碰撞时间的倒数。这表明,尽管远红外非线性混合的固有效率低,但还是有产生简谐激发的非线性机制。自由电子激光可用来对这些非线性的共振性质、非平衡的瞬时反应进行研究,得到非平衡载子和晶格动力学的新信息。

4. 半导体材料

80 年代是半导体电子工业大发展的年代。基于传统的光源和同步辐射,现有的谱技术使我们对电子和空穴的电子能级有了很多了解。但是,对于电子向空穴激发的瞬态过程却了解得很少,而许多现象都取决于激发电子的瞬态特性。自由电子激光的特点使我们能选择激发能量,研究电子、声子及缺陷间相互作用的时间进程。

例如, $n\text{-GaAs}$ 中束缚于浅施主的 $1s$ 电子向 $2p^+$ 跃迁的动力学过程,以前的研究只能局限在分子激光器强度高的有限的一些谱线上,在分子激光器的功率范围,这个过程可用简单的二级能级模型来描述,其弛豫速率可用单衰减时间 τ_{eff} 表征。但对于高功率、稳态饱和的行为,因分子激光器脉宽比 τ_{eff} 小而没法研究。自由电子激光有足够的脉宽以获得稳态饱和条件,且功率比分子激光器高约 500 倍。利用自由电子激光对 $1s \rightarrow 2p^+$ 和 $1s$ 的自由载子的光热导电性饱和行为的研究,不仅能研究以前没法达到的本底饱和,而且揭示了共振跃迁弛豫在高功率时不能用二能级系统来描述^[8]。

另外,利用自由电子激光,还对氢化非晶硅薄膜 $\alpha\text{-Si:H}$ 的导带尾和悬挂键电子的复合及转移动力学过程进行了研究^[9],以及对 GaAs:Si 的高功率光导电性进行了测量^[10]。

四、自由电子激光的物理意义

已经表明,自由电子激光是研究电子-电子、电子-声子、电子-磁子、电子-激子等各种相互作用的非常有效的谱学工具。由产生激光的介质——电子束带来的可调频性,提供了新的建立高分辨谱学的途径;它的强功率,能在凝聚态中产生足够多的元激发研究动力学过程。另外,还可发展这些领域的非线性光学研究,并作为时间分辨研究的工具。

自由电子激光的应用还起步不久,越来越多的科学工作者正在关注和进入这个领域。在这种情况下,我国的科学工作者应该紧紧跟上,争取在这个新领域走到世界的前列。

参 考 文 献

- [1] W.M.Dennis, *J. Opt. Soc. Am. B*, Vol.6, No. 5 / May (1989), 1045—1049.
- [2] R. Luis et. al., *Nucl. Instru. Meth. Phys. Res.*, A239 (1985), 429—442.
- [3] J. Spector et al., *Solid State Commu.*, Vol. 63, No. 12 (1987), 1093—1095.
- [4] S. J. Allen, R.Loudon and P.L.Richards, *Phys. Rev. Lett.*, 16 (1966), 463—466.
- [5] R.B.Woolsey and R.M.White, *Int. J.Magnetism*, 2 (1972), 51—63.
- [6] A. Mayer and F. Keilmann, *Phys. Rev. B* 33 (1986), 6954—6961.
- [7] A. Mayer and F. Keilmann, *Phys. Rev. B* 33 (1986), 6962—6968.
- [8] J. Kaminski et al., *Appl. Phys. Lett.*, 52(3), 18 January (1988).
- [9] J. Ristein et al., *J. Opt. Soc. Am. B*, Vol. 6, No. 5 / May (1989), 1003—1007.
- [10] J. Kaminski et al., *J. Opt. Soc. Am. B*, Vol.6, No. 5 / May (1989), 1030—1034.

FREE ELECTRON LASER AND THE CONDENSED PHYSICS

Li Yinhua Li Shi

(*Institute of High Energy Physics, Academia Sinica*)

Abstract

The free electron laser, which has been developing since the late 1970's and the early 1980's, is introduced along with its possible and perspective applications to the condensed physics, and its developing tendency. The significance of the free electron laser applied to the elemental research in condensed physics is also discussed.