arXiv:2302.05345v1 [physics.atom-ph] 10 Feb 2023

来自态的相干叠加的光的规范不变吸收

Axel Stenquist、Felipe Zapata，* 以及 Jan Marcus Dahlstr¨om †

Department of Physics, Lund University, 22100 Lund, Sweden.

本文从理论上研究了处于态的相干叠加中的激发原子，在极紫外波段受到孤立阿秒脉冲作用时的光吸收与发射。借助杨氏规范理论中的能量算符，提出了一种规范不变的瞬态吸收理论表述。通过求解氢原子和氖原子的含时薛定谔方程，对同时耦合束缚态与连续态的相互作用进行模拟。研究发现，结果强烈依赖于叠加态的角动量和相对相位。本文利用微扰理论分离出基本吸收过程，并建立了一条用于解释复杂吸收行为的规则。结果表明，非共振跃迁是能量和相位不对称性的来源，而到连续态的共振跃迁则对来自相干态叠加的光的吸收作出对称贡献。

I. 引言

极紫外（XUV）区域的阿秒时长脉冲可以通过一种称为高次谐波产生（HHG）的非线性光学过程产生 [1]。因此，可以在阿秒时间尺度上研究量子系统中的相干动力学过程 [2]。2010年，首次阿秒瞬态吸收光谱学（阿秒瞬态吸收光谱，ATAS）实验采用泵浦-探测装置开展，以研究叠加态离子的动力学[3]。在该实验及后续研究中，利用强超短激光场通过强场电离产生离子，同时监测弱XUV阿秒脉冲的瞬态吸收，以分析离子的演化与相干性 [3–5]。经过改进的ATAS方案已被用于研究各种光-物质现象，例如Autler-Townes劈裂、洛伦兹-法诺线型以及光吸收光谱中的光诱导结构 [6–15]。近期的阿秒瞬态吸收光谱实验已在SF_6 分子等复杂系统中触发电子交换相互作用，从而为利用激光控制分子系统中的有效电子-电子相互作用提供了机会 [16]。ATAS还被用于研究半导体中的动力学，例如硅中的带隙动力学 [17] 以及锗中电子和空穴弛豫动力学的分离 [18]。关于ATAS实验发展的综述见参考文献 [19, 20]。

我们的理论工作的基础是 Wu 等人发表的阿秒瞬态吸收光谱教程等 [21]。然而，本文将阿秒瞬态吸收光谱理论重新表述，使其与基于所谓能量算符 [22], 的杨氏规范理论保持一致，并为时间分辨ATAS模拟中的最优规范问题画上自然的句号 [23, 24]。以往对阿秒瞬态吸收光谱结构的表征，主要通过少态模型研究激光场驱动或修饰的束缚态，参见例如 文献 [14, 21, 25]。阿秒瞬态吸收光谱的特征在这一范围内的特征已通过构建解析模型在文献 [25] 中得到表征。场的宏观传播可能产生其他效应，但通过考虑薄光学介质可以避免此类效应 [21]。已有预测指出，当极紫外场耦合到p波连续态时，氢原子和氦原子中的 s 波里德伯态相干叠加会表现出对叠加态相对相位的依赖 [23], ，但利用阿秒瞬态吸收光谱研究连续态效应的实验并不多见 [12]。类似地，电离研究也考察了相干叠加，并发现其对相对相位有明显依赖 [26–29]。这类现象通常称为叠加态的量子拍频。尽管人们已对大量复杂系统开展了诸多研究，但尚未系统地从原子中里德伯态的相干叠加出发，探索构成阿秒瞬态吸收光谱基础的基本过程。本文提出一种微扰理论模型，超越少态模型的范畴，以厘清原子阿秒瞬态吸收光谱中的关键过程。由此，可以根据阿秒瞬态吸收光谱实验中不同的对称性，识别两类光与物质相互作用过程：共振过程和非共振 过程。本文给出了氢和氖的结果，但预计所得一般性结论适用于任何被激发至里德伯态相干叠加的原子。本文结构安排如下：第二节介绍规范不变瞬态吸收理论的构建；第三节厘清阿秒瞬态吸收光谱的基本过程；第四节讨论氢和氖的结果；最后，第五节总结全文并展望未来。除非另有说明，全文均采用原子单位制,$e = \hbar = m = 4\pi\epsilon_0 = 1$。

II. 瞬态吸收理论

质量为 $m = 1$、电荷为 $q = -1$ 且正则动量为$\mathbf{p} = -i\nabla$ 的电子，在经典时变电磁场中

* felipe.zapata@matfys.lth.se

† marcus.dahlstrom@matfys.lth.se

以及静态势，可写成最小耦合形式：

$$H(\mathbf{A}\ A_0) = \frac{1}{2m}\ (\mathbf{p} - q\mathbf{A})^{\ 2} + qA_0 + V, \tag{1}$$

其中，$\mathbf{A}(\mathbf{r}\ t)$ 和 $A_0(\mathbf{r}\ t)$ 分别对应时变场的矢量势和标势，而 $V(\mathbf{r})$ 对应靶 [30]的静态保守势。本文将考虑氢原子的具体情形，其中保守势对应于电子与其原子核之间的库仑相互作用，$V(r) = q/r$。相应的含时薛定谔方程（TDSE）为

$$\begin{aligned} i\frac{\partial}{\partial t}\psi(t) &= H(\mathbf{A}, A_0)\psi(t) \\ &= \frac{1}{2m}\left(\mathbf{p} - q\mathbf{A}\right)^2\psi(t) + qA_0\psi(t) + V\psi(t). \end{aligned} \tag{2}$$

式（2）的一个重要性质是，当波函数 $\psi \to \psi'$ 和势 $(\mathbf{A}\ A_0) \to (\mathbf{A}', A_0')$ 按照正确方式进行规范变换时，该式具有形式不变性 [31]。物理可观测量的期望值必须与规范的选择无关，即

$$\langle\psi(t)|\,\mathcal{O}\,|\psi(t)\rangle = \langle\psi'(t)|\,\mathcal{O}'\,|\psi'(t)\rangle\,. \tag{3}$$

根据 Wu等人的理论，阿秒瞬态吸收光谱中的物理可观测量可以通过原子（量子系统）与电磁辐射（经典场）之间的能量守恒原理推导得出。交换的能量定义为：

$$\Delta\mathcal{E} = \int_{-\infty}^{+\infty}\Delta\dot{\mathcal{E}}(t)dt, \tag{4}$$

其中 $\Delta E(t)$ 表示由于量子系统与经典场 [21]耦合而传递给该系统的瞬时功率。直观地说，这一瞬时功率应描述原子对辐射的瞬时吸收/发射过程。根据 Wu 等人的说法，$\Delta E(t)$ 应定义为原子哈密顿量期望值对时间的导数，即也就是

$$\Delta\dot{\mathcal{E}} = \frac{d}{dt}\langle\psi(t)|\,H(\mathbf{A}, A_0)\,|\psi(t)\rangle\,, \tag{5}$$

其中进一步采用了长度规范这一特殊情形。在先前的研究中，我们曾强调，$\Delta E(t)$ 是一个难以捉摸的量，并非规范不变量[24, 32]。这种规范歧义源于：在存在电磁场 [31], 时，最小耦合哈密顿量 $H(\mathbf{A}\ A_0)$ 的期望值并非规范不变也就是说

$$\langle\psi(t)|\,H(\mathbf{A}, A_0)\,|\psi(t)\rangle \neq \langle\psi'(t)|\,H(\mathbf{A}', A_0')\,|\psi'(t)\rangle\,. \tag{6}$$

为彻底避免规范歧义，必须采用一致的、规范不变的瞬态吸收理论表述。据我们所知，在阿秒瞬态吸收光谱（ATAS）的背景下，尚未有人提出此类规范不变表述。

A. 阿秒瞬态吸收光谱的规范不变表述

由于最小耦合哈密顿量 $H(\mathbf{A}\ A_0)$不是规范不变的，因此不能代表物理可观测量 [31]。这一问题促使我们寻找一种明确无歧义的量子力学算符，用以描述量子系统的瞬时能量。在半经典光与物质相互作用理论的背景下，Yang [22] 提出了一种基于所谓能量算符的规范不变形式：

$$H(\mathbf{A}, 0) = \frac{1}{2m}\left(\mathbf{p} - q\mathbf{A}\right)^2 + V, \tag{7}$$

其满足规范条件：

$$\langle\psi(t)|\,H(\mathbf{A}, 0)\,|\psi(t)\rangle = \langle\psi'(t)|\,H(\mathbf{A}', 0)\,|\psi'(t)\rangle\,. \tag{8}$$

为了将这一哈密顿量与瞬时能量算符联系起来，Yang [22] 应用了量子力学的对应原理：

> *"[.....]* 只有当某个算符期望值的运动方程与相应经典牛顿量的运动方程形式相同时，该算符才表示具有经典对应量的物理量"。

利用 Ehrenfest 定理可以推导能量算符期望值的运动方程，其形式为 [22, 31]

$$\frac{d}{dt}\langle\psi(t)|\,H(\mathbf{A}, 0)\,|\psi(t)\rangle = \frac{q}{2}\langle\psi(t)|\,\mathbf{v}\cdot\mathbf{E} + \mathbf{E}\cdot\mathbf{v}\,|\psi(t)\rangle\,, \tag{9}$$

其中，速度算符为

$$\mathbf{v} = \frac{1}{m}\left(\mathbf{p} - q\mathbf{A}\right), \tag{10}$$

而 $\mathbf{E}(\mathbf{r}\ t)$ 表示时变外场产生的电场（不包括保守势 V 的任何贡献）。若经典粒子受到多种力的共同作用，$\mathbf{F} = \mathbf{F}_0 + \mathbf{F}_1$,, 其中包括保守力 $\mathbf{F}_0(\mathbf{r}) = -\nabla V$，以及非保守力（在本例中明确为时变力）$\mathbf{F}_1 = \mathbf{F}_1(t)$，那么粒子的总能量变化 E_T 可表示为 $dE_T = \mathbf{F}_1\cdot\mathbf{v}dt$，参见 参考文献 [22] 的附录 A。因此，式（9）中的能量算符对时间的导数，是由电场力 $\mathbf{F}_1 = q\mathbf{E}$产生的功率。根据对应原理，哈密顿量 $H(\mathbf{A},0)$ 可与量子系统的瞬时能量算符 相对应。因此，阿秒瞬态吸收光谱理论中的规范不变功率应定义为

$$\Delta\dot{\mathcal{E}}(t) = \frac{q}{2}\langle\psi(t)|\,\mathbf{v}\cdot\mathbf{E} + \mathbf{E}\cdot\mathbf{v}\,|\psi(t)\rangle\,. \tag{11}$$

在电偶极近似下，并假设采用库仑规范，$\nabla\cdot\mathbf{A} = 0$，规范不变的瞬时功率可写为

$$\Delta\dot{\mathcal{E}}(t) = q\,\mathbf{E}(\mathbf{0}, t)\cdot\mathbf{v}(t), \tag{12}$$

其中，$\mathbf{v}(t) = \psi(t)|\mathbf{v}|\psi(t)$ 是式 (10) 给出的速度算符的规范不变期望值。

若考虑沿 z 轴的线偏振激光场，则功率由下式给出

$$\Delta\dot{\mathcal{E}}_z(t) = q\,E(t)\,v_z(t), \tag{13}$$

时间依赖的交换能量为

$$\Delta\mathcal{E}_z(t) = q\int_{-\infty}^{t} dt'\,E(t')v_z(t'), \tag{14}$$

其中，$v_z(t)$ 是沿偏振轴的速度算符的期望值。

为了推导能量域图像（这对于与实验测量结果进行比较是必需的）[21], ，式（14）中的总交换能量可改写为

$$\Delta\mathcal{E}_z(\infty) = 2q\int_0^{+\infty}\mathrm{Re}[\tilde{v}_z(\omega)\tilde{E}^*(\omega)]d\omega, \tag{15}$$

其中，$\tilde{v}_z(\omega) = \tilde{v}_z^*(-\omega)$ 和 $E(\omega) = E^*(-\omega)$ 分别是实函数 $v_z(t)$ 和 $E(t)$ 的傅里叶变换[1] 。这意味着原子的能量分辨的规范不变增益为

$$\Delta\tilde{\mathcal{E}}_z(\omega) = 2q\,\mathrm{Re}[\tilde{v}_z(\omega)\tilde{E}^*(\omega)], \tag{16}$$

其中能量变量为正，$\omega \geq 0$。或者，将埃伦费斯特关系：$\dot{z}(t) = v_z(t)$ 代入式（14），可将规范不变的能量分辨增益写为

$$\Delta\tilde{\mathcal{E}}_z(\omega) = 2q\omega\,\mathrm{Im}[\tilde{z}(\omega)\tilde{E}^*(\omega)], \tag{17}$$

这与 Wu等人在长度规范下推导出的表达式相同 [21]。虽然吸收的能量域表达式（方程（16）和（17））与先前的结果完全一致，参见参考文献 [21, 23, 24]，，方程（14）中的时间依赖的交换能量却不同于从长度规范哈密顿量推导出的相应表达式 [23]。如今，这个“悖论”已迎刃而解，因为不难理解，只有在含有边界项且这些边界项在分部积分后消失的时间积分中，才能用（错误的）长度规范表达式代替规范不变功率：$qE(t)\dot{z}(t) \to -qE(t)z(t)$。在实际情况下，由于脉冲在早期和晚期均趋于零，因此满足这些条件；不过，我们认为，这些认识有助于更好地解读时域中的阿秒瞬态吸收光谱实验。

B. 规范不变理论的实现

在我们的数值实现中，我们考虑沿 z 分量线偏振的光脉冲，并采用电偶极近似，使得 $\mathbf{A}(\mathbf{r}\ t) \approx \mathbf{A}(\mathbf{0}, t) = A(t)\hat{z}$。速度规范下的波函数 $\psi^V(t)$ 由式（2）得到，其形式为

$$\begin{aligned} i\frac{\partial}{\partial t}\psi^V(t) &= H(\mathbf{A}^V, {A_0}^V)\psi^V(t) \\ &= \left[\frac{\mathbf{p}^2}{2m} + V - \frac{q}{m}A^V(t)p_z\right]\psi^V(t), \end{aligned} \tag{18}$$

其中，已选取规范变换：$A^V(t) = A(t)$ 和 ${A_0}^V(t) = -\frac{q}{2m}A^2(t)$。电场与矢势的关系为

$$E(t) = -\frac{\partial}{\partial t}A^V(t). \tag{19}$$

速度算符的期望值为

$$v_z(t) = \frac{1}{m}\left[p_z^V(t) - qA^V(t)\right], \tag{20}$$

其中，$p_z^V(t)$ 是在速度规范下计算的正则动量 z 分量的期望值；即 $\psi^V(t)|p_z|\psi^V(t)$。因此，可利用方程 (19) 和 (20) 将方程 (16) 改写如下，

$$\Delta\tilde{\mathcal{E}}_z(\omega) = \frac{2q}{m}\omega\,\mathrm{Im}[\tilde{p}_z^V(\omega)\tilde{A}^{V*}(\omega)], \tag{21}$$

其中，与 $\tilde{A}^V(\omega)$ $\tilde{A}^{V*}(\omega)$ 成正比的第二项因其为实数 [23] 而被忽略。下文中，上标 V 被省略：$A^V \to A$ 因为所有计算都将在速度规范下进行。atto秒极紫外脉冲由具有高斯形包络的矢势描述，其定义为

$$A(t) = A_0\cos(\omega_0 t + \phi)e^{-at^2}, \tag{22}$$

其中 $a = 2\ln 2/\tau_e^2$。A_0、ω_0、ϕ 和 τ_e 分别为振幅、中心频率、载波包络相位（载波包络相位）和脉冲持续时间。频率相关的矢势通过傅里叶变换得到：

$$\tilde{A}^{\pm}(\omega) = \frac{A_0}{2\sqrt{2a}}\exp\left(\pm i\phi - \frac{(\omega \pm \omega_0)^2}{4a}\right), \tag{23}$$

其中 $A^{\pm}$ 表示 $A = A^+ + A^-$。注意，在此表达式中，正频分量对于正频率而言可以忽略。

III. 基本过程的解纠缠

考虑如下形式的一般叠加态

$$|\psi_0(t)\rangle = U_0(t, -\infty)\,|\psi_0(-\infty)\rangle = \sum_j^N c_j e^{-i\epsilon_j t}\,|j\rangle\,, \tag{24}$$

[1] Fourier transform convention: $\tilde{f}(\omega) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}}\int_{-\infty}^{\infty} f(t)e^{i\omega t}dt$ and $f(t) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}}\int_{-\infty}^{\infty}\tilde{f}(\omega)e^{-i\omega t}d\omega$.

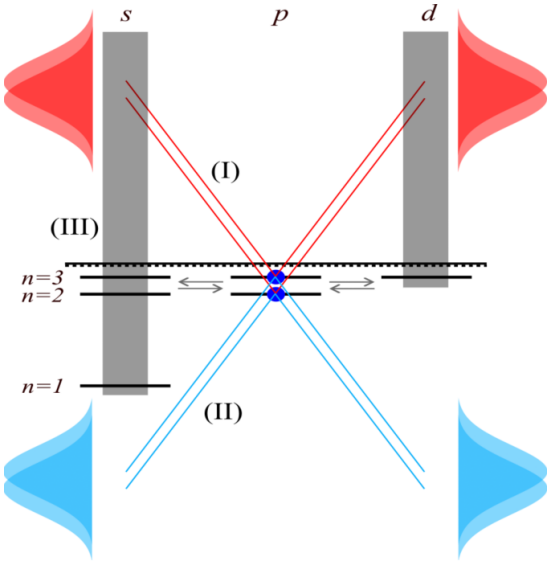


FIG.处于态的相干叠加中的类氢原子的示意图： $2p+3p$，图中用罗马数字标示了阿秒 XUV 脉冲诱导的所有过程。(I) 到连续态的共振跃迁（红线）。(II) 到束缚态的共振跃迁，这些束缚态可能位于叠加态中初始态的能量之下或之上（蓝线）。(III) 通过偶极选择定则允许到所有态的非共振跃迁（灰色矩形）。假设阿秒脉冲的带宽大于叠加态中非简并态之间的能量间隔，这意味着可能出现取决于这些态的相位（或更一般地说，相干性）的量子拍频现象。

其中， c_j 和ϵ_j 分别是定态 $|j$的相互作用绘景振幅和能量， N 是相干制备的态的总数。图 1 展示了一个具体情形：类氢原子被制备为态 $|2p_0$和 $|3p_0$的叠加态，它们具有相同的角动量量子数： $\ell = 1$ 和$m = 0$，且相互作用振幅相等（为简便起见，下文记为“$2p$+$3p$”）。与阿秒 XUV 脉冲相互作用时，可能发生三种基本过程。第一种过程（I）是共振连续态贡献，以红线表示，它由初始叠加态向连续态跃迁所导致的光吸收构成。由于存在通向同一连续态的不同路径，因此可能发生干涉（吸收谱线轮廓以部分重叠的高斯函数表示）。第二种过程（II）是共振束缚态贡献，以蓝线表示，指向束缚态发生共振偶极允许跃迁时的发射（和吸收）。第三种过程（III）是非共振贡献，以灰色矩形表示，涵盖束缚态和连续态的整个谱。根据电偶极近似，所有过程都会使角动量改变 $\ell' = \ell \pm 1$。为了表征

为表征并区分这些不同过程，我们将控制原子量子相位，φ_j =arg(c_j)。

A. 微扰处理

阿秒瞬态吸收光谱的基本过程“隐藏”在式 (21) 中，其中动量的傅里叶变换 $\tilde{p}_z(\omega)$ 是关键量，它包含了电子对电磁场 $\tilde{A}(\omega)$ 的响应。由于脉冲强度较低，可以应用微扰理论来计算动量 $p_z(t) = \langle\psi(t)|\hat{p}_z|\psi(t)\rangle$ 及其相应的傅里叶变换 $\tilde{p}_z(\omega)$。

含时波函数为

$$|\psi(t)\rangle = U(t,-\infty)\,|\psi_0(-\infty)\rangle\,, \tag{25}$$

其中， U 是演化算符，初态叠加由式（24）给出。利用广为人知的戴森级数展开 [30]，可将传播过程改写为关于未扰动演化算符U_0的形式。

$$\begin{aligned}|\psi(t)\rangle &\approx U_0(t,-\infty)\,|\psi_0(-\infty)\rangle \\ &\quad - i\int_{-\infty}^{t} dt' U_0(t,t') H_{\rm int}(t') U_0(t',-\infty)\,|\psi_0(-\infty)\rangle \\ &= \sum_j^N c_j\,|j\rangle\, e^{-i\epsilon_j t} - i\sum_j^N \sum\!\!\!\!\!\!\int_f c_j e^{-i\epsilon_f t}\,|f\rangle\,\langle f|\hat{p}_z|j\rangle \\ &\quad \times \int_{-\infty}^{t} dt' A(t') e^{i\epsilon_{fj}t'},\end{aligned} \tag{26}$$

其中， $\epsilon_{fj} = \epsilon_f - \epsilon_j$ 是态 $|f$与 $|j$的能量差；根据式（18），速度规范下的相互作用哈密顿量定义为 $H_{\rm int} = A(t)\hat{p}_z$，其中 $q = -1$。将式（22）代入式（26），并利用误差函数的性质计算时间积分。因此，矢势的贡献为

$$\begin{aligned}A^{\pm} &= \int_{-\infty}^{t} dt' A_0 \frac{e^{\pm i(\omega_0 t' + \phi)}}{2} e^{-at^2} e^{i\epsilon_{fj}t'} \\ &= \frac{A_0}{4}\sqrt{\frac{\pi}{a}} e^{\pm i\phi} \exp\left[-\frac{(\epsilon_{fj} \pm \omega_0)^2}{4a}\right] \\ &\quad \times \left\{\mathrm{erf}\left[\sqrt{a}t - \frac{i(\epsilon_{fj} \pm \omega_0)}{2\sqrt{a}}\right] + 1\right\}.\end{aligned} \tag{27}$$

动量期望值 $p_z(t)$是相对于式（26）给出的波函数计算的，可表示为

$$\begin{aligned}p_z^{\pm}(t) &= \frac{-iA_0\sqrt{\pi}}{4\sqrt{a}} \sum\!\!\!\!\!\!\int_f \sum_{jj'}^N c_{j'}^* c_j\,\langle j'|\hat{p}_z|f\rangle\,\langle f|\hat{p}_z|j\rangle \\ &\quad \times e^{-i\epsilon_{fj'}t}\left\{\mathrm{erf}\left[\sqrt{a}t - \frac{i(\epsilon_{fj} \pm \omega_0)}{2\sqrt{a}}\right] + 1\right\} \\ &\quad \times e^{\pm i\phi - \frac{(\epsilon_{fj} \pm \omega_0)^2}{4a}} + \text{c.c.},\end{aligned} \tag{28}$$

这里通过将相同宇称态之间的矩阵元设为零，考虑了宇称。

初态求和分别用指标j和 j'标记，从而将表达式简化为目前的形式。最后， $\tilde{p}_z(\omega)$可通过对式（28）进行傅里叶变换得到，结果为

$$\begin{aligned}\tilde{p}_z^{\pm}(\omega) = \frac{A_0}{2\sqrt{2a}} \sum_f \sum_{jj'}^{N} \\ \Bigg\{ & c_{j'}^* c_j \langle j'|\hat{p}_z|f\rangle\langle f|\hat{p}_z|j\rangle e^{\pm i\phi - \frac{(\omega-\epsilon_{jj'}\pm\omega_0)^2}{4a}} \\ & \times \left[\frac{1}{\omega-\epsilon_{fj'}} - i\pi\delta(\omega-\epsilon_{fj'})\right] \\ & - \left(c_{j'}^* c_j \langle j'|\hat{p}_z|f\rangle\langle f|\hat{p}_z|j\rangle\right)^* e^{\mp i\phi - \frac{(\omega+\epsilon_{jj'}\mp\omega_0)^2}{4a}} \\ & \times \left[\frac{1}{\omega+\epsilon_{fj'}} - i\pi\delta(\omega+\epsilon_{fj'})\right]\Bigg\},\end{aligned} \tag{29}$$

这里我们利用分部积分计算复指数因子与误差函数的乘积，得到高斯函数的傅里叶变换。边界项趋于无穷快振荡的函数，因此消失。此外，利用狄拉克 δ 函数对指数函数进行了化简。对末态 $\sum_f$ 求和，并将其分为束缚态和连续态，得到最终表达式

$$\begin{aligned}\tilde{p}_z^{\pm}(\omega) = & \frac{A_0}{2\sqrt{2a}} \sum_{jj'}^{N} \Bigg[c_{j'}^* c_j e^{\pm i\phi - \frac{(\omega-\epsilon_{jj'}\pm\omega_0)^2}{4a}} \\ & \times \left(O_{c-}^{jj'} + R_c^{jj'} + O_{b-}^{jj'} + R_{b-}^{jj'}\right) \\ & - c_{j'} c_j^* e^{\mp i\phi - \frac{(\omega+\epsilon_{jj'}\mp\omega_0)^2}{4a}} \\ & \times \left(O_{c+}^{jj'} + O_{b+}^{jj'} + R_{b+}^{jj'}\right)\Bigg].\end{aligned} \tag{30}$$

共振-连续态贡献 $R_c^{jj'}$ （图 1 中的过程 I）为

$$R_c^{jj'} = -i\pi \langle j'|\hat{p}_z|\epsilon_k\rangle\langle\epsilon_k|\hat{p}_z|j\rangle\Big|_{\epsilon_k=\omega+\epsilon_{j'}}, \tag{31}$$

其中，$\langle\epsilon_k|\hat{p}_z|j$ 是束缚态-连续态矩阵元，由附录 A 中的式 (A1) 给出。矩阵元是在能量为 $\epsilon_k = \omega+\epsilon_{j'}$ 的中间连续态下计算的。共振-束缚态贡献 $R_{b\pm}^{jj'}$ （图 1 中的过程 II）为

$$R_{b\pm}^{jj'} = -\frac{i\pi}{\Delta\omega} \langle j'|\hat{p}_z|n\rangle\langle n|\hat{p}_z|j\rangle\Big|_{n=(n_{j'}^{-2}\pm 2\omega)^{-1/2}}, \tag{32}$$

其中，$\langle n|\hat{p}_z|j$为束缚态-束缚态矩阵元，由附录 A 中的式 (A1) 给出。对主量子数为 $n = (n_{j'}^{-2} \pm 2\omega)^{-1/2}$ 的中间束缚态计算矩阵元。按照附录 B 所述，在数值网格上求解该表达式，其中 $\Delta\omega$ 为网格点间距。

最后，非共振连续态和非共振束缚态贡献 $O_{c\pm}^{jj'}$ 和 $O_{b\pm}^{jj'}$ （分别对应图 1 中的过程 III）由下式给出：

$$O_{c\pm}^{jj'} = \int_0^\infty d\epsilon_k \langle j'|\hat{p}_z|\epsilon_k\rangle\langle\epsilon_k|\hat{p}_z|j\rangle \frac{\text{p.v.}}{\omega\pm\epsilon_{kj'}}, \tag{33}$$

and

$$O_{b\pm}^{jj'} = \sum_n \frac{\langle j'|\hat{p}_z|n\rangle\langle n|\hat{p}_z|j\rangle}{\Delta\omega} \int_\omega^{\omega+\Delta\omega} d\omega' \frac{\text{p.v.}}{\omega'\pm\epsilon_{nj'}}, \tag{34}$$

其中，p.v. 表示柯西主值积分， ϵ_n表示束缚态 $|n$ 的能量。

IV. 结果与讨论

本节将介绍并讨论氢原子和氖原子的结果。选择氢原子作为基准案例，主要有两个原因：（i）微扰模型所需的所有电子态均有解析解，见例如 [33], ；（ii）在偶极近似下，含时薛定谔方程的时间传播可视为数值精确。在第 IV A 1 节中，我们考察氢原子的时间分辨阿秒瞬态吸收光谱特征。随后，在第 IV A 2 节中，通过与含时薛定谔方程的数值模拟直接比较，在能量域验证微扰模型。在第 IV A 3 节中，利用微扰模型剖析氢样态叠加中阿秒瞬态吸收光谱的基本过程。在第 IV A 4 节中，研究不同角动量通道的作用。验证模型后，第 IV B 节将介绍并阐释氖中各种相干态叠加的动力学。

A. 氢原子

我们的数值研究仅限于具有以下初始振幅的等布居双态叠加态，

$$c_1 = \frac{1}{\sqrt{2}}; \qquad c_2 = \frac{1}{\sqrt{2}}\exp(i\varphi), \tag{35}$$

其中， φ 是相对叠加相位（RSP）。此前已有研究考虑过 $ns + n's$ 叠加态 [23], ，但更一般的 $n\ell + n'\ell$尚未得到研究；正如我们将要展示的，叠加态中的角动量 ℓ会产生微妙的依赖关系。将我们的理论扩展到更复杂的叠加态（其中可能包含更多态或不同角动量）十分直接；如果未来在此类靶标上开展实验，这也可能成为进一步研究的课题。

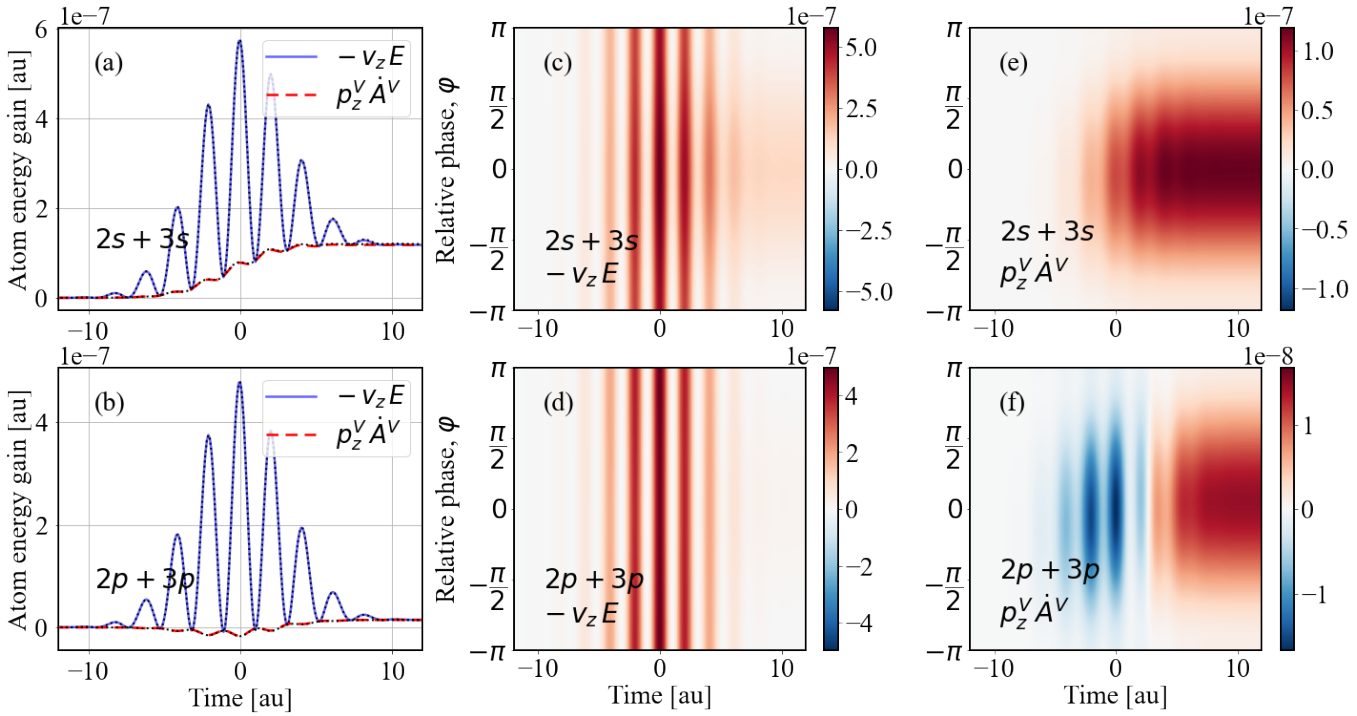


图2. 氢原子处于相干叠加态 $2s + 3s$ （上排）和 $2p + 3p$ （下排）时，与阿秒脉冲相互作用所产生的时间分辨能量增益。左列以实线表示总规范不变增益，以虚线表示同步RSP $\varphi = 0$ 的相对能量增益（不含自由电子贡献）。通过数值求解含时薛定谔方程（TDSE），验证了微扰模型的结果（点线）。中列展示按RSP区分的总增益，右列则展示相应的相对增益。正增益表示原子吸收能量（红色），负增益则表示原子发射能量（蓝色）。

1. *Interpretation of time-dependent absorption*

图2(a)和(b)分别展示了氢原子与阿秒脉冲相互作用时随时间变化的能量增益，对应于制备的叠加态$2s + 3s$和 $2p + 3p$。阿秒脉冲的中心频率为 $\omega_0 = 1.5$ au，脉冲长度为 $\tau_e = 7$ au，矢势幅值为 $A_0 = 10^{-3}$ au。能量增益根据式(14)并采用式(28)中的动量计算得出。它表示式(13)中的积分原子功率：$-E(t)v_z(t)$；其在图2中针对 $2s+3s$(c)和 $2p+3p$(d)给出，并按RSP φ进行分辨。虽然两种情况下(c–d)规范不变的能量增益在形状和大小上十分相似，但 $2s+3s$(a)的最终能量增益远大于 $2p+3p$(b)。为解释这一令人费解的现象，我们在(a–b)中比较了原子能量增益与相对能量增益；后者对应于原子的能量增益减去初始速度为零的自由电子的能量增益$v_z(-\infty) = p_z^V = 0$，这一做法见参考文献 [24]。初始速度为零的自由电子的功率为$\dot{A}^V(t)A^V(t)$，显然，在 $A^V(\pm\infty) = 0$的激光场中不会产生任何净能量增益。相对增益使我们能够在剔除这种“虚拟”的自由电子增益后，解释原子吸收过程。相对增益采用以下功率计算： $p_z^V(t)\ \dot{A}^V(t)$。这里所有物理量均采用速度规范计算，见式（18）。但我们强调，由于使用了Yang能量算符，结果与规范无关 [22]。相对能量增益变化缓慢，我们认为这一量可解释为原子在场中逐渐获得的净能量增益。对于 $2s + 3s$ (a)，它始终为正；而对于 $2p+3p$ (b)，原子在与脉冲相互作用期间有一段时间出现能量损失。这种能量损失是脉冲结束时 $2p + 3p$ 的能量增益远小于 $2s + 3s$ 的原因。(c)和(d)中的RSP分辨能量增益相似，因为它们主要由自由电子的功率决定；然而，(e)和(f)所示的相对能量增益在两种情况下存在显著差异。对于 $2s + 3s$，所有RSP下均只观察到吸收（正能量增益）；而对于 $2p + 3p$，脉冲开始和中段出现发射（负能量增益），直至脉冲接近结束时才转为吸收。时间分辨的能量增益关于 $\varphi = 0$对称。对于失相RSP $\varphi \approx \pm\pi$，相对能量增益的幅度较小；而对于同步RSP $\varphi \approx 0$，其幅度较大。最后，我们发现脉冲的CEP ϕ 决定了能量增益的峰结构，但在所考虑的脉冲参数下，CEP不会影响原子的总能量增益。这与

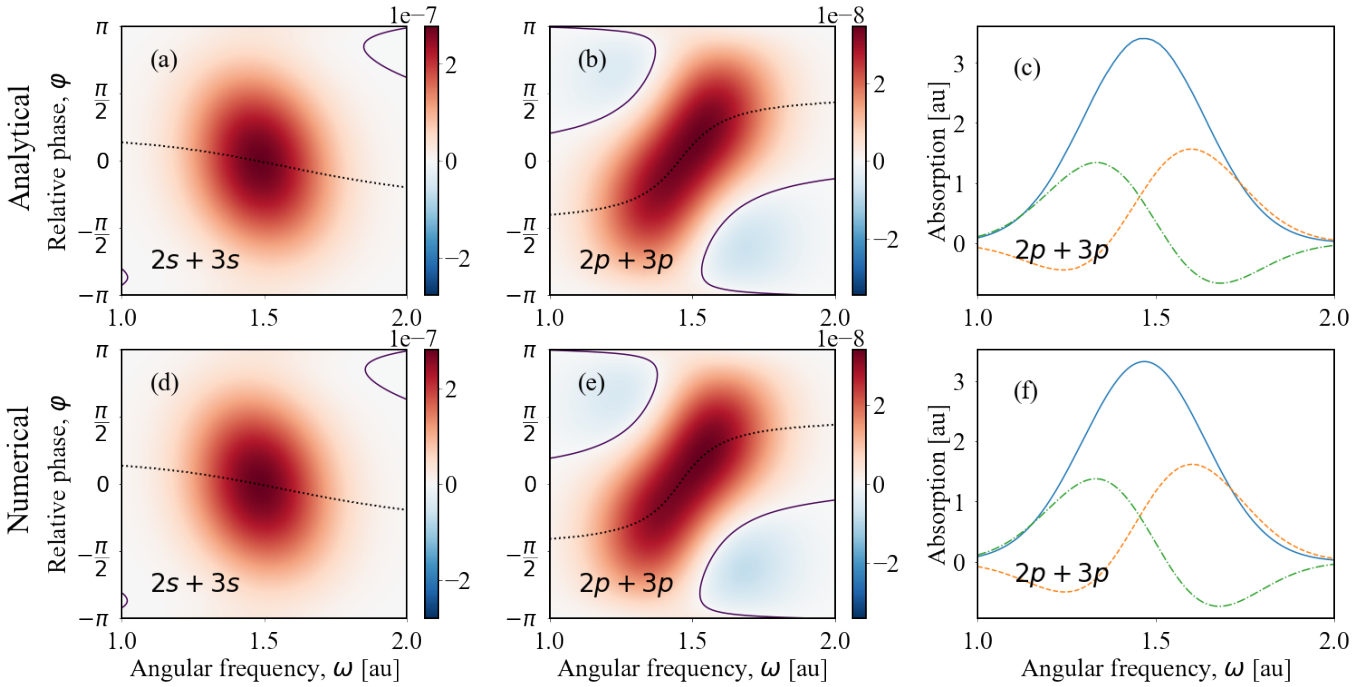


图 3. 氢原子处于制备好的叠加态 $2s+3s$ 和 $2p+3p$时，对阿秒脉冲的能量分辨吸收：解析结果（上排）和数值结果（下排）。数据按场的角频率 ω和 RSP φ进行分辨。左列展示 $2s+3s$，中列展示 $2p+3p$；黑色点线表示最大吸收相位，紫色线为吸收为零处的等值线。负吸收表示原子向场发射能量（蓝色）。右列展示 $2p+3p$，并给出了相位 $\varphi=0$（实线）、 $\varphi=\frac{3\pi}{4}$（虚线）和 $\varphi=-\frac{3\pi}{4}$（点划线）对应的线剖面。

RSP φ形成对比，后者会显著影响能量增益的幅度。

2. *Validation of perturbation model in the energy domain*

利用方程（21）计算了氢原子处于两种不同叠加态（$2s+3s$和 $2p+3p$）时在能量域中的吸收，并展示于图 3。上排结果采用微扰理论计算，动量由方程（30）给出。下排结果则通过在方程（18）给出的速度规范下对含时薛定谔方程进行数值传播得到。图中给出了阿秒脉冲下吸收随角频率和叠加态相位的变化，脉冲参数与 IV A 节 1 中相同。正如预期，微扰理论结果与精确数值传播结果吻合良好。此外，我们对 $2s+3s$ 叠加态的计算结果与先前研究 [23]吻合良好。最大吸收出现在两个态大致同相时，此时原子可发生光电离，而不会受到叠加态中两个态之间破坏性量子干涉的影响。最大吸收对应的精确相位取决于角频率，并以黑色点线标出。有趣的是，该精确相位具有负斜率，且对于 $2s+3s$ 情形的光子能量，其斜率为正；而对于 $2p+3p$ 情形，斜率为负。叠加态之间另一个显著差异是， $2s+3s$ 情形主要表现为光吸收（以红色表示），而 $2p+3p$ 叠加态则呈现出大范围的光发射区域（以蓝色表示）。图 3 (c) 和 (f) 展示了 $2p+3p$ 叠加态在三个不同 RSP 下的线剖面： $\varphi=0$ 和 $\varphi=\pm 3\pi/4$。这表明，复杂的吸收和发射现象在分析结果和数值结果中均得到了一致体现。图 3 (c) 和 (f) 中从对称曲线到非对称曲线的转变令人联想到法诺线型 [34]。虽然利用阿秒瞬态吸收光谱，已将光谱上较窄的原子吸收线从对称的洛伦兹线型调控为非对称的法诺线型 [7], ，但本研究结果表明，可以利用处于预先制备叠加态的原子的相位，调控阿秒脉冲的整个宽带带宽。因此，我们认为，本研究结果或可为利用处于随时间变化的叠加态的原子，调控孤立阿秒脉冲的光谱成分提供一种新方法。值得注意的是，对于 $2p+3p$ 叠加态，在能量域和时域中都观察到了发射区域。

3. *Fundamental processes in ATAS*

验证微扰理论模型后，我们现在详细分析其不同贡献。图 4 展示了 $2p+3p$ 情形下阿秒瞬态吸收光谱的结果，并将其分解为方程 (30) 中的基本项。图 1 展示了这些项，其中 (I) 为到连续态的共振跃迁，即方程 (31) 中的 $R_c^{jj'}$；(II) 为到束缚态的共振跃迁，即方程 (32) 中的 $R_{b\pm}^{jj'}$；(III) 为非共振跃迁，即方程 (33) 和 (34) 中的 $O_{c\pm}^{jj'}$ 和 $O_{b\pm}^{jj'}$。如图 4 (a) 所示，共振连续态贡献在角频率范围内呈宽广的类高斯形状，而共振束缚态贡献则呈现窄吸收线和发射线，见图 4 (b)。窄线的宽度由光子能量的分辨率决定，见附录 B；最强的吸收/发射出现在零相位 $\varphi = 0$ 时。有趣的是，在反相情形下，高频发射线中观察到了吸收，这可能是由于能量重新分配所致。所有共振吸收特征在相位变换 $\varphi \to -\varphi$ 下均呈对称。

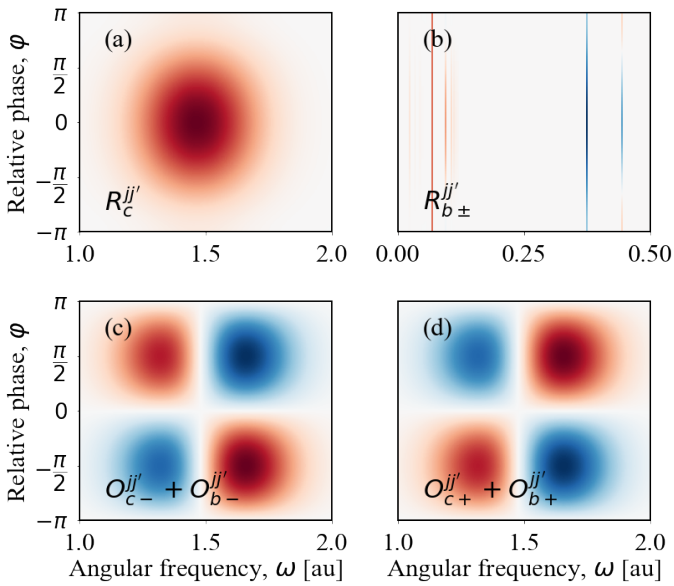


图 4. 能量分辨吸收中的基本过程分离图，展示氢原子处于叠加态 $2p+3p$ 时随 RSP φ 的变化。(a) 共振-连续态贡献，*c.f.* 图 1 (I)。(b) 共振 - 束缚态贡献，*c.f.* 图 1 (II)。(c) 和 (d) 分别为非共振 $-$ 和 $+$ 频率贡献，*c.f.* 图 1 (III)。(b) 中显示的是跃迁至束缚态（低于电离阈值），而 (a)、(c)、(d) 中显示的是跃迁至连续态（高于电离阈值）。为便于观察，(b) 中的 $R_{b-}^{jj'}$ 贡献放大了 10 倍。

非共振项呈现吸收与发射的棋盘格图样。存在两个非共振贡献，分别来自 $-$ 和 $+$ 分量中的$O_{c\pm}^{jj'}$ 和 $O_{b\pm}^{jj'}$，如图 4(c) 和图 4(d) 所示。与共振情形不同，吸收/发射特征关于相位变换呈反对称：$\varphi \to -\varphi$。此外，两个非共振贡献（$\pm$）具有相反的性质。因此，非共振贡献的相对大小将决定吸收最大时相位的斜率。在 $2p+3p$ 情形下，具有 $+$ 的非共振贡献占主导，这意味着相位斜率为正，与图 3(b、e) 中的结果一致。我们发现，增大脉冲光子能量会使斜率变得更陡，这是因为非共振项的相对贡献增加了。在只有非共振贡献的极限下，中心频率处的斜率将变为无限陡，因为吸收最大时的相位会从 $\pm\pi/2 \to \mp\pi/2$发生变化。

4. *Role of angular momentum channels*

处于 $2p+3p$ 叠加态的氢原子，其吸收取决于角动量通道 s和 d，如图 1 所示。图 5 (a) 和 (b) 分别展示了 s 通道和 d 通道中两个分波对吸收与发射的独立贡献。与 $2s+3s$ 情况类似，$2p$+$3p$ 的 d 通道贡献在吸收最大时具有负斜率。相反，s 通道贡献具有正斜率，并有明显的发射区域，类似于图 4 (d) 中非共振的 $+$ 贡献。显然，对于 $2p+3p$ 情况，s通道主导总吸收与发射。

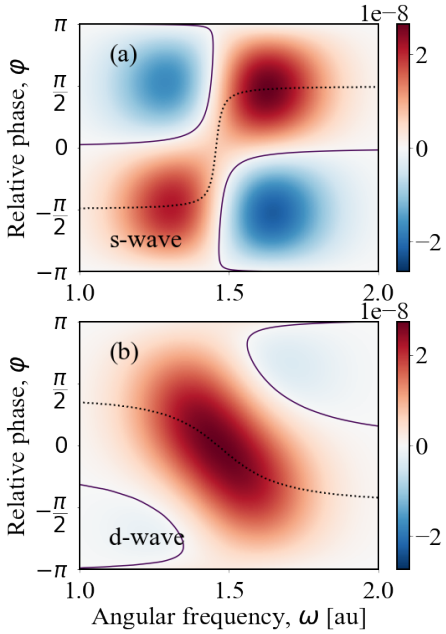


图 5. 氢原子处于制备的叠加态 2p+3p 时的能量分辨吸收：受阿秒脉冲作用，其中间角动量在 (a) 和 (b) 中分别限制为 s 波和 $d-$ 波。

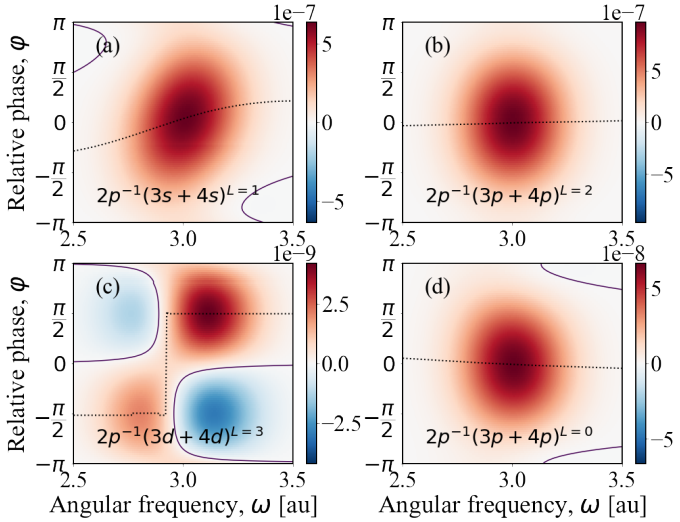


图6. 氖原子受到阿秒脉冲作用时，在叠加态 (a) $2p^{-1}(3s+4s)^{L=1}$、(b) $2p^{-1}\ 3p+4p\ ^{L=2}$ $2p^{-1}\ 3d+4d\ ^{L=3}$ $2p^{-1}\ 3p+4p\ ^{L=0}$ 和 (c) ( ) 和 (d) ( ) 下的能量分辨吸收，并给出了 RSP 的估算尺度。黑色虚线表示最大吸收相位（在离散的模拟值之间进行了插值），可利用 *rule of slope* （见正文）进行解释。

斜率规则：我们发现，当处于叠加态的原子可以跃迁到能量较低的中间态时，非共振+ 贡献会超过 − 贡献。例如，$2p+3p$情况会向 $1s$ 态发生非共振跃迁，这意味着 + 贡献将占主导，且斜率为正。如果不存在能量较低的偶极允许中间态，则非共振 − 贡献将占主导，且斜率为负。我们已验证，斜率规则适用于角动量相同的两个态的一般叠加态（$\ell=\ell'$）。角动量更高的叠加态，例如 $3d+4d$ 情况，与$2p+3p$ 情况相比，非共振 + 贡献的主导性较弱。原因在于，如果存在能量较低的偶极允许虚态，且到该态的跃迁矩阵元较大，那么非共振 +贡献就会更加占主导。因此，如果能量差较小或跃迁较弱，那么非共振 + 贡献的主导性就会减弱。

尽管本小节展示的结果是针对氢原子计算的，但我们已验证，对于氦原子的双态叠加：$1s^{-1}(2s+3s)$ 和 $1s^{-1}(2p+3p)$，使用 TDCIS 理论 [35]也会呈现相同行为。下一节中，我们将研究更复杂的氖原子，它的最外层 $2p$ 壳层有 6 个电子。

B. 氖原子

只要双激发态对于所研究的物理过程并非必不可少，就可以用 TDCIS 理论 [35]，近似描述氖原子中的动力学。众所周知，要定量描述稀有气体原子的单光子电离截面，精确描述包含双电子关联的基态至关重要； [36, 37]，不过，TDCIS 理论能够对氖原子提供合理的近似。通过在 CIS 能级下对包含库仑相互作用的无场问题进行对角化，可以求得里德伯态的本征态：$2p^{-1}n\ell^L$，其中 L为总角动量。总磁量子数为零，$M=0$。采用 TDCIS 的 gerade假设 [38]，可为受线偏振光激发的原子提供对称性适配基组，其形式为：$|\Phi^{p,\ a}{}_{m=0}^{m=0}|$ 和 $\frac{1}{\sqrt{2}}(|\Phi^{p,\ a}{}_{m=1}^{m=1}| + |\Phi^{p,\ a}{}_{m=-1}^{m=-1}|)$，其中 m 表示空穴的磁量子数（其值与粒子的磁量子数相同 $m=m_a=m_p$）。这里，我们在氖原子中构造对角化态的双态叠加：$2p^{-1}(n\ell^L+n'\ell'^{L'})$。表 I 列出了氖原子模拟所用的态及其对应的量子数、对称性和能量。这里，$|m^{\max}|$是磁量子数最可能的绝对值（括号内为概率）。我们用其他计算方法验证了这些能量，并将其与 NIST 数值进行了比较；由于 CIS 方法忽略了电子关联，两者存在差异。

表 I. 在 CIS 理论水平下计算得到的氖原子系列 $2s^22p^5n'\ell'$ 的单激发态能级。

组态	L	$\ell_a^{\max}$	$\ell_p^{\max}$	$\lvert m_a^{\max},\ _p\rvert$	对称性	能级（eV）
$2s^22p^6$	0	-	-	-	g	0.0000
$2s^22p^53s$	1	1	0	0(100%)	u	18.3625
$2s^22p^53p$	2	1	1	0 (67%)	g	20.1184
$2s^22p^53p$	0	1	1	1 (67%)	g	20.6010
$2s^22p^54s$	1	1	0	0 (100%)	u	21.2768
$2s^22p^53d$	1	1	2	1（60%）	u	21.6172
$2s^22p^53d$	3	1	2	0（60%）	u	21.6181
$2s^22p^54p$	2	1	1	0（67%）	g	21.7613
$2s^22p^54p$	0	1	1	1（67%）	g	21.9236
$2s^22p^55s$	1	1	0	0（100%）	u	22.1503
$2s^22p^54d$	3	1	2	0（60%）	u	22.2850
$2s^22p^54d$	1	1	2	1（60%）	u	22.2862

利用式（21），我们采用 TDCIS 方法，以 $2s$和 $2p$作为活性轨道，计算氖原子的吸收和发射，如图6所示。我们研究了以下制备的叠加态：(a) $2p^{-1}(3s+4s)^{L=1}$，(b) $2p^{-1}\ 3p+4p\ ^{L=2}$ $2p^{-1}\ 3d+4d\ ^{L=3}$ $2p^{-1}\ 3p+4p\ ^{L=0}$，(c) ( ) 和 (d) ( )。我们使用中心频率为 $\omega_0=3$ au 的脉冲，以排除向束缚态的共振跃迁；其他脉冲参数与 IV A 节相同。由于我们的

方法无法为两个初始态指定确定的相位，因此我们调整相位，使吸收以零相位为中心。我们清楚地发现，斜率规则能够描述氖系统的行为，表明微扰模型适用于复杂度更高的系统。对于图6(a,c)，我们看到非共振 + 贡献明显占主导，这是由于向 $2p$ 态的非共振跃迁。对于图6(c)所示的 $2p^{-1}(3d+4d)^{L=3}$ 叠加态，这种贡献尤其占主导，因为 nd态与 $2p$ 态之间的跃迁很强，这归因于波函数的大幅重叠。然而，对于图6(b,d)中的 $2p^{-1}(3p+4p)$ 叠加态，非共振 + 贡献的主导性较弱，这与斜率规则一致，因为向 $2p$ 空穴的跃迁是禁戒的。图6(d)中的叠加态 $2p^{-1}(3p+4p)^{L=0}$ 主要由（67%） $m=1$ 轨道构成，见表 I。由于 m 量子数守恒，我们因此抑制了向 s 角动量通道的跃迁，进一步减少了能量低于所制备叠加态的偶极允许虚态数量（阻止向$3s$的跃迁）。因此，非共振 – 贡献占主导，这与斜率规则一致。通过与仅有 $2p$轨道处于活性状态时的结果进行比较，我们确定了$2s$ 到 $2p$ 跃迁的影响，发现其影响较小。

例如其量子相位和角动量，会决定复杂的吸收过程。在能量域中可观察到宽广的发射特征，并识别出与之对应的时间域发射。我们对吸收过程进行了区分，并证明共振贡献关于叠加态的相位呈对称，而非共振贡献则呈反对称。具体而言，非共振贡献取决于偶极允许的虚态；我们提出了一条斜率规则，用于解释使阿秒脉冲的能量分辨吸收达到最大值的相位。我们通过针对氢原子的含时薛定谔方程数值模拟验证了该模型。我们还对氦原子和氖原子进行了模拟，结果表明该模型适用于更复杂的原子。该模型很容易扩展，用于研究原子束缚态之间的弱光吸收；但其优势在于能够恰当处理连续态。这有望有助于研究电离阈值以下或跨越电离阈值的动力学过程，无论是在时间域还是能量域。进一步应用该模型研究激光着装原子的极紫外吸收，是这项工作的自然延续。

V. 结论

在这项工作中，我们利用 Yang 能量算符提出了阿秒瞬态吸收光谱（ATAS）的一种普适、规范不变的表述 [22]。这使我们能够在光与物质相互作用的半经典描述下，明确模拟吸收过程。具体而言，我们研究了氢原子处于叠加态、并受到极紫外波段弱阿秒脉冲作用的情形，该脉冲直接耦合至连续态。我们基于微扰理论构建了一个模型，能够在时间域和能量域模拟原子的能量增益。研究发现，叠加态的性质

VI. 致谢

JMD 感谢瑞典研究理事会（项目编号：2018-03845）、奥勒·恩奎斯特基金会（项目编号：194-0734）以及克努特和爱丽丝·瓦伦堡基金会（项目编号：2017.0104 和 2019.0154）的支持。

附录 A：矩阵元

束缚态-连续态和束缚态-束缚态的动量算符 $\hat{p}_z = -i\frac{d}{dz}$ 矩阵元计算如下

$$
\begin{aligned}
\langle f|\hat{p}_z|j\rangle &= -i\langle \ell' m'|\langle R'_{\ell'}|\frac{d}{dz}|\ell m\rangle|R_\ell\rangle \\
&= -i\delta_{\ell+1\ell'}\delta_{mm'}\sqrt{\frac{(\ell+m+1)(\ell-m+1)}{(2\ell+3)(2\ell+1)}}\int_0^\infty r^2 R'_{\ell+1}(r)\frac{dR_\ell(r)}{dr} - \ell r R'_{\ell+1}(r)R_\ell(r)dr \\
&\quad -i\delta_{\ell-1\ell'}\delta_{mm'}\sqrt{\frac{(\ell+m)(\ell-m)}{(2\ell+1)(2\ell-1)}}\int_0^\infty r^2 R'_{\ell-1}(r)\frac{dR_\ell(r)}{dr} + (\ell+1)rR'_{\ell-1}(r)R_\ell(r)dr,
\end{aligned}
\tag{A1}
$$

其中使用了参考文献 [33] 的式（A.37）给出的球谐函数与一般 r 依赖函数 $f(r)$ 乘积的 z 导数关系。$|lm$ 是球谐函数，而 $|R_l$ 是氢的束缚态径向波函数由式 (3.17) 描述；连续态则由能量归一化库仑波描述，见文献 [33] 中的式 (4.23)。

附录B：在网格上进行分辨

利用式 (21) 计算的能量域吸收，其中动量由式 (30) 给出，可写成如下形式

$$\frac{d\Delta\mathcal{E}}{d\omega} = C + K\delta(\omega \pm \epsilon_{nj'}) + Q/(\omega \pm \epsilon_{nj'}), \tag{B1}$$

其中连续态包含在 C 中，我们将其在 ω 上的小区间内视为常数。束缚态贡献由 K 表示，对应共振而 Q 表示非共振贡献，发散部分则显式给出。为处理发散项，我们将数值网格上的吸收表示为

$$\begin{aligned}\frac{\Delta\Delta\mathcal{E}}{\Delta\omega} =& \frac{1}{\Delta\omega}\int_{\omega}^{\omega+\Delta\omega} d\omega \frac{d\Delta\mathcal{E}}{d\omega} \\ =& C + \frac{K}{\Delta\omega}\delta_{n,(n_{j'}^{-2}\pm 2\omega)^{-\frac{1}{2}}} \\ &+ \frac{Q}{\Delta\omega}\int_{\omega}^{\omega+\Delta\omega} d\omega' \frac{\mathrm{p.v.}}{\omega' \pm \epsilon_{nj'}},\end{aligned} \tag{B2}$$

其中，$\Delta\omega$ 表示网格的分辨率，我们将积分中的奇点按柯西主值处理。

[1] P. Antoine、A. L'Huillier 和 M. Lewenstein，《利用高次谐波产生阿秒脉冲列》，《物理评论快报》**77**，1234（1996年）。[2] P. B. Corkum 和 F. Krausz，《阿秒科学》，《自然·物理》**3**，381（2007年）。[3] E. Goulielmakis、Z.-H. Loh、A. Wirth、R. Santra、N. Rohringer、V. S. Yakovlev、S. Zherebtsov、T. Pfeifer、A. M. Azzeer、M. F. Kling、S. R. Leone 和 F. Krausz，《价电子运动的实时观测》，《自然》**466**，739（2010年）。[4] A. Wirth、M. T. Hassan、I. Grgura˘s、J. Gagnon、A. Moulet、T. T. Luu、S. Pabst、R. Santra、Z. A. Alahmed、A. M. Azzeer、V. S. Yakovlev、V. Pervak、F. Krausz 和 E. Goulielmakis，《合成光瞬态》，《科学》**334**，195（2011年）。[5] M. Sabbar、H. Timmers、Y.-J. Chen、A. K. Pymer、Z.- H. Loh、S. Sayres、S. Pabst、R. Santra 和 S. R. Leone，《强光场中的态分辨阿秒可逆与不可逆动力学》，《自然·物理》**13**，472（2017年）。[6] H. Wang、M. Chini、S. Chen、C.-H. Zhang、F. He、Y. Cheng、Y. Wu、U. Thumm 和 Z. Chang，《氩的阿秒时间分辨自电离》，《物理评论快报》**105**，143002（2010年）。[7] C. Ott、A. Kaldun、P. Raith、K. Meyer、M. Laux、J. Ev- ers、C. H. Keitel、C. H. Greene 和 T. Pfeifer，《洛伦兹与法诺谱线形状相遇：普适相位及其激光控制》，《科学》**340**，716（2013年）。[8] C. Ott、A. Kaldun、L. Argenti、P. Raith、K. Meyer、M. Laux、Y. Zhang、A. Bl¨attermann、S. Hagstotz、T. Ding、R. Heck、J. Madro˜nero、F. Mart´ın 和 T. Pfeifer，《重构并控制含时双电子波包》，《自然》**516**，374（2014年）。[9] W.-C. Chu 和 C. D. Lin，《时间延迟控制场作用下自电离气态介质中单个阿秒光脉冲的吸收与发射》，《物理评论A》**87**，013415（2013年）。[10] C. L. M. Petersson、L. Argenti 和 F. Mart´ın，《电离阈值以上氦的阿秒瞬态吸收光谱学》，《物理评论A》**96**，013403（2017年）。[11] A. Chew、N. Douguet、C. Cariker、J. Li、E. Lindroth、X. Ren、Y. Yin、L. Argenti、W. T. Hill 和 Z. Chang，

氩在$L_{2,3}$ 边缘的阿秒瞬态吸收光谱，《物理评论A》**97**，031407（2018年）。[12] P. Birk、V. Stooß、M. Hartmann、G. D. Borisova、A. Bl¨attermann、T. Heldt、K. Bartschat、C. Ott 和 T. Pfeifer，连续态阈值的阿秒瞬态吸收，《物理学杂志B：原子、分子与光学物理》**53**，124002（2020年）。[13] M. Hartmann、V. Stooß、P. Birk、G. Borisova、C. Ott 和 T. Pfeifer，利用瞬态吸收光谱学进行阿秒精度的延迟测量，《光学快报》**44**，4749（2019年）。[14] V. Leshchenko、S. J. Hageman、C. Cariker、G. Smith、A. Camper、B. K. Talbert、P. Agostini、L. Argenti 和 L. F. DiMauro，阿秒瞬态吸收光谱学中的克拉默斯–克罗尼希关系，《Optica》**10**，142（2023年）。[15] X. Shi、Y. Wu、J. G. Wang、V. Kimberg 和 S. B. Zhang，连续波红外场中利用超短X射线激光脉冲进行X射线瞬态吸收光谱学，《物理评论A》**101**，023401（2020年）。[16] P. Rupprecht、L. Aufleger、S. Heinze、A. Magunia、T. Ding、M. Rebholz、S. Amberg、N. Mollov、F. Henrich、M. W. Haverkort、C. Ott 和 T. Pfeifer，分子内电子交换相互作用的激光控制，《物理评论快报》**128**，153001（2022年）。[17] M. Schultze、K. Ramasesha、C. Pemmaraju、S. Sato、D. Whitmore、A. Gandman、J. S. Prell、L. J. Borja、D. Prendergast、K. Yabana、D. M. Neumark 和 S. R. Leone，硅中的阿秒带隙动力学，《科学》**346**，1348（2014年）。[18] M. Z¨urch、H.-T. Chang、L. J. Borja、P. M. Kraus、S. K. Cushing、A. Gandman、C. J. Kaplan、M. H. Oh、J. S. Prell、D. Prendergast、C. D. Pemmaraju、D. M. Neu-mark 和 S. R. Leone，锗中超快电子与空穴动力学的直接同步观测，《自然通讯》**8**，15734（2017年）。[19] A. R. Beck、D. M. Neumark 和 S. R. Leone，利用阿秒瞬态吸收探测超快动力学，《化学物理快报》**624**，119（2015年）。[20] R. Geneaux、H. J. B. Marroux、A. Guggenmos、D. M. Neumark 和 S. R. Leone，利用高次谐波产生进行瞬态吸收光谱学：分子与固体中超快X射线动力学综述，《皇家学会哲学汇刊A辑》**377**，20170463（2019年）。[21] M. Wu、S. Chen、S. Camp、K. J. Schafer 和 M. B.

Gaarde，强场阿秒瞬态吸收理论，《物理学杂志B：原子、分子与光学物理》**49**，062003（2016年）。[22] K.-H. Yang，规范变换与量子力学 I。量子力学的规范不变解释，《物理学年鉴》**101**，62（1976年）。[23] J. M. Dahlstr¨om、S. Pabst 和 E. Lindroth，与平滑连续态耦合的束缚波包的阿秒瞬态吸收，《光学杂志》**19**，114004（2017年）。[24] F. Zapata、J. Vinbladh、E. Lindroth 和 J. M. Dahlstr¨om，在偶极近似下相对论瞬态吸收理论的实现与验证，《电子结构》**3**，014002（2021年）。[25] J. J. Rørstad、J. E. Bækhøj 和 L. B. Madsen，阿秒瞬态吸收光谱中结构的解析建模，《物理评论A》**96**，013430（2017年）。[26] L. Fechner、N. Camus、J. Ullrich、T. Pfeifer 和 R. Moshammer，电子态的相干叠加产生的强场隧穿，《物理评论快报》**112**，213001（2014年）。[27] S. Pabst 和 J. M. Dahlstr¨om，利用里德伯波包消除阿秒脉冲表征中的偶极相位，《物理评论A》**94**，013411（2016年）。[28] D. B. Milo˘sevi´c、B. Feti´c 和 P. Ranitovic，态的相干叠加产生的高阶阈上电离，《物理评论A》**106**，013109（2022年）。[29] K. Kl¨under、P. Johnsson、M. Swoboda、A. L'Huillier、G. Sansone、M. Nisoli、M. J. J. Vrakking、K. J. Schafer 和 J. Mauritsson，利用量子态全息术重构阿秒电子波包，《物理评论A》**88**，033404（2013年）。

[30] J. J. Sakurai 和 J. Napolitano，*Modern Quantum Mechanics*：2 2017 ，第 nd 版（剑桥大学出版社，）。[31] D. H. Kobe 和 A. L. Smirl，《电磁辐射与物质相互作用的规范不变表述》，《美国物理学杂志》**46**，624（1978）。[32] J. M. Dahlstr¨om、S. Pabst 和 E. Lindroth，《通过相干激发原子的延迟吸收进行脉冲分析》，《APL光子学》**4**，011101（2019）。[33] H. A. Bethe 和 E. E. Salpeter，*Quantum Mechanics of One- and Two-Electron Atoms*（Springer Science & Business Media，2013）。[34] U. Fano，《组态相互作用对强度和相移的影响》，《物理评论》**124**，1866（1961）。[35] L. Greenman、P. J. Ho、S. Pabst、E. Kamarchik、D. A. Mazziotti 和 R. Santra，《用于原子强场过程的含时组态相互作用单激发方法的实现》，《物理评论A》**82**，023406（2010）。[36] M. Y. Amusia，*Atomic Photoeffect*（Springer US，美国马萨诸塞州波士顿，1990）。[37] A. F. Starace，《原子光电离理论》，载于*Encyclopedia of Physics / Handbuch der Physik*，第 / 卷，S. Flugge 和 W. Mehlhorn 编（Springer Berlin Heidelberg，德国柏林海德堡，1982）。[38] S. Pabst、L. Greenman、D. A. Mazziotti 和 R. Santra，《多通道效应和多极效应对氩高次谐波谱中库珀极小值的影响》，《物理评论A》**85**，023411（2012）。