涉及一阶和二阶过程的自由电子与光的量子相互作用

Hongteng Lin、Xiaotong Xiong、Junjie Liu、Yidong Huang 和 Fang Liu *

电子工程系，清华大学，中国北京　电子邮箱：*liu_fang@tsinghua.edu.cn*

摘要

光子诱导近场电子显微术（PINEM）效应揭示了自由电子与光学近场之间的量子相互作用，展示了操控自由电子波包以及探测和塑造量子光子态的大量新颖现象。然而，自由电子通常一次只能吸收或发射一个光子，而自由电子-双光子相互作用的物理机制和现象尚未得到研究。此外，PINEM与Kapitza-Dirac（KD）效应以及非线性康普顿散射之间的关系仍不清楚。在此，我们建立了考虑双光子过程的电子-光子相互作用全量子理论。研究表明，通过调控光学近场的电场分量，可以显著增强电子对两个光子的发射或吸收；在某些情况下，单光子过程与双光子过程之间还会发生量子干涉，从而影响光子数态、电子能态以及电子-光子纠缠。同时，我们发现KD效应（弹性电子-光子散射）和非线性康普顿散射（非弹性电子-光子散射）同样属于双光子过程，并且可以基于全量子理论解析地推导出电子的分布。我们的工作揭示了自由电子与两个光子相互作用时可能出现的丰富现象，为未来深入研究电子-光子量子相互作用中的非线性过程铺平了道路。

I. 引言

自由电子与光的相互作用对于探索自由电子的基本物理性质至关重要，并带来了诸多应用。近年来，光子诱导近场电子显微术（PINEM）[1-3] 受到研究，人们运用量子力学形式体系研究自由电子与光之间的相互作用[4-8]并因此发现了大量新颖现象，例如光学近场

结合飞秒时间分辨率与纳米空间分辨率的成像[9-13], 自由电子波函数的整形[14-17], 自由电子发射特性的调制以及各种量子光的产生[18-22], 等等。

现有的量子 PINEM（Q-PINEM）理论 [6-8] 仅考虑单光子过程，即自由电子与光之间一次只发生单光子能量交换。这种理论模型仅适用于分析单光子过程，无法用于研究以下物理过程及潜在应用。(i) 一次只能发射单个光子 [23-24] 这限制了利用自由电子生成各种量子光和纠缠光子对的应用。(ii) 电子能量损失谱（EELS）只能导出光学近场的纵向分量，而无法获得完整的矢量场 [6-13]。(iii) 此外，自由电子也无法直接探测光场的相位 [4-5,8]。(iv) 利用光场操控自由电子波包时，光场的自由度无法 得到充分利用 [25-27]。我们如何才能在理论上突破 PINEM 的上述局限，并建立 PINEM 中双光子过程的解析模型?

除了 PINEM 效应之外，Kapitza-Dirac（KD）效应 [28-30] 和非线性康普顿散射 [31-32] 也是自由电子与光波相互作用的现象，分别被视为光场有质动力势对电子的弹性散射和非弹性散射（即电子受到光子对的散射）。尽管现有理论可用于分析电子的散射特性 [30, 33], ，但目前仍缺乏对 KD 效应的完整量子电动力学（QED）处理，也缺乏对非线性康普顿散射的解析研究，因此无法获知相互作用后光子和电子的量子特征。此外，自然会引出这样一个问题：PINEM、KD 效应和非线性康普顿散射之间存在怎样的内在联系?

本研究通过采用散射矩阵方法建立相应的全量子理论，系统地研究了自由电子-双光子相互作用。我们从相互作用哈密顿量出发，在不忽略二阶项的前提下，严格推导出散射算符的普适表达式。研究发现，单光子和双光子的发射/吸收、KD效应以及非线性康普顿散射均可统一纳入所推导的散射算符中。根据我们的解析理论，使用准BIC超表面时，电子-双光子相互作用可增强八个数量级。随后，我们分析了纠缠

特征，并发现了单光子过程与双光子过程之间的量子干涉。最后，利用推导出的散射算符，通过分别推导电子横向动量概率和电子能量概率分布的解析表达式，对KD效应和非线性康普顿散射作出了充分解释。本研究拓展了Q-PINEM理论，使其能够涵盖自由电子与光之间的非线性相互作用，并为拓展PINEM的潜在应用提供了途径，例如调控电子-光子纠缠、探测光场的完整矢量以及利用自由电子生成所需的量子光。

II. 理论描述

考虑双光子过程的自由电子-光相互作用散射算符

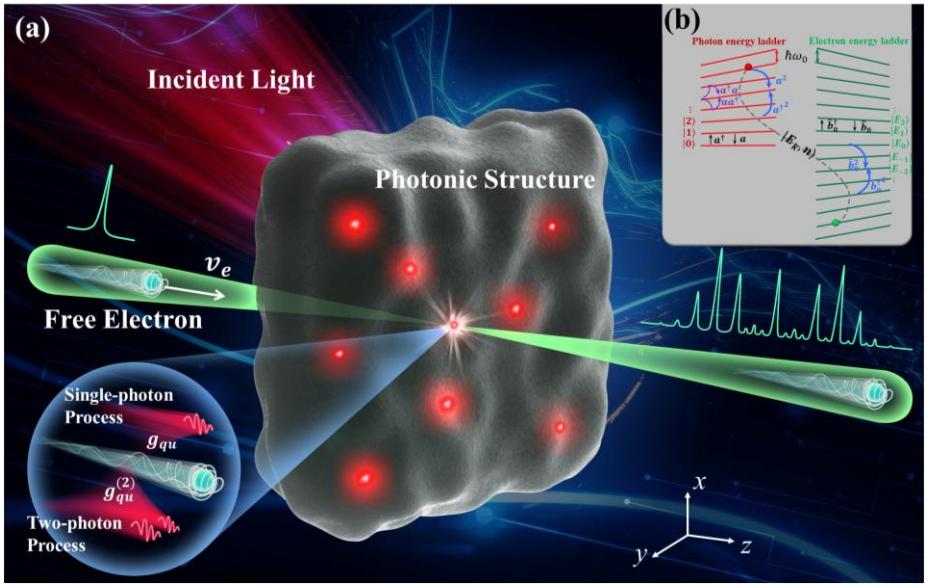


图1. 考虑双光子过程时自由电子与光相互作用的一般示意图。(a)一束窄能量电子束沿着 z 轴穿过某种光子结构，自由电子与光之间发生量子相互作用，参数 g_{qu} 和 $g_{qu}^{(2)}$ 分别为一阶和二阶量子耦合常数，用于衡量自由电子与光相互作用中单光子过程和双光子过程的强度。**(b)**插图展示了电子-光相互作用中的电子能级梯和光子能级梯。电子态由无限能级梯描述，其阶梯间距为光量子能量 $\hbar\omega_0$；光子态则由半无限能级梯描述，其阶梯间距与电子能级梯相同。图中描绘了考虑双光子过程时电子-光相互作用的三种情形，包括电子发射/吸收一个光子、电子一次发射/吸收两个光子，以及电子同时发射（吸收）一个光子并吸收（发射）一个光子。

如图1(a)所示，一束聚焦的电子束飞过某种光子结构时，

沿 z 轴传播，并在与光学近场模式或自由空间模式相互作用时，同时发射或吸收一个光子和/或两个光子。两个光子的频率可以相同，也可以不同；为简明清晰起见，图1展示的是频率相同的情况。光子结构可以是光波导、光学腔、超表面，甚至自由空间。通过设计光学近场或自由空间模式，可以调控自由电子对两个光子的发射和吸收。

与仅考虑单光子过程的量子 PINEM 理论类似[2-3, 21]，本文也采用以下近似：(1) 入射的单色自由电子束是近轴的，其波矢 $\boldsymbol{k}$ 紧密分布在中心波矢 $\boldsymbol{k_0}$ 周围；(2) 电子与光场有效相互作用后，其波矢 $\boldsymbol{k}$ 满足 $|\boldsymbol{k}-\boldsymbol{k_0}| \ll k_0$，这也称为无反冲近似；(3) 电子飞过的区域不带电，因此可以采用库仑规范 $\varphi(\boldsymbol{r})=0$。考虑自由电子与光子结构中频率为 ω_0 的一个模式相互作用，量子态可分别描述为自由电子的无限能级梯和光子的半无限能级梯，如图1(b)所示。两个能级梯的能量间隔均为 $\hbar\omega_0$，其中 $\hbar$ 为约化普朗克常数。因此，光子结构中的光子数态可写为 $|n$，其中 n 为福克态指标；电子态则表示为 $|E_k$，其中 $E_k = E_0 + k\hbar\omega_0$，$E_0$为入射自由电子的初始能量。当 $k>0$ 时，电子吸收 k 个光子并获得能量；当 $k<0$ 时，电子发射 k 个光子并损失能量。因此，相互作用后电子-光子系统的联合量子态表示为

$$|\psi_f\rangle = \sum_{n=0}^{\infty}\sum_{k=-\infty}^{\infty} c_{nk}\,|E_k, n\rangle \tag{1}$$

其中，当光子数态为 $|n$且电子能态为 $|E_k$时，c_{nk} 是相应的系数。

为考虑更全面的情形，这里假设自由电子同时与两个不同的光子模式相互作用，其频率分别为 ω_1和 ω_2。考虑双光子过程，最小耦合下的相互作用哈密顿量可写为

$$\hat{H}_I(\boldsymbol{r}) = \sum_{i,j=1,2}\left\{e\boldsymbol{v_e}\cdot\hat{\boldsymbol{A}}_i(\boldsymbol{r}) + \frac{e^2}{2m_e\gamma}\left[\hat{A}_{ix}(\boldsymbol{r})\hat{A}_{jx}(\boldsymbol{r}) + \hat{A}_{iy}(\boldsymbol{r})\hat{A}_{jy}(\boldsymbol{r}) + \frac{1}{\gamma^2}\hat{A}_{iz}(\boldsymbol{r})\hat{A}_{jz}(\boldsymbol{r})\right]\right\}$$

(2)

其中，$\boldsymbol{v_e} = v_e\boldsymbol{e}_z$（$\boldsymbol{e}_z$ 是沿 z 方向的单位向量），m_e 和 e 分别是自由电子速度、电子静止质量和电子的基本电荷，洛伦兹因子为 $\gamma = 1/\sqrt{1 - v_e{}^2/c^2}$。这里引入电磁矢势 $\boldsymbol{A}(\boldsymbol{r})$ 和标量势 $\varphi(\boldsymbol{r})$ 来描述光场。在先前的量子 PINEM 理论中，考虑到自由电子在同一时刻只吸收/发射一个光子，高阶哈密顿量项（例如式 (2) 中的 A^2 项）被忽略了 [6-7]。尽管有研究考虑了有质动力项，以实现自由电子引起的光学腔模压缩 [34]，，但双光子过程及相关现象尚未得到研究。这里，系统的哈密顿量中应保留 A^2 项，并考虑包括不同频率情形在内的双模情形。需要注意的是，当指标 $i = j$ 时，式 (2) 中的相互作用哈密顿量 $\hat{H}_I$ 可退化为单模情形，也就是说，两个光子的频率相同。

电子和电磁场的自由哈密顿量分别为 $-\mathrm{i}\hbar v_e\nabla$ and $\sum \hbar_i \ \omega_i\hat{a}_i^\dagger\hat{a}_i$。在宏观量子电动力学（MQED）[35-36], 中对光场进行量子化后，光子模式 i 的矢量势 $\hat{\boldsymbol{A}}$ 可写为

$$\hat{\boldsymbol{A}}_i(\boldsymbol{r}) = \sqrt{\frac{\hbar}{2\varepsilon_0\omega_i}}\left[\boldsymbol{F}_i(\boldsymbol{r})\hat{a}_i + \boldsymbol{F}_i^*(\boldsymbol{r})\hat{a}_i^\dagger\right] \tag{3}$$

其中 $\hat{a}_i$ 和 $\hat{a}_i^\dagger$ 分别是本征频率为 ω_i 的本征模的光子湮灭算符和产生算符，满足对易关系$\left[\hat{a}_i, \hat{a}_i^\dagger\right] = 1$，且 $\boldsymbol{F}_i(\boldsymbol{r})$ 是 频率为 ω_i 的光子模式的归一化模式分布。将式 (3) 代入式 (2)，可得到相互作用绘景中的相互作用哈密顿量 $\hat{V}_I(t) = \hat{V}_1(t) + \hat{V}_2(t)$，其中

$$\hat{V}_1(t) = \sum_{i=1,2}\left[W_i(z + v_e t)\hat{a}_i\mathrm{e}^{-\mathrm{i}\omega_i t} + W_i^*(z + v_e t)\hat{a}_i^\dagger\mathrm{e}^{\mathrm{i}\omega_i t}\right],$$

$$\hat{V}_2(t) = \sum_{i,j=1,2}\frac{e^2}{2m_e\gamma}\frac{\hbar}{2\varepsilon_0\sqrt{\omega_i\omega_j}}\Big[\boldsymbol{F}_i'(z + v_e t)\boldsymbol{F}_j'(z + v_e t)\hat{a}_i\hat{a}_j\mathrm{e}^{-\mathrm{i}(\omega_i+\omega_j)t} +$$

$$\boldsymbol{F}_i'^*(z + v_e t)\boldsymbol{F}_j'^*(z + v_e t)\hat{a}_i^\dagger\hat{a}_j^\dagger\mathrm{e}^{\mathrm{i}(\omega_i+\omega_j)t} + \boldsymbol{F}_i'(z + v_e t)\boldsymbol{F}_j'^*(z + v_e t)\hat{a}_i\hat{a}_j^\dagger\mathrm{e}^{-\mathrm{i}(\omega_i-\omega_j)t}$$

$$+\boldsymbol{F}_i'^*(z + v_e t)\boldsymbol{F}_j'(z + v_e t)\hat{a}_i^\dagger\hat{a}_j\mathrm{e}^{\mathrm{i}(\omega_i-\omega_j)t}\Big]. \tag{4}$$

这里 $\boldsymbol{F}_i'(\boldsymbol{r}) = F_{ix}(\boldsymbol{r})\boldsymbol{e}_x + F_{iy}(\boldsymbol{r})\boldsymbol{e}_y + F_{iz}(\boldsymbol{r})\boldsymbol{e}_z/\gamma$。更详细的代数推导可参见补充材料 S1 节。在相互作用绘景中，

散射算符可写为 [37-38]

$$\hat{S}(-\infty,\infty) = T\exp\left[-\frac{\mathrm{i}}{\hbar}\int_{-\infty}^{\infty} dt\hat{V}_I(t)\right] \tag{5}$$

其中 T 表示时间排序。根据散射矩阵描述 [4,8], ， 系统联合量子态的初态 $|\psi_i$ 与末态 $|\psi_f$ 之间的关系通过散射算符 $\hat{S}$ 表示为 $|\psi_f = \hat{S}|\psi_i$。

方程 (5) 可用马格努斯展开表示为 $\hat{S}(-\infty, \infty) = \exp(\sum_{k=0}^{\infty}\tilde{S}_k)$，其第一项可表示为

$$\tilde{S}_1 = \sum_{i,j=1,2}\Big[g_{qu,i}\hat{b}_i\hat{a}_i^\dagger - g_{qu,i}^*\hat{b}_i^\dagger\hat{a}_i + g_{qu,ij}^{(2)}\hat{b}_i^\dagger\hat{b}_j^\dagger\hat{a}_i\hat{a}_j - g_{qu,ij}^{(2)\,*}\hat{b}_i\hat{b}_j\hat{a}_i^\dagger\hat{a}_j^\dagger$$

$$-g_{p,ij}\hat{b}_i^\dagger\hat{b}_j\hat{a}_i\hat{a}_j^\dagger + g_{p,ij}^*\hat{b}_i\hat{b}_j^\dagger\hat{a}_i^\dagger\hat{a}_j\Big] \tag{6}$$

其中 $\hat{b}_i = \exp(-\mathrm{i}\omega_i z/v_e)$ 是电子湮灭算符，其阶梯间距为 $\hbar\omega_i$ ，而 $\hat{b}_i^\dagger$ 是其共轭算符，满足对易关系 $[\hat{b}_i, \hat{b}_i^\dagger] = 0$。在方程 (6) 中，$g_{qu,\,i}$ 与 PINEM [8, 21]中定义的相同：

$$g_{qu,i} = \frac{e}{\hbar\omega_i}\int_{-\infty}^{\infty} dz' E_{i,z}(z')\mathrm{e}^{-\mathrm{i}\frac{\omega_i}{v_e}z'} \tag{7}$$

本文将其称为一阶量子耦合常数。类似地，我们在此定义二阶量子耦合常数 $g_{qu,\,ij}^{(2)}$ 和 $g_{p,\,ij}$ ，用于表示自由电子与两个光子之间的相互作用强度，其表达式为

$$g_{qu,ij}^{(2)} = \frac{\mathrm{i}e^2}{\hbar\omega_i\omega_j\cdot 2m_e\gamma}\frac{1}{v_e}\int_{-\infty}^{\infty} dz'\boldsymbol{E}_i'(z')\boldsymbol{E}_j'(z')\,\mathrm{e}^{-\mathrm{i}\frac{\omega_i+\omega_j}{v_e}z'}, \tag{8}$$

$$g_{p,ij} = \frac{\mathrm{i}e^2}{\hbar\omega_i\omega_j\cdot 2m_e\gamma}\frac{1}{v_e}\int_{-\infty}^{\infty} dz'\,\boldsymbol{E}_i'(z')\boldsymbol{E}_j'^{*}(z')\mathrm{e}^{-\mathrm{i}\frac{\omega_i-\omega_j}{v_e}z'}, \tag{9}$$

其中 $\boldsymbol{E}_i'(\boldsymbol{r}) = E_{ix}(\boldsymbol{r})\boldsymbol{e}_x + E_{iy}(\boldsymbol{r})\boldsymbol{e}_y + E_{iz}(\boldsymbol{r})\boldsymbol{e}_z/\gamma$。$g_{qu,\,ij}^{(2)}$ 与发射或吸收两个光子有关，而 $g_{p,\,ij}$ 与同时吸收一个光子并发射一个光子有关。可以看出，$g_{qu,\,ij}^{(2)}$ 和 $g_{p,\,ij}$ 取决于不同方向上的电场分量以及自由电子速度。

为获得完整的散射算符，还应计算马格努斯展开的高阶项。相互作用绘景中的相互作用哈密顿量 $\hat{V}_I(t)$ 满足以下对易关系： $[\hat{V}_I(t), \hat{V}_I(t')] = [\hat{V}_1(t), \hat{V}_1(t')] +$

$[\hat{V}_1(t),\ \hat{V}_2(t')] + [\hat{V}_2(t), \hat{V}_1(t')] + [\hat{V}_2(t),\ \hat{V}_2(t')]$。为简洁起见，且不失一般性，对于强电子-光相互作用的情况，我们只考虑满足相位匹配条件的情形，即光场的相速度 v_p 等于 v_e。因此，可以得出 $[\hat{V}_I(t), \hat{V}_I(t')] = constant$，$\left[\hat{V}_I(t''), [\hat{V}_I(t), \hat{V}_I(t')]\right] = 0$，最终可得散射算符：

$$\hat{S} = \mathrm{e}^{\mathrm{i}\chi}\mathrm{e}^{\sum_{i,j=1,2}\left[g_{qu,i}\hat{b}_i\hat{a}_i^\dagger - g_{qu,i}^*\hat{b}_i^\dagger\hat{a}_i + g_{qu,ij}^{(2)}\hat{b}_i^\dagger\hat{b}_j^\dagger\hat{a}_i\hat{a}_j - g_{qu,ij}^{(2)^*}\hat{b}_i\hat{b}_j\hat{a}_i^\dagger\hat{a}_j^\dagger - g_{p,ij}\hat{b}_i^\dagger\hat{b}_j\hat{a}_i\hat{a}_j^\dagger + g_{p,ij}^*\hat{b}_i\hat{b}_j^\dagger\hat{a}_i^\dagger\hat{a}_j\right]} \tag{10}$$

散射算符 $\hat{S}$ 在公式(10)中适用于考虑双光子过程时的一般自由电子-光相互作用。对于频率为 ω_0 的单模情形，散射算符 $\hat{S}$ 可进一步化简为

$$\hat{S} = \mathrm{e}^{\mathrm{i}\chi}\mathrm{e}^{g_{qu}\hat{b}_0\hat{a}^\dagger - g_{qu}^*\hat{b}_0^\dagger\hat{a} + g_{qu}^{(2)}\hat{b}_0^{\dagger 2}\hat{a}^2 - g_{qu}^{(2)^*}\hat{b}_0^2\hat{a}^{\dagger 2} - g_p(\hat{a}\hat{a}^\dagger + \hat{a}^\dagger\hat{a})} \tag{11}$$

其中 χ 是文献 [39]，中讨论的全局相位，而$g_{qu} = g_{qu,0}$，$g_{qu}^{(2)} = g_{qu,}{}^{(2)}{}_{00}$，$g_p = g_{p00}$和$g_p = \mathrm{i}\left|g_{qu}^{(2)}\right|$ 满足相位匹配条件。更多推导细节见补充材料的 S1 节。公式 $\hat{S}$ 中的(11)可进一步拆分为四个指数算符的乘积：

$$\hat{S} = \mathrm{e}^{\mathrm{i}\chi}\mathrm{e}^{g_{qu}\hat{b}_0\hat{a}^\dagger - g_{qu}^*\hat{b}_0^\dagger\hat{a}}\mathrm{e}^{g_{qu}^{(2)\prime}\hat{b}_0^{\dagger 2}\hat{a}^2 - g_{qu}^{(2)\prime^*}\hat{b}_0^2\hat{a}^{\dagger 2}}\mathrm{e}^{-g_p'(\hat{a}\hat{a}^\dagger + \hat{a}^\dagger\hat{a})} \tag{12}$$

公式 $\hat{S}$ 中的散射算符(10) ~ 公式(12)不仅与先前报道的结果密切相关，还包含了自由电子-光相互作用的更多现象。

(1) 我们发现，公式 (12) 中的散射算符与文献 [34]，中的形式相似，这证明我们的普适结果可以退化为现有的理论结果。从公式 (12)还可以注意到，$\hat{S}$ 中的项 $\mathrm{e}^{g_{qu}\hat{b}_0\hat{a}_\dagger - g_{qu}^*\hat{b}_0{}^\dagger\hat{a}}$ 与文献 [6-7]，中的散射算符相同，它表示电子-光相互作用中的单光子过程。结果表明，一阶和二阶量子耦合常数 g_{qu} 和 $g_{qu}^{(2)}$ 彼此独立，其表现与非线性光学中的非线性极化率相同。

(2) The $g_{qu}^{(2)}$ 和 g_p 揭示了双光子过程的强度；对于先前报告中的光子模式 [8, 23-24，40-44], 根据第 III 部分第 1 节中的计算结果，其数值比 g_{qu} 小几个数量级。因此，方程(11)和方程(12)退化为仅考虑单光子过程的形式。此外，如何增强和操控 $g_{qu}^{(2)}$ 将在第 III 部分第 1 节中给出。

(3) 项 $\exp(g_{qu}^{(2)'}\hat{b}_0^{\dagger 2}\hat{a}^2 - g_{qu}^{(2)'*}\hat{b}_0^2\hat{a}^{\dagger 2})$ 在 $\hat{S}$ 中表示双光子发射和/或吸收过程。该项中的二阶量子耦合常数 $g_{qu}^{(2)}$ 被修正为 $g_{qu}^{(2)'}$。补充材料 S1 节中给出的 $g_{qu}^{(2)'}$ 与 $g_{qu}^{(2)}$ 之间的关系表明，当 $\left|g_{qu}^{(2)}\right|$ 较小时（例如 $\left|g_{qu}^{(2)}\right|$ <0.2），可以忽略 $\left|g_{qu}^{(2)'}\right|$ 与 $\left|g_{qu}^{(2)}\right|$ 之间的偏差。

(4) 在单模情形下，$\hat{S}$ 在式 (10)中将退化为式 (12)。式 中的项 $\exp[-g_p'(\hat{a}\hat{a}^\dagger + \hat{a}^\dagger\hat{a})]$ 在式 (12)中表示同时吸收一个光子并发射一个光子的过程，g_p' 的具体表达式也见补充材料 S1 节。虽然光子总数和电子能量均未改变，但联合态中引入了一个相位，电子态以及光子态的模式也可能发生变化。KD效应可由项 $\exp[-g_p'(\hat{a}\hat{a}^\dagger + \hat{a}^\dagger\hat{a})]$，很好地描述，电子横向动量的相应概率将在第 III 节第 4 部分推导并详细讨论。

(5) 除了KD效应中驻波对自由电子的弹性散射外，$[-g_{p,ij}\hat{b}_i^\dagger\hat{b}_j\hat{a}_i\hat{a}_j^\dagger + g_{p,ij}^*\hat{b}_i\hat{b}_j^\dagger\hat{a}_i^\dagger\hat{a}_j]$ 式 (10)中的项还可用于解释非线性康普顿散射，即行波场对自由电子的非弹性散射。在第 III 节第 5 部分，我们基于推导所得的 $\hat{S}$很好地拟合了非线性康普顿散射的实验结果，并预测了自由电子诱导的两个光子态之间的纠缠现象。

自由电子与光的联合密度矩阵

在本部分中，在获得特定情况下的 $\hat{S}$ 后，将推导自由电子与光子的联合密度矩阵，即 $\rho_{tot}^f = \hat{S}\rho_{tot}^i\hat{S}^\dagger$。

(1) 首先，通过将入射电子束能量假设为 E_0（初始电子态 $|E_0\rangle$），并假设系统中没有光子（真空态$|0\rangle$），考虑单模情形，因此初始联合密度矩阵为 $\rho_{tot}^i = |E_0\rangle\langle E_0|\otimes|0\rangle\langle 0|$。根据式 (12)给出的散射算符，末态的完整密度矩阵可写为 $\rho_{tot}^f = |\Psi_{e-p}\rangle\langle\Psi_{e-p}|$，其中电子-光子态表示为 $|\Psi_{e-p}\rangle = \sum_{p=0}^{\infty} C_p^0|E_0 - p\hbar\omega_0\rangle|p\rangle$。不考虑 $\hat{S}$的相位项时，系数 C_p^0为

$$C_p^0 = \frac{1}{\sqrt{\cosh 2\left|g_{qu}^{(2)'}\right|}} e^{\frac{|g_{qu}|^2}{2}} e^{ip\varphi_{g1}} \sum_{l=\max(0,p-2m)}^{\infty} \sum_{m=0}^{\infty} \frac{(-1)^{l+3m-p}\left|g_{qu}\right|^{2l+2m-p}}{(l+2m-p)!\,l!\,m!}$$

$$\times \frac{\mathrm{e}^{-\mathrm{i}m\Delta\varphi_g}\left(\frac{1}{2}\tanh 2\left|g_{qu}^{(2)\prime}\right|\right)^m (2m+l)!}{\sqrt{p!}} \tag{13}$$

其中 $\Delta\varphi_g = 2\varphi_{g1} + \varphi_{g2}$ 是单光子过程与双光子过程之间的相位，其中 $\varphi_{g2} = \arg(g_{qu}^{(2)\prime})$以及 $\varphi_{g1} = \arg(g_{qu})$（更多推导细节请参见补充材料 S2 节）。在式(13)中，出现了一个异常的相位项 $\mathrm{e}^{-\mathrm{i}m\Delta\varphi_g}$，并且显然会影响末态。相关现象将在第 III 节第 3 部分中讨论。

根据参考文献 [8]，，电子与光子相互作用后，ρ_{tot}^f 的对角元为 $P_{nk} = (n|\otimes E_0 + k\hbar\omega_0|)\rho_{tot}^f(|E_0 + k\hbar\omega_0\otimes|n)$。实际上，$P_{nk}$表示光子数态 $|n$ 与电子能量增益 $k\hbar\omega_0$ [6] 同时出现的概率，自由电子相互作用后的能谱为$P_k = \sum_n P_{nk}$。不忽略双光子过程时，自由电子发射光子的 P_{nk} 和 P_k 的计算结果见第三节第 2 部分。另一方面，也可以从完整密度矩阵得到电子密度矩阵，

$$\rho_{el}^f = \mathrm{Tr}_{ph}(\rho_{tot}^f) = \sum_{k=-\infty}^{\infty}\sum_{k'=-\infty}^{\infty} |C_p^0|^2 |E_0 + k\hbar\omega_0\rangle\langle E_0 + k'\hbar\omega_0|\,\delta_{kk'}\,\delta_{n,-k} \tag{14}$$

因此，可以根据电子密度矩阵推导出自由电子与其发射光子之间的纠缠，这一点也将在第三节第 2 部分详细讨论。

（2）对于入射光子态为相干态 $|\alpha$、初始电子态为 $|E_0$ 的情况，末态电子-光子态的完整密度矩阵可写为 $\rho_{tot}^f = |\Psi_{e-p}\Psi_{e-p}|$ with $|\Psi_{e-p} = \sum C_p^n|E_0 - p\hbar_{p=-\infty}^{\infty} \omega_0\ |n+p$，其中系数的具体表达式为

$$C_p^n = \mathrm{e}^{\frac{|g_{qu}|^2}{2}}\mathrm{e}^{-g_p'(2n+1)}\mathrm{e}^{\mathrm{i}p\varphi_{g1}} \sum_{l=\max(0,p-2m)}^{\infty}\sum_{m=-q}^{\infty}\sum_{q=0}^{n/2} \frac{(-1)^{l-p+q+3m}|g_{qu}|^{2l-p+2m}}{(l-p+2m)!\,l!}$$

$$\times \frac{\left(\frac{1}{2}\tanh 2\left|g_{qu}^{(2)\prime}\right|\right)^{2q+m}\mathrm{e}^{-\mathrm{i}m\Delta\varphi_g}}{(q+m)!\,q!}\left(\cosh 2\left|g_{qu}^{(2)\prime}\right|\right)^{-\frac{1}{2}[2(n-2q)+1]}\sqrt{\frac{n!}{(n+p)!}}\frac{(n+2m+l)!}{(n-2q)!} \tag{15}$$

方程 (15) 的详细推导见补充材料 S2.4 节。值得注意的是，对于强相干态（$\alpha \gg 1$）和弱相互作用强度（$|g_{qu}| \ll 1$，$\left|g_{qu}^{(2)\prime}\right| \ll 1$），方程 (15)中的系数可以进一步简化为

$$C_p^n \approx \mathrm{e}^{-g_p'(2n+1)}\mathrm{e}^{\mathrm{i}p\varphi_{g1}} \sum_{m=-\infty}^{\infty} J_{p-2m}(2|g_1|)J_{-m}(2|g_2|)\mathrm{e}^{-\mathrm{i}m\Delta\varphi_g} \tag{16}$$

其中耦合常数为 $g_1 = g_{qu}\sqrt{\overline{n}}$，$g_2 = g_{qu}^{(2)}\overline{n}$，$\overline{n}$ 为平均光子数。当 $g_{qu}^{(2)} = 0$ 或 $g_{qu} = 0$时，方程 (16)中给出的系数退化为 $C_p^n = \mathrm{e}^{\mathrm{i}p\varphi_{g1}}J_p(2|g_1|)$和 $C_p^n = \mathrm{e}^{-g_p'(2n+1)}\mathrm{e}^{-\mathrm{i}p\varphi_{g2}/2}J_{-p/2}(2|g_2|)$，分别如此。存在外部入射光时，相关现象以及对末态电子-光子态的进一步讨论见第 III 部分第 3 节和补充材料 S2.5 节。根据方程 (16)，可以发现相互作用后的自由电子能谱随 $\Delta\varphi_g$ 变化，并变得不对称。

III. 计算结果与讨论

基于第二节中的理论，本节分为五部分，讨论电子-双光子相互作用引发的新现象和已有现象。第一部分探讨如何通过超表面增强双光子过程；第二部分给出计算所得的电子-光子最终联合态，以及电子能态与光子数态的相关纠缠特性；第三部分揭示单光子过程与双光子过程之间的量子干涉；第四和第五部分则分别通过基于 $\hat{S}$ 的解析全量子理论解释卡皮查-狄拉克效应和非线性康普顿散射。

1. 调控一阶与二阶量子耦合常数

在传统的 PINEM 中，人们利用微球和环形腔 [24, 40-41], 光子晶体[42-44], 介质激光加速器 [8, 45] 以及金属-介质多层结构 [23]来增大量子耦合常数 g_{qu}，从而增强电子-光相互作用（例如，实验中 g_{qu} 已达到 ~1 [23]）。根据式（7）~ 式（9）以及此前报告中的近场分量，计算了本文定义的二阶量子耦合常数 $g_{qu}^{(2)}$ 和 g_p，结果列于表I，均小于 10^{-8}，且比g_{qu}小九~至十个数量级。因此，在 PINEM 中仅考虑单光子过程 [6-8], 时，式（12）所示的散射算符退化为经典形式 $\hat{S} = \mathrm{e}^{\mathrm{i}\chi}e^{g_{qu}\hat{b}_0\hat{a}\dagger - g_{qu}^*\hat{b}_0\dagger\hat{a}}$，此前的实验中可以忽略双光子过程。然而，为了使双光子过程更明显，第 II 节中的式（8）和式（9）表明，可以通过增大电场 $|E|$ 的模，同时相对减小 z 分量，实现强 $g_{qu}^{(2)}$ 和 g_p。

用于抑制单光子过程的电场 E_z （因为 g_{qu} 由 E_z决定） .

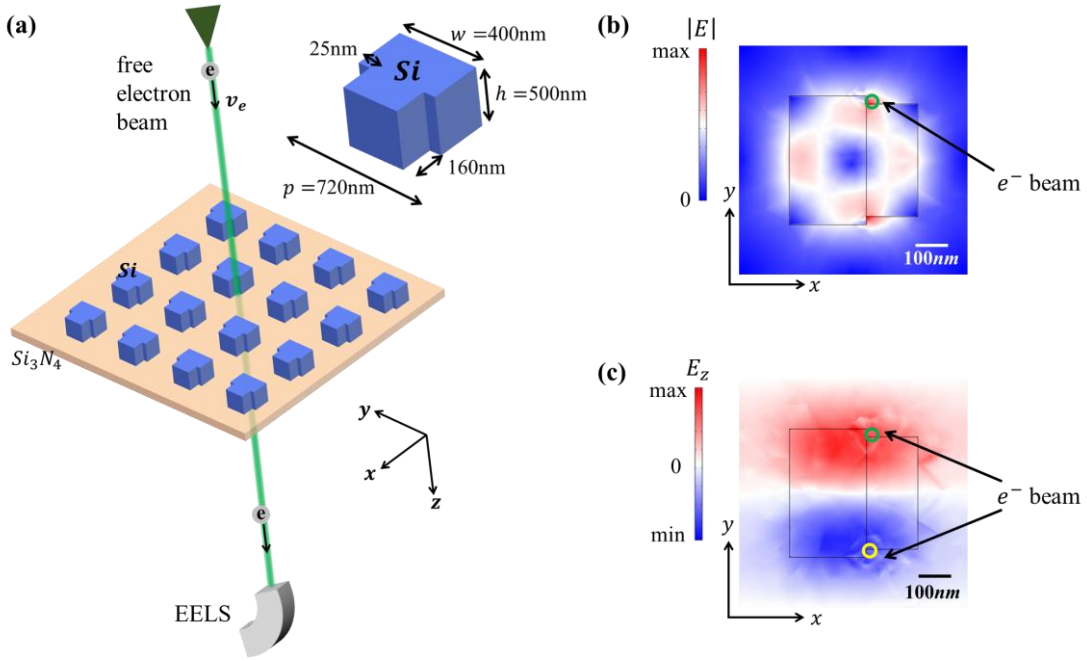
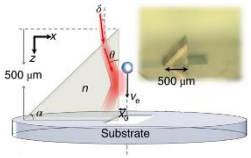
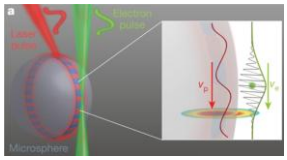
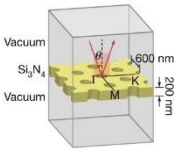
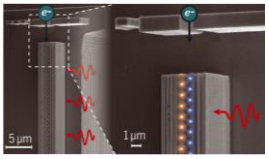
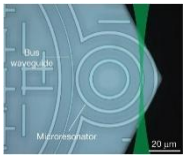
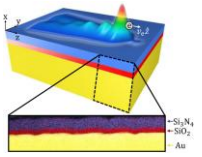
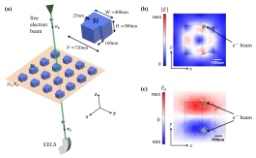


图2. 增强 $\left|g_{qu}^{(2)}\right|$ 并改变 $\Delta\varphi_g$ 基于硅准 连续域束缚态（BIC）超表面。 **(a)**自由电子束与准BIC超表面相互作用，从而增强双光子过程，并通过电子能量损失谱（EELS）进行检测。超表面的参数见插图。**(b)**准BIC模式的模拟电场分布 $|E|$ ，绿色圆圈表示电子束的入射位置。**(c)**准BIC模式的模拟 E_z ，绿色和黄色圆圈标示不同的电子入射位置，两者的 $\Delta\varphi_g$ 在 g_{qu} 和 $g_{qu}^{(2)'}$ 之间存在差异。

如图2(a)所示，我们提出让自由电子束穿过具有连续域束缚态（BIC）的超表面 [46-47], ，该超表面具有较强的电场横向分量，可相对增强 $g_{qu}^{(2)}$ 和g_p。带有一层薄氮化硅基底的硅超表面结构与参考文献[48] 中的结构相似，图2(a)插图所示的参数经过设计，以获得相对较强的横向电场。采用有限元法对准BIC模式进行模拟，电场分布 $|E|$ 如图2(b)所示，其中电场在拐角处显著增强。如果200 keV电子束沿 z轴入射至绿色圆圈处， $\left|g_{qu}^{(2)}\right|$ 可达~0.099，而$\left|g_{qu}\right|$ 仅为0.041。表I列出了不同光子结构的 $\left|g_{qu}\right|$ 、 $\left|g_{qu}^{(2)}\right|$ 和 g_p 对比，表明采用准BIC模式后，$\left|g_{qu}^{(2)}\right|$ 和 g_p 增强了八个数量级以上，甚至大于g_{qu}。

表I. 不同光子模式的量子耦合常数 g_{qu}、 $g_{qu}^{(2)}$ 和 g_p 的比较

光子结构		$\lvert g_{qu}\rvert$	$\lvert g_{qu}^{(2)}\rvert$	$\lvert g_p\rvert$
棱镜 [5]		0.0028	7.2×10^{-15}	7.2×10^{-15}
微球 光学腔 [40]		0.0008	3.2×10^{-14}	3.2×10^{-14}
光子晶体 [43]		0.0004	8.0×10^{-14}	8.0×10^{-14}
介质激光器 加速器 [8]		0.016	5.0×10^{-13}	5.0×10^{-13}
环形腔 [41]		0.03	3.9×10^{-12}	3.9×10^{-12}
多层 结构 [23]		0.99	1.7×10^{-9}	1.7×10^{-9}
准连续域束缚态中的 本工作		0.041	0.099	0.099

注：二阶量子耦合常数 $g_{qu}^{(2)}$ 和 g_p 并未在先前的工作中给出，而是根据公式（8）和公式（9）计算得出。

当 $\left|g_{qu}^{(2)}\right|$ ≈0.099， $\left|g_{qu}\right|$ ≈0 且 $\Delta\varphi_g$ =0时，同时发射一对光子的概率为 $\left|C_p^0\right|^2$ ≈2%，根据公式(13)。考虑到已观测到本征产生概率为~2.5%的单光子发射[24]，，本文提出的方案应可行，可通过在实验中探测电子能量损失谱来观测双光子发射。第2部分还给出了不同量子耦合常数下自由电子光子发射的更多计算结果与分析。

与 $\Delta\varphi_g = 2\varphi_{g1} + \varphi_{g2}$ 和 g_{qu} 相关的 $g_{qu}^{(2)'}$ 相位在自由电子发射光子的过程中起着重要作用，尤其是在第3部分讨论的单光子过程与双光子过程之间的量子干涉。通过改变自由电子束的入射位置，可以改变 $\Delta\varphi_g$ 。当电子束指向图2(c)中的对称位置时，绿色圆圈和黄色圆圈对应的 φ_{g1} 不同，但φ_{g2} 相同。因此，在本文提出的方案中，可以通过改变电子束的入射位置来调节 $\Delta\varphi_g$ ，这对于超快透射电子显微镜（UTEM）是可行的。

2. 联合量子态的末态以及自由电子与光子之间的纠缠

在本部分中，考虑初始光子态为真空态的情形，研究并分析自由电子和发射光子的末态，以进一步展示双光子过程，同时定量给出自由电子-光子纠缠。首先，根据式(13)计算联合量子态的完整密度矩阵的对角元。这不仅提供了自由电子能谱和光子数态等可通过实验测量的物理量，还显示了相应的电子-光子纠缠模式。由于 g_{qu} 和 $g_{qu}^{(2)}$ 可以通过设计光子结构及其场分量进行调控，正如关于图2的结果和分析所揭示的那样，因此在以下计算中合理设置 g_{qu} 和 $g_{qu}^{(2)}$ 的模和幅角，以探究自由电子和发射光子的不同状态。

考虑 $\Delta\varphi_g = 0$的一个特殊情形，例如 $\varphi_{g1} = \varphi_{g2} = 0$，可以根据第二节中的式（13）计算 P_{nk} 在光子数态 $|n\rangle$且自由电子获得能量 $k\hbar\omega_0$ 时的符合概率 的色彩图。进一步地，自由电子获得能量 $k\hbar\omega_0$ 的概率 P_k ，即电子能谱，可由 P_{nk}获得。以下是g_{qu}和 $g_{qu}^{(2)}$取不同值时的三种情形：

（1）假设 $|g_{qu}| = 0.04$ 和 $\left|g_{qu}^{(2)}\right| = 0.1$，计算得到的 P_{nk} 和 P_k 分别如图3(a)和图3(d)所示。在这种情况下，单光子发射较弱，而双光子发射是允许的。自由电子只发射偶数个光子，例如两个光子。在这种情况下，电子发射两个光子的相应概率为 ~2%，利用 UTEM 可以在实验中检测到这一结果；参考文献 ~2中的单光子发射概率为 .5% [24]。在图2所示的采用硅准BIC超表面的方案中，$\left|g_{qu}^{(2)}\right|$ 可达到

~0.1，且 $|g_{qu}|$ 仅为 ~0.04，这满足 $|g_{qu}^{(2)}|$ 远大于 $|g_{qu}|$的假设。为实现更明显的双光子发射，应进一步增大 $|g_{qu}^{(2)}|$，这意味着更强的自由电子-双光子相互作用。

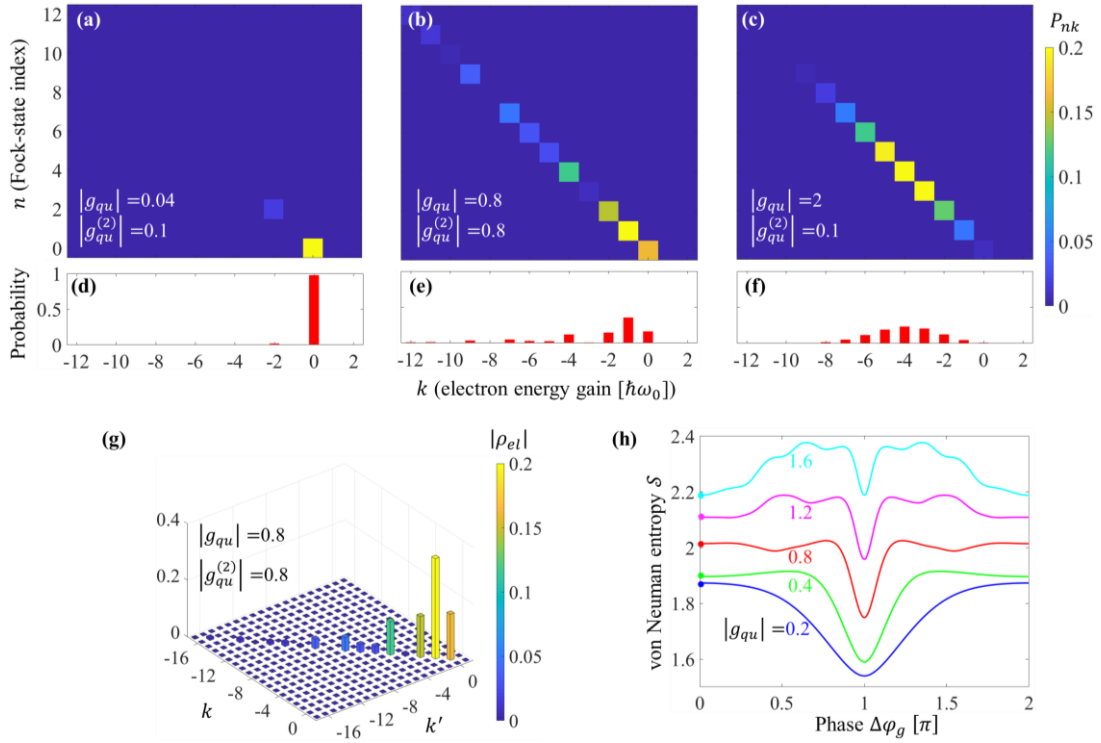


图3. 相互作用后总密度矩阵的对角元 P_{nk} 以及电子与光子之间的纠缠。 **(a)-(f)** 电子发射光子后计算得到的总密度矩阵 P_{nk} 的对角元（如 (a)、(b) 和 (c) 所示）以及电子能量概率 P_k （(d)、(e) 和 (f) 中的红色柱）。假设相应参数为 g_{qu} =0,$g_{qu}^{(2)}$ =0.1（对应 (a) 和 (d)）、g_{qu} =0.8，$g_{qu}^{(2)}$ =0.8（对应 (b) 和 (e)）、 g_{qu} =2，$g_{qu}^{(2)}$ =0.1（对应 (c) 和 (f)）。**(g)**发射后计算得到的电子密度矩阵。假设 $|g_{qu}|$ = $|g_{qu}^{(2)}|$ =0.8 时，矩阵中仅存在对角元，这表明电子与光子处于纠缠态。(a)-(g) 中的相位 $\Delta\varphi_g$ 均设为 0。**(h)** 电子-光子的冯·诺依曼纠缠熵 $\mathcal{S}$ 随 $\Delta\varphi_g$ 的变化。所有曲线的 $|g_{qu}^{(2)}|$ 均设为 0.8，而 $|g_{qu}|$ 依次取 0.2 、 0.4 、 0.8 、 1.2 和 1.6。

(2) 假设 $|g_{qu}|$ =0.8 和 $|g_{qu}^{(2)}|$ =0.8，则 P_{nk} 和 P_k 分别见图3(b)和 图3(e)。可以发现，发射两个光子和四个光子的概率分别为 ~14.5% 和 ~11.9%，这揭示了自由电子与两个光子之间显著的相互作用强度。电子能谱 P_k 既不符合单光子过程对应的泊松分布，也不会只发射偶数个光子。同时，我们注意到，当 $|g_{qu}|$ （单光子发射）与 $|g_{qu}^{(2)}|$ （双光子发射）相当时，电子损失 $3\hbar\omega_0$ 的概率仅为 ~0.76%，这有悖于常识。实际上，这种异常的联合态归因于量子干涉

单光子过程与双光子过程之间，这将在第3部分进一步讨论。

(3) 假设 $|g_{qu}|$ =2 和 $\left|g_{qu}^{(2)}\right|$ =0.1， P_{nk} 和 P_k 分别如 图3(c)和 图3(f)所示。在这种情况下，单光子发射占主导地位，而双光子发射较弱，这是由于 $|g_{qu}| \gg \left|g_{qu}^{(2)}\right|$。电子能谱 P_k 近似服从泊松分布，这是单光子 PINEM 的特征。实际上， $\left|g_{qu}^{(2)}\right| = 0.1$ 表明仍存在相当显著的双光子过程，这使得 P_k 在 图3(f)中略微偏离泊松分布。而当 $\left|g_{qu}^{(2)}\right|$ 持续减小至 0 时， P_k 将逐渐退化为单光子 PINEM。

在上述情况下，自由电子与发射光子之间存在关联，这可由电子密度矩阵或光子密度矩阵体现。根据方程 (14)，计算得到的电子密度矩阵如 图3(g)所示。将量子耦合常数设为$|g_{qu}| = \left|g_{qu}^{(2)}\right|$ =0.8，以更清楚地呈现关联特征。根据图3(g)还估算了电子密度矩阵的纯度（Purity $= \mathrm{Tr}(\rho_{el}^2)/(\mathrm{Tr}\rho_{el})^2 = \sum_k P_k^2$ [8]）。纯度值为 0.193，远小于 1，这表明最终的电子-光子量子态是混合态，也就是说，电子态与光子态不可分离。

为定量衡量纠缠度，我们使用冯·诺依曼熵 $\mathcal{S}$ 来揭示自由电子与发射光子之间的纠缠。$\mathcal{S}$ 定义为 $\mathcal{S} = -\mathrm{Tr}[\rho_{ph}\ln(\rho_{ph})] = -\mathrm{Tr}[\rho_{el}\ln(\rho_{el})]$ [49], ，其中 ρ_{ph} 和 ρ_{el} 分别为光子密度矩阵和电子密度矩阵。根据图3(g)中的 ρ_{el} ，我们可以得到相应的 $\mathcal{S}$ =2.01。它大于贝尔态 $\mathcal{S} = \ln(2)$ 的熵；对于双量子比特系统而言，贝尔态是最大纠缠态。较大的 $\mathcal{S}$表明自由电子能态与光子数态之间存在强纠缠。当固定 $\left|g_{qu}^{(2)}\right|$ =0.8 和 $\Delta\varphi_g = 0$ 时， $\mathcal{S}$ 随 g_{qu} 增大而增大，如图3(h) 中不同颜色的点所示。在这些点中，即使是最小值 $\mathcal{S}$ = 1.87（当 $|g_{qu}| = 0.2$ 且 $\left|g_{qu}^{(2)}\right| = 0.8$ 时），也大于单光子 PINEM 中最大的 $\mathcal{S}$ =1.30（ $|g_{qu}| = 1$ ），这表明双光子过程增强了电子-光子纠缠。

此外，我们还发现，当调节 $\mathcal{S}$ 时， $\Delta\varphi_g$会发生剧烈变化，如图3(h)中的曲线所示，其中 $\left|g_{qu}^{(2)}\right|$ = 0固定为 0.8， $|g_{qu}|$取不同值。可以发现， $\mathcal{S}$ 关于 $\Delta\varphi_g = \pi$呈对称分布。而 $\mathcal{S}$ 在

$\Delta\varphi_g = \pi$，即电子-光子关联最弱的情况，可能源于单光子过程与双光子过程之间的干涉，正如第 3 部分所讨论的。比较不同曲线可以清楚地看出，对于任意 $\Delta\varphi_g$，$\mathcal{S}$ 都会随着 $|g_{qu}|$ 的增大而增强。然而，不同曲线的最大 $\mathcal{S}_{max}$ 出现在不同的特定 $\Delta\varphi_g$ 处，例如，当 $|g_{qu}| =$ 0=0.2 时，$\mathcal{S}_{max} =$ 1=0.8731，对比当 $|g_{qu}|$ =1=0.6 时，$\mathcal{S}_{max}$ =2=0.3768。随着 $|g_{qu}|$ 增大，$\mathcal{S}$随 $\Delta\varphi_g$ 变化的特征变得更加复杂。

3. 单光子过程与双光子过程之间的量子干涉

在这一部分，我们重点探讨 $\Delta\varphi_g$ 对最终电子-光子联合态的影响。首先，考虑系统初始处于光学真空态，并根据式 $e^{-im\Delta\varphi_g}$ 中的相位项 (13)，电子能谱随 $\Delta\varphi_g$ 变化的情况以色彩图形式展示于图4中。在以下三种条件下，结果呈现出干涉条纹的特征，揭示了电子-光相互作用中单光子过程与双光子过程之间的量子干涉。

(1) 单光子过程的 $|g_{qu}|$ 大于双光子过程的 $|g_{qu}^{(2)}|$，但仍存在较弱至较强的双光子过程（设定 $|g_{qu}| = 2$ 和$|g_{qu}^{(2)}|$ =0.2）。图4(a)上图展示了电子能谱随 $\Delta\varphi_g$变化的情况，其形状类似干涉条纹。下图显示了当 $\Delta\varphi_g = \pi$ 和 $\Delta\varphi_g = 0$ 时，电子能谱明显不同，并表明 $\Delta\varphi_g = \pi$ 对应于展宽的能谱。这一结果揭示了单光子过程与双光子过程之间明显的量子干涉现象。

作为比较，当 $|g_{qu}^{(2)}|$ 设为 0 时（即双光子过程可以忽略），如图4(b)所示，电子能谱不再随 $\Delta\varphi_g$ 变化。这就是为什么单光子 PINEM [6] 的实验结果中观察不到这种干涉现象。此外，图4(b)中计算得到的电子能谱与概率分布为 $P_k = e^{-|g_{qu}|^2}|g_{qu}|^{2k}/k$ 的单光子 PINEM 理论完全相同！ [6], 这很自然，因为对式(13) 在 $g_{qu}^{(2)} = 0$ 条件下进行简化，也可以得到解析表达式（更多细节见补充材料 S2 节）。

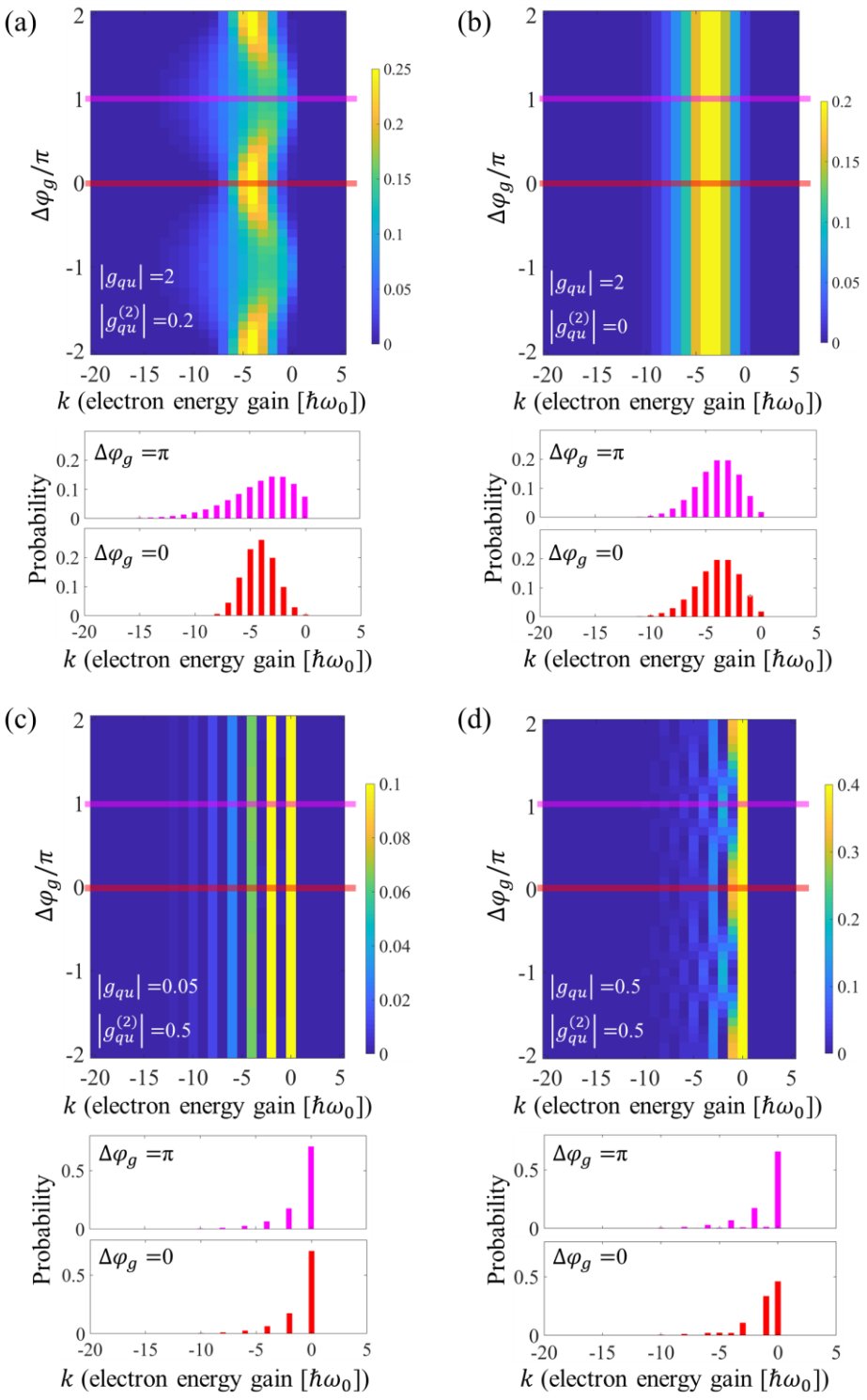


图4. 电子能谱随相位 $\Delta\varphi_g$ 在一阶量子耦合常数 g_{qu} 与修正的二阶量子耦合常数 $g_{qu}^{(2)'}$ 之间的变化。 (a) 电子发射光子后，电子能谱（EELS）随 $\Delta\varphi_g$ 的变化如上方插图中的色彩图所示，颜色代表概率。下方的条形图对应于 $\Delta\varphi_g = \pi$ （以洋红色条表示）和 $\Delta\varphi_g = 0$ （以红色条表示）时的 EELS。相位 $\Delta\varphi_g$ 从 -2π 变化到 2π，量子耦合常数的振幅设为 $|g_{qu}|$ =2 和 $|g_{qu}^{(2)}|$ =0。2. (b)-(d) 与 (a) 的示意图相同，但 (b) 中为 $|g_{qu}|$ =2 和 $|g_{qu}^{(2)}|$ =0，(c) 中为 $|g_{qu}|$ =2 和 $|g_{qu}^{(2)}|$ =0，(d) 中为 $|g_{qu}|$ =2 和 $|g_{qu}^{(2)}|$ =0。

(2) 单光子过程的 $|g_{qu}|$ 远小于双光子过程的 $|g_{qu}^{(2)}|$，但仍存在不可忽略的 $|g_{qu}|$ （设 $|g_{qu}| = 0$为 .05，且$|g_{qu}^{(2)}|$ =0为 .5）。图4(c)显示，自由电子的能谱不会随变化 $\Delta\varphi_g$，且自由电子仅损失$2\hbar\omega_0$ 及其整数倍的能量。尽管此时双光子过程占主导地位，但并未出现类似第一种情况的量子干涉。

仅出现较强双光子发射的原因，可以通过考察自由电子与光之间的相互作用强度来理解。不考虑量子干涉效应时，双光子发射的相互作用强度为 $|g_{qu}^{(2)}|\overline{n}$，而单光子发射的相互作用强度为 $|g_{qu}|\sqrt{\overline{n}}$，其中 $\overline{n}$ 为平均光子数（更多详情见补充材料 S2.4 节）。因此，较大的 $|g_{qu}^{(2)}|$ 以及与 $\overline{n}$ 成正比的关系，导致双光子过程占主导地位，并使此情况下的干涉现象消失。

(3) $|g_{qu}|$ 和 $|g_{qu}^{(2)}|$ 的数值相近（设定 $|g_{qu}| = 0.5$ 和$|g_{qu}^{(2)}|$ =0.5）。图4(d)（上图）中的计算结果表明，在这种情况下仍存在波动条纹，揭示了电子能谱随 $\Delta\varphi_g$的变化。最令人意外的发现是，当 $\varphi_g = \pi$ 时，自由电子的 EELS 与图4(c)中的相似，这意味着尽管 $|g_{qu}|$ 接近 $|g_{qu}^{(2)}|$ （此处$|g_{qu}|$ 取一个相当大的值），单光子过程仍会受到量子干涉的抑制。进一步同步增大 $|g_{qu}|$ 和 $|g_{qu}^{(2)}|$后，可以发现，即使 $|g_{qu}|$ 相对较大，自由电子几乎也只能产生双光子发射（见补充材料 S2 节）！

对于光子结构由强激光泵浦的情况，比较式 (16) 和式 (13)可发现，最终的电子-光子联合态也会随 $\Delta\varphi_g$ 变化，但仅当单光子过程或双光子过程缺失时才如此。因此，存在外部入射光时，这两个过程之间仍会发生量子干涉。相互作用后的电子能谱因量子干涉现象而呈不对称，但当 $\Delta\varphi_g$ 为 $\pi/2$的奇数倍时则变为对称。这些不对称的电子能谱与传统的单光子 PINEM 大不相同，相关计算结果及进一步讨论见补充材料第 S2.5 节。

类似的量子干涉也曾出现在自由电子-光子相互作用之间（即在频率不同的两束光中发生的单光子过程

传统 PINEM）[50-51] 以及自由电子-原子相互作用[52]。然而，我们在此发现的是自由电子-光子相互作用的一阶过程与二阶过程之间的量子干涉。由于电子能谱与光子发射直接相关，这一发现表明，可以通过调节 $\Delta\varphi_g$。

此外，量子干涉也为使用自由电子直接探测光的全矢量场，尤其是场的相位，提供了理论依据。基于传统的 PINEM 研究，只能直接获取纵向电场分量。最新研究则借助参考光和算法恢复，基于一种称为“自由电子拉姆齐型干涉测量”的概念，实现了对光场的全矢量探测 [53-55]。本文发现的量子干涉从理论上为自由电子直接探测光的各个电场分量及其相位提供了一种途径。

4. 卡皮查-狄拉克效应的双光子过程

在式 (12) 中，散射算符 $\hat{S}$ 的项 $\mathrm{e}^{-g_p'(\hat{a}\hat{a}\dagger+\hat{a}\dagger\hat{a})}$ 只会在联合态中引入一个全局相位，不会影响上述关于双光子产生和量子干涉的计算结果。然而，该项与一些揭示自由电子同时吸收一个光子并发射一个光子的效应有关。这部分表明，KD效应与 $\mathrm{e}^{-g_p'(\hat{a}\hat{a}\dagger+\hat{a}\dagger\hat{a})}$ 有关，并且可以通过该项推导出电子衍射图样。

在 KD效应中，自由电子穿过驻波光，并被光子散射，从而形成干涉图样 [28-30]。因此，如图 5(a)所示，我们考虑一束平面自由电子波穿过由两个频率相同 ω_0 、波矢分别为 $k_p\boldsymbol{e}_x$ 和 $-k_p\boldsymbol{e}_x$ $(k_p=\omega_0/c)$的反向入射光波形成的驻波光。驻波光的电场可以写为 $\boldsymbol{E}_s(x,t)=2|E_0|\cos(k_px)\cos(\omega_0t)\boldsymbol{e}_y$。对于随时间变化的驻波光，通常忽略马格努斯展开的高阶项[56], ，因此我们只保留第一项，得到式(6)，尽管电子与驻波光之间不满足相位匹配条件。因此，散射算符 $\hat{S}$ 也可写成式(11)。

可以发现，对于这种情况， g_{qu} 和 $g_{qu}^{(2)}$ 都可以忽略，而只保留 g_p ，因此公式 (11)可简化为 $\hat{S}=e^{-g_p(\hat{a}\hat{a}\dagger+\hat{a}\dagger\hat{a})}$。经过仔细的数学推导（见补充材料第 S3 节），我们可以得到自由电子的波函数:

$$\psi_e(\boldsymbol{r},t)=\left[\mathrm{e}^{\mathrm{i}\chi}\mathrm{e}^{-\mathrm{i}\frac{e^2|E_0|^2L}{2\gamma m_e\hbar\omega_0^2 v_e}}\sum_{n=-\infty}^{\infty}(-\mathrm{i})^n J_n\left(\frac{e^2|E_0|^2L}{2\gamma m_e\hbar\omega^2 v_e}\right)\mathrm{e}^{\mathrm{i}n2k_p x}\right]\psi_0(\boldsymbol{r},t) \quad (17)$$

其中， $\psi_0(\boldsymbol{r},t)$是自由电子的初始波函数， L 是自由电子与驻波光之间的相互作用长度。

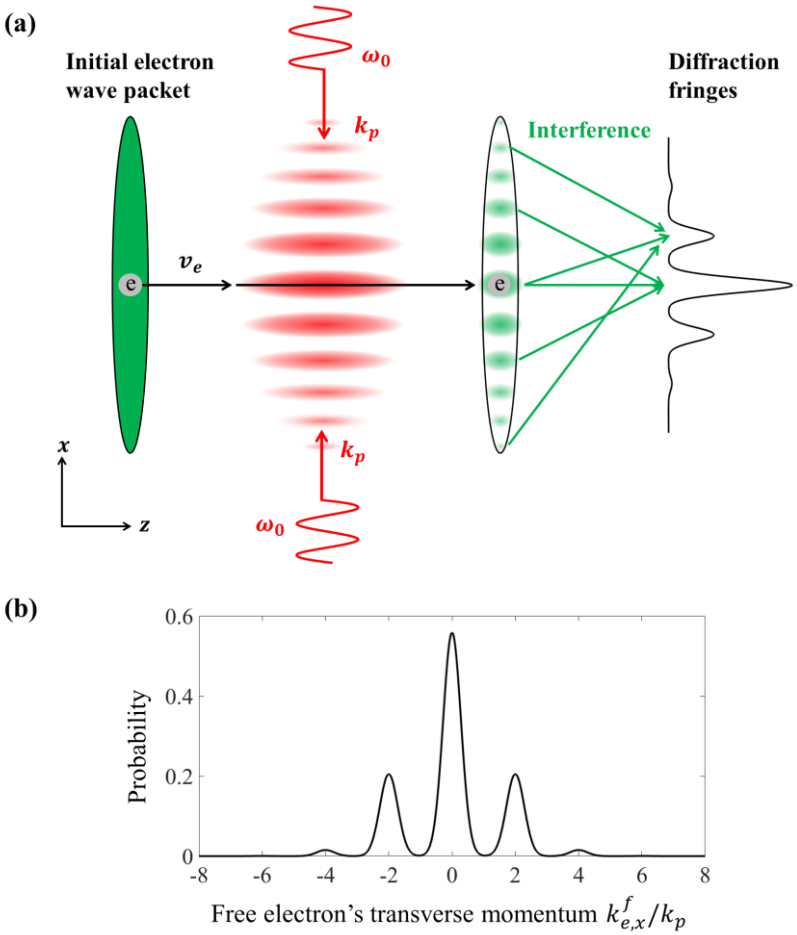


图 5. 驻波光衍射自由电子的示意图，以及相互作用后电子的横向动量分布。 (a) 初始自由电子波包沿 x 方向延伸，相互作用后电子波包的不同部分将携带不同的相位。电子波包的不同部分发生干涉，并产生衍射条纹。(b) 计算得到的自由电子相互作用后的横向动量概率 $k_{e,}{}^f{}_x$ 以入射光子动量 k_p 为单位表示$k_{e,}{}^f{}_x$ 。

由公式 (17)可知，相互作用后，电子波包的不同部分被赋予了周期相位，如图 5(a)所示。波包的不同部分在自由传播后相互干涉，并在探测屏上形成衍射斑。在公式 (17)中，我们注意到自由电子 $k_{e的}{}^f{}_x$ 变化沿 x 方向为 $2nk_p$ ($n=1,\ 2,\ 3,\ \ldots$)，相应的概率为

$$P_n = J_n^2\left(\frac{e^2|E_0|^2L}{2\gamma m_e\hbar\omega^2 v_e}\right) \tag{18}$$

根据公式 (18)，电子横向动量的概率经计算并示于 图 5(b)中，这与未对光场进行量子化的理论 [33] 和关于 [29] KD效应的实验结果一致。因此，尽管相位项 $-g_p(\hat{a}\hat{a}^\dagger + \hat{a}^\dagger\hat{a})$在 $\hat{S}$ 中不影响光子数态和电子能量，但它与KD效应有关，并且对于理解光子导致的电子衍射发挥着重要作用。

因此，我们采用严格的 QED 处理来解释 KD效应，证实这一现象是自由电子通过发射/吸收一个光子并同时吸收/发射另一个光子而发生衍射。理解这一机制后，我们有望扩展 KD效应的概念，并通过引入光子结构、利用其多种光场特性来操控电子衍射图样。因此，本部分的结果有助于进一步探索与非线性康普顿散射相关的丰富新现象。

5. 非线性康普顿散射的理论解释

前述 KD效应导致自由电子的横向动量发生调制，而纵向动量保持不变。近期，研究人员从理论和实验上研究了自由电子穿过真空中的强光行波时发生的非弹性散射，这一现象推广了 KD效应 [31-32]。他们通过数值求解含时薛定谔方程解释了实验结果 [32]。本部分中，我们利用理论的解析解分析该实验，并进一步探究这一现象所涉及的两个光子态之间的纠缠。

如图 6(a)所示，实验中两束频率不同的激光束 ω_1 和 $\omega_2(\omega_2 > \omega_1$分别以入射角 θ_1 和 θ_2入射 [32]。这两束激光束形成一列沿 z轴平行方向传播的行波，其群速度为$v_g = (\omega_2 - \omega_1)c/(\omega_2\cos\theta_2 - \omega_1\cos\theta_1)$。通过调整入射角，确保其群速度等于电子速度 v_e 。

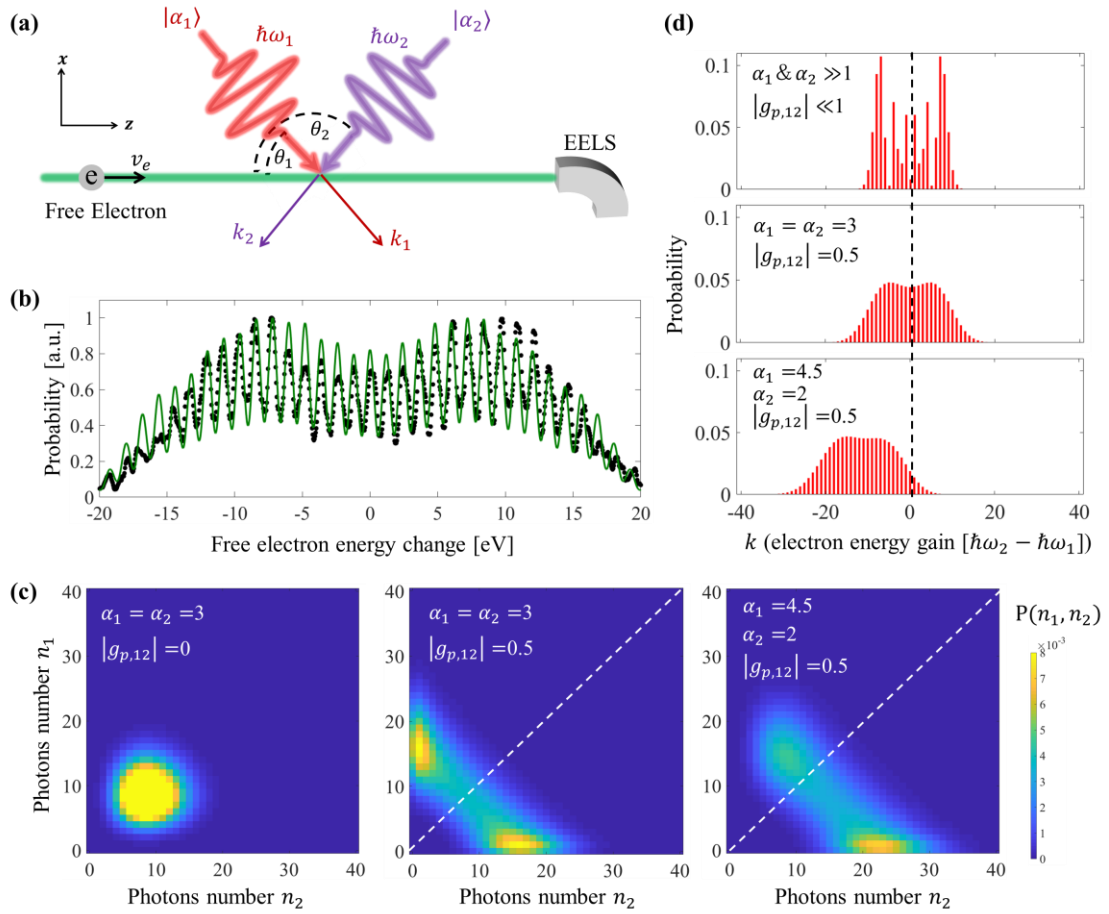


图 6. 两束频率不同的入射光引发的非线性康普顿散射的理论解释。 **(a)** 自由电子束（绿色）与两个相干光子态$|\alpha_1\rangle$（红色）和 $|\alpha_2\rangle$（紫色）相互作用，它们的频率（波矢）分别为 ω_1 (k_1) 和 ω_2 (k_2) 。相互作用后的电子进入 EELS 电子能量损失谱仪并接受测量。**(b)**根据我们的理论得到的解析表达式拟合曲线（绿色曲线）与文献[32] 中测得的电子能谱（黑点）的比较。当两个相干态较强而相互作用强度较弱时，得到绿色曲线。**(c)**在相干态强度和$g_{p,12}$不同的条件下，计算得到的联合概率分布 $P(n_1, n_2)$。**(d)**在与 (c) 对应的条件下，电子能谱（红色柱）的比较。黑色点线表示零损峰（ZLP）的位置。

因此，式(10)退化为 $\hat{S} = e^{-2g_{p,12}\hat{b}_{1\dagger}\hat{b}_2\hat{a}_1\hat{a}_{2\dagger}+2g_{p,12}^{*}\hat{b}_1\hat{b}_{2\dagger}\hat{a}_{1\dagger}\hat{a}_2}$，其形式与第 4 部分讨论 KD效应解释时的相位项相似。这意味着它们具有相似的物理过程，即在相互作用过程中，自由电子发射/吸收一个能量为 $\hbar\omega_1$ 的光子，同时吸收/发射另一个能量为 $\hbar\omega_2$ 的光子。考虑到入射光子态是两个相干态 $|\alpha_1$和 $|\alpha_2$，相互作用后的电子-光子态可写为$\sum_{n_1 n_2=0}^{\infty}\sum_{k=-\infty}^{\infty} c_{n_1 n_2 k}\,|E_k, n_1, n_2$，其系数根据 $\hat{S}$推导得出。

as

$$c_{n_1 n_2 k} = \mathrm{e}^{-\frac{|\alpha_1|^2+|\alpha_2|^2}{2}} \frac{\alpha_1^{n_1-k}\alpha_2^{n_2+k}}{(n_1-k)!} \mathrm{e}^{-\mathrm{i}k\varphi_{gp}} \sum_{m=0}^{\infty} \frac{(-1)^m \left(\tan 2\left|g_{p,12}\right|\right)^{2m+k}}{(m+k)!\,m!}$$

$$\times \left(\cos 2\left|g_{p,12}\right|\right)^{2m+n_1-n_2} \frac{(n_1-k+l)!}{(n_2+k-l)!} \sqrt{\frac{n_2!}{n_1!}} \tag{19}$$

其中 $\varphi_{gp} = \arg(g_p,12)$。因此，$\left|c_{n_1 n_2 k}\right|^2$ 是自由电子获得能量 $k(\hbar\omega_2 - \hbar\omega_1)$ 的概率，而光子态中含有频率为ω_1 的 n_1 个光子和频率为 ω_2的 n_2 个光子。对于实验设置，耦合强度较弱（$g_{p,12} \ll 1$），而两个相干态较强（$\alpha_1 \gg 1$, $\alpha_2 \gg 1$），因此式 (19) 变为 $c_{n_1 n_2 k} = \mathrm{e}^{-\mathrm{i}k\varphi_{gp}} J_k(4\left|g_{p,12}\sqrt{n_1 n_2}\right|)$，其形式与单光子 PINEM 类似（更多推导细节见补充材料第 S4 节）。因此，我们可以根据解析表达式拟合文献 [32] 中的实验数据，如图 6(b) 中的绿色曲线所示。我们的理论拟合方差为 ~0.012，而文献 [32] 中通过数值求解薛定谔方程得到的拟合方差为 ~0.018。结果表明，我们的理论能够很好地解释非线性康普顿散射，并提供解析表达式。

该理论不仅可以分析现有的实验现象，还可以预测不同于现有实验设置情况下的新效应。与自由电子相互作用后，两个光子态的数态将产生关联。联合概率 $P(n_1, n_2) = \sum_k \left|c_{n_1 n_2 k}\right|^2$ 用于表示具有频率为 ω_1 的 n_1 个光子和频率为 ω_2的 n_2 个光子的状态。假设相干态较弱且相互作用强度较强，利用公式（19）计算得到 $P(n_1, n_2)$，并在图 6(c)中以色彩图表示。当两个相干态具有相同的光子数分布（泊松分布，$\alpha_1 = \alpha_2 = 3$）且不与电子相互作用（$\left|g_{p,12}\right| = 0$）时，图 6(c)左图展示了$P(n_1, n_2)$，它由两个泊松分布直接相乘得到，表明光子态之间不具有关联。而当相互作用 $\left|g_{p,12}\right| = 0.5$ 较强时，如图 6(c)中图所示，$P(n_1, n_2)$发生了显著变化，表明两个光子态在自由电子的作用下产生了关联。当两个入射相干态具有不同的平均光子数（$\alpha_1 = 4.5$，$\alpha_2 = 2$）且$g_{p,12} = 0.5$时，两个纠缠峰与图 6(c)中图的纠缠峰相似，但如图 6(c)右图所示，它们相对于白色虚线呈现不对称性。

尽管近期研究已报道了自由电子诱导的两个光子态之间的纠缠 [57], 但这需要两个光子结构以及自由

电子依次与这两个结构和光子态相互作用。在我们的方案中，只需一个光子结构，自由电子便可同时与两个光子态相互作用，这使操控任意两个光子态的结构设计更加便利。此外，与参考文献[57]中的结果相比，我们的方案通过两个更明显的纠缠峰增强了纠缠度。简而言之，我们的理论提供了一种更简便的方法，可通过自由电子诱导光子之间的纠缠。

与两种光子态相互作用后，自由电子能谱发生了显著变化，如图 6(d)所示。当相互作用强度较弱时（$|g_{p,\ 12}| \ll 1$），能谱具有与此前单光子 PINEM 类似的分布。当相互作用强度增大，且两种光子态具有相同的光子数分布（$|g_{p,\ 12}| = 0.5,\ \alpha_1 = \alpha_2 = 3$）时，能谱包络变得更加平滑，并且能谱相对于零损峰（ZLP）保持对称。当两个入射相干态具有不同的平均光子数时，有趣的是，能谱呈现出非对称分布。根据上述结果，自由电子能态（例如自由电子能量梳）可以基于自由电子与两种不同频率的光子态之间的相互作用进行调控。此外，这种相互作用有望在量子光生成、自由电子波包操控以及未来的量子信息学中发挥重要作用。

IV. 结论

综上所述， 通过采用散射矩阵方法发展全量子理论，对自由电子与两个光子之间的相互作用进行了系统研究。首先，通过定义用于表征双光子相互作用强度的二阶量子耦合常数 $g_{qu,\ ij}^{(2)}$ 和 $g_{p,\ ij}$ 首次建立了考虑双光子过程的通用解析模型，并推导出了相应的散射算符 $\hat{S}$ 。其次，基于电子-双光子相互作用不仅与电场的纵向分量有关，还与其横向分量有关这一新发现，与PINEM中此前采用的结构相比，应用准BIC超表面可将 $g_{qu,\ ij}^{(2)}$ 提高八个数量级，并且还可通过EELS推导出完整的矢量光学近场。第三，基于所推导的散射算符 $\hat{S}$，计算得到的电子-光子联合态表明，单光子过程与双光子过程之间存在量子干涉，

这导致电子与光子之间的纠缠度以及电子能谱随相位 $\Delta\varphi_g$发生变化。此外，还可以直接从相互作用电子的EELS中恢复光场的相位。最后，基于所建立的解析全量子理论，通过分别推导电子横向动量和电子能量损失的概率分布，对KD效应和非线性康普顿散射也进行了良好解释。这表明，单光子/双光子近场光子诱导电子显微术、KD效应和非线性康普顿散射均统一于所推导的 $\hat{S}$中。

本研究为未来进一步研究自由电子-多光子相互作用迈出了重要一步，并加深了对其非线性物理机制的理解。预计将提出通过双光子过程利用光操控自由电子波包的可行方案。此外，还可能发展基于自由电子的非线性光学效应，例如利用自由电子作为载体实现自发参量下转换。本文提出的概念也有助于生成更丰富的电子-光子纠缠态或量子光子态，而这些是量子传感、量子计算等领域的基础。

致谢

本研究得到国家重点研发计划（2024YFA1209202）资助。

参考文献

[1] Barwick, B., Flannigan, D. J., Zewail, A. H. 光子诱导近场电子显微术。《自然》**462**, 902-906 (2009).[2] Garcia de Abajo, F. J., Asenjo-Garcia A., Kociak, M. 高速电子与倏逝光场相互作用产生的多光子吸收与发射。《纳米快报》**10**, 1859-1863 (2010).[3] Park, S. T., Lin, M., Zewail, A. H. 光子诱导近场电子显微术（PINEM）：理论与实验。《新物理学杂志》**12**, 123028 (2010).[4] Feist, A., Echternkamp, K. E., Schauss, J. 等. 超快透射电子显微镜中的量子相干光学相位调制。《自然》**521**, 200-203 (2015).[5] Dahan, R., Nehemia, S., Shentcis, M. 等. 光波与自由电子波函数之间的共振相位匹配。《自然·物理》**16**, 1123–1131 (2020).[6] Kfir, O. 强耦合区中电子与腔光子的纠缠。《物理评论快报》**123**, 103602 (2019).[7] Di Giulio, V., Kociak, M., Garcia de Abajo, F. J. 用快电子探测量子光学激发。《光学》**6**, 1524-1534 (2019).[8] Dahan, R., Gorlach, A., Haeusler, U. 等. 将光子的量子统计印刻到

自由电子上。《科学》373, eabj7128 (2021).[9] Piazza, L., Lummen, T. T., Quinonez, E. 等. 同时观测等离激元近场的量子化及其干涉图样。《自然·通讯》6, 6407 (2015).[10] Lummen, T. T. A., Lamb, R. J., Berruto, G. 等. 埋藏界面处等离激元干涉场的成像与调控。《自然·通讯》7, 13156 (2016).[11] Madan, I., Vanacore, G. M., Pomarico, E. 等. 通过电子-光量子干涉对电磁场进行全息成像。《科学进展》5, eaav8358 (2019).[12] Kurman, Y., Dahan, R., Sheinfux, H. H. 等. 利用自由电子对二维极化激元波包动力学进行时空成像。《科学》372, 1181-1186 (2021).[13] Kurman, Y., Dahan, R., Shenfux, H. H. 等. 范德华材料中光学涡旋的动力学。《光学》10, 612-618 (2023).[14] Vanacore, G. M., Berruto, G., Madan, I. 等. 通过手性等离激元近场超快生成并调控电子涡旋束。《自然·材料》18, 573-579 (2019).[15] Di Giulio, V., García de Abajo, F. J. 利用量子光整形自由电子。《光学》7, 1820-1830 (2020).[16] Tsesses, S., Dahan, R., Wang, K. 等. 光子诱导自由电子空间调制的可调控性。《自然·材料》22, 345-352 (2023).[17] Madan, I., Leccese, V., Mazur, A. 等. 通过与整形光场相互作用对自由电子进行超快横向调制。《美国化学学会光子学》9, 3215-3224 (2022).[18] Pan, Y., and Gover, A. 调制自由电子量子波包的自发与受激辐射——半经典分析。《物理通讯杂志》2, 115026 (2018).[19] Di Giulio, V., Kfir, O., Ropers, C. 等. 通过与外部光干涉调制阴极发光。《美国化学学会纳米》15, 7290-304 (2021).[20] Kfir, O., Di Giulio, V., Garcia de Abajo, F. J. 等. 自由电子介导的光学相干性转移。《科学进展》7, eabf6380 (2021).[21] Ben Hayun, A., Reinhardt, O., Nemirovsky, J. 等. 利用自由电子整形量子光子态。《科学进展》7, eabe4270 (2021).[22] Dahan, R., Baranes, G., Gorlach, A. 等. 利用整形自由电子生成光学猫态与GKP态。《物理评论X》13, 031001 (2023).[23] Adiv, Y., Hu, H., Tsesses, S. 等. 二维切伦科夫辐射的观测。《物理评论X》13, 011002 (2023).[24] Feist, A., Huang, G., Arend, G. 等. 腔介导电子-光子对。《科学》377, 777-780 (2022).[25] Konecna, A., and Garcia de Abajo, F. J. 利用光学近场校正电子束像差。《物理评论快报》125, 030801 (2020).[26] Reinhardt, O., and Kaminer, I. 利用光整形电子波包的理论。《美国化学学会光子学》7, 2859-2870 (2020).[27] García de Abajo, F. J., Ropers, C. 通过与整形光场的平行相互作用实现时空电子束聚焦。《物理评论快报》130, 246901 (2023).[28] Kapitza, P. L. and Dirac, P. A. M. 电子在驻波光中的反射。《剑桥哲学学会会刊》29, 297–300 (1933).[29] Freimund, D. L., Aflatooni, K., Batelaan, H. 卡皮查-狄拉克效应的观测。《自然》413, 142-143 (2001).[30] Batelaan, H. 专题综述：以电子物质光学阐明卡皮查-狄拉克效应。

《现代物理评论》79, 929-941 (2007)。[31] Kozák, M., Eckstein, T., Schönenberger, N. 等。真空中高强度光学行波对电子的非弹性有质动力散射。《自然·物理》14, 121-125 (2018)。[32] Tsarev, M., Thurner, J. W., Baum, P. 自由电子物质波的非线性光学量子控制。《自然·物理》19, 1350-1354 (2023)。[33] Talebi, N. 和 Lienau, C. 相干卡皮查–狄拉克效应中量子路径之间的干涉。《新物理学杂志》21, 093016 (2019)。[34] Di Giulio, V. 和 Garcia de Abajo, F. J. 自由电子对光学腔模的压缩。《纳米光子学》11, 4659-4670 (2022)。[35] Sloan, J., Rivera, N., Joannopoulos, J. D., Soljačić, M. 控制超光速和加速折射率扰动产生的双光子发射。《自然·物理》18, 67-74 (2022)。[36] Rivera, N., Kaminer, I. 光子准粒子的光–物质相互作用。《自然综述：物理》2, 538-561 (2020)。[37] Abrikosov, A. A., Gorkov, L. P., Dzyaloshinskii, I. Y. 统计物理学中的量子场论方法。Pergamon Press：纽约（1965）。[38] Itzykson, C., Zuber, J. 量子场论。Dover Publications：纽约（2012）。[39] Di Giulio, V., García de Abajo, F. J. 真空涨落引起的电子衍射。《新物理学杂志》22, 103057 (2020)。[40] Kfir, O., Lourenco-Martins, H., Storeck, G. 等。利用光学回音壁模式控制自由电子。《自然》582, 46-49 (2020)。[41] Henke, J. W., Raja, A. S., Feist, A. 等。集成光子学实现连续束电子相位调制。《自然》600, 653-658 (2021)。[42] Yang, Y., Roques-Carmes, C., Kooi, S. E. 等。用于自由电子辐射的光子平带共振。《自然》613, 42-47 (2023)。[43] Wang. K., Dahan, R., Shentcis, M. 等。自由电子与光子腔之间的相干相互作用。《自然》582, 50-54 (2020)。[44] Li, J., Fang, Y. 和 Liu, Y. 光子学与自由电子之间的拓扑保护强相互作用。《物理评论快报》132, 073801 (2024)。[45] Adiv, Y., Wang, K., Dahan, R. 等。介质激光加速器的量子本质。《物理评论X》11, 041042 (2021)。[46] Hsu, C. W., Zhen, B., Stone, A. D. 等。连续谱束缚态。《自然综述：材料》1, 16048 (2016)。[47] Yin, X., Jin, J., Soljačić, M. 等。拓扑赋能的单向导模共振的观测。《自然》580, 467-471 (2020)。[48] Liu, Z., Xu, Y., Lin, Y. 等。用于非线性超表面的高Q连续谱准束缚态。《物理评论快报》123, 253901 (2019)。[49] Vedral, V., Plenio, M. B., Rippin, M. A. 等。纠缠的量化。《物理评论快报》78, 2275 (1997)。[50] Priebe, K. E., Rathje, C., Yalunin, S. V. 等。超快透射电子显微镜中的阿秒电子脉冲列与量子态重构。《自然·光子学》11, 793-797 (2017)。[51] Konečná, A., Di Giulio, V., Mkhitaryan, V. 等。利用电子束进行纳米尺度非线性光谱学。《美国化学学会光子学》7, 1290-1296 (2020)。[52] Karnieli, A., Tsesses, S., Yu, R. 等。利用自由电子对强耦合光–物质系统进行量子传感

系统。《科学进展》**9**, eadd2349 (2023)。[53] Bucher T, Ruimy R, Tsesses S, 等。用于近场增强振幅和相位成像的自由电子拉姆齐型干涉测量。《科学进展》**9**, eadi5729 (2023)。[54] Gaida, J. H., Lourenço-Martins, H., Sivis, M. 等。通过自由电子同频探测实现阿秒电子显微术。《自然·光子学》**18**, 509-515 (2024)。[55] Bucher, T., Nahari, H., Herzig Sheinfux, H. 等。利用自由电子干涉仪进行相干放大的超快成像。《自然·光子学》**18**, 809–815 (2024)。[56] Erhard, R. 和 Bauke, H. 椭圆偏振光下卡皮查–狄拉克散射中的自旋效应。《物理评论A》**92**, 042123 (2015)。[57] Baranes, G., Ruimy, R., Gorlach, A. 等。自由电子能够诱导光子之间的纠缠。《npj量子信息》**8**, 32 (2022)。