arXiv:2601.08449v1 [physics.atom-ph] 13 Jan 2026

采用从头算相对论方法研究氩中超快光电离的因果性

Rezvan Tahouri[1] **和 Jan Marcus Dahlstr¨om**[1,*]

[1]隆德大学物理系，瑞典隆德 SE-221 00

电子邮箱: *marcus.dahlstrom@fysik.lu.se

2026年1月

摘要。 我们使用相对论含时组态相互作用单激发（RTDCIS）方法，在长度规范（LG）和速度规范（VG）下进行从头算模拟，研究氩在 $3s$ 阿穆西亚–库珀极小值（ACM）处的实时光电离通量。我们采用一个简单的解析模型来解释结果，并构建两种规范下光电子的维格纳延迟和维格纳分布，以及相对论通道（ϵp_j 具有 $j = 1/2$ 和 $3/2$）。研究发现，两种规范产生的电离动力学在定性上不同：LG下的维格纳延迟为正，VG下则为负。VG下维格纳延迟所显示的数飞秒提前，对因果性提出了一些疑问，尤其是在原子受短于维格纳延迟绝对值的阿秒脉冲电离时。令人安心的是，采用RTDCIS对波包进行的数值模拟表明，两种规范下电子的行为都符合因果性。我们根据维格纳分布构造了加权延迟，将激发时间窗（或脉冲带宽）纳入考量，从而使数值模拟结果与简单的波包模型相一致。此外，研究还报告了光电子（j）的自旋轨道耦合对超快光电离动力学的显著影响，并在维格纳分布中识别出薛定谔小猫态和猫态，它们是ACM导致的结果。本研究为深入理解超快光电离以及强电子-电子关联效应体系中的因果性作用铺平了道路。

1. 引言

在多电子原子中，平均场效应和关联效应对束缚态及连续电子态的形成起着关键作用，进而影响原子对外部扰动的响应 [1]。电子轨道重塑如何改变光电离截面（CS） [2] ，一个显著例子是氩原子中的 $3p$ 轨道所产生的库珀极小值（CM）。库珀于1962年利用哈特里–福克（HF）近似中的冻结芯轨道首次预言了这一现象 [3], ；它与氢的截面单调递减趋势 [4] 以及较轻稀有气体原子的正矩阵元 [3, 5]形成鲜明对比。在独立粒子模型中，氩的 $3s$轨道不会产生这样的极小值。然而，Amusia于1972年预言 [6]，由于关联诱导的耦合，即从 $3p^{-1}$ 路径耦合至 $3s^{-1}$ 电离通道， $3s$产生的分波截面中应出现一个极小值。这种由关联诱导、出现在 $3s$通道 [6]分波截面中的阿穆西亚–库珀极小值（ACM），后来得到同步辐射测量的证实 [7]。人们为理解这种关联的本质付出了大量理论努力。已知氩中的 $3s^{-1}$ 和 $3p^{-2}nl$ 组态之间存在很强的组态相互作用（CI）；例如，多组态哈特里–福克（MCHF）计算表明 $3s^{-1}$ 单空穴组态仅占相应激发态氩离子的 ^2S（$3s3p^5$）态的 $\sim$ 70% [9, 10]。Carette最早研究了这类CI效应对光电离时间延迟的作用；据说他将其称为“氩噩梦”，因为MCHF能够成功再现 $3p^{-1}$ 通道中由 $3s^{-1}$诱导的法诺共振，却无法在当时再现 $3s^{-1}$ 通道中的整体ACM结构 [10]。因此，后续大量研究转而沿用Amusia的思路，采用含交换随机相位近似（RPAE） [11, 12, 13, 14, 15, 16], 、其相对论变体（RRPA） [17, 18, 19, 20, 21, 22, 23, 24], 以及含时局域密度近似（TDLDA） [25, 26, 27]。关于关联效应对光电离时间延迟影响的早期研究 [28] 也采用了含时R矩阵方法（RMT）[29], ；如今，该方法能够对原子和分子中的相关多光子效应及极化开展从头算研究 [30, 31, 32]。近期针对氩中 $3s$的光电离实验与理论研究 [33, 34, 35, 36]表明，要描述氩中高度关联的 $3s$ 轨道在阿秒时间尺度上的光电离，事实上需要考虑超越RPAE的效应。

量子时间延迟的概念最初由 Eisenbud [37] 和 Wigner [38] 在单通道散射的背景下提出，随后由 Smith [39], 推广到多通道情形，并由 de Carvalho [40]进行了综述。这一物理量被称为 Eisenbud-Wigner-Smith（EWS）延迟，或通常简称为维格纳延迟，后来被扩展到光电离领域，用于解释阿秒实验中电子波包的延迟 [41, 42, 43, 44, 45]。光电离中的维格纳延迟定义为偶极矩阵元相位对能量的导数，揭示了连续态（CS）无法直接提供的互补信息，并且已可通过实验获得

它可通过阿秒干涉技术间接测量，例如 RABBITT [46, 47, 48,49, 50, 51] 和阿秒条纹相机 [41, 42, 45]。在 ACM 处，偶极相位在复平面中迅速变化，因为偶极矩阵元非常接近于零 [6], ，从而对维格纳延迟产生显著影响 [11]。人们已经开展了跨越 $3s$ ACM 的光电离时间延迟测量，结果得到负延迟，这对应于与不存在关联时相比，电子波包出现提前 [33, 35]。相反，包括 RPAE 在内的多体理论预测了正值，即光电子相对于参考光电子延迟。[13]形式上的 RPAE 计算具有规范不变性，因此得到的维格纳延迟与所选规范无关且彼此一致。然而，两种常用的近似会使 RPAE 依赖于规范的选择 [15]: 实验结合能修正，这是一种以较低数值成本超越库普曼定理的方法；以及截断活性芯轨道，这使多体计算更易于收敛。在采用这些常见修改后，正延迟仍然存在 [12, 14]。这一谜题持续了十多年，直到一项联合实验与理论研究 [35] 通过 RPAE 计算纳入与摇跃通道的耦合，重现了高分辨率阿秒干涉测量中观测到的负维格纳延迟，从而解决了这一分歧。Isinger 等 人对氖中 $2p$ 通道与 $2s$ 通道之间的相对延迟进行了研究，结果表明，纳入摇跃通道已被证明会显著影响时间延迟；观测到的行为被归因于额外的关联诱导的摇跃通道 [51]。除开启离子通道外，氩中的摇跃机制 $3s$还会相干地移动主电离通道的相位，从而使来自 $3s$ 通道的光电子出现提前而非延迟。同时，利用克拉默斯–克ронн尼格关系将连续态（CS）与维格纳延迟联系起来，为研究复平面中的偶极开辟了新的视角 [34]。较大的光电子提前现象为详细研究超快激发中的因果性 提供了契机，例如，光电子不应在阿秒脉冲击中原子之前产生。

多体系统的物理描述通常需要根据所研究的可观测量采用不同的近似。在光电离中，电子-电子关联效应对理论模拟中的方法选择十分敏感，例如基函数的截断方式以及多体激发的层级。随后，光与物质之间相互作用哈密顿量的选择会引入规范依赖性；在具有完备基组的精确理论中，长度规范（LG）和速度规范（VG）等价，但含时单激发组态相互作用（TDCIS） [52, 53, 54, 55, 56]或其相对论扩展（RTDCIS） [57] 等近似方法会产生依赖规范的结果。自洽方法具有规范不变性，自然是首选方案 [58, 59], ，但依赖规范的理论仍可能为特定函数提供数值上高效的折中方案 [60]。例如，研究人员曾采用长度规范下的 RTDCIS [57]，研究法诺共振、CM 和巨共振等谱特征附近的自旋极化和空穴排列 [61, 62]。长度规范下的相互作用涉及电场及其偶极算符，

该算符严格适用于微扰相互作用和强耦合区域 [63]。对于处于强低频场中的单电子氢原子，相互作用包含动量算符，而研究发现速度规范下的结果更稳定 [64]。规范选择的自由源自经典电动力学：不同的势可以表示相同的物理场 [65]。在采用不完备基组的量子模拟中，光电子角分布或维格纳延迟等可观测量往往因规范不同而有所差异。在本研究中，我们采用 RTDCIS 方法，以相对论多电子波包开展实时、实空间研究，探究氩 $3s$ 在整个 ACM 范围内光电离的规范依赖性；这些波包由超短激光场产生。随后，我们将长度规范和速度规范下的 RTDCIS 模拟与解析模型相匹配，从而得到包含关联效应的偶极矩阵元的简单表达式。我们阐明了规范选择如何显著影响出射光电子波包时间延迟的理论预测，并利用维格纳分布讨论因果性的作用。

本文结构如下。第 2 节介绍我们的理论方法，其中第 2.1 节概述 RTDCIS 方法，第 2.2 节介绍解析模型。第 3 节展示数值结果：第 3.1 节介绍连续态（CS），第 3.2 节介绍维格纳延迟；第 3.3 节和第 3.4 节分别介绍阿秒激发和飞秒激发产生的含时相对论通量。第 4 节为讨论部分：第 4.1 节和第 4.2 节使用维格纳分布研究因果性的作用；第 4.3 节则给出我们对所观测到的 RTDCIS 通量延迟的最终解释。第 5 节总结全文。

2. 理论框架

2.1. 数值方法

相对论含时单激发组态相互作用方法旨在模拟超快电子动力学，并纳入自旋轨道耦合等相对论效应。其出发点是含时狄拉克方程（TDDE）：

$$\mathrm{i}\frac{d}{dt}|\Psi(t)\rangle = \left[\hat{H} + \hat{V}(t)\right]|\Psi(t)\rangle, \tag{1}$$

ˆ ˆ 其中， H 是无场哈密顿量， $V(t)$描述电子与外部相干场之间的相互作用。多电子波函数试探形式近似为狄拉克–福克基态和单激发组态的线性组合：

$$|\Psi(t)\rangle = c_0(t)|\Phi_0^{\mathrm{DF}}\rangle + \sum_{a,p} c_a^p(t)|\Phi_a^p\rangle, \tag{2}$$

其中，单激发组态 $|\Phi_a^p\rangle = \hat{a}_p^\dagger \hat{a}_a|\Phi_0^{\mathrm{DF}}\rangle$描述一个电子从占据轨道 a 跃迁至未占据（虚）轨道 p；基态$|\Phi_0^{\mathrm{DF}}\rangle = \hat{a}_N^\dagger ... \hat{a}_c^\dagger \hat{a}_b^\dagger \hat{a}_a^\dagger|0\rangle$则以真空态 $|0\rangle$为基础。该基组中的每个轨道 $|i\rangle$

都是四分量狄拉克旋量，由单电子平均场本征值狄拉克–福克方程的解得到：

$$\hat{h}_0^{\mathrm{DF}}|i\rangle = \varepsilon_i|i\rangle, \tag{3}$$

其中，$\hat{}$ h_0^{DF}包含相对论动能、核吸引以及一种称为狄拉克–福克势的有效单电子算符 $\hat{}\nu^{\mathrm{DF}}$，可写为

$$\hat{h}_0^{\mathrm{DF}} = c\,\boldsymbol{\alpha}\cdot\mathbf{p} + \beta c^2 - \frac{Z}{r} + \hat{\nu}^{\mathrm{DF}}. \tag{4}$$

这里，c 是光速，$\boldsymbol{\alpha} = (\alpha_x, \alpha_y, \alpha_z)$ 和 β 是狄拉克矩阵，Z 是核电荷，而$\mathbf{p} = -\mathrm{i}\nabla$ 和 r 分别是电子动量算符和位置。在球极坐标中，轨道 $|i\rangle$ 表示为

$$\langle\mathbf{r}|i\rangle \equiv \phi_{n,\kappa,m_j}(\mathbf{r}) = \frac{1}{r}\begin{pmatrix} P_{n,\kappa}(r)\,\chi_{\kappa,m_j}(\Omega) \\ \mathrm{i}\,Q_{n,\kappa}(r)\,\chi_{-\kappa,m_j}(\Omega) \end{pmatrix} \tag{5}$$

其中，$P_{n,\kappa}(r)$ 和 $Q_{n,\kappa}(r)$ 分别是径向大分量和小分量，$\chi_{\pm\kappa,m_j}(\Omega)$ 是自旋角分量，Ω 表示 θ 和 ϕ 坐标，而$\{n, \kappa, m_j\}$ 是量子数 [66, 67]。

该系统的总无场哈密顿量写为：

$$\hat{H} = \hat{H}_0^{\mathrm{DF}} + \hat{H}_1 - E_0^{\mathrm{DF}}. \tag{6}$$

这里，$\hat{}$ H_0^{DF}是所有独立作用于各个电子的单电子狄拉克–福克算符之和：

$$\hat{H}_0^{\mathrm{DF}} = \sum_{i=1}^{N} \hat{h}_0^{\mathrm{DF}}(i), \tag{7}$$

$\hat{}$，其中 N 是电子总数。然后，H_1 是库仑相互作用与狄拉克–福克势之差：

$$\hat{H}_1 = \sum_{i=1}^{N}\left(-\hat{\nu}^{\mathrm{DF}}(i) + \frac{1}{2}\sum_{j>i}^{N}\frac{1}{|\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|}\right). \tag{8}$$

常数 E_0^{DF} 是狄拉克–福克基态的能量，减去该能量后便以零能量为参考。长度规范下的相互作用哈密顿量为

$$\hat{V}_{\mathrm{LG}}(t) = \sum_{i=1}^{N} E(t)\hat{z}(i), \tag{9}$$

其中，$E(t)$ 是相干场的电场，假设其沿 z 轴线性偏振，而 $\hat{}z$ 是偶极算符的 z 分量。在速度规范下，相互作用也可以用矢

势 $A(t)$ 表示，它与电场的关系为 $E(t) = -dA(t)/dt$ ，而动量算符的 z 分量 $\hat{}\alpha_z$ 则为

$$\hat{V}_{\mathrm{VG}}(t) = \sum_{i=1}^{N} cA(t)\hat{\alpha}_z(i), \tag{10}$$

其中混合了大分量和小分量。将波函数试探形式（式（2））代入含时狄拉克方程（TDDE）（式（1）），可得到关于 c_0（t）和c_a^p（t）[57]的实时含时受限组态相互作用运动方程（RTDCIS）。这些方程描述了激光场如何影响基态与激发态之间的跃迁，以及在受限组态相互作用（CIS）层面，激发态如何由于电子-电子相互作用而彼此相互作用。

在量子力学中，概率流表示为 [65]:

$$\mathbf{j}(\mathbf{r},t) = -\frac{\mathrm{i}}{2}\Big[\Psi^*(\mathbf{r},t)\nabla\Psi(\mathbf{r},t) - \nabla\Psi^*(\mathbf{r},t)\Psi(\mathbf{r},t)\Big]. \tag{11}$$

在 RTDCIS 框架内，利用含时狄拉克方程（TDDE）（式（1））的相对论多电子解以及式（5）的含时四分量波函数，可以得到含时光电子通量。在实际应用中，我们关注的是离开半径为 R 的球形体积的光电子，这将导出出射通量的积分表达式:

$$\mathcal{J}_{\kappa;h}(R,t) = -\mathrm{i}c\Big[P^*_{\kappa;h}(R,t)Q_{\kappa;h}(R,t) - Q^*_{\kappa;h}(R,t)P_{\kappa;h}(R,t)\Big], \tag{12}$$

该式给出了从空穴 h 电离出的光电子通量，其中光电子具有不同的相对论量子数 κ 。

2.2. 解析模型

为了阐释氩的 $3s$ACM 附近 RTDCIS 的结果，我们采用一个描述偶极矩阵元随频率变化的模型 [35],

$$z_{\pm}(\omega) = z_0(\omega)\left[1 - \varkappa \mathrm{e}^{\pm \mathrm{i}\Delta\varphi}\arctan\left(\frac{\omega-\epsilon_z}{\Delta\epsilon_z}\right)\right], \tag{13}$$

$$z_0(\omega) = a\omega^{-b}\mathrm{e}^{\mathrm{i}\sigma_{1(\omega)}}\theta(\omega - I_p), \tag{14}$$

它将未关联背景与由反正切函数表示的关联诱导项区分开来，以模拟 $3p$ CM 附近虚跃迁的影响。我们指出，该模型是特设的，依据的是物理直觉而非形式推导；然而，近期研究已证明，同一模型有助于解释非相对论情形下的维格纳延迟行为 [35]。在此方程中，偶极矩阵元的缓慢变化部分为 $z_0(\omega)$， $\varkappa$ 表示关联强度，而 $\Delta\varphi$ 表示关联项的相对相位。关联项前的负号来自两个 –i 相位因子的综合作用：一个来自散射相位，另一个来自高阶微扰理论，因此虚跃迁路径中出现 $(-\mathrm{i})^2 = -1$ 。在我们的模型中， ϵ_z 和 $\Delta\epsilon_z$ 分别是虚 $3p$ CM 的频率和宽度，该虚 $3p$ CM 通过通道间耦合转移至 $3s$ 通道。未关联偶极矩阵

元 $z_0(\omega)$ 取决于常数 a 和 b，而 $\sigma_1(\omega) = \arg\left[(\Gamma(2 - \mathrm{i}/k(\omega))\right]$，它是 p 波的库仑相位（$\ell = 1$）；其中 $\Gamma(x)$ 为伽马函数，$k(\omega) = \sqrt{2(\omega - I_p)}$ 为光电子动量，且 $I_p = 1.2865\,\mathrm{au} = 35.007\ \mathrm{eV}$，为 RTDCIS 中 $3s$ 轨道的电离能。然后，相对论情形下长度规范和速度规范中的连续态（CS）分别写为：

$$\sigma_{\mathrm{LG}}(\omega) = 4\pi^2\alpha\omega|\hat{z}(\omega)|^2 \times a_0^2[\mathrm{Mb}], \tag{15}$$

$$\sigma_{\mathrm{VG}}(\omega) = \frac{4\pi^2\alpha|c\hat{\alpha}_z(\omega)|^2}{\omega} \times a_0^2[\mathrm{Mb}], \tag{16}$$

其中 α 是精细结构常数，而 $a_0^2[\mathrm{Mb}] = 28.0028$ 是从原子单位换算为兆靶恩（Mb）的换算因子。相对论矩阵元 $c\hat{\alpha}_{z,\pm}(\omega)$ 的建模方式与 $z_\pm(\omega)$ 相同，均使用式（13）。在长度规范和速度规范下分别通过拟合连续态与相应的 RTDCIS 结果来确定模型参数。连续态不依赖于关联相位的正负，因此我们只能通过这种拟合确定 $|\Delta\varphi|$ [35]。使用式（15）和式（16）中的连续态进行计算时，相对相位的正负仍存在歧义。

利用连续态拟合参数后，我们计算维格纳延迟，它是电离相位 $\phi = \arg(z_\pm(\omega))$ 随能量变化的度量。维格纳延迟定义为 $\tau_{\mathrm{EWS}} = d\phi/dE$，因此对不同的正负号 $\pm|\Delta\varphi|$ 高度敏感。为了研究光电离过程随真实时间的变化，我们使用式（13）中的偶极矩阵元构建相干径向波包（针对 p 波）：

$$\Psi_\pm(R,t) \propto \int d\omega\, z_\pm(\omega) g_{\omega_0,\tau}(\omega) \mathrm{e}^{\mathrm{i}[k(\omega)R - (\omega - I_p)t + \ln(2k(\omega)R)/k(\omega)]}. \tag{17}$$

非关联波包 $\Psi_0(R,\ t)$ 的形成方式相同，但使用 $z_0(\omega)$ 而非 $z_\pm(\omega)$。谱包络 $g_{\omega_0,\ \tau}(\omega)$ 在 VG 中取为高斯函数，定义如下：

$$g^{\mathrm{VG}}_{\omega_0,\tau}(\omega) = \exp\left[-\frac{\tau^2}{8\ln 2}(\omega - \omega_0)^2\right], \tag{18}$$

其中中心能量为 ω_0。在 LG 中，滤波函数由 VG 中矢势的时间导数计算得到，结果为 $g^{\mathrm{LG}}_{\omega_0,\ \tau}(\omega) = \mathrm{i}\omega g^{\mathrm{VG}}_{\omega_0,\ \tau}(\omega)$。利用解析模型，可得到半径为 $r = R$ 处出射光电子随时间变化的径向通量：

$$\mathcal{J}_\pm(R,t) = \mathrm{i}\hbar/2m_e[\Psi^*_\pm\partial_r\Psi_\pm - \Psi_\pm\,\partial_r\Psi^*_\pm]_{r=R} \tag{19}$$

通过拟合 RTDCIS 结果获得模型参数后，我们在时域中研究两种规范下的波包。这种方法使我们能够考察规范选择对频域和时域物理过程的影响。

为同时可视化光电离过程的时间和光谱特征，采用时能维格纳分布函数 $\mathcal{W}(\omega,\ t)$。其定义为 [68]：

$$\mathcal{W}(\omega,t) = \frac{1}{\pi}\,\mathrm{Re}\left[\int_{-\infty}^{\infty} \mathcal{Z}^*(\omega+\omega')\,\mathcal{Z}(\omega-\omega')\,e^{2it\omega'}\,d\omega'\right], \tag{20}$$

此前，该方法已用于研究光电离中的波包 [35, 69]。其中，$\mathcal{Z}(\omega)$ 是有效偶极振幅，计算方式为 $\mathcal{Z}(\omega) = z(\omega)g_{\omega_0,\,\tau}(\omega)$，用于通过高斯函数对偶极振幅进行滤波，该高斯函数对应的时间宽度与含时通量计算中的相同。

3. 结果

3.1. 拟合 *RTDCIS* 的模型截面

首先，我们使用 RTDCIS 进行相关计算，在 VG 和 LG 中仅纳入 $3s$ 和 $3p$轨道耦合，并采用不同的中心频率和 12 fs 的脉冲持续时间。其次，我们优化模型，使其重现这些数值模拟得到的 $3s$分波截面，得到方程（13）和（14）中参数的如下取值:

表1：通过将 $3s$的解析分波截面拟合到 RTDCIS 在 LG 和 VG 中得到的数值结果而获得的模型参数。

	ϵ_z （eV）	$\Delta\epsilon_z$ (电子伏特)	$\varkappa$	$\Delta\varphi$ (弧度)	a	b
LG	40.27	65.03	1.30	0.04	0.31	0.80
VG	38.64	43.53	3.69	0.05	0.32	0.23

在长度规范（LG）中，虚拟的 $3p$ CM位于更高能量（ϵ_z）处，且相比速度规范（VG）具有更宽的谱（$\Delta\epsilon_z$）。速度规范中的关联更强，因为 $\varkappa_{\mathrm{VG}} \approx 3 \times \varkappa_{\mathrm{LG}}$；而两者的关联相位相近，幅度都相当小；在VG中约占 2π的0.8%，在LG中约占 2π 的0.6%。

在图1(a)中，展示了氩的 $3s$分波截面：一方面是使用飞行时间（TOF）测量、来自参考文献 [7]的实验结果，另一方面是使用RTDCIS在长度规范（LG）和速度规范（VG）下计算得到的理论结果，同时给出了由解析模型（公式（15）和（16））得到的相应拟合曲线。如前所述，在截面层面，关联相位的符号是不明确的，因此对于每个数值结果，模型都有两个符号相反但 $|\Delta\varphi(\omega)|$相同的相应拟合。比较两种规范，LG将自相关最小值现象（ACM）定位在51.25 eV处，而VG定位在43.6 eV处。在ACM之前（35 eV处），两种规范的截面相近；而在ACM之后（60 eV处），VG的截面几乎比LG大一个数量级。与任一规范预测的截面相比，实验数据具有更宽的结构，且其最小值与VG的结果更加接近。需要指出的是，RPAE与截面的吻合更好，参见参考文献[14]。这表明RTDCIS中的两种规范都无法定量准确地再现实验结果，但都定性地再现了自相关最小值现象。

图 1(b) 和 (c) 分别展示了 VG 和 LG 下两个相对论通道（即$3s_{1/2} \to \epsilon p_{1/2}$ 和 $3s_{1/2} \to \epsilon p_{3/2}$）的分波截面。对于 VG，$\epsilon p_{1/2}$的总角相关极小值

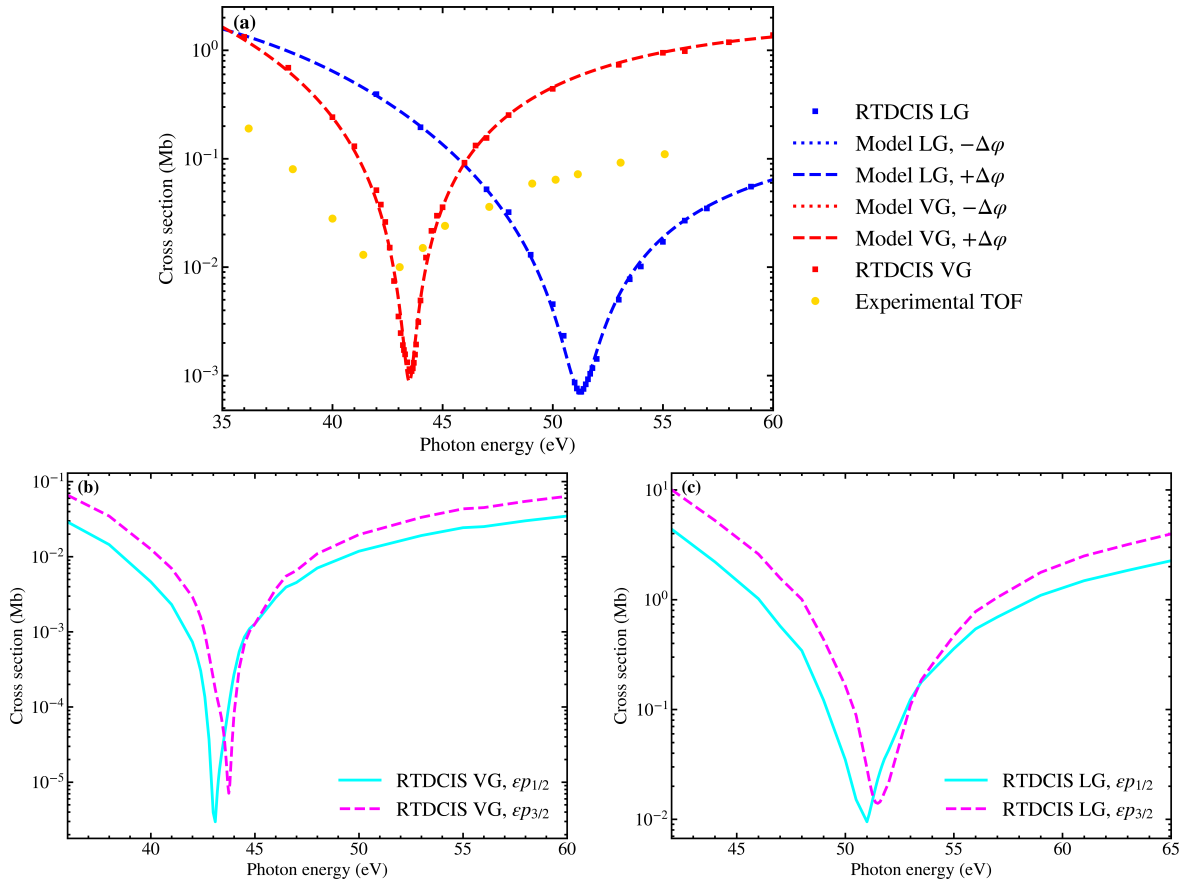

图1： (a) 使用 RTDCIS（方块）和解析模型（曲线）计算的氩 $3s$ 轨道的光电离截面，分别采用长度规范（蓝色）和速度规范（红色），并与文献[7]中的实验飞行时间测量结果（橙色圆点）一同展示。(b) 和 (c) 分别展示速度规范和长度规范下 $3s_{1/2} \to \epsilon p_{1/2}$ （青色曲线）与 $3s_{1/2} \to \epsilon p_{3/2}$ （洋红色曲线）相对论通道的分波截面。

位于 43.1 eV，而$\epsilon p_{3/2}$ 位于 43.75 eV，因此 43.6 eV 处的总角相关极小值明显更接近 $j = 3/2$ 的贡献。对于 LG，$\epsilon p_{1/2}$ 通道的极小值位于 51 eV，而$\epsilon p_{3/2}$ 的极小值位于 51.5 eV； $3s$ 的总极小值则位于这两个值之间，即 51.25 eV。此外，VG 下的相对论通道分辨截面的极小值比 LG 下的截面以及任一规范下的总截面深两个数量级。Baral*et al.* 近期利用 RRPA [22], 证明，高-Z 原子中的这种 CM 相对论分裂非常显著，其角分布不对称参数偏离非相对论值 2 [23]。本文探讨一个问题：在氩的 $3s$ 中，较不显著的相对论能移（见图 1(b) 和 (c)）是否会影响使用调谐至 (a) 图总角相关极小值频率的脉冲时含时通量的行为。

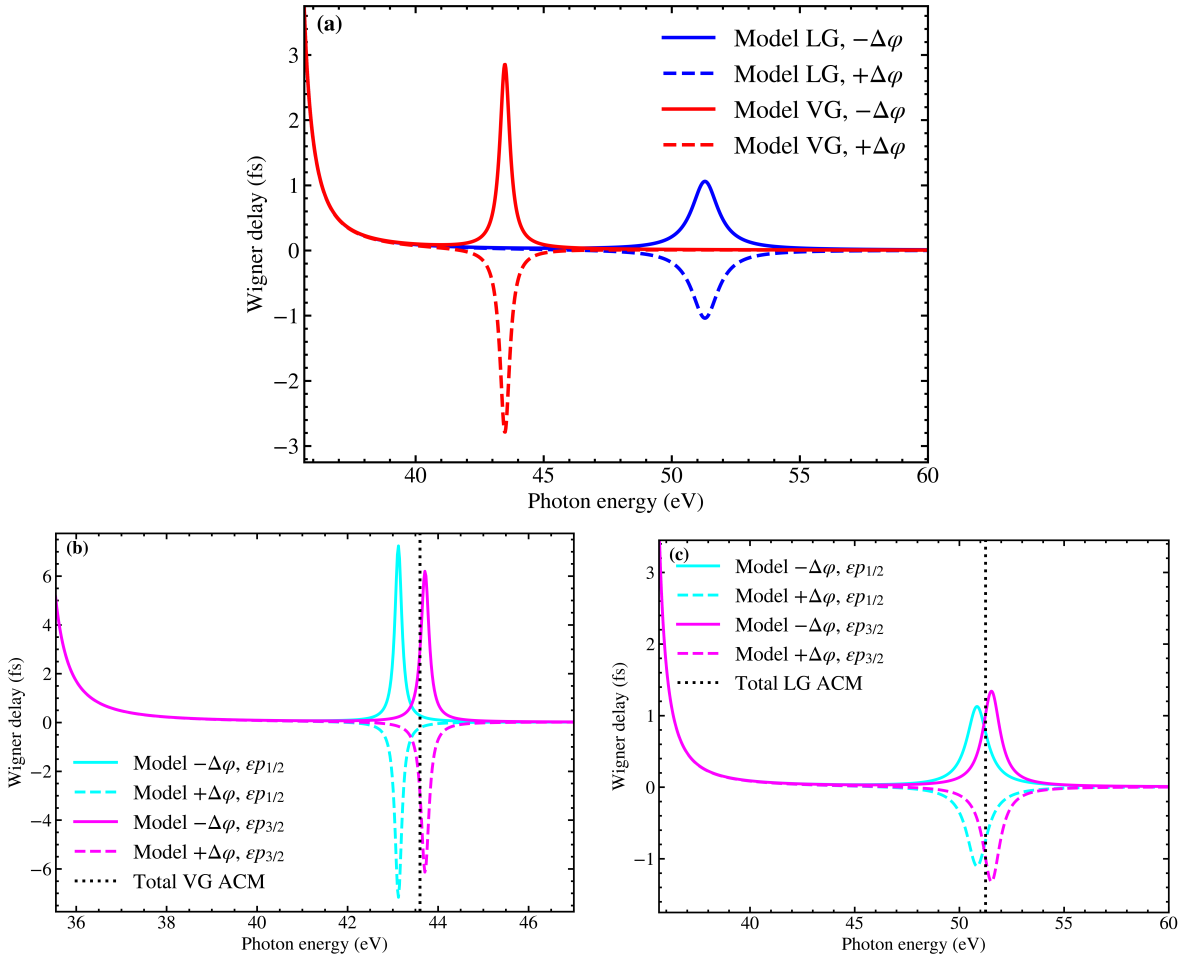

图 2：使用通过将模型的连续态（CS）拟合至 RTDCIS 模拟的连续态所得参数，从解析模型中提取的 Wigner 时间延迟：总计 $3s$轨道 (a)，以及速度规范 (VG) 下的相对论通道 (b) 和长度规范 (LG) 下的相对论通道 (c)。面板 (b) 和 (c) 中的竖直点线标出了面板 (a) 中相应规范下总 Wigner 延迟达到极值时的光子能量。

3.2. 相对论模型的 *Wigner* 延迟

图 2 展示了总计 $3s$ 轨道 (a) 以及分离的相对论通道 (b) 和 (c) 中，解析模型计算得到的 $3s$ACM 附近维格纳时间延迟随光子能量的变化。由于光电子维格纳延迟定义为式 (13) 中偶极矩阵元相位的能量导数，当 $z_{\pm}(\omega)$ 接近零时，延迟会达到极值；这种情况出现在 ACM 处。因此，除 ACM 附近外，维格纳延迟几乎为零；而在两种规范下，延迟在各自的 ACM 附近都达到较高值。唯一的例外是光子能量接近电离阈值时，由于库仑相位的影响，维格纳延迟会出现较高值。图 2(a) 展示了总计 $3s$时间延迟，其中 VG 曲线更尖锐，达到较高的 ± 2.84fs 值；而在 LG 中，最大值

则降至 ± 1.05 fs，且峰宽更大。需要指出的是，维格纳延迟的幅值大于参考文献 [35]，近期报道的数值；该研究考虑了摇激过程。在每种规范下，相对于 $\Delta\varphi = 0$ 的微小相移都会导致 ACM 附近的延迟发生显著变化，使维格纳延迟峰的符号翻转。正的维格纳时间延迟意味着关联波包相较于非关联波包有所延迟，而负值则意味着其有所提前。使维格纳延迟符号翻转所需的相移仅为 LG 中的 0.08 rad ($4.6°$) 和 VG 中的 0.10 rad ($5.7°$)，这表明在 ACM 的相消干涉处，光电离时间延迟对复振幅的相干叠加十分敏感。

图2(b)和(c)分别展示了VG和LG中的分通道维格纳延迟，对应于图1(b)和(c)所示的CS。在图2(b)中，VG呈现出维格纳延迟峰的通道依赖性：与 $j = 1/2$通道相比，$j = 3/2$ 出现在更高能量处，且峰值较低。在LG中，图2(c)显示各通道的维格纳延迟极大值也发生了偏移，其中$\epsilon p_{3/2}$ 的能量高于$\epsilon p_{1/2}$。然而，与VG相反，$j = 3/2$ 通道的延迟峰值大于 $j = 1/2$通道。此外，LG中两个相对论通道的能量间隔小于VG中的间隔。

p

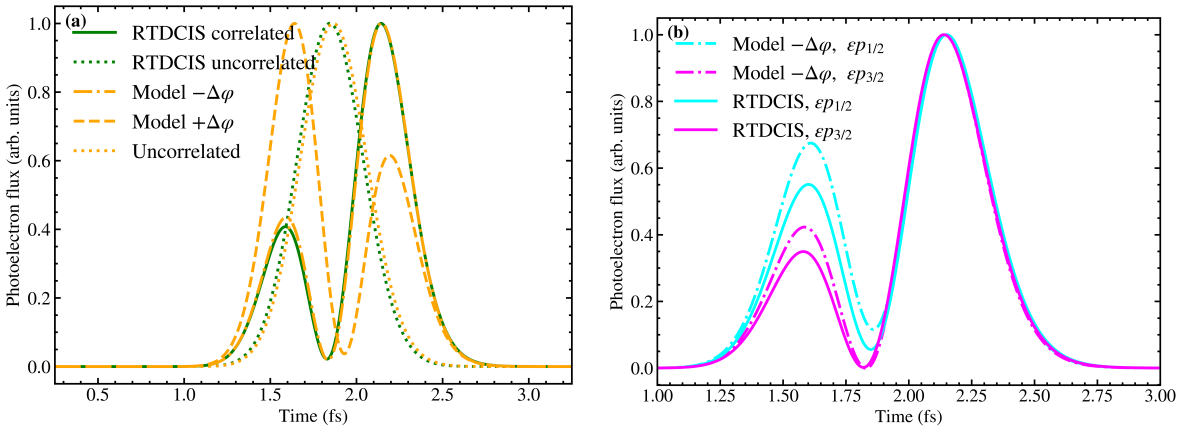

图3：（a）在 $R \simeq 87.55$ 玻尔处观测到的LG光电子流，其中 $\tau = 362.7$为阿秒，光子能量为ACM，强度为 $I = 10^{12}$ W/cm^2；结果来自RTDCIS和模型。（b）与（a）中RTDCIS相关情形及模型对应的分通道（ϵp_j）通量，符号为负 $\Delta\varphi$

3.3. 含时相对论通量：阿秒脉冲激发

接下来，我们研究系统与持续时间为 $\tau = 362.7$ 阿秒、强度为 $I = 10^{12}$ W/cm^2 的阿秒脉冲相互作用时的含时通量；该脉冲调谐至各规范的 $3s$ ACM（即，长度规范下为 $\omega_0 = 51.25$ eV，速度规范下为 $\omega_0 = 43.6$ eV）。光电子的观测点位于 $R \simeq 87.55$ 玻尔处。图 3 (a) 展示了归一化通量，其计算方式为

采用 RTDCIS 数值求解式 (12)（绿色曲线），以及使用式 (19) 拟合的模型（橙色曲线）。数值结果中有两种情形：非关联情形，即模拟中仅激活 $3s$ 通道；以及激活 $3s$ 和$3p$ 的关联情形。解析通量有三种可能：非关联情形，以及具有正、负相移的关联情形。RTDCIS 和模型给出的非关联曲线分别在 1.84 fs 和 1.86 fs 处出现单峰。然而，关联情形呈现双峰特征；光电子分为运动较快和较慢的两部分，两者之间的极小值体现了时域中的 ACM。慢电子在 ACM 之后到达观测面，快电子则在此之前到达。非关联曲线的峰值可作为合适的时间参考，因此我们可以可靠地讨论关联通量不同部分相对于该参考的到达时间。在关联情形中，若慢电子峰占主导，则意味着总通量比参考时间更晚到达；若快电子峰占主导，则情况相反。图 3 (a) 中，实线与点划线吻合良好；两者均呈现明显的慢电子峰，而虚线在快电子部分的通量更大。这表明，要使模型得到的通量分布与长度规范下 RTDCIS 的结果一致，$\Delta\varphi$必须取负号，且相关光电子相较于非关联情形有所延迟。这种延迟与 RPAE 对维格纳延迟的计算结果一致，因为后者同样显示出一个正的峰值 [13, 12]。

图 3(b) 展示了关联 RTDCIS 产生的相对论通道分辨通量，以及采用负关联相位的模型计算得到的通量。结果显示，通量仅随自由电子的 j 值 ϵp_j 发生细微变化。各通道在略有不同的位置达到局部最小值，且慢电子占主导。模型和 RTDCIS 中，快电子峰呈现出较弱的 j 依赖性。总体而言，这个简单模型能够很好地再现从头算 结果，但会略微夸大快电子峰。

3.4. 含时相对论通量：飞秒脉冲激发

图4展示了在脉冲持续时间为 4.84 fs 时，通过 RTDCIS 模拟和两种规范下的模型计算获得的光电子流。在 LG 的面板 (a) 中，通量呈现单峰结构，这表明对于该规范，所采用的脉冲持续时间在能量上较窄。在面板 (b) 所示的 VG 中，则出现了通道依赖行为；$\epsilon p_{1/2}$ 呈现单峰结构，而 $\epsilon p_{3/2}$ 有两个峰。在这种情况下，两个通道在图1 (b) 和图2 (b) 中均表现出相当程度的展宽，这表明仅凭脉冲持续时间无法解释二者之间的显著差异。相反，注意到总 $3s$ ACM更接近 $j = 3/2$ 通道，其动力学受到的影响更强，而 $j = 1/2$ 失谐程度更高，因此受影响较小，便可以理解这一行为。此外，在 LG 中，相关通量的峰值晚于非相关通量的峰值，而在 VG 中则更早出现。这意味着光电子会

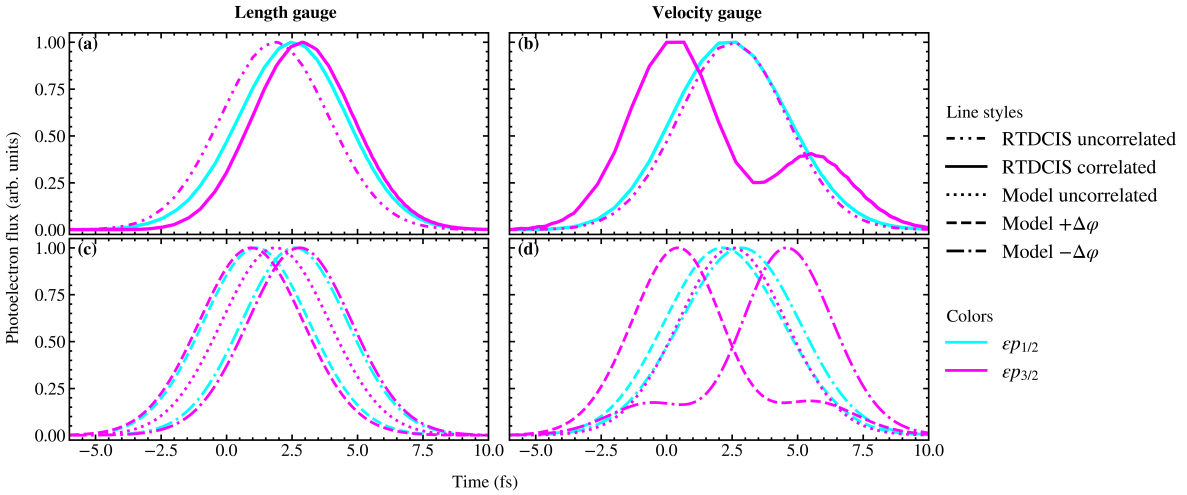

图 4：脉冲持续时间为 4.84 fs、强度为 $I = 10^{12}$ W/cm^2，且光子能量调谐至各规范的 ACM 频率时，在 $R \simeq 87.55$ 玻尔处的分通道光电子通量。面板 (a) 和 (b) 分别显示长度规范（LG）和速度规范（VG）下的 RTDCIS 结果，面板 (c) 和 (d) 则显示相应的模型计算。在所有面板中，曲线颜色表示粒子的角动量ϵp_j。点划点线表示非关联 RTDCIS 结果，实线表示关联 RTDCIS 结果。点线表示非关联模型计算，而虚线和点划线分别表示具有正相位和负相位的关联模型结果。

在 LG 中延迟，而在 VG 中提前。
图 4 (c) 和 (d) 分别是长度规范（LG）和速度规范（VG）下相应的模型模拟，每种规范下相关相移 $\Delta\varphi$ 的符号都有两种可能。通过比较每一侧的上、下面板可以确认，模型中负相移对应的曲线与长度规范下的关联 RTDCIS 结果吻合良好。相比之下，速度规范下则是正相关相位与结果吻合。从物理上看，光电子在长度规范下有所延迟，而在速度规范下则有所提前，这表明 RTDCIS 预测两种规范下存在不同的时间行为。尽管光电离截面看起来相似，规范自由度仍会导致时域中的光电子动力学呈现定性差异。

4. 讨论

在本节中，我们讨论数值结果和解析结果的一般解释。在图 1 的 VG (b) 和 LG (c) 中，我们看到，与 $j = 1/2$ 通道相比，带有 $j = 3/2$ 的相对论通道的 ACM 出现在更高的光子能量处，且深度更小。图 2 (b) 和 (c) 所示的相应维格纳时间延迟表明，VG 结果中的延迟峰分离得更加明显

于 LG 结果。延迟峰的分离如何影响通量的结构，取决于确切的脉冲持续时间和中心光子能量。在所展示的结果中，每种规范下的光子能量均调谐至 $3s$的总计连续态的 ACM。对于 VG，响应与 $j = 3/2$ 相比对$j = 1/2$呈现出更强的共振，这一点由图 2(b) 中的竖线表示。相比之下，对于 LG，场与两个 j值的共振程度更加均匀，如图 2(c) 中的竖线所示。

通过比较图 3 中的长度规范结果（短脉冲，持续时间为 362.7 as）与图 4(a) 和 (c) 中的结果（较长脉冲，持续时间为 4.84 fs），可以看出脉冲持续时间的显著影响。观察发现，较长脉冲下双峰变为单峰。短脉冲的能量范围更宽，会激发快速和缓慢运动的电子，它们在观测点分别于不同的到达时间到达。此外，脉冲持续时间的影响在两种规范下并不相同，如图 4 所示：长度规范结果 (a) 中两个相对论通道都呈现单个波包，而速度规范结果 (b) 则表现出不同的波包动力学，其中 $j = 3/2$ 通道的到达时间持续分离。最后，根据图 4 所示的解析模型，我们可以从 RTDCIS 的通量推断，在相对论 ACM 处，速度规范呈现负的维格纳延迟峰，而长度规范呈现正峰。

4.1. 使用维格纳分布考察激发的作用

为进一步分析脉冲持续时间对光电子时间结构和能量结构的同时影响，我们考察式（20）中定义的维格纳分布。图 5 展示了 VG 中的维格纳分布（负维格纳延迟 $=$ 正相关相位），对应四种脉冲持续时间：面板 (a) 和 (e) 为 363 as，面板 (b) 和 (f) 为 1.93 fs，面板 (c) 和 (g) 为 4.84 fs，面板 (d) 和 (h) 为 10.00 fs； $j = 1/2$ （上排）和 $3/2$ （下排）。对于最短脉冲，两个相对论通道均呈现干涉，其特征是中心区域为负值，周围则为正值。该维格纳分布令人联想到量子光学中的薛 ¨定谔小猫态，参见文献 [70], ，因为它由两个光电子波包相干叠加而成：一个较慢，另一个较快。随着脉冲持续时间增至中等值，干涉明显呈现通道依赖性： $j = 3/2$相对论通道保持清晰的干涉结构，类似于薛 ¨定谔猫态，而另一个通道则呈现近乎单峰且分布更接近高斯函数的形态。对于较长脉冲，干涉逐渐减弱， $j = 1/2$ 通道呈现正分布，且能量高于 $j = 3/2$ 通道。相对论通道之间这种有效能量位移，可归因于相对论连续态斜率方向相反。还需注意， $j = 3/2$ 通道的负时间位移与 VG 中 ACM 的负维格纳延迟一致。

我们的分析表明，对于每个 j 量子数而言，时间特征对确切的脉冲持续时间和共振能量高度敏感。因此，

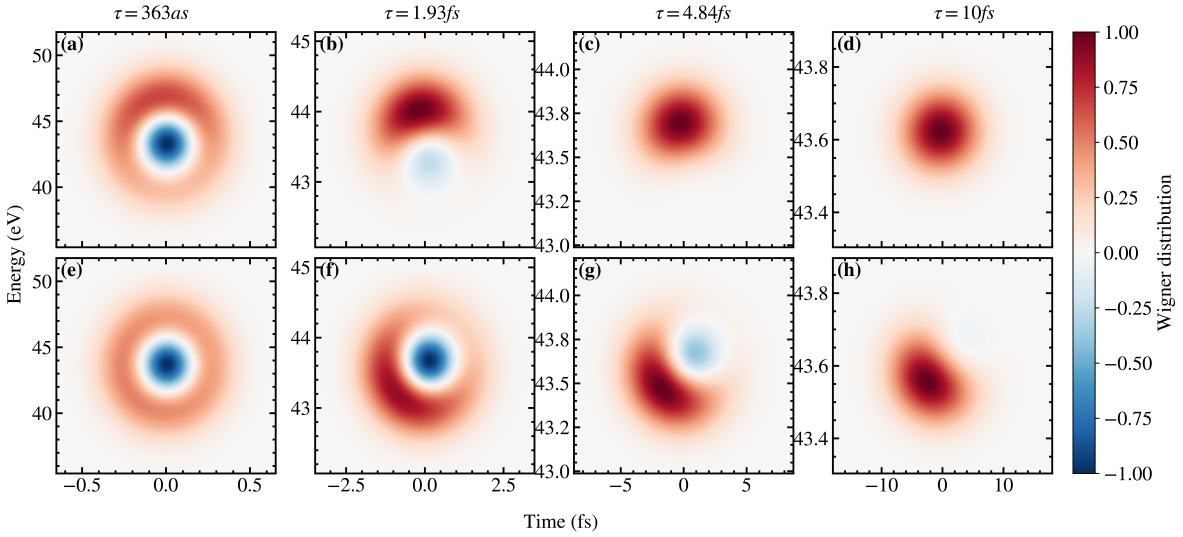

图5：具有正相关相位的VG中不同脉冲持续时间和相对论通道下的维格纳分布：顶行对应 $j = 1/2$ ，底行对应$j = 3/2$；面板(a)和(e)的脉冲持续时间为363 as，面板(b)和(f)为1.93 fs，面板(c)和(g)为4.84 fs，面板(d)和(h)为10 fs。

我们现在定义一个加权延迟：

$$\bar{\tau} = \frac{\int dt \int d\omega\, t\, \mathcal{W}(\omega, t)}{\int dt \int d\omega\, \mathcal{W}(\omega, t)} = \frac{\int dt\, t\, |\tilde{\mathcal{Z}}(t)|^2}{\int dt\, |\tilde{\mathcal{Z}}(t)|^2}, \tag{21}$$

以及一个加权能量：

$$\bar{\omega} = \frac{\int dt \int d\omega\, \omega\, \mathcal{W}(\omega, t)}{\int dt \int d\omega\, \mathcal{W}(\omega, t)} = \frac{\int d\omega\, \omega\, |\mathcal{Z}(\omega)|^2}{\int d\omega\, |\mathcal{Z}(\omega)|^2}, \tag{22}$$

˜使用有效偶极矩 $\mathcal{Z}(\omega)$及其傅里叶变换 $\mathcal{Z}(t)$。与传统维格纳延迟不同，加权延迟通过有效偶极矩中的带宽滤波器，将激发的时间持续范围纳入考量。加权物理量的数值列于表2中。在VG和LG中，随着 τ 变长，$\bar{\omega}$ 朝向 ω_0增加（减小），分别对应 $j = 1/2$ （$j = 3/2$）；因此，对于每个脉冲持续时间， $\bar{\omega}$ 在 $j = 1/2$ 中都大于 $j = 3/2$中的值。 $\tau = 0.363$ fs且 $j = 1/2$在LG中的情况是这一简单规律的唯一例外，这是由于较大的带宽覆盖了整个ACM。

4.2. ACM 处因果性的本质

考察 $\bar{\tau}$ 表2中的数据可以发现，长度规范中的数值大多为负，而在长度规范中则为正，这与两种规范在 τ_{EWS}表3中的维格纳延迟在定性上是一致的。不过，对于阿秒脉冲存在一个异常情况，见表2中 $\bar{\tau}$ 的 $\tau = 363$，此时速度规范中的加权延迟变为正值，即光电子变为延迟而非提前。这引出了一个问题：维格纳

延迟方法是否不适用于阿秒脉冲? 一般而言，随着 τ 变长， $|\bar{\tau}|$ 在两种规范和各个通道中都会增加。对于 $j = 3/2$ 而言， $|\bar{\tau}|$ 的数值在所有脉冲持续时间下都远大于速度规范中的 $1/2$ 。在长度规范中， $3/2$ 和$1/2$ 的两个加权延迟更为接近，并且也会随着脉冲持续时间的增加而增加。我们预期，在给定中心频率下，随着激发窗口扩大，加权延迟将趋近于维格纳延迟；在长度规范中确实观察到了这一点。在速度规范中，截面的剧烈变化仍可能影响加权延迟。我们将这一行为解释为直接因果性的结果：光电子波包不会在脉冲的主要激发窗口之外产生： $|\bar{\tau}| < \tau/2$。表2中的所有加权延迟都符合这一直接因果性论证，从而简单解释了为什么随着激发脉冲变短，加权延迟的绝对值会减小。

为推导这一结果，我们可以将有效˜偶极的傅里叶变换视为时域中光电离的响应， $\mathcal{Z}(t) = \mathrm{FT}[\mathcal{Z}(\omega)]$。若将能量域中的偶极近似为常数， $z(\omega) \approx a_0$，那么响应函数就只是谱包络的傅里叶变换， $\mathcal{Z}(t) = \mathrm{FT}[a_0 g(\omega)] = a_0 \tilde{g}(t)$；对于高斯函数而言，其时域形式也将是高斯函数。相反，若偶极是能量的一次多项式， $z(\omega) \approx a_0 + b_0\omega$，那么时间响应将是时间包络及其时间导数的线性组合， $\mathcal{Z}(t) = \mathrm{FT}[(a_0 + b_0\omega)g(\omega)] = a_0\tilde{g}(t) + ib_0\tilde{g}(t)$；对于高斯包络，这意味着偶对称（单峰）和奇对称（双峰）部分共同塑造了响应。从定性上说，这一简单论证解释了图 3 和图 4 中发现的不对称双峰结构。更高阶的多项式展开会进一步改变时间响应的形状，但总体而言，响应仍局限于初始脉冲附近，我们将其称为直接因果性。

更一般地，因果性禁止结果先于作用发生： $\tilde{z}(t) = 0 \text{for } t < 0$，而任何在上半能量复平面内解析的 $z(\omega)$ 都满足这一条件。如果偶极包含一个极点，例如布赖特-维格纳共振:

$$z_{\mathrm{BW}}(\omega) = \frac{1}{(\omega - \Omega + i\Gamma/2)} = \frac{2/\Gamma}{(\epsilon + i)}, \tag{23}$$

其中 $\epsilon(\omega) = (\omega - \Omega)/(\Gamma/2)$，那么因果性论证的范围就扩展到 $-\tau/2 < \bar{\tau} < 1/\Gamma$，其中 $\tau < 1/\Gamma$。发射时间的这种延长是由卷积造成的，

$$\tilde{\mathcal{Z}}_{\mathrm{BW}}(t) \sim \int dt' \tilde{g}(t - t') \exp(-i\Omega t') \exp(-\Gamma t'/2)\theta(t'), \tag{24}$$

使系统记忆能够在入射脉冲的直接因果窗口之后作出响应。由于因果性，共振偶极矩的复共轭 $z^*_{\mathrm{BW}}(\omega)$ 不是一种允许的偶极模型，因为它会在复平面上半部包含一个极点。因此，不存在相位歧义：BW共振处的维格纳延迟峰始终 为正——共振会暂时俘获光电子。对于法诺共振，

$$z_{\mathrm{F}}(\omega) = \frac{(q + \epsilon)}{(\epsilon + \mathrm{i})}, \tag{25}$$

其中法诺参数为实数： $q \in \mathbb{R}$，且极点同样位于复平面下半部。其响应与布赖特–维格纳情形一样具有因果性。从物理上看，此时共振路径与直接路径发生干涉，产生具有两个不同贡献的偶极相位：

$$\arg(z_{\mathrm{F}}) = \arg(q+\epsilon) - \arg(\epsilon+\mathrm{i}), \tag{26}$$

其中，前者是由干涉导致、在 $\epsilon = -q$ 处发生的 π 不连续相位跃变，而后者与布赖特–维格纳情形完全相同。实数 q参数有两种允许的符号，它们会影响连续态截面的形状和偶极 [71]的相位。若将法诺参数取为复数： $q \in \mathbb{C}$，则不连续的相移会变得平滑；当 Im $q > 0$（Im $q < 0$）时，相位会局部减小（增大），参见文献 [72, 73]。研究发现，复数 q 对应的法诺线型与 ACM [34], 拟合良好，而附加的最小相位条件，即 Im $q > 0$，会使 ACM 处局部出现负的维格纳延迟，这与实验结果 [33, 35]高度吻合。还应指出，另一种选择 Im $q < 0$会产生相同的截面，这与我们 ACM 模型中发现的简并现象类似；并且 Im q 的两种符号都符合因果性。

ACM 不是简单的布赖特-维格纳共振，也不是复法诺共振。它是两个耦合连续态之间平滑的干涉现象：一个在复平面中没有极点的问题。当偶极在复平面上半部存在零点时，最小相位条件会失效，但这样的事件并不会违背因果性。我们的 RTDCIS 模拟证实了这一观点，原因在于：$i.$ 表2中 $\bar{\tau}$ 的行为与直接的因果行为一致；并且$ii.$ 我们在对 ACM 进行的从头算 模拟中观察到了 Wigner 延迟的正负两种符号。因此，仅基于 CS，我们的结果表明，不可能知道 Wigner 延迟的正确符号，也不可能判断绕数是 0 还是 1；Ji等人在参考文献 [34] 中利用 CS 和克拉默斯–克罗尼希关系提出了这一表述。在 CS 的截面最小值处，Wigner 延迟为正是可能的，但这种情况应被视为违背最小相位条件的奇异情形。虽然实验中来自 $3s$ 轨道的 Wigner 延迟提前[33, 35]遵循最小相位条件，但阿秒物理有望在未来发现一个表现出更奇异动力学的真实系统。

*4.3. RTDCIS*通量延迟的解释

RTDCIS的平均延迟 计算如下

$$\bar{\tau}_{\mathrm{RTDCIS}} = \frac{\int dt\, t\mathcal{J}(t)}{\int dt\, \mathcal{J}(t)}$$

其中， $\mathcal{J}(t)$ 是公式（12）中的通量。平均延迟的数值列于表3。为了阐释 RTDCIS 波包中观测到的延迟的来源，我们按照 Dahlstr¨om、L'Huillier 和 Maquet 在参考文献 [44]中的做法，重新考察给定光子能量 ω 下光电子波包的相位，即公式（17）：

$$\arg[\Psi_{\pm}(\omega;r,t)] \sim \underbrace{k(\omega)r - \frac{k(\omega)^2}{2}t}_{\text{free propagation}} + \underbrace{\frac{\ln[2k(\omega)r]}{k(\omega)}}_{\text{long-range phase}} + \underbrace{\phi[k(\omega)]}_{\text{short-range phase}} . \tag{27}$$

表2：速度规范和长度规范下， $\mathcal{W}(\omega,\ t)$的加权延迟和能量；中心频率分别为 $\omega_0^{\mathrm{LG}} = 51.25$ eV和 $\omega_0^{\mathrm{VG}} = 43.6$ eV。

		LG		VG	
通道	τ (fs)	$\bar{\omega}$ (eV)	$\bar{\tau}$ (as)	$\bar{\omega}$ (电子伏特)	$\bar{\tau}$ (阿秒)
$j = 1/2$	0.363	51.26	90.46	43.98	54.71
	1.93	51.43	595.11	43.98	−144.21
	4.84	51.29	735.99	43.70	−229.93
	10.0	51.26	762.40	43.62	−250.14
$j = 3/2$	0.363	50.01	77.33	42.92	67.20
	1.93	51.05	672.20	43.40	−359.48
	4.84	51.21	933.18	43.48	−1418.97
	10.0	51.24	989.51	43.56	−2356.65

前两项的驻定贡献： $\frac{d}{dk}(kr - \frac{k^2}{2}t) = 0$，表示自由电子的经典运动， $r = k(\omega)t$，其中电子速度为 $k(\omega) = \sqrt{2(\omega - I_p)}$ [40]。假设激发的中心频率为 ω_0，传播至 $r = R$ 所需的时间为 $\tau_{\mathrm{free}} = R/k_0$。第三个相位项呈对数发散，源于库仑势 [4]，的长程特性，因此产生时间延迟 $\tau_{\mathrm{long}} \approx 1/k_0^3[1 - \ln(2k_0R)]$，该延迟会随观测点 $R = k_0\tau_{\mathrm{free}}$ [44] 增大而发散。最后，第四个相位项是短程相位贡献，其中包含渐近库仑相位 [44] 以及由关联效应 [12, 13], 导致的短程散射相位修正；二者均包含在复偶极矩阵元中，见公式（27）。我们的模型并不精确，但为我们阐释光电离动力学的性质提供了工具。虽然计算维格纳延迟 τ_{EWS} 时使用的是短程部分的能量导数，但由于因果性，自由传播和长程效应都会影响波包的实际到达时间：先激发，后传播 [44]。表3列出了对波包到达时间有贡献的各项数值，以及使用与图4相同脉冲得到的 RTDCIS 通量平均延迟。

在表3中，非关联情形下的 τ_{free} 和 τ_{long} 使用中心频率 ω_0计算，而相对论通道的 τ_{free} 和 τ_{long} 则使用加权频率 $\bar{\omega}$计算。正如预期，在速度规范下， τ_{free} 和 τ_{long} 的值更大，因为其 ω_0较低，因此光电子速度更慢，到达观测点所需的时间也更长。在两种规范下，由于中心频率处 ACM 的斜率方向相反， $3/2$通道的到达时间都比 $1/2$通道长。考察在脉冲中心频率处计算的 $|\tau_{\mathrm{EWS}}|$，所有情形下，非关联值都小于关联值。在速度规范下， $j = 3/2$ 的值明显大于 $j = 1/2$；这符合预期，因为 ω_0 与 $j = 3/2$ ACM 的匹配程度更高。此外，在速度规范下，关联情形的值为负，表明关联波包

表3：公式（27）中通量到达时间的不同贡献值，以及通过速度规范（VG）和长度规范（LG）的 RTDCIS 模拟得到的数值。观测半径为 $R \simeq 87.55$ 玻尔，中心光子能量调谐至各规范对应的 ACM，脉冲时长为 $\tau = 4.84$ 飞秒。表中所有数值的单位均为阿秒。

	通道	τ_{free}	τ_{long}	τ_{EWS}	$\tau_{\text{总计}}$	$\bar{\tau}_{\text{RTDCIS}}$	Δ_{EWS}	$\bar{\Delta}$
LG	未校正	1938.42	−78.90	10.57	1870.09	1845.77	−24.32	
	$j = 1/2$	1936.03	−78.64	770.53	2627.92	2496.53	−131.39	−96.85
	$j = 3/2$	1940.81	−79.17	1007.36	2869.00	2964.80	95.80	169.98
VG	未校正	2665.29	−189.76	32.32	2507.85	2523.77	15.92	
	$j = 1/2$	2649.91	−186.77	−222.30	2240.84	2488.05	247.21	254.84
	$j = 3/2$	2684.11	−193.46	−2883.86	−393.21	1621.08	2014.29	549.4

相较于非关联波包提前到达。标记为 τ_{total}的列是前三列的总和，对应于模型计算得到的通量预期到达时间。除速度规范下的 $j = 3/2$ 外，所有情形均表现为延迟（总到达时间为正）；在该情形下，预测提前约393 as。对比图4(d)中相应的通量，可以清楚地看到，波包应当延迟到达，这符合因果性预期。维格纳延迟的解释与 RTDCIS 通量之间的这一差异由何而来？ $\bar{\tau}_{\text{RTDCIS}}$ 列中的所有值均为正。 Δ_{EWS} 列显示了 $\bar{\tau}_{\text{RTDCIS}}$ 与τ_{total}之间的差值；正如预期，除速度规范下的 $j = 3/2$ 情形外，该差值相对于通量的总到达时间较小。在此情形下，差异超过了平均到达时间（124%）。这表明，对于 $j = 3/2$ 通道而言，维格纳时间延迟的概念在这些脉冲参数不大的情况下并不成立。此外，我们注意到，维格纳延迟违背了因果关系，因为 $\tau_{\text{EWS}} < -\tau/2$。表3中的其他情形均未出现如此明显的因果性违背。为改进模型预测并将因果性纳入考虑，我们使用表2所列的加权延迟$\bar{\tau}$，而不是 τ_{EWS}。最后一列 Δ 给出了 RTDCIS 到达时间与采用这一新调整后的模型预测值之间的差异。我们发现，使用加权延迟改善了速度规范下 $j = 3/2$ 通道与 RTDCIS 的吻合程度，此时差异小于 RTDCIS 的到达时间。在其他情形下，相对于 RTDCIS 的到达时间尺度，该方法对结果影响不大。加权延迟通常未能改善与 RTDCIS 的比较结果，可能是由其他原因造成的，例如我们的相对论情形解析模型存在局限（请回想图4中的波包）。对于非关联情形，渐近波包图像表现良好，RTDCIS 与模型之间仅有较小差异（≈ -24 as）；这一误差的大小与

非关联情形下的短程相位修正（≈ -35 as） [5], ，这些修正在我们的解析模型中未予考虑。

5. 结论

在这项工作中，我们使用 RTDCIS 分别在长度规范和速度规范下，研究了氩中从 $3s$ 轨道电离产生的超快波包及其时间延迟。更具体地说，我们证明了维格纳延迟在长度规范下为正，在速度规范下为负。此外，我们研究了自旋轨道耦合对不同相对论通道中 ACM 的影响：光电子的 $j = 1/2$ 和 $3/2$。我们证明， j-量子数会导致发射波包呈现不同的时间结构，并使用维格纳分布来解释结果。我们发现，薛定谔猫态在 ACM 处形成，在观测点的时间域中表现为双峰结构（慢电子与快电子的叠加态）。

更一般而言，我们的研究表明，对于同一物理系统，在采用相同层次的多体理论建模时，仅因选择不同的规范来描述其与外场的相互作用，就可能出现正负不同的维格纳延迟。尽管与实验相比，速度规范（VG）得出了符号正确的维格纳延迟 [33, 35], ，但我们并未因此主张，对于这类模拟而言 VG 是更好的规范，因为众所周知，要恰当地描述连续态，必须更精确地处理电子-电子关联效应。因此，我们研究最重要的意义在于加深了对超快光电离中因果性的理解：在 ACM 处，理论上正负维格纳延迟都有可能出现，因为无论是在数值模拟中，还是在使用从维格纳分布得到的加权延迟来解释动力学时，这两种情况都不会导致因果性矛盾。

致谢

我们感谢 Eva Lindroth、Philipp Demekhin、Felipe Zapata、Asimina Papoulia 和 Jimmy Vinbladh 的讨论。JMD 感谢克努特与爱丽丝·瓦伦堡基金会（资助编号：2024.0212）以及瑞典研究理事会（资助编号：2024-04247）的支持。

参考文献

[1] U. Fano 和 J. W. Cooper。现代物理评论40（1968），第 441–507 页。[2] A. F. Starace。第 6 卷。Springer Berlin Heidelberg，1982 年，第 1–121 页。[3] J. W. Cooper。物理评论128（1962），第 681 页。[4] Hans A. Bethe 和 Edwin E. Salpeter。第 1 版。Springer Berlin, Heidelberg，1957 年。[5] David J. Kennedy 和 Steven Trent Manson。英文。*Physical Review A*5.1（1972），第 227–247 页。

[6] M. Ya. Amusia 等人。物理快报A 40（1972），第 361 页。[7] B. M¨obus 等人。物理评论A 47（1993），第 3888 页。[8] Charlotte Froese Fischer 等人。英文。Computer Physics Communications 176.8（2007），第 559–579 页。[9] B M Lagutin 等人。Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics 32.8（1999），第 1795–1807 页。[10] T. Carette 等人。物理评论A 87.2（2013）。出版方：美国物理学会，第 023420 页。[11] D. Gu´enot 等人。物理评论A 85（2012 年 5 期），第 053424 页。[12] J. M. Dahlstr¨om、T. Carette 和 E. Lindroth。物理评论A 86（2012），第 061402 页。[13] A. S. Kheifets。英文。物理评论A 87.6（2013），第 063404 页。[14] J M Dahlstr¨om 和 E Lindroth。英文。J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 47.12（2014），第 124012 页。[15] Jimmy Vinbladh、Jan Marcus Dahlstr¨om 和 Eva Lindroth。物理评论A 100（2019 年 4 期），第 043424 页。[16] Anatoli S Kheifets。Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics 56.2（2023），第 022001 页。[17] Soumyajit Saha 等人。英文。物理评论A 90.5（2014），第 053406 页。[18] A. S. Kheifets 等人。物理评论A 92.6（2015）。出版方：美国物理学会，第 063422 页。[19] I. Jordan 等人。英文。物理评论A 95.1（2017），第 013404 页。[20] Jimmy Vinbladh、Jan Marcus Dahlstr¨om 和 Eva Lindroth。英文。Atoms 10.3（2022）。出版方：多学科数字出版研究所，第 80 页。[21] Pranawa C. Deshmukh 和 Steven T. Manson。英文。Atoms 10.3（2022），第 71 页。[22] S. Baral 等人。英文。Physical Review A 105.6（2022），第 062819 页。[23] S Baral 等人。Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics 56.5（2023），第 055003 页。[24] S Baral 等人。Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics 57.13（2024），第 135001 页。[25] Gopal Dixit、Himadri S. Chakraborty 和 Mohamed El-Amine Madjet。物理评论快报 111.20（2013）。出版方：美国物理学会，第 203003 页。[26] Maia Magrakvelidze 等人。物理评论A 91.6（2015）。出版方：美国物理学会，第 063415 页。[27] Liang-Wen Pi 和 Alexandra S. Landsman。英文。Applied Sciences 8.3（2018）。出版方：多学科数字出版研究所，第 322 页。[28] L. R. Moore 等人。物理评论A84.6（2011）。出版方：美国物理学会，第 061404 页。

[29] Andrew C. Brown 等人。英文。Computer Physics Communications 250（2020），第 107062 页。[30] J. Benda、Z. Maˇs´ın 和 J. D. Gorfinkiel。物理评论 A 105.5（2022），第 053101 页。[31] Jakub Benda 和 Zdenˇek Maˇs´ın。英文。Physical Review A 109.1（2024），第 013106 页。[32] Jakub Benda 等人。英文。Physical Review A 111.1（2025），第 013110 页。[33] M. Alexandridi 等人。物理评论研究 3（2021），第 043196 页。[34] Jia-Bao Ji 等人。New Journal of Physics 26.9（2024），第 093014 页。[35] Mingxuan Li 等人。物理评论快报 135（18 2025），第 183202 页。[36] A. Ganesan 等人。物理评论A 111（2025），第 052805 页。[37] L. Eisenbud。未发表。博士论文。普林斯顿大学，1948。[38] E. P. Wigner。物理评论 98（1955），第 145 页。[39] F. T. Smith。物理评论 118（1960），第 349 页。[40] C.A.A. de Carvalho 和 H.M. Nussenzveig。Physics Reports 364.2（2002），第 83– 174 页。[41] M. Schultze 等人。Science 328（2010），第 1658 页。[42] S Nagele 等人。Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics 44.8（2011），第 081001 页。[43] K. Kl¨under 等人。物理评论快报 106（2011），第 143002 页。[44] J. M. Dahlstr¨om、A. L’Huillier 和 A. Maquet。J. Phys. B 45（2012），第 183001 页。[45] R. Pazourek、S. Nagele 和 J. Burgd¨orfer。Rev. Mod. Phys. 87（2015），第 765 页。[46] P. M. Paul 等人。Science 292.5522（2001），第 1689–1692 页。[47] E. S. Toma 和 H. G. Muller。Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics 35.16（2002），第 3435 页。[48] Y. Mairesse 等人。Science 302（2003），第 1540 页。[49] D. Gu´enot 等人。物理评论A 85（2012），第 053424 页。[50] V. Gruson 等人。Science 354（2016），第 734 页。[51] M. Isinger 等人。Science 358（2017），第 893 页。[52] D. Krebs、S. Pabst 和 R. Santra。journal of Physics 82.2（2014）。[53] L. Greenman 等人。物理评论A 82（2010），第 023406 页。[54] Stefanos Carlstr¨om、Michael Spanner 和 Serguei Patchkovskii。物理评论A 106（4 2022），第 043104 页。[55] Antonia Karamatskou 等人。物理评论A 89（3 2014），第 033415 页。[56] Stefan Pabst 和 Robin Santra。Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics 47.12（2014）。出版商：IOP Publishing，第 124026 页。[57] Felipe Zapata 等人。物理评论A 105（1 2022），第 012802 页。[58] Takeshi Sato、Takuma Teramura 和 Kenichi Ishikawa。英文。Applied Sciences 8.3（2018），第 433 页。

[59] Takeshi Sato 等人。英文。*Can. J. Chem.*101.9（2023），第 698–709 页。[60] Mattias Bertolino 等人。英文。物理评论*A*106.4（2022），第 043108 页。[61] Rezvan Tahouri 等人。英文。*Commun Phys* 7.1（2024），第 344 页。[62] Stefanos Carlstr¨om 等人。物理评论快报134（9 2025），第 093202 页。[63] DonaldH.Kobe 和ArthurL. Smirl。英文。《美国物理学杂志》46.6（1978），第 624–633 页。[64] Y. C. Han 和 L. B. Madsen。物理评论*A* 81（2010），第 063430 页。[65] J. J. Sakurai 和 Jim Napolitano。第3版。剑桥大学出版社，2020。[66] I. P. Grant，编。英文。第40卷。施普林格原子、光学与等离子体物理丛书。施普林格，2007。[67] Ingvar Lindgren 和 Arne Ros´en。英文。原子物理案例研究。爱思唯尔，1975，第 93–196 页。[68] L. Cohen。《*IEEE*会刊》77.7（1989），第 941–981 页。[69] D Busto 等人。*Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* 51.4（2018）。出版商：IOP Publishing，第 044002 页。[70] M. Lewenstein 等人。英文。《自然·物理》17.10（2021），第 1104–1108 页。[71] U. Fano。物理评论124（1961），第 1866 页。[72] Alvaro Jimenez-Galan、Luca Argenti 和 Fernando Martin。物理评论快报113.26（2014）。出版商：美国物理学会，第 263001 页。[73] M. Kotur 等人。*Nat Commun* 7（2016），第 10566 页。