电荷密度波量子材料中的相位敏感非线性 X 射线响应

S. Sofer[1], G. J. Man[1*]、A. Bombardi[4], 和 S. Shwartz[1]

[1]巴伊兰大学物理系和纳米技术研究所，拉马特甘，*52900*

以色列

[4] 钻石光源，哈韦尔科学与创新园区，迪德科特 *OX11 0DE*，英国

* 目前就职于 *Man Labs Technologies LLC*，美国得克萨斯州达拉斯，*75219*

我们报道了电荷密度波材料 1T-TaS_2,中的相位敏感非线性 X 射线响应，该响应通过 X 射线参量下-转换至紫外. 揭示。我们将非线性 X 射线波混频从传统晶体系统拓展至关联量子材料，并利用倒易晶格相位匹配分离非线性极化率的不同傅里叶分量。通过选取基频倒易晶格矢量和对堆垛敏感的半整数倒易晶格矢量，我们探测了近公度和非公度电荷密度波相中的响应。将紫外光子能量调谐至 Ta O 壳层共振 附近后，我们发现了显著的傅里叶分量依赖和相位依赖共振结构，这表明堆垛相关非线性极化率与 Ta 中心共振态的耦合方式不同于平均晶格响应。 值得注意的是，尽管布拉格衍射较弱，近公度相中的非线性信号却显著增强，这证明非线性极化率能够提供线性探针无法获取的信息。这些结果确立了非线性 X 射线光谱学作为一种相位敏感、轨道选择性探针，可用于研究量子材料中的电子重构。

非线性 X 射线光学将非线性光学光谱学的概念拓展至 X 射线所能探测的原子长度尺度和芯能级能量。在晶体中，倒易晶格矢量提供动量选择性，使我们能够直接探测电子响应的特定傅里叶分量。同时，涉及长波长场（通常处于紫外或光学频率范围）的波混频过程可直接探测低能电子自由度 [1-12]。这些能力相结合，为动量分辨非线性光谱学提供了一条途径，能够区分响应中的晶格、堆垛和电子贡献。

尽管前景如此，非线性 X 射线波混频实验迄今主要在简单的弱关联材料中得到演示[1-11]在这类体系中，非线性响应密切遵循平均晶格结构，实验依赖于高晶体质量，以将微弱的非线性信号与强得多的布拉格衍射分离开来。因此，将非线性 X 射线技术应用于量子材料——其中低相干性、结构复杂性与交织电子序是其固有特征——仍是一项重大的实验挑战。

在此背景下，一个核心的非线性 X 射线过程是 X 射线参量下转换（PDC），它通过相位匹配波混频过程产生由 X 射线信号光子和波长更长的闲频光子组成的关联光子对。在晶体中，动量守恒由倒易晶格矢量 $\vec{G}$介导，从而能够选择性地获取非线性极化率的特定傅里叶分量。借助相位匹配和信号能量滤波，将闲频光子能量调谐至跨越紫外／光学共振，参量下转换提供了一条无需改变泵浦能量即可实现共振非线性光谱学的实用途径。尽管PDC信号本质上很弱，且紧邻强得多的弹性背景，但近期一项工作已证明，即使在低相干系统中它也是可观测的[12], ，从而为将非线性 X 射线波混频应用于关联量子材料开辟了可能性。

层状化合物 1T-TaS_2 存在多种电荷密度波（CDW）相，其绝缘态的微观起源也长期以来一直存在争议 [13-16]。冷却时，1T-TaS_2会从非公度电荷密度波（ICCDW）相转变为近公度电荷密度波（NCCDW）相，最终转变为公度电荷密度波（CCDW）[15], ，同时堆垛方式和电子结构也发生变化。与有序大卫之星（SoD）阵列相关的层间二聚化会在面外方向产生特征性的半整数反射，而这些反射的消失通常被解释为二聚化堆垛的

崩塌 [13,15,17,18]。究竟是这种堆垛顺序，还是关联驱动的莫特局域化，主要导致了绝缘体能隙的形成，目前仍存在争议 [16,19,20]。由于堆垛和平均晶格的贡献分别编码在不同的倒易晶格分量中，有选择地探测与基频和对堆垛敏感的矢量相关的傅里叶分量，可以直接区分它们各自对电荷密度波相变期间电子重构的贡献。

在本文中，我们展示了 1T-TaS_2 中 X射线参量下转换至紫外的过程，并表明其非线性响应直接对电荷密度波相和堆垛顺序均敏感。通过比较与基频倒易晶格矢量 $\vec{G}$ =(0,0,4) 和堆垛敏感的半整数矢量 $\vec{G}$=(0,0,7/2) 相关的 PDC信号，我们分离出非线性电子磁化率中不同的傅里叶分量。将闲频光子能量调谐至穿过 Ta O壳层共振时，可观察到显著的、依赖傅里叶分量和相位的共振结构。重要的是，在近共格电荷密度波—非共格电荷密度波相变过程中，PDC 强度呈现出与弹性散射相反的变化趋势，这表明非线性极化率可作为探测电子重构的独立手段。这些结果确立了 X射线参量下转换作为一种对相位敏感且具有轨道选择性的探针，用于研究量子材料中的电子现象。

所有测量均在钻石光源的 I16光束线 [21] 上进行。实验装置和 PDC 几何结构示意图见图 1。入射 X射线束为单色且经过准直，由 Si(111) 单色器限定；本文所报告测量的泵浦能量设为$E_p = 9$ keV。非线性介质为 HQ Graphene 制造的 <0,0,1> 取向 1T-TaS_2 单晶，安装在低温恒温器内旋转台上的 I16 衍射仪中。该几何结构可测量 (0,0,4) 布拉格反射；若存在，还可测量堆垛敏感的半整数 (0,0,7/2) 反射，它们对应于用于相位匹配的倒易晶格矢量 $\vec{G}$ 。数据在稳定的 100 K、200 K 和 400 K 温度下采集，这些温度均通过降温达到。

为从强得多的弹性散射背景中分离出微弱的下转换 X 射线信号光子，使用三次反射 Si(111) 晶体分析器作为窄带能量滤波器，并由二维 Merlin 探测器记录透射光子。针对每个选定的闲频光子能量，根据相位匹配条件附近的晶体摇摆曲线获得 PDC 强度，并将峰强度作为信号。相位匹配

通过将测得的峰位与根据动量守恒条件计算得到的相位匹配角进行比较来验证：$k_{\vec{p}} + \vec{G} = k_{\vec{s}} + k_{\vec{id}}$，其中$k_{\vec{p}}, k_{\vec{s}}, k_{\vec{id}}$ 分别为泵浦、信号和闲频的波矢。相位匹配条件下典型的 PDC计数率约为 102–10^5 counts s^{-1}，而弹性散射峰强度为 10^7–109 counts s^{-1}，这表明测量灵敏度主要受残余弹性本底限制。

我们首先通过测量与不同电荷密度波相下 1T-TaS_2 的 $\vec{G}$=(0,0,4) 和对堆垛敏感的 $\vec{G}$=(0,0,7/2) 相关的 PDC摇摆曲线，表征了相位匹配条件。对于每个选定的闲频光能量，将分析器设置为相应的信号能量，并使晶体摆过相位匹配条件。针对探测器上对应不同探测器角度的不同感兴趣区域（ROI），计算了 PDC峰角。每个 ROI 的宽度为 0.01 度，中心位于一个不同的探测器角度处。

图 2 比较了闲频光能量为 40 电子伏特时测得的摇摆曲线峰角与计算得到的相位匹配角，结果显示二者在实验不确定度范围内 一致，从而证实了 X射线参量下转换。其他闲频光能量下的摇摆曲线和测量结果见补充信息。

在 NCCDW相 中，我们观测到 $\vec{G}$=(0,0,4) 和$\vec{G}$=(0,0,7/2) 均具有定义良好的摇摆曲线。在半整数级消失的 ICCDW 相中，仅在 $\vec{G}$=(0,0,4) 处观测到 PDC。在实验灵敏度范围内，公度电荷密度波相中未检测到 PDC信号。我们认为，这是由于该相中的弹性散射显著增强，导致背景增加并降低了可检测的非线性信号。

接下来，我们展示 1T-TaS_2 中的 X射线参量下转换能够探测布拉格衍射之外的电子重构。由于非线性响应遵循电子极化率，它会在电荷密度波相变过程中呈现随相位变化的光谱结构 [8,9,10,22]。图 3 展示了 NCCDW相中沿 (0,0,4) 和 (0,0,7/2) 矢量，以及 ICCDW 相中沿 (0,0,4) 矢量的 PDC 强度随闲频能量的变化，并标出了 Ta O3、O2 和 O1 共振能量 [23]。

为了解释观测到的 PDC 光谱，我们采用一个基于物理机制的模型，其中每个 $\vec{G}$ 处的非线性信号都是缓慢变化的非共振背景与来自 Ta O壳层跃迁的共振贡献的相干叠加。共振部分表示为 Fano型振幅，用以刻画芯能级共振附近观测到的非对称线形 [7,24-25]。完整模型及拟合参数详见补充信息。图 3 将模型曲线叠加在数据上。

如图 3 所示，该模型准确再现了在 NCCDW 相和 ICCDW 相中测得的基频倒易晶格矢量及堆垛敏感倒易晶格矢量对应的光谱。在 Ta O 壳层共振附近观察到明显的光谱结构，这表明 PDC 过程具有轨道选择性，并可探测单个中间态。对于 (0,0,4) 矢量，在 NCCDW 相和 ICCDW 相中，Ta O3 共振附近均出现显著特征。对于堆垛敏感的 (0,0,7/2) 矢量，我们则在 Ta O_2 共振附近观察到较弱但清晰分辨的特征。综合数据与拟合结果可知，PDC 能够探测所选倒易晶格矢量处的相干电子结构，而拟合参数则表征了傅里叶分量以及对 Ta O 壳层共振的相位依赖耦合。因此，三种光谱各自不同的轮廓揭示了电荷密度波的不同傅里叶分量如何与芯能级电子态耦合。

为进一步分离 X射线参量下转换所特有的电子信息，我们分析了强度比；这类比值能够抑制共同的实验因素，并突出非线性响应的真实变化。图 4(a) 展示了 NCCDW 相中，与堆垛敏感$\vec{G}$=(0,0,7/2)和基频 $\vec{G}$=(0,0,4)相关的 PDC 强度之比。图 4(b) 展示了 NCCDW 相与 ICCDW 相中 (0,0,4) PDC 强度之比。

对于弹性散射，晶格（0,0,4）峰与超晶格（0,0,7/2）峰的强度比为 $10^{-2} - 10^{-3}$，与我们的测量结果 [15] 一致。远离共振时，我们观察到 PDC 中也有相近的强度比。然而，在 Ta O边共振附近，（0,0,4）信号显著增强，而堆垛敏感的（0,0,7/2）信号表现出弱得多的共振响应。观测到的强度比值极小值与双层电荷密度波堆叠序列引起的相消干涉一致，这表明相邻双层中的电荷调制之间存在反相位关系。

相位之间的对比更加显著。尽管弹性（0,0,4）布拉格强度在 ICCDW 中更大，但 NCCDW 中的（0,0,4）PDC 强度却高于 ICCDW。这种反差表明，发生变化的是共振非线性极化率本身，而非衍射强度的简单变化。强烈的能量依赖性进一步表明，ICCDW–NCCDW 转变从根本上改变了驱动 PDC 过程的共振电子响应，这可能是通过改变其与受电荷密度波序影响的低能电子态之间的耦合实现的。总之，这些比值表明，PDC 对相位敏感，揭示了超越弹性散射所能展现的电荷密度波物理。

总之，我们在量子材料 1T-TaS_2, 中实现了 X射线到紫外参量下转换，并证明非线性 X 射线光谱学能够分离电荷密度波响应中的对称性相关和堆垛选择性傅里叶分量。通过 Ta O壳层共振进行光谱测量，发现基频倒易晶格矢量 (0,0,4) 处的非线性信号显著增强，且这种增强依赖于相位；而对堆垛敏感的半整数矢量 (0,0,7/2) 则表现出大幅减弱的共振衬度。更引人注目的是，在非公度电荷密度波—近公度电荷密度波转变过程中，非线性 PDC 强度的变化趋势与弹性布拉格强度相反，这表明非线性极化率可作为线性衍射之外探测电子结构的独立手段。

提高能量分辨率（例如使用弯晶分析器）将使我们能够探测电子能带中更精细的共振结构，进一步增强该技术的轨道与动量选择性。将这一方法扩展至其他倒易晶格矢量，包括常规矢量和半整数矢量，可直接揭示堆垛的微观起源及其在电荷密度波图景中的作用。更广泛地说，本文建立的框架易于推广至其他强关联和低维量子材料，为分离电子重构中的晶格、轨道和堆垛贡献提供一种通用的动量分辨非线性光谱学方法。

本研究得到以色列科学基金会（以色列科学基金会）（IL）的资助，资助编号为 2208/24。我们感谢钻石光源提供 I16光束线的机时，项目编号为 34685。本研究还部分得到了扎克曼STEM领导力计划的资助。感谢 Efrat Shimshoni、Beena Kalisky、Jonathan Ruhman、Amos Sharoni 和 Eran Maniv 提供的有益讨论。

参考文献

1. I. Freund 和 B. Levine, 《物理评论快报》**26**, 156 (1971). 2. I. Freund, 《化学物理快报》。**12**, 583-588 (1972). 3. P. Eisenberger 和 S. McCall, 《物理评论 A》**3**, 1145 (1971). 4. T. Glover、D. Fritz、M. Cammarata、T. Allison、S. Coh、J. Feldkamp、H. Lemke、D. Zhu、Y. Feng、R. Coffee、M. Fuchs、S. Ghi ings, 《自然》**488**, 603-608 (2012). 5. K. Tamasaku 和 T. Ishikawa, 《物理评论快报》**98**, 244801 (20 254801 (2009). 7. K. Tamasaku、K. Sawada、E. Nishibori 和 T. Ishikawa, 《自然·物理》7, 705-708 (2011).

8. A. Schori, C. Bömer, D. Borodin, S. Collins, B. Detlefs, M. Moretti Sala, S. Yudovich 和 S. Shwartz, 《物理评论快报》**119**, 253902（2017年）。

9. D. Borodin, A. Schori, J. Rueff, J. Ablett 和 S. Shwartz, 《物理评论快报》**122**, 023902（2019年）。

10. S. Sofer, O. Sefi, E. Strizhevsky, H. Aknin, S. Collins, G. Nisbet, B. Detlefs, C. Sahle 和 S. Shwartz, 《自然·通讯》10, 1-8（2019年）。

11. C. Ornelas-Skarin, T. Bezriadina, M. Fuchs, S. Ghimire, J. B. Hastings, Q. L. Nguyen, G. de la Peña, T. Sato, S. Shwartz, M. Trigo, D. Zhu, D. Popova-Gorelova 和 D. A. Reis, 《物理评论 X》16, 011006 (2026年)。

12. H. Aknin, O. Sefi, D. Borodin, E. Strizhevsky, J.-P. Rueff, J. M. Ablett 和 S. Shwartz, 《物理评论研究》**7**, 043226 (2025年)。

13. J. A. Wilson、F. J. Di Salvo 和 S. Mahajan, 《物理评论快报》32, 882（1974年）。

14. D. D. Darancet、A. J. Millis 和 C. A. Marianetti，物理评论B 90, 045134（2014年）。

15. Y. D. Wang、W. L. Yao、Z. M. Xin、T. T. Han、Z. G. Wang, 《自然·通讯》**11**, 4215（2020年）

16. Y. Wang、W. Yao、Z. Xin、T. Han 和 Z. Wang, 《自然·通讯》**15**, 3425（2024年）

17. A. Spijkerman、J. L. de Boer、A. Meetsma、G. A. Wiegers 和 S. van Smaalen，物理评论B **56**, 13757（1997年）

18. T. Ritschel、J. Trinckauf、K. Koepernik、B. Büchner、M. v. Zimmermann、H. Berger、Y. I. Joe、P. Abbamonte 和 J. Geck, 《自然·物理》11, 328（2015年）。

19. S.-H. Lee、J. S. Goh 和 D. Cho, 《物理评论快报》**122**, 106404（2019年）

20. C. J. Butler、M. Ligges、D. Golež、S. Peli、A. F. Kemper、U. Bovensiepen、M. Eckstein 和 M. Grioni, 《自然·通讯》**11**, 2477（2020年）。

21. S. P. Collins、A. Bombardi、A. R. Marshall、J. H. Williams、G. Barlow、A. G. Day、M. R. Pearson、R. J. Woolliscroft、R. D. Walton、G. Beutier 和 G. Nisbet，AIP会议论文集 1234, 303（2010年）。

22. R. Cohen 和 S. Shwartz，物理评论研究 1, 033133（2019年）。

23. P. Buabthong、N. Becerra Stasiewicz、S. Mitrovic 和 N. S. Lewis, 《表面科学光谱》24，024001（2017年）。

24. M. F. Limonov、M. V. Rybin、A. N. Poddubny 和 Y. S. Kivshar，《自然·光子学》**11**，543-554（2017年）。

25. K. P. Heeg、C. Ott、D. Schumacher、H.-C. Wille、R. Röhlsberger、T. Pfeifer 和 J. Evers，《物理评论快报》**114**，207401（2015年）。

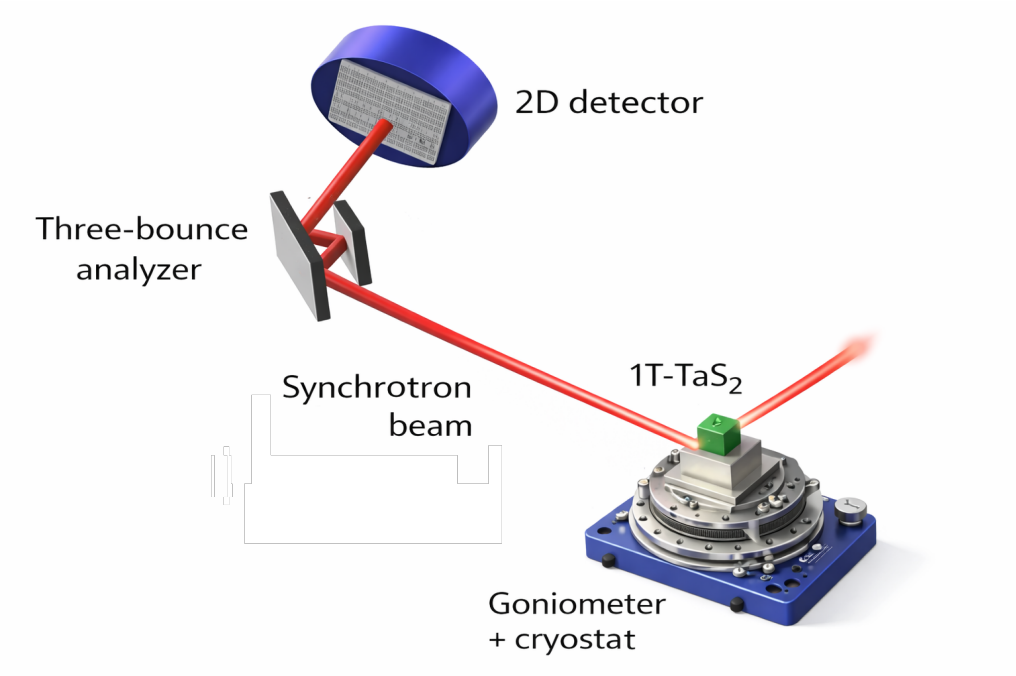


图 1： 1T-TaS_2 中 X射线参量下转换的实验几何。使用单色X射线泵浦光束产生下转换的信号光子和闲频光子，它们通过倒易晶格矢量 G 满足能量和动量守恒。三次反射 Si(111) 晶体分析器作为窄带能量滤波器，可抑制弹性散射并分离出微弱的 PDC信号，再由二维探测器记录。

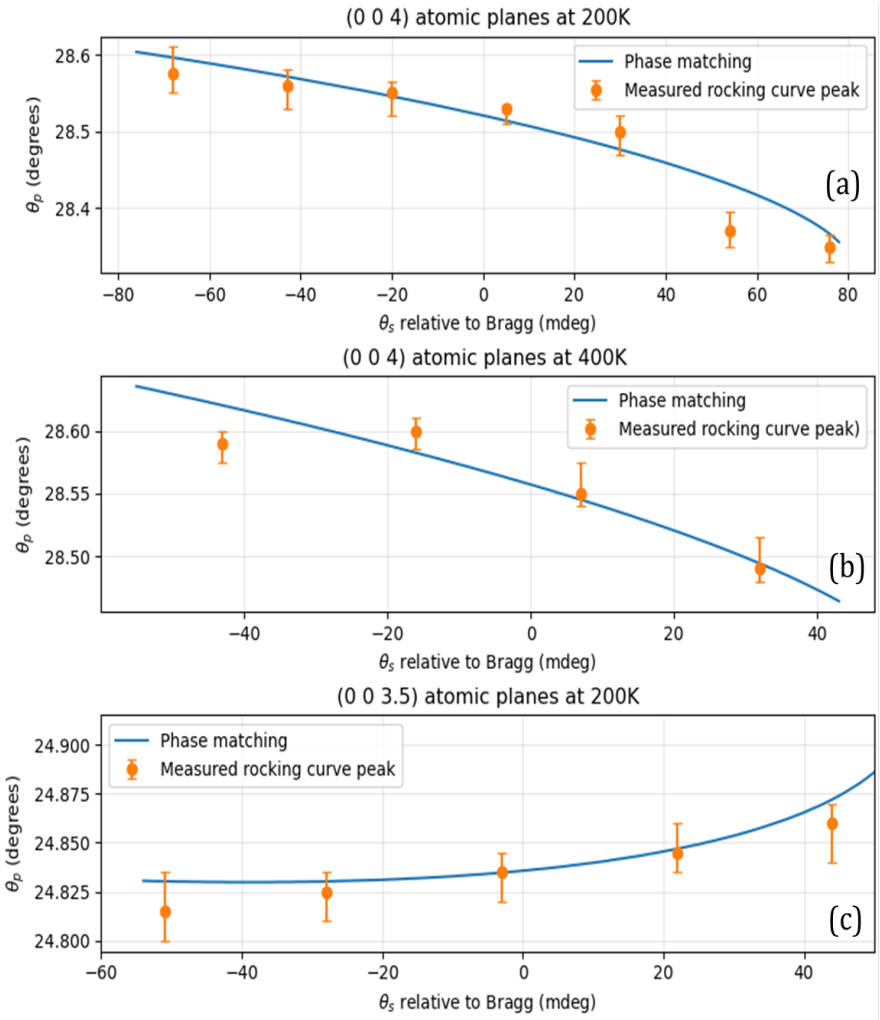


图 2：闲频能量为 40 电子伏特时 X射线参量下转换的相位匹配。测得的参量下转换摇摆曲线峰角随探测器角度的变化：(a) 200 K 下的 (0,0,4) 倒易晶格矢量，(b) 400 K 下的 (0,0,4) 矢量，以及 (c) 200 K 下的 (0,0,7/2) 矢量。实线表示根据相位匹配条件计算出的峰角。误差棒表示拟合得到的峰半峰全宽。

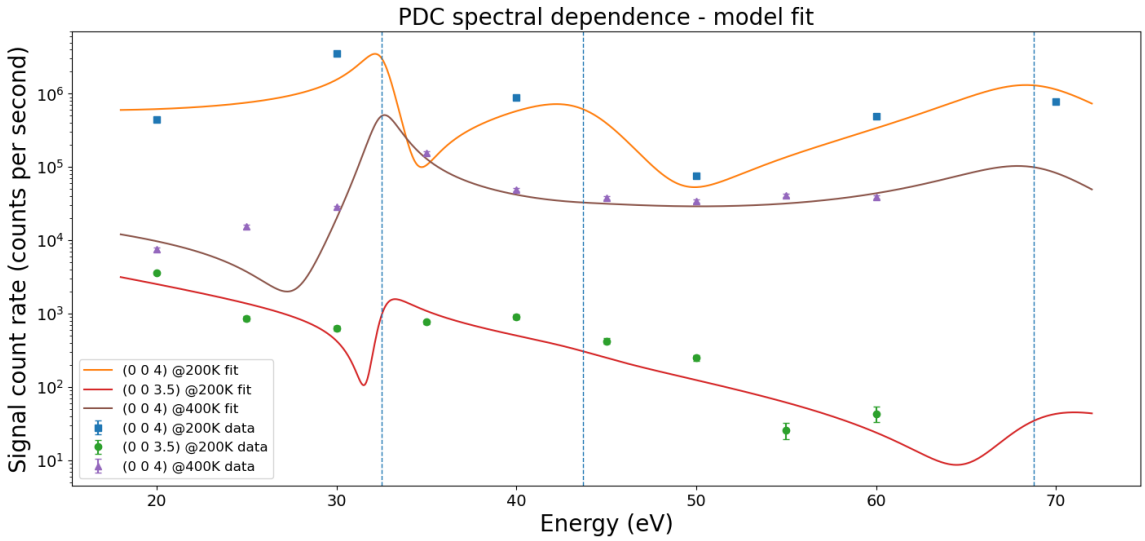


图 3：采用相干 Fano 型模型对非线性极化率的 PDC 光谱进行拟合。图中展示了 NCCDW 相（200 K）下的 (0,0,4) 和 (0,0,7/2) 反射，以及 ICCDW 相（400 K）下的 (0,0,4) 反射。虚线标示 Ta O3、O2 和 O1 共振。该模型能够捕捉非对称线形以及依赖于反射的共振强度。

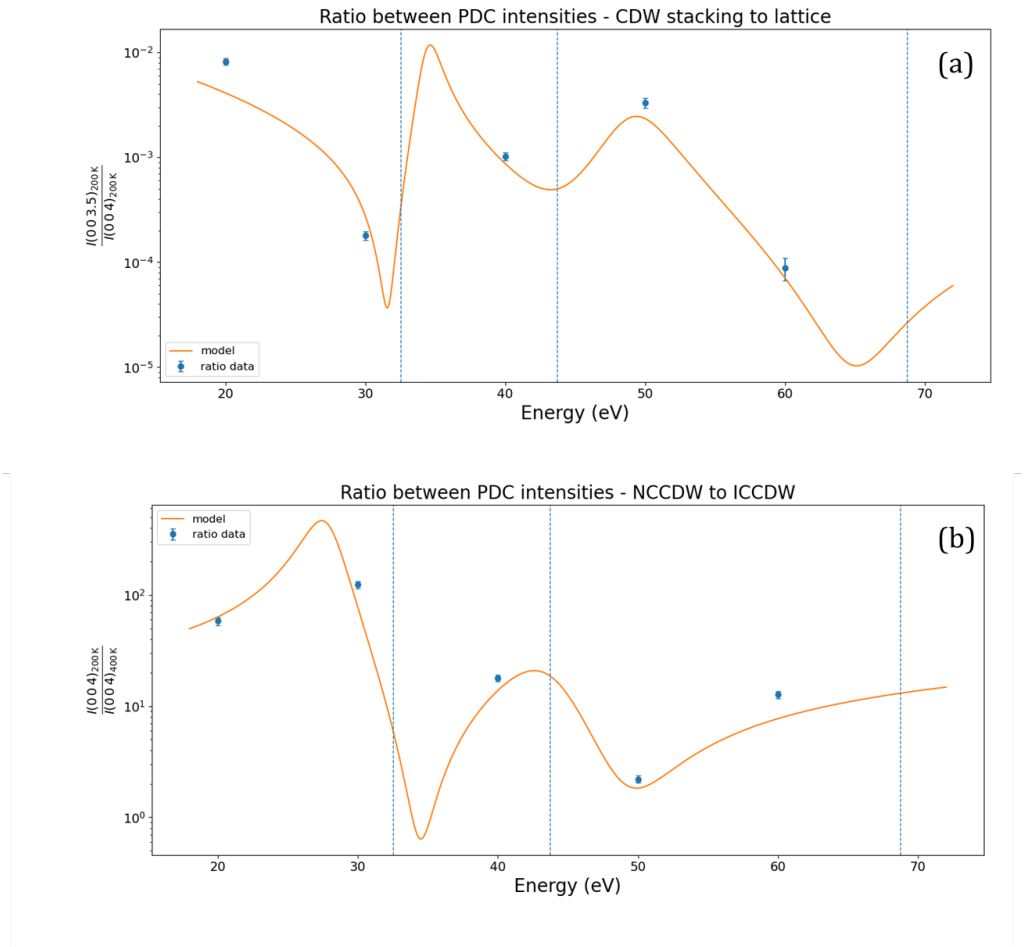


图 4：强度比凸显相位及矢量依赖的共振 PDC 响应。(a) 200 K 时，与堆垛敏感的 (0,0,7/2) 倒易晶格矢量相关的 PDC 强度与基频 (0,0,4) 矢量相关的 PDC 强度之比。(b) 200 K 时与 (0,0,4) 倒易晶格矢量相关的 PDC 强度与 400 K 时该强度之比。虚线表示 TaO 壳层共振。接近共振时，基频响应显著增强，而堆垛敏感信号仍受到抑制，这与弹性散射中的趋势相反。

《相位敏感非线性 X 射线响应：电荷密度波量子材料》**的补充材料**

作者： S. Sofer[1], G. J. Man[2,3], A. Bombardi[4], 和 S. Shwartz[1]

所属机构：

[1]巴伊兰大学物理系及纳米技术研究所，拉马特甘，*52900*

以色列

[2]*Gabriel Man och Partners AB*，乌普萨拉 *752 57*，瑞典

[3]*Man Labs Technologies LLC*，达拉斯，得克萨斯州 *75219*，美国

[4] 钻石光源，哈韦尔科学与创新园区，迪德科特 *OX11 0DE*，英国

补充说明1 – 摇摆曲线

我们提供了有关数据分析流程以及对测得的 PDC 信号进行验证的更多细节。文中展示了具有代表性的摇摆曲线，其峰位与计算得到的相位匹配角一致，为检测到的发射源自 PDC 提供了有力证据。PDC 效率的角度依赖性由相位匹配条件 $\mathbf{k}_\mathrm{p} + \mathbf{G} = \mathbf{k}_\mathrm{s} + \mathbf{k}_\mathrm{i}$ 决定。为将实验结果与理论进行比较，我们在探测器上选取一个感兴趣区域（ROI），其中心对应固定的发射方向，角宽为 0.01 度，从而针对给定的倒易晶格矢量 $\mathbf{G}$ 固定 $\mathbf{k}_\mathrm{s}$ 。然后，利用测得的光子能量和已知的实验几何，我们求解相位匹配关系，得到相应的泵浦入射（相位匹配）角，并将其与测得的摇摆曲线最大值进行比较。

图1–3分别展示了公度电荷密度波相下 (0 0 4) 倒易晶格矢量、ICCDW 相下 (0 0 4) 倒易晶格矢量，以及公度电荷密度波相下 (0 0 7/2) 倒易晶格矢量的测量摇摆曲线。在所有情况下，测得的摇摆曲线峰值均在 ROI 角接受度范围内与预测的相位匹配角一致。接下来，我们考察相位匹配条件的能量依赖性。在这些测量中，探测器 ROI 的角度宽度为 0.1 度。补充图4展示了闲频光能量为 30、40 和 50 电子伏特时的摇摆曲线。每个面板中的阴影带表示计算得到的相位匹配角，其宽度由 ROI 决定。测得的摇摆曲线峰值再次与计算得到的相位匹配角高度一致。

补充说明2——分析模型

为描述 PDC 强度的共振形状依赖性，我们将每个测量数据集 j （固定的倒易晶格矢量和温度）建模为一个缓慢变化的包络与相干复振幅的模平方相乘，

$$I_j(E) = C_j\, e^{-\alpha E}\ |\, A_j(E)\,|^2.$$

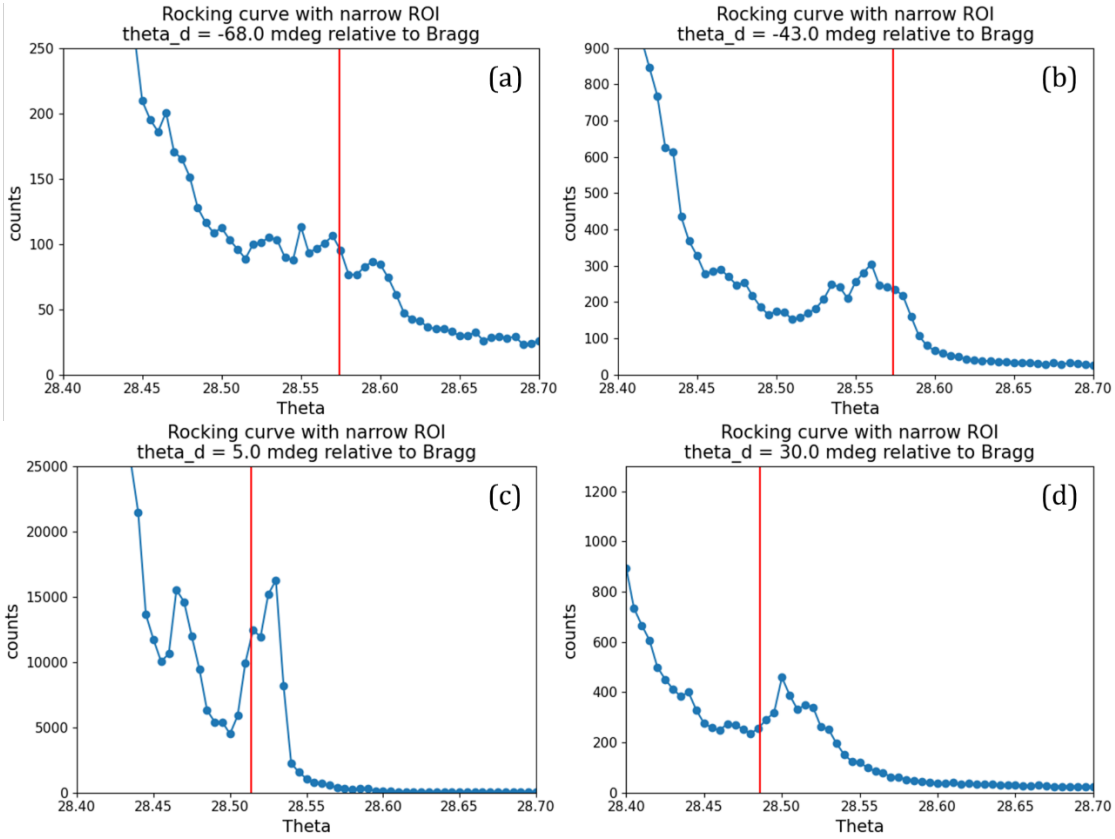
其中，E 为闲频能量，C_j 为倒易晶格矢量和温度相关的缩放因子，α 描述一种与特定共振无关、随能量平滑衰减的共同趋势。共振物理包含在复振幅 $A_j(E)$ 中，它由一个非共振背景和三个较弱的芯能级共振相干叠加而成，

$$A_j(E) = c_0 + \sum_{k=1}^{3} c_{j,k}\ F_k(E), F_k(E) = \frac{\varepsilon_k(E) + q}{\varepsilon_k(E) + i}, \varepsilon_k(E) = \frac{E - E_k}{\Gamma_k/2}.$$

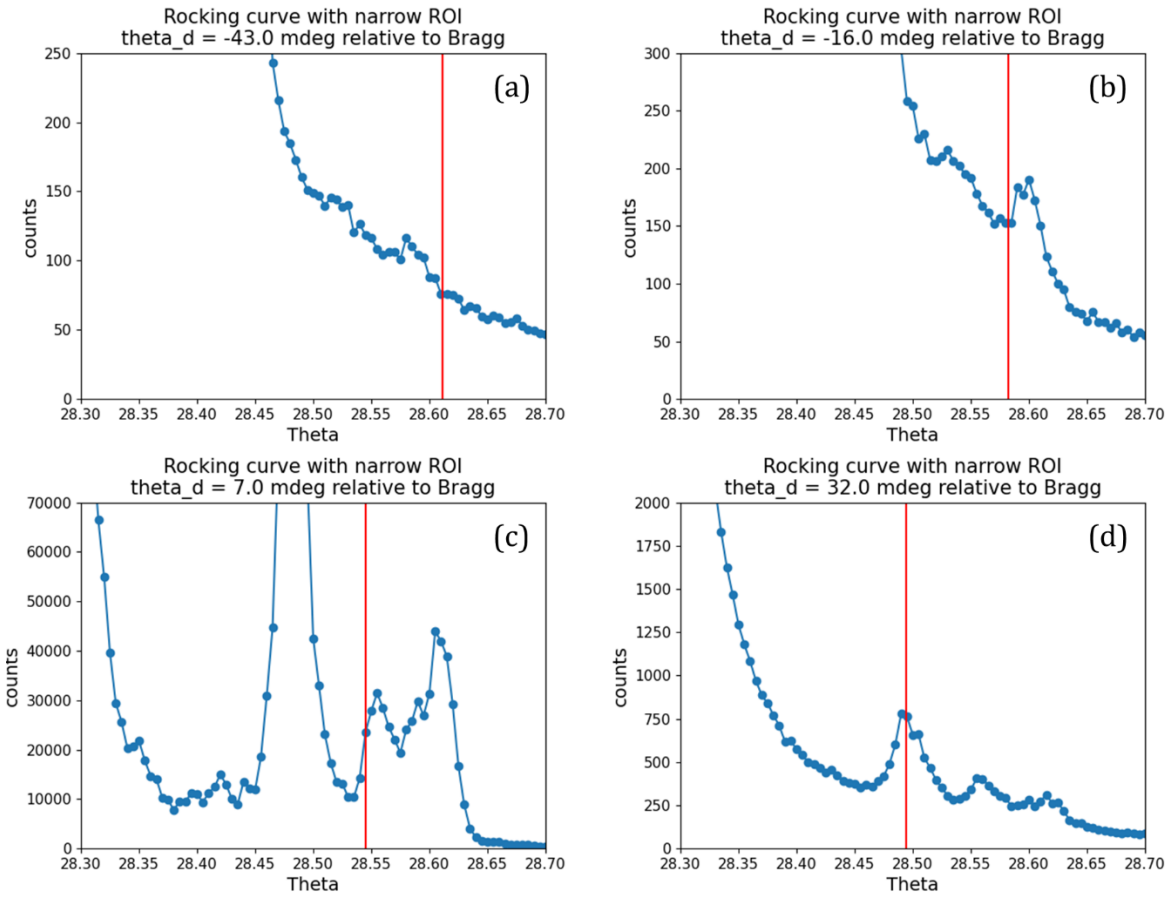
函数 $F_k(E)$ 是规范福诺振幅，E_k 和 Γ_k 是共振能量和有效宽度（包括 1 电子伏特的仪器展宽），q 是福诺不对称参数，而 $c_{j,k}$ 是实系数，用于量化数据集 j 与各共振通道的耦合强度。实际拟合中，E_k 和 Γ_k 固定为 Ta芯能级结构[1], 的值，q, c_0 固定（以减少与 $c_{j,k}$之间的参数简并）。随后，拟合重点是提取各通道的相对

[1] M. F. Limonov、M. V. Rybin、A. N. Poddubny 和 Y. S. Kivshar，《自然·光子学》**11**, 543-554 (2017年)。

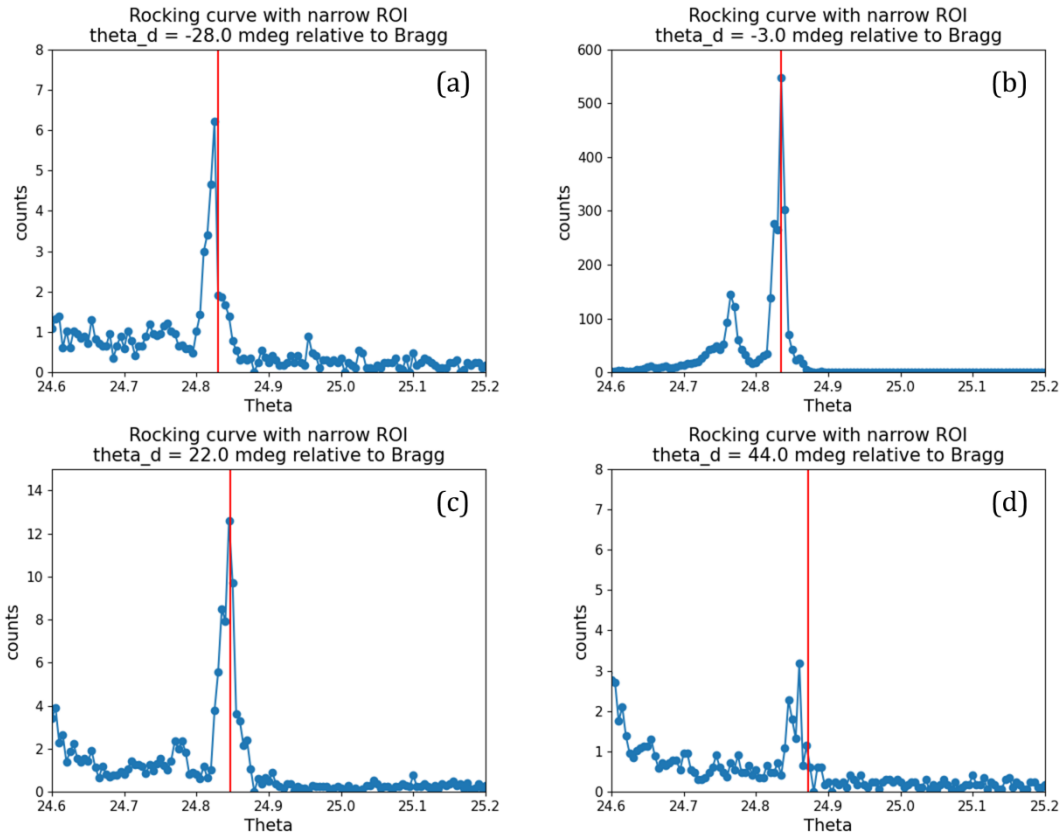
权重 $c_{j,k}$，并比较不同反射和温度下的权重。为突出傅里叶分量之间具有物理意义的差异并抑制共模因子，我们同时拟合绝对强度和强度比（$I_{003.5}$、$I_{004,200}$ 和 $I_{004,200}/I_{004,400}$）。补充表1列出了模型中采用的参数，包括固定参数和拟合参数。补充图5–6展示了残差，其定义为$r_I(E) = \log(I_{测量值}(E)) - \log(I_{模型}(E))/\sigma_I$，其中 $I_{measured}$ 和 I_{model} 分别为测量强度和模型计算强度，σ_I 为每个测量强度对应的估计误差。残差针对对数刻度下拟合的强度和比值计算。模型的平均误差为 0.2 个数量级（相当于平均因子约为 $10^{0.2}$~1.6），表明它在整个能量范围内均以恒定因子精度再现了测得的PDC强度。



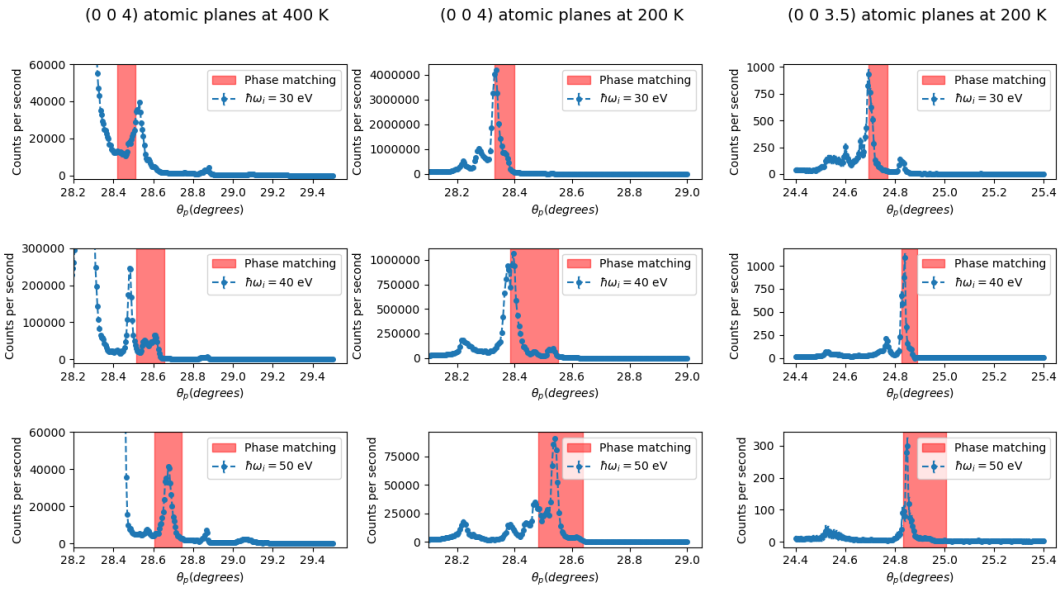
补充图1：**1T-TaS_2 闲频能量为40电子伏特时，NCCDW相下(0 0 4)倒易晶格矢量的摇摆曲线**。样品角较低处的高峰为残余弹性散射。 红线标示计算得到的相位匹配角。



补充图 2：**1T-TaS_2 在 ICCDW 相中，能量为 40 电子伏特的闲频光对应的 (0 0 4) 倒易晶格矢量摇摆曲线**。样品角较小时的高峰是残余弹性散射。 红线标示计算得到的相位匹配角。



补充图3：**1T-TaS_2 闲频能量为40电子伏特时，NCCDW相中(0 0 7/2)倒易晶格矢量的摇摆曲线**。较低样品角处的高峰为残余弹性散射。 红线标示计算得到的相位匹配角。



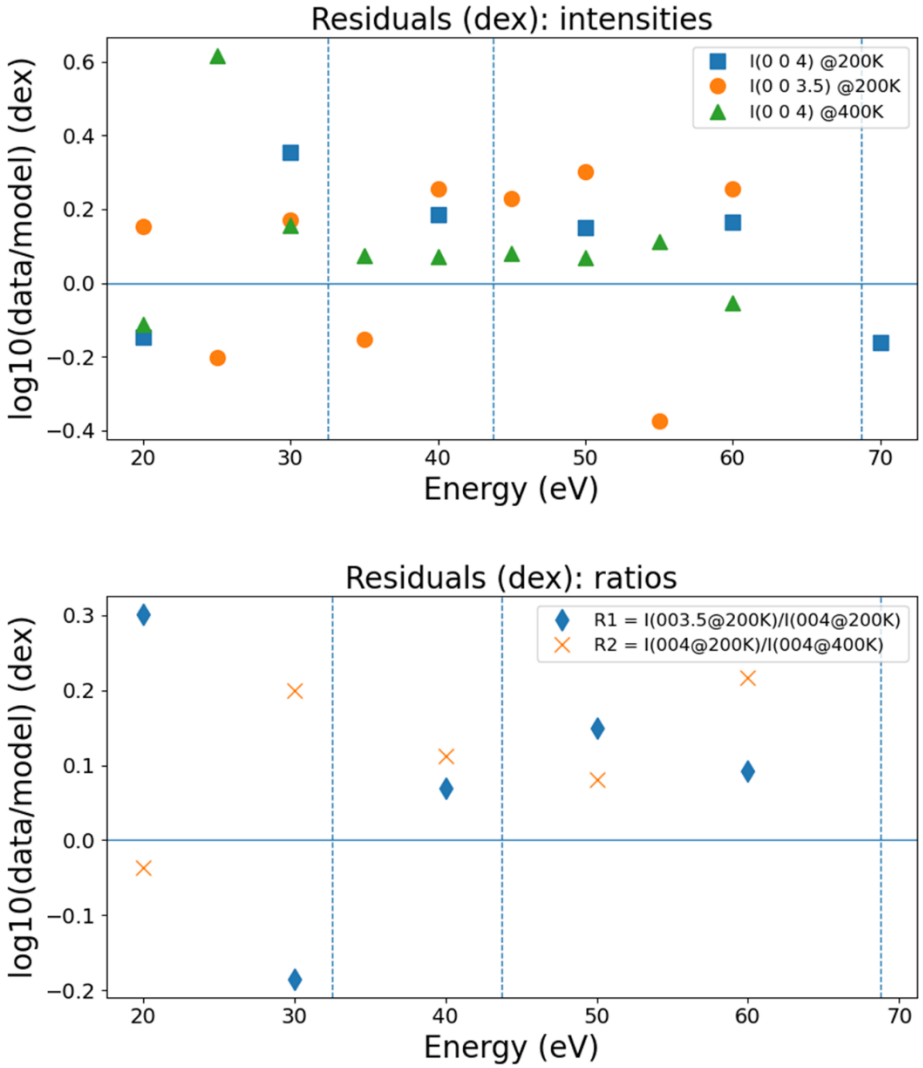
补充图4 0 0 4 400 30 40 50 200：**X射线PDC摇摆曲线**。(a-c) 在开尔文下，能量分别为电子伏特、电子伏特和电子伏特的闲频光对应的（ ）矢量的摇摆曲线。(d-f) 在开尔文下，能量分别为30电子伏特、40电子伏特和50电子伏特的闲频光对应的（0 0 4）矢量的摇摆曲线。(g-i) 在200 K下，能量分别为30电子伏特、40电子伏特和50电子伏特的闲频光对应的（0 0 3.5）矢量的摇摆曲线。每个面板中的红色区域表示预测的角度范围，其宽度由ROI角接受度决定。

参数	值
a_004_200K	15.7242
a_0035_200K	2.450121
a_004_400K	11.46022
b_共享	-0.09637
c1_004_200K	-0.19806
c2_004_200K	-0.15744
c3_004_200K	-0.80903
c1_0035_200K	2.899461
c2_0035_200K	-0.19773
c3_0035_200K	2.85645
c1_004_400K	0.690558
c2_004_400K	0.010389
c3_004_400K	-1.86573
q_固定	2
c0_固定	1
E1_eV	32.51
E2_eV	43.71
E3_eV	68.75
G1_intr_eV	1.6
G2_intr_eV	7.51
G3_intr_eV	8.88
伽马 _beam_eV	1
G1_eff_eV	1.886796
G2_eff_eV	7.576285
G3_eff_eV	8.936129
f_sys	0.05

参数 (0,0,4) @ 200K		**(0,0,4) @ 400K**	**(0,0,7/2) @ 200K**
C	15.7242	11.46022	2.450121
α	-0.096371462		
c1	-0.19806	0.690558	2.899461
c2	-0.15744	0.010389	-0.19773
c3	-0.80903	-1.86573	2.85645
q	2		
c0	1		
E1 (电子伏特)	32.51		
E2 (电子伏特)	43.71		
E3（电子伏特）	68.75		
G1_eff_eV	1.886796226		

G2_eff_eV	7.576285369
G3_eff_eV	8.936128916

补充表1：相干法诺干涉模型中使用的拟合参数和固定参数。灰色阴影条目表示在拟合中优化的参数，而无阴影条目则保持固定。



补充图5： **相干法诺干涉模型的对数残差。残差绘制为 $\log_{10}(I_{\mathrm{data}}/I_{\mathrm{model}})$，单位为十倍数量级（dex）**。正值表示模型低估了数据。(a) 绝对PDC强度的残差：(0,0,4)（200K）、(0,0,7/2)（200 K）和(0,0,4)（400 K）。(b) 在共同能量处计算的强度比残差： $R_1 = I_{(0,0,7/2),20K}/I_{(0,0,4),20K}$和 $R_2 = I_{(0,0,4),20K}/I_{(0,0,4),40K}$。竖直虚线标示模型中使用的共振能量$E_1$、 E_2和E_3。