

专题: 超快原子分子谱学仪器与测量方法

高能分辨光电子干涉仪研究进展*

王慧勇 李铭轩 罗嗣佐[†] 丁大军[‡]

(吉林大学原子与分子物理研究所, 长春 130012)

(2025年4月23日收到; 2025年5月19日收到修改稿)

近年来, 阿秒极紫外脉冲的产生与相关谱学测量技术的发展, 为研究电子动力学提供了强有力的工具. 阿秒时间尺度上的研究, 能够实时追踪原子分子的电子运动, 测量电子波包演变及其量子特性, 对于揭示电子在原子或分子内部的复杂动力学过程至关重要. 基于阿秒极紫外脉冲串光源发展起来的高能分辨光电子干涉仪, 以其独特的高能量和高时间分辨特性在阿秒脉冲串光源的表征、原子分子光电离时间延迟、光电子量子态测量以及激光诱导电子动态干涉等动力学研究中实现了重要的应用. 本文围绕建立的先进阿秒串光源和高能分辨电子谱学测量方法, 对高能分辨的阿秒超快光电子干涉技术及其应用进行详细介绍, 并基于相关研究进展对阿秒光电子超快动力学以及量子系统相干调控的前景进行了展望.

关键词: 光电离, 高次谐波, 光电子干涉仪, 阿秒电子动力学

PACS: 07.60.Ly, 42.65.Ky, 32.80.-t

DOI: 10.7498/aps.74.20250534

CSTR: 32037.14.aps.74.20250534

1 引言

电子波包的本征运动时间在阿秒 ($1 \text{ as} = 10^{-18} \text{ s}$) 尺度, 因此对电子动力学演化过程的实时探测需要使用阿秒量级的光脉冲. 气体中高次谐波的产生 (high-order harmonic generation, HHG)^[1-3] 这一极端非线性过程为此提供了有效手段, 当强激光脉冲与气体介质相互作用时, 会产生能量处于极紫外 (extreme ultraviolet, XUV) 波段且时域表现为阿秒宽度分布的相干辐射. 这一发现为阿秒脉冲^[1,2,4,5] 的产生奠定了基础, 打开了产生阿秒脉冲序列与孤立阿秒脉冲的大门. 在 2001 年, Paul 等^[6] 通过飞秒红外 (infrared, IR) 激光脉冲与气体介质相互作用, 成功产生了脉宽为 250 as 的阿秒脉冲序列 (attosecond pulse train, APT). 同年, Hentschel 等^[7] 实现了 650 as 的孤立阿秒脉冲的产生和测量.

这些里程碑式的突破标志着超快物理学从飞秒时间尺度跨越到阿秒尺度^[2,3,8-11], 预示着可以在电子自然运动的时间尺度下对其进行实验观测. 2023 年诺贝尔物理学奖授予了皮埃尔·阿戈斯蒂尼 (Pierer Agostini)、费伦茨·克劳斯 (Ferenc Krausz) 和安·吕利耶 (Anne L'Huillier), 以表彰他们“为研究物质中电子动力学而产生阿秒脉冲的实验方法”做出的重要贡献. 在过去的二十年里, 相关研究者们也在不断致力于实现能够实时追踪电子动力学的谱学实验技术^[12-22], 这一研究方向上的突破性进展不仅实现了对原子分子光电离的探测, 更从根本上改变了人们对于量子世界的理解.

量子干涉效应作为量子力学的核心特征之一, 其本质是量子态的相干叠加. 这种独特的量子现象不仅主导了微观量子系统的动力学演化, 也在量子测量应用中发挥着关键的作用. 由于干涉现象对相位具有显著的依赖, 因此基于干涉的谱学实验测量

* 国家重大科研仪器研制计划 (批准号: 11627807) 和国家自然科学基金 (批准号: 12450402, 12134005) 资助的课题.

[†] 通信作者. E-mail: luosz@jlu.edu.cn

[‡] 通信作者. E-mail: dajumd@jlu.edu.cn

技术在光电子的动力学, 以及量子退相干等相关研究中有着重重要的应用. 例如, 双光子跃迁干涉重构阿秒拍频技术 (reconstruction of attosecond beating by interference of two-photon transitions, RABBIT)^[6,23] 测量原子分子光电离延迟^[24-27]、阿秒电子波包的量子态层析成像技术 (quantum state tomography of attosecond electron wave packet, KRAKEN)^[28,29] 表征光电子密度矩阵^[30]、阿秒相干控制光电子谱学 (attosecond controlled photoelectron spectroscopy) 调控电离电子的动态干涉效应^[31] 等. 阿秒科学的持续发展^[12,17,32-36] 以及谱学测量技术的不断提升^[28,37-41], 为光电子动力学的测量与量子态的表征提供了强有力的工具.

本文从现阶段具有广泛应用的阿秒光电子干涉谱学的实验方法出发, 简要介绍实现高能量分辨的光电子干涉谱学测量所需要的实验技术, 以及相关谱学仪器的基本原理, 并总结当前光电子干涉谱学在阿秒脉冲序列产生重构、原子分子体系中的光电子动力学, 以及量子态重构等相关研究中获得的最新成果.

2 阿秒光电子干涉仪实验方法

随着阿秒科学的兴起, 人类对物理世界的认知也正式进入阿秒时间尺度, 在阿秒光电子干涉谱学的发展下, 我们得以对微观电子的动力学过程及其

蕴含的量子信息进行测量与调控. 阿秒精度的相对延迟控制技术作为阿秒干涉仪的核心, 对阿秒光场的相位控制和光电子的时域探测至关重要, 也为电子本征动力学的研究提供了前所未有的时间分辨能力. 具有高能量分辨率的光电子谱仪能够对能谱进行精细解析, 有效区分原子分子中电子的来源, 揭示微小能量差异下所蕴含的深层物理机制, 为超快科学与量子态调控提供了革命性的创新. 通过将阿秒量级的时间分辨与毫电子伏特量级的能量分辨相结合, 为实时追踪强关联体系中的电子动力学和光电子波包量子态调控提供了全新的探测手段.

2.1 窄带阿秒极紫外脉冲串光源

原子分子具有清晰分立的电子、振动以及转动能级, 其能级间跃迁的研究对量子力学的发展产生了重要推进作用. 而实现不同能级的分辨, 尤其是分子振动^[26,42,43]、转动量子态的区分需要高能量分辨的光源以及谱学仪器. 图 1(a) 给出了以 Ar 作为束源气体, 与中心波长 800 nm 的 IR 光相互作用得到的一组窄带谐波谱. 其中横坐标为不同级次谐波的能级分布, 谐波级次覆盖范围为 H17—H35, 对应能量范围 26—54 eV. 图 1(b) 为上述窄带谐波 H25 的放大图, 通过对其拟合得到半高全宽 (full width at half maximum, FWHM) 约为 100 meV, 足以实现大部分简单分子体系振动能级的分辨. 其中,

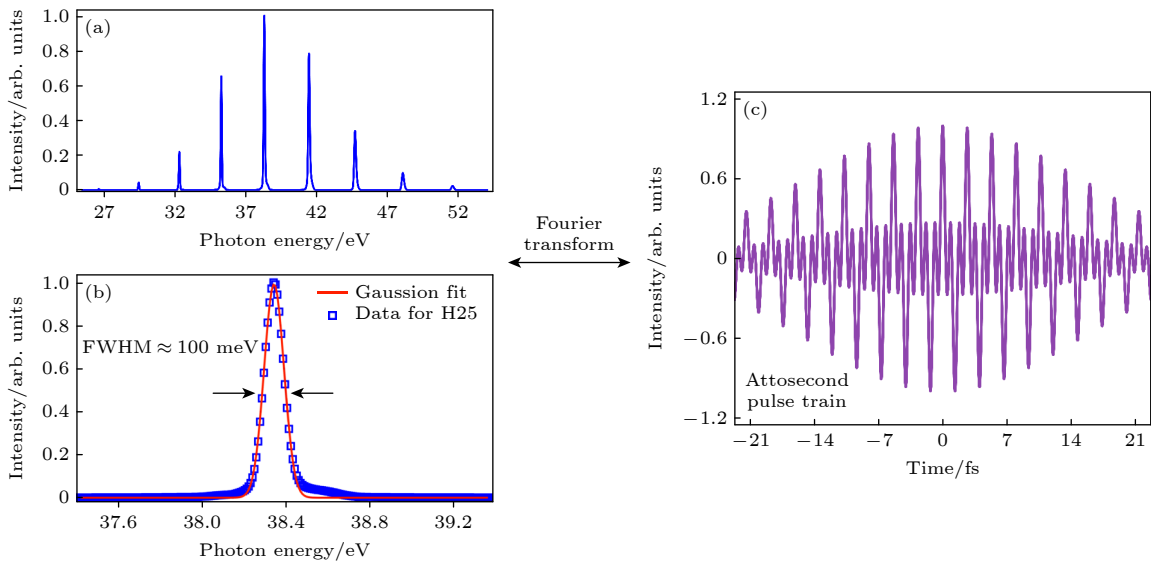


图 1 (a) Ar 与 IR 相互作用产生的窄带谐波光源; (b) 窄带谐波 H25 的放大图; (c) 阿秒极紫外脉冲串的时间结构示意图

Fig. 1. (a) Narrowband high-order harmonics generated by the interaction between Ar and the IR driving field; (b) magnified spectrum of the narrowband 25th harmonic (H25); (c) schematic illustration of the temporal structure of the attosecond extreme ultraviolet pulse train.

基于窄带高次谐波合成的阿秒极紫外脉冲串光源, 不仅具备如图 1(c) 所示优异的时间分辨特性, 而且其光子能量范围能够覆盖原子分子的价电子, 甚至某些特定内层电子的电离以及激发等重要的物理过程. 单一级次高次谐波中窄带光谱特性提供了卓越能量分辨能力, 还能避免不同电离通道的重叠. 成为实现电子通道分辨, 研究电子-振动耦合、形状共振及电子关联效应对原子分子复杂电离过程影响的强有力工具^[24-27,31,44].

2.2 阿秒马赫-曾德尔干涉仪

在进行阿秒时间分辨的实验测量中, 首要条件是确保光束线的延迟稳定性, 以便后续对泵浦脉冲与探测脉冲的相对相位精确调控, 并进行阿秒尺度下的动力学信息探测. 这要求对泵浦臂与探测臂的相对光程控制维持在纳米级别的范围内. 目前, 无论是共线^[6,45,46] 还是非共线^[47-50] 的光束线配置, 均可实现数小时的阿秒级稳定. 其中, 共线光路相较非共线光路受环境干扰更小, 也更易达到阿秒级稳定性, 但局限于无法便捷地对其中任一干涉臂进行单独调控. 以马赫-曾德尔干涉仪 (Mach-Zehnder interferometer) 为代表的非共线光路中, 由于泵浦脉冲与探测脉冲是平行传播, 通常两臂的传播距离可以根据需求控制在几十厘米至数十米之间不等, 所以对光束属性具有更加灵活的调控方式, 但环境波动更易导致光束漂移, 这对光束线稳定系统调控

提出了更高的要求. 为了解决这个问题, 研究者们设计了一种基于泵浦-探测两臂干涉条纹相位实时反馈的阿秒马赫-曾德尔干涉仪, 可以通过主动稳定反馈系统对受到外界环境干扰的光束线进行实时补偿, 使泵浦-探测光路的时间抖动均方差控制在数十阿秒以内^[47-52]. 如图 2 所示, 该装置为利用共轴传播 532 nm 连续光 (continuous wave, CW) 作为反馈参考的 XUV-IR 光束线主动稳定系统^[40]. 光束的传播与合束遵循图 2 中箭头所指方向, 泵浦与探测两臂中的连续绿光在合束之后, 分别通过反射镜实现空间重合, 产生的干涉条纹由 CCD 相机 (15 Hz) 采集. 引入 532 nm 连续激光作为参考光利于对干涉条纹进行相干调控, 由于连续光不需要考虑相机探测面上两光束经历光学元件的相对光程, 在保证两光束臂光强相当的情况下, 只需确保在空间中重合便能获得清晰的干涉条纹. 系统通过实时监测干涉条纹的相对相移, 通过 PID (比例-积分-微分) 控制反馈电压信号, 并传输给压电陶瓷平移台对探测光程进行调节, 实现泵浦-探测相对延迟的主动稳定. 该系统在长时间稳定性测量中, 延迟抖动均方差达到约 17 as, 且该方式延迟扫描的总光程不会受到参考光束脉宽的限制. 此外, 也可以利用光束线系统泵浦-探测两臂的红外光作为参考光^[28]. 在这种方法中, 由于参考光是脉宽为几十飞秒的脉冲激光, 在保证光束空间重合的前提下, 还需在导出光路对两臂的光程分别进行补偿:

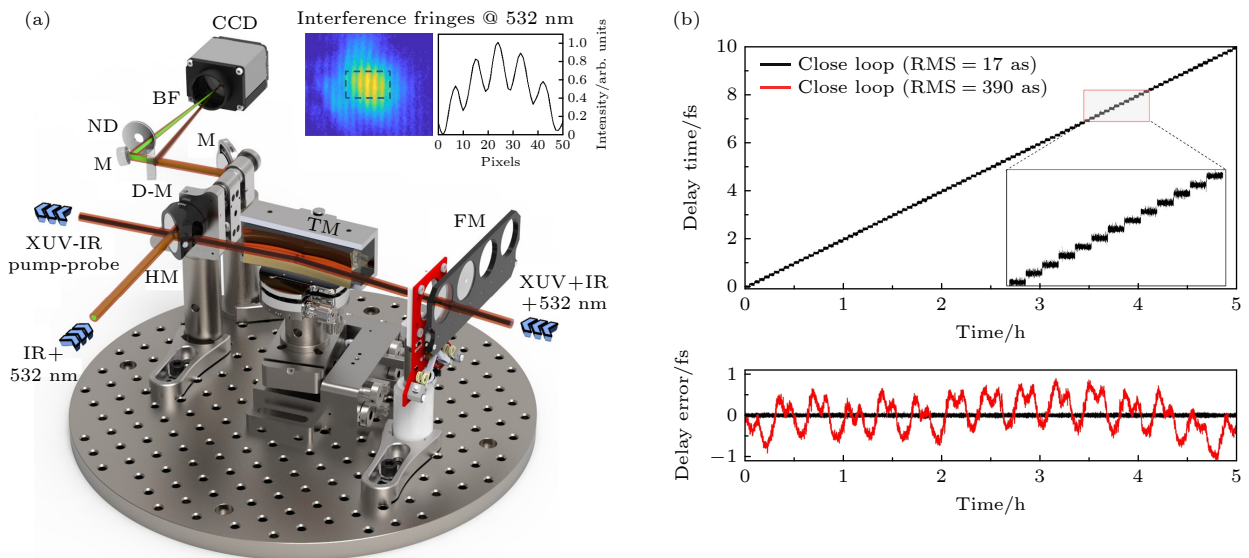


图 2 (a) 联合腔体内部光学元件与光束路径; (b) 主动稳定系统下泵浦-探测臂延迟的绝对相位 (上) 与相对相位 (下) 测量结果. 黑色曲线表示在启用主动稳定系统时的长时间光束稳定性, 红色曲线则表示未启用主动稳定系统的情况^[40]

Fig. 2. (a) Optomechanical and beam path in the combination chamber; (b) absolute phase (upper) and relative phase (lower) of a pump-probe delay with active stability measurement. Long-term stability with (black) and without (red) feedback^[40].

在参考光的一束光路中加入熔融石英玻璃用于展宽光束、增加延迟扫描区间,另一束加入一对光楔用于精确调节相对延迟.在导出后的参考光光路里加入二分之一波片与偏振器,用来调节光束的强度比例,优化干涉条纹的对比度.同时,在相机前添加窄带通滤波器,进一步拓展时间重合区域.通过长时间采集稳定性测量,目前利用该方式的先进泵浦探测光路延迟稳定性可达约 13 as^[28].使用光束线本身的红外飞秒激光作为参考光,能直接反映光束线系统的真实稳定性,且无需额外引入其他参考光源,简化实验配置.

2.3 高能量分辨光电子谱仪

在阿秒光电子谱学测量中,精确测量光电子的能量和角度分布对于解析电子发射机制、提取发射时间延迟以及揭示电子关联等物理过程具有重要意义.光电子谱仪作为实验观测的核心工具,其性能直接影响实验的时间与能量分辨能力.目前常见的光电子谱仪类型包括电子飞行时间谱仪 (electron time-of-flight spectrometer, e-TOF)、速度成像谱仪 (velocity map imaging, VMI) 和冷靶反冲动量成像谱仪 (cold target recoil ion momentum spectrum, COLTRIMS).不同类型的谱学仪器在光电子采集中各有优势,例如电子飞行时间谱仪具有 meV 量级的高能量分辨率和宽动态范围; VMI 具有电子出射的动量和角分辨信息; COLTRIMS 可以通过符合测量实现多体关联动力学测量等.在复杂原子分子体系中,某些能级结构的宽度在十几到上百 meV 之间不等,因此具有高能量分辨的光电子飞行时间谱仪对深入理解诸如 Fano 共振^[53]、核-电子耦合^[26,42]、电子关联效应^[43]等重要物理过程至关重要.

电子飞行时间谱仪主要分为两类:无场电子飞行时间谱仪 (field-free time-of-flight electron spectrometer) 和磁瓶式电子谱仪 (magnetic bottle electron spectrometer, MBES).无场电子飞行时间谱仪利用电子在自由漂移区中的飞行时间与其动能之间的关系,通过测量电子从电离点到探测器的飞行时间,精确反推出其动能,从而获得高分辨的电子能谱.该类谱仪在作用区域没有外场影响,特别适用于研究超快过程中的原子和分子电离动力学.磁瓶式电子谱仪则通过强磁场将电离产生的电子聚焦成束,并利用弱磁场将其导向探测器.不同动

能的电子飞行时间不同,通过时间测量同样可反推出其动能.该谱仪具有极高的收集效率,是超快动力学实验中广泛应用的关键工具.高能量分辨率的电子谱仪不仅显著提升了阿秒时间分辨实验的精度,还为探究原子与分子体系中的超快电子过程提供了重要支撑,构成了当前阿秒谱学实验发展的基础.

2.4 阿秒光电子干涉测量技术

在阿秒光电子动力学研究中,精确解析电子的电离相位信息是理解其超快演化行为的关键.近年来发展出多种基于干涉原理的测量技术,使得对电子态的时间和能量分辨表征成为可能.其中, RABBIT 技术^[6]作为目前应用最为广泛的手段之一,已成功实现了对光电离延迟的阿秒精度测量,并被用于探测电子动力学过程.与此同时,随着对量子相干性和混合态特性研究的深入,近期提出的 KRAKEN 技术^[28,29],结合能量分辨探测与密度矩阵层析方法,首次实现了对混合态与纠缠电子态的探测,拓展了光电子量子属性测量的手段与能力.

RABBIT 技术^[6]是目前研究光电离延迟的方法中较为成熟的一种,该方法利用双光子电离通道间的干涉,提取与电离过程相关的相位信息,因此最初被用于重构阿秒脉冲序列^[54],并在之后被推广至光电离延迟的相关测量.这项技术基于阿秒脉冲序列和红外飞秒激光的泵浦-探测方案,其干涉原理如图 3 所示,具有较高单光子能量的 XUV 光子将电子电离并形成主峰 (mainband, MB),相邻主峰的电子可以进一步吸收或者辐射一个红外光子形成边带 (sideband, SB) 并产生干涉.以原子体系为例,边带的振荡信号强度可以表示为 $SB = A + B \cos(2\omega_{IR}\tau - \Delta\phi_{tot})$, ω_{IR} 是红外光的载波频率; $\Delta\phi_{tot}$ 为总的振荡相位,其中包括 XUV 脉冲电离的阿秒啁啾 $\Delta\phi_{XUV}$ 和原子相位 $\Delta\phi_{atom}$.因此,基于 RABBIT 的干涉测量中,既可以对比单一壳层电子的不同 SB 获取谐波光源的阿秒啁啾,从而重构阿秒脉冲;也可以对比不同研究对象的同一 SB 通道,获取不同研究对象的相对光电离相位,提取光电离延迟.除此之外,具有能谱解析能力的 Rainbow-RABBIT 方法也可以对共振态电离以及非绝热耦合过程进行测量,为原子分子精细结构的阿秒测量提供了极高的能量-时间分辨.

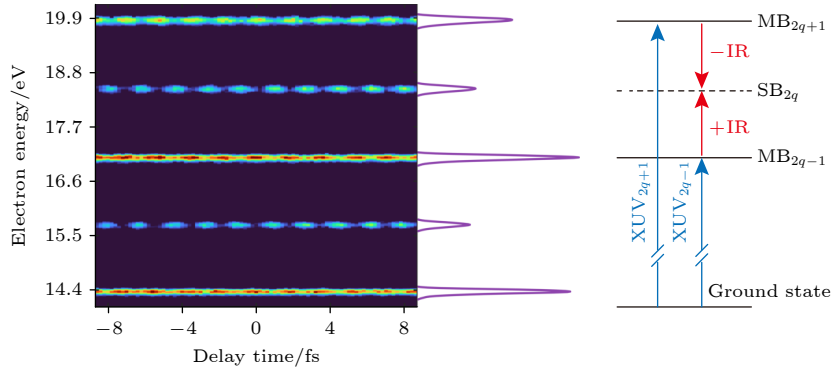


图 3 双光子跃迁量子路径干涉示意图, 使用了 He 原子的 RABBIT 光电子谱. 由 XUV 泵浦光激发的光电子在 IR 探测光的作用下额外吸收或辐射一个 IR 光子, 使主峰 (MBs) 的光电子跃迁至边带 (SBs), 且光电子谱强度随 XUV 泵浦与 IR 探测之间的相对延迟发生振荡

Fig. 3. Schematic of two-photon transition quantum path interference, utilizing the RABBIT photoelectron spectrum of He atoms. The photoelectrons excited by the XUV pump laser, under the influence of the IR probe laser, absorb or emit an additional IR photon, shifting the photoelectrons from the main bands (MBs) to the sidebands (SBs). Furthermore, the intensity of the photoelectron spectrum oscillates as a function of the delay between the XUV pump and IR probe.

光电离过程中, 吸收光子后被辐射的电子常被视为经典粒子, 其量子本征属性在分析中往往被忽略. KRAKEN 技术是一项在量子态层面干涉测量原子体系下光电子相干性的全新技术^[28-30], 该方法能够通过对光电子波包的量子态层析投影, 实现对密度矩阵的测量. 与 RABBIT 中不同谐波间电离路径的干涉不同, KRAKEN 通过结合单一级次谐波 (Ω) 和红外光梳对 (ω_1, ω_2), 使得同一末态 $|\epsilon_f\rangle$ 上存在由两条差频 ($\delta\omega$) 光电离路径共同布居而引发的干涉. 所以, 扫描延迟下的光电子谱可以表示为 $S(\epsilon_f, \tau, \delta\omega) = \langle \epsilon_f | \rho_{XUV+IR}(\tau, \delta\omega) | \epsilon_f \rangle$, 并能够以密度矩阵 ρ_{XUV} 形式展开为布居项

$$|\mu_{\epsilon_f, \epsilon_1}|^2 \rho_{XUV}(\epsilon_1, \epsilon_1) + |\mu_{\epsilon_f, \epsilon_2}|^2 \rho_{XUV}(\epsilon_2, \epsilon_2)$$

和相干项

$$e^{i\delta\omega\tau} \mu_{\epsilon_f, \epsilon_1} \mu_{\epsilon_f, \epsilon_2}^* \rho_{XUV}(\epsilon_1, \epsilon_2) + e^{-i\delta\omega\tau} \mu_{\epsilon_f, \epsilon_2} \mu_{\epsilon_f, \epsilon_1}^* \rho_{XUV}(\epsilon_2, \epsilon_1)$$

的加和. 通过对光谱沿时间轴进行傅里叶变换可以提取相干项 $\delta\omega$ 的振荡成分, 提取非对角元 $\rho_{XUV}(\epsilon_1, \epsilon_2)$, 实现对密度矩阵的重构.

3 光电子干涉谱学重构阿秒光脉冲和追踪电子动力学

干涉谱学的研究方式突破了传统谱学的局限性, 在静态的能谱测量之外为光电子的动态过程和量子干涉效应等方向提供了研究手段. 通过结合高稳定性的阿秒干涉仪、高能量分辨的光电子能谱以

及相应的干涉谱学测量方法, 光电子的超快动力学行为及其对应的量子特性得以被揭示. 如光电离延迟^[24-27, 42, 43, 55-57]、量子态重构^[28, 29]以及电离电子的动态干涉效应^[31]等.

3.1 阿秒脉冲序列产生与重构

由 RABBIT 干涉测量技术采集得到的光电子能谱中包含着高次谐波频谱的相位信息, 因此可以用于重构阿秒脉冲序列. 阿秒脉冲串表征主要依赖算法进行重构, 常见的方法包括主成分广义投影算法 (principal component generalized projection algorithm, PCGPA)^[58]、最小二乘广义投影算法 (least squares generalized projections algorithm, LSGPA)^[59]以及扩展的图形迭代引擎算法 (extended ptychographic iterative engine, ePIE)^[60]等. 在这些方法中, ePIE 算法与其他表征的算法相比, 仅需少量数据即可重构阿秒脉冲串, 计算量更少且受噪声影响低.

对阿秒脉冲串进行重构时, ePIE 算法采用了一种基于无透镜成像技术中层析重建方法的相位恢复方案^[60]. RABBIT 实验基于泵浦-探测原理, XUV 使原子或分子电离并利用 IR 光探测. 在未加入 IR 光时, 光电子谱仅记录了 XUV 贡献的光电子谱; 当加入 IR 光场与电子波包重叠后, 测得的光电子能谱包含了 IR 光矢量. 通过扫描 XUV 与 IR 光场间的相对时间延迟, 提取其强度与相位信息用以表征 XUV. 图 4(a) 为 He 原子的 RABBIT 光电子

谱^[40], 图 4(b) 给出了在一定能量范围内 SB24 的振荡数据信号与余弦拟合结果的曲线, 图 4(c) 为不同边带间提取出的相对相位信息. 实验上为了表征 APT 的时间结构, 可以通过扫描 APT 和 IR 之间的相对时间延迟, 在泵浦臂中插入同心 Al 膜消除基频光, 同时降低探测光 IR 强度至约 5×10^{11} W/cm², 避免多光子电离过程的影响. 最后, 图 4(d) 展示了基于 ePIE 算法对 XUV 进行重建得到的结果, 表明生成的脉冲序列持续时间约为 280 as.

3.2 阿秒光电离延迟时间测量

在阿秒实验测量中, 高能量分辨阿秒光电子干涉仪对于光电子谱的采集与解析至关重要. 早在 2010 年, Schultze 等^[61]对 Ne 原子中 2s 与 2p 轨道的光电子发射时间差进行了实验研究, 但得到的实验结果与理论计算存在显著差异. 直到 2017 年 Isinger 等^[44]基于阿秒脉冲串的高能量分辨光电子干涉仪进行通道分辨的实验测量, 得到的实验结果与理论计算基本符合, 同时也解释了之前阿秒条纹实验与理论计算存在的差异来源于光谱成分中 shake-up 态的重叠. 这也间接证明了只有具备足够的能谱分辨能力, 才能精确解析阿秒光电离路

径, 确保提取的相对时间延迟可信. 因此, RABBIT 作为可以解析亚电子伏特能量尺度, 且支持相位敏感波包重构的高精度光电子干涉谱学测量技术, 已成为当前实现阿秒级延迟测量的关键技术之一.

图 5 展示了 Isinger 等^[44]在实验中测量得到的 Ne 原子 2s 与 2p 壳层光电离过程的光电子能谱. 通过对 Ne 原子 2s 和 2p 壳层光电离所产生的 RABBIT 边带 (如 S42, S44 等) 进行延迟扫描, 测得两亚壳层电子的光电离时间延迟差. 结果表明 2p 光电离过程相对于 2s 存在约 30 as 的迟滞, 并随着光子能量增加而减小, 展示出明显的能量依赖性行为. 对于上述实验结果, 需保证干涉仪稳定的时间精度与锐利的谐波频梳, 还需要高能量分辨精度的电子谱仪, 才能在实验中观测到由 2p 电子激发至 3p 轨道所引发的 shake-up 过程. 这个过程会对 2s 边带信号产生影响, 显著改变 RABBIT 振荡的相位, 若未能有效分辨, 将误导时间延迟的提取结果. 实验上利用 50 meV 步长的能量分辨傅里叶分析方法, 有效识别并剥离 shake-up 对实验结果的干扰, 实现了对 2s 和 2p 光电离路径的分离, 为时间延迟的精确测定提供了基础. 同时, 通过理论

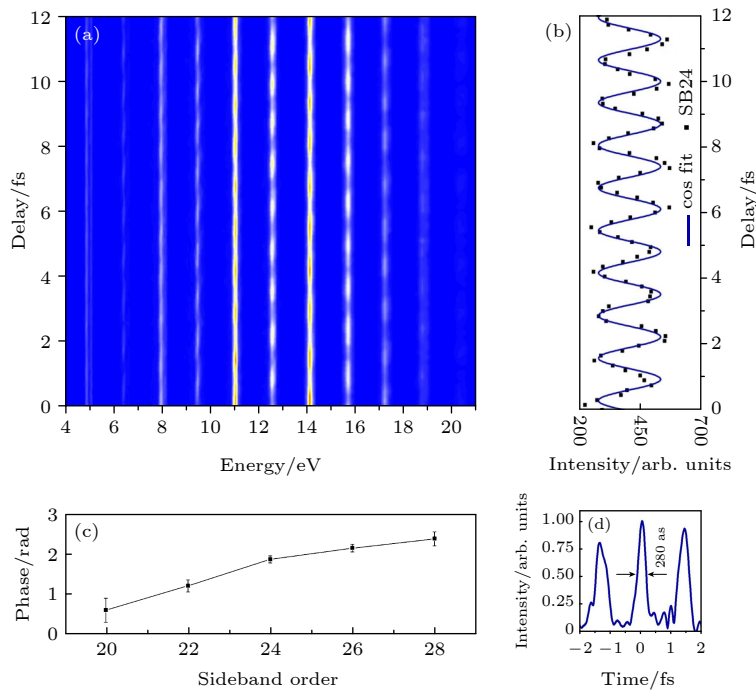


图 4 (a) He 原子的 RABBIT 光电子谱; (b) SB24 的振荡数据信号与余弦拟合曲线; (c) 提取不同 SBs 之间的相对相位; (d) 基于 ePIE 算法对 APTs 进行重建, 得到脉冲持续时间约为 280 as^[40]

Fig. 4. (a) RABBIT spectra of the He atom; (b) oscillatory signal of SB24 fitted with a cosine function; (c) extraction of relative phases between different sidebands; (d) reconstruction of APTs based on the ePIE, the pulse duration approximately 280 as^[40].

多体微扰计算, 以及 2s 与 2p 轨道间的电子关联效应, 理论结果与实验数据在整个能区内展现出良好一致性, 有效解决了延续七年的实验观测与理论计算存在延迟差异的难题^[61-64].

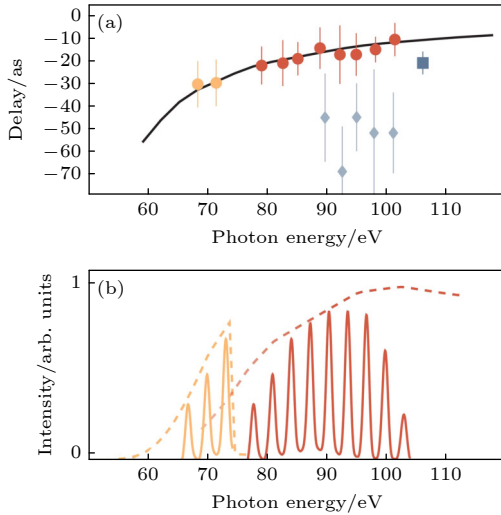


图 5 (a) Ne 原子中 2s 与 2p 壳层的光电离时间延迟随光子能量的变化 (黄点和红点), 与多体微扰理论计算 (黑色实线) 符合良好. 同时给出了阿秒条纹实验^[61]的结果 (方块) 和 shake-up 过程相对于 2p 光电离的时间延迟差 (菱形). (b) 实验所用光子谱图, 虚线为对应的透射曲线^[44].
Fig. 5. (a) Relative photoionization time delay between the 2s and 2p shells of Ne as a function of photon energy (yellow and red dots), exhibiting good agreement with the results of many-body perturbation theory (black solid line). The result from the attosecond streaking experiment^[61] (squares) is included, and the relative time delay between the shake-up process and 2p channel is shown in diamonds. (b) The photon spectrum used in the experiment, with the dashed line representing the corresponding transmission curve^[44].

3.3 原子共振光电离阿秒谱学研究

Fano 共振是一种广泛存在于多个物理体系中的量子干涉现象, 例如在原子或分子的光电离过程中, 或在量子点中的电子传输中均可观察到. 随着阿秒科学的发展, 干涉测量技术已被用于精确测量 Ar^[65] 和 He^[66] 原子中接近法诺共振区域的光电子波包的振幅与谱相位, 重构其超快光电离动力学. 然而, 探测光场的引入可能对体系产生影响, 改变共振的光谱轮廓. 在相对高光强条件下, 实验测量^[67,68] 与理论计算^[69] 都观测到了共振线型的显著演化, 此类效应可通过引入复值的 Fano 不对称因子 q 进行描述^[70,71]. 即使在 RABBIT 实验的微扰条件下, 探测光场也可能引入额外的激发路径与

最终态相互作用, 影响干涉条纹的振幅与相位测量结果. 图 6 展示了这项工作中涉及的不同能级与跃迁过程. 由于自旋-轨道相互作用, 当 Ar 原子在吸收一个或两个光子并发生电离后, 产生的光电子能量取决于最终的离子态 $3p^5\ ^2P_{1/2}$ 和 $3p^5\ ^2P_{3/2}$. 在图 6(a) 的左侧, 还标示了激发态 $3s3p^6nl$ (即 $3s^{-1}nl$), 这些态可以通过 $3s^2$ 子壳层吸收一个谐波光子 (如 $3s3p^64p$), 或通过吸收一个谐波光子加/减一个 IR 光子 (如 $3s3p^64s, 4d, 6s, 5d$) 到达. 由于这些激发态嵌入在连续态中, 它们会通过自电离衰变. 实验中 IR 光的强度被严格控制在足够低的水平, 以确保吸收或辐射超过一个 IR 光子的概率可以忽略不计. 图 6(b) 和图 6(c) 显示了在 SB18 和 SB16 中测得的光电子能谱随 XUV 和 IR 光延迟扫描的函数关系. SB 振荡现象清晰可见, 周期为基频光周期的一半 (对应 RABBIT 的典型特征), 且在光电子能谱中, 自旋-轨道分裂能够被清楚地分辨出来. 实验分别采用带宽为 10 和 35 nm 的探测光对光电子能谱进行测量, 并用余弦拟合对实验结果进行处理.

根据实验结果, 研究团队采用了三种独立的理论计算方法进行分析: 多体扰动理论^[72]、XCHEM 计算方法^[73]、NEWSTOCK 原子光电离计算方法^[74,75]. 这三种理论方法各自侧重于不同的物理过程, 同时又能互相弥补彼此的局限性, 为实验结果提供更全面的解释. 通过对比实验测量与理论模拟, 研究发现上述物理现象可归因于末态相互作用的影响. 在准束缚态吸收或辐射额外的光子后, 其能量在某些情况下接近共振态, 随后发生的自电离过程对 RABBIT 的双光子干涉路径产生了干扰. 由于路径间干扰以及最终态的相互作用, 不对称参数 q 变为复值, 使得双光子轨迹在复平面上发生偏移. 这种微小的偏移虽然不会显著改变振幅, 但却极大地影响了相位变化, 使得原本小于 π 的非单调相位变化转变为单调的 2π 相位偏移.

3.4 光电子波包量子态层析测量

在原子或分子体系中, 量子相干性不可避免地会受到环境退相干或者不完全测量的破坏, 导致量子信息的丢失. 例如, 在电子-核强耦合的分子体系^[76-79] 中, 如果只测量电子自由度或核的运动, 由于未解析的关联自由度受环境影响, 被观测子系统

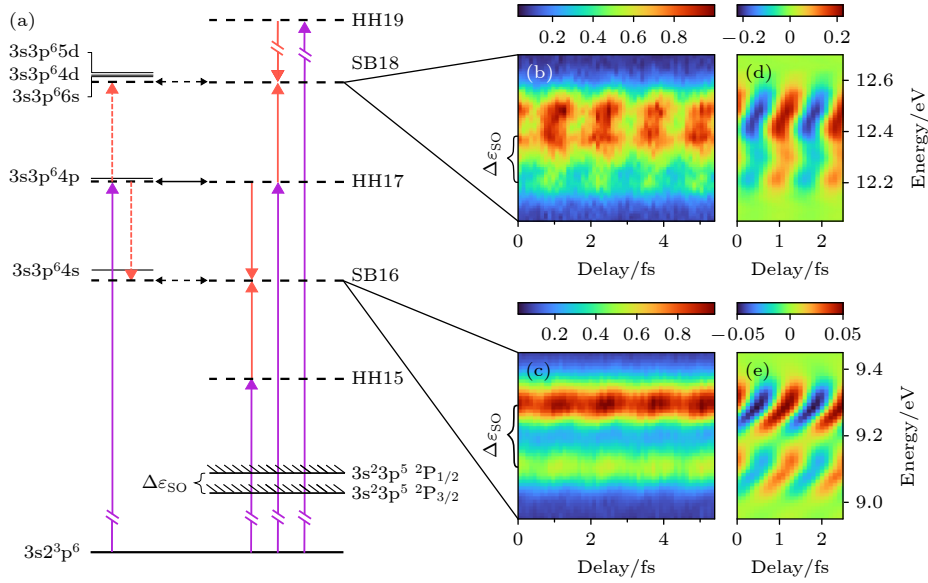


图 6 (a) 实验测量中涉及的能级、通道和跃迁过程的示意图. 紫色 (红色) 箭头代表谐波 (红外) 光子, 黑色箭头代表自电离; 虚线代表吸收谐波光子或在吸收谐波光子后额外吸收或辐射红外光子到达连续态或虚态, 实线表示可能通过自电离衰变到准束缚态. 在 Ar 中的 (b) SB18 和 (c) SB16 中测量到的光电子能谱与 XUV 和 IR 之间延迟的函数关系. (d) SB18 和 (e) SB16 中的光电子能谱减去振荡平均值^[53]

Fig. 6. (a) Illustration of the levels, channels, and transition processes involved in the experiment. The purple (red) arrows represent the harmonic (IR) photons. The black arrows indicate autoionization. Dashed lines mark continuum or virtual states reached by absorption of a harmonic or a harmonic \pm an IR photon. Solid lines are quasibound states which may decay by autoionization. Measured photoelectron spectra in (b) SB18 and (c) SB16 in argon as a function of delay between XUV and IR. Photoelectron spectra in (d) SB18 and (e) SB16 after subtracting the mean values of the oscillations^[53].

的态会退化为混合态. 因此, 对于量子系统需要采用密度矩阵进行完备表述, 这样既能统一纯态和混合态的量子统计特性, 又能通过非对角元直观地反映相干性. KRAKEN 技术可用于对阿秒光电离产生的电子波包进行连续变量量子态层析, 而且无需依赖反演算法即可重建光电子的密度矩阵, 获得完整的量子态信息, 包括谱域中的相干性与混合度. 图 7(a) 所示为纯光量子态的量子层析扫描, 利用 KRAKEN 技术对 He 原子进行延迟扫描获得光电子能谱, 展示了 7 个 $\delta\omega$ 值的函数关系, 并作为密度矩阵 ρ 的对角元素进行填充. 同时图 7(b) 显示了每个 $\delta\omega$ 对应的振幅 $A_{\delta\omega}$. 光电子密度矩阵可以在初始空密度矩阵的相应对角插入测量得到的振幅 $A_{\delta\omega}$ 进行重构. 图 7(c) 为进行有限测量后重构得到的光电子密度矩阵, 黑色区域为有限次测量后没有被测量覆盖到的对角元素, 得到的密度矩阵振幅描绘了一个近似圆形的图案.

在实际的实验测量中只能进行有限次的测量, 但光电子的能量分布却是连续的, 所以能够采用哈密尔顿蒙特卡罗法从测量得到的实验结果中提取

完整的密度矩阵. 如图 8(a) 所示, 得到的密度矩阵近似圆形, 但对角有轻微的拉长, 能量间隔较大的连续态间的相干性有所降低. 这种现象是由电子谱仪有限的分辨率造成的, 使测量得到的光电子态纯度下降. 通过测量光谱仪响应并将结果反馈给贝叶斯算法, 用来去除实验设备对结果的影响, 得到如图 8(b) 所示的密度矩阵分布近似于完美的圆形, 表明光电子是由一个纯相干态描述的. 将实验结果与基于相对论随机相位交换 (relativistic random phase approximation with exchange, RRP AE)^[80] 的计算结果进行比较, 其中图 8(c) 为通过双光子 (XUV-IR) 计算得到的理论密度矩阵. 图 8(d) 为仅吸收 XUV 发生光电子的理论计算结果, 可以看到光电子量子态从实验测量的结果与理论计算重构得到密度矩阵几乎相同. 对 Ar 进行类似于 He 的纯光电子量子态测量与理论计算, 由于其自旋-轨道相互作用导致离子基态发生劈裂, 光电子能谱由两个能量偏移的光电子峰组成. 在 Ar 的测量中得到的密度矩阵沿对角方向有明显的拉长, 而且与理论计算模拟得到的结果基本一致. 这表明在 Ar 原子体系下连续态间存有较大能量分离导致相干性受损.

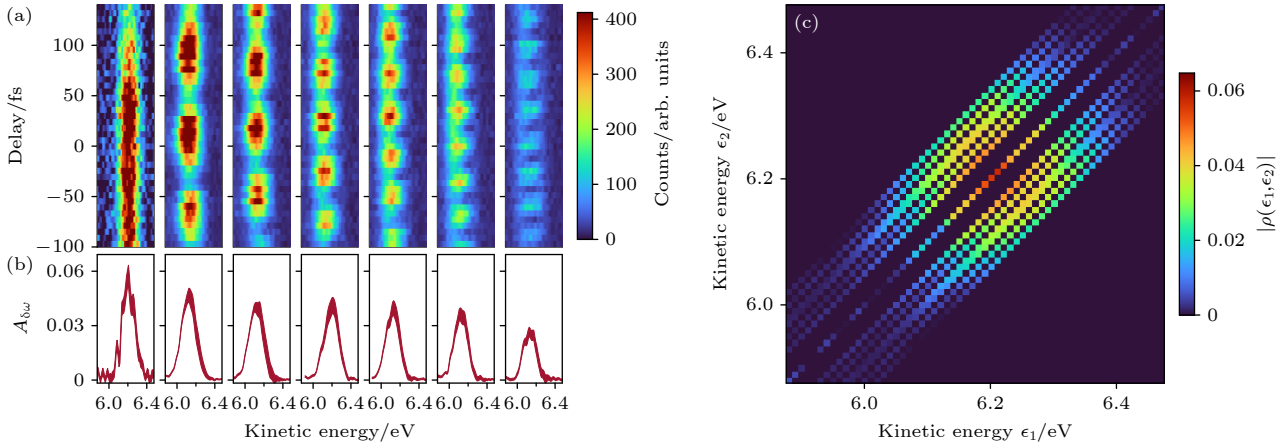


图7 KRAKEN技术电离He原子的实验结果 (a)不同 $\delta\omega$ 探测光梳的光电子能谱图; (b)不同 $\hbar\delta\omega$ 光谱图的振荡振幅 $A_{\delta\omega}$; (c)重构得到的密度矩阵^[30]

Fig. 7. Experimental results of ionizing He atoms using KRAKEN technique: (a) Photoelectron spectra with different $\delta\omega$ probe frequency combs; (b) the oscillation amplitude $A_{\delta\omega}$ for the spectra corresponding to different $\hbar\delta\omega$ values; (c) reconstruction of the density matrix^[30].

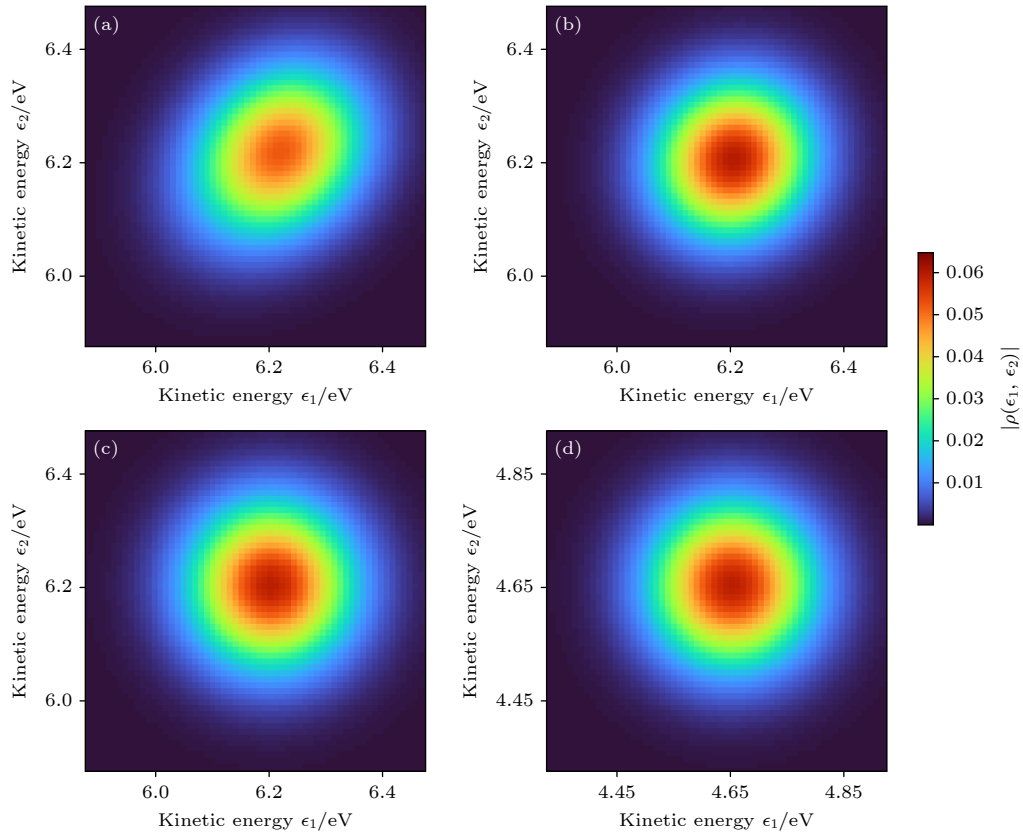


图8 根据实验测量和理论计算对He的密度矩阵进行重构 (a)根据实验测量结果重构的密度矩阵; (b)检索光谱仪响应函数后,根据实验结果重构的密度矩阵; (c)基于RRPAE计算重构的密度矩阵; (d)基于RRPAE计算下单光子电离重构得到的密度矩阵^[30]

Fig. 8. Reconstruction of the density matrix for He based on experimental measurements and theoretical calculations: (a) The density matrix reconstructed from experimental measurement results; (b) the density matrix reconstructed from experimental results after retrieving the corresponding function of the spectrometer; (c) the density matrix reconstructed based on RRP AE calculations; (d) the density matrix reconstructed based on single-photon ionization under RRP AE calculations^[30].

将上述实验结果与理论计算进行对比可以发现, KRAKEN 技术可以给出光电子约化密度矩阵, 在假设离子和电子处于一个封闭系统下时, 还能够量化此体系下离子-电子间的纠缠度. 这种技术不仅适用于原子体系, 还可以推广到角度分辨测量与双电离 [81], 以及应用于更加复杂的分子体系 [82–85].

3.5 激光诱导电子动态干涉

动态干涉是一种描述光电子在超快脉冲作用下时域上发生电子波包干涉的效应. 描述了在超强极紫外激光脉冲与物质相互作用时, 由于电子能级随脉冲包络发生 Stark 偏移, 辐射的电子在脉冲上升-下降沿形成时间驻点并发生干涉, 最终形成频谱上的劈裂结构. 该效应最初由理论预测并经过严格的论证 [86–89,89–92], 并在近些年得到了实验的证实 [31]. 相关实验中, 研究人员提出了一种阿秒相干光场调控的方式, 对光电离耗尽和电子能级移动进行解耦并分别调节, 结合高能量分辨的光电子干涉谱学测量方法, 实现了对电子动态干涉现象的产生与调控.

图 9(a) 展示了 He 原子在第 19–25 阶谐波与红外飞秒激光同时作用下, 光电离所产生的电子能谱随延迟变化的测量结果. 从能谱中可以清晰地观测到周期性振荡、有质动力势移动和能谱劈裂等干涉结构. 为了解释实验结果并理解脉冲包络在光离子化中起到的作用, 分别使用单电子近似下求解含时薛定谔方程 (time-dependent schrödinger equation, TDSE), 以及强场近似 (strong-field approximation, SFA) 对光电子谱进行了复现, 图 9(b) 和图 9(c) 分别给出了在考虑实验参数情况下通过 TDSE 与 SFA 方法计算得到的随延迟变化的光电子谱. 在这两种计算方法的模拟中, 都观测到了能量的位移、加宽与劈裂, 而且光电子谱随延迟变化的相关特性与图 9(a) 中所示的测量数据一致. 结合理论模型对实验测量结果的分析表明, 干涉条纹是由电子波包在时域上发生干涉引起的, 原子在吸收 XUV 光子发生电离后, 产生的电子波包又被强的 IR 光进行调制. 使用 TDSE 和 SFA 两种计算方法模拟得到的光电子能谱中都展示出了与延迟相关的条纹特征, 而且简化的双缝模型也可以用于证实在时域中出现的干涉现象, 证明了激光包络引起的相位差在电子波包动态干涉过程中的重要性.

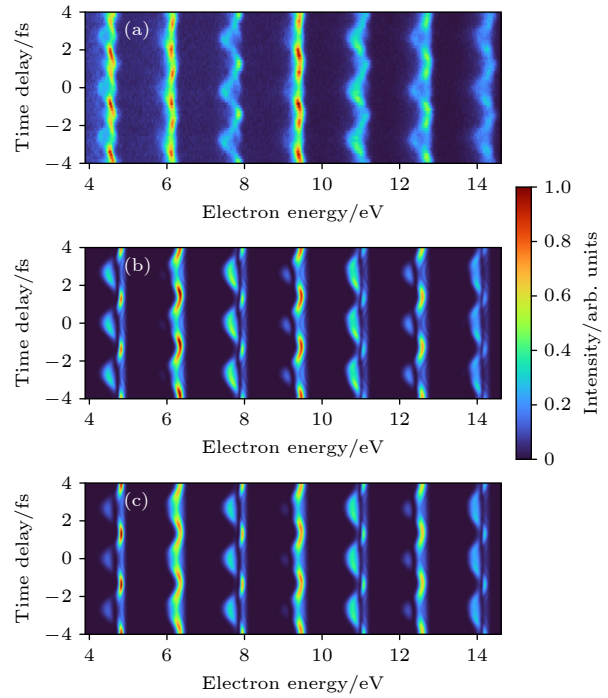


图 9 (a) 实验、(b) TDSE 和 (c) SFA 中获得的电离 He 原子产生的光电子能谱与泵浦探测时间延迟的关系 [31]

Fig. 9. Photoelectron spectra from ionization of He as a function of time delay between pump and probe lasers, which are obtained in (a) experiment, (b) TDSE, and (c) SFA, respectively [31].

4 总结与展望

随着阿秒激光脉冲相关产生和测量技术的飞速发展, 特别是高次谐波产生和阿秒脉冲的合成与应用, 超快物理学已经从飞秒时间尺度跨越到阿秒时间尺度. 这些技术的发展不仅使我们能够实时追踪和观测电子在量子系统中的运动过程, 还为深入理解原子和分子层次的电子动力学提供了新的工具和方法. 伴随阿秒光电子实验谱学不断向高稳定性、高能量与时间分辨的发展, 并结合 RABBIT 和 KRAKEN 等阿秒干涉谱学技术, 已经能够实现原子和分子体系中电子动力学的精确测量. 在研究电子发射时间延迟、电子波包的量子态层析成像等方面已取得重要突破, 表明提高谱仪性能和发展新的阿秒谱学技术是推动阿秒物理学发展的重要手段. 随着相关研究人员的努力, 原子分子阿秒电子动力学在实验测量和理论计算方面已经日渐趋于完善, 但阿秒物理学向更为复杂体系的拓展仍面临着一系列挑战. 现有技术能够产生高质量的阿秒脉冲串和单阿秒脉冲, 但长时间或重复性测量仍需

进一步提升光源的稳定性. 对于一些比较复杂的大分子体系和凝聚态材料的探测需要精度更高的测量方案, 还需要进一步提升谱仪的时间与能量分辨性. 随着阿秒谱学技术的不断成熟与创新、实验设备性能的不断提升, 不仅能够观测复杂体系电离动力学, 也会推动阿秒物理、化学反应动力学以及量子信息等领域深入研究, 探索在极短时间尺度下电子演化的全新物理现象.

参考文献

- [1] McPherson A, Gibson G, Jara H, Johann U, Luk T S, McIntyre I, Boyer K, Rhodes C K 1987 *J. Opt. Soc. Am. B* **4** 595
- [2] Ferray M, L'Huillier A, Li X, Lompre L, Mainfray G, Manus C 1988 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **21** L31
- [3] Corkum P B 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 1994
- [4] Macklin J, Kmetec J, Gordon III C 1993 *Phys. Rev. Lett.* **70** 766
- [5] L'Huillier A, Balcou P 1993 *Phys. Rev. Lett.* **70** 774
- [6] Paul P M, Toma E S, Breger P, Mullot G, Augé F, Balcou P, Muller H G, Agostini P 2001 *Science* **292** 1689
- [7] Hentschel M, Kienberger R, Spielmann C, Reider G A, Milosevic N, Brabec T, Corkum P, Heinzmann U, Drescher M, Krausz F 2001 *Nature* **414** 509
- [8] Protopapas M, Keitel C H, Knight P L 1997 *Rep. Prog. Phys.* **60** 389
- [9] Sansone G, Poletto L, Nisoli M 2011 *Nat. Photonics* **5** 655
- [10] Nisoli M, Decleva P, Calegari F, Palacios A, Martín F 2017 *Chem. Rev.* **117** 10760
- [11] Kraus P M, Zürch M, Cushing S K, Neumark D M, Leone S R 2018 *Nat. Rev. Chem.* **2** 82
- [12] Krausz F, Ivanov M 2009 *Rev. Mod. Phys.* **81** 163
- [13] Gong X, Lin C, He F, Song Q, Lin K, Ji Q, Zhang W, Ma J, Lu P, Liu Y, Zeng H, Yang W, Wu J 2017 *Phys. Rev. Lett.* **118** 143203
- [14] Hu W, Liu Y, Luo S, Li X, Yu J, Li X, Sun Z, Yuan K J, Bandrauk A D, Ding D 2019 *Phys. Rev. A* **99** 011402
- [15] Liu Y, Hu W, Luo S, Yuan K J, Sun Z, Bandrauk A D, Ding D 2019 *Phys. Rev. A* **100** 023404
- [16] Hu W, Li X, Zhao H, Li W, Lei Y, Kong X, Liu A, Luo S, Ding D 2020 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **53** 084002
- [17] Borrego-Varillas R, Lucchini M, Nisoli M 2022 *Rep. Prog. Phys.* **85** 066401
- [18] Shu Z, Liang H, Wang Y, Hu S, Chen S, Xu H, Ma R, Ding D, Chen J 2022 *Phys. Rev. Lett.* **128** 183202
- [19] Li X, Liu Y, Zhang D, He L, Luo S, Shu C C, Ding D 2023 *Phys. Rev. A* **108** 023114
- [20] Ren D, Chen C, Li X, Zhao X, Wang S, Li M, Zhao X, Ma P, Wang C, Yang Y, Chen Y, Luo S, Ding D 2023 *Phys. Rev. Res.* **5** L032044
- [21] Li X, Gao X, Li W, Yang T, Zhang D, He L, Luo S, Zhao S F, Ding D 2024 *Phys. Rev. A* **109** 013103
- [22] Jin W, Jiang T, Liu J, Luo S, Ren D, Li X, Wang C, Lang Y, Wang X, Zhao J, Zhao Z, Ding D 2024 *Ultrafast Sci.* **4** 0066
- [23] Neoričić L, Busto D, Laurell H, Weissenbilder R, Ammitzböll M, Luo S, Peschel J, Wikmark H, Lahl J, Maclot S, Squibb R J, Zhong S, Eng-Johnsson P, Arnold C L, Feifel R, Gisselbrecht M, Lindroth E, L'Huillier A 2022 *Front. Phys.* **10** 964586
- [24] Huppert M, Jordan I, Baykusheva D, von Conta A, Wörner H J 2016 *Phys. Rev. Lett.* **117** 093001
- [25] Zhong S, Vinbladh J, Busto D, Squibb R J, Isinger M, Neoričić L, Laurell H, Weissenbilder R, Arnold C L, Feifel R, Dahlström J M, Wendin G, Gisselbrecht M, Lindroth E, L'Huillier A 2020 *Nat. Commun.* **11** 5042
- [26] Nandi S, Plésiat E, Zhong S, Palacios A, Busto D, Isinger M, Neoričić L, Arnold C L, Squibb R J, Feifel R, Decleva P, L'Huillier A, Martín F, Gisselbrecht M 2020 *Sci. Adv.* **6** eaba7762
- [27] Gong X, Jiang W, Tong J, Qiang J, Lu P, Ni H, Lucchese R, Ueda K, Wu J 2022 *Phys. Rev. X* **12** 011002
- [28] Luo S, Weissenbilder R, Laurell H, Ammitzböll M, Poulain V, Busto D, Neoričić L, Guo C, Zhong S, Kroon D, Squibb R J, Feifel R, Gisselbrecht M, L'Huillier A, Arnold C L 2023 *Adv. Phys.: X* **8** 2250105
- [29] Laurell H, Finkelstein-Shapiro D, Dittel C, Guo C, Demjaha R, Ammitzböll M, Weissenbilder R, Neoričić L, Luo S, Gisselbrecht M, Arnold C L, Buchleitner A, Pullerits T, L'Huillier A, Busto D 2022 *Phys. Rev. Res.* **4** 033220
- [30] Laurell H, Luo S, Weissenbilder R, Ammitzböll M, Ahmed S, Söderberg H, Petersson C L M, Poulain V, Guo C, Dittel C, Finkelstein-Shapiro D, Squibb R J, Feifel R, Gisselbrecht M, Arnold C L, Buchleitner A, Lindroth E, Frisk Kockum A, L'Huillier A, Busto D 2025 *Nat. Photonics* **19** 352
- [31] Li M, Xie M, Wang H, Jia L, Li J, Wang W, Cai J, Hong X, Shi X, Lv Y, Zhao X, Luo S, Jiang W C, Peng L Y, Ding D 2024 *Phys. Rev. Lett.* **133** 253201
- [32] Kling M F, Vrakking M J 2008 *Annu. Rev. Phys. Chem.* **59** 463
- [33] Calegari F, Sansone G, Stagira S, Vozzi C, Nisoli M 2016 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **49** 062001
- [34] Jiang W, Armstrong G S J, Han L, Xu Y, Zuo Z, Tong J, Lu P, Dahlström J M, Ueda K, Brown A C, van der Hart H W, Gong X, Wu J 2023 *Phys. Rev. Lett.* **131** 203201
- [35] Cruz-Rodriguez L, Dey D, Freibert A, Stammer P 2024 *Nat. Rev. Phys.* **6** 691
- [36] Li M, Tang X, Wang H, Li J, Wang W, Cai J, Zhang J, San X, Zhao X, Ma P, Luo S, Jin C, Ding D 2025 *Light: Sci. Appl.* **14** 181
- [37] Niu Y, Liang H, Liu Y, Liu F, Ma R, Ding D 2017 *Chin. Phys. B* **26** 074222
- [38] Witting T, Osolodkov M, Schell F, Morales F, Patchkovskii S, Susnjarić P, Cavalcante F, Menoni C, Schulz C, Furch F, Vrakking M 2022 *Optica* **9** 145
- [39] Jiang W, Armstrong G S J, Tong J, Xu Y, Zuo Z, Qiang J, Lu P, Clarke D D A, Benda J, Fleischer A, Ni H, Ueda K, van der Hart H W, Brown A C, Gong X, Wu J 2022 *Nat. Commun.* **13** 5072
- [40] Li M, Wang H, Li X, Wang J, Zhang J, San X, Ma P, Lu Y, Liu Z, Wang C, Yang Y, Luo S, Ding D 2023 *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.* **263** 147287
- [41] Behrens M, Englert L, Bayer T, Wollenhaupt M 2024 *Rev. Sci. Instrum.* **95** 093101
- [42] Wang A L, Serov V V, Kamalov A, Bucksbaum P H, Kheifets A, Cryan J P 2021 *Phys. Rev. A* **104** 063119
- [43] Hammerland D, Berglitsch T, Zhang P, Luu T T, Ueda K, Lucchese R R, Wörner H J 2024 *Sci. Adv.* **10** ead13810
- [44] Isinger M, Squibb R J, Busto D, Zhong S, Harth A, Kroon D, Nandi S, Arnold C L, Miranda M, Dahlström J M, Lindroth E, Feifel R, Gisselbrecht M, L'Huillier A 2017 *Science* **358**

893

- [45] Zaïr A, Mével E, Cormier E, Constant E 2018 *J. Opt. Soc. Am. B* **35** A110
- [46] Ahmadi H, Kellerer S, Ertel D, Moiola M, Reduzzi M, Maroju P K, Jäger A, Shah R N, Lutz J, Frassetto F, Poletto L, Bragheri F, Osellame R, Pfeifer T, Schröter C D, Moshhammer R, Sansone G 2020 *J. Phys.: Photonics* **2** 024006
- [47] Chini M, Mashiko H, Wang H, Chen S, Yun C, Scott S, Gilbertson S, Chang Z 2009 *Opt. Express* **17** 21459
- [48] Sabbar M, Heuser S, Boge R, Lucchini M, Gallmann L, Cirelli C, Keller U 2014 *Rev. Sci. Instrum.* **85** 103113
- [49] Huppert M, Jordan I, Wörner H J 2015 *Rev. Sci. Instrum.* **86** 123106
- [50] Weber S J, Manschwetus B, Billon M, Böttcher M, Bougeard M, Breger P, Géléoc M, Gruson V, Huetz A, Lin N, Picard Y J, Ruchon T, Salières P, Carré B 2015 *Rev. Sci. Instrum.* **86** 033108
- [51] Luttmann M, Bresteau D, Hergott J F, Tcherbakoff O, Ruchon T 2021 *Phys. Rev. Appl.* **15** 034036
- [52] Vaughan J, Bahder J, Unzieker B, Arthur D, Tatum M, Hart T, Harrison G, Burrows S, Stringer P, Laurent G M 2019 *Opt. Express* **27** 30989
- [53] Luo S, Weissenbilder R, Laurell H, Bello R Y, Marante C, Ammitzböll M, Neoričić L, Ljungdahl A, Squibb R J, Feifel R, Gisselbrecht M, Arnold C L, Martín F, Lindroth E, Argenti L, Busto D, L'Huillier A 2024 *Phys. Rev. Res.* **6** 043271
- [54] Muller H 2002 *Appl. Phys. B* **74** s17
- [55] Cavalieri A L, Müller N, Uphues T, Yakovlev V S, Baltuška A, Horvath B, Schmidt B, Blümel L, Holzwarth R, Hendel S, Drescher M, Kleineberg U, Echenique P M, Kienberger R, Krausz F, Heinzmann U 2007 *Nature* **449** 1029
- [56] Vos J, Cattaneo L, Patchkovskii S, Zimmermann T, Cirelli C, Lucchini M, Kheifets A, Landsman A S, Keller U 2018 *Science* **360** 1326
- [57] Cattaneo L, Vos J, Bello R Y, Palacios A, Heuser S, Pedrelli L, Lucchini M, Cirelli C, Martín F, Keller U 2018 *Nat. Phys.* **14** 733
- [58] Kim K T, Ko D H, Park J, Tosa V, Nam C H 2010 *New J. Phys.* **12** 083019
- [59] Gagnon J, Goulielmakis E, Yakovlev V S 2008 *Appl. Phys. B* **92** 25
- [60] Lucchini M, Brüggemann M, Ludwig A, Gallmann L, Keller U, Feurer T 2015 *Opt. Express* **23** 29502
- [61] Schultze M, Fieß M, Karpowicz N, Gagnon J, Korbman M, Hofstetter M, Neppl S, Cavalieri A L, Komninos Y, Mécouris T, Nicolaïdes C A, Pazourek R, Nagele S, Feist J, Burgdörfer J, Azzeeer A M, Ernstorfer R, Kienberger R, Kleineberg U, Goulielmakis E, Krausz F, Yakovlev V S 2010 *Science* **328** 1658
- [62] Moore L R, Lysaght M A, Parker J S, van der Hart H W, Taylor K T 2011 *Phys. Rev. A* **84** 061404
- [63] Feist J, Zatsarinny O, Nagele S, Pazourek R, Burgdörfer J, Guan X, Bartschat K, Schneider B I 2014 *Phys. Rev. A* **89** 033417
- [64] Dahlström J M, Carette T, Lindroth E 2012 *Phys. Rev. A* **86** 061402
- [65] Turconi M, Barreau L, Busto D, Isinger M, Alexandridi C, Harth A, Squibb R J, Kroon D, Arnold C L, Feifel R, Gisselbrecht M, Argenti L, Martín F, L'Huillier A, Salières P 2020 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **53** 184003
- [66] Gruson V, Barreau L, Jiménez-Galan ff, Risoud F, Caillat J, Maquet A, Carré B, Lepetit F, Hergott J F, Ruchon T, Argenti L, Taïeb R, Martín F, Salières P 2016 *Science* **354** 734
- [67] Wang H, Chini M, Chen S, Zhang C H, He F, Cheng Y, Wu Y, Thumm U, Chang Z 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 143002
- [68] Ott C, Kaldun A, Raith P, Meyer K, Laux M, Evers J, Keitel C H, Greene C H, Pfeifer T 2013 *Science* **340** 716
- [69] Wickenhauser M, Burgdörfer J, Krausz F, Drescher M 2005 *Phys. Rev. Lett.* **94** 023002
- [70] Zielinski A, Majety V P, Nagele S, Pazourek R, Burgdörfer J, Scrinzi A 2015 *Phys. Rev. Lett.* **115** 243001
- [71] Agarwal G S, Haan S L, Cooper J 1984 *Phys. Rev. A* **29** 2552
- [72] Vinbladh J, Dahlström J M, Lindroth E 2019 *Phys. Rev. A* **100** 043424
- [73] Marante C, Klinker M, Corral I, González-Vázquez J, Argenti L, Martín F 2017 *J. Chem. Theory Comput.* **13** 499
- [74] Carette T, Dahlström J M, Argenti L, Lindroth E 2013 *Phys. Rev. A* **87** 023420
- [75] Harkema N, Cariker C, Lindroth E, Argenti L, Sandhu A 2021 *Phys. Rev. Lett.* **127** 023202
- [76] Pabst S, Greenman L, Ho P J, Mazziotti D A, Santra R 2011 *Phys. Rev. Lett.* **106** 053003
- [77] Nishi T, Lötstedt E, Yamanouchi K 2019 *Phys. Rev. A* **100** 013421
- [78] Arnold C, Larivière-Loiselle C, Khalili K, Inhester L, Welsch R, Santra R 2020 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **53** 164006
- [79] Vrakking M J J 2021 *Phys. Rev. Lett.* **126** 113203
- [80] Vinbladh J, Dahlström J M, Lindroth E 2022 *Atoms* **10** 80
- [81] Maxwell A S, Madsen L B, Lewenstein M 2022 *Nat. Commun.* **13** 4706
- [82] Cattaneo L, Pedrelli L, Bello R Y, Palacios A, Keathley P D, Martín F, Keller U 2022 *Phys. Rev. Lett.* **128** 063001
- [83] Koll L M, Maikowski L, Drescher L, Witting T, Vrakking M J J 2022 *Phys. Rev. Lett.* **128** 043201
- [84] Blavier M, Gelfand N, Levine R, Remacle F 2022 *Chem. Phys. Lett.* **804** 139885
- [85] Blavier M, Levine R D, Remacle F 2022 *Phys. Chem. Chem. Phys.* **24** 17516
- [86] Demekhin P V, Cederbaum L S 2012 *Phys. Rev. Lett.* **108** 253001
- [87] Demekhin P V, Cederbaum L S 2013 *Phys. Rev. A* **88** 043414
- [88] Bagheri M, Saalman U, Rost J M 2017 *Phys. Rev. Lett.* **118** 143202
- [89] Jiang W C, Burgdörfer J 2020 *Opt. Express* **26** 053424
- [90] Jiang W C, Chen S G, Peng L Y, Burgdörfer J 2020 *Phys. Rev. Lett.* **124** 043203
- [91] Liang H, Jiang W C, Wang M X, Gong Q, Krajewska K, Peng L Y 2020 *Phys. Rev. A* **101** 053424
- [92] Bertolino M, Carlström S, Peschel J, Zapata F, Lindroth E, Dahlström J M 2022 *Phys. Rev. A* **106** 043108

SPECIAL TOPIC—Instrumentation and metrology for ultrafast atomic and molecular spectroscopy

Research progress of high-energy-resolution photoelectron interferometer^{*}

WANG Huiyong LI Mingxuan LUO Sizuo[†] DING Dajun[‡]*(Institute of Atomic and Molecular Physics, Jilin University, Changchun 130012, China)*

(Received 23 April 2025; revised manuscript received 19 May 2025)

Abstract

In recent years, the attosecond extreme ultraviolet (XUV) pulse generation and advanced spectroscopic techniques have provided powerful tools for investigating electron dynamics. Researches on an attosecond timescale can realize real-time tracking of electronic motion in atoms and molecules, enabling the measurement of electron wave packet evolution and quantum characteristics, which are crucial for revealing complex dynamical processes within atomic and molecular systems. High-resolution photoelectron interferometers based on attosecond XUV pulse trains have played an important role in a wide range of applications due to their unique combination of high energy and temporal resolution. These applications include the characterization of attosecond pulse trains, the measurement of photoionization time delays in atoms and molecules, quantum state reconstruction of photoelectrons, and laser-induced electronic interference phenomena. By integrating attosecond temporal resolution with millielectronvolt level energy resolution, high-resolution photoelectron interferometric spectroscopy has emerged as a key technique for probing ultrafast dynamics and quantum state characterization. This review systematically summarizes recent advances in high-resolution attosecond photoelectron interferometry, with a focus on the experimental approaches and spectroscopic techniques required to access electron dynamics on an attosecond scale. These include the generation of narrowband attosecond XUV pulse trains, attosecond-stable Mach-Zehnder interferometers, high-energy resolution time-of-flight electron spectrometers, and quantum interference-based measurement schemes such as RABBIT and KRAKEN. This review discusses in detail the reconstruction of attosecond pulse sequences, shell-resolved photoionization time delay measurements in atoms, spectral phase evolution in Fano resonances, tomographic reconstruction of photoelectron density matrices on an attosecond timescale, and control experiments of laser-induced electronic dynamic interference effects. Through the analysis of recent studies, we demonstrate the powerful potential of attosecond high-energy resolution photoelectron interferometry in tracking ultrafast electron dynamics. Finally, the prospects of attosecond photoelectron spectroscopy in ultrafast dynamics and coherent manipulation of quantum systems are discussed.

Keywords: photoionization, high-order harmonics, photoelectron interferometry, attosecond electron dynamics**PACS:** 07.60.Ly, 42.65.Ky, 32.80.-t**DOI:** [10.7498/aps.74.20250534](https://doi.org/10.7498/aps.74.20250534)**CSTR:** [32037.14.aps.74.20250534](https://cstr.cn/32037.14.aps.74.20250534)

^{*} Project supported by the National Key Scientific Instrument and Equipment Development Project of China (Grant No. 11627807) and the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 12450402, 12134005).

[†] Corresponding author. E-mail: luosz@jlu.edu.cn

[‡] Corresponding author. E-mail: dajumd@jlu.edu.cn



高能分辨光电子干涉仪研究进展

王慧勇 李铭轩 罗嗣佐 丁大军

Research progress of high-resolution photoelectron interferometer

WANG Huiyong LI Mingxuan LUO Sizuo DING Dajun

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 74, 150702 (2025) DOI: 10.7498/aps.74.20250534

CSTR: 32037.14.aps.74.20250534

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.74.20250534>

当期内容 View table of contents: <https://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

强激光等离子体相互作用驱动高次谐波与阿秒辐射研究进展

Research progress of high-order harmonics and attosecond radiation driven by interaction between intense lasers and plasma

物理学报. 2021, 70(8): 084206 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210339>

优化组合激光场驱动原子产生高次谐波及单个超短阿秒脉冲理论研究

Theoretical study of high-order harmonics and single ultrashort attosecond pulse generated by optimized combination of laser field

物理学报. 2022, 71(23): 233204 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20221298>

氦原子贝塞尔涡旋光电离的理论研究

Theoretical study on photo-ionization of helium atoms by Bessel vortex light

物理学报. 2024, 73(24): 244201 <https://doi.org/10.7498/aps.73.20241378>

等离子体环境中相对论效应对类氢离子光电离过程的影响

Influence of relativistic effects on photoionization process of hydrogen-like ions in plasma environment

物理学报. 2024, 73(8): 083201 <https://doi.org/10.7498/aps.73.20240016>

非对称波形激光驱动的氢原子高次谐波频移及控制

Frequency shift and control of high-order harmonics of H atom driven by an asymmetric laser pulse

物理学报. 2022, 71(7): 073201 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20212146>

阿秒脉冲的发展及其在原子分子超快动力学中的应用

Development of attosecond pulses and their application to ultrafast dynamics of atoms and molecules

物理学报. 2023, 72(5): 053202 <https://doi.org/10.7498/aps.72.20222436>