

专题: 超快原子分子光物理

阿秒光电离中的电子涡旋: 机制、动力学与应用*

张炳双¹⁾ 焦利光^{2)†} 刘爱华^{1)‡}

1) (吉林大学原子与分子物理研究所, 长春 130012)

2) (吉林大学物理学院, 长春 130012)

(2025年11月22日收到; 2025年12月15日收到修改稿)

近年来, 随着阿秒脉冲与偏振整形技术的发展, 原子和分子光电离产生的光电子动量分布中具有阿基米德螺旋特征的涡旋结构引起了人们的广泛关注. 本文综述了阿秒光电离中电子涡旋的产生机制、超快动力学行为及其应用前景. 理论研究表明, 电子涡旋源于不同磁量子数光电子波包之间的量子干涉, 其旋臂数目与空间分布对激光脉冲的偏振、时间延迟、啁啾特性以及靶体系的轨道对称性高度敏感. 实验上, 通过结合偏振整形脉冲与高分辨率光电子成像技术, 已成功观测并验证了多种涡旋结构. 电子涡旋不仅在干涉测量、载波包络相位提取、电子位移与时间延迟测定等方面展现出重要应用价值, 还可为分子轨道成像与量子态操控提供新途径. 本文还展望了电子涡旋在强场电离、分子解离等领域的潜在研究方向与应用前景.

关键词: 光电子动量分布, 光电子涡旋, 阿秒脉冲, 量子干涉**DOI:** 10.7498/aps.75.20251587**CSTR:** 32037.14.aps.75.20251587

1 引言

光致电离是激光与物质相互作用的核心物理过程之一, 其理论起源可追溯至爱因斯坦对光电效应的开创性阐释^[1]. 当原子或分子吸收的光子能量超过其电离阈值时, 会发射出具有量子特性的光电子. 这一现象不仅揭示了光的粒子性, 也在量子力学的产生与发展中起到了重要的作用, 同时奠定了现代光电子能谱技术的物理基础^[2-8]. 通过精确测量光电子的动能和动量分布, 可以高精度地探测微观世界中电子的超快动力学行为.

近年来, 强激光场中原子与分子的光电离动力学已成为前沿研究热点. 啁啾脉冲放大技术 (CPA) 的提出^[9] 突破了激光强度的瓶颈, 使得一系列高阶非线性非微扰过程得以实现, 例如多光子电离^[10,11]、阈上电离^[12]、非次序双电离^[13-19]、高次谐波产生以

及阿秒脉冲合成^[20-28] 等. 超短脉冲激光技术的飞速发展, 极大地深化了我们对原子分子体系中电子关联及电子超快动力学的理解, 为阿秒时间尺度的电子动力学研究提供了强有力的探测工具^[22,29,30]. 特别是阿秒科学的兴起, 革命性地推动了探测原子内部电子超快动力学技术的发展^[4,31-43]. 目前, 研究人员已成功实现了载波包络相位可调且高度稳定的线偏振少周期极紫外阿秒脉冲串^[21,44] 及孤立脉冲^[31,32,45]. 利用超短脉冲, 研究人员可以通过精确调控激光波长、强度和偏振态等参数将复杂的超快动力学信息映射到最终的光电子谱中^[46-53]. 这不仅为探索超快电子动力学提供了新途径, 也为分子反应过程的实时成像与精准控制开辟了新的道路.

圆偏振激光脉冲因其独特的偏振特性而展现出显著优势, 目前已逐渐发展成为研究光电离超快动力学的重要工具^[54-58]. 在圆偏振激光场中, 电离过程由于受电场矢量旋转特性的调控, 导致光电子

* 国家重点基础研究发展计划 (批准号: 2022YFE0134200) 和国家自然科学基金 (批准号: 12174147, 12474343) 资助课题.

† 通信作者. E-mail: lgjiao@jlu.edu.cn

‡ 通信作者. E-mail: aihualiu@jlu.edu.cn

动量分布呈现特定的螺旋对称性, 这为强场电离中超快电子动力学的操控提供了全新维度. 在此背景下, 电子涡旋这一新颖量子干涉现象的发现, 也成为备受关注的研究热点^[59]. 涡旋作为一种普遍存在的自然现象, 因其独特的对称性特征和拓扑性质, 在气象学、流体力学、光学以及原子分子物理^[60-66]等领域受到广泛关注. 2010年, Ovchinnikov等^[67]首次发现在短电场脉冲作用下, 原子的电子概率密度中会形成涡旋结构, 并通过改变施加的脉冲可以对其进行操控. 随后, 研究者在原子和分子的光电子动量分布中也发现了涡旋现象^[59,68]. 研究发现这类特殊结构在光电子动力学研究中往往蕴含着深刻的物理机制.

本文将针对阿秒光电离中电子涡旋的产生机制、动力学与应用分节介绍以下几部分内容: 第2节介绍原子和分子体系中电子涡旋的产生机制与理论研究现状; 第3节简要介绍电子涡旋现象的实验进展; 第4节主要介绍电子涡旋在应用方面的研究进展; 第5节进行总结与展望.

2 理论

2.1 电子涡旋的产生

波粒二象性是量子力学最本质的特征之一. 电子的波动性最早由德布罗意的物质波提出^[69], 并由戴维森-革末实验^[70]证实. 随后, 利用线偏振激光在里德伯态和连续态中观测到的电子波包 Ramsey 干涉现象, 为电子波动性提供了更多的证据^[71-74]. 根据光电离特点, 由两束相同的圆偏振光产生的光电子, 如果它们之间存在一定的时间延迟, 就可以观测到电子波包的 Ramsey 干涉现象, 其在动量谱上表现为多个同心圆环形式. 如果保持其他参数不变, 改变其中一束圆偏脉冲的旋向, 即两束脉冲具有相反的旋转方向 (一对反旋脉冲), 此时在动量谱上我们就能观测到涡旋结构, 即动量谱中的光电子涡旋现象, 如图1所示.

这种独特的 Ramsey 干涉现象本质上源于不同磁量子数光电子波包之间的量子干涉效应. 当采用少周期、宽带宽阿秒脉冲时, 在激光偏振平面内的动量谱中可观察到以下现象: 对于具有非零时间延迟的同旋圆偏振脉冲, 由于 Ramsey 相位 (时间依赖的相位) 的干涉效应, 产生的电子波包会在光电子动量分布中形成典型的同心环状结构, 即

Ramsey 干涉条纹; 而对于反旋圆偏振脉冲, 由于从不同旋向圆偏场中吸收光子所产生的光电子波包携带不同的量子相位因子, 这些波包干涉会产生一个同时依赖于时间和能量的相位项, 进而在动量空间中呈现出具有阿基米德螺旋特征的清晰电子涡旋图案.

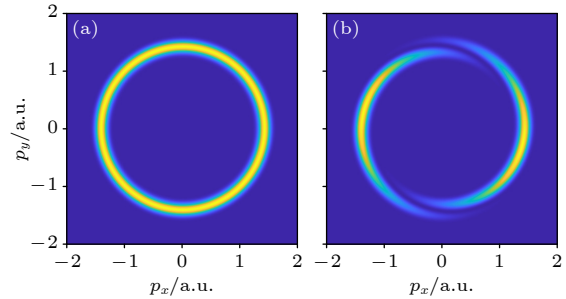


图1 一对同旋和反旋圆偏振脉冲作用下氢原子的光电子动量分布, 激光场中心频率为 $\omega_0 = 1.52$ a.u., 峰值场强为 $I_0 = 10^{14}$ W/cm², 脉冲持续时间为 $\tau = 8$ o.c., 时间延迟 $t_d = 2$ o.c.

Fig. 1. Photoelectron momentum distributions of hydrogen atoms under a pair of co- and counter-rotating circularly polarized pulses, the laser field has a central frequency of $\omega_0 = 1.52$ a.u., a peak intensity of $I_0 = 10^{14}$ W/cm², a pulse duration of $\tau = 8$ o.c., and a time delay of $t_d = 2$ o.c.

基于量子微扰理论的光电子概率密度模型^[75]可以为单电子体系中的光电子涡旋产生提供一个清晰的物理图像. 考虑一对存在时间延迟的圆偏振脉冲作用于初态角动量量子数 $l = 0$ 的电子. 假设该电子分别从两个脉冲中吸收 M 和 N 个光子而发生电离, 则产生的光电子波函数可表示为

$$\begin{aligned} \psi_{M,M}(E, \theta, \phi) &\propto R_M(E) Y_{M,M}(\theta, \phi) e^{-iM\Phi_1} e^{-iEt_d}, \\ \psi_{N,\pm N}(E, \theta, \phi) &\propto R_N(E) Y_{N,\pm N}(\theta, \phi) e^{-iN\Phi_2}, \end{aligned} \quad (1)$$

其中 Φ_1 和 Φ_2 是光谱相位, R_l 表示光电子动能的径向分布, 球谐函数 $Y_{l,m}(\theta, \phi) = P_{l,m}(\theta) e^{im\phi}$ 表示光电子动能的角向分布, \pm 符号分别表示在左旋和右旋圆偏振脉冲作用下的情况, E 是光电子的末态动能. 由于两个脉冲之间存在时间延迟 t_d , 第1个脉冲作用下得到的波包会产生一个时间演化相位 e^{-iEt_d} . 通常, 我们在 $\theta = \pi/2$ 的角度上对光电子动量进行探测, 因此, 末态的光电子概率密度分布可以近似写为

$$\begin{aligned} |\Psi(E, \theta, \phi)|^2 &= |\psi_{M,M}(E, \theta, \phi) + \psi_{N,\pm N}(E, \theta, \phi)|^2 \\ &\propto \rho(E, \theta) |e^{iM\phi} e^{-iM\Phi_1} e^{-iEt_d} + e^{\pm iN\phi} e^{-iN\Phi_2}|^2, \end{aligned} \quad (2)$$

(2) 式可以进一步整理得到:

$$|\Psi(E, \theta, \phi)|^2 \propto 2\rho(E, \theta) \{1 + \cos[(M \pm N)\phi + (M\Phi_1 - N\Phi_2) + Et_d]\}. \quad (3)$$

考虑 $\theta = \pi/2$ (即光的极化面), 在微扰时 $\rho(E)$ 的分布与激光脉冲频谱相关. 当 $\cos(\cdot) = 1$ 时 (3) 式取得最大值, 此时 ϕ 与 E 可以表示为

$$E = \frac{2n\pi - (M\Phi_1 - N\Phi_2)}{t_d} - \frac{(M \pm N)\phi}{t_d} \quad (4)$$

的形式, 这是典型的阿基米德螺旋线方程. 此外, 根据余弦函数的周期性可知, ϕ 系数中的 $M \pm N$ 恰好对应于 2π 周期内余弦函数最大值的个数, 亦即阿基米德螺旋线所具有的旋臂数目. 类似的分析也可推广至更为复杂的体系 [39,76-79].

分析 (3) 式可以发现, 电子涡旋结构与激光脉冲的旋向组合、两束脉冲延迟、吸收的光子数、光电子动能等变量有关. 许多研究也表明 [59,68,80-87]: 1) 涡旋旋向具有偏振选择性, 会随脉冲旋向改变而发生反转; 2) 随着延迟时间延长, 涡旋臂呈现明显的细化和延伸现象; 3) 吸收光子数的变化直接

影响电子涡旋旋臂数目; 4) 相对载波包络相位变化会引起涡旋分布的整体旋转.

除了在微扰少光子电离区的研究, 2020年, Ben 等 [88] 基于广义量子轨迹蒙特卡罗模型, 结合电子轨迹分析, 从半经典理论角度揭示了光电子涡旋形成的相位差机制, 并系统阐明了激光强度与波长对涡旋臂数目的调控规律. 这些研究将电子涡旋的理论研究拓展至强场多光子电离区, 不仅深化了我们对电子涡旋动力学的理解, 也为阿秒微扰理论提供了重要的补充.

2.2 原子中的电子涡旋

最早光电子涡旋产生的理论, 由 Djiokap 等 [59] 于 2015 年在研究氦原子的单电离过程中提出, 如图 2 所示. 在随后的研究中, 人们首先还是更多研究单电子过程中的涡旋产生. 在 2017 年, Djiokap 等 [89,90] 以氦原子为对象, 进一步研究了双电离过程中的电子关联效应和共振双激发态中的量子干涉效应.

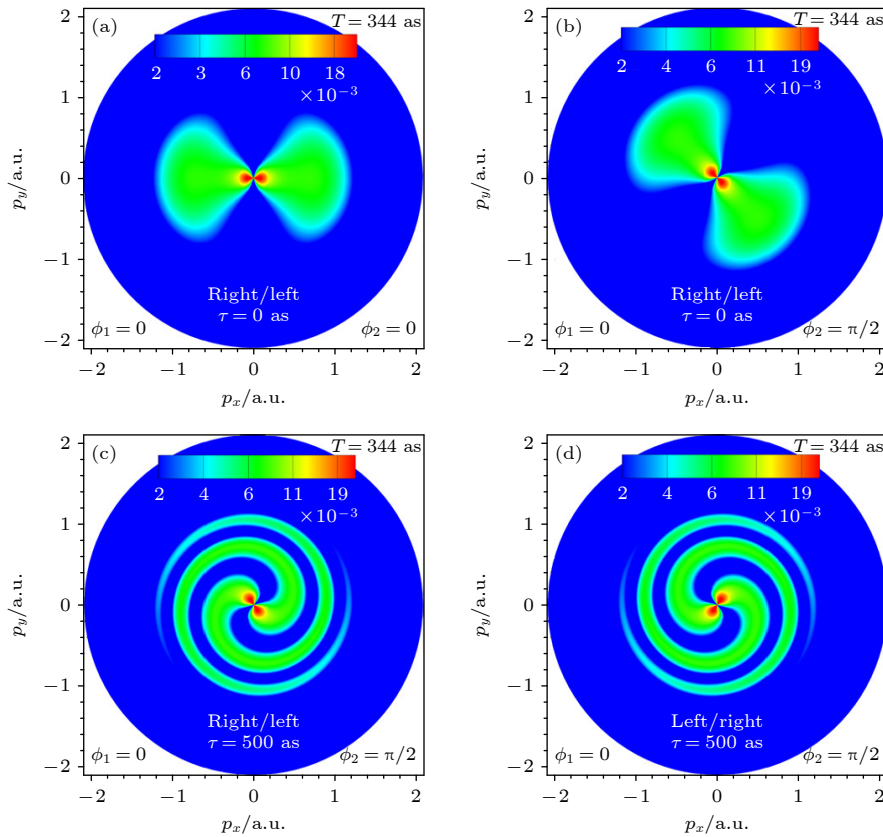


图 2 一对反旋圆偏振极紫外阿秒脉冲作用下, 氦原子的光电子动量分布 [59]

Fig. 2. Photoelectron momentum distributions of helium atoms by a pair of counter-rotating circularly polarized extreme ultraviolet attosecond pulses [59].

2021年, Zhen等^[83,84]在 He^+ 的光致电离过程中, 探究了电离交叉通道和初始电子态对电子涡旋的影响. 研究发现光电子动量分布中涡旋图案亮度的差异主要归因于对时间延迟敏感的电离交叉通道的贡献, 通过改变不同波长, 对比分析了存在或不存在交叉通道条件下涡旋图案的演化特征. 在较短时间延迟下, 两种条件下的光电子动量分布表现出相似特征; 然而在较长时间延迟下, 即使不存在交叉通道, 涡旋结构几乎消失, 但残余的涡旋图案依然可被观测到, 如图3所示. 另外, 对于初始电子密度分布的差异, 当初态为基态时, 涡旋中的旋臂数目严格等于吸收的光子数, 而当初态为激发态时, 旋臂数目总是比吸收光子数多两个.

尽管基于微扰理论的(3)式是由两个圆偏振脉冲情况下得到的, 但其深刻揭示了涡旋结构的产生本质源于不同磁量子数光电子波包间的干涉效应. 如果将其中一束或者两束脉冲换成椭圆偏振甚至线偏振, 只要两束脉冲产生的光电子波包的能量相同, 磁角动量不同, 就有可能产生与角度和能量

(动量)同时依赖的动量分布, 得到特定的涡旋结构. 另外, Wang等^[86]探究了电子涡旋对椭圆偏振激光脉冲椭圆度的依赖关系. 发现随着椭圆度的降低以及波长(即电子吸收光子数)的减小, 涡旋臂数目呈现逐渐减少的趋势, 如图4所示; 相反, 随着时间延迟的增加, 涡旋臂数目会相应增多.

2021年, Djiokap等^[91]采用交叉传播的椭圆偏振延迟脉冲对, 发现即使在线偏振-圆偏振或椭圆偏振脉冲组合下, 激光诱导氢和氦原子的单光子单电离过程中, 在特定锥面(半角 θ 范围内)上探测光电子动量分布仍然可以形成规则的涡旋干涉图案, 如图5所示, 表明涡旋结构的产生不仅取决于脉冲的偏振组合, 还与激光传播方向和探测角度有关.

在以上的研究中, 两束激光脉冲的时间延迟是产生电子涡旋结构的重要条件. (3)式表明, 当两束脉冲的整体时间延迟 $t_d = 0$ 时, 光电子谱的结构将不依赖于能量(动量), 因此涡旋结构会消失. 2024年, Zhang等^[92]利用啁啾脉冲瞬时频率随时间变化这一特性, 将时间延迟的概念进行了推广.

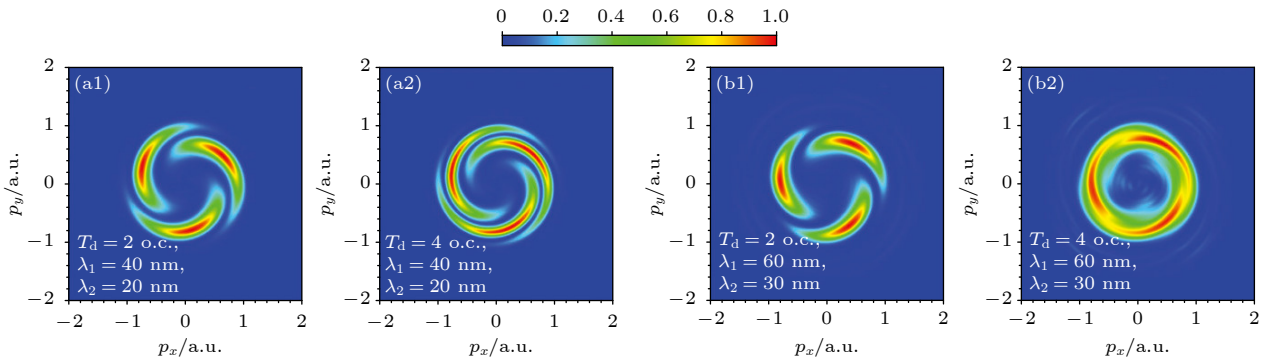


图3 不同时间延迟的双色反旋圆偏振阿秒脉冲作用下, He^+ 的光电子动量分布^[83]

Fig. 3. Photoelectron momentum distributions of He^+ by bichromatic counter-rotating circularly polarized attosecond pulses with different time delays^[83].

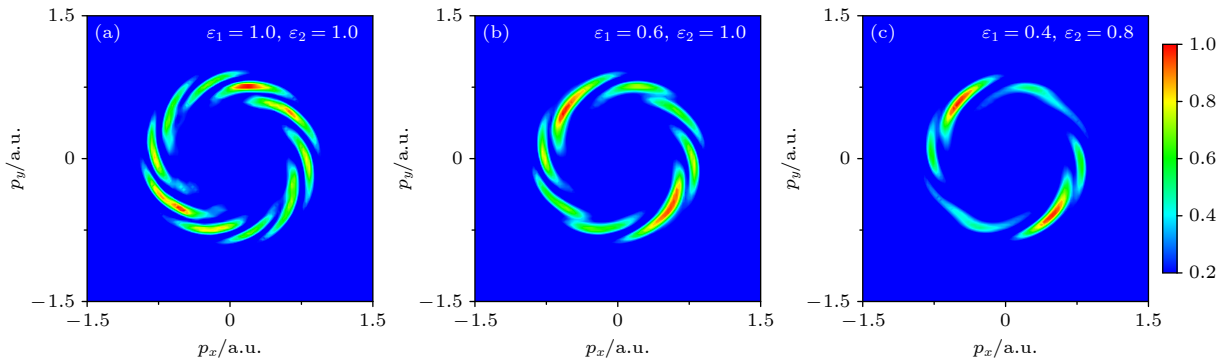


图4 在不同椭圆率下, He^+ 在反旋椭圆偏振激光脉冲作用下的光电子动量分布^[86]

Fig. 4. Photoelectron momentum distributions of He^+ by counter-rotating elliptically polarized laser pulses with different ellipticities^[86].

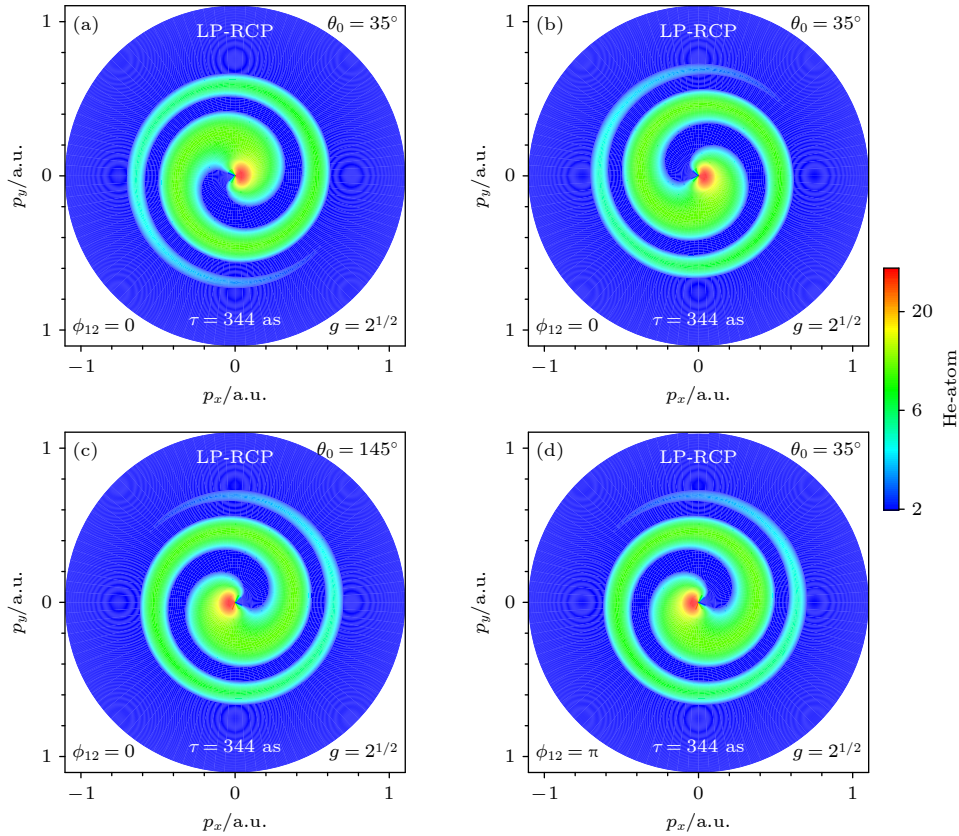

 图 5 线偏振-圆偏振脉冲正交叉传播作用下原子光电离产生单臂涡旋结构^[91]

 Fig. 5. A single-arm vortex structure by two orthogonally crossed linearly and circularly polarized attosecond pulses^[91].

他们发现即使两束脉冲在零时间延迟条件下, 反向旋转的圆偏振阿秒啁啾脉冲会诱导产生具有劈裂现象的双旋臂涡旋结构, 并同时受到脉冲旋向和啁啾率的双重调控. 引入与频率相关的时间延迟 τ_ω ^[92]:

$$\tau_\omega = (\omega - \omega_0) \left(\frac{1}{\beta_2} - \frac{1}{\beta_1} \right) + t_d, \quad (5)$$

其中 ω_0 为激光脉冲的中心频率, $\beta_{1,2}$ 为两脉冲的啁啾率, t_d 为两脉冲中心频率处的相对时间延迟. 这表明在零时间延迟条件下, 啁啾效应会在连续态电子波包中引入额外的相位差——当两束脉冲啁啾特性相同时 (同调啁啾), 其结果与傅里叶变换极限脉冲一致; 而当啁啾特性相反时 (异调啁啾), 特殊相位差将导致具有劈裂现象的涡旋结构产生. 进一步研究发现, 在更普遍的情况下 (存在时间延迟且具有任意啁啾特性时), 这种由啁啾诱导的特殊涡旋结构, 对脉冲之间的时间延迟和啁啾参数都非常敏感, 如图 6 所示, 这是由啁啾诱导的与频率相关的时间延迟 τ_ω 的符号变化导致的. 在一对反旋圆偏振啁啾脉冲下, 若想获得完全对称的涡旋结构, 需要同时交换啁啾参数和脉冲的顺序. Djiokap

等^[93,94] 在对氦原子光电离的研究中也观察到了类似的现象.

在 2024 年, Pedersen 等^[95] 探究了在零延迟的啁啾交叉传播脉冲组合下氢原子的光电离过程, 发现异调啁啾脉冲会诱导产生一种独特的单臂可逆涡旋图案——衔尾蛇形 (ouroboros) 涡旋结构. 并且这种动量分布可以通过啁啾符号等参数实现精确调控. 最近, Wang 等^[96] 在氫原子多光子电离过程中, 通过分析旋臂干涉条纹特征对啁啾参数反演, 并引入啁啾率临界参数实现对不同电离路径的选择.

2.3 分子光电离中的电子涡旋

前文主要介绍了原子体系中产生光电子涡旋的物理机制, 以及涡旋对激光脉冲参数和靶原子类型的依赖. 研究发现, 在分子体系中也能探测到这种对激光参数高度敏感的涡旋干涉结构, 并且由于分子体系拥有更多的自由度与对称性, 会引入更加复杂且丰富的物理现象. 2016 年, Yuan 等^[68,81] 在双色圆偏振阿秒脉冲作用于 H_2^+ 和 H_3^+ 分子的光电离过程中, 观测到了电子涡旋结构. 并发现随着

相对载波包络相位的增大, 涡旋结构会发生全局旋转; 而时间延迟的增大则会导致涡旋臂变长变细. 这些现象与原子体系中的电子涡旋行为一致. 但不同的是, 分子中的涡旋特征不仅强烈依赖于脉冲的时间延迟、相位和旋向性等激光参数, 还对分子的取向性高度敏感. 而且分子几何构型的变化会引入多中心电离干涉效应, 使得分子的末态光电子动量分布受到额外的调控机制影响, 从而形成更复杂的干涉图样.

此外, Guo 等 [85] 揭示了椭圆率对分子涡旋动力学规律的影响, 发现 N_2 的光电子动量分布随激光椭圆度增大而逐渐形成涡旋结构. 2023 年, Lei 等 [87] 证明了 H_3^+ 的电子涡旋结构的形成对分子初

始态的敏感性. 由于基态 A' 的动量分布会随着椭圆率的增大, 在 y 方向上增强, 且 E^+ 和 E^- 两个激发态的动量分布具有相反的角动量 ($m = \pm 1$), 因此光电子谱呈现镜像对称的三叶结构, 如图 7 所示.

在分子体系中, 由于其空间结构通常具有各向异性, 电离强度和光电子角分布与分子轨道的空间对称性及分子取向密切相关. Djiokap 等 [97,98] 在研究固定核近似下 H_2 分子的双电离过程中, 分析了椭圆偏振阿秒脉冲传播方向 k 与分子轴 R 之间平行和垂直这两种取向构型下电子涡旋的产生. 在不同分子取向构型下, 根据电偶极选择定则激发产生的电离振幅发生干涉, 在偏振平面内探测到的双电子动量分布呈现不同寻常的电子涡旋现象.

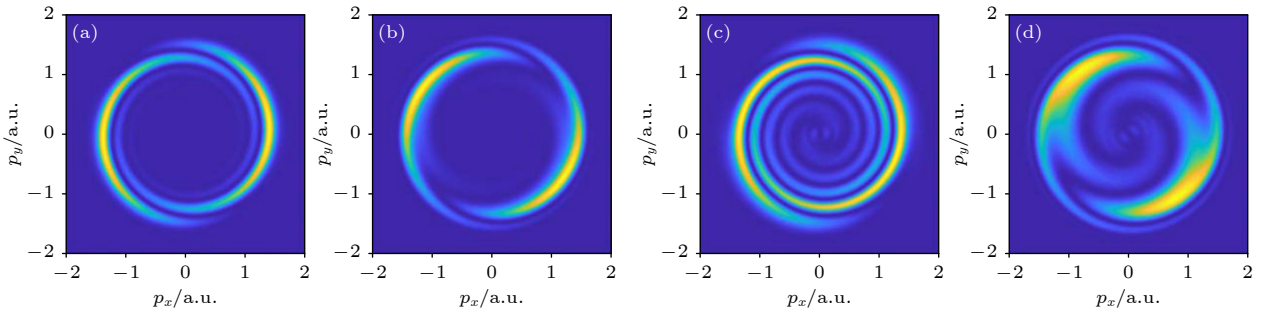


图 6 在一对时延啁啾反旋圆偏振阿秒脉冲作用下氢原子的光电子动量分布. 两脉冲时间延迟为 2 o.c., (a), (b), (c), (d) 各图的两脉冲啁啾参数分别为 ± 0.01 , ∓ 0.01 , ± 0.02 和 ∓ 0.02 [92]

Fig. 6. Photoelectron momentum distributions of hydrogen atomic photoionization by a pair of counter-rotating circularly polarized attosecond pulses with time delay 2 o.c., the chirp parameters for (a), (b), (c), (d) are ± 0.01 , ∓ 0.01 , ± 0.02 , and ∓ 0.02 , respectively [92].

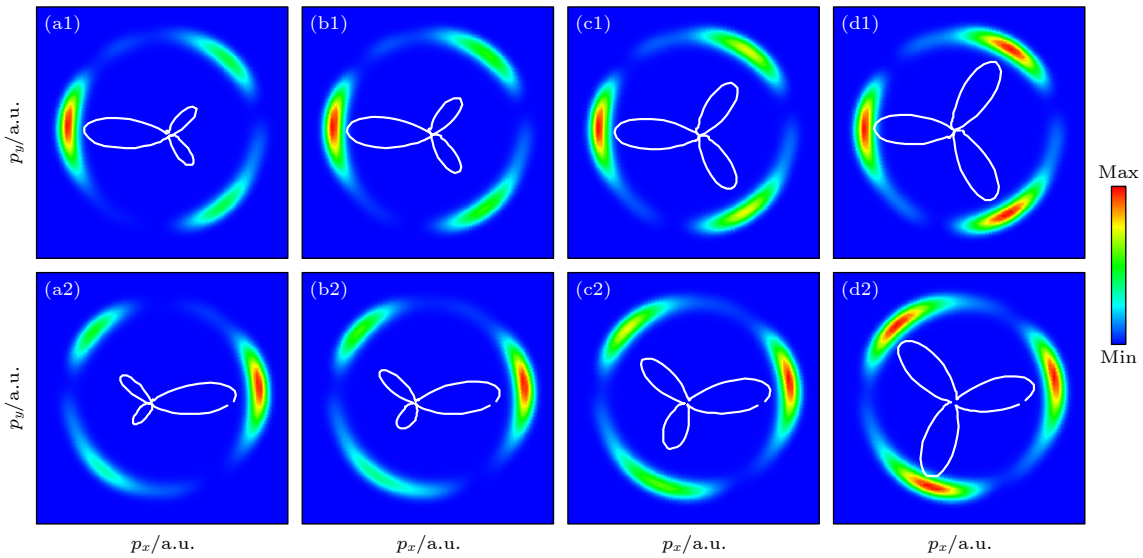


图 7 椭圆偏振激光脉冲作用下, H_3^+ 简并激发电子态 E^\pm 的光电子动量分布 [87]

Fig. 7. Photoelectron momentum distributions of H_3^+ for degenerate excited electronic states E^\pm by elliptically polarized laser pulse [87].

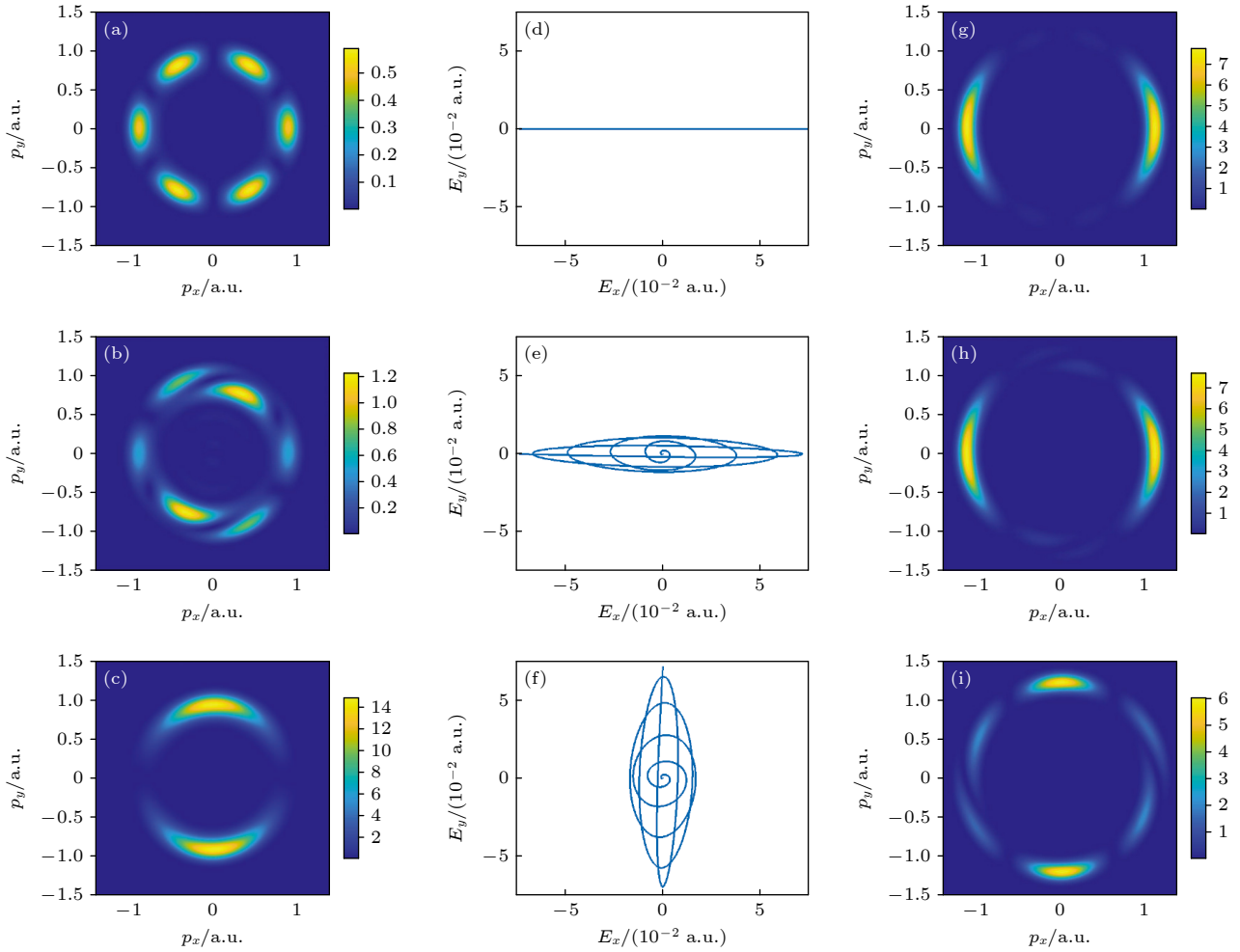


图 8 (a)—(c) 和 (g)—(i) 分别为在分子坐标系下核间距 R_c 为 2 a.u. 与 4 a.u. 时 H_2^+ 的光电子动量分布; (d)—(f) 为对应的电场 Lissajous 曲线; 第 1 行 (a), (d), (g) 对应两束脉冲时间延迟 $t_d = 0$ o.c.; 第 2 行 (b), (e), (h) 对应 $t_d = 1$ o.c.; 第 3 行 (c), (f), (i) 对应 $t_d = 1.5$ o.c.^[99]

Fig. 8. Panels (a)—(c) and (g)—(i) show the photoelectron momentum distributions of H_2^+ in the molecular frame at internuclear distances R_c is 2 a.u. and 4 a.u., respectively, while panels (d)—(f) present the corresponding electric field Lissajous curves; the first row (a), (d), (g) corresponds to a time delay of $t_d = 0$ o.c.; the second row (b), (e), (h) to $t_d = 1$ o.c.; and the third row (c), (f), (i) to $t_d = 1.5$ o.c.^[99]

Yang 等^[99] 在分子坐标系下, 通过调节核间距改变 H_2^+ 分子平行与垂直几何构型下不同的跃迁截面, 进而实现对电子涡旋的调控. 研究发现当平行和垂直几何构型下的跃迁截面大小接近时, 电子波包的干涉会形成复杂的六臂涡旋结构, 如图 8 所示. 改变 H_2^+ 的核间距, 跃迁截面的贡献不同, 从而影响涡旋结构的形状与强度. 例如, 对于核间距 $R_c = 2$ a.u. 和 $R_c = 4$ a.u. 的 H_2^+ 分子, 两束脉冲的时间延迟分别为 $t_d = 1$ o.c. 和 $t_d = 1.5$ o.c. 时, 其动量谱表现出相反的特征.

2022 年, Bayer 等^[100] 在偏振整形激光脉冲电离钾二聚体 K_2^+ 产生的自由电子涡旋中, 通过比较刚性分子与振动分子电离产生的光电子动量分布,

揭示了电子-核耦合动力学在自由电子涡旋干涉结构中的特征指纹. 并基于束缚态布居动力学的分析识别自由电子涡旋中的瞬态共振的指纹特征, 为实验观测提供了优化的参数条件.

3 光电子涡旋实验进展

光电子涡旋现象于 2017 年由 Pengel 等^[76,77] 首次在实验中观测到. 该实验结合了载波包络相位稳定的超连续谱光源 (能够精确调控光谱的振幅、相位、时延和偏振等参数) 与高分辨率光电子层析成像技术^[79,101]. 这种实验方法能够实现对自由电子波包的精确制备、测量与操控, 并最终重构出三

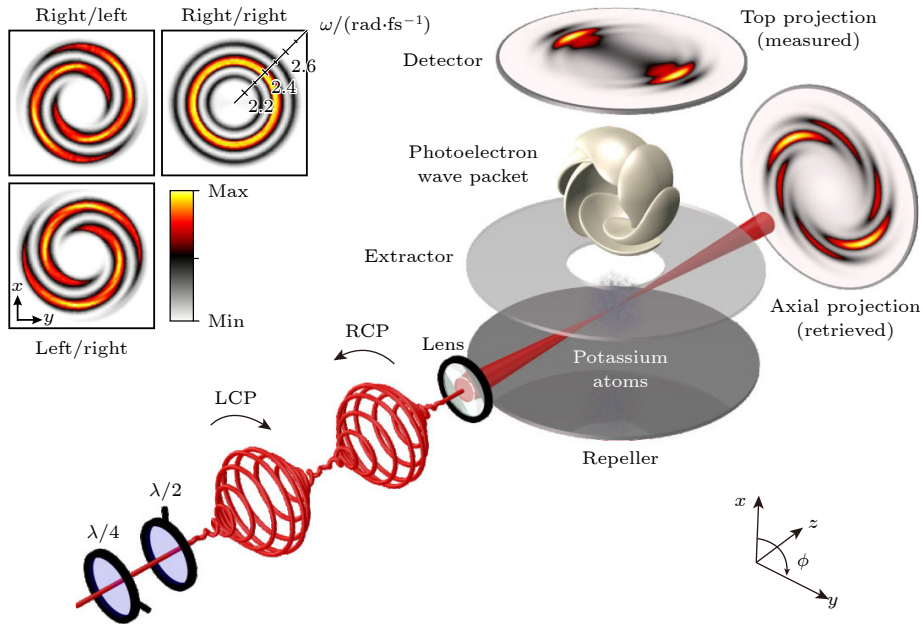


图 9 反旋圆偏振脉冲与钾原子的相互作用通过 1+2 共振增强多光子电离产生涡旋状的光电子波包 [77]

Fig. 9. Interaction of counter-rotating circularity pulse pairs with potassium atoms gives rise to vortex-shaped photoelectron wave packets via 1+2 resonance-enhanced multiphoton ionization [77].

维光电子动量分布. 他们在钾原子的单色反旋圆偏振飞秒激光脉冲序列下的多光子电离实验中, 观测到偏振平面内偶数旋臂的涡旋状光电子动量分布, 如图 9 所示. 这一发现不仅验证了 2015 年理论预测的氦原子双臂电子涡旋, 还开辟了物质波动性应用研究的新方向, 推动了后续实验对不同电离过程及机制中此类奇特量子干涉现象的深入探索.

2019 年, Kerbstadt 等 [78] 利用双色时延脉冲序列, 在钠原子的共振多光子电离实验中首次观测到具有奇数涡旋臂的自由电子涡旋. 该发现证实了 Djiokep 等 [80] 于 2016 年针对氦原子提出的理论预测. 2020 年, Bayer 等 [102] 通过数值求解二维含时薛定谔方程, 并在模型中考虑了载波包络相位涨落与 Gouy 相位效应, 成功复现了实验观测到的光电子动量分布. 次年, Eickhoff 等 [103,104] 进一步使用双色及三色偏振整形脉冲序列, 系统研究了钾原子的共振增强多光子电离过程. 他们的实验表明, 涡旋图案的旋转角度与束缚态波包的演化时间呈线性关系, 这意味着电子涡旋的旋转动力学直接编码了束缚波包的时间演化信息.

2024 年, Köhnke 等 [105] 在实验中成功制备出“整形电子涡旋”. 他们利用两束施加了二次光谱相位调制的反旋圆偏脉冲, 驱动钾原子发生 1+2 共振增强多光子电离. 由于多光子电离动力学的复杂性, 所生成的光电子波包呈现出更为丰富的结构

特征. 基于角动量波函数的对称特性, 研究团队进一步采用傅里叶分析方法, 从总光电子动量分布中成功分离出具有不同对称性的自由电子涡旋成分. 实验发现, 啁啾效应会导致涡旋臂在特定光电子动能处发生旋转方向的反转 (如图 10 所示), 这一现象印证了理论上预言的“可逆电子涡旋”效应 [92-94], 并将啁啾整形脉冲诱导电子涡旋的研究从实验上拓展至多光子电离体系.

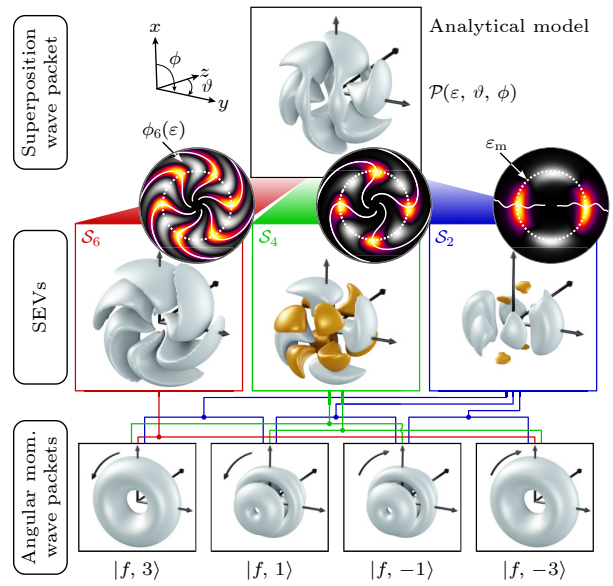


图 10 实验观测整形自由电子涡旋示意图 [105]

Fig. 10. Experimentally observed schematic diagram of shaped free-electron vortices [105].

4 应用

4.1 电子涡旋中的干涉测量技术

理论与实验研究均表明, 电子涡旋的分布对激光脉冲的偏振特性、相对相位及时间延迟等参数极为敏感. 该现象源于在不同时刻电离的电子波包在具有相同末态动量的条件下发生量子干涉, 其干涉条纹因此编码了波包之间丰富的相对相位信息. 基于这一特性, 电子涡旋技术可被拓展应用于强场物理中的多种典型现象研究, 例如动态斯塔克效应^[106-108]、阿秒脉冲载波包络相位测量^[109,110]以及电子位移精密测量^[111]等, 展现出作为一种新兴干涉测量技术的重要价值与应用潜力.

在激光场中, 电子被电离进入连续态后, 其运动将同时受到原子核库仑场与外加激光场的共同影响. 尽管超短脉冲能够对自由电子的运动进行精确调控, 但短脉冲自身波形的精确测定是一项挑战, 且由于其包络效应引起的电子位移通常极小(亚纳米量级), 这使得实验测量极为困难. 2019年, Xiao等^[111]提出了一种鲁棒的电子位移测量方案.

该方案将待测短脉冲置于两束延时反旋圆偏振脉冲之间, 以反旋脉冲产生的涡旋干涉图样作为测量基准(如图11所示). 目标短脉冲会调制这一基准, 导致特定能量处的角向干涉条纹间距发生非均匀变化. 通过分析这种条纹间距的调制, 即可反演出电子位移量. 这一方案具有普适性, 可用于测量任意脉冲诱导的电子位移.

2019年, Li等^[109]利用红外脉冲与阿秒脉冲组合产生电子涡旋的方案, 通过相干叠加放大孤立阿秒脉冲的相位特征信号, 从产生的相干光电子谱中反演孤立阿秒脉冲的载波包络相位. 由于电子涡旋与传统的角条纹技术相比, 具有多重干涉条纹特征, 使得对载波包络相位的表征精度大大提升. 在2021年, Qin等^[110]以圆偏振脉冲产生的电子波包作为参考, 与延时反旋椭圆偏振激光脉冲电离的电子波包发生干涉. 通过分析条纹间距随电子出射角的依赖关系, 实现了对椭圆偏振场中相位分布信息的提取, 如图12所示, 解决了实验中对激光椭圆率精确校准的技术问题.

上述研究主要集中于非共振电离过程. 在实验上对自由电子涡旋的观测, 常利用碱金属原子的多

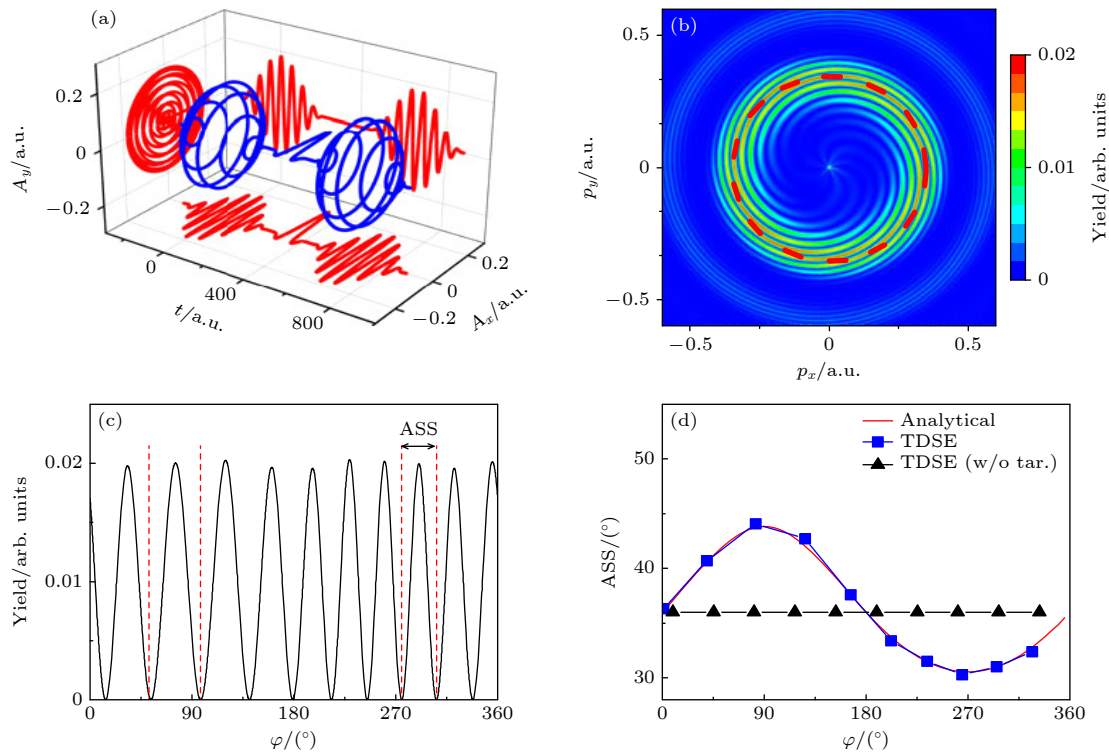


图 11 (a) 激光脉冲方案在实际实验测量中的应用示意图; (b) 激光偏振面上的光电子分布; (c) 在 $p = 0.35$ a.u. 处的光电子角分布; (d) 从 (c) 中提取的角度条纹间距^[111]

Fig. 11. (a) The proposed configuration of laser pulses in a practical experimental measurement; (b) the photoelectron distribution in the laser polarization plane; (c) the photoelectron angular distribution at $p = 0.35$ a.u.; (d) the angular stripe spacing extracted from (c)^[111].

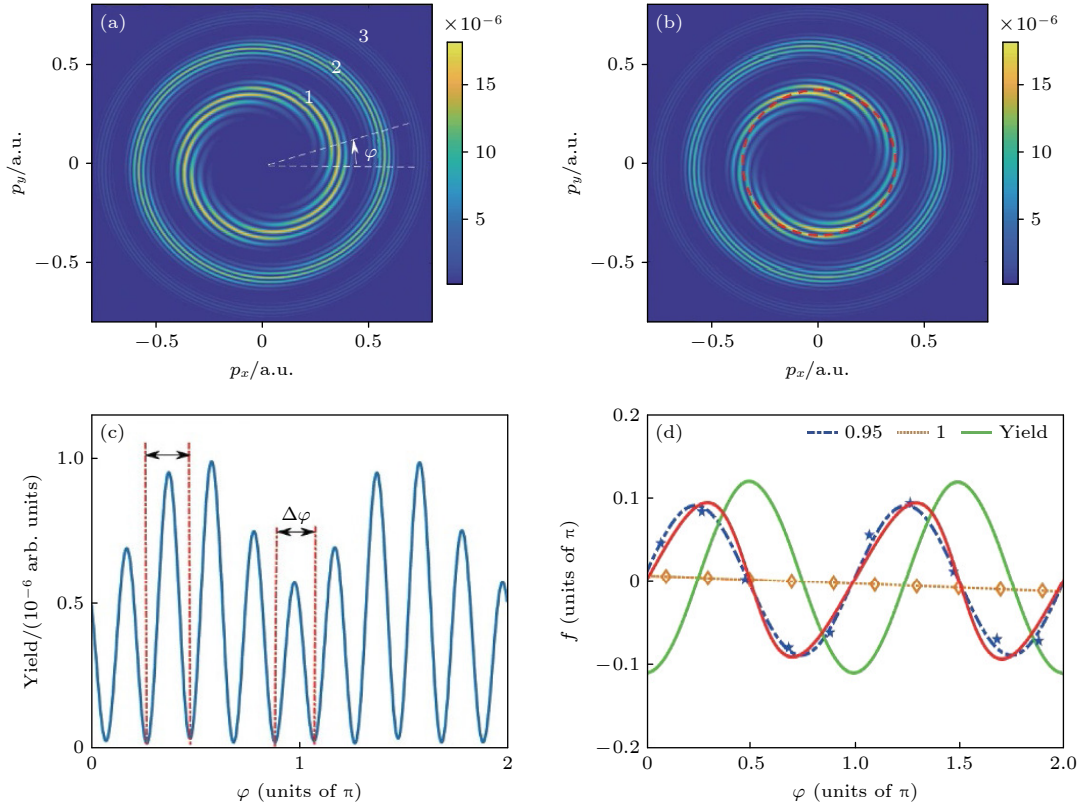


图 12 (a) 一对反旋时延圆偏振脉冲作用下氢原子的光电子动量分布; (b) 一对反旋时延圆偏振-椭圆偏振脉冲组合作用下氢原子的光电子动量分布; (c) 在 $p = 0.354$ a.u. 处的光电子角分布; (d) 在 $p = 0.354$ a.u. 处, 电子波包随发射角度的相位分布^[110]

Fig. 12. The photoelectron momentum distributions in time-delayed counter-rotating laser pulses of (a) a pair of circularly polarized pulses and (b) a right circular pulse and a left elliptical pulse; (c) the photoelectron angular distribution at $p = 0.354$ a.u.; (d) the phase distribution of the electron wave packet as a function of the emission angle at $p = 0.354$ a.u.^[110].

光子共振电离过程. 早在最初的电子涡旋实验中, Pengel 等^[76,77] 便通过使用 π 脉冲实现基态-激发态布居反转, 在非微扰条件下证明了电子涡旋能够与拉比振荡等强场效应共存. 2024 年, Fulton 等^[112] 进一步在共振条件下展开研究, 他们采用与氢原子 $1s-2p$ 跃迁近共振的圆偏振脉冲, 探究了氢原子在多光子微扰区的共振动力学. 研究发现, 共振耦合态的存在会使动量谱中的电子涡旋发生分裂, 形成 AT(Autler-Townes) 双峰. 基于布居动力学分析, 基态与共振激发态间的量子叠加会产生两种电子分量: 来自 π 脉冲共振增强多光子电离的“快电子”, 以及来自长脉冲共振抑制多光子电离的“慢电子”. 这两类电子在动量空间分别表现出不同的旋转对称性与干涉条纹特征.

基于光电子涡旋对相位的高度敏感性及其多重干涉条纹的高精度优势, Köhnke 等^[113] 成功在钾原子的 $1+2$ 共振增强多光子电离实验中, 测量出了短于激光脉冲宽度的电离时间延迟. 该延迟源于电子在共振中间态停留的瞬态动力学过程, 这一

过程会为光电子波包引入额外的相位. 研究人员利用不同电离通道所产生的涡旋结构在旋转对称性上的差异, 通过分析干涉条纹的斜率, 从涡旋能量依赖的光谱相位中, 成功提取出了约 1 fs 量级的共振电离延迟 (如图 13 所示).

此外, Yao 等^[106-108] 基于强场近似理论, 研究了动态斯塔克效应下氢原子的电子涡旋动量分布, 并观察到其奇偶次涡旋臂的对称性发生破缺. 研究揭示, 这一畸变现象源于动态斯塔克相位的非线性时域特性. 通过结合电子波包理论与局域近似参数拟合方法, 该研究进一步成功提取了动态斯塔克系数.

4.2 原子和分子轨道对称性的识别

2011 年, Barth 和 Smirnova^[114] 提出了非绝热隧穿电离机制: 在圆偏振场中, 稀有气体的 p 轨道电子会因其磁量子数的差异而发生选择性电离. 基于这种对轨道旋向具有依赖性的电离倾向, Wang 等^[115] 利用延时反旋圆偏振脉冲, 对初态具有非零磁量子数的氙原子进行了三光子电离研究. 如图 14

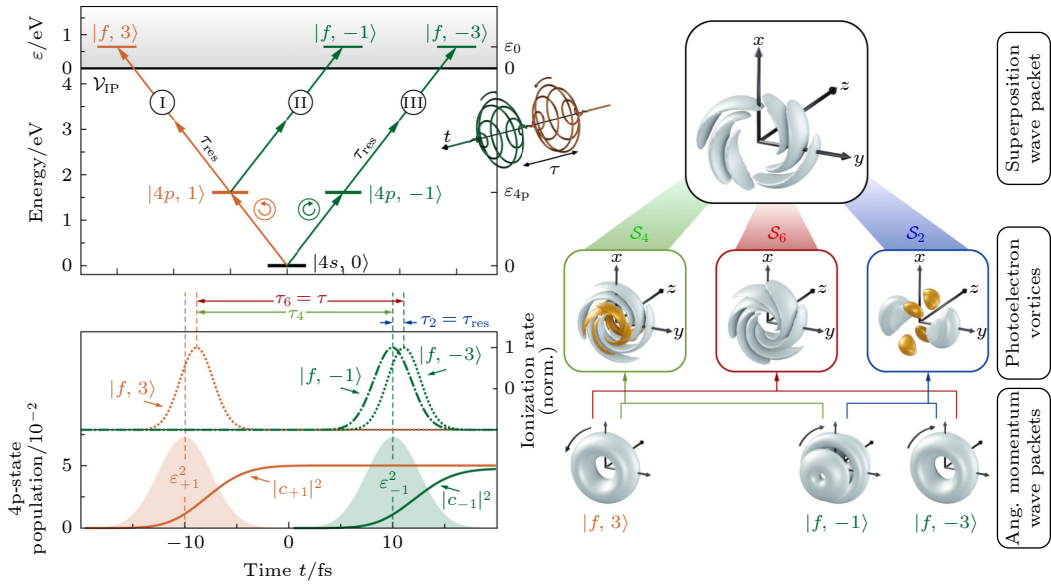


图 13 利用光电子涡旋测定 1+2 共振增强多光子电离过程中电离时间延迟的方法^[113]

Fig. 13. Method for the determination of ionization time delays in 1+2 REMPI using photoelectron vortices^[113].

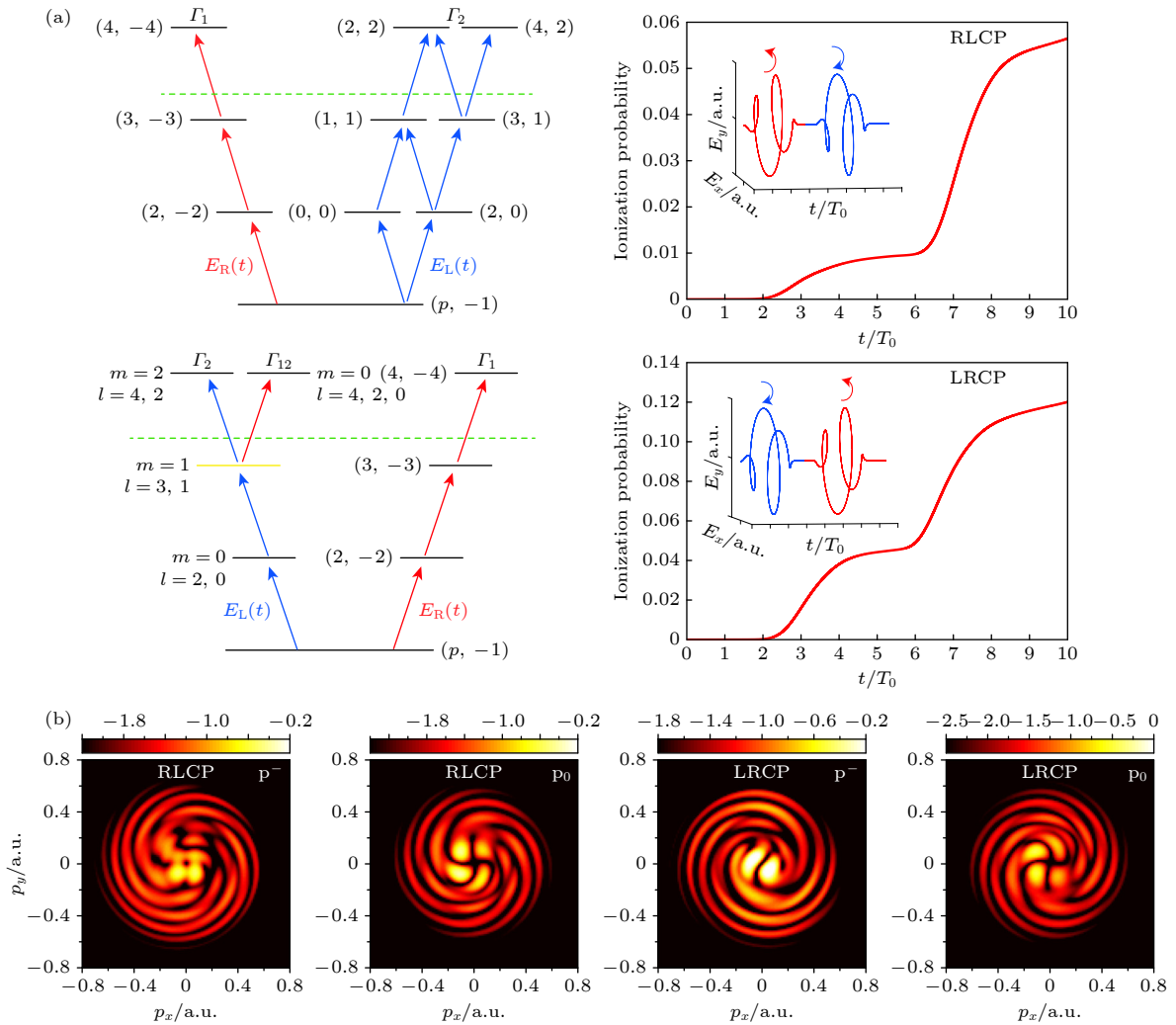


图 14 (a) 氙原子与时延反旋圆偏振脉冲相互作用的电离方案以及相应的电离概率; (b) 氙原子的光电子动量分布^[115]

Fig. 14. (a) Ionization scheme of a xenon atom interacting with time-delayed counter-rotating circularly polarized pulses, along with the corresponding ionization probability; (b) photoelectron momentum distribution of the xenon atom^[115].

所示, 当第 1 个脉冲的旋转方向与电子初态相反时, 会出现交叉电离路径; 若方向相同, 则该路径消失. 由于不同电离通道产生的光电子波包携带不同的磁量子数, 它们干涉形成的涡旋在动量分布上会呈现出截然不同的条纹特征. 通过分析这些特殊的干涉图案, 可以准确判定环形电流的方向. 此外, Ma 等^[116] 在针对氦原子的轨道分辨涡旋光电子动量分布研究中, 系统分析了电离概率对磁量子数的依赖关系. 研究发现, 通过调控脉冲参数, 能够有效改变来自不同初态的电离概率之比, 从而实现了对特定电离通道的选择性操控.

在上述强场电离过程中, 圆偏振激光场的电离率与靶原子轨道的磁量子数符号密切相关. 当这一机制与自旋轨道耦合效应结合时, 会导致显著的光电子自旋极化现象. 研究者已经能利用阿秒角条纹等技术, 实现对自旋极化的角度分辨操控^[117-119]. 2023 年, Hu 等^[120] 研究发现, 来自 p_{\pm} 轨道的电离电子波包会在涡旋动量分布中形成相位编码的干涉图案. 由于 $J=1/2$ 和 $J=3/2$ 电离通道之间的能量分裂, 来自不同 p_m^j 轨道的光电子在动量空间可被有效分离 (如图 15 所示), 最终实现了超过 50% 的自旋极化率. 这种基于电子涡旋来操控自旋极化

电子的方案, 可通过精确调节双脉冲的时间延迟、波长或相对相位等参数, 灵活控制自旋极化电子的动能与出射角分布.

在分子体系中, 电子涡旋结构对轨道对称性表现出更高的敏感性, 这使得相应的 Ramsey 干涉图样成为一种揭示分子轨道对称性的天然探针. 2023 年, Wang 等^[121] 系统对比并分析了轨道对称性对 H_2 , N_2 分子以及 Ar 原子的涡旋动量分布的影响. 研究发现, 尽管这 3 种体系的电离能相近, 但由于轨道对称性存在本质差异, 其产生的电子涡旋在旋臂数目和空间分布特征上均呈现出显著区别. 此外, 这些涡旋特征还强烈依赖于分子的取向角及核间距等关键参数.

尽管分子特有的几何构型可调性为电子波包相干操控提供了比原子体系更丰富的维度, 但其涉及的自由度更多, 且存在电子-核与电子-电子间的复杂耦合, 导致理论计算复杂度显著增加. 因此, 此前的理论研究主要集中于轨道对称性明确的单轨道同核分子, 如分子离子 H_2^+ ^[68] 和 H_3^+ ^[81]、中性双原子分子 H_2 和 N_2 ^[121] 等. 2024 年, Ambalampitiya 等^[122] 将分子电子涡旋的研究拓展至多轨道异核双原子分子体系 (如 HF 和 CO). 当组成分子的

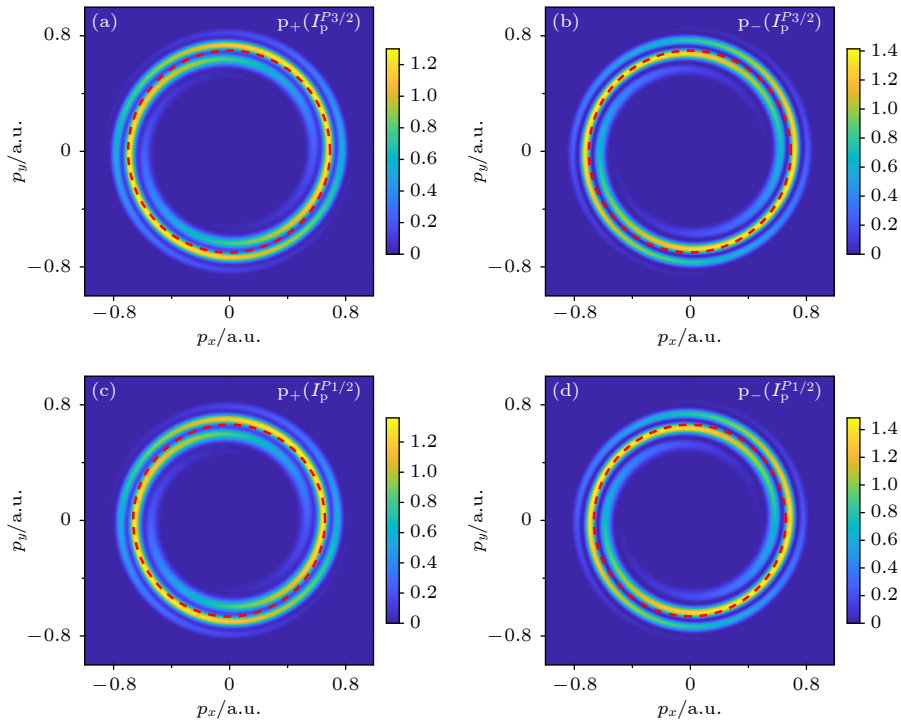


图 15 由一对反向旋转圆偏振脉冲从 Kr 原子的 4 个 $p_m(I_p^{P_j})$ 轨道电离产生的光电子动量分布^[120]

Fig. 15. The photoelectron momentum distributions for four $p_m(I_p^{P_j})$ orbitals of the Kr atom ionized by the counter-rotating circularly polarized pulses^[120].

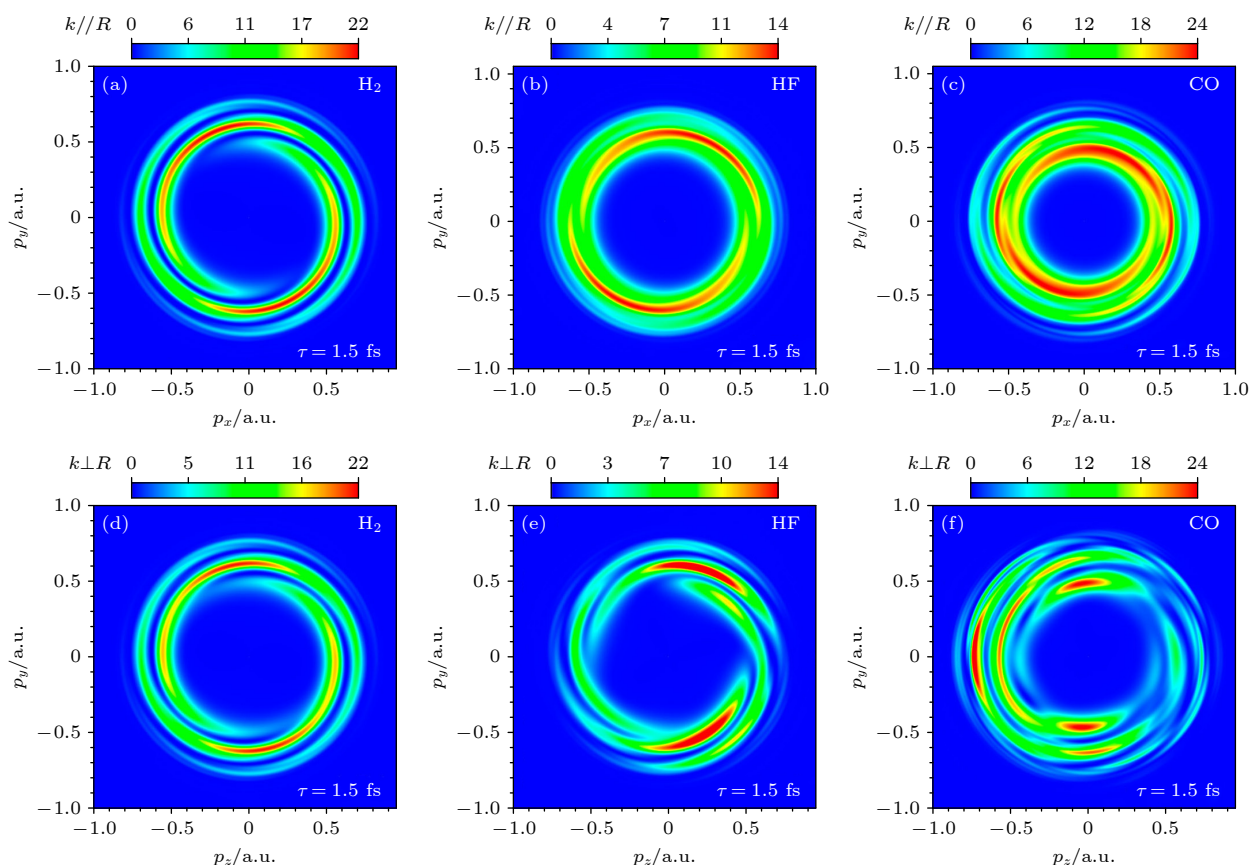


图 16 在平行和垂直分子取向构型下, 由一对时延反旋圆偏振脉冲产生的 H_2 , HF 和 CO 光电子动量分布^[122]

Fig. 16. Photoelectron momentum distributions of H_2 , HF and CO generated by a pair of time-delayed counter-rotating circularly polarized pulses in parallel and perpendicular molecular alignment configurations^[122].

原子电负性差异较大时, 电负性较强原子的轨道能量在成键后会显著下移, 致使最高占据分子轨道 (HOMO) 产生显著的永久电偶极矩. 这种固有的电荷不对称性直接导致了非对称的涡旋动量分布 (如图 16 所示), 这与单轨道同核分子中由双色场诱导产生相反宇称角动量光电子所形成的非对称涡旋^[68,81] 机制不同. 该研究为揭示 HOMO 轨道的固有不对称性提供了一种新方法.

此外, Shu 等^[123] 基于电子旋转方向与简并磁子能级的磁量子数符号之间的关联性, 以及多激发路径间的量子干涉效应, 在单电子分子 H_2^+ 体系中展开研究. 他们利用两束具有时延的同旋或反旋圆偏振阿秒极紫外脉冲, 在无外磁场的条件下, 成功揭示并测量了能量简并磁子能级的相干特性. 得益于电子涡旋对分子轨道的高度敏感性, 该现象可通过引入第 3 束 X 射线激光脉冲所激发的光电子能谱进行观测和分辨. 这种全光学调控方法实现了对目标简并态的选择性控制, 从而将简并磁子能级间的量子干涉过程可视化.

上述研究表明, 电子涡旋的旋转对称性与靶原子或分子的轨道对称性之间存在深刻的内在联系. 鉴于分子轨道在化学反应等过程中往往起着决定性作用, 若能通过电子涡旋有效区分来自不同轨道的电子发射贡献, 将不仅为精确的分子操纵提供理论基础, 也可为分子轨道成像技术提供一种强有力的新型工具.

5 总结与展望

本文综述了光电子涡旋在从原子到分子体系中的研究进展. 通过对涡旋臂数、间距等特征的分析, 揭示了其对靶目标性质、初态轨道对称性以及脉冲参数 (如包络形状、载波频率、载波包络相位、啁啾特性、脉宽、脉冲数量与间隔、强度及偏振态) 的高度敏感性. 通过定制脉冲波形并利用量子路径干涉效应, 可以实现对特定电离通道的选择, 这已成为时域量子相干控制中的一种新型干涉测量手段. 在超短脉冲的宽带宽作用下, 涡旋状光电子动

量分布中的干涉条纹编码了丰富的电子波包时间相位信息. 从弱场微扰到强场多光子电离区, 电子涡旋所携带的相位信息可用于分辨电离通道、探测动态斯塔克效应, 以及测量电子位移与时间延迟等关键动力学参数. 在分子体系中, 受益于其独特的几何结构、取向自由度和复杂的轨道对称性, 这类干涉结构已发展成为探测分子结构、开展动力学成像与实现相干调控的重要工具. 实验方面, 通过偏振整形技术生成的脉冲序列, 结合基于速度成像测量的三维光电子分布断层扫描重构, 为理论预测提供了可靠的验证手段. 这些实验技术的发展不仅证实了理论模型的有效性, 也为进一步探索电子涡旋的物理本质奠定了坚实基础.

除光电离过程外, 电子涡旋现象在其他物理过程中也展现出普遍性. 例如, Li 等^[124,125]在强场多光子激发产生正负电子对的过程中发现, 一对反旋圆偏振脉冲可在动量空间诱导出涡旋结构. 该结构同样对载波包络相位、时间延迟及光场旋向等参数极为敏感, 揭示了强场量子电动力学过程中的角动量守恒与量子干涉机制. 另一方面, Krajewska 等^[126-128]基于强场近似理论, 从相位特性角度阐明了 H^- 离子在光解吸附 (photodetachment) 过程中电子涡旋的形成机制. 研究表明, 在单脉冲、同旋脉冲乃至线偏振脉冲作用下, 均能产生满足整数拓扑量子化条件的涡旋结构, 体现了动量空间电子涡旋对激光参数的广泛敏感性. 此外, 在超短激光与分子相互作用中, 若光子能量不足以直接电离, 电子可能跃迁至激发态并引发化学键断裂, 即分子解离. 在此过程中, 不同解离通道产生的具有相同宇称但角动量不同的碎片会因量子干涉形成核涡旋动量分布^[129-131]. 分析其干涉条纹有助于获取核运动动力学参数及解离过程的时间演化信息, 这表明涡旋分析同样有望成为识别强场中分子解离通道的有力工具.

参考文献

- [1] Einstein A 1905 *Ann. Phys.* **322** 132
- [2] Goulielmakis E, Uiberacker M, Kienberger R, Baltuska A, Yakovlev V, Scrinzi A, Westerwalbesloh T, Kleineberg U, Heinzmann U, Drescher M, Krausz F 2004 *Science* **305** 1267
- [3] Kienberger R, Goulielmakis E, Uiberacker M, Baltuska A, Yakovlev V, Bammer F, Scrinzi A, West-erwalbesloh T, Kleineberg U, Heinzmann U, Drescher M, Krausz F 2004 *Nature* **427** 817
- [4] Eckle P, Smolarski M, Schlup P, Biegert J, Staudte A, Schoeffler M, Muller H G, Doerner R, Keller U 2008 *Nat. Phys.* **4** 565
- [5] Gallmann L, Cirelli C, Keller U 2012 *Annu. Rev. Phys. Chem.* **63** 447
- [6] Calegari F, Sansone G, Stagira S, Vozzi C, Nisoli M 2016 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **49** 062001
- [7] Vrakking M J J 2014 *Phys. Chem. Chem. Phys.* **16** 2775
- [8] Chang Z, Corkum P B, Leone S R 2016 *J. Opt. Soc. Am. B* **33** 1081
- [9] Strickland D, Mourou G 1985 *Opt. Commun.* **56** 219
- [10] Agostini P, Fabre F, Mainfray G, Petite G, Rahman N K 1979 *Phys. Rev. Lett.* **42** 1127
- [11] Meng C S, Lü Z H, Wang X W, Zhang D W, Zhao Z X, Yuan J M 2022 *Chin. Phys. Lett.* **39** 113701
- [12] Yang Q, Leng J, Wang Y H, Sun Y N, Du H B, Zhang D D, Song L L, He L H, Liu F C 2022 *Chin. Phys. Lett.* **39** 023301
- [13] Fittinghoff D N, Bolton P R, Chang B, Kulander K C 1992 *Phys. Rev. Lett.* **69** 2642
- [14] Walker B, Sheehy B, DiMauro L F, Agostini P, Schafer K J, Kulander K C 1994 *Phys. Rev. Lett.* **73** 1227
- [15] Laroche S, Talebpour A, Chin S L 1998 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **31** 1201
- [16] Luo X, Ji X H, Jiao L G, Liu A H, Liu X S 2025 *Chin. Phys. Lett.* **42** 070301
- [17] Li Y B, Wu F R, Liu F F, Kang S J, Li Z F, Zhang K, Liu Y F, Li K, Zhai C, Xu J, Wang P, Zhao Q, Yu B 2025 *Chin. Phys. Lett.* **42** 053703
- [18] Li Y B, Qin L L, Liu A H, Zhang K, Tang Q B, Zhai C Y, Xu J K, Chen S, Yu B H, Chen J 2022 *Chin. Phys. Lett.* **39** 093201
- [19] Luo X, Jiao L G, Liu A H, Liu X S 2024 *Opt. Express* **32** 19825
- [20] Ferray M, L'Huilier A, Li X F, Lompre L A, Mainfray G, Manus C 1988 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **21** L31
- [21] Paul P M, Toma E S, Breger P, Mullot G, Augé F, Balcou P, Muller H G, Agostini P 2001 *Science* **292** 1689
- [22] Hentschel M, Kienberger R, Spielmann C, Reider G, Milosevic N, Brabec T, Corkum P, Heinzmann U, Drescher M, Krausz F 2001 *Nature* **414** 509
- [23] Qiao Y, Zhang Y P, Zhou S S, Chen P, Liu Y, Yang Y J, Chen J G 2025 *Chin. Phys. Lett.* **43** 020401
- [24] Ma Y, Meng C S, Lyu Z H, Zhang Y, Zhang D W, Sun X, Wu H Z, Wang X W, Zhao Z X, Yuan J M 2025 *Chin. Phys. Lett.* **42** 120303
- [25] Yu S, Li Z, Zhong S, Xie B, Teng H, Zhu J, Wei Z 2025 *Chin. Phys. Lett.* **42** 100401
- [26] Chen J, Jiang W, Qiao Y, Yang Y, Chen J 2025 *Chin. Phys. Lett.* **42** 013201
- [27] Qiao Y, Chen J, Zhou S, Chen J, Jiang S, Yang Y 2024 *Chin. Phys. Lett.* **41** 014205
- [28] Wang L, Wang X, Xiao F, Wang J, Tao W, Zhang D, Zhao Z 2023 *Chin. Phys. Lett.* **40** 113201
- [29] Tzallas P, Skantzakis E, Nikolopoulos L A A, Tsakiris G D, Charalambidis D 2011 *Nat. Phys.* **7** 781
- [30] Hu S X, Collins L A 2006 *Phys. Rev. Lett.* **96** 073004
- [31] Sansone G, Benedetti E, Calegari F, Vozzi C, Avaldi L, Flammini R, Poletto L, Villoresi P, Altucci C, Velotta R, Stagira S, De Silvestri S, Nisoli M 2006 *Science* **314** 443
- [32] Goulielmakis E, Schultze M, Hofstetter M, Yakovlev V S, Gagnon J, Uiberacker M, Aquila A L, Gullikson E M, Attwood D T, Kienberger R, Krausz F, Kleineberg U 2008 *Science* **320** 1614
- [33] Zhao K, Zhang Q, Chini M, Wu Y, Wang X W, Chang Z H

- 2012 *Opt. Lett.* **37** 3891
- [34] Li J, Ren X M, Yin Y C, Zhao K, Chew A, Cheng Y, Cunningham E, Wang Y, Hu S Y, Wu Y, Chini M, Chang Z H 2017 *Nat. Commun.* **8** 186
- [35] Gaumnitz T, Jain A, Pertot Y, Huppert M, Jordan I, Ardana-Lamas F, Wörner H J 2017 *Opt. Express* **25** 27506
- [36] Zhan M J, Ye P, Teng H, He X K, Zhang W, Zhong S Y, Wang L F, Yun C X, Wei Z Y 2013 *Chin. Phys. Lett.* **30** 093201
- [37] Wang X, Wang L, Xiao F, Zhang D, Lü Z, Yuan J, Zhao Z 2020 *Chin. Phys. Lett.* **37** 023201
- [38] Yang Z, Cao W, Chen X, Zhang J, Mo Y, Xu H, Mi K, Zhang Q, Lan P, Lu P 2020 *Opt. Lett.* **45** 567
- [39] Kerbstadt S, Eickhoff K, Bayer T, Wollenhaupt M 2019 *Adv. Phys. X* **4** 1672583
- [40] Eckle P, Pfeiffer A N, Cirelli C, Staudte A, Doerner R, Müller H G, Büttiker M, Keller U 2008 *Science* **322** 1525
- [41] Torlina L, Morales F, Kaushal J, Ivanov I, Kheifets A, Zielinski A, Scrinzi A, Müller H G, Sukiasyan S, Ivanov M, Smirnova O 2015 *Nat. Phys.* **11** 530
- [42] Pfeiffer A N, Cirelli C, Smolarski M, Keller U 2013 *Chem. Phys.* **414** 84
- [43] Wang X H, Ou X B, Gong X C 2025 *Acta Phys. Sin.* **74** 243202 (in Chinese) [王旭涵, 欧显彬, 宫晓春 2025 物理学报 **74** 243202]
- [44] Sansone G, Poletto L, Nisoli M 2011 *Nat. Photon.* **5** 656
- [45] Hernández-García C, Durfee C G, Hickstein D D, Popmintchev T, Meier A, Murnane M M, Kapteyn H C, Sola I J, Jaron-Becker A, Becker A 2016 *Phys. Rev. A* **93** 043855
- [46] Krausz F, Ivanov M 2009 *Rev. Mod. Phys.* **81** 163
- [47] Huismans Y, Rouzée A, Gijbetsen A, Jungmann J H, Smolkowska A S, Logman P S W M, Lépine F, Cauchy C, Zamith S, Marchenko T, Bakker J M, Berden G, Redlich B, van der Meer A F G, Müller H G, Vermin W, Schafer K J, Spanner M, Ivanov M Y, Smirnova O, Bauer D, Popruzhenko S V, Vrakking M J J 2011 *Science* **331** 61
- [48] Pazourek R, Nagele S, Burgdörfer J 2015 *Rev. Mod. Phys.* **87** 765
- [49] Drescher M, Hentschel M, Kienberger R, Uiberacker M, Yakovlev V, Scrinzi A, Westerwalbesloh T, Kleineberg U, Heinzmann U, Krausz F 2002 *Nature* **419** 803
- [50] Klünder K, Dahlström J M, Gisselbrecht M, Fordell T, Swoboda M, Guénot D, Johansson P, Caillat J, Mauritsson J, Maquet A, Taïeb R, L'Huillier A 2011 *Phys. Rev. Lett.* **106** 143002
- [51] Schultze M, Fieß M, Karpowicz N, Gagnon J, Korbman M, Hofstetter M, Neppl S, Cavalieri A L, Komminos Y, Mercouris T, Nicolaïdes C A, Pazourek R, Nagele S, Feist J, Burgdörfer J, Azeer A M, Ernstörfer R, Kienberger R, Kleineberg U, Goulielmakis E, Krausz F, Yakovlev V S 2010 *Science* **328** 1658
- [52] Busto D, Vinbladh J, Zhong S, Isinger M, Nandi S, Maclot S, Johansson P, Gisselbrecht M, L'Huillier A, Lindroth E, Dahlström J M 2019 *Phys. Rev. Lett.* **123** 133201
- [53] Kling M F, Siedschlag C, Verhoeft A J, Khan J I, Schultze M, Uphues T, Ni Y, Uiberacker M, Drescher M, Krausz F, Vrakking M J J 2006 *Science* **312** 246
- [54] Eichmann H, Egbert A, Nolte S, Momma C, Wellegehausen B, Becker W, Long S, McIver J K 1995 *Phys. Rev. A* **51** R3414
- [55] Milošević D B, Becker W, Kopold R 2000 *Phys. Rev. A* **61** 063403
- [56] Long S, Becker W, McIver J K 1995 *Phys. Rev. A* **52** 2262
- [57] Fleischer A, Kfir O, Diskin T, Sidorenko P, Cohen O 2014 *Nat. Photon.* **8** 543
- [58] Kfir O, Grychtol P, Turgut E, Knut R, Zusin D, Popmintchev D, Popmintchev T, Nembach H, Shaw J M, Fleischer A, Kapteyn H, Murnane M, Cohen O 2015 *Nat. Photon.* **9** 99
- [59] Djiokep J M N, Hu S X, Madsen L B, Manakov N L, Meremianin A V, Starace A F 2015 *Phys. Rev. Lett.* **115** 113004
- [60] Scheeler M W, van Rees W M, Kedia H, Kleckner D, Irvine W T M 2017 *Science* **357** 487
- [61] Harris M, Hill C, Vaughan J 1994 *Opt. Commun.* **106** 161
- [62] Macek J H, Sternberg J B, Ovchinnikov S Y, Lee T G, Schultz D R 2009 *Phys. Rev. Lett.* **102** 143201
- [63] Gregg P, Kristensen P, Ramachandran S 2015 *Optica* **2** 267
- [64] Hernandez-Garcia C, Vieira J, Mendonca J T, Rego L, San Roman J, Plaja L, Ribic P R, Gauthier D, Picon A 2017 *Photonics* **4** 28
- [65] Lloyd S M, Babiker M, Thirunavukkarasu G, Yuan J 2017 *Rev. Mod. Phys.* **89** 035004
- [66] Bliokh K, Ivanov I, Guzzinati G, Clark L, Van Boxem R, Béché A, Juchtmans R, Alonso M, Schattschneider P, Nori F, Verbeeck J 2017 *Phys. Rep.* **690** 1
- [67] Ovchinnikov S Y, Sternberg J B, Macek J H, Lee T G, Schultz D R 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 203005
- [68] Yuan K J, Chelkowski S, Bandrauk A D 2016 *Phys. Rev. A* **93** 053425
- [69] de Broglie L 1970 *Found. Phys.* **1** 5
- [70] Davisson C, Germer L H 1927 *Phys. Rev.* **30** 705
- [71] Ramsey N F 1950 *Phys. Rev.* **78** 695
- [72] Noordam L D, Duncan D I, Gallagher T F 1992 *Phys. Rev. A* **45** 4734
- [73] Strehle M, Weichmann U, Gerber G 1998 *Phys. Rev. A* **58** 450
- [74] Wollenhaupt M, Assion A, Liese D, Sarpe-Tudoran C, Baumert T, Zamith S, Bouchene M A, Girard B, Flettner A, Weichmann U, Gerber G 2002 *Phys. Rev. Lett.* **89** 173001
- [75] Eickhoff K, Köhnke D, Feld L, Englert L, Bayer T, Wollenhaupt M 2020 *New J. Phys.* **22** 123015
- [76] Pengel D, Kerbstadt S, Englert L, Bayer T, Wollenhaupt M 2017 *Phys. Rev. A* **96** 043426
- [77] Pengel D, Kerbstadt S, Johannmeyer D, Englert L, Bayer T, Wollenhaupt M 2017 *Phys. Rev. Lett.* **118** 053003
- [78] Kerbstadt S, Eickhoff K, Bayer T, Wollenhaupt M 2019 *Nat. Commun.* **10** 658
- [79] Eickhoff K, Englert L, Bayer T, Wollenhaupt M 2021 *Front. in Phys.* **9** 675258
- [80] Djiokep J M N, Meremianin A V, Manakov N L, Hu S X, Madsen L B, Starace A F 2016 *Phys. Rev. A* **94** 013408
- [81] Yuan K J, Lu H, Bandrauk A D 2017 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **50** 124004
- [82] Zhen Q, Zhang H D, Zhang S Q, Ji L, Han T, Liu X S 2020 *Chem. Phys. Lett.* **738** 136885
- [83] Zhen Q, Zhang S Q, Yang Z J, Liu X S 2021 *EPL* **133** 33001
- [84] Zhen Q, Chen J H, Zhang S Q, Yang Z J, Liu X S 2021 *Chin. Phys. B* **30** 024203
- [85] Guo J, Zhang S Q, Zhang J, Zhou S P, Guan P F 2021 *Laser Phys.* **31** 065301
- [86] Wang Z, Zhen Q, Sun Y, Chen J H, Liu X S 2021 *Commun. Theor. Phys.* **74** 015501
- [87] Lei Z X, Yan S J, Hao X Y, Ma P, Zhou S P, Guo J 2023 *Commun. Theor. Phys.* **75** 065501

- [88] Ben S, Chen S, Bi C R, Chen J, Liu X S 2020 *Opt. Express* **28** 29442
- [89] Djiokap J M N, Meremianin A V, Manakov N L, Hu S X, Madsen L B, Starace A F 2017 *Phys. Rev. A* **96** 013405
- [90] Djiokap J M N, Starace A F 2017 *J. Opt.* **19** 124003
- [91] Djiokap J M N, Meremianin A V, Manakov N L 2021 *Phys. Rev. A* **103** 023103
- [92] Zhang B S, Liu X Y, Zhu F Z, Jiao L G, Liu A H 2024 *Commun. Theor. Phys.* **76** 015502
- [93] Strandquist N J, Djiokap J M N 2022 *Phys. Rev. A* **106** 043110
- [94] Yusoff M A H B M, Djiokap J M N 2024 *Phys. Rev. A* **109** 023107
- [95] Pedersen L, Djiokap J M N 2024 *Phys. Rev. A* **109** 033114
- [96] Wang R, Zhang Q B, Qian Y X 2025 *Phys. Rev. A* **111** 013106
- [97] Djiokap J M N, Meremianin A V, Manakov N L, Madsen L B, Hu S X, Starace A F 2018 *Phys. Rev. A* **98** 063407
- [98] Djiokap J M N, Starace A F 2021 *Phys. Rev. A* **103** 053110
- [99] Yang H J, Liu X Y, Zhu F Z, Jiao L G, Liu A H 2024 *Chin. Phys. B* **33** 013303
- [100] Bayer T, Wollenhaupt M 2022 *Front. in Chem.* **10** 899461
- [101] Wollenhaupt M, Lux C, Krug M, Baumert T 2013 *ChemPhysChem* **14** 1341
- [102] Bayer T, Philipp C, Eickhoff K, Wollenhaupt M 2020 *Phys. Rev. A* **102** 013104
- [103] Eickhoff K, Feld L, Köhnke D, Bayer T, Wollenhaupt M 2021 *Phys. Rev. A* **104** 052805
- [104] Eickhoff K, Feld L, Köhnke D, Englert L, Bayer T, Wollenhaupt M 2021 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **54** 164002
- [105] Köhnke D, Bayer T, Wollenhaupt M 2024 *Phys. Rev. A* **110** 053109
- [106] Li M, Zhang G Z, Kong X L, Wang T Q, Ding X, Yao J Q 2018 *Opt. Express* **26** 878
- [107] Kong X L, Zhang G Z, Li M, Wang T Q, Ding X, Yao J Q 2018 *J. Opt. Soc. Am. B* **35** 2163
- [108] Li M, Zhang G Z, Ding X, Yao J Q 2019 *IEEE Photon. J* **11** 3300111
- [109] Li M, Zhang G Z, Ding X, Yao J Q 2019 *Chin. Phys. Lett.* **36** 063201
- [110] Qin Y N, Li M, Feng Y D, Luo S Q, Zhou Y M, Lu P X 2021 *Front. Phys.* **16** 32502
- [111] Xiao X R, Wang M X, Liang H, Gong Q, Peng L Y 2019 *Phys. Rev. Lett.* **122** 053201
- [112] Fulton E L, Djiokap J M N 2024 *Phys. Rev. A* **110** 063105
- [113] Köhnke D, Bayer T, Wollenhaupt M 2024 *Phys. Rev. A* **110** 063111
- [114] Barth I, Smirnova O 2011 *Phys. Rev. A* **84** 063415
- [115] Wang R, Zhang Q B, Ran C, Cao W, Lu P X 2020 *Opt. Lett.* **45** 1383
- [116] Ma M Y, Wang J P, Jing W Q, Guan Z, Jiao Z H, Wang G L, Chen J H, Zhao S F 2021 *Opt. Express* **29** 33245
- [117] Armstrong G S J, Clarke D D A, Benda J, Wragg J, Brown A C, van der Hart H W 2021 *Phys. Rev. A* **103** 053123
- [118] Han M, Ge P P, Liu M M, Gong Q H, Liu Y Q 2019 *Phys. Rev. A* **99** 023404
- [119] Milošević D B 2016 *Phys. Rev. A* **93** 051402
- [120] Hu Y B, Ma Q F, Liu K L, Tian Y D, Li M, Zhou Y M, Lu P X 2023 *Phys. Rev. A* **107** 033108
- [121] Wang R R, Ma M Y, Wen L C, Guan Z, Yang Z Q, Jiao Z H, Wang G L, Zhao S F 2023 *J. Opt. Soc. Am. B* **40** 1749
- [122] Ambalampitiya H B, Djiokap J M N 2024 *Commun. Phys.* **7** 359
- [123] Shu C C, Guo Y, Yuan K J, Dong D, Bandrauk A D 2020 *Opt. Lett.* **45** 960
- [124] Li Z L, Li Y J, Xie B S 2017 *Phys. Rev. D* **96** 076010
- [125] Li Z L, Xie B S, Li Y J 2018 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **52** 025601
- [126] Geng L, Cajiao Vélez F, Kamiński J Z, Peng L Y, Krajewska K 2020 *Phys. Rev. A* **102** 043117
- [127] Cajiao Vélez F, Geng L, Kamiński J Z, Peng L Y, Krajewska K 2020 *Phys. Rev. A* **102** 043102
- [128] Majczak M M, Velez F C, Kaminski J Z, Krajewska K 2022 *Opt. Express* **30** 43330
- [129] Chen Z, He F 2020 *Phys. Rev. A* **102** 033107
- [130] Chen Z, He P L, He F 2020 *Phys. Rev. A* **101** 033406
- [131] Han M, Liang H, Rost J M, Rudenko A, Cocke C L, Thumm U, Peng L Y, Liu Y Q 2025 *Phys. Rev. Res.* **7** 013295

SPECIAL TOPIC—Ultrafast physics in atomic, molecular and optical systems

Electron vortices in attosecond photoionization: Mechanisms, dynamics, and applications*ZHANG Bingshuang¹⁾ JIAO Liguang^{2)†} LIU Aihua^{1)‡}1) (*Institute of Atomic and Molecular Physics, Jilin University, Changchun 130012, China*)2) (*College of Physics, Jilin University, Changchun 130012, China*)

(Received 22 November 2025; revised manuscript received 15 December 2025)

Abstract

In recent years, with the advancement of attosecond pulse generation and polarization-shaping techniques, vortex structures featuring Archimedean spiral patterns observed in photoelectron momentum distributions have attracted widespread attention in the study of ultrafast electron dynamics in atoms and molecules. In this paper, we systematically review the generation mechanisms, dynamical behavior, and application prospects of electron vortices in attosecond photoionization. Theoretical studies reveal that electron vortices originate from quantum interference between photoelectron wave packets with different magnetic quantum numbers. Their number of spiral arms and spatial distributions are highly sensitive to the laser pulse polarization, time delay, chirp, and the orbital symmetry of the target system. Experimentally, by combining polarization-shaped pulses with high-resolution photoelectron imaging techniques, a variety of vortex structures have been successfully observed and verified. Beyond their fundamental interest, electron vortices demonstrate significant application potentials in interference metrology, carrier-envelope phase retrieval, electron displacement and time-delay measurements, thereby further opening new avenues for molecular orbital imaging and quantum-state control. Finally, this paper outlines future research directions and potential applications of electron vortices in strong-field ionization, molecular dissociation, and related areas.

Keywords: photoelectron momentum distribution, photoelectron vortex, attosecond pulse, quantum interference

DOI: [10.7498/aps.75.20251587](https://doi.org/10.7498/aps.75.20251587)CSTR: [32037.14.aps.75.20251587](https://cstr.cn/32037.14.aps.75.20251587)

* Project supported by the State Key Development Program for Basic Research of China (Grant No. 2022YFE0134200) and the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 12174147, 12474343).

† Corresponding author. E-mail: lgjiao@jlu.edu.cn

‡ Corresponding author. E-mail: aihualiu@jlu.edu.cn

阿秒光电离中的电子涡旋：机制、动力学与应用

张炳双 焦利光 刘爱华

Electron vortices in attosecond photoionization: Mechanisms, dynamics, and applications

ZHANG Bingshuang JIAO Liguang LIU Aihua

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 75, 050301 (2026) DOI: 10.7498/aps.75.20251587

CSTR: 32037.14.aps.75.20251587

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.75.20251587>

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

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

阿秒符合干涉仪与原子分子及团簇体系阿秒光电子电离延迟测量

Attosecond coincidence interferometer and measurement of attosecond photoelectron ionization time delay in atomic, molecular and cluster systems

物理学报. 2025, 74(24): 243202 <https://doi.org/10.7498/aps.74.20251166>

高能量分辨光电子干涉仪研究进展

Research progress of high-energy-resolution photoelectron interferometer

物理学报. 2025, 74(15): 150702 <https://doi.org/10.7498/aps.74.20250534>

基于非绝热半经典模型对氩原子近阈值光电子干涉的研究

Revisiting near-threshold photoelectron interference in argon with a non-adiabatic semiclassical model

物理学报. 2025, 74(21): 213201 <https://doi.org/10.7498/aps.74.20250999>

飞行时间光电子谱仪在超快光学测量实验中的应用

Applications of time-of-flight photoelectron spectrometers in ultrafast optical experiments

物理学报. 2025, 74(15): 154202 <https://doi.org/10.7498/aps.74.20250698>

椭圆偏振强激光场诱导分子电离过程中的缀饰态和非缀饰态

Dressed-state and undressed-state during molecular ionization induced by elliptically polarized laser field

物理学报. 2025, 74(9): 093202 <https://doi.org/10.7498/aps.74.20250064>

强激光场原子电离光电子轨迹干涉全息理论及应用

Theory and application of photoelectron trajectory interference holography for atomic ionization in intense laser field

物理学报. 2022, 71(23): 233206 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20221296>