

交换作用对于原子极紫外光吸收谱的影响

刘喜, 张睿智, 辛国国*

西北大学物理学院, 陕西 西安 710127

摘要 全同性原理要求电子波函数必须满足交换反对称性的条件, 针对其对多电子系统的瞬态吸收谱产生的影响, 运用 Ritz 变分法求出了具有全同反对称性的氦原子波函数。在此基础上, 通过求解三能级模型并与不考虑电子交换作用的旧模型对比, 在理论上研究了氦原子阿秒极紫外(XUV)光瞬态吸收谱。该研究突破传统所采用的单电子跃迁模型, 重点考虑电子的交换作用对 XUV 光瞬态吸收谱的影响。研究发现该交换作用对该瞬态吸收谱的强度和吸收峰的位置等物理量都有重要的影响, 该研究结果可为运用瞬态吸收谱探测原子内电子超快关联动力学提供参考。

关键词 原子与分子物理学; 氦原子的 XUV 光吸收谱; 交换作用; 三能级模型; Ritz 变分法; 全同反对称性

中图分类号 O562.3

文献标志码 A

doi: 10.3788/AOS202242.0502001

Effect of Exchange on XUV Absorption Spectrum of Atoms

Liu Xi, Zhang Ruizhi, Xin Guoguo*

School of Physics, Northwest University, Xi'an, Shaanxi 710127, China

Abstract The homogeneity principle requires that the electron wave function must satisfy the condition of exchange antisymmetry. In view of its influence on the transient absorption spectrum of multi-electron system, the helium atom wave function with identical anti-symmetry is obtained by Ritz variational method. On this basis, the transient absorption spectra of attosecond extreme ultraviolet (XUV) light of helium atoms are studied theoretically by solving the three energy level model and comparing with the old model without considering electron exchange. This study breaks through the traditional single-electron transition model and focuses on the effect of electron exchange on the transient absorption spectrum of XUV light. It is found that the exchange interaction has an important influence on the physical quantities, such as the intensity of the transient absorption spectrum and the position of the absorption peak. The results can provide a reference for using transient absorption spectrum to detect the ultrafast correlation dynamics of electrons in atoms.

Key words atomic and molecular physics; XUV absorption spectrum of helium atom; exchange function; three energy level model; Ritz variational method; identical anti-symmetry

1 引言

原子的吸收光谱是实现物质成分探测的重要手段之一。对于原子吸收光谱的研究, 以前科研人员仅关注光与原子发生相互作用稳定之后光被吸收的情况, 而很少关注原子与光相互作用过程中电子的跃迁动力学。若要控制原子对光的吸收或控制光在

原子中的电子运动过程, 就必须对该跃迁动力学有充分的认识。在外加光的作用下, 电子发生能级差为 ΔE 的跃迁的响应时间大概是阿秒量级, 探测到如此快的运动在以前对人类来说是巨大的挑战。然而, 近年来随着阿秒激光技术的发展^[1], 人类制造出了单束宽度约为 50 as 的极紫外(XUV)超短脉冲^[2]。应用该脉冲并结合基于“泵浦-测量”方法的

收稿日期: 2021-05-19; 修回日期: 2021-08-23; 录用日期: 2021-08-31

基金项目: 陕西省大学生创新创业训练计划(S202110697019)、瞬态光学与光子技术国家重点实验室开放基金(SKLST202010)

通信作者: *xinguo@nwu.edu.cn

阿秒瞬态吸收光谱技术^[3-4], 科研人员已经成功地实现对原子中电子的跃迁动力学过程的实时探测^[5-6], 原理在于将吸收线的强度与相关的电子布居数建立关系, 将“泵浦”和“测量”脉冲之间的时间差(称为延迟时间)与电子在不同的激发态之间的跃迁过程建立关系。通过扫描该延迟时间可以得到随延迟时间变化的吸收谱, 进而获得与延迟时间相关的电子激发态信息, 最终展现出电子的超快激发动力学行为。阿秒瞬态吸收光谱技术自提出之后就受到了广泛的重视, 目前已成为实现阿秒时间尺度的电子动力学测量最重要的方法之一^[7], 科研人员已将其用于探测各种原子^[8]、分子^[9]和固体^[10]等系统中的电子超快动力学过程并对其进行深入的研究。

根据瞬态吸收谱反推电子超快激发动力学过程, 这对电子的能级和本征波函数有更高的要求。目前, 研究阿秒瞬态吸收谱的主流方法是基于单电子近似地求解含时薛定谔方程或多能级模型, 然而大多数原子或分子都含有多个电子, 已有的实验结果表明电子的关联效应会影响原子的瞬态吸收谱^[11]。然而, 对于关联效应对瞬态吸收谱更一般规律的认识目前仍很缺乏。全同性原理要求电子波函数必须满足交换反对称性的条件, 这会对多电子系统的瞬态吸收谱产生何种影响目前仍有待回答。本文将对此问题进行初步探索, 选用最简单的两电子原子系统, 即氦原子作为研究对象, 探索交换作用对瞬态吸收谱的影响。

2 研究方法

使用图 1 的三能级模型来降低求解 He 原子吸收谱的难度。2015 年, 杨增强^[12]便讨论过这种简化模型的可行性, 发现使用修正过的三能级模型可以较为准确地求解 He 原子吸收谱。如图 1 所示, 先后用两束激光脉冲入射。第一束是 XUV 光, 其负责将基态(1s1s)的 He 原子激发到 1s3p 态上; 第二束是红外(IR)光, 其负责诱导 1s3p 态的氦原子辐射, 后跃迁回 1s2s 态。但是, 文献^[12-13]忽视了自旋态, 如果考虑自旋态, 就不难发现基态的氦原子是处于单态的。由跃迁选择定则 $\Delta S = 0$ (ΔS 为跃迁前后氦原子的自旋角动量量子数之差)可知, 如果保证该模型中的三个能级能发生跃迁, 那么它们的状态都应该为单态, 即自旋部分的波函数满足交换反对称的条件, 空间部分满足交换对称的条件。

在三能级模型中, 氦原子的波函数可以简化为

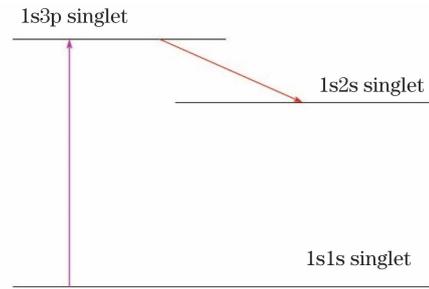


图 1 三能级模型示意图

Fig. 1 Schematic of three energy level model

$$\Psi(r_1, r_2, t) = C_1(t) \exp(-iE_1 t) |1, 1\rangle + C_2(t) \exp(-iE_2 t) |1, 2\rangle + C_3(t) \exp(-iE_3 t) |1, 3\rangle, \quad (1)$$

式中: $|1, 1\rangle$ 、 $|1, 2\rangle$ 和 $|1, 3\rangle$ 表示 1s1s 单态、1s2s 单态和 1s3p 单态; E_1 、 E_2 和 E_3 分别表示相应态的本征能量; r_1 和 r_2 表示以原子核为原点, 两电子的空间位置; t 表示时间; C_1 、 C_2 和 C_3 分别表示波函数的含时系数。

为了求解 He 原子的 XUV 吸收谱, 需求解对应的薛定谔方程(使用原子单位制), 表达式为

$$i \frac{\partial \Psi}{\partial t} = \left[-\frac{1}{2} \nabla_1^2 - \frac{1}{2} \nabla_2^2 - \frac{2}{r_1} - \frac{2}{r_2} + \frac{1}{|r_1 - r_2|} + (r_1 + r_2) \cdot \epsilon(t) \right] \Psi, \quad (2)$$

式中: ∇ 表示哈密顿算子; $\epsilon(t)$ 表示外场, 其是 XUV 脉冲 $\epsilon_X(t)$ 和 IR 脉冲 $\epsilon_L(t)$ 的组合, 两束激光脉冲具有相同的极化方向, 其中

$$\epsilon_X(t) = \epsilon_{X0} \exp \left\{ -2 \ln \left[2 \left(\frac{t - t_d}{\tau_X} \right)^2 \right] \right\} \times \cos[\omega_X(t + t_d)], \quad (3)$$

$$\epsilon_L(t) = \begin{cases} 0, & |t| \geq 5T_L \\ \epsilon_{L0} \cos^2 \left(\frac{\pi t}{\tau_L} \right) \cos(\omega_L t), & |t| < 5T_L \end{cases}, \quad (4)$$

式中: ϵ_{X0} 和 ϵ_{L0} 分别表示 XUV 和 IR 激光脉冲电场的幅值; ω_X 和 ω_L 分别表示 XUV 和 IR 激光的中心角频率; τ_X 表示 XUV 激光的脉冲宽度(半峰全宽); τ_L 表示 IR 激光包络的全部宽度, 持续时间为 10 个光学周期(T_L); t_d 表示 XUV 激光脉冲和 IR 激光脉冲之间的延迟时间。

为了方便探究, 若本文后面无特殊说明, 则上述参数设置如下。XUV 光的脉冲强度为 $3 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$, 中心频率为 21.61 eV, 脉冲宽度 300 as; IR 光强度为 $5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, 中心频率为 2.38 eV; XUV 光比 IR 光早 5.16 fs 入射。

由含时微扰的思想可知, 含时波函数的求解可

以利用定态波函数,而在求解定态波函数的过程中,需考虑交换作用是否对体系求解的结果产生影响。首先,考虑忽略交换作用的模型,后面的描述中称之为旧模型,即人们通常使用的单电子近似模型。基于此近似模型得到了对应于含时薛定谔方程[(2)式]的简化的定态薛定谔方程^[14-15],表达式为

$$\epsilon\Psi = \left[-\frac{1}{2}\nabla^2 + V(r) \right] \Psi, \quad (5)$$

式中: $\nabla^2 = \nabla_1^2 + \nabla_2^2$; $V(r) = V_1(r_1) + V_2(r_2)$, 软化库伦势 $V_i(r_i) = 1/\sqrt{r_i^2 + a^2}$, ($i=1,2$), 为了满足真实的电离能, 设 $a=0.472$ 。

由于两电子相互独立且忽略交换作用, 故体系的波函数将会是乘积波函数, 即 $\Psi(r_1, r_2) = \Psi_1(r_1)\Psi_2(r_2)$, 体系的能量变为 $E = \epsilon_1 + \epsilon_2$ 。

如果考虑交换作用, 电子作为费米子的波函数应当满足反对称性的条件。考虑 He 原子处于单态, 则坐标波函数是一个交换对称的函数, 表达式为
$$\Psi(r_1, r_2) = \frac{1}{\sqrt{2}}[\Psi_1(r_1)\Psi_2(r_2) + \Psi_1(r_2)\Psi_2(r_1)]。 \quad (6)$$

假设电子的轨道波函数满足 Slater 基的组合, 只考虑 1s1s 单态、1s2s 单态和 1s3p 单态, 利用 Ritz^[16-17]变分法不难得到

$$\left\{ \begin{array}{l} \Psi_{1s} = 2\sqrt{\alpha^3}\exp(-\alpha r), \alpha = 1.6875 \\ \Psi_{1s}^{(1)} = 2\sqrt{\alpha_1^3}\exp(-\alpha_1 r), \alpha_1 = 1.9390 \\ \Psi_{2s} = N_1(2 - c_1\beta r)\exp\left(-\frac{1}{2}\beta r\right), \\ \beta = 1.008, c_1 = 1.4494, N_1 = 0.2082。 \quad (7) \\ \Psi_{1s}^{(2)} = 2\sqrt{\alpha_2^3}\exp(-\alpha_2 r), \alpha_2 = 2 \\ \Psi_{3p} = N_2(6 - c_2\nu r)\exp\left(-\frac{1}{3}\nu r\right), \\ \nu = 0.89, c_2 = 1.0868, N_2 = 0.0131 \end{array} \right.$$

对于含时波函数的求解, 需借助含时微扰的手段。首先给出哈密顿量的含时微扰部分在 0 级表象中的表示, 即

$$H_{mm} = \langle 1, n | \exp(iE_n t)(r_1 + r_2)\epsilon(t) \times \exp(-iE_m t) | 1, m \rangle = \langle 1, n | r_1 + r_2 | 1, m \rangle \epsilon(t) \times \exp[-i(E_m - E_n)t], \quad (8)$$

式中: H_{mm} 表示哈密顿量矩阵元, 其中 m 和 n 分别表示矩阵中列和行的序号。于是, 薛定谔方程变为

$$i \frac{d}{dt} \begin{bmatrix} C_1 \\ C_2 \\ C_3 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 0 & 0 & H_{13} \\ 0 & 0 & H_{23} \\ H_{31} & H_{32} & 0 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} C_1 \\ C_2 \\ C_3 \end{bmatrix}。 \quad (9)$$

为了简化后面的讨论, 无论是否考虑交换作用, 都使用更精准的(7)式作为电子的轨道波函数。如果考虑交换作用, 原子波函数就是(6)式中的对称函数, 那么

$$\begin{cases} H_{13} = H_{31}^* = \langle 1, 1 | r_1 + r_2 | 1, 3 \rangle \epsilon(t) \times \\ \exp[-i(E_3 - E_1)t] = \sqrt{2}D_{13}\epsilon(t)\exp(-i\Delta_{13}t), \\ H_{23} = H_{32}^* = \langle 1, 2 | r_1 + r_2 | 1, 3 \rangle \epsilon(t) \times \\ \exp[-i(E_3 - E_2)t] = D_{23}\epsilon(t)\exp(-i\Delta_{23}t) \end{cases}, \quad (10)$$

式中: Δ_{13} 表示 1s 与 3p 间能级差; Δ_{23} 表示 2s 与 3p 间能级差; D 表示偶极跃迁矩阵元;* 表示共轭符号。如果忽视交换作用, 采用单电子跃迁模型, 最终的氦原子波函数是乘积形式, 表达式为

$$\Psi(r_1, r_2) = \Psi_1(r_1)\Psi_2(r_2)。 \quad (11)$$

3 结果与讨论

使用考虑和不考虑交换作用的方法, 分别计算 He 原子 1s2s 及 1s3p 激发态与 1s1s 基态的能级差, 对比结果如表 1 所示。

表 1 前后能级差的对比

Table 1 Comparison of energy level difference before and after

Item	Δ_{13} / eV	Error of $\Delta_{13} / \%$	Δ_{23} / eV	Error of $\Delta_{23} / \%$
Experimental value	23.06	—	2.51	—
Before considering	22.10	4.16	2.00	20.32
After considering	21.61	6.29	2.38	5.18

从表 1 可见, 交换作用对于波函数的求解有一定的影响, 且考虑交换作用的能级与实际情况更接近。

交换作用除了对电子的本征能级有影响外, 如(11)式和(6)式所示, 还对本征波函数有重要的影响, 进而影响到电子在不同量子态间跃迁的矩阵元, 这可通过相同的计算流程不难得出。考虑交换作用后的 H_{13} 和 H_{31} 是没有考虑交换作用的 $\sqrt{2}$ 倍, 显然这会导致 C_2 和 C_3 在考虑交换作用后变为旧模型的 $\sqrt{2}$ 倍, 布居数变为旧模型的 2 倍, 如图 2(a) 和图 2(b) 所示。

由图 2 可知, He 原子中的两个电子对 He 原子在量子态的跃迁都应该有贡献。由于单电子跃迁模型(以乘积波函数为基础的双电子跃迁模型)忽视了电子间的交换作用, He 原子的跃迁变为了 He 原子中确定的电子跃迁到确定的能级, 不存在两电子交换轨道的可能, 故跃迁的概率自然会减半。

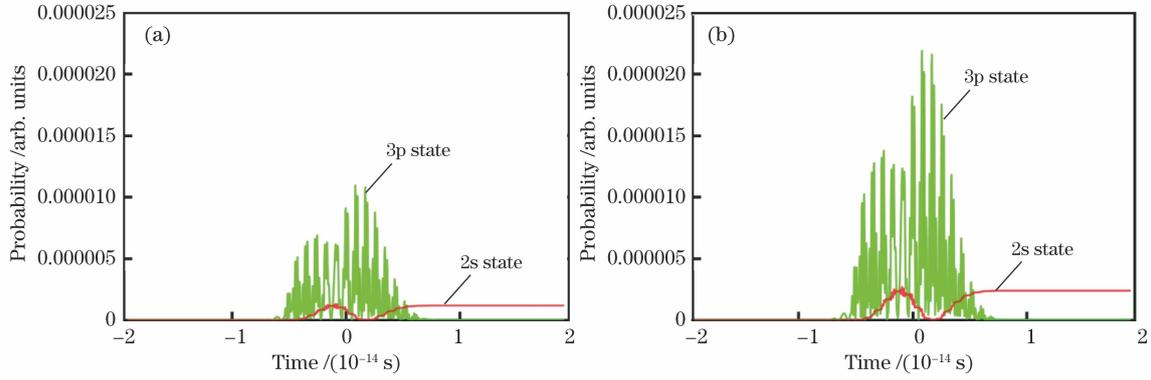


图 2 考虑交换作用前后的布居数。(a)不考虑交换作用;(b)考虑交换作用

Fig. 2 Population before and after considering exchange. (a) Without exchange effect; (b) with exchange effect

接下来讨论交换作用对偶极矩的影响。在考虑交换作用时,电偶极矩表示为

$$d(t) = \langle \Psi | r_1 + r_2 | \Psi \rangle = 2D_{11} |C_1|^2 + (D_{11} + D_{22}) |C_2|^2 + (D_{11} + D_{33}) |C_3|^2 + 2\sqrt{2} \text{Re}[D_{13} C_1^* C_3 \exp(-i\Delta_{13}t)] + 2\text{Re}[D_{23} C_2^* C_3 \exp(-i\Delta_{23}t)]. \quad (12)$$

在忽视交换作用时,由于有一个电子稳定处于 1s 轨道,假设为 2 号电子,那么电偶极矩变为

$$d(t) = \langle \Psi | r_1 + r_2 | \Psi \rangle = D_{11} (|C_1|^2 + 1) + D_{22} |C_2|^2 + D_{33} |C_3|^2 + 2\text{Re}[D_{13} C_1^* C_3 \exp(-i\Delta_{13}t)] + 2\text{Re}[D_{23} C_2^* C_3 \exp(-i\Delta_{23}t)]. \quad (13)$$

绘制的电偶极矩如图 3 所示。

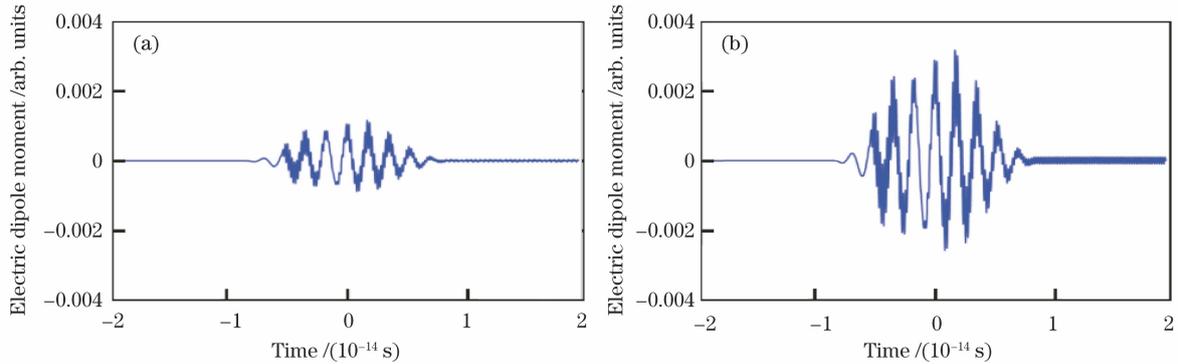


图 3 考虑交换作用前后的电偶极矩。(a)不考虑交换作用;(b)考虑交换作用

Fig. 3 Electric dipole moment before and after considering exchange interaction. (a) Without exchange effect; (b) with exchange effect

由图 3(a)和图 3(b)可以发现,考虑交换作用后,电偶极矩是旧模型的 2 倍以上,造成该现象的原因与布居数一样,即在旧的单电子跃迁模型中忽略了交换作用。He 原子的偶极矩变化只由某个特定

的电子跃迁振荡产生,而实际过程中两个电子都可能振荡,最终的电偶极矩约是二者贡献的总和。为了更清楚地体现交换作用的影响,将 (12) 式和 (13) 式的电偶极矩总结为表 2 的 5 个部分。

表 2 偶极矩的各成分对比

Table 2 Comparison of various components of dipole moment

Item	With exchange effect	Without exchange effect
Contribution of electrons in ground state (d1)	$2D_{11} C_1 ^2$	$D_{11} (C_1 ^2 + 1)$
Contribution of electrons at 2s (d2)	$(D_{11} + D_{22}) C_2 ^2$	$D_{22} C_2 ^2$
Contribution of electrons at 3p (d3)	$(D_{11} + D_{33}) C_3 ^2$	$D_{33} C_3 ^2$
Contribution of transition from ground state to 3p (d4)	$2\sqrt{2} \text{Re}[D_{13} C_1^* C_3 \exp(-i\Delta_{13}t)]$	$2\text{Re}[D_{13} C_1^* C_3 \exp(-i\Delta_{13}t)]$
Contribution of transition from 3p to 2s (d5)	$2\text{Re}[D_{23} C_2^* C_3 \exp(-i\Delta_{23}t)]$	$2\text{Re}[D_{23} C_2^* C_3 \exp(-i\Delta_{23}t)]$

如表 2 所示:考虑交换作用后,电偶极矩的 2 倍主要是由跃迁部分(d4 和 d5)贡献的,因为考虑交换作用后, C_2 和 C_3 会变为忽视交换作用的 $\sqrt{2}$ 倍;考虑交换作用后,在 2s 态与 3p 态(d2 和 d3)上会使 C_2 和 C_3 扩大的倍数大于 2,这一点虽然在电偶极矩的图中观察不明显,但在后面吸收谱的分析中有明显体现。

以上所讨论的交换作用对电子跃迁矩阵元和偶极矩阵的影响会集中地体现在 He 原子的 XUV 吸收谱中,该吸收光谱可以在实验中直接观察到。根据文献[12-13,18]提供的公式可知,He 原子的吸收截面可以利用偶极矩和电矢量的傅里叶变换进行计算,表达式为

$$\sigma(\omega) = -4\pi\alpha \text{Im} \left[\frac{\tilde{d}(\omega)}{\tilde{\epsilon}(\omega)} \right], \quad (14)$$

式中: α 表示精细结构常数; ω 表示频率; $\tilde{d}(\omega)$ 表示电偶极矩 $d(t)$ 的傅里叶变换; $\tilde{\epsilon}(\omega)$ 表示激光电场 $e(t)$ 的傅里叶变换。沿用之前的数据,运用(14)式,不难得出考虑交换作用后吸收截面的函数图像,如图 4 所示。

接着观察吸收谱的细节(图 4),可以看到 He 原子的吸收谱在给定的条件下是一个 Fano 线型,且在 21.61 eV 附近除了主吸收峰外,还有三个次吸收峰,这是由于 XUV 光与 IR 光发生耦合,即发生了

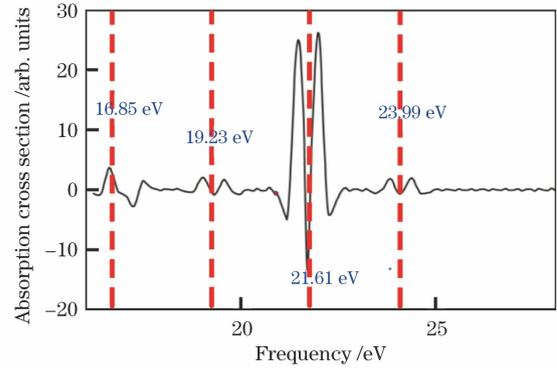
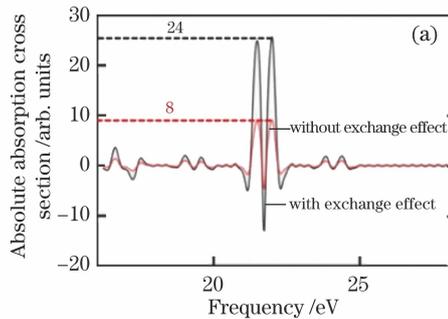


图 4 考虑自旋及交换作用后的吸收截面
Fig. 4 Absorption cross section after considering spin and exchange

能级分裂的现象,且左侧的吸收峰强于右侧,该过程可表示: Δ_{13} 分裂出新能级 $\Delta_{13} - 2\omega_L$ 、 $\Delta_{13} - \omega_L$ 和 $\Delta_{13} + \omega_L$, 能量分别为 16.85, 19.23, 23.99 eV; Δ_{12} 分裂出新能级 $\Delta_{12} + \omega_L$ 并与 Δ_{13} 简并,能量为 21.61 eV。

根据文献[12]可知 IR 光耦合能级在主吸收峰处,故主吸收峰两侧的次吸收峰不对称,强吸收峰位于 IR 光耦合能级那一侧。

接下来考虑交换作用对吸收截面的影响。如果忽略两电子间的交换作用,利用(14)式可以得到吸收截面,对比有无交换作用的吸收截面,得到图 5(a)。

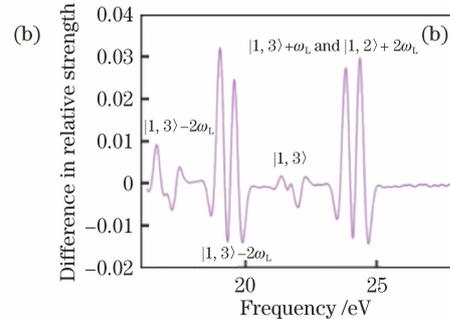


图 5 有无交换作用的吸收截面大小对比。(a) 绝对大小;(b)考虑交换作用前后的相对强度之差

Fig. 5 Comparison of absorption cross section with or without exchange interaction. (a) Absolute size; (b) difference in relative strength before and after considering exchange interaction

由(14)式可以发现,电偶极矩会对吸收谱的强度产生一定的影响。由表 2 可以发现,考虑交换作用前后,跃迁偶极矩(d4 和 d5)对吸收谱的贡献扩大了 2 倍,而 2p 与 3p 态的偶极矩(d2、d3)对吸收谱的贡献扩大了 3 倍。

为了比较细节,取吸收谱的最大值为 1,计算吸收截面的相对大小,结果如图 5(b)所示。由图 5(b)可知:考虑交换作用后,吸收谱中次级吸收峰的相对

强度弱于忽视交换作用后的吸收谱;交换作用对三个次吸收带的削弱也不完全一样,可以明显观察到交换作用对位于 19.23 eV 和 23.99 eV 的吸收峰的削弱多于次吸收带(16.85 eV),这是因为 d2 和 d3 以加强主吸收峰和次吸收带(16.85 eV)为主。

上述对于忽略交换作用的讨论都是基于之前的假设,即使用(7)式作为电子轨道波函数,然后使用乘积波函数来表示原子波函数。若真正完全忽略交

换作用,波函数的形式也会发生变化,应当使用单电子软化势模型来讨论才更彻底。

恰巧杨增强^[12]就是利用单电子软化势模型,其描述了 He 原子的 XUV 吸收谱,如图 6 所示。

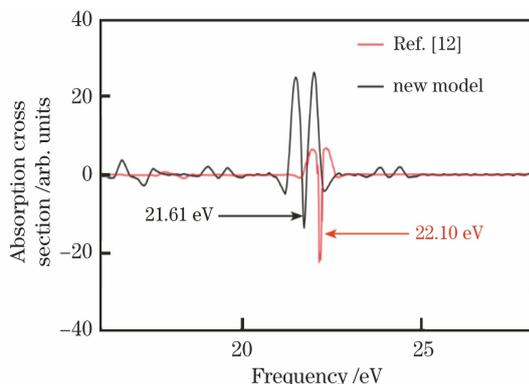


图 6 文献[12]与新模型的吸收截面对比
Fig. 6 Comparison of absorption cross section between Ref. [12] and new model

对比所设计的模型与文献[12]可以发现,与之前讨论类似,显然文献中的单电子跃迁模型会导致吸收谱绝对强度的减小,以及次吸收峰相对强度的变化。还有一点不同之处,即主吸收峰的位置不同,这是因为文献[12]的电子轨道波函数是利用单电子软化势模型求出的,其计算出的能级因忽略相互作用会相对真实情况发生一定偏差,如表 1 所示,所以利用新模型可以给出更加准确的吸收谱。从以上结果可以看出,交换作用对氦原子跃迁规律的影响很大。以下更完整地展示考虑交换作用后 He 原子在不同激光参数下的瞬态吸收谱,以便获得对该瞬态吸收谱更全面的认识。通过改变两束激光间的时间差,其他参数保持不变,利用(14)式可以得到图 7 的含时吸收谱。

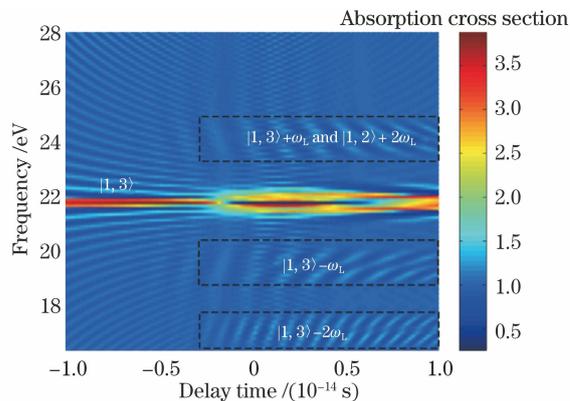


图 7 He 原子的 XUV 吸收谱色温图
Fig. 7 XUV absorption chromatographic temperature diagram of He atom

从图 7 可以看到,当延迟时间在 $-5 \sim 10$ fs 之间时,主吸收线会发生分裂、移位和加宽等现象,这主要是由于 IR 激光耦合 $|1, 2\rangle$ 和 $|1, 3\rangle$ 而产生 Rabi 振荡^[19-21]。

具体来说,当延迟时间为 $0 \sim 10$ fs 时,XUV 光先于 IR 光入射,此时谱线的宽度随着延迟时间的缩短逐渐加宽,这是由于两束激光的波包重合程度随着延迟时间从 10 fs 向 0 逐渐增大,如图 8(a)所示。同时吸收谱的主吸收峰从 Lorentz 线型(一条主吸收线)先向 Fano 线型(两条主吸收线)过渡,如图 8(b)所示。当延迟时间为 $0 \sim -5$ fs 时,虽然此时 XUV 光后于 IR 光入射,但谱线还是出现加宽的现象,这是因为 XUV 光和 IR 光的波包依然存在有效重叠,如图 8(a)所示。同时,吸收谱的线型从 Fano 线型向 Lorentz 线型过渡,如图 8(b)所示。当延迟时间为 $-5 \sim -10$ fs 时,加宽现象消失,因为波包不再重叠,如图 8(a)所示,此时吸收谱的线型恢复成 Lorentz 线型,如图 8(b)所示。

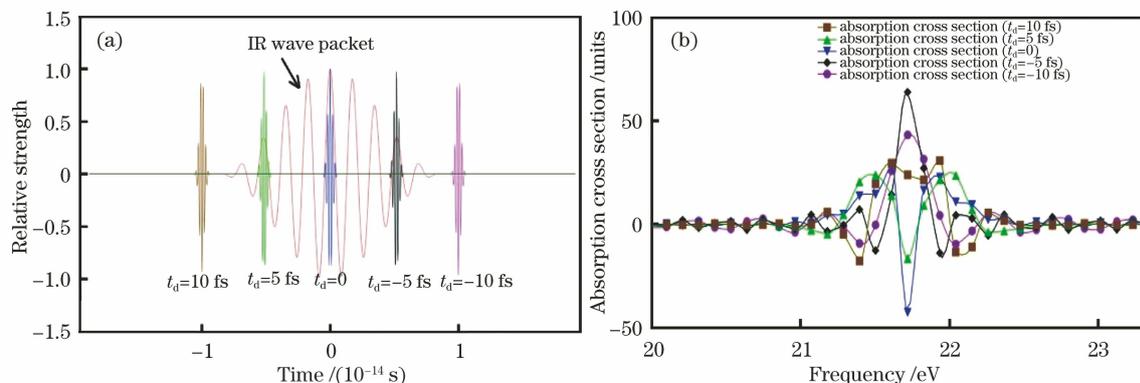


图 8 不同延迟时间下激光波包及原子吸收截面。(a)波包重叠图;(b)吸收截面图

Fig. 8 Laser wave packet and atomic absorption cross section under different delay time. (a) Wave packet overlap diagram; (b) absorption cross section diagram

如图 7(b)所示,在 21.61 eV 附近存在三个吸收边带,根据文献[12]可知,这三个边带对应于 $1s3p-2\omega_L$ 、 $1s3p-\omega_L$ 和 $1s3p+\omega_L$ (简并 $1s2s+2\omega_L$),而且边带出现的时刻 $t_d \geq -5$ fs,这正好对应于 XUV 光先于 IR 光入射的情况。根据文献[22]可知,这种边带源于量子干涉现象。为了验证这一点,改变 IR 光频率,选择 IR 光频率分别为 2.38×1.05 eV 和 2.38×0.95 eV 来绘制 He 原子 XUV 吸

收谱。根据之前的结论可以预言两幅吸收谱的 $1s3p+\omega_L$ 边带之间的能量差应为

$$\Delta E = \Delta\omega_L = 2.38 \times (1.05 - 0.95) \text{ eV} = 0.238 \text{ eV}. \quad (15)$$

如图 9 所示,虚线处表示能量差约为 0.24 eV, $\omega_L = 2.38 \times 0.95$ eV 所产生的边带相对于 $\omega_L = 2.38 \times 1.05$ eV 更靠近主吸收峰,且数值与(15)式的结论基本一致,这再一次证明了量子相干的推论。

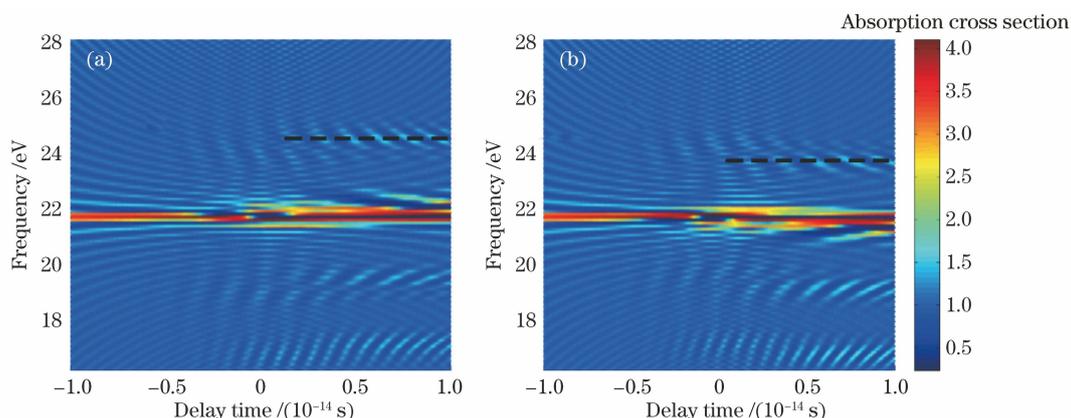


图 9 不同 IR 光的吸收谱。(a) $\omega_L = 2.38 \times 1.05$ eV 对应的吸收谱;(b) $\omega_L = 2.38 \times 0.95$ eV 对应的吸收谱

Fig. 9 Absorption spectra with different IR light; (a) Absorption spectrum corresponding to $\omega_L = 2.38 \times 1.05$ eV; (b) absorption spectrum corresponding to $\omega_L = 2.38 \times 0.95$ eV

4 结 论

本文通过 Ritz 变分法给出了考虑交换作用后的氦原子波函数,并利用该波函数分析了 He 原子中电子的动力学行为以及 He 原子的吸收谱;还对比了新旧模型,发现旧模型因为忽视交换作用在求解电子的动力学行为时存在一些问题,并最终导致求出的吸收谱强度减弱、吸收峰位置偏移以及次级吸收峰的相对强度增加等现象。研究表明,交换作用确实会对多电子原子的超快吸收谱产生重要的影响,不当被忽略,该研究结果可以为运用瞬态吸收谱探测原子内电子超快关联动力学提供一些参考。

讨论交换作用对吸收谱产生的影响只能得到自旋对吸收谱产生的部分影响,下一步将进一步引入磁相互作用,有望进一步探讨自旋对原子 XUV 吸收谱的影响,并可能得到更加复杂且接近实验的吸收谱。

参 考 文 献

[1] Wei Z Y, Zhong S Y, He X K, et al. Progresses and trends in attosecond optics [J]. Chinese Journal of Lasers, 2021, 48(5): 0501001.

魏志义, 钟诗阳, 贺新奎, 等. 阿秒光学进展及发展趋势 [J]. 中国激光, 2021, 48(5): 0501001.

- [2] Gaumnitz T, Jain A, Pertot Y, et al. Streaking of 43-attosecond soft-X-ray pulses generated by a passively CEP-stable mid-infrared driver [J]. Optics Express, 2017, 25(22): 27506-27518.
- [3] Drescher M, Hentschel M, Kienberger R, et al. Time-resolved atomic inner-shell spectroscopy [J]. Nature, 2002, 419(6909): 803-807.
- [4] Beck A R, Neumark D M, Leone S R. Probing ultrafast dynamics with attosecond transient absorption [J]. Chemical Physics Letters, 2015, 624: 119-130.
- [5] Goulielmakis E, Loh Z H, Wirth A, et al. Real-time observation of valence electron motion [J]. Nature, 2010, 466(7307): 739-743.
- [6] Zhang Y, Yang F, Liu C D, et al. Quantum path interference in attosecond transient absorption of H_2^+ [J]. Chinese Journal of Lasers, 2020, 47(8): 0801004. 张煜, 杨帆, 刘灿东, 等. H_2^+ 阿秒瞬态吸收中的量子路径干涉 [J]. 中国激光, 2020, 47(8): 0801004.
- [7] Dai C, Wang Y, Miao Z M, et al. Generation and application of high-order harmonics based on interaction between femtosecond laser and matter [J]. Laser & Optoelectronics Progress, 2021, 58(3): 0300001.

- 戴晨, 汪洋, 缪志明, 等. 基于飞秒激光与物质相互作用的高次谐波产生及应用[J]. 激光与光电子学进展, 2021, 58(3): 0300001.
- [8] Holler M, Schapper F, Gallmann L, et al. Attosecond electron wave-packet interference observed by transient absorption[J]. *Physical Review Letters*, 2011, 106(12): 123601.
- [9] Kobayashi Y, Chang K F, Zeng T, et al. Direct mapping of curve-crossing dynamics in IBr by attosecond transient absorption spectroscopy[J]. *Science*, 2019, 365(6448): 79-83.
- [10] Volkov M, Sato S A, Schlaepfer F, et al. Attosecond screening dynamics mediated by electron localization in transition metals[J]. *Nature Physics*, 2019, 15(11): 1145-1149.
- [11] Kobayashi Y, Reduzzi M, Chang K F, et al. Selectivity of electronic coherence and attosecond ionization delays in strong-field double ionization[J]. *Physical Review Letters*, 2018, 120(23): 233201.
- [12] Yang Z Q. The research of attosecond ultrafast manipulation for the XUV photoabsorption spectrum of atom[D]. Beijing: Beijing Institute of Technology, 2015: 1-39.
杨增强. 原子 XUV 光吸收谱的阿秒超快控制研究[D]. 北京: 北京理工大学, 2015: 1-39.
- [13] Dong W P. Study on attosecond transient absorption spectra by atoms[D]. Changsha: National University of Defense Technology, 2013: 1-55.
董文朴. 原子阿秒瞬时吸收谱研究[D]. 长沙: 国防科学技术大学, 2013: 1-55.
- [14] Eberly J H. Scale variation in a one-dimensional model of an atom interacting with a strong laser field[J]. *Physical Review A*, 1990, 42(9): 5750-5753.
- [15] Zhao J, Lein M. Probing Fano resonances with ultrashort pulses[J]. *New Journal of Physics*, 2012, 14(6): 065003.
- [16] Huang S Z, Ruan T N. Variational calculation of the energy levels for the low-lying excited states of helium-like atom[J]. *College Physics*, 2001, 20(3): 3-6, 36.
黄时中, 阮图南. 氦原子低激发态能量的变分计算[J]. *大学物理*, 2001, 20(3): 3-6, 36.
- [17] Hu Q. The variation calculation for the energy of helium atom's 1s3p configuration[J]. *Journal of Anhui Institute of Mechanical and Electrical Engineering*, 2003, 18(1): 44-46.
胡群. 氦原子 1s3p 组态能量的变分计算[J]. *安徽工程科技学院学报(自然科学版)*, 2003, 18(1): 44-46.
- [18] Yang Z Q, Zhang Y Q. XUV photoabsorption spectrum of helium atom based on the three-level model[J]. *Journal of Shaanxi University of Science & Technology*, 2020, 38(6): 165-170.
杨增强, 张琰卿. 基于三能级系统的 He 原子 XUV 光吸收谱[J]. *陕西科技大学学报*, 2020, 38(6): 165-170.
- [19] Chini M, Zhao B Z, Wang H, et al. Subcycle ac stark shift of helium excited states probed with isolated attosecond pulses[J]. *Physical Review Letters*, 2012, 109(7): 073601.
- [20] Wu M X, Chen S H, Gaarde M B, et al. Time-domain perspective on Autler-Townes splitting in attosecond transient absorption of laser-dressed helium atoms[J]. *Physical Review A*, 2013, 88(4): 043416.
- [21] Wang X W, Chini M, Cheng Y, et al. Subcycle laser control and quantum interferences in attosecond photoabsorption of neon[J]. *Physical Review A*, 2013, 87(6): 063413.
- [22] Chen S H, Wu M X, Gaarde M B, et al. Quantum interference in attosecond transient absorption of laser-dressed helium atoms[J]. *Physical Review A*, 2013, 87(3): 033408.