arXiv:2303.03216v1 [physics.atom-ph] 6 Mar 2023

CH_4 和 NH_3 分子的扭曲电子碰撞电离动力学

Nikita Dhankhar[1], Neha[1], 和 R. Choubisa[1] *[1] 印度拉贾斯坦邦皮拉尼皮拉尼校区比尔拉理工学院物理系，*333031*

电子涡旋束（EVB，也称为扭曲电子束）相对于其传播方向具有内禀轨道角动量（OAM）。这种内禀轨道角动量代表了一种新的自由度，为研究电子碰撞电离动力学提供了新的视角。在本文中，我们在第一玻恩近似（FBA）下，给出了共面非对称几何中 CH_4 和 NH_3 分子靶（e, 2e）过程的三重微分截面（TDCS）角分布。我们比较了不同轨道角动量数 m 下电子涡旋束的三重微分截面与平面波的三重微分截面。对于更现实的情形，我们研究了宏观靶的平均三重微分截面，以探讨扭曲电子束张角 θ_p 对三重微分截面的影响。此外，我们还给出了两个电子涡旋束相干叠加时的三重微分截面。结果表明，扭曲（e, 2e）过程能够揭示分子轨道的p型特征，而在给定运动学条件下的平面波三重微分截面中不存在这一特征。两个贝塞尔光束相干叠加的结果显示，三重微分截面对轨道角动量数m具有敏感性。

I. 引言

过去二十年来，对涡旋束（包括光学涡旋束和电子涡旋束）潜在应用的研究不断增多，关于这两类束流已有详尽的文献综述 [1–6]。电子涡旋束（EVB，也称为“扭曲电子束”或“贝塞尔光束”）是一种可在实验中实现、可自由传播的束流，具有明确的轨道角动量（OAM），其方向沿着传播轴。Bliokh 等人 [7] 推动了当前对电子涡旋束及其轨道角动量的研究。随后，Uchida 和 Tonomura [8] 以及 Verbeeck等人 [9]分别报道了在透射电子显微镜中利用螺旋相位板和全息技术生成 EVB。借助当前的实验技术，研究人员已制备出轨道角动量高达 $1000^{-}\hbar$[10, 11] 的 EVB。能量损失谱学（EELS）、晶体手性的检测 [12, 13], 、纳米颗粒的操控 [14], 、利用 EVB 固有的相位结构对生物样品成像 [15]，以及散射研究[16–18]等实例，展示了 EVB 的潜在应用。要充分理解这些应用，关键在于弄清扭曲电子束如何与物质相互作用。

电子碰撞单电离（(e, 2e)过程）是碰撞物理学中最基本的过程之一。在共面 (e, 2e) 过程中，具有确定能量的入射电子与靶相互作用，从靶中撞出一个束缚电子，从而使靶发生电离；随后出射电子的能量和角度均得到完全分辨。三重微分截面（TDCS）充分阐明了符合 (e, 2e) 过程的电离动力学。原子和分子靶上的 (e, 2e) 过程在等离子体物理学、天文学、大气物理学、辐射物理学和生物学等领域具有实际应用价值，仅举几例 [19–23]。

随着时间推移，电子碰撞电离研究已取得显著进展，并且仍在不断发展。要全面理解分子靶的碰撞动力学仍然颇具挑战。由于分子具有多中心特性和多个散射中心，对分子开展（e, 2e）研究既令人振奋，也十分困难。甲烷（CH_4）和氨（NH_3）等与生物学相关的分子尤其受到研究人员关注 [24–27]。甲烷和氨是等电子靶（即它们在价态中有 10 个电子），但分子结构不同。因此，通过本研究，我们可以探究分子结构对扭曲电子（e, 2e）过程的影响。针对这些分子靶，研究人员投入了大量工作，开发能够与平面波实验三重微分截面（TDCS）相符的理论模型。举例而言，有单库仑波（1CW）、Brauner-Briggs-Klar（BBK） [28, 29], 基于 1CW 的第一玻恩近似和第二玻恩近似[30, 31], 分子三体畸变波（M3DW） [32–34],畸变波玻恩近似（DWBA） [35], Kohn变分方法 [36], 广义 Sturmian函数 [37, 38],多中心畸变波方法（MCDW） [39], BBK及其扩展 [40], 1短程势库仑波（1CWSR）、1DWSR和BBKSR [41]。

关于原子和分子的扭曲电子碰撞（e, 2e）过程，理论研究相对较少。扭曲电子碰撞电离为探索靶结构、取向、散射动力学等提供了新的思路。Harris等人 [42] 展示了入射涡旋束使氢原子发生单电离时全微分截面的角分布。他们的结果表明，入射扭曲电子束引发电离的概率低于平面波束。同一研究小组的另一项研究通过考察氢原子激发态的全微分截面，阐明了对碰撞参数取平均后的截面与张角之间的依赖关系 [43]。Dhankhar等人研究了扭曲电子波 [17, 44, 45]的轨道角动量量子数m 和张角 θ_p 对分子靶（如 H_2 和 H_2O）及稀有气体原子单电离截面的影响。Mandal等人 [46] 开展的半相对论（e, 2e）研究，将扭曲电子（e, 2e）过程的研究拓展至相对论区间。他们研究了电荷-电荷相互作用和电流-电流相互作用下，不同扭曲电子束参数对应的三重微分截面及其干涉项，

* rchoubisa@pilani.bits-皮拉尼.ac.in

。等人 [18] 采用多中心畸变波方法，考察共面非对称几何下 H_2O 分子电离的三重微分截面。如上所述，这些研究考察了三重微分截面的角分布。这些研究表明，测量角度和能量谱有助于深入了解电子涡旋电离机制，并可能推动结构化电子束的应用。

在本研究中，我们将此前关于扭曲电子束对 H_2O 的微分截面的理论研究，扩展至 CH_4 和 NH_3 分子靶。我们对共面非对称几何构型下，扭曲电子束作用于 CH_4 和 NH_3分子的电离截面进行了理论估算。这些分子的等电子特性使本研究颇具意义。将扭曲电子束 (e, 2e)过程的三重微分截面与平面波情况下的结果进行比较，或可揭示分子结构对电离过程影响的重要信息。我们研究了这些分子价轨道的扭曲电子 (e, 2e)过程。我们基于第一玻恩近似 (FBA)，采用 1CW 模型建立数学形式。我们按照 Moccia [47, 48] 提出的方法，将分子波函数展开为以最重原子核为中心的斯莱特型函数；CH_4 中最重的原子核为碳核 (C)，NH_3中则为氮核 (N)。我们分别用平面波、斯莱特型波函数、描述散射电子的库仑波，以及 CH_4 和 NH_3, 的分子态和出射电子来描述相应状态。在本研究中，我们忽略入射/散射电子与束缚/出射电子之间的交换效应，因为入射或散射电子的能量高于束缚或出射电子的能量。我们也忽略散射电子与出射电子之间的碰撞后相互作用 (PCI)。在我们的理论模型中，我们采用冻结芯近似：对于多电子靶，只有一个靶电子参与电离过程并进入末态通道，其余电子则保持冻结。扭曲电子束沿 z 轴传播，束流张角与散射角相同 ($\theta_p = \theta_s = 6°$)。本文将展示，轨道角动量数 (m) 和张角 θ_p 的变化会显著改变三重微分截面的角分布。

我们在第II节介绍了计算三重微分截面的理论形式体系。在第III节，我们报告了对于不同扭曲电子束参数，原子外层轨道的三重微分截面角分布结果。最后，我们在第IV节总结全文。除非另有说明，全文均采用原子单位。

II. 理论

理论方法的详细内容已在参考文献 [44] 中给出；因此，这里简要概述其形式体系。在讨论 CH_4 and NH_3 分子的扭曲电子碰撞电离之前，有必要简要介绍分子结构，并说明这些靶的轨道标记惯例。根据分子轨道理论，氨有三个价能级（NH_3）。最高占据分子轨道为 $3a_1$, , 次高占据轨道为 $1e_1$。这两个轨道都具有显著的类原子 p 特征。第三个能级对应于 $2a_1$ 分子轨道，具有类原子 s 特征。同样，对于甲烷（CH_4），最高占据分子轨道为 $1t_2$，具有p型特征；次高占据轨道为 $2a_1$，具有s型特征。

A.“扭曲电子”电离截面

为研究(e, 2e)过程，必须考察三重微分截面（TDCS），其表达式为:

$$\frac{d^3\sigma}{d\Omega_e d\Omega_s dE_e} = (2\pi)^4 \frac{k_e k_s}{k_i} |T_{fi}|^2, \tag{1}$$

其中$\mathbf{k}_i$、$\mathbf{k}_s$ 和$\mathbf{k}_e$ 分别为入射电子、散射电子和出射电子的动量矢量。dE_e 表示出射电子的能量区间，$d\Omega_s$ 和$d\Omega_e$ 分别表示散射电子和出射电子的立体角区间。T 是系统通过相互作用V 在第一玻恩近似下由初态 $|\Psi_i\rangle$ 跃迁至末态 $|\Psi_f\rangle$的矩阵元;

$$T_{fi} = \langle \Psi_f | V | \Psi_i \rangle, \tag{2}$$

其中

$$V = -\frac{Z}{r_0} + \sum_{i=1}^{N} \frac{1}{|\mathbf{r}_0 - \mathbf{r}_i|}. \tag{3}$$

这里，$\mathbf{r}_0$ 和$\mathbf{r}_i$ 分别是入射电子和i^{th} 电子的位置矢量，Z是原子序数，N是靶中的电子数。分子靶的电荷分布并不对称，因此我们应考虑分子靶的取向。由于所有取向出现的概率相等，我们通过对分子的所有可能取向取平均来求得三重微分截面;

$$\frac{d^3\sigma}{d\Omega_e d\Omega_s dE_e} = \frac{1}{8\pi^2} \int \sigma^{(5)}(\alpha, \beta, \gamma) \sin\beta \, d\alpha d\beta d\gamma, \tag{4}$$

其中，$\sigma^{(5)}(\alpha,\ \beta,\ \gamma)$是给定分子轨道的五重微分截面，表示为:

$$\begin{aligned} \sigma^{(5)}(\alpha, \beta, \gamma) &= \frac{d^5\sigma}{d\omega d\Omega_e d\Omega_s dE_e} \\ &= (2\pi)^4 \frac{k_e k_s}{k_i} |T_{fi}^{pw}|^2. \end{aligned} \tag{5}$$

在方程 5 中，$d\omega = \sin\beta d\alpha d\beta d\gamma$是实验室坐标系中分子取向的立体角微元，而 α，β和 γ是分子的欧拉角。有趣的是，两者

CH_4 和 NH_3 与组成它们的氢原子相比，都含有一个重原子；因此，分子轨道可以表示为以重原子 [47, 48] 为中心的斯莱特型函数的线性组合。在冻结芯近似下，平面波的矩阵元 $T^{pw}{}_{fi}$ 为：

$$T_{fi}^{pw}(\mathbf{q}) = \frac{-2}{q^2}\langle \psi_{\mathbf{k}_e}^{-}|e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}} - 1|\Phi_j(\mathbf{r})\rangle, \tag{6}$$

其中，$\mathbf{q} = \mathbf{k}_i - \mathbf{k}_s$ 是转移到靶上的动量，$\psi_{\mathbf{k}_e}^{-}(\mathbf{r})$ 和 $\Phi_j(\mathbf{r})$ 分别表示库仑波函数和分子波函数。分子轨道波函数由以下斯莱特型函数的线性组合表示：

$$\Phi_j(\mathbf{r}) = \sum_{k=1}^{N_j} a_{jk}\phi_{n_{jk}l_{jk}m_{jk}}^{\xi_{jk}}(\mathbf{r}), \tag{7}$$

其中，Nj 是用于描述j^{th}分子轨道的斯莱特函数数目，n_{jk},l_{jk},m_{jk}是j^{th} 分子轨道的量子数。a^{jk} 是各原子组分 $\phi^{\xi}{}_{jk\,njkljkmjk}(\mathbf{r})$ 的权重，ξ_{jk}是变分参数。 $\phi^{\xi}{}_{jk\,njkljkmjk}(\mathbf{r})$ 表示为 [49]；

$$\phi_{n_{jk}l_{jk}m_{jk}}^{\xi_{jk}}(\mathbf{r}) = R_{n_{jk}}^{\xi_{jk}}(r)S_{l_{jk}m_{jk}}(\hat{\mathbf{r}}), \tag{8}$$

其中，$R^{\xi_{jk}}{}_{njk}(r)$ 是各原子轨道的径向部分，定义如下：

$$R_{n_{jk}}^{\xi_{jk}}(r) = \frac{(2\xi_{jk})^{n_{jk}+\frac{1}{2}}}{\sqrt{2n_{jk}!}} r^{n_{jk}-1}e^{-\xi_{jk}r}, \tag{9}$$

而 $S_{l_{jk}mjk}(\hat{\mathbf{r}})$ 是实球谐函数，对于 $m_{jk} \neq 0$，其表示为：

$$S_{l_{jk}m_{jk}}(\hat{\mathbf{r}}) = \sqrt{\left(\frac{m_{jk}}{2|m_{jk}|}\right)}\Bigg\{Y_{l_{jk}-|m_{jk}|}(\hat{\mathbf{r}}) + (-1)_{jk}^{m}\left(\frac{m_{jk}}{|m_{jk}|}\right)Y_{l_{jk}|m_{jk}|}(\hat{\mathbf{r}})\Bigg\}, \tag{10}$$

$$\text{and } m_{jk} = 0: \quad S_{l_{jk}0}(\hat{\mathbf{r}}) = Y_{l_{jk}0}(\hat{\mathbf{r}}). \tag{11}$$

此处$Y_{lm}(\hat{\mathbf{r}})$ 是复球谐函数。

利用旋转矩阵的正交归一性质，并对欧拉角积分，可得三重微分截面：

$$\frac{d^3\sigma}{d\Omega_e d\Omega_s dE_e} = \frac{k_e k_s}{k_i}\sum_{k=1}^{N_j}\frac{a_{jk}^2}{\hat{l}_{jk}}\sum_{\mu=-l_{jk}}^{l_{jk}}|T_{fi}^{pw}(\mathbf{q})|^2, \tag{12}$$

ˆ其中 $l_{jk} = 2l_{jk} + 1$。

我们通过考虑入射扭曲电子束沿电子束沿z轴传播，扩展了上述共面非对称几何下分子靶扭曲电子束电离的形式体系。与平面波不同，扭曲电子束的入射动量矢量$\mathbf{k}_i$在横向也具有动量分布和非均匀强度分布 [45]。以下表达式给出了入射动量矢量，

$$\mathbf{k}_i = (k_i\sin\theta_p\cos\phi_p)\hat{x} + (k_i\sin\theta_p\sin\phi_p)\hat{y} + (k_i\cos\theta_p)\hat{z}. \tag{13}$$

这里，θ_p 和 ϕ_p 分别是动量矢量的极角和方位角。改变 ϕ_p 时，$\mathbf{k}_i$ 描绘出一个圆锥面（详情见参考文献 [44]）。动量$\mathbf{k}_{iz}$ 的纵向分量固定，但横向动量分量$\mathbf{k}_{i\perp}$ 的方向取决于 ϕ_p。这意味着入射动量的方向并未明确定义。然而，横向动量的大小是固定的，表示为$|\mathbf{k}_{i\perp}| = \varkappa = \sqrt{(k_i)^2 - (k_{iz})^2}$。将$z$轴定义为沿纵向入射动量转移方向后，碰撞参数$\mathbf{b}$表示靶相对于入射束轴线的横向取向。

扭曲电子的三重微分截面通过计算散射振幅 $T_{fi}^{tw}(\mathbf{q})$ 确定，并假设出射电子相对于靶进行探测。在动量空间表示中，贝塞尔光束（入射扭曲电子束）是平面波的叠加，与 z 轴成 θ_p 角（也称为开角），并具有依赖于 ϕ 的相位（$e^{im\phi}$）。因此，入射扭曲电子波函数可表示为：

$$\Psi_{\varkappa m}^{tw}(\mathbf{r_i}) = \int_0^{2\pi}\frac{d\phi_p}{(2\pi)^2}a_{\varkappa m}(k_{i\perp})e^{i\mathbf{k}_i\cdot\mathbf{r_i}}, \tag{14}$$

其中，$\mathbf{r}_i$ 是入射电子束的位置矢量。当我们在计算分子靶的 (e, 2e) 过程三重微分截面的理论形式体系中，用扭曲波替代入射平面波（假设靶位于入射扭曲电子束的方向上，$\mathbf{b} = 0$）时，可得到以下扭曲波矩阵元表达式：

$$T_{fi}^{tw}(\varkappa, \mathbf{q}, \mathbf{b}) = (-i)^m\int_0^{2\pi}\frac{d\phi_p}{2\pi}e^{im\phi_p}T_{fi}^{pw}(\mathbf{q}). \tag{15}$$

由式（15）可见，扭曲波矩阵元T_{fi}^{tw}以平面波矩阵元$T_{pw\,fi}$[17]的形式表示。这里的主要区别在于，动量转移矢量$\mathbf{q} = \mathbf{k}_i - \mathbf{k}_s$必须使用扭曲波动量矢量$\mathbf{k}_i$计算（见式（13））。

$$q^2 = k_i^2 + k_s^2 - 2k_i k_s\cos(\theta), \tag{16}$$

其中，

$$\cos(\theta) = \cos(\theta_p)\cos(\theta_s) + \sin(\theta_p)\sin(\theta_s)\cos(\phi_p - \phi_s). \tag{17}$$

这里，ϕ_s 是散射电子动量矢量$\mathbf{k}_s$的方位角。与平面波不同，扭曲波在某一特定$\mathbf{k}_s$ 方向上的动量转移并非常数，而是取决于入射波矢$\mathbf{k}_i$的方位角。这种动量转移固有的不确定性

对于扭曲波，其方向通过对方位角 ϕ_p 在式（15）中进行积分来处理。扭曲电子与 CH_4 和 NH_3 靶的分子轨道对应的三重微分截面，可由式（1）以及由式（$T_{fi}^{tw}(\mathbf{q})$（15）得出的跃迁振幅共同计算。

B. 对碰撞参数取平均

用涡旋束电离单个分子在实验上颇具挑战。因此，在更现实的情形下，优先考虑在宏观靶上进行电离。对于这样的靶，可以通过对扭曲电子束横向平面内所有可能的碰撞参数**b**下的平面波截面取平均，来计算其截面。以平面波截面表示的平均截面（TDCS）$_{av} = d^3\sigma d\Omega_s d\Omega_e dE_e$ 可描述为（详细推导见[16, 42, 50]）：

$$(TDCS)_{av} = \frac{1}{2\pi\cos\theta_p}\int_0^{2\pi} d\phi_p \frac{d^3\sigma(\mathbf{q})}{d\Omega_s d\Omega_e dE_e}, \qquad (18)$$

其中，$d^3\sigma(\mathbf{q})\ d\Omega_s d\Omega_e dE_e$ 与平面波电子束的三重微分截面类似，取决于**q**。由方程（18）可见，扭曲电子在宏观靶上散射的截面与入射扭曲电子束的轨道角动量数m 无关。然而，（TDCS）$_{av}$ 取决于入射扭曲电子束的张角θ_p。

C. 两束贝塞尔光束的叠加

根据方程 18，我们可以看出，宏观分子靶的三重微分截面与轨道角动量数的投影 m 以及入射扭曲电子束的相位结构（$e^{im\phi}$）无关。然而，对于宏观靶，我们可以将入射扭曲电子束视为两束具有相同运动学参数但不同 m [16, 50] 的光束的叠加，从而恢复三重微分截面对轨道角动量的敏感性。以下波函数描述了叠加的扭曲电子束，

$$\Psi(\mathbf{r}) = c_1\Psi_{m_1}(\mathbf{r}) + c_2\Psi_{m_2}(\mathbf{r}), \qquad (19)$$

其中，$\Psi_m(\mathbf{r})$由方程 14 给出，c_n 是展开系数，其表达式为

$$c_n = |c_n|e^{i\alpha_n}, \quad |c_1|^2 + |c_2|^2 = 1. \qquad (20)$$

将方程 19 代入方程 18，可得到三重微分截面的以下表达式 [16, 50]

$$(TDCS)_{av} = \frac{1}{2\pi\cos\theta_p}\int_0^{2\pi} d\phi_p G(\phi_p, \Delta m, \Delta\alpha)\frac{d^3\sigma(\mathbf{q})}{d\Omega_s d\Omega_e dE_e}, \qquad (21)$$

其中 $\Delta m = m_2 - m_1$ 是轨道角动量投影之差，$\Delta\alpha = \alpha_2 - \alpha_1$ 是扭曲态的相位之差，因子 $G(\phi_p, \Delta m\ \Delta\alpha) = 1 + 2|c_1c_2|cos[(m_2 - m_1)(\phi - \pi/2) + \alpha_2 - \alpha_1]$。

III. 结果与讨论

本节中，我们给出了 CH 单电离的计算结果

4 和 NH_3 分子在扭曲电子束碰撞下的情况。如第二节所述，我们采用文献 [44] 中给出的理论模型，研究扭曲电子碰撞引起的 CH_4 和 NH_3 分子的单电离。对于不同的轨道角动量数 m，我们通过令张角 θ_p 等于散射角 θ_s，比较扭曲电子束的三重微分截面与平面波三重微分截面。所采用的运动学参数为：散射能量（E_s）= 500 eV、逸出能量（E_e）=74 eV，以及共面几何[28, 34]下的散射角（θ_s）= 6°。如第一节和第二节所述，CH_4 和 NH_3 的分子轨道具有 p 型和 s 型特征。为了研究这些分子的扭曲电子碰撞电离动力学，我们分别讨论 p 型和 s 型轨道的三重微分截面结果。

A. 靶的 p 型特征轨道的电离

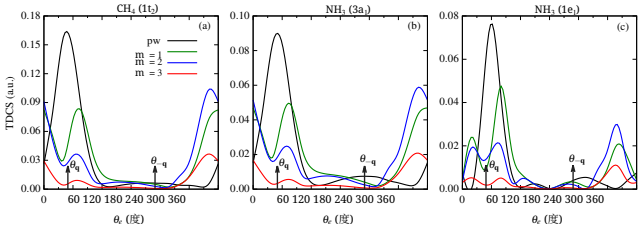


图 1. 共面非对称几何下，CH_4 和 NH_3 的 p 型特征轨道发生扭曲电子(e, 2e)过程时，三重微分截面随出射电子角 θ_e 变化的角分布。此处采用的运动学参数为 E_s = 500 eV、E_e = 74 eV、θ_s = 6° 和 $\theta_p = \theta_s$。子图 (a) 对应 CH_4分子靶的 $1t_2$ 轨道，子图 (b) 和 (c) 分别对应 NH_3 分子的 $3a_1$ 和 $1e_1$ 分子轨道。黑色、绿色、蓝色和红色曲线分别表示平面波、m = 1、2 和 3 的三重微分截面。所有子图中，m = 1、2 和 3 分别采用乘法因子 10、40 和 50。$\theta_{\mathbf{q}}$ 和 $\theta_{-\mathbf{q}}$ 分别表示动量转移和反冲动量的方向。

图 1 表示扭曲电子碰撞电离分子靶 CH_4 和 NH_3 中具有 p 型特征轨道的三重微分截面。我们给出了共面非对称几何下，三重微分截面随出射电子角变化的关系，其中 CH_4 ($1t_2$) 和 NH_3 ($3a_1$ 及 $1e_1$) 分别对应相关轨道。对于中心碰撞 $|\mathbf{b}| = 0$，我们研究了轨道角动量数m 对 $\theta_p = \theta_s$三重微分截面的角分布的影响。在图 1中，黑色、绿色、蓝色和红色曲线分别表示平面波以及对于不同分子轨道（具有 m = 1、2 和 3 的轨道角动量数）对应的三重微分截面，这些分子轨道具有 p型特征，如各框图中所述。

对于图中三重微分截面，我们分别采用 10、40 和 50 作为缩放因子1 适用于 m = 1、2 和 3，以便与平面波三重微分截面进行比较。对于图中所考察的分子轨道1，我们在

沿动量转移方向的三重微分截面角分布 $\theta_{\mathbf{q}}$ 和 $\theta_{-\mathbf{q}}$，与平面波的情况进行比较。对于扭曲电子束的 (e, 2e) 过程，其角分布不同于平面波三重微分截面的角分布。我们观察到，对于所有情况，三重微分截面的大小均随轨道角动量数m的增加而减小（关于固定 θ_p 和可变 m 时幅值减小的解释，见 [44]）。对于 CH_4 和 NH_3, 最外层的分子轨道，我们观察到角分布在二体区和前向区出现峰值，而在动量转移方向附近出现极小值（见图1 （a）和（b）中的蓝色、绿色和红色曲线）。然而，二体区的峰值偏离了动量转移方向（见图1（a）和（b）中 $\theta_{\mathbf{q}}$附近的蓝色、绿色和红色曲线）。

CH_4 和 NH_3 分子的 p 型轨道对应的扭曲电子三重微分截面角分布，在二体区呈现双峰结构（或峰分裂）。这种双峰结构是 p 型轨道的特征（见图 1 中动量转移方向 $\theta_{\mathbf{q}}$附近的绿色、蓝色和红色曲线）。如 [28, 45], 所述，二元峰的分裂是 p 型轨道的特征，并且取决于运动学条件。平面波 (e, 2e) 过程的三重微分截面中二元峰的这种分裂，可由 Bethe-Ridge 条件解释。根据 Bethe-Ridge [51], , 当反冲动量 $q_r = q - k_e$最小时，二元峰会分裂。使 q_r 达到最小值的 θ_e 位置处，截面趋于零，因而在该 θ_e处出现峰分裂。对于这些 p 型轨道，在当前运动学条件下的平面波 (e, 2e) 过程中，我们只在三重微分截面的角分布中得到二元峰和反冲峰结构。然而，在当前运动学条件下，我们观察到扭曲电子碰撞电离的二元峰发生分裂。扭曲电子 (e, 2e) 过程中的二元峰分裂，与 [45]中观察到的氖 (2p) 和氩 (3p) 的情况相似。不过，在 [45], 中，只有当开口角大于 θ_s 时才观察到分裂，而这里的开口角为 $\theta_p = \theta_s$。在本研究中，我们观察到 $1t_2$ 和 $3a_1$ （CH_4 和 NH_3的最外层轨道）在动量转移方向附近发生分裂。不过，分裂分布在前向附近（即图 1(a) 和 (b) 中的峰位于 $\theta_e = 0°$ 和 360°附近）。我们在 1e 的二体区观察到显著的峰分裂

$_1$轨道（见图 1(c)）。

B. 靶的 s 型特征轨道的电离

在本小节中，我们讨论使用 s 型特征轨道时，扭曲电子碰撞电离分子靶 CH_4 和 NH_3 的三重微分截面计算结果。我们给出了 $CH_4(2a_1)$ 和 NH_3 $(2a_1)$ 在共面非对称几何中，三重微分截面随出射电子角变化的情况。这里同样保持 $\theta_p = \theta_s$，并研究不同m下三重微分截面的角分布。

三重微分截面的数值小于平面波三重微分截面。对于图2 中m = 1 分别为 2 和 3 时的三重微分截面，我们分别采用缩放因子 5、15 和 30，以便将各自的三重微分截面与平面波三重微分截面进行比较。这里也可以看到，

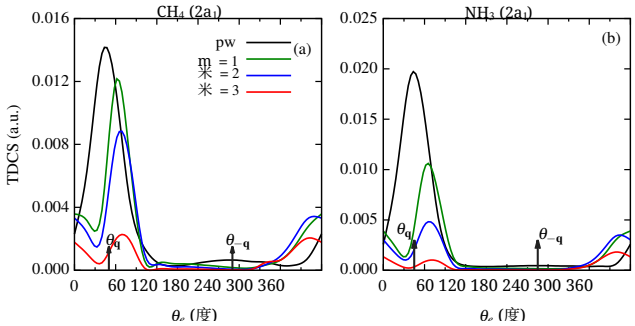


图 2。与图1相同，但此处的角分布对应于 s型特征的 CH_4 和 NH_3 在共面非对称几何构型中的轨道。

平面波三重微分截面的角分布在动量转移方 $\theta_{\mathbf{q}}$ 和 $\theta_{-\mathbf{q}}$向上呈现二元峰和反冲峰结构。对于扭曲电子碰撞电离，我们观察到二元峰是主峰，其峰位置偏离动量转移方向；所有m 均如此（见图 $\theta_e = \theta_{\mathbf{q}}$ 附近的绿色、蓝色和红色曲线2）。与p型轨道（见图1）的情况相同，我们还观察到前向的峰（见图° 或 360° 区域附近的绿色、蓝色和红色曲线2）。然而，在这种情况下，这些峰并不像外层轨道的峰那样明显（可比较图1和2 中 θ_e = 360° 附近的绿色、蓝色和红色曲线）。

上述讨论清楚地表明，在扭曲电子碰撞电离过程中，束流的内禀轨道角动量会发生转移，并且三重微分截面的角分布对轨道角动量数m 表现出显著依赖性，适用于 $\theta_p = \theta_s$。

C. 宏观分子靶的（三重微分截面）$_{av}$ 角分布

在图 3 和图 4 中，我们给出了对碰撞参数 b 取平均后的三重微分截面角分布，即（TDCS）$_{av}$，其对应于 CH_4 和 NH_3 分子靶。我们分别讨论（TDCS）$_{av}$ 随 p 型和 s 型轨道的出射电子角 θ_e 变化的结果。（TDCS）$_{av}$ 取决于入射扭曲电子束的张角 θ_p。图 3 和图 4 表示运动学条件为 E_s= 500 eV、E_e = 74 eV 和 θ_s = 6°时的（TDCS）$_{av}$。对于两个分子靶，我们给出了张角为 1°、6°、15°和 20°时（TDCS）$_{av}$ 的结果。

1. 靶的 *p* 型轨道的三重微分截面$_{av}$

在本小节中，我们给出了来自 CH_4 和 NH_3 分子靶中具有 p 型特征轨道的三重微分截面$_{av}$结果，即 CH_4 的 $1t_2$ 以及 NH_3 的 $3a_1$ 和 $1e_1$。

从图3可以看出，对于最小张角，例如 θ_p = 1°，所有情况下的三重微分截面（TDCS）$_{av}$ 角分布都与平面波的角分布相似（见图3中的橙色曲线）。当 $\theta_p = \theta_s$ = 6°时，二元区的峰

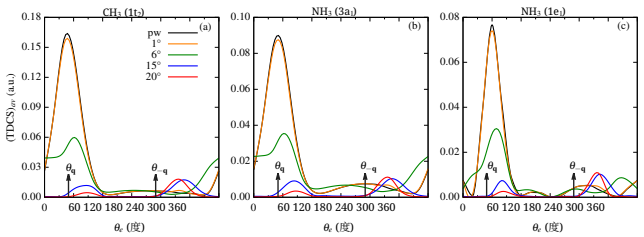


图3. （三重微分截面）av 作为出射电子角的函数绘制，θ_e 分别对应平面波（实线）和具有不同开口角的扭曲电子束，如各子图框中所示。运动学条件与图1相同。黑色、橙色、绿色、蓝色和红色曲线分别表示平面波以及°、6°、15°和20°情况下的三重微分截面。

对于所有情况，峰均从动量转移方向偏移。然而，对于最外层轨道（CH_2 中的$1t_4$ 和NH_1 中的$3a_3$），我们观察到二元区和后向区均出现峰（见图3 (a)和(b)中约 $\theta_e = \theta_q$ 和 $\theta_e = 180°$处的绿色曲线）。对于NH_1 分子的1e轨道$_3$，我们观察到二元峰从动量转移方向偏移，并且在反冲动量方向附近出现一个小峰（见图3 (c)中箭头附近的绿色曲线）。当进一步增大张角至15°和20°时，角分布呈现双峰结构，峰出现在垂直方向（见图3中约 $\theta_e = 90°$和270°处的蓝色和红色曲线）。三重微分截面（TDCS）av 的大小也随张角增大而减小。

2. 来自靶的s型特征轨道的三重微分截面av

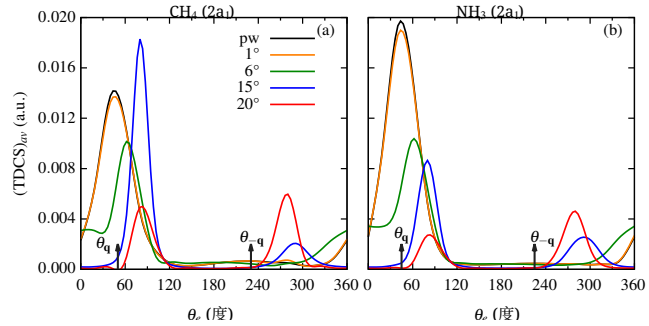


图4. （三重微分截面）av 作为出射电子角的函数绘制，θ_e 分别对应平面波（实线）和具有不同开口角及分子轨道的扭曲电子束，如各子图框中所示。运动学条件与图2中所用条件相同。

在本小节中，我们展示了av来自以下轨道的s型特征的 CH_4 和 NH_3 分子靶的三重微分截面，即$2a_1$ 轨道（CH_4）和 $2a_1$ 轨道（NH_3）。与图3类似，对于 $CH_4$$s$型轨道$_4$ 以及 NH_3 的 s 型轨道，最小张角下的三重微分截面角分布与平面波角分布相似（见图av 4 中的橙色曲线）。当张角与散射角相同（即）时，角分布 $\theta_p = \theta_s = 6°$，呈现一个占主导地位的二体区内的单峰结构，峰值偏离动量转移方向（见图4中的绿色曲线）。对于s型轨道，在较大的张角下可观察到一些有趣的特征。对于 CH 分子的 $2a_1$ 轨道$_4$，张角为 15° 时，三重微分截面的幅值高于平面波结果。在我们此前关于扭曲电子碰撞电离水分子的研究中，也观察到了类似现象 [44]。然而，在 [44], 中，我们观察到峰值幅度更高

对于 $\theta_p = \theta_s$ 情形以及仅考虑p型轨道。对于 NH_1 分子的轨道，$(TDCS)_3$ 的大小av 小于平面波三重微分截面。然而，与p型轨道不同，此处对于 $\theta_p = 15°$，显著峰出现在垂直方向（比较图3和4中的蓝色曲线）。进一步增大张角后，$(TDCS)av$的大小减小，峰值向垂直方向移动（见图4中的红色曲线）。

从小节IIIC 1 和IIIC 2可以得出结论，$(TDCS)av$ 的角分布取决于张角 θ_p。

D. 贝塞尔光束相干叠加产生的三重微分截面

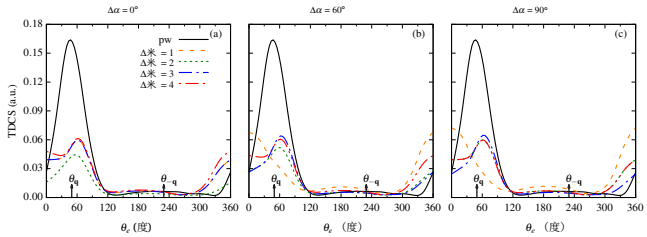


图 5. 三重微分截面随出射电子角的变化 θ_e，对应于扭曲电子 (e, 2e)过程，其中靶为 CH_2 分子的 1t 轨道$_4$。结果对应于两个具有不同轨道角动量投影和相位的贝塞尔光束的相干叠加（如各子图所示）。运动学条件与图 1相同。实线、虚线、点线、点划线和双点划线分别对应平面波、 Δm = 1、2、3 和 4。

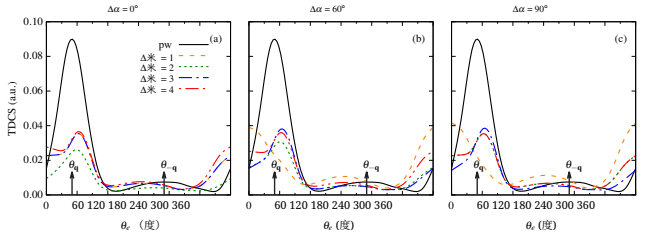


图 6. 与图 5相同，$_1$ 但结果对应于 NH_3分子的 3a 轨道。

在上一节中，我们讨论了宏观分子靶中的扭曲电子电离。对于此类靶，平均三重微分截面与轨道角动量投影m无关。然而，将入射电子束视为相干

叠加态，由两个具有不同m值的扭曲态组成，可以恢复并研究轨道角动量敏感性。这种叠加贝塞尔光束的优势在于，它有助于研究在现实情形下使用扭曲电子束时，轨道角动量投影 θ_p以及轨道角动量投影 Δm 和光束相位差 $\Delta\alpha$对（e, 2e）过程的影响。在图5-9中，我们展示了两个相干贝塞尔光束对 CH_4 和 NH_3 分子靶进行扭曲电子碰撞电离的计算结果。我们给出了不同 Δm （1、2、3 和 4）以及 $\Delta\alpha$ （0°、60° 和 90°）下的结果，运动学条件与图1 和2中所采用的相同。与前几节一样，我们讨论p型和s型轨道的角分布。

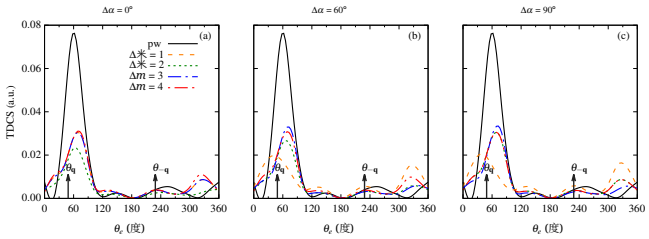


图7. 与图5相同，但结果对应于 NH 的 $1e_1$ 分子轨道$_3$。

图5–7分别展示了由两个贝塞尔光束相干叠加产生的三重微分截面，涉及具有 p 型特征的分子轨道，即 $1t_2$ (CH_4)、$3a_1$ (NH_3) 和 $1e_1$ (NH_3)。当 $\Delta\alpha = 0°$时，也就是说，当两个入射扭曲电子束同相时，我们观察到二元区域和反冲区域均出现峰值；对于这三个 p 轨道占主导的轨道，峰位置相对于动量转移方向发生偏移（见图5–7(a)）。此外，所有 Δm 的三重微分截面均小于平面波的幅值，其中 Δm =2 的幅值最小。随着贝塞尔光束之间的相位从 0° 增至 60°， Δm = 2、3 和 4 的角分布与 $\Delta\alpha$= 0° 时的角分布几乎相同，仅幅值略有增加（见图5–7中的点线、点划线和双点划线）。然而，对于 CH_4 的外层轨道（$1t_2$）、NH_3 的外层轨道（$3a_1$）以及 Δm= 1，角分布在前向和后向区域呈现峰值（见图5和图6中约在 θ_e= 0°（360°）和180°处的虚线）。对于 Δm = 1，我们观察到二元区域和反冲区域出现峰值，且三重微分截面的幅值最低。进一步将入射束之间的相位增加至 90° 后，我们发现角分布结构与 Δm = 60° 时相同，但所有轨道角动量投影的幅值均略有增加（见子图5–7(b)和(c)中的虚线）。

图8-9 表示由两个贝塞尔光束相干叠加产生的三重微分截面，这些光束对应于具有s 型特征的分子轨道，即 $2a_1$ (CH_4) 和 $2a_1$ (NH_3)。对于 CH_1 分子的 2a 轨道$_4$ ，我们观察到二元和反冲峰结构的三重微分截面大小相同，分别对应Δm = 2、3 和 4 时，入射扭曲电子束在不同相位下的情况，如图8所示。对于这些Δm值，随着入射扭曲电子束之间的相位增大，峰位置向垂直方向移动

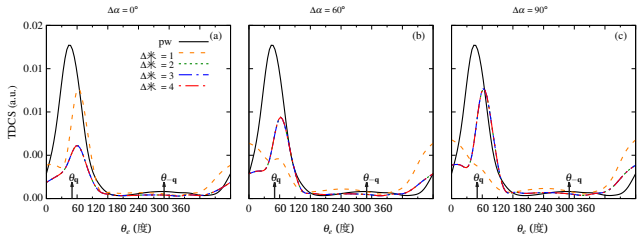


图 8. 与图 5相同，但结果对应于 CH_1 分子的 2a 轨道$_4$。

（见图8 （b）和（c）中的点线、点划线和双点划线）。对于入射扭曲电子束同相入射的情况，与其他Δm = 1 值相比， Δm对应的三重微分截面大小最高。随着入射电子束之间的相位进一步增大，二元峰结构消失。我们观察到前向和 $\Delta\alpha$方向上出现峰（见图8中不同 $\Delta\alpha$值对应的虚线）。

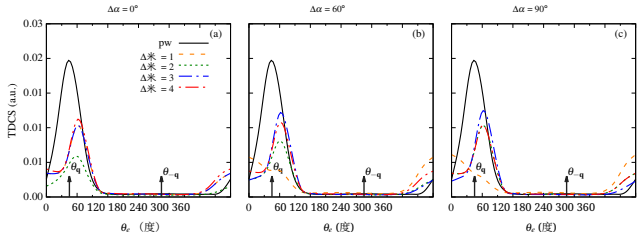


图 9. 与图 5相同，但结果对应于 NH_1 分子的 2a 轨道$_3$。

我们对 NH_1 分子的 2a 轨道$_3$在叠加贝塞尔光束情况下的计算结果，与 p 型轨道的结果非常相似（对比图 5 和9）。当 $\Delta\alpha$ = 0° 时，对于所考虑的 Δm，三重微分截面的角分布保持了平面波的二元峰结构，其中 Δm = 2 的幅值最低。进一步增大入射光束之间的相位后， Δm = 2、3 和 4 的角分布仍保持二元峰结构，但峰值偏离动量转移方向，且三重微分截面的幅值增强（见图 9中的点线、点划线和双点划线）。然而，对于 Δm = 1，随着相位角增加，三重微分截面的角分布中的二元峰结构消失，并且在前向和后向方向上观察到峰值（见图 9 中约 θ_e = 0°（360°）和 180° 处的虚线）。

IV. 结论

我们介绍了扭曲电子束作用于 CH_4 和 NH_3 分子靶的 (e, 2e)过程三重微分截面（TDCS）的理论研究。我们在第一玻恩近似下，研究了共面非对称几何中 TDCS 的角分布，其中

扭曲电子束。我们研究了轨道角动量数 m 对张角（与散射角相同，$\theta_p = \theta_s$）下 TDCS 角分布的影响。在本文中，我们将此前针对水分子 [44]的扭曲电子碰撞电离模型扩展到了 CH_4 和 NH_3 分子靶。我们研究了 CHp型和 s型分子轨道的角分布，其中 CH_4 和 NH_3分别对应相应分子。在当前几何构型下，对于平面波，TDCS 的角分布（包括 p型和 s型）在 $\theta_{\mathbf{q}}$（二元峰）和 $\theta_{-\mathbf{q}}$（反冲峰）附近达到峰值。然而，对于所研究的分子轨道，TDCS 的角分布明显偏离平面波 TDCS 的角分布。对于 NH_1 的 $1e_3$ 轨道，扭曲电子 TDCS 恢复了平面波 TDCS 角分布中不存在的特征性双峰结构。对于 s型轨道，其角分布偏离了动量转移方向。

对于宏观分子靶，我们讨论了（TDCS）$_{av}$（对碰撞参数**b**取平均）随扭曲电子束张角 θ_p 变化的情况。结果表明，（TDCS）$_{av}$ 的角分布显著依赖于扭曲电子束的张角（θ_p）。当张角较小（θ_p = 1°）时，（TDCS）$_{av}$ 与平面波三重微分截面相似。对于张角大于散射角，即 15° 和 20° 时，角分布中的峰会移向垂直方向。我们还讨论了两个 贝塞尔光束相干叠加时的角分布。叠加贝塞尔光束的角分布显示，三重微分截面依赖于轨道角动量投影m。

我们目前对 CH_4 和 NH_3 分子的研究基于我们此前对 H_2O 的研究。在早期研究中[44], , 我们重点考察了水分子不同分子轨道的三重微分截面角分布，这些轨道主要由p型轨道构成。对于入射平面波，三重微分截面的角分布在p型轨道中呈现峰分裂，而扭曲电子束的角分布则没有出现峰分裂。在本文中，我们研究了这里的s 型和 p型轨道的截面。如III所示，扭曲电子束的角分布表现出与我们早期研究显著不同的结果。例如，对于扭曲电子情形，p型轨道的显著峰发生了分裂，这与H_2O 三重微分截面不同（在扭曲电子情形下，对于 $\theta_p = \theta_s$ 情形，我们没有观察到峰分裂）；此外，当张角不等于 $\theta_p = \theta_s$时，三重微分截面的角分布也出现了显著偏离，等等。结果表明，与平面波束相比，扭曲电子束是成像电子云和研究分子结构的更好工具。

[1] J. P. Torres 和 L. Torner，《扭曲光子：具有轨道角动量的光的应用》（John Wiley & Sons，2011年）。[2] G. Molina-Terriza、J. P. Torres 和 L. Torner，《Nat. Phys.》3，305（2007）。[3] K. Bliokh、I. Ivanov、G. Guzzinati、L. Clark、R. Van Boxem、A. Béché、R. Juchtmans、M. Alonso、P. Schattschneider、F. Nori 和 J. Verbeeck，《Phys. Rep.》690，1（2017），自由电子涡旋态的理论与应用。[4] S. M. Lloyd、M. Babiker、G. Thirunavukkarasu 和 J. Yuan，《Rev. Mod. Phys.》89，035004（2017）。[5] H. Larocque、I. Kaminer、V. Grillo、G. Leuchs、M. J. Padgett、R. W. Boyd、M. Segev 和 E. Karimi，《Contemp. Phys.》59，126（2018），https://doi.org/10.1080/00107514.2017.1418046。[6] I. P. Ivanov，《Prog. Part. Nucl. Phys.》，103987（2022）。[7] K. Y. Bliokh、Y. P. Bliokh、S. Savel'ev 和 F. Nori，《Phys. Rev. Lett.》99，190404（2007）。[8] M. Uchida 和 A. Tonomura，《Nature》464，737（2010）。[9] J. Verbeeck、H. Tian 和 P. Schattschneider，《Nature》467，301（2010）。[10] E. Mafakheri、A. H. Tavabi、P.-H. Lu、R. Balboni、F. Venturi、C. Menozzi、G. C. Gazzadi、S. Frabboni、A. Sit、R. E. Dunin-Borkowski、E. Karimi 和 V. Grillo，《Appl. Phys. Lett.》110，093113 2017（）。[11] A. H. Tavabi、P. Rosi、A. Roncaglia、E. Rotunno、M. Beleggia、P.-H. Lu、L. Belsito、G. Pozzi、S. Frabboni、P. Tiemeijer、R. E. Dunin-Borkowski 和 V. Grillo，《Applied Physics Letters》121，073506 2022（）。[12] R. Juchtmans、A. Béché、A. Abakumov、M. Batuk 和 J. Verbeeck，《Phys. Rev. B》91，094112（2015）。[13] R. Juchtmans 和 J. Verbeeck，《Phys. Rev. A》93，023811（2016）。[14] G. Thirunavukkarasu 和 G Thirunavukkarasu，J Yuan 和 M Babiker（2012）。

[15] A. Jesacher、S. Fürhapter、S. Bernet 和 M. Ritsch-Marte，《物理评论快报》94，233902（2005）。[16] V. Serbo、I. P. Ivanov、S. Fritzsche、D. Seipt 和 A. Surzhykov，《物理评论A》92，012705（2015）。[17] N. Dhankhar 和 R. Choubisa，《物理学杂志B：原子、分子与光学物理》54，015203（2020）。[18] M. Gong、Y. Cheng、S. B. Zhang 和 X. Chen，《物理评论A》106，012818（2022）。[19] K. Bartschat 和 M. J. Kushner，《美国国家科学院院刊》113，7026（2016）。[20] W. B. Dunn，载于《系统生物学方法》，《酶学方法》第500卷，由 D. Jameson、M. Verma 和 H. V. Westerhoff 编（学术出版社，2011年），第15–35页。[21] Z. Girazian、P. Mahaffy、R. J. Lillis、M. Benna、M. Elrod、C. M. Fowler 和 D. L. Mitchell，《地球物理研究快报》44，11,248（2017）。[22] Kyniene、Ausra、Kucas、Sigitas、Masys、Sarunas 和 Jonauskas、Valdas，《天文学与天体物理学》624，A14（2019）。[23] C. Caleman、C. Ortiz、E. Marklund、F. Bultmark、M. Gabrysch、F. G. Parak、J. Hajdu、M. Klintenberg 和 N. Tîmneanu，《欧洲物理快报》85，18005（2009）。[24] M. Yavuz、N. Okumus、Z. N. Ozer、M. Ulu、M. Dogan、M. Sahlaoui、H. Benmansour 和 M. Bouamoud，《物理学杂志：会议系列》488，052031（2014）。[25] M. Yavuz、Z. N. Ozer、M. Ulu、C. Champion 和 M. Dogan，《化学物理学杂志》144，164305（2016），https://doi.org/10.1063/1.4947591。[26] C. A. Tachino、J. M. Monti、O. A. Fojón、C. Champion 和 R. D. Rivarola，《物理学杂志：会议系列》583，012020（2015）。[27] I. Tóth、L. Nagy 和 R. I. Campeanu，《欧洲物理学杂志D》70，170（2016）。

[28] A. Lahmam-Bennani、A. Naja、E. M. S. Casagrande、N. Okumus、C. D. Cappello、I. Charpentier 和 S. Houamer，《物理学杂志B：原子、分子与光学物理》42，165201（2009）。[29] R. E. Mir、E. M. S. Casagrande、A. Naja、C. D. Cappello、S. Houamer 和 F. E. Omar，《物理学杂志B：原子、分子与光学物理》48，175202（2015）。[30] Mouawad、Lena、Bitar、Ziad El、Osman、Ahmad、Khalil、Mohamad、Hervieux、Paul Antoine 和 Cappello、Claude Dal，《欧洲物理学杂志D网络会议论文集》170，01012（2018）。[31] A. Bouchikhi、M. Sahlaoui、B. Lasri、A. Sekkal 和 M. Bouamoud，《物理学杂志B：原子、分子与光学物理》52，015201（2018）。[32] K. L. Nixon、A. J. Murray、H. Chaluvadi、C. Ning 和 D. H. Madison，《化学物理学杂志》134，174304（2011），https://doi.org/10.1063/1.3581812。[33] E. Ali、C. Granados、A. Sakaamini、M. Harvey、L. U. Ancarani、A. J. Murray、M. Dogan、C. Ning、J. Colgan 和 D. Madison，《化学物理学杂志》150，194302（2019），https://doi.org/10.1063/1.5097670。[34] K. L. Nixon、A. J. Murray、H. Chaluvadi、C. Ning、J. Colgan 和 D. H. Madison，《化学物理学杂志》138，174304（2013）。[35] I. Tóth 和 L. Nagy，《物理学杂志B：原子、分子与光学物理》43，135204（2010）。[36] C.-Y. Lin、C. W. McCurdy 和 T. N. Rescigno，《物理评论A》89，052718（2014）。[37] C. M. G. Castro，《广义Sturmian基函数在分子系统中的应用》，博士论文，洛林大学（2016）。[38] C. M. Granados-Castro 和 L. U. Ancarani，《欧洲物理学杂志D》71，65（2017）。[39] M. Gong、X. Li、S. B. Zhang、L. Liu、Y. Wu、J. Wang、Y. Qu 和 X. Chen，《物理评论A》96，042703（2017）。[40] S. Houamer、M. Chinoune 和 C. D. Cappello，《欧洲物理学杂志D》71，17（2017）。[41] R. E. Mir、K. Kaja、A. Naja、E. M. S. Casagrande、S. Houamer 和 C. D. Cappello，《物理学杂志B：原子、分子与光学物理》54，015201（2020）。[42] A. L. Harris、A. Plumadore 和 Z. Smozhanyk，《物理学杂志B：原子、分子与光学物理》52，094001（2019）。[43] A. Plumadore 和 A. L. Harris，《物理学杂志B：原子、分子与光学物理》53，205205（2020）。[44] N. Dhankhar 和 R. Choubisa，《物理评论A》105，062801（2022）。[45] N. Dhankhar、S. Banerjee 和 R. Choubisa，《物理学杂志B：原子、分子与光学物理》55，165202（2022）。[46] A. Mandal、N. Dhankhar、D. Sébilleau 和 R. Choubisa，《物理评论A》104，052818（2021）。[47] R. Moccia，《化学物理学杂志》40，2164（1964），https://doi.org/10.1063/1.1725489。[48] R. Moccia，《化学物理学杂志》40，2176（1964），https://doi.org/10.1063/1.1725490。[49] C. Champion、J. Hanssen 和 P. A. Hervieux，《物理评论A》72，059906（2005）。[50] D. V. Karlovets、G. L. Kotkin、V. G. Serbo 和 A. Surzhykov，《物理评论A》95，032703（2017）。[51] Y. Khajuria 和 D. N. Tripathi，《物理评论A》59，1197（1999）。