arXiv:2602.18123v1 [physics.atom-ph] 20 Feb 2026

采用超短电子脉冲的时间分辨电子动量谱学：局域探测与真空色散的影响

Pieter Hessel Harkema 和 Lars Bojer Madsen
Department of Physics and Astronomy, Aarhus University, Ny Munkegade 120, DK-8000 Aarhus C, Denmark

此前的理论研究表明，原则上可以利用超短电子脉冲，通过电子动量谱学（EMS）捕捉阿秒电子动力学。本文进一步对散射概率进行解析考量，研究入射电子波包横向尺寸有限所产生的影响。我们发现，在波包散射中，靶动量分布仅在有限的空间区域内受到探测。这一点体现在散射概率中出现的空间滤波加博变换，它取代了传统平面波处理中出现的完整动量波函数。此外，通过相对于波包焦点在空间上移动靶，我们展示了真空色散的影响，即波包在传播过程中的空间展宽。我们的研究结果对于正确解读未来的阿秒电子动量谱学结果具有重要意义；所考察的效应反映了波包散射的基本特性。因此，电子动量谱学装置可构成一个有用的框架，用于理解有限波包的散射。

一、引言

电子显微术的最新进展，正借助超短电子脉冲推动原子时间尺度上的电子动力学研究。光学调制是实现这一目标最有希望的方法。在这种方法中，孤立电子脉冲的能量分布通过与光场耦合而受到调制 [1–6]。调制后，由于不同能量分量的电子以不同速度运动，电子密度会在传播过程中重新塑形。研究表明，这种重塑能够产生脉冲列，其中的脉冲短至数百阿秒 [7–12]。光学调制电子脉冲已应用于阿秒衍射[9, 13], 、光学近场成像 [14] 以及外差成像 [15]。理论研究表明，即使靶静止，调制也会影响散射概率 [16]。目前，关于超短电子脉冲散射的理论研究仍然很少，即便针对孤立脉冲也是如此。任何阿秒电子脉冲都必然具有宽广的动量分布。因此，描述它们与靶的相互作用，必须超越传统的渐近平面波方法。最直接的做法是采用波包[17–21]。波包的正确形状仍在积极研究中，因为它会影响散射概率 [22]。

本文考虑利用超短电子脉冲开展电子动量谱。电子动量谱依赖于在电子碰撞电离中同时测量两个散射电子，从而成像束缚靶电子的动量密度 [23, 24]。时间分辨电子动量谱实验已在皮秒尺度上实现 [25, 26]。然而，理论工作表明，使用阿秒波包的电子动量谱实验原则上可用于探测原子时间尺度上的含时结构 [27, 28]。在文献 [27] 中，高斯电子波包在氢原子态随时间振荡的相干叠加上的散射，是在第一玻恩近似和平面波冲量近似下加以考虑的。

我们在先前结果 [27] 的基础上进一步拓展，对散射概率的解析表达式考虑了更多精确近似。我们的分析表明，横向范围有限的波包仅在有限区域内探测靶动量分布。在该形式体系中，这一特征体现为加博变换的出现：在波包空间形状保持恒定的假设下，该变换在散射概率中引入空间滤波。因此，通常平面波处理电子动量谱时所出现的动量波函数，至少在波包并非空间急剧聚焦的情形下，被加博变换所取代。正如我们将讨论的，加博变换可用于阐明电子动量谱散射概率中的特征。此外，我们考虑真空色散对散射概率的影响。由于电子具有质量，不同动量分量在真空中以不同速度传播，从而使波包在传播过程中发生空间展宽。我们通过将靶置于波包焦点之外来说明真空色散的效应。我们的结果呈现了有限尺寸波包散射的若干重要方面，这些方面对于正确解释电子动量谱散射概率至关重要。真空色散效应对于具有宽动量分布的电子波包是根本性的，因而也可能对采用超短脉冲的其他散射构型具有意义。

本文结构如下：第二节概述波包电子动量谱理论，第三节给出结果，第四节总结全文。全文均采用原子单位。

II. 理论

我们考虑图 1 所示的氢原子 (e,2e)电子碰撞电离。为简化起见，假设原子核静止并位于原点。原子核与电子之间巨大的质量差使这一假设合理。在所考虑的 10 keV 入射动能下，我们同时采用一阶玻恩近似和平面波冲量近似（PWIA）[23, 24]。在 PWIA 中，入射电子仅与一个束缚电子相互作用，并忽略连续态电子与原子核之间的相互作用。这意味着散射势为 $V(\boldsymbol{r}_1,\ \boldsymbol{r}_2) = 1/|\boldsymbol{r}_1 - \boldsymbol{r}_2|$，其中 $\boldsymbol{r}_1$ 和 $\boldsymbol{r}_2$ 表示电子相对于原点的位置。入射态由一个相干波包描述，同时包含入射电子和束缚电子。根据 PWIA，入射态可表示为

$$\Psi_{\rm in}(\boldsymbol{r}_1,\boldsymbol{r}_2) = \int d^3\boldsymbol{k}_i\ a_e(\boldsymbol{k}_i)\frac{e^{i\boldsymbol{k}_i\cdot(\boldsymbol{r}_1-\boldsymbol{b})}}{(2\pi)^{3/2}}\ \otimes\ \sum_n c_n\psi_n(\boldsymbol{r}_2), \tag{1}$$

其中 a_e 是动量为 $\boldsymbol{k}_i$ 的入射电子的动量振幅，c_n 是靶波函数 ψ_n 的振幅，n 定义一组原子量子数。矢量 $\boldsymbol{b}$表示碰撞参数。两个连续态电子的末态由下式给出

$$|f\rangle = |\boldsymbol{k}_a\rangle \otimes |\boldsymbol{k}_b\rangle. \tag{2}$$

跃迁概率通过将文献 [29] 的形式体系应用于(e,2e)散射情形而得到，并由下式给出

$$\begin{aligned}|\mathcal{A}(\boldsymbol{k}_a,\boldsymbol{k}_b)|^2 = 4\pi^2 \sum_{n,m} c_n c_m^* \int d^3\boldsymbol{k}_i d^3\boldsymbol{k}_{i'} \\ \times\ a_e(\boldsymbol{k}_i)a_e^*(\boldsymbol{k}_{i'})\delta(E_i - E_f)\delta(E_{i'} - E_f) \\ \times\ T_{f,i}T_{f,i'}^* e^{-i(\boldsymbol{k}_i - \boldsymbol{k}_{i'})\cdot\boldsymbol{b}}.\end{aligned} \tag{3}$$

在一阶玻恩近似下，T 矩阵元由下式给出

$$T_{f,i} = \langle \boldsymbol{k}_a,\boldsymbol{k}_b|V|\boldsymbol{k}_i,\psi_n\rangle = \frac{1}{(2\pi)^3}\frac{4\pi}{\Delta^2}\tilde{\psi}_n(\boldsymbol{q}). \tag{4}$$

此处，$\boldsymbol{\Delta} = \boldsymbol{k}_i - \boldsymbol{k}_a$ 表示入射电子的动量转移，$\boldsymbol{q} = \boldsymbol{k}_a + \boldsymbol{k}_b - \boldsymbol{k}_i$ 表示碰撞时靶电子的动量˜。在公式（4）中，$\psi_n(\boldsymbol{q}) = \frac{1}{(2\pi)^{3/2}}\int d^3\boldsymbol{r}\ \psi_n(\boldsymbol{r})e^{-i\boldsymbol{q}\cdot\boldsymbol{r}}$ 是靶的动量空间波函数。我们考虑所谓的对称非共面探测几何中的电子动量谱，如图 1 所示。在这种几何中，两个出射电子对称地分配动能，在相同的极角 $\theta = 45°$处进行测量，并且仅改变一个方位探测角 ϕ [23, 24]。在这些条件下

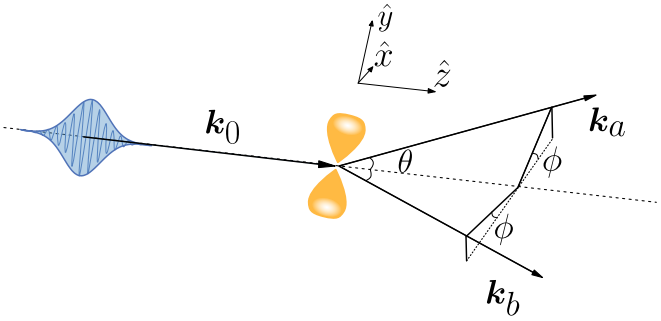

图1. 对称非共面几何下的波包电子动量谱，其中 $\theta = 45°$，且仅改变角度 ϕ。 $\boldsymbol{k}_0$是入射波包的中心动量， $\boldsymbol{k}_a$ 和 $\boldsymbol{k}_b$ 是出射动量。

并且在较大的入射动能下

$$\boldsymbol{q} \simeq k_0 \sin\phi\hat{y}. \tag{5}$$

这意味着探测角映射到动量 y分量。在实验中，通过对符合测量强制实现对称能量共享。我们假定末态能量未分辨。这意味着可观测量包含对末态绝对动量的积分。能量共享通过在这些积分中引入能量δ函数来实现。由于电子的不可区分性，最终可观测量必须包含交换效应。假定入射电子未极化，这通过对可能的自旋构型 [30]取平均来完成。交换的纳入见附录A。所计算的可观测量是双微分散射概率（DDP），由下式给出

$$\frac{\partial^2\mathcal{P}}{\partial\Omega_a\partial\Omega_b}(\phi) = \left\langle \int dk_f\ k_f^3|\mathcal{A}(k_f,\Omega_a,\Omega_b)|^2 \right\rangle_{\rm spin}. \tag{6}$$

交换效应在对称能量共享 [24]时最大。然而，我们发现，在所考虑的能量下，该效应可以忽略不计。

根据文献 [27]，，我们考虑了$3p_y$ 和 $4p_y$ 轨道的叠加态，其时间零点振幅为 $c_n = 1/\sqrt{2}e^{-i\omega_n t_d}$。这里，$\omega_n$ 是氢原子本征态 $\omega_n = 1/(2n^2)$ 的能量，其中 n 现表示主量子数。设想该态由精确调谐的 y偏振激光 [31]产生。参数 t_d 可视为靶叠加态产生与入射电子发射之间受控的时间延迟。该叠加态的振荡周期约为 $T = 6.25$ 飞秒，对于沿y轴选取的 t_d 值，其动量分布如图2（a）所示。对于入射电子，我们采用高斯波包，并假设

纵向形状与横向形状相互分离

$$a_e(\boldsymbol{k}) = \frac{1}{(2\pi\sigma_\parallel^2)^{1/4}} \exp\left(-\frac{(k_\parallel - k_0)^2}{4\sigma_\parallel^2}\right) \times \frac{1}{(2\pi\sigma_\perp^2)^{1/2}} \exp\left(-\frac{k_\perp^2}{4\sigma_\perp^2}\right), \tag{7}$$

其中，$\sigma_\parallel$ 由脉冲的时间长度决定，而 $\sigma_\perp$由脉冲的角展宽决定。对于高斯波包，脉冲时间长度 τ（通常表示为半高全宽（FWHM））与长度$\sigma_\parallel$ 之间的关系为$\tau = 2\sqrt{2\ln(2)}/(2k_0\sigma_\parallel)$。关于波包形状的讨论，请参阅文献 [22]。对于本文所考虑的脉冲宽度$\sigma_\perp$，我们的脉冲形状与文献 [22]中的所谓 $k_\parallel$-高斯波包几乎相同。

图2(b)中的实线显示了100 as（FWHM）、10 keV电子脉冲的EMS谱。与文献 [27], 类似，我们采用 $\sigma_\perp = k_0 \times 1$ mrad的宽度。依赖于 ϕ的散射概率与图2(a)中沿 y轴所示的动量分布十分相似。与文献 [27], 不同，我们没有对探测器窗口进行积分。因此，与文献 [27]中的图2相比，我们在 $\phi = 0$ 处发现了更明显的零概率凹陷。

A. 散射概率表达式的分析

在第一玻恩近似和 PWIA 近似下，方程（3）和（6）是精确的。在足够高的能量下，也就是中心动量远大于波包宽度时，可以采用若干额外近似。这些近似有助于我们进一步理解波包形状与微分散射概率之间的关系。我们采用的近似与参考文献 [20]中讨论的近似类似。以下我们忽略交换效应。回到方程（3），我们考察能量守恒δ函数

$$\delta(E_{i'} - E_i) = \delta\left(\frac{k_{i'}^2}{2} - \frac{k_i^2}{2} - (\omega_m - \omega_n)\right). \tag{8}$$

初始动量可写为 $\boldsymbol{k}_i = k_0\hat{\boldsymbol{z}} + \boldsymbol{\kappa}_i$和 $\boldsymbol{k}_{i'} = k_0\hat{\boldsymbol{z}} + \boldsymbol{\kappa}_{i'}$。因此

$$k_{i'}^2 - k_i^2 = 2k_0\hat{\boldsymbol{z}} \cdot (\boldsymbol{\kappa}_i - \boldsymbol{\kappa}_{i'}) + \kappa_{i'}^2 - \kappa_i^2. \tag{9}$$

对于集中在中心动量 $k_0\hat{\boldsymbol{z}}$ 附近且 $\kappa_i \ll k_0$ 的狭窄动量分布，可以忽略 $\kappa_{i'}^2 - \kappa_i^2$ 项。因此

$$\delta(E_{i'} - E_i) \simeq \frac{1}{k_0}\delta\left(k_{i',\parallel} - k_{i,\parallel} - \frac{\omega_m - \omega_n}{k_0}\right). \tag{10}$$

此 δ 函数现在仅限制动量积分中纵向动量分量之间的耦合，因此使横向分量能够自由干涉。实际上，这种近似忽略了真空色散的影响，也就是波包在空间中传播时的展宽。从以下事实可以看出，真空色散的影响源自时间-能量相位；对于自由平面波，该相位为 $e^{-ik^2t/2}$。然而，在散射振幅中，时间-能量相位由能量δ函数表示，且时间已被积分消去。剩余的 δ 函数确保整体能量守恒。如果入射电子的动能远大于波包的纵向和横向展宽以及靶的电离能，则该 δ 函数可近似为

$$\delta(E_f - E_i) = \delta\left(\frac{2k_f^2}{2} - \frac{k_i^2}{2} + \omega_n\right) \simeq \frac{1}{\sqrt{2}k_0}\delta\left(k_f - \frac{k_0}{\sqrt{2}}\right). \tag{11}$$

对 $k_{i',\parallel}$ 和 k_f积分，即可计算这两个近似δ函数。由此得到

$$\frac{\partial^2\mathcal{P}}{\partial\Omega_a\partial\Omega_b}(\phi) \simeq 4\pi^2 k_0 \sum_{n,m} c_n c_m^* \int d^3\boldsymbol{k}_i \int d^2\boldsymbol{k}_{i',\perp} \times a_e(k_{i,\parallel}, \boldsymbol{k}_{i,\perp}) a_e^*(k_{i,\parallel} + \Delta k, \boldsymbol{k}_{i',\perp}) \times T_{fi}T_{fi'}^* \times e^{-i(\boldsymbol{k}_i - \boldsymbol{k}_{i'})\cdot\boldsymbol{b}}, \tag{12}$$

其中 $\Delta k = (\omega_m - \omega_n)/k_0$。T 矩阵元见公式（4）。由于在对称能量共享条件下能量交换较大，因子 $1/\Delta^2$ 在能量上几乎保持不变。这被称为 EMS 条件 [24]。后一因子可在中心动量 $k_0\hat{\boldsymbol{z}}$ 处进行简单求值得到 $\Delta^2 = k_0^2/2$。在此近似下，两个横向动量积分相互解耦。此外，假设波包的横向形状和纵向形状彼此分离，如公式（7）所示，我们得到双微分散射概率的以下近似表达式

$$\frac{\partial^2\mathcal{P}}{\partial\Omega_a\partial\Omega_b}(\phi) \simeq 4\pi^2 \left((2\pi)^{-3}\frac{4\pi}{\Delta^2}\right)^2 k_0 \times \sum_{n,m} c_n c_m^* B_{nm} G_n(q\hat{y}, \boldsymbol{b}_\perp) G_m^*(q\hat{y}, \boldsymbol{b}_\perp). \tag{13}$$

变换 $G_n(q,\ \boldsymbol{b}_\perp)$ 称为加博变换；在此情况下，它是波函数与以碰撞参数为中心的柱形高斯函数的傅里叶变换，其中该高斯函数用于实现空间滤波

$$G_n[q\hat{\boldsymbol{y}} - (k_{i,\parallel} - k_0)\hat{\boldsymbol{z}}, \boldsymbol{b}_\perp] = \frac{1}{(2\pi)^{3/2}} \int d^3\boldsymbol{r}\ \psi_n(\boldsymbol{r}) \frac{\sqrt{2\pi}}{\sigma_{r,\perp}} \times \exp\left(-\frac{(\boldsymbol{r}_\perp - \boldsymbol{b}_\perp)^2}{4\sigma_{r,\perp}^2}\right)\ e^{-iq\hat{\boldsymbol{y}}\cdot\boldsymbol{r}} e^{i(k_{i,\parallel} - k_0)\hat{\boldsymbol{z}}\cdot\boldsymbol{r}}, \tag{14}$$

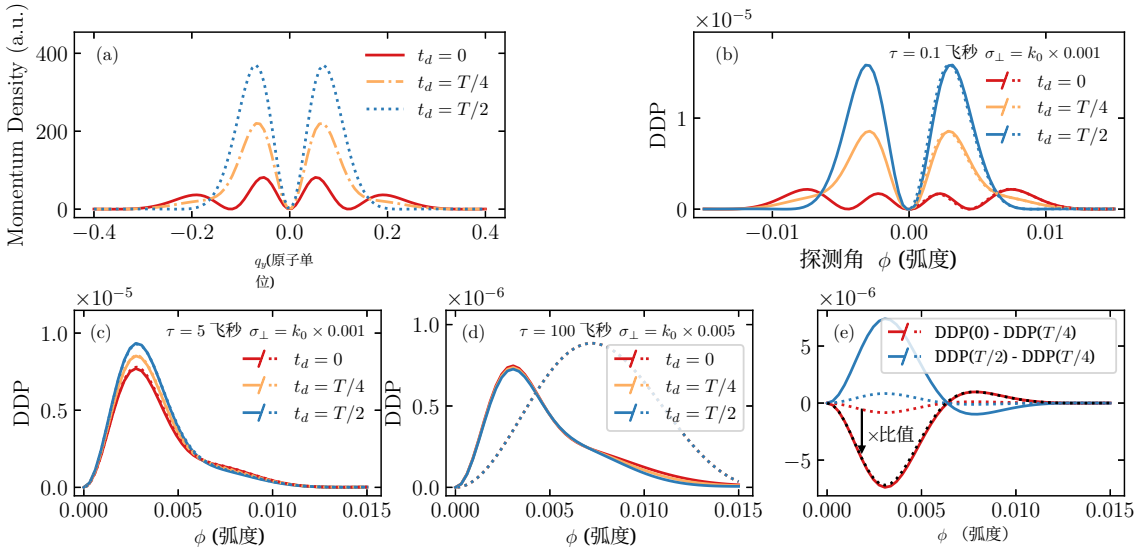

图2。（a）动量空间 y轴上的动量密度 [见式（5）]，对应于氢原子中 $3p_y$ 和$4p_y$ 态的相干叠加，取不同的 t_d值。（b）–（d）比较式（6）和式（3）给出的“精确”双微分散射概率（DDP）（实线）与式（13）给出的近似DDP（点线）；入射粒子为10 keV高斯波包，取不同的 t_d值。（c）–（e）中，由于关于 $\phi = 0$的对称性，仅考虑正探测角。（b）和（c）中，波包在横向上较窄 $\sigma_\perp = k_0 \times 1$ 毫弧度，精确和近似DDP几乎相同。谱线差异源于重叠系数$B_{3p_y,\ 4p_y} \approx 0.999$ （脉冲长度为0.1飞秒）和$B_{3p_y,\ 4p_y} \approx 0.103$ （脉冲长度为5飞秒）。然而，在（d）中，入射粒子波包在横向上较宽 $\sigma_\perp = k_0 \times 5$ 毫弧度，且由于真空色散显著，式（13）给出的近似DDP不再适用。尽管$B_{3p_y,\ 4p_y} \approx 0$，其仍明显依赖于 t_d。（e）脉冲长度分别为0.1飞秒（实线）和5飞秒（点线）时，不同延迟参数 t_d 对应的散射概率之差。脉冲长度相同时，两者仅相差一个符号；脉冲长度不同时，两者除一个缩放因子（比值）外几乎相同，如黑色点线所示。这表明散射概率的行为类似于靶动量分布的时间平均。

其中 $\sigma_{r,\ \perp} = 1/(2\sigma_\perp)$。柱形高斯函数源自公式（12）中解耦的横向动量积分，因为这些积分已化为高斯动量振幅 $a_\perp(\boldsymbol{k}_{i,\ \perp})$ 的两个二维傅里叶变换。注意，在公式（13）中还进行了额外近似，即忽略了加博变换中的纵向依赖关系，也就是 $G_n[q\hat{\boldsymbol{y}} - (k_{i,\ \parallel} - k_0)\hat{\boldsymbol{z}},\ \boldsymbol{b}_\perp] \simeq G_n(q\hat{\boldsymbol{y}},\ \boldsymbol{b}_\perp)$。

式 (13) 中出现重叠系数 B_{nm}，是因为纵向动量积分也被分离出来。

$$B_{nm} = \int dk_{i,\parallel}\ a_{e,\parallel}(k_{i,\parallel}) a^*_{e,\parallel}(k_{i,\parallel} + \Delta k). \qquad (15)$$

B_{nm} 因子通过动量位移 Δk 依赖于态 n 和 m。该重叠系数直接关系到波包对靶态 [20, 27, 32] 的相干振荡进行时间分辨的能力。若脉冲长度相对于靶态振荡周期较短，即若 $\sigma_\parallel$ 相对于位移 Δk 较大，则重叠系数 B_{nm} 不为零。这将导致式 (13) 中出现非零干涉项，这些干涉项对应于时间分辨率。

加博变换引入空间滤波，因为它在有限的空间范围内提取动量分量窗口中采用高斯加权。从这个意义上说，该形式体系量化了如下直观预期：具有有限横向展宽的波包主要在碰撞参数附近发生散射，因此靶态的动量分布仅在空间中的有限区域内被探测。局域动量分布由 $\rho_G(q, \boldsymbol{b}_\perp) = |G(q, \boldsymbol{b}_\perp)|^2$给出。加博变换的出现源于可分离高斯波包这一假设。对波包电子动量谱更一般的处理仍会发现受限的动量探测，不过傅里叶变换中出现的窗函数定义不够明确。此类处理见附录B。

III. 结果

A. 有限探测

我们将碰撞参数 $\boldsymbol{b}$设为零。如图2 (b)和(c)所示，我们发现，当波包在动量空间中的分布相对较窄时（ $\sigma_\perp = k_0 \times$

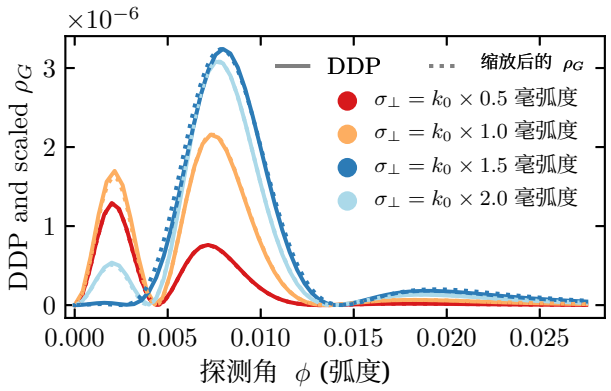

图3. 对于由 $t_d = 0$ 描述的靶，在脉冲持续时间为 $\tau = 100$ 时，不同横向宽度 $\sigma_\perp$ 对应的双微分散射概率（实线）。点线与实线几乎完全重合，表示通过等效宽度的柱面Gabor变换分离出的动量分布 ρ_G。动量密度已缩放至与散射概率相匹配。因此，在这种情况下，Gabor变换描述了EMS谱的形状。

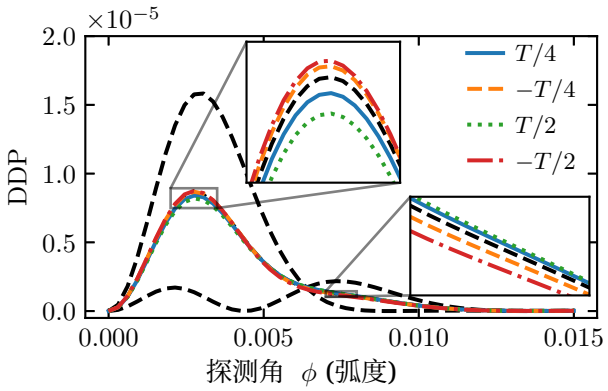

图4. 不同波包焦点偏移 t_p 下，100 as 波包的 EMS 双微分散射概率（DDP）。靶波函数按延迟参数 $t_d = T/4$ 分类。可以观察到正偏移与负偏移之间存在显著差异。黑色虚线分别表示 $t_d = 0,\ T/4,\ T/2$ 下聚焦波包的结果（如图2(b)所示），并作为参考。

1 mrad），近似散射概率能够捕捉精确概率的行为。对于更宽的横向动量分布，如(d)所示，近似表达式不再适用。有趣的是，尽管重叠系数 B_{nm} 为零，仍可观察到对 t_d 的依赖。我们将此解释为真空色散所致；在这一 $\sigma_\perp$ 参数范围内，真空色散不可忽略。显著的真空色散使波包在一段时间内聚焦于狭小的空间范围，而这段时间与目标态的振荡周期相当。因此，实际上只在相对短暂的一段时间内探测动量分布。

继续讨论之前，我们先对以下观察结果作出说明：不同 t_d 值对应的DDP之间的差异，与周期函数的平均值之间的差异相似。如图2（e）所示，对于相等的脉冲长度，DDP($t_d = 0$) − DDP($t_d = T/4$) 与 DDP($t_d = T/2$) − DDP($t_d = T/4$) 的差异仅相差一个符号。此外，对于不同的脉冲长度，这些差异在缩放因子作用下几乎完全相同，黑色点线对此作了示意。这种行为与周期函数平均值的行为相似。

加博变换可用于解释波包电子动量谱中由波包有限横向范围所产生的关键特征。文献 [27], 中观察到，对于由$t_d = 0$ 描述的靶态，EMS谱中内侧（$\phi \sim \pm 0.002$ 弧度）峰与外侧（$\phi = \pm 0.007$ 弧度）峰的比值，与动量分布中相应峰的比值正好相反。对比图2（a）和（b）中的红色实线即可看出这一点。研究者认为，这与横向动量分量的干涉有关。通过加博变换，可以给出更严谨的解释。图3比较了不同脉冲宽度下的EMS谱，以及通过加博变换得到的等效宽度下的动量密度。宽度 $\sigma_\perp$越大，探测到的动量越靠近原子核。图中显示，峰值比值的反转源于所探测的动量密度。探测到的动量越靠近原子核，比值反转得越明显。这与原子核附近电子具有较高动量的观点一致。随着 $\sigma_\perp$增大，散射概率与动量密度之间的一致性降低。这与前文关于导出式（13）的近似条件适用性的讨论相符。

B. 真空色散的影响

真空色散的影响可以带来时间分辨率，即使波包具有较长的时间长度，如图2 (d)所示。这里，尽管$\sigma_\parallel$相较于动量位移 Δk较小，波包的急剧横向窄化仍会使其依赖于延迟参数 t_d。这意味着，对脉冲时间长度更有意义的定义应基于完整的三维电子密度，而非仅依据纵向宽度$\sigma_\parallel$。这里我们表明，即使波包并未被精确聚焦（$\sigma_\perp = k_0 \times 1$ 毫弧度），只要纵向冲击参数非零，真空色散的影响就会显现。纵向冲击参数等效于波包焦点的位移。焦点是电子密度最集中的时空位置，对于本文采用的

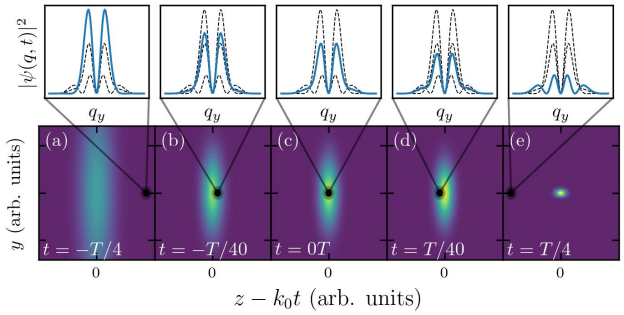

FIG.高斯波包穿过原点的传播过程。波包焦点移动了 $t_p = T/4$，如（e）所示。当波包穿过位于原点、由 $t_d = T/4$ 定义的靶原子（黑点）时，入射电子密度会发生变化。如（d）所示，在远离原点传播时，电子密度略高于其向原点传播时的情况（b）。因此，在 $t = T/40$ 处对靶动量密度（插图所示）的探测程度高于 $t = -T/40$，从而影响最终EMS谱的形状。需要注意的是，为便于说明，波包的色散经过夸大，并不代表图4所用参数下的实际色散。

高斯波包而言，焦点定义明确。通过加入以下两个相位，焦点会发生移动

$$e^{-ik_{i,\parallel}k_0 t_p} \times e^{ik_i^2 t_p}. \tag{16}$$

第一阶段使焦点在空间上向前移动 $k_0 t_p$。第二阶段导致时间移动 t_p。因此，同时纳入这两种移动，相当于使电子源相对于靶发生移动，并延迟入射电子的发射。这样，入射粒子波包与靶波函数之间的重叠时刻并未改变。图4显示，移动的方向，即波包焦点位于靶之前还是之后，会影响 EMS谱。如果焦点位于靶的位置之前（$t_p < 0$），则与 $t_p > 0$ 的情况相比，散射概率在 $\phi \simeq \pm 0.003$ 附近略大，而在 $\phi \simeq \pm 0.0075$ 附近略小。我们注意到，对于更大的移动量，例如 $t_p = \pm 20T/40,\ 21T/4$，这种不对称性仍然存在，此时总散射概率也会降低。

我们提出如下解释：当波包焦点偏离原点时，波包的空间电子密度在向原点传播或远离原点传播时会略有不同。这样的不对称性导致在波包经过原点前后，靶态受到探测的强度有所差异。图 5 展示了这一原理。如（d）图所示，波包经过原点后，入射电子密度略高于经过原点之前（见（b）图）。因此，我们认为靶动量分布在较晚时刻受到的探测更多，而不是较早时刻 $t > 0$，因此预期最终的 EMS 谱会类似于（d）图插图所示的动量密度。与图 4 中的蓝色实线比较，我们发现结果确实如此。以下观察结果也支持这一模型：首先，对于由 $t_d = 0$ 描述的靶，焦点正向偏移和负向偏移没有区别。在这种情况下，靶动量分布关于 $t = 0$ 处的时间反演是对称的，而 $t_d = T/4$ 并非如此。其次，增大 $\sigma_\perp$ 会增强色散，从而使正向偏移与负向偏移之间的差异更大。减小 $\sigma_\perp$ 则会产生相反的效果。

IV. 结论

总之，我们阐明了使用阿秒电子波包进行电子动量谱测量的若干方面。通过分析微分散射概率，我们表明，有限波包散射产生的 EMS 谱只能探测有限空间区域内的靶电子动量分布。在形式上，这体现为空间伽博变换的出现。因此，在传统平面波处理中，散射概率正比于靶电子完整动量波函数的模平方；而对于波包散射，动量空间波函数则由靶电子波函数的加博变换取代。

我们利用空间伽博变换所揭示的物理机制，进一步解释了文献 [27] 报道的阿秒电子动量谱散射概率中的重要特征。部分结果是在不可忽略真空色散效应的条件下获得的；我们发现，真空色散效应对波包电子动量谱至关重要。我们通过研究具有非零纵向碰撞参数的波包散射，说明了散射对色散的依赖性。散射信号在负、正碰撞参数之间呈现的不对称，可归因于波包穿过靶时探测靶动量分布的强度不同。这种强度差异是由真空色散造成的。

随着阿秒电子脉冲的实现不断推进，有限波包尺寸和真空色散的影响不仅可能成为超快电子动量谱学的重要考量，也可能影响超短电子波包的其他应用。散射概率与靶动量分布之间的密切关系，使电子动量谱的谱图相对容易解读。因此，电子动量谱有望成为一种有用的研究框架，帮助深入了解超短波包的散射，并阐明例如真空色散或波包形状的影响。

致谢

我们感谢 Mads Brøndum Carlsen 提供有益的讨论。本研究得到丹麦独立研究基金（ Grant-ID:10.46540/4283-00004B）资助。

附录 A：交换效应的纳入

我们在此论证，在对称能量共享条件下，交换效应在所考虑的能量范围内可以忽略。空间对称的初态和末态（其总自旋为 $S=0$）可通过对式 (1) 和式 (2) 应用对称化算符得到，并可写为

$$|i;S=0\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|\boldsymbol{k}_i,\psi_n\rangle + |\psi_n,\boldsymbol{k}_i\rangle) \tag{A1a}$$

$$|f;S=0\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|\boldsymbol{k}_a,\boldsymbol{k}_b\rangle + |\boldsymbol{k}_b,\boldsymbol{k}_a\rangle). \tag{A1b}$$

为简化记号，我们省略了对初始动量和量子数的求和。类似地，总自旋为 $S=1$ 的反对称态可写为

$$|i;S=1\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|\boldsymbol{k}_i,\psi_n\rangle - |\psi_n,\boldsymbol{k}_i\rangle) \tag{A2a}$$

$$|f;S=1\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|\boldsymbol{k}_a,\boldsymbol{k}_b\rangle - |\boldsymbol{k}_b,\boldsymbol{k}_a\rangle). \tag{A2b}$$

我们假设入射电子未极化。由于相互作用势不与自旋耦合，因此只需对初始自旋构型 [30] 取平均。

$$\begin{aligned}\frac{\partial^2\mathcal{P}}{\partial\Omega_a\partial\Omega_b}(\phi) &= \Big\langle \int dk_f\ k_f^3 |\mathcal{A}(k_f,\Omega_a,\Omega_b)|^2 \Big\rangle_{\text{spin}} \\ &= \frac{1}{4}\int dk_f\ k_f^3 |\mathcal{A}(k_f,\Omega_a,\Omega_b,S=0)|^2 \\ &\quad + \frac{3}{4}\int dk_f\ k_f^3 |\mathcal{A}(k_f,\Omega_a,\Omega_b,S=1)|^2.\end{aligned} \tag{A3}$$

这两个散射振幅仅在动量交换因子上有所不同，这些因子由下式给出

$$\frac{1}{\Delta^2_{\text{sym}}} = \frac{1}{|\boldsymbol{k}_i-\boldsymbol{k}_a|^2} + \frac{1}{|\boldsymbol{k}_i-\boldsymbol{k}_b|^2} \tag{A4}$$

and

$$\frac{1}{\Delta^2_{\text{antisym}}} = \frac{1}{|\boldsymbol{k}_i-\boldsymbol{k}_a|^2} - \frac{1}{|\boldsymbol{k}_i-\boldsymbol{k}_b|^2}. \tag{A5}$$

然而，在对称非共面几何中，当能量远高于波包的动量宽度时

$$\frac{4\pi}{|k_n\hat{\boldsymbol{k}}_i-\boldsymbol{k}_a|^2} \approx \frac{4\pi}{|k_n\hat{\boldsymbol{k}}_i-\boldsymbol{k}_b|^2}. \tag{A6}$$

这意味着反对称空间通道对散射概率的贡献并不显著。此外，对称通道可计算为 $1/\Delta^2_{\text{sym}} \approx 2/\Delta^2$，其中 Δ 的定义见正文。因此，在对称能量共享条件下的高能情况下，可以忽略交换效应。

附录B：一般波包的散射概率

这里给出散射振幅的一个更一般的近似表达式。除了要求入射波包在动量空间中具有良好的准直性外，我们不对其形状作任何假设。因此，我们假设导出式（12）所用的近似仍然成立。再次假设满足 EMS 条件，则近似散射概率的一般表达式为

$$\begin{aligned}\frac{\partial^2\mathcal{P}}{\partial\Omega_a\partial\Omega_b}(\phi) \simeq 4\pi^2\left((2\pi)^{-3}\frac{4\pi}{\Delta^2}\right)^2 k_0 \\ \times \sum_{n,m} c_n c_m^* \int dk_{i,\parallel}\ \tilde{G}_n[q\hat{y}-(k_{i,\parallel}-k_0)\hat{z},\boldsymbol{b}_\perp] \\ \times\ \tilde{G}_m^*[q\hat{y}-(k_{i,\parallel}+\Delta k-k_0)\hat{z},\boldsymbol{b}_\perp],\end{aligned} \tag{B1}$$

这里不再使用加博变换，而是采用如下变换:

$$\begin{aligned}&\tilde{G}_n[q\hat{y}-(k_{i,\parallel}-k_0)\hat{z},\boldsymbol{b}_\perp] = \\ &\quad\frac{1}{(2\pi)^{3/2}}\int d^3\boldsymbol{r}\ \psi_n(\boldsymbol{r}) e^{-i[q\hat{y}-(k_{i,\parallel}-k_0)\hat{z}]\cdot\boldsymbol{r}} w(\boldsymbol{r}-\boldsymbol{b}_\perp,k_{i,\parallel}).\end{aligned} \tag{B2}$$

这又是一个带有窗函数 w 的三维傅里叶变换。由于我们没有假设波包的纵向形状和横向形状可以分离，因此现在窗函数取决于纵向动量。

$$w(\boldsymbol{r}-\boldsymbol{b}_\perp,k_{i,\parallel}) = \int d^2\boldsymbol{k}_{i,\perp}\ a_e(k_{i,\parallel},\boldsymbol{k}_{i,\perp}) e^{i(\boldsymbol{r}-\boldsymbol{b}_\perp)\cdot\boldsymbol{k}_{i,\perp}}. \tag{B3}$$

[1] P. Baum and A. H. Zewail, 《用于4维衍射和显微术的阿秒电子脉冲》, 《国家科学院院刊》—— 科学院 **104**，18409（2007）。

[2] B. Barwick、D. J. Flannigan 和 A. H. Zewail，《光子诱导近场电子显微术》，《自然》**462**，902（2009）。[3] S. T. Park、M. Lin 和 A. H. Zewail，《光子诱导近场电子显微术（PINEM）：理论与实验》，《新物理学杂志》**12**，123028（2010）。[4] A. Feist、K. E. Echternkamp、J. Schauss、S. V. Yalunin、S. Sch¨afer 和 C. Ropers，《超快透射电子显微镜中的量子相干光学相位调制》，《自然》**521**，200（2015）。[5] G. M. Vanacore、I. Madan、G. Berruto、K. Wang、E. Po- marico、R. J. Lamb、D. McGrouther、I. Kaminer、B. Bar- wick、F. J. Garc´ıa de Abajo 和 F. Carbone，《利用半无限光场对自由电子波函数进行阿秒相干控制》，《自然·通讯》**9**，2694（2018）。[6] M. Koz´ak，《生成孤立阿秒电子脉冲的全光学方案》，《物理评论快报》**123**，203202（2019）。[7] K. E. Priebe、C. Rathje、S. V. Yalunin、T. Hohage、A. Feist、S. Sch¨afer 和 C. Ropers，《超快透射电子显微术中的阿秒电子脉冲列与量子态重构》，《自然·光子学》**11**，793（2017）。[8] M. Koz´ak、N. Sch¨onenberger 和 P. Hommelhoff，《阿秒自由电子脉冲列的庞德罗莫蒂夫生成与探测》，《物理评论快报》**120**，103203（2018）。[9] Y. Morimoto 和 P. Baum，《利用阿秒电子脉冲列进行衍射和显微术》，《自然·物理学》**14**，252（2018）。[10] Y. Morimoto 和 P. Baum，《介质膜和吸收膜上的电子束阿秒控制》，《物理评论 A》**97**，033815（2018）。[11] N. Sch¨onenberger、A. Mittelbach、P. Yousefi、J. McNeur、U. Niedermayer 和 P. Hommelhoff，《通过介质激光加速生成并表征阿秒微聚束电子脉冲列》，《物理评论快报》**123**，264803（2019）。[12] D. S. Black、U. Niedermayer、Y. Miao、Z. Zhao、O. Sol- gaard、R. L. Byer 和 K. J. Leedle，《硅介质激光加速器中的净加速与阿秒电子脉冲直接测量》，《物理评论快报》**123**，264802（2019）。[13] Y. Morimoto 和 P. Baum，《阿秒电子衍射中的场诱导摇摆曲线效应》，《物理评论快报》**132**，216902（2024）。[14] D. Nabben、J. Kuttruff、L. Stolz、A. Ryabov 和 P. Baum，《亚周期光学动力学的阿秒电子显微术》，《自然》**619**，63（2023）。[15] J. H. Gaida、H. Louren˛co-Martins、M. Sivis、T. Rittmann、A. Feist、F. J. Garc´ıa de Abajo 和 C. Ropers，《通过自由电子外差探测实现阿秒电子显微术》，《自然·光子学》**18**，509（2024）。

[16] Y. Morimoto、P. Hommelhoff 和 L. B. Madsen，《原子对光调制电子束的相干散射》，Phys. Rev. A **103**，043110（2021）。[17] P. Baum、J. Manz 和 A. Schild，《阿秒电子衍射的量子模型模拟》，《中国科学：物理学、力学和天文学》**53**，987（2010）。[18] H.-C. Shao 和 A. F. Starace，《探测原子和分子中的电子运动》，Phys. Rev. Lett. **105**，263201（2010）。[19] P. Baum，《用于时间分辨显微术和衍射的超短单电子脉冲物理》，Chemical Physics**423**，55（2013）。[20] H.-C. Shao 和 A. F. Starace，《利用超快电子衍射成像原子中的相干电子运动》，Phys. Rev. A**88**，062711（2013）。[21] H.-C. Shao 和 A. F. Starace，《激光驱动原子电子运动产生的能量分辨相干衍射》，Phys. Rev. A**96**，042706（2017）。[22] Y. Morimoto、P. Hommelhoff 和 L. B. Madsen，《通过超快电子波包整形控制散射不对称性》，《新物理学杂志》**27**，103201（2025）。[23] I. E. McCarthy 和 E. Weigold，《原子和分子的电子动量谱学》，Rep. Prog. Phys. **54**，789（1991）。[24] M. A. Coplan、J. H. Moore 和 J. P. Doering，《(e,2e)能谱学》，Rev. Mod. Phys. **66**，985（1994）。[25] M. Yamazaki、K. Oishi、H. Nakazawa、C. Zhu 和 M. Takahashi，《利用时间分辨 s_2 电子动量谱学成像丙酮 s_2 激发态》，Phys. Rev. Lett. **114**，103005（2015）。[26] Y. Tang、X. Shan、Z. Liu、S. Niu、E. Wang 和 X. Chen，《用于时间分辨实验的纳秒脉冲电子束电子动量能谱仪的研制》，Rev. Scient. Instruments **89**，033101（2018）。[27] H.-C. Shao 和 A. F. Starace，《时间分辨超快电子(e,2e)动量能谱学》，Phys. Rev. A **87**，050701（2013）。[28] H.-C. Shao 和 A. F. Starace，《时间分辨电子(e,2e)动量谱学：在激光驱动原子电子布居转移中的应用》，Phys. Rev. A **97**，022702（2018）。[29] Y. Morimoto 和 L. B. Madsen，《超短电子波包的散射：光学定理、差分相位衬度和角不对称性》，《新物理学杂志》**26**，053012（2024）。[30] J. R. Taylor，*The Quantum Theory of Nonrelativistic Collisions*（Dover Publications, Inc.，纽约州米尼奥拉，2006）。[31] H.-C. Shao 和 A. F. Starace，《探测原子和分子中的电子运动》，Phys. Rev. Lett. **105**，263201（2010）。[32] F. Robicheaux，《纵向相干物质束的散射》，Phys. Rev. A **62**，062706（2000）。