arXiv:2512.19062v1 [physics.chem-ph] 22 Dec 2025

非二色性对映体敏感手性光谱

Letizia Fede[1], *DebobrataRajak*[2], *Chris Sparling*[3], *David Ayuso*[4], *Val´erie Blanchet*[1], *Piero Decleva*[5], *Dominique Descamps*[1], *St´ephane Petit*[1], *Bernard Pons*[1], *Yann Mairesse*[1], * 以及 *Andr´es Ord´o˜nez*[6]†

[1] *Université de Bordeaux – CNRS – CEA, CELIA, UMR5107, Talence, France*[2] *ELI ALPS, The Extreme Light Infrastructure ERIC, Wolfgang Sandner u. 3., 6728 Szeged, Hungary*

[3] *Institute of Photonics and Quantum Sciences, Heriot-Watt University, Edinburgh EH14 4AS, UK*

[4] *Department of Chemistry, Molecular Sciences Research Hub, Imperial College London, SW7 2AZ London, UK*[5] *Università degli Studi di Trieste, Trieste, Italy and*

[6] *Department of Physics, Freie Universität Berlin, 14195 Berlin, Germany*

使用圆偏振光产生的手性光学效应，其信号在改变分子手性（对映体敏感性）或光螺旋度（圆二色性）时会改变符号。在此，我们通过测量一种新型手性光学信号，打破了这种兼具对映体敏感性与二色性的范式：该信号对映体敏感，却不具有二色性。我们利用强激光场使手性分子发生光电离，并探测三维光电子动量分布。非二色性对映体敏感不对称性编码在光电子角分布的八极及更高阶多极项中，这些项会出现在椭圆偏振场或交叉偏振双色场中的多光子电离过程中。电离场各矢量分量之间的相对相位变化不会显著影响这种对映体敏感性，这体现了对称性保护，并为成像手性分子中的超快动力学开辟了尚未探索的途径，例如利用明亮压缩真空态进行对映体敏感光电子能谱测量。

手性分子因其在化学和生物学中的重要性而广为人知，也因其与光偏振之间细微而复杂的相互作用而备受关注，这种相互作用会产生广泛的手性光学效应，尤其是圆二向色性 [1]。这些效应可用于分析和控制手性分子，也可用于控制光本身。在手性光学光谱学中，人们普遍认为，改变所研究分子的手性，或改变照射它们的光的椭圆率，二者是等效的。近期研究预测，在一种特定构型下，这种等效性会被打破：即用线偏振紫外激光场及其正交偏振的二次谐波对手性分子进行双光子电离 [2]。研究预测，射出光电子的三维（3D）动量分布中会出现一个分量：交换分子的对映异构体时，该分量会改变符号，而改变电离光的椭圆率时则不会。因此，这类非二色性对映体敏感（NoDES）信号的出现，代表了手性光学光谱学中的一种新范式。迄今为止，NoDES 的存在仅在一种特定光学构型下得到预测，且其效应大小尚未评估，因此也引出了一个问题：这种新型光谱学在实践中是否可行。

在这封信中，我们推广了观察 NoDES 所需的条件，并报告了使用椭圆偏振双色激光场和正交偏振双色激光场进行的实验。结果表明，在三维电子动量分布中可以分辨出幅度约为 1% 的 NoDES信号，

* yann.mairesse@u-bordeaux.fr

† andres.ordonez@fu-柏林.de

性质	$(l,\ m)$ 条件
对称性允许的偶数 m	
对映体敏感	奇 l
二色性	（奇 l 和 $m \geq 0$）或（偶 l 和 $m < 0$）

表 I. $b_{l,\ m}$ 系数 [方程（1）] 椭圆偏振场电离随机取向手性分子所产生的结果 $\vec{E}\ (t)\ = E[\cos\ (\omega t)\ \hat{x} + \varepsilon \sin\ (\omega t)\ \hat{y}]$。

而且在经过合理选择的这些三维分布的二维投影中也可以分辨出来。本文配有一篇姊妹文章 [3]，其中介绍了 NoDES 的理论框架，并提供了不同构型下 NoDES信号的数值计算结果。

各向同性靶吸收 N 个光子发生光电离，产生的光电子角分布（PAD）可表示为实球谐函数之和：

$$P(\theta,\phi) = \sum_{l=0}^{2N} \sum_{m=-l}^{l} b_{l,m} Y_{l,m}(\theta,\phi). \qquad (1)$$

不同球谐函数的贡献由选择定则决定，而选择定则源于对称性，这些对称性可能具有几何或动力学性质。下面考虑椭圆偏振激光场引起的光电离。类似于文献 [2] 中的对称性分析，并按照 [3], 中所述，考察椭圆偏振场、各向同性样品和实球谐函数在旋转与反射下的变化，可得到表 I。该表展示了哪些 $b_{l,m}$ 系数受到对称性允许，以及它们是否具有二色性（即随椭圆率改变而变号）和/或对映体敏感性（变号

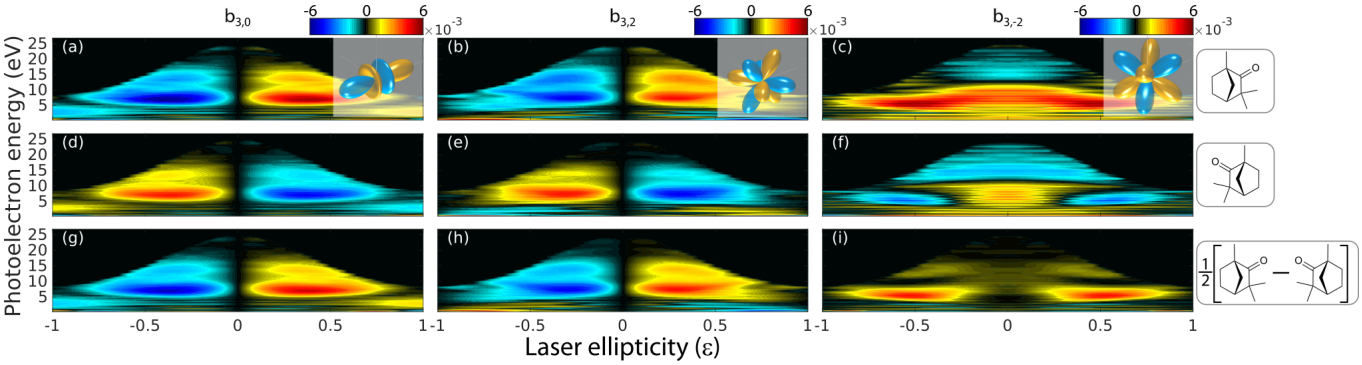

图1. 使用椭圆偏振的1030纳米激光场，以 2×10^{13} W/cm^2 的强度对 (+)-葑酮 (a,b,c) 和 (–)-葑酮 (d,e,f) 进行光电离，得到三维光电子角分布中前向/后向不对称部分的球谐分解。绘出的系数为 $b_{3,0}$ (a,d,g)、$b_{3,2}$ (b,e,h) 和 $b_{3,-2}$ (c,f,i)，并以各光电子能量下的产额 $b_{0,0}$ 归一化。(g-i) 显示的是相反对映体响应相减后得到的结果。

与对映异构体）。

在圆偏振情况下，其中 $b_{l,m\neq 0} = 0$，奇数l项反映了光电子角分布（PAD）的前向/后向不对称性（FBA），称为光电子圆二色性（PECD） [4–6]。当电离辐射为椭圆偏振时，非零$b_{l,m\neq 0}$ 项可能出现。例如，最近在樟脑三光子电离产生的光电子椭圆二色性（PEELD）信号中测得了显著的$b_{3,2}$ 贡献 [7]。研究发现，该项具有对映体敏感性和二色性，这与表 I一致。

在此，我们旨在揭示对映体敏感的非二色性系数。根据表 I，这些系数具有奇数l 和 $m < 0$。此前 [7]尚未报告此类项有显著贡献。为促使其显现，我们在上述阈上电离区 [8], 开展研究；在该区域，已在原子 $m < 0$ 中观察到具有 [9–15]项特征的椭圆二色性方位偏移，在分子 [16]中也有观察。在强场电离区，这些方位偏移是由离子势对旋转激光场作用下射出阿秒电子波包的角向条纹的影响 [17–22], 以及隧穿时间延迟可能产生的贡献 [23–26]所致。

我们使用波长为 1030 nm、脉宽为 130 fs、重复频率为 1 MHz 的激光脉冲（Tangerine Short Pulse, Amplitude）对对映体纯樟脑酮分子进行光电离，并将激光聚焦至 2.5×10^{13}W/cm^2，使用速度映射成像（VMI）光谱仪采集三维光电子角分布（PAD）的二维投影 [27]。激光脉冲沿 z 轴传播。通过旋转固定零级四分之一波片前方的零级半波片，连续改变激光椭圆率 ε，同时用一台 16 位相机拍摄 VMI 的荧光屏。每张图像由 5×10^4 次激光脉冲累积而成。随后对拍摄的视频进行傅里叶分析，按照 [28]中所述的流程，提取三维光电子角分布随椭圆率变化的无噪声投影。将四分之一波片旋转至 5°的步进角度后，重复上述过程，从而为每种对映异构体在每个椭圆率下记录三维光电子角分布的 72 个投影。随后通过断层成像重建三维光电子角分布 [29]。为尽量减小探测器不均匀性的影响，通常通过对相反椭圆率下获得的信号作差，得到光电子圆二色性（PECD）和 PEELD 信号。这里，由于测量的是三维分布，我们在对信号作差之前，先相对于（x, z）平面进行镜像操作，详情见 [28, 30]。

我们采用最小二乘拟合程序将所得分布分解为球谐函数 [31], ，最高阶数为 $l = 9$，并使用 FHANTOM 算法 [32]验证了结果。为展示$b_{l\text{的不同表现}m}$ ，图1 展示了$b_{3\text{的变化}0}$ (a、d、g)、$b_{3\text{的变化}2}$ (b、e、h) 以及$b_{3\text{的变化}-2}$ (c、f、i)，并以产额$b_{0\text{为基准归一化}0}$，展示其随光电子动能和激光椭圆率的变化。其他系数见正文后部分。相应球谐函数的形状显示在插图中。结果分别对应 (+)-葑酮 (a–c) 和 (–)-葑酮 (d–f)。对映体差分响应由 (+)-和 (–)-葑酮结果之差的一半得到，见图1(g–i)。

该$b_{3,0}$ 系数展现了 PEELD 信号的特征性演变 [33]。在圆偏振下，它在光电子能量约为 3 eV 时达到最大值，并且在改变椭圆率或对映异构体时会改变符号。随着激光椭圆率的大小 $|\varepsilon|$减小，光电子能谱会延伸至更高的电子能量，这表明发生了电子再散射，从而使线偏振下的光电子能量最高达到 $10\,U_p$，此时 $U_p \sim 2.5$ eV 为有质动力势 [34]。$b_{3,0}$ 系数在 $|\varepsilon| = 0.4$附近达到最大值，在光电子动能为 7 eV 时达到 0.6%，并在 13 eV 处出现次级最大值（0.25%）。$b_{3,2}$系数表现出相似的行为，但正如圆柱对称性所预期的那样，在圆偏振下消失。$|b_{3,2}|$ 在略低的椭圆率下达到最大值，约为

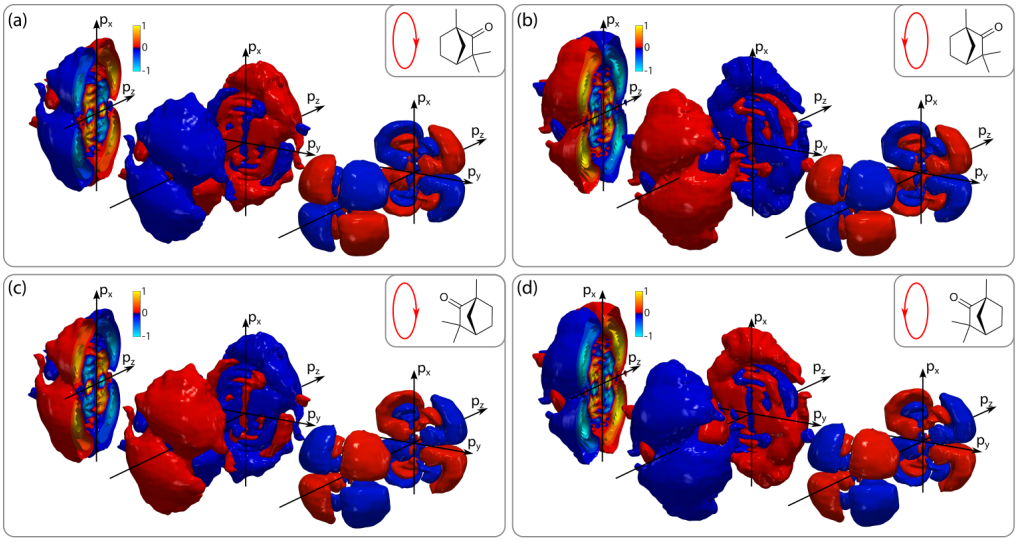

图2. (+)-葑酮（a、b）和(–)-葑酮（c、d）的光电子角分布中的前后不对称性（各面板中央图），以及顺时针（a、c）和逆时针（b、d）椭圆率。各面板左图显示了在(p_x, p_z)平面上的三维前后不对称性截面，右侧则为沿 p_y 轴对前后不对称性进行反对称化后得到的 NoDES 分布。

$|\varepsilon| = 0.3$, 并且在低能量范围内，信号会改变符号，且对应的能量取决于椭圆率。这反映了该能量范围内直接电子与再散射电子之间的干涉。这些结果表明 $b_{3,0}$ 和 $b_{3,2}$ 具有对映体敏感性和二色性，这与樟脑三光子电离中的观察结果一致 [7]。

图1(c、f、i)显示，$b_{3,-2}$ 随ε 的变化截然不同。在(+)-葑酮中，$b_{3,-2}$ 在 $|\varepsilon| = 0.5$时于5 eV达到 ~ 0.6%的最大值；而在(–)-葑酮中，其在相同能量和椭圆率下达到峰值 ~ -0.4%。这表明，切换对映异构体时$b_{3,-2}$会改变符号，但切换电离场的椭圆率时不会：它对映体敏感，但不具有二色性。图1(c、f)显示，对映异构体之间的镜像并不完美，而且在线偏振光下$b_{3,-2}$ 的值也不为零。这反映了光电子成像中的伪影，其来源包括探测器的非均匀性，以及速度映射成像光谱仪中可能存在的杂散磁场。取对映体差分响应（图1(i)）可最大程度地减小这些伪影的影响。所得$b_{3,-2}$ 在 $|\varepsilon| = 0.55$ 时于5 eV达到最大值 ~ 0.5%，并在 $|\varepsilon| = 0.37$时于13 eV出现 ~ 0.1 %的次级最大值。

这些结果证明，在强椭圆偏振激光场作用下对手性分子进行光电离所产生的三维光电子角分布中，存在 NoDES 项。值得注意的是，这些项的大小与球谐分解中的其他 m分量相当，甚至更大。补充材料部分中对结果的分析截至 $l = 9$，与表中基于对称性的选择定则一致 I。结果表明，所有奇数阶l 中都存在 NoDES 项，并凸显了采用强场电离获得结构丰富且灵敏的三维光电子分布的价值。

为评估 NoDES 信号的结构灵敏度，我们在 α-蒎烯分子中重复了测量。补充材料部分所示的结果证实了选择定则，并表明 NoDES 项对分子结构具有极高的灵敏度。

由于所有对 NoDES 信号有贡献的球谐函数沿 p_y方向均为反对称，因此我们可以直接从三维前后不对称性中获得三维 NoDES 分布。图2 展示了在相反椭圆率 $\varepsilon = \pm 0.5$ 下，+-葑酮和–葑酮的前后不对称性。（p_x，p_z）平面上的截面揭示了强场下 PEELD 的典型行为，其中具有特征性的高动量分支对应于激光诱导衍射电子 [28,35, 36]。当 $\varepsilon = 0.5$时，这些电子在（+）-葑酮中更倾向于向前衍射，而在（–）-葑酮中则更倾向于向后衍射。请注意，我们对两种对映异构体的响应取了平均，以获得无伪影的三维分布；因此，对于给定的椭圆率，（+）-葑酮的前后不对称性（图2（a，b））与（–）-葑酮的前后不对称性（图2（c，d））关于偏振平面（p_x，p_y）互为镜像。

三维动量分布显示，对于（反）顺时针椭圆率，前后不对称性会相应地向（反）顺时针方向倾斜，这反映了旋转激光场对电离电子产生的角向条纹。对于（+）-葑酮和顺时针偏振，这种倾斜会导致（$p_x > 0$、$p_y > 0$、$p_z > 0$）象限中的电子数增加，见图2（a）中图。这种增加在 NoDES 分布中表现为正瓣；该分布是通过沿 p_y提取前后不对称性的反对称分量得到的，见图2（a）右图。对于相反的椭圆率，前后不对称性的符号反转与相反的角向条纹共同作用，导致同一（$p_x > 0$、$p_y > 0$、$p_z > 0$）象限中的电子数增加，见图2（b）中图。因此，NoDES 分布

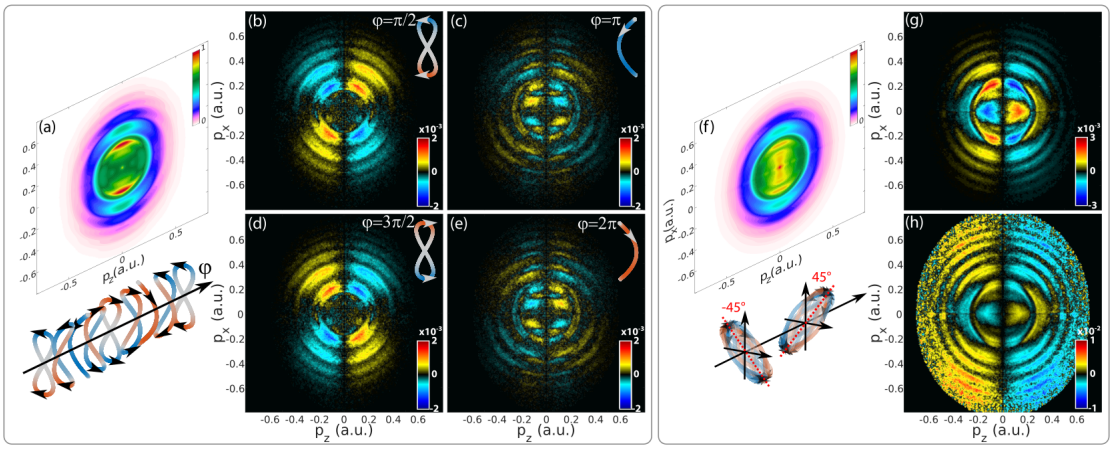

图3. 正交双色激光场对(+)-葑酮的强场电离。(a) 投影光电子角分布，沿p_x 和 p_z对称化，以及当前后不对称性随 φ的演变。(b-e) 基频场沿 x偏振时的结果。(f) 激光场偏振旋转 45°后的投影光电子角分布。(g) 将场偏振旋转 $\pm 45°$ 时记录的前后不对称性相减得到的 NoDES信号。(h) 归一化的 NoDES信号。

保持不变，见图2（b）右图。相比之下，切换对映异构体会使 NoDES 的符号反转，见图2（c、d）右图。因此，这些图像使我们能够揭示光电子三维动量分布中 NoDES 项的起源，即激光场产生的角向条纹与手性势中的前后不对称散射共同作用的结果 [30, 37]。

NoDES信号具有八极或更高阶的多极对称性，因此在沿 p_y方向的投影光电子角分布中会消失，而这正是VMI测量中最常检测到的信号。这促使我们对三维光电子角分布进行完整的断层成像。不过，沿特定方向（如$\hat{}\mathbf{x}+\hat{}\mathbf{y}$）投影时，应该可以直接测量到 NoDES信号。事实上， [2], 曾针对线偏振场及其正交偏振的二次谐波引发的双光子电离提出了这一构型$\vec{E}(t) = E_\omega \cos(\omega t)\hat{}x + E_{2\omega}\cos(2\omega t+\varphi)\hat{}y$。对这一构型的选择定则分析和数值模拟表明，在多光子电离和强场电离中都应能观测到 NoDES [3]。

因此，我们通过 1030–515 nm 正交双色激光场对葑酮分子进行强场电离实验，旨在解析 NoDES 贡献。入口处的 Mach-Zehnder 干涉仪中， ω （50 W、140 fs、166 kHz）的基频激光束由偏振分束器分成两束。在其中一臂中，使用 1 mm 厚的 BBO晶体对光束进行倍频，并利用两面二色性反射镜去除基频成分。 ω 和 2ω 光束具有平行偏振，经分束器重新合束。通过调节真正零级双波长波片，使基频光束的偏振方向旋转 $90°$ ，同时保持二次谐波偏振不变（沿y方向）。所得正交双色场的偏振方向

由安装在电动旋转台上的超消色差半波片控制；随后经过同步旋转的 1.6 mm 方解石片，通过在时间上延迟偏振缺陷，确保两束光具有完全线性且相互正交的偏振。最后，通过平移一对 SiO_2 楔片控制两种颜色之间的相对相位φ。光束聚焦至约 10^{13} W/cm^2, , 二次谐波与基频的强度比为 5%。

在扫描φ 弧度的同时，通过连续采集三维光电子角分布的二维投影来进行测量 18π 。随后对所得影片进行傅里叶变换，以分离连续分量，即对 φ不敏感的信号非二色性部分，以及以 φ为周期振荡的分量。对相反的对映体重复采集，以提取平均对映体差分信号。图3展示了基频场的偏振方向平行于速度映射成像探测器平面时的测量结果。投影光电子角分布（图3（a））显示出 6 个环，对应 6 个阈上电离峰值，并沿 $p_z = 0$ 方向达到最大值，即位于激光偏振平面内。基频场与正交的二次谐波组合产生的电场，其旋转方向每隔半个基频周期反转一次，且其形状取决于相对相位 φ，如图3（a）所示。研究表明，尽管这些电场的净椭圆率为零，它们仍会在手性光电离中产生对映体敏感的前后不对称性 [38, 39], , 且在上、下半球中的符号相反；当φ 移动 π时，这种不对称性会反转。通过提取前后不对称性的振荡部分，可以分离出这一对映体敏感的二色性信号，如图3（b-e）所示，图中展示了不同 φ下的结果。这些分布几乎完全呈上下反对称，反映了电离场的对称性。前后不对称性处于峰值光电子角分布的

0。2% 范围内，并且其形状随 φ而变化，这是由于电离场形状发生变化，正如 [39]中所报道。

对称性分析和理论计算表明，正交双色激光场会产生 NoDES 分量 [3]，，但它们沿二次谐波场偏振方向呈反对称，因此在记录的 p_y积分二维投影中不可见。为揭示这些分量，我们需要将场偏振旋转，使其偏离速度映射成像的积分轴。因此，我们针对电离激光场的另外两种取向重复了实验，这两种取向相对于 $45°$ 和$-45°$ 方向分别旋转了 y （图3（f））。我们提取信号傅里叶变换中连续（φ无关）分量，并减去在 $45°$ 和 $-45°$ 投影下以及相反对映体所测得的前后不对称性。将所得信号除以 4，以获得单个对映异构体在单个投影中的平均前后不对称性，结果如图3（g）所示。图中呈现出清晰的非二色性对映体敏感信号。NoDES 沿 p_x 方向表现出显著的对称性，证实了 [2] 的预测以及 [3]的理论计算结果。中心阈上电离峰显示，NoDES信号随电子动量和喷射角变化而发生符号反转，这与八极分布投影的形状在定性上相符 [2]。更高阶阈上电离峰的 NoDES 信号则更为均匀。用投影光电子角分布对 NoDES信号归一化后，所得信号处于 1% 量级（图3（h）），这是强场区光电子圆二色性信号的典型幅度。因此，正交线偏振场组合产生的 NoDES信号强度十分显著。

NoDES信号的观测代表了一种新型手性光学光谱学，其中无需定义电离辐射的椭圆率即可辨别对映异构体。这种行为与对称性保护的概念有关；这一概念已在各种物理系统中得到确认，例如光子晶格中的连续谱中的束缚态 [40] 或凝聚态物质中的拓扑相 [41]。这体现了一项原则：只要相关对称性得以保持，某种效应就会保持稳健。NoDES信号清楚地展示了手性光学光谱学中的对称性保护——它们对应于对映体敏感的张量（例如八极）可观测量，这些量对于与椭圆率反转等效的旋转具有对称性。这可能有助于研究光的自旋角动量与轨道角动量（OAM）共同作用对手性辨别的影响；近年来，这已成为一个重要课题。轨道角动量光束本身具有空间变化的相位，在多光束构型中，这种相位可能会抵消传统的手性光学响应，但不会影响NoDES信号。同样，NoDES也可与量子光结合使用。明亮压缩真空态（BSV） [42] 正越来越多地用于诱发强场过程中的扰动 [43–45]。类似地，也可以在正交双色场构型中使用二次谐波明亮压缩真空电离手性分子。然而，BSV场本身存在 π [46]的随机相位歧义，这会抵消二色性对映体敏感信号。相比之下，NoDES信号能够保留下来，从而可以探测光的量子性质对手性光电离的影响。

感谢 Franck Blais、Rodrigue Bouillaud、Romain Delos、Nikita Fedorov 和 Laurent Merzeau 提供技术协助。感谢 Samuel Beaulieu、Baptiste Fabre 和 Nirit Dudovich 进行了富有成效的讨论。D.A. 感谢英国皇家学会 URF\R\251036 提供资助。C. S. 感谢赫瑞-瓦特大学通过 EPSRC 博士奖学金提供资助。A. O. 感谢德国研究联合会（DFG）提供的资助，资助编号为 543760364。本研究属于 PEPR LUMA 的 ULTRA-FAST 和 TORNADO项目，并获得法国国家研究署资助，项目编号为 ANR-21-CE30-038-01（Shotime）；同时，本研究也是法国2030计划的一部分，资助项目编号为 ANR-23-EXLU-0002 和 ANR-23-EXLU-0004。我们感谢波尔多大学卓越计划／大型研究计划“GPR LIGHT”提供的资金支持。本项目获得欧盟地平线2020研究与创新计划资助，协议编号为 871124（欧洲激光实验室）。ELI ALPS项目（GINOP-2.3.6-15-2015-00001）由欧盟支持，并由欧洲区域发展基金共同资助。

[1] N. Berova、P. L. Polavarapu、K. Nakanishi 和 R. W. Woody， *Comprehensive Chiroptical Spectroscopy* （威利出版社，霍博肯，新泽西州，2012年）。[2] A. F. Ordonez 和 O. Smirnova，《利用双色场将对映体敏感性与二向色性区分开来》，《物理化学化学物理》**24**，7264（2022年）。[3] A. Ord´o˜nez、D. Ayuso、P. Decleva、L. Fede、D. Rajak、Y. Mairesse 和 B. Pons，《非二色性对映体敏感手性光谱学理论》，arXiv:2512.17840（2025年）。

[4]B. Ritchie，光学活性分子和分子负离子脱出光电子的角分布理论，《物理评论A》**13**，1411（1976年）。[5] I. Powis，随机取向手性分子甘油醛和乳酸的光电子圆二色性，《化学物理学杂志》**112**，301（2000年）。[6] C. Sparling 和 D. Townsend，光电子圆二色性成像的二十年：从第一性原理到未来展望，《物理化学化学物理》**27**，2888（2025年）。

[7] C. Sparling、A. Ruget、L. Ireland、N. Kotsina、O. Ghafur、J. Leach 和 D. Townsend，分子轴排列和对称性破缺在光电子椭圆二色性中的重要性，《化学物理学杂志》159，214301（2023年）。[8] P. Agostini、F. Fabre、G. Mainfray、G. Petite 和 N. K. Rahman，氩原子六光子电离后的自由-自由跃迁，《物理评论快报》42，1127（1979年）。[9] M. Bashkansky、P. H. Bucksbaum 和 D. W. Schumacher，阈上电离中的不对称性，《物理评论快报》60，2458（1988年）。[10] H. G. Muller、G. Petite 和 P. Agostini，关于“阈上电离中的不对称性”的评论，《物理评论快报》61，2507（1988年）。[11] P. Lambropoulos 和 X. Tang，关于“阈上电离中的不对称性”的评论，《物理评论快报》61，2506（1988年）。[12] L. A. A. Nikolopoulos 和 P. Lambropoulos，负氢的阈上电离，《物理评论A》56，3106（1997年）。[13] N. L. Manakov、A. Maquet、S. I. Marmo、V. Veniard 和 G. Ferrante，原子双光子电离中的椭圆二色性和电子角分布，《物理学杂志B：原子、分子与光学物理》32，3747（1999年）。[14] Z.-M. Wang 和 D. S. Elliott，通过完整测量原子多光子电离确定铷的截面和连续态相位，《物理评论快报》84，3795（2000年）。[15] B. Borca、M. V. Frolov、N. L. Manakov 和 A. F. Starace，强椭圆偏振光引发的多光子脱附角分布中的阈值效应，《物理评论快报》87，133001（2001年）。[16] M. Davino、E. McManus、P.-H. Tran、V.-H. Hoang、A. F. Ord´o˜nez、G. Gibson、T. Saule、A.-T. Le 和 C. A. Trallero-Herrero，三维光电子动量能谱中的对称性：作为二色性和对映体敏感测量的先导方法，《物理评论应用》23，014022（2025年）。[17] W. Becker 和 D. B. Milo˘sevi´c，定制激光场作用下原子强场电离中的椭圆二色性，《物理化学化学物理》24，7014（2022年）。[18] S. Basile、F. Trombetta 和 G. Ferrante，椭圆偏振光引发的多光子电离中的二重对称角分布，《物理评论快报》61，2435（1988年）。[19] S. Goreslavski、G. Paulus、S. Popruzhenko 和 N. Shvetsov-Shilovski，阈上电离中的库仑不对称性，《物理评论快报》93，233002（2004年）。[20] S. V. Popruzhenko 和 D. Bauer，具有库仑相互作用的系统的强场近似，《现代光学杂志》55，2573（2008年）。[21] L. Torlina 、 F. Morales 、 J. Kaushal 、 I. Ivanov 、 A. Kheifets、A. Zielinski、A. Scrinzi、H. G. Muller、S. Sukiasyan、M. Ivanov 和 O. Smirnova，阐释阿秒钟对隧穿时间的测量，《自然·物理》11，503（2015年）。[22] U. S. Sainadh、H. Xu、X. Wang、A. Atia-Tul-Noor、W. C. Wallace、N. Douguet、A. Bray、I. Ivanov、K. Bartschat、A. Kheifets、R. T. Sang 和 I. V. Litvinyuk，原子氢中的阿秒角向条纹成像与隧穿时间

gen，《自然》568，75（2019）。[23] P. Eckle、M. Smolarski、P. Schlup、J. Biegert、A. Staudte、M. Sch¨offler、H. G. Muller、R. D¨orner 和 U. Keller，《阿秒钟角向条纹》，《自然·物理》4，565（2008）。[24] A. S. Landsman、M. Weger、J. Maurer、R. Boge、A. Ludwig、S. Heuser、C. Cirelli、L. Gallmann 和 U. Keller，《隧穿延迟时间的超快分辨》，《光学》1，343（2014）。[25] N. Camus、E. Yakaboylu、L. Fechner、M. Klaiber、M. Laux、Y. Mi、K. Z. Hatsagortsyan、T. Pfeifer、C. H. Keitel 和 R. Moshammer，《量子隧穿时间的实验证据》，《物理评论快报》119，023201（2017）。[26] A. S. Kheifets，《阿秒钟与隧穿时间之争》，《物理学杂志B：原子、分子与光学物理》53，072001（2020）。[27] A. T. J. B. Eppink 和 D. H. Parker，《利用静电透镜对离子和电子进行速度映射成像：在分子氧的光电子与光碎片离子成像中的应用》，《科学仪器评论》68，3477（1997年）。[28] D. Rajak、S. Beauvarlet、O. Kneller、A. Comby、R. Cireasa、D. Descamps、B. Fabre、J. D. Gorfinkiel、J. Higuet、S. Petit、S. Rozen、H. Ruf、N. Thir´e、V. Blanchet、N. Dudovich、B. Pons 和 Y. Mairesse，《手性分子中的激光诱导电子衍射》，Physical Review X 14，011015（2024年）。[29] M. Wollenhaupt、M. Krug、J. K¨ohler、T. Bayer、C. Sarpe-Tudoran 和 T. Baumert，《超短自由电子波包的三维断层重建》，《应用物理B》95，647（2009年）。[30] E. Bloch、S. Larroque、S. Rozen、S. Beaulieu、A. Comby、S. Beauvarlet、D. Descamps、B. Fabre、S. Petit、R. Ta¨ıeb、A. J. Uzan、V. Blanchet、N. Dudovich、B. Pons 和 Y. Mairesse，《揭示分子手性对隧穿电离动力学的影响》，Physical Review X 11，041056（2021）。[31] A. Politis，*Microphone Array Processing for Parametric Spatial Audio Techniques* 2016（阿尔托大学）。[32] C. Sparling、D. Rajak、V. Blanchet、Y. Mairesse 和 D. Townsend，《傅里叶–汉克尔–阿贝尔奈奎斯特极限层析成像：一种基于球谐基函数的断层速度映射图像重建方法》，《科学仪器评论》95，053301（2024年）。[33] A. Comby、E. Bloch、C. M. M. Bond、D. Descamps、J. Miles、S. Petit、S. Rozen、J. B. Greenwood、V. Blanchet 和 Y. Mairesse，《利用光电子椭圆二向色性实时测定对映体及异构体含量》，《自然·通讯》9，5212（2018）。[34] G. G. Paulus、W. Nicklich、H. Xu、P. Lambropoulos 和 H. Walther，《阈上电离光谱中的平台》，《物理评论快报》72，2851（1994）。[35] D. Ray、B. Ulrich、I. Bocharova、C. Maharjan、P. Ranitovic、B. Gramkow、M. Magrakvelidze、S. De、I. V. Litvinyuk、A. T. Le、T. Morishita、C. D. Lin、G. G. Paulus 和 C. L. Cocke，《稀有气体中激光诱导再散射的电子大角度衍射结构》，《物理评论快报》100，143002（2008）。[36] C. I. Blaga、J. Xu、A. D. DiChiara、E. Sistrunk、K. Zhang、P. Agostini、T. A. Miller、L. F. DiMauro 和 C. D. Lin，《利用激光诱导电子衍射成像超快分子动力学》，《自然》483，194（2012）。[37] K. Fehre、S. Eckart、M. Kunitski、C. Janke、D. Trabert,

J. Rist、M. Weller、A. Hartung、M. Pitzer、L. Ph. H. Schmidt、T. Jahnke、R. D¨orner 和 M. S. Sch¨offler，《手性分子强场电离中的角向条纹》，Physical Review Research 1，033045（2019）。[38] P. V. Demekhin、A. N. Artemyev、A. Kastner 和 T. Baumert，《载波频率为 ω 和2ω 、偏振方向彼此正交的两个重叠激光脉冲产生的光电子圆二色性》，《物理评论快报》121，253201（2018）。[39] S. Rozen、A. Comby、E. Bloch、S. Beauvarlet、D. Descamps、B. Fabre、S. Petit、V. Blanchet、B. Pons、N. Dudovich 和 Y. Mairesse，《控制手性分子光电离中的亚周期光学手性》，Physical Review X 9，031004（2019）。[40] Y. Plotnik、O. Peleg、F. Dreisow、M. Heinrich、S. Nolte、A. Szameit 和 M. Segev，《连续谱中的光学束缚态的实验观测》，《物理评论快报》107，183901（2011）。[41] Z.-C. Gu 和 X.-G. Wen，《张量纠缠过滤重整化方法与对称性保护拓扑序》，Physical Review B 80，155131（2009）。[42] T. S. Iskhakov、A. M. P´erez、K. Y. Spasibko、M. V. Chekhova 和 G. Leuchs，《超聚束亮压缩真空态》，Optics Letters 37，1919（2012）。

[43] A. Rasputnyi、Z. Chen、M. Birk、O. Cohen、I. Kaminer、M. Kr¨uger、D. Seletskiy、M. Chekhova 和 F. Tani，《亮压缩真空的高次谐波产生》，《自然物理》**20**，1960（2024年）。[44] S. Lemieux、S. A. Jalil、D. N. Purschke、N. Boroumand、T. J. Hammond、D. Villeneuve、A. Naumov、T. Brabec 和 G. Vampa，《由量子光控制的高次谐波发射中的光子聚束》，Nature Photonics **19**，767（2025年）。[45] M. E. Tzur、C. Mor、N. Yaffe、M. Birk、A. Rasputnyi、O. Kneller、I. Nisim、I. Kaminer、M. Kr¨uger、N. Du- dovich 和 O. Cohen，《量子阿秒脉冲的产生测量与控制》，arXiv:2502.09427（2025年）。[46] Y. Kern、I. Nisim、M. Birk、A. Rasputnyi、D. Behar、Z. Chen、I. Kaminer、P. Sidorenko、O. Cohen 和 M. Kr¨uger，《飞秒亮压缩真空的单次脉冲重构》，arXiv:2509.17746（2025年）。

I. 正文后部分

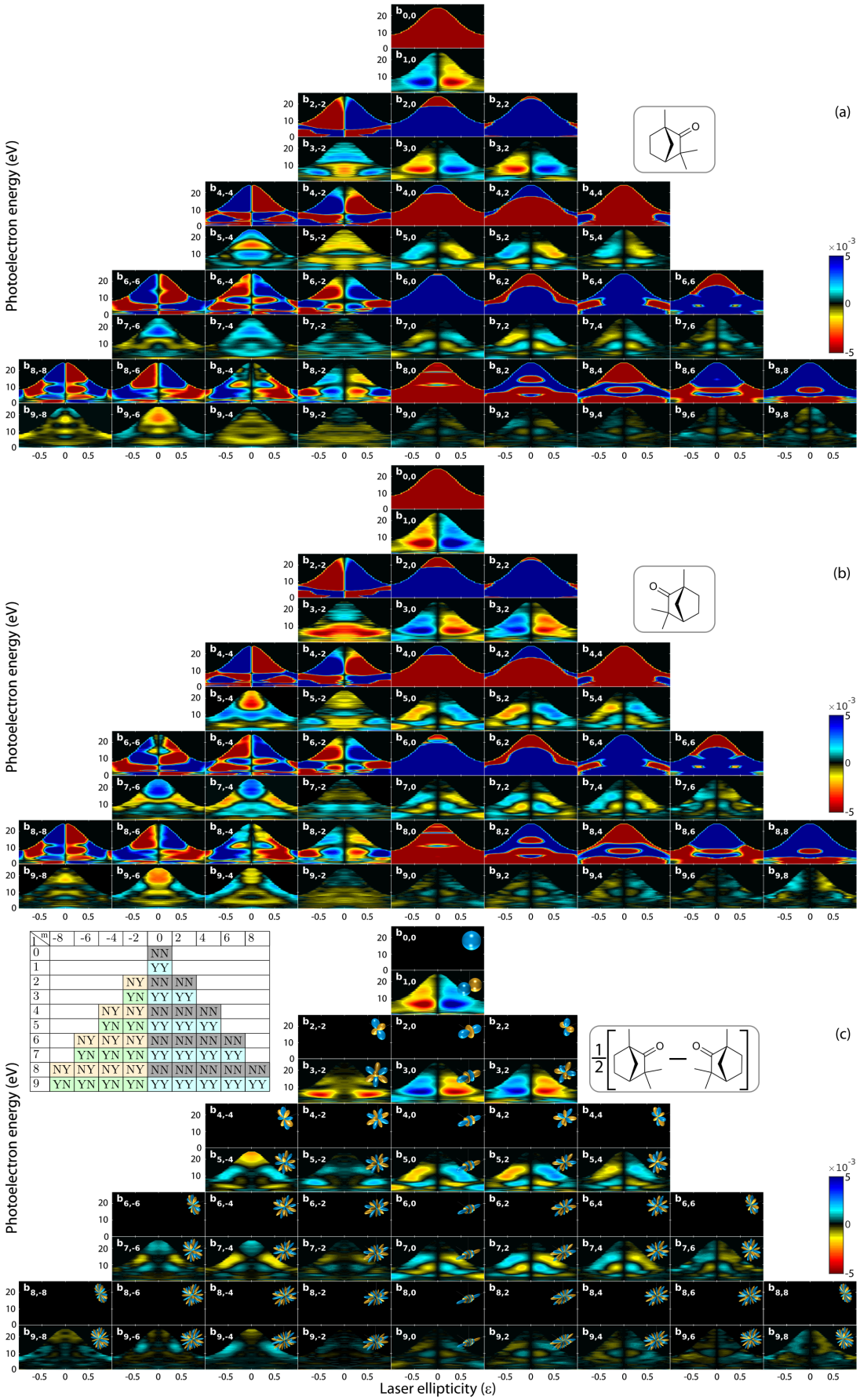

图 4. 球谐分解 [式（1）] 通过光电离（+）-葑酮 (a) 和（−）-葑酮 (b) 得到的光电子角分布，所用激光场为 1030 纳米，2.5×10^{13} W/cm^2, ，并以激光椭圆率为变量。图 (c) 展示了对映体差分前后反对称信号的分解。插图表格汇总了不同系数的对映体敏感性（是=Y/否=N）和二向色性（Y/N）。

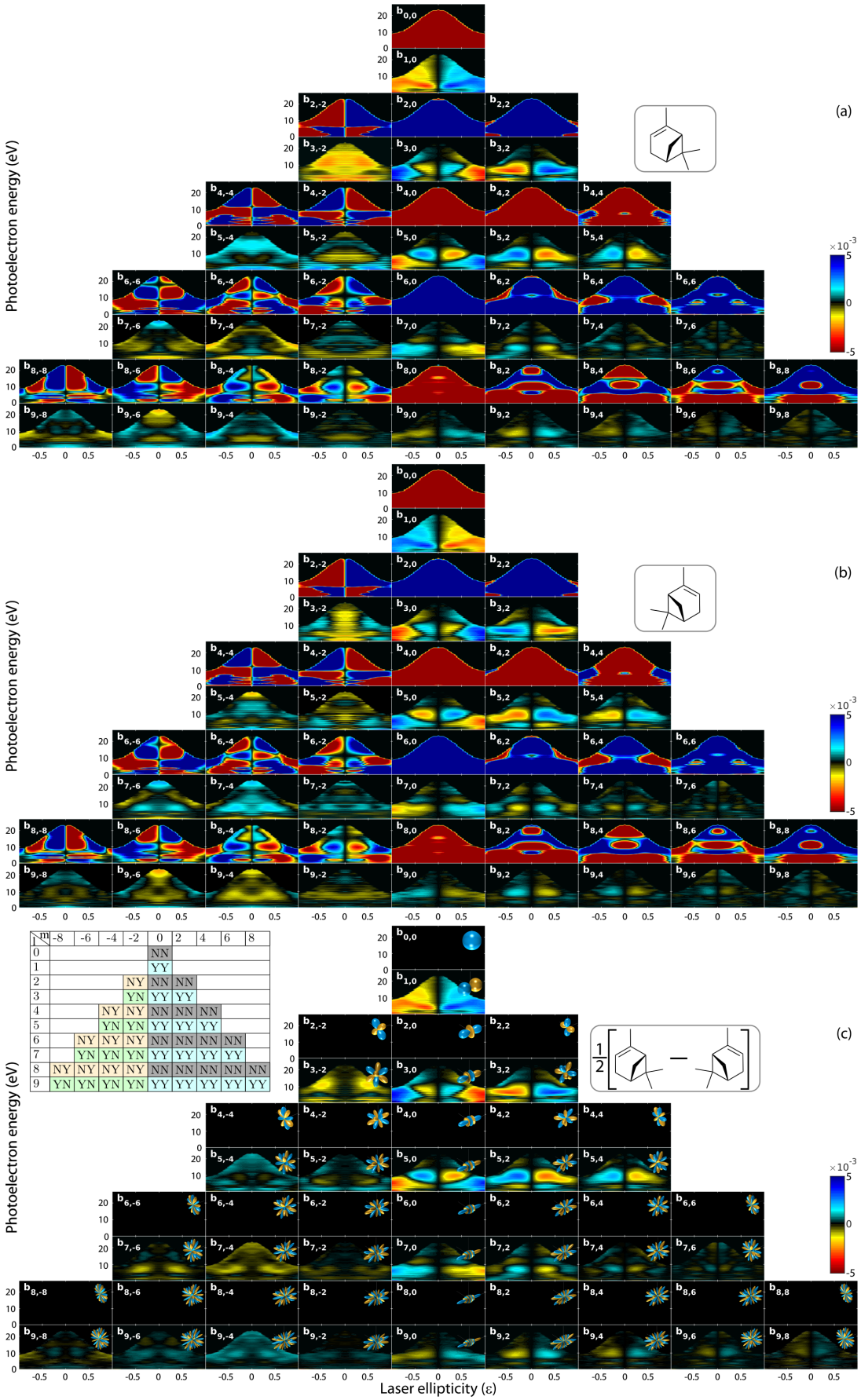

图5. 球谐分解 [公式（1）] 对通过光电离（+）-α-蒎烯（a）和（–）-α-蒎烯（b）获得的光电子角分布进行分解，所用激光场为1030纳米激光场，强度为 2.5×10^{13} W/cm^2, , 并将其表示为激光椭圆率的函数。手性差分前后反对称信号的分解如（c）所示。插图表格总结了不同系数的对映体敏感性（是=Y/否=N）和二向色性（Y/N）。