中国科学 : 物理学 力学 天文学 2026 年 第 56 卷 第 4 期 : 240005
SCIENTIA SINICA Physica, Mechanica & Astronomica physcn.scichina.com
《中国科学》杂志社 SCIENCE CHINA PRESS
评 述 西安交通大学建校130周年专辑

高次谐波辐射过程中的非经典效应

付逸飞*, 赵迪*, 高韶燕, 李蓬勃

陕西省量子信息与光电量子器件重点实验室, 教育部物质非平衡合成与调控重点实验室, 西安交通大学物理学院, 西安 710049
*联系人, 付逸飞, E-mail: 15955932@stu.xjtu.edu.cn; 赵迪, E-mail: d.zhao@mail.xjtu.edu.cn

收稿日期: 2025-10-27; 接受日期: 2026-01-28; 网络出版日期: 2026-03-09
国家自然科学基金(编号: 12375018)、陕西数理基础科学研究项目(编号: 22JSY037)、陕西省自然科学基金(编号: 2024JC-YBMS-031)和陕西数理基础科学研究项目(编号: 22JSY005)资助

摘要 高次谐波产生(High-order Harmonic Generation, HHG)是强场激光与物质相互作用诱发的重要非线性现象. 其作为优质的相干光源, 已在阿秒脉冲产生与超快光谱等领域得到广泛应用. 近年的研究发现, 高次谐波辐射中普遍存在如非经典光子统计、模式间关联与纠缠等非经典效应, 在制备高光子数非经典态、实现固态系统中纠缠精准调控以及与腔量子电动力学相结合等方向具有广阔的发展前景. 本文系统梳理了高次谐波非经典效应的相关研究进展: 首先概述了半经典模型和强场量子理论, 阐明了在相干态与非经典态驱动下谐波光场量子性质的差异, 继而重点讨论了利用该过程制备非经典光场态(如光学猫态、压缩态等)的多种物理方案. 强场HHG 研究不仅深化了对强场激光物理本质的理解, 也为在极紫外至X射线波段制备与应用量子光源开辟了新路径.

关键词 强场激发, 量子光学, 谐波产生, 量子信息

PACS: 42.50.Hz, 42.50.-p, 42.65.Ky, 47.40.Ki, 03.67.-a

1 引言

高次谐波产生(High-order Harmonic Generation, HHG)是强激光场(通常在10^{13} W/cm^{2}以上)与物质相互作用产生的非线性、非微扰效应. 自1994 年, Lewenstein等人[1]建立了高次谐波的强场半经典理论模型和求解方案以来, HHG因其辐射光具有宽光谱、高相干性的优异性质, 已经成为一种广泛、成熟、高性能的强场物理应用平台, 被用于极紫外到X射线波段的相干光源[2,3]、超短阿秒脉冲光源的生成[4], 以及激光诱导电子衍射[5]、阿秒隧穿光谱[6]、阿秒高速扫描光谱[7]等应用. 早期的HHG研究认为由驱动光场的超强场强带来的非线性效应主要取决于驱动光场的经典性质, 而量子性质(如压缩、纠缠等)对HHG光谱性质无显著影响. 2016年前后, 研究人员发现了高次谐波辐射过程中存在非泊松光子统计、纠缠等非经典性质. Föld研究组[8]在量子场驱动的二能级HHG 模型和单原子HHG模型[9]中发现了谐波模式的非经典光子统计. Tzallas等人[10]在气相HHG的实验中运用驱动场与谐波场的关联分析法, 首次发现高次谐波辐射存在模式间关联性质, 预测了高次谐波光场所有驱动和辐射模式间均存在纠缠. 最近, Pérez等人[11]和Finger等人[12]提出了强场压缩量子光源的实验制备方案, 使强场量子光源驱动的HHG成为可能. HHG所展现的非经

引用格式: 付逸飞, 赵迪, 高韶燕, 等. 高次谐波辐射过程中的非经典效应. 中国科学: 物理学 力学 天文学, 2026, 56: 240005
Fu Y, Zhao D, Gao S, et al.. Nonclassical effects in high-order harmonic radiation (in Chinese). Sci Sin-Phys Mech Astron, 2026, 56: 240005, doi: 10.1360/SSPMA-2025-0489

© 2026 《中国科学》杂志社

典性质及强场量子光源方面的进展, 激发了学界发展高次谐波强场量子光学理论的浓厚兴趣. 驱动光场经过HHG过程调制后呈现出怎样的量子性质? 使用量子态强场驱动HHG过程, 谐波光场呈现出怎样的量子性质? HHG过程中各光场模式的关联和纠缠性质是怎样的? 物质本身的量子性质、光与物质的其他量子相互作用对HHG过程的量子性质有怎样的调制? 回答这些问题有助于在量子光学框架下理解高次谐波的光子动力学过程, 发现并调控HHG的量子性质, 以及探索其制备紫外乃至X射线波段量子光源的可能性.

本文将回顾近十年来高次谐波非经典效应的研究成果, 包括强场与原子、分子、固体等物质系统相互作用驱动HHG的强场量子理论, HHG过程中的量子性质, 利用HHG制备光场非经典态等最新方案和应用进展. 强场量子HHG不仅打破了半经典方法研究强场过程的局限, 还提供了一条新的光场量子性质制备和调控路径. 这些研究也提供了采用量子电动力学(Quantum Electrodynamics, QED)方法研究其他强场过程如阈值上电离(Above Thereshold Ionization, ATI)[13]的应用前景.

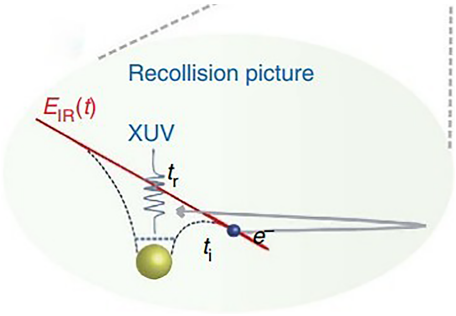


图 1 HHG“三步”模型中, 束缚态电子与激光场的相互作用图[10]. 灰色实线代表电子轨迹, 强红外激光场$E_{IR}(t)$(红色实线)偏斜了库仑势阱, 使束缚态电子在t_i时刻发生多光子电离/隧穿电离, 成为准自由态电子, 电离的准自由态电子在强场中加速, 在t_r时刻回到原子实附近并重新跃迁回束缚态发射一个高能光子

Figure 1 Schematic diagram of the interaction between a bound-state electron and laser field in the HHG “three-step” model [10]. The gray solid line represents the electron trajectory. A strong infrared laser field $E_{IR}(t)$ (red solid line) distorts the Coulomb potential well, causing the bound-state electron undergo multiphoton ionization/tunnel ionization at time t_i and become a quasi-free electron. The ionized quasi-free electron is then accelerated in the strong laser field, returns to the vicinity of the atomic core at time t_r, and recombines into a bound state, emitting a high-energy photon.

2 高次谐波辐射中的非经典现象

半经典“三步”模型为高次谐波产生过程提供了简单而直观的物理图景[10](图1).

第一步, 束缚态电子在强激光场作用下发生多光子电离/隧穿电离, 变为“准自由”态电子. 第二步, 电离的准自由电子在强激光场中加速并获得动能. 第三步, 这些获得动能的电子有可能回到原子实附近, 与之复合并回到束缚态, 将获得的全部动能及电离势以高能光子的形式释放出来. 图2是高次谐波的典型偶极辐射光谱, 分为三个区域: 微扰区、平台区和快速衰减区. 其中, 平台区的理论截止频率为$3.17U_p + I_p$, I_p为电离能, U_p为有质动力势能, 与激光强度和激光频率有关[1]. 平台区的宽光谱特性为高频相干光源的制备提供了新的手段.

Bogatskaya等人[14,15]的研究表明, 由强场驱动的量子系统中的谐波辐射现象中, 只有在考虑向初始占据态的跃迁过程时, 半经典理论才是有效的, 其他动力学过程均需要量子电动力学来解释. 2015年后, 人们开始尝试使用部分量子化的HHG模型. Popov研究组[16]

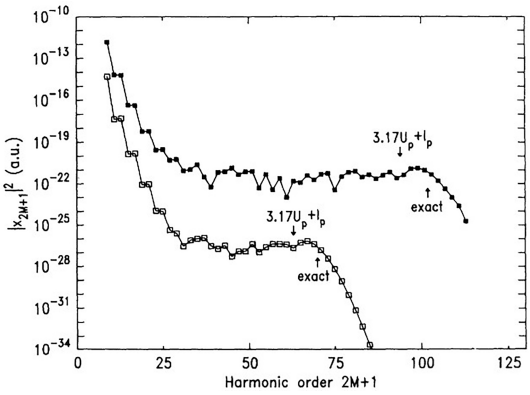


图 2 HHG 光谱示意图[1]. 横坐标为谐波阶数(即以激光频率为单位频率), 纵坐标为偶极辐射谱强度. 电离能$I_p = 30$, 空心和实心方格曲线分别是$U_p = 10$, $U_p = 20$情况下计算得到的HHG光谱. 光谱随谐波阶数增大经历微扰区(指数衰减)、平台区和快速衰减区. 理论和实际截止频率由箭头所示

Figure 2 Schematic diagram of HHG spectrum [1]. The horizontal axis represents the harmonic order (i.e. normalized to the laser frequency), and the vertical axis represents the dipole radiation spectra. The ionization potential is $I_p = 30$. The hollow and solid square curves correspond to the calculated HHG spectra for $U_p = 10$ and $U_p = 20$, respectively. As the harmonic order increases, the spectrum exhibits a perturbative region (exponential decay), a plateau region, and a rapidly decaying region. The theoretical and actual cutoff frequencies are indicated by arrows.

从自发辐射的角度诠释了非线性光学效应, 并预言HHG等强场过程本质上也是量子光学效应. 该研究组建立了强场驱动的原子系统与大量量子光场模式的相互作用模型, 并与半经典理论进行了对比分析. 研究表明, 当激光场强达到5×10^{14} W/cm^2 时, 飞秒激光脉冲驱动下原子的自发跃迁被抑制, 激光频率的谐波模式则显著增强. 他们认为在强场作用下, 任何非线性光学效应都来源于自发辐射, 且在考虑原子基态耗散后, 半经典理论不再适用. 因此, 在量子光学框架下研究强场物理, 特别是HHG 过程, 是非常必要的.

Péter研究组[8]指出, 尽管驱动场因光子数极高而通常不表现出量子性质, 但高次谐波辐射的产率低, 光子数极少, 其量子效应不可忽略. 该研究组基于二能级系统HHG模型引入了谐波的量子辐射模式, 计算了各谐波模式的光子统计及其Mandel参数, 对所有谐波模式, Mandel参数均为正, 数值在10^{-6}–10^{-3}之间(图3), 即HHG中各谐波模式略微具有超泊松统计特性, 反映了辐射场的涨落特性. Mandel参数的计算结果明确指出了HHG具有内禀量子性质.

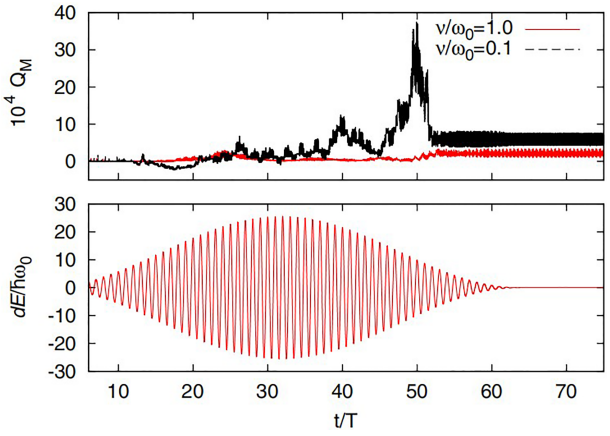


图 3 二能级系统HHG 模型计算的第8次谐波Mandel参数Q_M(上图)的时间演化(以激光周期为单位)和驱动脉冲(下图)[8]. 红线和黑线分别表示驱动频率ω_0与能级共振(ν/ω_0 = 1.0)和远失谐(ν/ω_0 = 0.1) 情况. Q_M经过了10^4数量级的放大, $Q_M\neq0$反映光子偏离泊松统计

Figure 3 Time evolution (normalized to the laser period) of the Mandel Q_M parameter (upper panel)for the 8th harmonic calculated using a two-level system HHG model and the driving pulse (lower panel) [8]. The red and black lines represent the cases where the driving frequency ω_0 is resonant with the energy level (ν/ω_0 = 1.0) and far off-resonant (ν/ω_0 = 0.1), respectively. Q_M has been scaled up by four orders of magnitude. $Q_M\neq0$ indicates that the photon statistics deviates from Poissonian.

在半经典"三步"模型中, 电离电子在自由电场中的加速运动可以由非相对论性半经典Volkov波函数[17]精确描述(即求解其含时薛定谔方程), Tzallas研究组[18]在量子光学框架下研究电离电子的运动, 并测量了HHG过程中透射红外光谱的量子光学性质. 他们发现, 在重结合过程中红外驱动模式的光子统计分布逐渐偏离高斯统计, 指出了谐波模式存在非经典光态的可能性. 同时, 他们发现高阶谐波的光谱信息被刻录在红外驱动光的光子统计中, 且高阶谐波模式和驱动模式间存在量子关联[10], 这进一步证实了HHG中存在量子性质.

3 高次谐波辐射理论——从半经典到强场量子模型

为了解释HHG中存在的半经典现象, Kaminer团队[9]与Lewenstein等人[19]构造了原子与驱动和谐波量子光场的相互作用模型, 建立了HHG的强场量子理论. 本节将介绍高次谐波从半经典到强场量子的理论.

3.1 HHG半经典模型

3.1.1 单原子HHG和强场近似求解

1994年, Lewenstein等人[1]基于单原子与低频强场相互作用, 采用强场近似方法(Strong-Field Approximation, SFA)求解HHG 的含时薛定谔方程(Time-Dependent Schrodinger Equation, TDSE), 通过对电偶极矩进行傅里叶变换来求解高次谐波辐射谱, 这一方法被认为是求解HHG 的通用思路. 原子波函数满足的TDSE如下:

$$i\frac{\partial|\Psi(x,t)\rangle}{\partial t}=\left[-\frac{1}{2}\nabla^2+V(x)-E\cos(t)x\right]|\Psi(x,t)\rangle. \tag{1}$$

其中, $V(x)$为原子势, E为电场振幅. 强场近似要求高次谐波过程满足以下几点:

(1) 除基态外, 所有束缚态对系统的演化影响可以忽略不计.

(2) 基态的耗尽可以忽略不计.

(3) 连续态电子在连续介质中运动时可以忽略原子势$V(x)$的影响.

引入SFA后, 以电子位移表示的偶极矩含时演化可以被解析求解:

$$x(t) = i\int_0^t \mathrm{d}t' \int \mathrm{d}^3\mathbf{p} E\cos(t') d_x(\mathbf{p}-\mathbf{A}(t')) \times d_x^*(\mathbf{p}-\mathbf{A}(t'))\exp[-iS(\mathbf{p},t,t')] + c.c. \quad (2)$$

式中, $\mathbf{p}$为电子在自由电场中加速的守恒量, $\mathbf{A}$为电矢势, $S(\mathbf{p},t,t')$为加速过程中的相位积累. d_x是电子从基态到相应动量的偶极矩阵元. 这个解的物理意义是: 电子可以在任意t时刻从基态电离, 在t–t'时刻在自由电场中演化, 之后电子在t时刻重结合回到基态, 同时将所有的动能与电离势能以谐波光子的形式辐射出来. 该理论成功地解释了包括截止频率在内的诸多高次谐波辐射谱特征.

3.1.2 固体介质内的高次谐波半经典理论

在HHG的实际研究中, 人们必须将HHG的单原子理想模型推广到各类介质下的计算模型中. 在固体中, HHG的“三步”模型物理图景稍有不同, 其在倒易空间下的描述更为直观(图4): 第一步: 强外电场激发电子-空穴对; 第二步: 激发后的电子-空穴对受强电场加速获得动能, 沿固体非抛物型能带的加速运动产生带内电流; 第三步: 电子-空穴对复合产生带间电流. 总高次谐波信号由带内和带间电流共同贡献形成[20].

目前主要基于Bloch基和Huston基[21]求解固体在强场驱动下的HHG过程. Bloch基的求解方法是把单原子TDSE在动量空间中展开, 并将解以Bloch基的叠加表示出来.

$$|\Psi_k(t)\rangle = \sum_n C_k^n(t)|\phi_k^n\rangle. \quad (3)$$

布洛赫基$|\phi_k^n\rangle$由下式定义:

$$\left[\frac{\hat{p}^2}{2m} + V(\hat{x})\right]|\phi_k^n\rangle = E_n(k)|\phi_k^n\rangle. \quad (4)$$

其中, $\hat{p}$为单原子中电子的动量算符, V为总电势. 而Huston基求解则改为采用绝热基底进行展开. 无论采用哪种基矢, 固体HHG 满足的TDSE均为:

$$i\hbar\frac{\partial}{\partial t}|\Psi(t)\rangle = \left[\frac{(\hat{p}+e\mathbf{A})^2)}{2m} + V(\hat{x})\right]|\Psi(t). \quad (5)$$

鉴于不同固体的能带结构存在差异, 上述求解方法需根据具体介质性质进行调整. 实践中常求解双带[22]或多带模型[23]导体布洛赫方程(Semiconductor Bloch Equation, SBE), 以及使用时间密度泛函理论(Time-Dependent Density Functional Theory, TDDFT)[24]等方法进行数值求解.

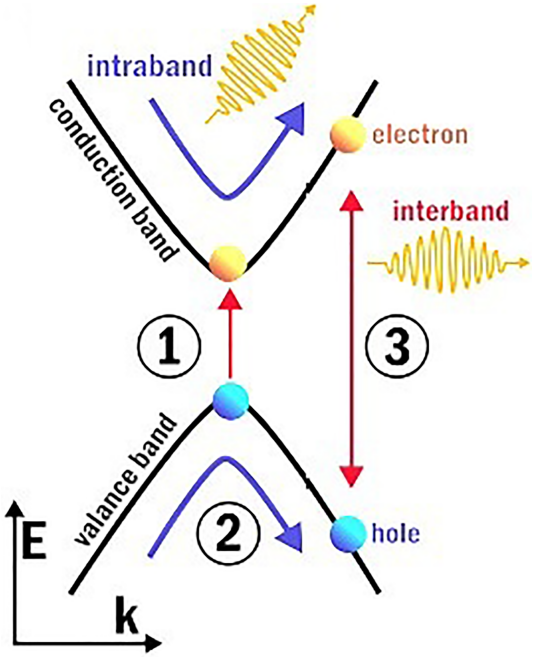


图 4 固体高次谐波产生三步模型的倒易空间示意图[20]. 在价带和导带模型中, 电子在能带间进行跃迁(红线)和在能带内进行加速(蓝线), 分别产生带间电流和带内电流(以黄线光子辐射表示)

Figure 4 Schematic diagram in reciprocal space illustrating the three-step model of solid-state HHG [20]. Within the valence and conduction band model, electrons undergo interband transitions (red lines) and intraband acceleration (blue lines), which generate interband and intraband currents, respectively, represented by the emission of photon radiation (yellow lines).

3.2 HHG的强场量子模型

高次谐波的强场量子模型与半经典理论的最主要区别在于是否将驱动光场和辐射光场进行量子化处理. 当使用相干态驱动场时, 谐波辐射与半经典理论的结果一致. 而当采用非经典态驱动场时, 谐波辐射场将呈现量子性质.

3.2.1 相干态驱动情形

强场量子HHG的哈密顿量如下式[9,19]:

$$\hat{H} = \hat{H}_\mathrm{s} + \hat{H}_\mathrm{f} + \hat{H}_\mathrm{int}. \quad (6)$$

其中, $\hat{H}_{\rm s}$是物质系统的哈密顿量, $\hat{H}_{\rm f}=\sum_q \hbar\omega_q \hat{a}_q^{\dagger}\hat{a}_q$ 是包含驱动光场在内的所有量子光场模式的哈密顿量, $\hat{H}_{\rm int}=\hat{d}\cdot\hat{E}$是物质与量子场的相互作用项. 物质系统的初态设定为单原子基态$|g\rangle$, 光场的初始条件为: 驱动光场处于一个大光子数的相干态$|\alpha_L\rangle$, 其他模式均处于真空态$|0\rangle$. 通常需要对哈密顿量进行位移变换, 并将哈密顿量以经典和量子修正的形式表示出来, 以简化初始大光子相干态的动力学描述. 相互作用表象下, 变换后的哈密顿量为:

$$\hat{H}_I(t)=-d(t)E_Q(t). \tag{7}$$

其中, $E_Q(t)=-igf(t)\sum_{q=1}^{N}\sqrt{q}(a_q^{\dagger}{\rm e}^{i\omega_q t}-a_q{\rm e}^{-i\omega_q t})$是量子化电场, $f(t)$为驱动光脉冲包络, g为量子化系数[25]. 此时, 系统的光场初态在这个表象下全部为真空态, 而经典电场的影响被约化到偶极矩$d(t)$的时间演化中. SFA在强场量子理论中可等效于: 1. 忽略基态耗尽和其他束缚态动力学演化. 2. 偶极矩算符无相关性(在实验中意味着光强< 10^{14} W/cm^2). 由于在SFA条件下只有基态$|g\rangle$对应的光场波函数对HHG有贡献, 可以将波函数的原子部分分离出来, 在半经典理论下求解$d(t)$. 各光场模式满足的TDSE和演化算符为:

$$i\hbar\frac{\partial|\Phi(t)\rangle}{\partial t}=\langle d(t)\rangle\cdot E_Q(t)|\Phi(t)\rangle, \tag{8}$$

$$K_{\rm HHG}\simeq T\exp\left[i\int_0^t {\rm d}t'\langle d(t')\rangle E_Q(t')\right]=\hat{D}[\chi_q]. \tag{9}$$

式中, 由于电场算符为产生湮灭算符的一阶式, 演化算符是一个平移算符$\hat{D}[\chi_q]$ 的形式, 而$\hat{D}[\chi_q]$作用于真空态即生成相应相干参数χ_q的光场相干态. 各光场模式的演化方程可写为:

$$i|\Phi(x,t)\rangle=K_{\rm HHG}|\Phi_0\rangle={\rm e}^{i\phi(t)}\bigotimes_{q=1}^{N}\hat{D}(\chi_q(t))|0_q\rangle. \tag{10}$$

在SFA下解得各场模在HHG过程中的演化均处于相干态, 且光谱强度与偶极矩演化有关. 即HHG过程使驱动模式和谐波模式发生了相干态平移. 而为了在相干态驱动情形下得到非经典光场, 需要超越SFA近似.

3.2.2 非经典态驱动情形

2023年, Gorlach等人[26]提出非经典态驱动HHG可以通过量子态的相干态基矢完备展开进行计算. 驱动光密度矩阵对应的相空间展开形式为

$$\rho_f(0)=\int {\rm d}^2\alpha_{k_0\sigma_0}{\rm d}^2\beta_{k_0\sigma_0}{\rm P}(\alpha_{k_0\sigma_0},\beta^*_{k_0\sigma_0}),\\ \frac{|\alpha_{k_0\sigma_0}\rangle\langle\beta_{k_0\sigma_0}|}{\langle\beta_{k_0\sigma_0}|\alpha_{k_0\sigma_0}\rangle}\otimes\prod_{(k\sigma)\neq(k_0\sigma_0)}|0_{k\sigma}\rangle\langle 0_{k\sigma}|. \tag{11}$$

其中, 准概率分布函数P为广义Glauber函数[27], 具有驱动模式的全部量子信息. 利用薛定谔方程对密度矩阵的线性性质, 将密度矩阵演化分解为对每一个相干态点位进行单独求解, 并按照准概率分布进行权重积分. 对于量子化体积$V\to\infty$的情况, 整个系统的密度矩阵的时间演化可写为

$$\rho(t)=\int {\rm d}^2\epsilon_\alpha Q(\epsilon_\alpha)|\phi_\alpha(t)\rangle\langle\phi_\alpha(t)|\\ \otimes\prod_{(k_1\sigma_1),(k_2\sigma_2)\neq(k_0\sigma_0)}|\gamma^\alpha_{(k_1\sigma_1)}\rangle\langle\gamma^\alpha_{(k_1\sigma_1)}|. \tag{12}$$

其中, $\phi_\alpha(t)$为原子部分波函数, $Q(\epsilon_\alpha)$为另一种准概率分布Husumi-Q 函数. 任意驱动模式对应的HHG光谱为

$$\frac{{\rm d}\epsilon}{{\rm d}\omega}=\frac{\omega^4}{6\pi^2c^3\epsilon_0}\int {\rm d}^2\epsilon_\alpha\|\phi_\alpha\|^2Q(\epsilon_\alpha)|d_\alpha(\omega)|^2. \tag{13}$$

谐波模式和光谱受到Husumi-Q函数的调制, 表明驱动模式的量子性质会显著影响辐射光场的光谱和量子态, 若仅考虑经典驱动将引入样本偏差. Stammer[28]发现非零电场驱动并非产生HHG的必要条件: 例如在使用形如$\rho_{|\alpha_0|}=\frac{1}{2\pi}\int_0^{2\pi}{\rm d}\phi|\alpha_0|{\rm e}^{i\phi}\rangle\langle|\alpha_0|{\rm e}^{i\pi}|$ 的驱动光态, 即对同振幅的相干态进行相位叠加的混合态驱动HHG时, 初始光态的经典电场值为0, 但谐波光谱与相同振幅的相干态单态驱动一致, 且各谐波场呈现非相干特性. 相对于相干态驱动, Gorlach 等人[26]发现采用热态、强场压缩真空态(Bright Squeezed Vacuum, BSV)驱动的HHG光谱均显示了截止频率的延展. 截止频率与驱动场的相空间分布存在映射关系.

最近, 多组研究人员对HHG强场量子理论进行了理论修正. Matan和Oren[29]补充了自由电子在BSV光中的运动理论, 研究组推导了自由电子在量子光场中的位置和动量演化, 通过数值模拟计算出了BSV驱动的自由电子轨迹. 研究表明, 电子的位置分布经历宽度振荡, 即在实空间内进行相干的拉伸和压缩, 这类宽度振荡会产生闭合和开放运动轨迹, 分别对应HHG和ATI. Aklilu和Varga[25]利用光物质张量积基矢求解了腔内量子HHG, 研究了腔尺寸对能级、中间态、量子纠缠和HHG 光谱的调控. Liu研究组[30]研究了单谐

波模BSV环境下的HHG, 解释了真空量子涨落对谐波产生影响的物理机制, 与费米黄金律的解释相吻合. Wang和Bian [31]基于广义冯诺依曼格点基提出了通用的HHG过程描述方法, 将量子HHG 拓展到了多模量子驱动情形. Rivera-Dean [32]分析了量子HHG 框架下, 半经典理论值中的"长短轨迹"在强场量子HHG中的解释, 以及其对HHG量子性质的影响. 这些工作完善了强场量子HHG与半经典HHG 的对应, 以及扩大了强场量子HHG的适用范围, 使强场量子HHG 模型成为新一代处理HHG量子光学理论和应用的可用模型.

3.3 实际物质系统中的HHG强场量子理论

3.3.1 分子体系

半经典理论已经指出, 分子HHG中分子取向与偏振轴的相对角度, 分子中原子数量和相对位置等参数对动力学和光谱存在影响 [33,34], 但这些参数的量子效应的影响尚不确定. Ciappina研究组 [35]建立了氢分子离子H_2^+的量子HHG模型. 在玻恩-奥本海默近似条件下, 只考虑分子成键态$|\psi_b\rangle = 1/\sqrt{2}[|g_1\rangle + |g_2\rangle]$和反键态$|\psi_a\rangle = 1/\sqrt{2}[|g_1\rangle - |g_2\rangle]$对HHG的贡献. 求解$|\Psi(t)\rangle \approx |\psi_b\rangle \otimes |\Phi_b(t)\rangle + |\psi_a\rangle \otimes |\Phi_a(t)\rangle$满足的TDSE得到

$$|\Phi_b(t)\rangle = \hat{D}(\chi_b(t,t_0))|\bar{0}\rangle,$$
$$|\Phi_a(t)\rangle = -i\int_{t_0}^{t} \mathrm{d}\tau \hat{D}(\chi_\alpha(t,\tau))\hat{M}_{ab}(\tau)\hat{D}(\chi_b(\tau,t_0))|\bar{0}\rangle. \quad (14)$$

其中, $\chi_i^{(q)}(t,t_0) \propto \int_{t_0}^{t}\langle\psi_i|\epsilon_L\cdot\hat{r}|\psi_i\rangle e^{iq\omega_L t}$是半经典演化, $\hat{M}_{ab}(t) = \langle\phi_a|\hat{r}|\phi_b\rangle\cdot\hat{E}(t)$是一阶量子修正. 可见在相干态驱动情形, 分子HHG也呈现相干辐射.

3.3.2 半导体体系

半导体体系的相互作用形式可被分为带内动力学和带间动力学部分 [36,37]. 其满足的TDSE 可写为:

$$i\frac{\partial|\Psi'(t)\rangle}{\partial t} = \left[\hat{r}_{\mathrm{ter}}\cdot\hat{E}(t) - i\hat{v}_{\mathrm{tra}}\cdot\hat{A}(t)\right]|\Psi'(t)\rangle. \quad (15)$$

方程右侧两项分别代表带内和带间贡献. 半导体体系内的SFA则变为"仅考虑电子返回价带的贡献", 光场波函数可写为各模式相干态的乘积:

$$|\Phi_\nu(K,t)\rangle = \hat{D}(\chi_\nu(k_0,t,t_0))|\bar{0}\rangle. \quad (16)$$

综上所述, 在多种物质体系中, 若满足SFA条件, 量子HHG理论均预言各谐波模式处于相干态. 反之, 则各谐波辐射呈现非经典性质.

4 高次谐波在量子态制备中的应用

近年来, 人们提出了多种利用HHG过程制备驱动或谐波光场量子态的方案.

4.1 利用HHG过程制备猫态

驱动光与谐波模式间的耦合导致HHG过程伴随着驱动模式相干态的光子损耗. Lewenstein等人 [19]开创性地利用条件测量及调控HHG制备非经典态: 在强场量子框架下, 通过"后选择"的方式, 具体研究了光子损耗对驱动光量子性质的影响. 后选择的物理图景如图 5所示 [38].

在强场条件下, 可以通过后选择算符$1-|\bar{0}\rangle\langle\bar{0}| = |\bar{n}\rangle\langle\bar{n}|$作用于末态光场, 将末态中存在HHG的部分分离出来. 在HHG强场量子理论中, 出射驱动模式的后选择量子态具体形式为$|\alpha+\delta\alpha\rangle - \langle\alpha|\alpha+\delta\alpha\rangle|\alpha\rangle$. 驱动光子损耗$\delta\alpha$不可忽略, 因此后选择量子态呈现两个不同参数相干态的相干叠加, 即"猫态"的形式. 这使利用HHG过程实验制备光学猫态成为可能. 实验装置如图 6所示 [39].

红外激光经过BS_1分束后, 一部分光束与原子气

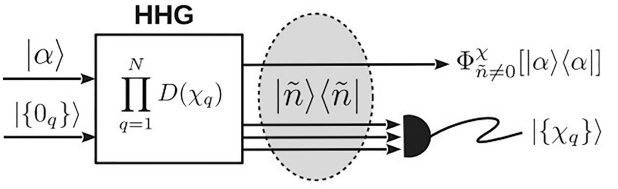


图 5 HHG后选择(条件测量)的物理图景 [38]. 系统量子态历经HHG(实线矩形框)和后选择(虚线椭圆框)过程. HHG过程对系统量子态进行调制后, 可以从不同的出射方向级联探测驱动频率和谐波频率成分, 使用后选择算符$|\bar{n}\rangle\langle\bar{n}|$对应着测量谐波探测非零条件下的量子态

Figure 5 Physical scenario of post-selection (conditional measurement) following HHG [38], where the system's quantum state undergoes the HHG process (solid-line rectangular box) and the post-selection process (dashed-line elliptical box). After the HHG process modulates the system's quantum state, the driving frequency and harmonic components can be detected in cascade from different emission directions. Applying the post-selection operator $|\bar{n}\rangle\langle\bar{n}|$ corresponds to the quantum state conditioned on a measurement outcome with non-zero harmonic detection.

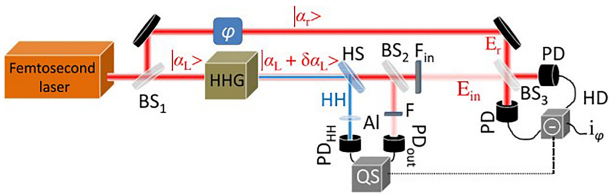


图 6 HHG后选择的实验装置[39]. 其中, BS_1, BS_2, BS_3为分束器, QS为振幅衰减部分, PD为光子探测器

Figure 6 Experimental setup for post-HHG selectio [39]. Key components: BS_1, BS_2, BS_3 (beam splitters), QS (attenuator), PD (photon detector).

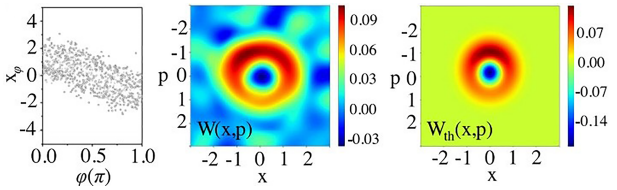


图 7 经过后选择的驱动光光子统计和Wigner函数示意图[39]. 其中从左到右分别为正交算符X的相位光子统计X_ϕ, 实验测量得到的Wigner函数$W(x, p)$, 理论得到的Wigner函数$W_{th}(x, p)$. Wigner函数的负性揭示光态具有强烈的非经典性

Figure 7 Schematic of the photon statistics and Wigner function for the driving field after post-selection [39]. From left to right, the panels show the phase-dependent photon statistics X_ϕ of the quadrature operator X, the experimentally measured Wigner function $W(x, p)$, and the theoretically obtained Wigner function $W_{th}(x, p)$. The negativity of the Wigner function reveals the strong nonclassicality of the optical state.

体相互作用, 出射光经历振幅衰减(QS部分, 10^{-7}倍)和相移的调制, 成为分束器BS_3的入射光E_{in}; 另一部分光束只经历相移, 成为分束器BS_3的入射光E_r. 实验通过光子探测器探测11–23次谐波光子实现后选择过程, 测量到的后选择驱动模式的Wigner 函数呈现正负各一个极值峰, 呈现“猫态”的特征(图7)[39].

Lewenstein和Ciappina研究组[40]进一步对利用HHG过程制备猫态的理论和实验方案进行优化, 提出了制备三相干态叠加猫态的实验方案. 研究组通过调控气体密度, 观察到9光子的光学猫态, 打破了此前制备猫态的记录[39]. 构建并完善了生成可控非经典特征相干叠加态的量子测量理论, 预测了谐波模式的单光子叠加态[38]. 生成了对光子耗散稳定的光学猫态[41], 以及论证后选择过程中HHG能量守恒对光场Wigner函数非经典性的影响[42]. 该研究组预测在其他强场过程例如ATI等, 也可以通过消耗红外驱动光子及后选择的方式制备猫态. 这些改进使得利用HHG生成猫态成为可行且性能优异的制备方案, 拓宽了强场过程在量子光学, 量子信息理论和实验研究的应用前景.

4.2 HHG过程制备压缩

Stammer等人[43]证明了在基态耗尽即SFA失效时, HHG光场不仅具备关联性质, 还呈现正交分量压缩. 在基态显著耗尽的情况下, 他们修正了偶极作用形式至二阶关联, 并得到了驱动模式的修正:

$$|\Psi_1\rangle = \hat{D}[\alpha]\hat{D}[\chi_1]\mathrm{S}(\Phi)|0\rangle. \tag{17}$$

式中, S为压缩算符. 相对SFA下相干态驱动的HHG过程, 驱动模式额外“经历”一个压缩算符的调制. 经过一系列推导得到[43], 压缩参数与基态耗尽的程度正相关, 且幅值和相位受到驱动脉冲CEP位移的影响. 所有模式的压缩形式如下式所示:

$$\langle Q^2\rangle = -g^2\sum_{q,p}\sqrt{qp}[a_q^\dagger a_p^\dagger\langle\mathbb{D}(\omega_q)\mathbb{D}(\omega_p)\rangle - a_q^\dagger a_p\langle\mathbb{D}(\omega_q)\mathbb{D}^\dagger(\omega_p)\rangle + \mathrm{H.c.}]. \tag{18}$$

其中, g为耦合强度, $\langle Q^2\rangle$ 对应压缩参数, q和p为模式计数, $\mathbb{D}$为系统非绝热跃迁的累积, 与激光参数和系统特性有关. 所有模式都呈现与其他模式的双模压缩及纠缠. 他们进一步提出通过第一激发态原子HHG, 可以在驱动场和低阶谐波模式中产生单模压缩, 并实现全模式之间的多模压缩[44]. 这为调控场模非经典性质提供了理论方案.

4.3 利用驱动光量子性质制备HHG量子态

HHG强场量子理论中, 驱动光的量子性质可以显著影响谐波模式的量子性质. Cohen研究组[45]采用振幅压缩相干态和原子气体驱动HHG, 并计算产生的谐波Wigner函数, 在部分谐波模式中发现了正压缩现象, 如图8所示. a和b分别是采用等值的振幅和相位压缩光驱动HHG, 各谐波(图中曲线)压缩参数(以正交方差表示)与初始压缩参数的关系. 当驱动光为振幅压缩态时在HHG窗口期为正压缩, 可以在某些谐波模式中实现正压缩的继承, 而在相位压缩情况下, 驱动模式在HHG 窗口期呈现反压缩, 谐波模式呈现反压缩. 因此, HHG谐波模式的量子性质与驱动模式在峰值窗口

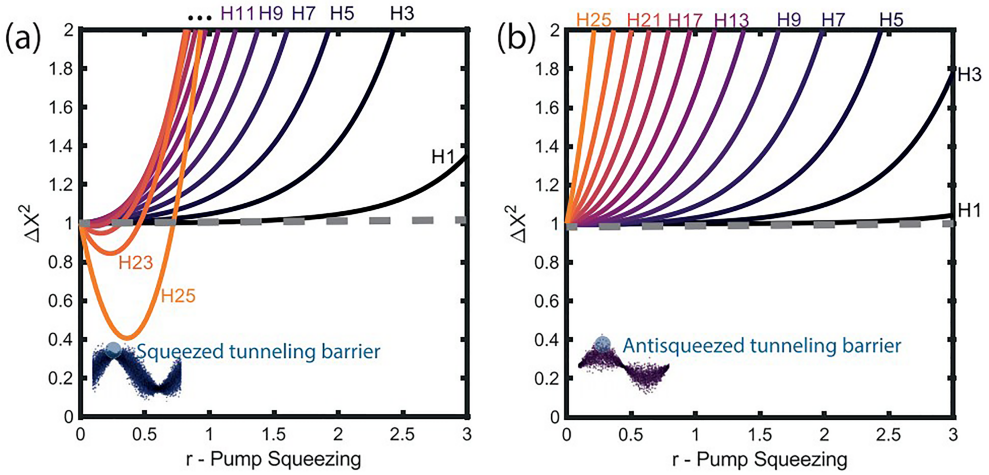


图 8 HHG1到25级谐波量子态坐标的正交方差随驱动光压缩参数幅值的变化图[45]. (a) 振幅压缩情形. (b) 相位压缩情形. 各图左下角给出了振幅压缩和相位压缩的光子统计分布, 图中的H1–H25 对应着1–25阶谐波正交方差的变化曲线. $\triangle X^2 < 1$ 代表压缩, $\triangle X^2 > 1$代表反压缩

Figure 8 Quadrature variance of the quantum states for harmonics 1 to 25 as a function of the amplitude of the driving field's squeezing parameter [45]. (a) Case of amplitude squeezing. (b) Case of phase squeezing. The photon number statistics distributions for amplitude squeezing and phase squeezing are shown in the lower left corners of each panel. The curves labeled H1–H25 in the plots correspond to the variation of quadrature variance for the 1st to 25th harmonics. $\triangle X^2 < 1$ indicates squeezing, while $\triangle X^2 > 1$ indicates antisqueezing.

期内的性质具有强相关.

在固体体系中, Rasputnyi等人[46]在ZnO晶体中证明, 相对于相干态驱动, BSV态驱动的HHG 具有更宽泛的晶体损伤阈值, 在固体内应用非经典态驱动是实验可行的. Madsen研究组[47]证实了谐波模式对驱动光量子性质的继承. 他们发现相对于相干态和Fock态驱动, 热态和BSV态驱动的谐波谱具有显著延展, 且采用BSV场会产生远超半经典理论的带内谐波辐射强度. 他们发现谐波模式继承了驱动模式的特定涨落效应, 且BSV态驱动引入了带内谐波模式与带间电流之间的相互作用. 此外, Lemieux等人[48]提出了利用BSV光驱动产生谐波光子聚束的实验方案. 他们用BSV场对半导体的HHG发射产生扰动, 发现生成的高阶谐波呈现非经典态的同时, 边带存在超泊松特性, 揭示了发射光子存在聚束效应.

这些研究表明, 通过调控驱动光的量子性质制备HHG量子态是完全可行的, HHG有望成为利用红外量子光态调控短波(如XUV或X射线)波段量子性质, 制备高频量子光态的有力工具.

4.4 利用物质系统量子性质制备系统量子态

利用物质系统的量子性质可以在强场量子HHG模型上引入新的自由度和相互作用形式, 在相干态驱动HHG的情况下也能在谐波模式中制备非经典性质.

Rivera-Dean[35]在氢分子离子模型中调整氢分子离子的额外自由度即键长, 在不同偶次谐波中产生反常的Wigner函数环形分布和中心的负性, 并发现与驱动模式中的位移单光子态有关. 此外, 他们对电子成键态和反键态进行条件测量, 发现了谐波与谐波模式间的纠缠. Ivanov研究组[49]论证了在二能级模型下引入缀饰态共振可以在各个光场模式中产生量子效应, 他们从理论上证明了在二能级HHG中引入二能级系统缀饰态与某一光场的共振相互作用会导致产生的所有谐波模式之间的大规模纠缠, 可以由腔内HHG或在足够致密的介质中利用部分生成谐波的吸收特性来实现. 该方案的物理过程如下图9所示. 未引入共振时, 系统缀饰态间谐波互相无关联, 独立演化, 引入共振后则在缀饰态间建立关联, 且由于缀饰态与光场模式耦合, 各谐波模式产生复杂的纠缠效应. 他们在Na原子缀饰态与3阶光场共振体系中计算3阶谐波的Wigner函数以及3阶与5阶谐波正交算符的概率幅(图10), 证实了谐波间存在显著纠缠. Lars等人[50]探究了电子间关联效应对HHG光场量子态的影响. 他们采用强场量子固体HHG理论, 利用费米-哈伯德模型, 研究了完全非

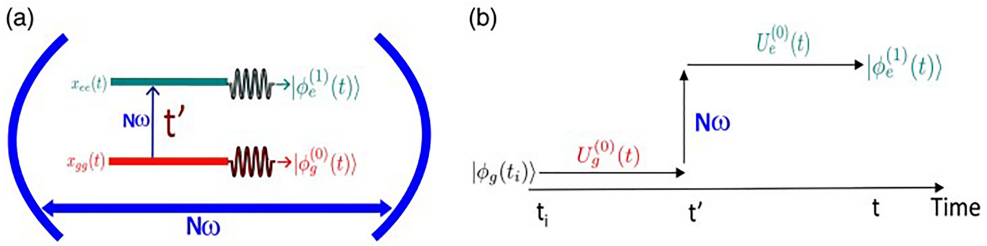


图 9 (a) 腔内缀饰态共振HHG的物理过程示意图(腔的共振频率为$N\omega$). (b) 介质内缀饰态共振HHG的物理过程示意图[49]. 两图中, $|\phi_g^{(0)}(t)\rangle$ 和$|\phi_e^{(1)}(t)\rangle$分别对应基态和激发态的绝热本征态, 系统初始在$|\phi_g^{(0)}(t)\rangle$上绝热演化(下方直线和横箭头), 引入共振后, 在t'时刻发生了N倍频的非绝热跃迁(竖箭头所示), 跃迁后的$|\phi_e^{(1)}(t)\rangle$部分也经历绝热演化(上方直线和横箭头), 由此缀饰态间建立了相互作用

Figure 9 (a) Schematic of the physical process for intracavity-dressed-state resonant HHG (cavity resonance frequency is $N\omega$). (b) Schematic of the physical process for medium-dressed-state resonant HHG [49]. In both figures, $|\phi_g^{(0)}(t)\rangle$ and $|\phi_e^{(1)}(t)\rangle$ correspond to the adiabatic eigenstates of the ground state and the excited state, respectively. The system initially evolves adiabatically on $|\phi_g^{(0)}(t)\rangle$ (lower straight line and horizontal arrow). With the introduction of resonance, an N-th harmonic non-adiabatic transition occurs at time t' (indicated by the vertical arrow). The part transferred to $|\phi_e^{(1)}(t)\rangle$ subsequently undergoes adiabatic evolution (upper straight line and horizontal arrow), thereby establishing an interaction between the dressed states.

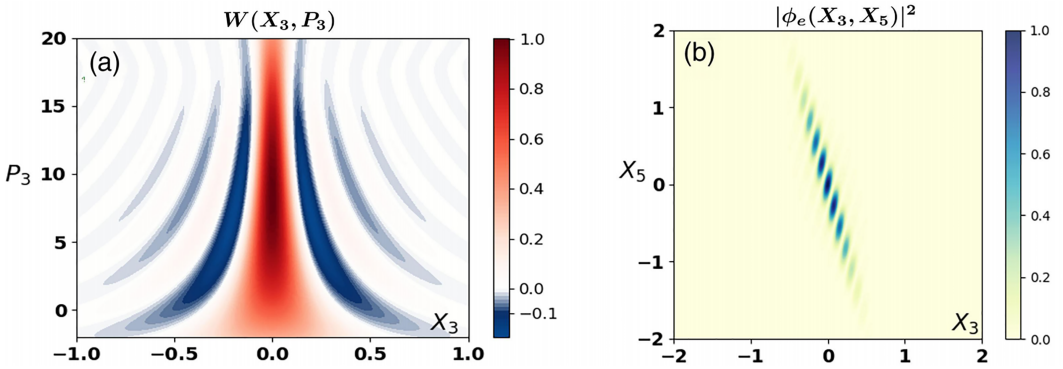


图 10 (a) 三阶谐波的Wigner函数色彩图. (b) 系统对3阶与5阶谐波正交坐标算符测量值的联合分布[49]

Figure 10 (a) Color map of the Wigner function for the third harmonic. (b) Joint distribution of the measured quadrature operator values for the third and fifth harmonics [49].

关联相和关联mott绝缘相两种极限情况下的HHG量子性质. 在完全非关联相中, 只有带内电流HHG光谱有贡献, 谐波为相干态; 在mott绝缘相中, 带间电流对HHG也有贡献, 高阶谐波光场呈现非泊松光子统计以及轻微的压缩效应. Gonoskov等人[37]在固体HHG强场量子理论中引入了非线性布洛赫电流的影响, 发现系统量子态无法简化为各模式的直积. 从而证明了在半导体材料内, 当存在驱动模式与非线性带间结构相互作用时, HHG所有场模间会形成纠缠.

总之, HHG能在多种物质系统中, 通过多种不同的量子相互作用形式形成多体纠缠相干态, 这类量子态可为量子信息处理提供重要资源[51],如改善相位估计[52]和量子态工程[53]. 此外, 谐波的光谱范围可跨越红外到紫外波段, 各个谐波均有望实现压缩与纠缠, 从而拓展量子态制备的频率范围, 实现宽频谱关联, 有助于推动阿秒光谱学和成像技术超越经典极限,提供宽带纠缠阿秒光源的制备和应用方案.

5 总结与展望

综上所述, 高次谐波辐射过程中的非经典效应研究已在理论建模与实验制备方面取得显著进展. 强场量子理论不仅深化了对HHG物理本质的理解, 也为其在量子光源制备、量子信息处理等领域的应用开辟了新路径. 当前, 该领域正朝着制备光子数更多、纠缠度更高的非经典态方向发展, 并在固态系统中展现

出强大的调控潜力. 未来研究可望在更高光子数猫态制备、固态系统中的纠缠精确调控, 以及结合腔量子电动力学等新型体系方面继续深入拓展. 同时, 探索HHG产生的宽带纠缠光源在超快量子传感与超越经典极限的阿秒成像技术中的应用, 也将是极具前景的研究方向.

参考文献

1 Lewenstein M, Balcou P, Ivanov M Y, et al. Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields. Phys Rev A, 1994, 49: 2117–2132
2 Kfir O, Grychtol P, Turgut E, et al. Generation of bright phase-matched circularly-polarized extreme ultraviolet high harmonics. Nat Photon, 2015, 9: 99–105
3 Chen M C, Arpin P, Popmintchev T, et al. Bright, coherent, ultrafast soft X-ray harmonics spanning the water window from a tabletop light source. Phys Rev Lett, 2010, 105: 173901
4 Corkum P B. Plasma perspective on strong field multiphoton ionization. Phys Rev Lett, 1993, 71: 1994–1997
5 Lein M, Marangos J P, Knight P L. Electron diffraction in above-threshold ionization of molecules. Phys Rev A, 2002, 66: 051404
6 Uiberacker M, Uphues T, Schultze M, et al. Attosecond real-time observation of electron tunnelling in atoms. Nature, 2007, 446: 627–632
7 Drescher M, Hentschel M, Kienberger R, et al. Time-resolved atomic inner-shell spectroscopy. Nature, 2002, 419: 803–807
8 Gombkötő Á, Czirják A, Varró S, et al. Quantum-optical model for the dynamics of high-order-harmonic generation. Phys Rev A, 2016, 94: 013853
9 Gorlach A, Neufeld O, Rivera N, et al. The quantum-optical nature of high harmonic generation. Nat Commun, 2020, 11: 4598
10 Tsatrafyllis N, Kominis I K, Gonoskov I A, et al. High-order harmonics measured by the photon statistics of the infrared driving-field exiting the atomic medium. Nat Commun, 2017, 8: 15170
11 Pérez A M, Iskhakov T S, Sharapova P, et al. Bright squeezed-vacuum source with 1.1 spatial mode. Opt Lett, 2014, 39: 2403–2406
12 Finger M A, Iskhakov T S, Joly N Y, et al. Raman-free, noble-gas-filled photonic-crystal fiber source for ultrafast, very bright twin-beam squeezed vacuum. Phys Rev Lett, 2015, 115: 143602
13 Fang Y, Sun F X, He Q, et al. Strong-field ionization of hydrogen atoms with quantum light. Phys Rev Lett, 2023, 130: 253201
14 Bogatskaya A V, Volkova E A, Kharin V Y, et al. Polarization response in extreme nonlinear optics: When can the semiclassical approach be used? Laser Phys Lett, 2016, 13: 045301
15 Bogatskaya A, Volkova E, Popov A, et al. Proceedings of the XXV Laser. Phys Workshop, 2016: report 2.2.5
16 Bogatskaya A, Volkova E, Popov A. Spontaneous transitions in atomic system in the presence of high-intensity laser field. Europhys Lett, 2016, 116: 14003
17 Gao J, Shen F, Eden J G. Interpretation of high-order harmonic generation in terms of transitions between quantum Volkov states. Phys Rev A, 2000, 61: 043812
18 Gonoskov I A, Tsatrafyllis N, Kominis I K, et al. Quantum optical signatures in strong-field laser physics: Infrared photon counting in high-order-harmonic generation. Sci Rep, 2016, 6: 32821
19 Lewenstein M, Ciappina M F, Pisanty E, et al. Generation of optical Schrödinger cat states in intense laser-matter interactions. Nat Phys, 2021, 17: 1104–1108
20 van Essen P J, Nie Z, de Keijzer B, et al. Toward complete all-optical intensity modulation of high-harmonic generation from solids. ACS Photonics, 2024, 11: 1832–1843
21 Yu C, Jiang S, Lu R. High order harmonic generation in solids: A review on recent numerical methods. Adv Phys-X, 2019, 4: 1562982
22 Jiang S, Chen J, Wei H, et al. Role of the transition dipole amplitude and phase on the generation of odd and even high-order harmonics in crystals. Phys Rev Lett, 2018, 120: 253201
23 Huttner U, Schuh K, Moloney J V, et al. Similarities and differences between high-harmonic generation in atoms and solids. J Opt Soc Am B, 2016, 33: C22
24 Runge E, Gross E K U. Density-functional theory for time-dependent systems. Phys Rev Lett, 1984, 52: 997–1000
25 Aklilu Y S, Varga K. Description of the hydrogen atom and the He^+ ion in an optical cavity using the Pauli-Fierz Hamiltonian. Phys Rev A, 2024, 110: 043119
26 Gorlach A, Tzur M E, Birk M, et al. High-harmonic generation driven by quantum light. Nat Phys, 2023, 19: 1689–1696

27 Drummond P D, Gardiner C W. Generalised P-representations in quantum optics. J Phys A-Math Gen, 1980, 13: 2353–2368
28 Stammer P. Absence of quantum optical coherence in high harmonic generation. Phys Rev Res, 2024, 6: L032033
29 Even Tzur M, Cohen O. Motion of charged particles in bright squeezed vacuum. Light Sci Appl, 2024, 13: 41
30 Wang S J, Yu S G, Lai X Y, et al. High harmonic generation from an atom in a squeezed-vacuum environment. Phys Rev Res, 2024, 6: 033010
31 Wang Y B, Bian X B. High-order harmonic generation in quantum light by a generalized von Neumann lattice method. Phys Rev A, 2025, 111: 043111
32 Rivera-Dean J. Role of short and long trajectories on the quantum-optical state after high-order harmonic generation. Phys Rev A, 2024, 110: 063704
33 Lein M, Hay N, Velotta R, et al. Role of the intramolecular phase in high-harmonic generation. Phys Rev Lett, 2002, 88: 183903
34 Suárez N, Chacón A, Pérez-Hernández J A, et al. High-order-harmonic generation in atomic and molecular systems. Phys Rev A, 2017, 95: 033415
35 Rivera-Dean J, Stammer P, Maxwell A S, et al. Quantum-optical analysis of high-order harmonic generation in H_2^+ molecules. Phys Rev A, 2024, 109: 033706
36 Rivera-Dean J, Stammer P, Maxwell A S, et al. Nonclassical states of light after high-harmonic generation in semiconductors: A Bloch-based perspective. Phys Rev B, 2024, 109: 035203
37 Gonoskov I, Sondenheimer R, Hünecke C, et al. Nonclassical light generation and control from laser-driven semiconductor intraband excitations. Phys Rev B, 2024, 109: 125110
38 Stammer P. Theory of entanglement and measurement in high-order harmonic generation. Phys Rev A, 2022, 106: L050402
39 Rivera-Dean J, Lamprou T, Pisanty E, et al. Strong laser fields and their power to generate controllable high-photon-number coherent-state superpositions. Phys Rev A, 2022, 105: 033714
40 Rivera-Dean J, Stammer P, Pisanty E, et al. New schemes for creating large optical Schrödinger cat states using strong laser fields. J Comput Electron, 2021, 20: 2111–2123
41 Stammer P, Martos T, Meildzioc G, et al. Metrological robustness of high photon number optical cat states. Quantum Sci Technol, 2024, 9: 054047
42 Rivera-Dean J, Lamprou T, Pisanty E, et al. Quantum state engineering of light using intensity measurements and postselection. Phys Rev A, 2025, 112: 013110
43 Stammer P, Rivera-Dean J, Maxwell A S, et al. Entanglement and squeezing of the optical field modes in high harmonic generation. Phys Rev Lett, 2024, 132: 143603
44 Rivera-Dean J, Crispin H B, Stammer P, et al. Squeezed states of light after high-order harmonic generation in excited atomic systems. Phys Rev A, 2024, 110: 063118
45 Tzur M E, Birk M, Gorlach A, et al. Generation of squeezed high-order harmonics. Phys Rev Res, 2024, 6: 033079
46 Rasputnyi A, Chen Z, Birk M, et al. High-harmonic generation by a bright squeezed vacuum. Nat Phys, 2024, 20: 1960–1965
47 Gothelf R V, Lange C S, Madsen L B. High-order harmonic generation in a crystal driven by quantum light. Phys Rev A, 2025, 111: 063105
48 Lemieux S, Jalil S A, Purschke D N, et al. Photon bunching in high-harmonic emission controlled by quantum light. Nat Photon, 2025, 19: 767–771
49 Yi S, Klimkin N D, Brown G G, et al. Generation of massively entangled bright states of light during harmonic generation in resonant media. Phys Rev X, 2025, 15: 011023
50 Lange C S, Hansen T, Madsen L B. Electron-correlation-induced nonclassicality of light from high-order harmonic generation. Phys Rev A, 2024, 109: 033110
51 Jeong H, Kim M S, Lee J. Quantum-information processing for a coherent superposition state via a mixedentangled coherent channel. Phys Rev A, 2001, 64: 052308
52 Joo J, Munro W J, Spiller T P. Quantum metrology with entangled coherent states. Phys Rev Lett, 2011, 107: 083601
53 Walmsley I A. Quantum optics: Science and technology in a new light. Science, 2015, 348: 525–530

Nonclassical effects in high-order harmonic radiation

FU Yifei*, ZHAO Di*, GAO Shaoyan & LI Pengbo

Shaanxi Province Key Laboratory of Quantum Information and Quantum Optoelectronic Devices, Ministry of Education Key Laboratory for Nonequilibrium Synthesis and Modulation of Condensed Matter, School of Physics, Xi'an Jiaotong University, Xi'an 710049, China
**Corresponding authors (FU Yifei, email: 15955932@stu.xjtu.edu.cn; ZHAO Di, email: d.zhao@mail.xjtu.edu.cn)*

High-order harmonic generation (HHG) is a significant nonlinear phenomenon triggered by the interaction of intense laser fields with matter. As a high-quality coherent light source, it has found extensive applications in areas such as attosecond pulse generation and ultrafast spectroscopy. Recent studies have revealed the prevalent existence of nonclassical effects in high-harmonic radiation, including nonclassical photon statistics, intermodal correlations, and entanglement. It holds broad development prospects in directions including the generation of nonclassical states with high photon numbers, precise control of entanglement in solid-state systems, and integration with cavity quantum electrodynamics. This review systematically summarizes the research progress concerning the nonclassical effects in HHG. It begins with an overview of the semiclassical model and strong-field quantum theory, clarifying the differences in the quantum properties of harmonic fields when driven by coherent states versus nonclassical states. Subsequently, it focuses on various physical schemes for generating nonclassical optical field states, such as optical cat states and squeezed states, via this process. Research on strong-field HHG not only deepens our understanding of the fundamental nature of intense laser physics but also opens new avenues for the generation and application of quantum light sources in the extreme ultraviolet to X-ray spectral regions.

strong field excitation, quantum optics, harmonic generation, quantum information

PACS: 42.50.Hz, 42.50.-p, 42.65.Ky, 47.40.Ki, 03.67.-a

doi: 10.1360/SSPMA-2025-0489