



基于固体介质的高次谐波和阿秒脉冲产生及应用

夏宇峰^{1,2}, 黄沛^{1,2*}, 付玉喜^{1,2*}

1. 中国科学院大学, 北京 100049;

2. 中国科学院西安光学精密机械研究所, 阿秒科学与技术研究中心, 西安 710119

*联系人, 黄沛, E-mail: huangpei@opt.ac.cn; 付玉喜, E-mail: fuyuxi@opt.ac.cn

收稿日期: 2024-09-08; 接受日期: 2024-10-16; 网络出版日期: 2024-11-11

国家重点研发计划(编号: 2022YFE0111500)、中国科学院稳定支持基础研究领域青年团队计划(编号: YSBR-091)、国家自然科学基金(编号: 12104501, 62175256)、陕西省自然科学基金项目(编号: 2019JCW-03)和陕西省自然科学基金基础研究计划(编号: 2024JC-YBMS-488)资助项目

摘要 超短脉冲激光与物质的强场非微扰相互作用可以实现高次谐波产生(High-order Harmonic Generation, HHG), 目前是阿秒脉冲产生的最有效途径, 其研究范围已从气体扩展到固体材料. 2011年, Ghimire等人首次在ZnO固体中观察到非微扰区的透射高次谐波, 为开发下一代集成化的极紫外阿秒光源提供了新的路径, 也为探索凝聚态体系内部的超快动力学过程提供了新的研究手段. 与气体介质相比, 固体材料具有高密度、空间结构复杂等特点, 其高次谐波的产生机制更为复杂. 本文首先概述了固体高次谐波的独特性质, 并展示了固体高次谐波与气体高次谐波的差异性. 然后列举了固体高次谐波的应用场景, 重点介绍了基于固体高次谐波产生阿秒脉冲的相关工作. 最后分析了固体高次谐波现存的问题和未来的发展方向.

关键词 超快过程, 高次谐波, 超快光谱学, 阿秒科学

PACS: 42.65.Re, 42.65.Ky, 78.47.J-, 33.20.Xx

1 引言

随着超快激光技术的快速发展, 激光脉冲的可聚焦峰值功率密度已达到 10^{22} W/cm²^[1], 这远远超过了氢原子内部基态玻尔轨道上的库仑场强所对应的功率密度. 因此, 当原子与电场强度接近甚至超过原子内部库仑电场的激光电场相互作用时, 会出现一系列无法用微扰非线性光学解释的物理现象, 如隧穿电离、阈上电离、高次谐波产生等. 其中, 高次谐波产生^[2,3]是强

场物理中一种典型的非微扰、非线性物理现象. 目前气体高次谐波产生可以用半经典的“三步模型”进行解释^[4], 如图1(a)所示, 该模型主要包括三个过程: 第一, 原子中的电子在强激光场的作用下发生隧穿电离, 成为准自由电子; 第二, 进入连续态的准自由电子在激光电场的作用下发生振荡, 并获得额外的动能; 第三, 在激光电场的驱动下, 该电子有一定概率返回到母核离子附近并复合回到原子基态, 同时辐射出一个光子以释放出多余能量, 辐射的光子能量在数值上等于原

引用格式: 夏宇峰, 黄沛, 付玉喜. 基于固体介质的高次谐波和阿秒脉冲产生及应用. 中国科学: 物理学 力学 天文学, 2025, 55: 214203

Xia Y F, Huang P, Fu Y X. Generation and applications of high-order harmonics and attosecond pulses in solids (in Chinese). Sci Sin-Phys Mech Astron, 2025, 55: 214203, doi: [10.1360/SSPMA-2024-0386](https://doi.org/10.1360/SSPMA-2024-0386)

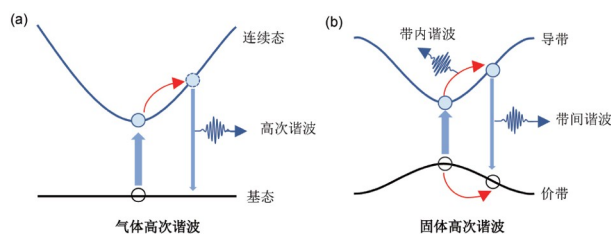


图 1 (网络版彩图)固体和气体高次谐波产生的微观机制. (a) 气体高次谐波; (b) 固体高次谐波

Figure 1 (Color online) Microscopic mechanisms for solid-state HHG and gas-state HHG. (a) Gas-state HHG; (b) solid-state HHG.

子的电离能加上电子从激光电场中获得的动能. 基于“三步模型”, 气体高次谐波在理论、实验及应用等方面都取得了巨大的进展, 已用于产生相干软X射线和孤立阿秒脉冲^[5-10]、分子轨道超快复合成像^[11-13]、探测分子内电子电离时间^[14]等.

气体高次谐波已在多个领域展现出广泛的应用前景, 但气体原子密度较低, 谐波转化效率一般低于 10^{-4} 量级^[15]. 此外, 气体高次谐波的产生依赖于真空泵、真空腔体以及相应的气体靶约束器件, 以确保严格的真空条件和气体靶材的稳定, 这进一步限制了光源的小型化. 为了解决这些问题, 研究人员致力于探索基于固体材料的高次谐波产生. 固体材料原子密度较高、空间结构复杂以及具有良好的结构稳定性, 有望进一步提高谐波的转化效率, 并推动极紫外光源的集成化和小型化.

在20世纪末, 科学家就已经提出了一些理论来探讨固体高次谐波与原子或分子高次谐波在生成机理上的差异^[16]. 进入21世纪, 激光与固体材料相互作用产生高次谐波的实验和理论结果陆续涌现. 2001年, Chin等人^[17]使用波长为 $3.9\ \mu\text{m}$ 的中红外驱动激光与ZnSe晶体相互作用, 成功观察到多阶谐波, 截止阶次达到7阶, 该截止能量低于ZnSe的带隙能量, 属于微扰高次谐波的范畴. 2011年, Ghimire等人^[18]使用中心波长为 $3.25\ \mu\text{m}$ 的少周期中红外飞秒激光与ZnO晶体相互作用, 首次在实验上观察到截止阶次达到25阶的高次谐波光谱, 其截止能量远高于ZnO的能带边缘, 意味着该谐波属于非微扰区域. 实验中观察到固体高次谐波的截止能量与驱动激光电场强度成正比, 其产率也对驱动激光的椭圆度不敏感, 这些特点与气体高次谐波存在显著差异, 表明固体高次谐波有着与气体高次谐波不同的产生机制. 固体高次谐波提供了一个研究

强场物理和凝聚态体系的新方法, 有助于我们更深入地理解光与物质相互作用的基本过程.

近年来, 人们已经在晶体^[19-24]、稀有气体固体^[25]、非晶体^[26,27]、二维材料^[28-30]、纳米结构^[31,32]和拓扑材料^[33-36]等固体材料中均观察到高次谐波产生. 随着实验观察的深入, 相应的理论研究也在不断发展, 目前固体高次谐波的产生机制主要通过固体“三步模型”进行解释^[37-41], 如图1(b)所示. 在动量空间中, 电子在激光电场的作用下从价带跃迁到导带, 同时在价带留下空穴, 电子和空穴分别在导带和价带中被激光电场加速, 非谐性的能带结构促进非谐性带内电流产生, 导致基于带内机制的谐波辐射; 电子在运动过程中有可能与空穴发生碰撞并复合, 释放出高能光子, 导致基于带间机制的谐波辐射, 其能量对应复合瞬间的带隙能量. Vampa等人^[39,40]基于固体“三步模型”阐述了固体与气体高次谐波的内在联系和本质区别. 此外, Li等人^[42]提出了固体高次谐波产生的“四步模型”, 认为价带电子在发生隧穿电离之前存在预加速过程. Jürgens等人^[43]的研究表明, 在接近材料损伤阈值的强场激光下, 电离诱导电流可能是固体高次谐波中低阶谐波的主导因素. Golde等人^[44]通过理论计算揭示了带内谐波和带间谐波之间的干涉效应. 这些研究表明, 尽管固体高次谐波的理论模型已取得显著进展, 但仍有进一步完善的空间. 构建一个全面统一的理论框架, 以准确描述固体高次谐波的产生机制, 是当前固体高次谐波理论研究面临的重要挑战.

2 固体高次谐波的特性

固体材料具有高原子密度、复杂的能带结构和晶体对称性, 导致了与强场相互作用时发生的与周期性势场密切相关的电子动力学过程, 如动态布洛赫振荡和布洛赫散射. 此外, 固体材料中的电子-电子和电子-声子等多体相互作用和退相干过程对高次谐波的产生效率、光谱特性和截止能量有显著影响. 这些因素的综合作用, 使得固体高次谐波在实验观察和理论分析中展现出与气体高次谐波不同的特性.

2.1 固体高次谐波截止能量与激光波长和场强的关系

在气体高次谐波中, 无论气体靶是何种原子, 实验

观察到的高次谐波谱普遍展现出相似的结构特征: 低阶谐波的强度随阶次的增加迅速下降, 随后谐波具有一个平台区域, 在此区域内各阶谐波的强度接近, 最后在平台区末端的某个阶次谐波之后, 谐波强度又迅速下降几个数量级. 在平台区末端, 强度开始迅速下降的谐波能量被称为截止能量 E_{cutoff} . 根据“三步模型”, 可以得到气体高次谐波的截止能量计算公式为 $E_{\text{cutoff}} = 3.17U_p + I_p$, 其中 U_p 为有质动力能, 与激光功率密度和激光波长的二次方成正比, I_p 为原子的电离能. 不同于气体高次谐波, 实验中发现固体高次谐波的截止能量与激光电场强度呈线性关系^[18,20,22]. 研究人员基于带内模型进行了解释^[45,46], 如果电子(或空穴)在余弦型能带中移动, 其截止阶次为 $E_{\text{cutoff}} = eEd / \hbar\omega$, 其中 E 为电场强度, d 为原子间距, ω 为驱动激光频率, 由此可以得到截止能量与激光电场强度呈线性关系. 对于带间模型, 高次谐波截止能量通常位于材料最小和最大带隙能量之间, Vampa等人^[38]采用半经典理论分析带间机制, 将能带色散关于晶格动量进行一阶展开, 假设电子运动范围不超过能带布里渊区的一半, 此时其带隙能量与晶格动量近似为线性关系. 基于这一假设, 截止能量与激光电场强度呈线性关系.

关于固体高次谐波的截止能量与激光波长之间的确切关系, 目前学术界尚未达成共识. 基于上述带内和带间模型的分析, 结论为截止能量与激光波长成正比. 然而, 尽管部分实验和理论研究支持这一线性关系, 但也有一些实验对此提出了异议. Ghimire等人^[47]通过半经典的理论分析, 研究了单个电子波包在余弦型能带中的运动过程, 发现当电场强度足够高时, 截止能量与激光波长无直接关联. Liu等人^[48]通过数值求解含

时薛定谔方程, 发现带内模型的截止能量与激光波长无关, 而带间模型的截止能量与激光波长存在线性依赖. 最近, Wan等人^[49]使用4.0–8.7 μm 的中红外激光驱动CdTe, GaSe以及多晶ZnSe产生高次谐波, 如图2(a)所示, 实验发现截止能量与激光波长无直接相关.

在气体高次谐波产生过程中, 电子被电离到连续态, 其高次谐波光谱通常不呈现多平台结构. 相对地, 在固体材料中, 在强激光电场的作用下, 高次谐波光谱可能会存在多个平台区^[50], 如图2(b)所示. Ndabashi-miye等人^[25]的研究表明稀有气体固体(Ar和Kr)的高次谐波光谱存在多个平台区. 实验中, 他们使用波长为1333 nm的激光聚焦在固体Ar上产生高次谐波. 在低激光强度下, 观察到的高次谐波光谱只有第一平台, 当光强超过10 TW/cm²时, 高次谐波光谱出现第二个平台, 且强度比第一平台低一个数量级. 多平台结构可以在带间模型下解释, 固体材料具有多个导带, 电子在强激光电场的驱动下到达布里渊区边缘, 有概率跃迁到更高导带, 这种跃迁过程可以产生新的平台区并扩展截止能量.

2.2 固体高次谐波转化效率与激光波长和椭圆率的关系

现有的实验和理论结果显示, 气体高次谐波的转化效率会随驱动激光波长的增加而显著下降^[51]. 对于固体高次谐波而言, 其复杂的产生机制导致其转化效率与波长的依赖关系仍存在争议. Wang等人^[52]测量了ZnO在1.8–3.6 μm 驱动激光波长下的高次谐波光谱, 观察到高次谐波产率随波长的增加呈指数下降. 通过理论模拟, 将波长拓展到10 μm , 模拟结果显示带间和带

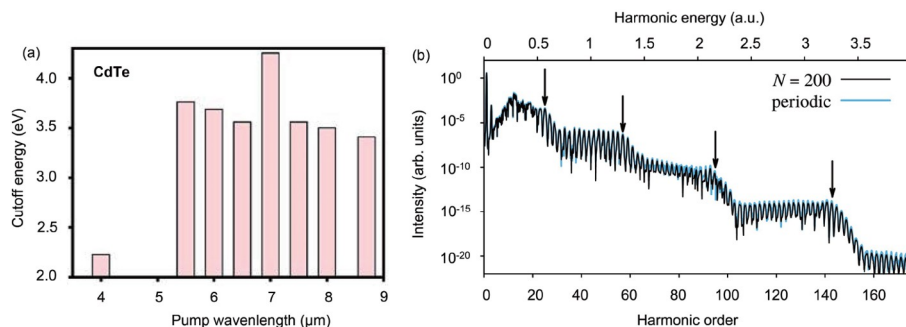


图2 (网络版彩图)固体高次谐波的截止能量特性. (a) CdTe高次谐波截止能量与激光波长的关系^[49]. 图片来自于文献^[49], 并取得授权. (b) 固体高次谐波光谱多平台结构. 图片来自于文献^[50], 并取得授权

Figure 2 (Color online) Cutoff energy of high-order harmonics in solids. (a) The relationship between cutoff energy and laser wavelength from HHG in CdTe ^[49]. Adapted with permission from ref. ^[49]. (b) Multiple plateaus in solid-state HHG ^[50]. Adapted with permission from ref. ^[50].

内模型的高次谐波产率均呈现单调下降趋势. 与此相对, Vampa等人^[37]提出了一种更为复杂的波长依赖模型, 如图3(a)所示. 对于带内模型而言, 当驱动激光波长在中红外波段时, 高次谐波产率随波长增加而单调减小, 但在更长波长下, 高次谐波产率却随波长增加而增加. 然而在带间模型下, 高次谐波产率随波长的增加而单调减小. 最近, Yue和Gaarde^[53]基于理论模拟, 发现偶次谐波的产率在较宽的驱动波长范围内呈现波动现象. Wan等人^[49]研究了CdTe晶体在4–8.7 μm 驱动波长范围内的高次谐波产率, 发现驱动波长小于6.5–7.0 μm 时, 高次谐波产率随波长的增加而单调下降, 而当波长进一步增加时, 高次谐波产率却急剧上升. 研究者认为, 较短波长下, 高次谐波产生机制由带间机制主导, 而在较长波长下, 则由带内机制主导.

在气体高次谐波产生过程中, 驱动激光的椭圆度对电子的动力学行为有显著影响. 由于椭圆度作用, 电子产生的横向位移减小了其与母核离子的复合概率, 因此椭圆度越高, 高次谐波的产率越低. 相对而言, 固体材料具有高原子密度和离域化载流子等特性, 使得电子和空穴的复合不局限于原始位置, 从而减轻了椭圆度对高次谐波产率的影响. 特别地, 稀有气体固体的高次谐波对激光椭圆度的依赖与稀有气体近似^[25], 这归因于其内部的电子局域性强, 与稀有气体类似. 对于其他固体材料, 高次谐波产率对激光椭圆度的依赖性较弱, 并且表现出材料相关的依赖性. 在

半导体材料ZnO中^[18], 仅当激光接近圆偏振时, 高次谐波产率才会显著下降, 且椭圆度对高阶谐波的影响更为显著. 在电介质材料MgO中, 当椭圆度主轴沿晶体不同的晶向时, 高次谐波产率与椭圆度呈现出不同的依赖关系. 通过半经典轨迹模拟, You等人^[24]证实了原子间相互作用以及近邻原子的散射效应对高次谐波产率的影响. 在二维材料石墨烯中, 高次谐波产率展现出反常的椭圆依赖性, 如图3(b)所示. 7阶和9阶谐波在椭圆偏光下得到增强, 而在圆偏振时则完全消失, Yoshikawa等人^[29]基于全量子模拟和石墨烯的半金属特性解释了这种椭圆依赖现象. 在三维拓扑绝缘体 Be_2Se_3 中, 不同阶次的谐波表现出差异化的椭圆依赖性, 通过半导体布洛赫方程模拟, Baykusheva等人^[35]指出 Be_2Se_3 表面态的拓扑特性和强自旋轨道耦合的相互作用导致了这种反常依赖.

2.3 固体高次谐波的啁啾特性

依据气体高次谐波产生的三步模型, 在不同时刻电离的电子会在激光电场的作用下沿不同的轨迹运动, 导致电子与母核离子的复合时刻存在差异. 运动轨迹不同的电子携带不同的能量, 因此产生的高次谐波具有固有的啁啾特性^[54]. 通常, 电子轨迹比产生截止谐波的电子轨迹短的, 称为短轨道, 反之则为长轨道. 对于短轨道电子, 其获得的能量随复合时间增加而增加, 具有正啁啾; 而长轨道电子则相反, 其获得的能量

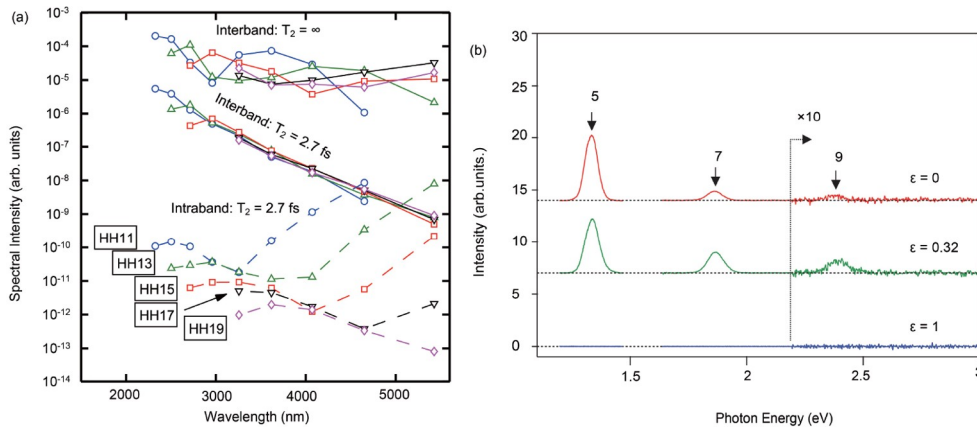


图3 (网络版彩图)固体高次谐波的转化效率. (a) 高次谐波产率与激光波长的关系^[37]. 图片来自于文献^[37], 并取得授权. (b) 不同椭圆度下石墨烯的高次谐波光谱^[29]. 图片来自于文献^[29], 并取得授权

Figure 3 (Color online) Conversion efficiency of high-order harmonics in solids. (a) The relationship between harmonic yield and laser wavelength^[37]. Adapted with permission from ref. [37]. (b) High-order harmonic spectrum for various ellipticities from graphene^[29]. Adapted with permission from ref. [29].

随复合时间增加而降低, 具有负啁啾.

在固体高次谐波产生中, 根据广义的“三步模型”, 带间机制和带内机制展现出不同的啁啾特性^[45,55,56]. 带间机制内, 电子-空穴对在不同时刻复合所释放的能量存在差异. 类似于气体高次谐波中的电子轨迹, 固体中的电子轨迹也分为长轨道和短轨道, 如图4所示, 其中长轨道代表电子每半个周期通过特定动量 k 两次, 而短轨道代表电子每半个周期仅通过特定动量 k 一次. 对于短轨迹, 运动时间越长, 电子-空穴对复合时对应更高的带隙能量, 从而辐射出更高阶次的谐波, 因此谐波携带正啁啾. 与此相对, 长轨道的较长运动时间使得复合时的带隙能量较小, 辐射出更低阶次的谐波, 谐波携带负啁啾. 对于带内机制, 电子在导带中被激光电场加速, 产生非谐性带内电流, 并在同一时刻辐射出高次谐波, 因此不携带啁啾. 科学家们已经对多种固体材料进行实验, 以验证不同机制下固体高次谐波的色散特性. Garg等人^[21]采用半导体布洛赫方程模拟 SiO_2 高次谐波信号并与实验结果相比较, 确定带内机制是高次谐波产生的主导机制, 且高次谐波不携带啁啾. You等人^[57]使用波形可控的少周期飞秒激光来调控 MgO 的高次谐波光谱, 通过含时薛定谔方程模拟, 确定带间机制是高次谐波产生的主导机制, 且高次谐波携带正啁啾. 此外, 该研究指出不同材料的原子键合类型可能与高次谐波的啁啾特性相关. 例如 MgO 具有离子键, 其高次谐波携带啁啾, 而 SiO_2 具有共价键, 其高次谐波不携带啁啾. 这些关于固体高次谐波啁啾的实验和理论研究结果, 为在固体材料中产生孤立阿秒脉冲和研究亚周期动力学过程提供了重要依据.

3 固体高次谐波的应用

作为一种灵敏的光谱学手段, 高次谐波携带了光与物质相互作用信息. 固体高次谐波是人们正在开拓的前沿研究方向, 在表征材料空间结构和能带结构、探测材料内部电子运动过程以及产生新型结构化光源等方面具有重要价值.

3.1 重建材料的能带结构

物质的能带结构决定了它的性质. 在固体材料中, 角分辨光电子能谱技术常被用来测量其能带结构, 它主要探测材料表面的电子结构, 对材料内部的探测能

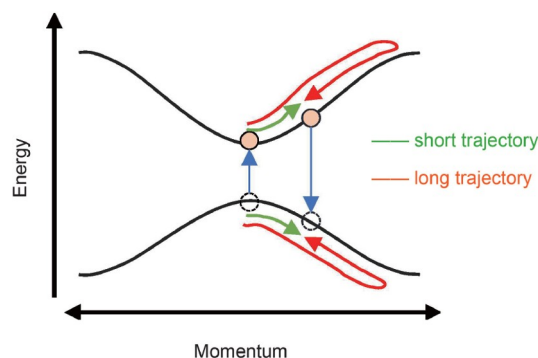


图 4 (网络版彩图) 固体高次谐波带内机制的长轨道与短轨道

Figure 4 (Color online) Long and short trajectories of interband mechanism in solid-state HHG.

力有限; 实验条件较为苛刻, 需要使用高精度的仪器和维持严格的环境条件. 固体高次谐波携带了光与物质相互作用的信息, 为测量材料的能带结构提供一种新的途径.

在带内模型中, 固体高次谐波的产率与材料的能带结构紧密相关. Luu等人^[20]使用脉宽为1.5倍光周期的飞秒脉冲驱动 SiO_2 薄膜产生高次谐波辐射, 并通过半经典模拟和量子力学模拟确认了带内机制的主导作用, 成功重构出晶体的能带结构. Vampa等人^[58]利用带间机制重建 ZnO 的能带结构. 他们使用强基频光和平行偏振的微弱倍频光组成双色场, 双色场的对称性破缺导致偶次谐波的产生. 通过调节双色场之间的相对延时, 检索出各阶次偶次谐波的强度最大值对应的相位, 如图5(a)所示. 使用多组不同的能带结构, 将基于带间模型模拟计算得出的相位与实验得到的相位进行比较, 如图5(b)所示. 最终找出与实验结果最接近的一组能带结构, 实现能带结构的精确重建, 如图5(c)所示. 由于带间机制中电子-空穴对的寿命极短, 这种能带结构测量方法本质上具有超快的时间分辨率. 然而, 对能量位于带隙以上的谐波, 材料的吸收限制了这一技术的应用范围. Lanin等人^[59]使用飞秒中红外脉冲激发 ZnSe 产生高次谐波, 带隙以下的谐波位于材料的透明带范围内, 从而消除了材料吸收对能带重构的限制. 实验中测量了不同阶次谐波强度与驱动激光强度的依赖关系, 通过比较实验数据和带内模型的模拟结果, 成功重建 ZnSe 的能带结构. Uzan等人^[60]解析了动态联合态密度与高次谐波光谱之间的关系, 成功重构出 MgO 多个未占据的高导带结构. Lv等人^[36]成功反演了Weyl

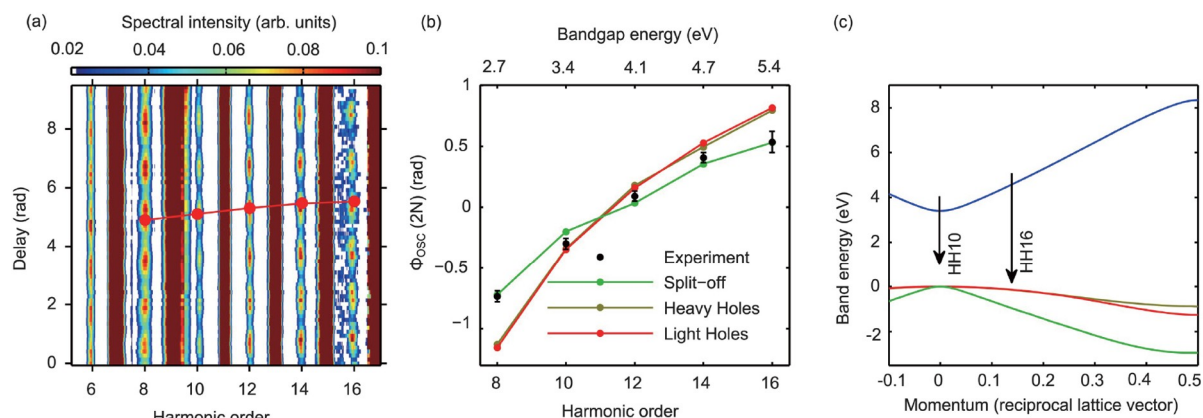


图 5 (网络版彩图)重建ZnO的能带^[58]. (a) 从ZnO晶体得到的实验光谱图; (b) 实验与计算得出的最佳相位; (c) 重建的能带结构. 图片来自于文献[58], 并取得授权

Figure 5 (Color online) Reconstruction of the energy band of ZnO [58]. (a) Experimental spectrogram obtained from a ZnO crystal; (b) the experimentally measured and calculated optimum phases; (c) the reconstructed band structure. Adapted with permission from ref. [58].

半金属材料 β -WP₂费米能级附近的能带结构, 反演结果与计算结果近似一致. 以上实验和理论结果证明了基于固体高次谐波的全光学重建材料能带结构方法的广泛适用性和有效性.

3.2 产生结构化高次谐波

结构光具有独特的自旋-轨道角动量分布和拓扑特性, 具有重要研究价值. 研究人员在研究固体高次谐波的产生机制时, 已经发现通过调节驱动光参数或设计具有特定结构的固体材料可实现对高次谐波的有效调控. Langer等人^[61]通过使用线偏振太赫兹激光脉冲照射GaSe晶体, 研究了不同晶向上的高次谐波产生. 实验结果显示, 高次谐波的偏振态和CEP偏移与晶体的对称性密切相关, 这表明通过定制光波形和选择晶体的特定对称方向, 可以成功实现高次谐波的矢量脉冲合成. Zhang等人^[62]通过理论模拟线偏振拉盖尔-高斯光束入射到固体箔上的高次谐波辐射过程, 发现反射和透射光束中均含有携带高阶涡旋模式的高次谐波. Nagai等人^[63]将圆偏振高斯光束紧聚焦到GaSe晶体中, 通过使用光谱仪和彩色CMOS相机, 捕获了高次谐波的光谱和空间轮廓, 实验光路如图6(a)所示. 实验中观察到高次谐波具有左旋圆偏振和右旋圆偏振分量, 如图6(b)所示, 且高次谐波的左旋和右旋圆偏振分量展现出不同的空间分布特征, 如图6(c)所示. 通过含时密度泛函理论的模拟, 研究者们重建了实验结果, 并揭示了自旋-轨道角动量相互作用产生的动态对称性

对高次谐波产生的影响, 为基于材料的结构化光脉冲产生以及探索其在极紫外区域的拓扑特性提供了全新的方法和手段.

3.3 测量高阶非线性极化率

为了深入了解材料的非线性响应特性, 精确测量其非线性极化率至关重要. 目前, Z扫描法、简并四波混频法、光克尔效应等技术已被广泛应用于提取材料的低阶非线性极化率. 最近, 研究人员利用阿秒条纹相机技术成功提取出材料的三阶非线性极化率^[64]. 然而, 采用这种方法提取高阶非线性极化率时需要更宽的光谱范围. Han等人^[65]使用波长为800 nm的少周期激光与蓝宝石相互作用产生高次谐波, 并分析其中7, 9, 11阶谐波产率随光强的变化规律, 结合数值模拟, 他们证实了几阶谐波的产生主要受带间机制的支配, 并且电子是通过多光子电离跃迁到导带. 基于带间模型, 研究者推导出 N 阶谐波产率与 N 阶非线性极化率的关系, 通过对实验参数的精确测量, 可以提取出材料的取向依赖性高阶非线性极化率, 如图7所示. 测量结果的绝对值与相对值均与文献[66]中的近似值一致, 从而验证了基于固体高次谐波提取材料高阶非线性极化率的可靠性.

3.4 测量Berry曲率

Berry曲率在拓扑物理领域发挥重要作用, 然而实验上直接测量Berry曲率仍很困难. 近年来, 利用固体

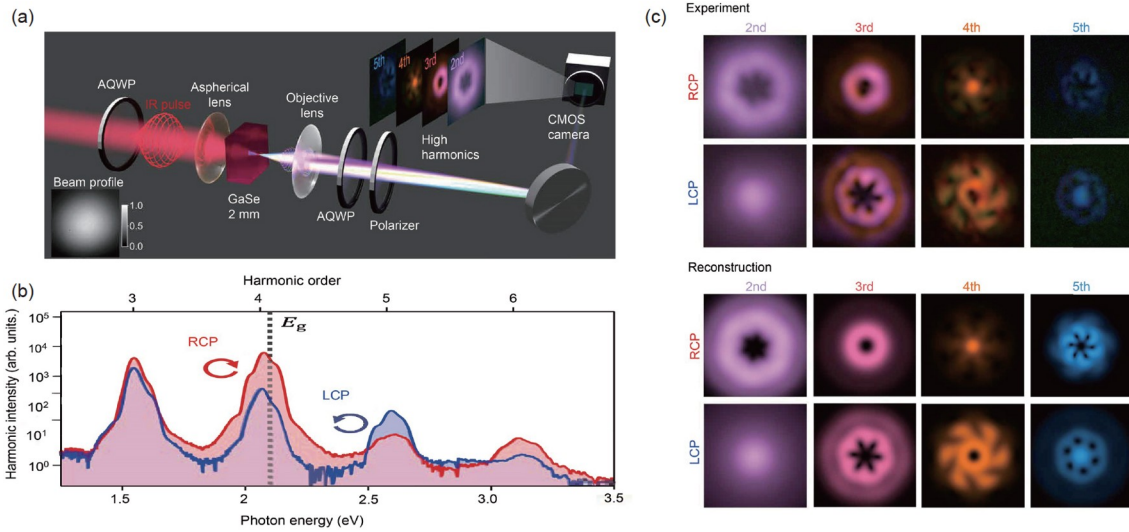


图 6 (网络版彩图)产生结构化高次谐波^[63]. (a) 实验装置; (b) GaSe高次谐波光谱; (c) 结构化高次谐波的空间成像. 图片来自于文献^[63], 并取得授权

Figure 6 (Color online) Generation of structured high-order harmonics ^[63]. (a) Experimental configuration; (b) high-order harmonic spectrum of GaSe; (c) spatial imaging of structured high-order harmonics. Adapted with permission from ref. ^[63].

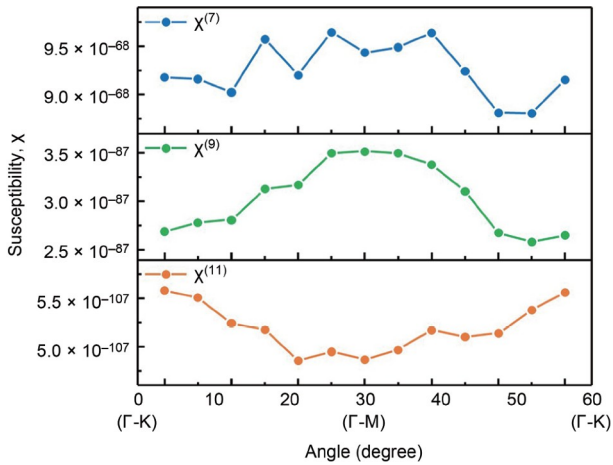


图 7 (网络版彩图)计算所得角度相关的蓝宝石高阶非线性极化率^[65]. 图片来自于文献^[65], 并取得授权

Figure 7 (Color online) Calculated angle-dependent high-order non-linear susceptibilities of sapphire ^[65]. Adapted with permission from ref. ^[65].

高次谐波技术来探测材料的Berry曲率取得了显著进展. Liu等人^[28]使用线偏振的中红外飞秒脉冲在单层MoS₂上产生高次谐波, 发现偶次谐波的偏振方向垂直于泵浦光的偏振方向. 通过基于带内模型的半经典模拟并引入了Berry曲率项, 成功将Berry曲率项与垂直于泵浦光偏振方向的偶次谐波联系起来, 展示了基于固体高次谐波对材料的Berry曲率进行全光学测量的

可能性. Luu和Wörner^[27]使用波长为800 nm的飞秒脉冲在 α -SiO₂中产生高次谐波, 通过测量垂直于泵浦光偏振方向的偶次谐波强度, 利用半经典理论直接反演晶体的Berry曲率, 如图8(a)所示, 反演结果(彩色区域)与基于含时密度泛函理论的计算值(红线)高度一致. Lv等人^[36]成功反演了Weyl半金属材料 β -WP₂费米能级附近的Berry曲率, 如图8(b)所示, 反演结果(红线)与第一性原理计算的Berry曲率(绿线)非常吻合. 这些研究成果不仅展示了固体高次谐波在测量材料Berry曲率方面的潜力, 而且为拓扑物理领域的研究提供了新的实验手段和理论支持.

3.5 探究材料内超快动力学过程

高次谐波光谱携带着材料体系中的电子动力学信息, 可实现对电子动力学过程的超快时间分辨探测. Bionta等人^[67]将波长为7或10 μ m、脉宽为80 fs的驱动激光聚焦到VO₂纳米薄膜上产生高次谐波辐射, 使用波长为1.5 μ m、脉宽为50 fs的泵浦激光激发材料的绝缘-金属相变. 通过调节泵浦光和驱动光之间的时间延迟, 记录不同泵浦强度下的谐波产率随延时的变化, 如图9所示. 当泵浦光作用后, 谐波产率立即下降, 下降幅度随着泵浦能量的增加而变得更加显著. 谐波产率的恢复时间呈现出双指数特征, 分别对应300 fs的快速

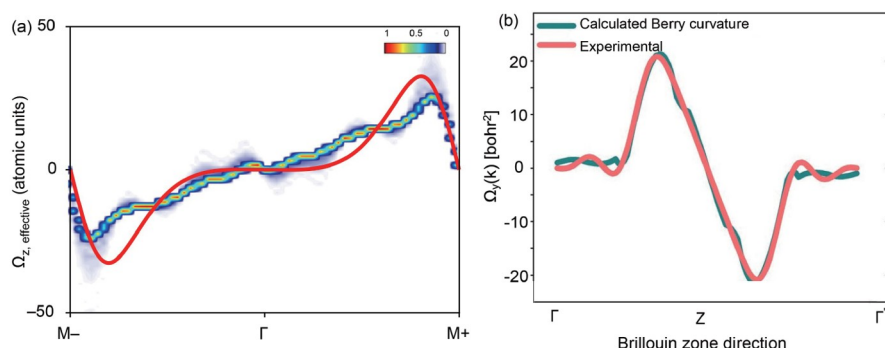


图 8 (网络版彩图)理论计算与实验得到的Berry曲率. (a) α -SiO₂ [27]. 图片来自于文献[27], 并取得授权. (b) β -WP₂ [36]. 图片来自于文献[36], 并取得授权

Figure 8 (Color online) Theoretical and experimental Berry curvature. (a) α -SiO₂ [27]. Adapted with permission from ref. [27]. (b) β -WP₂ [36]. Adapted with permission from ref. [36].

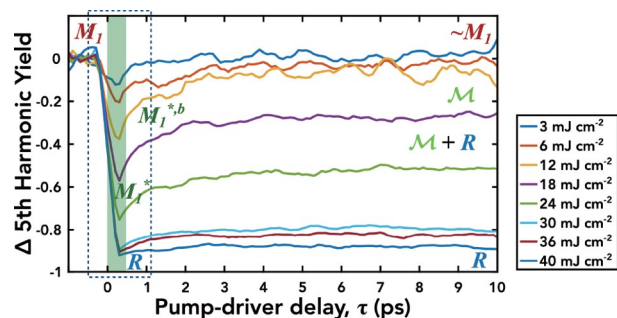


图 9 (网络版彩图) VO₂高次谐波产率与泵浦光强度和延时的关系 [67]. 图片来自于文献[67], 并取得授权

Figure 9 (Color online) The relationship between high-order harmonic yield of VO₂ and pump intensity and delay [67]. Adapted with permission from ref. [67].

时间尺度和1.5 ps的慢速时间尺度. 根据对数值模拟和实验结果的分析, 证明快速项为 M_I^* 相到 $M_I^{*,b}$ 相的跃迁, 慢速项代表 M 相的形成时间. 此外, 高次谐波光谱也被用于探测拓扑材料中的电子态特征. Silva等人 [33] 使用中红外激光脉冲激发拓扑绝缘体中的电子, 使其偏离平衡态并辐射出高次谐波, 通过精确测量不同高次谐波的时间延迟来探测电子的超快动力学. 研究结果不仅证明了Berry曲率在拓扑绝缘体中的重要作用, 而且通过分析高次谐波的偏振和发射时间, 成功表征材料的拓扑特性.

高次谐波光谱不仅可以揭示材料中的电子动力学, 还对材料中的相干声子动力学过程具有极高的灵敏度. Hollinger等人 [68] 通过泵浦-探测技术, 获得了ZnO高次谐波产率与泵浦-探测时间延时的依赖关系, 实验观察到所有阶次谐波均伴随着明显的振荡, 通过

数据分析, 振荡频率为 (2.8 ± 0.2) THz, 与ZnO中横向光学声子模式相对应, 振荡的阻尼率为1.6 ps, 与ZnO中电子-声子散射率相符合. Neufeld等人 [69] 采用密度泛函理论模拟hBN材料的高次谐波辐射过程, 发现谐波产率随泵浦-探测延时呈现强烈振荡, 这与晶格中的超快变化(如特定化学键的压缩或拉伸动力学)密切相关. 特别地, 当泵浦脉冲宽度与声子周期相近时, 高次谐波光谱对驱动光的载波包络相位敏感, 利用这种敏感性, 可实现1/4光周期的时间分辨率, 极大地提高了对超快声子现象的探测精度.

4 固体高次谐波与阿秒脉冲

高次谐波作为光与物质相互作用的直接产物, 蕴含着丰富的物理图像, 已催生出诸多应用技术, 而对于超快物理学研究而言, 高次谐波最重要的应用就是合成阿秒脉冲. 阿秒脉冲的诞生使人们得以直接观测阿秒时间尺度的电子超快动力学过程, 开创了阿秒科学这一全新的科学领域, 极大地拓展了我们对微观世界的认知. 尽管基于气体高次谐波产生的阿秒脉冲奠定了当前阿秒科学的基础, 但其产生效率相对较低. 固体高次谐波的发现, 为提升阿秒脉冲产生效率提供了可能的方案.

与气体高次谐波相比, 固体高次谐波具有以下优势: (1) 固体介质的高密度和结构稳定性, 通过表面微纳结构设计或采用异质结构, 可以显著提高高次谐波的产率 [31,70,71]; (2) 固体高次谐波对驱动光强度的要求显著降低, 一般在 10^{12} W/cm², 有利于实现高重复频率

阿秒脉冲^[72]; (3) 固体高次谐波受驱动激光波动的影响较小, 具有更好的稳定性^[73]; (4) 根据固体高次谐波“三步模型”, 基于带内机制产生的高次谐波无啁啾, 便于获得傅里叶变换极限的阿秒脉冲^[21]. 综合这些优势, 基于固体高次谐波预期可获得高效率、高稳定性、高重复频率的桌面化阿秒脉冲光源.

依据“三步模型”, 驱动光每半个光周期会激发出一个阿秒脉冲. 为了产生孤立阿秒脉冲, 理论上需要将驱动光脉冲宽度限制在一个光周期以内. 然而, 通过阿秒脉冲选通技术, 即使使用长脉冲宽度的驱动激光也能够获得孤立阿秒脉冲^[74]. 阿秒脉冲选通技术主要包括以下几种: (1) 频谱选通, 通过在频域上选择高次谐波截止区的连续谱可以获得孤立阿秒脉冲, 分为振幅选通^[75]和电离选通^[76]; (2) 时间选通, 通过调节光场偏振态等手段, 在时域上限制阿秒脉冲产生的时间窗口, 包括偏振选通^[77]、双光选通^[78]和双色场选通^[79]等; (3) 空间选通, 如阿秒灯塔技术^[80], 通过将不同光周期产生的阿秒脉冲在角度上分开, 在远场进行空间滤波, 以获得孤立阿秒脉冲. 目前, 由于获得单周期驱动光源的难度较大, 选通技术是产生孤立阿秒脉冲的常用方法, 科学家正尝试将选通技术推广到固体高次谐波领域.

Garg等人^[21]使用中心波长为790 nm、脉冲宽度为1.2光周期、峰值场强达到1.1 V/Å的三路相干合成光源在120 nm厚的多晶SiO₂薄膜中进行高次谐波实验, 首次基于固体材料产生了472 as的孤立阿秒脉冲, 其光谱覆盖范围达到18–28 eV. 实验中观察到阿秒脉冲与驱动光的电场峰值在时域上保持同步, 并且该阿秒脉冲不携带啁啾. 通过半经典模拟和半导体布洛赫方程理论分析, 确认了带内机制在该高次谐波产生过程中的主导作用. Guan等人^[81]采用周期势中的单电子模型来模拟固体高次谐波产生过程, 通过数值求解含时薛定谔方程, 发现驱动光的CEP和啁啾可以控制带间和带内机制的相对贡献, 探索出一种基于固体高次谐波产生孤立阿秒脉冲的新方法, 模拟结果表明该方案可产生500 as的孤立阿秒脉冲. Koushki^[82]以hBN为研究对象, 使用含时密度泛函理论计算, 提出了双光选通技术可以用于在固体材料中产生孤立阿秒脉冲. 模拟中使用波长为3.25 μm的圆偏振驱动光和反向圆偏振驱动光组成双色场, 通过调节各自的啁啾以及二者之间的延时, 可获得80 as的孤立阿秒脉冲. 此外, 通

过理论计算, 证实偏振选通^[83]、双色场选通^[84]等选通技术也可以用于在固体材料中产生孤立阿秒脉冲. 这些研究成果表明将气体高次谐波中广泛使用的选通技术应用于固体材料是完全可行的.

相较于气体介质, 固体材料损伤阈值较低, 因此固体高次谐波实验通常采用强度较低的驱动光源, 这导致谐波的光子通量和截止能量较低. 此外, 固体介质内的传播效应也会影响谐波辐射过程^[47]. 在中红外波段超短脉冲的激发下, 即使是宽带隙电介质薄膜材料, 高次谐波的截止能量通常也难以超过40 eV^[20]. 为了克服这些限制, 通过在薄膜材料表面设计微纳结构来增强局部光电场, 从而在不超出材料损伤阈值的前提下提升高次谐波的转化效率和截止能量, 同时减小对谐波的吸收. Vampa等人^[70]将波长为2.1 μm的飞秒激光聚焦在Si薄膜上的金纳米天线阵列上, 尽管表面上天线覆盖范围很稀疏, 但谐波辐射比没有天线的情况下强一个数量级. Liu等人^[71]在Si薄膜上制备了全介电超表面图案, 发现与未图案化的薄膜相比, 谐波辐射增强了两个数量级以上. 尽管如此, 实现具有更高光子通量和更高截止能量的高次谐波仍很困难. Tancogne-Dejean和Rubio^[85]使用含时密度泛函理论, 提出了二维材料中的类原子谐波产生机制, 该机制预测高次谐波截止能量可达80 eV. 在该理论的基础上, Yu等人^[86]提出多层纳米结构材料面间电子背向散射的“四步过程”, 这一新机制将高次谐波的截止能量推高至200 eV, 为在固体材料中实现高能量短脉宽的孤立阿秒脉冲产生提供了新的方案.

综上所述, 与气体高次谐波相比, 固体高次谐波提供了一种利用相对较低强度的驱动光源产生阿秒光源的新方法. 在未来, 通过使用单脉冲能量较低的高重复频率的驱动光源和损伤阈值较高的宽带隙电介质薄膜, 基于固体高次谐波过程获得百阿秒量级的阿秒脉冲是可行的, 可满足大多数超快动力学研究的需求.

5 总结与展望

2011年, Ghimire等人首次在ZnO中观察到非微扰高次谐波, 这项突破性成果将强场激光物理与凝聚态体系紧密相连, 众多实验工作和理论研究自此得到广泛开展. 与气体高次谐波相比, 固体高次谐波展现出独特的物理特性, 这主要源于两个根本性的差异: 固

体材料的高原子密度和周期性势场. 高原子密度有助于提高谐波的转化效率, 周期性势场可以使电子发生多次再散射, 提升谐波截止能量, 为基于固体高次谐波的高性能孤立阿秒脉冲产生提供了理论支撑. 然而, 固体材料的低损伤阈值限制了高能量孤立阿秒脉冲的获取. 材料的损伤阈值与激光波长和脉冲宽度紧密相关. 通常, 脉宽越短, 波长越长, 材料的损伤阈值也会相应提高. 随着后压缩技术^[87]、光参量啁啾脉冲放大技术^[88]和相干合成技术^[89]的快速发展, 中红外波段的少周期驱动光源的获取更加容易, 这显著提高了材料的损伤阈值. 此外, 通过纳米技术和材料工程, 在材料表面制造微纳结构或开发新型量子材料, 可实现提高谐波产率并扩展谐波截止能量. 这些进展为实现高光子通量、短脉冲宽度的阿秒光源提供新的可能性.

近年来, 国内在固体高次谐波领域的研究进展显著, 涵盖了理论探索、实验观察和精密调控等多个方面^[23,42,48,49,86,90-92]. 例如, Su 等人^[90]开展了合成光场调控固体高次谐波的研究, 观察到高次谐波的增强效应, 并有效提高了高次谐波截止区的光子能量. Zuo 等人^[91]使用半导体布洛赫方程探究了 MgO 晶体高次谐波过程, 揭示了邻近原子的弹性散射对电子/空穴的复合过程的显著影响. 总体而言, 目前所取得的成果仍集中在理论模拟领域, 实验研究成果尚待增加. 固体高次

谐波是凝聚态物理、材料学和超快光学等学科领域的交叉研究前沿, 期待国内的理论和实验研究人员能够加强协作, 在固体高次谐波领域实现更多的科学突破.

固体高次谐波携带光与物质相互作用的信息, 为获取材料秉性提供新的工具. 固体高次谐波在重建材料晶体结构和能带结构、测量 Berry 曲率和高阶非线性极化率、产生结构化高次谐波、探索亚原子尺度的超快动力学过程等领域仍有重大潜力等待发掘. 尽管固体高次谐波的研究取得了显著进展, 我们也应注意到固体高次谐波的理论研究仍面临诸多挑战. 目前固体高次谐波理论研究主要基于含时薛定谔方程、半导体布洛赫方程、含时密度泛函理论等数值方法^[92]. 基于单电子近似和偶极近似的含时薛定谔方程很难模拟真实固体材料的高次谐波. 半导体布洛赫方程虽然可以直观描述真实材料的高次谐波辐射过程, 但对于多体相互作用的影响尚缺乏清晰的认知. 含时密度泛函理论在真实空间研究固体高次谐波具有优势, 但其计算量庞大, 有时难以在动量空间直观地分析固体材料中的物理过程. 展望未来, 发展一种简明直观的包含多体相互作用和传播效应的理论模型, 对于深入理解和利用固体高次谐波具有重要意义, 这将推动固体高次谐波研究的进一步发展, 为相关领域的科学探索和技术应用开辟新的道路.

参考文献

- 1 Mourou G A, Labaune C L, Dunne M, et al. Relativistic laser-matter interaction: From attosecond pulse generation to fast ignition. *Plasma Phys Control Fusion*, 2007, 49: B667-B675
- 2 Macklin J J, Kmetec J D, Gordon C L. High-order harmonic generation using intense femtosecond pulses. *Phys Rev Lett*, 1993, 70: 766-769
- 3 McPherson A, Gibson G, Jara H, et al. Studies of multiphoton production of vacuum-ultraviolet radiation in the rare gases. *J Opt Soc Am B*, 1987, 4: 595-601
- 4 Corkum P B. Plasma perspective on strong field multiphoton ionization. *Phys Rev Lett*, 1993, 71: 1994-1997
- 5 Popmintchev T, Chen M C, Popmintchev D, et al. Bright coherent ultrahigh harmonics in the keV X-ray regime from mid-infrared femtosecond lasers. *Science*, 2012, 336: 1287-1291
- 6 Paul P M, Toma E S, Breger P, et al. Observation of a train of attosecond pulses from high harmonic generation. *Science*, 2001, 292: 1689-1692
- 7 Takahashi E, Nabekawa Y, Midorikawa K. Generation of 10- μ J coherent extreme-ultraviolet light by use of high-order harmonics. *Opt Lett*, 2002, 27: 1920-1922
- 8 Hentschel M, Kienberger R, Spielmann C, et al. Attosecond metrology. *Nature*, 2001, 414: 509-513
- 9 Li J, Ren X, Yin Y, et al. 53-attosecond X-ray pulses reach the carbon K-edge. *Nat Commun*, 2017, 8: 186
- 10 Gaumnitz T, Jain A, Pertot Y, et al. Streaking of 43-attosecond soft-X-ray pulses generated by a passively CEP-stable mid-infrared driver. *Opt Express*, 2017, 25: 27506-27518
- 11 Vozzi C, Negro M, Calegari F, et al. Generalized molecular orbital tomography. *Nat Phys*, 2011, 7: 822-826
- 12 Le V H, Le A T, Xie R H, et al. Theoretical analysis of dynamic chemical imaging with lasers using high-order harmonic generation. *Phys Rev A*,

- 2007, 76: 013414
- 13 Itatani J, Levesque J, Zeidler D, et al. Tomographic imaging of molecular orbitals. *Nature*, 2004, 432: 867–871
- 14 Yue S, Li Y, Xue S, et al. Ionization and recombination times of the long trajectory in high-order harmonic generation. *Phys Rev A*, 2022, 106: 023117
- 15 Tamaki Y, Itatani J, Nagata Y, et al. Highly efficient, phase-matched high-harmonic generation by a self-guided laser beam. *Phys Rev Lett*, 1999, 82: 1422–1425
- 16 Faisal F H M, Kamiński J Z. Floquet-Bloch theory of high-harmonic generation in periodic structures. *Phys Rev A*, 1997, 56: 748–762
- 17 Chin A H, Calderón O G, Kono J. Extreme midinfrared nonlinear optics in semiconductors. *Phys Rev Lett*, 2001, 86: 3292–3295
- 18 Ghimire S, DiChiara A D, Sistrunk E, et al. Observation of high-order harmonic generation in a bulk crystal. *Nat Phys*, 2010, 7: 138–141
- 19 Schubert O, Hohenleutner M, Langer F, et al. Sub-cycle control of terahertz high-harmonic generation by dynamical Bloch oscillations. *Nat Photon*, 2014, 8: 119–123
- 20 Luu T T, Garg M, Kruchinin S Y, et al. Extreme ultraviolet high-harmonic spectroscopy of solids. *Nature*, 2015, 521: 498–502
- 21 Garg M, Zhan M, Luu T T, et al. Multi-petahertz electronic metrology. *Nature*, 2016, 538: 359–363
- 22 Kim H, Han S, Kim Y W, et al. Generation of coherent extreme-ultraviolet radiation from bulk sapphire crystal. *ACS Photonics*, 2017, 4: 1627–1632
- 23 He L, Wang W, Tian K, et al. Dual-wavelength spectrum-shaped mid-infrared pulses and steering high-harmonic generation in solids. *Ultrafast Sci*, 2023, 3: 0022
- 24 You Y S, Reis D A, Ghimire S. Anisotropic high-harmonic generation in bulk crystals. *Nat Phys*, 2016, 13: 345–349
- 25 Ndabashimiye G, Ghimire S, Wu M, et al. Solid-state harmonics beyond the atomic limit. *Nature*, 2016, 534: 520–523
- 26 You Y S, Yin Y, Wu Y, et al. High-harmonic generation in amorphous solids. *Nat Commun*, 2017, 8: 724
- 27 Luu T T, Wörner H J. Measurement of the Berry curvature of solids using high-harmonic spectroscopy. *Nat Commun*, 2018, 9: 916
- 28 Liu H, Li Y, You Y S, et al. High-harmonic generation from an atomically thin semiconductor. *Nat Phys*, 2016, 13: 262–265
- 29 Yoshikawa N, Tamaya T, Tanaka K. High-harmonic generation in graphene enhanced by elliptically polarized light excitation. *Science*, 2017, 356: 736–738
- 30 Kobayashi Y, Heide C, Keldar H K, et al. Polarization flipping of even-order harmonics in monolayer transition-metal dichalcogenides. *Ultrafast Sci*, 2021, 2021: 2021/9820716
- 31 Han S, Kim H, Kim Y W, et al. High-harmonic generation by field enhanced femtosecond pulses in metal-sapphire nanostructure. *Nat Commun*, 2016, 7: 13105
- 32 Siviš M, Taucer M, Vampa G, et al. Tailored semiconductors for high-harmonic optoelectronics. *Science*, 2017, 357: 303–306
- 33 Silva R E F, Jiménez-Galán Á, Amorim B, et al. Topological strong-field physics on sub-laser-cycle timescale. *Nat Photon*, 2019, 13: 849–854
- 34 Bai Y, Fei F, Wang S, et al. High-harmonic generation from topological surface states. *Nat Phys*, 2020, 17: 311–315
- 35 Baykusheva D, Chacón A, Lu J, et al. All-optical probe of three-dimensional topological insulators based on high-harmonic generation by circularly polarized laser fields. *Nano Lett*, 2021, 21: 8970–8978
- 36 Lv Y Y, Xu J, Han S, et al. High-harmonic generation in Weyl semimetal β -WP2 crystals. *Nat Commun*, 2021, 12: 6437
- 37 Vampa G, McDonald C R, Orlando G, et al. Theoretical analysis of high-harmonic generation in solids. *Phys Rev Lett*, 2014, 113: 073901
- 38 Vampa G, McDonald C R, Orlando G, et al. Semiclassical analysis of high harmonic generation in bulk crystals. *Phys Rev B*, 2015, 91: 064302
- 39 Vampa G, Brabec T. Merge of high harmonic generation from gases and solids and its implications for attosecond science. *J Phys B-At Mol Opt Phys*, 2017, 50: 083001
- 40 Vampa G, McDonald C, Fraser A, et al. High-harmonic generation in solids: Bridging the gap between attosecond science and condensed matter physics. *IEEE J Sel Top Quantum Electron*, 2015, 21: 1–10
- 41 McDonald C R, Vampa G, Corkum P B, et al. Interband Bloch oscillation mechanism for high-harmonic generation in semiconductor crystals. *Phys Rev A*, 2015, 92: 033845
- 42 Li L, Lan P, Zhu X, et al. Reciprocal-space-trajectory perspective on high-harmonic generation in solids. *Phys Rev Lett*, 2019, 122: 193901
- 43 Jürgens P, Liewehr B, Kruse B, et al. Origin of strong-field-induced low-order harmonic generation in amorphous quartz. *Nat Phys*, 2020, 16: 1035–1039
- 44 Golde D, Meier T, Koch S W. High harmonics generated in semiconductor nanostructures by the coupled dynamics of optical inter- and intraband

- excitations. *Phys Rev B*, 2008, 77: 075330
- 45 Wu M, Ghimire S, Reis D A, et al. High-harmonic generation from Bloch electrons in solids. *Phys Rev A*, 2015, 91: 043839
- 46 Ortmann L, Landsman A S. Chapter two-high-harmonic generation in solids. *Adv Atom Mol Opt Phys*, 2021, 70: 103–156
- 47 Ghimire S, DiChiara A D, Sistrunk E, et al. Generation and propagation of high-order harmonics in crystals. *Phys Rev A*, 2012, 85: 043836
- 48 Liu X, Zhu X, Zhang X, et al. Wavelength scaling of the cutoff energy in the solid high harmonic generation. *Opt Express*, 2017, 25: 29216–29224
- 49 Wan Z, Guan Z, Liu J, et al. Wavelength scaling of high harmonic yields and cutoff energies in solids driven by mid-infrared pulses. *Opt Express*, 2023, 31: 30294–30304
- 50 Yu C, Irvani H, Madsen L B. Crystal-momentum-resolved contributions to multiple plateaus of high-order harmonic generation from band-gap materials. *Phys Rev A*, 2020, 102: 033105
- 51 Marceau C, Hammond T J, Naumov A Y, et al. Wavelength scaling of high harmonic generation for 267 nm, 400 nm and 800 nm driving laser pulses. *J Phys Commun*, 2017, 1: 015009
- 52 Wang Z, Park H, Lai Y H, et al. The roles of photo-carrier doping and driving wavelength in high harmonic generation from a semiconductor. *Nat Commun*, 2017, 8: 1686
- 53 Yue L, Gaarde M B. Characterizing anomalous high-harmonic generation in solids. *Phys Rev Lett*, 2023, 130: 166903
- 54 Ko D H, Kim K T, Nam C H. Attosecond-chirp compensation with material dispersion to produce near transform-limited attosecond pulses. *J Phys B-At Mol Opt Phys*, 2012, 45: 074015
- 55 Vampa G, Hammond T J, Thiré N, et al. Linking high harmonics from gases and solids. *Nature*, 2015, 522: 462–464
- 56 Vampa G, Lu J, You Y S, et al. Attosecond synchronization of extreme ultraviolet high harmonics from crystals. *J Phys B-At Mol Opt Phys*, 2020, 53: 144003
- 57 You Y S, Wu M, Yin Y, et al. Laser waveform control of extreme ultraviolet high harmonics from solids. *Opt Lett*, 2017, 42: 1816–1819
- 58 Vampa G, Hammond T J, Thiré N, et al. All-optical reconstruction of crystal band structure. *Phys Rev Lett*, 2015, 115: 193603
- 59 Lanin A A, Stepanov E A, Fedotov A B, et al. Mapping the electron band structure by intraband high-harmonic generation in solids. *Optica*, 2017, 4: 516–519
- 60 Uzan A J, Orenstein G, Jiménez-Galán Á, et al. Attosecond spectral singularities in solid-state high-harmonic generation. *Nat Photon*, 2020, 14: 183–187
- 61 Langer F, Hohenleutner M, Huttner U, et al. Symmetry-controlled temporal structure of high-harmonic carrier fields from a bulk crystal. *Nat Photon*, 2017, 11: 227–231
- 62 Zhang X, Shen B, Shi Y, et al. Generation of intense high-order vortex harmonics. *Phys Rev Lett*, 2015, 114: 173901
- 63 Nagai K, Okamoto T, Shinohara Y, et al. High-harmonic spin-orbit angular momentum generation in crystalline solids preserving multiscale dynamical symmetry. *Sci Adv*, 2024, 10: eado7315
- 64 Sommer A, Bothschafter E M, Sato S A, et al. Attosecond nonlinear polarization and light-matter energy transfer in solids. *Nature*, 2016, 534: 86–90
- 65 Han S, Ortmann L, Kim H, et al. Extraction of higher-order nonlinear electronic response in solids using high harmonic generation. *Nat Commun*, 2019, 10: 3272
- 66 Boyd R W. *Nonlinear Optics*, 3rd edition. Burlington: Academic Press, 2008
- 67 Bionta M R, Haddad E, Leblanc A, et al. Tracking ultrafast solid-state dynamics using high harmonic spectroscopy. *Phys Rev Res*, 2021, 3: 023250
- 68 Hollinger R, Shumakova V, Pugžlys A, et al. High-order harmonic generation traces ultrafast coherent phonon dynamics in ZnO. *EPJ Web Conf*, 2019, 205: 02025
- 69 Neufeld O, Zhang J, De Giovannini U, et al. Probing phonon dynamics with multidimensional high harmonic carrier-envelope-phase spectroscopy. *Proc Natl Acad Sci USA*, 2022, 119: e2204219119
- 70 Vampa G, Ghamsari B G, Siadat Mousavi S, et al. Plasmon-enhanced high-harmonic generation from silicon. *Nat Phys*, 2017, 13: 659–662
- 71 Liu H, Guo C, Vampa G, et al. Enhanced high-harmonic generation from an all-dielectric metasurface. *Nat Phys*, 2018, 14: 1006–1010
- 72 Luu T T, Scagnoli V, Saha S, et al. Generation of coherent extreme ultraviolet radiation from α -quartz using 50 fs laser pulses at a 1030 nm wavelength and high repetition rates. *Opt Lett*, 2018, 43: 1790–1793

- 73 Garg M, Kim H Y, Goulielmakis E. Ultimate waveform reproducibility of extreme-ultraviolet pulses by high-harmonic generation in quartz. *Nat Photon*, 2018, 12: 291–296
- 74 Chini M, Zhao K, Chang Z. The generation, characterization and applications of broadband isolated attosecond pulses. *Nat Photon*, 2014, 8: 178–186
- 75 Goulielmakis E, Schultze M, Hofstetter M, et al. Single-cycle nonlinear optics. *Science*, 2008, 320: 1614–1617
- 76 Ferrari F, Calegari F, Lucchini M, et al. High-energy isolated attosecond pulses generated by above-saturation few-cycle fields. *Nat Photon*, 2010, 4: 875–879
- 77 Sansone G, Benedetti E, Calegari F, et al. Isolated single-cycle attosecond pulses. *Science*, 2006, 314: 443–446
- 78 Zhao K, Zhang Q, Chini M, et al. Tailoring a 67 attosecond pulse through advantageous phase-mismatch. *Opt Lett*, 2012, 37: 3891–3893
- 79 Pfeifer T, Gallmann L, Abel M J, et al. Single attosecond pulse generation in the multicycle-driver regime by adding a weak second-harmonic field. *Opt Lett*, 2006, 31: 975–977
- 80 Vincenti H, Quéré F. Attosecond lighthouses: How to use spatiotemporally coupled light fields to generate isolated attosecond pulses. *Phys Rev Lett*, 2012, 108: 113904
- 81 Guan Z, Zhou X X, Bian X B. High-order-harmonic generation from periodic potentials driven by few-cycle laser pulses. *Phys Rev A*, 2016, 93: 033852
- 82 Koushki A M. Generation of single isolated attosecond pulse from a monolayer hexagonal boron nitride using a polarization gating technique. *Opt Commun*, 2020, 466: 125679
- 83 Song X, Yang S, Wang G, et al. Control of the electron dynamics in solid-state high harmonic generation on ultrafast time scales by a polarization-skewed laser pulse. *Opt Express*, 2023, 31: 18862–18870
- 84 Nourbakhsh Z, Tancogne-Dejean N, Merdji H, et al. High harmonics and isolated attosecond pulses from MgO. *Phys Rev Appl*, 2021, 15: 014013
- 85 Tancogne-Dejean N, Rubio A. Atomic-like high-harmonic generation from two-dimensional materials. *Sci Adv*, 2018, 4: eaao5207
- 86 Yu C, Jiang S, Wu T, et al. Higher harmonic generation from bilayer nanostructures assisted by electron backscattering. *Phys Rev B*, 2020, 102: 241407
- 87 Wang Z, Heuermann T, Gebhardt M, et al. Nonlinear pulse compression to sub-two-cycle, 1.3 mJ pulses at 1.9 μm wavelength with 132 W average power. *Opt Lett*, 2023, 48: 2647–2650
- 88 Yuan H, Huang P, Feng T, et al. Efficient single-cycle mid-infrared femtosecond laser pulse generation by spectrally temporally cascaded optical parametric amplification with pump energy recycling. *Opt Lett*, 2024, 49: 2269–2272
- 89 Wirth A, Hassan M T, Grguraš I, et al. Synthesized light transients. *Science*, 2011, 334: 195–200
- 90 Su Y, Fang S, Wang S, et al. Optimal generation of delay-controlled few-cycle pulses for high harmonic generation in solids. *Appl Phys Lett*, 2022, 120: 121105
- 91 Zuo R, Trautmann A, Wang G, et al. Neighboring atom collisions in solid-state high harmonic generation. *Ultrafast Sci*, 2021, 2021: 2021/9861923
- 92 Yu C, Jiang S, Lu R. High order harmonic generation in solids: A review on recent numerical methods. *Adv Phys-X*, 2019, 4: 1562982

Generation and applications of high-order harmonics and attosecond pulses in solids

XIA YuFeng^{1,2}, HUANG Pei^{1,2*} & FU YuXi^{1,2*}

¹ University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China;

² Center for Attosecond Science and Technology, Xi'an Institute of Optics and Precision Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Xi'an 710119, China

*Corresponding authors (HUANG Pei, email: huangpei@opt.ac.cn; FU YuXi, email: fuyuxi@opt.ac.cn)

High-order harmonic generation (HHG) has been realized by the strong-field non-perturbative interaction between intense ultra-short laser pulses and matter, which becomes the most effective way to generate attosecond pulses, and has been extended from gases to solids. For the first time, Ghimire et al. observed HHG in the non-perturbative region in ZnO in 2011. Solid-state HHG develops as a new approach for the next generation of compact extreme ultraviolet attosecond light sources and the exploration of ultrafast dynamic processes inside the condensed matter. Compared with gases, solid materials exhibit a characteristic of high density and complex spatial structure, hence the solid-state HHG involves a more complex generation mechanism. Firstly, this review summarizes the unique properties of solid-state HHG and demonstrates its differences from gas-state HHG. Then, it reviews the application scenarios of solid-state HHG and focuses on attosecond pulse generation based on solid-state HHG. Finally, we discuss the existing challenges and future exploration directions of solid-state HHG.

ultrafast processes, high harmonics, ultrafast spectroscopy, attosecond science

PACS: 42.65.Re, 42.65.Ky, 78.47.J-, 33.20.Xx

doi: [10.1360/SSPMA-2024-0386](https://doi.org/10.1360/SSPMA-2024-0386)