

专题: 阿秒物理

## 固体高次谐波产生、调控及应用\*

汪洋 刘煜 吴成印†

(北京大学物理学院, 人工微结构与介观物理国家重点实验室, 北京 100871)

(2022年7月4日收到; 2022年8月5日收到修改稿)

基于超快强激光与物质相互作用的高次谐波产生 (high-order harmonic generation, HHG) 提供了非微扰区光与物质相互作用的研究平台, 同时也是台式化极紫外光源和阿秒脉冲的主要产生途径. 非微扰区固体 HHG 涉及超快强场物理、凝聚态物理、材料科学和信息科学等领域的核心内容, 自 2011 年首次在实验中观察到以来, 迅速成为强场物理和阿秒科学的研究前沿. 本综述从一个实验工作者的角度, 总结了固体 HHG 的研究进展和重要应用. 首先通过对比高次谐波 (high-order harmonic, HH) 产率和截止能量对驱动激光参数的依赖关系, 展示固体 HHG 与气体 HHG 截然不同的特性. 重点介绍固体 HHG 调控和应用方面的进展, 包括通过设计靶材结构或者激光光场实现对 HH 产率、偏振、时空分布等精密调控, 以及固体 HH 谱学技术在材料结构表征和超快电子动力学研究等领域的应用. 最后对固体 HHG 的未来发展进行了展望.

关键词: 超快激光, 强场物理, 高次谐波产生

PACS: 42.65.Ky, 42.65.-k, 42.62.Fi

DOI: 10.7498/aps.71.20221319

## 1 引言

超短超强激光技术的发展, 为人类实时测量和操控物质中电子的高度非线性和非微扰行为提供了重要工具. 高次谐波产生 (high-order harmonic generation, HHG) 作为一种极端光学上转换手段<sup>[1,2]</sup>, 包含丰富的物理, 具有重要的应用, 受到人们的广泛关注. 气体 HHG 可以由所谓的“三步模型”进行描述<sup>[3,4]</sup>: 电子隧穿激光电场和库仑场形成的势垒发生电离; 电离后的电子在激光电场作用下加速; 当激光光场反向后电离电子又被拉回到母核附近以一定概率与母核复合, 将在电场中获得的能量以光子的形式释放出来. “三步模型”直观描述了气体 HHG 的主要过程及其光谱的主要特征, 气体 HHG 已经成为台式化极紫外软 X 射线光源和阿秒脉冲的主要产生途径<sup>[5,6]</sup>. 受限于气体介质的低密度, 气体 HHG 转换效率一般仅为  $10^{-6}$  左右, 固

体介质因为高原子密度而有望提高其转换效率. 1992 年 Farkas 等<sup>[7]</sup> 将中心波长  $1.064 \mu\text{m}$ , 脉冲宽度  $35 \text{ ps}$  的 P 偏振光以  $70^\circ$  角掠入射到抛光金样品表面. 如图 1(a) 所示, 在激光传输方向探测到了高达 5 阶的谐波辐射, 这是将 HHG 扩展到凝聚态体系的首次尝试. 然而, 受限金属介质的屏蔽效应和穿透深度, 其转换效率难以进一步提高. 2011 年, Ghimire 等<sup>[8]</sup> 用中心波长  $3.25 \mu\text{m}$  的强中红外激光照射 ZnO 块材单晶, 如图 1(b) 所示, 在激光透射方向观测到高达 25 阶谐波, 这是实验上首次非微扰区测量到固体 HHG. 不同于气体 HHG, ZnO 中 HHG 截止能量对驱动激光的电场强度呈线性依赖关系, 其产率也对驱动激光的椭圆率不敏感, 预示着气体 HHG 理论不能直接应用于固体 HHG. 固体 HHG 涉及到超快强场物理、凝聚态物理、材料科学和信息科学等领域的核心内容, 可以用来探测固体能带结构以及超快电子动力学, 进一步拓宽了超快强场物理和凝聚态物理的研究方向,

\* 国家重点研发计划 (批准号: 2018YFA0306302) 和国家自然科学基金 (批准号: 12174011, 11625414) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: cywu@pku.edu.cn

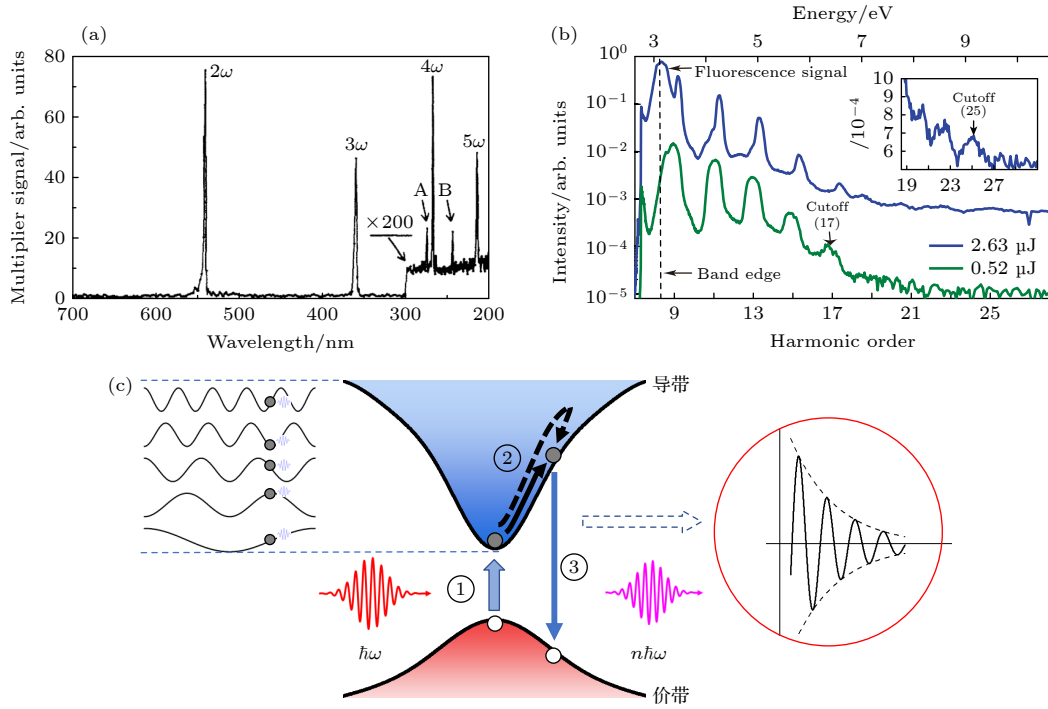


图 1 固体高次谐波 (high-order harmonic, HH) 光谱及其产生机制示意图 (a) 金表面反射 HH 谱<sup>[7]</sup>; (b) ZnO 晶体透射 HH 谱<sup>[8]</sup>; (c) 固体 HHG 机制示意图

Fig. 1. Solid high-order harmonic (HH) spectrum and schematic diagram of HHG mechanism: (a) Reflection HH spectrum of Au surface<sup>[7]</sup>; (b) transmission HH spectrum of ZnO crystal<sup>[8]</sup>; (c) schematic diagram of solid HHG mechanism.

也为材料科学和信息科学的发展带来了新的机遇, 迅速成为强场物理和阿秒科学的研究前沿。

目前实验上从宽带隙介电材料到零带隙新型二维材料等固体材料中都观察到 HHG, 涵盖晶体<sup>[9]</sup>、非晶体<sup>[10]</sup>、超材料<sup>[11–13]</sup>、二维材料<sup>[14–16]</sup>、拓扑材料<sup>[17,18]</sup>和半金属材料<sup>[19–22]</sup>等. 理论上提出了三步模型<sup>[8,23–25]</sup>及扩展的三步模型<sup>[26–31]</sup>描述固体 HHG. Vampa 等<sup>[24]</sup>通过分解带内和带间电流, 提出描述固体 HHG 的“三步模型”. 如图 1(c) 所示, 该模型认为其产生过程可概括为三步: 1) 在超快激光脉冲作用下, 电子从价带最高点进入 (多光子或隧穿) 导带, 并在价带产生对应的空穴, 如箭头①所示; 2) 电子和空穴分别在各自能带被激光电场加速, 非谐性能带促进非谐性带内电流产生, 贡献带内谐波, 如箭头②所示, 其中实线表示短轨道, 虚线表示长轨道, 左侧插图描述能带非谐性分量具体发挥的作用; 3) 电子和空穴在完全退相干前可能再次复合并向外辐射出 HH 光子, 贡献带间谐波, 如箭头③所示, 右侧插图描绘了带间谐波的退相干过程. “三步模型”成功再现了 HHG 截止频率对波长的线性依赖, 并预测二能带模型下截止频率饱和现象, 揭示了固体 HHG 中能带结构所发挥

的作用, 直观地展现固体与气体 HHG 内在的联系与区别, 为后续固体 HHG 的研究及其应用提供了启发. 对“三步模型”的一系列完善, 使模型更符合实际, 包括多能带、布拉格散射和固体中电子离域等特性的影响得到体现. Ikemachi 等<sup>[26]</sup>提出了涉及多条能带的“step-by-step”修正, 成功解释了实验中固体 HH 谱独有的多平台特性, 其中, 电子激发前的带内预加速过程首次被考虑. Ghimire 等<sup>[8,25]</sup>认为电子在带内加速过程中一旦发生动态布洛赫振荡, 电子与布里渊区边界的布拉格散射将拓展带内谐波光子能量范围, 并预测 HHG 截止频率独立于驱动光波长且线性依赖驱动光电场强度, 后者已被多个实验工作证实<sup>[8,32]</sup>. You 等<sup>[27]</sup>重点考虑了电子激发后在实空间中与邻近母核的相干重散射, 他们认为无论电子是否与原空穴重新结合, 相干重散射过程都将辐射高能 HH 光子. 其对价电子的敏感依赖性进一步推动了 HHG 在材料表征领域的应用, 取得了丰硕成果<sup>[33]</sup>. 此外, Wannier-Bloch 表象<sup>[28,34]</sup>、电子-空穴碰撞条件的修正<sup>[30,31]</sup>等模型为研究电子离域对固体 HHG 的影响提供了理论工具. 在准粒子形式的“三步模型”框架之外, 惠更斯-菲涅尔图像<sup>[35]</sup>补充了电子波动性对固体 HHG 的

影响, 为时间分辨动力学研究提供了可靠时钟标定. 尽管描述固体 HHG 的理论框架得到了完善, 然而一个统一理论的形成仍然面临挑战, 诸如电子关联等多体效应和声子等对 HHG 的影响需要后续更深入的研究. 对于固体 HHG 的讨论已经被一些优秀的综述介绍 [36–39], 本综述从一个实验工作者的角度, 介绍固体 HHG 的特性、调控及应用.

## 2 固体 HHG 特性

固体中原子紧密排布使电子本征态变为各格点原子轨道的线性叠加, 靶材具有特定点群对称性. 高原子密度、特殊对称性和电子波函数的离域性使固体 HHG 展现出一些与气体中截然不同的性质.

### 2.1 HHG 截止能量与激光强度依赖关系

气体 HHG 实验使用的驱动激光强度通常在  $10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> 量级 [40,41], 该强度远大于固体靶材的损伤阈值, 图 2(a) 所示为波长 800 nm 激光照射下

不同带隙材料的损伤阈值 [42]. 为了避免材料损伤, 固体 HHG 实验中通常选用波长更长或强度更低的激光进行. 由于固体材料原子密度远高于气体, 固体 HHG 效率显著高于气体介质 [7], 这在很大程度上弥补了长波长和低光强对 HHG 产率的不利影响.

典型的 HH 谱存在平台区和截止区, 平台区表现为在一定波段内各阶次谐波产率基本一致, 而截止区为在一定光子能量以上, 其产率显著下降. 对于气体 HHG, 电子被电离到真空连续态, 其光谱一般不会出现多平台结构. 在固体中, 电子波包可被激发到更高导带, 从而出现多个 HH 光谱平台. Ndabashimiye 等 [32] 在低温下测量了固体氩的 HH 谱, 与相应的气体情况相对比, 固体中观察到了这种多平台结构. 如图 2(b) 所示, 在低激光强度下得到的 HH 谱只有第一平台, 激光强度较高时存在包含 27 阶谐波到 35 阶谐波的第二平台. 多平台性是固体多能带结构的直接反映.

气体 HHG 的截止能量 [43] 满足  $\varepsilon_{\text{cutoff}} = I_p + 3.17U_p$ , 其中  $U_p$  为有质动力能, 与激光波长的二次

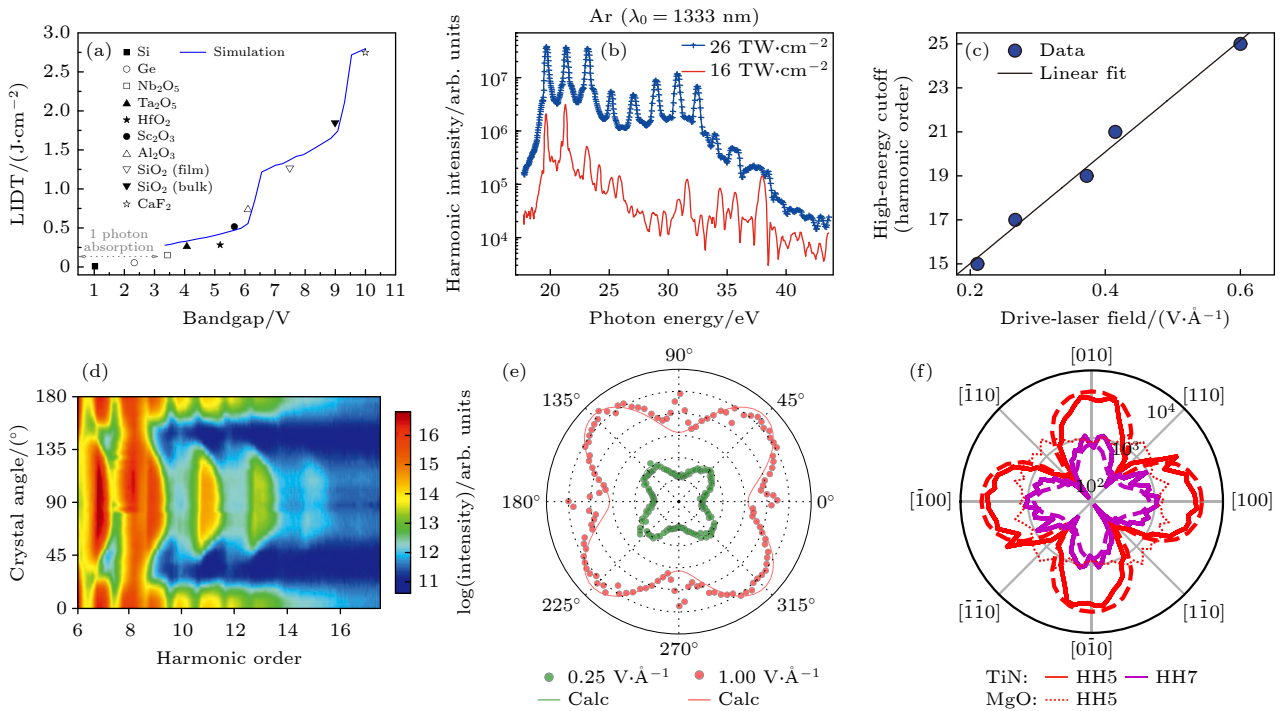


图 2 固体损伤阈值、HH 谱及晶向依赖 (a) 不同带隙固体材料的损伤阈值 [42]; (b) 固体 Ar 的 HHG [32]; (c) ZnO HHG 截止能量与驱动激光场强度呈线性关系 [8]; (d) ZnO [8], (e) MgO [9], (f) 金属 TiN 薄膜 [46] 固体材料 HHG 的晶向依赖

Fig. 2. Damage threshold and HH spectra in solids with different crystallographic orientations: (a) Damage threshold of solid materials with different bandgaps [42]; (b) high harmonic spectrum of solid Ar [32]; (c) linear dependence of the HHG cutoff energy in ZnO with the driving laser field strength [8]. Crystallographic orientation dependence of solid HHG in solid materials of (d) ZnO [8]; (e) MgO [9]; (f) TiN metallic film [46].

方和激光强度成正比. 不同于气体 HHG, 实验发现固体 HHG 的截止能量与激光电场强度成线性关系<sup>[8]</sup>, 即正比于激光强度的平方根, 如图 2(c) 所示. 截止能量与场强成线性关系可以通过 Bloch 振荡<sup>[8]</sup>、缀饰态<sup>[44]</sup> 以及拓展的三步模型<sup>[26–31]</sup> 等理论定性解释.

## 2.2 HHG 产率与晶体晶向以及驱动光椭圆率的依赖关系

固体材料晶面特定的点群对称性, 使不同偏振方向的线偏振驱动光对应不同的布里渊区取向, 导致固体 HHG 具有晶向依赖性, 图 2(d), (e) 分别是实验观测到的 (1120) 面 ZnO<sup>[8]</sup> 和 (001) 面 MgO<sup>[9]</sup> HHG 晶向依赖. 除了晶体对称性外, 还存在其他机制引起的特殊晶向依赖. You 等<sup>[9]</sup> 根据半经典电子实空间运动轨迹的图像解释了 MgO 中 HHG 各向异性, 如图 2(e) 所示, 当电子运动轨迹连接不同格点时 HHG 产率显著增加. Langer 等<sup>[45]</sup> 通过化学键方向解释 GaSe 中 HHG 晶向依赖. 除半导体材料外, 零带隙石墨烯和初始导带非空的金属材料 HHG 也存在特殊的晶向依赖. 对于石墨烯, 由位于各向同性的狄拉克锥的零质量狄拉克电子贡献, 其 HH 产率不随驱动光偏振方向而改变<sup>[19]</sup>. 最近, Korobenko 等<sup>[46]</sup> 实验上发现金属 TiN 膜 HHG 晶向依赖与其费米面对称性不同, 如图 2(f), 具体机制有待进一步研究.

对于气体 HHG, 根据“三步模型”, 电子在椭圆偏光驱动下的横向位移减小了其与母核的复合概率, 导致其产率随驱动光椭圆率增加显著下降<sup>[47]</sup>. 而对于固体, 高原子密度和载流子的离域性使晶格散射和邻位复合成为可能, 从而影响 HHG 的椭圆率依赖. 稀有气体固体 HHG 椭圆率依赖与气体相差不大<sup>[32]</sup>, 这与靶材弱范德瓦耳斯相互作用引起的电子弱离域性相关. 与之相对, 一般半导体如 ZnO 中 HHG 椭圆率依赖较弱, 其产率只有在激光接近圆偏振时才显著降低<sup>[8,29]</sup>. 更令人惊诧的是, 一些具有拓扑表面态的固体材料产生了反常椭圆率依赖, 如拓扑绝缘体 Bi<sub>2</sub>Se<sub>3</sub>, 7 阶谐波在圆偏时最强, 线偏时最弱<sup>[48]</sup>, 与“三步模型”的预测结果大为不同. 除块材外, 二维材料由于带隙的层数依赖特点等, 其 HHG 与椭圆率之间也存在特殊联系. 对于有带隙的少层 MoS<sub>2</sub>, Lou 等<sup>[49]</sup> 实验发现 HHG 椭圆率依赖性与 ZnO 等一般块材类似, 且阶次越高, 产率受椭圆

率调制作用越强, 这种依赖性近乎层数无关的 (对 1—3 层). 而对零带隙的石墨烯, 当驱动光从线偏变为椭圆偏振 (椭圆率  $\varepsilon = 0.32$ ) 时, 7 阶和 9 阶谐波强度得到增强, 变为圆偏光时, 所有 HH 信号消失, 研究者们用零带隙引起的半金属化结合全量子模拟解释了这种特殊的椭圆率依赖<sup>[19]</sup>.

## 2.3 长程有序性对固体 HHG 的影响

Bloch 函数是晶体周期势哈密顿量的本征函数, 带内机制和带间机制图像均与其密切相关. 作为对 HHG 机制的有效补充, 非晶体系可以探索长程有序性对其的影响. 熔融石英在保持固体高原子排列密度的同时, 缺乏长程周期性, 是研究这一问题的理想材料. You 等<sup>[50]</sup> 通过对比熔融石英和单晶石英的 HH 谱, 发现由于宏观中心反演对称性, 熔融石英光谱出现了由奇阶信号组成的平台区, 而单晶石英则出现了两个由奇偶信号共同构成的明显分离的平台区, 与其多导带结构和中心反演对称性破缺相对应. 根据经典电子运动轨迹模拟不同波长下 HH 产率的场强依赖关系, 当电子运动范围不超过相关长度时两者光谱无明显区别, 理清了长程有序性对 HHG 影响的边界. 进一步, Jürgens 等<sup>[51]</sup> 通过实验手段分辨导带注入电流的影响, 证明其对低阶谐波的贡献不因无序而关闭. 除了熔融石英, 液态介质因为短程有序而长程无序的特性, 是研究长程有序性对 HHG 影响的另一理想平台. 目前, 水<sup>[52–54]</sup> 和醇类<sup>[54,55]</sup> 的 HHG 已被实验测量, 其 HH 阶次与截止能量等特性与熔融石英较接近. 除了以上常规凝聚态物质外, 对各类准晶的 HHG 研究反映了长程有序性影响的不同侧面<sup>[56]</sup>.

## 3 固体 HHG 精密调控

受限于靶材的各向同性, 气体 HHG 调控通常借助控制驱动光场来实现. 固体靶材的多样性, 以及先进的掺杂和微纳加工技术, 为固体 HHG 精密控制提供了丰富的自由度, 既可以通过光场控制, 也可以靶材控制来实现.

### 3.1 靶材控制

对于固体材料, 尤其是晶体介质, 具有规则原子排列. 因此, 利用不同靶材固有性质或对靶材进行加工设计, 均能方便高效地精密调控固体 HHG.

### 3.1.1 晶向控制

晶体材料具有各向异性原子排列, 不同晶向的物性不尽相同, 固体 HHG 晶向依赖是晶体各向异性的一个具体体现. 如前文所叙述的原子排布将增强特殊实空间轨迹的 HHG 产率, 此外, 晶体晶向可能影响 HH 偏振甚至时间结构. Langer 等<sup>[45]</sup>用太赫兹激光脉冲照射 GaSe 块状单晶, 研究 HHG 与材料晶向的关系. 结果发现: 晶体对称性不仅影响其能量转换效率, 还选择性地旋转了偶阶信号的偏振, 提供了一种控制偶阶和奇阶 HH 之间偏振夹角的手段. 通过调整晶向并选择特定的偏振, HH 频率梳可以实现  $\nu$  和  $2\nu$  之间切换 ( $\nu$  为基频光的频率). 该研究使基于固体 HHG 的载波控制成为可能, 为固体阿秒光子学开拓了新视角.

### 3.1.2 纳米结构设计

基于高重复频率 HHG 极紫外光源在材料表征等方面应用潜力巨大<sup>[57]</sup>, 但是基于气体 HHG 获取高重复频率极紫外光源面临很大挑战<sup>[58,59]</sup>. 主要原因是气体 HHG 对驱动光源的单脉冲能量要求很高, 而高重复频率飞秒激光单脉冲能量通常较低, 难以驱动气体 HHG. 固体 HHG 的优势之一是可以透过微纳结构增强局域光场, 极大降低对驱动光单脉冲能量要求, 使基于纳米结构增强的高重复频率极紫外光源成为可能. Han 等<sup>[11]</sup>研究表明, 金-蓝宝石纳米结构中的表面等离子体元增强了局域光场, 增强非微扰 HHG. 图 3(a) 所示为金-蓝宝石纳米结构扫描电子显微镜 (SEM) 图像, 由于局域场增强, 即使使用 75 MHz 重复频率的飞秒振荡激光泵浦, 也观察到高达 13 阶的谐波, 如图 3(b) 所示. 随后, Vampa 等证明金纳米天线<sup>[60]</sup>和介质超表面<sup>[12]</sup>可以将 Si 单晶 HHG 增强至少 1 个量级. Yang 等<sup>[61]</sup>通过近零介电常数材料 (epsilon-near-zero, ENZ), 使得材料内部等效光强增大 16 倍, 显著提高 HHG 产率. 同时, ENZ 材料辅助的 HH 光谱表现出明显的红移和展宽, 这被认为是光致电子加热和伴随的 ENZ 材料内波长随时间的变化造成的. ENZ 材料的应用为固体 HHG 的研究提供了全新的平台, 为其时间和光谱特性控制提供了可能.

### 3.1.3 界面工程

极紫外光源一般通过超环面反射镜以大角度掠入射方式进行反射聚焦, 但紧凑且高质量聚焦光

斑的获得比较困难. 通过样品界面设计可以同时实现固体 HH 产生、传播和特定阶次谐波聚焦. Sivis 等<sup>[13]</sup>通过在掺杂硅中集成菲涅尔波带片 (Fresnel zone plate, FZP), 实现了对特定阶次谐波的空间聚焦. 图 3(c) 展示了通过 FZP 中增强的三次谐波信号成像结果, 插图是 FZP 模式 (较暗的区域) 的 SEM 图像. 通过沿激光传输方向空间扫描, 得到其空间分布性质, 如图 3(d), (e) 所示. 结果显示, FZP 设计成功实现对 3 阶和 5 阶谐波的高质量聚焦, 谐波自聚焦光斑尺寸达到 1  $\mu\text{m}$ . 可以预见, 通过如  $\text{SiO}_2$  和  $\text{MgO}$  等宽带隙材料的应用, 固体 HH 聚焦控制可以推广到极紫外波段, 为未来紧凑极紫外光源开发和片上集成器件提供了新方向. 虽然微纳结构阵列设计可以控制 HH 空间特性, 但是微纳结构本身被低损伤阈值限制, 掺杂超表面克服了这一限制, 有望更进一步应用. 以超表面和能带工程<sup>[62]</sup>为代表的界面修饰为固体 HHG 的多自由度控制和光谱定制提供了一个广阔的平台.

## 3.2 光场控制

除了通过固体靶材对 HHG 进行调控, 气体中的光场调控手段同样适用于固体. 对于 HHG 这样一个亚光学周期内的极度非线性光发射过程, 其行为敏感依赖于电场波形. 通过少周期脉冲的载波包络相位 (carrier-envelope phase, CEP) 或者双色合成激光场, 其子周期干涉动力学可以被有效控制. 少周期光驱动固体 HHG, 其光谱敏感依赖于驱动光的 CEP<sup>[10,44]</sup>, 如图 4(a) 所示. 理论上, CEP 依赖的带隙上 HH 谱可以通过激光场缀饰的带间发射解释. 对于两能带系统, 当光子能量与缀饰态的瞬时能量差匹配时, 即发射 HH 光子, 其中光场缀饰态之间的瞬时能量差由  $\varepsilon(t) = 2\sqrt{[\mu A(t)]^2 + (\omega_0/2)^2}$  来表示<sup>[63]</sup>,  $\mu$  为跃迁矩阵元、 $A(t)$  为光场动态矢势、 $\omega_0$  表示带隙. 带间谐波的亚光学周期啁啾和发射对称性破缺, 使得相邻半周期相同光子能量发射偏离  $T/2$  周期性, 由此引入的干涉效应使对应阶次光谱形状发生改变. 这种干涉受相邻半周期光场波形控制, 从而产生 CEP 依赖光谱干涉结构. 对于由动态布洛赫振荡导致的带内谐波, 由于所有 HH 同步发射, 很难被观察到这种 CEP 对 HHG 干涉的调制<sup>[64]</sup>.

CEP 依赖 HHG 展示了通过光场控制 HHG

的亚周期干涉的可能性, 相比于超短脉冲 CEP 调控, 双色倍频激光场为 HHG 精确控制提供更多相互独立的调控自由度, 如相对激光强度、相对相位和偏振控制等. Vampa 等<sup>[65,66]</sup>采用平行双色倍频场打破了单色长脉冲固有的亚周期时间反演对

称性, 形成了分别由光场正负半周期 HHG 构成的非平衡迈克耳孙干涉仪. 通过扫描光场相对相位, HHG 时域干涉情况受到周期性调制, 如图 4(b) 所示. 周期性干涉调制构成了刻画 HHG 啁啾和能带信息的特征指纹.

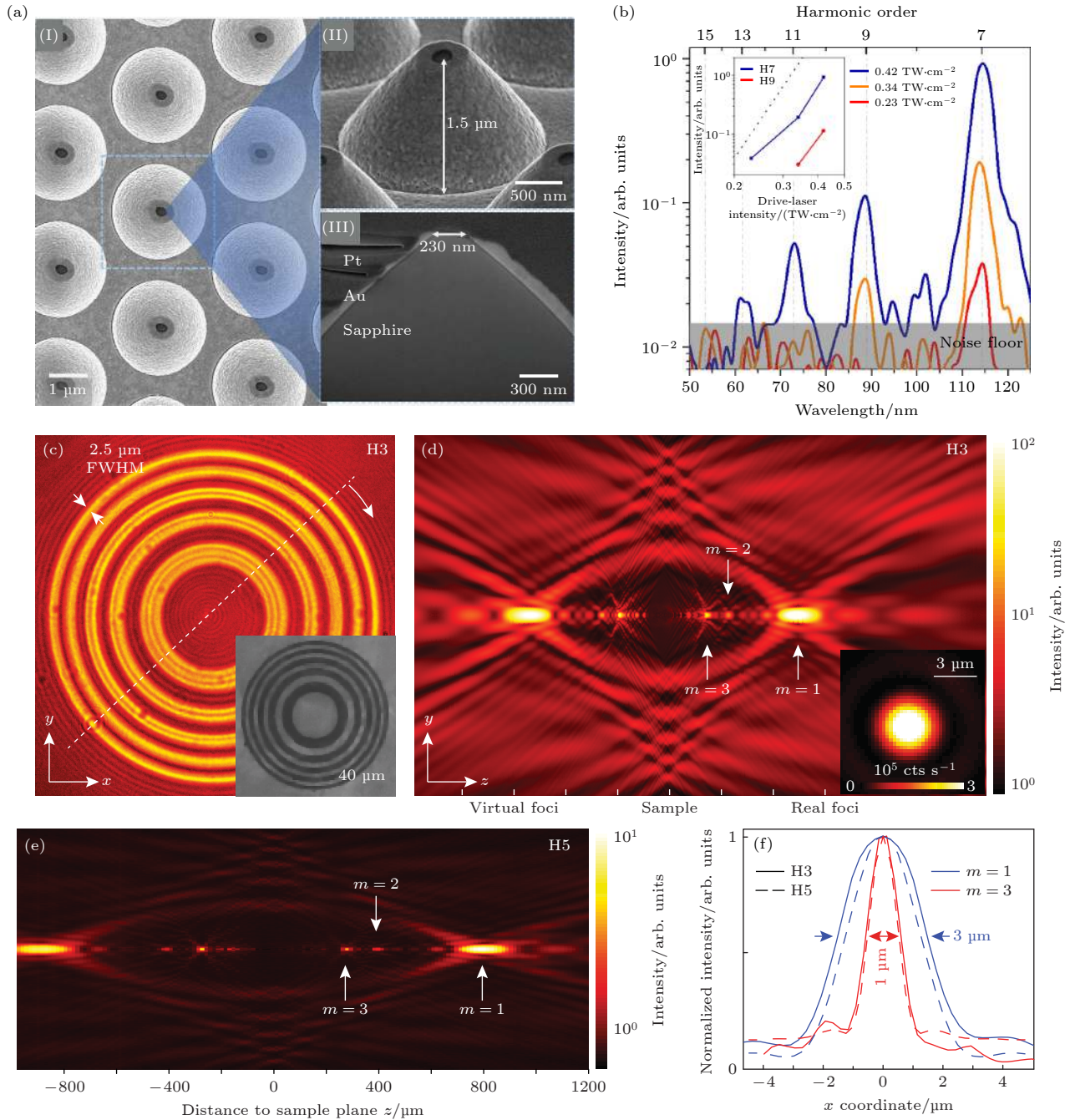


图 3 纳米结构和界面工程控制 HHG. (a), (b) 金属-蓝宝石锥增强 HHG<sup>[11]</sup> (a) 蓝宝石锥的扫描电镜显微图像; (b) 测量的 HH 光谱. (c)–(f) 菲涅尔波带片 HHG<sup>[13]</sup> (c) 在样品平面记录的三次谐波发射模式; (d) 三次和 (e) 五次谐波聚焦扫描; (f) 焦点强度剖面形状

Fig. 3. Control of solid HHG using nanostructure and interface engineering. (a), (b) Enhancement of HHG on a metal-sapphire nanotip<sup>[11]</sup>; (a) Scanning electron microscopy (SEM) image of the tips; (b) measured HH spectra. (c)–(f) HHG from Fresnel zone plate (FZP)<sup>[13]</sup>: (c) Third-harmonic emission pattern recorded at the sample plane; (d) third and (e) fifth harmonic focus scanning as a distance to sample plane; (f) focus intensity profiles.

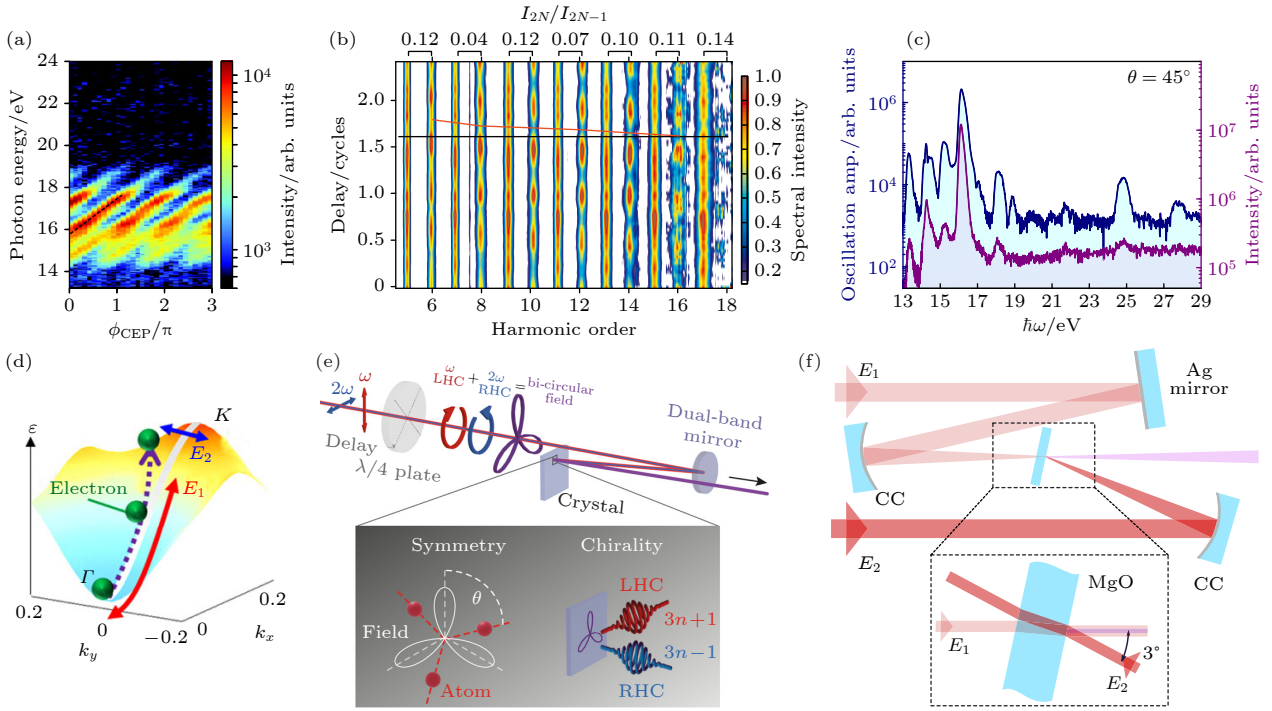


图4 光场控制固体 HHG (a) MgO HH 对 CEP 依赖性<sup>[44]</sup>; (b) ZnO HH 谱与双色场相对延迟关系<sup>[65]</sup>; (c) 锁定测量 MgO HH 谱(青色)和平均光谱(紫色)<sup>[67]</sup>; (d) 双色正交激光场的控制 GaSe 倒空间轨迹示意图<sup>[68]</sup>; (e) 双色反向旋圆偏光合成场控制手性 HHG 示意图<sup>[69]</sup>; (f) 驻波场增强 MgO HHG 示意图<sup>[70]</sup>

Fig. 4. Control of solid HHG by manipulating driving laser field: (a) CEP dependence of HH in MgO<sup>[44]</sup>; (b) HH spectra in ZnO versus delay between two-color fields<sup>[65]</sup>; (c) normalized oscillating harmonic spectrum of lock measurement (cyan) and normalized average spectrum (purple) of MgO<sup>[67]</sup>; (d) schematic diagram of  $k$ -space trajectories of electrons in GaSe, driven by perpendicularly polarized two-color field<sup>[68]</sup>; (e) schematic diagram of controlling chiral HHG by using synthetic two-color counter-rotating circularly polarized light<sup>[69]</sup>; (f) schematic diagram of the enhancement of MgO HHG in the standing wave field<sup>[70]</sup>.

在调制亚周期 HHG 的同时,垂直双色场被证明可以作为一种先进的弱 HH 信号提取手段. Uzan 等<sup>[67]</sup>通过添加一个垂直于基频场偏振的弱二次谐波诱导产生 HH 谱周期性调制,通过添加已知周期时间调制,结合傅里叶分析增强了对淹没在背景噪声中弱 HH 信号的提取,这构成了“锁定测量”,如图 4(c) 所示.通过“锁定测量”技术,更高导带的贡献得以被研究.双色倍频激光以平行或正交方式构成的合成激光场对固体 HHG 的调制得到了充分的研究, Sanari 等<sup>[68]</sup>将双色倍频场推广到任意波长合成光场,如图 4(d) 所示.这种合成激光场驱动电子以更复杂的轨迹运动,使特定阶次转换效率增强约 100 倍.

线偏振合成双色场通过调控电子轨迹,打破系统原有的时间或空间反演对称性,而“三叶草”形激光场对固体 HHG 引入了更强对称性约束,形成独特对称性选择定则,产生手性依赖的圆偏振 HH 发射, Heinrich 等<sup>[69]</sup>对此现象进行了实验验证,如图 4(e) 所示.此外,单色反向传输激光场形成的介

质内驻波场被证明可以有效增强 HH 强度<sup>[70]</sup>,如图 4(f) 所示.材料调控和光场调控可以有效操纵固体 HHG,由此产生的多自由度过程控制极大地推动了固体 HHG 在先进光源、精密测量和信息科学领域的应用.

## 4 固体 HHG 应用

除了作为一种极紫外光源和阿秒脉冲产生手段外,固体 HH 还携带了光与物质相互作用信息,在材料物性和超快动力学表征等领域具有重要应用.固体 HHG 提供了一种全光学亚周期精度电子动力学探针,为材料能带结构的表征和超高时空分辨测量提供了一种全新手段,并成功应用到能带结构重构、贝利曲率测量、准粒子再碰撞动力学观测和价电子皮米量级成像等领域.

### 4.1 紧凑型先进光源

HHG 是一种极端光学上转换过程,与气体 HHG

相比, 固体 HHG 的调控手段更加丰富, 提供了一种紧凑型多自由度可控的先进光源产生途径. 基于固体 HHG 的先进光源具有以下优势: 1) 固体 HHG 对驱动激光功率的要求比气体低 2 个量级以上, 使得高重频固体 HHG 在实验室易于实现; 2) 通过特殊材料和微纳结构设计<sup>[11,71]</sup>, 可以极大提高能量转换效率, 同时实现其波长选择和空间聚焦, 推动固体 HH 光源在信息科学和片上集成光学领域的应用; 3) 基于固体带内谐波辐射, 由于 HH 间无啁啾, 无需额外啁啾补偿即可合成阿秒脉冲光源, Garg 等<sup>[72]</sup>首次基于 SiO<sub>2</sub> 晶体 HHG, 获得并表征了 470 as 孤立阿秒脉冲, 图 5(a) 为 SiO<sub>2</sub> 产生阿秒脉冲测量条纹谱图, 色标表示光电子数; 4) 固体材料由于高密度和周期性, 在产生椭圆偏振甚至圆偏振 HH 方面更具优势. Saito 等<sup>[73]</sup>首次在实验上证实圆偏振基频光可产生圆偏振 HH. Klemke 等<sup>[74]</sup>证实一定椭圆率基频光作用下单晶 Si 可产生圆偏振 HH, 其产率高于圆偏振驱动光. 这是气体中完全不具备的优势, 对圆偏振阿秒脉冲的产生具有重要意义.

与气体相比, 固体受限于材料损伤阈值, HH 光子能量难以突破 40 eV. 虽然纳米结构、超表面和掺杂等技术证明能在材料损伤阈值之下增强

HHG, 然而高光子能量信号获得仍面临挑战. 理论工作预测的单原子层材料面外 HHG<sup>[75]</sup> 和双层材料层间散射<sup>[76]</sup> 为数百电子伏特高光子能量光源获得提供备选方案, 层间排列结构设计和驱动光波长选择为高能极紫外光源提供了新的可控自由度, 如图 5(b) 所示. 相关工作对基于固体 HHG 高光子能量光源的获得提供了指导, 得益于纳米技术的进步有望最终得到应用.

## 4.2 能带结构重构

物质的光学、电学、热学等性能很大程度上依赖于其能带结构, 角分辨光电子能谱利用光电效应, 将光电子能量和动量对应起来, 是固体能带结构表征的常用手段. 但是角分辨光电子能谱仪需要在超高真空环境下使用, 对周围电磁环境和样品要求苛刻. 固体 HHG 是一个极端的光学上转换过程, 与材料性质以及激光参数密切相关. 基于飞秒强激光和固体相互作用 HHG, 提供了一种全光的亚光学周期的电子探针, 为晶体能带结构和电子行为表征提供了一种全新的手段. 固体 HHG 中, 电子在带内的加速和量子轨道携带了材料能带信息. 通过检索量子轨道时间和能量信息, 有望实现全布里渊区固体能带的高精度重构.

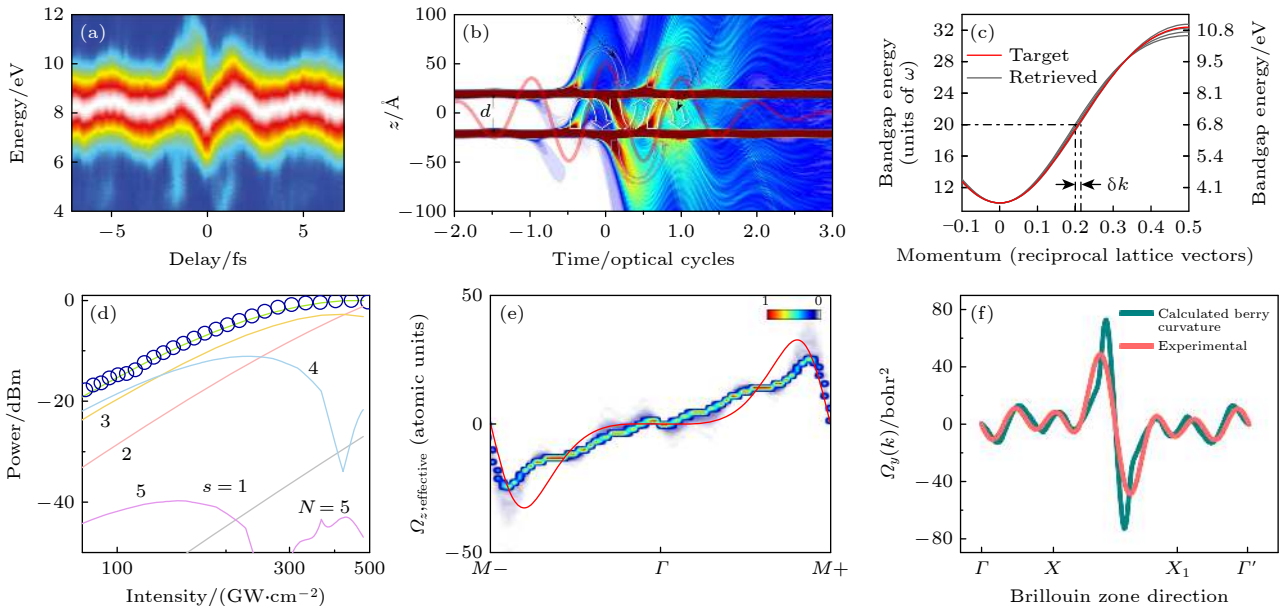


图 5 固体 HHG 应用 (a) SiO<sub>2</sub> 阿秒条纹谱<sup>[72]</sup>; (b) 双层 h-BN 的感应电子密度随时间的演化<sup>[76]</sup>; (c) ZnO 能带重构<sup>[77]</sup>; (d) ZnSe HH 产率随光强的依赖关系<sup>[78]</sup>; (e)  $\alpha$ -石英贝利曲率重构<sup>[79]</sup>; (f)  $\beta$ -WP<sub>2</sub> 贝利曲率重构<sup>[24]</sup>

Fig. 5. Applications of solid HHG: (a) Attosecond-streaking spectrogram in SiO<sub>2</sub><sup>[72]</sup>; (b) time evolution of induced electronic density for distant bilayer h-BN<sup>[76]</sup>; (c) band reconstruction of ZnO<sup>[77]</sup>; (d) the power of HHG yield versus driving laser intensity for ZnSe<sup>[78]</sup>; (e) retrieved Berry curvature of  $\alpha$ -quartz<sup>[79]</sup>; (f) retrieved Berry curvature of  $\beta$ -WP<sub>2</sub><sup>[24]</sup>.



Vampa 等<sup>[77]</sup>通过平行双色倍频场调制 ZnO 单晶中 HHG, 由激光引入的对称性破缺导致偶阶谐波发射. 偶阶谐波强度反映了 HHG 子周期对称性破缺程度, 通过扫描双色场相对延时, 不同轨道依次达到最大破缺, 偶阶谐波表现出依赖于谐波阶次及相位的周期调制. 调制相位定位不同量子轨迹, 偶阶谐波阶次作为能量标尺标定相应轨迹能带差值. 通过实验测量并结合理论模拟, ZnO 能带结构得到高精度重构, 如图 5(c) 所示, 其中红线和灰线分别为目标和重构的动量相关的带隙, 动量分辨率  $\delta k$  高达  $0.02 \text{ \AA}^{-1}$ . 由于再碰撞电子-空穴对亚周期动力学特性, 全光学能带结构测量具有超快时间分辨率. 值得注意的是, 由于传播效应和材料对带隙上 HH 光子的重吸收, 导致固体 HH 谱很难直接精确测量. 同时受限于实验光谱测量范围, 基于带间极化 HHG 对材料能带结构的测量难以扩展到整个第一布里渊区. 考虑到材料对带隙能量下光的透明特性, Lanin 等<sup>[78]</sup>利用带隙能量下 HH 实现 ZnSe 第一导带能带结构测量. 电子和空穴形成的非谐性电流反映了各自能带的失谐情况. 通过模拟非谐性电流随驱动光场强度依赖, 如图 5(d) 所示, 圆圈表示实验数据, 实线对应能带不同阶傅里叶系数预测依赖关系, 通过对比, 符合实验结果的检验能带被筛选出来, 这种方法不受材料重吸收干扰和苛刻的光谱探测窗口限制, 使全布里渊区能带光学测量成为现实.

### 4.3 Berry 曲率测量

Berry 相位对材料性质具有显著影响, 涉及物理各个分支, 目前还缺乏简便可靠的实验表征手段, 限制了对 Berry 相位的认识. 在固体 HHG 电子带内加速阶段, Liu 等<sup>[14]</sup>发现: 电子运动除了受到电场驱动, 还受到 Berry 相位附加影响  $\dot{r} = \frac{1}{\hbar} \frac{\partial \varepsilon(k)}{\partial k} - \dot{k} \times \Omega(k)$  产生反常横向电流, 其中  $r$  是电子波包的位置、 $k$  是其波矢量、 $\varepsilon(k)$  和  $\Omega(k)$  分别表示材料能带结构和 Berry 曲率. 随时间变化反常电子群速度引起振荡电流, 发射 HH 光子, 其偏振垂直于驱动激光偏振. Luu 等<sup>[79]</sup>通过严格测量垂直基频光偏振方向的偶阶谐波强度, 对所得横向电流进行拟合, 全光学重构  $\alpha$ -石英的 Berry 曲率, 如图 5(e) 所示, 测量结果 (彩色) 与计算结果 (红线) 具有相似趋势. 此后, 作为一种新型光学

表征手段, Berry 曲率的 HH 光谱法表征被推广到了更多新材料体系. Lv 等<sup>[22]</sup>成功在  $\beta$ -WP<sub>2</sub> 中重构了振荡的贝利曲率结构, 如图 5(f) 所示, 测量结果 (红线) 与计算结果 (蓝线) 高度符合. 进一步证明 HHG 提取量子拓扑材料 Berry 曲率的可靠性.

### 4.4 准粒子再碰撞观测

固体 HHG 及其边带产生为在亚飞秒时间尺度测量准粒子碰撞动力学提供了理想平台, Langer 等<sup>[80]</sup>利用双色场驱动固体 HHG, 研究了亚周期准粒子碰撞. 研究者通过近红外泵浦脉冲在太赫兹探测脉冲不同相位处相干制备出电子-空穴对, 不同时刻制备的准粒子经历的动力学过程迥然不同. 通过扫描泵浦-探测光相对相位, 实现光场驱动准粒子加速分离或再碰撞的周期性切换, 准粒子碰撞信息最终通过碰撞湮灭释放的边带光子被记录, 如图 6 所示. 通过控制准粒子生成时间, 电子-空穴对被单调的拉开或回碰. 这类类似于回旋加速器中的电子, 只有当电子被注入到交变加速器场的正确相位时, 它们才能有效地加速. 通过高阶边带抽运探测强度扫描, 包括激子结合能、散射时间和碰撞截面的库仑增强等材料多维信息可以被检索. 太赫兹光场驱动的实时碰撞将成为研究现代材料科学众多应用中的包括激子、双激子、三激子、石墨烯和拓扑绝缘体中的类狄拉克费米子, 或具有强电子-声子耦合材料中的极化子等复杂准粒子的重要工具.

### 4.5 价电子高精度成像

固体 HHG 可以对准粒子碰撞动力学进行超高分辨率测量, 也可以用于高精度价电子空间成像. Lakhota 等<sup>[33]</sup>将中心波长 620 nm、脉宽 5.5 fs 的强激光聚焦到 MgF<sub>2</sub> 和 CaF<sub>2</sub> 等材料驱动 HHG. 与晶体中束缚价电子库仑场强度相比拟的激光场驱动下, 晶体中电子以准自由电子形式运动. 在晶体势被显著抑制的光场范围内, 能带色散呈准抛物线形. 如图 7(a) 所示, 无场时晶体电势用黑色曲线表示, 当光场强度  $F_L = 0.95 \text{ V/\AA}$  时 (橙色) 晶体内等效周期势被抹平, 此时晶体内部电子行为近似自由电子, 右侧为 MgF<sub>2</sub> 结构示意图, 绿色阴影区域表示价电子云, 电子波函数的动力学和伴随的 HHG 在散射的框架内处理. HHG 产率与晶体内部周期势通过公式  $I_N(F_0, \omega_L, e_i) \propto$

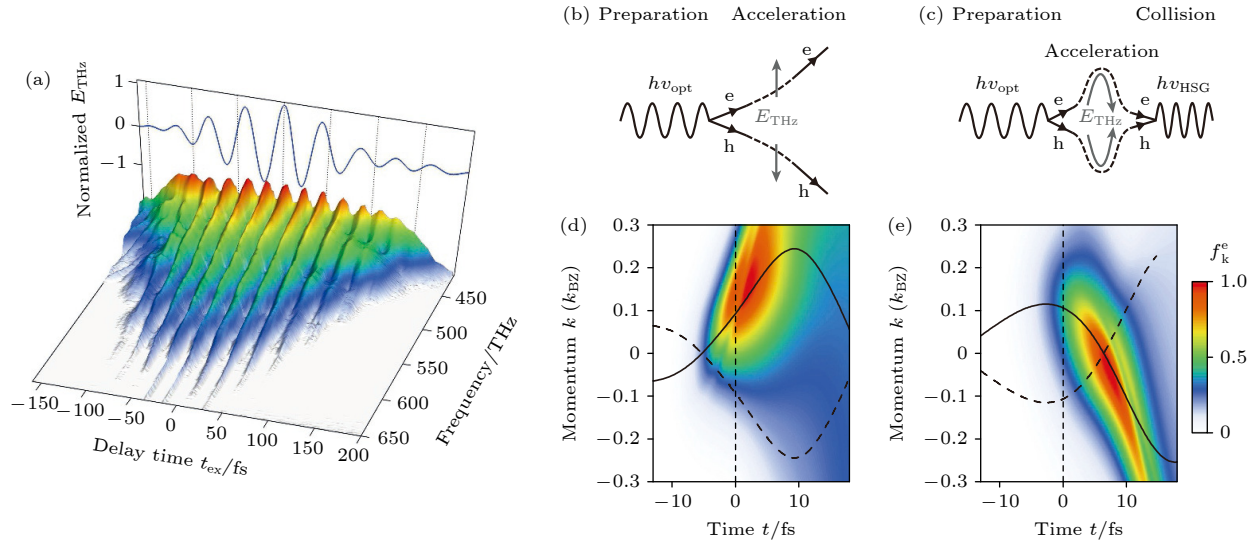


图 6 光波驱动 WSe<sub>2</sub> 准粒子碰撞<sup>[80]</sup> (a) 高阶边带强度  $I_{\text{HSG}}$  随太赫兹驱动场和带间激发脉冲之间延迟时间  $t_{\text{ex}}$  的依赖关系; 太赫兹场驱动准粒子碰撞示意图, 对应电子-空穴 (b) 远离和 (c) 碰撞湮灭, 发射出边带光子  $h\nu_{\text{HSG}}$ ; 不同动量  $k$  和时间延迟  $t_{\text{ex}}$  的电子分布, 对应电子-空穴 (d) 远离和 (e) 碰撞

Fig. 6. Lightwave driven quasi-particle recollision in WSe<sub>2</sub><sup>[80]</sup>: (a) Intensity of high order sideband  $I_{\text{HSG}}$  as a function of the time delay between the THz driving fields and the interband excitation pulse; schematic diagram of the quasi-particle recollision driven by THz field, corresponding to electron-hole (b) apart and (c) recombine, annihilate and emit a sideband photon  $h\nu_{\text{HSG}}$ ; electron distribution as a function of momentum  $k$  and time delay  $t_{\text{ex}}$ , corresponding to electron-hole (d) separation (d) and (e) recollision.

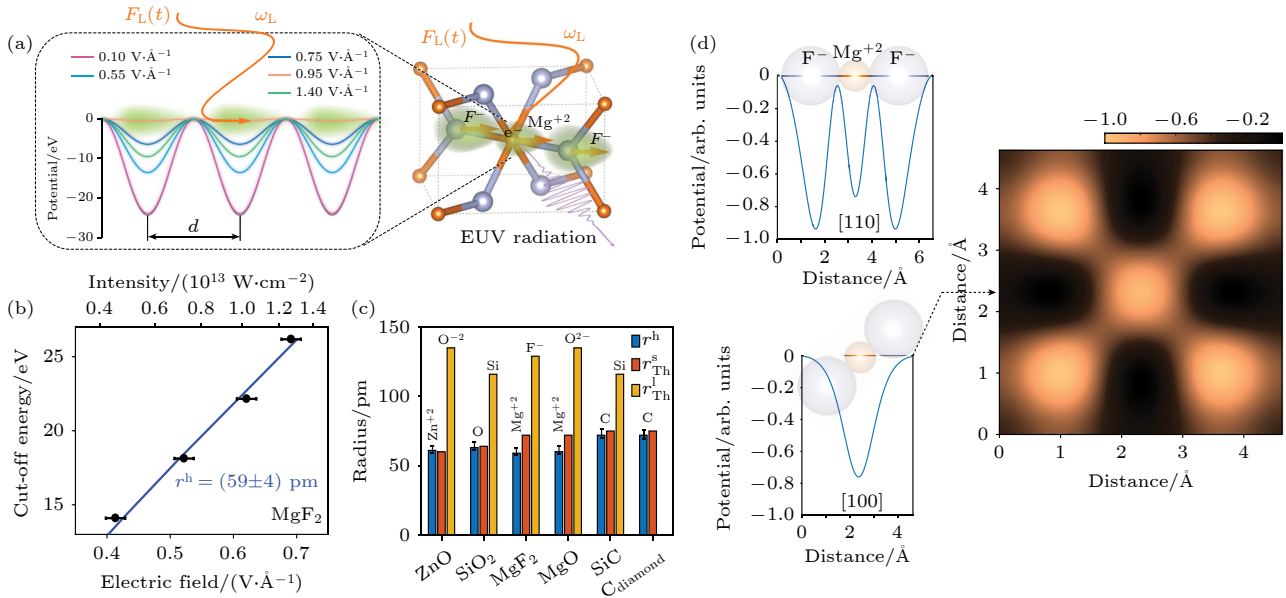


图 7 MgF<sub>2</sub> 价电子显微成像<sup>[33]</sup> (a) 强激光场下有效晶势; (b) Mg<sup>2+</sup> 半径测量; (c) 几种材料中最小离子/原子半径; (d) 价电子势和电子密度的重构

Fig. 7. Microscopic imaging of valence charge density in MgF<sub>2</sub><sup>[33]</sup>: (a) The effective crystal potential along the<sup>[99]</sup> crystal orientation under the intense laser field; (b) radius measurement of Mg<sup>2+</sup>; (c) minimum ion/atom radius in several materials; (d) reconstruction of charge potential and valence charge density.

$\left| N_e \sum_{k_l} V_{k_l} k_l J_N \left( k_l \frac{F_0}{\omega_L^2} \right) \right|^2$  联系, 其中  $k_l$  和  $V_{k_l}$  分别为倒空间向量和晶格势的傅里叶分量在激光偏振方向上的投影. 同时在散射近似下, 晶体中最小原子或离子半径的大小与截止能量直接相关

$r^h \approx \frac{2\pi F_0}{E_c \omega_L}$ , 其中  $E_c$  为 HH 截止能量、 $F_0$  为截止对应光场强度, 这意味着可以通过测量截止能量来探测原子半径大小. 如图 7(b) 所示, 根据 HH 光谱截止能量  $E_c$  与驱动光振幅  $F_0$  的关系, 由斜率计算得

到  $\text{Mg}^{2+}$  离子半径  $r^h = (59 \pm 4)$  pm. 通过对比重构的离子/原子半径与经验值, 如图 7(c) 所示, 散射图像的有效性得到验证. 进一步地, 实空间势函数由不同晶向 HHG 产率随光强依赖关系通过反傅里叶变换描绘出来, 如图 7(d) 所示, 色谱图为价电子势的二维重构图, 插图为激光偏振与不同晶向对齐时重构的一维势场切片, 空间分辨率高达 26 pm. 基于固体 HHG 皮米分辨价电子成像为研究微观世界提供强有力工具, 未来其与时间分辨光谱学的结合可能为在飞秒-皮米尺度研究微观粒子动力学提供支撑.

#### 4.6 时间分辨动力学测量

固体 HHG 涉及电子在单能带或多能带运动, 提供了亚周期分辨的电子动力学探针. 同时 HHG 对电子相干性的要求极高, 电子散射引起的退相干效应对其影响显著, 并直接映射在 HHG 产率等可探测量上. 相比于高精度阿秒脉冲泵浦探测技术<sup>[81,82]</sup>, 固体 HH 谱学对激光脉冲要求大大降低. 即使实验

室常用的百飞秒激光脉冲, 借助固体 HH 谱学手段也可以实现阿秒时间分辨的电子动力学探测.

Bionta 等<sup>[83]</sup> 首次将 HHG 用于 Mott 绝缘体金属-绝缘体相变动力学探测, 实验光路图如图 8(a) 所示, 中心波长 1.5  $\mu\text{m}$ 、脉宽 50 fs 的中红外激光作为泵浦光激发  $\text{VO}_2$  纳米薄膜产生光致金属-绝缘体相变, 波长 7—10  $\mu\text{m}$ 、脉宽 80 fs 激光作为探测光, 在其传输方向进行光谱测量. 通过记录 HH 光谱强度随两束光相对延时依赖关系, 光致相变动力学过程以光谱方式被可视化呈现, 图 8(b) 所示为不同泵浦光强度下的五阶和三阶谐波产率随延时的依赖关系. 泵浦光激发后, HH 信号快速衰减, 衰减幅度随泵浦光强度单调增加. 随后, 其产率在皮秒时间尺度以双指数时间特征得到恢复, 其中快和慢过程对应时间分别为 300 fs 和 1.5 ps. 有趣的是, 恢复过程中相干振荡被 HHG 产率调制所记录. 预示着时间分辨 HH 光谱测量在相干声子动力学表征方面的潜力. 将 HHG 时间分辨光谱与相变动力学结合的尝试, 为研究材料在不同的条件下, 如

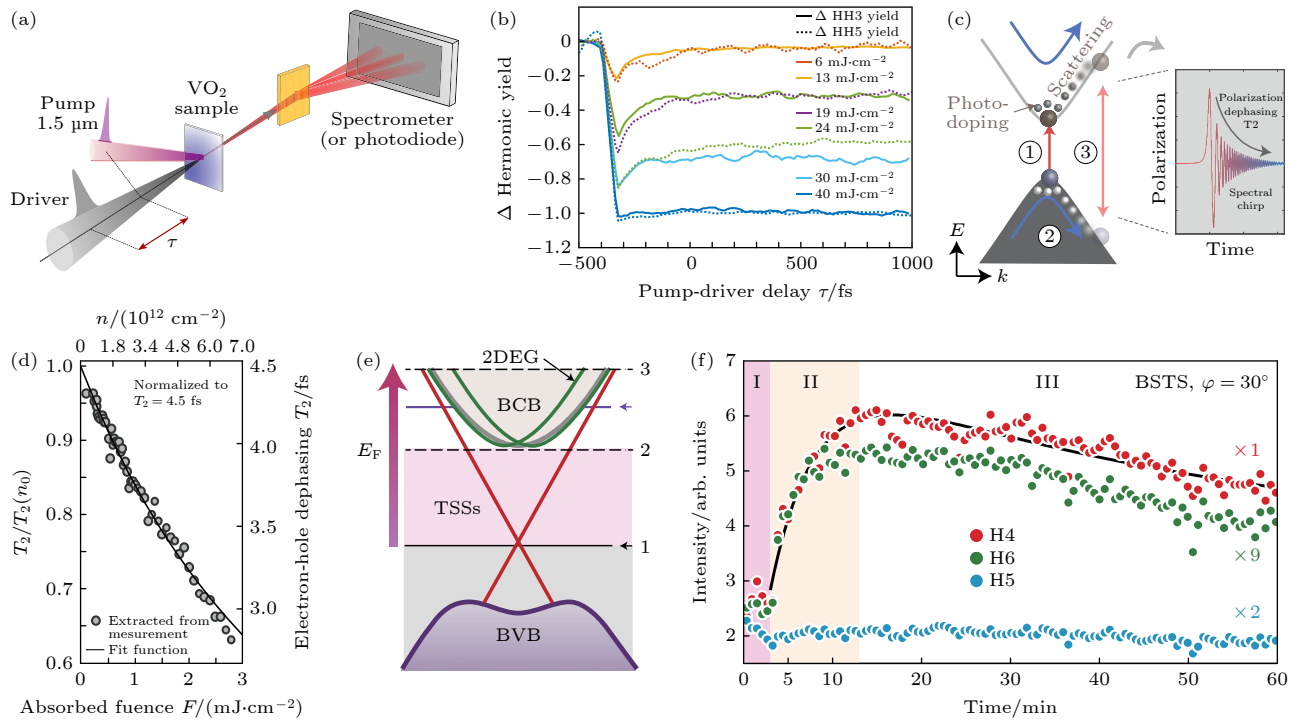


图 8 HHG 检测  $\text{VO}_2$  相变<sup>[83]</sup> (a) 实验光路示意图; (b) HHG 产率随泵浦光强度和延时关系.  $\text{MoS}_2$  电子-空穴相干性检验<sup>[84]</sup> (c) 带隙附近的电子-空穴动力学示意图; (d) 退相干时间拟合结果. 拓扑表面态 HHG<sup>[17]</sup> (e) 拓扑绝缘体能带示意图; (f) HHG 产率对材料解离时间依赖关系

Fig. 8. Detection of  $\text{VO}_2$  phase transition<sup>[83]</sup>: (a) Schematic diagram of experimental setup; (b) relationship of harmonic yield with pump laser intensity and delay. Test on coherence of electron-hole pair in  $\text{MoS}_2$ <sup>[84]</sup>: (c) Schematic diagram of electron-hole dynamics near bandgap; (d) fitted value for the dephasing time. (e) (f) HHG from topological surface<sup>[17]</sup>: (e) Schematic diagram of topological insulator band; (f) the HH yield versus the cleavage time of the sample.

高压、高温和光激发下如何演化和转变为奇异相提供了全新手段。

除了时间分辨相变动力学观测, HH 光谱也被用来表征超快电子散射. HHG 作为一个高度非线性相干过程, 其产率与电子干涉情况密切相关. 电子散射加速电子退相干效应, HHG 产率受到抑制. 同时, 散射强度与电子轨迹直接联系, 并通过退相干映射到测量光谱, 形成了以 HH 光谱为媒介的电子散射间接测量. Heide 等<sup>[84]</sup>通过泵浦光在单层 MoS<sub>2</sub> 导带预注入电子, 随后通过中红外激光驱动 HHG. 预注入电子对后续电子产生强烈散射, 由此导致的退相干效应极大削弱 HH 强度, 如图 8(c) 所示. 其抑制程度随预注入电子数的增多单调变强, 同时高阶 HH 因为更长的量子轨迹受到更剧烈抑制, 理论扫描唯象的退相干时间, 重现了实验结果. 最后通过拟合外推, 得到单层 MoS<sub>2</sub> 中 HHG 退相干时间约为 4.5 fs, 如图 8(d) 所示. 这项工作证明了多体效应在固体 HHG 中的重要性, 为没有超短激光脉冲的情况下确定固体中的退相干时间提供了可能.

除对常规材料中电子动力学进行表征外, 固体 HHG 也成为研究拓扑材料电子动力学的重要载体, 图 8(e) 为拓扑表面态 (红线), 体带 (深紫色, 灰色线和阴影区域) 和费米面的演化示意图. Bai 等<sup>[17]</sup>利用 HHG 对介质对称性的敏感依赖, 将 BiSbTeSe<sub>2</sub> 拓扑表面态与体态 HHG 通过奇偶阶此的方式加以区分. 偶阶 HH 角度依赖满足拓扑表面态  $C_{3v}$  对称性, 构成识别拓扑表面态 HHG 的重要证据. 偶阶 HH 平行分量来自于拓扑表面态自旋流形成的平行自旋电流, 垂直分量来自于贝利曲率引起的反常带内电流, 这形成了拓扑表面态 HHG 的特征指纹. 如图 8(f) 所示, 通过测量不同解离时间的偶阶信号产率, 可以刻画表面二维电子气的演化动力学. 固体 HHG 为研究非微扰自旋和电荷动力学共存的三维拓扑绝缘体中拓扑表面态和体态之间的相互作用提供了一个有效的工具, 将推动光波驱动电子学和自旋电子学的发展.

## 5 展 望

自 2011 年 ZnO 非微扰 HHG 报道以来, 固体 HHG 迅速成为强场物理和阿秒科学的研究前沿. 得益于固体材料的高原子密度, 固体 HHG 作为一

种高效光学频率上转换过程, 产生宽谱超快光源. 固体 HH 光谱范围覆盖了太赫兹到极紫外波段, 尤其对宽带隙介质 (如 MgO 和石英晶体), 在 10—20 eV 范围内可以形成较宽的极紫外平台区, 为基于固体 HHG 的阿秒脉冲产生提供了可能. 且固体 HH 光源具有多自由度控制的优势, 在实现紧凑化和模块化的同时, 也为多功能定制波长可调谐光源提供了便利. 应当指出的是, 受到固体材料相对低的损伤阈值的限制, 基于固体 HHG 来制备更高光子能量和更强单脉冲能量的紧凑光源仍面临挑战. 为了克服材料损伤的不利影响, 大带隙材料和超短脉冲等能极大提高材料损伤阈值. 此外, 微纳结构、超表面和掺杂等技术的应用也有望在材料损伤阈值之下增强 HHG 产率、扩展其光谱覆盖范围. 同时也为固体 HHG 控制提供了自由度, 使得利用表面修饰和能带工程等技术实现对 HH 特定波段选择、特殊空间分布设计 (如聚焦和散焦)、特定椭圆率和角动量获取等成为可能, 为推进 HH 光源片上集成提供技术支撑.

此外, 作为一种灵敏的光谱学手段, HH 光谱将为材料物性表征和信息科学提供新的手段与平台. HH 光谱在表征材料能带、贝利曲率、价电子结构和超快相变等领域的更大潜力等待研究者们进一步发掘. 同时, 与 HH 偏振和时域特性为自由度的信息科学将蓬勃发展, 并有望超越偏振和时域的二进制, 为多自由度可编程器件提供可能.

最后, 应当强调, 固体 HHG 研究远没有完备, 诸如 HHG 机制等许多开放性问题需要实验和理论工作进一步探索. 目前, 固体 HHG 理论研究主要基于单电子近似含时薛定谔方程、半导体布洛赫方程与含时密度泛函理论. 单电子近似含时薛定谔方程采用静止离子实的周期性势场描述相互作用, 而半导体布洛赫方程采用的能带没有考虑光场作用, 即能带是锁定的, 两者都是处理无相互作用电子波包的绝热演化. 多体相互作用被简单概括进唯象的退相干时间中, 多体作用对固体 HHG 的影响细节并不清晰. 更准确地描述固体 HHG 需要考虑电子的多体相互作用和固体 HHG 过程中的非绝热效应. 受限于计算资源, 对固体 HHG 进行从头算的量子处理尚无法普及和推广, 发展简明有效的包含多体相互作用的理论描述图像对推动固体 HHG 更深入理解至关重要.

国内固体 HHG 研究虽然起步较国外晚, 但是

发展非常迅速, 近几年取得了一批优秀成果 [17,22, 29,30,35,49,76,85–106]。目前这些成果主要还是集中在理论模拟, 实验方面正迎头赶上 [17,22,49,85,86]。由于固体 HHG 涉及多学科交叉, 精确的信息提取依赖于准确的理论模拟, 希望国内实验和理论研究者紧密合作, 通过精确的实验测量, 结合高精度的理论计算, 在固体 HHG 物理和应用方面做出更大贡献。

## 参考文献

- [1] McPherson A, Gibson G, Jara H, Johann U, Luk T S, McIntyre I A, Boyer K, Rhodes C K 1987 *J. Opt. Soc. Am. B* **4** 595
- [2] Ferray M, L'Huillier A, Li X F, Lompre L A, Mainfray G, Manus C 1988 *J. Phys. B: At., Mol. Opt. Phys.* **21** L31
- [3] Corkum P á, Krausz F 2007 *Nat. Phys.* **3** 381
- [4] Corkum P B 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 1994
- [5] Gaumnitz T, Jain A, Pertot Y, Huppert M, Jordan I, Ardana Lamas F, Wörner H J 2017 *Opt. Express* **25** 27506
- [6] Goulielmakis E, Loh Z H, Wirth A, Santra R, Rohringer N, Yakovlev V S, Zherebtsov S, Pfeifer T, Azzeer A M, Kling M F 2010 *Nature* **466** 739
- [7] Gy, Farkas, Cs, Tóth, S, D, Moustaizis, N, A, Papadogiannis 1992 *Phys. Rev. A* **46** R3605
- [8] Ghimire S, DiChiara A D, Sistrunk E, Agostini P, DiMauro L F, Reis D A 2010 *Nat. Phys.* **7** 138
- [9] You Y S, Reis D A, Ghimire S 2017 *Nat. Phys.* **13** 345
- [10] You Y S, Yin Y, Wu Y, Chew A, Ren X, Zhuang F, Gholam Mirzaei S, Chini M, Chang Z, Ghimire S 2017 *Nat. Commun.* **8** 1
- [11] Han S, Kim H, Kim Y W, Kim Y J, Kim S, Park I Y, Kim S W 2016 *Nat. Commun.* **7** 1
- [12] Liu H, Guo C, Vampa G, Zhang J L, Sarmiento T, Xiao M, Bucksbaum P H, Vučković J, Fan S, Reis D A 2018 *Nat. Phys.* **14** 1006
- [13] Sivilis M, Taucer M, Vampa G, Johnston K, Staudte A, Naumov A Y, Villeneuve D M, Ropers C, Corkum P B 2017 *Science* **357** 303
- [14] Liu H, Li Y, You Y S, Ghimire S, Heinz T F, Reis D A 2017 *Nat. Phys.* **13** 262
- [15] Yoshikawa N, Nagai K, Uchida K, Takaguchi Y, Sasaki S, Miyata Y, Tanaka K 2019 *Nat. Commun.* **10** 3709
- [16] Kobayashi Y, Heide C, Keldarsh H K, Johnson A, Liu F, Heinz T F, Reis D A, Ghimire S 2021 *Ultrafast Science* **2021**
- [17] Bai Y, Fei F, Wang S, Li N, Li X, Song F, Li R, Xu Z, Liu P 2021 *Nat. Phys.* **17** 311
- [18] Schmid C P, Weigl L, Grössing P, Junk V, Gorini C, Schlauderer S, Ito S, Meierhofer M, Hofmann N, Afanasiev D 2021 *Nature* **593** 385
- [19] Yoshikawa N, Tamaya T, Tanaka K 2017 *Science* **356** 736
- [20] Hafez H A, Kovalev S, Deinert J C, Mics Z, Green B, Awari N, Chen M, Germanskiy S, Lehnert U, Teichert J 2018 *Nature* **561** 507
- [21] Cheng B, Kanda N, Ikeda T N, Matsuda T, Xia P, Schumann T, Stemmer S, Itatani J, Armitage N P, Matsunaga R 2020 *Phys. Rev. Lett.* **124** 117402
- [22] Lv Y Y, Xu J, Han S, Zhang C, Han Y, Zhou J, Yao S H, Liu X P, Lu M H, Weng H 2021 *Nat. Commun.* **12** 6437
- [23] Vampa G, McDonald C R, Orlando G, Klug D D, Corkum P B, Brabec T 2014 *Phys. Rev. Lett.* **113** 073901
- [24] Vampa G, McDonald C R, Orlando G, Corkum P B, Brabec T 2015 *Phys. Rev. B* **91** 064302
- [25] Ghimire S, DiChiara A D, Sistrunk E, Ndabashimiye G, Szafruga U B, Mohammad A, Agostini P, DiMauro L F, Reis D A 2012 *Phys. Rev. A* **85** 043836
- [26] Ikemachi T, Shinohara Y, Sato T, Yumoto J, Kuwata Gonokami M, Ishikawa K L 2017 *Phys. Rev. A* **95** 043416
- [27] You Y S, Cunningham E, Reis D A, Ghimire S 2018 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **51** 114002
- [28] Osika E N, Chacón A, Ortmann L, Suárez N, Pérez Hernández J A, Szafran B, Ciappina M F, Sols F, Landsman A S, Lewenstein M 2017 *Phys. Rev. X* **7** 021017
- [29] Li L, Lan P, Zhu X, Huang T, Zhang Q, Lein M, Lu P 2019 *Phys. Rev. Lett.* **122** 193901
- [30] Zhang X, Li J, Zhou Z, Yue S, Du H, Fu L, Luo H G 2019 *Phys. Rev. B* **99** 014304
- [31] Yue L, Gaarde M B 2020 *Phys. Rev. Lett.* **124** 153204
- [32] Ndabashimiye G, Ghimire S, Wu M, Browne D A, Schafer K J, Gaarde M B, Reis D A 2016 *Nature* **534** 520
- [33] Lakhotia H, Kim H Y, Zhan M, Hu S, Meng S, Goulielmakis E 2020 *Nature* **583** 55
- [34] Catoire F, Bachau H, Wang Z, Blaga C, Agostini P, DiMauro L F 2018 *Phys. Rev. Lett.* **121** 143902
- [35] Li L, Lan P, Zhu X, Lu P 2021 *Phys. Rev. Lett.* **127** 223201
- [36] Yu C, Jiang S, Lu R 2019 *Adv. Phys. X* **4** 1562982
- [37] Goulielmakis E, Brabec T 2022 *Nat. Photon.* **16** 411
- [38] Park J, Subramani A, Kim S, Ciappina M F 2022 *Adv. Phys. X* **7** 2003244
- [39] Kruchinin S Y, Krausz F, Yakovlev V S 2018 *Rev. Mod. Phys.* **90** 021002
- [40] Popmintchev T, Chen M C, Popmintchev D, Arpin P, Brown S, Ališauskas S, Andriukaitis G, Balčiūnas T, Mücke O D, Pugzlys A 2012 *Science* **336** 1287
- [41] Ye P, He X, Teng H, Zhan M, Zhong S, Zhang W, Wang L, Wei Z 2014 *Phys. Rev. Lett.* **113** 073601
- [42] Gallais L, Douti D B, Commandre M, Batavičiūtė G, Pupka E, Ščiuka M, Smalakys L, Sirutkaitis V, Melninkaitis A 2015 *J. Appl. Phys.* **117** 223103
- [43] Lewenstein M, Balcou P, Ivanov M Y, L'huillier A, Corkum P B 1994 *Phys. Rev. A* **49** 2117
- [44] You Y S, Wu M, Yin Y, Chew A, Ren X, Gholam Mirzaei S, Browne D A, Chini M, Chang Z, Schafer K J 2017 *Opt. Lett.* **42** 1816
- [45] Langer F, Hohenleutner M, Huttner U, Koch S W, Kira M, Huber R 2017 *Nat. Photon.* **11** 227
- [46] Korobenko A, Saha S, Godfrey A T K, Gertsvolf M, Naumov A Y, Villeneuve D M, Boltasseva A, Shalaev V M, Corkum P B 2021 *Nat. Commun.* **12** 4981
- [47] Pashkin Y A, Yamamoto T, Astafiev O, Nakamura Y, Averin D V, Tsai J S 2003 *Nature* **421** 823
- [48] Baykusheva D, Chacón A, Lu J, Bailey T P, Sobota J A, Soifer H, Kirchmann P S, Rotundu C, Uher C, Heinz T F 2021 *Nano Lett.* **21** 8970
- [49] Lou Z, Zheng Y, Liu C, Zhang L, Ge X, Li Y, Wang J, Zeng Z, Li R, Xu Z 2020 *Opt. Commun.* **469** 125769
- [50] You Y S, Yin Y, Wu Y, Chew A, Ren X, Zhuang F, Gholam Mirzaei S, Chini M, Chang Z, Ghimire S 2017 *Nat. Commun.* **8** 724
- [51] Jürgens P, Liewehr B, Kruse B, Peltz C, Engel D, Husakou A, Witting T, Ivanov M, Vrakking M J J, Fennel T 2020 *Nat. Phys.* **16** 1035
- [52] DiChiara A D, Sistrunk E, Miller T A, Agostini P, DiMauro

- L F 2009 *Opt. Express* **17** 20959
- [53] Flettner A, Pfeifer T, Walter D, Winterfeldt C, Spielmann C, Gerber G 2003 *Appl. Phys. B* **77** 747
- [54] Svoboda V, Yin Z, Luu T T, Wörner H J 2021 *Opt. Express* **29** 30799
- [55] Luu T T, Yin Z, Jain A, Gaumnitz T, Pertot Y, Ma J, Wörner H J 2018 *Nat. Commun.* **9** 3723
- [56] Liu J Q, Bian X B 2021 *Phys. Rev. Lett.* **127** 213901
- [57] Saule T, Heinrich S, Schötz J, Lilienfein N, Högner M, deVries O, Plötner M, Weitenberg J, Esser D, Schulte J 2019 *Nat. Commun.* **10** 458
- [58] Hädrich S, Krebs M, Hoffmann A, Klenke A, Rothhardt J, Limpert J, Tümmernann A 2015 *Light Sci. Appl.* **4** e320
- [59] Carstens H, Högner M, Saule T, Holzberger S, Lilienfein N, Guggenmos A, Jocher C, Eidam T, Esser D, Tosa V 2016 *Optica* **3** 366
- [60] Vampa G, Ghamsari B G, Siadat Mousavi S, Hammond T J, Olivieri A, Lisicka Skrek E, Naumov A Y, Villeneuve D M, Staudte A, Berini P 2017 *Nat. Phys.* **13** 659
- [61] Yang Y, Lu J, Manjavacas A, Luk T S, Liu H, Kelley K, Maria J P, Runnerstrom E L, Sinclair M B, Ghimire S 2019 *Nat. Phys.* **15** 1022
- [62] Huang T, Zhu X, Li L, Liu X, Lan P, Lu P 2017 *Phys. Rev. A* **96** 043425
- [63] Higuchi T, Stockman M I, Hommelhoff P 2014 *Phys. Rev. Lett.* **113** 213901
- [64] Garg M, Kim H Y, Goulielmakis E 2018 *Nat. Photon.* **12** 291
- [65] Vampa G, Hammond T J, Thiré N, Schmidt B E, Légaré F, McDonald C R, Brabec T, Corkum P B 2015 *Nature* **522** 462
- [66] Vampa G, Lu J, You Y S, Baykusheva D R, Wu M, Liu H, Schafer K J, Gaarde M B, Reis D A, Ghimire S 2020 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **53** 144003
- [67] Uzan A J, Orenstein G, Jiménez Galán Á, McDonald C, Silva R E F, Bruner B D, Klimkin N D, Blanchet V, Arusi Parpar T, Krüger M 2020 *Nat. Photon.* **14** 183
- [68] Sanari Y, Otobe T, Kanemitsu Y, Hirori H 2020 *Nat. Commun.* **11** 1
- [69] Heinrich T, Taucer M, Kfir O, Corkum P B, Staudte A, Ropers C, Sivilis M 2021 *Nat. Commun.* **12** 3723
- [70] Korobenko A, Hammond T J, Zhang C, Naumov A Y, Villeneuve D M, Corkum P B 2019 *Opt. Express* **27** 32630
- [71] Imasaka K, Kaji T, Shimura T, Ashihara S 2018 *Opt. Express* **26** 21364
- [72] Garg M, Zhan M, Luu T T, Lakhota H, Klostermann T, Guggenmos A, Goulielmakis E 2016 *Nature* **538** 359
- [73] Saito N, Xia P, Lu F, Kanai T, Ishii N 2017 *Optica* **4** 1333
- [74] Klemke N, Tancogne Dejean N, Rossi G M, Yang Y, Scheiba F, Mainz R E, Di Sciacca G, Rubio A, Kärtner F X, Mücke O D 2019 *Nat. Commun.* **10** 1319
- [75] Tancogne Dejean N, Rubio A 2018 *Sci. Adv.* **4** eaao5207
- [76] Yu C, Jiang S, Wu T, Yuan G, Peng Y, Jin C, Lu R 2020 *Phys. Rev. B* **102** 241407
- [77] Vampa G, Hammond T J, Thiré N, Schmidt B E, Légaré F, McDonald C R, Brabec T, Klug D D, Corkum P B 2015 *Phys. Rev. Lett.* **115** 193603
- [78] Lanin A A, Stepanov E A, Fedotov A B, Zheltikov A M 2017 *Optica* **4** 516
- [79] Luu T T, Wörner H J 2018 *Nat. Commun.* **9** 1
- [80] Langer F, Hohenleutner M, Schmid C P, Pöllmann C, Nagler P, Korn T, Schüller C, Sherwin M S, Huttner U, Steiner J T 2016 *Nature* **533** 225
- [81] Lucchini M, Sato S A, Ludwig A, Herrmann J, Volkov M, Kasmi L, Shinohara Y, Yabana K, Gallmann L, Keller U 2016 *Science* **353** 916
- [82] Schultze M, Ramasesha K, Pemmaraju C D, Sato S A, Whitmore D, Gandman A, Prell J S, Borja L J, Prendergast D, Yabana K 2014 *Science* **346** 1348
- [83] Bionta M R, Haddad E, Leblanc A, Gruson V, Lassonde P, Ibrahim H, Chaillou J, Émond N, Otto M R, Jiménez Galán Á 2021 *Phys. Rev. Res.* **3** 023250
- [84] Heide C, Kobayashi Y, Johnson A, Liu F, Heinz T F, Reis D A, Ghimire S 2022 *Optica* **9** 512
- [85] Li L, Zhang Y, Lan P, Huang T, Zhu X, Zhai C, Yang K, He L, Zhang Q, Cao W 2021 *Phys. Rev. Lett.* **126** 187401
- [86] Li L, Huang T, Lan P, Li J, Zhang Y, Zhu X, He L, Cao W, Lu P 2022 *Phys. Rev. Lett.* **128** 027401
- [87] Li L, Lan P, He L, Cao W, Zhang Q, Lu P 2020 *Phys. Rev. Lett.* **124** 157403
- [88] Jiang S, Chen J, Wei H, Yu C, Lu R, Lin C D 2018 *Phys. Rev. Lett.* **120** 253201
- [89] Shao C, Lu H, Zhang X, Yu C, Tohyama T, Lu R 2022 *Phys. Rev. Lett.* **128** 047401
- [90] Qian C, Yu C, Jiang S, Zhang T, Gao J, Shi S, Pi H, Weng H, Lu R 2022 *Phys. Rev. X* **12** 021030
- [91] Guan M X, Lian C, Hu S Q, Liu H, Zhang S J, Zhang J, Meng S 2019 *Phys. Rev. B* **99** 184306
- [92] Du T Y, Tang D, Huang X H, Bian X B 2018 *Phys. Rev. A* **97** 043413
- [93] Song X, Zuo R, Yang S, Li P, Meier T, Yang W 2019 *Opt. Express* **27** 2225
- [94] Zuo R, Trautmann A, Wang G, Hannes W R, Yang S, Song X, Meier T, Ciappina M, Duc H T, Yang W 2021 *Ultrafast Sci.* **2021**
- [95] Li J, Fu S, Wang H, Xiao Z, Du H 2018 *Phys. Rev. A* **98** 43409
- [96] Feng Y, Shi S, Li J, Ren Y, Zhang X, Chen J, Du H 2021 *Phys. Rev. A* **104** 043525
- [97] Zhao Y T, Jiang S C, Zhao X, Chen J G, Yang Y J 2020 *Opt. Lett.* **45** 2874
- [98] He Y L, Guo J, Gao F Y, Yang Z J, Zhang S Q, Liu X S 2021 *Phys. Rev. A* **104** 013104
- [99] Jin J Z, Liang H, Xiao X R, Wang M X, Chen S G, Wu X Y, Gong Q, Peng L Y 2018 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **51** 16LT01
- [100] Jin J Z, Liang H, Xiao X R, Wang M X, Chen S G, Wu X Y, Gong Q, Peng L Y 2019 *Phys. Rev. A* **100** 013412
- [101] Kong X S, Liang H, Wu X Y, Peng L Y 2021 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **54** 124004
- [102] Wu X Y, Liang H, Kong X S, Gong Q, Peng L Y 2022 *Phys. Rev. E* **105** 055306
- [103] Chen Z Y, Qin R 2020 *J. Mater. Chem. C* **8** 12085
- [104] Wang Z, Jiang S, Yuan G, Wu T, Li C, Qian C, Jin C, Yu C, Hua W, Lu R 2019 *Sci. China Phys. Mech. Astron.* **63** 257311
- [105] Jiang S, Yu C, Chen J, Huang Y, Lu R, Lin C D 2020 *Phys. Rev. B* **102** 155201
- [106] Yao H D, Cui B, Ma S Q, Yu C, Lu R F 2021 *Acta Phys. Sin.* **70** 134207 (in Chinese) [姚惠东, 崔波, 马思琦, 余超, 陆瑞锋 2021 物理学报 **70** 134207]

SPECIAL TOPIC—Attosecond physics

# Generation, manipulation, and application of high-order harmonics in solids\*

Wang Yang   Liu Yu   Wu Cheng-Yin †

*(State Key Laboratory for Mesoscopic Physics, School of Physics, Peking University, Beijing 100871, China)*

( Received 4 July 2022; revised manuscript received 5 August 2022 )

## Abstract

The generation of high-order harmonics based on the interaction between ultrafast intense laser and matter provides a platform for studying the light-matter interaction in the non-perturbative region. It is also the main route to generating desktop extreme ultraviolet light source and attosecond pulse. The non-perturbative solid high-order harmonic involves the core content of ultrafast strong field physics, condensed matter physics, materials science, information science and other fields. Since it was first experimentally observed in 2011, it has rapidly become the research frontier of strong field physics and attosecond science. This review summarizes the research progress and important applications of solid high-order harmonics from the perspective of an experimentalist. Firstly, distinct characteristics are shown for solid high-order harmonic by comparing the dependence of harmonic yield and cut-off energy on driving laser parameters with gas high-order harmonic. Then, the progress of manipulation and application are highlighted for solid high-order harmonic, including the precise control of harmonic yield, polarization, space-time distribution through the design of target structure or laser field, as well as the application of solid high-order harmonic spectroscopy in the fields of material structure characterization and ultrafast electron dynamics. Finally, the future is prospected for the study of solid high-order harmonics.

**Keywords:** ultrafast laser, strong field physics, high-order harmonic generation**PACS:** 42.65.Ky, 42.65.-k, 42.62.Fi**DOI:** [10.7498/aps.71.20221319](https://doi.org/10.7498/aps.71.20221319)

---

\* Project supported by the National Key R&D Program of China (Grant No. 2018YFA0306302) and the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 12174011, 11625414).

† Corresponding author. E-mail: [cywu@pku.edu.cn](mailto:cywu@pku.edu.cn)



## 固体高次谐波产生、调控及应用

汪洋 刘煜 吴成印

### Generation, manipulation, and application of high-order harmonics in solids

Wang Yang Liu Yu Wu Cheng-Yin

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 71, 234205 (2022) DOI: 10.7498/aps.71.20221319

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.71.20221319>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

---

## 您可能感兴趣的其他文章

### Articles you may be interested in

#### 基于高次谐波产生的极紫外偏振涡旋光

Extreme ultraviolet polarization vortex beam based on high harmonic generation

物理学报. 2020, 69(4): 044203 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20190834>

#### 基于空谱干涉和频域分割的超快激光时空耦合特性的单次测量方法

Single-frame measurement of complete spatiotemporal field of ultrashort laser pulses using frequency domain separate spectral interferometry

物理学报. 2022, 71(3): 034203 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20211665>

#### 基于二维材料异质结可饱和吸收体的超快激光器

Ultrafast pulse lasers based on two-dimensional nanomaterial heterostructures as saturable absorber

物理学报. 2020, 69(18): 188102 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20201235>

#### 时空耦合畸变对超快超强激光参数测试及性能评估的影响

Influence of spatiotemporal coupling distortion on evaluation of pulse-duration-characterization and focused intensity of ultra-fast and ultra-intensity laser

物理学报. 2022, 71(17): 174204 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220563>

#### 相对论圆偏振激光与固体靶作用产生高次谐波

High order harmonics generation by relativistically circularly polarized laser-solid interaction

物理学报. 2018, 67(21): 214205 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20181574>