

# 激光与光电子学进展

## 基于飞秒激光与物质相互作用的高次谐波产生及应用

戴晨, 汪洋, 缪志明, 郑伟, 张林枫, 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

**摘要** 飞秒强激光与物质相互作用后辐射出的高次谐波, 具有单光子能量高、脉冲持续时间短、时空相干性好等特性, 可以作为实验室台式化超快真空紫外和软 X 射线波段光源, 同时高次谐波也可用于产生阿秒脉冲。这些先进光源的产生, 极大地丰富了人类物质科学的研究手段。结合本课题组的高次谐波研究进展, 介绍了气体高次谐波和固体高次谐波的产生原理、优化及应用。

**关键词** 原子与分子物理学; 强场物理; 高次谐波产生; 阿秒脉冲; 超快动力学

中图分类号 O437

文献标志码 A

doi: 10.3788/LOP202158.0300001

### Generation and Application of High-Order Harmonics Based on Interaction Between Femtosecond Laser and Matter

Dai Chen, Wang Yang, Miao Zhiming, Zheng Wei, Zhang Linfeng, Wu Chengyin\*

State Key Laboratory for Artificial Microstructure and Mesoscopic Physics, School of Physics, Peking University, Beijing 100871, China

**Abstract** High-order harmonics generated by the interaction between intense femtosecond laser and matter have the characteristics of high single photon energy, ultrashort pulse duration, and excellent spatiotemporal coherence. It can be used as the tabletop ultrafast vacuum ultraviolet laser source and soft X-ray laser source in laboratory. At the same time, high-order harmonics are used to generate attosecond pulses. The generation of these advanced laser sources has greatly enriched the research tools of material science. In this review article, we introduce the principle, optimization, and application of high-order harmonics of gases and solids.

**Key words** atomic and molecular physics; strong field laser physics; high-order harmonic generation; attosecond pulse; ultrafast dynamics

**OCIS codes** 020.2649; 190.4160; 320.7160

## 1 引言

超快超强激光具有超窄的脉冲宽度和超高的峰值功率, 其和原子分子相互作用会产生一系列新颖的非线性现象<sup>[1-2]</sup>。1987年 McPherson 等<sup>[3]</sup>基于

波长为 248 nm 的飞秒激光脉冲与稀有气体原子的相互作用, 在实验上首次观察到高达十几阶的高次谐波产生(HHG)。1988年, Ferray 等<sup>[4]</sup>基于波长为 1064 nm 的皮秒激光脉冲与稀有气体原子的相互作用, 观察到高达 33 阶的谐波。这些现象引起了人

收稿日期: 2020-09-02; 修回日期: 2020-09-27; 录用日期: 2020-10-10

基金项目: 国家自然科学基金(11625414, 11527901)、科技部国家重点研发计划(2018YFA0306302)

\*E-mail: cywu@pku.edu.cn

们的极大关注,人们对 HHG 机理进行了深入细致的研究。气体 HHG 可用半经典的 Simple-man 模型来描述<sup>[5]</sup>,电离电子在激光电场驱动下与母核发生碰撞复合,能量以高能光子的形式辐射出去,产生高次谐波。在一定的驱动激光参数下,谐波截止区的光子能量能够达到真空紫外甚至软 X 射线区域。基于气体高次谐波的真空紫外和软 X 射线光源具有单光子能量高和脉冲持续时间短的特性,同时还具有良好的时空相干性,作为光源在很多领域都有非常重要的应用。如利用超快真空紫外光源的单光子能量超过绝大多数原子分子电离能的特点,通过原子分子电离可以实现对原子分子的瞬态探测<sup>[6]</sup>。此外,气体高次谐波也是目前实验室产生阿秒脉冲的主要途径。阿秒脉冲,特别是孤立阿秒脉冲的产生,使得人类对电子运动的实时探测成为可能<sup>[7-9]</sup>,极大地丰富了人类对物质世界的研究手段。

为了更好地利用高次谐波光源,人们围绕三个方向对谐波进行优化:1)提高谐波的转化效率;2)实现谐波偏振的控制;3)增加谐波的截止区光子能量。随着对气体 HHG 过程认识的深入,人们发现结合理论模拟,可以从高次谐波谱中提取原子分子中电子和核的运动信息,时间精度达到亚飞秒,空间精度优于  $10^{-10}$  m。最近人们在固体材料中也观察到高次谐波<sup>[10]</sup>,并在微纳结构中发现了谐波增强<sup>[11]</sup>。相比气体高次谐波,固体高次谐波表现出诸多不同的特性,其产生机理既取决于材料本身的性质,也与驱动激光参数有关<sup>[12]</sup>。与气体高次谐波相比,固体高次谐波效率更高。通过纳米结构设计,不仅可以进一步提高谐波效率,还可以控制谐波偏振特性,甚至实现特定阶次谐波的筛选和聚焦<sup>[13]</sup>。目前固体高次谐波研究集中在谐波的产生机理上,通过对固体高次谐波谱进行分析,可以获得固体材料的能带结构以及固体中电子的超快动力学信息。最近,液体高次谐波也受到人们的关注<sup>[14-15]</sup>。本文结合本课题组在飞秒激光与物质相互作用方面的研究进展,介绍高次谐波的产生原理、优化及应用。

## 2 高次谐波产生

### 2.1 气体高次谐波

通过飞秒强激光与气相原子分子的相互作用得到的典型的高次谐波光谱如图 1 所示,可以分为三个部分:1)低阶谐波的强度随着光子能量的增加呈指数衰减;2)在平台区(plateau),谐波强度随光子

能量的增加不发生明显的变化;3)谐波在特定的能量截止(cut-off)。1993年,Corkum<sup>[5]</sup>提出了半经典的 Simple-man 模型,很好地解释了气体高次谐波谱的产生过程。如图 2 所示,气体 HHG 可以分为三步。第一步,在外加激光电场和库仑场的作用下,原子分子的势能曲线被压弯形成势垒,电子隧穿势垒进入连续态;第二步,电子在电场中加速,并随着电场反向运动,有一部分电子会返回母核附近;第三步,返回的电子与母核发生碰撞复合,电子在运动中积累的能量会以高能光子的形式辐射出去,产生高次谐波。

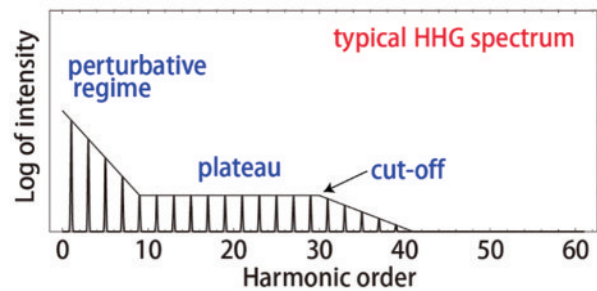


图 1 典型的高次谐波光谱<sup>[16]</sup>

Fig. 1 Typical high-order harmonic spectrum<sup>[16]</sup>

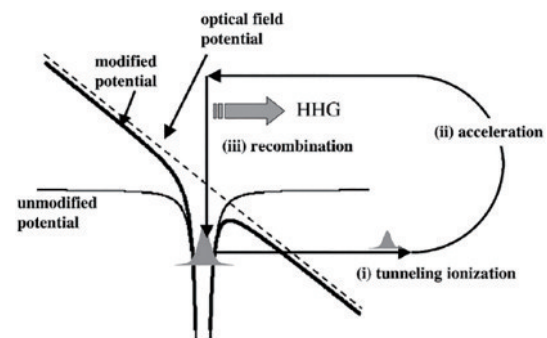


图 2 气体高次谐波产生的三步模型示意图<sup>[17]</sup>

Fig. 2 Diagram of three-step model of HHG in gas<sup>[17]</sup>

Simple-man 模型假设电子在线偏振激光作用下发生隧穿电离,其初始动量和初始位置均为零,忽略库仑势对电子运动的影响。假设激光电场为

$$E(t) = E_0 \cos \omega t, \quad (1)$$

式中: $E_0$ 为电场峰值强度; $\omega$ 为电场频率。电子在光场中的加速度为

$$a(t) = -E_0 \cos \omega t. \quad (2)$$

$t_0$ 时刻隧穿电子在激光场中运动的速度和位置分别为

$$v(t) = \int_{t_0}^t a(t) dt = \frac{E_0}{\omega} (-\sin \omega t + \sin \omega_0 t), \quad (3)$$

$$x(t) = \int_{t_0}^t v(t) dt = \frac{E_0}{\omega^2} \left[ \cos \omega t - \cos \omega t_0 + \omega(t - t_0) \sin \omega t_0 \right]. \quad (4)$$

取  $x(t) = 0$  可以得到电子与核再碰撞的时刻, 该时刻满足

$$\cos \omega t - \cos \omega t_0 + \omega(t - t_0) \sin \omega t_0 = 0. \quad (5)$$

根据上述公式, 激光电场上升沿电离的电子不再回到母核。在激光电场下降沿  $17^\circ$  时, 电离的电子返回母核时积累的能量最大, 为  $3.17U_p$ , 其对应的高次谐波频率最高。因此高次谐波的截止区频率  $\omega_{\max}$  满足

$$E_{\text{cut-off}} = \hbar \omega_{\max} = I_p + 3.17U_p, \quad (6)$$

式中:  $I_p$  为电离势;  $U_p$  为有质动力能;  $\hbar$  为归一化普朗克常数。对于在激光电场上沿电离的电子,  $0^\circ \sim 17^\circ$  之间电离的电子由于返回母核的时间较长, 被称为长轨道电子; 在  $17^\circ$  之后电离的电子由于返回母核的时间较短, 被称为短轨道电子。可以看到, 驱动激光每半个光学周期就可以发射一次高次谐波。

1994 年, Lewenstein 等<sup>[18]</sup> 结合三步模型与费曼路径积分思想, 提出了强场近似模型, 认为隧穿电子与母核发生碰撞时, 电子的连续态波函数与基态波函数发生干涉, 这导致电荷密度的偶极振荡辐射出谐波。该模型可以看作是半经典三步模型的量子版本, 它用一种全量子的方法解释了高次谐波的产生过程, 加深了人们对高次谐波机理的理解。气体高次谐波的一个重要特性就是高次谐波的产率随着驱动激光椭圆率的增大而迅速减小。美国劳伦斯利弗莫尔国家实验室的研究人员测量了高次谐波强度与驱动激光椭圆率的关系。如图 3 所示,

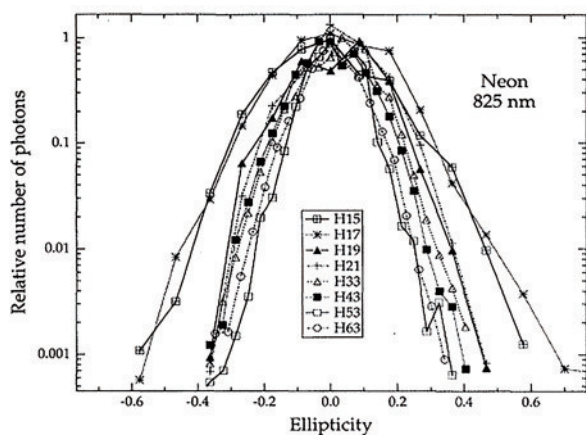


图 3 气体高次谐波强度与驱动激光椭圆率的关系<sup>[19]</sup>

Fig. 3 Dependence of intensity of high-order harmonics on ellipticity of driving laser<sup>[19]</sup>

当激光的椭圆率为 0.2 时, 每个级次谐波的强度相较于线性偏振时下降了一个数量级<sup>[19]</sup>。

## 2.2 固体高次谐波

当固体材料受到光子能量远小于其最小带隙的强激光场照射时, 固体中会产生强场现象。Ghimire 等<sup>[10]</sup> 首次将强中红外少周期激光脉冲作用于 ZnO 晶体, 在激光传输方向观测到了高达 25 阶的高次谐波信号, 如图 4(a) 所示。然而, 与气体谐波的截止频率正比于驱动光电场强度的二次方不同, 固体谐波的截止频率与驱动光电场强度呈线性关系, 如图 4(b) 所示。

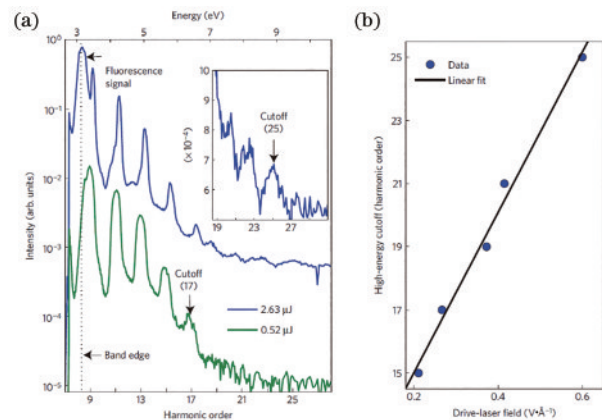


图 4 ZnO 高次谐波<sup>[10]</sup>。(a) 不同强度驱动激光作用下的谐波谱; (b) 谐波截止频率随驱动光电场强度的依赖关系

Fig. 4 High-order harmonics of ZnO<sup>[10]</sup>. (a) Harmonic spectra under different intensities of driving laser; (b) dependence of cutoff frequency on electric field intensity of driving laser

同时, 与气体高次谐波对驱动光场椭圆率的强烈依赖不同, 固体高次谐波对椭圆率的依赖关系更加复杂, 不同固体材料展现出完全不同的椭圆率依赖关系<sup>[20-24]</sup>。如图 5 所示, 固体氙展现出类似于气体谐波对椭圆率的依赖关系的特性, 而 MgO 晶体高次谐波对椭圆率的依赖关系与晶向有关, 且展现出反常的椭圆率依赖关系, 在有限的椭圆率情况下, 高次谐波信号甚至得到增强。

受气体高次谐波实空间三步模型的启发, 研究者们发展了动量空间三步模型以对固体高次谐波进行描述<sup>[25]</sup>。如图 6 所示, 位于价带的电子首先通过多光子过程或隧穿过程到达导带; 然后, 激光场驱动电子沿导带运动, 受导带能带结构的非抛物性色散的影响, 电子在运动过程中可能向外界辐射出高能光子; 同时, 在导带运动的电子会以一定的概率再与价带运动的空穴发生复合, 释放出

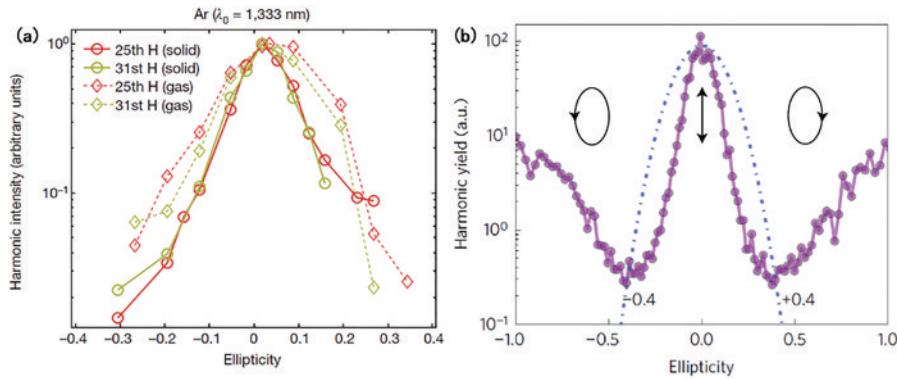


图 5 固体高次谐波产率与基频光场椭偏率的依赖关系。(a) 固态 Ar<sup>[20]</sup>; (b) MgO 晶体<sup>[21]</sup>

Fig. 5 Dependence of solid high-order harmonic yield on ellipticity of fundamental frequency light field. (a) Solid Ar<sup>[20]</sup>; (b) MgO crystal<sup>[21]</sup>

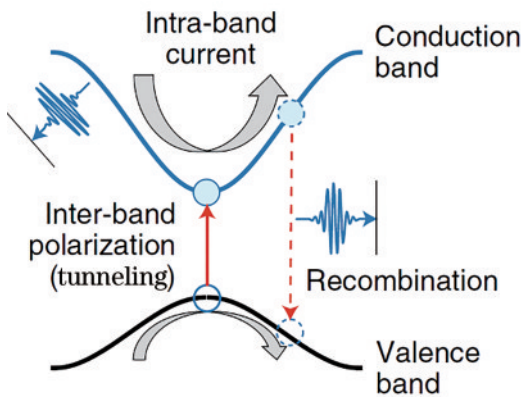


图 6 固体高次谐波动量空间三步模型示意图<sup>[12]</sup>

Fig. 6 Diagram of three-step model in momentum space of solid high-order harmonics<sup>[12]</sup>

高能光子。综上,基于动量空间三步模型的固体谐波辐射有两种机制,一种是电子在能带内的布洛赫振荡导致带内谐波,另一种是带间极化产生带间谐波。

液体样品相比气体样品有更高的密度,比固体

样品能够承受更高的光强。2018年Luu等<sup>[14]</sup>采用先进的液态平板微射流技术,首次在液体中观察到真空紫外波段高次谐波。如图7所示,液体高次谐波结合了气体高次谐波和固体高次谐波的一些特性。第一,谐波对截止频率的依赖关系类似于固体高次谐波,其与光场电场强度呈线性关系。第二,谐波对椭偏率的依赖关系类似于气体高次谐波,在驱动光为线偏振光时,谐波强度最强,随着驱动光的椭偏度增加,谐波强度逐渐减小,但是没有气体谐波变化那么强烈。第三,液体高次谐波谱比较复杂,水的谐波谱存在平台区,其他三种液体(乙醇、异丙醇、甲醇)的谐波强度均随光子能量的增加呈单调减小。不同于气体可以视为单原子,也不同于固体的周期性结构,液体谐波产生机制尚不清楚。最近,卞学滨等发展了一种液体高次谐波理论模型,该模型考虑到液体介质短程有序、长程无序的特点,利用宏观统计分布来描述液体结构,利用该模型研究了液体结构涨落对谐波的影响,该模型能够预测谐波的最大光子能量<sup>[15]</sup>。

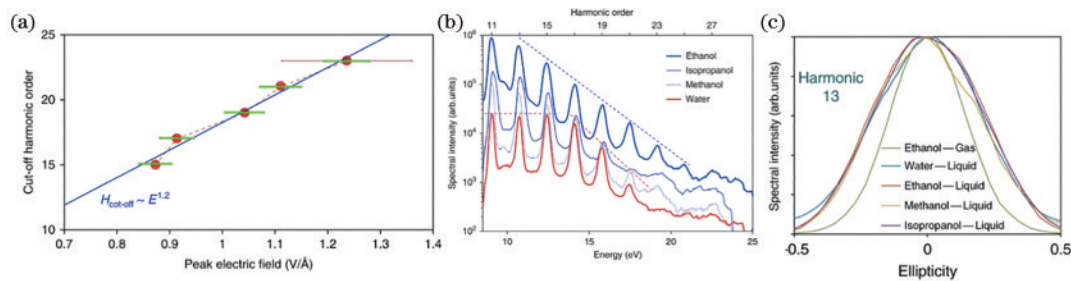


图 7 液体高次谐波的特性<sup>[14]</sup>。(a) 谐波截止频率与驱动激光电场强度的关系; (b) 不同液体的高次谐波谱; (c) 液体高次谐波对椭偏率的依赖关系

Fig. 7 Characteristics of high-order harmonics in liquids<sup>[14]</sup>. (a) Harmonic cut-off frequency as a function of intensity of electric field of driving laser; (b) high-order harmonic spectra of different liquids; (c) dependence of high-order harmonics in liquids on ellipticity of driving laser

### 3 高次谐波的优化

#### 3.1 提高谐波转换效率

高次谐波具有良好的空间和时间相干性,作为一种新兴光源,可用于研究原子分子以及材料表面的电子动力学。然而极低的转换效率制约了高次谐波的应用,提高谐波效率一直是谐波研究的热点。人们发现通过优化驱动激光的波形和相位匹配条件可以极大地提高谐波的转换效率,对于固体谐波,还可以利用金属纳米结构的局域场增强效应来提高谐波强度。

理论和实验分析表明,通过优化激光波形来提

高单个原子的发射效率,是提高谐波转换效率的一个有效方法。2005年, Kim 等<sup>[26]</sup>用中心波长为 820 nm 的基频光及其倍频光共同和氦气作用,产生的高次谐波如图 8(a)所示,垂直双色场激发的高次谐波最强,比单色场激发的高次谐波强度高两个数量级。平行双色场激发的偶数次高次谐波强度与单色场所激发的谐波强度相当,但奇数次谐波强度明显强于单色场激发的高次谐波强度。理论分析表明,由于短轨道电子对高次谐波的贡献较大,因此通过引入倍频光场改变驱动光波形的方式,可以提高短轨道电子[图 8(b)中 C 到 D 时间中电离的电子]的电离概率,进而提高谐波的强度。

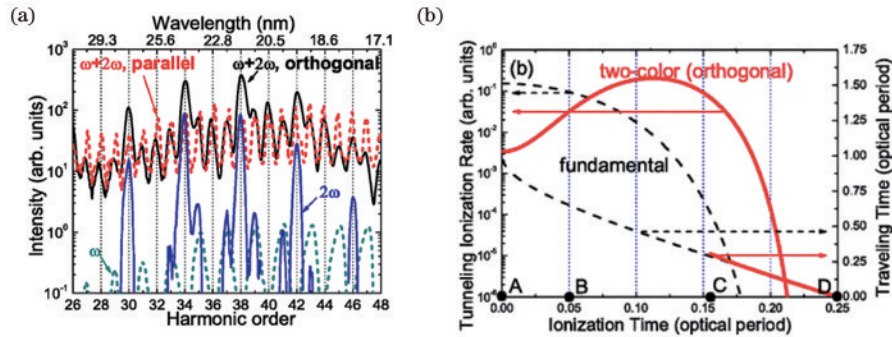


图 8 双色场对高次谐波的影响<sup>[26]</sup>。(a)不同驱动光场作用下产生的高次谐波谱;(b)基频光场及正交双色场下的电子隧道电离概率及飞行时间

Fig. 8 Effect of two-color laser field on high-order harmonics<sup>[26]</sup>. (a) High-order harmonic spectra generated under different driving laser field; (b) tunneling ionization rate and traveling time of electron in fundamental frequency laser field and orthogonal two-color laser field

三步模型描述了单原子对 HHG 过程的影响,而在实际的气体介质中,谐波的强度和频率还受到相位匹配的影响。强驱动光场与介质作用后会形成大量的自由电子,自由电子形成的等离子体会导致相位失配,使得高阶谐波的产率降低,因此实现谐波效率的提高需要优化相位匹配情况。波导管可以用来优化激光束时间和空间分布,是实验上调节高次谐波相位匹配的常用装置,可以调控特定阶次的谐波。

对于经过介质传播的激光场,其波数  $k$  可以写为<sup>[27]</sup>

$$k \approx \frac{2\pi}{\lambda} + \frac{2\pi N_a \delta(\lambda)}{\lambda} - N_e r_e \lambda, \quad (7)$$

式中:  $N_a$  为中性原子的密度;  $\delta(\lambda)$  为折射率;  $N_e$  为自由电子密度;  $r_e$  为电子经典半径。(7)式中第一项对应光场在真空中传播引起的色散,第二项对应介质引起的色散,第三项对应由强激光电离电子所形成的等离子体引起的色散。相位匹配对应于:

$$\Delta k = qk_{\text{laser}} - k_{\text{harmonic}} = 0, \quad (8)$$

式中:  $q$  为谐波阶次;  $\Delta k$  为  $q$  阶谐波的相位失配量;  $k_{\text{harmonic}}$  为  $q$  阶谐波波数;  $k_{\text{laser}}$  为驱动光波数。

而对于波导管中传播的光,波数可以表示为

$$k \approx \frac{2\pi}{\lambda} + \frac{2\pi N_a \delta(\lambda)}{\lambda} - N_e r_e \lambda - \frac{u_{\text{nm}}^2 \lambda}{4\pi a^2}, \quad (9)$$

式中:  $a$  为波导管的半径;  $u_{\text{nm}}$  为常数,对应于波导管所激发的模式。对于不同波长的驱动激光,通过改变波导管的气压、气体种类、波导管的尺寸和波导管的模式等均可以优化相位匹配情况。而在已经确定了气体介质以及波导管设计的情况下,通过改变气压可以很容易地优化谐波的相位匹配。由于波长不同,不同阶次的谐波的最优气压会有一些的差异,因此通过调整波导管内气压,可以实现对不同阶次谐波的优化。

利用准相位匹配(QPM)技术可以更好地提高谐波的产生效率,包括使用内径呈周期性变化的波

导管<sup>[28-29]</sup>、周期性地改变气体密度<sup>[30]</sup>、引入一束与驱动激光相向传播的激光<sup>[31-33]</sup>等。还有研究者提出可以通过在驱动光中引入正啁啾来抵消电子电离引起的相位失配<sup>[34]</sup>。

与气体谐波不同,固体材料由于具有高密度特性,其产生的谐波在材料中传播时往往伴随着材料的强烈吸收。一旦谐波光子能量进入紫外波段,它能传播的长度一般处于数十到数百纳米的量级。因此,提高气体谐波效率的一些方法对于固体高次谐波并不适用,金属纳米结构因为其对局部电场的增强作用被认为是提高固体谐波产生效率的一种可行方法<sup>[11-12,35-36]</sup>。Imasaka 等<sup>[35]</sup>在  $\alpha$  面切割的 ZnO 基底上制造了一种棒状金纳米天线的二维阵列,如图 9 所示。通过计算可得,这样的天线结构对  $2\ \mu\text{m}$  输入光的近场增强因子达到了  $\sim 80$ ,增强的近场有利于谐波的产生。实验上,这种装置使谐波增强倍数达到近 10 倍。同时还发现近场增强有利于更高阶次谐波的产生。

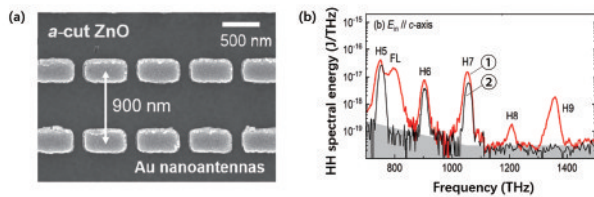


图 9 利用纳米结构增强高次谐波<sup>[35]</sup>。(a) ZnO 上天线阵列的 SEM 图像;(b) 带有(曲线①)、没有(曲线②)天线的 ZnO 产生的高次谐波谱

Fig. 9 Enhance high-order harmonics by nanostructures<sup>[35]</sup>. (a) SEM image of antenna array on ZnO; (b) high-order harmonics of ZnO with (curve ①) and without (curve ②) antenna

### 3.2 控制谐波偏振

椭圆偏光可以用于研究磁性材料和手性材料内

部的电子动力学,而发展椭圆的谐波光源可以将时间尺度缩短到飞秒甚至是阿秒尺度,这有利于开展电子超快动力学研究。气体高次谐波的偏振由驱动激光的偏振决定,最初研究者尝试通过椭圆的驱动光来得到椭圆的谐波<sup>[19]</sup>。但是由于气体高次谐波对椭圆率的强烈依赖,使用椭圆驱动光无法得到足够高强度的椭圆高次谐波。2009 年,Zhou 等<sup>[37]</sup>使用取向的  $\text{N}_2$  分子实现了椭圆的高次谐波,但是谐波的椭圆度仅能达到 0.35。2011 年,Vodungbo 等<sup>[38]</sup>发现,由于电磁波经过反射在 s 分量和 p 分量之间会产生一定的相位差,通过合理设置反射镜可以将线偏振的高次谐波直接转变成圆偏振谐波。但是这种方式的光路复杂,谐波能量有较大的损失,而且只能改变窄波段范围内的谐波椭圆率。2014 年,Fleischer 等<sup>[39]</sup>使用双色反向旋椭圆场成功产生了椭圆的高次谐波,且通过控制驱动光的椭圆度,可以方便地得到任一椭圆度的谐波。2015 年,Lambert 等<sup>[40]</sup>通过使用共线正交双色场作为驱动光,产生了一定椭圆度的谐波。同年,Hickstein 等<sup>[41]</sup>利用相同频率的两束反向旋圆偏光的非共线传播方式,产生单一阶次的左旋和右旋圆偏谐波。无论采取何种方法,要获得大椭圆率的气体高次谐波,谐波效率一般都很低,实验难度非常大。固体材料具有高密度和周期性,在产生椭圆谐波方面更有优势。2011 年,Ghimire 等<sup>[10]</sup>发现 ZnO 谐波对基频光椭圆率的变化不敏感。2017 年,You 等<sup>[21]</sup>通过实验证明 MgO 在圆偏振光激发下可以产生高次谐波。这些研究都为固体圆偏振谐波的产生奠定了基础。同年,Saito 等<sup>[42]</sup>经实验证明,通过使用圆偏振光照射 GaSe 单晶样品,可产生圆偏振高次谐波。2019 年,Klemke 等<sup>[43]</sup>通过用  $2.1\ \mu\text{m}$  的椭圆基频光照射  $2\ \mu\text{m}$  厚的 Si 单晶靶材,证实在椭圆基频光激发下 Si 单晶可以实现圆偏振谐波发射,如图 10 所示。该研究

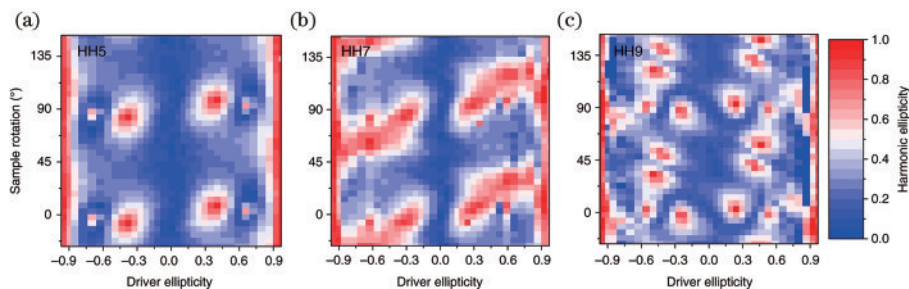


图 10 固体 Si 高次谐波响应与驱动光椭圆率和样品旋转角度的关系<sup>[43]</sup>。(a) 第 5 阶;(b) 第 7 阶;(c) 第 9 阶

Fig. 10 High-order harmonic response of silicon for different driving laser ellipticity and sample rotation angle<sup>[43]</sup>. (a) 5<sup>th</sup> order; (b) 7<sup>th</sup> order; (c) 9<sup>th</sup> order

表明,采用椭圆偏光激发 Si 产生圆偏振谐波的效率比采用圆偏振光激发 Si 产生圆偏振谐波的高出一个量级以上,圆偏振谐波的产生与基频光以及谐波在样品内的传播效应关系密切<sup>[43]</sup>。

为了避免传播效应的不利影响,二维材料成了研究固体椭圆偏振谐波产生机理的理想介质。Yoshikawa 等<sup>[22]</sup>通过实验证明,利用中红外激光照射单层石墨烯产生的高次谐波对基频光的椭圆率具有反常的依赖关系,在有限椭圆率基频光的作用下,谐波相较于线偏振光具有更高的产率。Chen 等<sup>[44]</sup>理论研究了单层石墨烯的高次谐波,结果表明:如果激光参数选择适当,在 HHG 过程中,电子在激光场驱动下将在更大的布里渊区范围内运动,远离狄拉克锥的能带将对谐波产生贡献。这时在圆偏振驱动光作用下,某些特定阶次的谐波呈现圆偏振特性,且此时的谐波转换效率大于线偏振基频光驱动时的谐波效率,显示出对基频光椭圆率的反常依赖<sup>[44]</sup>。通过研究还发现,利用固体 HHG 可以产生真空紫外光源,甚至产生椭圆的真空紫外光源。

### 3.3 扩展高次谐波频谱

X 射线具有单光子能量高和波长短的特点,具有很强的穿透能力。其中 2.34~4.4 nm 波长范围

被称为水窗波段,前者对应氧原子的 K 吸收带,后者对应碳原子的 K 吸收带。该波段的 X 射线在水中可以实现完全透射,但是构成生物机体的碳元素和其他元素会有强烈吸收。因此,水窗波段的软 X 射线可用于对活体生物样本进行高对比度成像。基于气体高次谐波的软 X 射线还兼有持续时间短和时空相干性好的特点,在超快诊断和探测领域有重要的应用。因此拓宽高次谐波的截止区频率并将其推广到 X 射线波段,也是高次谐波优化的一个重要方向。由于高次谐波截止频率为  $I_p + 3.17U_p$ ,且有  $U_p \propto I\lambda^2$ ,即  $U_p$  与驱动激光的光强  $I$  和波长  $\lambda$  有关,因此利用长波长的驱动激光可以显著地扩展谐波的频谱。以广泛使用的中心波长为 800 nm 的钛蓝宝石激光器为例,其产生的高次谐波通常只能达到极紫外波段( $\sim 100$  eV)。利用中红外光泵浦能在很大程度上拓展高次谐波阶次。2012 年 Popmintchev 等<sup>[45]</sup>利用中红外光将高次谐波拓展到了硬 X 射线波段。如图 11 所示,通过将中心波长为 3.9  $\mu\text{m}$ 、脉冲宽度为 80 fs 的中红外光聚焦到充满氦气的波导管里,产生了单光子能量超过 1.6 keV、阶次超过 5000 阶的谐波,且利用衍射实验证明了谐波具有较好的相干性。

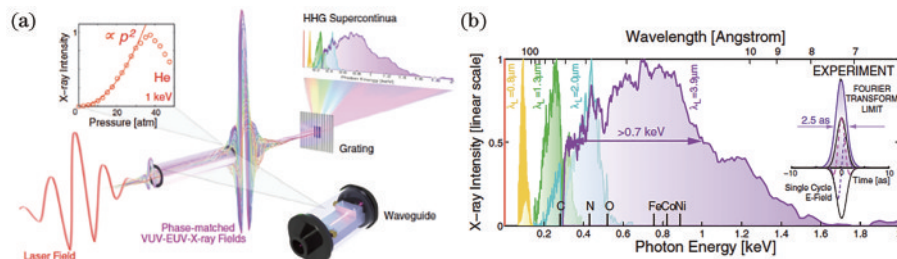


图 11 硬 X 射线高次谐波产生<sup>[45]</sup>。(a)产生硬 X 射线高次谐波的示意图;(b)在不同波长的驱动光下产生的谐波谱  
Fig. 11 HHG of hard X-ray<sup>[45]</sup>. (a) Diagram of HHG of hard X-ray; (b) harmonic spectrum generated under driving laser of different wavelengths

## 4 高次谐波应用

### 4.1 孤立阿秒脉冲产生

高次谐波的一个重要应用是产生孤立阿秒脉冲,但是由于驱动激光每半个光学周期会产生一个阿秒脉冲,因此通常经高次谐波合成得到的是一系列阿秒脉冲组成的阿秒脉冲串。如果在实验上能将半个光学周期所产生的阿秒脉冲筛选出来,就可以得到孤立的阿秒脉冲。孤立阿秒脉冲由于其超短时间特性,可以用于精确地确定光与物质相互作用的时间起点,实现对电子运动的实时探测,因此

孤立阿秒脉冲成为强场物理的重要研究热点。

如图 12 所示,常见的选通方法有两种<sup>[46]</sup>。第一种方法是振幅选通,驱动光场强度越强,电子在加速过程中积累的能量越高,与母核复合过程中释放出来的光子能量也就越高,可以认为截止区附近的谐波是在电场强度最强的半个光学周期中产生的。因此通过利用载波包络相位稳定的少周期驱动光产生高次谐波,将截止区附近的谐波筛选出来,就可以得到孤立阿秒脉冲<sup>[47]</sup>。为了放宽对驱动激光脉冲宽度的限制,研究者提出了双色场<sup>[48]</sup>方法,通过在基频光上叠加一个倍频光场来激发高次谐波,

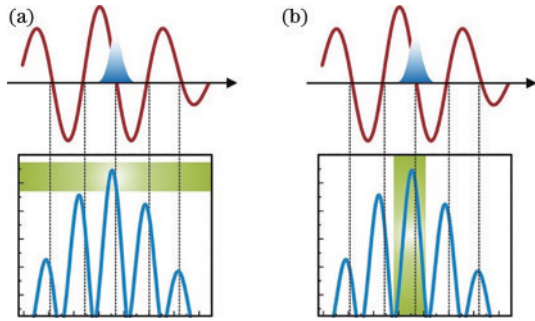


图 12 产生孤立阿秒脉冲的两种选通方法<sup>[46]</sup>。(a)振幅选通；(b)时间选通

Fig. 12 Two gating schemes for generating isolated attosecond pulses<sup>[46]</sup>. (a) Amplitude gating; (b) temporal gating

使驱动激光每半个光学周期产生一个阿秒脉冲变为每一个光学周期产生一个阿秒脉冲。很快科学家们又将双色场方案拓展到非倍频场,2013年日本科学家采用波长为 800 nm 和 1320 nm 的两束飞秒激光构建双色光场,将产生孤立阿秒脉冲的驱动激光的脉冲宽度要求放宽到几十飞秒<sup>[49]</sup>。第二种方法是时间选通,通过将可以激发产生高次谐波的过程控制在半个光学周期之内,得到孤立阿秒脉冲。常见的时间选通方法有偏振选通<sup>[50]</sup>、双光学选通<sup>[51]</sup>、电离选通<sup>[52]</sup>等。偏振选通方案利用高次谐波的产率对驱动激光椭圆偏度的较强依赖关系,存在一定延时的两束反向旋转的圆偏光经合成后和原子分子相互作用。通过控制两束光的延时,将合成激光脉冲为线偏振光的时间控制在半个光学周期之内,进而获得孤立阿秒脉冲。双光学选通方案结合偏振选通方案和双色场方案的优点,在偏振选通方案中引入基频光的倍频光场,从而将选通门增加到一个光学周期,达到通过使用持续时间更长的飞秒激光脉冲来产生孤立阿秒脉冲的目的。电离选通

方案对激光电场的形状以及激光强度的要求非常严格,要求中性气体原子分子在不到一个光学周期的时间内被全部电离,因此高次谐波辐射只能发生在半个激光周期,进而产生孤立阿秒脉冲。图 13 给出了孤立阿秒脉冲宽度发展简图,目前孤立阿秒脉冲宽度的最短记录为 43 as,这是由苏黎世联邦理工学院研究人员实现的<sup>[53]</sup>。

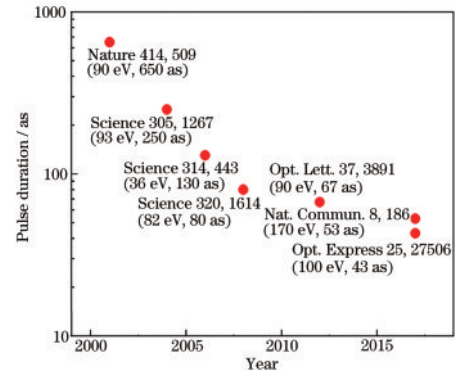


图 13 孤立阿秒脉冲宽度发展简图

Fig. 13 Development of duration of isolated attosecond laser pulse

正如利用气体靶材可以产生孤立阿秒脉冲一样,利用固体材料实现孤立阿秒脉冲的产生在实验和理论上都引起了人们极大的兴趣<sup>[54-55]</sup>。Garg 等<sup>[54]</sup>通过光场合成技术得到单光学周期级超短脉冲,然后通过此超短脉冲与 120 nm 厚的多晶 SiO<sub>2</sub> 的相互作用产生高次谐波,随后通过阿秒条纹相机对真空紫外波段的谐波进行表征。如图 14 所示,产生的真空紫外脉冲的持续时间约为 470 as,对应的频率为 5.81 PHz。根据图 14 中孤立阿秒脉冲的脉冲宽度和光谱宽度,基于多晶 SiO<sub>2</sub> 的高次谐波合成的阿秒脉冲为近似傅里叶变换极限脉冲。而气体不同阶

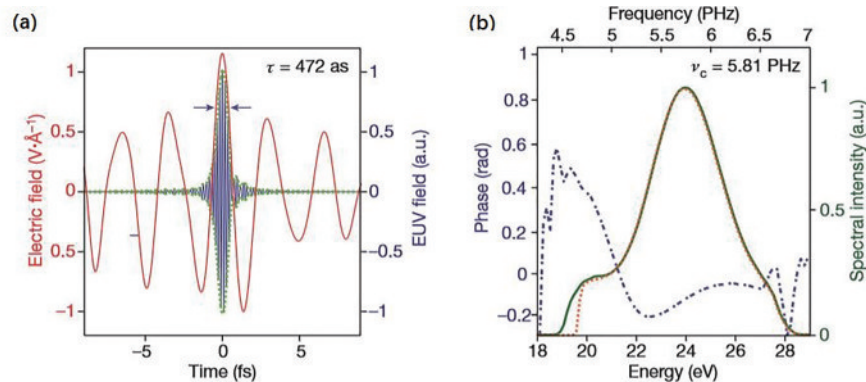


图 14 多晶 SiO<sub>2</sub> 阿秒脉冲<sup>[54]</sup>。(a)时域分布;(b)频域分布

Fig. 14 Attosecond pulse from polycrystal SiO<sub>2</sub><sup>[54]</sup>. (a) Temporal profile; (b) spectral profile



次谐波之间由于存在相位差,必须通过相位补偿才能产生傅里叶变换极限阿秒脉冲。该项研究同时还表明利用超快激光驱动绝缘体中电子运动,可以实现 PHz 的电子开关,并可将其现有的电路响应速度提高 4 个数量级,这为发展新一代集成高速电子器件奠定基础。

#### 4.2 超快 X 射线源

X 射线的单光子能量高,可以将原子的内壳层电子激发到未占据态或者电离态,实现原子的指纹识别。基于飞秒激光的高次谐波软 X 射线光源具有高光子能量和极窄的脉冲宽度,可以实现飞秒甚至亚飞秒的时间分辨,具有广阔的应用前景。2013 年, Schultze 等<sup>[56]</sup>利用这种软 X 射线瞬态吸收谱超高的时间分辨能力,研究了固体介电材料二氧化硅的超短激光电场调制效果。他们将脉冲宽度小于 4 fs 的波前控制的线偏振红外激光和基于高次谐波的光子中心能量为 105 eV 的宽带软 X 射线共同作用在厚度为 125 nm 的二氧化硅薄膜上。通过测量光子能量在 109 eV 附近(对应的是 Si 的

L 壳层和 SiO<sub>2</sub> 导带的能级差)的材料吸收率随两束激光延时的关系,发现利用超短激光的强电场可以可逆地操纵电介质的电子结构和极化率,这为研制处理频率达 10<sup>15</sup> Hz 的电子开关器件奠定了基础。2017 年, Pertot 等<sup>[57]</sup>利用波长为 1800 nm 的驱动激光和稀有气体原子的相互作用产生谐波,将光子能量为 100~350 eV 的谐波筛选出来,构成了水窗波段的宽带超快软 X 射线光源,利用它研究了飞秒强激光场下 CF<sub>4</sub> 的电离解离过程。中性 CF<sub>4</sub> 的分子吸收能量为 300 eV 附近的光子后,其碳原子从 1s 轨道跃迁到 5t<sub>2</sub> 和 6t<sub>2</sub> 轨道。当波长为 800 nm 的飞秒激光和 CF<sub>4</sub> 相互作用时,电离产生的 CF<sub>4</sub><sup>+</sup> 会发生解离,生成 CF<sub>3</sub><sup>+</sup> 和 F。图 15 给出了 CF<sub>4</sub> 超快 X 射线吸收谱与两束激光延时的关系,可以看到随着延时的增加,吸收峰分裂成多个峰。理论分析表明这种吸收光谱的改变源自于四面体结构的 CF<sub>4</sub><sup>+</sup> 解离成平面的 CF<sub>3</sub><sup>+</sup>,使得 CF<sub>4</sub> 中的 C 元素从 1s 到 5t<sub>2</sub> 的跃迁分裂为 CF<sub>3</sub><sup>+</sup> 中的 C 元素从 1s 到 5e' 和 2a<sub>2</sub>' 的跃迁。

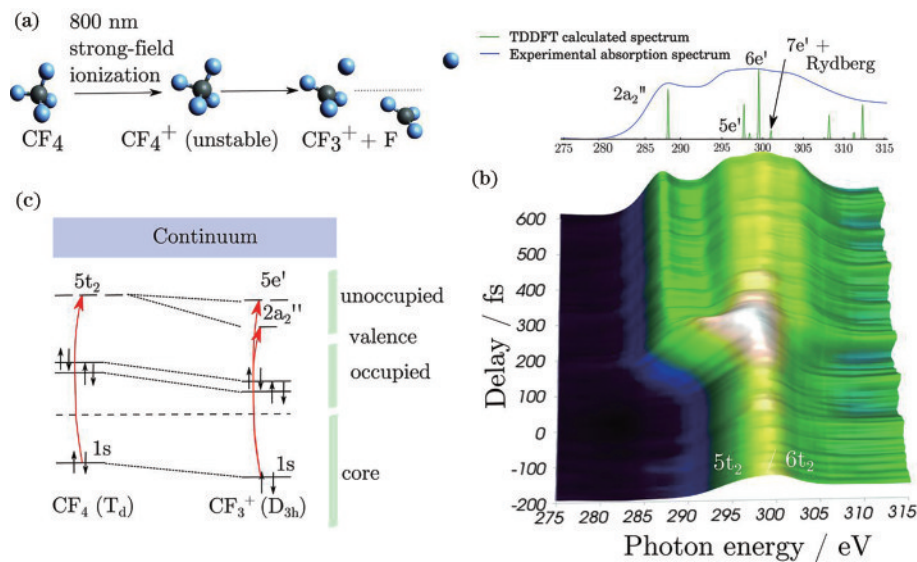


图 15 碳元素 K 壳层瞬态吸收光谱<sup>[57]</sup>。(a) 800 nm 近红外激光诱导 CF<sub>4</sub> 电离解离; (b) 碳元素 K 壳层吸收光谱与两束光延时的关系; (c) 选择跃迁对应的轨道图

Fig. 15 Transient absorption spectra of CF<sub>4</sub> at carbon K-edge<sup>[57]</sup>. (a) Ionization and dissociation of CF<sub>4</sub> induced by 800 nm infrared laser; (b) relationship between absorption spectra of CF<sub>4</sub> at carbon K-edge and delay of two lasers; (c) diagram of elected transition orbits

#### 4.3 分子超快动力学

根据 Simple-man 模型,气体 HHG 过程每半个光学周期重复一次,不同级次谐波对应不同的电子碰撞时间,因此高次谐波谱中含有靶材料中原子核和电子的运动信息。同时气体 HHG 可发生在长轨

道和短轨道,对于长轨道,高次谐波在激光上升沿的相位匹配更好,而对于短轨道,高次谐波在激光下降沿的相位匹配更佳。因此,来自长轨道的高次谐波光谱会发生蓝移,而来自短轨道的高次谐波光谱会发生红移。华中科技大学超快光学实验室在

实验上发现了分裂的高次谐波辐射光谱,在此基础上发展了轨道分辨的高次谐波光谱技术,成功建立了不同费曼路径高次谐波的光子频率和时间的一对一映射关系<sup>[58]</sup>。图 16 给出了同位素分子  $H_2$  和  $D_2$

的轨道分辨的高次谐波光谱,通过对比短轨道和长轨道产生的高次谐波,成功重构了同位素分子  $H_2$  和  $D_2$  的核间距随时间变化的动力学过程,时间分辨率达到 100 as,空间分辨率优于 100 pm。

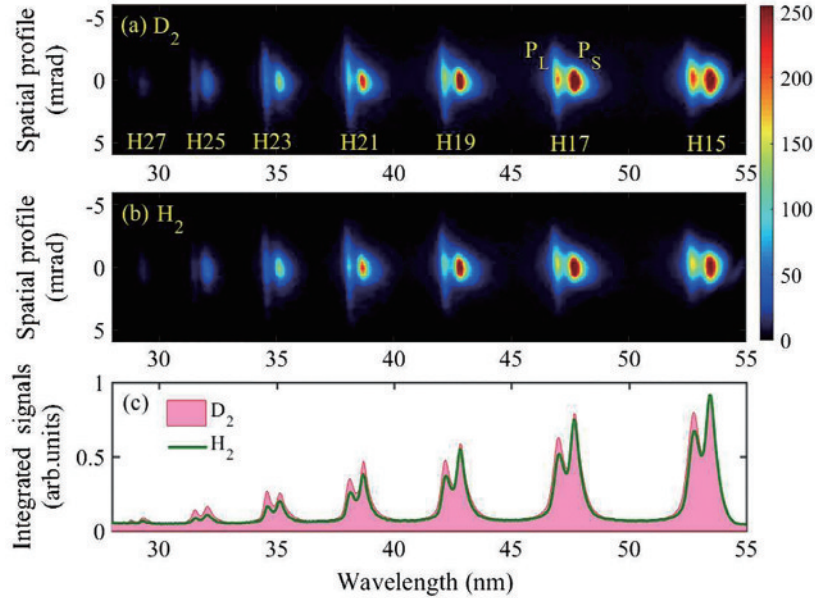


图 16 轨道分辨的高次谐波光谱<sup>[58]</sup>。(a)  $D_2$  分子产生的高次谐波光谱;(b)  $H_2$  分子产生的高次谐波光谱;(c) 高次谐波光谱的强度积分信号

Fig. 16 Trajectory resolved high-order harmonic spectra<sup>[58]</sup>. (a) High-order harmonic spectrum of  $D_2$  molecule; (b) high-order harmonic spectrum of  $H_2$  molecule; (c) integrated signal of intensity of high-order harmonic spectrum

固体高次谐波在晶体能带结构探测<sup>[59-61]</sup>、二维材料贝利曲率重构<sup>[62]</sup>和莫脱绝缘体相变探测<sup>[63]</sup>等领域展现出独特的应用前景。随着人们对固体 HHG 机制认识的不断深入,其更多的潜力将被发掘出来。

## 5 本课题组的工作

基于气体高次谐波技术,本课题组在北京大学现代光学研究所建设了两台高次谐波真空紫外谱仪(图 17),一台利用 1 kHz 飞秒激光和气室中稀有气体原子的相互作用,产生的高次谐波经筛选后进入速度成像谱仪,用于开展气相原子分子物理研究;另一台利用高重复频率飞秒激光(10~50 kHz)和波导管中的稀有气体原子的相互作用,产生的高次谐波经筛选后进入光发射电子显微镜,用于开展固体材料和微纳结构光电子超高时空分辨测量。这两台高次谐波真空紫外谱仪都采用光栅来进行分光,光栅衍射会引入光程差(由光栅表面被照亮的刻痕数决定),进而使得筛选出的高次谐波脉冲宽度得到展宽。另外真空紫外光由于光子能量高,需要在真空中传输,采取掠入射方式对光进行反

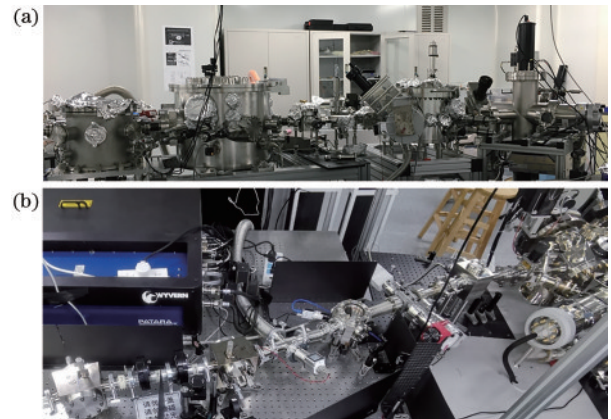


图 17 基于气体高次谐波的超快真空紫外谱仪。(a) 和速度成像谱仪连接,用于气相原子分子物理研究;(b) 和光发射电子显微镜连接,以开展固体材料和微纳结构光电子动力学研究

Fig. 17 Ultrafast vacuum ultraviolet laser spectrometer based on gaseous high-order harmonics. (a) Connected with velocity map imaging spectrometer, for studying atomic and molecular physics; (b) connected with photoemission electron microscope, for studying photoelectron dynamics of solid material and micro-nano structure

射、偏转和聚焦。为了减小光栅掠入射导致的脉冲宽度展宽,采用光栅圆锥衍射方式使平面光栅的刻痕线与入射光线所在的平面平行,这极大地减少了光栅表面被照亮的刻痕数,这样分光后的单一级次谐波的脉冲宽度基本接近驱动激光的脉冲宽度。

利用气室气体和波导管气体产生高次谐波的方式各有优缺点。前者的缺点是相互作用距离短,这限制了谐波的转换效率;其优点是可以方便地改变驱动激光的波长,提供波长连续可调的真空紫外光源。后者的优点是相互作用距离长,可大幅提高谐波的转换效率;其缺点是对光路的稳定性要求高,波导管需要特殊设计以满足不同波长驱动激光的相位匹配要求。图 18 是利用重复频率为 1 kHz、波长分别为 800 nm 和 400 nm 的飞秒激光与稀有气体原子氙的相互作用得到的谐波谱,其中 800 nm 驱动光的能量为 1.5 mJ, 400 nm 驱动光的能量为 0.75 mJ。利用 500 nm 厚的铝膜将驱动激光滤除后,通过采用皮安表测量电流,获得光子通量。可以看到 400 nm 驱动光产生的谐波的转换效率比 800 nm 驱动光高出两个量级,这是因为驱动激光的波长越短,电子从电离回到母核进行复合所需的时间也越短,波包的扩展减小,因此电子再复合的概率增加,谐波转换效率得到提高。

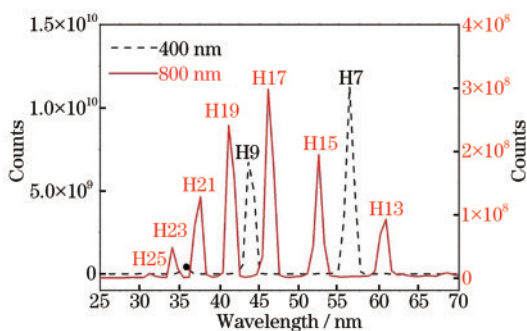


图 18 不同波长驱动光产生的高次谐波谱

Fig. 18 High-order harmonic spectrum generated by driving laser with different wavelengths

本课题组在实验室建立了固体高次谐波装置,该装置包含波长连续可调的飞秒中红外光源、高效的谐波收集装置和高灵敏度的探测装置,可以用于对双色光场驱动的晶体和单层二维材料的透射谐波以及反射谐波的研究。图 19 是 ZnO 晶体在波长为 3.4  $\mu\text{m}$  的飞秒激光作用下的高次谐波谱,可见谐波谱具有非常高的信噪比。

材料的结构、光学、电学和热学性能等依赖于微观价电子态密度,在超快时间和超小空间尺度上

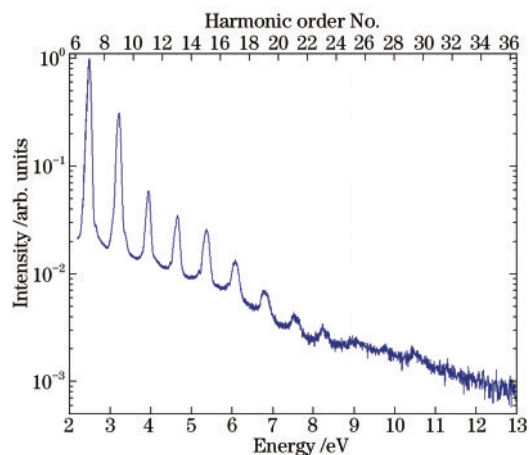


图 19 ZnO 晶体的高次谐波光谱

Fig. 19 High-order harmonic spectrum of ZnO crystal

测量电子能带结构和调控光电子行为是下一代光电子信息功能器件发展的必然趋势,这就要求研究人员对物质电子态密度进行超高时空分辨测量和调控,认识量子世界的基本规律,通过开发新材料、设计新结构以及施加外场等手段操纵光电子行为,从而提高和优化光电子信息器件功能。本课题组已成功地把高次谐波的真空紫外激光和光发射电子显微镜结合起来,实现了光电子超高空间、能量和时间分辨,其中空间分辨率优于 50 nm,电子能量分辨率优于 300 meV,时间分辨率达到 100 fs 量级。超快真空紫外光发射电子显微镜和固体高次谐波互为补充,为表征固体材料的能带结构和测量光电子的瞬时行为提供了重要手段。

## 6 结束语

先进光源技术的发展极大地促进了当代光子学的前沿研究,同步加速器和 X 射线自由电子激光器输出的高亮度和极短波长的激光,为在亚原子尺度上探索固体表面、纳米颗粒和单个分子的物质结构提供了独特手段。激光驱动的高次谐波能够产生持续时间短于 100 as 的真空紫外和软 X 射线激光,使得同时实现物质结构和电子运动的时空超高分辨测量和操控成为可能,其空间分辨率优于  $10^{-10}$  m,时间分辨率达到亚飞秒水平。基于飞秒强激光和物质相互作用的高次谐波研究和极端阿秒脉冲产生也是世界先进国家激光科学领域优先发展的重要方向,欧盟极端光学装置 ELI (Extreme Light Infrastructure) 的一个重要组成部分——位于匈牙利的阿秒脉冲光源 ALPS (Attosecond Light Pulse Source) 采用了飞秒激光高次谐波技术,这为

国际科学界的终端用户提供涵盖相干真空紫外和 X 射线的阿秒脉冲<sup>[64]</sup>。该装置的建立将极大地丰富人类测量和操控电子行为的手段,拓宽物理、化学、材料、信息、生命等学科的研究领域,有望在能源科学、材料科学、信息科学和生命科学等领域取得重大突破。2017 年 9 月 28 日,由中国科学院物理研究所等承担的综合极端条件实验装置 SECUF (Synergetic Extreme Condition User Facility) 在北京市怀柔科学城正式启动建设。SECUF 的重要组成部分——阿秒激光线站 ALS (Attosecond Laser Station) 也采用了气体高次谐波技术,为最终用户提供超快真空紫外到软 X 射线的先进阿秒光源,用于研究原子、分子和凝聚态物质中的电子动力学<sup>[65]</sup>。

### 参 考 文 献

- [1] Li Z X, Gong C, Hua L Q, et al. Supercontinuum generation in calcium fluoride crystals using high-intensity femtosecond laser [J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2019, 46(5): 0508021.  
李子熙, 龚成, 华林强, 等. 强飞秒激光在氟化钙晶体中产生的超连续谱 [J]. *中国激光*, 2019, 46(5): 0508021.
- [2] Li H L, Wang S Q, Fu Y, et al. Air lasing: principle, generation, and applications [J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2020, 47(5): 0500017.  
李贺龙, 王思琪, 付尧, 等. 空气激光的原理、产生及应用 [J]. *中国激光*, 2020, 47(5): 0500017.
- [3] McPherson A, Gibson G, Jara H, et al. Studies of multiphoton production of vacuum-ultraviolet radiation in the rare gases [J]. *Journal of the Optical Society of America B*, 1987, 4(4): 595-601.
- [4] Ferray M, L'Huillier A, Li X F, et al. Multiple-harmonic conversion of 1064 nm radiation in rare gases [J]. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, 1988, 21(3): L31-L35.
- [5] Corkum P B. Plasma perspective on strong field multiphoton ionization [J]. *Physical Review Letters*, 1993, 71(13): 1994-1997.
- [6] Zhang Y, Yang F, Liu C D, et al. Quantum path interference in attosecond transient absorption of  $H_2^+$  [J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2020, 47(8): 0801004.  
张煜, 杨帆, 刘灿东, 等.  $H_2^+$  阿秒瞬态吸收中的量子路径干涉 [J]. *中国激光*, 2020, 47(8): 0801004.
- [7] Siek F, Neb S, Bartz P, et al. Angular momentum-induced delays in solid-state photoemission enhanced by intra-atomic interactions [J]. *Science*, 2017, 357(6357): 1274-1277.
- [8] Goulielmakis E, Loh Z H, Wirth A, et al. Real-time observation of valence electron motion [J]. *Nature*, 2010, 466(7307): 739-743.
- [9] Schultze M, Fiess M, Karpowicz N, et al. Delay in photoemission [J]. *Science*, 2010, 328(5986): 1658-1662.
- [10] Ghimire S, DiChiara A D, Sistrunk E, et al. Observation of high-order harmonic generation in a bulk crystal [J]. *Nature Physics*, 2011, 7(2): 138-141.
- [11] Han S, Kim H, Kim Y W, et al. High-harmonic generation by field enhanced femtosecond pulses in metal-sapphire nanostructure [J]. *Nature Communications*, 2016, 7: 13105.
- [12] Ghimire S, Reis D A. High-harmonic generation from solids [J]. *Nature Physics*, 2019, 15(1): 10-16.
- [13] Sivilis M, Taucer M, Vampa G, et al. Tailored semiconductors for high-harmonic optoelectronics [J]. *Science*, 2017, 357(6348): 303-306.
- [14] Luu T T, Yin Z, Jain A, et al. Extreme-ultraviolet high-harmonic generation in liquids [J]. *Nature Communications*, 2018, 9(1): 3723.
- [15] Zeng A W, Bian X B. Impact of statistical fluctuations on high harmonic generation in liquids [J]. *Physical Review Letters*, 2020, 124(20): 203901.
- [16] Winterfeldt C, Spielmann C, Gerber G. Colloquium: optimal control of high-harmonic generation [J]. *Reviews of Modern Physics*, 2008, 80(1): 117-140.
- [17] Corkum P B, Krausz F. Attosecond science [J]. *Nature Physics*, 2007, 3(6): 381-387.
- [18] Lewenstein M, Balcou P, Ivanov M Y, et al. Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields [J]. *Physical Review A*, 1994, 49(3): 2117-2132.
- [19] Budil K S, Salières P, L' Huillier A, et al. Influence of ellipticity on harmonic generation [J]. *Physical Review A*, 1993, 48(5): R3437-R3440.
- [20] Ndabashimiye G, Ghimire S, Wu M, et al. Solid-state harmonics beyond the atomic limit [J]. *Nature*, 2016, 534(7608): 520-523.
- [21] You Y S, Reis D A, Ghimire S. Anisotropic high-

- harmonic generation in bulk crystals [J]. *Nature Physics*, 2017, 13(4): 345-349.
- [22] Yoshikawa N, Tamaya T, Tanaka K. High-harmonic generation in graphene enhanced by elliptically polarized light excitation [J]. *Science*, 2017, 356(6339): 736-738.
- [23] Zhang X, Li J B, Zhou Z S, et al. Ellipticity dependence transition induced by dynamical Bloch oscillations [J]. *Physical Review B*, 2019, 99: 014304.
- [24] Li L, Lan P F, Zhu X S, et al. Reciprocal-space-trajectory perspective on high-harmonic generation in solids [J]. *Physical Review Letters*, 2019, 122(19): 193901.
- [25] Vampa G, McDonald C, Orlando G, et al. Theoretical analysis of high-harmonic generation in solids [J]. *Physical Review Letters*, 2014, 113(7): 073901.
- [26] Kim I J, Kim C M, Kim H T, et al. Highly efficient high-harmonic generation in an orthogonally polarized two-color laser field [J]. *Physical Review Letters*, 2005, 94(24): 243901.
- [27] Rundquist A. Phase-matched generation of coherent soft X-rays [J]. *Science*, 1998, 280(5368): 1412-1415.
- [28] Gibson E A, Paul A, Wagner N, et al. Coherent soft X-ray generation in the water window with quasi-phase matching [J]. *Science*, 2003, 302(5642): 95-98.
- [29] Paul A, Bartels R A, Tobey R, et al. Quasi-phase-matched generation of coherent extreme-ultraviolet light [J]. *Nature*, 2003, 421(6918): 51-54.
- [30] Seres J, Yakovlev V S, Seres E, et al. Coherent superposition of laser-driven soft-X-ray harmonics from successive sources [J]. *Nature Physics*, 2007, 3(12): 878-883.
- [31] Zhang X S, Lytle A L, Popmintchev T, et al. Quasi-phase-matching and quantum-path control of high-harmonic generation using counterpropagating light [J]. *Nature Physics*, 2007, 3(4): 270-275.
- [32] Voronov S L, Kohl I, Madsen J B, et al. Control of laser high-harmonic generation with counterpropagating light [J]. *Physical Review Letters*, 2001, 87(13): 133902.
- [33] Zhang Y, Zeng Z N. Terahertz field modulated quasi-phase-matched high-order harmonic generation [J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2020, 47(6): 0614001.
- 张轶, 曾志男. 太赫兹场调制准相位匹配高次谐波产生 [J]. *中国激光*, 2020, 47(6): 0614001.
- [34] Lee D G, Kim J H, Hong K H, et al. Coherent control of high-order harmonics with chirped femtosecond laser pulses [J]. *Physical Review Letters*, 2001, 87(24): 243902.
- [35] Imasaka K, Kaji T, Shimura T, et al. Antenna-enhanced high harmonic generation in a wide-bandgap semiconductor ZnO [J]. *Optics Express*, 2018, 26(16): 21364-21374.
- [36] Liu H Z, Guo C, Vampa G, et al. Enhanced high-harmonic generation from an all-dielectric metasurface [J]. *Nature Physics*, 2018, 14(10): 1006-1010.
- [37] Zhou X B, Lock R, Wagner N, et al. Elliptically polarized high-order harmonic emission from molecules in linearly polarized laser fields [J]. *Physical Review Letters*, 2009, 102(7): 073902.
- [38] Vodungbo B, Bartsch S, Sardinha A, Gautier J, et al. Polarization control of high order harmonics in the EUV photon energy range [J]. *Optics Express*, 2011, 19(5): 4346-4356.
- [39] Fleischer A, Kfir O, Diskin T, et al. Spin angular momentum and tunable polarization in high-harmonic generation [J]. *Nature Photonics*, 2014, 8(7): 543-549.
- [40] Lambert G, Vodungbo B, Gautier J, et al. Towards enabling femtosecond helicity-dependent spectroscopy with high-harmonic sources [J]. *Nature Communications*, 2015, 6: 6167.
- [41] Hickstein D D, Dollar F J, Grychtol P, et al. Non-collinear generation of angularly isolated circularly polarized high harmonics [J]. *Nature Photonics*, 2015, 9(11): 743-750.
- [42] Saito N, Xia P Y, Lu F M, et al. Observation of selection rules for circularly polarized fields in high-harmonic generation from a crystalline solid [J]. *Optica*, 2017, 4(11): 1333-1336.
- [43] Klemke N, Tancogne-Dejean N, Rossi G M, et al. Polarization-state-resolved high-harmonic spectroscopy of solids [J]. *Nature Communications*, 2019, 10(1): 1319.
- [44] Chen Z Y, Qin R. Circularly polarized extreme ultraviolet high harmonic generation in graphene [J].

- Optics Express, 2019, 27(3): 3761-3770.
- [45] Popmintchev T, Chen M C, Popmintchev D, et al. Bright coherent ultrahigh harmonics in the keV X-ray regime from mid-infrared femtosecond lasers[J]. Science, 2012, 336(6086): 1287-1291.
- [46] Calegari F, Sansone G, Stagira S, et al. Advances in attosecond science[J]. Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics, 2016, 49(6): 062001.
- [47] Goulielmakis E, Schultze M, Hofstetter M, et al. Single-cycle nonlinear optics[J]. Science, 2008, 320(5883): 1614-1617.
- [48] 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[J]. Optics Letters, 2006, 31(7): 975-977.
- [49] Takahashi E J, Lan P, Mücke O D, et al. Attosecond nonlinear optics using gigawatt-scale isolated attosecond pulses[J]. Nature Communications, 2013, 4(1): 2691.
- [50] Shan B, Ghimire S, Chang Z H. Generation of the attosecond extreme ultraviolet supercontinuum by a polarization gating[J]. Journal of Modern Optics, 2005, 52(2/3): 277-283.
- [51] Mashiko H, Gilbertson S, Li C, et al. Double optical gating of high-order harmonic generation with carrier-envelope phase stabilized lasers[J]. Physical Review Letters, 2008, 100(10): 103906.
- [52] Ferrari F, Calegari F, Lucchini M, et al. High-energy isolated attosecond pulses generated by above-saturation few-cycle fields[J]. Nature Photonics, 2010, 4(12): 875-879.
- [53] 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[J]. Optics Express, 2017, 25(22): 27506-27518.
- [54] Garg M, Zhan M, Luu T T, et al. Multi-petahertz electronic metrology[J]. Nature, 2016, 538(7625): 359-363.
- [55] Li J B, Zhang X, Yue S J, et al. Enhancement of the second plateau in solid high-order harmonic spectra by the two-color fields[J]. Optics Express, 2017, 25(16): 18603-18613.
- [56] Schultze M, Bothschafter E M, Sommer A, et al. Controlling dielectrics with the electric field of light[J]. Nature, 2013, 493(7430): 75-78.
- [57] Pertot Y, Schmidt C, Matthews M, et al. Time-resolved X-ray absorption spectroscopy with a water window high-harmonic source[J]. Science, 2017, 355(6322): 264-267.
- [58] Lan P F, Ruhmann M, He L X, et al. Attosecond probing of nuclear dynamics with trajectory-resolved high-harmonic spectroscopy[J]. Physical Review Letters, 2017, 119(3): 033201.
- [59] Vampa G, Hammond T J, Thiré N, et al. Linking high harmonics from gases and solids[J]. Nature, 2015, 522(7557): 462-464.
- [60] Lanin A, Stepanov E A, Fedotov A B, et al. Mapping the electron band structure by intraband high-harmonic generation in solids[J]. Optica, 2017, 4(5): 516-519.
- [61] Yu C, Jiang S C, Wu T, et al. Two-dimensional imaging of energy bands from crystal orientation dependent higher-order harmonic spectra in h-BN[J]. Physical Review B, 2018, 98(8): 085439.
- [62] Luu T T, Wörner H J. Measurement of the Berry curvature of solids using high-harmonic spectroscopy[J]. Nature Communications, 2018, 9(1): 916.
- [63] Silva R E F, Blinov I V, Rubtsov A N, et al. High-harmonic spectroscopy of ultrafast many-body dynamics in strongly correlated systems[J]. Nature Photonics, 2018, 12(5): 266-270.
- [64] Kühn S, Dumergue M, Kahaly S, et al. The ELI-ALPS facility: the next generation of attosecond sources[J]. Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics, 2017, 50(13): 132002.
- [65] Teng H, He X K, Zhao K, et al. Attosecond laser station[J]. Chinese Physics B, 2018, 27(7): 074203.