arXiv:2603.05346v1 [physics.optics] 5 Mar 2026

来自手性拓扑外尔半金属的脉冲持续时间敏感的高次谐波与阿秒局域手性光

Alba de las Heras*[1], Ofer Neufeld*[2], 和 Angel Rubio[1,3]

[1]马克斯·普朗克物质结构与动力学研究所与自由电子激光科学中心，汉堡 22761，德国[2]以色列理工学院，化学学院，海法 3200003，以色列[3]计算量子物理中心，Flatiron研究所，纽约 10010，美国

*电子邮箱：alba.de-las-heras@mpsd.mpg.de, ofern@technion.ac.il, angel.rubio@mpsd.mpg.de

摘要

固体中的高次谐波产生（HHG）源于高强度激光脉冲驱动下带内加速与电子-空穴复合之间的相互作用。在此，我们从理论上揭示，驱动脉冲持续时间可通过促进更高的导带激发，在将高次谐波产生扩展至更高光子能量方面发挥主要作用。该效应存在于硅等常规半导体中，在氧化镁等大带隙绝缘体中受到限制，而在呈现大量能带交叉的典型手性外尔半金属RhSi中最为显著。此外，我们阐明了在RhSi中合成阿秒局域手性光所需的高次谐波产生选择定则。手性晶体结构能够产生局域三维电场，该电场在阿秒时间尺度上表现出非对称瞬时扭转。当驱动螺旋度与晶体手性方向一致或相反时，会出现显著的圆二色性。我们的发现激励未来在手性外尔半金属中开展实验，以追踪高能能带交叉和原位局域手性光，为手性紧凑型光源和光波驱动的拓扑电子学铺平道路。

关键词

阿秒科学；量子拓扑材料；手性；高次谐波产生；超快电子动力学

引言

高强度激光脉冲与物质的相互作用，为了解电子动力学提供了宝贵的见解，并推动了极紫外和软X射线区域高频光源的发展 [1,2]。高次谐波产生（HHG）的相干性至关重要，它不仅使阿秒脉冲的合成成为可能，也使超快动力学能够被追踪 [3–5]。长期以来，由原子或分子种类组成的稀薄气体一直是高次谐波产生的标准靶材，直到块体晶体中首次观测到高次谐波产生 [6]。如今，量子拓扑材料中的高次谐波产生是一个极为活跃的研究方向，涵盖狄拉克 [7–9] 和外尔半金属 [10–17], ，以及拓扑绝缘体 [18–20]。手性外尔半金属尤为引人关注，因为其晶格和电子外尔费米子兼具手性 [21–23]。利用同时具有电子手性和结构手性的手性拓扑材料产生高次谐波，其潜力尚未得到开发。

气体和固体的高次谐波光谱具有相似特征：均存在非微扰高次谐波平台，并在截止能量 [6, 24]处终止。然而，基于以下三个步骤的原子和分子高次谐波产生（HHG）经典图像——i）隧穿电离，ii）电子在

实空间偏移过程中加速，以及 iii）复合 [25, 26], ——在固体中则更为复杂。固体中的高次谐波产生源于带内贡献和带间贡献 [27]。带内高次谐波产生源于电子在能带内的非线性运动，而带间路径则需要经历 i）电子激发至导带，ii）在动量空间中的位移，以及 iii）电子-空穴复合 [28]。理解固态高次谐波产生中的带间贡献和带内贡献，有助于获取有关能带结构 [29–35], 、晶体对称性 [36, 37], 和亚周期载流子动力学 [38, 39] 的定量信息。总体而言，高次谐波产生中的能量截止通常由带间动力学决定，因此最大光子能量取决于复合 [40]时的最大电子-空穴能量差。已知高能导带 [31, 40–45]之间的高能跃迁会产生多个平台。固体高次谐波产生中的一个微妙参数是驱动脉冲持续时间。一维模型的预测表明，它对次级平台的出现至关重要 [43]。然而，据我们所知，实验或模拟尚未报告这种脉冲持续时间对固态高次谐波产生的依赖性。

晶体提供了另一种机会，可将其对称性印刻到高频相干发射中，这有别于通过调节驱动场来改变和控制高次谐波产生性质的传统方法 [46–48]。例如，在固体中可以自然地产生具有高椭圆率的高次谐波发射 [49–51], ，以此作为气体靶中所提出方案的替代方法 [52–55]。同样重要的是，某些对称性的缺失能够产生更丰富的现象，例如缺乏反演对称性的材料中的圆光伏效应 [56–60]。镜面对称性的缺失被称为手性，在分子系统中得到了深入研究 [61–66] ，因为对映体敏感性对于生物医学应用以及化学设计中的催化过程至关重要。同样，高次谐波产生也可以探测晶体的结构手性 [67, 68]。然而，手性晶体尚未被研究为在高次谐波产生中印刻局域手性的途径。局域手性光的关键概念，是在微观尺度上设计出一种无法与其镜像重合的镜像电场，从而与物质产生更高效的手性相互作用 [69–73]。值得注意的是，无论空间尺度如何，物质系统都能感知局域手性光的手性 [69]。不过，由于需要高度的光谱控制和近场探测，局域手性光的产生与表征在实验上仍然充满挑战；此外，其在手性固体中的相互作用及产生机制迄今也尚未得到探索。

在此，我们利用含时密度泛函理论（TDDFT）研究 RhSi——一种已得到充分研究的手性外尔半金属[21–23]——中的高次谐波产生。我们的双重目标是：(i) 揭示脉冲持续时间在固态高次谐波产生中的作用；(ii) 证明结构手性会映射为局域手性高次谐波产生。我们的第一性原理计算表明，驱动激光脉冲的持续时间会显著影响电子激发至高能导带的量子路径，进而影响高次谐波产生的截止能量。由于多能带耦合较强，这一效应在 RhSi 中尤为显著；在硅中程度中等；而在大带隙绝缘体氧化镁中则受到极大抑制。此外，我们在 RhSi 中确定了用于合成局域手性光的高次谐波产生选择定则。通过利用圆偏振驱动场与手性晶体结构之间的强场相互作用，可以构造三维局域电场，使其在阿秒时间尺度上呈现非对称瞬时扭转。这种以数百阿秒为周期变化的局域手性偏振，为在偶极相互作用中诱导和探测阿秒手性激发开辟了新途径。总之，我们的工作确立了手性外尔半金属作为一类有望观测和操控非平衡相干现象的材料，并有望推动紧凑型极紫外光源和超快光波驱动电子学的发展。

结果

来自块体晶体的高次谐波产生的脉冲持续时间依赖性

我们首先考察一个中心光子能量为 ∼1eV、沿[111] 晶体方向线偏振的激光脉冲。在图1中，我们比较了驱动脉冲持续时间分别为 4、12 和 20 个光学周期的情况，依次以黄色、蓝色和黑色表示。每个面板均展示了 (A) RhSi 、 (B) 硅和 (C) 氧化镁的能带结构、高次谐波谱，以及式 1 中占据态电子密度的变化 $|\Delta \mathrm{DOOS}|$ 。插图展示了晶体晶胞和入射电场的几何构型。按照惯例，能量轴的原点平移至费米能。为了获得可比较的高次谐波产生响应，RhSi 和硅的驱动峰值强度设为 1 $\mathrm{TW/cm^2}$ ，而氧化镁因带隙较大，选用 3 $\mathrm{TW/cm^2}$ 。

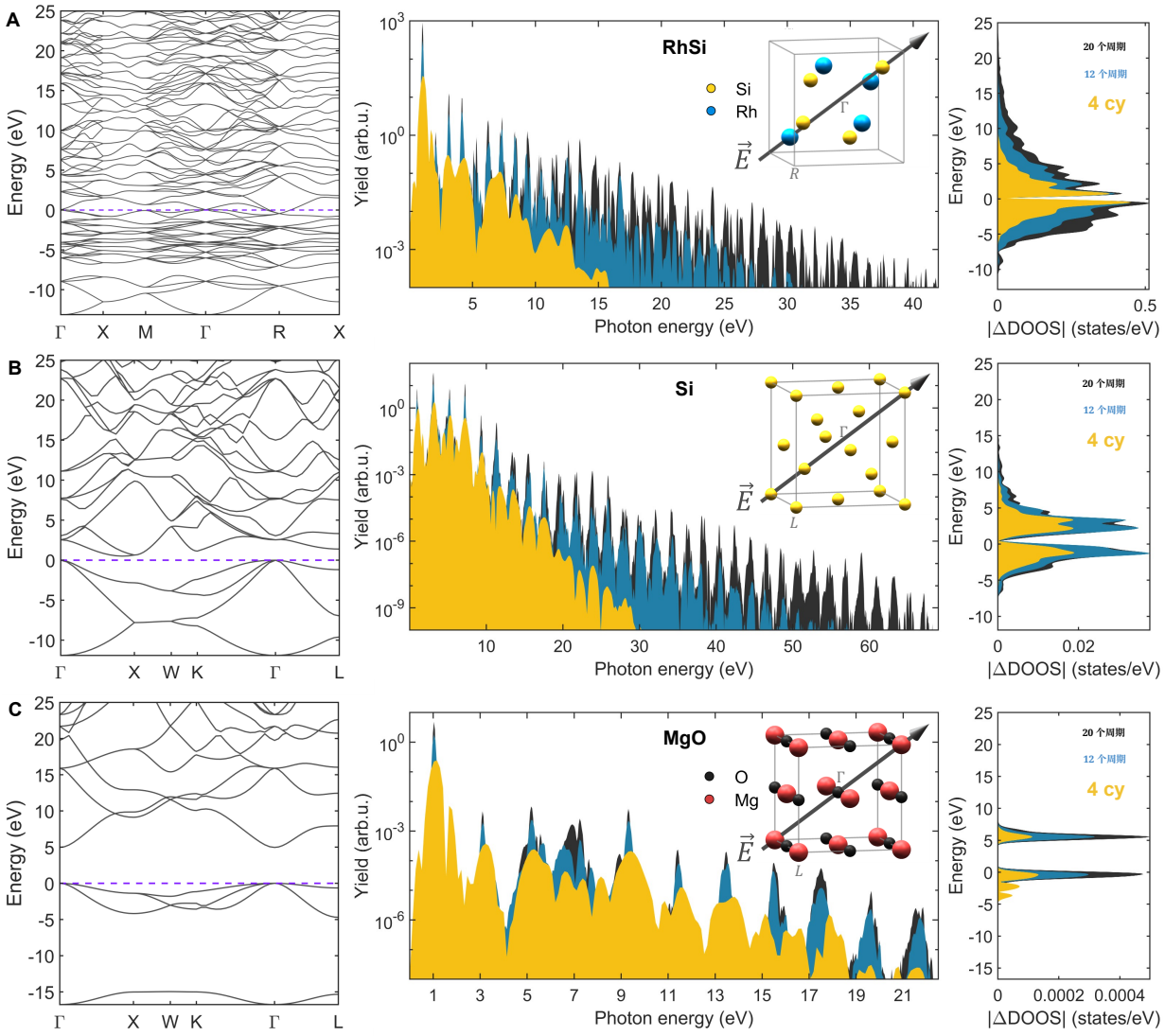


图1：**块体晶体中高次谐波产生的脉冲持续时间依赖性**。三种不同材料的计算能带结构（左）、高次谐波谱（中）和占据态密度变化（右）：（**A**）RhSi、（**B**）硅和（**C**）氧化镁。费米能标示在 0 eV 处（紫色虚线）。驱动激光脉冲的总持续时间分别设为 4（黄色）、12（蓝色）和 20（黑色）个光学周期。在 RhSi 和硅中，较长的驱动脉冲持续时间对应着更高能态的占据，以及发射向更高光子能量的大幅扩展。插图展示了晶胞以及线偏振电场的方向。

图1显示，RhSi 和硅中的高次谐波能量截止对脉冲持续时间极为敏感。在保持峰值强度及其他驱动参数不变的情况下，硅中的截止能量会随着脉冲持续时间从 4 个周期增至 20 个周期，从 ∼25 扩展至 ∼60 eV。谐波产率呈现出典型的多平台行为，在 ∼7、26、43 和 59 eV 处出现突然而阶梯式的衰减。因此，最高平台（能量范围为 43–59 eV）的发射谐波产率比标准平台（位于 < 7 eV）低 8 个数量级。RhSi 中的截止扩展范围从 ∼7 扩展至∼35 eV。值得注意的是，其光谱中的谐波产率衰减更为平缓，覆盖了 3 个数量级的谐波产率下降。这表明 RhSi 是一种很有前景的材料，有望用于实验观测能量截止扩展。尽管能量截止预计取决于驱动光子能量和峰值场振幅[6, 74], , 脉冲持续时间的影响意味着电子会逐步上升

在与激光脉冲 [43]相互作用期间经过导带。

作为一个相反的例子，氧化镁中的高次谐波谱（图 1C）并未表现出能量截止对脉冲持续时间的显著依赖。我们观察到长脉冲的常见效应，例如谐波峰变窄，以及更多复合事件的周期性带来的产额增强。接下来，我们将进一步探究截止扩展的成因，以及有利于或阻碍这一机制的材料特性。为了评估激光脉冲引起的电子重排，我们将占据态密度的变化定义为

$$|\Delta\mathrm{DOOS}(E)| = \left| \sum_{k,n} \left[f_{k,n}(t = \tau_{\mathrm{pulse}}) - f_{k,n}(t = 0) \right] w_k \, \delta(E - E_{k,n}) \right|, \tag{1}$$

其中，$f_{k,\ n}(t)$ 是各本征态在时刻 t的占据系数，w_k 是 k 点权重，E 是能量变量，$E_{n,\ k}$ 是本征值，τ_{pulse} 是驱动激光脉冲的完整持续时间，$t = 0$ 是激光脉冲到来前的初始时刻。图 1 右栏绘出了 RhSi、硅和氧化镁在不同驱动脉冲持续时间下的函数 $|\Delta\mathrm{DOOS}(E)|$ 。较长的脉冲会使 RhSi 和硅中的电子布居转移至高能态，但氧化镁中则不会。这表明“激发阶梯电子”（即经过能带交叉或窄带隙后占据高能导带的电子）是我们在 RhSi 和硅的高次谐波光谱中观察到截止扩展的原因。

氧化镁中的占据情况表明，价带仅与第一导带耦合。这排除了增大复合电子与空穴之间能量差的可能性，而这种能量差是形成高阶谐波平台所必需的。氧化镁较大的带隙阻碍了与高能态的强耦合，因为偶极矩阵元与跃迁能量差成反比。要观测到次级平台，需要大幅提高驱动强度[45]。相较之下，在 RhSi 的能带结构中可观察到错综复杂的能带交叉网络，这有利于多能带耦合，并使电子即使在较低驱动强度下也能跃迁至高能态。这与 RhSi 在高光子能量下具有更高的谐波产率相吻合。硅可视为一种中间情况：其较小的带隙使多能带耦合成为可能，但这种耦合不如在 RhSi 中那样有利。这也与硅的高次谐波产生（HHG）光谱中较低的产率相符。

即使材料特性和激光参数允许高能激发路径，激发高能态仍需要经历多个相互作用周期[43]。激发阶梯电子的机制具有累积性，因此驱动脉冲越长，高能态的布居数就越高。为更深入地了解高次谐波产生的逐步累积过程，我们继续分析发射辐射。图 2 中 RhSi、硅和氧化镁的高次谐波产生时间分辨谱图，展示了光子能量发射随时间的变化。我们再次比较驱动脉冲持续时间分别为 4 个（左列）、12 个（中列）和 20 个（右列）光学周期的情况。一方面，在 RhSi 和硅中，随着光学周期数增加，发射的光子能量也随之升高。经过最初几个周期后，能量截止随相互作用时间线性增加（见图 2B、C、E、F）。高光子能量的发射一直持续到激光脉冲结束，随后才因模拟中未纳入的退相干效应而最终消失。

另一方面，氧化镁中的发射在所有脉冲持续时间下都表现出相似的行为（图2G-I），这与原子和分子中通常的高次谐波产生相似。在氧化镁中，截止能量附近的光子能量会在脉冲的中心时刻附近发射，此时峰值强度较高。这表明，氧化镁中的少能带耦合与硅和 RhSi 中的高多能带耦合产生了不同的高次谐波产生发射。高次谐波产生对带间耦合的敏感性使我们能够追踪有关激发电子动力学的信息。具体而言，能量截止提供了复合过程中最大电子-空穴能量差的信息。因此，通过时间分辨频谱图分析，我们获得了高能电子-空穴复合所需的时间。激光-物质相互作用的持续时间决定了电子路径能够到达的激发态，而激发电子布居通常会在每个激光周期内增加。为了延展截止能量，需要通过实验研究最佳持续时间，在满足宏观相位匹配条件的同时，权衡电子激发与退相干之间的关系。从理论上讲，通过提高驱动强度还可以获得更高的截止能量（见补充材料[75]）。

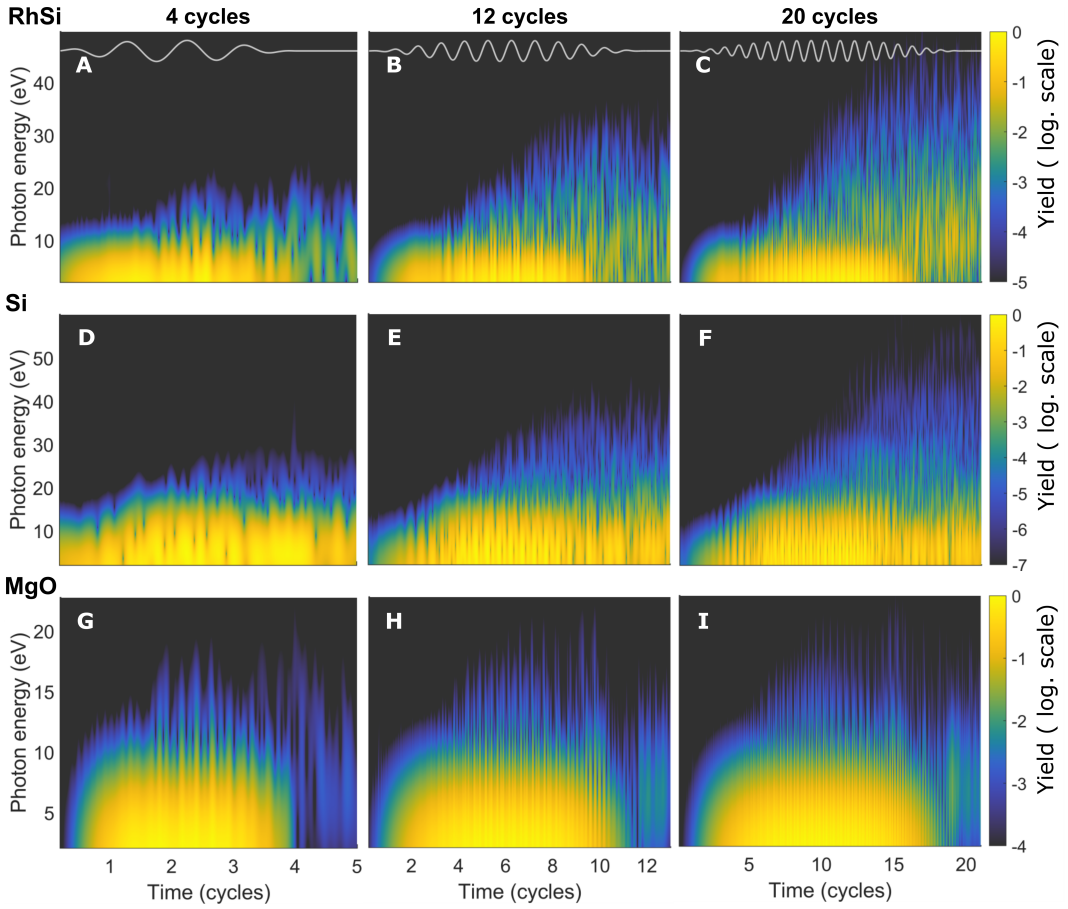


图2：**RhSi、硅和氧化镁中高次谐波发射的时间分辨谱图**。在 RhSi 和硅中，发射高光子能量需要较长的相互作用时间。在这两种晶体中，能量截止随相互作用时间延长而提高。相比之下，氧化镁中的发射无论脉冲持续时间如何，达到的光子能量都相近。顶部的灰线显示了分别包含 4（左）、12（中）和 20 个光学周期（右）的驱动脉冲。

RhSi 中的对称性选择定则与阿秒局域手性光

在本节中，我们考察手性外尔半金属 RhSi 中的高次谐波产生动力学对称性 [48, 76] 。对于沿手性晶轴 [111], 方向的线偏振驱动光，发射沿同一方向呈线偏振。为了利用晶体结构的手性进行高次谐波产生，我们将驱动偏振改为圆偏振。图3展示了两种不同晶体取向下的高次谐波产生和合成电场。我们设置驱动光子能量为 1.55 eV、脉冲持续时间为 8 个周期，以及峰值强度为 1 TW/cm^2。

当右旋圆偏振（RCP）驱动激光脉冲沿手性轴 [111], 传播时，高次谐波谱（图 3A）呈现出谐波阶次三元组，其螺旋度相同（蓝色表示 RCP）、螺旋度相反——即左旋圆偏振（LCP，紫色）——以及纵向偏振（黄色）。这种选择定则在高次谐波产生（HHG）中鲜有出现，因为它要求旋转轴具有三重旋转对称性，同时在垂直于旋转轴的方向上缺乏镜面对称性[48] （而气相系统通常是各向同性的，因此具有镜面）。我们将其表示为 $C_3^{(\pm)}$ ，其中（±）标记与晶格相关的右手和左手对映异构体。缺乏反演对称性和镜面的特征直接体现于 B20立方手性晶体结构（198号空间群）中，这使得纵向偏振谐波得以出现（即整数 n的三元组中的 $3n$ 分量）。根据麦克斯韦方程组，由于相位匹配限制，这些纵向偏振谐波无法在自由空间中传播。它们构成可在近场中探测到的倏逝场 [77, 78], ，并可用于

成像和光谱应用[79, 80]。未来可致力于设计满足 $C_3^{(\pm)}$ 动力学类对称性、同时又能使纵向分量传播的非共线构型（例如参考文献 [61, 69] 中提出的方案）。尽管如此，以下我们将重点分析微观三维电场，包括面内和面外分量；这些分量可在手性晶体中原位用于光谱学，也可用于合成局域手性光。

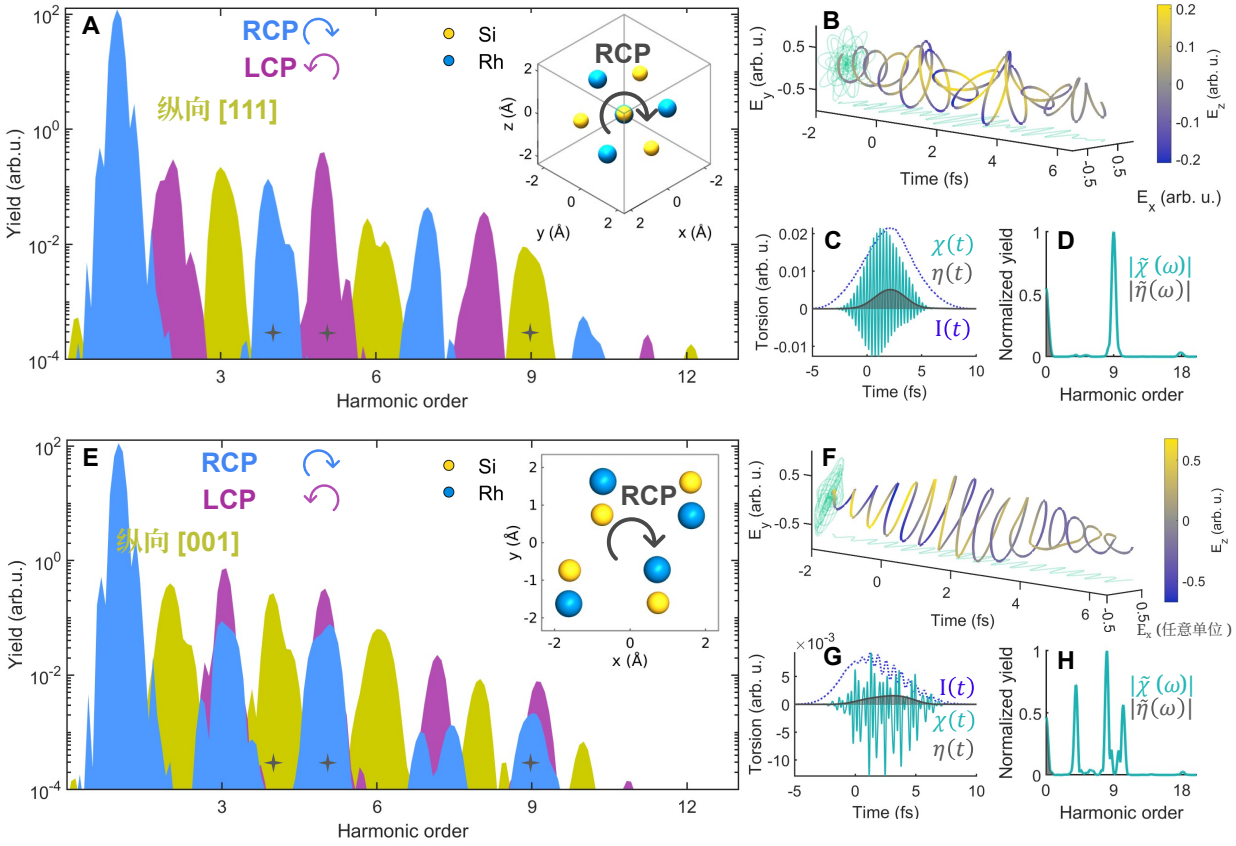


图3：**RhSi 中由右旋圆偏振脉冲驱动的手性高次谐波产生**。RhSi 与右旋圆偏振（RCP）驱动脉冲相互作用，产生具有面内和面外偏振分量的复杂发射。（**A**）右旋圆偏振脉冲在（111）晶面中驱动产生的高次谐波谱包含交替出现的反向旋转圆偏振谐波阶次（蓝色为右旋圆偏振，紫色为左旋圆偏振），其后为纵向分量（黄色）。插图表示相互作用几何构型。用于光谱合成的3、4和9阶谐波以灰色星号标出。（**B**）三维合成电场的时间演化。通过绘制于（**C**）时间和（**D**）频域中的瞬时扭转（浅蓝色）和扭转包络（阴影区域），对其局域手性进行量化。点线表示电场强度 $I(t)$，并以任意单位作为参考。（**E-H**）对于（001）晶面中的右旋圆偏振驱动激光脉冲，也显示了相应的图示。

图 3A 中由动力学对称性类别 $C_3^{(+)}$ 产生的谐波三元组，是局域手性光合成的一个主要要素：具有三种不同正交偏振的谐波阶次。纵向偏振谐波的频率可与共面的左旋圆偏振和右旋圆偏振分量的频率和相匹配，从而使局域电场（即局域手性光）具有非零的平均手性[69]。谐波阶次 3、4 和 9 相干叠加所产生的电场如图 3B 所示，展示于时间域中。电场已归一化，纵向分量以色图表示。图中还绘出了投影视图（浅蓝色），作为参照。

To 为量化光的局域手性，我们定义瞬时的、随时间变化的扭转

$$\chi(t) = \mathbf{E}(t) \cdot \left(\frac{d\mathbf{E}(t)}{dt} \times \frac{d^2\mathbf{E}(t)}{dt} \right). \tag{2}$$

赝标量 $\chi(t)$ 描述了局域电场矢量在时间和电场空间中描绘的轨迹所具有的非共面扭转。 $\chi(t)$ 用于评估局域电场矢量 $\mathbf{E}(t)$ 的瞬时手性。我们考虑归一化电场，因此 $\chi(t)$ 的单位为归一化单位（n.u.）。图3C展示了瞬时扭转（浅蓝色曲线）的超快演化、扭转包络 $\eta(t)$（阴影区域），以及局域电场强度 $I(t)$（虚线，单位为任意单位）。值得注意的是，扭转包络 $\eta(t)$ 显示了瞬时扭转 $\chi(t)$ 的不对称性。时间积分 $\zeta = \int \chi(t)dt$ 表示电场所携带的净扭转（在我们的例子中为 $\zeta = 0.3679$ n.u.）。如果 $\chi(t) \neq 0$，电场可以具有瞬时局域手性；而净局域手性则要求 $\zeta \neq 0$。 $\chi(t)$、 $\eta(t)$ 和 ζ 的定义可用于量化任意局域电场的瞬时、周期平均和净手性，而不受其频谱分量或时间波形复杂程度的影响。

通过对瞬时扭转进行频谱分解，可以获得更多信息（见图3D）。设 ω_0 为中心驱动频率，局域电场扭转的主要频率为$9\omega_0$，对应的周期为 296 as。在 $4\omega_0$ 和 $5\omega_0$ 处还可观察到较小的峰值（周期分别为 666 和 533 as），这与合成的谐波阶次相符。此外，扭转包络对应于低频峰（图3D中的阴影区域）。这些结果表明，手性外尔半金属产生的高次谐波可作为阿秒手性光谱学的有效工具，也可通过利用高、低频扭转分量来触发手性动力学。

图 3E–H 展示了另一种晶体取向下的高次谐波产生及电场分析。当右旋圆偏振激光脉冲位于(001)晶面内时，高次谐波谱受面内二重旋转对称性支配，同时仍破坏横向镜面对称性， $C_2^{(\pm)}$ 。这使面内分量仅包含奇次谐波阶次，而纵向偏振则仅包含偶次谐波（图 3E）。由于右旋圆偏振和左旋圆偏振分量的振幅不相同，偶次谐波呈现较高的椭圆率；这是由螺旋晶轴 [001]导致的。其他材料中的特定谐波阶次也可能出现类似效应，这是能带结构[50]引发的反常椭圆率行为所致。与前一种构型相同，我们通过滤除第 4、5 和 9 次谐波来合成电场。所得电场如图 3F 所示。选择定则 $C_2^{(+)}$ 同样会产生局域三维电场，其瞬时扭转（图 3G 中的浅蓝色曲线）在阿秒尺度上变化。然而，与 $C_3^{(+)}$ 选择定则（图 3C）相比，图 3G 中的瞬时扭转峰值较低，且更加对称。对称性的增强使扭转包络和净扭转减小，本例中净扭转为 $\zeta = -0.1402$ n.u.。负号表示扭转的手性相反。扭转的频谱分量（图 3H）表现出更复杂的变化，但仍可观察到低频和高频分量。

总之， $C_2^{(+)}$ 选择定则也允许合成局域手性光，其非对称瞬时扭转在阿秒尺度上变化，并具有非零扭转包络和净扭转。不过， $C_3^{(+)}$ 选择定则有利于获得更高的净局域手性。从宏观角度看，使用 $C_3^{(\pm)}$ 或 $C_2^{(\pm)}$ 选择定则合成的总电场也有望具有全局手性[69]，因为它由手性均匀的局域手性电场构成。补充材料[75]中还包含对光谱滤波中高、低控制程度的更多结果，以及采用相反驱动螺旋度时呈现的圆二色性。在光驱动的手性外尔半金属中，具有瞬时扭转的局域电场能够稳健地产生；这一现象有望应用于新兴的、时间螺旋度可调的阿秒局域手性源。

结论

总之，我们对 RhSi 和硅中高次谐波产生的含时密度泛函理论计算表明，延长驱动脉冲持续时间可显著提高截止能量。我们认为，这一现象源于高能导带中的电子布居增加，从而产生更大的电子-空穴能量差，进而提高截止能量。这种“激发阶梯电子”路径在半金属 RhSi 中尤为显著，这是由于该材料具有大量能带

交叉和强烈的多能带耦合。在这种材料中，多平台扩展与主高次谐波平台合并，使其达到更高的光子能量；而在硅中，高阶平台的产额较弱，在氧化镁中则受到严重抑制。氧化镁较大的带隙意味着，要观察到次级平台，需要显著提高强度 [45], ，而电子能否到达更高能导带仍是该材料中尚未解答的问题。RhSi 和硅中获得的高截止能量超过了在氧化镁中测得的 50电子伏特当前上限 [45]（另见补充材料 [75]）。要确定实现截止扩展的最佳参数，还需进一步实验研究，在满足宏观相位匹配条件的同时，权衡电子激发与退相干。我们的结果无疑拓宽了高次谐波产生最佳材料的探索范围；这对于开发紧凑、相干的极紫外固态光源至关重要。此外，激发阶梯电子机制对少能带理论模型的适用性提出了限制，因为这类模型无法捕捉那些存在强多能带耦合材料中的高激发路径。

我们还展示了 RhSi 的手性晶体结构可映射为局域手性高次谐波产生[69]。纵向偏振谐波往往被忽略，因为它们只会在不存在横向镜面对称性时产生，而且无法传播至远场。然而，在这里，纵向偏振谐波是合成局域电场的关键组成部分，这些局域电场呈现出在阿秒尺度上变化的三维手性偏振。通过含时密度泛函理论计算，我们获得的局域电场同时呈现低频和高频扭转分量。瞬时扭转和非零的超短扭转包络均可用于构建效率更高的偶极手性探针。当驱动传播方向沿手性晶轴时，会观察到强烈的圆二色性，其大小取决于驱动场螺旋度与晶格手性是相反还是一致（见补充材料 [75]）。我们发现，相较于 $C_2^{(+)}$ ， $C_3^{(+)}$ 对称性类别更有利于局域手性光合成；该类别具有三重旋转对称性，同时缺乏横向镜面对称性。原因在于， $C_3^{(+)}$ 可实现光谱分离，形成由正交偏振构成的谐波三元组，而$C_2^{(+)}$ 会在偶次谐波阶次中混合反向旋转圆偏振。在与 $C_3^{(+)}$ 相容的手性晶体中，B20立方晶体结构（198号空间群）是一个特别的选择，因为它能够产生多重费米子[22]或磁斯格明子[81]。总之，我们的研究为未来的实验铺平了道路，使其能够通过固态高次谐波产生测量奇异的阿秒光脉冲、手性以及高能激发路径。这些前景对紧凑型极紫外光源、灵敏的对映异构体检测以及超快光波驱动电子学都颇具吸引力。

致谢

本研究得到欧洲研究理事会（ERC-2024-SyG-101167294；UnMySt）、卓越集群“物质先进成像”（AIM）、UPV/EHU稳固研究组与高绩效研究组、巴斯克政府（IT1453-22）及SFB925的支持。我们感谢马克斯·普朗克—纽约市非平衡量子现象中心提供的支持。Flatiron研究所是西蒙斯基金会的一个部门。A.H.感谢亚历山大·冯·洪堡基金会提供的资助。O.N.诚挚感谢以色列理工学院海伦·迪勒量子中心和RBNI Nevet项目，以及Vatat量子科学与技术奖学金提供的支持。

作者贡献

A.H.完成了数值计算并起草了手稿。所有作者均参与了研究设计、科学讨论以及手稿的修改完善。

补充信息

- 方法
- 关于以下内容的补充结果：(i) 更高驱动强度下高次谐波产生扩展与脉冲时长的关系

(ii) 光谱滤波在局域手性高次谐波产生中的作用 (iii) 左旋圆偏振驱动场驱动的局域手性高次谐波产生

参考文献

[1] F. Krausz, M. Ivanov, 《阿秒物理》, 现代物理评论 2009, 81, 163–234, DOI 10.1103/RevModPhys.81.163。[2] T. Popmintchev, M.-C. Chen, P. Arpin, M. Murnane, H. C. Kapteyn, 《明亮相干 X 射线产生的阿秒非线性光学》, 《自然·光子学》2010, 4, 822–832, DOI 10 . 1038 / nphoton.2010.256。[3] P. M. Paul, E. S. Toma, P. Breger, G. Mullot, F. Augé, P. Balcou, H. G. Muller, P. Agostini, 《观测高次谐波产生的阿秒脉冲列》, 科学 2001, 292, 1689–1692, DOI 10.1126/SCIENCE.1059413。[4] M. Hentschel, R. Kienberger, C. Spielmann, G. A. Reider, N. Milosevic, T. Brabec, P. Corkum, U. Heinzmann, M. Drescher, F. Krausz, 《阿秒计量学》, 《自然》2001, 414, 509–513, DOI 10. 1038/35107000。[5] M. F. Kling, M. J. Vrakking, 《阿秒电子动力学》, 物理化学年度评论 2008, 59, 463–492, DOI 10.1146/annurev.physchem.59.032607.093532。[6] S. Ghimire, A. D. Dichiara, E. Sistrunk, P. Agostini, L. F. Dimauro, D. A. Reis, 《观测块体晶体中的高次谐波产生》, 《自然·物理》2011, 7, 138–141, DOI 10.1038/nphys1847。[7] N. Yoshikawa, T. Tamaya, K. Tanaka, 《椭圆偏振光激发增强石墨烯中的高次谐波产生》, 科学 2017, 356, 736–738, DOI 10.1126/science.aam8861。[8] S. Kovalev, R. M. Dantas, S. Germanskiy, J. C. Deinert, B. Green, I. Ilyakov, N. Awari, M. Chen, M. Bawatna, J. Ling, F. Xiu, P. H. van Loosdrecht, P. Surówka, T. Oka, Z. Wang, 《三维狄拉克半金属 Cd3As2 中的非微扰太赫兹高次谐波产生》, 《自然·通讯》2020, 11, 1–6, DOI 10.1038/s41467-020-16133-8。[9] A. García-Cabrera, R. Boyero-García, Ó. Zurrón-Cifuentes, J. Serrano, J. S. Román, L. Plaja, C. Hernández-García, 《拓扑高次谐波光谱学》, Communications Physics 2024, 7, 1– 10, DOI 10.1038/s42005-023-01511-7。[10] Y.-Y. Lv, J. Xu, S. Han, C. Zhang, Y. Han, J. Zhou, S.-H. Yao, X.-P. Liu, M.-H. Lu, H. Weng, Z. Xie, Y. B. Chen, J. Hu, Y.-F. Chen, S. Zhu, 《外尔半金属 β-WP2 晶体中的高次谐波产生》, 《自然·通讯》2021, 12, 6437, DOI 10.1038/s41467-021-26766-y。[11] H. K. Avetissian, V. N. Avetisyan, B. R. Avchyan, G. F. Mkrtchian, 《时间反演对称性破缺的三维外尔半金属中的高次谐波产生》, 《物理评论A》2022, 106, 33107, DOI 10.1103/PhysRevA.106.033107。[12] A. Bharti, G. Dixit, 《拓扑荷在外尔半金属非线性光学响应中的作用》, 《物理评论B》2023, 107, 224308, DOI 10.1103/PhysRevB.107.224308。[13] A. Bharti, G. Dixit, 《外尔半金属中的非微扰非线性光学响应》, Appl. Phys. Lett 2024, 125, 51104, DOI 10.1063/5.0217186。[14] Y. Ominato, M. Mochizuki, 《手征费米子光电流与高次谐波产生理论》, Physical Review Research 2025, 7, 023218, DOI 10.1103/PhysRevResearch.7.023218。[15] X. Liu, L. Geng, X.-S. Kong, J. Zhang, Y.-K. Fang, L.-Y. Peng, 《外尔半金属 WP 2 中高次谐波产生的理论研究》, 《物理评论B》2025, 111, 184314, DOI 10. 1103/PhysRevB.111.184314。[16] X. Zhang, J. van den Brink, J. Li, 《晶体对称性和外尔节点对外尔半金属 TaAs 中高次谐波产生的影响》, 2024, DOI 10.48550/arXiv.2405.16125。[17] S. Yao, P. Yu, Z. Lou, X. Ge, Y. Zheng, Z. Zeng, D. Sun, R. Li, 《II 型外尔半金属 TaIrTe 4 中的高次谐波产生》, 光学快报 2025, 33, 52754, DOI 10.1364/oe.578025。

[18] C. P. Schmid, L. Weigl, P. Grössing, V. Junk, C. Gorini, S. Schlauderer, S. Ito, M. Meierhofer, N. Hofmann, D. Afanasiev, J. Crewse, K. A. Kokh, O. E. Tereshchenko, J. Güdde, F. Evers, J. Wilhelm, K. Richter, U. Höfer, 《拓扑绝缘体中可调的非整数高次谐波产生》, 《自然》2021, 593, 385–390, DOI 10.1038/s41586-021-03466-7。[19] Y. Bai, F. Fei, S. Wang, N. Li, X. Li, F. Song, R. Li, Z. Xu, P. Liu, 《拓扑表面态产生的高次谐波》, 《自然·物理》2021, 17, 311–315, DOI 10.1038/s41567-020-01052-8。[20] D. Baykusheva, A. Chacón, J. Lu, T. P. Bailey, J. A. Sobota, H. Soifer, P. S. Kirchmann, C. Rotundu, C. Uher, T. F. Heinz, D. A. Reis, S. Ghimire, 《基于圆偏振激光场产生高次谐波的三维拓扑绝缘体全光探测》, 《纳米快报》2021, 21, 8970–8978, DOI 10.1021/acs.nanolett.1c02145。[21] G. Chang, S.-Y. Xu, B. J. Wieder, D. S. Sanchez, S.-M. Huang, I. Belopolski, T.-R. Chang, S. Zhang, A. Bansil, H. Lin, M. Z. Hasan, 《RhSi 中的非常规手征费米子和大型拓扑费米弧》, 《物理评论快报》2017, 119, 206401, DOI 10.1103/PhysRevLett.119.206401。[22] M. Z. Hasan, G. Chang, I. Belopolski, G. Bian, S.-Y. Xu, J.-X. Yin, 《拓扑量子物质中的外尔费米子、狄拉克费米子和高重简并手征费米子》, 《自然综述：材料》2021, 6, 784–803, DOI 10.1038/s41578-021-00301-3。[23] B. Yan, 《量子材料中的结构手性与电子手性》, Annual Review of Materials Research 2024, 54, 97–115, DOI 10.1146/annurev-matsci-080222-033548。[24] X. F. Li, A. L'Huillier, M. Ferray, L. A. Lompré, G. Mainfray, 《高激光强度下稀有气体中的多重谐波产生》, 《物理评论A》1989, 39, 5751–5761, DOI 10.1103/PhysRevA.39. 5751。[25] K. J. Schafer, B. Yang, L. F. DiMauro, K. C. Kulander, 《高次谐波截止以上的阈上电离》, 《物理评论快报》1993, 70, 1599–1602, DOI 10.1103/PhysRevLett.70.1599。[26] P. B. Corkum, 《强场多光子电离的等离子体视角》, 《物理评论快报》1993, 71, 1994–1997, DOI 10.1103/PhysRevLett.71.1994。[27] G. Vampa, C. R. McDonald, G. Orlando, D. D. Klug, P. B. Corkum, T. Brabec, 《固体中高次谐波产生的理论分析》, 《物理评论快报》2014, 113, 073901, DOI 10.1103/ PhysRevLett.113.073901。[28] S. Ghimire, D. A. Reis, 《固体中的高次谐波产生》, 《自然·物理》2019, 15, 10–16, DOI 10.1038/s41567-018-0315-5。[29] T. T. Luu, M. Garg, S. Y. Kruchinin, A. Moulet, M. T. Hassan, E. Goulielmakis, 《固体的极紫外高次谐波光谱学》, 《自然》2015, 521, 498–502, DOI 10.1038/nature14456。[30] G. Vampa, T. J. Hammond, N. Thiré, B. E. Schmidt, F. Légaré, C. R. McDonald, T. Brabec, D. D. Klug, P. B. Corkum, 《晶体能带结构的全光重建》, 《物理评论快报》2015, 115, 193603, DOI 10.1103/PhysRevLett.115.193603。[31] G. Ndabashimiye, S. Ghimire, M. Wu, D. A. Browne, K. J. Schafer, M. B. Gaarde, D. A. Reis, 《固体谐波超越原子极限》, 《自然》2016, 534, 520–523, DOI 10.1038/nature17660。[32] N. Tancogne-Dejean, O. D. Mücke, F. X. Kärtner, A. Rubio, 《电子能带结构对固体高次谐波产生光谱的影响》, 《物理评论快报》2017, 118, 087403, DOI 10.1103/PhysRevLett.118.087403。[33] F. Langer, C. P. Schmid, S. Schlauderer, M. Gmitra, J. Fabian, P. Nagler, C. Schüller, T. Korn, P. G. Hawkins, J. T. Steiner, U. Huttner, S. W. Koch, M. Kira, R. Huber, 《二硒化钨单层中的光波谷电子学》, 《自然》2018, 557, 76–80, DOI 10.1038/s41586-018-0013-6。[34] A. J. Uzan-Narovlansky, Á. Jiménez-Galán, G. Orenstein, R. E. Silva, T. Arusi-Parpar, S. Shames, B. D. Bruner, B. Yan, O. Smirnova, M. Ivanov, N. Dudovich, 《通过多能带高次谐波光谱学观测光驱动能带结构》, 《自然·光子学》2022, 16, 428–432, DOI 10. 1038 / s41566-022-01010-1。

[35] I. Tyulnev, Á. Jiménez-Galán, J. Poborska, L. Vamos, P. S. J. Russell, F. Tani, O. Smirnova, M. Ivanov, R. E. F. Silva, J. Biegert, 《利用拓扑光场研究块体二硫化钼中的谷电子学》, 《自然》2024年, 628, 746–751, DOI 10.1038/s41586-024-07156-y。[36] Y. S. You, D. A. Reis, S. Ghimire, 《块体晶体中的各向异性高次谐波产生》, 《自然·物理》2017年, 13, 345–349, DOI 10.1038/nphys3955。[37] A. J. Uzan-Narovlansky, G. Orenstein, S. Shames, M. E. Tzur, O. Kneller, B. D. Bruner, T. Arusi-Parpar, O. Cohen, N. Dudovich, 《揭示强场选择定则与晶体对称性之间的相互作用》, 《物理评论快报》2023年, 131, 223802, DOI 10.1103/PhysRevLett.131. 223802。[38] O. Schubert, M. Hohenleutner, F. Langer, B. Urbanek, C. Lange, U. Huttner, D. Golde, T. Meier, M. Kira, S. W. Koch, R. Huber, 《利用动态布洛赫振荡实现太赫兹高次谐波产生的亚周期控制》, 《自然·光子学》2014年, 8, 119–123, DOI 10.1038/nphoton.2013.349。[39] A. J. Uzan-Narovlansky, L. Faeyrman, G. G. Brown, S. Shames, V. Narovlansky, J. Xiao, T. Arusi- Parpar, O. Kneller, B. D. Bruner, O. Smirnova, R. E. F. Silva, B. Yan, Á. Jiménez-Galán, M. Ivanov, N. Dudovich, 《观测激光驱动晶体中的带间贝里相位》, 《自然》2024年, 626, 66–71, DOI 10.1038/s41586-023-06828-5。[40] M. Wu, S. Ghimire, D. A. Reis, K. J. Schafer, M. B. Gaarde, 《固体中布洛赫电子产生的高次谐波》, 《物理评论A》2015年, 91, 043839, DOI 10.1103/PhysRevA.91.043839。[41] P. G. Hawkins, M. Y. Ivanov, V. S. Yakovlev, 《多个导带对电介质高次谐波发射的影响》, 《物理评论A》2015年, 91, 013405, DOI 10.1103/PhysRevA.91.013405。[42] M. Wu, D. A. Browne, K. J. Schafer, M. B. Gaarde, 《固体中高次谐波产生的多能级视角》, 《物理评论A》2016年, 94, DOI 10.1103/PhysRevA.94.063403。[43] T. Ikemachi, Y. Shinohara, T. Sato, J. Yumoto, M. Kuwata-Gonokami, K. L. Ishikawa, 《周期性晶体中高次谐波产生的轨迹分析》, 《物理评论A》2017年, 95, 043416, DOI 10.1103/PhysRevA.95.043416。[44] Y. S. You, M. Wu, Y. Yin, A. Chew, X. Ren, S. Gholam-Mirzaei, D. A. Browne, M. Chini, Z. Chang, K. J. Schafer, M. B. Gaarde, S. Ghimire, 《利用激光波形控制固体产生的极紫外高次谐波》, 《光学快报》2017年, 42, 1816, DOI 10.1364/ol.42.001816。[45] H. Allegre, J. J. Broughton, T. Klee, Y. Li, K. M. Kowalczyk, N. Thatte, D. Lim, J. P. Marangos, M. M. Matthews, J. W. G. Tisch, 《利用氧化镁将固体中的高次谐波产生截止能量扩展至50电子伏特》, 《光学快报》2025年, 50, 1492, DOI 10.1364/ol.547945。[46] A. de las Heras, D. Schmidt, J. S. Román, J. Serrano, J. Barolak, B. Ivanic, C. Clarke, N. Westlake, D. E. Adams, L. Plaja, C. G. Durfee, C. Hernández-García, 《阿秒涡旋脉冲列》, 《光学》2024年, 11, 1085, DOI 10.1364/OPTICA.517702。[47] A. de las Heras, A. K. Pandey, J. S. Román, J. Serrano, E. Baynard, G. Dovillaire, M. Pittman, C. G. Durfee, L. Plaja, S. Kazamias, O. Guilbaud, C. Hernández-García, 《高次谐波产生的极紫外矢量涡旋光束》, 《光学》2022年, 9, 71, DOI 10.1364/OPTICA.442304。[48] O. Neufeld, D. Podolsky, O. Cohen, 《弗洛凯群论及其在谐波产生选择定则中的应用》, 《自然·通讯》2019年, 10, 405, DOI 10.1038/s41467-018-07935-y。[49] N. Saito, P. Xia, F. Lu, T. Kanai, J. Itatani, N. Ishii, 《观测晶体固体高次谐波产生中圆偏振场的选择定则》, 《光学》2017年, 4, 1333, DOI 10.1364/OPTICA.4.001333。[50] N. Tancogne-Dejean, O. D. Mücke, F. X. Kärtner, A. Rubio, 《耦合的带内与带间动力学导致固体中高次谐波产生的椭圆率依赖性》, 《自然·通讯》2017年, 8, 745, DOI 10.1038/s41467-017-00764-5。[51] N. Klemke, N. Tancogne-Dejean, G. M. Rossi, Y. Yang, F. Scheiba, R. E. Mainz, G. D. Sciacca, A. Rubio, F. X. Kärtner, O. D. Mücke, 《固体的偏振态分辨高次谐波光谱学》, 《自然·通讯》2019年, 10, 1319, DOI 10.1038/s41467-019-09328-1。

[52] D. D. Hickstein, F. J. Dollar, P. Grychtol, J. L. Ellis, R. Knut, C. Hernández-García, D. Zusin, C. Gentry, J. M. Shaw, T. Fan, K. M. Dorney, A. Becker, A. Jaroń-Becker, H. C. Kapteyn, M. M. Murnane, C. G. Durfee, 《非共线产生角度分离的圆偏振高次谐波》, 《自然·光子学》2015年, 9, 743–750, DOI 10.1038/nphoton.2015.181。[53] T. Fan, P. Grychtol, R. Knut, C. Hernández-García, D. D. Hickstein, D. Zusin, C. Gentry, F. J. Dollar, C. A. Mancuso, C. W. Hogle, O. Kfir, D. Legut, K. Carva, J. L. Ellis, K. M. Dorney, C. Chen, O. G. Shpyrko, E. E. Fullerton, O. Cohen, P. M. Oppeneer, D. B. Milošević, A. Becker, A. A. Jaroń-Becker, T. Popmintchev, M. M. Murnane, H. C. Kapteyn, 《用于X射线磁圆二色性的明亮圆偏振软X射线高次谐波》, 《美国国家科学院院刊》2015年, 112, 14206–14211, DOI 10.1073/PNAS.1519666112。[54] P.-C. Huang, C. Hernández-García, J.-T. Huang, P.-Y. Huang, C.-H. Lu, L. Rego, D. D. Hickstein, J. L. Ellis, A. Jaron-Becker, A. Becker, S.-D. Yang, C. G. Durfee, L. Plaja, H. C. Kapteyn, M. M. Murnane, A. H. Kung, M.-C. Chen, 《孤立高次谐波脉冲的偏振控制》, 《自然·光子学》2018年, 12, 349–354, DOI 10.1038/s41566-018-0145-0。[55] N. J. Brooks, A. de las Heras, B. Wang, I. Binnie, J. Serrano, J. S. Román, L. Plaja, H. C. Kapteyn, C. Hernández-García, M. M. Murnane, 《借助方位相位与偏振光栅产生圆偏振阿秒脉冲》, 《ACS光子学》2025年, 12, 495–504, DOI 10.1021/acsphotonics. 4c01996。[56] D. Rees, K. Manna, B. Lu, T. Morimoto, H. Borrmann, C. Felser, J. E. Moore, D. H. Torchinsky, J. Orenstein, 《手性外尔半金属RhSi中的螺旋度依赖光电流》, 《科学进展》2020年, 6, DOI 10.1126/sciadv.aba0509。[57] Z. Ni, K. Wang, Y. Zhang, O. Pozo, B. Xu, X. Han, K. Manna, J. Paglione, C. Felser, A. G. Grushin, F. de Juan, E. J. Mele, L. Wu, 《手性多重简并半金属CoSi中的巨大拓扑纵向圆光伏效应》, 《自然·通讯》2021年, 12, DOI 10.1038/s41467-020-20408-5。[58] J. Ma, B. Cheng, L. Li, Z. Fan, H. Mu, J. Lai, X. Song, D. Yang, J. Cheng, Z. Wang, C. Zeng, D. Sun, 《利用中红外圆光伏效应揭示半导体碲中的外尔相关光学响应》, 《自然·通讯》2022年, 13, DOI 10.1038/s41467-022-33190-3。[59] O. Neufeld, N. Tancogne-Dejean, U. D. Giovannini, H. Hübener, A. Rubio, 《光驱动的极端非线性块体光电流》, 《物理评论快报》2021年, 127, 126601, DOI 10.1103/ PhysRevLett.127.126601。[60] D. M. B. Lesko, T. Weitz, S. Wittigschlager, S. Nöcker, W. Li, P. Hommelhoff, O. Neufeld, 《利用定制光诱导光电流探测时间反演对称性破缺》, 2025年, DOI 10.48550/arXiv.2507. 05768。[61] O. Neufeld, D. Ayuso, P. Decleva, M. Y. Ivanov, O. Smirnova, O. Cohen, 《通过高次谐波产生中的动力学对称性破缺实现超灵敏手性光谱学》, 《物理评论X》2019年, 9, 031002, DOI 10.1103/PHYSREVX.9.031002。[62] V. Wanie, E. Bloch, E. P. Månsson, L. Colaizzi, S. Ryabchuk, K. Saraswathula, A. F. Ordonez, D. Ayuso, O. Smirnova, A. Trabattoni, V. Blanchet, N. B. Amor, M.-C. Heitz, Y. Mairesse, B. Pons, F. Calegari, 《捕捉紫外激发分子中的电子驱动手性动力学》, 《自然》2024年, 630, 109–115, DOI 10.1038/s41586-024-07415-y。[63] D. Habibović, K. R. Hamilton, O. Neufeld, L. Rego, 《用于研究手性与对称性的定制光源新进展》, 《自然综述：物理学》2024年, 6, 663–675, DOI 10 . 1038 / s42254 - 024- 00763-8。[64] M. Han, J.-B. Ji, A. Blech, R. E. Goetz, C. Allison, L. Greenman, C. P. Koch, H. J. Wörner, 《手性光电离动力学的阿秒控制与测量》, 《自然》2025年, 645, 95–100, DOI 10. 1038/s41586-025-09455-4。[65] Y. Chen, D. Haase, J. Manz, H. Wang, Y. Yang, 《从手性激光脉冲到非手性分子中的飞秒与阿秒电子手性翻转》, 《自然·通讯》2024年, 15, 565, DOI 10.1038/ s41467-024-44807-0。

[66] D. Haase, J. Manz, B. Paulus, J. Scherlitzki, J. C. Tremblay, 《利用三原子分子实现阿秒电子手性翻转的简便方法》, 物理化学化学物理 2026年, DOI 10.1039/D5CP04637H。[67] Z. Y. Chen, R. Qin, 《利用固体中的高次谐波产生探测晶体的结构手性》, 《物理评论A》2020年, 101, DOI 10.1103/PhysRevA.101.053423。[68] T. Heinrich, M. Taucer, O. Kfir, P. B. Corkum, A. Staudte, C. Ropers, M. Sivis, 《利用偏振调控强场在固体表面进行手性高次谐波产生与光谱学》, 《自然·通讯》2021年, 12, 3723, DOI 10.1038/s41467-021-23999-9。[69] D. Ayuso, O. Neufeld, A. F. Ordonez, P. Decleva, G. Lerner, O. Cohen, M. Ivanov, O. Smirnova, 《用于高效控制手性光-物质相互作用的合成手性光》, 《自然·光子学》2019年, 13, 866–871, DOI 10.1038/s41566-019-0531-2。[70] O. Neufeld, M. E. Tzur, O. Cohen, 《电磁场的手性度与最大手性光》, 《物理评论A》2020年, 101, DOI 10.1103/PhysRevA.101.053831。[71] D. Ayuso, A. F. Ordonez, O. Smirnova, 《超快手性：通往高效手性测量之路》, 物理化学化学物理 2022年, DOI 10.1039/D2CP01009G。[72] L. Rego, D. Ayuso, 《构造合成手性光的局部旋向性：整体手性与手性偏振》, 新物理学杂志 2023年, 25, 093005, DOI 10.1088/1367-2630/ACF150。[73] N. Mayer, D. Ayuso, P. Decleva, M. Khokhlova, E. Pisanty, M. Ivanov, O. Smirnova, 《用于探测稳健对映体敏感可观测量的手性拓扑光》, 《自然·光子学》2024年, 18, 1155–1160, DOI 10.1038/s41566-024-01499-8。[74] X. Liu, X. Zhu, X. Zhang, D. Wang, P. Lan, P. Lu, 《固体高次谐波产生中截止能量的波长标度关系》, 光学快报 2017年, 25, 29216, DOI 10.1364/OE.25.029216。[75] 方法和补充结果详见补充材料。[76] O. E. Alon, V. Averbukh, N. Moiseyev, 《高次谐波产生光谱的选择定则》, 《物理评论快报》1998年, 80, 3743–3746, DOI 10.1103/PhysRevLett.80.3743。[77] Z. Zhang, P. Ahn, B. Dong, O. Balogun, C. Sun, 《利用等离激元近场扫描光学显微镜对快速衰减的倏逝场进行定量成像》, 科学报告 2013年, 3, DOI 10.1038/srep02803。[78] L. V. Poulikakos, P. Thureja, A. Stollmann, E. D. Leo, D. J. Norris, 《受光学天线理论启发的手性光设计与检测》, 《纳米快报》2018年, 18, 4633–4640, DOI 10.1021/acs. nanolett.8b00083。[79] K. N. Fish, 《全内反射荧光（TIRF）显微镜》, 现行实验方案 2022年, 2, DOI 10.1002/cpz1.517。[80] J. F. Li, C. Y. Li, R. F. Aroca, 等离激元增强荧光光谱, 2017年, DOI 10.1039/ c7cs00169j。[81] S. Mühlbauer, B. Binz, F. Jonietz, C. Pfleiderer, A. Rosch, A. Neubauer, R. Georgii, P. Böni, 《手性磁体中的斯格明子晶格》, 科学 2009年, 323, 915–919, DOI 10.1126/science.1166767。

《手性拓扑外尔半金属中脉冲持续时间敏感的高次谐波与阿秒局域手性光》补充材料

Alba de las Heras*[1],Ofer Neufeld*[2],和 Angel Rubio[1,3]

[1]马克斯·普朗克物质结构与动力学研究所 & 自由电子激光科学中心，汉堡 22761，德国[2]以色列理工学院，化学学院，海法 3200003，以色列[3]计算量子物理中心，Flatiron研究所，纽约 10010，美国

*电子邮箱：alba.de-las-heras@mpsd.mpg.de，ofern@technion.ac.il，angel.rubio@mpsd.mpg.de

此 PDF 文件包括：

方法
关于以下内容的补充结果：(i) 较高驱动强度下高次谐波产生扩展随脉冲持续时间的变化 (ii) 光谱滤波在局域手性高次谐波产生中的作用 (iii) 由左旋圆偏振驱动场驱动的局域手性高次谐波产生 图S1至S3

方法

为计算电子动力学，我们使用 Octopus 开源代码[1]，数值求解含时密度泛函理论（TDDFT）的含时 Kohn-Sham方程。我们采用交换关联泛函中的绝热局域密度近似、守范赝势，以及偶极哈密顿量的速度规范。这种方法已在固态高次谐波产生[2, 3]研究中与实验结果实现了准确的对比。RhSi、硅和氧化镁的晶格参数分别设为实验值 4.69、5.44 和 4.19 Å。为确保 RhSi 和硅的计算结果收敛，我们选择 $16\times16\times16$k点网格、 $\Delta x=\Delta y=\Delta z=0.40$原子单位（a.u.）的空间间距，以及 $\Delta t=0.3$ a.u. 的时间步长。氧化镁的计算需要对布里渊区进行更精细的 k点采样，即 28x28x28，间距为 $\Delta x=\Delta y=\Delta z=0.30$ ，时间步长为 $\Delta t=0.1$ a.u。

驱动激光脉冲用矢势描述

$$\mathbf{A}(t)=A_0\sin\left(\frac{\pi t}{\tau_{\text{pulse}}}\right)^{3\left|\frac{\pi(t-t_d)}{\tau}-\frac{\pi}{2}\right|}\cdot\Theta\left(\frac{\tau}{2}-|t-\frac{\tau}{2}|\right)\cos\left(\omega_0 t\right)\mathbf{u_p}=A_{env}(t)\cos\left(\omega_0 t\right)\mathbf{u_p},\tag{S1}$$

其中$\mathbf{u_P}$ 为单位偏振矢量， $A_{env}(t)$为矢势包络[4]。然后，根据含时电流$\mathbf{j}(t)=\sum_{\nu=x,y,z}j_\nu(t)\mathbf{u}_\nu$ 计算高次谐波谱，表达式为

$$|\mathbf{HHG}(\omega)|^2=\sum_{\nu=x,y,z}\left|\int\frac{dj_\nu(t)}{dt}e^{-i\omega t}A_{env}(t)dt\right|^2,\tag{S2}$$

其中包含包络函数，以避免激光脉冲结束后信号仍不为零所产生的数值伪影。时间分辨谱图通过 Gabor分析获得：

$$\mathbf{S}(\omega,t)=\int_{-\infty}^{\infty}\mathbf{a}(\Omega)\,e^{-\frac{(\Omega-\omega)^2}{2\sigma^2}}\,e^{i\Omega t}d\Omega, \tag{S3}$$

使用电流时间导数的傅里叶变换

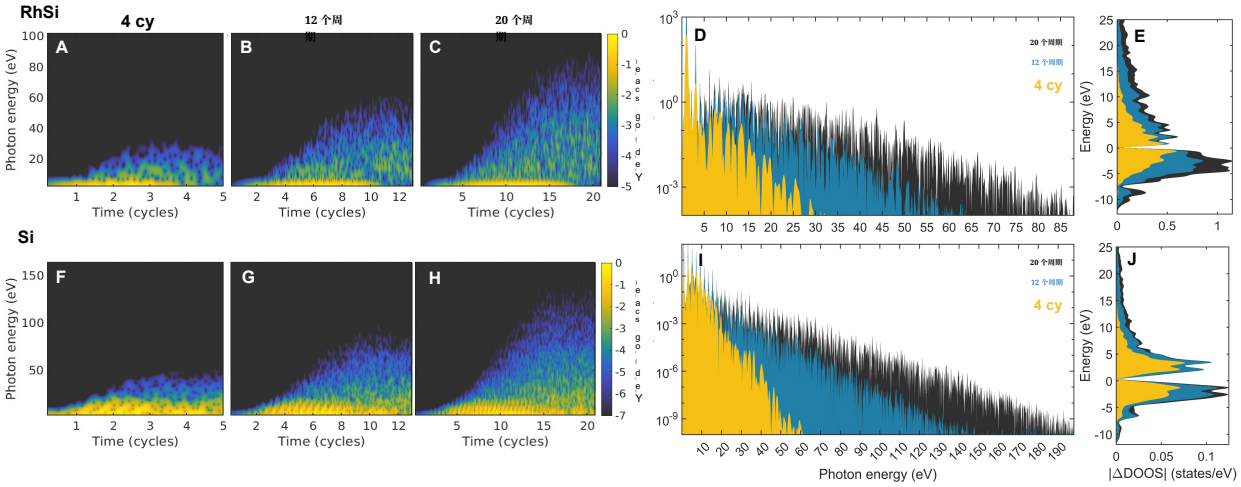
$$\mathbf{a}(\Omega)=\int\frac{d\mathbf{j}(t)}{dt}e^{-i\Omega t}dt, \tag{S4}$$

并设置 $\sigma=2.5\omega_0$。合成电场是通过选择性滤除特定谐波并将其输入**高次谐波产生**$_{\mathbf{sel}}(\omega)$，再进行逆傅里叶变换得到的：

$$\mathbf{E}(t)\sim\int\mathbf{HHG}_{\mathbf{sel}}(\omega)e^{i\omega t}d\omega. \tag{S5}$$

更高驱动强度下高次谐波产生随脉冲持续时间的扩展

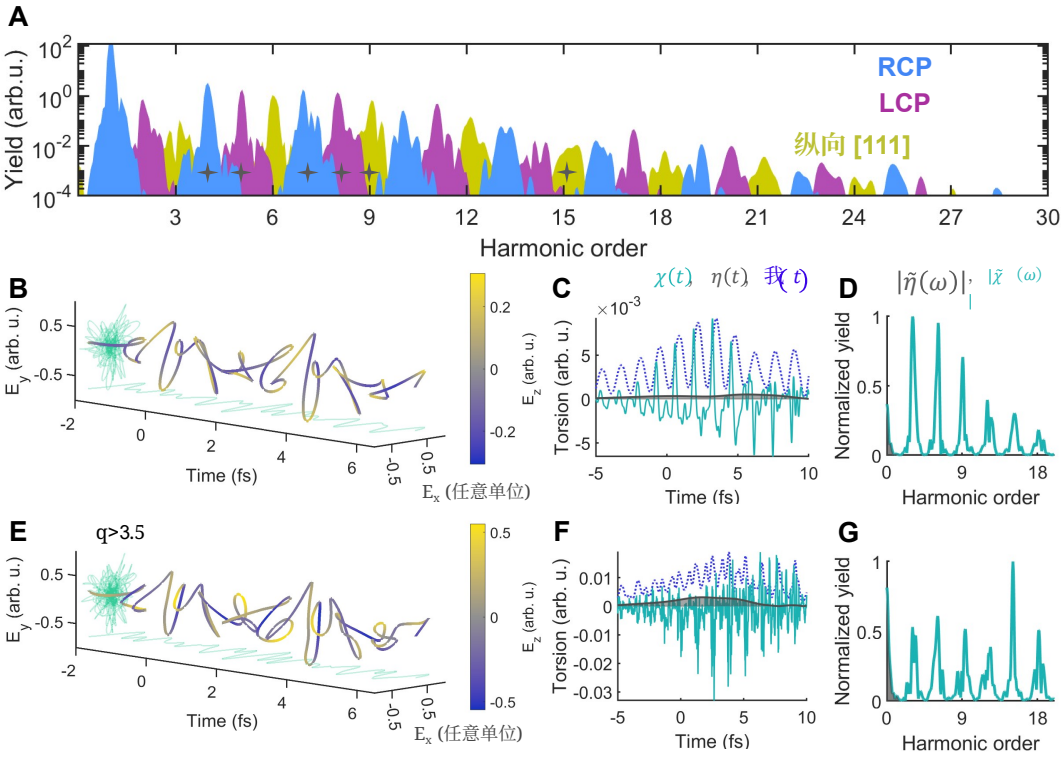
将驱动强度提高至 3 TW/cm^2, 后，RhSi 和硅中的高次谐波产生可扩展至更高的光子能量（图 S1）。占据分析显示，高能导带中的激发更多（图 S1E、J）。时间分辨谱图（图 S1A–C、F–H）仍显示高次谐波截止能量随相互作用时间线性增加，同时由于涉及的高次谐波产生路径数量增多，干涉特征也更加明显。在我们的 RhSi 和硅计算中，得到的高能截止能量分别为 80 和 180 eV。不过，我们指出，实验需要考虑材料损伤阈值、相位匹配、吸收和退相干。因此，需要通过实验检验截止能量扩展的限制。



图S1：**较高驱动强度下硅和RhSi中高次谐波产生的脉冲持续时间依赖性**。计算得到的时间分辨谱图（左）、高次谐波谱（中）以及占据态密度的变化（右）。

光谱滤波在局域手性高次谐波产生中的作用

对光谱滤波的高度控制对于局域手性光的定制可能十分重要。图S2比较了(B-D)对多个三元组的仔细选择，或(E-G)在 $C_3^{(+)}$ 选择定则中超过 $3.5\omega_0$阈值的滤波，所考虑的右旋圆偏振驱动脉冲光子能量为1 eV、全持续时间为12个周期、峰值强度为1 TW/cm^2 。(B-D)光谱滤波中所选的谐波以



图S2：**阿秒局域手性光合成中的光谱选择性分析。(A)** 在 $C_3^{(+)}$ 选择定则下的完整高次谐波谱，所用右旋圆偏振驱动脉冲的光子能量为 1 eV、总时长为 12 个周期，峰值强度为 1 TW/cm^2 。**(B)** 合成星标谐波所产生的局域电场，以及其在 **(C)** 时域和 **(D)** 频域中的对应扭转。**(E-G)** 对 3rd 次谐波以外的频率进行滤波时，显示了类似的图。

(A)中的灰色星号标出。尽管合成电场的三维偏振结构在定性上相似，编码扭转却显示出显著差异。应当指出，仅通过在谐波阈值以上进行滤波，就有可能合成阿秒局域手性光。然而，提高滤波器的光谱选择性能够对瞬时电场扭转的时间波形进行精细调谐。图S2(B)展示了约200 as的轮廓分明的扭转峰；相比之下，仅在频率阈值以上进行滤波会导致明显更嘈杂的扭转信号（图S2F）。

由左旋圆偏振驱动场驱动的局域手性高次谐波产生

在图 S3 中，我们将驱动螺旋度设置为与手性晶体结构的手性相反。其他激光参数与正文图 3 相同。若驱动场位于与手性晶轴正交的(111)面内，高次谐波产生呈现出高度二色性响应（图 S3A）。不仅谐波的螺旋度发生反转，我们还注意到谐波光谱形状存在显著差异。这表现为光合成的强烈改变（图 S3B），其中瞬时扭转 $\chi(t)$的不对称性减小，并表现出更复杂的行为（图 S3C）。 $\eta(t)$中包络扭转的峰值以及净扭转 $\zeta = 0.0677$ n.u.也有所减弱。这些差异同样体现在扭转的频域中（图 S3D）。相反，对于位于(001)晶面内的驱动场，右旋圆偏振与左旋圆偏振驱动下的高次谐波谱非常相似，仅谐波螺旋度发生翻转（图 S3E）。图 3F 、 H 与图 S3F 、 H 中得到相同的扭转。对于晶体取向 (001)，高次谐波产生无法感知晶体的手性，但当传播方向沿手性晶轴 [111]时，该效应便会出现。

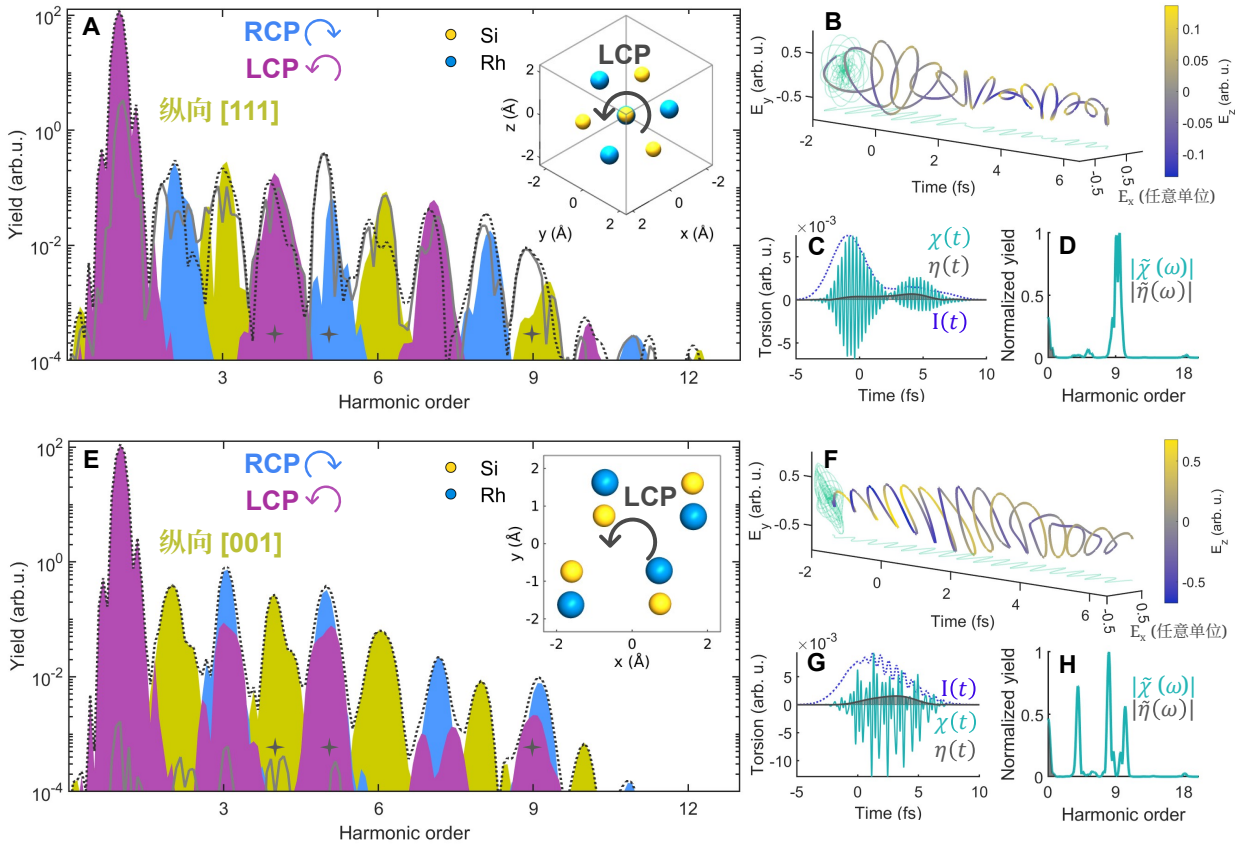


图 S3：**由左旋圆偏振脉冲驱动 RhSi 中的手性高次谐波产生**。考虑相反驱动螺旋度时对应图 3 的等效图。为突出比较由右旋圆偏振驱动脉冲或左旋圆偏振驱动脉冲产生的高次谐波光谱差异，（**A**）和（**E**）面板中叠加了圆二色性（实线）和右旋圆偏振驱动脉冲的情形（虚线）。当传播方向与晶体的手性轴一致时，圆二色性达到最大值 [111]。

参考文献

[1] N. Tancogne-Dejean、M. J. Oliveira、X. Andrade、H. Appel、C. H. Borca、G. L. Breton、F. Buchholz、A. Castro、S. Corni、A. A. Correa、U. D. Giovannini、A. Delgado、F. G. Eich、J. Flick、G. Gil、A. Gomez、N. Helbig、H. Hübener、R. Jestädt、J. Jornet-Somoza、A. H. Larsen、I. V. Lebedeva、M. Lüders、M. A. Marques、S. T. Ohlmann、S. Pipolo、M. Rampp、C. A. Rozzi、D. A. Strubbe、S. A. Sato、C. Schäfer、I. Theophilou、A. Welden、A. Rubio，“Octopus：用于探索扩展与有限系统中光驱动现象和量子动力学的计算框架”，《化学物理学杂志》 **2020年**，*152*，124119，DOI 10.1063/1.5142502/954926。[2] N. Tancogne-Dejean、O. D. Mücke、F. X. Kärtner、A. Rubio，“源于耦合的带内与带间动力学的固体中高次谐波产生的椭圆率依赖性”，《自然·通讯》 **2017年**，*8*，745，DOI 10.1038/s41467-017-00764-5。[3] N. Klemke、N. Tancogne-Dejean、G. M. Rossi、Y. Yang、F. Scheiba、R. E. Mainz、G. D. Sciacca、A. Rubio、F. X. Kärtner、O. D. Mücke，“固体的偏振态分辨高次谐波光谱学”，《自然·通讯》 **2019年**，*10*，1319，DOI 10.1038/s41467-019-09328-1。[4] O. Neufeld、O. Cohen，“利用对称性破缺高次谐波光谱学对环电流进行无背景测量”，《物理评论快报》 **2019年**，*123*，103202，DOI 10.1103/PhysRevLett.123. 103202。