arXiv:2611.32704v1 [physics.optics] 24 Nov 2026

用于表征晶体对称性和非线性响应的人工智能辅助拓扑高次谐波光谱学

David Hervalejo-Sancho,[1,2,*] Sergio Mart´ín-Domene,[2,3] Rodrigo Mart´ín-Hern´ández,[2,3] Antonio Pic´ón,[4] Luis Plaja,[2,3] Jos´é M. Caridad,[1,2] Javier Serrano,[2,3] 和 Carlos Hern´ández-Garc´ía[2,3]

[1] *Grupo de Materiales Nanoestructurados para Aplicaciones en Optoelectrónica, Departamento de Física Aplicada, Universidad de Salamanca, Salamanca E-37008, Spain.*
[2] *Unidad de Excelencia en Luz y Materia Estructuradas (LUMES),Universidad de Salamanca, Salamanca E-37008, Spain.*[3] *Grupo de Investigación en Aplicaciones del Láser y Fotónica, Departamento de Física Aplicada, Universidad de Salamanca, Salamanca E-37008, Spain.*
[4] *Instituto de Ciencia de Materiales de Madrid (ICMM-CSIC), E-28049 Madrid, Spain*（日期: 2026年11月25日）

结构光已成为探测非线性光–物质相互作用的独特工具。尤其值得关注的是其与各向异性介质（如晶体材料）的相互作用，因为这些材料的各向异性响应编码了有关其电子性质的信息。近期，人们提出了拓扑高次谐波光谱学这一全光学方法，通过谐波空间强度分布提取石墨烯的各向异性非线性响应。在此，拓扑高次谐波光谱学与人工智能（AI）相结合，用于获取原子级薄层材料的各向异性非线性响应和晶体对称性。研究训练并验证了一个卷积神经网络，使其学习谐波远场强度分布与具有不同旋转对称性的材料非线性响应之间的逆映射。与微观高次谐波产生模拟的比较表明，该方法能够准确获取单一对称性晶体中的不同有效非线性响应，例如具有不同堆垛顺序的单层石墨烯和双层石墨烯；同时也能获取具有多个对称性分量的晶体（如单层六方氮化硼）中的响应。宏观高次谐波产生模拟评估了该技术的稳健性及其适用范围。这些结果确立了人工智能辅助拓扑高次谐波光谱学作为一种快速、非接触式工具，可在无需相位分辨测量的情况下表征非线性光学响应和晶体对称性，并为其应用于多晶和范德华异质结构等复杂系统开辟了前景。

关键词：结构光、非线性光学、二维材料、高次谐波产生、谐波光谱学、光拓扑、人工智能

I. 引言

自30多年前首次在气体中观测到高次谐波产生（HHG）以来，非线性光学取得了长足发展 [1, 2]。这一极端非线性现象使人们能够获得可延伸至软X射线范围的高频相干辐射 [3], ，其具有明确的相位关系，从而能够将其合成为阿秒尺度的光脉冲 [4–6]。除产生超短激光脉冲外，HHG最显著的应用之一是高次谐波光谱学，它能够在以往无法实现的阿秒时间尺度上，探测各种系统的超快动力学[7–9]。HHG向固态系统的拓展 [10]显著扩大了高次谐波光谱学的研究范围，为探究支配固体物理性质的阿秒电子动力学开辟了新途径。

固体高次谐波生成可以通过将三步模型 [11, 12] 从气体推广到倒空间中的固体 [13]来理解。在第一步中，强驱动激光场通过隧穿激发（绝热过程）产生电子-空穴对，或在无带隙材料中通过直接穿越简并能量点产生电子-空穴对（非绝热过程）。在第二步中，电子和空穴在动量空间中分别沿各自的能带受到激光场加速。在最后一步，电子-空穴对的复合导致高次谐波发射。此外，载流子在非抛物能带内运动所产生的非线性带内电流，还会带来额外的谐波贡献 [14]。与气体中一样，高次谐波产生的非线性特性使其对材料和激光场的性质都高度敏感。然而，固体中还会出现更为复杂的现象。例如，与原子的离散能级相比，晶格周期性和更复杂的电子能带结构会产生一些特征，例如截止频率（即发射的最大谐波光子能量）具有不同的标度定律，或出现多个非微扰平台

[15]此外，晶格各向异性会使谐波发射强烈依赖于驱动场的偏振态。这一效应最早在块体 ZnO [10], 中被报道；其中，非中心对称的纤锌矿结构总体上会产生奇次谐波和偶次谐波，但沿光轴方向仅产生奇次谐波。这一现象源于周期性晶格势驱动的复杂电子动力学，

*电子邮箱：davidhersan@usal.es

研究人员已通过实验 [16, 17] 和理论 [18],对其进行了研究，证明了其揭示目标材料电子能带结构和原子间成键信息的潜力。晶格对称性是另一种易于获取的性质，可通过 GaAs [19]或单层石墨烯（SLG） [20], 等材料中的高次谐波产生进行探测；这两种材料的谐波信号均随偏振呈周期性变化，分别与其四重和六重对称性一致。

固体中高次谐波产生的各向异性行为，使得结构化驱动光束 [21, 22] 的应用尤为有趣。结构光是指对光束的振幅、相位和偏振分布进行空间调控，从而实现对光束角动量的控制。我们区分：(1)自旋角动量 （SAM），它与光的偏振态相关，每个光子的取值为 $\hbar\sigma$ ，其中 $\sigma = -1$ 对应于右旋圆偏振 （RCP）， $\sigma = 1$ 对应于左旋圆偏振 （LCP）；以及(2) 轨道角动量（OAM），它与光束的空间相位分布相关联。对于具有方位角相位依赖关系exp($i\ell\phi$)的光束——亦称涡旋光束——其相应的轨道角动量为每个光子 $\ell\hbar$ ，其中拓扑荷 ℓ表示沿光束轴周围方位角坐标 ϕ 的 2π 相位缠绕数。气体 [23–27] 和固体 [28] 中高次谐波产生的轨道角动量守恒，能够产生具有丰富轨道角动量含量的谐波光束。

然而，在各种结构化光束构型中，线偏振矢量光束（LPVB） [29] 尤其引人关注，这是因为它们与各向异性材料之间存在复杂的非线性相互作用。LPVB 可分解为两个具有相反 ℓ的右旋圆偏振和左旋圆偏振涡旋光束，因此其净 OAM 为零。它们还可通过庞加莱 $^{\prime}$指数 （$\mathcal{P}$） [30],进一步表征；该指数取整数值，对应于偏振方向沿方位角坐标完成旋转的次数，其中 $|\mathcal{P}| = |\ell|$。LPVB 的拓扑性质——例如其庞加莱 $^{\prime}$指数以及其圆偏振分量的拓扑荷——在气体中的 HHG 过程中得以保持 [31], ，因为各向同性气体的局域响应与驱动场线偏振的方向无关。然而，在固体靶材中，依赖晶格的各向异性响应涉及丰富得多的现象。

在近期的一项研究中 [32], ，理论上证明了由 LPVB 驱动的 SLG 中高次谐波的拓扑与驱动光束的拓扑存在显著差异。SLG 是一种由排列成蜂窝晶格的碳原子构成的典型二维材料。具体而言，谐波强度分布呈现出六重对称性，这体现在其 RCP 和 LCP 分量中出现了额外的 OAM 贡献；这些贡献与 SLG 靶材的各向异性非线性响应直接相关。此外，研究发现带间贡献和带内贡献呈现出不同的谐波拓扑，揭示了谐波拓扑对亚周期电子动力学的敏感性，这促成了拓扑高次谐波光谱学这一概念的提出。该技术通过对 RCP/LCP 谐波光束进行远场强度测量，探测固体材料的超快各向异性性质。尽管该技术在材料表征方面具有潜力，但目前仅针对 SLG 这一特定情况证明了逆问题的解析解——即从远场强度分布中反演材料性质——限制了其适用性。

在本工作中，我们将人工智能（AI）引入拓扑高次谐波光谱学，建立了一个用于解决逆问题并定量提取原子级薄晶体材料各向异性非线性响应的通用框架。神经网络已被应用于非线性与超快光学领域 [33–36], ，因此成为获取原本难以探索的信息的一种有前景的方法。在此，我们利用专门构建的数据集设计、训练并验证了一个卷积神经网络，从谐波光束的远场强度分布中提取具有任意对称性的晶格非线性响应的定量信息。我们利用该网络重建具有二重、三重、四重或六重旋转对称性的材料的非线性响应，从而涵盖二维周期性晶体中允许存在的非平凡旋转对称性 [37]。我们通过两种互补方式验证网络的预测结果。首先，我们将其与使用半导体布洛赫方程 （SBE）对固体靶材进行的微观全量子模拟进行比较。我们考察了具有相同六重旋转对称性但非线性响应不同的系统——具有不同堆垛顺序的SLG和双层石墨烯（BLG）——以及单层六方氮化硼（hBN）系统，后者表现出多种旋转对称性，在本例中为三重和六重旋转对称性。其次，我们利用电磁场传播器对SLG进行宏观高次谐波产生模拟，考虑谐波传播和相位匹配，以评估该技术在实验相关条件下的适用性。

我们的结果表明，人工智能辅助拓扑高次谐波光谱学能够提取晶体材料的晶格对称性及各向异性非线性响应。这些发现或有助于研究具有多种共存对称性的材料，例如范德华异质结构或多晶材料，也可用于探测激子动力学或检测晶格缺陷。

II. 方法

人工智能辅助拓扑高次谐波光谱学的概念如图 1a 所示。中红外飞秒线偏振涡旋光束驱动固态系统中的高次谐波产生（以草图中的 $\mathcal{P} = 1$ 为例），生成高阶谐波。每个

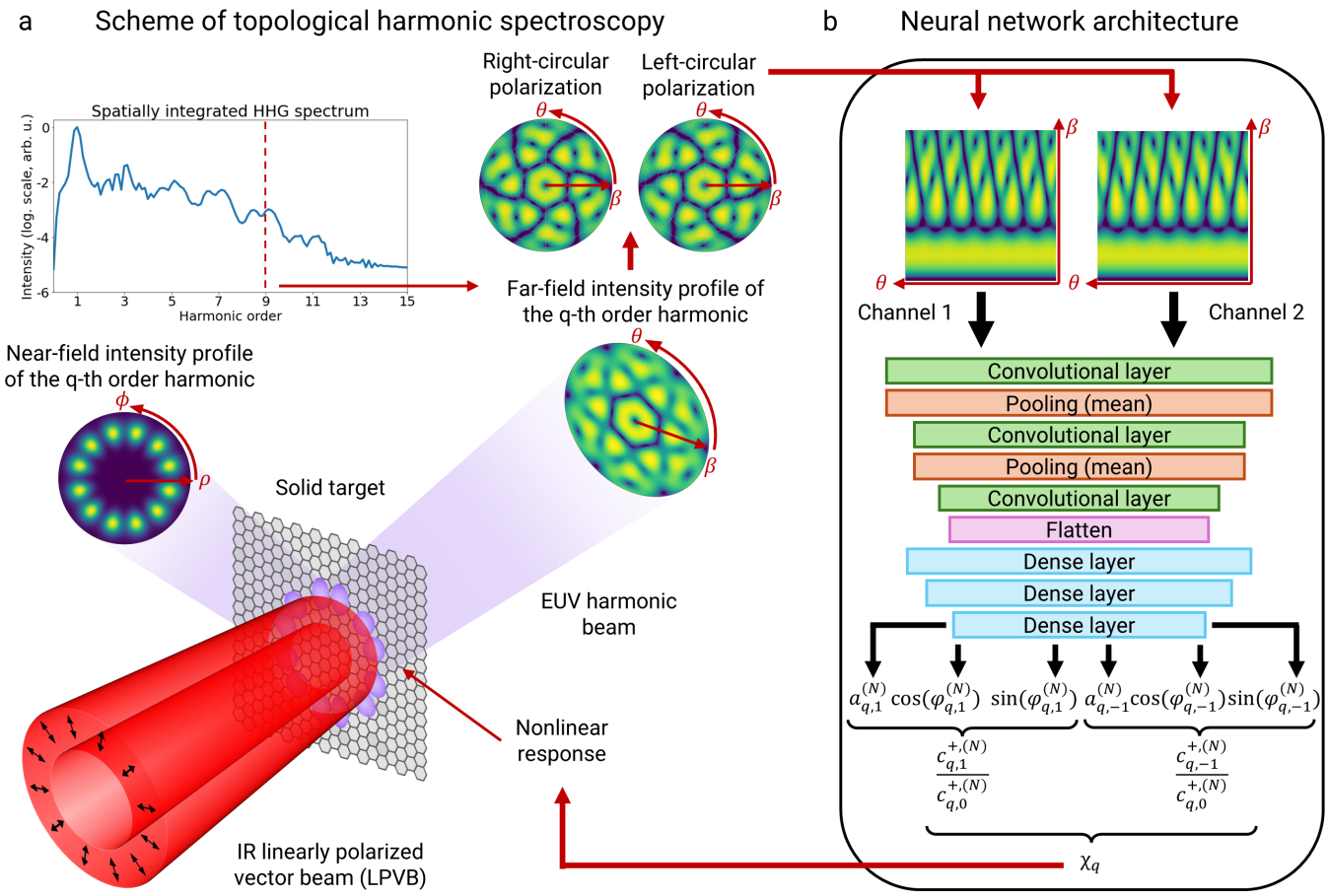


图 1. 人工智能辅助拓扑高次谐波光谱学示意图。a) 一个庞加莱指数为 $\mathcal{P}$ 的强红外LPVB，其庞加莱指数为′，聚焦于薄晶体层上，并通过与材料的强非线性相互作用产生高次谐波。左上角插图展示了一个示例：由波长为 $3\,\mu$m、峰值强度为 $5\times10^{10}\,\mathrm{W\,cm^{-2}}$的LPVB驱动SLG所产生的空间积分高次谐波产生光谱。各向异性晶体响应被编码在谐波近场中，其坐标为 ρ和 ϕ。传播至远场后，以坐标 β和 θ描述，记录每个谐波的空间强度分布，无需相位信息。选定的 q阶谐波的右旋圆偏振和左旋圆偏振强度分布作为面板b)所示神经网络的输入。该神经网络由卷积层和全连接层组成，经过训练后可提取与每种晶体对称性 N相关的非线性响应。对于每个 N，六个输出神经元对两个相对傅里叶系数 $c^{\pm,(N)}_{q,s}/c^{\pm,(N)}_{q,0}$ 的振幅和相位进行编码，其中$s=\{-1,1\}$；据此可预测与 q阶谐波相关的有效非线性极化率。

谐波的近场强度分布编码了各向异性非线性响应的信息。谐波传播至远场探测器，并记录其空间强度分布。左上角插图展示了在单层石墨烯中获得的空间积分谐波谱示例，其范围延伸至九阶。选定的 q 阶谐波的远场空间分辨强度分布被分解为右旋圆偏振和左旋圆偏振分量。随后，将右旋圆偏振和左旋圆偏振的空间强度分布输入卷积神经网络（图 1b），由该网络预测固体靶的近场非线性响应。该响应编码了晶格对称性和晶体非线性各向异性的信息，从而实现对其表征。本节将介绍非线性响应的恢复方法、神经网络的架构，以及用于验证其预测结果的高次谐波产生模型。

A. 从拓扑高次谐波光谱学中提取非线性响应

这里，我们按照[32]中提出的框架，介绍拓扑高次谐波光谱学如何实现对固体靶非线性响应的提取。我们的分析仅限于薄晶体，忽略靶内的传播效应。我们考虑一束庞加莱指数为 $\mathcal{P}$ 的线偏振矢量光束（LPVB），在具有 N重晶格对称性的层中驱动高次谐波产生（HHG）。

谐波的右旋圆偏振/左旋圆偏振分量包含与晶格对称性直接相关的轨道角动量模式 N[32]。因此，目标处 q 阶谐波的近场右旋圆偏振和左旋圆偏振振幅，$F_q^{\pm}(\rho,\ \phi)$，其中 ρ 和 ϕ 分别为近场的径向和方位坐标，可表示为以下叠加

由复傅里叶系数加权的轨道角动量模式,$c^{\pm}_{q,\ s}$，表示为

$$F^{\pm}_{q}(\rho,\phi)=e^{\pm i\mathcal{P}\phi}\sum_{s=-1}^{1}c^{\pm}_{q,s}(\rho)e^{\pm iNs\mathcal{P}\phi}, \tag{1}$$

其中，上下符号分别对应 RCP 和 LCP 分量。根据公式 1 中的方位角相位依赖关系，每个 s 项都携带由拓扑荷 $\ell^{s}=\pm(1+Ns)\mathcal{P}$表征的 OAM。因此， $s=0$ 项的 OAM 继承自 LPVB 驱动光束，而 $s\in\{-1,1\}$ 项则代表额外的 OAM 分量，这些分量编码了晶格对称性，在驱动光束中并不存在。复傅里叶系数与有效非线性极化率直接相关，具体为

$$\chi^{\pm}_{q}(\rho,\phi)\propto\sum_{s=-1}^{1}c^{\pm}_{q,s}(\rho)e^{\pm iNs\mathcal{P}\phi}. \tag{2}$$

我们通过夫琅禾费衍射积分获得探测器处的远场谐波分布。假设高次谐波在驱动 LPVB 的最大强度环上产生，即在 $\rho=\rho_0$处产生，便可简化该表达式；这一近似此前已用于结构光束驱动的 HHG 实验研究 [38–40]。在此近似下，第 q阶谐波的 RCP 和 LCP 振幅 $U^{\pm}_{q}(\beta,\ \theta)$（其中， β和 θ分别为远场发散角和方位角坐标）可表示为

$$\begin{aligned}U^{\pm}_{q}(\beta,\theta)=&\frac{\kappa}{i2\pi}\frac{e^{i\kappa D}}{D}e^{i\kappa\beta^{2}D/2}\\&\times\int F^{\pm}_{q}(\rho,\phi)\delta(\rho-\rho_0)e^{-i\kappa\rho\beta cos(\theta-\phi)}\rho\mathrm{d}\rho\mathrm{d}\phi,\end{aligned} \tag{3}$$

其中， $\kappa=2\pi q/\lambda$ 为谐波波数， λ 为驱动光束的波长， D 为固体靶到探测器的距离。对公式 3 进行径向积分，应用雅可比-安格尔展开，并忽略与球面波前相关的二次相位因子后，我们得到

$$\begin{aligned}U^{\pm}_{q}(\beta,\theta)=&-i\kappa\frac{e^{i\kappa D}}{D}\rho_0\sum_{s=-1}^{1}c^{\pm}_{q,s}(\rho_0)e^{\mp i(Ns+1)\mathcal{P}\pi/2}\\&\times J_{\pm(Ns+1)\mathcal{P}}\left(\kappa\rho_0\beta\right)e^{\pm i(Ns+1)\mathcal{P}\theta},\end{aligned} \tag{4}$$

其中， J_m 表示整数阶第一类贝塞尔函数 m。公式 4 将复傅里叶系数——从而将有效非线性磁化率——直接与 q 阶谐波的远场振幅联系起来。诸如 λ、 ρ_0 或D 等实验参数，仅通过一个整体复数前因子或贝塞尔函数自变量的缩放进入传播表达式。因此，对于给定的一组傅里叶系数，在对径向坐标进行适当缩放后，归一化远场强度图样仍保持其形状。对于非手性响应，我们还可以假设左旋圆偏振和右旋圆偏振分量的系数相等，$c^{+}_{q,\ s}=c^{-}_{q,\ s}$。这一表述使我们能够基于复傅里叶系数生成数据集，用于训练神经网络，从其谐波发射的远场强度分布中提取有关固体靶的信息。

B. 神经网络架构

我们的神经网络架构由卷积层和全连接层组成，如图 1b 所示。此类架构此前已用于图像处理任务 [33, 35]。在本文所考虑的条件下（见下文），性能最佳的架构包括三个卷积层，分别使用 64、32 和 16 个卷积核，随后连接两个全连接层，分别包含 256 和 128 个神经元。

输入由两幅 32×32 RGB图像组成，表示给定谐波阶数 q下归一化的右旋圆偏振和左旋圆偏振远场强度分布，并以跨越两个数量级的对数刻度显示。对于给定的晶格对称性 N，非线性响应由三个傅里叶系数的振幅和相位描述， $c^{\pm,\ q\ s^{(N)}}$，其中 $s=\{-1,0,1\}$，如公式 1 中所述。以基频轨道角动量项（$s=0$）为参考，我们得到两个相对系数，其定义由它们的振幅和相位表示为

$$\frac{c^{\pm,(N)}_{q,s}}{c^{\pm,(N)}_{q,0}}=a^{(N)}_{q,s}e^{i\varphi^{(N)}_{q,s}},\qquad s\in\{-1,1\}. \tag{5}$$

我们用正弦和余弦表示每个相位 $\varphi^{(N)}_{q\ s}$，以避免在 $0/2\pi$ 处出现不连续性。因此，对于给定的晶格对称性 N，输出层包含六个神经元，分别编码每个相对傅里叶系数的振幅以及相位的正弦和余弦。我们的神经网络经过训练，可提取与四种晶体对称性 $N=\{2,3,4,6\}$ 相关的非线性响应，这四种对称性对应于二维周期晶体中允许的旋转对称性。因此，输出层共包含 24 个神经元，每种对称性对应 6 个神经元（见图 1）。我们选取第九次谐波 $q=9$ 作为本文所研究晶体的一个非微扰谐波示例。

数据集生成和神经网络训练均在 NVIDIA A30 GPU 上使用 Keras 和 TensorFlow 通过 Python 完成。每个数据集都包含成对的输入和目标输出。我们通过在由高次谐波产生模拟确定的范围内扫描傅里叶系数参数（见下一节），并使用公式 3 计算相应的输入，即右旋圆偏振和左旋圆偏振远场谐波强度分布，来生成数据集。为生成数据集，我们首先针对每种对称性构建参数网格：对两个复系数中的每一个，使用 10 个覆盖 $a^{(N)}_{q},_{s}\in[0,1]$ 的振幅值和 20 个覆盖

$\varphi_q^{(N)},_s \in [0, 2\pi)$ 的相位值，同时将与其他对称性相关的系数设为零。这样，每种对称性得到 40,000 个案例，总计得到 160,000 个单一对称性案例，每个案例都包含一对右旋圆偏振和左旋圆偏振远场强度分布。当某个系数的振幅为零时，其相位也设为零，以避免歧义。32×32 输入强度分布在径向和方位角远场坐标中分别覆盖 $\beta \in [0, 27.7]$ mrad 和 $\theta \in [0, 2\pi)$。请注意，27.7 mrad 的上限对应于公式 4 中最高阶贝塞尔函数的第一个零点。

随后，我们通过随机采样系数，生成另外 160,000 个具有多种对称性的案例。对于这些案例，在计算强度分布之前，先将每种圆偏振分量中与四种对称性相关的远场振幅进行相干叠加。每个各向异性轨道角动量分量的最大相对振幅从 1 降至 0.5，对应的最大相对强度从 1 降至 0.25。这一选择反映了谐波能量在多个轨道角动量分量之间的重新分配。

由此得到的包含 320,000 个案例的数据集按 80/20 % 的比例划分为训练集和验证集。训练集用于通过逐步降低预测误差来调整网络权重。验证集不用于更新权重，而是用于评估模型对未见样本的泛化能力，并指导网络架构及其他超参数的选择。另外，我们独立生成 10,000 个具有多种对称性的案例作为测试集，这些案例既不用于训练，也不用于模型选择，从而可靠地评估模型的预测性能。我们使用双曲正切作为激活函数 [41, 42], ，并使用均方误差(MSE)作为损失函数。网络采用$Adam$ 优化器进行训练，学习率为 10^{-5}。振幅接近 0 的系数，其相位对远场强度分布影响很小，却可能在损失中引入较大误差。因此，在评估预测结果时，我们不将振幅低于最大值 10% 的系数的相位贡献计入均方误差。

C. 固体谐波产生模拟模型

用于验证神经网络预测的固体高次谐波生成模型包括两种方法：（1）对晶体微观非线性响应的完全量子描述，该响应由晶体的能带结构表征，并由强激光场驱动；（2）对整个晶体层响应的宏观描述，考虑驱动光束的空间分布、相位匹配效应以及所生成谐波向远场探测器的传播，从而近似实验条件。

1. *Microscopic solid-state HHG response*

本文所研究晶体中的非线性动力学通过半导体布洛赫方程 [43, 44], 计算，该方程 $\mathcal{H}$由长度规范下的含时哈密顿量 $t = \mathcal{H}_0 - e\hat{\mathbf{r}}\cdot\mathbf{E}(t)$推导得到，其中 e 为带符号的电子电荷，$\hat{\mathbf{r}}$ 为位置算符， $\mathcal{H}_0$ 为无场哈密顿量，$\mathbf{E}(t)$ 则是在电偶极近似下的外部电场。电荷载流子的总速度——即微观感生电流——通过计算速度算符与密度矩阵的迹，并在第一布里渊区内积分得到。随后，对该电流的时间导数进行傅里叶变换，即可获得微观谐波信号。本文所研究材料的电子结构计算如下。

一方面，对于 SLG，我们在最近邻近似下采用有效的双能带紧束缚模型，跃迁能为 2.97 eV。对紧束缚哈密顿量 $\mathcal{H}_0$ 进行对角化，可得到用于构造密度矩阵的能带色散和本征态。

另一方面，对于 AA 堆叠和 AB 堆叠双层石墨烯以及单层六方氮化硼，我们使用 Quantum ESPRESSO [45, 46]中实现的第一性原理密度泛函理论（DFT）计算电子结构。相关的 Kohn–Sham 态通过 Wan- nier 90 [47], 进行 Wannier 化，从而为每个双层的每个原胞构建包含四个p_z型最大局域化 Wannier 函数的紧束缚基组（每层两个），并为单层六方氮化硼构建两个 Wannier 函数（分别以 B 和 N 为中心）。在该基组下，我们获得无场哈密顿量 $\mathcal{H}_0$的实空间矩阵元，包括现场能和跃迁振幅，以及位置算符 $\hat{\mathbf{r}}$的矩阵元。对这些矩阵元进行 Wannier 插值，可得到倒空间中的哈密顿量矩阵和贝里连接矩阵。这些量被代入长度规范下的半导体布洛赫方程，用于计算每种材料的微观谐波信号。

线偏振驱动激光场在傍轴近似下建模为$\mathbf{E}(t) = E_0 f(t) e^{-i2\pi ct/\lambda}\mathbf{e}_\alpha$，其中 c 是光速， λ 是中心波长， E_0^2是峰值强度，而$\mathbf{e}_\alpha$ 是单位偏振矢量，其特征为倾角 α。偏振矢量位于晶体晶格内，垂直于传播方向。时间包络为 $f(t) = \sin^2(\pi t/\tau)$，其中 τ表示脉冲总持续时间。

2. *Macroscopic solid-state HHG propagation*

从微观非线性响应出发，宏观高次谐波产生发射的计算采用了为气相高次谐波产生开发的框架 [48], ，并已用于单层石墨烯，以研究横向相位匹配效应 [49], 、拓扑高次谐波光谱学 [32],以及固体阿秒脉冲序列的生成

[50]。在生成平面上，目标层在离散偶极子近似下表示为随机分布的基本点源。每个点源代表一个足够大的晶胞，使得基于能带理论的无限晶体描述成立；同时该晶胞又小于驱动波长，因此可以认为驱动电场的局部相位和振幅是均匀的。晶胞数量足够多，以确保结果收敛。探测器平面上的总电磁场通过麦克斯韦传播子，对这些微观基本点源发出的远场谐波辐射进行相干叠加来计算。

对于宏观相互作用，我们考虑具有两种不同径向轮廓的线偏振矢量光束（LPVBs）：（1）标准拉盖尔-高斯（LG）轮廓；（2）平顶轮廓。这一比较使我们能够评估拓扑高次谐波光谱学中的强度依赖效应，相关讨论见第 IIIC 节。在这两种情况下，驱动光束的轨道角动量分量在靶平面处的复振幅均采用柱坐标中的广义拉盖尔-高斯轮廓进行建模

$$\mathrm{LG}_{\ell}^{M}(\rho,\phi)=\left\{1-\left[1-\left(\frac{\rho}{w_M}\right)^{|\ell|}e^{-\rho^2/w_M^2}\right]^{M}\right\}e^{i\ell\phi}, \tag{6}$$

其中，w_M 是取决于展平参数 M的束腰参数。聚焦后的线偏振矢量光束在靶平面处具有以下一般形式

$$\mathrm{LPVB}_{\ell}^{M}(\rho,\phi)= \frac{1}{\sqrt{2}}\left[\mathrm{LG}_{-\ell}^{M}(\rho,\phi)\,\mathbf{e}_{\mathrm{LCP}}+\mathrm{LG}_{+\ell}^{M}(\rho,\phi)\,\mathbf{e}_{\mathrm{RCP}}\right], \tag{7}$$

其中，$\mathbf{e}_{\mathrm{LCP}}$ 和 $\mathbf{e}_{\mathrm{RCP}}$ 是圆偏振单位矢量。我们考虑具有 $\mathcal{P}=1$的线偏振矢量光束，这使我们能够设定 $\ell=1$；对于足够大的 M，使用 $w_M\simeq w_0/\sqrt{\ln M}$，其中 w_0 是标准拉盖尔-高斯轮廓的束腰（$M=1$），设为 $w_0=30$ μm。对于采用平顶径向轮廓的模拟，我们使用 $M=50$。

III. 结果与讨论

A. 神经网络的训练与验证

图 2 总结了我们神经网络的训练与验证情况。首先，图 2a 展示了训练和验证集在 400 个训练周期内的均方误差曲线。两条曲线均呈下降趋势，且始终彼此接近，表明没有明显的过拟合，模型成功实现了泛化。请注意，均方误差是根据网络输出计算的，包括归一化振幅以及傅里叶系数相位的正弦和余弦。图 2b 展示了 10,000 个独立测试案例的均方误差累积分布。中位数 $\log_{10}$(MSE) 为 –2.732，第90百分位数为 –2.483，表明 90% 的测试案例的误差低于此值。

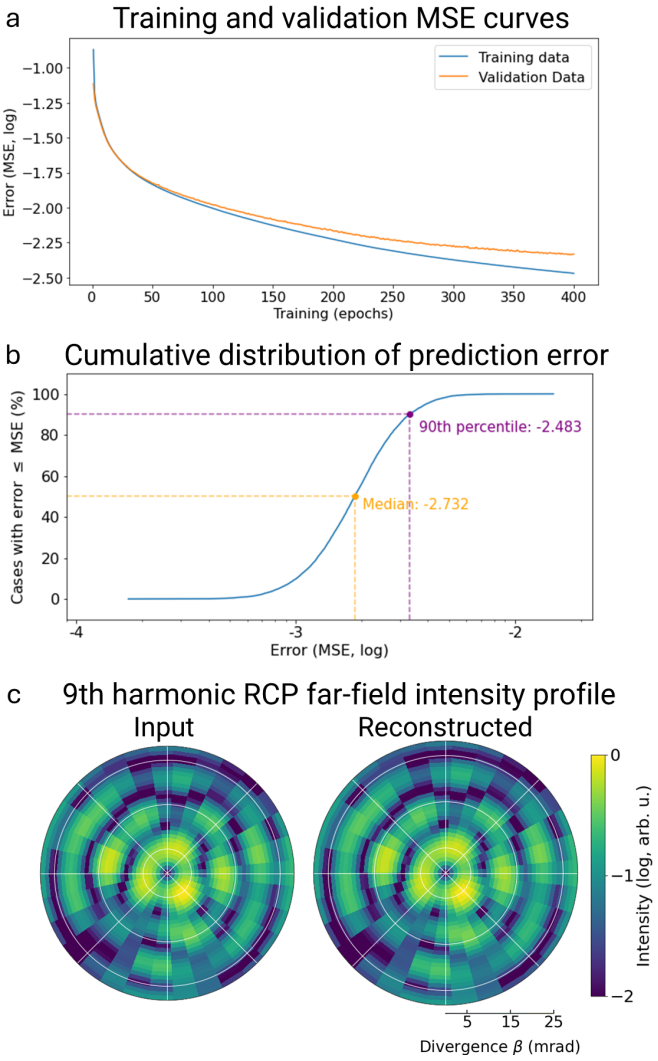


图 2. 神经网络的训练、验证与性能。a) 训练集（蓝色）和验证集（橙色）在 400 个训练周期内 $\log_{10}$(MSE) 的变化。两条曲线高度吻合，表明没有过拟合且泛化能力良好。b) 多对称性测试集的预测误差累积分布，其中位数为 $\log_{10}$(MSE) $=-2.732$，第90百分位数为 $\log_{10}$(MSE) $=-2.483$。c) 一个测试案例的第九次谐波右旋圆偏振远场强度分布的输入（左）与重构结果（右），该案例的均方误差接近测试集中位数。此案例检索得到的傅里叶系数列于表 I。

表 I 比较了对于每种对称性 N，两个相对傅里叶系数的真实振幅$a_{9\,s}^{(N)}$ 、和相位 $\varphi_{9\,s}^{(N)}$ ，；所选代表性案例的均方误差接近中位数。对于该案例，我们在图 2c 中展示了输入的第九次谐波右旋圆偏振远场强度（左）与根据预测系数重构的分布（右）之间的比较。重构的远场强度分布能够很好地再现输入图样。神经网络能够区分与二重、三重—

表 I. 对神经网络中考虑的四种旋转对称性的相对傅里叶系数的真振幅与预测振幅以及真相位与预测相位进行比较。结果对应于图 2c 所示的测试案例，其均方误差最接近测试集中位数，即 log(MSE)。真系数与预测系数之间的一致性证明了神经网络在该案例中的准确性。

N	$a_{9,1}^{(N)}$ [任意单位]		$\varphi_{9,1}^{(N)}$ [弧度]		$a_{9,-1}^{(N)}$ [任意单位]		$\varphi_{9,-1}^{(N)}$ [弧度]	
	True	预测	真	预测	真	预测	真	预测
2	0.316	0.286	0.474	0.532	0.112	0.104	-1.139	-1.127
3	0.229	0.226	-0.046	-0.071	0.351	0.347	-0.922	-0.890
4	0.070	0.055	0.567	0.471	0.321	0.325	-0.134	-0.080
6	0.318	0.309	0.967	0.967	0.206	0.193	2.139	1.989

重和六重对称性相关的贡献，即使它们具有可比的权重，且没有任何单一贡献明显主导远场强度图样。这一人工示例代表的是混合对称性非线性响应，而不是具有明确定义旋转对称性的单一理想晶体。需要注意的是，此处以及全文中，神经网络所处理的是编码于第九次谐波中的信息。将其应用于其他谐波，将为相应的有效非线性磁化率提供补充信息。

B. 将 AI 辅助拓扑高次谐波光谱学应用于微观高次谐波产生模拟

神经网络训练并完成验证后——确立了其从相应远场强度图样中提取傅里叶系数的能力——我们将其预测结果与高次谐波产生模拟进行基准比较。我们首先考察表现出单一对称性非线性响应的晶体中的微观模拟。我们采用具有六重对称谐波响应的石墨烯系统——包括具有 AA 和 AB 堆叠的单层石墨烯和双层石墨烯。随后，我们考察具有混合对称性响应的晶体，即单层六方氮化硼，它同时表现出三重和六重旋转对称性。最后，我们通过将神经网络预测结果与单层石墨烯中的完整宏观模拟进行比较，向实验条件靠近。

1. *Single-symmetry responses*

对于具有六重旋转对称性的单层石墨烯（SLG），拓扑高次谐波光谱学中的逆问题已在 [32], 中得到解析求解。这里我们首先证明，AI 辅助的拓扑高次谐波光谱学能够成功从单层石墨烯的谐波强度分布中提取傅里叶系数。

我们针对线偏振驱动场的 60 个取向，对单层石墨烯进行了一系列微观高次谐波产生模拟，其中偏振倾角 α 在区间 $[0, \pi)$ 内均匀分布，从而涵盖电场与晶体之间的所有相对取向。驱动场被建模为一个脉冲，其中心波长为 $\lambda = 3\ \mu$m，持续时间为 $\tau = 8$ 个光学周期（强度半高全宽为 29.1 fs），峰值强度为 $E_0^2 = 5 \times 10^{10}$ W cm^{-2}。我们从所得的高次谐波产生光谱中选取第九次谐波。随后，根据具有 $\mathcal{P} = 1$ 的线偏振矢量光束驱动场的最大强度环和局部偏振取向，将选取的第九次谐波场沿半径为 $\rho_0 = 21.213\ \mu$m 的环排列，以重构谐波近场。

随后，我们采用两步策略。首先，我们沿方位角坐标在ρ_0 处进行傅里叶变换，从数值模拟中提取傅里叶系数；这些系数列于表 II 的第一行，并标记为“真”。注意，与石墨烯晶格的六重对称性一致，与 $N \neq 6$ 相关的系数的提取振幅——以及随后预测的振幅——均低于 10^{-3}。因此，我们仅报告 $N = 6$ 的系数。其次，我们对第九次谐波近场的夫琅禾费积分进行数值计算，以获得右旋圆偏振和左旋圆偏振强度分布，并将其作为神经网络的输入。所得的右旋圆偏振远场强度分布如图 3a 左图所示。

表 II. 对具有六重对称响应的模拟材料（$N = 6$）的相对傅里叶系数的真振幅与预测振幅 $a_{9}^{(6)}{}_{,\pm1}$ 以及真相位与预测相位 $\varphi_{9}^{(6)}{}_{,\pm1}$ 进行比较：SLG，其 $\log_{10}$(均方误差)为 $= -2.542$；AA 堆叠 BLG，其 $\log_{10}$(均方误差)为 $= -2.838$；以及 AB 堆叠双层石墨烯，其 $\log_{10}$(均方误差)为 $= -2.722$。结果对应于图 3 所示的情形。具有 $N \neq 6$ 的分量因其预测振幅较小而未列入表中。真系数与预测系数之间的一致性证明了该网络对于这些单一对称性响应的准确性，并以微观高次谐波产生模拟为基准进行了验证。

材料	$a_{9}^{(6)}{}_{,1}$ [任意单位]		$\varphi_{9,1}^{(6)}$ [弧度]		$a_{9,-1}^{(6)}$ [任意单位]		$\varphi_{9,-1}^{(6)}$ [弧度]	
	True	预测	真	预测	真	预测	真	预测
单层石墨烯	0.777	0.768	0.716	0.878	0.824	0.817	-2.803	-2.871
AA 堆垛双层石墨烯	1.991	2.035	1.341	1.323	1.562	1.796	-1.373	-1.349
AB 堆垛双层石墨烯	4.448	4.394	1.527	1.555	4.106	4.310	-1.239	-1.201

神经网络为 SLG 预测的傅里叶系数列于表 II 的第一行，而第九次谐波重构得到的远场强度分布如图 3a 右侧面板所示。所得误差 $\log_{10}$(MSE) $= -2.542$ 低于测试集误差分布的第90百分位数。因此，在多种对称性数据上训练的神经网络能够准确恢复具有明确旋转对称性的晶体（例如 SLG）的非线性响应，这表明 AI 辅助的高次谐波拓扑光谱学能够重现分析结果，

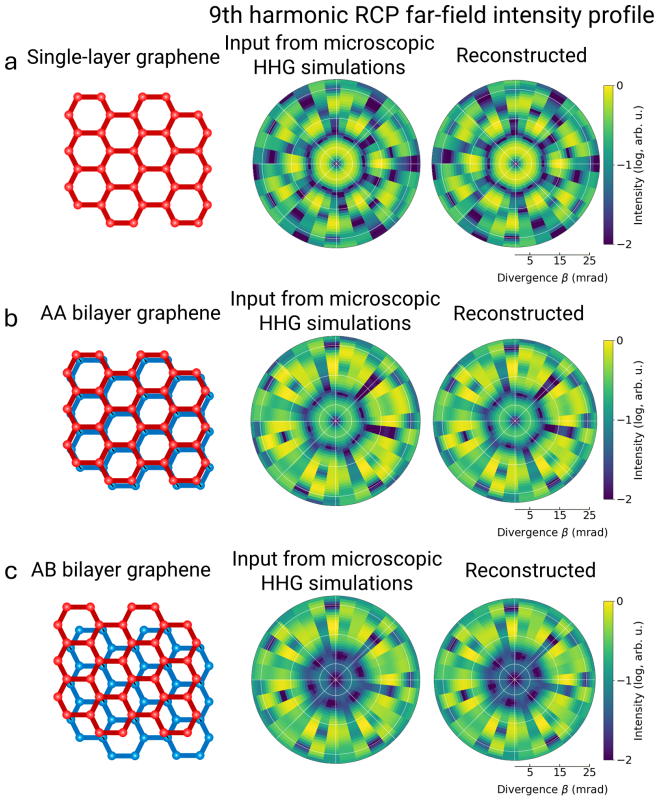


图 3. 将人工智能辅助拓扑高次谐波光谱学应用于具有六重对称响应的晶体中的微观高次谐波产生模拟（$N = 6$）：a) 单层石墨烯，b) AA 堆叠双层石墨烯，以及 c) AB 堆叠双层石墨烯。每一行分别展示晶格示意图（左）、从微观高次谐波产生模拟中获得的第九次谐波的输入右旋圆偏振远场强度分布（中），以及根据预测的傅里叶系数重建的相应分布（右）。表 II 对比了每种情况下的真实傅里叶系数与反演得到的傅里叶系数。

发表于 [32]。

为评估 AI 辅助拓扑高次谐波光谱学的普适性，我们考察了其他具有六重旋转对称性但非线性磁化率不同的晶体。具体而言，我们考察了 AA 和 AB 堆垛构型下的 BLG。微观高次谐波产生模拟显示出更大的相对傅里叶振幅，因此需要将其范围扩展至 $a_9^{(N)}, s \in [0, 5]$。对于更新后的网络，测试集对数均方误差分布的中位数和第 90百分位数分别为 –2.024 和 –1.756。

神经网络预测的 AA 堆垛双层石墨烯和 AB 堆垛双层石墨烯的傅里叶系数分别列于表 II 的第二行和第三行，而第 9 次谐波重构得到的远场强度分布则显示在图3b和图3c的右侧面板中。与单层石墨烯的情况一样，我们仅报告 $N = 6$的系数。由此得到的误差分别为 AA 堆垛双层石墨烯的 $\log_{10}$(均方误差) $= -2.838$和 AB 堆垛双层石墨烯的 $\log_{10}$(均方误差) $= -2.722$，二者均低于测试集误差分布的中位数。这些结果表明，神经网络能够根据具有特征性的远场谐波强度分布，区分并准确提取相同旋转对称性下的不同非线性响应。

2. *Mixed-symmetry responses*

我们进一步将分析扩展到包含多个旋转对称性相关贡献的非线性响应。具体而言，我们将神经网络应用于单层六方氮化硼中的高次谐波产生，其响应同时包含三重和六重角向分量，后者对应于三重依赖关系的第二傅里叶谐波。高次三重傅里叶分量也存在于高次谐波产生模拟中，但在所考虑的远场角度范围内，其贡献可以忽略不计。如公式 4 所示，相关的高阶轨道角动量模式主要在更大的发散角处产生贡献。

表 III. 单层六方氮化硼相对傅里叶系数的真实幅值 $a_{9}^{(N)}{}_{,\pm1}$ 和相位 $\varphi_{9}^{(N)}{}_{,\pm1}$ 与预测值的比较。其响应由三重和六重分量主导。总体误差为 $\log_{10}$(均方误差) $= -1.029$，相应的远场强度分布见图4。模型中省略高阶傅里叶系数可能引入伪贡献（例如此处预测的 $N = 4$ 分量），从而增大总体误差。尽管如此，主导系数与从微观高次谐波产生模拟中提取的系数吻合良好。

N	$a_{9,1}^{(N)}$ [任意单位]		$\varphi_{9,1}^{(N)}$ [弧度]		$a_{9,-1}^{(N)}$ [任意单位]		$\varphi_{9,-1}^{(N)}$ [弧度]	
	True	预测	True	预测	真	预测	True	预测
2	0.014	0.109	3.115	-1.184	0.011	0.057	2.966	-2.106
3	0.963	0.977	1.691	1.793	0.929	0.926	2.211	2.367
4	0.010	0.421	0.251	-1.096	0.015	0.387	-2.463	2.831
6	0.570	0.710	-2.234	-2.267	0.737	0.848	-1.999	-1.982

神经网络为 hBN 预测的 $N = 2$、3、4、6 的傅里叶系数列于表 III 中，第九次谐波的输入远场强度分布和重构远场强度分布如图4所示。总体 $\log_{10}$(均方误差)误差为 –1.029，而主要旋转对称性 $N = 3$ 和 $N = 6$ 对应的误差分别为 –2.222 和 –1.509。这些结果表明，神经网络能够提取非线性响应中的主导三重和六重对称贡献。然而，从模型中省略高阶傅里叶系数可能会引入伪贡献（例如此处预测的 $N = 4$ 分量），从而增大总体误差。将高阶系数纳入网络可能会减少这些伪影，但代价是增加内存需求并需要更大的数据集，这超出了本文的研究范围。因此，该示例既说明了该方法的潜力，

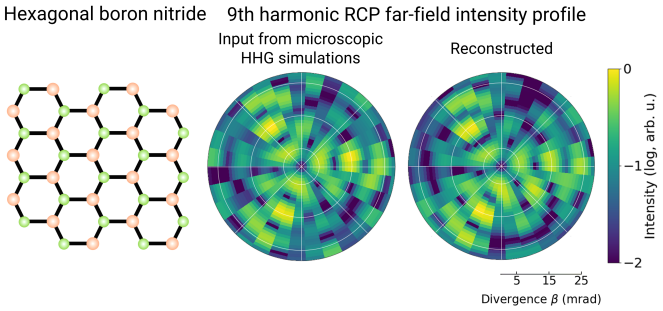


图4. 将人工智能辅助拓扑高次谐波光谱学应用于单层六方氮化硼中的微观高次谐波产生模拟，其响应同时包含三重（$N = 3$）和六重（$N = 6$）分量。各面板分别展示了晶格示意图（左）、由微观高次谐波产生模拟获得的第九次谐波输入右旋圆偏振远场强度分布（中），以及根据预测的傅里叶系数重构得到的相应分布（右）。表 III 对每种对称性的真实傅里叶系数和反演得到的傅里叶系数进行了比较。

也展现了提取混合对称性响应所面临的挑战。

C. 人工智能辅助拓扑高次谐波光谱学在宏观高次谐波产生模拟中的应用

在真实实验条件下应用人工智能辅助拓扑高次谐波光谱学，需要考虑驱动局域偏振矢量光束的完整空间分布中的谐波产生，而不能像本文目前所做的那样，仅考虑半径为 ρ_0 的无限薄环。本节将介绍如何调整神经网络训练以考虑这种空间依赖性，并针对由具有平顶和高斯径向分布的局域偏振矢量光束驱动的单层石墨烯中的宏观高次谐波产生模拟，检验其预测结果。

为生成我们的网络数据集，我们从与 q 阶非线性响应相关的傅里叶系数出发，但现在将近场谐波分布建模为一系列半径不同且傅里叶系数相同的无限薄环之和。按照第 II A 节中所述的积分过程，远场谐波分布可表示为贝塞尔函数的叠加。q 阶谐波的右旋圆偏振和左旋圆偏振振幅，$U_q^{\pm}(\beta,\theta)$，因此可写为：

$$U_q^{\pm}(\beta,\theta) = -i\kappa\frac{e^{i\kappa D}}{D}\sum_j \rho_j \Delta\rho \sum_{s=-1}^{1} c_{q,s}^{\pm}(\rho_0) \times e^{\mp i(Ns+1)\mathcal{P}\pi/2} J_{\pm(Ns+1)\mathcal{P}}(\kappa\rho_j\beta)\, e^{\pm i(Ns+1)\mathcal{P}\theta}, \tag{8}$$

其中，ρ_j 对区间 $[\rho_0-\delta/2, \rho_0+\delta/2]$进行采样，$\Delta\rho$ 为径向采样步长，δ 为谐波近场环的总宽度。需要注意的是，允许傅里叶

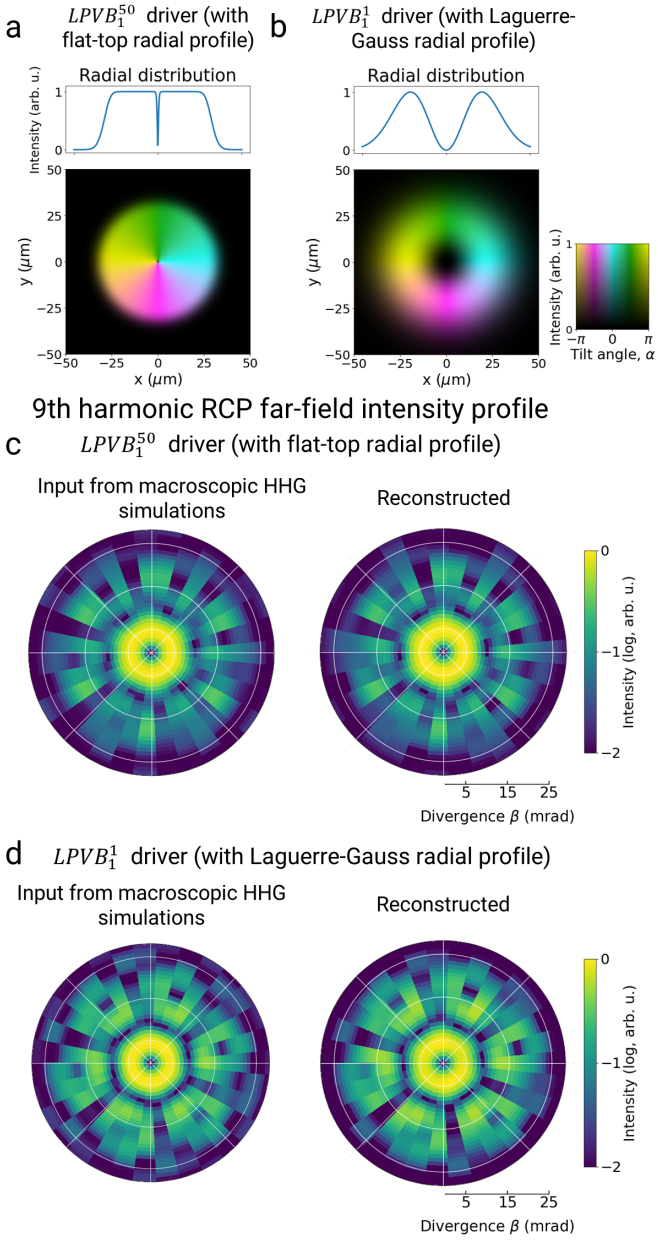


图 5. 将人工智能辅助拓扑高次谐波光谱学应用于由两束光驱动的单层石墨烯中的宏观高次谐波产生模拟：a) 具有平顶径向分布的 LPVB_1^{50}，以及 b) 具有拉盖尔-高斯径向分布的 LPVB_1^{1}。面板 c) 和 d) 分别展示了针对 LPVB_1^{50} 和 LPVB_1^{1} 驱动光束，从宏观高次谐波产生模拟中获得的第九次谐波输入右旋圆偏振远场强度分布（左）以及根据预测的傅里叶系数重建的相应分布（右）。表 IV 比较了由每束驱动光束获得的单层石墨烯 $N = 6$ 响应的真实傅里叶系数与检索得到的傅里叶系数。

若使系数随半径独立变化，将能提供更准确的描述，但会大幅增加网络输出的数量以及所需的训练数据，使这一扩展在计算上不切实际。

表 IV. 微观高次谐波产生模拟中提取的相对傅里叶系数的真实振幅 $a_9^{(6)}{}_{,\pm1}$ 和相位 $\varphi_9^{(6)}{}_{,\pm1}$，与神经网络根据 SLG 中的宏观高次谐波产生远场强度分布预测的结果（$N = 6$）的比较。考虑了两种驱动光束：径向分布为平顶的线偏振矢量光束$_1^{50}$，其 log$_{10}$(均方误差) 为 $= -1.671$；以及径向分布为拉盖尔 - 高斯的线偏振矢量光束$_1^1$，其 log$_{10}$(均方误差) 为 $= -1.081$。结果对应于图 5 所示的情形。表中省略了 $N \neq 6$ 的分量，因为其预测振幅较小。平顶情形下较低的均方误差凸显了反演对驱动光束径向强度分布的敏感性。对于拉盖尔-高斯驱动光束，反演系数被视为有效参数，反映了靶材的非线性响应以及谐波在整层中的相干叠加。

驱动场	$a_{9,1}^{(6)}$ [任意单位]			$\varphi_{9,}^{(6)}$ [弧度]		$a_{9,-1}^{(6)}$ [任意单位]	$\varphi_{9,-1}^{(6)}$ [弧度]	
	True	预测	真	预测	真	预测	真	预测
线偏振矢量光束$_1^{50}$	0.777	0.653	0.716	0.909	0.824	0.642	-2.803	-2.671
线偏振矢量光束$_1^1$	0.777	0.695	0.716	1.643	0.824	0.766	-2.803	-2.420

首先，我们研究由 LPVB$_1^{50}$光束驱动的宏观高次谐波产生，即具有 $\mathcal{P} = 1$ 和径向平顶分布的 LPVB，如图 5a 所示。颜色表示偏振倾角 α，亮度则表示强度。插图显示了径向强度分布。选择这种平顶分布是为了最大限度地减小高次谐波发射强度依赖相位在径向空间上的变化。在气相高次谐波产生中，也采用过类似策略，以揭示原本会被宏观传播和强度依赖的相位匹配效应 [51–54] 抹平的微观高次谐波产生特征。针对这一情况，我们使用公式 8 中的模型训练并验证了神经网络，其中 $\rho_0 = w_M = 15.17\ \mu$m 和$\delta = 24\ \mu$m。这些数值的选择尽可能贴近本文所考虑的 LPVB$_1^{50}$驱动光束的空间特征。测试集 log$_{10}$(均方误差)分布的中位数和第90百分位数分别为 – 2.375 和 –2.129。

通过宏观高次谐波产生模拟获得的单层石墨烯第九次谐波右旋圆偏振远场强度分布（并作为神经网络的输入）显示在图 5c 左图中，相应的重建分布显示在右图中。神经网络预测的傅里叶系数列于表 IV 第一行。与微观高次谐波产生的情况相同，我们仅报告 $N = 6$ 的系数，因为与 $N \neq 6$ 相关的系数，其提取出的振幅（随后由网络预测）低于 10^{-2}。所得误差为 log$_{10}$(均方误差) $= -1.671$。尽管神经网络是在径向上傅里叶系数均匀的空间分布上训练的，但它仍能以合理的精度从完整的宏观高次谐波产生模拟中提取系数。因此，这些结果支持在宏观条件下应用 AI 辅助的拓扑高次谐波光谱，即使假设傅里叶系数与径向坐标无关。

其次，为了评估模型中驱动光束的强度依赖效应，我们研究了由线偏振矢量光束$_1^1$ 驱动的宏观高次谐波产生，即具有 $\mathcal{P} = 1$ 和拉盖尔-高斯径向分布的线偏振矢量光束，如图 5b所示。对于这种情况，我们使用式（8）中的模型训练并验证了神经网络，其中 $\rho_0 = 21.213\ \mu$m 和 $\delta = 12\ \mu$m，以尽可能准确地近似线偏振矢量光束$_1^1$ 驱动光束的空间特征。测试集对数$_{10}$(均方误差)分布的中位数和第90百分位数分别为 –2.538 和 –2.287。

第九次谐波重建得到的右旋圆偏振远场强度分布如图 5d 所示。预测的傅里叶系数（列于表 IV 第二行）产生的误差为对数$_{10}$(均方误差) $= -1.081$。与平顶情形相比，均方误差较高，这表明驱动强度的空间变化会影响反演过程，凸显了 AI 辅助拓扑高次谐波光谱对光束径向强度分布的敏感性。因此，反演系数应被视为有效参数，它们同时反映了靶材的非线性响应以及受照区域内谐波发射的相干叠加。如上所述，允许傅里叶系数随半径独立变化可提供更准确的描述，但会增加内存和计算需求，这超出了本工作的范围。

IV. 结论

我们证明，人工智能辅助拓扑高次谐波光谱学能够根据薄晶体材料谐波发射的远场强度分布，定量反演其各向异性非线性响应。我们开发、训练并验证了一种卷积神经网络，可从右旋圆偏振/左旋圆偏振远场谐波强度分布中恢复描述材料非线性响应的复傅里叶系数。该方法无需对极紫外辐射进行相位分辨测量，而这类测量在实验上颇具挑战。

该神经网络不仅能反演非线性响应，还能区分与不同旋转对称性相关的贡献。将该方法的结果与单层石墨烯以及 AA 堆垛和 AB 堆垛双层石墨烯的微观高次谐波产生模拟结果进行比较，证实了该方法能够区分具有相同旋转对称性的材料所呈现的不同非线性响应。此外，将其应用于单层六方氮化硼，进一步证明该方法能够分辨单一材料中的多个角分量。与宏观高次谐波产生模拟的比较表明，该方法适用于所考察的宏观条件。

然而，谐波发射中的强度依赖效应意味着，反演系数编码了有关材料响应以及受照区域内相干发射的信息-

。更深入地理解固体中强度依赖的高次谐波产生，有助于将这些有效系数与局域非线性响应联系起来，从而拓展该技术的定量应用范围。

这些结果为通过谐波强度测量实现各向异性非线性响应的全光学表征奠定了基础，其中光的拓扑编码了有关材料的信息。分离角度贡献的能力也为未来应用于更复杂的系统提供了动力，包括多晶材料和范德华异质结构；在这些系统中，测得的响应与组成结构之间的关系仍有待探索。进一步发展有望实现对激子动力学的探测，或检测晶格缺陷，从而为原子级薄层材料的规模化制造开辟光学质量控制的新途径。

致谢

本项目获得了欧洲研究委员会（ERC）根据欧盟地平线欧洲研究与创新计划（ERC概念验证资助协议编号：101247206）的资助。我们感谢科学与创新部（资助编号：PID2025-173282NB-I00）、卡斯蒂利亚-莱昂自治区教育部及欧洲区域发展基金（编号：SA108P24 和 Escalera de Excelencia CLU-2023-1-02）提供的资助。D.H.-S. 感谢萨拉曼卡大学通过其第三期博士前研究员奖学金计划（2024年）提供的资助，该计划由桑坦德银行共同资助。

数据可用性

支持本研究结论的数据可在合理请求后向通讯作者索取。

利益冲突

作者声明不存在利益冲突 st.

[1] A. McPherson、G. Gibson、H. Jara、U. Johann、T. S. Luk、I. A. McIntyre、K. Boyer 和 C. K. Rhodes，《稀有气体中真空紫外辐射多光子产生的研究》，*Journal of the Optical Society of America B* 4, 595, 1987 ，第 p 卷，apr。[2] M. Ferray、A. L'Huillier、X. F. Li、L. A. Lompre、G. Mainfray 和 C. Manus，《稀有气体中1064 *Journal of Physics B:* nm辐射*Atomic Molecular and Optical Physics* 21, 31的多次谐波转换》，，，第 pp 卷，L–L35页，1988年2月。[3] T. Popmintchev、M.-C. Chen、D. Popmintchev、P. Arpin、S. Brown、S. Ali˘sauskas、G. Andriukaitis、T. Bal˘ciunas、O. D. M¨ucke、A. Pugzlys、A. Baltu˘ska、B. Shim、S. E. Schrauth、A. Gaeta、C. Hern´andez-Garc´ıa、L. Plaja、A. Becker、A. Jaron-Becker、M. M. Murnane 和 H. C. Kapteyn，《中红外飞秒激光器在千电子伏特X射线区域产生的明亮相干超高次谐波》，*Science*，第336卷，第1287–1291页，2012年6月。[4] P. M. Paul、E. S. Toma、P. Breger、G. Mullot、F. Aug´e、P. Balcou、H. G. Muller 和 P. Agostini，《高次谐波产生中阿秒脉冲列的观测》，*Science*，第292卷，第1689–1692页，2001年6月。[5] M. Hentschel、R. Kienberger、C. Spielmann、G. A. Rei-der、N. Milosevic、T. Brabec、P. Corkum、U. Heinzmann、M. Drescher 和 F. Krausz，《阿秒计量学》，*Nature*，第414卷，第509–513页，2001年11月。[6] R. B. Varillas、P. Agostini、F. Ardana-Lamas、C. L. Arnold、D. Ayuso、M. Reduzzi、J. Benda、J. Biegert、C. Bourassin-Bouchet、T. Brabec、C. Brahms、A. C. Brown、D. Busto、J. Caillat、F. Calegari、C. Callegari、S. Carlstr¨om、Z. Chang、M.-C. Chen、A. G. Ciriolo、P. Corkum、G. Crippa、R. de Q. Garcia、L. DiMauro、N. Dudovich、P. Eng-Johnsson、D. Faccial`a、P. Flo- res、T. Gadeyne、G. A. Geloni、C. Geirger、S. Gholam- Mirzaei、J. D. Gorfinkiel、E. Goulielmakis、M. Hassan、C. Hern´andez-Garc´ıa、P. Ho、D. Hui、L. R. Hutche- son、M. Ivanov、S. Kahaly、H. Kapteyn、N. Karpow- icz、F. X. K¨artner、M. Kling、O. Kneller、D. H. Ko、P. M. Kraus、M. Kubullek、S. R. Leone、F. L´epine、A. L'Huillier、C.-T. Liao、T. Linker、A. G. Lohr、M. Lucchini、L. B. Madsen、R. E. Mainz、B. Major、J. P. Marangos、D. Marco、H. Marroux、S. Marshall- say、R. M. V´azquez、R. Mart´ın-Hern´andez、Z. Ma˘s´ın、M. Meyer、F. M. Moreno、M. Murnane、D. M. Neumark、M. Nisoli、M. Ossiander、S. Palakka、S. Patchkovskii、Z. Pi、L. Plaja、J. Poborska、M. A. Porras、K. C. Prince、D. N. Purschke、N. G. Puskar、G. M. Rossi、J. R. Rouxel、T. Ruchon、P. Rupprecht、P. Sali`eres、G. San- sone、F. Scheiba、M. Schultze、B. Sch¨utte、S. Serkez、M. A. Silva-Toledo、O. Smirnova、S. Stagira、A. Trabat- toni、J. C. Travers、I. Tyulnev、M. Vacher、G. Vampa、H. W. van der Hart、K. Varj´u、A.-L. Viotti、V. Vishnoi、M. Vrakking、V. Wanie、S. Witte、F. Xu、V. S. Yakovlev、L. Young、D. Zhu 和 C. Vozzi，"阿秒科学路线图"，2026年。[7] F. Krausz 和 M. Ivanov，"阿秒物理学"，*Reviews of Modern Physics* 81, 163 234, 2009 ，第 pp. 卷，–，2月。[8] J. Itatani、J. Levesque、D. Zeidler、H. Niikura、H. P´epin、J. C. Kieffer、P. B. Corkum 和 D. M. Villeneuve，"分子轨道层析成像"，*Nature*，第 432 卷，第 867–871 页，2004年12月。[9] R. E. F. Silva、I. V. Blinov、A. N. Rubtsov、O. Smirnova 和 M. Ivanov，"强关联体系中超快多体动力学的高次谐波成像"，

Nature Photonics，第 12 卷，第 266–270 页，2018年5月。arXiv:1704.08471 [凝聚态物理]。[10] S. Ghimire、A. D. DiChiara、E. Sistrunk、P. Agostini、L. F. DiMauro 和 D. A. Reis，“块体晶体中高次谐波产生的观测”，*Nature Physics* 7，138–141，2011，第 pp. 卷，–，2月。[11] K. J. Schafer、B. Yang、L. F. DiMauro 和 K. C. Kulander，“超越高次谐波截止的阈上电离”，*Physical Review Letters*，第 70 卷，第 1599–1602 页，1993年3月。[12] P. B. Corkum，“强场多光子电离的等离子体视角”，*Physical Review Letters*，第 71 卷，第 1994–1997 页，1993年9月。[13] L. Yue 和 M. B. Gaarde，“固体中的高次谐波产生理论导论：教程”，*Journal of the Optical Society of America B* 39，535，，第 p. 卷，2022年2月。[14]D. Golde、T. Meier 和 S. W. Koch，“半导体纳米结构中由光学带间与带内激发耦合动力学产生的高次谐波”，*Physical Review B*，第 77 卷，第 075330 页，2008年2月。[15] S. Ghimire 和 D. A. Reis，“固体中的高次谐波产生”，*Nature Physics*，第 15 卷，第 10–16 页，2019年1月。[16] O. Schubert、M. Hohenleutner、F. Langer、B. Urbanek、C. Lange、U. Huttner、D. Golde、T. Meier、M. Kira、S. W. Koch 和 R. Huber，“通过动态布洛赫振荡实现亚周期太赫兹高次谐波产生控制”，*Nature Photonics*，第 8 卷，第 119–123 页，2014年1月。[17] Y. S. You、D. A. Reis 和 S. Ghimire，“块体晶体中的各向异性高次谐波产生”，*Nature Physics*，第 13 卷，第 345–349 页，2017年4月。[18] N. Tancogne-Dejean、O. D. M¨ucke、F. X. K¨artner 和 A. Rubio，“电子能带结构对固体高次谐波产生光谱的影响”，*Phys. Rev. Lett.* 118，087403，2017，第 p. 卷，2月。[19] S. Kaassamani、T. Auguste、N. Tancogne-Dejean、X. Liu、W. Boutu、H. Merdji 和 D. Gauthier，“砷化镓中高次谐波产生的偏振光谱”，*Optics Express*，第 30 卷，第 40531 页，2022年10月。arXiv:2210.00525 [物理学]。[20] ´O. Zurr´on-Cifuentes、R. Boyero-Garc´ıa、C. Hern´andez- Garc´ıa、A. Pic´on 和 L. Plaja，“无带隙石墨烯中非微扰高次谐波产生的光学各向异性”，*Optics Express*，第 27 卷，第 7776 页，2019年3月。[21] K. Y. Bliokh、E. Karimi、M. J. Padgett、M. A. Alonso、M. R. Dennis、A. Dudley、A. Forbes、S. Zahedpour、S. W. Hancock、H. M. Milchberg、S. Rotter、F. Nori、S.. K. ¨Ozdemir、N. Bender、H. Cao、P. B. Corkum、C. Hern´andez-Garc´ıa、H. Ren、Y. Kivshar、M. G. Silveir- inha、N. Engheta、A. Rauschenbeutel、P. Schneeweiss、J. Volz、D. Leykam、D. A. Smirnova、K. Rong、B. Wang、E. Hasman、M. F. Picardi、A. V. Zayats、F. J. Rodr´ıguez- Fortu˜no、C. Yang、J. Ren、A. B. Khanikaev、A. Al`u、E. Brasselet、M. Shats、J. Verbeeck、P. Schattschneider、D. Sarenac、D. G. Cory、D. A. Pushin、M. Birk、A. Gor- lach、I. Kaminer、F. Cardano、L. Marrucci、M. Krenn 和 F. Marquardt，“结构化波路线图”，*Journal of Optics*，第 25 卷，第 103001 页，2023年8月。[22] Y. Shen、Q. Zhan、L. G. Wright、D. N. Christodoulides、F. W. Wise、A. E. Willner、K.-h. Zou、Z. Zhao、M. A. Porras、A. Chong、C. Wan、K. Y. Bliokh、C.-T. Liao，C. Hern´andez-Garc´ıa、M. Murnane、M. Yessenov、A. F. Abouraddy、L. J. Wong、M. Go、S. Kumar、C. Guo、S. Fan、N. Papasimakis、N. I. Zheludev、L. Chen、W. Zhu、A. Agrawal、M. Mounaix、N. K. Fontaine、J. Carpen- ter、S. W. Jolly、C. Dorrer、B. Alonso、I. Lopez-Quintas、M. L´opez-Ripa、´I. J. Sola、J. Huang、H. Zhang、Z. Ruan、A. H. Dorrah、F. Capasso 和 A. Forbes，“时空光场路线图”，*Journal of Optics*，第25卷，第093001页，2023年8月。[23] C. Hern´andez-Garc´ıa、A. Pic´on、J. San Rom´an 和 L. Plaja，“由高次谐波产生产生的阿秒极紫外涡旋”，*Physical Review Letters* 111，083602，2013，第p卷，8月。[24] G. Gariepy、J. Leach、K. T. Kim、T. J. Hammond、E. Frumker、R. W. Boyd 和 P. B. Corkum，“产生具有受控轨道角动量的高次谐波光束”，*Physical Review Letters*，第113卷，第153901页，2014年10月。[25] R. G´eneaux、A. Camper、T. Auguste、O. Gobert、J. Cail- lat、R. Ta¨ıeb 和 T. Ruchon，“极紫外波段阿秒光涡旋的合成与表征”，*Nature Communications*，第7卷，第12583页，2016年8月。[26] R. Mart´ın-Hern´andez、L. Plaja、C. Hern´andez-Garc´ıa 和 M. A. Porras，“孤立阿秒时空光学涡旋：高次谐波产生中拓扑荷与轨道角动量标度之间的相互作用”，*Phys. Rev. Lett.*，第135卷，第223801页，2025年11月。[27]M. A. Porras、M. G. Barriopedro 和 R. Mart´ın- Hern´andez，“由时空光场驱动的谐波与高次谐波产生中轨道角动量守恒的标度定律”，2026年3月。arXiv:2603.08263。[28] D. Gauthier、S. Kaassamani、D. Franz、R. Nicolas、J.-T. Gomes、L. Lavoute、D. Gaponov、S. F´evrier、G. Jargot、M. Hanna、W. Boutu 和 H. Merdji，“来自半导体高次谐波的轨道角动量”，*Optics Letters* 44，546，2019，1808 09924，第p卷，[ ]2月。arXiv:。物理学。[29] Q. Zhan，“柱矢量光束：从数学概念到应用”，*Advances in Optics and Photonics* 1，1，2009，第p卷，1月。[30] T. G¨unther 和 J. Baeza Rojo，“矢量场拓扑导论”，载于 *Topological Methods in Data Analysis and Visualization VI*（I. Hotz、T. Bin Masood、F. Sadlo 和 J. Tierny 编），第289–326页，尚：Springer International Publishing，2021年。丛书名称：数学与可视化。[31] C. Hern´andez-Garc´ıa、A. Turpin、J. San Rom´an、A. Pic´on、R. Drevinskas、A. Cerkauskaite、P. G. Kazan- sky、C. G. Durfee 和 ´I. J. Sola，“由红外激光器驱动的极紫外矢量光束”，*Optica*，第4卷，第520页，2017年5月。[32] A. Garc´ıa-Cabrera、R. Boyero-Garc´ıa、´O. Zurr´on-Cifuentes、J. Serrano、J. S. Rom´an、L. Plaja 和 C. Hern´andez-Garc´ıa，“拓扑高次谐波光谱学”，*Communications Physics*，第7卷，第28页，2024年1月。[33] J. White 和 Z. Chang，“借助神经网络进行阿秒条纹相位检索”，*Optics Express*，第27卷，第4799页，2019年2月。[34] M. Lytova、M. Spanner 和 I. Tamblyn，“深度学习与高次谐波产生，” *Canadian Jour-*

nal of Physics，第101卷，第132–140页，2023年3月。arXiv:2012.10328 [physics]。[35] T. Zahavy、A. Dikopoltsev、D. Moss、G. I. Haham、O. Co- hen、S. Mannor 和 M. Segev，《深度学习重建超短脉冲》，*Optica*，第5卷，第666页，2018年5月。[36] J. M. Pablos-Mar´ın、J. Serrano 和 C. Hern´andez-Garc´ıa，《利用人工智能模拟结构化激光束驱动的宏观高次谐波产生》，*Computer Physics Communications*，第291卷，第108823页，2023年10月。[37] R. Ubic，*Crystallography and Crystal Chemistry*。尚：施普林格国际出版公司，2024年。[38] L. Rego、K. M. Dorney、N. J. Brooks、Q. L. Nguyen、C.- T. Liao、J. San Rom´an、D. E. Couch、A. Liu、E. Pisanty、M. Lewenstein、L. Plaja、H. C. Kapteyn、M. M. Mur- nane 和 C. Hern´andez-Garc´ıa，《生成具有时变轨道角动量的极紫外光束》，*Science*，第364卷，第eaaw9486页，2019年6月。[39] L. Rego、N. J. Brooks、Q. L. D. Nguyen、J. S. Rom´an、I. Binnie、L. Plaja、H. C. Kapteyn、M. M. Murnane 和 C. Hern´andez-Garc´ıa，《项链结构的高次谐波产生：具有可调线间距的低发散软X射线谐波梳》，*Science Advances* 8, 7380, 2022，第p卷，第eabj页，2月。[40] R. Mart´ın-Hern´andez、M. Redon、A.-K. Raab、S. West- erberg、V. Koltalo、C. Guo、A.-L. Viotti、L. Plaja、J. S. Rom´an、A. L'Huillier、C. L. Arnold 和 C. Hern´andez- Garc´ıa，《空心高斯光束驱动高次谐波产生时阿秒脉冲聚焦增强》，*Ultrafast Science*，第6卷，第0161页，2026年1月。[41] Ian Goodfellow、Yoshua Bengio 和 Aaron Courville，*Deep Learning*。麻省理工学院出版社，2016年。[42] J. Casas Roma、T. Lozano Bag´en 和 A. Bosch Ru´e，*Deep Learning: Principios y Fundamentos*。西班牙巴塞罗那：Editorial UOC，2020年。[43] M. Lindberg 和 S. W. Koch，《半导体的有效布洛赫方程》，*Phys. Rev. B*，第38卷，第3342–3350页，1988年8月。[44] G. Cistaro、M. Malakhov、J. J. Esteve-Paredes、A. J. Ur´ıa- ´Alvarez、R. E. Silva、F. Mart´ın、J. J. Palacios 和 A. Pic´on，《电子动力学与超快光谱学的理论方法（EDUS）》，*Journal of Chemical Theory and Computation* 19, 1, 333，卷号、页码—348，2023年。[45] P. Giannozzi、S. Baroni、N. Bonini、M. Calandra、R. Car、C. Cavazzoni、D. Ceresoli、G. L. Chiarotti、M. Cococ- cioni、I. Dabo、*et al.*，《Quantum ESPRESSO：用于量子模拟的模块化开源软件项目，*Journal of physics: Condensed matter*，第 21 卷，第 39 期，页码 395502，2009 年。[46] P. Giannozzi、O. Andreussi、T. Brumme、O. Bunau、M. Buongiorno Nardelli、M. Calandra、R. Car、C. Cavaz-zoni、D. Ceresoli、M. Cococcioni、*et al.*，"利用 Quantum ESPRESSO 进行材料建模的高级功能"，*Journal of physics: Condensed matter*，第 29 卷，第 46 期，页码 465901，2017 年。[47] G. Pizzi、V. Vitale、R. Arita、S. Bl¨ugel、F. Freimuth、G. G´eranton、M. Gibertini、D. Gresch、C. Johnson、T. Koretsune、*et al.*，"Wannier90 作为社区代码：新功能与应用"，*Journal of Physics: Condensed Matter*，第 32 卷，第 16 期，页码 165902，2020 年。[48] C. Hern´andez-Garc´ıa、J. A. P´erez-Hern´andez、J. Ramos、E. C. Jarque、L. Roso 和 L. Plaja，"离散偶极子近似下气体中的高次谐波传播"，*Phys. Rev. A*，第 82 卷，页码 033432，2010 年 9 月。[49]R. Boyero-Garc´ıa、O. Zurr´on-Cifuentes、L. Plaja 和 C. Hern´andez-Garc´ıa，"单层石墨烯中高次谐波产生的横向相位匹配"，*Opt. Express*，第 29 卷，页码 2488–2500，2021 年 1 月。[50] S. Mart´ın-Domene、L. Plaja 和 C. Hern´andez-Garc´ıa，"通过高次谐波产生中的宏观相位匹配从石墨烯产生阿秒脉冲串"，*arXiv:2606.03945*，2026年。[51] A. Dubrouil、Y. Mairesse、B. Fabre、D. Descamps、S. Pe-tit、E. M´evel 和 E. Constant，"通过高能飞秒光束的空间整形控制高次谐波产生"，*Opt. Lett.*，第 36 卷，页码 2486–2488，2011 年 7 月。[52] W. Boutu、T. Auguste、O. Boyko、I. Sola、P. Balcou、L. Binazon、O. Gobert、H. Merdji、C. Valentin、E. Con-stant、E. M´evel 和 B. Carr´e，"平顶激光束中的气体高次谐波产生"，*Phys. Rev.*，第 卷，页 *A* 84, 063406, 2011 码。12 月。[53] C. Hern´andez-Garc´ıa 和 L. Plaja，"解析高次谐波产生中的多次再散射过程"，*Phys.*，第 卷，页 *Rev. A* 93, 023402, 2016 码。2 月。[54] K. Veyrinas、M. Plach、J. Peschel、M. Hoflund、F. Catoire、C. Valentin、P. Smorenburg、H. Dacasa、S. Maclot、C. Guo、H. Wikmark、A. Za¨ır、V. Strelkov、C. Picot、C. Arnold、P. Eng-Johnsson、A. L'Huillier、E. M´evel 和 E. Constant，"通过基频光束的平顶空间整形校正阿秒高次谐波光束的色差"，*New Journal of Physics* 25, 023017, 2023，第卷，页码。2 月。