

Laza fókuszálással gázban keltett magas harmonikusok karakterizálása

DOKTORI ÉRTEKEZÉS TÉZISEI

Szerző:

Nagyillés Balázs

Témavezetők:

Divéki Zsolt

Extreme Light Infrastructure - Attosecond Light Pulse Source

és

Subhendu Kahaly

Extreme Light Infrastructure - Attosecond Light Pulse Source



Szegedi Tudományegyetem, Fizika Doktori Iskola

2025

Bevezetés

A lézer feltalálásával [1] lehetővé vált rövid, koherens fényimpulzusok előállítása, lehetőséget adva az anyagok időben tranziens folyamatainak vizsgálatára. A fényimpulzushosszak folyamatos rövidítésére való törekvés a lézertechnológia fejlődését motiválta [2], hiszen hogy minél rövidebb a fényimpulzus, annál részletesebben és lokalizáltabban tárhatók fel a dinamikai folyamatok [3, 4]. Ez a kutatási irány nemcsak az ultragyors jelenségek mélyebb megértését eredményezte, hanem új lendületet adott az alkalmazott kutatásoknak [5], és innovációkat indított el olyan ipari területeken, ahol a pontos időzítés és a gyors vezérlés kulcsfontosságú [6].

A közeg által biztosított véges spektrális sáv szélesség, valamint a spektrális fázis kezekésének kihívásai alapvető korlátokat szabtak arra, hogy milyen rövid impulzusokat lehet közvetlenül előállítani hagyományos lézerezősítő közegekből. Fejlett rendszerekkel – például Ti:zafír lézerekkel és optikai paraméteres erősítőkkel – tipikusan 5–6 fs körüli minimális impulzushossz érhető el [7, 8]. Néhány optikai ciklusos tartomány eléréséhez a közeli infravörös régióban (közel 2 fs) már utókompressziós technikákra van szükség, amelyekhez a szükséges spektrális kiszélesítést nemlineáris optikai közegben valósítják meg [9–12], majd ezt a fényimpulzus időbeli kompresszálnása követi, amely csörpölt tükrökkel és akuszto-optikai modulátorokkal diszperziókompenzáción keresztül történik. A legújabb fejlesztések közé tartoznak a többutas cellák [13, 14], valamint a kristályokon vagy üveglemezen alapuló kompressziós sémák [15, 16].

A femtoszekundumosnál rövidebb fényimpulzusok keltéséhez szükséges sáv szélesség miatt rövidebb hullámhossz-tartományba kell átlépni, ahol már nem áll rendelkezésre erősítő közeg, valamint posztkompresszálnásnál az intenzitás növelésével a spektrális kiszélesedés telítődik, határt szabva az így elérhető legszélesebb spektrumnak.

Femtosekundumnál rövidebb impulzushossz elérésének érdekében több megközelítés került javaslatra és megvalósításra, ezek közül a magasrendű harmonikus keltés (HHG) bizonyult az egyik legérettebb és kísérletileg leginkább hozzáférhető megközelítésnek [17, 18]. Más irányok – például az ultranagy sávzélességű fény szintézise koherens fázisvezérléssel [19], vagy a plazma wakefield gyorsítókkal hajtott szabad-elektron lézerek (FEL-ek) [20] – szintén ígéretesek, de jellemzően nagyméretű infrastruktúrát és bonyolult kísérleti elrendezéseket igényelnek [21]. Ezzel szemben a HHG labor környezetben is megvalósítható, femto- illetve attosekundumos impulzusok előállítását teszi lehetővé magas tér- és időbeli koherenciával [22–24].

A HHG egy nemlineáris folyamat, amely során intenzív lézermezőben lévő atomok vagy molekulák a fundamentális lézer frekvencia többszöröseit sugározzák ki páros vagy páratlan felharmónikusok formájában, a közeg szimmetriatulajdonságaitól [25] vagy az elektromos tér tulajdonságaitól [26, 27] függően. A spektrum kiterjedhet az extrém ultraibolya (XUV) tartománytól egészen a lágy röntgenig [28–30]. A korai 2000-es években történt áttörések megmutatták, hogy a HHG felhasználható izolált attosekundumos impulzusok [23] vagy impulzussorozatok [22] előállítására, megalapozva ezzel az attosekundumos tudományt, lehetővé téve az elektronok mozgásának vizsgálatát atomokban és molekulákban.

A HHG első kísérleti megfigyelése 1987-ben történt két független kutatócsoport által Chicagóban [31] és a CEA Saclay-ban [32]. A korai kísérletek ritka nemesgázokkal – argonnal, kriptonnal és xenonnal – zajlottak, amelyeket az akkori legfejlettebb lézerek hajtottak: Nd:YAG rendszerek 1064 nm-en [32], KrF excimer lézerek 248 nm-en [33, 34], valamint Ti:zafir lézerek 800 nm-en [34–36]. Az 1990-es évektől kezdve a magasharmonikusokkal kapcsolatos kutatás kiterjedt molekuláris célpontra is [37–39], feltárva a molekuláris pályák és a nukleáris mozgások

szerepét az erős mező dinamikájában. Az attoszekundumos impulzusok egyedülálló képessége, hogy valós időben követhető az elektronikus, vibrációs és szerkezeti dinamika.

Ezt jelentős mérföldkövek követték, például a HHG demonstrációja plazmafelületekről ultra-magas intenzitásokon [40–42], illetve a magas harmonikusok előállítására kristályokból 2010-ben [43–45]. Ez az áttörés új fejezetet nyitott, és rávilágított a kondenzált anyag rendszerek potenciáljára kompakt, hatékony attoszekundumos fényforrásként. A gázokhoz képest a szilárdtestek nagyobb anyagsűrűséget és jobb integrációs lehetőségeket kínálnak a fotonikai technológiákkal, azonban ezen források viselkedése összetettebb tulajdonságokat hordoznak, például interband átmeneteket és sávstruktúra-hatásokat.

A HHG-val létrehozott attoszekundumos impulzusok mára egyszerre erőteljes fényforrása és precíziós diagnosztikai eszközzé váltak, lehetővé téve az alkalmazásukat az ultragyors spektroszkópiától [22, 23, 46, 47] a koherens diffraktív képalkotáson [48, 49], a relativisztikus plazmaoptikán [50–52] át egészen az időfelbontott elektron-dinamikáig. Pierre Agostini, Krausz Ferenc és Anne L’Huillier 2023-as Fizikai Nobel-díjjal való kitüntetése nemcsak a terület érettségét bizonyítja, hanem úttörő munkájuk kiemelkedő jelentőségét is [53–55]. Ezzel párhuzamosan a lézertechnológia is lenyűgöző ütemben fejlődött [56]: mára már elérhető nagy átlagteljesítményű, néhányciklusos impulzusokat előállító források [57], amelyek új lehetőségeket nyitnak meg, ugyanakkor új kihívásokat is teremtenek, hatékony HHG elérése nem egyszerű feladat, átfogó újításokat igényel a metrológia és a diagnosztika területén is.

Célok

Ezen dolgozatban számos olyan attoszekundumos nyalábvonalat mutatok be, amelyek korszerű lézerrendszerekre épülnek. Munkám központi

célja a HHG különböző aspektusainak karakterizálási módszereinek fejlesztése és alkalmazása volt. Nagy csúcsteljesítményű lézerrel, az optimális fázisillesztés elérése érdekében, eltérő kísérleti megközelítéseket vizsgáltam. Az egyik megoldásnál a magas harmonikus keltés rövid közegben, például gáz jet-ben történt, míg a másik megoldásnál hosszú gázcella lett alkalmazva. Egy felhasználói kísérlet keretében ezen két kondíciót vizsgáltam szisztematikusan, összehasonlítva a numerikus modell által megjósolt következtetéseket valós kísérleti körülmények között. [T1]

Az utóbbi időben elérhetővé váltak a több tíz millijoule energiájú, 1 kHz ismétlési frekvencián üzemelő lézerek, például a SYLOS2 lézer. Ezen források olyan körülményeket teremtenek HHG-hez, amelyek már lehetővé teszik a statisztikai átlagolást igénylő alkalmazásokat is. Ezen ismétlési frekvencián pulzáló gázforrások még alkalmazhatóak, így szolgálhatnak generáló közegként vagy céltárgyként is. Egy új típusú, piezo lap mozgatásán alapuló, nagy ismétlési frekvencián működő gázszelep vált elérhetővé, amely a több kilohertzes tartományban is nagy gázsűrűséget ígér, de karakterizálása nem triviális feladat. Céлом szimulációkon és kísérleteken keresztül ezen forrás tér- és időbeli felbontású vizsgálata volt, amelyek új betekintést adtak, hogyan viselkedik a vákuumba jutatott gáz sugár, vagy gáz jet [T2, T3].

Az impulzushossz két optikai ciklus alá csökkenésével, a vivőburkoló fázis (CEP) kulcsfontosságú paraméterré válik HHG szempontjából. Egyik célom az volt, hogy olyan módszert fejlesszek ki, amely a mért felharmonikus spektrumokból képes közvetlenül meghatározni a CEP értéket gépi tanulás segítségével. A koncepciót szimulációkon keresztül a SYLOS lézer által hajtott gázfelharmonikusokon teszteltem.

Végül ezt az elképzelést kiterjesztettem a szilárdtest HHG-re is. A szilárd céltárgyak lehetőséget kínálnak anyagtulajdonságok vizsgálatára, miközben szélessávú felharmonikus sugárzást bocsátanak ki az infravörös-től az ultraibolya tartományig. Az ELI ALPS MIR lézere 1,5 optikai

ciklus hosszúságú impulzusokat biztosít, amelyekkel a megfelelő kristályban keltett harmonikusok erős CEP-érzékenységet mutatnak. A célom az volt, hogy megmérjem ezt a CEP-függést, és megvizsgáljam, vajon a gépi tanulási módszerek alkalmazhatók-e itt is a CEP becslésére, hasonlóan a gázfázisú esethez [T4].

Eredmények

T1 Egy felhasználói kísérlet során, Lundi egyetem kutatóival együttműködve, a magasrendű felharmonikus generálás közeghosszúság- és nyomásfüggését vizsgáltuk. Ennek keretében előkészítettem a nyalábvonalat, és gondoskodtam arról, hogy minden alrendszer optimális körülmények között működjön. Karakterizáltam a generálást végző infravörös impulzus időbeli és térbeli tulajdonságait, valamint megmértem a keletkező extrém ultraviolet (XUV) sugárzás jellemzőit. A választott gázcélpontokra optimalizáltam a generálási körülményeket a fázisillesztés szempontjából, a fókuszsgeometria és a gáznyomás beállításával. Részt vettem a kísérlet során használt gáz cellák tervezésében, valamint teszteltem ezeket kísérleti körülmények között. Az előkészületek részeként előzetes méréseket is végeztem, hogy ellenőrizzem a rendszer stabilitását és teljesítményét. A kísérleti kampány alatt segítettem a felhasználókat a mérésekben, valamint támogattam őket az adatok kiértékelésében és értelmezésében.

Az eredmények megerősítették, hogy a HHG hozama szempontjából egy rövid, nagy nyomású közeg, valamint egy hosszú, alacsony nyomású közeg ekvivalens. Ez a közeghossz-nyomás összefüggés várható hiperbolikus viselkedése tehát igazolást nyert. A modell nem túl érzékeny a lézer intenzitására, amit a mérések is alátámasztottak. Ez különösen fontos, hiszen ennek hiányában a lézernyaláb cellába történő csatolásából adódó energiavesztéséget a különböző cellák között nem lehetett volna

kompenzálni. Megerősítést nyert az XUV-nyaláb profiljának különbsége is a különböző közhosszúságok esetén.

Ezek az eredmények fontosak lehetnek új HHG-nyalábvonalak tervezésekor. Ha a kimenő XUV-nyaláb profiljának minősége kevésbé fontos, mint a nagy fotonfluxus, akkor a rövid, nagy nyomású gázsugarak előnyt jelenthetnek. Ennek megvalósítása egyszerűbb, mint a gázcellás generálás, amely általában hosszabb fókuszálást igényel. Rövid közege használata az alacsonyabb rendelkezésre álló lézere energiáknál is jobb választás lehet. A hosszú gázcellák előnye ezzel szemben a jobb nyalábminőség, a kisebb érzékenység a nyomásingadozásokra, valamint az, hogy stabilabb generáló közeget és így XUV forrást lehet velük kialakítani. Ezen eredmények a [P3]-as publikációban kerültek bemutatásra.

T2 Teljeskörű karakterizálást végeztem a pulzáló piezo gázszelepeken térben és időben felbontva. Ezen gázforrások a SYLOS GHHG Long és a SYLOS GHHG Compact nyalábvonalakon is alkalmazva vannak magasrendű felharmonikus keltési és spektroszkópiai kísérletekben. Az interferometrikus méréshez egy önálló gázkarakterizáló végállomást terveztem és építettem, amely lehetővé tette pontos részecskeszám mérését. Interferenciaképeket szimuláltam le a várható gázsűrűség-eloszlásokhoz, és olyan adatelemző kódot fejlesztettem ki, amely pontos atomsűrűség-profilokat tudott visszanyerni. Az eljárást kísérleti adatokkal hasonlítottam össze, és megbizonyosodtam róla, hogy az eljárás széles körű működési feltételek mellett is alkalmazható. A rendszert úgy terveztem, hogy rugalmas legyen különböző geometriájú fúvókákhoz, például résfúvókákhoz vagy sorban elhelyezett több gázsugárhoz is, ezzel kiterjesztve jövőbeli kísérletek és felhasználói igények számára. Ezen eredmény a [P1]-es publikációban található.

T3 A gáz sugár részecskeszámának térbeli és időbeli eloszlását ellenőriztem magasharmonikus keltéssel. A kísérlethez kötődő HHG szimulációkat futattam le felhasználva az interferometrikus technikával szerzett eredményeket. A szimulációk kiváló egyezést mutattak a mért adatokkal, ezáltal megerősítve a sűrűség meghatározási módszer pontosságát és megbízhatóságát. Ezzel párhuzamosan a keltett plazma fényerejét is vizsgáltam, mint diagnosztikai eszközt a gáznyomás esetleges változásainak monitorozására hosszan tartó működés közben. Ez a megközelítés praktikus, valós idejű monitorozási lehetőséget adott, amely lehetővé teszi a lassú és gyors gázeloszlás változások detektálását a kísérlet megszakítása nélkül. A mért eredmények összevetése a [P1]-es publikációban került bemutatásra.

T4 Annak vizsgálatára, hogy a gépi tanulással magasrendű felharmonikus spektrumokból a lézerforrás vivőburkoló fázisa meghatározható-e, szimulációkat végeztem gázfelharmonikusokra a SYLOS GHHG Long nyalábvonal kísérleti feltételeinek megfelelő körülmények között. Ezután egy gépi tanulási modellt tanítottam be felharmonikus spektrum-CEP párok segítségével. Végül olyan spektrumokon teszteltem a modellt, amelyeket még nem látott a model a tanítás során. Az előrejelzések kis hibával reprodukálták a helyes CEP-értékeket, amely megerősítette a módszer érvényességét. A dolgozat írásakor ilyen kísérletek az ELI ALPS-ban gázfázisú HHG esetében még nem végezhetők el.

A szimulációkon keresztül bemutatott eredményeket ezután szilárdtest magas harmonikusokon keresztül validáltam. Egy dedikált kísérleti berendezést terveztem és építettem, majd végrehajtottam a méréseket. Ez magában foglalta a nyalábvonal beállítását és a HHG optimalizálását

a stabil spektrális adatgyűjtés érdekében. A mért spektrumokat részletesen elemeztem, és gépi tanulási algoritmusokat alkalmaztam a mért spektrumok és a lézer CEP közötti összefüggés feltárására. Az eredmények igazolták a módszer alkalmazhatóságát, és rámutattak arra, hogy ez online diagnosztikai eszközként is használható a CEP monitorozására. Robusztusságának köszönhetően a módszer alkalmazható nagyobb és összetettebb HHG-nyalábvonalakban is, például a SYLOS GHHG Long rendszeren, ahol a valós idejű CEP-követés hozzájárulhat a kísérletek stabilitásához és reprodukálhatóságához. Az eredmények a [P2]-es cikkben kerültek publikálásra.

Közlemények

Saját közlemények

- (P1) **B. Nagyillés**, Z. Diveki, A. Nayak, M. Dumergue, B. Major, K. Varjú, and S. Kahaly, “Time-resolved investigation of a high-repetition-rate gas-jet target for high-harmonic generation,” *Physical Review Applied*, vol. 20, no. 5, p. 054 048, 2023, MTMT: 34434071, IF: 4.4
- (P2) **B. Nagyillés**, G. N. Nagy, B. Kiss, E. Cormier, P. Földi, K. Varjú, S. Kahaly, M. U. Kahaly, and Z. Diveki, “Mir laser cep estimation using machine learning concepts in bulk high harmonic generation,” *Optics Express*, vol. 32, no. 26, p. 46 500, 2024, MTMT: 35670820, IF: 3.3
- (P3) E. Appi, R. Weissenbilder, **B. Nagyillés**, Z. Diveki, J. Peschel, B. Farkas, M. Plach, F. Vismarra, V. Poulain, N. Weber, C. L. Arnold, K. Varjú, S. Kahaly, P. Eng-Johnsson, and A. L’Huillier, “Two phase-matching regimes in high-order harmonic generation,” *Optics Express*, vol. 31, no. 20, p. 31 687, 2023, MTMT: 34393336, IF: 3.3

Egyéb saját közlemények

- (O1) P. Ye, T. Csizmadia, L. G. Oldal, H. N. Gopalakrishna, M. Füle, Z. Filus, **B. Nagyillés**, Z. Divéki, T. Grósz, M. Dumergue, P. Jójárt, I. Seres, Z. Bengery, V. Zuba, Z. Várallyay, B. Major, F. Frassetto, M. Devetta, G. D. Lucarelli, M. Lucchini, B. Moio, S. Stagira, C. Vozzi, L. Poletto, M. Nisoli, D. Charalambidis, S. Kahaly, A. Zaïr, and K. Varjú, “Attosecond pulse generation at eli-alps 100 khz repetition rate beamline,” *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, vol. 53, no. 15, p. 154004, 2020, MTMT: 31421355, IF: 1.5
- (O2) K. Chordiya, V. Despré, **B. Nagyillés**, F. Zeller, Z. Diveki, A. I. Kuleff, and M. U. Kahaly, “Photo-ionization initiated differential ultrafast charge migration: Impacts of molecular symmetries and tautomeric forms,” *Physical Chemistry Chemical Physics*, vol. 25, no. 6, pp. 4472–4480, 2023, MTMT: 33107909, IF: 3.676
- (O3) M. Staněk, O. Hort, L. Jurkovičová, M. Albrecht, O. Finke, **B. Nagyillés**, B. Farkas, T. Csizmadia, T. Grósz, A. Körmöczi, Z. Divéki, and J. Nejdll, “Photoelectric charge from metallic filters: An online xuv pulse energy diagnostics,” *Applied Physics Letters*, vol. 125, no. 9, 2024, MTMT: 35256432, IF: 3.6
- (O4) M. Shirozhan, S. Mondal, T. Grósz, **B. Nagyillés**, B. Farkas, A. Nayak, N. Ahmed, I. Dey, S. C. De Marco, K. Nelissen, M. Kiss, L. G. Oldal, T. Csizmadia, Z. Filus, M. De Marco, S. Madas, M. U. Kahaly, D. Charalambidis, P. Tzallas, E. Appi, R. Weissenbilder, P. Eng-Johnsson, A. L’Huillier, Z. Diveki, B. Major, K. Varjú, and S. Kahaly, “High-repetition-rate attosecond extreme ultraviolet beamlines at eli alps for studying ultrafast phenomena,” *Ultrafast Science*, vol. 4, 2024, MTMT: 35294705, IF: 9.9

- (O5) E. Skantzakis, I. Orfanos, A. Nayak, I. Makos, I. Liontos, E. Vas-sakis, T. Lamprou, V. Tsafas, T. Csizmadia, Z. Diveki, **B. Nagy-illés**, B. Farkas, S. Mukhopadhyay, D. Rajak, S. Madas, M. Upad-hyay Kahaly, S. Kahaly, R. Weissenbilder, P. Eng-Johnsson, E. Appi, A. L’Huillier, G. Sansone, K. Varju, L. A. A. Nikolopou-los, A. Emmanouilidou, P. Tzallas, and D. Charalambidis, “Non-linear extreme ultraviolet applications with attosecond pulses,” in *Progress in Ultrafast Intense Laser Science XVII*. Springer Nature Switzerland, 2024, pp. 1–24, MTMT: 35061801

Előadások, poszter előadások és konferencia közlemények

- (C1) B. Major, B. Farkas, M. Dumergue, K. Kovacs, S. Kuehn, A. L’Huillier, **B. Nagyillés**, P. Rudawski, V. Tosa, P. Tzallas, D. Charalambidis, K. Osvay, G. Sansone, and K. Varjú, “The eli alps research infrastructure: Scaling attosecond pulse generation for a large scale infrastructure,” in *High-Brightness Sources and Light-driven Interactions*, ser. HILAS, OSA, 2018, HW4A.1, MTMT: 27462331
- (C2) **B. Nagyillés** et al., *Eli-alps sylos ghhg beamlines: Optimizing generation conditions for high-power laser pulses*, Poster at Atto VII, Szeged, Hungary, Demonstration of Attosecond beamline, 2019
- (C3) **B. Nagyillés** et al., *High flux high harmonic generation at the sylos long beamline at eli-alps*, Poster at Atto VIII, Orlando, Florida, 2022
- (C4) **B. Nagyillés** et al., *Time resolved characterization of high repetition rate gas jet target for high harmonic generation*, Poster at Atto IX, Jeju, Korea, 2023
- (C5) R. Weissenbilder, E. Appi, J. Peschel, **B. Nagyillés**, S. Carlström, Z. Divéki, B. Farkas, M. Plach, K. Varjú, S. Kahaly, C. L. Arnold, P. Eng-Johnsson, and A. L’Huillier, “Hyperbolic trend in optimization of high-order harmonic generation in gases,” in *2023 Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO)*, 2023, pp. 1–2, MTMT: 34434143
- (C6) **B. Nagyillés** et al., *Mir laser cep estimation using machine learning concepts in bulk high harmonic generation*, Poster at 5th Attochem Workshop, Tenerife, Spain, 2024

- (C7) **B. Nagyillés**, *Mir laser cep estimation using machine learning concepts in bulk high harmonic generation*, Talk at USTS 2024, Sitges, Spain, 2024
- (C8) **B. Nagyillés**, *Extreme ultraviolet time-resolved photoelectron spectroscopy: Toward the ultimate probe of molecular dynamics*, Poster at XUVTRPES Workshop 2025, Freiburg, 2025
- (C9) **B. Nagyillés**, *The effect of laser pulse duration on the yield of high harmonic generation*, Poster presentation at Atto X, Lund, Sweden, 2025
- (C10) D. István, C. János, T. Szabolcs, T. L. Tamás, S. Tamás, G. P. Prasannan, A. D. Jenő, K. Balázs, D. Zsolt, **B. Nagyillés**, F. Balázs, K. Andor, and B. Ádám, *A sylos2a lézerrendszer és a vákuum szerepe a hullámfront stabilizálásában*, Kvantumelektronika : Szimpózium a hazai kvantumelektronikai kutatások eredményeiről Bibliogr.: 23. p. ; ill. 2025, MTMT: 36329464

Irodalomjegyzék

- [1] A. L. Schawlow and C. H. Townes, “Infrared and optical masers,” *Physical Review*, vol. 112, no. 6, pp. 1940–1949, 1958.
- [2] P. M. W. French, “The generation of ultrashort laser pulses,” *Reports on Progress in Physics*, vol. 58, no. 2, pp. 169–262, 1995.
- [3] A. H. Zewail, “Femtochemistry: atomic-scale dynamics of the chemical bond,” *The Journal of Physical Chemistry A*, vol. 104, no. 24, pp. 5660–5694, 2000.
- [4] F. Krausz and M. Ivanov, “Attosecond physics,” *Reviews of Modern Physics*, vol. 81, no. 1, pp. 163–234, 2009.
- [5] P. B. Corkum and F. Krausz, “Attosecond science,” *Nature Physics*, vol. 3, no. 6, pp. 381–387, 2007.
- [6] T. Udem, R. Holzwarth, and T. W. Hänsch, “Optical frequency metrology,” *Nature*, vol. 416, no. 6877, pp. 233–237, 2002.
- [7] A. Apolonski et al., “Controlling the phase evolution of few-cycle light pulses,” *Physical Review Letters*, vol. 85, no. 4, pp. 740–743, 2000.
- [8] R. Ell et al., “Generation of 5-fs pulses and octave-spanning spectra directly from a ti:sapphire laser,” *Optics Letters*, vol. 26, no. 6, p. 373, 2001.
- [9] W. H. Knox, R. L. Fork, M. C. Downer, R. H. Stolen, C. V. Shank, and J. A. Valdmanis, “Optical pulse compression to 8 fs at a 5-khz repetition rate,” *Applied Physics Letters*, vol. 46, no. 12, pp. 1120–1121, 1985.
- [10] M. Nisoli, S. De Silvestri, and O. Svelto, “Generation of high energy 10 fs pulses by a new pulse compression technique,” *Applied Physics Letters*, vol. 68, no. 20, pp. 2793–2795, 1996.
- [11] M. Nisoli et al., “Compression of high-energy laser pulses below 5 fs,” *Optics Letters*, vol. 22, no. 8, p. 522, 1997.

- [12] A. Baltuška, Z. Wei, M. S. Pshenichnikov, and D. A. Wiersma, “Optical pulse compression to 5 fs at a 1-mhz repetition rate,” *Optics Letters*, vol. 22, no. 2, p. 102, 1997.
- [13] J. Schulte, T. Sartorius, J. Weitenberg, A. Vernaleken, and P. Russbuedt, “Non-linear pulse compression in a multi-pass cell,” *Optics Letters*, vol. 41, no. 19, p. 4511, 2016.
- [14] A.-L. Viotti et al., “Multi-pass cells for post-compression of ultrashort laser pulses,” *Optica*, vol. 9, no. 2, p. 197, 2022.
- [15] C. Rolland and P. B. Corkum, “Compression of high-power optical pulses,” *Journal of the Optical Society of America B*, vol. 5, no. 3, p. 641, 1988.
- [16] S. Tóth et al., “Single thin-plate compression of multi-tw laser pulses to 3.9 fs,” *Optics Letters*, vol. 48, no. 1, p. 57, 2022.
- [17] G. Farkas and C. Tóth, “Proposal for attosecond light pulse generation using laser induced multiple-harmonic conversion processes in rare gases,” *Physics Letters A*, vol. 168, no. 5–6, pp. 447–450, 1992.
- [18] P. B. Corkum, N. H. Burnett, and M. Y. Ivanov, “Subfemtosecond pulses,” *Optics Letters*, vol. 19, no. 22, p. 1870, 1994.
- [19] H. Alqattan, D. Hui, V. Pervak, and M. T. Hassan, “Attosecond light field synthesis,” *APL Photonics*, vol. 7, no. 4, 2022.
- [20] W. Wang et al., “Free-electron lasing at 27 nanometres based on a laser wake-field accelerator,” *Nature*, vol. 595, no. 7868, pp. 516–520, 2021.
- [21] P. K. Maroju et al., “Complex attosecond waveform synthesis at fel fermi,” *Applied Sciences*, vol. 11, no. 21, p. 9791, 2021.
- [22] P. M. Paul et al., “Observation of a train of attosecond pulses from high harmonic generation,” *Science*, vol. 292, no. 5522, pp. 1689–1692, 2001.
- [23] M. Hentschel et al., “Attosecond metrology,” *Nature*, vol. 414, no. 6863, pp. 509–513, 2001.
- [24] H. Alqattan, D. Hui, V. Pervak, and M. T. Hassan, “Attosecond light field synthesis,” *APL Photonics*, vol. 7, no. 4, p. 041301, 2022.
- [25] J. Chen, S. Yu, Y. Li, S. Wang, and Y. Chen, “Odd–even harmonic emission from asymmetric molecules: Identifying the mechanism *,” *Chinese Physics B*, vol. 26, no. 9, p. 094209, 2017.
- [26] X. He et al., “Interference effects in two-color high-order harmonic generation,” *Physical Review A*, vol. 82, no. 3, p. 033410, 2010.

- [27] R. A. Ganeev et al., “Enhancement of high-order harmonic generation using a two-color pump in plasma plumes,” *Physical Review A*, vol. 80, no. 3, p. 033 845, 2009.
- [28] Z. Chang, A. Rundquist, H. Wang, M. M. Murnane, and H. C. Kapteyn, “Generation of coherent soft x rays at 2.7 nm using high harmonics,” *Physical Review Letters*, vol. 79, no. 16, pp. 2967–2970, 1997.
- [29] P. Tenio, C. Ming-Chang, A. Paul, M. M. M., and K. H. C., “The attosecond nonlinear optics of bright coherent x-ray generation,” *Nature Photonics*, vol. 4, no. 12, pp. 822–832, 1, 2010.
- [30] T. Popmintchev et al., “Bright coherent ultrahigh harmonics in the kev x-ray regime from mid-infrared femtosecond lasers,” *Science*, vol. 336, no. 6086, pp. 1287–1291, 2012.
- [31] A. McPherson et al., “Studies of multiphoton production of vacuum-ultraviolet radiation in the rare gases,” *Journal of the Optical Society of America B*, vol. 4, no. 4, p. 595, 1987.
- [32] M. Ferray, A. L’Huillier, X. F. Li, L. A. Lompre, G. Mainfray, and C. Manus, “Multiple-harmonic conversion of 1064 nm radiation in rare gases,” *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.*, vol. 21, no. 3, 1988.
- [33] N. Sarukura, K. Hata, T. Adachi, R. Nodomi, M. Watanabe, and S. Watanabe, “Coherent soft-x-ray generation by the harmonics of an ultrahigh-power krf laser,” *Physical Review A*, vol. 43, no. 3, pp. 1669–1672, 1991.
- [34] K. Kondo, N. Sarukura, K. Sajiki, and S. Watanabe, “High-order harmonic generation by ultrashort krf and ti:sapphire lasers,” *Physical Review A*, vol. 47, no. 4, R2480–r2483, 1993.
- [35] J. J. Macklin, J. D. Kmetec, and C. L. Gordon, “High-order harmonic generation using intense femtosecond pulses,” *Physical Review Letters*, vol. 70, no. 6, pp. 766–769, 1993.
- [36] D. von der Linde et al., “Generation of high-order harmonics from solid surfaces by intense femtosecond laser pulses,” *Physical Review A*, vol. 52, no. 1, R25–r27, 1995.
- [37] M. Lein, N. Hay, R. Velotta, J. P. Marangos, and P. L. Knight, “Role of the intramolecular phase in high-harmonic generation,” *Physical Review Letters*, vol. 88, no. 18, p. 183 903, 2002.
- [38] J. Itatani et al., “Tomographic imaging of molecular orbitals,” *Nature*, vol. 432, no. 7019, pp. 867–871, 2004.

- [39] N. L. Wagner et al., “Monitoring molecular dynamics using coherent electrons from high harmonic generation,” *Proceedings of the National Academy of Sciences*, vol. 103, no. 36, pp. 13 279–13 285, 2006.
- [40] R. Lichters, J. Meyer-ter-Vehn, and A. Pukhov, “Short-pulse laser harmonics from oscillating plasma surfaces driven at relativistic intensity,” *Physics of Plasmas*, vol. 3, no. 9, pp. 3425–3437, 1996.
- [41] S. Gordienko, A. Pukhov, O. Shorokhov, and T. Baeva, “Relativistic doppler effect: Universal spectra and zeptosecond pulses,” *Physical Review Letters*, vol. 93, no. 11, p. 115 002, 2004.
- [42] B. Dromey et al., “High harmonic generation in the relativistic limit,” *Nature Physics*, vol. 2, no. 7, pp. 456–459, 2006.
- [43] S. Ghimire, A. D. DiChiara, E. Sistrunk, P. Agostini, L. F. DiMauro, and D. A. Reis, “Observation of high-order harmonic generation in a bulk crystal,” *Nature Physics*, vol. 7, no. 2, pp. 138–141, 2010.
- [44] G. Vampa et al., “All-optical reconstruction of crystal band structure,” *Physical Review Letters*, vol. 115, no. 19, 2015.
- [45] G. Ndabashimiye et al., “Solid-state harmonics beyond the atomic limit,” *Nature*, vol. 534, no. 7608, pp. 520–523, 2016.
- [46] E. Goulielmakis et al., “Real-time observation of valence electron motion,” *Nature*, vol. 466, no. 7307, pp. 739–743, 2010.
- [47] M. Holler, F. Schapper, L. Gallmann, and U. Keller, “Attosecond electron wavepacket interference observed by transient absorption,” *Physical Review Letters*, vol. 106, p. 123 601, 2011.
- [48] J. Huijts et al., “Broadband coherent diffractive imaging,” *Nature Photonics*, vol. 14, no. 10, pp. 618–622, 2020.
- [49] D. F. Gardner et al., “Subwavelength coherent imaging of periodic samples using a 13.5 nm tabletop high-harmonic light source,” *Nature Photonics*, vol. 11, no. 4, pp. 259–263, 2017.
- [50] H. Vincenti, S. Monchocé, S. Kahaly, G. Bonnaud, P. Martin, and F. Quéré, “Optical properties of relativistic plasma mirrors,” *Nature Communications*, vol. 5, no. 1, 2014.
- [51] A. Leblanc, S. Monchocé, C. Bourassin-Bouchet, S. Kahaly, and F. Quéré, “Ptychographic measurements of ultrahigh-intensity laser–plasma interactions,” *Nature Physics*, vol. 12, no. 4, pp. 301–305, 2015.

- [52] A. Leblanc, S. Monchocé, H. Vincenti, S. Kahaly, J.-L. Vay, and F. Quéré, “Spatial properties of high-order harmonic beams from plasma mirrors: A ptychographic study,” *Physical Review Letters*, vol. 119, no. 15, 2017.
- [53] A. L’Huillier, “Nobel lecture: The route to attosecond pulses,” *Rev. Mod. Phys.*, vol. 96, p. 030 503, 3 2024.
- [54] F. Krausz, “Nobel lecture: Sub-atomic motions,” *Rev. Mod. Phys.*, vol. 96, p. 030 502, 3 2024.
- [55] P. Agostini, “Nobel lecture: Genesis and applications of attosecond pulse trains,” *Rev. Mod. Phys.*, vol. 96, p. 030 501, 3 2024.
- [56] M. M. Aléonard et al., *Whitebook ELI – Extreme Light Infrastructure; Science and Technology with Ultra-Intense Lasers*, pt. Andreas Thoss, 2011.
- [57] J. Rothhardt, S. Hädrich, J. Delagnes, E. Cormier, and J. Limpert, “High average power near-infrared few-cycle lasers (laser photonics rev. 11(4)/2017),” *Laser and Photonics Reviews*, vol. 11, no. 4, 2017.