

非传统的共振膜超表面高次谐波产生

Pavel Tonkaev,^{1,*} Felix Richter,^{2,*} Ivan Toftul,¹ Maria Antonietta Vincenti,³

Ivan Sinev,² Michael Scalora,⁴ Hatice Altug,^{2,†} and Yuri Kivshar^{1,‡}

¹Nonlinear Physics Center, Research School of Physics, Australian National University, Canberra ACT 2601, Australia

²Institute of Bioengineering, École Polytechnique Fédérale de Lausanne (EPFL), Lausanne 1015, Switzerland

³Department of Information Engineering, University of Brescia, Via Branze 38, 25123 Brescia, Italy

⁴Aviation and Missile Center, U.S. Army CCDC, Redstone Arsenal, Alabama 35898-5000, USA

固体中的高次谐波产生 (HHG) 迅速成为创建紧凑阿托秒光源和探测超快电子动力学的有前景平台。共振超表面对于通过局部场增强提高原本很小的谐波生成效率至关重要, 并且绕过了对相位匹配约束的需求。迄今为止, 人们认为超表面增强的 HHG 遵循适用于非共振体 HHG 的传统整数幂缩放定律。在这里, 我们发现由连续谱中的准束缚态驱动的高度共振超表面打破了这一原则, 表现为生成谐波功率的非整数强度依赖关系。我们通过实验和理论表明, 这些非常规非线性源于高 Q 共振产生的局部场足够强, 可以显著改变更高阶介电率张量对系统有效非线性的贡献。我们的研究结果揭示了如何基于共振场驱动的有效非线性率修改的谐波生成可以重塑我们对纳米尺度上光-物质相互作用的理

I. 介绍

高次谐波产生 (HHG) 是强场物理、超快科学和非线性光学交叉领域的一个基本现象。最初在惰性气体中观察到, 强烈的激光场促使电子与它们的母离子重新碰撞并发射出高能光子。HHG 革新了阿托秒科学, 通过实现产生超短脉冲以及实时探测电子动力学。这一基础机制随后被扩展到了凝聚态物理领域, 在那里 HHG 允许揭示强光场和固体电子结构之间的复杂相互作用。在此背景下, 晶体中的高次谐波产生不仅为更紧凑且可扩展的设备平台提供了路径, 还作为探测晶体对称性、电子拓扑以及超快载流子动力学的高度敏感探针。这些进展依托于一系列材料, 包括非中心对称化合物如 ZnO [1] 和 LiNbO₃ [2], 元素半导体如 Si [3], 以及 III-V 化合物半导体如 InP [4] 和 AlGaAs [5]。这些材料平台使 HHG 应用范围从紧凑型 EUV 源 [6] 到电子带结构的光谱学 [7, 8] 成为可能, 生成谐波的阶数达到了数十个记录高值 [9, 10]。

随着纳米光子的出现, 超表面作为工具提供了对局部电磁场和光学共振前所未有的控制, 这在研究非线性现象及其扩展范围方面被证明特别有用 [11]。一个重要突破是发现束缚态在连续谱中 (BICs) 和准 BICs, 它们通过对称保护或模式叠加来抑制辐射损失从而实现超高品质因子共振 [12]。这些模式已被用来增强各种非线性光学过程 [13–17], 包括高次谐波产生 (HHG) [5, 18, 19], 以在传统块状系统中无法达到的方式进行。例如, 支持准 BIC

模式的钙钛矿超表面在皮秒脉冲激发下展示了高效的五次谐波生成 [20]。相比之下, 由对称性破坏的硅超表面通过皮秒脉冲泵浦显示出偏离预期功率定律的偶数谐波 (第二和第四), 这指向共振对称性破坏和场增强效应 [21]。进一步提升启用 BIC 的超表面的能力, Zograf 等。展示了来自支持 BIC 共振的介电结构产生的奇数谐波直到第 11 阶 [19]。在其他纳米光子系统中观察到 HHG, 包括 GST [22]、CdTe [23]、ZnO [24] 和 ENZ 材料 [25], 反映了朝着超薄和强共振平台的更广泛趋势, 以实现高场光-物质相互作用。然而, 这些现象的解释经常因为与基底的多方面相互作用、热效应以及材料吸收而变得复杂。

自由站立的介电膜为高次谐波生成提供了极简且无基底的平台, 有效缓解了底层基底引入的不对称性。最近的研究表明, 支持法布里-珀罗共振的硅膜至少可以产生第七阶的高次谐波, 其幂律指数与理论预测 [26] 很好地吻合。此外, 由于具有窄共振线宽和出色的机械稳定性, 高度 Q 自由站立的薄膜已被提议用于传感应用中 [27, 28]。

在此, 我们考虑在支持超高品质因子共振的结构化自由站立膜超表面中的高次谐波生成, 这些共振源于 q-BIC 模式。这样的系统独特地集成了强场增强与无基底设计固有的简单性。我们的实验结果表明, 与未图案化的薄膜相比, 高次谐波信号有显著增强, 第七谐波的增强超过了三个数量级。同时伴随着第九谐波的出现, 这仅在共振附近可观察到。值得注意的是, 我们的发现表明谐波功率依赖性明显偏离经典的微扰定律, 表现为非整数幂律缩放。理论模拟揭示了这一现象是由 q-BIC 共振处的强场增强所促成的, 这诱导不同阶次非线性极化之间的复杂相互作用, 否则仅在显著更高的激光通量下才可实现。这些结果确立了自由站立谐振膜作为探测和控制高次谐波生成极

* Contributed equally

† hatice.altug@epfl.ch

‡ yuri.kivshar@anu.edu.au

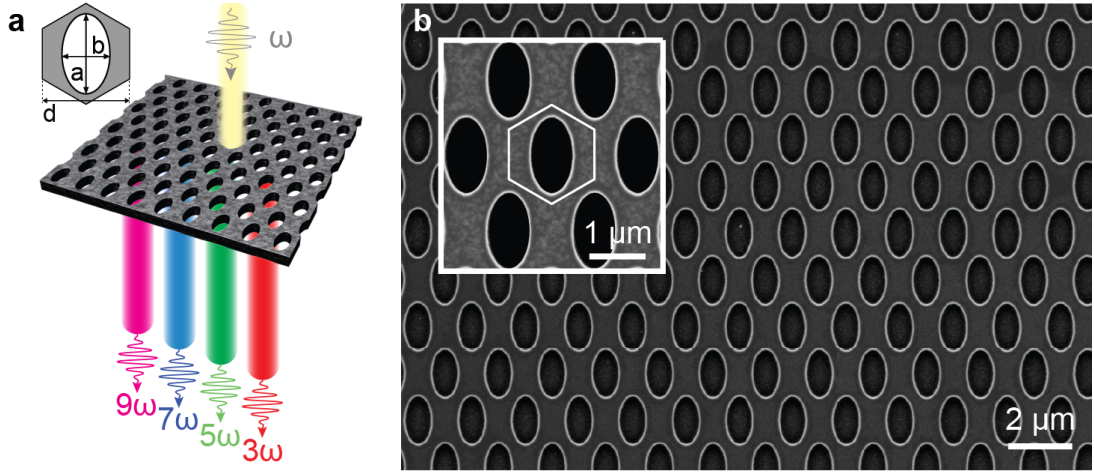


图 1. 用于观察高次谐波产生的介电膜超表面。(a) 奇偶高次谐波从共振膜超表面生成的概念。(b) 超表面及其单元格的 SEM 图像。参数如下 $h=1 \mu\text{m}$, $d=1.69 \mu\text{m}$, $a=0.73 \mu\text{m}$, $b=0.4 \mu\text{m}$ 。

端条件开端的一个有前景的新平台。

II. 超表面设计及光学特性

我们的超表面设计基于一个自由站立的硅膜, 该硅膜上穿有椭圆形孔洞的六边形网格 (图 1)。它使用与晶圆规模兼容的无尘室工艺 (见“方法”) 从一个 $h = 1 \mu\text{m}$ 厚的绝缘体上硅基底制造而成。结构的 SEM 图像如图 1b 所示, 其中插入了一个放大区域, 并标记了单个单元格。

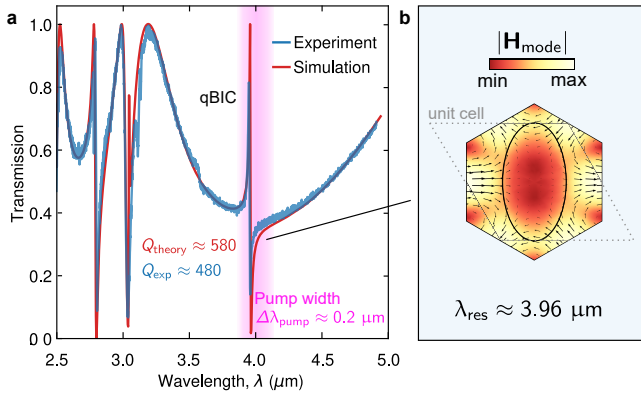


图 2. 表面等离子激元的线性特性。(a) 该超表面的理论和实验线性传输光谱。(b) 准本征态 (qBIC) 共振时单胞内的磁场分布。

我们的设计基于由具有规则六边形晶格圆形孔径 [29, 30] 的膜支持的对称性保护 BIC 模式。通过改变孔径的椭圆度, 这种 BIC 模式可以转变为 q-BIC, 从而表现出狭窄的传输共振现象。我们优化了结构参数, 以使该模式的共振频率与用于非线性实验的激光调谐范围中心相匹

配。最终设计特征为一个规则六边形单元格, 其短对角线长度为 $d = 1.69 \mu\text{m}$, 椭圆孔径轴长分别为 $a = 0.74 \mu\text{m}$ 和 $b = 0.4 \mu\text{m}$, 沿单元格的主要对角线定向 (图 1a,b)。图 2a 展示了计算出的中红外传输光谱 (红色曲线), 揭示了几个显著的共振特征, 包括在 $3.96 \mu\text{m}$ 处的 Fano 形状 q-BIC 共振。图 2b 展示了单个单元内的电场和磁场分布, 揭示了显著的电磁场局域化, 这是实现高效高次谐波产生的重要条件。实验线性透射光谱如图 2a 中蓝色曲线所示, 与理论预测高度吻合 (参见方法部分获取更多实验细节)。这种密切的一致不仅验证了我们的数值模型, 还证明了制造的超表面具有高质量, 通过准 BIC 的模拟 Q 因子为 580 与实验测量值 480 一致。

III. 高谐波产生

A. 实验结果

在非线性实验中, 我们使用一个可调谐的飞秒激光器泵浦超表面, 该激光器工作在 $3.85 \mu\text{m}$ to $4.05 \mu\text{m}$ 窗口, 并捕捉传输中的倍频信号, 在近红外和可见光谱范围内 (请参阅“方法”部分)。图 3a 中, 固定泵浦功率为 20 毫瓦时的三倍频生成 (THG) 光谱作为泵浦波长的函数被绘制出来, 这对应于一个通量为 $\approx 2 \text{ mJ} \cdot \text{cm}^{-2}$ 。当泵浦波长与 q-BIC 谐振去调时, THG 光谱显示出一个由泵脉冲线宽定义的宽带峰, 经历相应的线性光谱位移。相比之下, 当泵浦波长在接近 qBIC 谐振的 ≈ 50 纳米带内时, 从宽带谐波光谱中出现了一个窄峰。这个峰值与三倍频的 qBIC 模式精确对齐, 并显示出显著更强的高次谐波生成 (HHG) 信号。图 3d 中的红色曲线追踪了每个泵浦波长记录的最

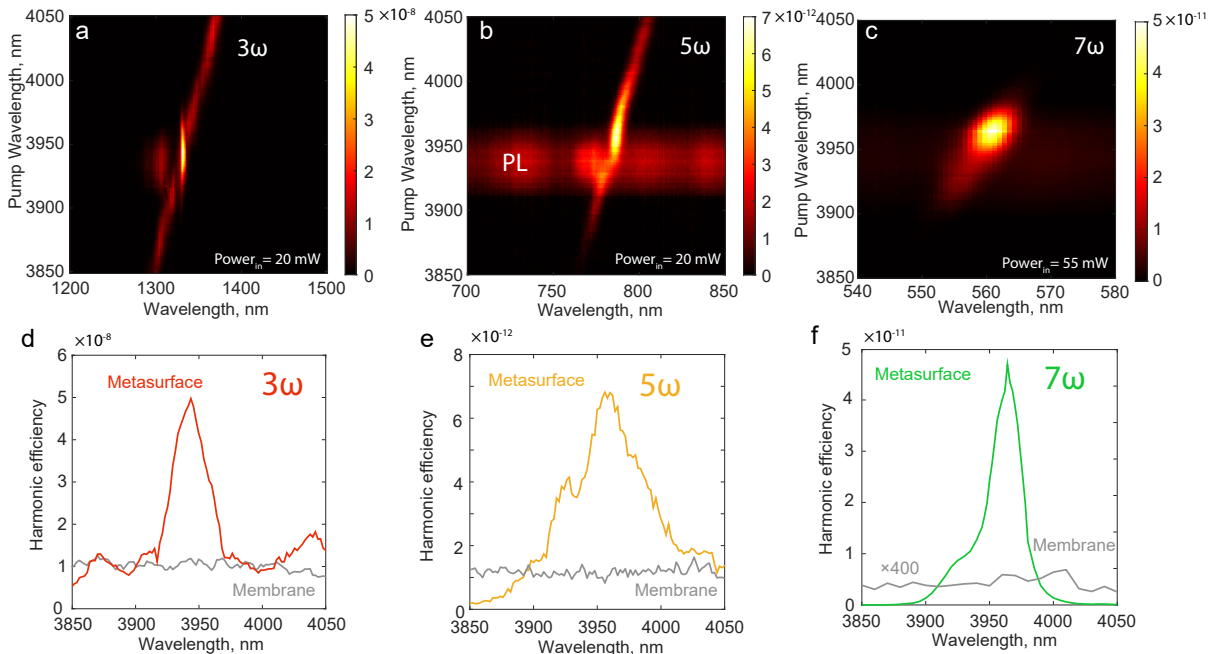


图 3. 实验结果。示例共振高次谐波产生。生成光谱为 (a) 三次, (b) 五次和 (c) 七次谐波在不同波长下的泵浦。三次和五次谐波的泵浦功率约为 20 毫瓦, 而七次谐波的泵浦功率约为 55 毫瓦。对于超表面和无图案膜, 在各种泵浦波长下 (d) 三次, (e) 五次和 (f) 七次谐波的效率。

大三次谐波生成强度, 揭示了非共振三次谐波转换效率保持在大约 10^{-8} 的恒定值, 而共振激发则将效率放大了五倍。为了进行比较, 在未图案化的膜上 (图 3d 中的灰色曲线) 进行了相同的测量, 其中三次谐波生成强度在整个泵浦激光调谐范围内保持不变。

我们进一步将研究扩展到更高阶的奇次谐波。图 3b 展示了在恒定泵浦功率为 20 毫瓦时, 第五次谐波强度与泵浦波长的关系。与三次谐波生成观测结果一致, 远离共振时, 第五次谐波相对均匀, 在准 BIC 共振附近有所增强。图 3e 中展示的峰值第五次谐波转换效率随泵浦波长的变化表明, 超表面 (橙色曲线) 在 q-BIC 共振附近的增强超过了未图案化膜 (灰色曲线) 7 倍以上。值得注意的是, 在除了共振谐波信号增强之外, 测量光谱还揭示了当泵浦波长相匹配时的准 BIC 共振背景发射广泛存在。我们将此背景归因于硅的光致发光, 其通过类似谐波的方式被共振场局域化所增强。

最后, 图 3c 显示了在固定泵功率 55 毫瓦时收集到的七次谐波光谱。它们表明它仅在共振附近表现出来。如图 3f (绿色曲线) 所示提取出的转换效率光谱, 表明在共振条件下它达到 $4.7 \cdot 10^{-11}$, 这甚至高于五次谐波, 因为使用的泵功率更高。这使得与未图案化的膜 (图 3f 中的灰色曲线) 相比增强超过三个数量级。

为了揭示 HHG 信号增强的潜在机制, 我们研究了在

超表面和未图案化的膜中谐波生成的功率依赖性。图 4a 显示了当以 55 mW 的平均功率泵浦 $4.96 \mu\text{m}$ 波长时, 从未图案化膜产生的第三、第五和第七次谐波的光谱。为了清晰起见, 第五和第七次谐波的信号分别乘以缩放因子 400 和 10^5 , 以便进行直接比较。每个谐波对应的功率依赖性绘制在图 4b 中, 并且与预期的扰动幂律标度非常吻合, 斜率完美匹配谐波阶数。

在最大泵浦功率 (55 毫瓦) 下从超表面记录的谐波光谱如图 4c 所示。人们可以立即注意到, 超表面驱动的增强效果对于高阶谐波显著提升, 使得第七次谐波的效率与第五次谐波相当 (为了视觉清晰度添加了强度倍数, 类似于图 4a)。此外, 我们能够从超表面上检测到第九次谐波信号。其转换效率与未图案化的膜上的第七次谐波相当, 而后者并未显示出任何可以被我们的设备检测到的第九次谐波信号。

图 4d 展示了从超表面获得的谐波信号的功率依赖关系。与未图案化的膜形成鲜明对比, 后者遵循传统的缩放定律, 超表面表现出修改后的非整数功率缩放。具体来说, 第三谐波在较高泵浦功率下显示最佳拟合斜率为 2.3, 并且在较低功率下有一个拐点, 而第五谐波则遵循有效斜率为 3 的规律。此外, 第七和第九谐波分别表现为大约 4.6 和 4.5 的斜率。这种非常规行为直接与 qBIC 模式的激发相关联, 我们观察到图案化膜非共振激发具有相同的整数

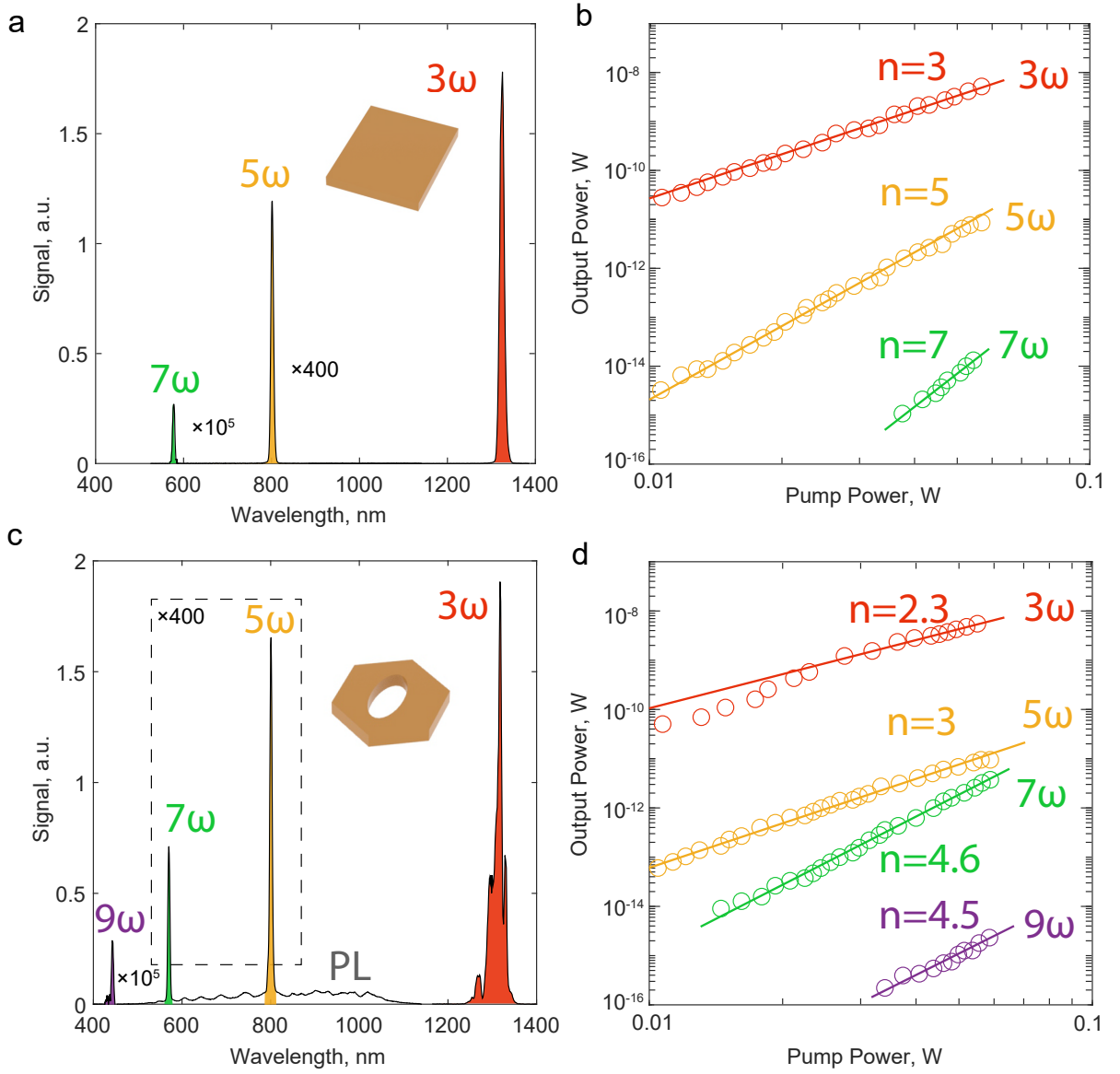


图 4. **实验结果**。来自膜超表面和无图案自由站立膜的高次谐波产生。(a) 谱图和 (b) 来自无图案膜的谐波功率依赖性。泵浦功率为 50 毫瓦时的谱图。三次谐波的泵浦波长为 3.95 微米，五次和七次谐波的泵浦波长为 3.96 微米。(c) 谱图和 (d) 来自共振膜的谐波功率依赖性。

功率缩放关系。此外，我们的实验结果表明，泵浦激光与 qBIC 模式的有效耦合（由激光脉冲的相对线宽和共振定义）对于增强 HHG 现象的观测至关重要。特别是，我们发现对于 Q 因子超过 ~ 1000 的超表面，无法实现对 qBIC 模式的有效耦合，并且即使在共振条件下产生的谐波信号也变得与未图案化膜生成的信号难以区分。

B. 理论结果

为了阐明驱动非传统高次谐波生成趋势的基本物理原理，我们通过求解频率域中的非线性波动方程进行了严格的数值模拟。在模拟中，我们考虑了超表面内的空间场分布，并结合了从非线性极化扰动展开中得出的所有相关非线性源项（关于数值结果的更多细节见第 V 节）。图 5a 显示了在固定 50 毫瓦泵浦功率和泵浦波长与 qBIC 共振匹配 ($3.96\mu\text{m}$) 的情况下，透射的三、五、七、九次谐波信号的计算转换效率。峰值转换效率分别估计为第三谐波的

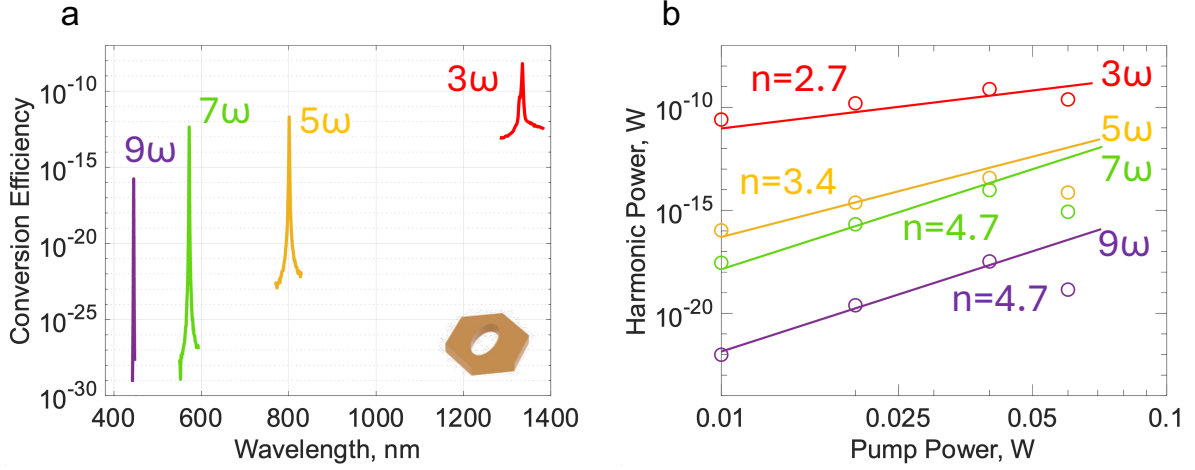


图 5. 理论结果。计算了来自共振膜超表面的高次谐波生成。(a) 泵浦功率为 50 毫瓦时的光谱，以及 (b) 对于不同输入功率下生成谐波的功率依赖性。

$6.4 \cdot 10^{-9}$, 第五谐波的 $2.1 \cdot 10^{-12}$, 第七谐波的 $4.4 \cdot 10^{-13}$ 以及第九谐波的 $1.7 \cdot 10^{-16}$, 与实验数据吻合良好。

然后我们数值估计了输出功率随输入泵浦功率变化的标度关系。如图 5b 所示, 我们的模拟表明即使在这些共振条件下, 微扰框架也能准确捕捉到观测到的趋势。需要注意的是, 重现这些趋势需要包含高达九阶的非线性率, 并且要考虑到泵浦频率处谐波的反馈, 结合了自相位调制和交叉相位调制效应。这些结果强调了观测到的非整数功率标度是由于在 qBIC 共振下场增强强烈, 从而提升了高阶非线性率的贡献, 进而修改了系统的有效非线性。

IV. 结论

我们研究了支持 qBIC 共振的自由站立硅膜超表面中的高次谐波生成。当泵浦光与 qBIC 波长匹配时, 我们展示了 HHG 信号的共振增强。增益因子随着所涉及非线性过程的阶数增长, 并允许观察超出未图案化膜检测极限的第 9 次谐波。

我们首次揭示了由 qBIC 共振驱动的高次谐波生成 (HHG) 偏离常规功率缩放的现象。与无图案膜形成鲜明对比, 后者严格遵循非线性过程的顺序, 对于共振 qBIC 超表面, 我们观察到非整数功率依赖关系。我们的数值分析进一步证明, 一个完整的、泛化的微扰框架, 该框架包含高阶极化率并考虑泵浦频率下的反馈效应以及谐波之间的交叉相位调制, 足以捕捉高度共振超光子系统的所有显著特征。这表明由 qBIC 物理实现的强场增强引发了高次谐波生成的极端状态, 为高 Q 超表面在非线性光学过程中的变革作用提供了深刻的见解。

V. 方法

A. 设备制造

硅 (如果) 膜超表面是通过从绝缘体上的硅 (SOI) 晶片开始制造的: $1 \mu\text{m}$ 器件硅- $1 \mu\text{m}$ 埋藏氧化物 (SiO_2)- $250 \mu\text{m}$ 处理硅。首先, 背面开口通过直接激光写入 (Heidelberg Instruments Maskless Aligner MLA 150, AZ ECI 3027, 3000 rpm) 和基于氟的深度反应离子刻蚀 (DRIE)(SPTS Advanced Plasma System) 在 $3 \mu\text{m}$ SiO_2 (Plasma-Therm Corial D250L PECVD) 上光刻定义。其次, 通过单步电子束光刻 (Raith EBPG5000, PMMA 495k 4wt% in Anisole, 4000 rpm), 然后是 DRIE (Alcatel AMS 200 SE), 对器件硅进行图案化。第三, 通过使用先前定义的 SiO_2 掩模并采用 DRIE Bosch 工艺 (Alcatel AMS 200 SE) 蚀刻处理硅, 打开膜结构。最后, 通过氢氟酸 (HF) 蒸汽蚀刻 (SPTS μEtch) 去除膜下的埋藏氧化层。

B. 红外光谱学

我们使用配备液氮冷却 MCT 检测器的 Bruker Vertex 80v 傅里叶变换光谱仪 (附带 HYPERION 3000 红外显微镜附件) 获得了正常入射下的红外 (IR) 透射光谱。通过焦距为 50 mm 的 ZnSe 透镜激发超表面, 将线性偏振的红外光轻微聚焦到样品表面上。传输光使用另一个配备有额外光阑的 25 mm 透镜收集, 该光阑放置在其后焦平面上。关闭光阑可以限制系统的数值孔径至大约 0.02, 并

因此抑制了从斜入射角度产生的不必要的信号。通过将双刃光阑放置在红外显微镜的共轭像平面中,将信号采集区域限制为膜中央的大约 300 μm 见方的区域。样品室不断用干燥空气吹扫以提供稳定的低湿度环境。

C. 非线性光谱学

样本在中红外范围内从 3.85 μm 到 4.05 μm 被抽入。激光系统由 1030 nm 激光 (Ekspla Femtolux 3) 和光学参量放大器 (来自 Hotlight Systems 的 MIROPA) 组成。该激光的脉冲持续时间为 250 fs, 重复率为 5.14 MHz。光学参数放大器通过在中红外光谱中放大连续波频谱狭窄种子激光产生中红外辐射作为闲频脉冲。中红外辐射使用 CaF_2 透镜聚焦, 在样本上焦距为 40 mm。激光点直径约为 30 μm 。谐波信号通过 Mitutoyo Plan Apo NIR Infinity Corrected Objective X20 NA=0.4 显微物镜收集, 并分别使用 Peltier 冷却光谱仪 Ocean Optics QE Pro (用于可见范围) 和 Ocean Optics NIR Quest (用于近红外) 检测。设置图可以参见图 S4。为了测量产生的谐波的转换效率, 我们使用了 Ophir PD300-IR 功率计和光谱仪。三阶谐波的功率直接用功率计测量, 而其光谱由光谱仪记录。这使我们可以校准光谱仪读数与绝对功率的关系, 尤其是在信号低于功率计检测阈值的情况下。使用这种校准方法, 并结合光谱仪的波长依赖量子效率, 我们根据光谱仪测量结果估计了更高阶谐波的转换效率。

D. 数值建模

我们使用在 COMSOL Multiphysics 中实现的有限元方法进行了数值模拟。我们的方法是求解频域中的非线性

波动方程, 严格考虑了超表面内的空间场分布, 并结合从非线性极化率的微扰展开中得出的所有相关非线性源项。假设硅体在第三、第五、第七和第九阶的非线性电导率为各向同性的, 并且与通过实验-数值椭圆偏振测量程序 [31] 提取的色散曲线进行了整合。随后, 使用原子场缩放方法 [26, 31–33] 将此色散扩展到更高阶。在我们的实现中, 电场被展开为其谐波分量的矢量和; 然而, 我们仅保留那些依赖于基本泵浦光场功率的非线性项, 并故意忽略了只来自高次谐波的贡献。这一假设得到了实验观察到的谐波频率低功率水平的良好验证。相反, 由于硅超表面中的强场局域化, 我们保留下所有对泵浦损耗、自相位调制、谐波之间的交叉相位调制以及每个谐波频率由泵浦驱动产生的高阶效应有贡献的非线性项。

致谢

本工作得到了澳大利亚研究委员会 (资助号 DP210101292) 和国际技术中心印太分部 (ITC IPAC) 通过陆军研究办公室 (合同号 FA520923C0023) 的支持。洛桑联邦理工学院的作者感谢瑞士教育、研究与创新国务秘书处 (SERI), 在合同号码 22.00018 和 22.00081 下提供的经济支持, 这些合同与欧盟地平线欧洲研究与创新计划下的协议 101046424 (TwistedNano) 和 101070700 (MIRAQLS) 中的项目相关。M.A.V. 感谢北约科学促进和平与安全计划 (资助号 5984) 的经济支持。

-
- [1] 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, *Nat. Phys.* **7**, 138 (2011).
 - [2] Y. Zhao, Z. Chen, C. Wang, Y. Yang, and H.-B. Sun, Efficient second- and higher-order harmonic generation from LiNbO_3 metasurfaces, *Nanoscale* **15**, 12926 (2023).
 - [3] H. Liu, C. Guo, G. Vampa, J. L. Zhang, T. Sarmiento, M. Xiao, P. H. Bucksbaum, J. Vučković, S. Fan, and D. A. Reis, Enhanced high-harmonic generation from an all-dielectric metasurface, *Nat. Phys.* **14**, 1006 (2018).
 - [4] M. R. Shcherbakov, H. Zhang, M. Tripepi, G. Sartorello, N. Talisa, A. AlShafey, Z. Fan, J. Twardowski, L. A. Krivitsky, A. I. Kuznetsov, E. Chowdhury, and G. Shvets, Generation of even and odd high harmonics in resonant metasurfaces using single and multiple ultra-intense laser pulses, *Nat. Commun.* **12**, 1 (2021).
 - [5] A. Zalogina, L. Carletti, A. Rudenko, J. V. Moloney, A. Tripathi, H.-C. Lee, I. Shadrivov, H.-G. Park, Y. Kivshar, and S. S. Kruk, High-harmonic generation from a subwavelength dielectric resonator, *Sci. Adv.* **9**, 10.1126/sciadv.adg2655 (2023).

- [6] D. Boukhaoui, A. Mikhneva, S. Idlahcen, J. Houard, T. Godin, L. Guirmand, I. Blum, F. Amrani, F. Gérôme, F. Benabid, D. Gauthier, W. Boutu, H. Merdji, A. Vella, and A. Hideur, High-harmonic generation in solids from a high-energy fiber laser system, *APL Photonics* **10**, [10.1063/5.0244415](#) (2025).
- [7] A. A. Lanin, E. A. Stepanov, A. B. Fedotov, and A. M. Zheltikov, Mapping the electron band structure by intra-band high-harmonic generation in solids, *Optica* **4**, 516 (2017).
- [8] N. Tancogne-Dejean, O. D. Mücke, F. X. Kärtner, and A. Rubio, Impact of the electronic band structure in high-harmonic generation spectra of solids, *Physical Review Letters* **118**, [10.1103/physrevlett.118.087403](#) (2017).
- [9] S. Ghimire, A. D. DiChiara, E. Sistrunk, U. B. Szafruga, P. Agostini, L. F. DiMauro, and D. A. Reis, Redshift in the optical absorption of zno single crystals in the presence of an intense midinfrared laser field, *Physical Review Letters* **107**, [10.1103/physrevlett.107.167407](#) (2011).
- [10] T. Apostolova and B. Obreshkov, High harmonic generation from bulk diamond driven by intense femtosecond laser pulse, *Diamond and Related Materials* **82**, 165 – 172 (2018).
- [11] P. Vabishchevich, P. Vabishchevich, P. Vabishchevich, and Y. Kivshar, Nonlinear photonics with metasurfaces, *Photonics Res.* **11**, B50 (2023).
- [12] K. Koshelev, S. Lepeshov, M. Liu, A. Bogdanov, and Y. Kivshar, Asymmetric Metasurfaces with High- Q Resonances Governed by Bound States in the Continuum, *Phys. Rev. Lett.* **121**, 193903 (2018).
- [13] L. Carletti, K. Koshelev, C. De Angelis, and Y. Kivshar, Giant Nonlinear Response at the Nanoscale Driven by Bound States in the Continuum, *Phys. Rev. Lett.* **121**, 033903 (2018).
- [14] K. Koshelev, Y. Tang, K. Li, D.-Y. Choi, G. Li, and Y. Kivshar, Nonlinear Metasurfaces Governed by Bound States in the Continuum, *ACS Photonics* **6**, 1639 (2019).
- [15] V. Kravtsov, E. Khestanova, F. A. Benimetskiy, T. Ivanova, A. K. Samusev, I. S. Sinev, D. Pidgayko, A. M. Mozharov, I. S. Mukhin, M. S. Lozhkin, Y. V. Kapitonov, A. S. Brichkin, V. D. Kulakovskii, I. A. Shelykh, A. I. Tartakovskii, P. M. Walker, M. S. Skolnick, D. N. Krizhanovskii, and I. V. Iorsh, Nonlinear polaritons in a monolayer semiconductor coupled to optical bound states in the continuum, *Light Sci. Appl.* **9**, 1 (2020).
- [16] K. Koshelev, S. Kruk, E. Melik-Gaykazyan, J.-H. Choi, A. Bogdanov, H.-G. Park, and Y. Kivshar, Subwavelength dielectric resonators for nonlinear nanophotonics, *Science* **367**, 288 (2020).
- [17] J. Gao, M. A. Vincenti, J. A. Frantz, A. Clabeau, X. Qiao, L. Feng, M. Scalora, and N. Litchinitser, Overcoming losses through phase locking in nonlinear quasi-bound states in the continuum metasurfaces, *ACS Applied Nano Materials* **7**, 21445 (2024).
- [18] L. Carletti, S. S. Kruk, A. A. Bogdanov, C. De Angelis, and Y. Kivshar, High-harmonic generation at the nanoscale boosted by bound states in the continuum, *Phys. Rev. Res.* **1**, 023016 (2019).
- [19] G. Zograf, K. Koshelev, A. Zalogina, V. Korolev, R. Hollinger, D.-Y. Choi, M. Zuerch, C. Spielmann, B. Luther-Davies, D. Kartashov, S. V. Makarov, S. S. Kruk, and Y. Kivshar, High-Harmonic Generation from Resonant Dielectric Metasurfaces Empowered by Bound States in the Continuum, *ACS Photonics* **9**, 567 (2022).
- [20] P. Tonkaev, K. Koshelev, M. A. Masharin, S. V. Makarov, S. S. Kruk, and Y. Kivshar, Observation of Enhanced Generation of a Fifth Harmonic from Halide Perovskite Nonlocal Metasurfaces, *ACS Photonics* **10**, 1367 (2023).
- [21] P. Tonkaev, F. Lai, S. Kruk, Q. Song, M. Scalora, K. Koshelev, and Y. Kivshar, Even-order optical harmonics generated from centrosymmetric-material metasurfaces, *Phys. Rev. Res.* **6**, 033073 (2024).
- [22] V. Korolev, A. D. Sinelnik, M. V. Rybin, P. Lazarenko, O. M. Kushchenko, V. Glukhenkaya, S. Kozyukhin, M. Zuerch, C. Spielmann, T. Pertsch, I. Staude, and D. Kartashov, Tunable high-order harmonic generation in GeSbTe nano-films, *Nanophotonics* **13**, 3411 (2024).
- [23] Z. Long, H. Yang, K. Tian, L. He, R. Qin, Z.-Y. Chen, Q. J. Wang, and H. Liang, High-harmonic generation in CdTe with ultra-low pump intensity and high photon flux, *Commun. Phys.* **6**, 1 (2023).
- [24] M. Sivilis, M. Taucer, G. Vampa, K. Johnston, A. Staudte, A. Yu. Naumov, D. M. Villeneuve, C. Ropers, and P. B. Corkum, Tailored semiconductors for high-harmonic optoelectronics, *Science* **357**, 303 (2017).
- [25] Y. Yang, J. Lu, A. Manjavacas, T. S. Luk, H. Liu, K. Kelley, J.-P. Maria, E. L. Runnerstrom, M. B. Sinclair, S. Ghimire, and I. Brener, High-harmonic generation from an epsilon-near-zero material, *Nat. Phys.* **15**, 1022 (2019).
- [26] K. Hallman, S. Stengel, W. Jaffray, F. Belli, M. Ferrera, M. A. Vincenti, D. de Ceglia, Y. Kivshar, N. Akozbek, S. Mukhopadhyay, J. Trull, C. Cojocar, and M. Scalora, High-harmonic generation from subwavelength silicon films, *Nanophotonics* [10.1515/nanoph-2024-0468](#) (2025).
- [27] W. Adi, S. Rosas, A. Beisenova, S. K. Biswas, H. Mei, D. A. Czuplewski, and F. Yesilkoy, Trapping light in air

- with membrane metasurfaces for vibrational strong coupling, *Nat. Commun.* **15**, 1 (2024).
- [28] S. Rosas, W. Adi, A. Beisenova, S. K. Biswas, F. Kuruoglu, F. Kuruoglu, H. Mei, M. A. Kats, D. A. Czaplewski, Y. S. Kivshar, and F. Yesilkoy, Enhanced biochemical sensing with high-Q transmission resonances in free-standing membrane metasurfaces, *Optica* **12**, 178 (2025).
- [29] A. C. Overvig, S. C. Malek, M. J. Carter, S. Shrestha, and N. Yu, Selection rules for quasibound states in the continuum, *Physical Review B* **102**, 035434 (2020).
- [30] D. Shakirova, A. C. Valero, D. Riabov, H. Altug, A. Bogdanov, and T. Weiss, Molecular chiral response enhanced by crosstalking quasi-bound states in the continuum, arXiv preprint arXiv:2505.24563 (2025).
- [31] L. Rodríguez-Suné, J. Trull, N. Akozbek, D. De Ceglia, M. Vincenti, M. Scalora, and C. Cojocaru, Retrieving linear and nonlinear optical dispersions of matter: combined experiment-numerical ellipsometry in silicon, gold and indium tin oxide, *Frontiers in Photonics* **2**, 746341 (2021).
- [32] R. Boyd, *Nonlinear optics*, academic, San Diego, Calif **19922**, 39 (2008).
- [33] K. Hallman, L. Rodríguez-Suné, J. Trull, C. Cojocaru, M. A. Vincenti, N. Akozbek, R. Vilaseca, and M. Scalora, Harmonic generation from silicon membranes at visible and ultraviolet wavelengths, *Optics express* **31**, 792 (2023).