arXiv:2305.00752v1 [physics.atm-clus] 1 May 2023

周期晶体中高次谐波截止的时间控制

Nivash R., Amol R. Holkundkar *, 和 Jayendra N. Bandyopadhyay 印度拉贾斯坦邦皮拉尼比尔拉理工学院物理系，*333031*（日期：2023年5月2日）

本文对合成驱动场作用下固体中的高次谐波产生（HHG）进行了理论研究。驱动场的矢势在决定电子于周期晶体中的布洛赫振荡方面起着关键作用，而这最终会反映在高次谐波谱中。为此，本文研究了 sinc 形驱动场与周期晶体的相互作用。与强度和持续时间相近的标准 $\sin^2$ 包络相比，其矢势典型的时间轮廓能够扩展谐波截止。此外，研究还发现，通过改变所提出的 sinc 形驱动场中引入的延迟参数，可以在时间上控制谐波截止；其缩放关系明确，且取决于所研究周期晶体的能带。此外，还发现，通过系统地改变延迟参数，可以控制截止谐波的发射时间，甚至可以控制谐波截止能量。研究还推导出了使谐波截止能量和谐波产率达到最大的最佳延迟参数。

一、引言

过去三十年间，原子和分子靶产生的高次谐波（HHG）领域取得了长足发展，使人们能够获得阿秒量级、可高度调谐的极紫外（XUV）脉冲 [1]。气体中高次谐波产生的转换效率较低，是主要瓶颈之一；固体中基于布洛赫振荡的高次谐波产生的出现解决了这一问题[2–6]。固体高次谐波产生极具吸引力，因为它有望提供紧凑的XUV辐射源和阿秒光谱学手段 [7–11]。与原子高次谐波产生相比，固体高次谐波产生还有许多独特之处。例如，截止能量随场振幅线性变化 [12], ，并出现多个能量更高的平台 [13], 等。高能导带向价带跃迁会产生多个平台，这可以用准经典模型来理解 [14]。一些研究也致力于拓展能量更高的次级平台 [15–17]。布洛赫电子的带间和带内动力学及相应跃迁，使固体高次谐波产生呈现出丰富的特征。关于固体高次谐波产生的详细介绍，可参阅以下具有开创性的综述文章 [8, 9, 11]。近期报道的固体高次谐波产生领域研究还包括：拓展谐波截止 [18], 、理解实空间碰撞动力学 [19]、研究周期性光学晶格中的高次谐波产生 [20], 、通过固体高次谐波产生实现时间依赖的能带布居成像 [21] 、空位缺陷的影响[22, 23], 、单层和双层石墨烯中的高次谐波产生 [24], ，以及许多其他有趣的研究。

固体中的高次谐波产生可以通过准经典模型来理解 [14], 其中，价带 $k_0 = 0$ 附近的一部分电子跃迁至导带，随后发生带内动力学；在动量空间中，晶体动量的时间演化与驱动矢势的关系为 $k(t) = k_0 + A(t)$。当电子到达布里渊区（BZ）边界时，便可能跃迁至更高的导带，从而使更高导带的能带占据数增加。最终，带间跃迁会导致高能光子的发射，使电子回到较低能带。当电子到达布里渊区边界时，也可能在同一能带内发生布拉格反射；如前所述，如果布里渊区边界处的带隙较小，电子还可以隧穿至相邻导带，这种隧穿被称为 Zener 隧穿，而这些动力学过程统称为布洛赫–Zener 振荡 [25]。与激光脉冲相关的矢势对于逐步填充更高导带起着关键作用。因此，多平台高次谐波产生现象可以得到解释。关于驱动矢势在周期晶体高次谐波产生中的作用，已有大量期刊文章进行了详细研究，例如： [13, 15, 26, 27]。

在这项工作中，我们研究了由 sinc 形驱动场 [28–30]驱动的一维周期晶格势中的高次谐波产生（HHG）。宽广的频率分布和单个相对较强的场振幅，使 sinc 驱动场的场分布在产生和控制高阶谐波方面颇具吸引力[28]。光学频率梳通常用于脉冲整形，原则上可作为生成定制场分布的可行光源 [31–34]。在这项工作中，我们采用合成的 sinc 形驱动场；研究发现，通过改变驱动场中的延迟参数，可以系统地对谐波截止进行时间控制。此外，与标准正弦^{2}包络相比，sinc 形驱动场也呈现出谐波截止频率扩展，并且观察到延迟参数存在一个最佳值。原则上，可以通过在光学平台上移动反射镜组件来控制用于定义驱动场的延迟参数 [28]。

本文结构安排如下：第二节介绍研究的理论和数值方面II，第三节给出结果并进行讨论III，最后在第四节总结IV。

* 电子邮箱：amol@holkundkar.in

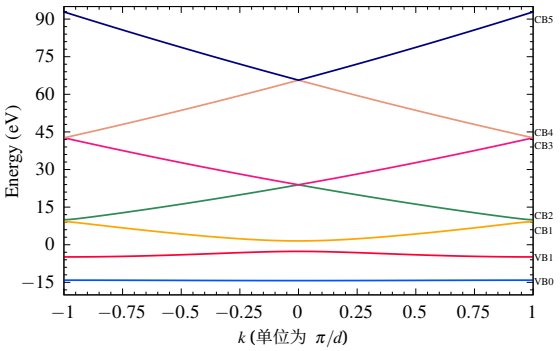

图 1. 计算了周期势 $V(x) = -0.37[1+\cos(2\pi x/d)]$ 原子单位下第一布里渊区的能带结构。各能带标记为“价带”（VB）和“导带”（CB）。CB1 与 VB1 之间的最小带隙能量为 ~ 4.2 eV。

II. 理论与数值方法

我们研究了线偏振激光沿薄晶体的光轴传播、且激光偏振方向位于晶面内时的激光-固体相互作用。稿件中始终使用的一维周期势为 Mathieu 型势，其表达式为 [35]:

$$V(x) = -0.37[1+\cos(2\pi x/d)] \text{ a.u.}, \tag{1}$$

其中 $d = 8$ 原子单位为晶格参数。这类势常用于描述光学晶格 [36,37]。本研究采用了 $N = 60$ 个晶格点，因此实空间中的模拟区域范围为 $-L$ 至 $+L$，其中 $L = Nd/2$。计算得到与该周期势相对应的典型能带结构，如图 1所示。我们已验证，对于 $\sin^2$ 和 sinc 形驱动场，仅纳入 15 条能带即可使结果收敛[38]。不过，图 1仅展示了九条能带，其中 VB 和 CB 分别表示“价带”和“导带”。

下面，我们介绍本研究所用理论与数值方法的细节。

A. 激光脉冲

在高次谐波产生领域，通常采用如下的 $\sin^2$ 场分布:

$$\mathbf{E}_{\sin 2}(t) = F_0 f(t)\sin(\omega_0 t)\hat{x} \tag{2}$$

其中，F_0 为场振幅，$f(t) = \sin^2(\pi t/T)$ 是脉冲持续时间为 T 的包络函数，ω_0 为基频驱动频率，一个光学周期为 $\tau = 2\pi/\omega_0$。在本工作中，我们使用 sinc形驱动脉冲，因此合成电场的时间轮廓写为脉冲表示为 [28]:

$$\mathbf{E}_{\text{sinc}}(t) = F_0 f(t)\left[\frac{\sin[\omega_0(t-t_0-t_d)]}{\omega_0(t-t_0-t_d)} - \frac{\sin[\omega_0(t-t_0)]}{\omega_0(t-t_0)}\right]\hat{x}, \tag{3}$$

其中，t_d 表示脉冲之间的延迟，t_0 引入了一个恒定相位。注意，$t_d = 0$ 对应于脉冲的反相叠加，从而使 $E(t) = 0$。通过调节光学平台上的反射镜组件 [28]，即可轻松调节延迟 t_d。需要指出的是，相应的矢势 $A_{\text{sinc}}(t) \sim -\int E_{\text{sinc}}(t)dt$ 几乎呈 sinc 函数形状，这可能导致显著的非线性电子动力学。图 2(a) 展示了采用一些代表性参数时的场分布 $E_{\text{sinc}}(t)$（其中 $t_d = 0.7\tau$）和 $E_{\sin 2}(t)$。相应矢势的时间轮廓

势也显示在图 2(b) 中。我们采用了脉冲持续时间$T = 5\tau$和恒定相位因子 $t_0 = 2.14\tau$ [，使得脉冲峰值在时间上始终位于中心] ，贯穿整篇稿件。如图 2(b) 所示，sinc 驱动场的矢势几乎呈 sinc 函数 $[\sin(x)/x]$, ，在大部分持续时间内，$A(t)$仅为正值。

B. 动量空间高次谐波产生计算

我们在速度规范下对含时薛定谔方程进行数值求解 [38]。对于特定的晶体准动量值 k和能带指标 n，电子波函数可在布洛赫态基中展开$|\phi_k^n\rangle$。布洛赫态通过求解无场哈密顿量下的单电子定态薛定谔方程得到：$\hat{H}_0 = \hat{p}^2/2 + V(x)$:

$$\hat{H}_0|\phi_k^n\rangle = E_k^n|\phi_k^n\rangle. \tag{4}$$

在位置表象中，布洛赫态可写为:

$$\langle x|\phi_k^n\rangle \equiv \phi_k^n(x) = \sum_{\ell=1}^{N_{\max}} C_{k,\ell}^n \, e^{i(k+2\pi\ell/d)x}, \tag{5}$$

其中，$N_{\max} = 15$ 贯穿全文使用。在评估布洛赫态之后，含时薛定谔方程可求解为

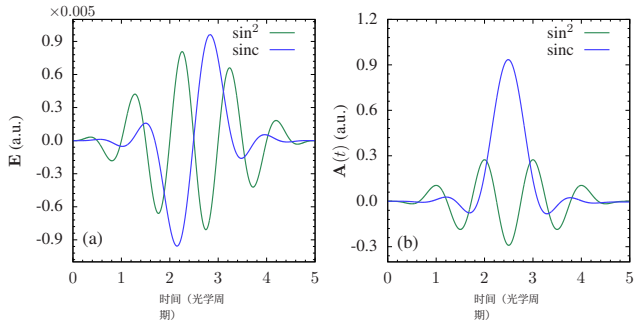

图 2. 展示了 3.2 μm $\sin^2$ 和 sinc 激光脉冲 $[t_d = 0.7\tau]$ 的时域电场轮廓，其峰值强度为 6×10^{11} W cm^{-2} （a），以及相应的矢势（b）。图中还标出了y–轴的缩放参数（a）。

电子波函数 $|\psi_k(t)\rangle$为:

$$i\frac{\partial}{\partial t}|\psi_k(t)\rangle = [\hat{H}_o + \hat{H}_{int}]|\psi_k(t)\rangle, \tag{6}$$

其中，$\hat{H}_{int} = \mathbf{A}(t)\cdot\hat{p}$，且$\mathbf{A}(t)$是在偶极近似下与激光脉冲相关的矢势。此外,

$$|\psi_k(t)\rangle = \sum_{n=1}^{N_{max}} \alpha_k^n(t)\,|\phi_k^n\rangle, \tag{7}$$

其中，$\alpha_k^n(t)$ 是随时间变化的展开系数。将式（7）代入式（6），可得到耦合微分方程：[38]:

$$i\frac{\partial \alpha_k^s(t)}{\partial t} = E_k^s\alpha_k^s(t) + A(t)\sum_{u=1}^{N_{max}} p_k^{su}\alpha_k^u(t),. \tag{8}$$

这里，p_k^{su}是动量算符的矩阵元，可计算为:

$$p_k^{su} = \langle\phi_k^s|\hat{p}|\phi_k^u\rangle = \sum_{\ell=0}^{N_{max}} (k+2\pi\ell/d)\left(C_{k,\ell}^s\right)^* C_{k,\ell}^u. \tag{9}$$

如果考虑电子最初处于能带q，则求解式（8）的初始条件为 $\alpha_k^s(0) = \delta_{qs}$。最后，特定通道$k$的单电子电流密度可计算为:

$$j_{ks}(t) = -\mathrm{Re}[\langle\psi_{ks}|\hat{p} + A(t)|\psi_{ks}\rangle]. \tag{10}$$

在式（10）中，下标“s”表示电子在相互作用之前处于能带s。总电流密度可通过对所有能带求和并在布里渊区上积分得到:

$$j(t) = \sum_{s\in VB}\int j_{ks}(t)dk. \tag{11}$$

在这种基于布洛赫态基的公式表述中，不同k值之间不存在耦合，因此实现起来非常直接。然而，对于基于k空间的带间和带内电流计算，必须依赖Houston态基组 [5]。发射谐波的谱可通过对电流密度进行傅里叶变换来估算，表示为$S(\omega) = \left|\int j(t)e^{i\omega t}dt\right|^2$。频率范围从 ω_1 到 ω_2 的谐波产率Y 计算为：$Y = T^{-1}\int_{\omega_1}^{\omega_2} S(\omega)d\omega$。

III. 结果与讨论

这里，我们首先比较 $\sin^2$ 驱动场和 sinc 形驱动场产生的高次谐波产生光谱，随后探讨延迟参数对高次谐波产生光谱的影响。

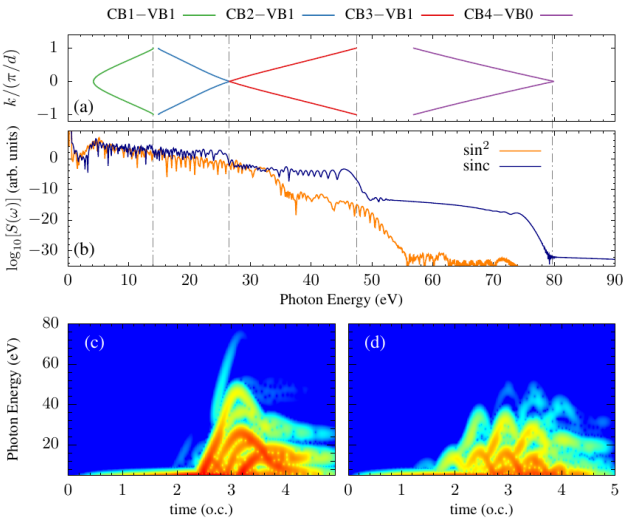

图 3. $\sin^2$ 和 sinc 驱动场的高次谐波产生光谱，参数与图 2(a)相同，见 (b)；同时给出了 sinc 驱动场 (c) 和 $\sin^2$ 驱动场 (d) 的 Gabor 变换。还展示了不同能带之间相应的能量差 (a)，以理解观察到的截止位置。

A. 比较由 sinc 和 $\sin^2$ 驱动的高次谐波产生

在图 3 中，我们比较了通过峰值强度为 6×10^{11} W/cm^2、具有 $\sin^2$ 包络 [式 (2)] 的 3.2 μm 激光脉冲以及具有 $t_d = 0.7\tau$ [式 (3)] 的 sinc 形场分布所获得的谐波谱。可以看出，对于 sinc 驱动场，其谐波截止远远超过使用 $\sin^2$ 驱动场时得到的结果。不同能带的相应能量差也显示在图 3(a) 中，并且 sinc 形驱动场的多平台结构及其相应的谐波截止，可以很容易地映射到能带之间的能量差上。对于 sinc 形驱动场，我们分别在 $\sim$ 14eV、$\sim$ 26 eV、$\sim$ 47 eV 和 $\sim$ 79 eV 处看到 4 个平台，分别对应于 CB1→VB1、CB2→VB1、CB3→VB1 和 CB4→VB0 之间的跃迁 [图 3(a,b)]。sinc 和 $\sin^2$ 形驱动场的 Gabor 变换（时频分析）分别展示在图 3(c) 和 3(d) 中。在时频分析中也可以看到 sinc 驱动场具有更高的谐波截止。此外，如图 3(b) 所示，对于 sinc 驱动场，$\sim$ 47 eV 和$\sim$ 79 eV 附近的谐波呈现出非常平滑的调制。这可以从谐波谱的单轨迹贡献中得到理解，图 3(d) 也证实了这一点。在该图中，较高能量的谐波仅发射一次，因为不存在多条轨迹之间的干涉，从而产生了非常平滑的单轨迹贡献。人们始终寻求单轨迹贡献，因为可以利用此类谐波合成单个阿秒脉冲，而不是阿秒脉冲列 [39]。sinc 驱动场情况下谐波截止的延伸，可归因于与相同 [图 2(b)]相关的矢势。sinc 形矢势没有非常快速的振荡部分；

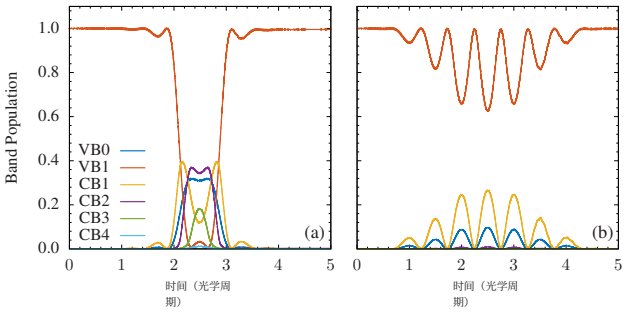

图 4. 不同能带的能带布居随时间的变化 [如图 1] 所示，分别给出了 sinc（a）和 $\sin^2$（a）驱动场的结果。两种情况下，激光参数均与图3相同。

因此，电子在能带中的快速振荡受到抑制。矢势近似的“单向性”使电子在大部分脉冲持续时间内沿同一方向运动。当电子到达布里渊区的边缘时，随后通过 Zeneer 隧穿，它可以沿能带向上跃迁 [26]。

此外，图4展示了使用 sinc 和 $\sin^2$ 驱动场时能带布居的时间演化。 n^{th} 能带的时间依赖布居表示为$\mathscr{P}_n(t) = \int_{\text{布里渊区}} |\alpha_k^n(t)|^2 dk$，因此 $\sum_{n=1}^{N_{max}} \mathscr{P}_n(t) = 1$。激光参数与图3相同。初始时，两种情况下电子均处于 VB1。可以看出，使用 sinc 驱动场时，较高能带被布居，甚至 CB4 能带也有显著布居，从而产生截止至 ~ 79 eV 的谐波。然而，对于 $\sin^2$ 脉冲，CB2 以上的能带几乎没有布居，因此截止能量较低。接下来，我们研究 sinc 驱动场的延迟参数t_d 对谐波截止和谐波产率的影响。

我们观察到，超过 ~ 47 eV 后，谐波效率大幅降低。这是可以理解的，因为电子逐步隧穿进入更高导带的概率会降低。鉴于此，我们现在将重点放在截至 ~ 50 eV 的高次谐波产生光谱上，该范围最大限度地涵盖了从 CB 到 VB1 的跃迁。

B. 高次谐波产生截止的时间控制

与 sinc 脉冲相关的延迟参数 [式（3）]对于确定场分布以及矢势的时间轮廓 [28]至关重要。从实验角度来看，改变延迟参数相当于在光学平台上移动反射镜组件，这引出了一个问题：能否仅通过改变这一延迟参数来控制能带布居，进而控制谐波截止能量和谐波产率？因此，我们通过改变延迟参数t_d 研究了高次谐波产生，并将其与能带布居的时间演化联系起来。

在图5(a) 中，我们展示了 CB3 能带布居的时间演化——对于 $t_d = 0.5\tau$，0.7τ 以及 1τ 情况。这些参数对应的矢势也显示在图中。5(b)。这三种情况下的高次谐波产生光谱如图 5(d) 所示。请注意，在图 5(d) 中，为了更好地呈现视觉效果，我们特意将 0.7τ 和 1τ 对应的高次谐波产生光谱进行了平移。在图 5(e) 中，我们展示了扩展布里渊区 [$|k| > \pi/d$] 中的 VB1 和 CB3 能带，以及两者之间的能量差 [($E_{CB3} - E_{VB1}$) eV]。从图 5(d) 和 (e) 可以看出，三种情况下的谐波截止能量都可对应到从 CB3 能带到 VB1 能带的跃迁。由于此图关注的是由 CB3 到 VB1 的跃迁所导致的谐波截止，因此我们在图 5(c) 中展示了晶体动量 $k(t) = k_0 + A(t)$ 的时间演化，其中 k_0 选自经典轨迹，并满足 $t_d = 0.5\tau$ 时 $k(2\tau) = 0$、$t_d = 0.7\tau$ 时 $k(2.134\tau) = 0$ 以及 $t_d = 1\tau$ 时 $k(2.2\tau) = 0$。预计电子处于 $k = 0$ 处的 CB3 中（CB3 的最低能量处）；然而，电子将如何以及何时跃迁至 CB3，具有很强的不确定性。通过对发射谐波进行时频分析，回溯确定电子被认为在 CB3 中振荡的这些时刻 [参见图 7], 中的经典轨迹计算；同时，结合从 CB3 到 VB1 跃迁并产生谐波截止的适当时刻。在 $t_d = 0.5\tau$、0.7τ和1τ时发射最大谐波能量（截止能量）的时刻，分别以实心圆标记在图 5(c) 的 3τ、3.1τ 和 3.37τ处，这也印证了以下时刻：

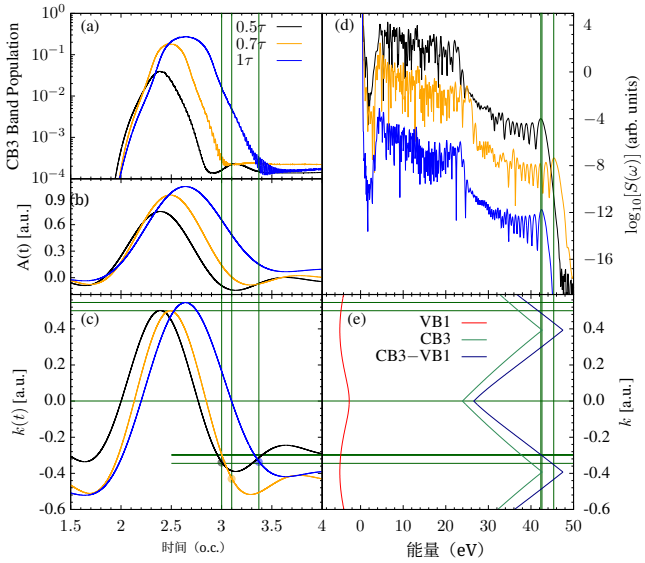

图 5. 对于不同延迟参数的 sinc 驱动场，展示了 CB3 能带布居的时间演化（a）、矢势 $A(t)$（b）、晶体动量 $k(t)$（c）以及高次谐波产生光谱（d）。图中还显示了能带 CB3 和 VB1 及其相应的能量差（e）。为便于展示，$t_d = 0.7\tau$和$t_d = 1\tau$情况下的高次谐波产生光谱分别有意向下移动了 4 和 8 个单位。在（c）中，位于 3τ、3.1τ 和 3.37τ 处的黑色、橙色和蓝色圆圈表示对于不同延迟参数观察到最大谐波能量的时间瞬间。

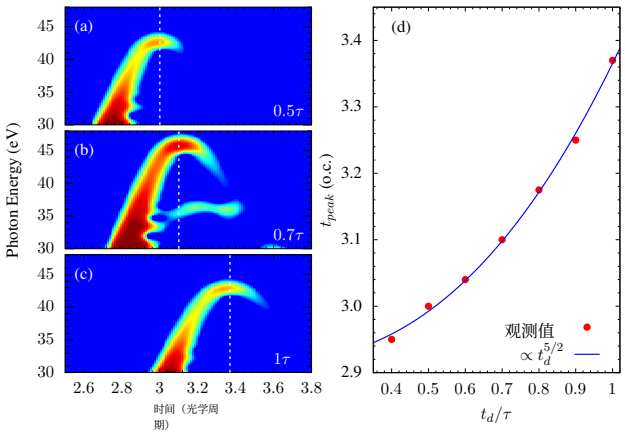

图 6. 给出了延迟参数$t_d = 0.5\tau$（a）、 0.7τ（b）和 1τ（c）对应的高次谐波产生光谱的 Gabor 变换。其他激光条件均与图 5相同。在 3τ（a）、 3.1τ（b）和 3.37τ（c）处的白色竖直虚线表示最高能量谐波发射的时刻。（d）图展示了谐波截止对应时刻t_{peak}随延迟参数的变化，其中红点表示模拟所得的观测值，实线表示 $\propto t^{5/2}$ t_d 标度关系。

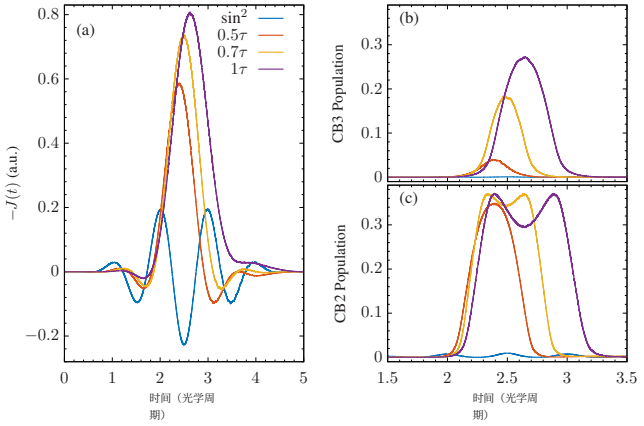

图 7. 总积分电流的时间演化 [方程（11）] （a）展示了 $\sin^2$ 脉冲以及采用时间延迟 0.5τ， 0.7τ和 1τ。还使用不同的激光脉冲形状展示了 CB3（b）和 CB2（c）布居的时间演化。

CB3 能带布居最低，这意味着 CB3 到 VB1 的跃迁将不再发生，因此会观察到骤然截止。为了进一步证实这些发现，在图 6(a,b,c) 中，我们给出了 $t_d = 0.5\tau$、0.7τ和 1τ 这几种情况下的 Gabor 变换。可以观察到，最大谐波能量分别在3τ、3.1τ和 3.37τ时发射。最大能量发射时刻（t_{peak}）随 sinc 脉冲延迟参数t_d 的变化也显示在图 6(d) 中。图 6(d) 中的红点是模拟得到的观测值，实线表示随延迟参数变化的标度关系，结果为 $t_{peak} \propto t^{5/2}$ $_d$ 。这种定义明确的非线性标度关系意味着，只需移动反射镜组件（从实验角度而言），就能精细控制最大谐波能量或截止能量的发射时间。延迟参数 $\propto t^{5/2}$ $_d$ 与这种标度关系是周期晶格及其相应能带结构的特性。例如，在附录 A中，我们针对相同的周期晶格但不同的晶格常数，得到了不同的标度关系。这是因为，能带中的电子驱动过程以及随后向更高能带发生的 Zener 隧穿现象，都强烈依赖于相应的能带结构，以及布里渊区边缘或中心附近的最小带隙。

接下来，在图7中，我们比较了不同 sinc 形脉冲延迟参数下总电流（a）、导带 CB3（b）和 CB2（c）的占据数随时间的演化。由图[2] 7（a）可见，sinc 驱动场能够在晶格中驱动很强的电流，紧密跟随驱动场的矢势。研究对象晶格的光学响应可用极化来理解，其定义为

$$P(t) = \int t_{-\infty} j(t')dt' \text{ [38].}$$

如图 7(a) 所示，对于 $\sin^2$ 驱动场，电流的时间平均值会小于 sinc 驱动场。使用 sinc 驱动场产生的布洛赫振荡所引起的电流，能够在固体中产生非常强的极化响应；这主要是因为电流具有相同的极性。对于 sinc 驱动场，其强电流可从 CB2 和 CB3 能带布居的时间演化来理解，这些布居贡献的谐波可达 ~ 50 eV。图 7(b) 和 (c) 比较了使用 $\sin^2$ 驱动场与 sinc 形驱动场时 CB3 和 CB2 能带布居的时间演化。与峰值场强相近的 sin $\sim 5-35\%$ 左右，而使用具有相近峰值场强的 $\sin^2$ 驱动场时则未观察到这种现象。

C. 使用 sinc 驱动场的高次谐波截止能量与产额

在图 8中，我们进一步探究了延迟参数对高次谐波截止能量和谐波产率的影响。我们展示了 sinc 驱动场在不同延迟参数下的高次谐波产生光谱，以及谐波截止能量 [图 8（b）] 和谐波产率 [图 8（c）] 随延迟参数t_d的变化。在图 8（a）中，我们标出了两个能量范围，其谐波产率展示于图 8（c）中。可以观察到，在 $t_d \sim 0.7\tau$附近存在一个最佳延迟参数，此时截止能量达到最大值。图 8（a）中所标出的两个能量范围内的最大谐波产率也进行了展示，并且 $t_d \sim 0.7\tau$ 被观测为最佳延迟参数。根据图 5（b）、（c）和（e）可以理解这一最佳延迟参数：可以观察到，更强的矢势能够驱动电子越过布里渊区边界（即由于能带结构的周期性，这相当于电子从另一侧到来），因此预期会得到更低的谐波截止。我们在图 5（b）中看到，对于 $t_d = 1\tau$ 情形，矢势振幅较大

与 $t_d = 0.7\tau$ 情形相比，图 5（c）中相应的时间依赖晶体动量 k（t）在 $t_d = 1\tau$情形下会驱动电子从 k（2.2τ）$= 0$运动至最大 k（2.64τ）$= 0.55$，最终需要比另外两种情形经历更长的轨迹，才能在 3.37τ附近重新复合。因此，从原理上讲，这里存在相互竞争的机制；更强的矢势会试图将电子推过布里渊区边界，但在这一过程中，最终会导致电子波函数发生较大的色散，从而降低谐波产率和谐波截止（谐波截止取决于电子在能带中移动的范围）。

从图 8可以看出，使用 sinc 驱动场可以在时间上控制谐波截止。通过系统地调整延迟参数，也可以调节谐波截止能量。对两个示例能量范围内的谐波产率进行控制，进一步体现了 sinc 驱动场的实用性。

IV. 总结

总之，我们研究了 sinc 形驱动场与一维周期势的相互作用，该周期势沿驱动激光脉冲的偏振方向排列。所提出场分布的相关矢势 [参见式（3）]呈现出 sinc 函数的形态，在脉冲持续时间的大部分时间内，其极性保持不变。这种矢势的典型特征驱动电子，使其在相邻能带的最小带隙处高效地发生 Zener 隧穿，跃迁至更高的导带。我们观

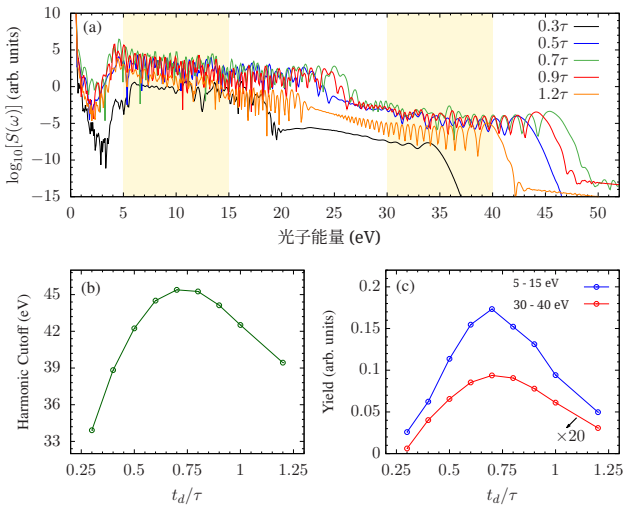

图 8. 展示了不同延迟参数下的谐波谱 (a)，并突出显示了 5 - 15 eV 和 30 - 40 eV 两个能量范围。图中还展示了谐波截止能量 (b) 和谐波产率 (c) 随延迟参数的变化。图 (c) 中的谐波产率对应于图 (a) 中突出显示的两个能量范围，其中 30 - 40 eV 范围内的产率放大了 20 倍，以便更清晰地呈现。

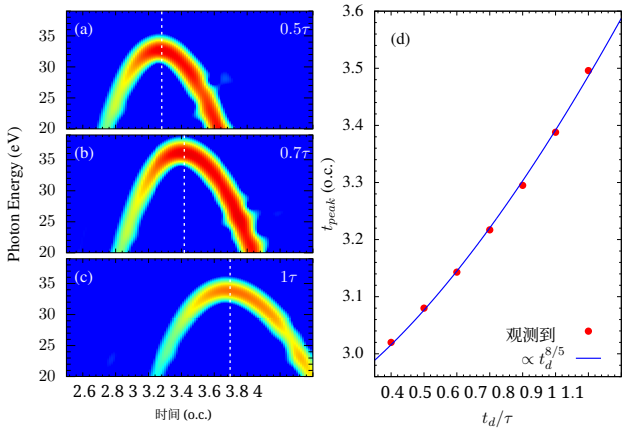

图 A1. 展示了延迟参数 $t_d = 0.5\tau$(a)、 0.7τ(b) 和 1τ(c) 对应的高次谐波产生光谱的 Gabor 变换。其余激光条件均与图 6 相同。 3.08τ(a)、 3.22τ(b) 和 3.49τ(c) 处的白色垂直虚线表示最高能量谐波的发射时刻。图 (d) 展示了谐波截止t_{peak}对应时刻随延迟参数的变化，其中红点表示模拟得到的观测值，实线表示 $\propto t_d^{8/5}$ 标度关系。

观察到，通过控制方程（3）中的延迟参数，可以系统地控制高次谐波截止能量的发射时间。谐波截止能量的发射时间遵循 $t_{peak} \propto t_d^{5/2}$ 的标度关系，其中 t_d 为延迟参数 [参见方程（3）]。

此外，我们还通过改变t_d，研究了几个能量范围内的谐波产率以及谐波截止。我们还观察到一个最优延迟参数，对应于最大的谐波截止能量和产率。作为概念验证的一个代表性案例，我们还采用了势$V(x)$中的另一种晶格参数，例如$d = 6$ 原子单位，并在附录A中展示了结果。随着延迟参数变化，截止能量的发射时间再次呈现出随不同缩放参数 [$t_{peak} \propto t_d^{8/5}$] 而变化的明确定义的趋势。这是预期之中的，因为对于给定的场分布，电子动力学完全取决于描述周期晶格的能带结构，因此缩放参数会反映所研究周期晶体的能带结构。我们将对这一问题进行更深入的分析，留待未来开展。针对不同晶格常数，对发射谐波的啁啾进行详细分析，也将是一项有趣的研究。

致谢

作者谨此感谢印度政府 DST-SERB 为项目 CRG/2020/001020 提供资助。

附录 A

为进一步验证 sinc 形驱动场对截止谐波发射进行时间控制的能力，我们使用相同的 Mathieu 型势进行了晶格参数为 $d = 6$ 原子单位的模拟 [35]。在图 A1(a)、(b) 和 (c)中，我们给出了由 $t_d = 0.5\tau$ (a)、 0.7τ (b) 和 1τ (c) 发射的高次谐波产生光谱的 Gabor 变换。发射最大能量的时间（t_{peak}）作为延迟参数的函数绘制于图 A1(d) 中，并且可以观察到，对于这一特定的晶格参数，$t_{peak} \propto t_d^{8/5}$。

[1] F. Krausz 和 M. Ivanov，《阿秒物理》，《现代物理评论》81，163（2009）。[2] S. Ghimire、A. D. DiChiara、E. Sistrunk、P. Agostini、L. F. Di-Mauro 和 D. A. Reis，《块体晶体中高次谐波产生的观测》，《自然·物理》7，138（2011年）。[3] S. Ghimire、A. D. DiChiara、E. Sistrunk、G. Ndabashimiye、U. B. Szafruga、A. Mohammad、P. Agostini、L. F. DiMauro 和 D. A. Reis，《晶体中高次谐波的产生与传播》，《物理评论 A》85，043836（2012年）。[4] S. Ghimire 和 D. A. Reis，《固体中的高次谐波产生》，《自然·物理》15，10（2019年）。[5] M. Wu、S. Ghimire、D. A. Reis、K. J. Schafer 和 M. B. Gaarde，《固体中布洛赫电子的高次谐波产生》，《物理评论 A》91，043839（2015年）。[6] 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》，《自然·物理》13，345（2016年）。[7] T. T. Luu、M. Garg、S. Y. Kruchinin、A. Moulet、M. T. Hassan 和 E. Goulielmakis，《固体的极紫外高次谐波光谱学》，《自然》521，498（2015年）。[8] S. Y. Kruchinin、F. Krausz 和 V. S. Yakovlev，《周期系统中的强场现象》，《现代物理评论》90，021002（2018年）。[9] G. Vampa 和 T. Brabec，《气体与固体中高次谐波产生的融合及其对阿秒科学的影响》，《物理学杂志 B：原子、分子与光学物理》50，083001（2017年）。[10] I. Floss、C. Lemell、G. Wachter、V. Smejkal、S. A. Sato、X.-M. Tong、K. Yabana 和 J. Burgdörfer，《固体中高次谐波产生的第一性原理多尺度模拟》，《物理评论 A》97，011401（2018年）。[11] L. Yue 和 M. B. Gaarde，《固体中高次谐波产生理论导论：教程》，《美国光学学会杂志 B》39，535（2022年）。[12] X. Liu、X. Zhu、X. Zhang、D. Wang、P. Lan 和 P. Lu，《固态高次谐波产生中截止能量的波长标度》，《光学快报》25，29216（2017年）。[13] T. Ikemachi、Y. Shinohara、T. Sato、J. Yumoto、M. Kuwata-Gonokami 和 K. L. Ishikawa，《周期晶体中高次谐波产生的轨迹分析》，《物理评论 A》95，043416（2017年）。[14] G.-R. Jia、X.-H. Huang 和 X.-B. Bian，《固体高次谐波产生中的非绝热红移》，《光学快报》25，23654（2017年）。[15] M. Wu、D. A. Browne、K. J. Schafer 和 M. B. Gaarde，《固体中高次谐波产生的多能级视角》，《物理评论 A》94，063403（2016年）。[16] G. Ndabashimiye、S. Ghimire、M. Wu、D. A. Browne、K. J. Schafer、M. B. Gaarde 和 D. A. Reis，《超越原子极限的固态谐波》，《自然》534，520（2016年）。[17] J.-B. Li、X. Zhang、S.-J. Yue、H.-M. Wu、B.-T. Hu 和 H.-C. Du，《双色场增强固体高次谐波光谱中的第二平台》，《光学快报》25，18603（2017年）。[18] N. Sun、X. Zhu、L. Li、P. Lan 和 P. Lu，《通过共振电子注入通道扩展高次谐波截止频率》，《物理评论 A》103，053111（2021）。[19] M. M. S.、A. Pattanayak、M. Ivanov 和 G. Dixit，《固体高次谐波产生中实空间再碰撞的直接数值观测》，《物理评论 A》100，043420（2019）。[20] Z. Guan、X.-X. Zhou 和 X.-B. Bian，《少周期激光脉冲驱动周期势产生高次谐波》，《物理评论 A》93，033852（2016），1511.08398。[21] X. Liu、X. Zhu、P. Lan、X. Zhang、D. Wang、Q. Zhang 和 P. Lu，《固体高次谐波产生的时间依赖布居成像》，《物理评论 A》95，063419（2017）。[22] A. Pattanayak、M. M. S. 和 G. Dixit，《空位缺陷对固体高次谐波产生的影响》，《物理评论 A》101，013404（2020）。[23] G. Orlando、M.-I. Lee 和 T.-S. Ho，《无序半导体中高次谐波产生的椭圆率依赖性》，《物理学杂志 B：原子、分子与光学物理》55，185601（2022）。[24] M. S. Mrudul 和 G. Dixit，《单层与双层石墨烯中的高次谐波产生》，物理评论B 103，094308（2021）。[25] B. M. Breid、D. Witthaut 和 H. J. Korsch，《布洛赫–塞纳振荡》，新物理学杂志 8，110（2006）。[26] T.-Y. Du、D. Tang、X.-H. Huang 和 X.-B. Bian，《固体中的多通道高次谐波产生》，《物理评论 A》97，043413（2018）。[27] T.-Y. Du 和 X.-B. Bian，《固体高次谐波产生动力学的准经典分析》，《光学快报》25，151（2017）。[28] R. Rajpoot、A. R. Holkundkar 和 J. N. Bandyopadhyay，《利用 sinc 脉冲调控高次谐波截止频率》，《物理学杂志 B：原子、分子与光学物理》53，205404（2020）。[29] E. G. Neyra、P. Vaveliuk、E. Pisanty、A. S. Maxwell、M. Lewenstein 和 M. F. Ciappina，《超短激光脉冲的主频》，《物理评论 A》103，053124（2021）。[30] E. G. Neyra、D. A. Biasetti、F. Videla、L. Rebón 和 M. F. Ciappina，《超振荡脉冲产生的主频、超带宽与低次谐波》，物理评论研究 4，033254（2022）。[31] S. T. Cundiff 和 J. Ye，《专题讨论：飞秒光频梳》，《现代物理评论》75，325（2003）。[32] G. Krauss、S. Lohss、T. Hanke、A. Sell、S. Eggert、R. Huber 和 A. Leitenstorfer，《利用紧凑型掺铒光纤技术合成单个光周期》，自然光子学 4，33（2009）。[33] S. T. Cundiff 和 A. M. Weiner，《光学任意波形产生》，自然光子学 4，760（2010）。[34] M. A. Soto、M. Alem、M. Amin Shoaie、A. Vedadi、C.-S. Brès、L. Thévenaz 和 T. Schneider，《品质卓越的光学 sinc 形奈奎斯特脉冲》，自然通讯 4，2898（2013）。[35] J. C. Slater，《能带中的一个可解问题》，《物理评论》87，807（1952）。

[36] T. Hartmann、F. Keck、H. J. Korsch 和 S. Mossmann，《布洛赫振荡的动力学》，新物理学杂志**6**，2（2004）。[37] R. Chang、S. Potnis、R. Ramos、C. Zhuang、M. Hallaji、A. Hayat、F. Duque-Gomez、J. E. Sipe 和 A. M. Steinberg，《有效质量起始的观测》，《物理评论快报》**112**，170404（2014）。[38] M. Korbman、S. Y. Kruchinin 和 V. S. Yakovlev，《电介质对强少周期……的极化响应中的量子拍频》

周期激光脉冲，新物理学杂志**15**，013006（2013），1210.2238。[39] I.-L. Liu、P.-C. Li 和 S.-I. Chu，通过电子量子路径的相干控制产生单个超短阿秒激光脉冲，《物理评论 A》**84**，033414（2011）。[40] X. L. Chen、C. W. Cai、Z. Z. Zhang 和 H. Liu，占据位点相对势能对固体高次谐波产生的影响，《国际现代物理学杂志 B》**33**，1950323（2019）。