

强场驱动下 Mott 绝缘体高次谐波的退相干调控*

李惠茹^{1) #} 李博^{1) #} 张睿思¹⁾ 李利^{2) 3)} 胡建功^{4) †} 杜桃园^{1) 3) ‡}

1) (中国地质大学 (武汉) 数学与物理学院, 武汉 430074)

2) (晋城市光机电产业研究院, 晋城 048000)

3) (先进半导体光电器件与系统集成山西省重点实验室, 晋城 048000)

4) (南昌大学信息工程学院, 江西省先进信号处理与智能通信重点实验室, 南昌 330031)

(2025 年 12 月 26 日收到; 2026 年 2 月 8 日收到修改稿)

固体高次谐波产生是探测非平衡量子多体动力学的重要手段, 然而在强关联体系中, 传统的纯态演化方法难以自洽地刻画退相干效应. 本文基于一维半填充 Fermi-Hubbard 模型, 采用含时薛定谔方程与 Lindblad 形式的密度矩阵主方程, 系统研究了强激光场驱动下关联电子体系的非线性光学响应及其退相干调控机制. 首先, 通过对比计算证实, 在无退相干极限下, 两种方法在高次谐波谱及双占据动力学的描述上具有高度一致性. 进一步研究发现, 引入退相干将显著抑制长轨道与短轨道之间的相干干涉, 使谐波谱逐渐呈现出清晰的平台结构与截止特征. 双占据动力学分析表明, 退相干过程通过缩短量子相干寿命, 削弱多体相干对电子跃迁的抑制作用, 从而加速双占据态的生成. 与此同时, 时频分析揭示了退相干的轨道选择性特征, 即优先抑制相位敏感的长轨道辐射, 而保留由短轨道主导的主要辐射贡献. 本研究从微观层面阐明了退相干重塑量子路径干涉的物理机制, 为利用多体相互作用与退相干效应优化强关联体系中的高次谐波光源提供了理论依据.

关键词: 高次谐波产生, Mott 绝缘体, 退相干, 量子主方程**DOI:** 10.7498/aps.75.20251765**CSTR:** 32037.14.aps.75.20251765

1 引言

固体高次谐波产生 (solid-state High-Harmonic Generation, sHHG)^[1-3] 是强激光场驱动下晶体材料中典型的非微扰非线性光学现象, 已成为研究非平衡量子多体动力学的核心探针^[4-10]. 基于单粒子图像的含时薛定谔方程 (Time-dependent Schrödinger Equation, TDSE) 或半导体布洛赫方程 (Semiconductor Bloch Equations, SBEs) 通过引

入唯象的超短退相时间 T_2 (通常 1~4 fs), 成功解释了大量弱关联体系中的谐波平台、截止能量及偏振依赖等实验特征^[11-19]. 然而, TDSE 本质上描述的是纯态相干演化, 无法内在包含电子-电子散射、电子-声子散射等真正的多体退相干过程, 只能通过人为添加衰减项来模拟极化衰减, 这在物理图像上存在根本局限^[11, 13, 20-24].

Fermi-Hubbard 模型作为描述强关联电子体系的最简有效模型, 在 Mott 绝缘体、过渡金属化合物及人工冷原子体系中广泛适用^[25-28]. 近年来,

* 国家自然科学基金 (批准号: 1190433, 12364036)、湖北省自然科学基金 (项目编号: 2023AFB613)、中国地质大学 (武汉) 中央高校基本科研业务费专项资金、江西省自然科学基金 (项目编号: 20232BAB201046)、江西省科技发展计划项目 (编号: 20242BCC32016)、先进半导体光电器件与系统集成山西省重点实验室资助课题 (编号: 2025SZKF11).

同等贡献作者.

† 通信作者. E-mail: jghu@ncu.edu.cn

‡ 通信作者. E-mail: duty710@163.com

一系列工作利用一维或二维扩展 Fermi-Hubbard 模型的含时精确解 (TDSE 与精确对角化) 研究了强关联条件下的高次谐波产生 [29-31], 成功再现了 doublon-holon 复合发射、非整数阶谐波、关联诱导的双平台结构以及对库仑相互作用 U 的极端敏感性 [32-34]. 然而, 这些基于纯态 TDSE 的计算同样无法自洽地包含退相干效应, 为匹配实验光谱仍需外加唯象 T_2 [35,36], 导致无法区分“真实物理退相干”与“人为数值截断”的贡献. 为了克服这一局限, 近年发展出基于密度矩阵形式的含时主方程 (Lindblad 或 Redfield 型) 或非平衡格林函数方法, 在 Fermi-Hubbard 模型框架下显式引入多体退相干通道 [21,37,38]. 这类方法可在开放量子系统语境中自然描述电子-电子、电子-声子以及缺陷/杂质散射诱导的纯退相干 (pure dephasing) 和耗散过程, 从而定量揭示退相时间 T_2 对谐波光谱的调控作用.

本文在一维 Fermi-Hubbard 模型下, 系统比较了纯态 TDSE 与密度矩阵主方程两种方法计算的高次谐波光谱, 重点探讨以下问题: (1) 当不引入任何唯象退相干时, 纯态 TDSE 与密度矩阵主方程两种方法计算的谐波强度是否会一致? (2) 在密度矩阵框架下, 合理的退相干率 (T_2) 取值范围及其对谐波平台高度、截止能量和奇偶次谐波比的影响. 通过上述对比研究, 我们期望探明强关联体系中高次谐波退相干的微观起源与宏观表现, 为构建无需唯象参数的从头多体 HHG 理论奠定基础, 并为未来利用高次谐波原位探测强关联量子材料的非平衡相干-耗散转变提供理论指导.

2 理论方法

2.1 Fermi-Hubbard 模型

本研究选取受周期性边界条件约束的一维费米-哈伯德模型作为理论研究体系, 其中采用半填充条件 (half-filling), 即平均每个晶格位点占据一个粒子 (电子填充度 $n = \frac{N_\uparrow + N_\downarrow}{2L} \times 100\% = 50\%$, L 为晶格位点数, N_\uparrow 和 N_\downarrow 分别为自旋向上与自旋向下电子总数). 为保证体系处于自旋中性状态, 自旋向上与自旋向下电子的数目始终严格相等. 在计算中, 我们采用周期边界条件 $\hat{c}_{j,\sigma} = \hat{c}_{j+L,\sigma}$, 取 $L = N = 12$ (N 为粒子数), 并聚焦于 $S_z = 0$ 子空间.

在无外场条件下, 一维半填充 Fermi-Hubbard

模型的静态哈密顿量可写为最近邻跃迁项与在位相互作用项之和, 其中电子的动能由相邻晶格位点之间的跃迁过程描述, 其哈密顿量形式为:

$$\hat{H}_0 = -t_0 \sum_{\langle i,j \rangle, \sigma} \left(\hat{c}_{i\sigma}^\dagger \hat{c}_{j,\sigma} + h.c. \right) + U \sum_i \hat{n}_{i\uparrow} \hat{n}_{i\downarrow} \quad (1)$$

其中 $\hat{c}_{i\sigma}^\dagger$ ($\hat{c}_{i\sigma}$) 分别表示第 i 个晶格位点上自旋 $\sigma = \uparrow, \downarrow$ 电子的产生 (湮灭) 算符, $\hat{n}_{i\sigma} = \hat{c}_{i\sigma}^\dagger \hat{c}_{i\sigma}$ 为相应的粒子数算符. 记号 $\langle i, j \rangle$ 表征最近邻格位间的跃迁关联. 最近邻格点之间的电子跃迁振幅取为 $t_0 = 0.52$ eV, 以表征 Sr_2CuO_3 的有效能标, U 表示在位电子-电子库仑排斥相互作用 (跃迁可能受已占据位点粒子的阻挡).

在紧束缚近似下, 当体系受到外加强场激光驱动时, 外场主要通过调制电子在晶格间的跃迁过程影响体系动力学, 电子与外场的耦合可由最小耦合原理描述, 即动量算符满足: $\mathbf{p} \rightarrow \mathbf{p} + e\mathbf{A}(t)$. 上述最小耦合可等效地通过 Peierls 替换引入到最近邻跃迁项中, 即跃迁矩阵元获得一个与矢势线积分相关的相位因子 $t_0 \rightarrow t_0 \exp \left[-i \frac{e}{\hbar} \int_{\mathbf{R}_i}^{\mathbf{R}_j} \mathbf{A}(t) \cdot d\mathbf{l} \right]$. 对于一维周期体系和空间均匀的线偏振光场, 上式可简化为时间依赖的 Peierls 相位 $\phi(t) = a_0 A(t)$, 其中 $a_0 = 7.56$ a.u. 为晶格常数, $A(t)$ 为场矢势. 外加驱动场设定为具有 \sin^2 包络的线偏振超短脉冲, 总持续时间为 16 个光学周期, 其中心波长为 $\lambda = 9110$ nm. 在外加强场激光驱动下, 体系的哈密顿算符显式依赖时间, 其形式为 [7,39]:

$$\hat{H}(t) = -t_0 \sum_{\langle i,j \rangle, \sigma} \left(e^{-i\phi(t)} \hat{c}_{i,\sigma}^\dagger \hat{c}_{j,\sigma} + \text{H.c.} \right) + U \sum_i \hat{n}_{i\uparrow} \hat{n}_{i\downarrow} \quad (2)$$

无外场驱动时哈密顿量 \hat{H}_0 在 Fock 基组中对角化, $\hat{H}_0|\alpha\rangle = E_\alpha|\alpha\rangle$. 格位的双占据用 doublon 算子定义: $\hat{N}_d = \sum_{i=1}^L \hat{n}_{i\uparrow} \hat{n}_{i\downarrow}$, 其本征态分辨的期望值 $d_\alpha = \langle \alpha | \hat{N}_d | \alpha \rangle$ 量化了每个本征态的双占据幅值. 引入 Peierls 相位等价于在动量空间中实现 Bloch 加速定理, 即外加光场通过时间依赖的矢势引起电子晶格动量的演化, 从而驱动电子动力学过程. 相应地, 体系的电流算符可由含时哈密顿量对矢势 (或等价地对 Peierls 相位) 的导数严格定义:

$$\hat{J}(t) = -\frac{\partial \hat{H}(t)}{\partial A(t)} = -iat_0 \sum_s \sum_{j=1}^L \left(e^{-i\phi(t)} \hat{c}_{j,s}^\dagger \hat{c}_{j+1,s} - \text{H.c.} \right) \quad (3)$$

2.2 含时演化方法

基于前文给出的含时哈密顿量 (式 2) 与电流算符 (式 3), 对于封闭系统在多体 Fock 基矢表象下数值求解 TDSE: $i\frac{d}{dt}\mathbf{C}(t) = \hat{H}(t)\mathbf{C}(t)$, 其中 $\mathbf{C}(t)$ 为含时的系数. TDSE 的含时演化采用 Crank-Nicolson(CN) 算法^[31,36], 其形式为:

$$\mathbf{C}(t + \Delta t) = \frac{\mathbf{I} - i\hat{H}(t + \Delta t/2)\Delta t/2}{\mathbf{I} + i\hat{H}(t + \Delta t/2)\Delta t/2}\mathbf{C}(t), \quad (4)$$

式中 \mathbf{I} 为单位矩阵, Δt 为时间步长.

密度矩阵可通过系数向量定义为 $\rho(t) = \mathbf{C}(t) \times \mathbf{C}^\dagger(t)$ (封闭系统极限下), 从而实现两种框架的统一表述. 为了探讨开放量子多体系统中的纯退相效应, 本文还将采用 Lindblad 主方程在密度矩阵框架下描述系统的动力学演化, 其形式为 $\dot{\rho}(t) = -i[\hat{H}(t), \rho(t)] + \sum_m \gamma_m (L_m \rho L_m^\dagger - \frac{1}{2} L_m^\dagger L_m \rho)$ ^[40]. 在能量本征表象 $|m\rangle$ 下选取退相干对应的 Lindblad 算符 $L_m = \sqrt{\gamma_m}|m\rangle\langle m|$, 代入可得到矩阵元演化 $\dot{\rho}_{kl}(t) = -i(E_k - E_l)\rho_{kl}(t) + \gamma_k \rho_{kk} \delta_{kl} - \frac{1}{2}(\gamma_k + \gamma_l)\rho_{kl}(t)$. 由此, 对角元满足 $\dot{\rho}_{kk}(t) \approx 0$, 非对角元满足 $\dot{\rho}_{kl}(t) = -i(E_k - E_l)\rho_{kl}(t) - \rho_{kl}(t)/T_2^{kl}$, 其中 $1/T_2^{kl} = (\gamma_k + \gamma_l)/2$. 在近似统一退相时间 T_2 的情形下, 可将动力学方程写为^[41]:

$$\dot{\rho}_{mn}(t) = -i[\hat{H}(t), \rho(t)]_{mn} - \frac{(1 - \delta_{mn})}{T_2} \rho_{mn}(t). \quad (5)$$

对密度矩阵方程的数值求解, 本文采用四阶 Runge-Kutta (RK4) 方法, 其表达式为 $\rho(t + \Delta t) = \rho(t) + \Delta t(k_1 + 2k_2 + 2k_3 + k_4)/6$, 其中 $k_1 - k_4$ 按标准 RK4 步骤计算. 实际计算中, CN 用于闭系 (TDSE) 波函数演化以保证长时稳定性, 而 Lindblad+RK4 用于包含退相干的密度矩阵演化. 观测量的计算根据演化框架分别给出: 在 CN (波函数) 框架下电流期望值取 $J(t) = \mathbf{C}^\dagger(t)\hat{J}(t)\mathbf{C}(t)$, 而在 RK4 (密度矩阵) 框架下取 $J(t) = \text{Tr}[\hat{J}(t)\rho(t)]$. 为抑制有限脉冲宽度与信号截断导致的谱泄漏, 对电流序列 $J(t)$ 乘以汉宁窗进行预处理. 高次谐波谱定义为 $I(\omega) = \log_{10} |\mathcal{FFT}[J(t)]|^2$.

3 结果与讨论

3.1 Liouville-von Neumann 方程与 TDSE 计算的高次谐波对比

在探讨强激光场驱动下一维 Fermi-Hubbard

模型非平衡动力学之前, 有必要首先分析其零场条件下静态电子结构的特性以理解高次谐波产生机制. 图 1 展示了采用精确对角化方法求解无外场哈密顿量 (式 2, 取 $A(t) = 0$) 所得的本征能级谱及其对应的态密度 (density of states, DOS). 如图 1(a) 所示, 将所有本征态按能量升序排列, 能级分布呈现台阶状非均匀特征, 此分立结构源于有限尺寸晶格的量子限制效应. 相应地, 图 1(b) 展示了电子态密度分布曲线. 通过图 1(a) 与图 1(b) 对比可见, 本征能级谱与 DOS 之间存在严谨的几何对应: 在能级谱曲线斜率较平缓 (即能级密集) 的能量区间, 单位能量内本征态数目较多, 从而在 DOS 中形成显著尖峰; 反之, 在能级变化陡峭的区间, 态密度相应较低. 值得强调的是, DOS 分布中的峰谷结构精确反映了强关联体系的能带特征: 高态密度区域对应 Fermi-Hubbard 带中的平带区, 而能谱中央的能量间隙即为强电子-电子相互作用 (库仑势 U) 诱导的 Mott 带隙. 这一静态 Mott 带隙决定了电子从基态向激发态跃迁所需的能量势垒, 从而确立体系的基本能标, 并直接制约强场驱动下双占据 (doublon) 产生的阈值条件以及高次谐波谱的截止

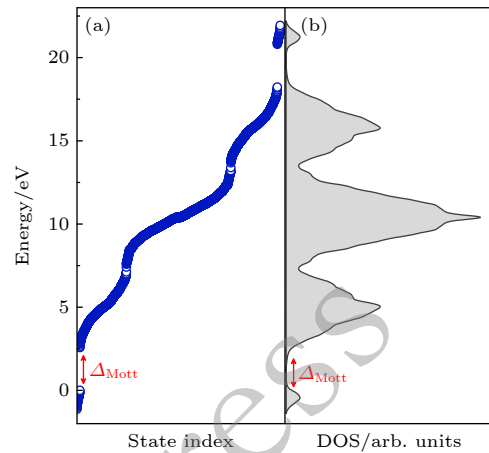


图 1 一维半填充 Fermi-Hubbard 模型的本征能级谱与态密度 (DOS) 的对应关系 (a) 采用精确对角化方法获得的本征能量分布 (蓝色散点), 横轴按态索引升序排列, 清晰显示有限尺寸效应导致的分立能级结构及强关联诱导的 Mott 带隙 Δ_{Mott} ; (b) 对应的电子态密度分布 (黑色实线)

Fig. 1. Correspondence between the eigenenergy spectrum and the density of states (DOS) of the 1D Fermi-Hubbard model. (a) Eigenenergy distribution of the 1D Fermi-Hubbard model calculated using exact diagonalization (blue scatter points), with the horizontal axis arranged in ascending order of state index, clearly revealing the discrete energy level structure induced by finite-size effects and the Mott gap arising from strong electron correlations; (b) corresponding electronic density of states (black solid line).

频率.

在密度矩阵框架下的 Liouville-von Neumann 方程与含时薛定谔方程 (TDSE) 在不引入任何退相干项时应严格等价. 因此, 为验证两种方法在强激光驱动强关联电子体系高次谐波产生 (HHG) 模拟中的数值等价性, 本文首先对比了无退相干情形下 TDSE 与密度矩阵方法计算的高次谐波谱及双占据数 (doublon) 含时演化特性. 在低场强情形 ($F_0 = 10$ MV/cm), 图 2(a) 的高次谐波谱显示, 两种方法给出的谐波分布高度一致, 谐波主要集中于低阶区域, 强度随阶数增加呈指数衰减. 这证实了弱场驱动下两种方法对体系动力学的描述具有极高一致性. 相应地, 图 2(b) 的双占据数含时演化曲线几乎完全重合, 数值稳定在 0.150~0.162 区间, 表明弱场条件下关联激发较弱, 且两种方法对多体关联效应的刻画精度相当. 当场强增大至 $F_0 = 50$ MV/cm 时, 图 2(c) 的谐波谱发生显著变

化: 强度衰减速率明显减缓, 其机制在于强场驱动下电子的非绝热多光子及隧穿跃迁增强, 导致更多能级参与辐射过程. 两种方法计算的谐波谱整体趋势保持一致, 但在高阶区域的强度分布细节上出现细微差异, 该差异主要源于强场下多体量子相干性对数值算法精度的敏感性. 图 2(d) 的双占据数演化显示, 强场驱动下双占据数从初始近零值迅速上升, 最终稳定在 1.5 以上; 两种方法在定性行为上完全一致, 仅在数值波动细节上略有差异. 这表明强场显著增强了 Fermi-Hubbard 模型的关联激发, 且两种方法均能可靠捕获这一关键动力学过程. 总之, 在弱场与强场条件下, TDSE 与密度矩阵方法对 Fermi-Hubbard 体系高次谐波辐射及双占据动力学的描述均表现出良好一致性, 充分验证了数值实现的可靠性. 同时, 场强提升显著增强了体系的非线性光学响应 (表现为谐波谱展宽及平台强度维持) 与关联激发效应 (表现为双占据数大幅增加), 凸显了强场驱动下关联电子体系的独特非平衡动力学特征.

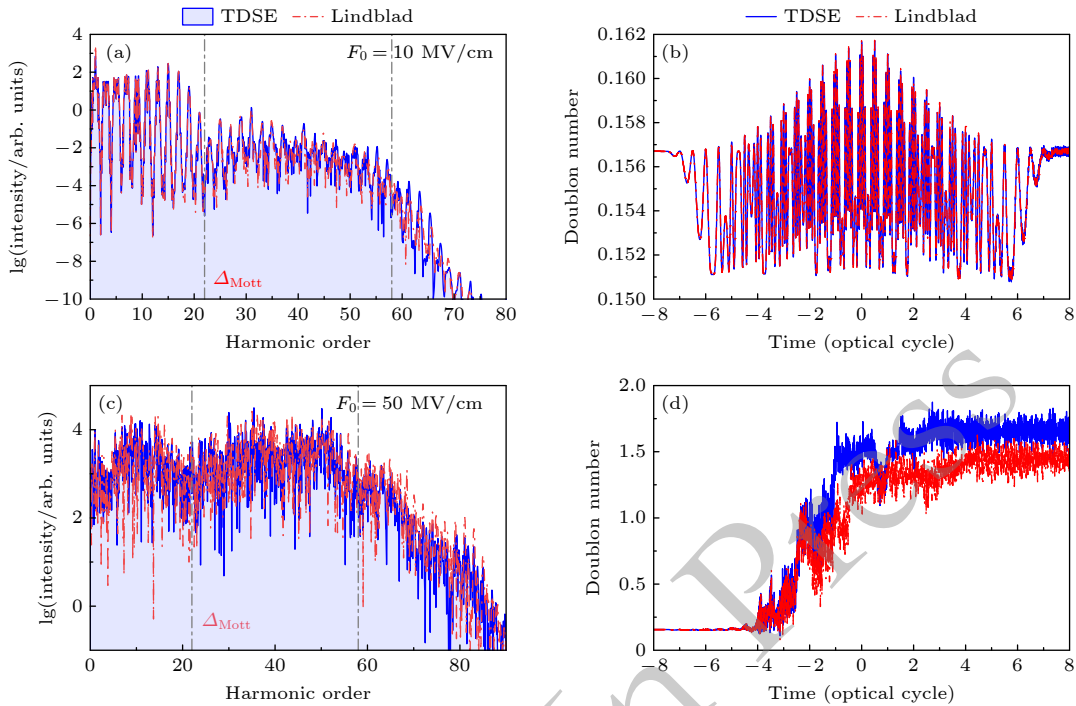


图 2 不同驱动场强下纯态 TDSE 与密度矩阵主方程动力学模拟结果对比. (a, c) 分别为弱场 ($F_0 = 10$ MV/cm) 与强场 ($F_0 = 50$ MV/cm) 驱动下的高次谐波谱, 蓝色实线对应纯态 TDSE 计算结果, 红色虚线对应密度矩阵主方程结果 (无退相干, $T_2 = \infty$); (b, d) 相应场强下的双占据数 (doublon number) 含时演化曲线

Fig. 2. Comparison of dynamical simulations using pure-state TDSE and density-matrix master equation under different driving field strengths. (a, c) High-harmonic generation (HHG) spectra under weak-field ($F_0 = 10$ MV/cm) and strong-field ($F_0 = 50$ MV/cm) driving, respectively; blue solid lines correspond to pure-state TDSE results, and red dashed lines to density-matrix master equation results (without dephasing, $T_2 = \infty$); (b, d) Time evolution of the doublon number under the corresponding field strengths.

3.2 Mott 绝缘体高次谐波辐射

在验证强场驱动下强关联电子体系的高次谐波辐射与双占据动力学特性后,为进一步揭示量子退相干对强关联电子体系非线性光学响应的调控机制,本节采用 Lindblad 形式的 von Neumann 方程求解含退相干项的动力学演化,系统研究了退相干强度对高次谐波谱的影响,结果如图 3 所示. 图 3 展示了不同驱动场强下,考虑强退相干 ($T_2 = 10$ fs, 红色曲线)、中等退相干 ($T_2 = 100$ fs, 黑色曲线) 与无退相干 ($T_2 = \infty$, 蓝色曲线) 情形时 Fermi-Hubbard 模型的高次谐波谱对比. 在低场强区域 ($F_0 = 10$ MV/cm), 如图 3(a) 所示, 无退相干时谐波谱的背景噪声较高, 带间相干跃迁诱导的干扰导致谐波阶次分辨率降低; 引入退相干后, 带间相干信号显著衰减, 谐波峰值更尖锐, 阶次结构清晰, 各阶强度分布更突出. 这一现象表明, 退相干效应通过抑制多体长时相干干扰, 提升了谐波辐射的量子选择性.

当场强增大至 $F_0 = 50$ MV/cm 时, 如图 3(b) 所示, 在无退相干情形下, 谐波谱仍受到长轨道与短轨道辐射之间强相干干涉的影响, 类似于半经典三步模型中不同电子回碰轨道的相干叠加, 导致谐波峰结构难以清晰分辨; 而在引入退相干后, 与较长演化时间相关的长轨道贡献被更为有效地抑制, 轨道间相干干涉显著减弱, 从而使以短轨道主导的奇次谐波峰更加清晰, 高阶区域逐渐呈现出典型的平台-截止结构. 这表明, 在强场驱动条件下, 退相干在一定程度上起到了“轨道筛选”的作用, 增强了

主导辐射量子轨道的相对权重, 从而提高了谐波发射的相干性与可分辨性. 由此可见, 退相干效应能够有效抑制 Fermi-Hubbard 模型高次谐波谱中的带间相干背景, 其调控作用在强场区域尤为显著. 尽管退相干显著提高了 HHG 谱平台的清晰度和谐波信号的信噪比, 但在不同退相干时间下, 谐波的截止位置并未发生显著变化. 这表明, 在本文所选参数范围内, 截止能量主要由体系的内禀能标 (如 Mott 能隙) 以及外加场强共同决定, 而退相干过程主要通过调节辐射效率和相干可分辨性来影响高次谐波谱特征, 而非直接改变电子从外场中获取的最大能量. 这一发现不仅阐明了退相干在强关联体系非线性光学响应中的关键作用, 也为通过可控退相干手段优化高次谐波谱结构及量子路径干涉提供了理论依据.

为进一步探究退相干效应对强关联电子体系非平衡动力学的调控机制, 本文系统分析了不同退相干时间下双占据数 (doublon) 的含时演化特性, 结果如图 4 所示 (激光峰值强度 $F_0 = 50$ MV/cm). 在无退相干情形 ($T_2 = \infty$, 蓝色曲线) 下, 双占据数于激光脉冲后期 (约 $t \approx -4$ 光学周期后) 缓慢上升, 最终饱和于约 1.6; 引入中等退相干 ($T_2 = 100$ fs, 黑色点划线) 时, 演化呈现过渡特征, 启动时刻提前至约 $t \approx -6$ 光学周期, 上升速率明显增加; 而在强退相干 ($T_2 = 10$ fs, 红色曲线) 下, 双占据数于更早时刻 (约 $t \approx -7$ 光学周期后) 快速增长, 斜率显著提升, 最终饱和值接近 1.6. 这一行为源于退相干加速量子态经典化, 削弱多体长程相干对电子

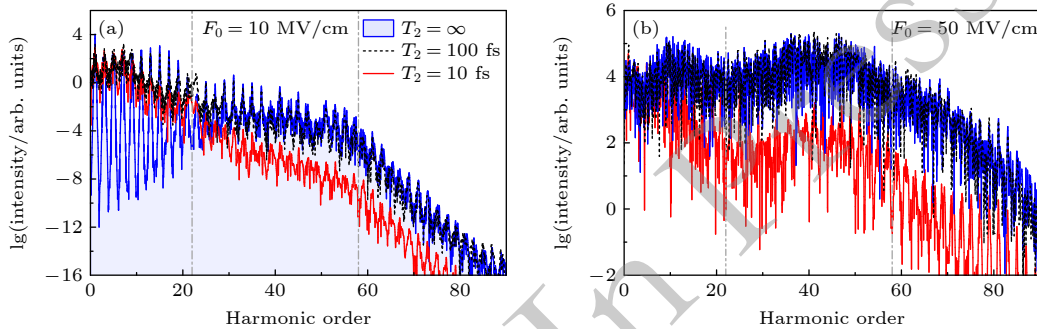


图 3 退相干时间 T_2 对一维 Fermi-Hubbard 模型高次谐波产生的影响 (a) 弱场驱动 ($F_0 = 10$ MV/cm) 下不同退相干强度的谐波谱对比: 无退相干 ($T_2 = \infty$, 蓝色实线)、中等退相干 ($T_2 = 100$ fs, 黑色实线) 以及强退相干 ($T_2 = 10$ fs, 红色实线); (b) 强场驱动 ($F_0 = 50$ MV/cm) 下的对应结果

Fig. 3. Influence of dephasing time T_2 on high-harmonic generation spectra in the one-dimensional Fermi-Hubbard model. (a) Comparison of HHG spectra under weak-field driving ($F_0 = 10$ MV/cm): no dephasing ($T_2 = \infty$, blue solid line), moderate dephasing ($T_2 = 100$ fs, black solid line), and strong dephasing ($T_2 = 10$ fs, red solid line); (b) Corresponding results under strong-field driving ($F_0 = 50$ MV/cm).

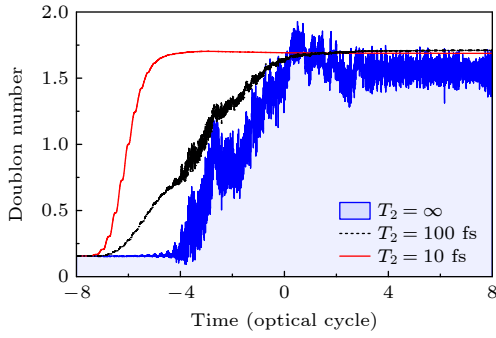


图 4 不同退相时间下双占据数 (doublon number) 的含时演化特性 (激光场峰值强度 $F_0 = 50$ MV/cm). 曲线分别对应无退相干情形 ($T_2 = \infty$, 蓝色实线)、中等退相干强度 ($T_2 = 100$ fs, 黑色实线) 以及强退相干强度 ($T_2 = 10$ fs, 红色实线).
 Fig. 4. Time evolution of the doublon number under different dephasing strengths (laser peak field strength $F_0 = 50$ MV/cm). The curves correspond to no dephasing ($T_2 = \infty$, blue solid line), moderate dephasing ($T_2 = 100$ fs, black solid line), and strong dephasing ($T_2 = 10$ fs, red solid line), respectively.

跃迁的量子抑制效应. 在强场驱动下, 无退相干时高相干性导致双占据激发存在延迟启动; 退相干缩短相干寿命, 促进非绝热隧穿与多光子过程, 从而提前并加速双占据产生. 该结果证实, 退相干强度可精确调控强关联体系的激发动力学时标与速率.

结合图 5 的时频分析, 在相同强场驱动 ($F_0 = 50$ MV/cm) 下, 退相干对 30—60 阶高次谐波的量子轨道贡献表现出显著选择性调控. 无退相干情形 ($T_2 = \infty$) 下, 体系维持完整相干性, 长短轨道均满足相位匹配, 时频谱呈现清晰双轨道干涉条

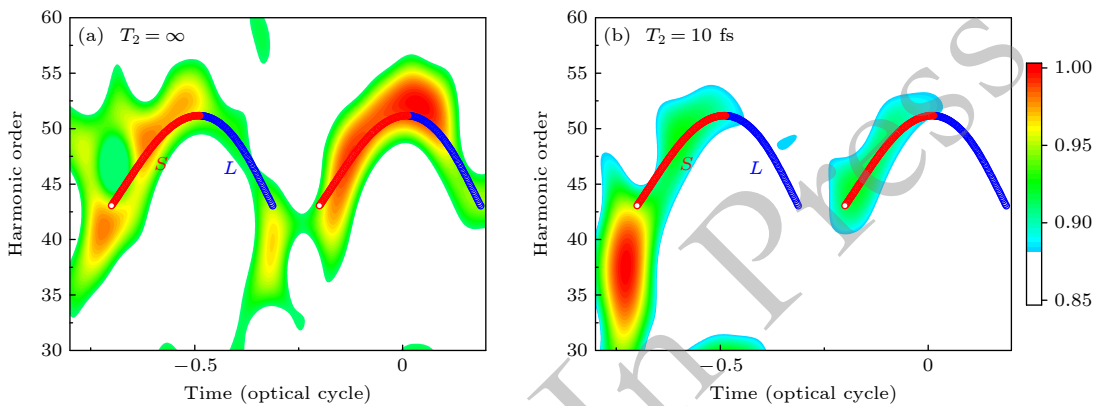


图 5 强场驱动 ($F_0 = 50$ MV/cm) 下 30—60 阶高次谐波的时频分析 (Gabor 变换) (a) 无退相干情形 ($T_2 = \infty$), 时频谱中清晰分辨出对应半经典三步模型的短轨道 (红色曲线) 与长轨道 (蓝色曲线); (b) 引入强退相干 ($T_2 = 10$ fs) 后, 长轨道 (L) 贡献显著抑制, 短轨道 (S) 信号保留并占据主导

Fig. 5. Time-frequency analysis (Gabor transform) of high-order harmonics under strong-field driving ($F_0 = 50$ MV/cm). (a) In the absence of dephasing ($T_2 = \infty$), the time-frequency spectrogram clearly resolves the short (red curve) and long (blue curve) quantum trajectories corresponding to the semiclassical three-step model; (b) Upon introducing strong dephasing ($T_2 = 10$ fs), the long-trajectory contribution is significantly suppressed, while the short-trajectory signal remains dominant.

纹, 与半经典三步模型轨迹高度一致, 验证了轨道分辨框架在强关联 HHG 中的适用性. 引入退相干 ($T_2 = 10$ fs) 后, 长轨道时频信号显著抑制, 短轨道占据主导. 其机制在于长轨道涉及电子-空穴对的延长往返时间, 对环境扰动高度敏感; 退相干缩短相干寿命, 破坏长轨道相位稳定性, 导致辐射贡献衰减, 而短轨道周期短, 相位鲁棒性强, 故得以保留. 这一轨道滤波效应突显了退相干在关联 HHG 中的选择性作用, 为实现单轨道主导的纯净谐波辐射提供了理论支撑. 关于 HHG 谱中奇偶次谐波峰的特征, 如图 3 所示, 引入不同退相时间后, 频谱中仍以奇次谐波为主, 偶次谐波的强度并未显著增强. 这表明, 本文所考虑的退相机制并未破坏体系的时空对称性. 退相干的主要作用是抑制长轨道与短轨道之间的干涉, 进而突出短轨道辐射的时域半周期特征, 导致在频域中奇偶次谐波的强度比更加明显. 上述分析共同表明, 退相干不仅调控强关联体系的激发动力学时标, 还通过轨道选择机制重塑高次谐波量子路径干涉, 为环境工程化实现关联驱动相干光谱学调控提供了关键洞见.

4 结论

本文基于一维 Fermi-Hubbard 模型, 利用含时薛定谔方程 (TDSE) 与 Lindblad 形式的密度矩阵主方程, 系统研究了强关联电子体系在强激光场驱动下的高次谐波产生过程及其退相干调控机制.

主要结论如下: 1、验证了开放量子系统方法在强关联体系中的数值可靠性. 在无退相干 ($T_2 = \infty$) 的极限条件下, 密度矩阵主方程与纯态 TDSE 模拟得到的高次谐波谱及双占据数 (Doublon) 含时演化曲线表现出高度一致性. 研究证实, 强激光场能显著增强 Fermi-Hubbard 模型的关联激发效应, 导致双占据数大幅提升及非线性光学响应增强; 2、揭示了退相干对高次谐波光谱特征的优化作用. 引入有限的退相时间 T_2 能有效抑制由带间长时相干跃迁引起的背景噪声和杂散信号. 特别是在强场驱动下, 退相干效应使得谐波谱的阶次结构更加清晰, 平台与截止特征更为显著, 表明适度的退相干有助于提升谐波辐射的信号质量与量子路径选择性; 3、阐明了退相干加速关联激发的微观动力学机制. 对双占据数的动力学分析发现, 退相干过程通过缩短量子态的相干寿命, 有效削弱了多体长程相干对电子跃迁产生的量子抑制作用. 这加速了量子态的经典化过程, 促使电子更容易发生非绝热隧穿与多光子跃迁, 从而提前触发并加速了双占据的产生; 4、提出了退相干诱导的"轨道滤波"物理图像. 时频分析表明, 退相干对不同量子轨道具有显著的选择性调控能力: 它优先抑制相位对环境扰动极为敏感的长轨道辐射, 而保留往返周期短、相位积累少的短轨道贡献. 这一机制解释了退相干如何通过重塑量子路径干涉特征来实现单轨道主导的洁净谐波发射. 本文的工作厘清了退相干在强关联非平衡动力学中的微观作用机理, 通过调节相干寿命来控制关联激发时标与轨道干涉; 同时也为未来利用多体相互作用 (如调控退相干速率) 优化固态高次谐波光源、探索强关联材料的相干-耗散转变提供了重要的理论依据.

参考文献

- [1] Liu H, Wang Z, Lu R 2026 *Sci. China: Phys., Mech. Astron.* **69** 214231
- [2] Goulielmakis E, Brabec T 2022 *Nature Photonics* **16** 411
- [3] Yu C, Jiang S, Lu R 2019 *Advances in Physics: X* **4** 1562982
- [4] Ghimire S, Reis D A 2019 *Nat. Phys.* **15** 10
- [5] Wu T, Qian C, Wang Z S, Zhang X Y, Yu C, Lu R F 2022 *Acta Photonica Sinica* **51** 0851515
- [6] Liu X, Zhang J, Fang Y K, Yuan G, Li Z, Peng L Y 2025 *Phys. Rev. A* **111** 063103
- [7] Huang K, Du T Y 2023 *Phys. Rev. B* **108** 155125
- [8] Zhang M, Zhang Y, Li J, Hu L, Zhong R, Yue S, Du H 2025 *Phys. Rev. A* **112** 033534
- [9] Chen Y X, Wang G, Li M, Du T Y 2024 *Opt. Express* **32** 14940
- [10] Chen Y X, Wang G, Li M, Du T Y 2026 *Phys. Rev. B* **113** 035110
- [11] Jiang S C, Chen J G, Wei H, Yu C, Lu R F, Lin C D 2018 *Phys. Rev. Lett.* **120** 253201
- [12] Heide C, Kobayashi Y, Johnson A C, Liu F, Heinz T F, Reis D A, Ghimire S 2022 *Optica* **9** 512
- [13] Yue L, Gaarde M B 2022 *J. Opt. Soc. Am. B* **39** 535
- [14] Golde D, Meier T, Koch S W 2008 *Phys. Rev. B* **77** 075330
- [15] Wang Y, Liu Y, Wu C Y 2022 *Acta Phys. Sin.* **71** 234205 (in Chinese) [汪洋, 刘煜, 吴成印 2022 物理学报 **71** 234205]
- [16] Zuo R, Trautmann A, Wang G, Hannes W R, Yang S, Song X, Meier T, Ciappina M, Duc H T, Yang W 2021 *Ultrafast Sci.* **2021** 9861923
- [17] Qiao Y, Huo Y Q, Jiang S C, Yang Y J, Chen J G 2022 *Opt. Express* **30** 9971
- [18] Hu J, Zhang L, Du T Y 2024 *J. Opt. Soc. Am. B* **41** 2839
- [19] Wang Y, Gao J, Liu Y, Jiang P, Xiao J, Zhou Z, Yang H, Lu G, Peng L Y, Liu Y, Gong Q, Wu C 2024 *Photon. Res.* **12** 2831
- [20] Vampa G, Brabec T 2017 *J. Phys. B* **50** 083001
- [21] Wang G, Du T Y 2021 *Phys. Rev. A* **103** 063109
- [22] Li L, Lan P, Zhu X, Huang T, Zhang Q, Lein M, Lu P 2019 *Phys. Rev. Lett.* **122** 193901
- [23] Lang Y, Peng Z, Liu J, Zhao Z, Ghimire S 2022 *Phys. Rev. Lett.* **129** 167402
- [24] Liu C, Zheng Y, Zeng Z, Li R 2016 *Phys. Rev. A* **93** 043806
- [25] Cocchi E, Miller L A, Drewes J H, Koschorreck M, Pertot D, Brennecke F, Köhl M 2016 *Phys. Rev. Lett.* **116** 175301
- [26] Tomza M, Jachymski K, Gerritsma R, Negretti A, Calarco T, Idziaszek Z, Julienne P S 2019 *Rev. Mod. Phys.* **91** 035001
- [27] Bloch I, Dalibard J, Zwerger W 2008 *Rev. Mod. Phys.* **80** 885
- [28] Schneider U, Hackermüller L, Will S 2008 *Science* **322** 1520
- [29] Shao C, Lu H, Zhang X, Yu C, Tohyama T, Lu R 2022 *Phys. Rev. Lett.* **128** 047401
- [30] Imai S, Ono A, Ishihara S 2020 *Phys. Rev. Lett.* **124** 157404
- [31] Wang G, Chen Y X, Li M, Du T Y 2024 *Phys. Rev. A* **109** 063511
- [32] Tamura H, Murakami Y, Koga A 2021 *Phys. Rev. B* **104** L201112
- [33] Silva R E F, Blinov I V, Rubtsov A N, Smirnova O, Ivanov M 2018 *Nat. Photonics* **12** 266
- [34] Sato S A, Lucchini M, Volkov M, Wismer M S, Yakovlev V S, Rubio A, Bauer D 2019 *Phys. Rev. B* **99** 214302
- [35] Murakami Y, Eckstein M, Werner P 2018 *Phys. Rev. Lett.* **121** 057405
- [36] Song L, Ma C, Du T Y 2022 *J. Opt. Soc. Am. B* **39** 2678
- [37] Orlando G, Ho T S, Chu S I 2020 *J. Opt. Soc. Am. B* **37** 1540
- [38] Du T Y, Ma C 2022 *Phys. Rev. A* **105** 053125
- [39] Silva R E F, Jiménez-Galán A, Amorim B, Smirnova O, Ivanov M 2019 *Nat. Photonics* **13** 849
- [40] Liu J, Du T Y, Deng X, Li B, Cheng Q, Hu J, Huang K 2025 *Phys. Chem. Chem. Phys.* **27** 2908
- [41] Ma C, Bian X B, Du T Y 2022 *Phys. Rev. B* **106** 125117

Dephasing control of high-harmonic generation in strong-field-driven Mott insulators*

LI Huiru^{1) #} LI Bo^{1) #} ZHANG Ruisi¹⁾ LI Li^{2) 3)}
 HU Jiangong^{4) †} DU Taoyuan^{1) 3) ‡}

1) (*School of Mathematics and Physics, China University of Geosciences, Wuhan 430074, China*)

2) (*Jincheng Research Institute of Opto-mechatronics Industry*)

3) (*Shanxi Key Laboratory of Advanced Semiconductor Optoelectronic Devices and Integrated Systems, Jincheng 048000, China*)

4) (*School of Information Engineering, Jiangxi Provincial Key Laboratory of Advanced Signal Processing and Intelligent Communications, Nanchang University, Nanchang 330031, China*)

(Received 26 December 2025; revised manuscript received 8 February 2026)

Abstract

Solid-state high-harmonic generation (HHG) has emerged as a powerful probe for nonequilibrium quantum many-body dynamics in condensed matter systems. In weakly correlated materials, the nonlinear optical response underlying HHG can often be described within a single-particle framework using the time-dependent Schrödinger equation (TDSE) or semiconductor Bloch equations. In such approaches, decoherence effects are usually incorporated phenomenologically through a dephasing time T_2 , which successfully reproduces several experimental features such as harmonic plateaus and cutoff energies. However, this phenomenological treatment encounters fundamental limitations in strongly correlated systems, including Mott insulators, where electron–electron interactions dominate the underlying dynamics. In conventional TDSE simulations, the parameter T_2 is typically introduced *ad hoc* to mimic scattering processes, making it difficult to distinguish genuine many-body decoherence—originating from electron–electron or electron–phonon interactions—from numerical artifacts.

To overcome these limitations, this work investigates HHG in a strongly correlated system described by a one-dimensional half-filled Fermi-Hubbard model with $L = 12$ lattice sites and nearest-neighbor hopping amplitude $t_0 = 0.52$ eV. The system is driven by an intense mid-infrared laser pulse characterized by a \sin^2 envelope, a central wavelength of 9110 nm, and a duration of 16 optical cycles. Two complementary theoretical approaches are employed. First, the nonequilibrium dynamics of the closed quantum system are simulated using the time-dependent Schrödinger equation, where the many-body wave function is propagated numerically using the Crank–Nicolson scheme to ensure stable unitary evolution. Second, to explicitly account for environmental decoherence, the system is treated as an open quantum system described by a density-matrix formalism governed by the Lindblad master equation. In this framework, many-body dephasing channels are incorporated

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 11904331; 12364036), Natural Science Foundation of Hubei Province China (Grant No. 2023AFB613), and the Fundamental Research Funds for the Central Universities, China University of Geosciences (Wuhan), the Jiangxi Provincial Natural Science Foundation (Grant No. 20232BAB201046), Jiangxi Province Science and Technology Development Programme (No. 20242BCC32016), and the Open Project Program of Shanxi Key Laboratory of Advanced Semiconductor Optoelectronic Devices and Integrated Systems (Grant No. 2025SZKF11).

These authors contributed equally.

† Corresponding author. E-mail: jghu@ncu.edu.cn

‡ Corresponding author. E-mail: duty710@163.com

through Lindblad operators, and the time evolution of the density matrix is solved using a fourth-order Runge–Kutta method. The high-harmonic spectra are obtained from the Fourier transform of the time-dependent current expectation value, while the doublon number, defined as the expectation value of the double-occupancy operator, is used to characterize correlation-driven electronic excitations.

Comparative calculations are first performed in the absence of dephasing ($T_2 = \infty$) to benchmark the consistency of the two approaches. The results show excellent agreement between the TDSE and the density-matrix master equation in both the high-harmonic spectra and the time evolution of the doublon number. Under weak-field driving ($F_0 = 10$ MV/cm), the harmonic spectra are dominated by low-order harmonics with rapidly decaying intensity, while the doublon number remains nearly constant within the range of 0.150–0.162. This agreement confirms the numerical equivalence of the two theoretical frameworks in the coherent limit and validates the reliability of the open-system approach.

When finite dephasing is introduced, significant modifications to the high-harmonic spectra are observed. In particular, dephasing strongly suppresses long-lived interband coherent noise, resulting in sharper harmonic peaks and a more pronounced plateau structure, especially under strong-field driving ($F_0 = 50$ MV/cm). Notably, while the spectral contrast and harmonic yield are strongly influenced by decoherence, the cutoff energy remains largely unchanged, indicating that it is mainly determined by intrinsic energy scales such as the Mott gap and the external field strength.

Further analysis of doublon dynamics reveals that dephasing accelerates the formation of doublons. In the absence of dephasing, doublon excitation begins at approximately $t \approx -4$ optical cycles. When strong dephasing ($T_2 = 10$ fs) is introduced, the onset shifts to around $t \approx -7$ optical cycles and the growth rate becomes significantly larger. This behavior originates from the decoherence-induced weakening of long-range quantum correlations, which otherwise suppress electronic transitions through quantum interference effects. By shortening the coherence lifetime of quantum states, dephasing facilitates nonadiabatic tunneling and multiphoton excitation processes, thereby accelerating doublon generation.

To further elucidate the emission mechanism, a time-frequency analysis based on the Gabor transform is performed. The spectrogram reveals two distinct quantum trajectories analogous to the short and long trajectories in the semiclassical three-step model of HHG. In the absence of dephasing, both trajectories contribute to the emission and produce clear interference patterns. When strong dephasing is introduced, the contribution from the long trajectory is strongly suppressed, while the short trajectory remains dominant. This occurs because long trajectories involve longer electron–hole propagation times and are therefore more sensitive to environmental perturbations, whereas short trajectories accumulate less phase and are more robust against decoherence. This mechanism leads to a distinctive *orbital filtering* effect, in which decoherence selectively suppresses phase-sensitive quantum pathways while preserving the dominant short-trajectory emission.

In summary, this work provides a systematic theoretical investigation of dephasing effects on high-harmonic generation in strongly correlated systems. By combining TDSE simulations with a Lindblad-form open-system framework, the study establishes a rigorous methodology for incorporating many-body decoherence into HHG simulations. The results demonstrate that dephasing not only modifies the spectral characteristics of harmonic emission but also reshapes the underlying quantum-path interference and excitation dynamics. In particular, the discovery of the decoherence-induced orbital filtering mechanism highlights the possibility of controlling HHG emission through engineered environmental interactions. These findings provide new insights into the interplay between coherence and dissipation in nonlinear optical processes of correlated materials and offer a theoretical basis for optimizing high-harmonic sources and achieving coherent control in quantum many-body systems.

Keywords: High-harmonic generation, Mott insulator, dephasing, quantum master equation

DOI: [10.7498/aps.75.20251765](https://doi.org/10.7498/aps.75.20251765)

CSTR: [32037.14.aps.75.20251765](https://cstr.net/urn:csdn:CSTR:32037.14.aps.75.20251765)