

## 晶体环境下高次谐波谱的截止频率分析\*

陈高<sup>1)†</sup> 杨玉军<sup>2)</sup> 郭福明<sup>2)</sup>

1) (长春理工大学理学院物理系, 长春 130022)

2) (吉林大学原子与分子物理研究所, 长春 130012)

(2012年11月15日收到; 2012年12月18日收到修改稿)

通过数值求解中红外飞秒光脉冲与一维单电子多阱势相互作用的含时薛定谔方程, 研究了晶体环境下的高次谐波发射光谱, 发现了晶体谐波谱的截止位置公式. 研究发现, 不同于气体环境下的谐波谱截止频率规律, 晶体谐波谱的截止频率与激光电场的峰值振幅及晶格参数成线性关系. 鉴于准经典力学的三步模型对于气体谐波截止频率的解释, 进一步采用准经典力学方法验证了晶体谐波截止位置规律的正确性.

**关键词:** 中红外飞秒光脉冲, 晶体, 高次谐波, 截止频率

**PACS:** 32.80.Rm, 42.50.Hz, 42.65.Re

**DOI:** 10.7498/aps.62.083202

## 1 引言

高次谐波是指原子、分子、团簇以及固体等介质在强激光脉冲辐照下发射的入射激光频率整数倍的相干辐射波, 是激光与物质相互作用过程中出现的一种高阶非线性效应. 研究发现, 所有高次谐波辐射谱均呈现如下特征行为: 最初几次谐波随着谐波次数增加发射效率快速下降; 在达到某次谐波后出现一个强度几乎不随谐波次数变化的区域, 称为平台区; 最后, 在平台区末端的某一阶次谐波附近, 谐波强度快速下降, 出现截止. 由于谐波谱呈现平台区, 以及平台区谐波具有宽频带连续辐射谱(相位匹配)的独特优点, 使它成为获得极紫外以及阿秒脉冲相干辐射源的重要手段<sup>[1-4]</sup>. 因此该现象自1987年<sup>[5]</sup>首次发现以来始终是人们追踪的研究热点.

气体环境下的高次谐波现象发现较早, 理论和实验研究相对成熟. 利用气体介质的谐波发射, 当前不仅获得了“水窗”波段的极紫外相干光源<sup>[6]</sup>, 且已在实验上实现了67 as孤立短脉冲的输出<sup>[7]</sup>. 然而, 由于气体介质中原子分布不均匀, 致使不同原子产生的谐波相位不能很好地匹配, 影响了谐波的

转化效率, 实验上得到的这些相干光源功率低, 不能得到广泛应用. 与气体相比, 晶体具有高密度及周期性的结构特性, 可确保不同原子产生谐波的相干性及相位匹配, 一直是人们寄希望于获得高强度谐波发射的介质材料. 但由于用来产生谐波的激光电场容易引起晶体中电子的瞬时电离, 对样品造成不可修补的危害, 并可能使晶体表面形成不易受控的等离子体, 因此尽管经过多年研究, 晶体中高次谐波辐射一直没有在实验上观测到.

直到2011年, Ghimire等<sup>[8]</sup>利用少周期(9个光学周期)的长波长脉冲(3.25  $\mu\text{m}$ )辐照氧化锌半导体晶体块材料, 才首次实现了晶体中高效的谐波发射. 但是我们注意到, 实验上得到的最高次谐波的波长为112 nm. 为了满足人们对极紫外波段及阿秒级短脉冲相干光源的需求, 当务之急是提高晶体谐波发射的次数, 因此弄清晶体环境下谐波截止频率的规律就显得尤为重要. 鉴于准经典力学的“三步模型”<sup>[9]</sup>对于气体谐波截止频率的贡献, 本文仍采用准经典力学方法, 研究了晶体中电子在激光电场与晶格势场共同作用下的动力学过程, 并与量子力学解相互印证, 给出了谐波截止频率的准经典公式.

\* 国家重点基础研究发展计划(批准号: 2013CB922200)和国家自然科学基金(批准号: 11274141, 11034003)资助的课题.

† 通讯作者. E-mail: chengao@cust.edu.cn

## 2 理论模型和计算方法

本文利用单电子在一维多阱势中的运动描述晶体中电子的运动过程, 这样处理主要是考虑了晶体中的独立粒子模型理论和 Born-Oppenheimer 近似. 一维多阱势的形式为 (若无特殊说明, 以下均采用原子单位)

$$V(x, R) = \sum_{j=1}^N \frac{q}{\sqrt{[x - (j - N/2 - 0.5) \cdot R]^2 + A}} \times e^{-c\sqrt{[x - (j - N/2 - 0.5) \cdot R]^2}}, \quad (1)$$

式中  $c$  用来调节势阱的短程性,  $q$  和  $A$  调节势阱中带间和带内间距,  $R$  是晶格参数,  $j(N)$  是势阱的个数. 在数值模拟计算中, 取  $c = 0.1$ ,  $q = 3$ ,  $A = 1$ , 使得一维多阱势模型中有 3 个能带, 如表 1 所示. 且选择电子在激光场中演化前的状态为价带和第一导带的相干叠加态. 计算中选择 40 个势阱来模拟晶体的周期性结构 (实际计算表明势阱的个数对谐波谱影响很小), 晶格参数选为 8.

为得到飞秒光脉冲辐照下晶体介质中的高次谐波发射, 我们利用 Crank-Nicolson 直接数值积分方法<sup>[10]</sup> 求解了强激光与晶体相互作用的含时薛定谔方程. 在长度规范和电偶极近似下, 强激光与晶体作用的一维含时薛定谔方程为

$$i \frac{\partial}{\partial t} \psi(x, t) = \left[ -\frac{1}{2} \frac{\partial^2}{\partial x^2} + V(x, R) + xE(t) \right] \psi(x, t), \quad (2)$$

线偏振的激光电场形式为

$$E(t) = E_0 f(t) \sin(\omega t + \phi), \quad (3)$$

$E_0$  和  $f(t)$  分别是波长为 3200 nm 的中红外飞秒激光脉冲的峰值振幅和包络函数,  $\omega$  是角频率,  $\phi$  是脉冲的载波包络相位, 在计算中取为 0.

晶体体系的高次谐波光谱可以通过偶极加速度的傅里叶变换得到, 即

$$P_A(\omega) = \left| \frac{1}{(t_f - t_i)\omega^2} \int_{t_i}^{t_f} d_A(t) e^{-i\omega t} dt \right|^2, \quad (4)$$

$$d_A(t) = \frac{d^2}{dt^2} \langle \psi(x, t) | x | \psi(x, t) \rangle$$

$$= -\langle \psi(x, t) | \frac{dV(x, R)}{dx} | \psi(x, t) \rangle - E(t), \quad (5)$$

其中  $t_i$  和  $t_f$  为傅里叶变换的初时刻和末时刻.

## 3 结果与分析

图 1 展示了脉宽为 5 个光学周期, 波长为 3200 nm, 电场的峰值振幅为 0.01 的中红外飞秒光脉冲与一维单电子多阱势作用产生的高次谐波辐射谱. 图 1 中的实线和点线是在长度规范下加速度和长度两种形式下计算得到的结果, 由图 1 可见, 两种形式算得的谐波谱基本符合, 这说明我们的计算结果是正确的. 以下如无特殊说明, 给出的皆是在加速度形式下的结果. 在图 1 中我们注意到, 不同于气体的高次谐波发射, 晶体谐波谱平台的中间部分出现了一个大的尖峰结构. 为详细地了解这部分谐波的分布情况, 图 2 给出了该部分谐波的放大图. 通过观察可以发现, 在 119 次谐波附近谐波强度有明显下降的趋势, 我们将该次谐波确认为晶体谐波发射的截止位置. 对于谐波谱中那些高于 119 次的谐波, 是由于数值模拟计算中存在少量电离电子与势阱的复合 (数值模拟计算难以避免), 而在实际的实验过程中, 要确保晶体中电子不被电离, 否则晶体结构的周期性将被破坏, 所以当前研究中这部分谐波不予以考虑.

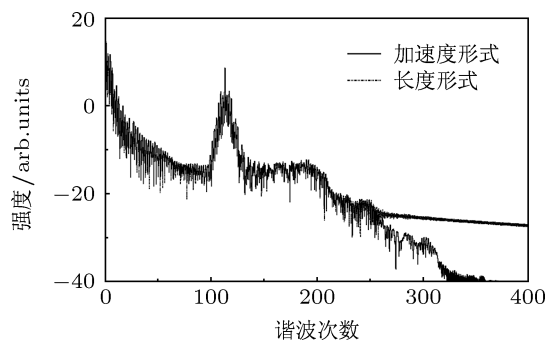


图 1 中红外飞秒光脉冲与一维单电子多阱势作用产生的高次谐波辐射谱. 飞秒脉冲的脉宽为 5 个光学周期, 波长为 3200 nm, 电场的峰值振幅为 0.01

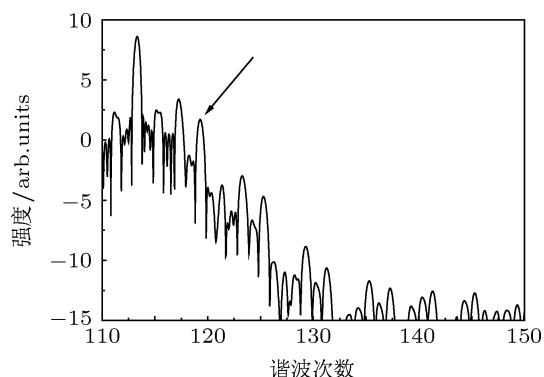


图 2 图 1 中的尖峰结构 110—150 次谐波放大图

为了发现晶体谐波发射的截止规律,图3进一步展示了电场的峰值振幅  $E_0 = 0.02$  时的高次谐波辐射谱(其他参数同图1).由图3可见,谐波谱平台上仍然出现了一个大的尖峰结构.图4是放大的尖峰结构图,可以看到谐波谱的截止位置在125次谐波附近.比对分析电场的峰值振幅为0.01和0.02时的谐波发射功率谱发现,晶体谐波发射的截止能量满足公式  $E_{\text{cutoff}} = I_p + E_0 R$ ,这里  $E_0$  是电场的峰值振幅, $R$  是晶格参数, $I_p$  是价带和第一导带之间的带隙,在当前选择的晶体模型下为1.6,可由表1中电子的能带分布算出.

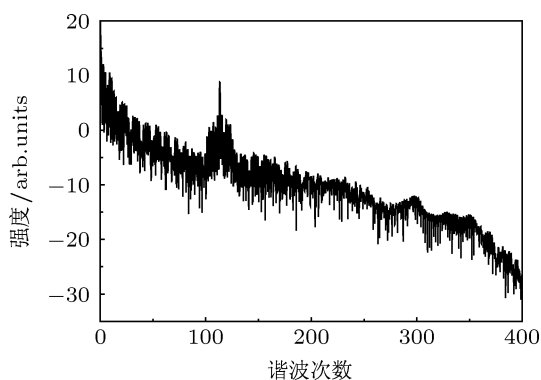


图3 中红外飞秒光脉冲与一维单电子多阱势作用产生的高次谐波辐射谱 飞秒脉冲的脉宽为5个光学周期,波长为3200 nm,电场的峰值振幅为0.02

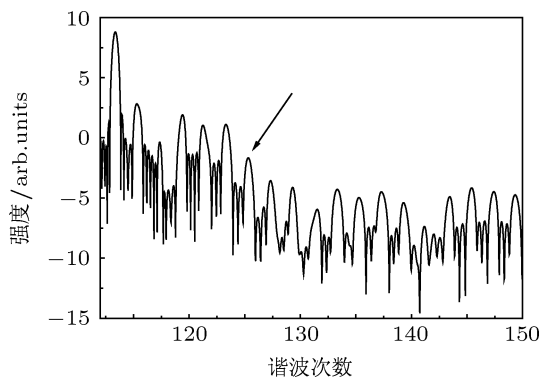


图4 图3中的尖峰结构110—150次谐波放大图

为了验证晶体谐波谱的截止位置规律,分别研究了谐波谱截止位置能量随晶格参数及电场峰值振幅的变化关系.图5展示了电场峰值振幅为0.02的中红外飞秒光脉冲辐照下,晶格参数变化对晶体谐波谱截止频率的影响.由图5可见,在其他晶体参数及激光脉冲参数保持不变的情况下,当晶格参数分别取为8,9,10和11时,谐波谱的截止位置分别是125,127,129和130次.即随着晶格参数的增

加,谐波谱截止位置随之增大,且截止位置能量与  $E_{\text{cutoff}} = I_p + E_0 R$  算得的结果完全一致.图6展示了晶格参数为8时,飞秒脉冲的峰值振幅变化对晶体谐波谱截止频率的影响.由图6可见,在晶体参数及其他激光脉冲参数保持不变的情况下,当电场的峰值振幅分别取为0.01,0.015,0.02及0.025时,谐波谱的截止位置分别是119,123,125和129次.即随着电场峰值振幅的增加,谐波谱截止位置随之增大,且截止位置能量与  $E_{\text{cutoff}} = I_p + E_0 R$  算得的结果一致.

表1 一维晶体模型中电子的能级分布

序数	能级	序数	能级	序数	能级
1	-2.04785	16	-2.05273	31	-0.4357
2	-2.05269	17	-2.05273	32	-0.43392
3	-2.05275	18	-2.05274	33	-0.43219
4	-2.05275	19	-2.05269	34	-0.43055
5	-2.05275	20	-2.04786	35	-0.42905
6	-2.05275	21	-0.44786	36	-0.42775
7	-2.05275	22	-0.4475	37	-0.42669
8	-2.05274	23	-0.4469	38	-0.42592
9	-2.05274	24	-0.44608	39	-0.42513
10	-2.05274	25	-0.44505	40	-0.42515
11	-2.05274	26	-0.44382	41	-0.13532
12	-2.05274	27	-0.44242	42	-0.13352
13	-2.05274	28	-0.44088	43	-0.13054
14	-2.05273	29	-0.43922	44	-0.12642
15	-2.05273	30	-0.43748	45	-0.12121

加,经典力学的“三步模型”对于气体谐波谱的截止频率给出了很好的解释,基于此,本文中我们延续采用准经典力学方法,研究晶体中电子在激光电场与晶格势场共同作用下的动力学过程,进一步验证晶体谐波谱的截止位置规律.以入射激光场  $E(t) = E_0 \sin(\omega t)$  作用在一维单电子上为例,电子在  $t_0$  时刻从某阱中的价带激发到第一导带,并在激光电场作用下运动满足的牛顿方程为

$$\ddot{x}(t) = -E_0 \sin(\omega t), \tag{6}$$

$$\dot{x}(t) = -\frac{E_0}{\omega} [\cos(\omega t_0) - \cos(\omega t)], \tag{7}$$

$$x(t) = -\frac{E_0}{\omega^2} [(\omega t - \omega t_0) \cos(\omega t_0) - (\sin(\omega t) - \sin(\omega t_0))]. \tag{8}$$

由上述方程可知当电子在  $t$  时刻运动到紧邻阱中的价带前,它获取的动能是

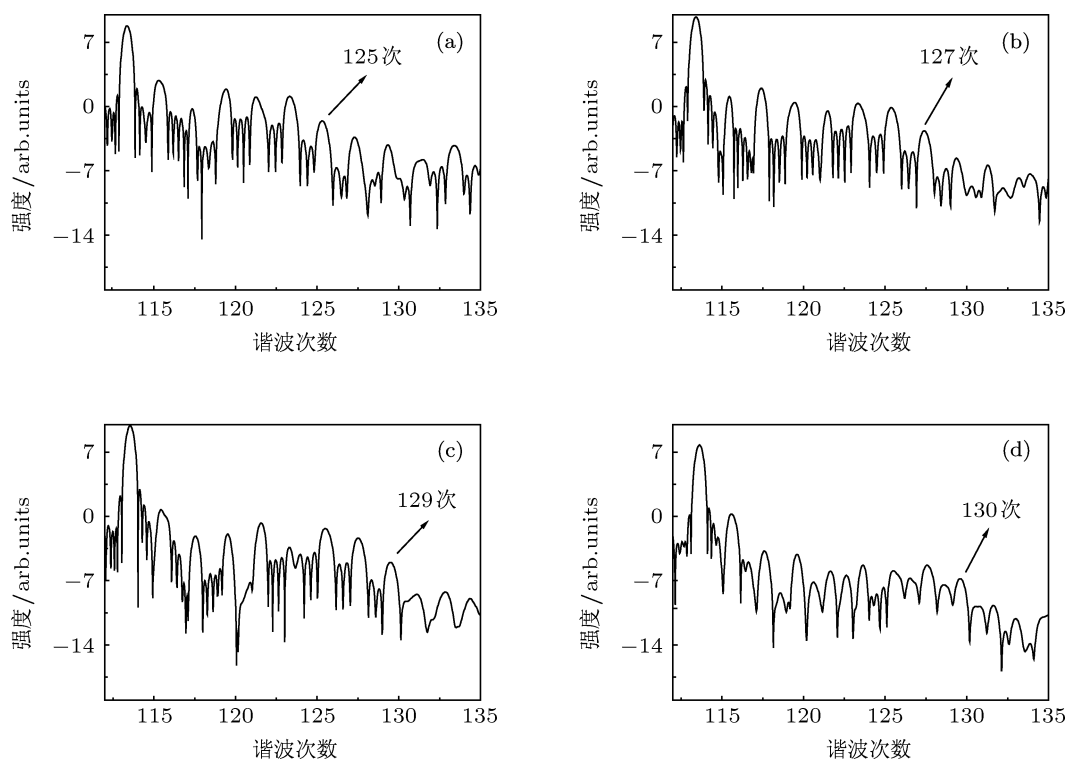


图5 电场峰值振幅为 0.02 的中红外飞秒光脉冲辐照下, 晶格参数分别取为 (a) $R=8$ ; (b) $R=9$ ; (c) $R=10$  和 (d) $R=11$  时的晶体谐波发射功率谱

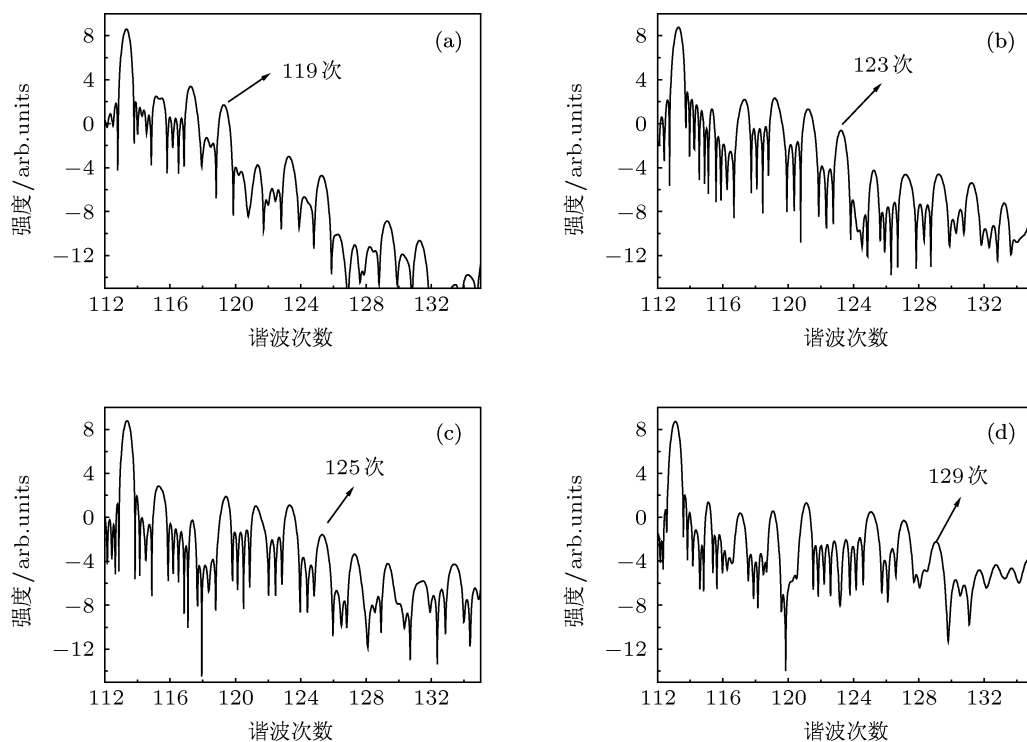


图6 晶体的晶格参数为 8 时, 飞秒脉冲的峰值振幅分别取为 (a)  $E_0=0.01$ , (b)  $E_0=0.015$ , (c)  $E_0=0.02$  及 (d)  $E_0=0.025$  时的晶体谐波发射功率谱

$$K(R, \omega, E_0) = \frac{E_0 R}{2} \times \frac{(\cos(\omega t) - \cos(\omega t_0))^2}{(\omega t - \omega t_0) \cos(\omega t_0) - [\sin(\omega t) - \sin(\omega t_0)]}, \quad (9)$$

式中

$$(\omega t - \omega t_0) \cos(\omega t_0) - [\sin(\omega t) - \sin(\omega t_0)] = R\omega^2/E_0. \quad (10)$$

对于谐波谱上截止位置处的谐波, 一定来源于在激光场中获得最大动能的电子与紧邻阱复合产生的. 在上述条件下, 当电子获得最大动能为  $K_m$  时, 它必定是在特定的时刻  $t_{0m}$  被激发到第一导带, 因而也就只能在特定的时刻  $t_m$  复合到紧邻阱中的价带. 于是,

$$K_m = \frac{E_0 R}{2} \times \frac{[\cos(\omega t_m) - \cos(\omega t_{0m})]^2}{(\omega t_m - \omega t_{0m}) \cos(\omega t_{0m}) - [\sin(\omega t_m) - \sin(\omega t_{0m})]}. \quad (11)$$

根据  $dK/dt|_{t=t_m} = 0$ , 得到

$$\left. \frac{dt_0}{dt} \right|_{t=t_m} = \frac{\sin(\omega t_m)}{\sin(\omega t_{0m})}, \quad (12)$$

而方程 (10) 对于任意时刻  $t$  都可以得到如下关系

$$\frac{dt_0}{dt} = \frac{\cos(\omega t_0) - \cos(\omega t)}{(\omega t - \omega t_0) \sin(\omega t_0)}. \quad (13)$$

联立方程 (12) 和 (13) 给出

$$(\omega t_m - \omega t_{0m}) \sin(\omega t_m) = \cos(\omega t_{0m}) - \cos(\omega t_m). \quad (14)$$

当  $\omega = 0.014$  时, 根据方程 (14), 可得出如下结论: 不管  $E_0$  的取值如何, 方程 (11) 中函数

$$g(t_{0m}) = \frac{[\cos(\omega t_m) - \cos(\omega t_{0m})]^2}{(\omega t_m - \omega t_{0m}) \cos(\omega t_{0m}) - [\sin(\omega t_m) - \sin(\omega t_{0m})]} = 2$$

如图 7 所示, 这意味着从某阱中价带激发到第一导带的电子在激光场驱动下到达紧邻阱时获得的最大动能为  $K_m = E_0 R$ , 当它跃迁到紧邻阱中的价带

时, 辐射光子的能量为  $E_{\text{cutoff}} = I_p + E_0 R$ . 可见, 该结论与上述量子力学计算得到的谐波谱截止位置规律完全一致.

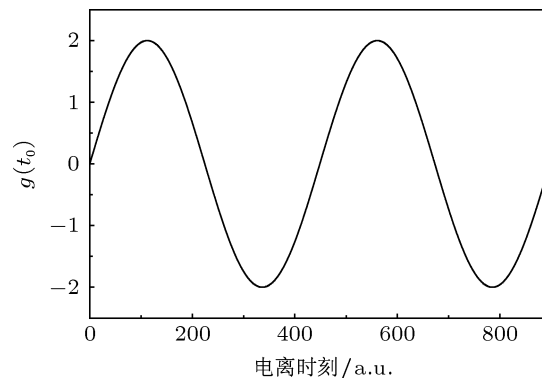


图 7  $g(t_0)$  随电子电离时刻变化的曲线

这里需要指出的是, 为获得晶体谐波截止频率的规律, 我们设定价带和导带之间的带隙宽度为 1.6 eV, 而真实晶体中的带隙要小于这个值. 这样做的原因在于, 我们的目的仅仅是弄清晶体环境下谐波发射的截止位置规律, 为提高晶体谐波发射的次数提供理论指导. 如果计算中选择带隙足够窄的晶体, 那么带内跃迁的频率可能会大于带隙间跃迁的频率, 这将使晶体谐波谱的结构变得非常复杂, 很难提取出谐波截止位置与晶格参数和激光电场峰值振幅之间的内在关系.

## 4 结论

本文利用 Crank-Nicolson 直接数值积分方法计算了中红外飞秒光脉冲辐照下晶体的高次谐波发射功率谱. 研究发现, 与气体谐波谱截止频率规律 (与激光电场的峰值功率成线性关系) 不同, 晶体高次谐波谱的截止频率与激光电场的峰值振幅成线性关系, 与晶体的晶格参数成线性关系, 该结论与采用准经典力学方法给出的结果一致. 晶体谐波谱截止频率公式的发现, 为提高晶体高次谐波次数所需的激光脉冲参数及晶体材料的选择有了明确的指向性.

- [1] Papadogiannis N A, Witzel B, Kalpouzos C, Charalambidis D 1999 *Phys. Rev. Lett.* **83** 4289  
 [2] Hentschel M, Kienberger R, Spielmann C, Reider G A, Milosevic N 2001 *Nature* **414** 509

- [3] Baltuska A, Udem T H, Baltuska A, Uiberacker M, Hentschel M, Goulielmakis E, Gohle C H, Holzwarth R, Yakovlev V S, Scrinzi A, Hansch T W, Krausz F 2003 *Nature* **421** 611  
 [4] Sansone G, Benedetti E, Calegari F, Vozzi C, Avaldi L, Flammini R,

- Poletto L, Villoresi P, Altucci C, Velotta R, Stagira S, Silvestri S D, Nisoli M 2006 *Science* **314** 443
- [5] MePherson A, Gibson G, Jara H, Johann U, Luk T S, McIntyre I A, Boyer K, Rhodes C K 1987 *J. Opt. Soc. Am. B* **4** 595
- [6] Pukhov A 2006 *Nature Phys.* **2** 439
- [7] Zhao K, Zhang Q, Chini M, Wu Y, Wang X W, Chang Z H 2012 *Opt. Lett.* **37** 3891
- [8] Ghimire S, DiChiara A D, Sistrunk E, Agostini P, DiMauro L F, Reis D A 2011 *Nature Phys.* **7** 138
- [9] Corkum P B 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 1994
- [10] Liu S, Chen G, Chen J G, Zhu Q R 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 1574 (in Chinese) [刘硕, 陈高, 陈基根, 朱颀人 2009 物理学报 **58** 1574]

## Analysis on the cutoff frequency of high order harmonic generation in the crystal\*

Chen Gao<sup>1)†</sup> Yang Yu-Jun<sup>2)</sup> Guo Fu-Ming<sup>2)</sup>

1) (College of Science, Changchun University of Science and Technology, Changchun 130022, China)

2) (Institute of Atomic and Molecular Physics, Jilin University, Changchun 130012, China)

(Received 15 November 2012; revised manuscript received 18 December 2012)

### Abstract

By numerically solving the time-dependent Schrödinger equation with the interaction between one-dimensional multi-well potential and the mid-infrared few-cycle femtosecond pulses, we theoretically investigate the high-order harmonic generation spectra in a crystal, further find the cutoff frequency formula under the new condition. Our results clearly show that the high order harmonic generation in the crystal is fundamentally different from that in the atomic case, owing to the high density and periodic structure. The harmonics spectrum shows a cutoff position that scales linearly with the peak amplitude of electric field of the drive laser and the lattice parameters. Based on the important role of the three-step model obtained by quasi-classical mechanics method in gas harmonic generation, in this paper, this method is also well used to verify the cutoff position law in crystal harmonic generation.

**Keywords:** mid-infrared femtosecond pulses, crystal, high order harmonic generation, cutoff frequency

**PACS:** 32.80.Rm, 42.50.Hz, 42.65.Re

**DOI:** 10.7498/aps.62.083202

\* Projects supported by the National Basic Research Program of China (Grant No. 2013CB922200) and the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11274141, 11034003).

† Corresponding author. E-mail: chengao@cust.edu.cn