

## 原子错位堆栈增强双层MoS<sub>2</sub>高次谐波产率

姚惠东 崔波 马思琦 余超 陆瑞锋

### Enhancing high harmonic generation in bilayer MoS<sub>2</sub> by interlayer atomic dislocation

Yao Hui-Dong Cui Bo Ma Si-Qi Yu Chao Lu Rui-Feng

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 70, 134207 (2021) DOI: 10.7498/aps.70.20210731

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210731>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

---

## 您可能感兴趣的其他文章

### Articles you may be interested in

基于固体薄片超连续飞秒光源驱动的高次谐波产生实验

High harmonic generation experiments based on solid-state supercontinuum

物理学报. 2017, 66(13): 134207 <https://doi.org/10.7498/aps.66.134207>

基于高次谐波产生的极紫外偏振涡旋光

Extreme ultraviolet polarization vortex beam based on high harmonic generation

物理学报. 2020, 69(4): 044203 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20190834>

等离子体光栅靶的表面粗糙度对高次谐波产生的影响

Effect of plasma grating roughness on high-order harmonic generation

物理学报. 2017, 66(24): 244209 <https://doi.org/10.7498/aps.66.244209>

MoS<sub>2</sub>电子屏蔽长度和等离子激元

Electron screening lengths and plasma spectrum in single layer MoS<sub>2</sub>

物理学报. 2017, 66(24): 247701 <https://doi.org/10.7498/aps.66.247701>

MoS<sub>2</sub>及其金属复合表面增强拉曼散射基底的发展及应用

Development and application of MoS<sub>2</sub> and its metal composite surface enhanced Raman scattering substrates

物理学报. 2019, 68(13): 134203 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20182113>

相对论圆偏振激光与固体靶作用产生高次谐波

High order harmonics generation by relativistically circularly polarized laser-solid interaction

物理学报. 2018, 67(21): 214205 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20181574>

专题—原子制造: 基础研究与前沿探索

原子错位堆栈增强双层  $\text{MoS}_2$  高次谐波产率\*

姚惠东# 崔波# 马思琦# 余超† 陆瑞锋‡

(南京理工大学, 理学院应用物理系, 南京 210094)

(2021年4月18日收到; 2021年5月22日收到修改稿)

本文采用数值求解多能带半导体布洛赫方程组的方法开展强激光与双层  $\text{MoS}_2$  材料相互作用产生高次谐波的理论研究. 模拟发现, T型堆栈双层  $\text{MoS}_2$  产生的高次谐波在高效区域的转换效率比 AA型堆栈双层  $\text{MoS}_2$  高一个数量级. 理论分析表明, 由于原子级错位堆栈下晶体对称性被打破, 使原有的部分带间禁戒跃迁路径被打开, 带间跃迁激发通道增加, 大大增大了载流子跃迁概率, 从而增强了高次谐波转换效率. 此外, 对谐波产率的波长定标研究表明, 在较长波长的激光驱动下 ( $> 2000 \text{ nm}$ ), T型堆栈下所增强的谐波具有更高的波长依赖. 该工作为如何优化增强固体高次谐波的转换效率提供一种新思路.

关键词: 高次谐波, 双层  $\text{MoS}_2$ , 堆栈方式, 波长定标

PACS: 42.65.Ky, 42.65.-k, 68.65.-k

DOI: 10.7498/aps.70.20210731

## 1 引言

近十年来, 强激光与固体材料相互作用产生的高次谐波辐射逐渐成为国际强场激光物理研究领域重点研究的课题<sup>[1-4]</sup>. 高次谐波研究的主要动力来源于其极有潜力的应用前景. 利用高次谐波辐射可以获得相干的、脉冲持续时间短的极紫外 (XUV) 光源和 X 射线源. 由于固体材料的介质密度远大于气体靶, 同等激光条件下固体产生的高次谐波转换效率高于气体. 在气体介质中, 高次谐波主要由电子电离、回碰产生, 而对于固体材料, 其高次谐波主要由带内电流和带间极化贡献. 最近, 实验上已经证明<sup>[5-11]</sup>, 强激光与固体材料相互作用能够提供一种全新的手段产生高效率的高次谐波, 将有希望实现一种新型阿秒光源.

2011年, Ghimire 等<sup>[5,6]</sup>首次在实验上成功应

用中红外激光与  $\text{ZnO}$  晶体相互作用产生非微扰的高次谐波. 他们认为, 在激光驱动下, 晶体中的电子和空穴在布里渊区边界处反射产生布洛赫振荡, 从而导致高次谐波辐射. 随后, 采用不同的驱动激光, 科研人员陆续开展了固体高次谐波的实验研究<sup>[7,8]</sup>, 研究表明在太赫兹区域, 带内高次谐波占主要部分. Luu 等<sup>[9]</sup>利用脉宽在一个光周期量级的紫外与近红外光学叠加场和  $\text{SiO}_2$  相互作用, 实验发现光子能量大约为 40 电子伏特的相干极紫外光辐射. 在他们的工作中, 外场作用下电子在晶格中的失谐振荡运动被用来解释高频辐射, 并且观测到固体二氧化硅中产生的高能光子产率比稀有气体中产生的要高. 几乎同时, Vampa 等<sup>[10]</sup>通过加一束倍频激光来研究固体高次谐波的产生过程, 实验上证明了在中红外区域, 电子与空穴回碰产生的带间电流是  $\text{ZnO}$  晶体中高次谐波产生的主要机制, 随后他们建设性地提出了一种全光学技术用来

\* 国家自然科学基金 (批准号: 11704187, 11974185, 11834004)、中央高校基本科研业务费专项资金 (批准号: 30920021153) 和中国博士后科学基金 (批准号: 2019M661841) 资助的课题.

# 同等贡献作者.

† 通信作者. E-mail: chaoyu@njust.edu.cn

‡ 通信作者. E-mail: rfltu@njust.edu.cn

重构晶体材料的能带带隙<sup>[11]</sup>. 此外, You 等<sup>[12]</sup>测量了强激光与 MgO 晶体作用产生的高次谐波, 发现高次谐波随着激光偏振方向各向异性, 预示着全光学方法可用来提取晶体结构、原子间势、价电子密度甚至波函数等信息.

为了理解固体高次谐波的产生机制, 理论工作者们提出了一系列模型和计算方法, 如 Korbman 等<sup>[13,14]</sup>、Wu 等<sup>[15]</sup>以及 Guan 等<sup>[16]</sup>通过数值求解一维含时薛定谔方程计算出晶格内电流变化, 得到谐波信号. 此外, Jin 等<sup>[17]</sup>、Li 等<sup>[18]</sup>和 Li 等<sup>[19]</sup>通过数值求解二维含时薛定谔方程研究固体谐波的辐射特性. Vampa 等<sup>[20–22]</sup>则提出求解密度矩阵方程组的方法来模拟固体谐波, 最终可以分别计算出带内电流和带间电流, 通过傅里叶变换带内和带间电流即可得到高次谐波谱, 他们应用此方法成功解释了带间谐波的产生机制. 此外, Golde 等<sup>[23–25]</sup>、Földi 等<sup>[26]</sup>和 Tamaya 等<sup>[27]</sup>求解激光外场作用下的两能带半导体布洛赫方程来研究固体谐波辐射, 成功解释了一些实验现象. 2015 年, Hohenleutner 等<sup>[28]</sup>完善了理论模型, 通过求解考虑多条能带的半导体布洛赫方程模拟强激光与晶体相互作用, 同时在时域上直接测量太赫兹场作用下的固体高次谐波. 他们的实验和理论模拟结果表明, 固体材料中电子从不同能带隧穿产生的量子相干能够有效控制超快高次谐波辐射. 最近, Yu 等<sup>[29]</sup>提出利用二维 h-BN 材料的双层或者多层纳米结构控制优化类原子的高次谐波辐射, 发现高次谐波截止能量

随着层间距变化的依赖关系.

固体高次谐波可作为产生新型小型化阿秒光源的一种全新手段, 如何进一步增强其高次谐波的转换效率一直是研究工作者们关注的焦点. Li 等<sup>[30]</sup>通过双色叠加场技术, 理论优化增强了固体高次谐波的第二个平台效率, 选择合适的双色场激光参数可获得单个阿秒脉冲. 此外, Liu 等<sup>[31]</sup>结合纳米加工技术和超快强激光技术, 利用全介质超表面提高驱动激光的强度以及介质材料的损耗阈值, 从而有效地增强谐波效率约两个数量级. 最近, Franz 等<sup>[32]</sup>在半导体材料中发现利用纳米锥波导也能够有效增强固体谐波的转换效率.

本文针对固体高次谐波的转换效率问题, 以双层 MoS<sub>2</sub> 为例, 研究其在不同堆栈方式下的高次谐波辐射特性, 理论模拟发现, 层间原子错位堆栈能够有效打破晶体对称性, 使得原有的部分带间禁戒跃迁被允许, 带间跃迁激发通道增加, 从而提升了载流子跃迁概率及高次谐波转换效率.

## 2 理论模型

本文采用数值求解多能带半导体布洛赫方程组的方法 (SBEs) 开展强激光与双层 MoS<sub>2</sub> 材料相互作用的理论研究<sup>[33]</sup>. 模拟过程中, 晶体倒格矢坐标可在直角坐标系中表示为  $x||\Gamma - M$ ,  $y||\Gamma - K$ , 和  $z||\Gamma - A$  (光轴), 线偏振激光的传播方向沿着光轴方向. 在单电子近似下, 多能带半导体布洛赫方程组可以写为

$$i\frac{\partial}{\partial t}p_k^{h_i e_j} = \left(\varepsilon_k^{e_j} + \varepsilon_k^{h_i} - i\frac{1}{T_2}\right)p_k^{h_i e_j} - \left(1 - f_k^{e_j} - f_k^{h_i}\right)d_k^{e_j h_i} E(t) + iE(t)\nabla_k p_k^{h_i e_j} + E(t)\sum_{\lambda \neq j} \left(d_k^{e_\lambda h_i} p_k^{e_\lambda e_j} - d_k^{e_j e_\lambda} p_k^{h_i e_\lambda}\right) + E(t)\sum_{\lambda \neq i} \left(d_k^{h_\lambda h_i} p_k^{h_\lambda e_j} - d_k^{e_j h_\lambda} p_k^{h_i h_\lambda}\right), \quad (1)$$

$$i\frac{\partial}{\partial t}p_k^{e_i e_j} = \left(\varepsilon_k^{e_j} - \varepsilon_k^{e_i} - i\frac{1}{T_2}\right)p_k^{e_i e_j} + \left(f_k^{e_j} - f_k^{e_i}\right)d_k^{e_j e_i} E(t) + iE(t)\nabla_k p_k^{e_i e_j} + E(t)\sum_{\lambda \neq j} d_k^{e_\lambda e_i} p_k^{e_\lambda e_j} - E(t)\sum_{\lambda \neq i} d_k^{e_j e_\lambda} p_k^{e_i e_\lambda} + E(t)\sum_{\lambda} \left(d_k^{h_\lambda e_i} p_k^{h_\lambda e_j} - d_k^{e_j h_\lambda} (p_k^{h_\lambda e_i})^*\right), \quad (2)$$

$$i\frac{\partial}{\partial t}p_k^{h_i h_j} = \left(\varepsilon_k^{h_i} - \varepsilon_k^{h_j} - i\frac{1}{T_2}\right)p_k^{h_i h_j} + \left(f_k^{h_i} - f_k^{h_j}\right)d_k^{h_j h_i} E(t) + iE(t)\nabla_k p_k^{h_i h_j} + E(t)\sum_{\lambda \neq j} d_k^{h_\lambda h_i} p_k^{h_\lambda h_j} - E(t)\sum_{\lambda \neq i} d_k^{h_j h_\lambda} p_k^{h_i h_\lambda} + E(t)\sum_{\lambda} \left(d_k^{e_\lambda h_i} (p_k^{h_j e_\lambda})^* - d_k^{h_j e_\lambda} p_k^{h_i e_\lambda}\right), \quad (3)$$

$$\frac{\partial}{\partial t} f_k^{e_i} = -2\text{Im} \left[ \sum_{\lambda \neq i} d_k^{e_i e_\lambda} E(t) (p_k^{e_\lambda e_i})^* + \sum_{\lambda} d_k^{e_i h_\lambda} E(t) (p_k^{h_\lambda e_i})^* \right] + E(t) \nabla_k f_k^{e_i} - \frac{1}{2T_1} (f_k^{e_i} - f_{-k}^{e_i}), \quad (4)$$

$$\frac{\partial}{\partial t} f_k^{h_i} = -2\text{Im} \left[ \sum_{\lambda \neq i} d_k^{h_i h_\lambda} E(t) (p_k^{h_\lambda h_i})^* + \sum_{\lambda} d_k^{e_\lambda h_i} E(t) (p_k^{e_\lambda h_i})^* \right] + E(t) \nabla_k f_k^{h_i} - \frac{1}{2T_1} (f_k^{h_i} - f_{-k}^{h_i}). \quad (5)$$

方程 (1)–(3) 表示电子、空穴在带间的跃迁过程, 而方程 (4) 和 (5) 描述电子、空穴在带内的运动过程. 其中,  $p_k^{h_i e_j}$ 、 $p_k^{e_i e_j}$  和  $p_k^{h_i h_j}$  表示带间相干,  $f_k^{e_i}$  和  $f_k^{h_i}$  分别为电子和空穴的布居,  $e$  和  $h$  分别表示电子和空穴,  $E(t)$  为激光场,  $\varepsilon_k^{e_j}$  和  $\varepsilon_k^{h_i}$  为对应的载流子能带,  $T_1$  表示不对称载流子衰减时间,  $T_2$  为退相时间,  $d_k^{nm'}$  为带与带之间的跃迁偶极矩 ( $n$  和  $n'$  代表  $e_i$ 、 $e_j$ 、 $e_\lambda$ 、 $h_i$ 、 $h_j$ 、 $h_\lambda$  等指数对应的不同能带). 基于 VASP 软件, 应用高精度第一性原理计算得到固体材料的能带结构  $\varepsilon_k$  以及每条能带每个  $k$  点的波函数  $\phi_k$ . 通过公式

$$d_k^{nn'} = \frac{i \langle \phi_k^{n'} | \hat{p} | \phi_k^n \rangle}{(\varepsilon_k^{n'} - \varepsilon_k^n)}, \quad (n \neq n') \quad (6)$$

计算出带与带之间的跃迁偶极矩. 带内电流密度与带间极化可以表示为

$$J(t) = \sum_{n,k} [-2v_k^n f_k^n(t)], \quad (7)$$

$$P(t) = \sum_{n,n',k} [d_k^{nn'} p_k^{nn'}(t) + \text{c.c.}]. \quad (8)$$

其中  $v_k^n$  为各能带的群速度. 高次谐波可以通过公式  $S(\omega) = |\omega P(\omega) + iJ(\omega)|^2$  得到.

### 3 结果与讨论

通常, 双层 MoS<sub>2</sub> 材料具有多种稳定的堆栈结构, 图 1(a) 和 1(b) 所示分别为双层 MoS<sub>2</sub> 材料 AA 型 (层间 S 原子顶对顶) 和 T 型 (层间 S 原子错位) 堆栈下的结构. 通过结构优化, 计算得到的双层 MoS<sub>2</sub> 材料在 AA 型和 T 型堆栈下的晶格参数都在 3.19 Å (1 Å = 0.1 nm) 左右. 然而优化所得的 AA 型堆栈双层 MoS<sub>2</sub> 材料的层间距为 3.69 Å, 较 T 型堆栈双层 MoS<sub>2</sub> 材料的层间距 3.09 Å 大. 图 1(c) 中蓝色区域为双层 MoS<sub>2</sub> 材料的第一布里渊区, 其中  $\Gamma$ - $M$  和  $\Gamma$ - $K$  分别为倒空间中的两个高对称性方向. 由于层状 MoS<sub>2</sub> 材料在  $\Gamma$ - $K$  方向的

高次谐波转换效率要比  $\Gamma$ - $M$  方向低很多<sup>[34]</sup>, 因此在本工作中只关注双层 MoS<sub>2</sub> 材料在  $\Gamma$ - $M$  方向的高次谐波辐射. 此外, 图 1(d) 和 1(e) 分别为 AA 型堆栈和 T 型堆栈双层 MoS<sub>2</sub> 材料在  $\Gamma$ - $M$  方向的能带结构, 图中所示共 12 条价带和 8 条导带. 对比双层 MoS<sub>2</sub> 在两种不同堆栈方式下的能带结构, 发现不管是带隙还是能带的色散分布都几乎保持一致, 也就是说堆栈方式对其能带结构影响很小.

图 2(a) 所示为模拟得到的双层 MoS<sub>2</sub> 材料在 AA 型堆栈 (蓝线) 和 T 型堆栈 (红线) 下的高次谐波谱, 计算过程中共使用了 12 条价带和 8 条导带进行计算. 所用激光为波长为 3200 nm 的中红外激光场, 脉冲的半高全宽为 2 个光周期, 激光电场的峰值强度  $I = 1.0 \times 10^{11}$  W/cm<sup>2</sup>. 对比两种不同堆栈方式下产生的高次谐波谱, 惊奇地发现在谐波谱的高能区域, 双层 MoS<sub>2</sub> 在原子错位的 T 型堆栈下产生高次谐波的转换效率比在 AA 型堆栈下的高次谐波效率高一个数量级. 通常, 固体高次谐波的高能区域主要来源于材料中更高的导带或更低的价带参与跃迁贡献. 如图 2(b) 所示, 若在模拟过程中只考虑 2 条价带 ( $v_1$ ,  $v_2$ ) 和 4 条导带 ( $c_1$ ,  $c_2$ ,  $c_3$ ,  $c_4$ ), 则两种堆栈方式下产生的高次谐波谱基本没有区别, 同时高能区域高次谐波谱消失. 但在模拟中使用 4 条价带 ( $v_1$ ,  $v_2$ ,  $v_3$ ,  $v_4$ ) 和 4 条导带 ( $c_1$ ,  $c_2$ ,  $c_3$ ,  $c_4$ ), 计算得到的高次谐波谱如图 2(c) 所示, 图 2(a) 出现的谐波高能区域增强现象又显现出来. 因此, 确定相比于图 2(b) 中使用的 2 条价带和 4 条导带, 在模拟图 2(c) 高次谐波中额外增加的价带  $v_3$  和  $v_4$  对高能高次谐波的产生起着重要作用, 同时也是影响两种不同堆栈方式下高次谐波谱区别的关键. 由于前面发现对于两种不同堆栈方式下的能带结构几无差别, 因此可认为带间跃迁偶极矩是 T 型堆栈谐波增强的主要因素.

为了阐明 T 型堆栈谐波增强背后的物理机制, 计算出双层 MoS<sub>2</sub> 材料部分能带间的跃迁偶极矩. 图 3(a) 和 3(b) 分别为 AA 型堆栈的第三条价带

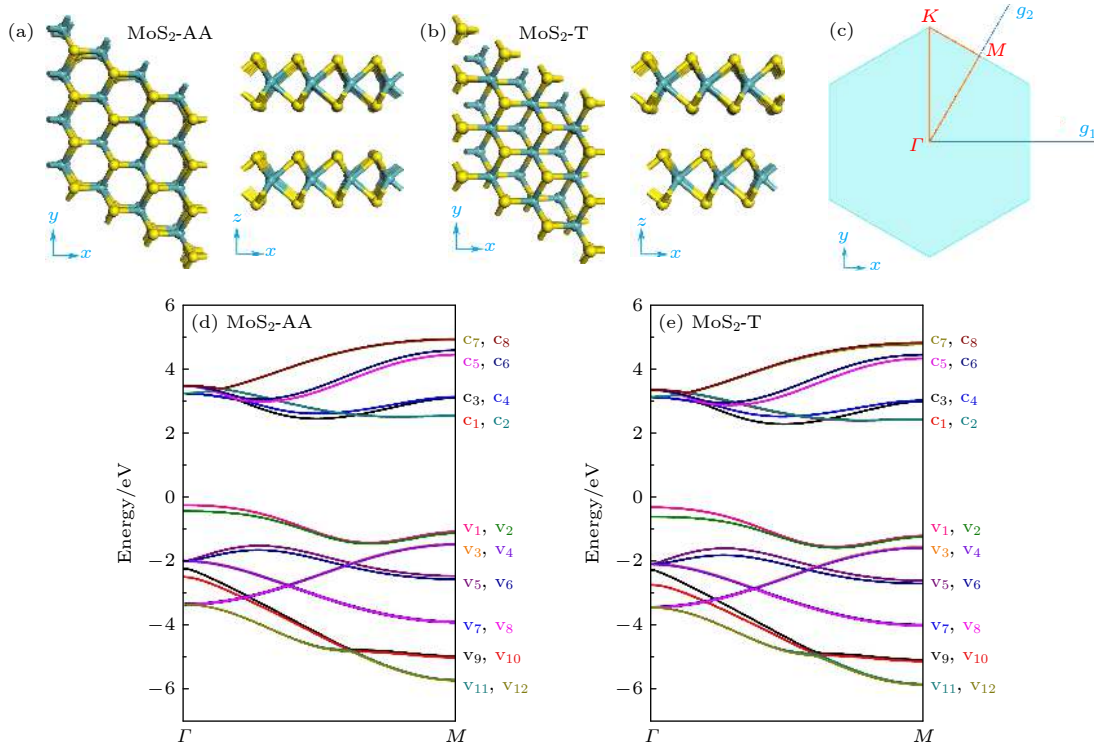


图 1 (a) 和 (b) 分别为双层 MoS<sub>2</sub> 材料 AA 型堆栈和 T 型堆栈结构的俯视图 (上图) 和侧视图 (下图); (c) 双层 MoS<sub>2</sub> 材料的第一布里渊区; (d) 和 (e) 分别为双层 MoS<sub>2</sub> 材料 AA 型堆栈和 T 型堆栈在高对称性  $\Gamma$ -M 方向的能带结构

Fig. 1. Top and side views of bilayer MoS<sub>2</sub> for (a) AA stacking and (b) T stacking; (c) the first Brillouin zone of bilayer MoS<sub>2</sub>; (d) energy bands of bilayer MoS<sub>2</sub> for (a) AA stacking and (b) T stacking in  $\Gamma$ -M direction.

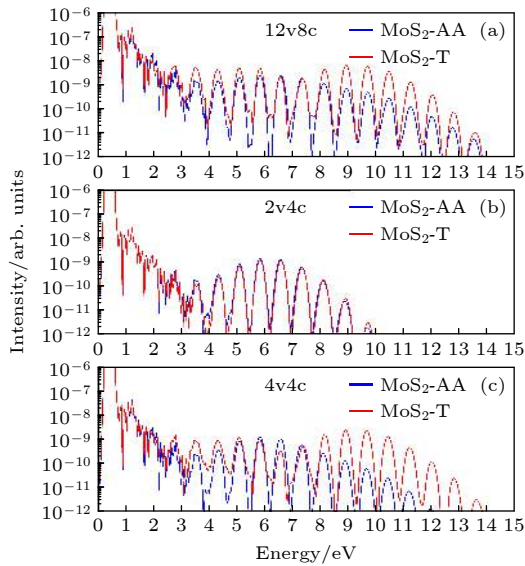


图 2 模拟计算得到的双层 MoS<sub>2</sub> 材料在高对称性  $\Gamma$ -M 方向的高次谐波谱 (红线为 T 型堆栈, 蓝线为 AA 型堆栈) (a) 模拟过程中使用 12 条价带 8 条导带; (b) 模拟过程中使用 2 条价带 4 条导带; (c) 模拟过程中使用 4 条价带 4 条导带

Fig. 2. Calculated high harmonic spectra from bilayer MoS<sub>2</sub> in AA stacking (blue line) and T stacking (red line) with (a) twelve valence bands and eight conduction bands; (b) two valence bands and four conduction bands; (c) four valence bands and four conduction bands used in simulation.

$v_3$  和第四条价带  $v_4$  与最低 4 条导带的带间跃迁偶极矩. 对于 AA 型堆栈, 双层 MoS<sub>2</sub> 材料两层镜面对称, 层与层之间的相互作用非常弱, 电子很难从其中一层跃迁到另外一层, 价带  $v_3$  和  $v_4$  只与同一层内的导带  $c_3$  和  $c_4$  间有带间跃迁偶极矩, 因此相比于图 2(b) 只包含  $v_1$  和  $v_2$  价带, 图 2(c) 中进一步考虑  $v_3$  和  $v_4$  价带贡献的谐波效率略有增强. 然而对于 T 型堆栈, 双层 MoS<sub>2</sub> 镜面对称被打破, 电子有一定几率从其中一层跃迁到另外一层, 因此如 3(c) 和 3(d) 所示在 T 型堆栈中价带  $v_3$  和  $v_4$  与最低的 4 条导带间都有跃迁偶极矩. 分析认为, 正是由于在 T 型堆栈下材料对称性被打破, 使得原有的部分带间禁戒跃迁路径被打开, 带间跃迁激发通道增加, 大大增加了载流子跃迁概率, 使得高次谐波转换效率增强.

此外, 本工作还研究了两种堆栈方式下双层 MoS<sub>2</sub> 材料随驱动激光波长变化的高次谐波谱. 如图 4(a) 和 4(b) 所示, 高次谐波的转换效率随着激光波长的增加逐渐降低, 这主要是因为更长的激光波长对应更小的光子能量, 电子需要吸收更多的光子才能从价带跃迁到导带, 跃迁概率大为降低, 使

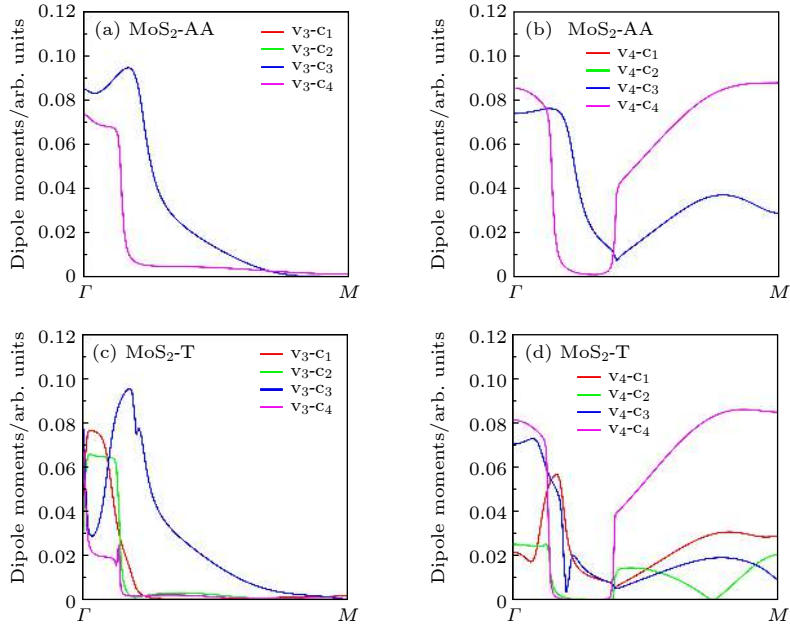


图 3 双层 MoS<sub>2</sub> 材料的部分带间跃迁偶极矩 (a) 和 (b) 分别为 AA 型堆栈的双层 MoS<sub>2</sub> 材料中第三条价带 v<sub>3</sub> 和第四条价带 v<sub>4</sub> 与最低 4 条导带的带间跃迁偶极矩; (c) 和 (d) 分别为 T 型堆栈的双层 MoS<sub>2</sub> 材料中第三条价带 v<sub>3</sub> 和第四条价带 v<sub>4</sub> 与最低 4 条导带的带间跃迁偶极矩

Fig. 3. The parts of transition dipole moments: (a) and (b) show the transition dipole moments among two valence bands (v<sub>3</sub> and v<sub>4</sub>) and four lowest conduction bands in AA stacking, respectively; (c) and (d) how the transition dipole moments among two valence bands (v<sub>3</sub> and v<sub>4</sub>) and four lowest conduction bands in T stacking, respectively.

得高次谐波效率逐渐衰减. 虽然谐波效率整体随着波长变大逐渐降低, 但发现相比于 AA 型堆栈, T 型堆栈 7—12 eV 能量范围的高次谐波在 1000—6000 nm 波长范围内都增强 1 个数量级, 同时随着激光波长的增大该区域谐波相比 AA 型堆栈的增强越明显.

为了定量比较不同堆栈方式下激光波长对双层 MoS<sub>2</sub> 高次谐波效率的影响, 将固定能量范围内的高次谐波强度积分用于定标谐波的产率  $\eta(\lambda)$ . 理论研究表明, 对于稀有气体产生的高次谐波产率遵循波长定标 [35,36]:

$$\eta(\lambda) \sim \lambda^{-x}, \quad x \approx 5-6, \quad (9)$$

而通过计算双层 MoS<sub>2</sub> 高次谐波的波长定标发现, 波长范围不同, 高次谐波的波长定标也不同. 这里取 T 型堆栈相较 AA 型堆栈高次谐波显著增强的 7—12 eV 能量范围 (图 3(b) 中灰色阴影区域) 研究波长定标. 以 AA 型堆栈为例, 如图 5(a) 所示, 可发现激光波长在 1000—2000 nm 范围内, 高次谐波的波长定标遵循  $\lambda^{-1.44 \pm 0.10}$ , 远高于气体高次谐波的波长定标. 随着激光波长的逐渐增大, 高次谐波的波长定标逐渐降低, 如在激光波长在 2000—4000 nm 范围时, 高次谐波的波长定标降

为  $\lambda^{-3.78 \pm 0.10}$ . 当激光波长达到 4000—6000 nm 时, AA 型堆栈的双层 MoS<sub>2</sub> 高次谐波波长定标则接近于气体高次谐波的波长定标. T 型堆栈双层 MoS<sub>2</sub> 高次谐波中具有类似的波长定标规律, 不同之处在于原子错位 T 型堆栈双层 MoS<sub>2</sub> 的高次谐波波长定标随着波长的增大 (2000—6000 nm) 下降速度明显小于 AA 型堆栈, 这也预示着在波长较长的激光驱动下, T 型堆栈相比 AA 堆栈所增强的高次谐波具有更优越的波长定标.

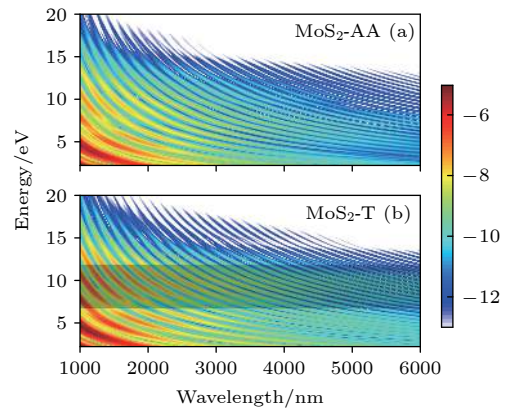


图 4 模拟计算得到的双层 MoS<sub>2</sub> 材料随驱动激光波长变化的高次谐波谱 (a) AA 型堆栈; (b) T 型堆栈

Fig. 4. Wavelength dependent high harmonic spectra from bilayer MoS<sub>2</sub> in (a) AA stacking and (b) T stacking.

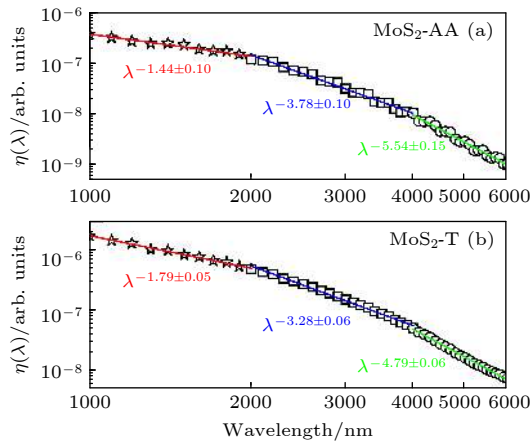


图5 模拟得到的双层 MoS<sub>2</sub> 材料高次谐波产率的波长定标 (a) AA 型堆栈; (b) T 型堆栈; 图中直线由波长定标公式拟合得到

Fig. 5. Wavelength scaling of high harmonic yield from bilayer MoS<sub>2</sub> in (a) AA stacking and (b) T stacking. Lines are fits of the scaling law to the data.

## 4 结 论

本文理论研究了堆栈方式对双层 MoS<sub>2</sub> 材料高次谐波效率的影响, 发现在谐波谱高能区域, 原子错位 T 型堆栈的双层 MoS<sub>2</sub> 在强激光驱动下产生的高次谐波转换效率比 AA 型堆栈的双层 MoS<sub>2</sub> 高一个数量级. 理论分析证明, 由于在 T 型堆栈下双层镜面对称性被打破, 部分带间禁戒跃迁被允许, 带间跃迁概率增加, 高次谐波强度从而提升. 进一步对谐波产率的波长定标研究表明, 在 2000—6000 nm 的中红外激光波长范围, 原子错位 T 型堆栈双层 MoS<sub>2</sub> 材料的高次谐波具有更好的波长定标. 实际上本工作还研究了其他错位堆栈双层 MoS<sub>2</sub> 材料的高次谐波辐射, 相应的谐波转化效率和波长定标介于 AA 堆栈与 T 型堆栈之间, 为免赘述, 未呈现在本文中. 该工作旨在对双层材料进行原子级调控, 探讨固体高次谐波辐射增强的潜在方案, 为实现极紫外阿秒光源提供理论新思路.

## 参考文献

[1] Huttner U, Kira M, and Koch S W 2017 *Laser Photon. Rev.* **11** 1700049  
 [2] Kruchinin S Y, Krausz F, Yakovlev V S 2018 *Rev. Mod. Phys.* **90** 021002  
 [3] Ghimire S, Reis D A 2019 *Nat. Phys.* **15** 10  
 [4] Yu C, Jiang S C, Lu R F 2019 *Adv. Phys. X* **4** 1562982  
 [5] Ghimire S, Dichiara A D, Sistrunk E, Agostini P, Dimauro L

F, Reis D A 2011 *Nat. Phys.* **7** 138  
 [6] Ghimire S, Dichiara A D, Sistrunk E, Szafruga U B, Agostini P, Dimauro L F, Reis D A 2011 *Phys. Rev. Lett.* **107** 167407  
 [7] Zaks B, Liu R B, Sherwin M S 2012 *Nature* **483** 580  
 [8] Schubert O, Hohenleutner M, Langer F, Urbanek B, Lange C, Huttner U, Golde D, Meier T, Kira M, Koch S W 2014 *Nat. Photonics* **8** 119  
 [9] Luu T T, Garg M, Kruchinin S Y, Moulet A, Hassan M T, Goulielmakis E 2015 *Nature* **521** 498  
 [10] Vampa G, Hammond T J, Thire N, Schmidt B E, Legare F, McDonald C R, Brabec T, Corkum P B 2015 *Nature* **522** 462  
 [11] Vampa G, Hammond T J, Thire N, Schmidt B E, Legare F, McDonald C R, Brabec T, Klug D D, Corkum P B 2015 *Phys. Rev. Lett.* **115** 193603  
 [12] You Y S, Reis D A, Ghimire S 2017 *Nat. Phys.* **13** 345  
 [13] Korbman M, Kruchinin S Y, Yakovlev V S 2013 *New J. Phys.* **15** 013006  
 [14] Hawkins P G, Ivanov M Y, Yakovlev V S 2015 *Phys. Rev. A* **91** 013405  
 [15] Wu M, Ghimire S, Reis D A, Schafer K J, Gaarde M B 2015 *Phys. Rev. A* **91** 043839  
 [16] Guan Z, Zhou X X, Bian X B 2016 *Phys. Rev. A* **93** 033852  
 [17] Jin J Z, Xiao X R, Liang H, Wang M X, Chen S G, Gong Q, Peng L Y 2018 *Phys. Rev. A* **97** 043420  
 [18] Li L N, He F 2016 *J. Opt. Soc. Am. B* **34** 2707  
 [19] Li J, Zhang Q, Li L, Zhu X, Huang T, Lan P, Lu P 2019 *Phys. Rev. A* **99** 033421  
 [20] Vampa G, McDonald C R, Orlando G, Klug D D, Corkum P B, Brabec T 2014 *Phys. Rev. Lett.* **113** 073901  
 [21] McDonald C R, Vampa G, Corkum P B, Brabec T 2015 *Phys. Rev. A* **92** 033845  
 [22] Vampa G, McDonald C R, Orlando G, Corkum P B, Brabec T 2015 *Phys. Rev. B* **91** 064302  
 [23] Golde D, Meier T, Koch S W 2006 *J. Opt. Soc. Am. B* **23** 2559  
 [24] Golde D, Meier T, Koch S W 2008 *Phys. Rev. B* **77** 075330  
 [25] Golde D, Kira M, Meier T, Koch S W 2011 *Phys. Status Solidi B* **248** 863  
 [26] Földi P, Benedict M G, Yakovlev V S 2013 *New J. Phys.* **15** 063019  
 [27] Tamaya T, Ishikawa A, Ogawa T, Tanaka K 2016 *Phys. Rev. Lett.* **116** 016601  
 [28] Hohenleutner M, Langer F, Schubert O, Knorr M, Huttner U, Koch S W, Kira M, Huber R 2015 *Nature* **523** 572  
 [29] Yu C, Jiang S C, Wu T, Yuan G L, Peng Y G, Jin C, Lu R F 2020 *Phys. Rev. B* **102** 241407(R)  
 [30] Li J B, Xiao Z, Yue S J, Wu H M, Du H C 2017 *Opt. Express* **25** 18603  
 [31] Liu H, Guo C, Giulio V, Zhang J L, Tomas S, Meng X, Bucksbaum P H, Jelena V, Fan S, Reis D A 2018 *Nat. Phys.* **14** 1006  
 [32] Franz D, Kaassamani S, Gauthier D, Nicolas R, K Holodtsova M, Douillard L, Gomes J T, Lavoute L, Gaponov D, Ducros N 2019 *Sci. Rep.* **9** 5663  
 [33] Yu C, Jiang S C, Wu T, Yuan G L, Wang Z W, Jin C, Lu R F 2018 *Phys. Rev. B* **98** 085439  
 [34] Liu H, Li Y, You Y S, Ghimire S, Heinz T F, Reis D A 2017 *Nat. Phys.* **13** 262  
 [35] Tate J, Auguste T, Muller H G, Salières P, Agostini P, DiMauro L F 2007 *Phys. Rev. Lett.* **98** 013901  
 [36] Schiessl K, Ishikawa K L, Persson E, Burgdörfer J 2007 *Phys. Rev. Lett.* **99** 253903

SPECIAL TOPIC—Toward making functional devices at an atomic scale:  
Fundamentals and frontiers

# Enhancing high harmonic generation in bilayer MoS<sub>2</sub> by interlayer atomic dislocation\*

Yao Hui-Dong<sup>#</sup> Cui Bo<sup>#</sup> Ma Si-Qi<sup>#</sup> Yu Chao<sup>†</sup> Lu Rui-Feng<sup>‡</sup>

(Department of Applied Physics, School of Science, Nanjing University of Science and Technology, Nanjing 210094, China)

( Received 18 April 2021; revised manuscript received 22 May 2021 )

## Abstract

In this paper, the high-order harmonic generation by the interaction between strong laser and bilayer MoS<sub>2</sub> material is studied by numerically solving the multi-band semiconductor Bloch equations. It is found that the conversion efficiency of high-order harmonics generated by T-stacking bilayer MoS<sub>2</sub> is one order of magnitude higher than that of AA-stacking bilayer MoS<sub>2</sub>. The theoretical analysis shows that due to the breaking of crystal symmetry under the atomic level dislocation, part of the interband forbidden transition paths are opened, and the excitation channels of interband transition are increased, which greatly increases the carrier transition probability and enhances the high-order harmonic conversion efficiency. In addition, the study of wavelength scaling of harmonic yield shows that the enhanced high-order harmonics in T-stacking bilayer are better wavelength-dependent under the action of a long wavelength laser ( $> 2000$  nm). This work provides a new idea of how to optimize and enhance the conversion efficiency of solid-state high-order harmonics.

**Keywords:** high harmonic generation, bilayer MoS<sub>2</sub>, stacking pattern, wavelength scaling

**PACS:** 42.65.Ky, 42.65.-k, 68.65.-k

**DOI:** 10.7498/aps.70.20210731

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11704187, 11974185, 11834004), the Fundamental Research Funds for the Central Universities (Grant No. 30920021153), and the Project Funded by China Postdoctoral Science Foundation (Grant No. 2019M661841).

<sup>#</sup> These authors contributed equally.

<sup>†</sup> Corresponding author. E-mail: [chaoyu@njust.edu.cn](mailto:chaoyu@njust.edu.cn)

<sup>‡</sup> Corresponding author. E-mail: [rflu@njust.edu.cn](mailto:rflu@njust.edu.cn)