

激光与光电子学进展

受体掺杂半导体高次谐波产生的理论研究

王燕锋¹, 苗向阳^{2*}¹吕梁学院物理系, 山西 吕梁 033001;²山西师范大学物理与信息工程学院, 山西 临汾 041004

摘要 通过数值求解单电子近似下的一维含时薛定谔方程,从理论上研究了受体掺杂半导体高次谐波的产生。结果表明,受体掺杂后第二平台的谐波效率比未掺杂时提高了约3~4个数量级。理论分析发现,掺杂改变了半导体的能带结构,使价带与第一导带以及第一导带与第二导带之间的带隙变窄,电子更容易隧穿到更高导带,使高导带的电子布居数增大,从而提高了第二平台的谐波效率。

关键词 原子与分子物理学; 高次谐波; 受体掺杂半导体; 含时薛定谔方程

中图分类号 O437

文献标志码 A

DOI: 10.3788/LOP202259.1302001

Theoretical Study of High-Order Harmonic Generation from Acceptor-Doped Semiconductor

Wang Yanfeng¹, Miao Xiangyang^{2*}¹Department of Physics, Luliang University, Luliang 033001, Shanxi, China;²College of Physics and Information Engineering, Shanxi Normal University, Linfen 041004, Shanxi, China

Abstract We theoretically investigate the high-order harmonic generation from acceptor-doped semiconductors by numerically solving the one-dimensional time-dependent Schrödinger equation based on the single electron approximation. The results show that the harmonic efficiency of the second plateau from acceptor-doped semiconductors is about three to four orders of magnitude higher than those from undoped semiconductors. Theoretical analysis shows that doping changes the energy-band structure of the semiconductor, narrows the band gap between the valence band and the first conduction band, and between the first conduction band and the second conduction band. Then it is easier for electrons to tunnel into the higher conduction band, and the electron population of the high conduction band is increased, thus the harmonic efficiency of the second plateau is improved.

Key words atomic and molecular physics; high-order harmonic generation; acceptor-doped semiconductor; time-dependent Schrödinger equation

1 引言

随着激光技术的快速发展,强激光场与气体相互作用产生高次谐波已经得到广泛的研究^[1-3],气体产生的高次谐波效率低,限制了阿秒科学的发展。2011年,Ghimire等^[4]发现中红外激光与半导体 ZnO 相互作用可以产生高次谐波,由于固体具有周期性和高密度的特性,强激光与固体材料相互作用产生高次谐波成为提高谐波效率的潜在方法^[5],同时固体高次谐波谱中携带了晶体的空间结构、能带等信息,可以实现空间结

构成像与能带结构信息的提取^[6-7]。

2015年,Wu等^[8]通过求解周期势下的含时薛定谔方程,发现固体高次谐波呈现双平台结构,第一平台由第一导带和价带之间的带间电流贡献,第二平台由第二、三导带和价带之间的带间电流贡献,且第二平台谐波效率比第一平台低5个数量级。提升第二平台谐波效率,有助于合成高产率的阿秒脉冲。近年来,研究者们提出了很多有效的方法来提高第二平台的谐波效率,例如:双色激光场^[9]、非均匀激光场^[10]、啁啾调频场^[11]、固体叠加态^[12]、半导体掺杂^[13]等。

收稿日期: 2021-08-23; 修回日期: 2021-09-08; 录用日期: 2021-09-10

基金项目: 国家自然科学基金(11974229)、山西省高等学校科技创新项目(2020L0694)

通信作者: *sxymiao@126.com

通过掺杂可以调控激光与半导体作用产生的高次谐波,分析和理解不同类型掺杂如何影响半导体高次谐波的研究受到国内外研究者的关注。Huang等^[13]研究了供体掺杂半导体的高次谐波,发现掺杂后第二平台谐波效率比未掺杂提高了大约1~3个数量级。Yu等^[14]研究发现供体掺杂半导体高次谐波效率与未掺杂相比显著增强。Pan等^[15]的研究结果表明,掺杂半导体的价带和低导带会产生能带分裂,可以通过改变掺杂半导体势阱深度来调控分裂带隙大小,从而增强第二平台的谐波效率。Pattanayak等^[16]研究发现空位缺陷谐波谱呈倾斜谱形,带隙以下谐波谱强度显著增强,谐波谱的截止能量随空位缺陷浓度的增大而增大。Ma等^[17]发现供体掺杂半导体随着掺杂率的增大第二平台谐波效率先增大后减小。

以上研究工作表明不同类型掺杂对固体高次谐波会产生不同程度的影响。目前,供体掺杂和空位缺陷对高次谐波的影响已得到研究,与供体掺杂和空位缺陷相比,受体掺杂后,价带与第一导带之间的带隙变得更窄,使得电子更容易隧穿到更高导带,所以强激光与受体掺杂半导体作用后电子的动力学过程需要进一步详细的研究。本文通过数值求解含时薛定谔方程模拟了受体掺杂半导体高次谐波的产生。研究发现受体掺杂后,第一平台谐波效率无明显变化,第二平台谐波效率提高了约3~4数量级。通过分析掺杂半导体的谐波谱、能带结构和含时布居图,对其物理机制进行了合理解释。

2 理论方法

本文通过数值求解一维含时薛定谔方程,研究了中红外激光与受体掺杂和未掺杂半导体相互作用产生的高次谐波。激光偏振方向沿 x 轴,在长度规范下,一维含时薛定谔方程^[18]可以表述为(如无特殊说明,通篇

使用原子单位)

$$i \frac{\partial}{\partial t} \psi(x, t) = [\hat{H}_0 + xE(t)] \psi(x, t), \quad (1)$$

式中: $\hat{H}_0 = \hat{p}^2/2 + V(x)$ 为无外场作用时的哈密顿算符,其中 \hat{p} 为动量算符, $V(x)$ 为周期性晶格势; $E(t)$ 为激光场的表达式,即 $E(t) = E_0 f(t) \cos(\omega t)$, 其中 E_0 和 ω 分别代表激光的峰值振幅和激光频率。本文采用的激光脉冲包络 $f(t)$ 为 \sin^2 型,脉冲持续时间为8个光周期(optical cycle, o. c.),激光波长为3200 nm,激光强度为 $8.087 \times 10^{11} \text{ W/cm}^2$ 。未掺杂半导体的周期性晶格势采用 Mathieu 势^[19],具体形式为 $V(x) = -V_0 \left[1 + \cos\left(\frac{2\pi x}{a_0}\right) \right]$, 其中 $V_0 = 0.37 \text{ a.u.}$ (原子单位)表示周期势的深度, $a_0 = 8 \text{ a.u.}$ 表示晶格常数, Mathieu 势作为一种典型的模型周期势,目前被广泛应用于固体高次谐波^[13,17]的研究领域中。

对于受体掺杂情况,受主杂质周期性地取代了未掺杂半导体中的原子,形成更浅的有效势。基于 Mathieu 势的掺杂周期势^[16]为

$$V(x) = \begin{cases} -V_0 [1 + \cos(2\pi x/a_0)] & x < m \text{ or } x > n \\ -V_1 [1 + \cos(2\pi x/a_0)] & m \leq x \leq n \end{cases}, \quad (2)$$

式中 $V_1 = 0.26 \text{ a.u.}$ ^[16]。本文数值计算空间范围为63个晶格周期,其坐标区间为 $[-252, 252] \text{ a.u.}$, 如图1(a)所示,在 $[-28, 28] \text{ a.u.}$ 展示了7个晶格的周期势,虚线为未掺杂一维周期势,实线为受体掺杂一维周期势,位于 $[-4, 4] \text{ a.u.}$ 范围内的1个晶格势能参数为 $V_1 = 0.26 \text{ a.u.}$, 每7个晶格掺一个受主杂质,掺杂率为0.143。

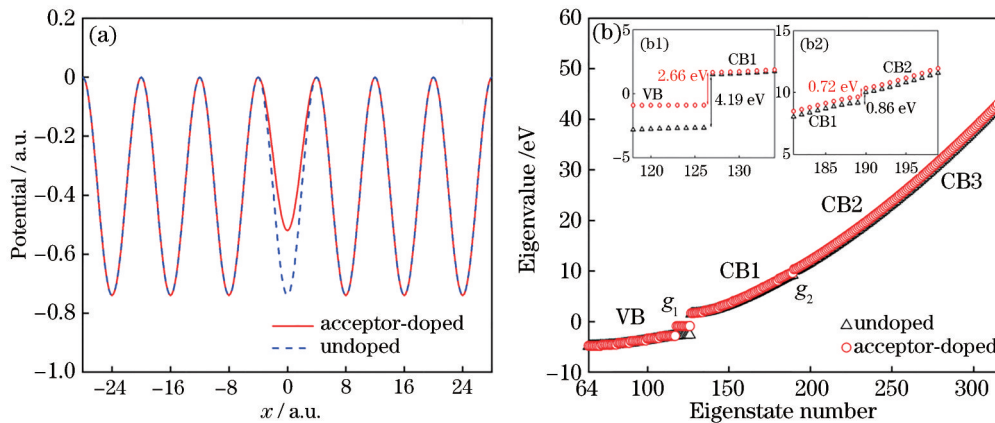


图1 未掺杂和受体掺杂半导体的一维周期势和能带结构图。(a)一维周期势;(b)能带结构

Fig. 1 One-dimensional periodic potentials and energy-band structures of undoped and acceptor-doped semiconductors. (a) One-dimensional periodic potentials; (b) energy-band structures

无外场情况下,通过数值求解能量本征方程可以得到固体的能带结构。能量本征方程为 $\hat{H}_0 \varphi_n(x) =$

$E_n \varphi_n(x)$, 其中 n 是量子态数, E_n 是能量本征值, $\varphi_n(x)$ 是能量本征值 E_n 对应的本征函数。通过在坐标空间

对角化 \hat{H}_0 求解能量本征方程, 图 1(b) 是用对角化方案计算所得到的能带结构图, 三角形和圆圈分别对应未掺杂和受体掺杂半导体的能带结构。未掺杂半导体的每个能带都可以清晰地分辨出来, 价带 (VB) 和导带 (CB1、CB2 和 CB3) 分别对应本征态数 64~126, 127~189, 190~252 和 253~315。受体掺杂改变了半导体的周期性, 如图 1(b) 所示, 掺杂后价带 VB 发生分裂, 本征态数为 118~126 的能带形成了孤立能带, 使 VB 和 CB1 之间的带隙变窄。计算中选择价带顶部的本征态 ($n=126$) 作为初始态^[17]。

求得初始波函数之后, 通过二阶劈裂算符方法求解一维含时薛定谔方程, 得到任意时刻的波函数 $\psi(t)$, 进而得出激光诱导电流^[17]:

$$j(t) = -\langle \psi(t) | \hat{p} | \psi(t) \rangle, \quad (3)$$

对电流 $j(t)$ 作傅里叶变换并取模方就得到了高次谐波谱^[17]:

$$H(\omega) = \frac{2}{3\pi c^2} |j(\omega) e^{-i\omega t} dt|^2, \quad (4)$$

利用小波变换方法进行时频分析^[20]:

$$F_\omega(t) = |j(t') \sqrt{\omega} W[\omega(t'-t)]| dt', \quad (5)$$

其中 $W[\omega(t'-t)]$ 的表达式为

$$W(x) = \frac{1}{\sqrt{\tau}} e^{ix} \exp\left(\frac{-x^2}{2\tau^2}\right). \quad (6)$$

为了进一步得到固体中各个能带电子的含时分布成像^[21] (TDPI) 图, 通过计算含时波函数 $\psi(t)$ 在本征态 φ_n 上投影的模方得

$$|C_n(t)|^2 = |\langle \varphi_n | \psi(t) \rangle|^2. \quad (7)$$

TDPI 图可以描述固体高次谐波产生的电子动力学过程。

3 结果与讨论

为了研究受体掺杂半导体高次谐波谱的特性, 图 2(a)~2(d) 展示了掺杂率分别为 0 (未掺杂)、0.016、0.048、0.111 和 0.143 的高次谐波谱。从图中可以看到未掺杂半导体谐波谱 (虚线) 呈现出明显的双平台结构, 第一平台谐波阶次从第 11 阶到 33 阶; 第二平台谐波阶次从第 42 阶到 111 阶, 第一平台谐波效率比第二平台高约 5 个数量级; 受体掺杂半导体谐波谱 (实线) 第一平台谐波效率无明显提高, 第二平台谐波效率提高了约 3~4 个数量级。

为了更直观地分析第二平台谐波效率提高的物理机制, 图 3 展示了掺杂率为 0 和 0.143 的 TDPI 图。当

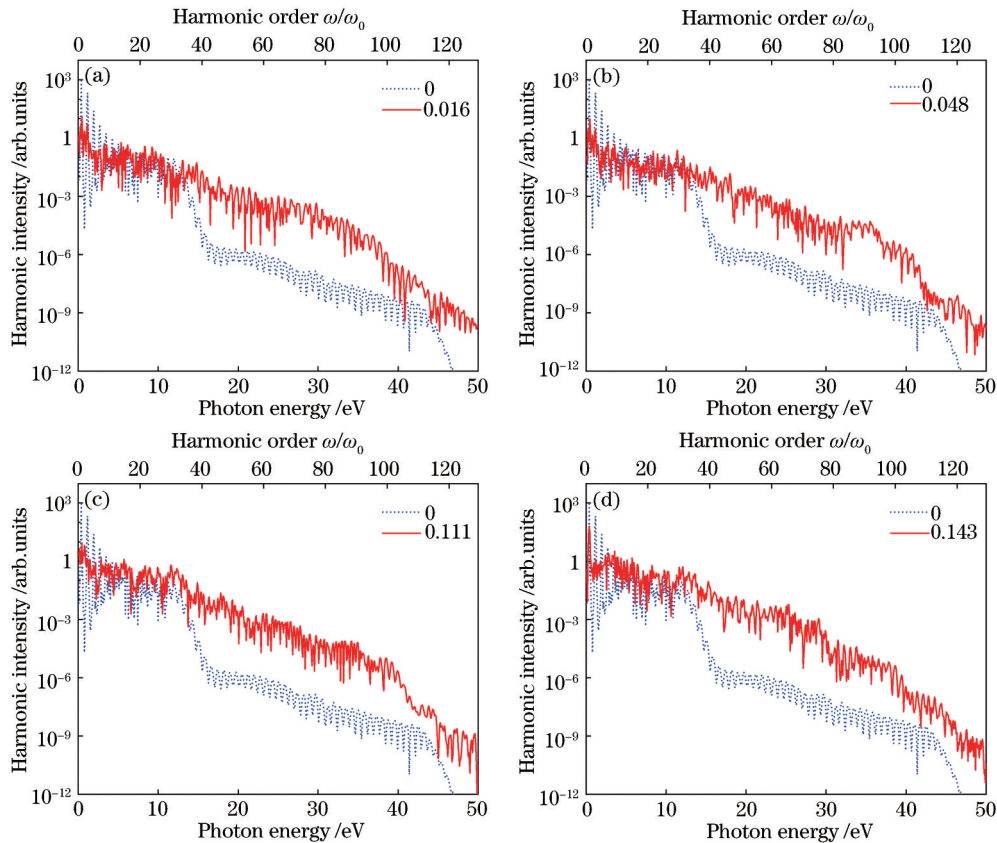


图 2 不同掺杂率的高次谐波谱。虚线展示了未掺杂 (掺杂率为 0) 的高次谐波谱, 实线展示了不同掺杂率的高次谐波谱。(a) 掺杂率为 0.016; (b) 掺杂率为 0.048; (c) 掺杂率为 0.111; (d) 掺杂率为 0.143

Fig. 2 High-order harmonic generation (HHG) spectra with different doping rates. Dotted lines show HHG spectra with doping rate of 0 (undoped) and solid lines show HHG spectra with different doping rates. (a) Doping rate is 0.016; (b) doping rate is 0.048; (c) doping rate is 0.111; (d) doping rate is 0.143

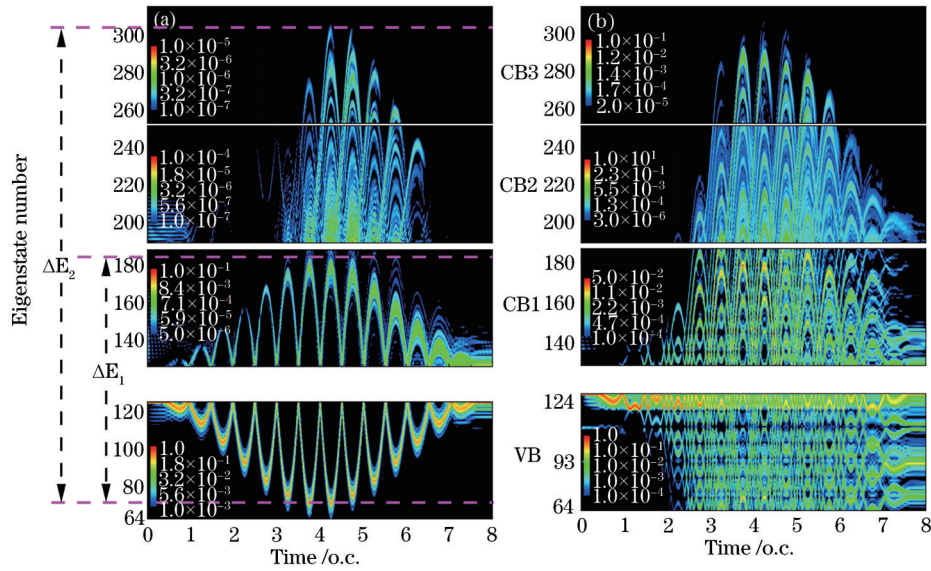


图 3 不同掺杂率下的 TDPI 图。(a) 掺杂率为 0 (未掺杂); (b) 掺杂率为 0.143

Fig. 3 TDPI images with different doping rates. (a) Doping rate is 0 (undoped); (b) doping rate is 0.143

强激光作用在半导体上,位于价带 VB 顶的电子通过 VB 和 CB1 之间的带隙隧穿到 CB1。激光持续作用,隧穿到 CB1 的电子,一部分可以跃迁回 VB 并辐射第一平台高次谐波;另一部分电子在激光作用下继续运动到布里渊区边界,这时 CB1 和 CB2 之间的带隙最小,电子可以从 CB1 隧穿到更高导带 CB2, CB2 中的电子可以跃迁回 VB 并辐射第二平台的高次谐波。在讨论中,如图 1(b) 所示,导带 CB2 和 CB3 之间的带隙接近零,彼此之间有强烈的耦合作用,因此可以将导带 CB2 和 CB3 看成一个整体。图 3(a) 为未掺杂半导体各能带中电子布居分布,VB 和 CB1 之间的带隙 g_1 为本征态数 $n=127$ 和 $n=126$ 之间的能量差 4.19 eV, CB1 和 CB2 之间的带隙 g_2 为量子态 $n=189$ 和 $n=190$ 之间的能量差 0.86 eV。从图中可以看到,位于价带 VB 顶部的电子通过带隙 g_1 隧穿到导带 CB1,电子在 CB1 振荡产生的最高峰值 ($n=180$) 与 VB 的最低峰值 ($n=69$) 之间的能量差 ΔE_1 与第一平台的谐波截止能量一致,即第一平台的谐波由 CB1 到 VB 的电子跃迁产生。电子继续在激光场作用下在 CB1 中运动,当电子运动到 CB1 顶部时,电子可以通过带隙 g_2 跃迁到更高导带 CB2 和 CB3,电子在 CB3 振荡产生的最高峰值 ($n=301$) 与 VB 的最低峰值 ($n=69$) 之间的能量差 ΔE_2 与第二平台的谐波截止能量一致,即第二平台的谐波由 CB3 和 CB2 到 VB 的电子跃迁产生。从图 3(a) 可以看到在 CB1 顶部的电子布居数很小,所以只有很少的电子可以跃迁到更高的导带,因此导带 CB2 和 CB3 中的电子布居数很小,未掺杂半导体第二平台的谐波效率很低。图 3(b) 显示了受体掺杂半导体各能带中的电子布居分布,如图 1(b) 所示,掺杂后价带 VB 出现明显的能带分裂现象,其中本征态数 n 为 118~126 的能带形成了孤立能带。由于孤立能带的出现,

如图 1(b1)~(b2) 所示,掺杂后 VB 和 CB1 之间的带隙 g_1 由 4.19 eV 减小为 2.66 eV,这使得价带 VB 顶部的电子更容易隧穿到导带 CB1,导带 CB1 的电子布居数大大增加;CB1 和 CB2 之间的带隙 g_2 由 0.86 eV 减小为 0.72 eV,使得 CB1 到 CB2 的隧穿更容易发生,所以受体掺杂半导体在 CB2 和 CB3 上的电子布居数大大增加,远远高于未掺杂半导体。由于第二平台主要是由电子从高导带 CB2 和 CB3 跃迁到 VB 贡献的,所以掺杂后第二平台的谐波效率大大提高。

4 结 论

研究了受体掺杂半导体高次谐波的产生和效率,结果表明,受体掺杂改变了半导体的能带结构,价带 VB 发生分裂,本征态数为 118~126 的能带形成了孤立能带,使得 VB 和 CB1 之间的带隙以及 CB1 和 CB2 之间的带隙变窄,因此电子更容易隧穿到更高导带,使得 CB2 和 CB3 的电子布居数增大,从而大大提高了第二平台的谐波效率。

致谢 感谢韩克利研究员提供的计算程序。

参 考 文 献

- [1] 白婷婷,张刚台,王子琪,等.空间非均匀啁啾场驱动氦离子产生单个超短阿秒脉冲[J].中国激光,2020,47(5):0508001.
Bai T T, Zhang G T, Wang Z Q, et al. Isolated ultrashort attosecond pulse generation of helium ion in spatially inhomogeneous chirped field[J]. Chinese Journal of Lasers, 2020, 47(5): 0508001.
- [2] Smirnova O, Mairesse Y, Patchkovskii S, et al. High harmonic interferometry of multi-electron dynamics in molecules[J]. Nature, 2009, 460(7258): 972-977.
- [3] Zhang C P, Xia C L, Jia X F, et al. Multiple rescattering

- processes in high-order harmonic generation from molecular system[J]. *Optics Express*, 2016, 24(18): 20297-20308.
- [4] Ghimire S, DiChiara A D, Sistrunk E, et al. Observation of high-order harmonic generation in a bulk crystal[J]. *Nature Physics*, 2011, 7(2): 138-141.
- [5] Ghimire S, DiChiara A D, Sistrunk E, et al. Generation and propagation of high-order harmonics in crystals[J]. *Physical Review A*, 2012, 85(4): 043836.
- [6] 戴晨, 汪洋, 缪志明, 等. 基于飞秒激光与物质相互作用的高次谐波产生及应用[J]. *激光与光电子学进展*, 2021, 58(3): 0300001.
Dai C, Wang Y, Miao Z M, et al. Generation and application of high-order harmonics based on interaction between femtosecond laser and matter[J]. *Laser & Optoelectronics Progress*, 2021, 58(3): 0300001.
- [7] 魏志义, 钟诗阳, 贺新奎, 等. 阿秒光学进展及发展趋势[J]. *中国激光*, 2021, 48(5): 0501001.
Wei Z Y, Zhong S Y, He X K, et al. Progresses and trends in attosecond optics[J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2021, 48(5): 0501001.
- [8] Wu M X, Ghimire S, Reis D A, et al. High-harmonic generation from Bloch electrons in solids[J]. *Physical Review A*, 2015, 91(4): 043839.
- [9] Li J B, Zhang X, Yue S J, et al. Enhancement of the second plateau in solid high-order harmonic spectra by the two-color fields[J]. *Optics Express*, 2017, 25(16): 18603-18613.
- [10] Du T Y, Guan Z, Zhou X X, et al. Enhanced high-order harmonic generation from periodic potentials in inhomogeneous laser fields[J]. *Physical Review A*, 2016, 94(2): 023419.
- [11] Fan J G, Miao X Y, Jia X F. Control of the high-order harmonic generation by sculpting waveforms with chirp in solids[J]. *Chemical Physics Letters*, 2021, 762: 138136.
- [12] Xia C L, Li Q Q, Cui H F, et al. Enhanced high-order harmonic generation from periodic potentials with initial superposition states[J]. *EPL (Europhysics Letters)*, 2019, 125(2): 24004.
- [13] Huang T F, Zhu X S, Li L, et al. High-order harmonic generation of a doped semiconductor[J]. *Physical Review A*, 2017, 96(4): 043425.
- [14] Yu C, Hansen K K, Madsen L B. Enhanced high-order harmonic generation in donor-doped band-gap materials [J]. *Physical Review A*, 2019, 99(1): 013435.
- [15] Pan X F, Han T, Xia C L, et al. Energy band splitting and high-order harmonic generation from a doped semiconductor[J]. *Laser Physics Letters*, 2019, 16(11): 115301.
- [16] Pattanayak A, Mrudul M S, Dixit G. Influence of vacancy defects in solid high-order harmonic generation [J]. *Physical Review A*, 2020, 101(1): 013404.
- [17] Ma J L, Zhang C P, Cui H F, et al. Theoretical investigation of the electron dynamics in high-order harmonic generation process from the doped periodic potential[J]. *Chemical Physics Letters*, 2020, 744: 137207.
- [18] Chu T S, Zhang Y, Han K L. The time-dependent quantum wave packet approach to the electronically nonadiabatic processes in chemical reactions[J]. *International Reviews in Physical Chemistry*, 2006, 25(1/2): 201-235.
- [19] Slater J C. A soluble problem in energy bands[J]. *Physical Review*, 1952, 87(5): 807-835.
- [20] Zhang C P, Pei Y N, Xia C L, et al. Theoretical research on multiple rescatterings in the process of high-order harmonic generation from a helium atom with a long wavelength [J]. *Laser Physics Letters*, 2017, 14(1): 015301.
- [21] Liu X, Zhu X S, Lan P F, et al. Time-dependent population imaging for high-order-harmonic generation in solids[J]. *Physical Review A*, 2017, 95(6): 063419.