

ЭЛЛИПТИЧЕСКИ ПОЛЯРИЗОВАННЫЕ ВЫСОКИЕ ЛАЗЕРНЫЕ ГАРМОНИКИ В ГЕКСАГОНАЛЬНОЙ ГРАФЕНОВОЙ КВАНТОВОЙ ТОЧКЕ

А.Г. КАЗАРЯН*, Н.О. АРУСТАМЯН, Г.Г. ЧОПУРЯН, Х.В. СЕДРАКЯН

Ереванский государственный университет, Ереван, Армения

*e-mail: amarkos@ysu.am

(Поступила в редакцию 2 апреля 2025 г.)

В настоящей работе исследовано преобразование света в гексагональной графеновой квантовой точке при генерации высоких гармоник в интенсивном лазерном поле. Линейно-поляризованное лазерное поле приводит к интенсивному излучению эллиптически поляризованных гармоник. Эллиптичность и ориентация эллипса поляризации выводятся из параметров Стокса, рассчитанных с учетом различных компонентов поляризации. Численные результаты показывают, что эллиптичность гармоник, генерируемых в квантовой точке, можно легко настроить, изменяя угол наклона линейно-поляризованного лазерного импульса без необходимости использования сложных систем управления.

1. Введение

В последние десятилетия резко вырос интерес к изучению оптических нелинейных свойств твердых тел посредством генерации высоких гармоник [1, 2]. В этом процессе решающее значение имеет повышение эффективности выхода генерации высоких гармоник, которое сильно зависит от плотности излучателя и возможных каналов возбуждения. По сравнению с трехмерными твердыми телами процессы генерации высоких гармоник в двумерном графене [3] и дихалькогенидах переходных металлов [4] привлекли большее внимание из-за их необычных оптических и электронных свойств. Более того, низкоразмерные наноструктуры, такие как графеновая квантовая точка (ГКТ), широко изучаются для преодоления ограничения, связанного с отсутствием щели у однослойного неограниченного графена, т.е. приобретения запрещенной зоны в результате пространственного ограничения графена. При этом, изменяя поперечную форму, размер и тип края графена, можно изменять и настраивать запрещенную зону в ГКТ необходимым образом.

Недавние исследования, особенно связанные с процессом генерации высоких гармоник в двумерных материалах и наноструктурах, также показывают сильную зависимость квантового выхода процесса ГВГ от поляризации импульсов возбуждающей электромагнитной волны, что обеспечивает возможность реализации контролируемой поляризации при генерации жестко-ультрафиолетовых или мягко-рентгеновских импульсов [5]. Следует отметить, что осуществление гармоник с эллиптической или круговой поляризацией является сложной

задачей, требующей специальных комбинаций эллиптического или кругового поляризованных импульсов, и методов молекулярного выравнивания [6].

Целью рассматриваемой статьи является исследование преобразования интенсивного лазерного поля в процессе генерации высоких гармоник в плоской шестиугольной ГКТ с зигзагообразными краями: линейно-поляризованные лазерные импульсы генерируют эллиптически поляризованные гармоники, а эллиптически поляризованные импульсы могут генерировать линейно или эллиптически поляризованные гармоники. Последнее откроет пути для дальнейшего использования возможностей ГКТ в процессе генерации высоких гармоник.

2. Теоретический метод

Для моделирования выбрана плоская шестиугольная ГКТ, которая подвергается воздействию линейно-поляризованного лазерного поля в дипольном приближении, с напряженностью $\mathbf{E}(t) = \mathbf{e}E_0 f(t)\sin(\omega t)$, где $\mathbf{e}$ – единичный вектор поляризации в плоскости графена (XY), E_0 – амплитуда и ω – частота поля; $f(t) = \sin(\pi t/T)$ – медленно меняющаяся огибающая с длительностью импульса T , которая принимается равной 12 периодам волны: $T = 24\pi/\omega$. Мы рассмотрели электромагнитную волну длиной 3 мкм ($\omega = 0.4$ эВ/ $\hbar$). Пиковая интенсивность лазера составляет 5×10^{10} Вт/см². Геометрическая структура ГКТ показана на вставке рис.1. Мы исследовали ГКТ с зигзагообразными краями. Длина между ближайшими узлами в ГКТ составляет 1.42 Å. Мы пренебрегли колебаниями решетки в гамильтониане, используя приближение среднего поля ближайших соседей эмпирической модели сильной связи (МСС) [7, 8] для плоской ГКТ, при взаимодействии с интенсивным лазерным полем. Применена микроскопическая квантовая теория, описывающая нелинейное взаимодействие ГКТ – лазерное поле в динамическом приближении Хартри–Фока [8]. Полный гамильтониан в приближении МСС имеет вид:

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{H}_{\text{int}}, \quad (1)$$

где свободный гамильтониан ГКТ представлен в виде:

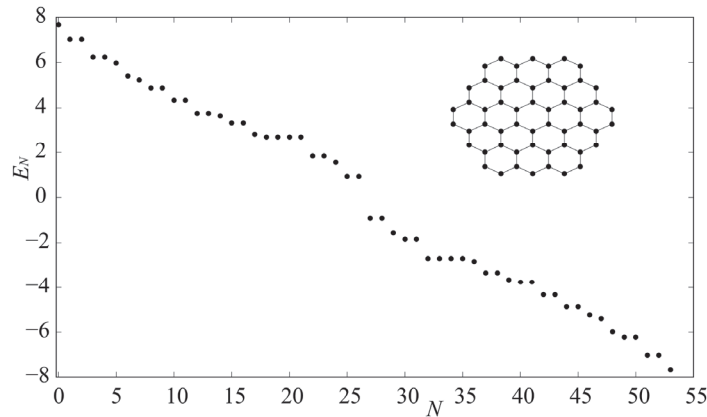


Рис.1. Зависимость энергий E_N собственных состояний от порядка состояния N для гексагональной ГКТ, решетка которой показана на вставке к рисунку. Положительные значения энергии соответствуют зоне проводимости, отрицательные – валентной зоне.

$$\hat{H}_0 = -\sum_{\langle i,j \rangle \sigma} t_{ij} c_{i\sigma}^\dagger c_{j\sigma} + \frac{1}{2} \sum_{\langle i,j \rangle} V_{ij} n_i n_j + \frac{U}{2} \sum_{i\sigma} n_{i\sigma} n_{i\bar{\sigma}}. \quad (2)$$

Здесь $c_{i\sigma}^\dagger$ – оператор рождения и $c_{i\sigma}$ – оператор уничтожения электрона со спиновой поляризацией $\sigma = (\downarrow, \uparrow)$ в узле i , $\langle i,j \rangle$ описывает суммирование по ближайшим соседним узлам с энергией переноса t_{ij} ($\bar{\sigma}$ соответствует противоположной спиновой поляризации); $n_{i\sigma} = c_{i\sigma}^\dagger c_{i\sigma}$ – оператор электронной плотности, $n_i = n_{i\uparrow} + n_{i\downarrow}$ – полная электронная плотность в узле i . Второй и третий члены в (2) соответствуют электрон-электронному взаимодействию (ЭЭВ) в расширенном приближении Хаббарда (с кулоновским отталкиванием с межузловыми энергиями V_{ij} и энергиями в узлах U) [9]. Межузловое кулоновское взаимодействие описывается расстоянием d_{ij} между парами ближайших соседей и энергией $V_{ij} = V d_{\min} / d_{ij}$ ($d_{\min}$ – минимальное расстояние до ближайшего соседа). Первый член в свободном гамильтониане (2) – это часть кинетической энергии гамильтониана в эмпирическом режиме МСС с матричным элементом туннелирования t_{ij} соседних узлов. Интеграл перескока между ближайшими соседними узлами ГКТ в данном приближении взят равным $t_{ij} = 2.7$ эВ, и энергии ЭЭВ $V=0.3U$, $U = 2.75$ эВ выбраны близкими к эмпирическим данным [5]. Взаимодействие лазерного поля с ГКТ описывается в калибровке длины с помощью скалярного потенциала

$$\hat{H}_{int} = e \sum_{i\sigma} \mathbf{r}_i \mathbf{E}(t) c_{i\sigma}^\dagger c_{i\sigma}, \quad (3)$$

с радиус-вектором $\mathbf{r}_i$ и элементарным зарядом e . Из уравнения Гейзенберга [10] получим эволюционные уравнения для одночастичной матрицы плотности $\rho_{ij}^{(\sigma)} = \langle c_{j\sigma}^\dagger c_{i\sigma} \rangle$. Также предположим, что система релаксирует со скоростью γ к равновесному распределению $\rho_{0ij}^{(\sigma)}$. Чтобы описать замкнутую систему уравнений для одночастичной матрицы плотности $\rho_{ij}^{(\sigma)}$; ЭЭВ будем рассматривать в приближении Хартри–Фока [8]. Тогда гамильтониан (2) аппроксимируется следующим образом:

$$\begin{aligned} \hat{H}_0^{HF} = & -\sum_{\langle i,j \rangle \sigma} t_{ij} c_{i\sigma}^\dagger c_{j\sigma} + U \sum_i (\bar{n}_{i\uparrow} - \bar{n}_{0i\uparrow}) n_{i\downarrow} \\ & + U \sum_{i\sigma} (\bar{n}_{i\downarrow} - \bar{n}_{0i\downarrow}) n_{i\uparrow} + \sum_{\langle i,j \rangle} V_{ij} (\bar{n}_j - \bar{n}_{0j}) n_i \\ & - \sum_{\langle i,j \rangle \sigma} V_{ij} c_{i\sigma}^\dagger c_{j\sigma} (\langle c_{i\sigma}^\dagger c_{j\sigma} \rangle - \langle c_{i\sigma}^\dagger c_{j\sigma} \rangle_0). \end{aligned} \quad (4)$$

Таким образом, для элемента матрицы плотности $\rho_{ij}^{(\sigma)}$ получается уравнение

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{\partial \rho_{ij}^{(\sigma)}}{\partial t} = & e \sum_k (\tau_{kj\sigma} \rho_{ik}^{(\sigma)} - \tau_{ik\sigma} \rho_{kj}^{(\sigma)}) + (V_{i\sigma} - V_{j\sigma}) \rho_{ij}^{(\sigma)} \\ & + e \mathbf{E}(t) (\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j) \rho_{ij}^{(\sigma)} - i\hbar \gamma (\rho_{ij}^{(\sigma)} - \rho_{0ij}^{(\sigma)}), \end{aligned} \quad (5)$$

где матрицы $V_{i\sigma}$, $\tau_{i\sigma}$ определяются через матрицу плотности $\rho_{ij}^{(\sigma)}$ следующим образом:

$$V_{i\sigma} = U(\rho_{ii}^{(\bar{\sigma})} - \rho_{0ii}^{(\bar{\sigma})}) + \sum_{j\alpha} V_{ij} (\rho_{ii}^{(\alpha)} - \rho_{0ii}^{(\alpha)}), \quad (6)$$

$$\tau_{ij\sigma} = t_{ij} + V_{ij} (\rho_{ji}^{(\sigma)} - \rho_{0ji}^{(\sigma)}). \quad (7)$$

Интегрирование уравнений (5) по времени для $\rho_{ij}^{(\sigma)}$ выполняется с помощью метода Рунге–Кутты 4-го порядка.

3. Численные результаты и обсуждение

Для изучения процесса генерации высоких гармоник в гексагональной ГКТ мы рассматриваем спектр высоких гармоник с помощью Фурье-преобразования $\mathbf{a}(\Omega)$ дипольного ускорения: $\mathbf{a}(t) = \partial^2 \mathbf{d}(t) / \partial t^2$, где $\mathbf{d}(t) = \langle \sum_{i\sigma} \mathbf{r}_i c_{i\sigma}^\dagger c_{i\sigma} \rangle$ – дипольный момент перехода. Удобно нормализовать дипольное ускорение на множитель $a_0 = \bar{\omega}^2 \bar{d}$, где $\bar{\omega} = 1$ эВ/ $\hbar$ и $\bar{d} = 1$ Å. Мощность, излучаемая на данной частоте, пропорциональна $|\mathbf{a}(\Omega)|^2$. Для прояснения основных аспектов многофотонного процесса генерации высоких гармоник в ГКТ мы предполагаем частоту лазерного возбуждения из ближнего инфракрасного диапазона, равной $\omega = 0.4$ эВ/ $\hbar$, что намного меньше типичных энергий t_{ij} , U , V . Напряженность лазерного поля равна $E_0 = 0.3$ В/Å. Скорость релаксации принимается равной $\hbar\gamma = 0.16$ эВ. Мы также ввели угол θ (угол наклона воздействующего линейно-поляризованного лазерного поля) между вектором поляризации $\mathbf{e} = \{\cos \theta, \sin \theta\}$ и осью x .

На рис.1 показаны собственные энергетические состояния в ГКТ. Рис.2а демонстрирует спектры излучения генерации высоких гармоник в линейно-поляризованном поле, выраженные через величину $\mathbf{a}(\Omega)/a_0$ как функции порядка гармоник для различных углов поляризации $\theta = \arctan(E_y/E_x)$. Величины $\mathbf{a}(\Omega)/a_0$, полученные из компонент $a_x(\Omega)$, $a_y(\Omega)$, задаются соотношением:

$$a(\Omega) = \sqrt{a_x(\Omega)^2 + a_y(\Omega)^2} / a_0. \quad (8)$$

Тот факт, что спектры на рис.2а не идентичны, демонстрирует нелинейную

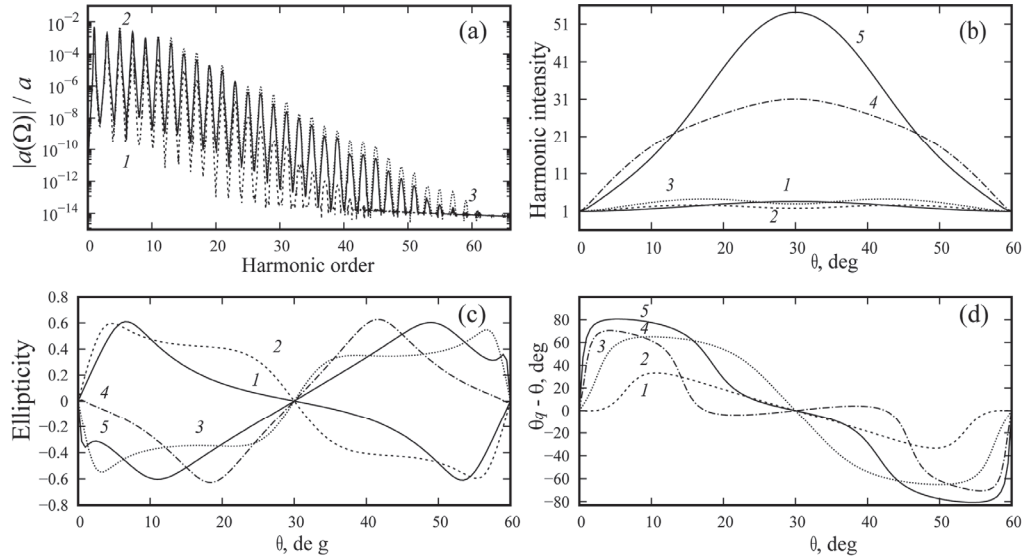


Рис.1. (а) Общий выход процесса генерации высоких гармоник в гексагональной ГКТ с зигзагообразными краями, состоящей из 54 атомов, в линейно-поляризованном поле лазерного импульса для различных составленных с осью x углов наклона: $1 - \theta = 0$, $2 - \theta = 15^\circ$, $3 - \theta = 30^\circ$; общий выход для каждого угла получается путем сложения спектральных компонентов параметров Стокса S_x , S_y . (б) Интенсивности испускаемых гармоник как функция θ ; для каждой гармоники интенсивность нормализуется к значению при $\theta = 0$. (в) Эллиптичность испускаемой гармоники как функция θ ; положительные значения эллиптичности указывают на левостороннюю поляризацию. (г) Сдвиг угла наклона эллипса гармоники относительно угла наклона лазерного поля как функция θ . Для (б–г) имеем: $1 - \text{H}5$, $2 - \text{H}7$, $3 - \text{H}9$, $4 - \text{H}11$, $5 - \text{H}13$.

анизотропную природу оптического отклика в процессе генерации высоких гармоник в интенсивных лазерных полях с существенным удалением места отсечки спектров (cut-off) для разных ориентаций электромагнитного волнового поля, по сравнению с линейно-поляризованным полем электромагнитной волны (также, см. для графена в [11]). Из-за инверсионной симметрии в системе ГКТ – лазер в спектрах генерации высоких гармоник появляются только нечетные гармоники. Рис.2а показывает многократные плато, которые являются следствием интерференции двух различных результатов: внутризонных и межзонных переходов [12, 13]. Вследствие симметрии в гексагональной ГКТ оптический отклик относительно направления поляризации лазерного поля обладает симметрией с периодом угла 60° . Поэтому спектры гармоник, например, для угла поляризации 30° и 90° одинаковы.

На рис.2б показана зависимость интенсивности выхода гармоники от угла поляризации θ линейно-поляризованной электромагнитной волны для различных гармоник. Интенсивность каждой гармоники нормализована к соответствующему значению при $\theta = 0$. Из анализа рис.2б видно заметное различие между гармониками низкого и высокого порядков: 7 и 9-ые гармоники имеют максимальное значение интенсивности для $\theta = 15^\circ$ и 45° , которое увеличивается с порядком гармоники, и минимальную эффективность для $\theta = 30^\circ$. Для гармоник до 7-го и с 11-го и более высоких порядков интенсивности имеют одно максимальное значение при $\theta = 30^\circ$, которое увеличивается с порядком гармоники. Поэтому следует отметить, что оси симметрии ГКТ не соответствуют оптимальному направлению поляризации приложенного лазерного поля для эффективной генерации гармоник.

Далее была изучена ориентация эллипса поляризации гармоники (угол наклона θ_q его главной оси). На рис.2с и рис.2д показаны зависимости от угла θ двух величин: эллиптичности гармоники ε и угла наклона $\theta_q - \theta$ относительно направления поляризации лазера. Последние выводятся из параметров Стокса $(S_0^q, S_1^q, S_2^q, S_3^q)$ с помощью соотношений:

$$\varepsilon_q = \tan \left(0.5 \arctan \left(S_3^q \left(S_1^{q^2} + S_2^{q^2} \right)^{-1/2} \right) \right), \quad (10)$$

$$\theta_q = 0.5 \arctan(S_2^q/S_1^q). \quad (11)$$

Рис.2с демонстрирует, что в процессе генерации высоких гармоник все гармоники линейно-поляризованы, когда действующее лазерное поле совпадает с осью симметрии решетки ГКТ ($\theta = 0$ и 30° , и т. д.), и эллиптически поляризованы в остальных случаях. Эллиптичности гармоник для углов $\theta < 30^\circ$ и $\theta > 30^\circ$ связаны зеркальной симметрией. Мы обнаруживаем заметное различие между гармониками низшего и высшего порядков: для углов $\theta < 30^\circ$ пятая и седьмая гармоники представляют левостороннюю эллиптическую поляризацию, в то время как девятая, одиннадцатая и тринадцатая – правостороннюю. Напротив, в случае выровненных молекул зависимость эллиптичности гармоники от наклона направления действующего поля одинакова для всех порядков гармоник [14]. Согласно [14], частота испускаемой гармоники соответствует мгновенной энергии рекомбинации пары электрон–дырка. А именно, третья и выше гармоники генерируются вблизи точек Дирака, где структура зон изотропна, и, следовательно, излучение третьей и выше гармоник становится нечувствительным к ориентации

поляризации лазерного поля в случае выровненных молекул. Рис.2b и 2c показывают, что ГКТ наиболее эффективна как источник эллиптически поляризованных гармоник, когда ось поляризации лазерного импульса повернута от осей симметрии ГКТ на 4° для 9-й и ниже гармоник и на 15° для 11-й и 13-й гармоник.

Рис.2d показывает, что главная ось постепенно вращается с увеличением порядка гармоники, достигая для 7-ой и ниже гармоник максимальной угловой разницы около $\theta = 15$ или 45° . Для этих углов наклона главная ось эллипса поляризации гармоник уже с 9-ой и выше почти перпендикулярна направлению поляризации действующего лазерного импульса. Итак, анализ рис.2 показывает, что эллиптичность гармоник, генерируемых в ГКТ, можно легко настроить, изменяя угол наклона действующего линейно-поляризованного лазерного импульса, без необходимости сложных конфигураций полей для управления.

4. Заключение

Мы изучили поляризационные свойства излучения при когерентном явлении генерации высоких гармоник в ГКТ под воздействием интенсивных импульсов инфракрасного линейно-поляризованного лазера. Полученные численные результаты показывают, что нелинейный анизотропный отклик ГКТ вызывает трансформацию поляризации генерированных гармоник и возбуждает эллиптически поляризованные гармоники из линейно-поляризованных ведущих инфракрасных импульсов. Сравнение теоретических и численных результатов показывает сверхбыстрое (фемтосекундное) изменение состояния поляризации гармоники при возбуждающих фемтосекундных импульсах эллиптической поляризации. Такое поведение динамики взаимодействия с ГКТ может быть наблюдаемо экспериментально с помощью специальной спектральной интерферометрии [15]. Кроме того, такие импульсы обеспечивают необычный способ для сверхбыстрых экспериментов с зондированием.

Авторы глубоко признательны профессору Г.К. Аветисяну за постоянные ценные рекомендации.

Исследование поддержано Комитетом по Высшему Образованию и Науке МОН РА (исследовательский проект № 24WS-1C004).

ЛИТЕРАТУРА

1. **H.K. Avetissian.** Relativistic Nonlinear Electrodynamics: The QED Vacuum and Matter in Super-Strong Radiation Fields. Springer, New York, 2015.
2. **P. Agostini.** Rev. Mod. Phys., **96**, 030501 (2024).
3. **B. Shan, S. Ghimire, Z. Chang.** Phys. Rev. A, **69**, 021404(R) (2004).
4. **S.K. Tiwari, V. Kumar, A. Huczko, R. Oraon, A.D. Adhikari, G.C. Nayak.** Critical Reviews in Solid State and Materials Sciences, **41**, 257 (2016).
5. **Z.-Y. Chen, R. Qin.** Opt. Express, **27**, 3761 (2019).
6. **O. Zurrón-Cifuentes, R. Boyero-Garcia, C. Hernandez-Garcia, A. Picon, L. Plaja.** Optics Express, **27**, 7776 (2019).
7. **D. Pfannkuche, V. Gudmundsson, P.A. Maksym.** Phys. Rev. B, **47**, 2244 (1993).
8. **A.D. Guclu, P. Potasz, M. Korkusinski, P. Hawrylak.** Graphene Quantum Dots. Springer, Berlin, 2014.

9. **B.R. Avchyan, A.G. Ghazaryan, K.A. Sargsyan, Kh.V. Sedrakian**, JETP Letters, **116**, 428 (2022).
10. **G.P. Zhang**, Phys. Rev. Lett., **91**, 176801 (2003).
11. **N. Yoshikawa, T. Tamaya, K. Tanaka**, Science, **356**, 736 (2017).
12. **K.S. Novoselov, A.K. Geim, S.V. Morozov, D. Jiang, Y. Zhang, S.V. Dubonos, I.V. Grigorieva, A.A. Firsov**, Science, **306**(5696), 666 (2004).
13. **H.K. Avetissian, A.G. Ghazaryan, G.F. Mkrtchian**, Phys. Rev. B, **104**, 125436 (2021).
14. **G. Vampa, C.R. McDonald, G. Orlando, D.D. Klug, P.B. Corkum, T. Brabec**, Phys. Rev. Lett., **113**, 073901 (2014).
15. **M.-W. Lin, I. Jovanovic**, Scientific Reports, **6**, 32839 (2016).

ԷԼԻՊՏԻԿ ԲԵՎԱՌԱՑՎԱԾ ԲԱՐՁՐ ԼԱԶԵՐԱՅԻՆ ՀԱՐՄՈՆԻԿՆԵՐ
ՎԵՑԱՆԿՅՈՒՆ ԳՐԱՖԵՆԱՅԻՆ ՔՎԱՆՏԱՅԻՆ ԿԵՏՈՒՄ

Ա.Գ. ՂԱԶԱՐՅԱՆ, Ն.Օ. ԱՌՈՒՍՏԱՄՅԱՆ, Գ.Հ. ՉՈՊՐՅԱՆ, Խ.Վ. ՍԵԴՐԱԿՅԱՆ

Այս աշխատանքում մենք հետազոտել ենք լույսի փոխակերպումը վեցանկյուն գրաֆենային քվանտային կետում ինտենսիվ լազերային դաշտում բարձր հարմոնիկների գեներացիայի պրոցեսում: Գծային բևեռացված լազերային դաշտը առաջացնում է էլիպտիկ բևեռացված հարմոնիկների ինտենսիվ ճառագայթում: Ստացված հարմոնիկի բևեռացման էլիպսի էլիպսությունը և կողմնորոշումը ստացվում են Մթոքսի պարամետրերից, որոնք հաշվարկվել են՝ հաշվի առնելով բևեռացման տարբեր բաղադրիչներ: Թվային արդյունքները ցույց են տալիս, որ քվանտային կետում առաջացած հարմոնիկների էլիպտիկությունը կարելի է կարգավորել փոխելով գծային բևեռացված լազերային իմպուլսի թեքության անկյունը՝ առանց բարդ կառավարման համակարգերի անհրաժեշտության:

ELLIPTICALLY POLARIZED HIGH LASER HARMONICS
IN THE HEXAGONAL GRAPHENE QUANTUM DOT

A.G. GHAZARYAN, N.O. ARUSTAMYAN, G.H. CHOPURYAN, Kh.V. SEDRAKIAN

In this paper, we studied the transformation of light in a hexagonal graphene quantum dot during the generation of high harmonics in an intense laser field. A linearly polarized laser field leads to intense emission of elliptically polarized harmonics. The ellipticity and orientation of the polarization ellipse are derived from the Stokes parameters calculated, considering various polarization components. Numerical results show that the ellipticity of harmonics generated in a quantum dot can be easily tuned by changing the tilt angle of a linearly polarized laser pulse without complex control systems.