少周期激光脉冲中石墨烯谷极化随载波包络相位的变化及其在谐波信号中的体现

H.K. Avetissian、V. A. Sedrakyan、Kh. V. Sedrakian 和 G. F. Mkrtchian*

Centre of Strong Fields Physics, Yerevan State University, Yerevan 0025, Armenia

我们研究了石墨烯带电载流子在强少周期线偏振激光脉冲作用下的相干动力学。通过在哈特里–福克近似下数值求解广义半导体布洛赫方程，并考虑多体库仑相互作用，所得结果表明，谷极化强烈依赖于载波包络相位（CEP），且这种依赖关系可用简单的正弦定律描述。随后，我们研究了经强少周期激光脉冲预先作用的石墨烯在多周期激光场中的谐波产生。我们表明，二次谐波的强度是一种稳健的可观测量，可用于测定脉冲持续时间不超过两个光学周期时的载波包络相位；在波长为 6.2μm 时，这对应于 40 fs。

arXiv:2304.02320v1 [physics.optics] 5 Apr 2023

I. 引言

在许多半导体和半金属材料中，导带电子占据若干离散能量极小值附近的态，这些极小值称为谷。一般而言，这些离散谷态中的电子具有不同的性质，因此这些材料会呈现依赖于谷的电磁（EM）响应。因此，除了电子自旋之外，我们还拥有一个额外的自由度——谷赝自旋或谷极化。类比于基于自旋的技术中的自旋电子学，人们提出了谷电子学[1–3]，这一领域因其在量子信息科学中的潜在应用而备受关注。实验上，已在多种材料中实现电子的谷极化。在 AlAs 中，利用破缺对称性的应变诱导了谷极化[4]，；在铋中，通过旋转磁场实现[5]，；在金刚石中，通过静电控制谷电流实现[6,7]，；在 MoS_2 中，则借助圆偏振光实现，这归因于谷对比的贝里曲率[8–11]。

谷极化对热晶格振动很敏感，而谷电子学应用需要谷极化弛豫时间极长的材料。从这一角度看，石墨烯[12]，中谷间散射受到抑制[13–15]，因此值得关注。石墨烯的布里渊区中有两个不等价的狄拉克点，它们由时间反演和反演对称性联系[12]。因此，谷对比贝里曲率为零，这使石墨烯难以用于谷电子学；尤其是当人们希望利用强激光脉冲超快操控谷极化时。已有多种方案被提出，用于打破石墨烯基材料中的时间反演或反演对称性，以产生谷极化。石墨烯片中的谷极化可以通过锯齿形边缘[1]，、线缺陷[16]，、具有大质量狄拉克费米子的应变石墨烯[17,18]、反演对称性破缺[19,20],以及单层与双层石墨烯之间的边界[21,22]来实现。石墨烯中的谷极化也可以通过打破时间反演对称性来实现，具体方法是交流机械振动[23]。关于利用光波操控谷，研究表明，不对称的单周期电磁脉冲[24] 或特定偏振的光[25]都能诱导谷电流。近期，针对氮化硼和二硫化钼等有带隙的类石墨烯体系，人们提出了若干不依赖谷对比贝里曲率的光波操控谷方案。一种方案使用双色反向旋转圆偏振激光脉冲[26]，另一种则利用超短线偏振脉冲[27]，或圆偏振脉冲[28]的载波包络相位（CEP）。这些方案已成功应用于本征石墨烯[29–31]；对于线偏振驱动波，研究重点主要放在亚周期激光脉冲上[31]。

石墨烯与强少周期线偏振激光脉冲的相干相互作用问题，可用于解决谷电子学和光波电子学中的两个重要问题[32]。对于谷电子学而言，这可以成为一种有效方法，实现依赖于载波包络相位的谷极化；反过来，也可以通过谷极化测量载波包络相位，这对短脉冲操控至关重要。众所周知，二次谐波对谷极化十分敏感[33–35]，这为解决上述问题提供了途径。本文研究了石墨烯带电载流子暴露于强少周期线偏振激光脉冲时的相干动力学，以此探讨这些问题。我们在哈特里–福克近似下数值求解广义半导体布洛赫方程[36–38]，并考虑多体库仑相互作用，结果表明谷极化强烈依赖于载波包络相位，且这种依赖关系可用简谐定律拟合。随后，我们研究了石墨烯在预先暴露于强少周期激光脉冲后，在多周期激光场中的谐波产生，并探讨了测定载波包络相位的方法。

本文结构安排如下。第二节介绍模型并建立基本方程。第三节展示主要结果。最后，第四节给出结论。

II. 模型与理论方法

我们首先介绍模型和理论方法。假设二维六角形纳米结构与一个少周期中红外激光脉冲相互作用，该脉冲激发相干电子动力学；随后，利用一个强近红外或可见光脉冲对其进行探测，并产生高次谐波。假设两个激光场的偏振平面均与纳米结构所在平面重合（XY）。为便于数值计算并避免残余动量转移，电场$\mathbf{E}(t)$根据矢势的表达式计算如下：

$$\mathbf{A}(t) = f_0(t) A_0 \hat{\mathbf{e}}_0 \sin(\omega_0 t + \phi_{\mathrm{CEP}}) + f_1(t) A_1 \hat{\mathbf{e}}_1 \sin(\omega_1 t + \phi_{\mathrm{CEP1}}), \quad (1)$$

其中，A_0 和 A_1 是矢势的振幅，分别与激光脉冲所施加电场 $E_0 = \omega_0 A_0$ 和 $E_1 = \omega_1 A_1$ 的振幅相关；ω_0 和 ω_1 是基频，$\hat{\mathbf{e}}_0$ 和$\hat{\mathbf{e}}_1$ 是单位偏振矢量，ϕ_{CEP} 和 ϕ_{CEP1} 是载波包络相位。两个波的包络由正弦平方函数描述

$$f_{0,1}(t + t_{0,1}) = \begin{cases} \sin^2(\pi t/\tau_{0,1}), & 0 \le t \le \tau_{0,1}, \\ 0, & t < 0, t > \tau_{0,1}, \end{cases} \quad (2)$$

其中，τ_0 和 τ_1 表征脉冲的持续时间，t_1 和 t_2 定义脉冲的起始时刻。对于探测波，我们假设 $\tau_1 >> 2\pi/\omega_1$。在这种情况下，电场对载波包络相位的具体依赖关系并不重要。因此取$\phi_{\mathrm{CEP1}} = 0$。对于少周期泵浦脉冲，电场节点和峰值的确切位置至关重要，因为它决定了受激电子的动量分布，而后者又决定了与探测脉冲相互作用期间的谐波谱。对于泵浦波脉冲，包络 $f_0(t)$的选取应使最大电场强度在 $t = 0$ 和 $\phi_{\mathrm{CEP}} = 0$处达到。

单层石墨烯与电磁场的相互作用采用哈特里–福克近似下的广义半导体布洛赫方程进行描述。技术细节见文献[36–38]；为保证自洽性，下面列出主要方程。因此，休斯顿基底中的布洛赫方程为

$$\partial_t \mathcal{N}(\mathbf{k}_0, t) = -2\mathrm{Im}\{[\mathbf{E}(t)\mathbf{D}_{\mathrm{tr}}(\mathbf{k}_0 + \mathbf{A}) + \Omega_c(\mathbf{k}_0 + \mathbf{A}, t; \mathcal{P}, \mathcal{N})]\mathcal{P}^*(\mathbf{k}_0, t)\}, \quad (3)$$

$$\partial_t \mathcal{P}(\mathbf{k}_0, t) = -i[\mathcal{E}_{eh}(\mathbf{k}_0 + \mathbf{A}) - i\Gamma]\mathcal{P}(\mathbf{k}_0, t) + i[\mathbf{E}(t)\mathbf{D}_{\mathrm{tr}}(\mathbf{k}_0 + \mathbf{A}) + \Omega_c(\mathbf{k}_0 + \mathbf{A}, t; \mathcal{P}, \mathcal{N})] \times [1 - 2\mathcal{N}(\mathbf{k}_0, t)], \quad (4)$$

其中，$\mathcal{P}(\mathbf{k}\ t) = \mathcal{P}'(\mathbf{k}\ t) + i\mathcal{P}''(\mathbf{k}\ t)$ 表示带间极化，$\mathcal{N}(\mathbf{k}\ t)$ 表示导带中的电子分布函数。电子-空穴能量

$$\mathcal{E}_{eh}(\mathbf{k}) = 2\mathcal{E}(\mathbf{k}) - \Xi_c(\mathbf{k}, t; \mathcal{P}, \mathcal{N}) \quad (5)$$

通过能带能量定义

$$\mathcal{E}(\mathbf{k}) = \gamma_0 |f(\mathbf{k})|, \quad (6)$$

以及多体库仑相互作用能

$$\Xi_c(\mathbf{k}, t; \mathcal{P}, \mathcal{N}) = \frac{2}{(2\pi)^2} \int_{BZ} d\mathbf{k}' V_{2D}(\mathbf{k} - \mathbf{k}') \times \{f_c(\mathbf{k}, \mathbf{k}')\mathcal{N}(\mathbf{k}') + f_s(\mathbf{k}, \mathbf{k}')\mathcal{P}''(\mathbf{k}', t)\}. \quad (7)$$

在式（6）中，γ_0 是最近邻跃迁的转移能，结构函数为

$$f(\mathbf{k}) = e^{i\frac{ak_y}{\sqrt{3}}} + 2e^{-i\frac{ak_y}{2\sqrt{3}}} \cos\left(\frac{ak_x}{2}\right), \quad (8)$$

其中 a 是晶格间距。在式（7）中

$$f_c(\mathbf{k}, \mathbf{k}') = \cos[\arg f(\mathbf{k}') - \arg f(\mathbf{k})],$$
$$f_s(\mathbf{k}, \mathbf{k}') = \sin[\arg f(\mathbf{k}') - \arg f(\mathbf{k})].$$

电子-电子相互作用势采用屏蔽库仑势[36]建模：

$$V_{2D}(\mathbf{q}) = \frac{2\pi}{\epsilon\epsilon_{\mathbf{q}}|\mathbf{q}|}, \quad (9)$$

它考虑了二维纳米结构中由衬底引起的屏蔽（ϵ）以及价电子产生的屏蔽（$\epsilon_{\mathbf{q}}$）。我们取 $\epsilon \simeq 4$，其值接近夹在 SiO_2 之间的石墨烯层的数值。纳米结构价电子引起的屏蔽通过介电函数 $\epsilon_{\mathbf{q}}$ 的 Lindhard 近似计算。一般而言，应考虑动态屏蔽问题。然而，这里采用的假设是合理的，因为石墨烯介电屏蔽在大 q 下的行为不依赖于电子密度[39]，而且我们考虑的是超短时间尺度。在式（4）中，Γ 是阻尼率。在式（3）和式（4）中，带间跃迁通过跃迁偶极矩定义

$$\mathbf{D}_{\mathrm{tr}}(\mathbf{k}) = -\frac{a}{2|f(\mathbf{k})|^2} \sin\left(\frac{\sqrt{3}}{2}ak_y\right) \sin\left(\frac{ak_x}{2}\right) \hat{\mathbf{x}} + \frac{a}{2\sqrt{3}|f(\mathbf{k})|^2} \left(\cos(ak_x) - \cos\left(\frac{\sqrt{3}}{2}ak_y\right) \cos\left(\frac{ak_x}{2}\right)\right) \hat{\mathbf{y}}, \quad (10)$$

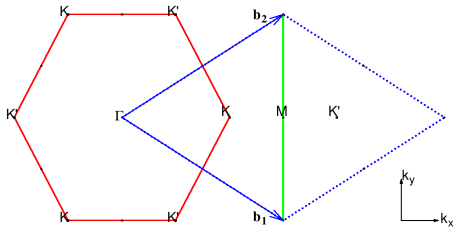

图1. 倒格子的六角形第一布里渊区（红色实线）。由倒格矢构成的菱形（蓝色虚线）是第二布里渊区的约化区域，其中包含第一布里渊区的相同矢量。经过 M 点的绿色实线将菱形分为左右两个三角形，其中包含由 D_{3h} 群描述的两个谷。

而光与物质的耦合则通过所有产生的电子-空穴激发的内部偶极场定义：

$$\Omega_c\left(\mathbf{k},t;\mathcal{P},\mathcal{N}\right)=\frac{1}{\left(2\pi\right)^2}\int_{BZ}d\mathbf{k}'V_{2D}\left(\mathbf{k}-\mathbf{k}'\right)$$

$$\times\left\{\mathcal{P}'\left(\mathbf{k}',t\right)+if_c\left(\mathbf{k},\mathbf{k}'\right)\mathcal{P}''\left(\mathbf{k}'\right)-if_s\left(\mathbf{k},\mathbf{k}'\right)\mathcal{N}\left(\mathbf{k}',t\right)\right\}. \tag{11}$$

为简化表达，除非另有说明，本文均采用原子单位制。假设初始条件 $\mathcal{P}(\mathbf{k},0)=0$ 和 $\mathcal{N}(\mathbf{k},0)=0$ 成立，并忽略热占据。我们将对这些方程进行数值求解。在约化布里渊区中对这些方程进行积分更为方便，该区域包含第一布里渊区中等价的k点，参见图1。

为量化谷极化，我们引入谷不对称参数：

$$\eta=2\frac{N_+-N_-}{N_++N_-}, \tag{12}$$

其中，N_- 和 N_+ 分别表示两个谷周围的电子数目，可通过对图1中的左侧（BZ_L）和右侧三角形（BZ_R）积分得到：

$$N_-(t)=\frac{1}{\left(2\pi\right)^2}\int_{BZ_L}d\mathbf{k}\mathcal{N}\left(\mathbf{k},t\right), \tag{13}$$

$$N_+(t)=\frac{1}{\left(2\pi\right)^2}\int_{BZ_R}d\mathbf{k}\mathcal{N}\left(\mathbf{k},t\right). \tag{14}$$

显然，式(12)中的分母是导带中的总电子布居数 $N(t)$：

$$N(t)=N_-(t)+N_+(t)=\frac{1}{\left(2\pi\right)^2}\int_{BZ}d\mathbf{k}\mathcal{N}\left(\mathbf{k},t\right). \tag{15}$$

III. 结果

在概述了上述设定之后，我们首先考虑石墨烯带电载流子的相干动力学，这些载流子暴露于强少周期线偏振激光脉冲。我们的结果通过求解相应的广义半导体布洛赫方程（3）和（4）得到：在自由载流子近似下进行解析求解，并在计入多体库仑相互作用的哈特里–福克近似下进行数值求解。

A. 石墨烯中谷极化对载波包络相位的依赖

由式(3)和式(4)可见，布里渊区的激发图样由泵浦脉冲的矢势决定；要获得整体谷极化，必须打破独立石墨烯的对称性。尽管石墨烯的晶格是中心对称的，谷 K 和 K' 由缺乏空间反演的波矢群 $D_{3\mathrm{h}}$ 描述。这些谷位于图1中菱形的左右三角形内，并通过空间反演 I彼此相连。因此，独立石墨烯 $D_{6h}=D_{3h}\times I$ 的整体对称性是中心对称的。

在图2中，我们绘制了单周期和双周期脉冲的电场 $E(t)$和矢势 $A(t)$，分别对应余弦脉冲 $\phi_{\mathrm{CEP}}=0$ 和正弦脉冲 $\phi_{\mathrm{CEP}}=\pi/2$。由图2可见，在时间反演 $t\to-t$ 下，余弦脉冲的电场保持不变，而正弦脉冲的电场改变符号。对于决定布里渊区激发图样的矢势 $A(t)$，情况则相反。正弦脉冲具有矢势的优先取向——即最大场峰的取向。对称性破缺在谷极化中有显著表现。为获得最大谷极化，矢势振幅应沿 $\Gamma-K$ 方向，且接近两个狄拉克点K $\left(k_b/\sqrt{3},0\right)$与K′ $\left(2k_b/\sqrt{3},0\right)$之间波矢间距的大小，其中 $k_b=4\pi/\sqrt{3}a$。波粒相互作用将由无量纲参数$\chi_{0,1}=eE_{0,1}a/\hbar\omega_{0,1}$ 表征，它表示波电场$E_{0,1}$ 在一个晶格间距上所做的功，以光子能量$\hbar\omega_{0,1}$为单位。为清晰起见，该参数在此以一般单位写出。由$\chi_{0,1}$表示的激光束总强度可估计为：

$$I_{\chi_{0,1}}=\chi_{0,1}^2\times\left[\hbar\omega_{0,1}/\mathrm{eV}\right]^2\times\left[\text{Å}/a\right]^2\times1.33\times10^{13}\ \mathrm{W\ cm^{-2}}. \tag{16}$$

条件 $A_0\sim\left|\mathrm{K}-\mathrm{K}'\right|$ 等价于 $\chi_0\sim4\pi/3$。对于这两种波，我们将限制相互作用参数，使强度低于石墨烯的损伤阈值[40] $I_{\chi_{0,1}}<I_{\mathrm{dam}}\simeq2\ TW/cm^2$ 。使用 Ti:sapphire 激光对石墨烯进行的实验[41,42]表明，在光发射期间，石墨烯中的载流子通过极快的电子—电子散射迅速达到热平衡。这种快速弛豫与理论研究[43,44], 相符；这些研究预测散射时间为数十飞秒。因此，在与少周期中红外激光相互作用期间

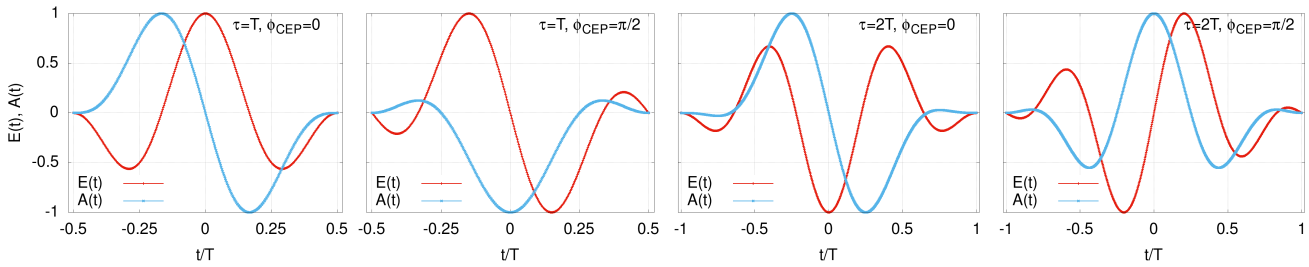

图 2. 余弦脉冲和正弦脉冲的单周期与双周期脉冲中，电场和矢势相对于最大值归一化后随时间的变化。

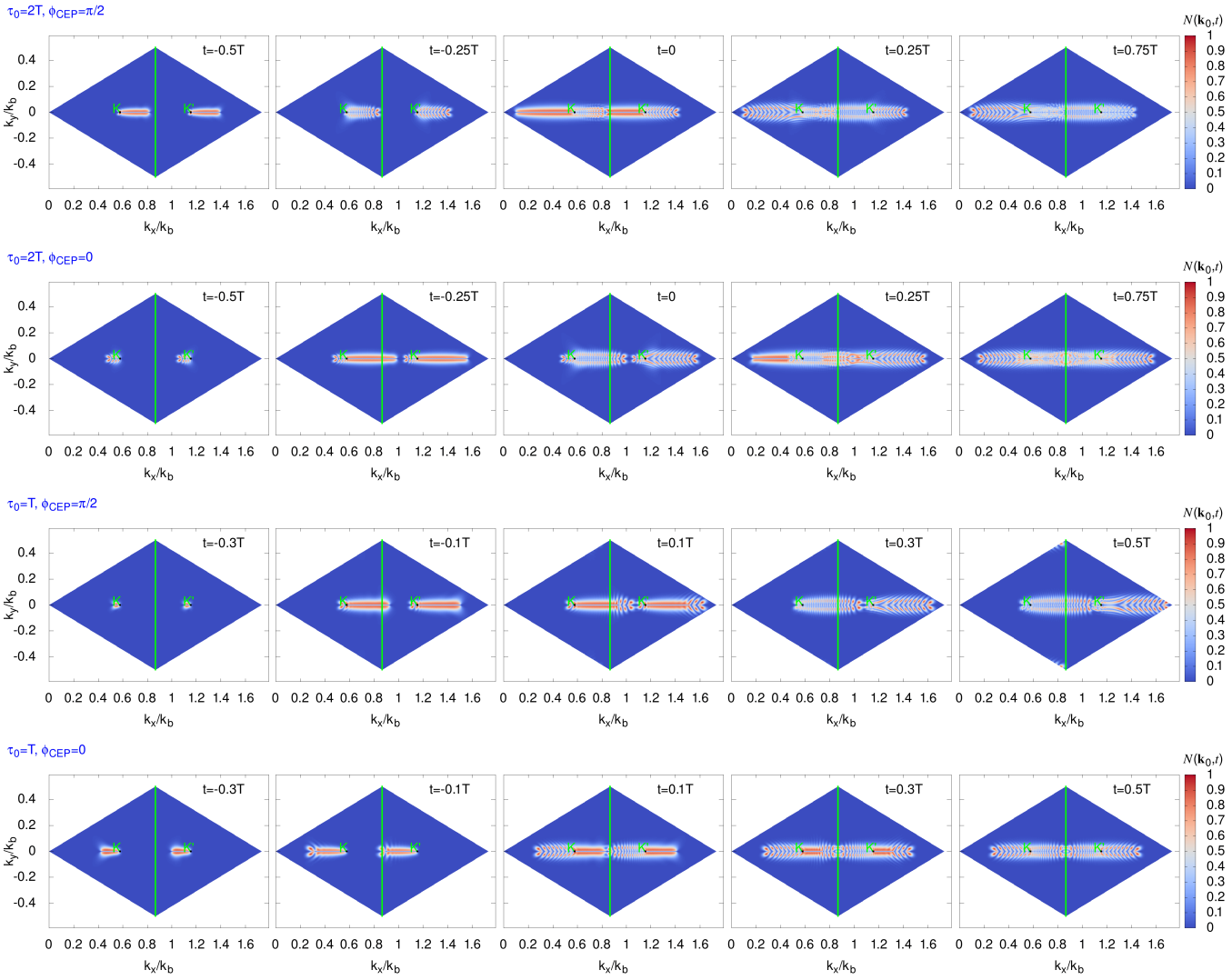

图 3. 石墨烯与双周期激光脉冲（上方两行）和单周期激光脉冲（第 3、4 行）相互作用期间各个时刻的粒子分布函数 $\mathcal{N}(\mathbf{k}\ t)$（任意单位），其随缩放后的无量纲动量分量（$k_x/k_b$, k_y/k_b）变化。基频为 $\omega_0 = 0.2$ eV$/\hbar$，波粒相互作用参数取为 $\chi_0 = 3.5$（强度为 1 TW$/$cm^2）。

激发相干电子动力学的脉冲，其弛豫时间取为波的周期 $\Gamma^{-1} = 2\pi/\omega_0$。随后用强近红外或可见光脉冲探测受激发的石墨烯时，弛豫时间假定为 $\Gamma^{-1} = 2\pi/\omega_1$。

图 3 展示了石墨烯中带电载流子暴露于强少周期线偏振激光脉冲时典型的相干动力学。激光场沿 $\Gamma - K$ 方向（x 轴）偏振。图中展示了粒子分布函数 $\mathcal{N}(\mathbf{k}\ t)$ 在与双周期和单周期激光脉冲相互作用期间各个时刻在约化布里渊区中的分布。如图所示，可以追踪激发图样与矢势随时间变化之间的关联（图 2）。特别是，对于正弦脉冲（见第一行和第三行），由于矢势具有优选方向（见图 2），最终会有一个谷被占据。对于余弦脉冲（见第二行和第四行），尽管在激光脉冲的前半段出现了谷极化，但在后半段，平衡状态得以恢复。请注意，只有当激光偏振沿 $\Gamma - K$ 方向时，这种谷极化图像才成立，而且它具有阈值特性：在一个谷附近产生的电子应当转移到相反的谷。为了得到定量上更令人满意的解释，我们需要对方程 (3) 和 (4) 进行解析求解。为此，我们在布洛赫方程 (3) 和 (4) 中忽略库仑项和弛豫项；对于少周期激光脉冲而言，这样做是合理的。

因此，方程（4）中带间极化的形式解可写为：

$$\mathcal{P}(\mathbf{k}_0,t) = i\int_{-\tau_0/2}^{t} dt' e^{-iS\left(\mathbf{k}_0,t',t\right)} E\left(t'\right) D_{\mathrm{tr}}\left(\mathbf{k}_0 + \mathbf{A}\left(t'\right)\right) \times \left[1 - 2\mathcal{N}(\mathbf{k}_0,t')\right], \tag{17}$$

其中

$$S\left(\mathbf{k}_0,t',t\right) = \int_{t'}^{t} \left[\mathcal{E}_{eh}\left(\mathbf{k}_0 + \mathbf{A}\left(t''\right)\right)\right] dt'' \tag{18}$$

是经典作用量。可以看出，电子-空穴产生振幅由跃迁偶极矩 $D_{\mathrm{tr}}(\mathbf{k}_0)$在狄拉克点附近的奇异性所决定。在这种情况下，由于能隙消失，电子-空穴产生由价带电子非绝热地穿越狄拉克点[45]而引发。在图4(a)和图4(b)中，我们针对晶体动量$\mathbf{k}_0$ 的两个特定取值绘制了 $\mathcal{N}(\mathbf{k}_0,t)$，并同时给出含时动量$\mathbf{k}\left(t\right)\ = \mathbf{k}_0 + \mathbf{A}(t)$。水平线是以 k_b为单位的狄拉克动量$1/\sqrt{3}$ 。由图4(a)和图4(b)可以清楚地看出，当动量接近狄拉克点时，激发几乎瞬时发生：$\mathbf{k}(t)\ = \mathbf{k}_D$。因此，我们可以认为，要在布里渊区的任意一点激发电子，穿越狄拉克点是必要的，但正如我们将看到的，这并不是充分的。非绝热动力学表明，式(17)可以大幅简化。如

在文献[45], 中，我们将跃迁偶极矩的奇异性建模为两个谷中的狄拉克δ函数，从而定义 $D_{\mathrm{tr}}(\mathbf{k}_0)$：$D_{\mathrm{tr}}\left(\mathbf{k}_0\right) = D_0\left(\delta\left(\mathbf{k}_0 - \mathbf{k}_D\right) - \delta(\mathbf{k}_0 + \mathbf{k}_D)\right)$。在式(17)中作此替换后，我们得到：

$$\mathcal{P}(\mathbf{k}_0,t) \propto i\sum_{t_{d_+}} e^{-iS\left(\mathbf{k}_0,t_{d_+},t\right)} E\left(t_{d_+}\right) - i\sum_{t_{d_-}} e^{-iS\left(\mathbf{k}_0,t_{d_-},t\right)} E\left(t_{d_-}\right), \tag{19}$$

其中，对于给定的$\mathbf{k}_0$，t_{d_+} 和 t_{d_-} 是以下方程的解：

$$\mathbf{k}_0 = \mathbf{k}_D - \mathbf{A}\left(t_{d_+}\right), \tag{20}$$

$$\mathbf{k}_0 = -\mathbf{k}_D - \mathbf{A}\left(t_{d_-}\right). \tag{21}$$

这些方程可能有多个解。在图 4(a) 和 4(b) 中，我们有两个解 $t_{d_{1+}}$、$t_{d_{2+}}$。根据相位差 $\delta S = S\left(\mathbf{k}_0,\ t_{d_{1+}},\ t_{d_{2+}}\right)$，将产生相长干涉或相消干涉。因此，我们可以认为，要激发布里渊区中任意一点的电子，必要且充分的条件是：电子经过狄拉克点时，多次经过所产生的干涉为相长干涉。这一发现解释了图 3 中的干涉图样。现在，我们用同样的假设计算各个谷周围的电子布居数。由方程（17），结合方程（3），可得

$$N_+(\tau_0/2) \propto \int_{-\tau_0/2}^{\tau_0/2} dt' E^2\left(t'\right) - \mathrm{Re}\sum_{t_2}\int_{-\tau_0/2}^{\tau_0/2} dt_1 E\left(t_1\right) \times E\left(t_2\right) e^{iS(\mathbf{k}_D - \mathbf{A}(t_1),t_2,t_1)} \tag{22}$$

其中，对于给定的 t_1，t_2 由以下方程定义

$$\mathbf{A}\left(t_2\right) - \mathbf{A}\left(t_1\right) = -2\mathbf{k}_D. \tag{23}$$

类似地，我们有

$$N_-(\tau_0/2) \propto \int_{-\tau_0/2}^{\tau_0/2} dt' E^2\left(t'\right) - \mathrm{Re}\sum_{t_2}\int_{-\tau_0/2}^{\tau_0/2} dt_1 E\left(t_1\right) \times E\left(t_2\right) e^{iS(-\mathbf{k}_D - \mathbf{A}(t_1),t_2,t_1)} \tag{24}$$

with

$$\mathbf{A}\left(t_2\right) - \mathbf{A}\left(t_1\right) = 2\mathbf{k}_D, \tag{25}$$

从式（22）和式（24）可以看出，对于两个谷，都有一项由脉冲的强度面积决定。此外，还有一项：当在一个狄拉克点附近产生的电子在动量空间中到达另一个狄拉克点时，该项非零。

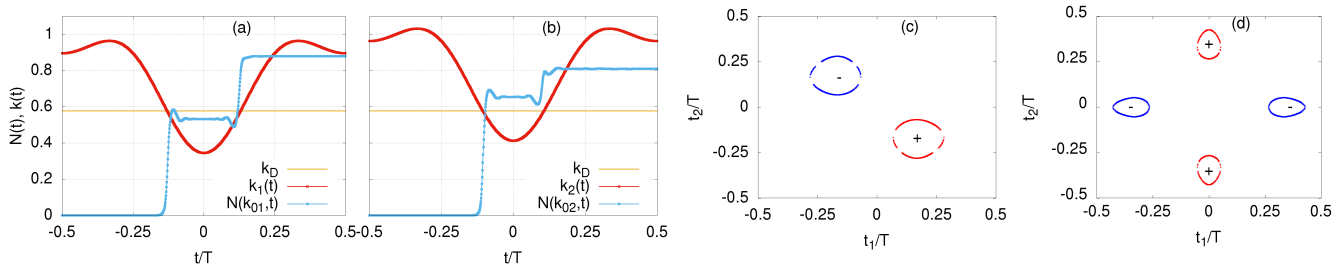

图 4. 与单周期正弦脉冲（$\phi_{\mathrm{CEP}} = \pi/2$）相互作用时，粒子分布函数 $\mathcal{N}(\mathbf{k}\ t)$ 随时间的变化，针对特定晶体动量 $\mathbf{k}_0$=(k_x/k_b, k_y/k_b)：(a) $\mathbf{k}_0$=(0.9, −0.033) 和 (b) $\mathbf{k}$=(0.96, 0.025)。图中还绘出了动量的 x 分量 $\mathbf{k}(t) = \mathbf{k}_0 + \mathbf{A}$ 以及狄拉克点动量（$k_D/k_b = 1/\sqrt{3}$）。所有绘制的量均为无量纲量。(c) 和 (d) 分别绘出了余弦脉冲和正弦脉冲对应的方程 (23) 和 (25) 的根。基频为 $\omega_0 = 0.2\,\mathrm{eV}/\hbar$，波粒相互作用参数取为 $\chi_0 = 4$（强度为 1.4 $\mathrm{TW/cm^2}$）。

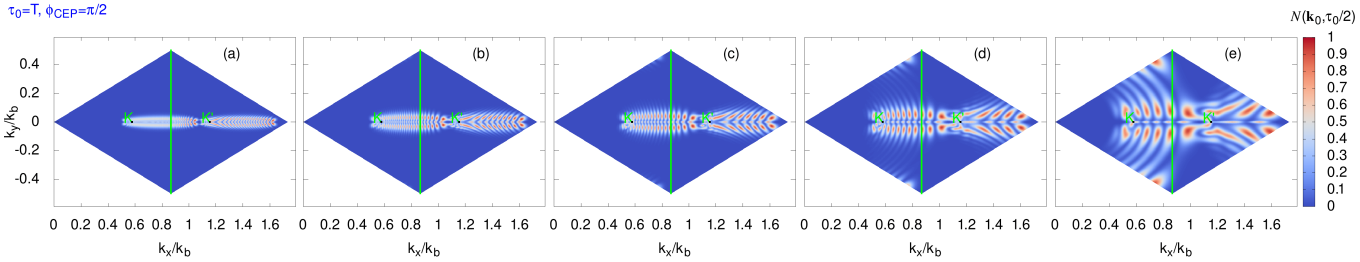

图 5. 与单周期正弦脉冲（$\phi_{\mathrm{CEP}} = \pi/2$）相互作用结束时，石墨烯的粒子分布函数 $\mathcal{N}(\mathbf{k}\ t)$（任意单位）随缩放后的无量纲动量分量（$k_x/k_b$, k_y/k_b）的变化。波粒相互作用参数取为 $\chi_0 = 3.5$。(a) 对于 $\omega_0 = 0.1$ eV/$\hbar$，(b) 对于 $\omega_0 = 0.2$ eV/$\hbar$，(c) 对于 $\omega_0 = 0.3$ eV/$\hbar$，(d) 对于 $\omega_0 = 0.5$ eV/$\hbar$，以及 (e) 对于 $\omega_0 = 1.0$ eV/$\hbar$。

这解释了谷极化的阈值特性。式（23）和式（25）的解分别绘于图4(c)和图4(d)，对应余弦脉冲和正弦脉冲。对于余弦脉冲可以看出，若 (t_1, t_2) 是一组解，则还存在时间反演解 ($-t_1$, $-t_2$)；由 $\mathcal{E}_{eh}(\mathbf{k}_0) = \mathcal{E}_{eh}(-\mathbf{k}_0)$ 可得 $S(\mathbf{k}_D - \mathbf{A}(t_1)\ \ t_2,\ \ t_1) = -S(-\mathbf{k}_D - \mathbf{A}(-t_1)\ \ -t_2,\ -t_1)$，进而得到 $N_+(\tau_0/2) = N_-(\tau_0/2)$。也就是说，谷极化为零。对无限时长脉冲也可作出相同论证。对于正弦脉冲，图4(d)中两个谷的解并不对称，且$N_+(\tau_0/2) \neq N_-(\tau_0/2)$。

在确立了沿 $\Gamma - K$ 方向起主要作用的奇异跃迁偶极矩所对应的布里渊区激发动力学后，我们接下来考察垂直方向上的激发动力学。为此，我们考虑使用相同相互作用参数 χ_0 、但频率各异的单周期正弦脉冲（$\phi_{\mathrm{CEP}} = \pi/2$）激发布里渊区。图 5 展示了不同频率下相互作用结束时，约化布里渊区中的粒子分布函数N（$\mathbf{k}$ $\tau_0/2$）。如图所示，可以看出激光频率与激发图样之间的关联；所有情况下的激发图样都带有干涉条纹。特别是，随着波频率降低，条纹变得更密、更细。

沿 y–方向。条纹密度由上文考虑的式（19）的相位差 $\delta S = S\left(\mathbf{k}_0, t_{d_{1+}}, t_{d_{2+}}\right)$ 定义。对于给定的 χ_0 ，相位差 δS 与 ω_0成反比，这解释了条纹数量对频率的依赖关系。同样明显的是，垂直于激光偏振方向的激发宽度强烈依赖于激光脉冲的频率。这可由跃迁偶极矩的 x 分量理解：当狄拉克点附近的 k_y 较小时，该分量为 $D^{(x)}{}_{\mathrm{tr}} \propto 1/|k_y|$。因此，式（3）和式（4）中的波粒相互作用项为 $E(t)$ $D_{\mathrm{tr}} \propto \chi_0\omega_0/|k_y|$。由于电子-空穴能量$\mathcal{E}_{eh} \propto |k_y|$，可根据条件 $\mathcal{E}_{eh} \simeq E(t)\, D_{\mathrm{tr}}$ 估算激发宽度，由此得到 $|k_y| \propto \sqrt{\chi_0\omega_0}$。如上所述，所考虑的谷极化方案仅在激光偏振沿 $\Gamma - K$ 方向时才有效；若要实现更高程度的控制，必须将 BZ 中的激发更严格地限制在 $\Gamma - K$ 方向。因此，得到的标度关系$|k_y| \propto \sqrt{\chi_0\omega_0}$ 表明，低频率和中等强度更有利于实现谷极化（满足阈值条件 $\chi_0 \sim 4\pi/3$ 时）。

在图 6 中，我们展示了针对单周期线性偏振脉冲的谷极化计算结果，结果随载波包络相位、波粒相互作用参数以及基

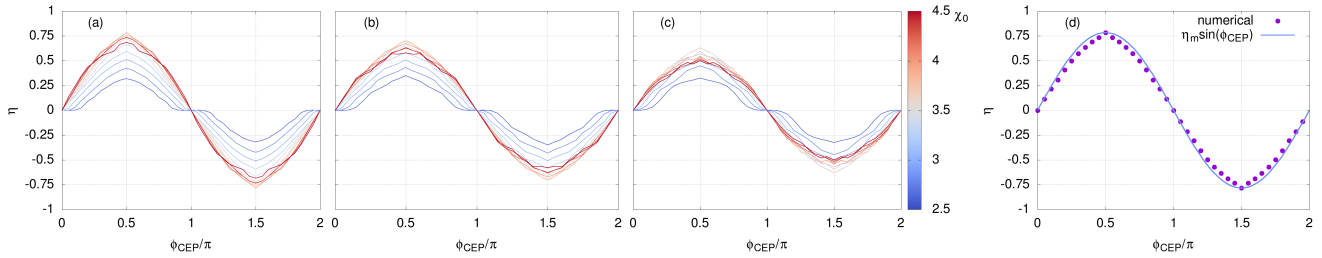

图 6. 单周期线偏振脉冲的谷极化随载波包络相位的变化，波粒相互作用参数取不同值：(a) 对于 $\omega_0 = 0.1$ eV$/\hbar$，(b) 对于 $\omega_0 = 0.2$ eV$/\hbar$，以及 (c) 对于 $\omega_0 = 0.3$ eV$/\hbar$。色标框表示波粒相互作用参数的大小。弛豫时间为 $\Gamma^{-1} = 2\pi/\omega_0$。对于 $\omega_0 = 0.1$ eV$/\hbar$ 和 $\chi_0 = 4$，用简谐定律 (c) 对谷极化进行插值。

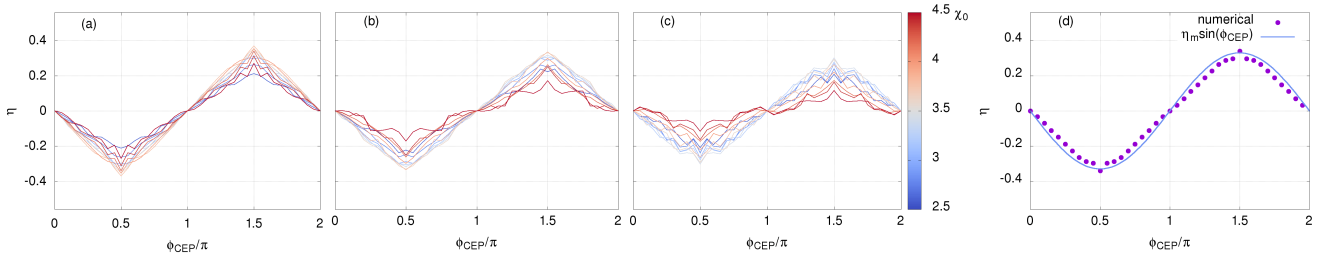

图 7. 与图 (6) 相同，但对应双周期线偏振脉冲。

频的变化而变化。可以看出，在单周期脉冲中，谷极化强烈依赖于载波包络相位，且谷极化幅度相当大。当波粒相互作用参数$\chi_0 \simeq 2.5$相对较小时，谷极化 η相对于载波包络相位 $\phi_{\rm CEP}$ 的斜率 $d\eta/d\phi_{\rm CEP}$ 在 $\phi_{\rm CEP}/\pi$ 趋近整数时消失。这直接体现了所考虑的谷极化方案具有阈值特性：波粒相互作用参数相对较小时，在接近余弦脉冲的载波包络相位范围内，某一谷附近产生的电子无法到达另一谷。此外，在图 6(a)、6(b) 和 6(c) 中，我们还看到了沿 $\Gamma - K$ 方向激发因子为负的结果（参见图 5）。标度关系$|k_y| \propto \sqrt{\omega_0}$ 表明，谷极化的最大振幅会随基频 ω_0 增大而减小。有趣的是，当波粒相互作用参数 χ_0在 3 到 4 之间时，谷极化 η 对 $\phi_{\rm CEP}$ 的依赖趋近于谐波定律。事实上，在图 6(d) 中，我们将正弦依赖关系与数值精确结果进行比较，得到了相当好的拟合。请注意，这些计算纳入了弛豫和多体库仑相互作用。随着图 7 中脉冲持续时间增加，式 (22) 和 ((24) 中的不对称部分变小，与单周期脉冲相比，谷极化减弱。不过，图 7(d) 中谷极化随载波包络相位变化的谐波定律仍然成立。随着图 7(a)、7(b) 尤其是频率较高的图 7(c) 中脉冲持续时间的增加，我们看到了负向

由于缩放$|k_y| \propto \sqrt{\chi_0 \omega_0}$，沿 $\Gamma - K$方向的激发因子.....这意味着适中的强度更有利于谷极化。我们还发现，除了谷极化遵循谐波定律外，谷极化还存在高频振幅调制，并且在其极值附近变得更加明显。

B. 石墨烯中少周期激光脉冲的谷极化与载波包络相位的谐波成像

在考察了石墨烯电荷载流子受强线偏振少周期激光脉冲作用时的相干动力学后，我们接着研究此类脉冲下谷极化和载波包络相位的谐波映射。尽管石墨烯具有中心对称性，因此对于平衡初始态不会产生偶次谐波，但事实证明，空间色散或谷极化会引发相当强的二阶非线性响应[33–35, 46]，其强度可与非中心对称二维材料相当。二次谐波对谷极化的敏感性，为解决谷电子学和光波电子学中的两个重要问题打开了大门：测量谷极化和载波包络相位，这对于利用短激光脉冲进行操控至关重要。因此，在本小节中，我们将考察先前受到强少周期激光脉冲照射的石墨烯在相对中等强度多周期激光场中的谐波产生。

二维六方纳米结构中的电磁响应由

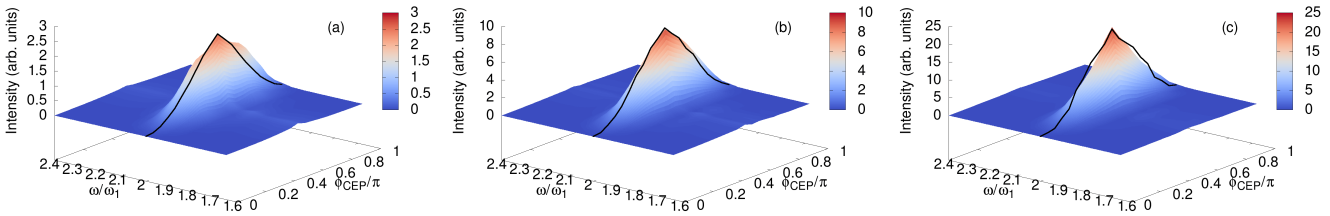

图 8. 波长为 800 nm（$\omega_1 = 1.55$ eV/$\hbar$）的多周期激光场中，石墨烯在二次谐波附近的非线性响应，以归一化强度随单周期线偏振预激发脉冲的载波包络相位的变化表示：(a) 对于 $\omega_0 = 0.1$ eV/$\hbar$，(b) 对于 $\omega_0 = 0.2$ eV/$\hbar$，以及 (c) 对于 $\omega_0 = 0.3$ eV/$\hbar$。预激发脉冲的波粒相互作用参数取为 $\chi_0 = 3.5$，而多周期激光场的波粒相互作用参数取为 $\chi_1 = 0.1\chi_0$。曲面图上的黑色实线表示计算得到的二次谐波强度，计算方式为 $I_2 \sim \eta^2(\phi_{\mathrm{CEP}})$。

总电流密度决定：

$$\mathbf{j}(t) = -\frac{4}{(2\pi)^2}\int_{\widetilde{BZ}} d\mathbf{k}_0 \left\{\mathbf{v}_c(\mathbf{k}_0+\mathbf{A})\mathcal{N}(\mathbf{k}_0,t) + \mathrm{Re}\left[\mathbf{v}_{\mathrm{tr}}^{*}(\mathbf{k}_0+\mathbf{A})\mathcal{P}(\mathbf{k}_0,t)\right]\right\}, \tag{26}$$

其中，能带速度 $\mathbf{v}_c(\mathbf{k}) = \partial E(\mathbf{k})/\partial\mathbf{k}$ 定义了带内贡献，而速度的跃迁矩阵元 $\mathbf{v}_{\mathrm{tr}}(\mathbf{k}) = 2iE(\mathbf{k})D_{\mathrm{tr}}(\mathbf{k})$ 定义了带间贡献。布里渊区也平移了$\widetilde{\ }$至 $BZ = BZ - A$。请注意，对于初始掺杂的系统，应考虑次近邻跃迁项（γ'），它会破坏电子-空穴对称性[47]，并且在谷的费米能不对称时？可能对二次谐波产生至关重要。由于我们考虑的是平衡态下未掺杂的系统，并忽略热占据，且γ' 不会改变能带间的能量差，因此在式（26）中计算能量差时，γ' 对总电流密度的贡献消失[47]。对于足够大的二维样品，远离六角层处产生的电场与面电流成正比：$\mathbf{E}^{(g)}(t) = -2\pi\mathbf{j}(t)/c$[37]。高次谐波产生（HHG）谱强度通过对产生的电场 $\mathbf{E}^{(g)}(\omega)$ 进行快速傅里叶变换计算。现在，我们使用初始条件 $\mathcal{P}(\mathbf{k},0) = \mathcal{P}(\mathbf{k}-\tau_0/2)$ 和 $N(\mathbf{k},0) = N(\mathbf{k}-\tau_0/2)$ 求解布洛赫方程（式（3）和（4））$\mathcal{P}(\mathbf{k}-\tau_0/2)$ 和 $N(\mathbf{k}-\tau_0/2)$ 分别为预激发脉冲结束时的带间极化和粒子分布函数。

图 8 展示了石墨烯在波长为 800 nm（$\omega_1 = 1.55$ eV/$\hbar$）的多周期激光场 $\tau_1 = 40\pi/\omega_1$ 中，针对若干基频，二次谐波附近的非线性响应；该响应以归一化强度随单周期线偏振预激发脉冲的载波包络相位变化的关系表示。多周期激光场的波粒相互作用参数设为比预激发脉冲小一个数量级。我们特别考察了二次谐波附近的光谱强度，以表明二次谐波强度是一种稳健的可观测量，可用于衡量载波包络相位。从这些图中可以看出，余弦脉冲 $\phi_{\mathrm{CEP}} = 0$的二次谐波信号为零，而正弦脉冲 $\phi_{\mathrm{CEP}} = \pi/2$ 的二次谐波信号达到最大值；在这两个值之间，信号呈单调变化。与二次谐波不同，三次谐波几乎不受载波包络相位影响，参见图9。因此，对于诊断工具而言，二次谐波具有独特优势。此外，微扰理论表明[33]，，当通过K 谷和 K' 谷的不同费米能来模拟谷极化时，二次谐波的强度与谷极化的平方成正比。图8显示，按 $I_2 \sim \eta^2(\phi_{\mathrm{CEP}}) \sim \sin^2(\phi_{\mathrm{CEP}})$计算的二次谐波强度（其中 $\eta(\phi_{\mathrm{CEP}})$取自图6）与精确数值结果相当吻合。因此，对于单周期激光脉冲，我们可以实现可控的谷极化，其随载波包络相位呈谐波变化；反过来，也可以通过谷极化测量载波包络相位，这对短脉冲操控和光波电子学至关重要。对于双周期激光脉冲，图10(a)中的结果同样成立。然而，对于三周期激光脉冲，图10(b)中二次谐波强度在 $\phi_{\mathrm{CEP}} \subset [0,\pi/2]$ 范围内并非单调变化，且简单关系 $I_2 \sim \eta^2$ 不再成立。这与前述谷极化的振幅调制有关：随着脉冲持续时间进一步增加，谷极化减弱，并变得与沿 $\Gamma - K$ 方向激发布里渊区所导致的振幅调制深度相当。需要指出的是，谐波关系显著简化了谷极化和载波包络相位的测量，但并非测量它们的必要条件。要满足谐波定律，需要一组三个量 I_2，$\eta \to \phi_{\mathrm{CEP}}$；否则，校准时需要使用多组三元组。

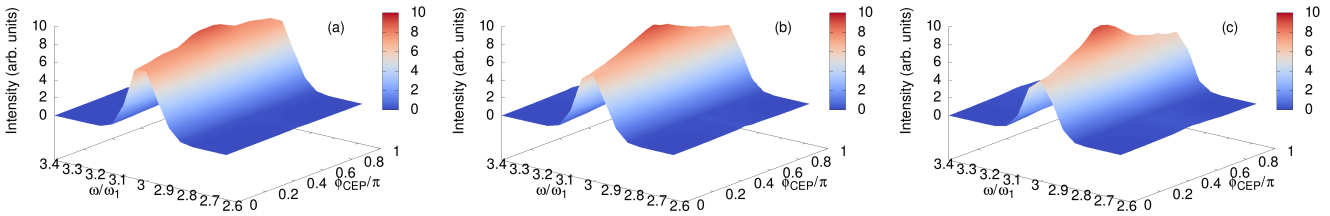

图9. 与图(8)相同，但针对三次谐波。

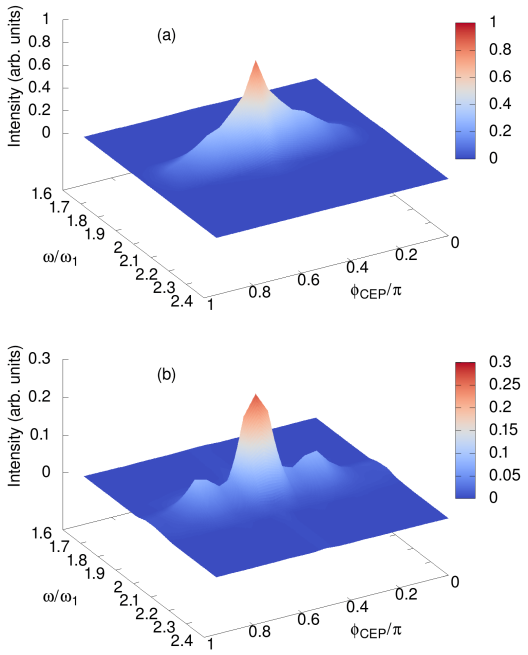

图10. 石墨烯在波长为800 nm（$\omega_2 = 1.55$ eV/$\hbar$）的多周期激光场中、靠近二次谐波处的非线性响应，以归一化强度随双周期(a)和三周期(b)线偏振预激发脉冲的载波包络相位的变化表示。波粒相互作用参数为 $\chi_0 = 3.5$ 和 $\chi_1 = 0.1\chi_0$，而基频为 $\omega_0 = 0.2$ eV/$\hbar$。

IV. 结论

我们研究了石墨烯带电载流子在强少周期线偏振激光脉冲作用下的相干动力学。通过在哈特里–福克近似下数值求解相应的广义半导体布洛赫方程，并考虑多体库仑相互作用，我们证明谷极化强烈依赖于载波包络相位；在一定的强度范围内，这种依赖关系可用简谐定律插值。所得数值结果得到了近似且清晰的解析结果支持。随后，我们考察了强少周期激光脉冲预激发的石墨烯在多周期激光场中的谐波产生。结果表明，谷极化和载波包络相位在二次谐波信号中各自留下独特的印记，因此可以测量这两个物理量，且脉冲持续时间最长可达两个光学周期。这对于谷电子学和光波电子学至关重要。

致谢

本工作得到亚美尼亚共和国科学委员会的资助，项目编号为21AG-1C014。

* mkrtchian@ysu.am

[1] A. Rycerz、J. Tworzyd·lo和C. W. J. Beenakker，《自然·物理》**3**，172（2007年）。[2] S. A. Vitale、D. Nezich、J. O. Varghese、P. Kim、N. Gedik、P. Jarillo-Herrero、D. Xiao和M. Rothschild，《Small》**14**，1801483 2018年( )。[3] J. R. Schaibley、H. Yu、G. Clark、P. Rivera、J. S. Ross、K. L. Seyler、W. Yao和X. Xu，《自然·材料评论》**1**，1 2016年( )。[4] O. Gunawan、Y. P. Shkolnikov、K. Vakili、T. Gokmen、E. P. De Poortere和M. Shayegan，《物理评论快报》**97**，186404（2006年）。[5] Z. Zhu、A. Collaudin、B. Fauqu´e、W. Kang 和 K. Behnia，《自然·物理》**8**，89（2012年）。[6] J. Isberg、M. Gabrysch、J. Hammersberg、S. Majdi、K. K. Kovi 和 D. J. Twitchen，《自然·材料》**12**，760（2013年）。[7] N. Suntornwipat、S. Majdi、M. Gabrysch、K. K. Kovi、V. Djurberg、I. Friel、D. J. Twitchen 和 J. Isberg，《纳米快报》**21**，868（2020年）。[8] T. Cao、G. Wang、W. Han、H. Ye、C. Zhu、J. Shi、Q. Niu、P. Tan、E. Wang、B. Liu、*et al.*，《自然·通讯》**3**，1（2012年）。

[9] K. F. Mak、K. He、J. Shan 和 T. F. Heinz，《自然·纳米技术》7，494（2012年）。[10] H. Zeng、J. Dai、W. Yao、D. Xiao 和 X. Cui，《自然·纳米技术》7，490（2012年）。[11] L. Li、L. Shao、X. Liu、A. Gao、H. Wang、B. Zheng、G. Hou、K. Shehzad、L. Yu、F. Miao、 *et al.*，《自然·纳米技术》15，743（2020年）。[12] A. H. Castro Neto、F. Guinea、N. M. R. Peres、K. S. Novoselov 和 A. K. Geim，《现代物理评论》81，109（2009年）。[13] A. F. Morpurgo 和 F. Guinea，《物理评论快报》97，196804（2006年）。[14] S. V. Morozov、K. S. Novoselov、M. I. Katsnelson、F. Schedin、L. A. Ponomarenko、D. Jiang 和 A. K. Geim，《物理评论快报》97，016801（2006年）。[15] E. McCann、K. Kechedzhi、V. I. Fal'ko、H. Suzuura、T. Ando 和 B. L. Altshuler，《物理评论快报》97，146805（2006年）。[16] D. Gunlycke 和 C. T. White，《物理评论快报》106，136806（2011年）。[17] M. M. Gruji´c、M. ˇZ. Tadi´c 和 F. M. Peeters，《物理评论快报》113，046601（2014年）。[18] D. Faria、C. Le´on、L. R. F. Lima、A. Latg´e 和 N. Sandler，《物理评论B》101，081410(R)（2020年）。[19] D. Xiao、W. Yao 和 Q. Niu，《物理评论快报》99，236809（2007年）。[20] M. Yankowitz、J. Xue、D. Cormode、J. D. Sanchez- Yamagishi、K. Watanabe、T. Taniguchi、P. Jarillo-Herrero、P. Jacquod 和 B. J. LeRoy，《自然·物理》8，382（2012年）。[21] T. Nakanishi、M. Koshino 和 T. Ando，《物理评论B》82，125428（2010年）。[22] L. Pratley 和 U. Z¨ulicke，《应用物理快报》104，082401（2014年）。[23] Y. Jiang、T. Low、K. Chang、M. I. Katsnelson 和 F. Guinea，《物理评论快报》110，046601（2013年）。[24] A. S. Moskalenko 和 J. Berakdar，《物理评论B》80，193407（2009年）。[25] L. E. Golub、S. A. Tarasenko、M. V. Entin 和 L. I. Magarill，《物理评论B》84，195408（2011年）。[26] ´A. Jim´enez-Gal´an、R. E. F. Silva、O. Smirnova 和 M. Ivanov，《自然·光子学》14，728（2020年）。[27] ´A. Jim´enez-Gal´an、R. E. Silva、O. Smirnova 和 M. Ivanov，《Optica》8，277（2021年）。[28] S. A. Oliaei Motlagh、F. Nematollahi、V. Apalkov 和 M. I. Stockman，《物理评论B》100，115431（2019年）。[29] M. S. Mrudul、´A. Jim´enez-Gal´an、M. Ivanov 和 G. Dixit，《Optica》8，422（2021年）。[30] M. S. Mrudul 和 G. Dixit，《物理学杂志B：原子、分子与光学物理》54，224001（2021年）。[31] H. K. Kelardeh、U. Saalmann 和 J. M. Rost，《物理评论研究》4，L022014（2022年）。[32] E. Goulielmakis、V. S. Yakovlev、A. L. Cavalieri、M. Uiberacker、V. Pervak、A. Apolonski、R. Kienberger、U. Kleineberg 和 F. Krausz，《科学》317，769（2007年）。[33] L. E. Golub 和 S. A. Tarasenko，《物理评论B》90，201402 2014(R)（ ）。[34] T. O. Wehling、A. Huber、A. I. Lichtenstein 和 M. I. Katsnelson，《物理评论B》91，041404(R)（2015年）。[35] Y. W. Ho、H. G. Rosa、I. Verzhbitskiy、M. J. L. F. Rodrigues、T. Taniguchi、K. Watanabe、G. Eda、V. M. Pereira 和 J. C. Viana-Gomes，《ACS Photonics》7，925（2020年）。[36] E. Malic、T. Winzer、E. Bobkin 和 A. Knorr，《物理评论B》84，205406（2011年）。[37] H. K. Avetissian 和 G. F. Mkrtchian，《物理评论B》97，115454 2018( )。[38] H. K. Avetissian、G. F. Mkrtchian 和 A. Knorr，《物理评论B》105，195405（2022年）。[39] E. H. Hwang 和 S. Das Sarma，《物理评论B》75，205418（2007年）。[40] N. Yoshikawa、T. Tamaya 和 K. Tanaka，《科学》356，736 2017( )。[41] C. H. Lui、K. F. Mak、J. Shan 和 T. F. Heinz，《物理评论快报》105，127404（2010年）。[42] M. Breusing、S. Kuehn、T. Winzer、E. Mali´c、F. Milde、N. Severin、J. P. Rabe、C. Ropers、A. Knorr 和 T. El- saesser，《物理评论B》83，153410（2011年）。[43] E. H. Hwang、B. Y. K. Hu 和 S. Das Sarma，《物理评论B》76，115434（2007年）。[44] W. K. Tse、E. H. Hwang 和 S. D. Sarma，《应用物理快报》93，023128（2008年）。[45] ´O. Zurr´on、A. Pic´on 和 L. Plaja，《新物理学杂志》20，053033（2018年）。[46] H. K. Avetissian、G. F. Mkrtchian、K. G. Batrakov 和 S. A. Maksimenko，《物理评论B》102，165406（2020年）。[47] A. Kretinin、G. L. Yu、R. Jalil、Y. Cao、F. Withers、A. Mishchenko、M. I. Katsnelson、K. S. Novoselov、A. K. Geim 和 F. Guinea，《物理评论B》88，165427（2013年）。