

ORIGINAL ARTICLE

Phonon Dynamics in Nonlinear Optics Via Perturbation Approach: Hexagonal Boron Nitride

Ali Kazempour*

Associate Professor, Department of Physics, Payame Noor University, Tehran, Iran.

Correspondence

Ali Kazempour

Email: kazempour@pnu.ac.ir

How to cite

Kazempour, A. (2026). Phonon Dynamics in Nonlinear Optics Via Perturbation Approach: Hexagonal Boron Nitride, Optoelectronic, 8(3), 19-24.

ABSTRACT

In the context of strong field-matter interaction, an increasing number of phenomena have emerged that can be well understood when taking into account the vibrational modes of lattice i.e., phonons. Phonons dynamics as a result of coupling between electronic and lattice degree of freedom has substantial effect on transient features via redistribution of quasiparticle populations and dynamical modification of coupling strength. In this study, we resolve the role of nonlinear phononics in nonlinear optics phenomena such as second harmonic generation and shift current including phonons for series of 2D materials. Our results show strong dynamical modulation of the electron-phonon effect in the dynamical Born effective charge for all individual phonon modes. The presence of activated phonons also enhances the second-order terms of second harmonic generation and shift current. The parameter amplification of light by nonlinear phonons enhance the control over phonon-polariton waves, interesting for information transport on subwavelength length scales.

KEYWORDS

Phonon Dynamics, Laser-Matter Interaction, NonLinear Optics.

فصلنامه علمی

اپتوالکترونیک

«مقاله پژوهشی»

دینامیک فونون‌ها در اپتیک غیرخطی به روش اختلالی: تک‌لایه بورون نیتريد

علی کاظم پور*

۱ دانشیار، دانشکده فیزیک، دانشگاه پیام نور، تهران، ایران.

چکیده

در زمینه برهمکنش قوی میدان- ماده، تعداد فزاینده‌ای از پدیده‌ها وجود دارند که با در نظر گرفتن مدهای ارتعاشی شبکه، یعنی فونون‌ها، به خوبی قابل درک هستند. دینامیک فونون‌ها به عنوان نتیجه‌ای از جفت‌شدگی بین درجه آزادی الکترونی و شبکه، تأثیر قابل توجهی بر ویژگی‌های گذرای ماده از طریق بازتوزیع حامل‌های بار و تصحیح دینامیکی قدرت جفت‌شدگی آنها با شبکه دارد. در این مطالعه، نقش فونون‌ها در پدیده‌های اپتیکی غیرخطی مانند تولید هارمونیک دوم و جریان جابه‌جایی برای مواد دوبعدی بررسی شده است. نتایج نشان می‌دهد که تغییرات دینامیکی قوی اثر الکترون- فونون در بار موثر بورن دینامیکی برای تمامی مدهای فونونی وجود دارد. همچنین حضور فونون‌های فعال شده باعث افزایش جملات مرتبه دوم هارمونیک دوم و جریان جابه‌جایی می‌شود. تقویت پارامتر نور توسط فونون‌های غیرخطی کنترل بیشتری بر امواج فونون - پولاریتون فراهم می‌کند که برای انتقال اطلاعات در مقیاس‌های زیر طول موج اصلی مورد توجه است.

واژه‌های کلیدی

دینامیک فونونی، برهمکنش نور - ماده، اپتیک غیرخطی.

نویسنده مسئول:

علی کاظم پور

رایانامه: kazempour@pnu.ac.ir

استاد به این مقاله:

علی کاظم پور (۱۴۰۵). دینامیک فونون‌ها در اپتیک غیرخطی به روش اختلالی: تک‌لایه بورون نیتريد. فصلنامه علمی اپتوالکترونیک، ۸(۳)، ۱۹-۲۴

مقدمه

دینامیک همبسته الکترون‌ها و فونون‌ها در سیستم‌های حالت جامد زیربنای طیف گسترده‌ای از پدیده‌های بنیادی است که ویژگی‌های الکترونیکی، نوری و تراپردی را از طریق اصلاح جرم حامل‌ها، نرخ‌های بازآرایی حامل‌های برانگیخته نوری، و آهنگ گذارتحت تأثیر قرار می‌دهد. نوارهای جانبی ارتعاشی در طیف‌های جذب نوری، که نشانه‌ای از ساختار الکترونی استتار شده هستند، در پلتفرم‌های مختلف مشاهده شده‌اند [۱].

در زمینه تعامل پالس‌های لیزری پر شدت کوتاه‌مدت با ماده، تولید فونون‌های هم‌دوس یک نتیجه برجسته از جفت‌شدگی الکترون-فونون در ماده است که روی خواص جذب تغییرات گذرابی اعمال می‌کند [۲، ۳، ۴]. دینامیک ناشی از این فونون‌های هم‌دوس به شدت و دوره زمانی لیزر وابسته بوده و تأثیرات قابل توجهی بر طیف هارمونیک منتشر شده دارد؛ به طوری که تصویر با قله‌های تیز مرتبه‌های بالای هارمونیک گسسته را از بین می‌برد. علاوه بر این، روش‌های کنترلی متعددی برای تحریک انتخابی ارتعاشات شبکه هم‌دوس پیشنهاد شده‌اند که امکان تنظیم جمع یا اختلاف فرکانس‌های فرودی را برای تطبیق با مدهای فعال رامان فراهم می‌کنند [۴، ۵، ۷]. تأخیر زمانی و قطبش پالس‌های پمپ و پروب نیز نقش مهمی در تداخل فونونی سیستم ایفا می‌کنند و کنترل دینامیکی پیچیده‌ای بر ارتعاشات شبکه را آشکار می‌سازند [۵].

به طور مشابه، تزریق پتانسیل دوره‌ای تغییر شکل شبکه می‌تواند حالت‌های الکترونی گذرای جدیدی ایجاد کند که مشابه حالت‌های فلوک هنگام تابش لیزر هستند [۱] این حالت‌ها در طیف فتوالکترون‌گسیل زاویه‌دار (ARPES) مشاهده شده و از طریق نظریه ساختار نواری TDDFT-Floquet پیش‌بینی شده‌اند [۱]. برخلاف دینامیک سریع فوتون‌های بدون جرم در سیستم‌های فلوک متعارف، حرکت آهسته یون‌های سنگین، تعاملات متمایزی میان الکترون و فونون ایجاد می‌کند؛ جایی که الکترون‌ها تقریباً به طور لحظه‌ای حرکات یونی را دنبال می‌کنند. گفتمنی است که تقریب فونون منجمد، که به طور گسترده پذیرفته شده است، نمی‌تواند تغییرات دینامیکی در ساختار الکترونی را توضیح داده و این امر باعث توسعه چارچوب فونون-فلوک شده است [۱].

یکی از روش‌های به‌کار گرفته شده روش اختلالی اشتزنهایم در فضای فرکانس است [۷، ۸] که مشابه نظریه تابعی چگالی اختلالی است؛ با این تفاوت که مبتنی بر وردش

تابع موج تا مرتبه خطی است. در مطالعه حاضر با تزریق مدهای فونونی اپتیکی داخل و عمود بر صفحه به تک لایه دوبعدی بورون نیتريد hBN به پاسخ مرتبه دوم اپتیکی هارمونیک دوم و جریان جابه‌جایی پرداخته‌ایم. به‌علاوه میزان تغییر قطبیدگی با تغییر دامنه ارتعاش فونون‌ها از خطی به غیرخطی در کمیت بار موثر بورن را محاسبه و تحلیل کرده‌ایم. تک لایه بورون نیتريد از لحاظ خواص اپتیکی غیرخطی و فونونی غیرخطی و جفت‌شدگی پلاریتونی نقش بسیار ویژه‌ای دارد [۹، ۱۰، ۱۱].

رهیافت اشتزنهایم و روش محاسبات

روش اشتزنهایم در قالب نظریه اختلال در فضا، محاسبات کارآمد ویژگی‌های پاسخ خطی و غیرخطی را ممکن می‌سازد. مبنای این روش، همان‌طور که در نظریه اختلال استاندارد نیز وجود دارد، محاسبه تغییرات توابع موج Ψ_1 تحت یک پتانسیل اختلالی است. مزیت این روش این است که تغییرات از طریق حل معادله خطی زیر به دست می‌آید:

$$(H^0 - \epsilon^0 \pm \omega_\alpha) |\Psi_1\rangle = P_c H^1 |\Psi_0\rangle$$

این معادله تنها به حالت‌های اشغال شده بستگی دارد؛ به جای اینکه نیاز به مجموع (بی‌نهایت) روی حالت‌های غیر اشغال شده داشته باشد. در نظریه تابع چگالی (وابسته به زمان)، تغییرات همیلتونی شامل عبارتی است که به تغییرات چگالی بستگی دارد؛ بنابراین این معادله باید به طور خودسازگار حل شود: قطبش بر حسب وردش چگالی به‌صورت زیر نوشته می‌شود:

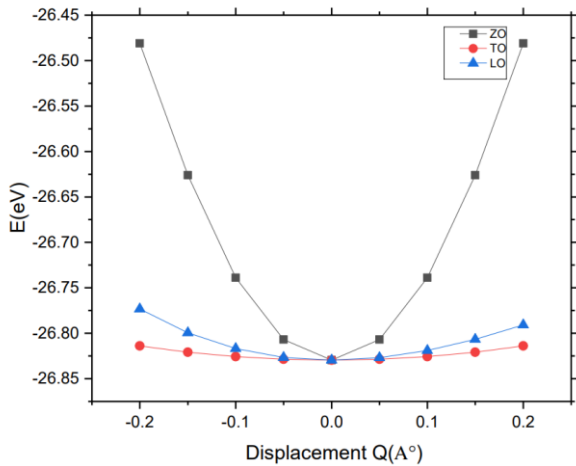
$$\alpha_{ij}(\omega) = \int d^3r n_j^{(1)}(r, \omega) r_i.$$

از طریق قضیه $2n+1$ می‌توان به اولین قطبش مرتبه دوم رسید:

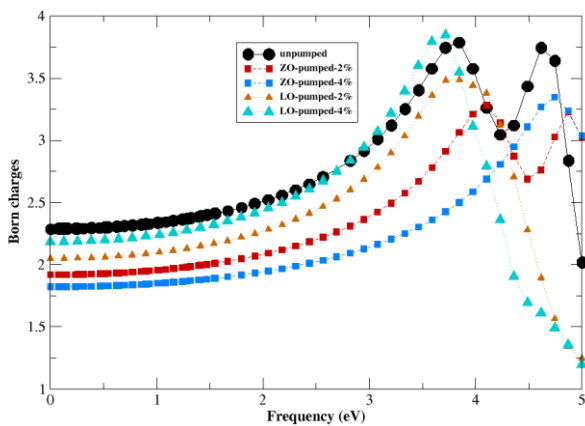
$$\begin{aligned} \beta_{ijk}(-\omega_1; \omega_2, \omega_3) &= -4 \sum_P \sum_{\zeta=1}^3 \left\{ \sum_{occ,m} \int d^3r \psi_m^{(1)*}(\mathbf{r}, -\zeta\omega_1) H_j^{(1)}(\zeta\omega_2) \psi_m^{(1)}(\mathbf{r}, \zeta\omega_3) \right. \\ &- \sum_{occ,m} \int d^3r \psi_m^{(0)*}(\mathbf{r}) H_j^{(1)}(\zeta\omega_2) \psi_n^{(0)}(\mathbf{r}) \int d^3r \psi_n^{(1)*}(\mathbf{r}, -\zeta\omega_1) \psi_m^{(1)}(\mathbf{r}, \zeta\omega_3) \\ &\left. - \frac{2}{3} \int d^3r \int d^3r' \int d^3r'' K_{xc}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \mathbf{r}'') n_i^{(1)}(\mathbf{r}, \omega_1) n_j^{(1)}(\mathbf{r}', \omega_2) n_k^{(1)}(\mathbf{r}'', \omega_3) \right\}. \end{aligned}$$

سپس میانگین ضرایب قطبش خطی و غیر خطی از روابط زیر محاسبه می‌شوند:

$$\begin{aligned} \bar{\alpha} &= \frac{1}{3} \sum_{i=1}^3 \alpha_{ii} \\ \beta_{\parallel i} &= \frac{1}{5} \sum_{j=1}^3 (\beta_{iji} + \beta_{jjj} + \beta_{jji}) \end{aligned}$$



شکل ۱. سطح انرژی پتانسیل بر حسب دامنه جابه‌جایی مدهای تزریق شده اپتیکی فونونی در تک‌لایه بورون نیتريد



شکل ۲. بار موثر دینامیکی بورن در فرکانس‌های مختلف برای ساختار تک‌لایه بورون نیتريد پمپ شده با مدهای ZO و LO در ۲ درصد دامنه‌های مختلف جابه‌جایی هر فونون

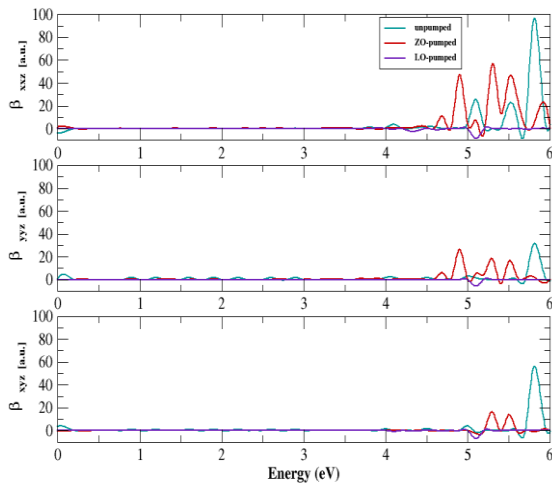
شکل ۲ بار موثر بورن در فرکانس‌های مختلف در ساختارهای پمپ‌شده با مدهای داخل و بیرون صفحه در دامنه جابه‌جایی از حالت خطی تا غیرخطی در مقایسه با ساختار پمپ‌نشده را نشان می‌دهد. این نمودار نشان می‌دهد که با افزایش فرکانس مدولاسیون جفت‌شدگی الکترون - فونون افت و خیز شدیدی پیدا می‌کند. به طوری که تا زیر گاف اندازه بار موثر بورن افزایش می‌یابد. البته بورن موثر در حالت‌های پمپ‌شده همگی کمتر از حالت پمپ‌نشده است. بار موثر بورن در حالت پمپ‌شده با ZO منحنی با دو قله را تولید کرده در حالی که حالت پمپ‌شده با LO یک قله را نشان می‌دهد. به علاوه ساختار پمپ‌شده با LO است که قطبش را در فرکانس‌های میانی نسبت به حالت پمپ‌نشده تقویت می‌کند. روند تغییرات بار موثر بورن بسیار شبیه به تابع دی‌الکتریک این ماده بوده و قله‌ها حالتی را نشان می‌دهد که تشدید بین

که i و j اندیس جهت هستند. با محاسبه کمیت β در ضرایب فرکانسی مختلف نتایج مربوط به هارمونیک‌های مختلف از جمله هارمونیک دوم و سوم و جریان ثابت جابه‌جایی به دست می‌آید.

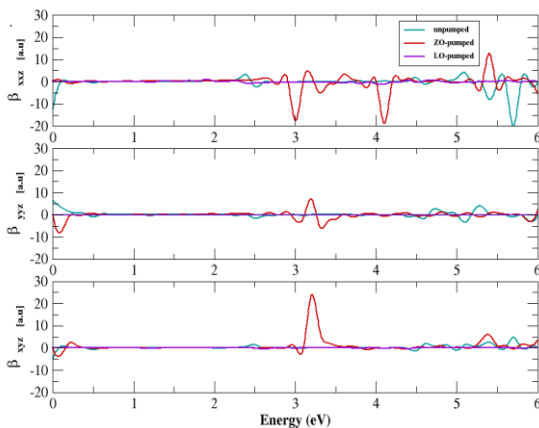
در محاسبات نظریه تابعی چگالی برای به دست آوردن چگالی حالت پایه از کد octopus و برای به دست آوردن مدهای فونونی و ویژه بردارهای فونونی از روش المان محدود استفاده گردید [۷]. تابعی تبدیلی - همبستگی LDA و نقاط فضای k با مش $20 \times 20 \times 1$ پارامتر شبکه تعادلی همگرا شده و نزدیک به تجربه را بازتولید می‌کند.

بار موثر بورن دینامیکی

برای شناخت اهمیت نقش تزریق هر مد فونونی اپتیکی در تغییر سطح پتانسیل بلوری ابتدا با استفاده از نظریه تابعی چگالی اختلالی و به دست آوردن ماتریس دینامیکی، فرکانس مدها و ویژه بردارهای جابه‌جایی را به دست آورده و ساختارهای پمپ‌شده جدید را با اعمال هر ویژه بردار فونونی می‌سازیم. بدیهی است با افزایش دامنه جابه‌جایی اتم‌ها در هر مد خاص آثار غیر هارمونیکی ظاهر گشته و متعاقب آن آثار موثر بورن، تعامل میدان ماکروسکوپی الکتریکی را با جابه‌جایی‌های نسبی شبکه (فونون‌های در نقطه گاما) در بلور اندازه‌گیری می‌کنند؛ این تانسورها همچنین با نام بارهای دینامیکی یا بارهای فروسرخ شناخته می‌شوند. شکل ۱ سطح انرژی پتانسیل تک‌لایه بورون نیتريد به ازای بازه دامنه جابه‌جایی‌هایی مختلف برای هر مد اپتیکی پمپ‌شده LO و TO در صفحه تک‌لایه و بیرون از صفحه ZO را نشان می‌دهد. همان‌طور که شکل ۱ نشان می‌دهد تغییرات سطح انرژی برای ساختار پمپ‌شده برای مد بیرون از صفحه ZO نسبت به LO و TO بیشتر است و هم این افزایش انرژی در دامنه‌های جابه‌جایی بیشتر در حد غیر هارمونیک چشمگیرتر خواهد بود. این افزایش سطح انرژی پتانسیل نشان‌دهنده دو اتفاق مهم است: یکی اینکه با افزایش دامنه پمپ مد ZO درجه جفت‌شدگی الکترون - فونون از حد آدیاباتیکی به دیاباتیکی تغییر یافته و دوم اینکه به تبع آن خواص اپتیکی از جمله تابع دی‌الکتریک نیز تغییراتی به صورت غیرخطی پیدا خواهد کرد.



شکل ۳. مقایسه نتایج پذیرفتاری مرتبه دوم جریان ثابت جابه‌جایی برای ساختار پمپ شده با فونون‌های LO و TO با پمپ‌نشده



شکل ۴. مقایسه نتایج پذیرفتاری مرتبه دوم هارمونیک دوم برای ساختار پمپ شده با فونون‌های LO و TO با پمپ‌نشده

نتیجه‌گیری

در این کار محاسبات نظریه تابعی چگالی و اختلالی وابسته به فرکانس، حاکی از مدولاسیون قوی برهمکنش الکترون - فونون و متعاقب آن پاسخ مرتبه دوم اپتیکی در حضور فونون‌های پمپ‌شده همدوس در تک لایه بورون نیتريد است. این مدولاسیون همچنین منجر به تغییرات چشمگیر تابع دی‌الکتریک گذرا و بار موثر بورن و قطبش به‌طور خاص در حضور فونون‌های خارج از صفحه خواهد شد. این رهیافت امکان تنظیم و کنترل خواص غیر خطی اپتیکی از طریق دستکاری و پمپ همدوس فونون‌ها را میسر می‌سازد.

References

- [1] Hübener, H., De Giovannini, U., & Rubio, A. (2018). Phonon driven Floquet matter. *Nano letters*, 18(2), 1535-1542.
- [2] Bertsch, G. (2013, March). Coherent phonon generation in time-dependent density functional theory. In *APS March Meeting Abstracts* (Vol.

برهمکنش مدهای فونونی پمپ‌شده و حالات الکترونی روی می‌دهد [۱۴].

جریان جابه‌جایی و هارمونیک دوم

شکل ۳ و شکل ۴ جریان مستقیم و پاسخ هارمونیک دوم ناشی از قطبش‌های غیر خطی مرتبه بالاتر را در این تک لایه در فرکانس‌های مختلف در حالت‌های پمپ‌شده نسبت به پمپ‌نشده نشان می‌دهد. از نتایج پیداست که ساختار پمپ‌شده با ZO پیک‌های بسیار بزرگ‌تری در تانسور جریان جابه‌جایی در مولفه‌های داخل صفحه xxz ، yyz و xyz در انرژی‌های کمتر نسبت به حالت پمپ‌نشده به‌وجود می‌آورد. همچنین جابه‌جایی در انرژی قله‌ها نیز نسبت به حالت پمپ‌نشده دیده می‌شود. این نتایج همچنین همخوانی خوبی با نتایج سطح انرژی پتانسیل شکل ۱ دارد که تغییرات انرژی و جفت‌شدگی با شبکه را برای ساختارهای پمپ‌شده با ZO بسیار بزرگ‌تر از LO نشان می‌دهد. این مد پمپ‌شده ZO استتار دی‌الکتریک را کاهش داده و باعث تقویت برهمکنش نور با الکترون در این جهت قطبش موثر می‌شود. ضمناً از آنجایی که جریان جابه‌جایی از دینامیک قطبش از طریق گذار بین نواری نشات می‌گیرد، می‌توان فهمید که تزریق فونون‌ها در یک مد خاص از طریق دستکاری ساختار نواری و گشتاور دوقطبی به تغییر در بار موثر بورن و همچنین قطبش منجر می‌شود و تصویری وابسته به فرکانس از جریان جابه‌جایی ایجاد می‌کند. در شکل ۴ نیز روند مشابهی پدیدار شدن سیگنال‌های پذیرفتاری هارمونیک دوم را با پمپ‌شدن فونون‌های بیرون از صفحه ZO نشان می‌دهد. زیر انرژی ۳ الکترون ولت تقریباً سیگنالی از هارمونیک دوم دیده نمی‌شود؛ ولی در بازه بین ۳ تا ۶ الکترون عمده قله‌ها قابل رویت است. همچنین مقایسه پذیرفتاری‌های مختلف نشان از تغییر علامت از مثبت به منفی در بعضی انرژی‌ها دارد که حاکی از آثار تداخلی قوی مسیره‌های اپتیکی غیرخطی دارد [۱۲].

منابع

- 2013, pp. F24-001).
- [3] Kazempour, A., Morshedloo, T., & Wang, F. (2021). Transient non-linear optics of diamond under ultrashort excitation pulses. *Applied Physics A*, 127, 1-10.
- [4] Shinohara, Y., Yabana, K., Kawashita, Y., Iwata, J.

- I., Otobe, T., & Bertsch, G. F. (2010). Coherent phonon generation in time-dependent density functional theory. *Physical Review B—Condensed Matter and Materials Physics*, 82(15), 155110.
- [5] Juraschek, D. M., & Maehrlein, S. F. (2018). Sum-frequency ionic Raman scattering. *Physical Review B*, 97(17), 174302.
- [6] Maehrlein, S., Paarmann, A., Wolf, M., & Kampfrath, T. (2017). Terahertz sum-frequency excitation of a Raman-active phonon. *Physical review letters*, 119(12), 127402.
- [7] Andrade, X., Strubbe, D., De Giovannini, U., Larsen, A. H., Oliveira, M. J., Alberdi-Rodriguez, J., ... & Rubio, A. (2015). Real-space grids and the Octopus code as tools for the development of new simulation approaches for electronic systems. *Physical Chemistry Chemical Physics*, 17(47), 31371-31396.
- [8] Tancogne-Dejean, N., Oliveira, M. J., Andrade, X., Appel, H., Borca, C. H., Le Breton, G., ... & Rubio, A. (2020). Octopus, a computational framework for exploring light-driven phenomena and quantum dynamics in extended and finite systems. *The Journal of chemical physics*, 152(12).
- [9] Ginsberg, Jared S., et al. "Phonon-enhanced nonlinearities in hexagonal boron nitride." *Nature Communications* 14.1 (2023): 7685.
- [10] Cartella, A., Nova, T. F., Fechner, M., Merlin, R., & Cavalleri, A. (2018). Parametric amplification of optical phonons. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 115(48), 12148-12151.
- [11] Juraschek, D. M., & Narang, P. (2021). Highly confined phonon polaritons in monolayers of perovskite oxides. *Nano Letters*, 21(12), 5098-5104
- [12] De La Torre, A., Kennes, D. M., Claassen, M., Gerber, S., McIver, J. W., & Sentef, M. A. (2021). Colloquium: Nonthermal pathways to ultrafast control in quantum materials. *Reviews of Modern Physics*, 93(4), 041002.
- [13] Stefanucci, G., van Leeuwen, R., & Perfetto, E. (2023). In and out-of-equilibrium ab initio theory of electrons and phonons. *Physical Review X*, 13(3), 031026.
- [14] Wang, C. Y., Sharma, S., Gross, E. K. U., & Dewhurst, J. K. (2022). Dynamical Born effective charges. *Physical Review B*, 106(18), L180303.