

# Генерация высокочастотных гармоник при взаимодействии разнесенных по частоте лазерных импульсов с монослоем графена

© А.Д. Панферов, А.А. Ульянова

Саратовский национальный исследовательский государственный университет имени Н.Г. Чернышевского, Саратов, Россия

e-mail: panferovad@sgu.ru

Поступила в редакцию 05.09.2024 г.

В окончательной редакции 02.10.2024 г.

Принята к публикации 27.10.2024 г.

С использованием непертурбативного квантового кинетического уравнения исследованы особенности процесса генерации высокочастотных гармоник в условиях одновременного действия на графен двух лазерных импульсов с разными частотами. Рассмотрено перпендикулярное падение на поверхность образца коротких линейно поляризованных импульсов с энергией фотонов 0.25 и 1.0 eV. Плоскости поляризации выбраны ортогональными для явного выделения нелинейных эффектов взаимодействия. Показано, что в таких условиях должно происходить обогащение спектра высокочастотных гармоник и расти эффективность конверсии в высокочастотную область энергии падающего на образец излучения.

**Ключевые слова:** высокочастотные гармоники, монослой графена, нелинейные эффекты, квантовое кинетическое уравнение.

DOI: 10.61011/OS.2024.10.59422.7048-24

## Введение

Генерация высокочастотных гармоник — нелинейное оптическое явление, находящее применение не только для целей собственно конверсии частоты лазерного излучения, но и для исследования сверхбыстрой динамики электронов в различных средах. Это явление впервые наблюдалось в атомарных газах [1]. С ростом возможностей генерации лазерных импульсов высокой интенсивности исследование нелинейных режимов взаимодействия со светом стало доступно и для конденсированных сред [2,3]. Среди материалов, рассматриваемых в качестве эффективной среды для генерации высокочастотных гармоник, выделяется графен из-за особенностей его зонной структуры. Экспериментально эффект в этом материале наблюдается и в терагерцовом [4,5], и в среднем инфракрасном диапазонах [6,7]. Для теоретического описания наблюдаемых процессов привлекаются различные методы и подходы [8–10]. Их совершенствование и развитие предоставляет возможность понимать сложную физику взаимодействия электронной подсистемы материала с внешним электрическим полем в широком диапазоне параметров и моделировать такие процессы. В настоящее время интерес привлекают нелинейные эффекты взаимного влияния полей с разными характеристиками и проявления такого влияния в спектрах вторичного излучения [11–14].

Рождение и эволюция электронов и дырок в двухуровневых моделях конденсированных сред имеют много общего с процессами, происходящими при рождении электрон-позитронных пар из физического вакуума квантовой электродинамики в сильных электрических полях.

Для описания таких процессов был разработан непертурбативный кинетический формализм [15–17]. Он позволяет [18], например, исследовать важную для нелинейной квантовой электродинамики проблему „вакуумной“ генерации гармоник экстремально сильным лазерным излучением [19–21].

На основе отмеченной общности для графена был развит формализм квантового кинетического уравнения для приближения безмассовых фермионов [22–24]. Его возможности по воспроизведению спектральных характеристик индуцированного излучения в условиях действия коротких высокочастотных импульсов продемонстрировались в работах [24,25]. К настоящему времени реализовано обобщение для более строгой модели с точным учетом взаимодействия ближайших соседей в двумерной гексагональной решетке [26]. Это снимает существовавшие ограничения на параметры рассматриваемых процессов: напряженность действующего электрического поля и его частоту.

В представленной работе возможности квантового кинетического уравнения использованы для исследования особенностей генерации высокочастотных гармоник при раздельном и совместном действии на образец инфракрасных лазерных импульсов с разнесенными частотами.

## 1. Теоретическая модель

Динамика электронной подсистемы графена в присутствии зависящего от времени внешнего возмущающего воздействия для своего воспроизведения требует решения нестационарного уравнения Шредингера в той или иной форме его представления. Основное упрощающее

предположение, которое используется далее, состоит в рассмотрении исследуемой среды как двухуровневой системы с некоторым заданным законом зависимости энергии состояний от их расположения в обратном пространстве  $\varepsilon(\mathbf{p})$ . Сам закон дисперсии определяется из стационарного уравнения Шредингера после задания явной формы гамильтониана. Другим упрощающим фактором является предположение о пространственной однородности возмущающего воздействия на межатомных масштабах, что справедливо при рассматриваемых условиях. Поскольку система двумерна, все рассматриваемые векторные величины определяются двумя компонентами.

Ограничиваясь этими двумя упрощениями, определяя гамильтониан в общей форме в виде

$$H(\mathbf{p}, t) = \begin{pmatrix} 0 & B'(\mathbf{p}, t) + iB''(\mathbf{p}, t) \\ B'(\mathbf{p}, t) - iB''(\mathbf{p}, t) & 0 \end{pmatrix} \quad (1)$$

и искомую волновую функцию через амплитуды двух псевдоспиновых состояний

$$\Phi(\bar{p}, t) = \begin{bmatrix} a(\mathbf{p}, t) \\ b^\dagger(-\mathbf{p}, t) \end{bmatrix}, \quad (2)$$

можно без дополнительных упрощающих предположений получить [23] систему уравнений для функций распределения квазичастиц (электронов в зоне проводимости и дырок в валентной зоне). Для этого выполняется переход в представление чисел заполнения с заменой амплитуд  $a^\dagger(\mathbf{p}, t)$ ,  $a(\mathbf{p}, t)$ ,  $b^\dagger(\mathbf{p}, t)$ ,  $b(\mathbf{p}, t)$  на операторы рождения и уничтожения соответствующих квазичастиц, удовлетворяющие каноническим антикоммутиационным соотношениям

$$\{a(\mathbf{p}, t), a^\dagger(\mathbf{p}', t)\}_+ = \{b(\mathbf{p}, t), b^\dagger(\mathbf{p}', t)\}_+ = (2\pi)^2 \delta(\mathbf{p} - \mathbf{p}'). \quad (3)$$

Фоковское пространство, на котором действуют эти операторы, в условиях присутствия привносящего в (1) явную зависимость от времени возмущающего воздействия определяется на зависящих от времени вакуумных состояниях.

Полагаем, что всегда можно определить начальный момент времени  $t_{in}$ , до наступления которого возмущение отсутствовало. В этих условиях система находилась в стационарном состоянии с собственным спектром  $\varepsilon(\mathbf{p})$  и вакуумным состоянием  $|in\rangle$ , определяемыми характеристиками материала. Функции распределения электронов и дырок определяются и рассматриваются в этом исходном базисе:

$$\begin{aligned} f^e(\mathbf{p}, t) &= \langle in | a^\dagger(\mathbf{p}, t) a(\mathbf{p}, t) | in \rangle, \\ f^h(\mathbf{p}, t) &= \langle in | b^\dagger(-\mathbf{p}, t) b(-\mathbf{p}, t) | in \rangle. \end{aligned} \quad (4)$$

Вводя вспомогательные функции

$$\begin{aligned} u(\mathbf{p}, t) &= \frac{i}{2} \{ \langle in | a^\dagger(\mathbf{p}, t) b^\dagger(-\mathbf{p}, t) | in \rangle \\ &\quad - \langle in | b(-\mathbf{p}, t) a(\mathbf{p}, t) | in \rangle \}, \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} v(\mathbf{p}, t) &= \frac{1}{2} \{ \langle in | a^\dagger(\mathbf{p}, t) b^\dagger(-\mathbf{p}, t) | in \rangle \\ &\quad + \langle in | b(-\mathbf{p}, t) a(\mathbf{p}, t) | in \rangle \}, \end{aligned} \quad (5)$$

описывающие поляризационные эффекты межзонных переходов, и явно учитывая условие электрической нейтральности среды  $f^e(\mathbf{p}, t) = f^h(\mathbf{p}, t) = f(\mathbf{p}, t)$ , для (4) и (5) получаем замкнутую систему уравнений [23]

$$\begin{aligned} \dot{f}(\mathbf{p}, t) &= \frac{\lambda(\mathbf{p}, t)}{2} u(\mathbf{p}, t), \\ \dot{u}(\mathbf{p}, t) &= \lambda(\mathbf{p}, t)(1 - 2f(\mathbf{p}, t)) - \frac{2\varepsilon(\mathbf{p}, t)}{\hbar} v(\mathbf{p}, t), \\ \dot{v}(\mathbf{p}, t) &= \frac{2\varepsilon(\mathbf{p}, t)}{\hbar} u(\mathbf{p}, t). \end{aligned} \quad (6)$$

Здесь

$$\varepsilon(\mathbf{p}, t) = \sqrt{B'(\mathbf{p}, t)^2 + B''(\mathbf{p}, t)^2}$$

— текущее положительное собственное значение зависящего от времени гамильтониана (1) и

$$\lambda(\mathbf{p}, t) = \frac{B'(\mathbf{p}, t)B''(\mathbf{p}, t) - B'(\mathbf{p}, t)\dot{B}''(\mathbf{p}, t)}{\varepsilon^2(\mathbf{p}, t)}. \quad (7)$$

Пусть причиной перехода системы с гамильтонианом  $H(\mathbf{p})$  в нестационарный режим является действие внешнего классического однородного электрического поля  $\mathbf{E}(t)$ . Вводя векторный потенциал этого поля  $\mathbf{A}(t)$  условием  $\mathbf{E}(t) = -\dot{\mathbf{A}}(t)$  в калибровке Вейля, обеспечивающей равенство нулю скалярного потенциала, выполним замену

$$\mathbf{p} \rightarrow \mathbf{P}(t) = \mathbf{p} - e\mathbf{A}(t), \quad (8)$$

где  $e = -|e|$  — заряд электрона. Тогда подстановка

$$H(\mathbf{p}) \rightarrow H(\mathbf{p}, t) = H(\mathbf{P}(t)) \quad (9)$$

даст нам явный вид этого гамильтониана в нестационарных условиях.

Явный вид стационарной формы гамильтониана определим с использованием модели сильного взаимодействия ближайших соседей. С учетом замены (9) в системе координат с началом в центре первой зоны Бриллюэна он имеет вид [27]

$$B'(\mathbf{P}(t)) + iB''(\mathbf{P}(t)) = -\gamma \sum_l \exp\left(\frac{i}{\hbar} \mathbf{P}(t) \delta_l\right), \quad (10)$$

где энергия перехода  $\gamma \approx 2.7 \text{ eV}$ , а векторы  $\delta_l$  определяют положение трех ближайших соседей для атомов одной из подрешеток. Их можно выбрать, например, в виде

$$\begin{aligned} \delta_1 &= \frac{a}{\sqrt{3}}(-1, 0), & \delta_2 &= \frac{a}{\sqrt{3}}\left(\frac{1}{2}, \frac{\sqrt{3}}{2}\right), \\ \delta_3 &= \frac{a}{\sqrt{3}}\left(\frac{1}{2}, -\frac{\sqrt{3}}{2}\right). \end{aligned} \quad (11)$$

Здесь  $a \approx 0.246$  nm — постоянная решетки графена.

В дальнейшем удобнее работать в системе координат с началом в центре примитивной ячейки обратной решетки. В этом случае выражения для вещественной и мнимой компонент гамильтониана можно привести к виду

$$B'(\mathbf{P}(t)) = \gamma \left[ \sin\left(\frac{P_1(t)a}{\sqrt{3}\hbar} + \frac{\pi}{6}\right) + \sin\left(\frac{P_1(t)a}{2\sqrt{3}\hbar} + \frac{P_2(t)a}{2\hbar} - \frac{\pi}{6}\right) + \sin\left(\frac{P_1(t)a}{2\sqrt{3}\hbar} - \frac{P_2(t)a}{2\hbar} - \frac{\pi}{6}\right) \right], \quad (12)$$

$$B''(\mathbf{P}(t)) = \gamma \left[ \cos\left(\frac{P_1(t)a}{\sqrt{3}\hbar} + \frac{\pi}{6}\right) - \cos\left(\frac{P_1(t)a}{2\sqrt{3}\hbar} + \frac{P_2(t)a}{2\hbar} - \frac{\pi}{6}\right) - \cos\left(\frac{P_1(t)a}{2\sqrt{3}\hbar} - \frac{P_2(t)a}{2\hbar} - \frac{\pi}{6}\right) \right]. \quad (13)$$

В результате коэффициенты системы уравнений (6) определяются в явном виде:

$$\varepsilon(\mathbf{P}(t)) = \frac{2\hbar V_F}{\sqrt{3}a} \times \sqrt{3 - 4 \cos\left(\frac{\sqrt{3}aP_1(t)}{2\hbar}\right) \cos\left(\frac{aP_2(t)}{2\hbar}\right) + 2 \cos(aP_2(t)/\hbar)}, \quad (14)$$

$$\lambda(\mathbf{P}(t)) = -\frac{4e\hbar V_F^2}{9a\varepsilon^2(\mathbf{P}(t))} \left[ E_1(t)\sqrt{3} \left( \cos\left(\frac{\sqrt{3}aP_1(t)}{2\hbar}\right) \times \cos\left(\frac{aP_2(t)}{2\hbar}\right) + \cos\left(\frac{aP_2(t)}{\hbar}\right) \right) + E_2(t)3 \sin\left(\frac{\sqrt{3}aP_1(t)}{2\hbar}\right) \sin\left(\frac{aP_2(t)}{2\hbar}\right) \right]. \quad (15)$$

Скорость Ферми  $V_F = \sqrt{3}a\gamma/2\hbar \cong 10^6$  m/s.

Характеристики индуцированного излучения определяются поверхностной плотностью токов, генерируемых в образце внешним полем. Для гамильтониана вида (1) компоненты поверхностной плотности тока выражаются через решения системы (6) в виде [25]:

$$j_k(t) = \int \frac{d^2p}{(2\pi\hbar)^2} \frac{1}{\varepsilon(\mathbf{P}(t))} \left\{ \frac{\partial B'(\mathbf{P}(t))}{\partial P_k} \times [2B'(\mathbf{P}(t))f(\mathbf{p}, t) + B''(\mathbf{P}(t))u(\mathbf{p}, t)] + \frac{\partial B''(\mathbf{P}(t))}{\partial P_k} \times [2B''(\mathbf{P}(t))f(\mathbf{p}, t) - B'(\mathbf{P}(t))u(\mathbf{p}, t)] \right\}, \quad k = 1, 2. \quad (16)$$

Используя выражения (12) и (13), получим

$$j_1(t) = j_1^{\text{cond}}(t) + j_1^{\text{pol}}(t) = e \frac{8V_F^2\hbar}{3a} \int \frac{d^2p}{(2\pi\hbar)^2} \sqrt{3} \times \left[ 1 + 2 \cos\left(\frac{aP_1(t)}{\sqrt{3}\hbar}\right) \right] \sin\left(\frac{aP_1(t)}{2\sqrt{3}\hbar}\right) \cos\left(\frac{aP_2(t)}{2\hbar}\right) \times \frac{f(\mathbf{p}, t)}{\varepsilon(\mathbf{P}(t))} - e \frac{4V_F^2\hbar}{3a} \int \frac{d^2p}{(2\pi\hbar)^2} \frac{1}{\sqrt{3}} \left[ \cos\left(\frac{\sqrt{3}aP_1(t)}{2\hbar}\right) \times \cos\left(\frac{aP_2(t)}{2\hbar}\right) + \cos\left(\frac{aP_2(t)}{\hbar}\right) \right] \frac{u(\mathbf{p}, t)}{\varepsilon(\mathbf{P}(t))}, \quad (17)$$

$$j_2(t) = j_2^{\text{cond}}(t) + j_2^{\text{pol}}(t) = e \frac{8V_F^2\hbar}{3a} \int \frac{d^2p}{(2\pi\hbar)^2} \times \left[ \cos\left(\frac{\sqrt{3}aP_1(t)}{2\hbar}\right) \sin\left(\frac{aP_2(t)}{2\hbar}\right) - \sin\left(\frac{aP_2(t)}{\hbar}\right) \right] \times \frac{f(\mathbf{p}, t)}{\varepsilon(\mathbf{P}(t))} - e \frac{4V_F^2\hbar}{3a} \int \frac{d^2p}{(2\pi\hbar)^2} \left[ 1 + 2 \cos\left(\frac{aP_1(t)}{\sqrt{3}\hbar}\right) \right] \times \sin\left(\frac{aP_1(t)}{2\sqrt{3}\hbar}\right) \sin\left(\frac{aP_2(t)}{2\hbar}\right) \frac{u(\mathbf{p}, t)}{\varepsilon(\mathbf{P}(t))}. \quad (18)$$

Каждая компонента тока представлена в виде суммы двух слагаемых. Первое слагаемое определяется функцией распределения  $f(\mathbf{p}, t)$  и представляет из себя обусловленный внутризонной динамикой зарядов ток проводимости. Второе слагаемое определяется функцией  $u(\mathbf{p}, t)$  и является поляризационным током, обусловленным балансом процессов рождения и уничтожения пар электронов и дырок. Интегрирование необходимо выполнить по всей зоне Бриллюэна или ее эквиваленту, корректно учитывая периодичность поведения модели в обратном пространстве.

Система уравнений (6) с определенными в явном виде коэффициентами (14) и (15) предоставляет возможность численными методами воспроизвести эволюцию заселенности любого состояния зоны Бриллюэна в условиях действия электрического поля с произвольной зависимостью от времени. Вычисление наблюдаемых токов (17), (18) реализуемо по результатам решения кинетического уравнения в достаточно представительном множестве состояний. В силу предположения о пространственной однородности используемой модели компоненты плотности тока  $j_k(t)$  зависят только от времени.

Электрическое поле, создаваемое на расстоянии  $z$  от бесконечной плоскости с однородной плотностью тока, определяется выражением [28]

$$E_k(t, z) = -\frac{\mu_0 c}{2} j_k \left( t - \frac{z}{c} \right), \quad (19)$$

где  $\mu_0$  — магнитная проницаемость вакуума, а  $c$  — скорость света. В реальных условиях размеры области,

в которой действующее поле однородно, ограничены и выражение (19) применимо только в ближней зоне. Но спектральный состав индуцированного излучения при распространении в свободном пространстве будет сохраняться.

Генерация высших гармоник экспериментально реализуется с использованием коротких лазерных импульсов с высокой плотностью энергии. По завершению такого импульса квантовая система возвращается в стационарное состояние, но уже с другой заселенностью зон. В качестве начального состояния в простейшем случае может рассматриваться квазичастичный вакуум  $f(\mathbf{p}, t_{in}) = u(\mathbf{p}, t_{in}) = v(\mathbf{p}, t_{in}) = 0$  или равновесное термодинамическое распределение  $f(\mathbf{p}, t_{in}) \neq 0$  с не коррелированными (декогерентными) состояниями  $u(\mathbf{p}, t_{in}) = v(\mathbf{p}, t_{in}) = 0$ .

Решения системы уравнений (6) отражают квантовую бездиссипативную эволюцию состояний. В реальных образцах даже на временном масштабе десятков фемтосекунд может быть существенна роль релаксационных процессов [29,30]. В используемом подходе их учет возможен в приближении времени релаксации или путем введения двух различных временных масштабов для релаксации заселенности возбужденных состояний  $\tau_r$  и потери когерентности  $\tau_d$  [25,31]

$$\begin{aligned} \dot{f}(\mathbf{p}, t) &= -\frac{(f(\mathbf{p}, t) - f(\mathbf{p}, t_{in}))}{\tau_r} + \frac{\lambda(\mathbf{p}, t)}{2} u(\mathbf{p}, t), \\ \dot{u}(\mathbf{p}, t) &= -\frac{(u(\mathbf{p}, t) - u(\mathbf{p}, t_{in}))}{\tau_d} + \lambda(\mathbf{p}, t)(1 - 2f(\mathbf{p}, t)) \\ &\quad - \frac{2\varepsilon(\mathbf{p}, t)}{\hbar} v(\mathbf{p}, t), \\ \dot{v}(\mathbf{p}, t) &= -\frac{(v(\mathbf{p}, t) - v(\mathbf{p}, t_{in}))}{\tau_d} + \frac{2\varepsilon(\mathbf{p}, t)}{\hbar} u(\mathbf{p}, t). \end{aligned} \quad (20)$$

## 2. Постановка задачи

Для выявления и исследования эффектов нелинейного взаимодействия двух лазерных импульсов с разными частотами было использовано определение компонент поля в виде

$$\begin{aligned} E_1(t) &= E_{10} e^{-t^2/(2\tau_1^2)} \left[ \cos(2\pi\nu_1 t) - \frac{t}{2\pi\nu_1 \tau_1^2} \sin(2\pi\nu_1 t) \right], \\ E_2(t) &= E_{20} e^{-t^2/(2\tau_2^2)} \left[ \cos(2\pi\nu_2 t) - \frac{t}{2\pi\nu_2 \tau_2^2} \sin(2\pi\nu_2 t) \right]. \end{aligned} \quad (21)$$

$$(22)$$

Такой выбор позволяет задать их в форме, близкой к реализуемой в реальных экспериментах, и определить компоненты векторного потенциала для (9) выражениями

$$A_1(t) = -\frac{E_{10}}{2\pi\nu_1} e^{-t^2/(2\tau_1^2)} \sin(2\pi\nu_1 t), \quad (23)$$

$$A_2(t) = -\frac{E_{20}}{2\pi\nu_2} e^{-t^2/(2\tau_2^2)} \sin(2\pi\nu_2 t), \quad (24)$$

обеспечивающими равенство его нулю как в начальном, так и в конечном состоянии. В результате внешнее электрическое поле представляет суперпозицию двух падающих на поверхность образца под прямым углом линейно поляризованных в ортогональных плоскостях импульсов, у каждого из которых своя частота и длительность. Максимальных значений компоненты поля достигают одновременно в момент времени  $t = 0$ . Были выбраны значения  $\nu_1 = 6.045 \cdot 10^{13}$  Hz и  $\nu_2 = 2.418 \cdot 10^{14}$  Hz, соответствующие энергии фотонов 0.25 и 1.0 eV. Корректное описание процессов в условиях действия внешнего поля с такими частотами делает обязательным использование точной модели взаимодействия ближайших соседей. Выбор разницы частот в четыре раза учитывал тот факт, что для одиночных импульсов в спектре индуцированного излучения графена в силу его изотропии наблюдаются только нечетные гармоники и такое разнесение по частотам позволяет разделить вклады двух импульсов. Этой же цели служит и ортогональность направлений поляризации. Длительности импульсов определялись значениями  $\tau_1 = 3.16 \cdot 10^{-14}$  s и  $\tau_2 = 1.58 \cdot 10^{-14}$  s (на низкочастотный импульс накладывается более короткий высокочастотный). Амплитудные значения напряженности поля  $E_{10}$  и  $E_{20}$ , использовавшиеся при моделировании, приведены в таблице. Их значения определены условиями  $eV_F E_{k0}/2\pi\nu = 0.05$  и  $eV_F E_{k0}/2\pi\nu = 0.5$  eV, являющимися оценкой в окрестностях точек Дирака максимального изменения энергии состояний в присутствии внешнего поля вследствие замены (9). Рассматривалось как независимое действие импульсов с приведенными параметрами, так и их комбинаций. Принималось, что начальным состоянием  $f(\mathbf{p}, t_{in})$  является равновесное термодинамическое распределение, соответствующее 20°C. Учет диссипативных процессов был реализован с использованием времени релаксации неравновесной заселенности состояний  $\tau_r \approx 100$  fs и времени декогерентности  $\tau_d \approx 10$  fs.

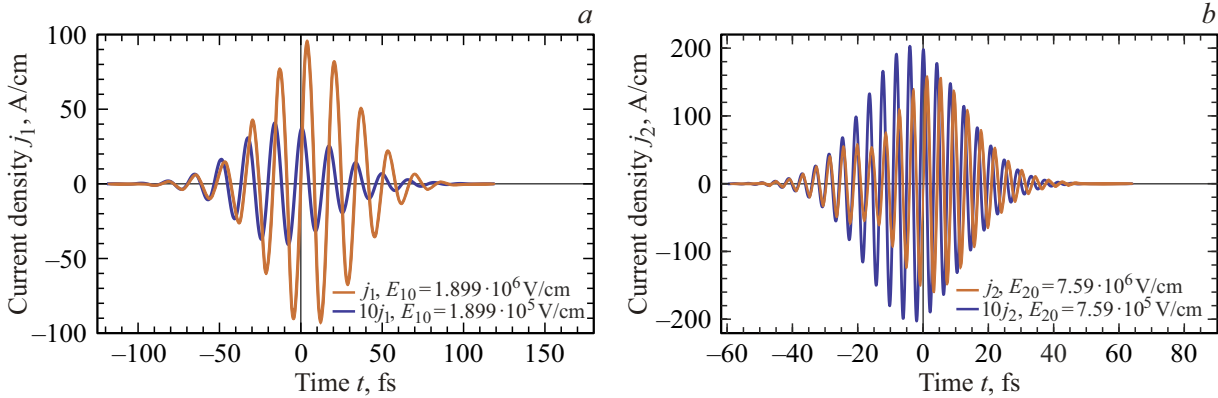
## 3. Результаты и обсуждение

Моделирование выполнялось на 3-мерных адаптивных сетках с переменным шагом в обратном пространстве и постоянным шагом по времени. Сетки для покрытия обратного пространства генерировались индивидуально для каждого набора параметров возмущающего воздействия с использованием метода [32]. Корректное воспроизведение интегралов (17) и (18) обеспечивалось вычислением значений функций  $f(\mathbf{p}, t)$  и  $u(\mathbf{p}, t)$  для  $\approx 6 \cdot 10^4 - 4 \cdot 10^5$  состояний и  $2.4 \cdot 10^3$  шагов по времени.

На первом этапе вычислялся отклик модели на независимое действие одиночных импульсов с частотами  $\nu_1$  и  $\nu_2$  при двух приведенных значениях каждой из амплитуд  $E_{10}$  и  $E_{20}$ . Результаты для зависимости от времени плотности тока в условиях действия только

Амплитудные значения компонент напряженности электрического поля, соответствующие им пиковые плотности потока энергии и оценки возмущения спектра энергии

$E_{10}$ , пиковая плотность потока энергии на частоте $\nu_1$ , изменение энергии состояний $eV_F E_{10}/2\pi\nu_1$	$E_{20}$ , пиковая плотность потока энергии на частоте $\nu_2$ , изменение энергии состояний $eV_F E_{20}/2\pi\nu_2$
$1.899 \cdot 10^5$ V/cm, $4.78 \cdot 10^7$ W/cm <sup>2</sup> , 0.05 eV	$7.59 \cdot 10^5$ V/cm, $7.65 \cdot 10^8$ W/cm <sup>2</sup> , 0.05 eV
$1.899 \cdot 10^6$ V/cm, $4.78 \cdot 10^9$ W/cm <sup>2</sup> , 0.5 eV	$7.59 \cdot 10^6$ V/cm, $7.65 \cdot 10^{10}$ W/cm <sup>2</sup> , 0.5 eV



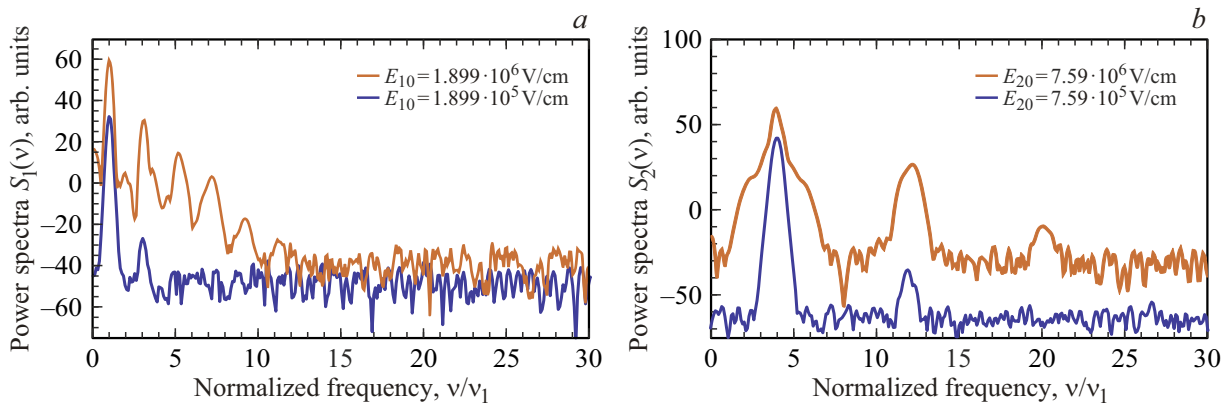
**Рис. 1.** Зависимость от времени первой компоненты плотности тока  $j_1$  для импульсов внешнего поля вида (21) и  $E_2(t) = 0$  (a). Зависимость от времени второй компоненты плотности тока  $j_2$  для импульсов внешнего поля вида (22) и  $E_1(t) = 0$  (b).

первой компоненты внешнего поля (21) приведены на рис. 1, a и только второй (22) на рис. 1, b. Значения  $E_{10}$  и  $E_{20}$  различны, они приведены на рисунках и сведены в таблицу. Продолжительность импульса с большей частотой  $\nu_2$  в два раза короче. Использована линейная шкала значений, но для обеспечения наглядности выполнено масштабирование значений плотности тока при меньшей напряженности поля с коэффициентом 10. Это соответствует отношению двух значений напряженности электрического поля и позволяет наглядно продемонстрировать нелинейность зависимости поверхностной плотности тока от этого параметра. В обоих случаях компоненты тока, перпендикулярные действующему полю, отсутствуют (с точностью до ошибок вычисления используемых числовых процедур).

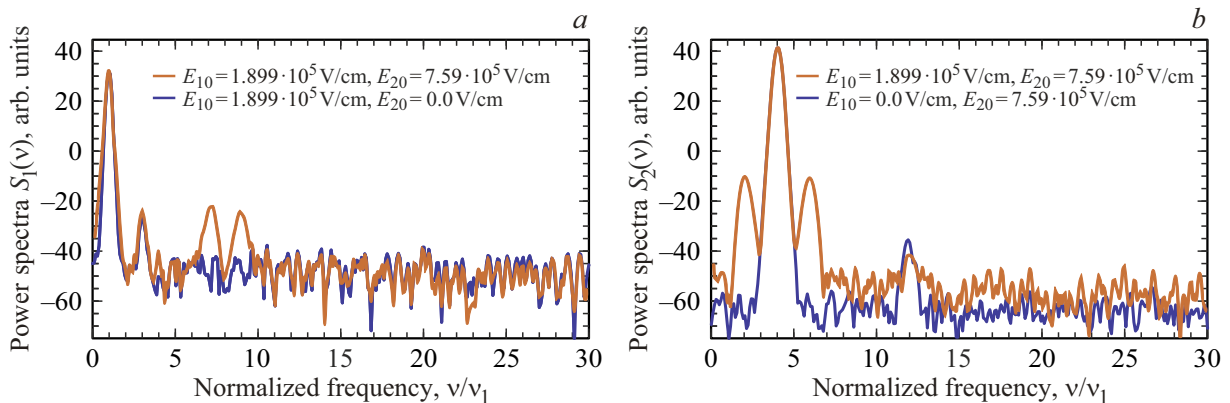
Для оценки спектрального состава индуцированного излучения с учетом (19) анализировались непосредственно дискретные ряды значений  $j_1$  и  $j_2$ . Вычислялась зависимость от частоты квадрата модуля преобразования Фурье компоненты  $k$  плотности тока (спектр мощности, далее используем для его обозначения  $S_k(\nu)$ ). В силу конечного времени моделируемого процесса был применен периодограммный метод с использованием оконной функции Ханна и усреднением результатов по последовательности перекрывающихся выборок (метод Уэлча) в реализации из пакета Wolfram Mathematica. Полученные значения спектра мощности приведены к логарифмическому масштабу преобразованием  $S_k(\nu) \rightarrow 10\text{Lg}(S_k(\nu))$  с сохранением обозначения  $S_k(\nu)$  и выражены в условных единицах. На рис. 2 приведены результаты в случае

независимого действия одиночных импульсов с частотами  $\nu_1$  и  $\nu_2$ . Для всех комбинаций параметров отчетливо выражен отклик электронной подсистемы материала на частоте несущей. На рис. 2, a это  $\nu_1$ , на рис. 2, b это  $\nu_2(4\nu_1)$ . При минимальных напряженностях внешнего электрического поля различимы третьи гармоники на частотах  $3\nu_1$  и  $3\nu_2$  ( $12\nu_1$ ) соответственно. С увеличением напряженности электрического поля на порядок проявляется целый ряд нечетных гармоник:  $3\nu_1, 5\nu_1, 7\nu_1, 9\nu_1$  и  $11\nu_1$  на рис. 2, a,  $3\nu_2$  ( $12\nu_1$ ) и  $5\nu_2$  ( $20\nu_1$ ) на рис. 2, b, что соответствует известным оценкам и результатам [6–10].

В условиях одновременного действия двух импульсов (рис. 3) их взаимное влияние проявляется уже при минимальных рассматриваемых значениях напряженности электрического поля. В спектре первой компоненты тока  $j_1$  в области частот  $\nu_1, 3\nu_1$  и  $5\nu_1$  заметных изменений не происходит, в области пятой гармоники значения сохраняют фоновый уровень. Но далее на частотах, которые можно ассоциировать с седьмой ( $7\nu_1$ ) и девятой ( $9\nu_1$ ) гармониками или определить как  $2\nu_2 \pm \nu_1$ , наблюдаются отчетливые выбросы спектра мощности с ростом значений на два порядка (рис. 3, a). В спектре второй компоненты тока  $j_2$  также наблюдаются существенные изменения. Отклик на частоте несущей полностью сохраняет свой вид, но у этой линии появляются два симметричных спутника на частотах  $\nu_2 \pm 2\nu_1$ . Высота соответствующих пиков достигает пяти порядков над исходным уровнем одиночного импульса (рис. 3, b). Дополнительно можно отметить проявление нулевой гармоники.



**Рис. 2.** Спектр мощности поверхностных токов для независимого действия импульсов с частотами  $\nu_1$ , направление внешнего поля вдоль первой оси координат (а) и  $\nu_2$ , направление внешнего поля вдоль второй оси координат (б).



**Рис. 3.** Сравнение спектров мощности  $j_1$  для импульсов с частотой  $\nu_1$  и амплитудой электрического поля  $E_{01} = 1.899 \cdot 10^5$  V/cm в отсутствие и при наличии импульса с частотой  $\nu_2$  и  $E_{02} = 7.59 \cdot 10^5$  V/cm (а). Сравнение спектров мощности  $j_2$  для импульсов с частотой  $\nu_2$  и амплитудой электрического поля  $E_{02} = 7.59 \cdot 10^5$  V/cm в отсутствие и при наличии импульса с частотой  $\nu_1$  и  $E_{01} = 1.899 \cdot 10^5$  V/cm (б).

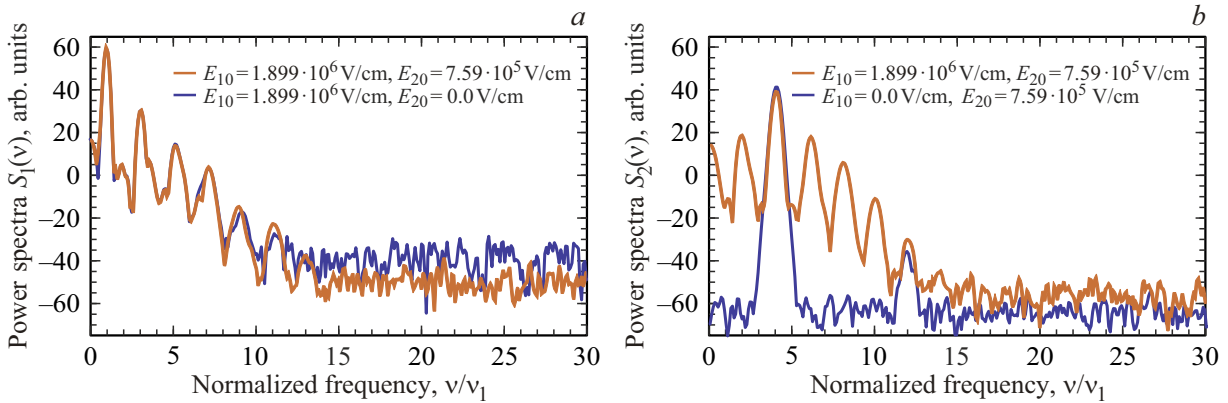
На рис. 4 показаны результаты увеличения напряженности поля низкочастотного импульса на порядок по сравнению с рассмотренным выше случаем. В условиях доминирования низкочастотного импульса спектр  $j_1$  не показывает явного отклика на наличие или отсутствие ортогональной высокочастотной компоненты (рис. 4, а), демонстрируя хорошо выраженный ряд нечетных гармоник. В то же время спектр  $j_2$  преобразуется в ряд линий с постоянным шагом  $2\nu_1$  между ними, включая нулевую гармонику. Для ближайших спутников несущей  $\nu_2 \pm 2\nu_1$  рост значений достигает восьми порядков (рис. 4, б).

На рис. 5 приведены результаты для обратной ситуации, когда доминирует высокочастотная компонента. Наибольшие изменения наблюдаются в спектре  $j_1$  (рис. 5, а). Их можно интерпретировать как появление дополнительных линий с частотами  $2\nu_2 \pm \nu_1$  и  $4\nu_2 \pm \nu_1$  с ростом наблюдаемых значений до семи и пяти порядков соответственно. Непосредственные окрестности несущей  $\nu_1$  можно интерпретировать как проявление ее спутников  $\nu_1 \pm 0.5\nu_1$ . В свою очередь спектр  $j_2$  не

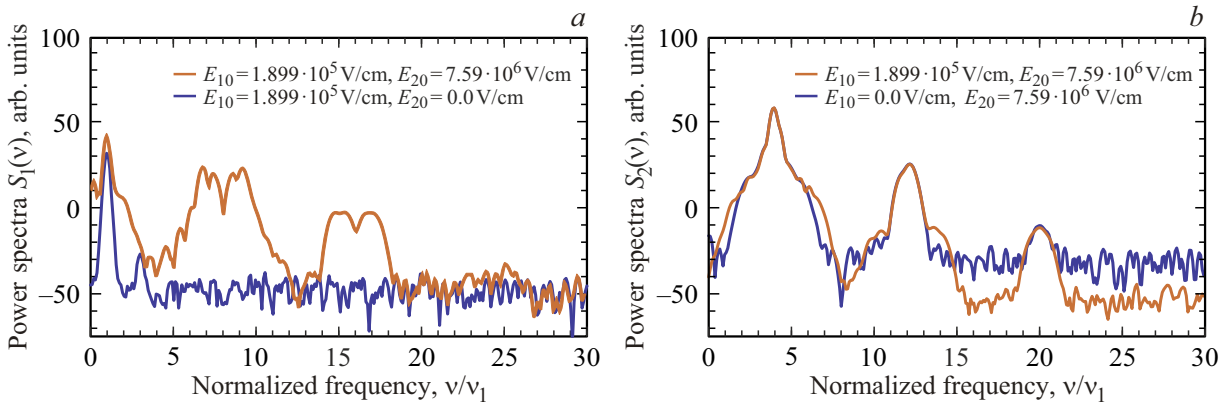
показывает явного отклика на наличие или отсутствие ортогональной низкочастотной компоненты (рис. 5, б).

На последней паре рисунков (рис. 6, а и рис. 6, б) приведены результаты для взаимодействия импульсов с максимальными параметрами. В этом случае спектры обеих компонент тока из-за взаимного влияния претерпевают существенные изменения и оказываются насыщены высокочастотными гармониками примерно до  $20-25\nu_1$ .

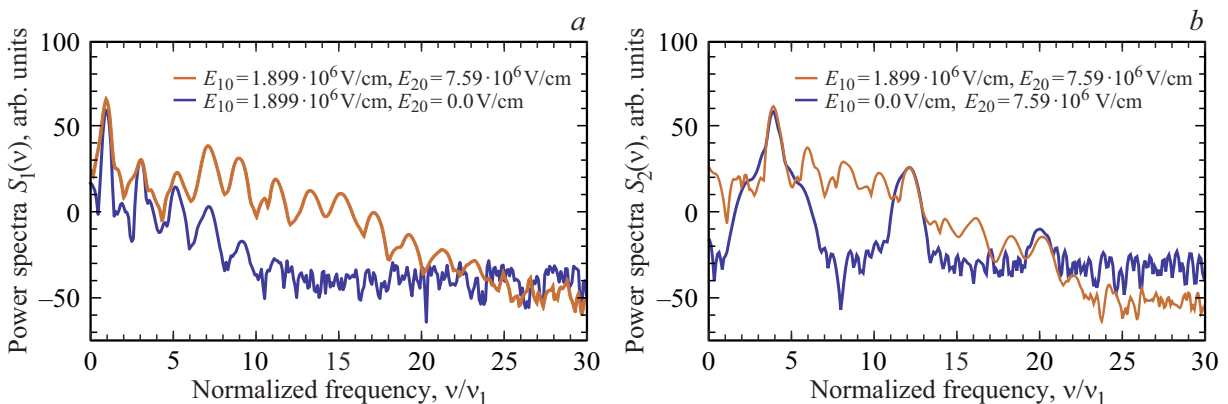
Представленные результаты можно рассматривать как взаимное стимулирование процесса генерации высокочастотных мод в условиях одновременного действия импульсов с разными частотами. Это происходит как по причине увеличения неравновесной заселенности состояний, так и когерентной связи между переходами, вызванными действием полей с разными частотами [14]. Относительная близость частот двух импульсов в рассматриваемом случае позволяет наблюдать гармоники с частотами вида  $\nu_2 \pm 2\nu_1$  и другие подобные комбинации. Необходимо отметить, что для однозначного определения частот новых гармоник через  $\nu_1$  и  $\nu_2$



**Рис. 4.** Сравнение спектров мощности  $j_1$  для импульсов с частотой  $\nu_1$  и амплитудой электрического поля  $E_{01} = 1.899 \cdot 10^6$  V/cm в отсутствие и при наличии импульса с частотой  $\nu_2$  и  $E_{02} = 7.59 \cdot 10^5$  V/cm (a). Сравнение спектров мощности  $j_2$  для импульсов с частотой  $\nu_2$  и амплитудой электрического поля  $E_{02} = 7.59 \cdot 10^5$  V/cm в отсутствие и при наличии импульса с частотой  $\nu_1$  и  $E_{01} = 1.899 \cdot 10^6$  V/cm (b).



**Рис. 5.** Сравнение спектров мощности  $j_1$  для импульсов с частотой  $\nu_1$  и амплитудой электрического поля  $E_{01} = 1.899 \cdot 10^5$  V/cm в отсутствие и при наличии импульса с частотой  $\nu_2$  и  $E_{02} = 7.59 \cdot 10^6$  V/cm (a). Сравнение спектров мощности  $j_2$  для импульсов с частотой  $\nu_2$  и амплитудой электрического поля  $E_{02} = 7.59 \cdot 10^6$  V/cm в отсутствие и при наличии импульса с частотой  $\nu_1$  и  $E_{01} = 1.899 \cdot 10^5$  V/cm (b).



**Рис. 6.** Сравнение спектров мощности  $j_1$  для импульсов с частотой  $\nu_1$  и амплитудой электрического поля  $E_{01} = 1.899 \cdot 10^6$  V/cm в отсутствие и при наличии импульса с частотой  $\nu_2$  и  $E_{02} = 7.59 \cdot 10^6$  V/cm (a). Сравнение спектров мощности  $j_2$  для импульсов с частотой  $\nu_2$  и амплитудой электрического поля  $E_{02} = 7.59 \cdot 10^6$  V/cm в отсутствие и при наличии импульса с частотой  $\nu_1$  и  $E_{01} = 1.899 \cdot 10^6$  V/cm (b).



необходимы численные эксперименты с другими соотношениями их значений. Появление новых гармоник вне ряда нечетных значений можно интерпретировать и как проявление нарушения изотропии свойств материала.

#### 4. Заключение

В настоящей статье представлены результаты моделирования отклика электронной подсистемы графена на действие внешнего электрического поля с использованием формализма квантового кинетического уравнения на основе строгой модели сильного взаимодействия ближайших соседей. Показано, что для линейно поляризованных импульсов с рассматривавшимися параметрами воспроизводимый с использованием данного подхода поверхностный ток параллелен плоскости поляризации и наряду с доминирующим вкладом на частоте несущей в нем может наблюдаться ряд нечетных высших гармоник. Этим определяются характеристики вторичного индуцированного излучения. Результат находится в хорошем согласии с теорией и экспериментом.

При моделировании одновременного действия двух линейно поляризованных в ортогональных плоскостях импульсов с различными параметрами наблюдается существенное их взаимное влияние, выражающееся в росте вклада высокочастотных гармоник в поверхностный ток. В спектре поверхностного тока появляется ряд новых гармоник как в области частот, выше несущей вне ряда нечетных значений, так и в низкочастотной области. Полученные результаты свидетельствуют о росте в рассматриваемых условиях эффективности нелинейной конверсии энергии лазерных импульсов в высокочастотную область.

#### Финансирование работы

Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда № 23-21-00047, <https://rscf.ru/project/23-21-00047/>.

#### Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

#### Список литературы

- [1] M. Ferray, A. L'Huillier, X.F. Li, L.A. Lompre, G. Mainfray, C. Manus. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, **21** (3), L31–L35 (1988). DOI: 10.1088/0953-4075/21/3/001
- [2] Sh. Ghimire, A.D. DiChiara, E. Sistrunk, P. Agostini, L.F. DiMauro, D.A. Reis. *Nature Physics*, **7**, 138–141 (2011). DOI: 10.1038/NPHYS1847
- [3] Sh. Ghimire, D.A. Reis. *Nature Physics*, **15**, 10–16 (2019). DOI: 10.1038/s41567-018-0315-5
- [4] H.A. Hafez, S. Kovalev, J-Ch. Deinert, Z. Mics, B. Green, N. Awari, M. Chen, S. Germanskiy, U. Lehnert, J. Teichert, Z. Wang, K-J. Tielrooij, Z. Liu, Z. Chen, A. Narita, K. Müllen, M. Bonn, M. Gensch, D. Turchinovich. *Nature*, **561**, 507–511 (2018). DOI: 10.1038/s41586-018-0508-1
- [5] S. Kovalev, H.A. Hafez, K-J. Tielrooij, J-Ch. Deinert, I. Ilyakov, N. Awari, D. Alkaraz, K. Soundarapandian, D. Saleta, S. Germanskiy, M. Chen, M. Bawatna, B. Green, F.H.L. Koppens, M. Mittendorf, M. Bonn, M. Gensch, D. Turchinovich. *Sci. Adv.*, **7** (15), eabf9809 (2021). DOI: 10.1126/sciadv.abf9809
- [6] N. Yoshikawa, T. Tamaya, K. Tanaka. *Science*, **356**, 736–738 (2017). DOI: 10.1126/science.aam8861
- [7] S. Cha, M. Kim, Y. Kim, Sh. Choi, S. Kang, H. Kim, S. Yoon, G. Moon, T. Kim, Y.W. Lee, G.Y. Cho, M.J. Park, Ch.-J. Kim, B.J. Kim, J.D. Lee, M-H. Jo, J. Kim. *Nature Commun.*, **13**, 6630 (2022). DOI: 10.1038/s41467-022-34337-y
- [8] K.L. Ishikawa. *Phys. Rev. B.*, **82**, 201402 (2010). DOI: 10.1103/PhysRevB.82.201402
- [9] I. Al-Naib, J.E. Sipe, M.M. Digman. *New J. Phys.*, **17**, 113018 (2015). DOI: 10.1088/1367-2630/17/11/113018
- [10] M. Ornigotti, D.N. Carvalho, F. Biancalana. *Riv. Nuovo Cim.*, **46**, 295–380 (2023). DOI: 10.1007/s40766-023-00043-8
- [11] H.K. Avetissian, A.K. Avetissian, B.R. Avchyan, G.F. Mkrtchian. *Phys. Rev. B*, **100**, 035434 (2019). DOI: 10.1103/PhysRevB.100.035434
- [12] M.S. Mrudul, A. Jimenez-Galan, M. Ivanov, G. Dixit. *Optica*, **8** (3), 422–427 (2021). DOI: 10.1364/OPTICA.418152
- [13] H.K. Avetissian, G.F. Mkrtchian, A. Knorr. *Phys. Rev. B*, **105**, 195405 (2022). DOI: 10.1103/PhysRevB.105.195405
- [14] W. Mao, A. Rubio, Sh.A. Sato. *Phys. Rev. B*, **109**, 045421 (2024). DOI: 10.1103/PhysRevB.109.045421
- [15] А.А. Гриб, С.Г. Мамаев, В.М. Мостепаненко. *Вакуумные квантовые эффекты в сильных полях* (Энергоатомиздат, М., 1988).
- [16] S.M. Schmidt, D. Blaschke, G. Röpke, S.A. Smolyansky, A.V. Prozorkevich, V.D. Toneev. *Int. J. Mod. Phys. E*, **7** (6), 709 (1998). DOI: 10.1142/S0218301398000403
- [17] D.B. Blaschke, A.V. Prozorkevich, G. Röpke, C.D. Roberts, S.M. Schmidt, D.S. Shkirmanov, S.A. Smolyansky. *Eur. Phys. J. D*, **55**, 341 (2009). DOI: 10.1140/epjd/e2009-00156-y
- [18] I.A. Aleksandrov, A.D. Panferov, S.A. Smolyansky. *Phys. Rev. A*, **103**, 053107 (2021). DOI: 10.1103/PhysRevA.103.053107
- [19] P.V. Sasorov, F. Pegoraro, T.Zh. Esirkepov, S.V. Bulanov. *New J. Phys.*, **23**, 105003 (2021). DOI: 10.1088/1367-2630/ac28cb
- [20] A. Fedotov, A. Ilderton, F. Karbstein, B. King, D. Seipt, H. Taya, G. Torggrimsson. *Phys. Reports*, **1010**, 1 (2023). DOI: 10.1016/j.physrep.2023.01.003
- [21] V.V. Dmitriev, S.A. Smolyansky, V.A. Tseryupa. *Physics of Atomic Nuclei*, **86**, 913 (2023). DOI: 10.1134/S1063778823050137
- [22] A. Panferov, S. Smolyansky, D. Blaschke, N. Gevorgyan. *EPJ Web Conf.*, **204**, 060089 (2019). DOI: 10.1051/epjconf/201920406008
- [23] S.A. Smolyansky, A.D. Panferov, D.B. Blaschke, N.T. Gevorgyan. *Particles*, **2**, 208 (2019). DOI: 10.3390/particles2020015
- [24] S.A. Smolyansky, D.B. Blaschke, V.V. Dmitriev, A.D. Panferov, N.T. Gevorgyan. *Particles*, **3**, 456 (2020). DOI: 10.3390/particles3020032
- [25] А.Д. Панферов, Н.А. Новиков. *Известия Саратовского университета. Новая серия. Серия: Физика*, **23** (3), 254 (2023). DOI: 10.18500/1817-3020-2023-23-3-254-264
- [26] А.Д. Панферов, И.А. Щербаков. *Известия Саратовского университета. Новая серия. Серия: Физика*, **24** (3), 198 (2024). DOI: 10.18500/1817-3020-2023-24-3-198-208



- [27] M.I. Katsnelson. *The Physics of Graphene*. 2nd edn. (Cambridge University Press, 2020).
- [28] T.A. Abbott, D.J. Griffiths. *Am. J. Phys.*, **53**, 1203–1211 (1985). DOI: 10.1119/1.14084
- [29] Chr. Heide, T. Eckstein, T. Boolakee, C. Gerner, H.B. Weber, I. Franco, P. Hommelhoff. *Nano Lett.*, **21**, 9403–9409 (2021). DOI: 10.1021/acs.nanolett.1c02538
- [30] Y. Kim, M.J. Kim, S. Cha, Sh. Choi, Ch-J. Kim, B.J. Kim, M.-H. Jo, J. Kim, J.D. Lee. *Nano Lett.*, **24**, 1277–1283 (2024). DOI: 10.1021/acs.nanolett.3c04278
- [31] А.Д. Панферов, Н.А. Новиков. В сб. *Взаимодействие сверхвысокочастотного, терагерцового и оптического излучения с полупроводниковыми микро- и наноструктурами, метаматериалами и биообъектами: Сборник статей одиннадцатой Всероссийской научной школы-семинара* (Саратовский источник, Саратов, 2024), с. 89–93.
- [32] А.Д. Панферов, Н.В. Поснова, А.А. Ульянова. Программные системы: теория и приложения, **14** (2), 27–47 (2023). DOI: 10.25209/2079-3316-2023-14-2-27-47