11

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 демонстрировались 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 упрощающие 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

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

и искомую волновую функцию через амплитуды двух псевдоспиновых состояний

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

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 антикоммутационным соотношениям

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

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:

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

Вводя вспомогательные функции

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

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]

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

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

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

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

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

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

$$H(\mathbf{p}) \to H(\mathbf{p},t) = H\big(\mathbf{P}(t)\big) \tag{9}$$

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]

$$B'\big(\mathbf{P}(t)\big) + iB''\big(\mathbf{P}(t)\big) = -\gamma \sum_l \exp\left(\frac{i}{\hbar}\,\mathbf{P}(t)\boldsymbol{\delta}_l\right), \tag{10}$$

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

$$\boldsymbol{\delta}_1 = \frac{a}{\sqrt{3}}(-1,0), \quad \boldsymbol{\delta}_2 = \frac{a}{\sqrt{3}}\left(\frac{1}{2}, \frac{\sqrt{3}}{2}\right),$$
$$\boldsymbol{\delta}_3 = \frac{a}{\sqrt{3}}\left(\frac{1}{2}, -\frac{\sqrt{3}}{2}\right). \tag{11}$$

Здесь $a \approx 0.246\,\mathrm{nm}$ — 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

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

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

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

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

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

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

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]:

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

Используя выражения (12) и (13), получим

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

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

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]

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

где μ_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 τ_r и потери когерентности τ_d [25,31]

$$\dot{f}(\mathbf{p}, t) = -\frac{\big(f(\mathbf{p}, t) - f(\mathbf{p}, t_{in})\big)}{\tau_r} + \frac{\lambda(\mathbf{p}, t)}{2}\, u(\mathbf{p}, t),$$

$$\dot{u}(\mathbf{p}, t) = -\frac{\big(u(\mathbf{p}, t) - u(\mathbf{p}, t_{in})\big)}{\tau_d} + \lambda(\mathbf{p}, t)\big(1 - 2f(\mathbf{p}, t)\big) - \frac{2\varepsilon(\mathbf{p}, t)}{\hbar}\, v(\mathbf{p}, t),$$

$$\dot{v}(\mathbf{p}, t) = -\frac{\big(v(\mathbf{p}, t) - v(\mathbf{p}, t_{in})\big)}{\tau_d} + \frac{2\varepsilon(\mathbf{p}, t)}{\hbar}\, u(\mathbf{p}, t). \tag{20}$$

2. Постановка задачи

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

$$E_1(t) = E_{10} e^{-t^2/(2\tau_1^2)} \left[\cos(2\pi\nu_1 t) - \frac{t}{2\pi\nu_1\tau_1^2}\, \sin(2\pi\nu_1 t)\right], \tag{21}$$

$$E_2(t) = E_{20} e^{-t^2/(2\tau_2^2)} \left[\cos(2\pi\nu_2 t) - \frac{t}{2\pi\nu_2\tau_2^2}\, \sin(2\pi\nu_2 t)\right]. \tag{22}$$

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

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

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

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 $eV_\mathrm{F}E_{k0}/2\pi\nu = 0.05$ и $eV_\mathrm{F}E_{k0}/2\pi\nu = 0.5$ 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 ν_1 и ν_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 ν_1, изменение энергии состояний $eV_F E_{10}/2\pi\nu_1$	E_{20}, пиковая плотность потока энергии на частоте ν_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^2, 0.05 eV	$7.59 \cdot 10^5$ V/cm, $7.65 \cdot 10^8$ W/cm^2, 0.05 eV
$1.899 \cdot 10^6$ V/cm, $4.78 \cdot 10^9$ W/cm^2, 0.5 eV	$7.59 \cdot 10^6$ V/cm, $7.65 \cdot 10^{10}$ W/cm^2, 0.5 eV

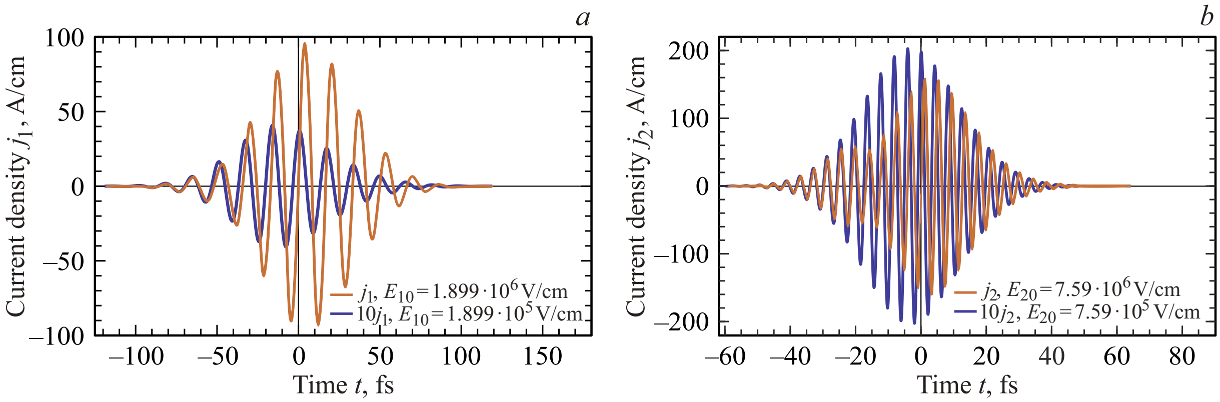

Рис. 1. Зависимость от времени первой компоненты плотности тока j_1 для импульсов внешнего поля вида (21) и $E_2(t) = 0$ (*a*). Зависимость от времени второй компоненты плотности тока j_2 для импульсов внешнего поля вида (22) и $E_1(t) = 0$ (*b*).

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 ν_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 $S_k(\nu) \to 10\mathrm{Lg}(S_k(\nu))$ с сохранением обозначения $S_k(\nu)$ и выражены в условных единицах. На рис. 2 приведены результаты в случае независимого действия одиночных импульсов с частотами ν_1 и ν_2. Для всех комбинаций параметров отчетливо выражен отклик электронной подсистемы материала на частоте несущей. На рис. 2, *a* это ν_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 ν_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.

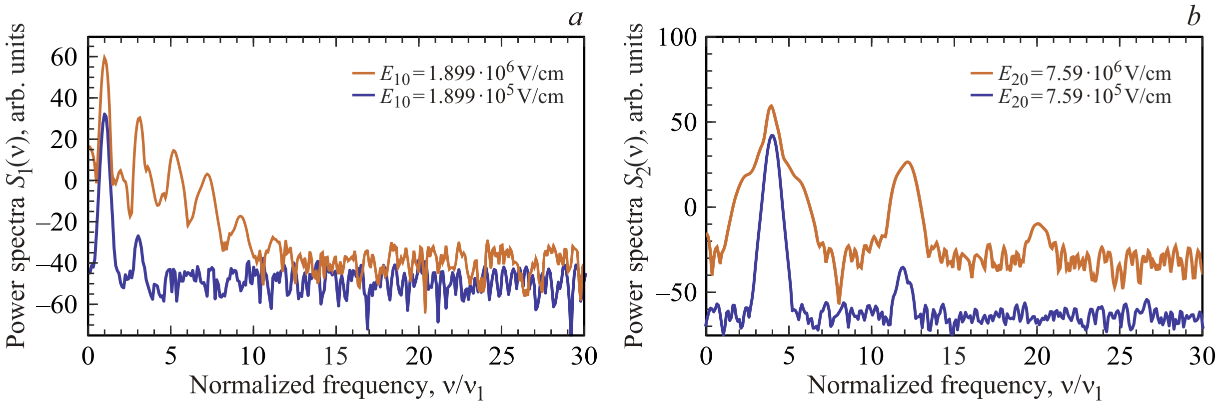

Рис. 2. Спектр мощности поверхностных токов для независимого действия импульсов с частотами ν_1, направление внешнего поля вдоль первой оси координат (a) и ν_2, направление внешнего поля вдоль второй оси координат (b).

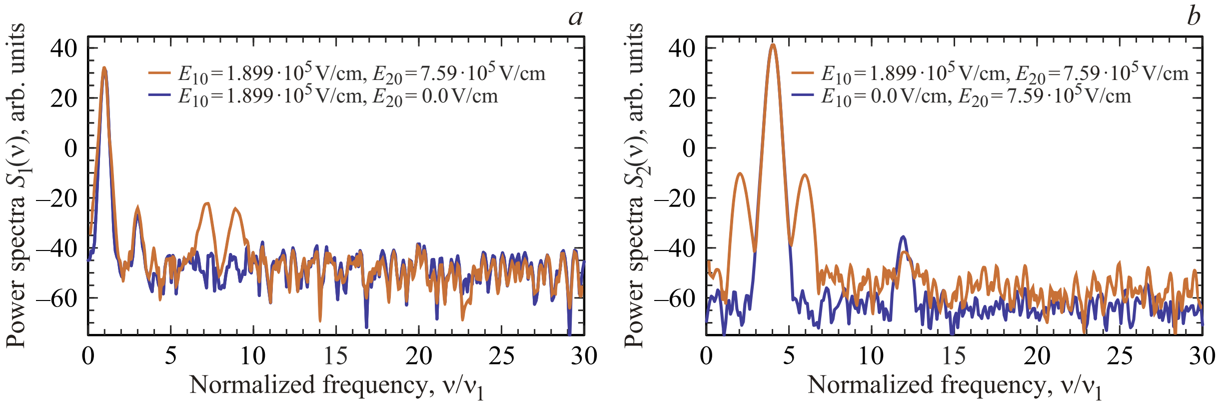

Рис. 3. Сравнение спектров мощности j_1 для импульсов с частотой ν_1 и амплитудой электрического поля $E_{01} = 1.899\cdot10^5$ V/cm в отсутствие и при наличии импульса с частотой ν_2 и $E_{02} = 7.59\cdot10^5$ V/cm (a). Сравнение спектров мощности j_2 для импульсов с частотой ν_2 и амплитудой электрического поля $E_{02} = 7.59\cdot10^5$ V/cm в отсутствие и при наличии импульса с частотой ν_1 и $E_{01} = 1.899\cdot10^5$ V/cm (b).

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, a), 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, b).

На рис. 5 приведены результаты для обратной ситуации, когда доминирует высокочастотная компонента. Наибольшие изменения наблюдаются в спектре j_1 (рис. 5, a). 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 ν_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, b).

На последней паре рисунков (рис. 6, a и рис. 6, b) 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 рассматривавшемся 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 ν_1 и ν_2

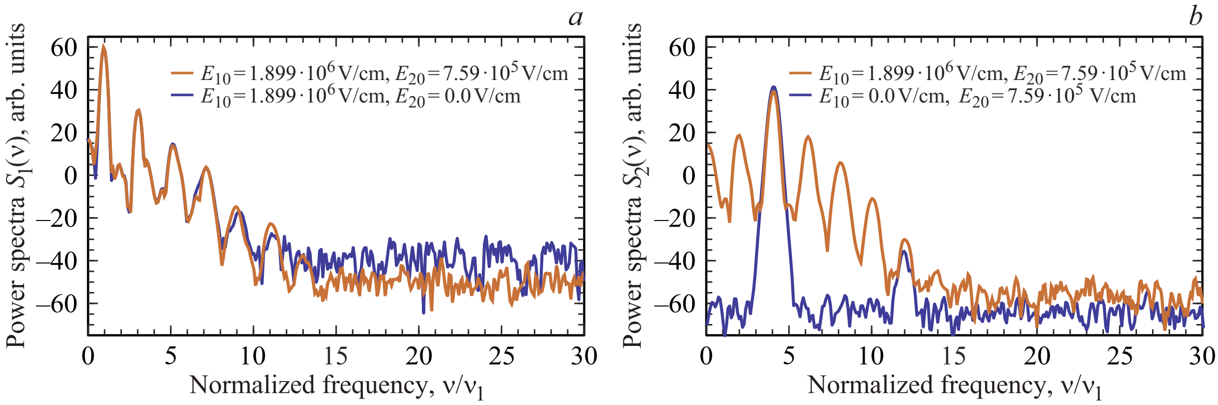

Рис. 4. Сравнение спектров мощности j_1 для импульсов с частотой ν_1 и амплитудой электрического поля $E_{01} = 1.899 \cdot 10^6$ V/cm в отсутствие и при наличии импульса с частотой ν_2 и $E_{02} = 7.59 \cdot 10^5$ V/cm (a). Сравнение спектров мощности j_2 для импульсов с частотой ν_2 и амплитудой электрического поля $E_{02} = 7.59 \cdot 10^5$ V/cm в отсутствие и при наличии импульса с частотой ν_1 и $E_{01} = 1.899 \cdot 10^6$ V/cm (b).

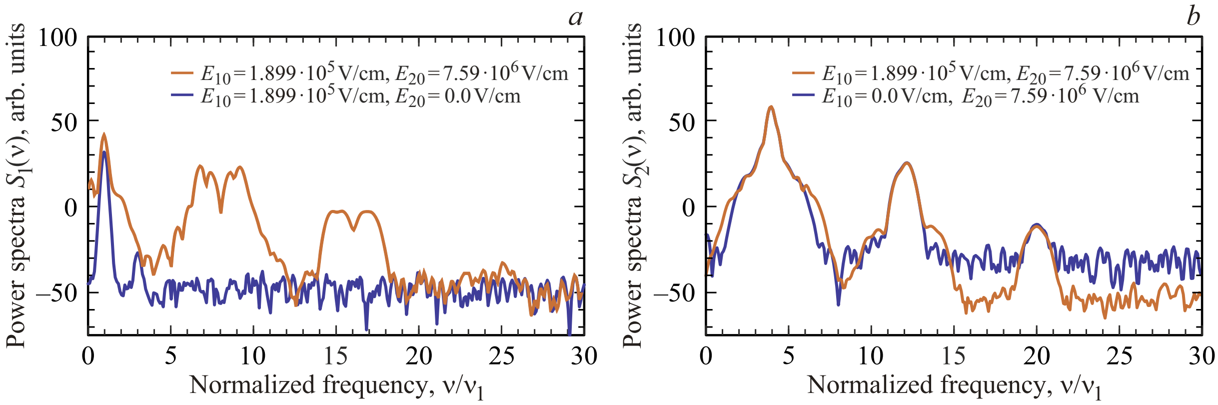

Рис. 5. Сравнение спектров мощности j_1 для импульсов с частотой ν_1 и амплитудой электрического поля $E_{01} = 1.899 \cdot 10^5$ V/cm в отсутствие и при наличии импульса с частотой ν_2 и $E_{02} = 7.59 \cdot 10^6$ V/cm (a). Сравнение спектров мощности j_2 для импульсов с частотой ν_2 и амплитудой электрического поля $E_{02} = 7.59 \cdot 10^6$ V/cm в отсутствие и при наличии импульса с частотой ν_1 и $E_{01} = 1.899 \cdot 10^5$ V/cm (b).

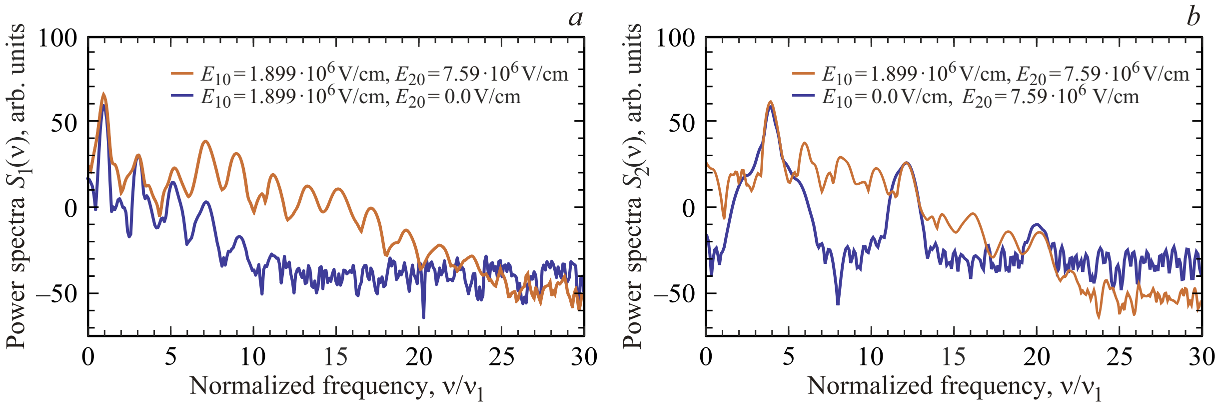

Рис. 6. Сравнение спектров мощности j_1 для импульсов с частотой ν_1 и амплитудой электрического поля $E_{01} = 1.899 \cdot 10^6$ V/cm в отсутствие и при наличии импульса с частотой ν_2 и $E_{02} = 7.59 \cdot 10^6$ V/cm (a). Сравнение спектров мощности j_2 для импульсов с частотой ν_2 и амплитудой электрического поля $E_{02} = 7.59 \cdot 10^6$ V/cm в отсутствие и при наличии импульса с частотой ν_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 свидетельствует 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, Á. 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. Torgrimsson. 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