



НАНОТЕХНОЛОГИИ, НАНОМАТЕРИАЛЫ И МЕТАМАТЕРИАЛЫ

Известия Саратовского университета. Новая серия. Серия: Физика. 2023. Т. 23, вып. 3. С. 254–264
Izvestiya of Saratov University. Physics, 2023, vol. 23, iss. 3, pp. 254–264
<https://fizika.sgu.ru> <https://doi.org/10.18500/1817-3020-2023-23-3-254-264>, EDN: NSZKPX

Научная статья
УДК 004.942:538.958:538.975

Характеристики индуцированного излучения в условиях действия на графен коротких высокочастотных импульсов

А. Д. Панферов[✉], Н. А. Новиков

Саратовский национальный исследовательский государственный университет имени Н. Г. Чернышевского, Россия, 410012, г. Саратов, ул. Астраханская, д. 83

Панферов Анатолий Дмитриевич, кандидат физико-математических наук, заместитель начальника управления цифровых и информационных технологий; доцент кафедры дискретной математики и информационных технологий, panferovad@sgu.ru, <https://orcid.org/0000-0003-2332-0982>
Новиков Николай Андреевич, программист, n_nik1997@mail.ru, <https://orcid.org/0000-0003-2425-805X>

Аннотация. Нелинейные эффекты генерации высших гармоник в различных материалах предоставляют новые инструменты для исследования сверхбыстрой динамики электронов и открывают возможный путь создания когерентных источников света в недоступных в настоящее время частотных диапазонах. Графен рассматривается как один из наиболее перспективных материалов в этой области. Для описания нелинейных процессов в нем необходимо уметь воспроизводить изменение заселенности электронных состояний в зоне проводимости в условиях действия интенсивного внешнего электрического поля и наблюдаемые при этом эффекты. Работа посвящена демонстрации применимости в этих целях метода квантового кинетического уравнения на примере моделирования наблюдаемых эффектов действия на монослой графена короткого инфракрасного импульса и сопоставления результатов с экспериментальными данными. Представляемые результаты получены в приближении безмассовых фермионов с использованием прототипа программного решения, обеспечивающего точное воспроизведение отклика электронной подсистемы материала на внешнее импульсное воздействие с большим диапазоном частот, длительностей и напряженности поля.

Ключевые слова: генерация высших гармоник, графен, нелинейные эффекты, кинетическая теория

Благодарности: Работа выполнена при финансовой поддержке Российского научного фонда (проект № 23-21-00047), <https://rscf.ru/project/23-21-00047/>. Авторы благодарят С. А. Смолянского за конструктивное обсуждение используемой модели и полученных результатов.

Для цитирования: Панферов А. Д., Новиков Н. А. Характеристики индуцированного излучения в условиях действия на графен коротких высокочастотных импульсов // Известия Саратовского университета. Новая серия. Серия: Физика. 2023. Т. 23, вып. 3. С. 254–264. <https://doi.org/10.18500/1817-3020-2023-23-3-254-264>, EDN: NSZKPX

Статья опубликована на условиях лицензии Creative Commons Attribution 4.0 International (CC-BY 4.0)

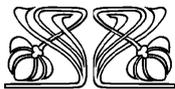
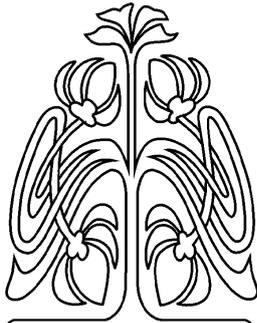
Article

Characteristics of induced radiation under the action of short high-frequency pulses on graphene

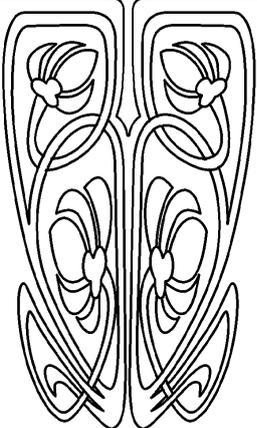
A. D. Panferov[✉], N. A. Novikov

Saratov State University, 83 Astrakhanskaya St., Saratov 410012, Russia

© Панферов А. Д., Новиков Н. А., 2023



НАУЧНЫЙ
ОТДЕЛ





Anatolii D. Panferov, panferovad@sgu.ru, <https://orcid.org/0000-0003-2332-0982>

Nikolay A. Novikov, n_nik1997@mail.ru, <https://orcid.org/0000-0003-2425-805X>

Abstract. Background and Objectives: The nonlinear effects of high-harmonic generation in various materials provide new tools for studying ultrafast electron dynamics and open up a possible way to create coherent light sources in currently inaccessible frequency ranges. Graphene is regarded as one of the most promising materials for these purposes. To describe nonlinear processes in it, it is necessary to be able to reproduce the change in the population of electronic states in the conduction band under the action of an intense external electric field and the effects observed in this case. **Materials and Methods:** The work is devoted to demonstrating the applicability of the quantum kinetic equation method and the software solution developed on its basis for these purposes. The implemented approach provides an accurate reproduction of the response of the electronic subsystem to an external pulse action in a wide range of frequencies, durations and strength of the field. The characteristics of the plasma field accessible to an external observer are reproduced and analyzed. The method allows considering various initial states of the model. This can be a vacuum state with a complete absence of electrons in the conduction band or an equilibrium distribution of carriers at a given temperature. The use of the relaxation time approximation in the kinetic equation makes it possible to estimate the influence of dissipative processes on the behavior of the model. **Results:** The demonstration was carried out on the example of modeling the observed effects of a short infrared pulse on a graphene monolayer and comparing the results with experimental data. The presented results have been obtained for a version of the kinetic equation defined in the massless fermion approximation. The reproduction of the high-harmonic generation effect has been confirmed. The effect of the electron-hole plasma relaxation on the simulated results has been demonstrated. The processes of intraband carrier dynamics and interband transitions under the influence of an external electric field have been singled out and available for separate analysis. The dependence of the high-harmonic generation effect on the type of polarization of the external pulse field has been demonstrated. **Conclusion:** The presented results have been the applicability of the developed method and its software implementation for modeling the generation of higher harmonics under the conditions of nonlinear interaction of graphene with external high-frequency fields. The method works in a wide range of sample and external field parameters.

Keywords: high-harmonic generation, graphene, nonlinear effects, kinetic theory

Acknowledgements: This work was supported by the Russian Science Foundation (project No. 23-21-00047), <https://rscf.ru/project/23-21-00047/>. The authors are grateful to Stanislav A. Smolyansky for the constructive discussion of the model and the results.

For citation: Panferov A. D., Novikov N. A. Characteristics of induced radiation under the action of short high-frequency pulses on graphene. *Izvestiya of Saratov University. Physics*, 2023, vol. 23, iss. 3, pp. 254–264 (in Russian). <https://doi.org/10.18500/1817-3020-2023-23-3-254-264>, EDN: NSZKPX

This is an open access article distributed under the terms of Creative Commons Attribution 4.0 International License (CC-BY 4.0)

Введение

Успехи в развитии средств формирования лазерных импульсов высокой интенсивности в среднем инфракрасном диапазоне сделали доступным наблюдение нелинейных эффектов генерации высших гармоник (ГВГ) в полупроводниках, диэлектриках и полуметаллах. Это открывает новые возможности в исследовании сверхбыстрой динамики электронов в таких материалах и их зонной структуры. В настоящее время наиболее интересны результаты по ГВГ в 2D материалах. Предметом исследования являются различные материалы этого класса [1, 2], гетероструктуры на их основе [3], но больше всего экспериментальных [4, 5] и теоретических [6–10] работ посвящено однослойному и двухслойному графену. Для понимания и предсказательного воспроизведения параметров нелинейных процессов в рассматриваемых материалах необходимо иметь инструмент описания поведения их электронной подсистемы в присутствии внешнего зависящего от времени электрического поля, применимый в максимально широком диапазоне напряженностей поля.

Эффективным способом решения такой задачи является адаптация непертурбативной кинетической теории [11–13] к условиям графена.

Лежащее в её основе квантовое кинетическое уравнение определяет процесс генерации пар электрон–дырка и их эволюцию в произвольном классическом нестационарном пространственно однородном электрическом поле. Первоначально такой подход был предложен в рамках стандартной квантовой электродинамики (КЭД) в ряде работ [14–17] и успешно применён, например, при описании рождения из вакуума в сильном электрическом поле электрон-позитронных пар [18, 19].

В представляемой работе возможности этого подхода использованы для моделирования нелинейной динамики возбуждаемых внешним электрическим полем токов и формирования ими плазменного поля излучения, доступного наблюдению. Новым является реализация в рамках данной модели учета процессов релаксации и обусловленной ненулевой температурой образца равновесной заселенности начального состояния. Впервые модель использована для исследования зависимости частотных характеристик поля излучения от вида поляризации возбуждающего импульса. Полученные результаты находятся в согласии с экспериментальными данными и воспроизводят наблюдаемые характеристики излучения в зависимости от параметров возбуждающего поля. Такая апробация кинетического подхода подтверждает



надежность предсказаний различных вариантов его обобщения (учет взаимодействия с квантованым электромагнитным полем [20], с постоянным магнитным полем [21]).

1. Метод квантового кинетического уравнения

Предметом рассмотрения являются процессы, протекающие в монослое графена в условиях действия на него короткого лазерного импульса высокой интенсивности. Предполагается, что направление распространения импульса перпендикулярно поверхности образца, а длина волны много больше периода кристаллической решетки. Последнее позволяет считать поле в плоскости образца однородным. Это будет справедливо в инфракрасной области и вплоть до излучения видимого диапазона.

Причиной появления индуцированного излучения является поверхностный ток, возникающий в результате нелинейного отклика электрон-дырочной плазмы образца на действие внешнего поля. Отклик формируется внутризонной динамикой носителей и процессами их генерации за счет рождения электрон-дырочных пар. Для описания этих процессов используется квантовое кинетическое уравнение, позволяющее описывать эволюцию функции распределения электронов $f(\vec{p}, t)$ по имеющимся энергетическим состояниям. Прямым следствием уравнения Шредингера является замкнутая система обыкновенных дифференциальных уравнений (ОДУ), определяющая эволюцию $f(\vec{p}, t)$ и вспомогательных функций $u(\vec{p}, t)$, $v(\vec{p}, t)$ в выбранной точке \vec{p} двумерного импульсного пространства [11–13],

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

Присутствующие здесь коэффициенты определяются гамильтонианом системы. Первый из них $\lambda(\vec{p}, t)$ задает скорость изменения вероятности заселения уровня, а $\varepsilon(\vec{p}, t)$ является законом дисперсии системы, определяя связь импульса состояния с его энергией. Для имеющего гексагональную решетку графена в одноэлектронном приближении гамильтониан имеет псевдоспинорную форму

вида

$$H(\vec{p}, t) = \begin{pmatrix} 0 & B'(\vec{p}, t) + iB''(\vec{p}, t) \\ B'(\vec{p}, t) - iB''(\vec{p}, t) & 0 \end{pmatrix}. \quad (2)$$

Тогда

$$\lambda(\vec{p}, t) = \frac{\dot{B}'(\vec{p}, t) B''(\vec{p}, t) - B'(\vec{p}, t) \dot{B}''(\vec{p}, t)}{\varepsilon^2(\vec{p}, t)}, \quad (3)$$

где \dot{B}' и \dot{B}'' – производные по времени. Энергия состояний определяется выражением $\varepsilon(\vec{p}, t) = \sqrt{B'(\vec{p}, t)^2 + B''(\vec{p}, t)^2}$.

Присутствующая зависимость от времени имеет смысл только в нестационарных условиях действия внешнего электрического поля $\vec{E}(t)$. В отсутствие возмущающего воздействия коэффициент (3) принимает нулевое значение и функция распределения постоянна.

Для задания внешнего электромагнитного поля воспользуемся векторным потенциалом $\vec{A}(t)$. Однозначность определения обеспечивается использованием гамильтоновой калибровки, в которой скалярный потенциал строго равен нулю, и для электрического поля имеем $\vec{E}(t) = -\dot{\vec{A}}(t)$. Располагая первую и вторую оси системы координат в плоскости образца и учитывая, что электромагнитный импульс перпендикулярен ей, имеем $A_k(t) = (A_1(t), A_2(t), 0)$.

При любом выборе явного вида гамильтониана его зависимость от времени в присутствии внешнего поля (и коэффициентов кинетического уравнения (1)) будет определяться заменой компонент импульса вида

$$p_k \rightarrow P_k = p_k - eA_k(t), \quad (k = 1, 2). \quad (4)$$

Поверхностный ток, генерирующий поле излучения, является откликом системы на действие внешнего возмущения и может быть определен в общем виде выражением [22, 23]

$$j_k(t) = -\frac{\delta H(t)}{\delta A_k(t)}. \quad (5)$$

Для гамильтониана вида (2) из этого определения следует:

$$\begin{aligned} j_k(t) &= e \int \frac{d^2 p}{(2\pi)^2} \frac{1}{\varepsilon(\vec{p}, t)} \times \\ &\times \left\{ \frac{\partial B'(\vec{p}, t)}{\partial P_k} (2B'(\vec{p}, t) f(\vec{p}, t) + B''(\vec{p}, t) u(\vec{p}, t)) + \right. \\ &\left. + \frac{\partial B''(\vec{p}, t)}{\partial P_k} (2B''(\vec{p}, t) f(\vec{p}, t) - B'(\vec{p}, t) u(\vec{p}, t)) \right\}. \end{aligned} \quad (6)$$



Ограничиваясь приближением безмассовых фермионов [24, 25] и выбирая систему отсчета с началом в одной из точек Дирака, определим явный вид гамильтониана:

$$B'(\bar{p}, t) = V_F P_1, \quad B(\bar{p}, t) = V_F P_2. \quad (7)$$

Здесь V_F – скорость Ферми в рассматриваемом материале. Тогда для компонент плотности тока имеем [12]

$$\begin{aligned} j_1(t) &= \\ &= eV_F^2 2 \int \frac{d^2 p}{(2\pi\hbar)^2} \frac{1}{\varepsilon(\bar{p}, t)} \{2P_1 f(\bar{p}, t) + P_2 u(\bar{p}, t)\}, \\ j_2(t) &= \\ &= eV_F^2 2 \int \frac{d^2 p}{(2\pi\hbar)^2} \frac{1}{\varepsilon(\bar{p}, t)} \{2P_2 f(\bar{p}, t) - P_1 u(\bar{p}, t)\}. \end{aligned} \quad (8)$$

Присутствующий здесь коэффициент 2 учитывает вырождение по псевдоспину (наличие двух, неразличимых в данном приближении подрешеток). Из общего выражения (6) и явного определения (7) следует, что наблюдаемый ток определяется как заселенностью $f(\bar{p}, t)$ доступных состояний в зоне проводимости (ток проводимости), так и динамическим балансом процессов рождения и уничтожения электрон-дырочных пар $u(\bar{p}, t)$ (поляризонный ток):

$$j_{1,2}(t) = j_{1,2}^{cond}(t) + j_{1,2}^{pol}(t). \quad (9)$$

Эти токи можно рассматривать и анализировать отдельно, но в форме индуцированного излучения наблюдаем только их суммарный вклад.

Для оценки характеристик поля излучения в окрестностях образца воспользуемся решением для неограниченной плоскости с известной поверхностной плотностью тока $j(t)$, зависящей только от времени [26]:

$$E(t, z) = -\frac{\mu_0 c}{2} j\left(t - \frac{z}{c}\right). \quad (10)$$

Здесь μ_0 и c – магнитная проницаемость вакуума и скорость света, z – расстояние от рассматриваемой точки до плоскости образца. Это выражение справедливо только на расстояниях, существенно меньших характерного размера D пятна взаимодействия внешнего излучения с образцом. Но если D превышает длину волны внешнего излучения, сформировавшаяся в непосредственной окрестности образца плоская волна (10) будет сохранять своё направление и в дальней зоне. При этом её зависимость от времени будет воспроизводить таковую у породившего её тока с отставанием во времени, определяемым пройденным расстоянием.

Линейная связь между поверхностной плотностью тока и напряженностью индуцированного им поля в рассматриваемом случае позволяет делать выводы о характеристиках поля непосредственно по результатам вычисления и спектрального анализа тока (9).

Начальные условия при решении системы уравнений (1) в простейшем случае могут быть заданы в виде $f_{i,j}(t_{in}) = u_{i,j}(t_{in}) = v_{i,j}(t_{in}) = 0$, где t_{in} – некоторый начальный момент времени, достаточно отстоящий от $t = 0$, чтобы и векторный потенциал, и напряженность электрического поля можно было бы считать отсутствующими. Индексы (i, j) определяют положение в двумерном импульсном пространстве на некоторой расчетной сетке. Но нулевые начальные условия в реальном эксперименте требуют охлаждения образца до температуры, близкой к абсолютному нулю. При конечных или комнатных температурах в графене присутствуют носители заряда в количествах, сопоставимых с тем, что может быть образовано в процессе действия импульса внешнего поля. Это требует их учета и в качестве начального значения функции распределения в этом случае используется равновесное распределение Ферми–Дирака для задаваемого конечного значения температуры и нулевого химического потенциала.

Система уравнений (1) бездиссипативна. В реальных образцах и условиях время жизни электронных состояний всегда конечно из-за рассеяния на фононах, дефектах решетки, примесях. Учет таких процессов может быть важен для правильного воспроизведения экспериментальных результатов [27, 28]. Он реализуется введением в правые части используемой системы уравнений релаксационных членов, определяемых в простейшем приближении времени релаксации. Для определения возможных значений этого параметра используется оценка $\tau_{rel} = 10 \div 100 \cdot 10^{-15}$ с [28, 29].

2. Результаты и их обсуждение

Для оценки корректности работы модели были использованы результаты экспериментов по регистрации высших гармоник при взаимодействии графена с импульсами накачки инфракрасного диапазона [5] с характерной энергией фотонов 0.26 эВ и пиковой плотностью энергии до 1.7 ТВт/см², соответствующей максимальному значению напряженности поля до 30 МВ/см. Наблюдения выполнялись в диапазоне пиковых напряженностей поля от $\cong 4$ МВ/см до $\cong 25$ МВ/см. Наблюдалась генерация нечетных гармоник до девятого порядка включительно. При исследовании



зависимости результатов от поляризации импульсов накачки продемонстрировано подавление ГВГ при переходе от линейной поляризации к круговой.

Моделирование выполнялось с использованием одиночного импульса, формирующего в плоскости образца векторный потенциал с зависимостью от времени вида

$$\begin{aligned} A_1(t) &= -\frac{E_{10}}{2\pi\nu} \sin(2\pi\nu t) e^{-t^2/2\tau^2}, \\ A_2(t) &= -\frac{E_{20}}{2\pi\nu} \sin(2\pi\nu t + \varphi) e^{-t^2/2\tau^2}, \end{aligned} \quad (11)$$

определяемый через амплитудные значения компонент электрического поля E_{10} и E_{20} , частоту ν , длительность импульса τ и разность фаз φ . Такая форма определения поля позволяет рассматривать варианты с произвольной поляризацией. Зависимость напряженности электрического поля от времени в случае линейной поляризации ($\varphi = 0$) представлена на рис. 1 для $E_{10} = E_{20} = \sqrt{50}$ МВ/см и $2\pi\nu\tau = 12$. В плоскости поляризации пиковая напряженность поля в этом случае составляет 10 МВ/см. Частота ν соответствует энергии фотонов 0.26 эВ. Представляемые далее результаты получены при приведенных значениях параметров импульса.

В качестве инструмента моделирования использовался прототип программного комплекса,

обеспечивающий построение адаптивной расчетной сетки в пределах одной примитивной ячейки обратной решетки, решение в каждом узле этой сетки системы уравнений (1) для всего временного интервала действия импульса поля, вычисление по полученному массиву данных поверхностной плотности тока (8) и анализ его частотных характеристик. Расчетная сетка формируется итеративно индивидуально для каждого набора параметров модели, в том числе и для импульсов с различными параметрами поляризации. Это обеспечивает точное воспроизведение поведения функции распределения в обратном пространстве при минимальных требованиях к вычислительным ресурсам. Характерный размер использовавшихся сеток от $\cong 2.0 \cdot 10^4$ до $\cong 5.0 \cdot 10^4$ узлов. На рис. 2 приведен пример распределения возбужденных состояний в окрестностях точки Дирака для двух характерных моментов времени: $t = 0$ – значение, соответствующее максимальной напряженности поля, и t_{end} – конечное значение, когда поле уже можно считать выключенным. Выраженная диагональ определяется направлением поля в импульсе. Координатные значения приведены относительно положения точки Дирака в «естественных» единицах $\hbar/a = 4.289 \cdot 10^{-25}$ кг·м/с, где $a = 0.246$ нм – постоянная решетки графена.

Решение задачи Коши для системы уравнений (1) в узлах сетки (i, j) выполняется с ав-

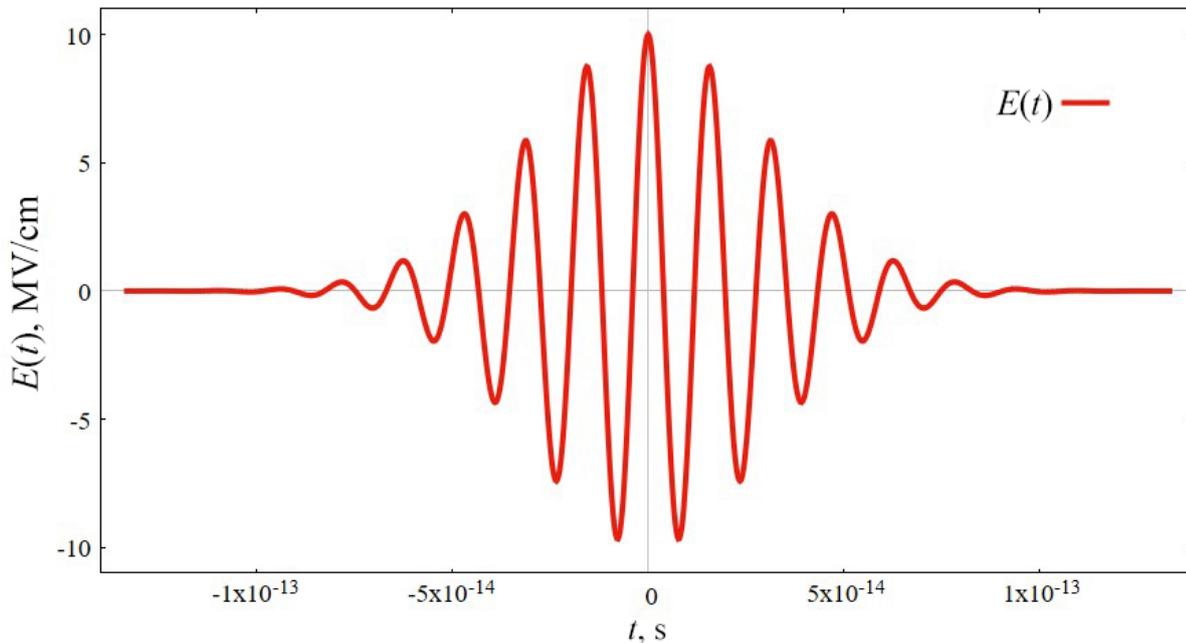


Рис. 1. Зависимость напряженности электрического поля $E(t)$ линейно поляризованного импульса от времени в плоскости поляризации

Fig. 1. Dependence of the electric field strength $E(t)$ of a linearly polarized pulse on time in the plane of polarization

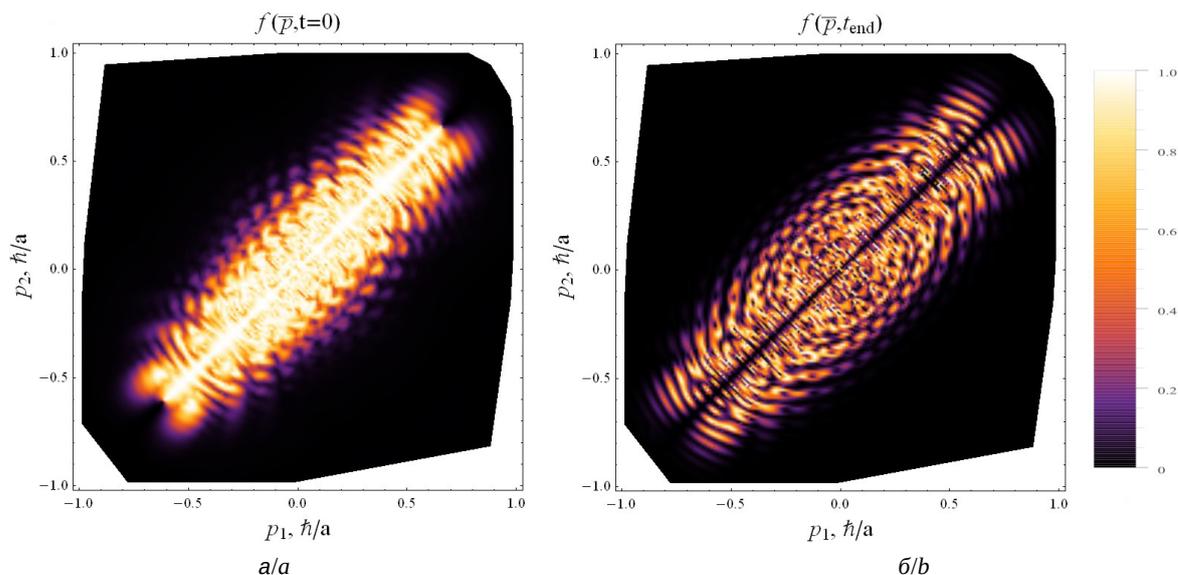


Рис. 2. Распределение возбужденных состояний $f(\bar{p})$ в окрестностях точки Дирака в условиях действия линейно поляризованного импульса: а – напряженность поля максимальна, б – после завершения действия импульса при условии отсутствия релаксации (цвет онлайн)

Fig. 2. Distribution of excited states $f(\bar{p})$ in the vicinity of the Dirac point under the action of a linearly polarized pulse at the maximum field strength (a) and after the end of the action of the pulse in the absence of relaxation (b) (color online)

томатическим определением шага при заданных параметрах точности решения. По полученным решениям для $f_{i,j}(t)$, $u_{i,j}(t)$ и $v_{i,j}(t)$, независимо от процедуры интегрирования определяемой эквидистантной последовательности моментов времени t_k фиксируются значения этих функций. Интегрируя численно по формулам (8) для каждого момента времени t_k , получаем одномерные массивы значений $j_{1,2}^{cond}(t_k)$, $j_{1,2}^{pol}(t_k)$, $j_{1,2}(t_k)$. Представляемые далее результаты получены на массивах из 1081 значения t_k для интервала $-1.143 \cdot 10^{-13} \text{ с} \leq t \leq 1.143 \cdot 10^{-13} \text{ с}$.

На рис. 3, а приведена зависимость от времени для первой компоненты общей плотности тока и на рис. 3, б отдельно вклад в неё поляризационного тока.

Параметры импульса поля соответствуют приведенным выше значениям. Начальное распределение $f_{i,j}(t_{in})$ соответствует 293 К. В условиях линейной поляризации с диагональным направлением результирующего поля обе пространственные компоненты токов $j_1(t_k)$ и $j_2(t_k)$ имеют совпадающие значения, а $|j(t_k)| = \sqrt{j_1^2(t_k) + j_2^2(t_k)}$. Из представленных результатов следует, что в данном случае доминирующую роль играет ток проводимости. Вклад поляризационного тока составляет около 7.5% (оценка сделана по амплитудным значениям). Ток проводимости, а следовательно, и полный ток,

привязаны к фазе векторного потенциала, достаточно точно воспроизводя его зависимость от времени. Зависимость от времени поляризационного тока принципиально более сложная и имеет явно выраженные высокочастотные вклады.

С использованием (10) можно оценить пиковое значение индуцированного поля в $\cong 0.4 \text{ МВ/см}$, что составляет 4% от максимума внешнего возбуждающего воздействия и является значимой величиной. В то же время это значение достаточно мало, чтобы считать полученные в пренебрежении его присутствием (самодействия) результаты правильными.

Спектральная плотность $S(\nu)$ индуцируемого излучения демонстрируется с использованием периодограмм на рис. 4. Здесь и далее для удобства сопоставления значения спектральных плотностей выражены в дБ, а частоты нормированы на основную частоту внешнего поля. На рис. 4, а представлены периодограммы действующего поля импульса (пунктирная линия) и индуцированного поля. На рис. 4, б сопоставляются вклады от тока проводимости и поляризационного тока.

Представленные результаты подтверждают нелинейный характер происходящих в образце процессов. Спектр индуцированного поля имеет сложное наполнение в высокочастотной области. Явно выделена третья гармоника. В областях пятой, седьмой и девятой гармоник, хорошо разли-

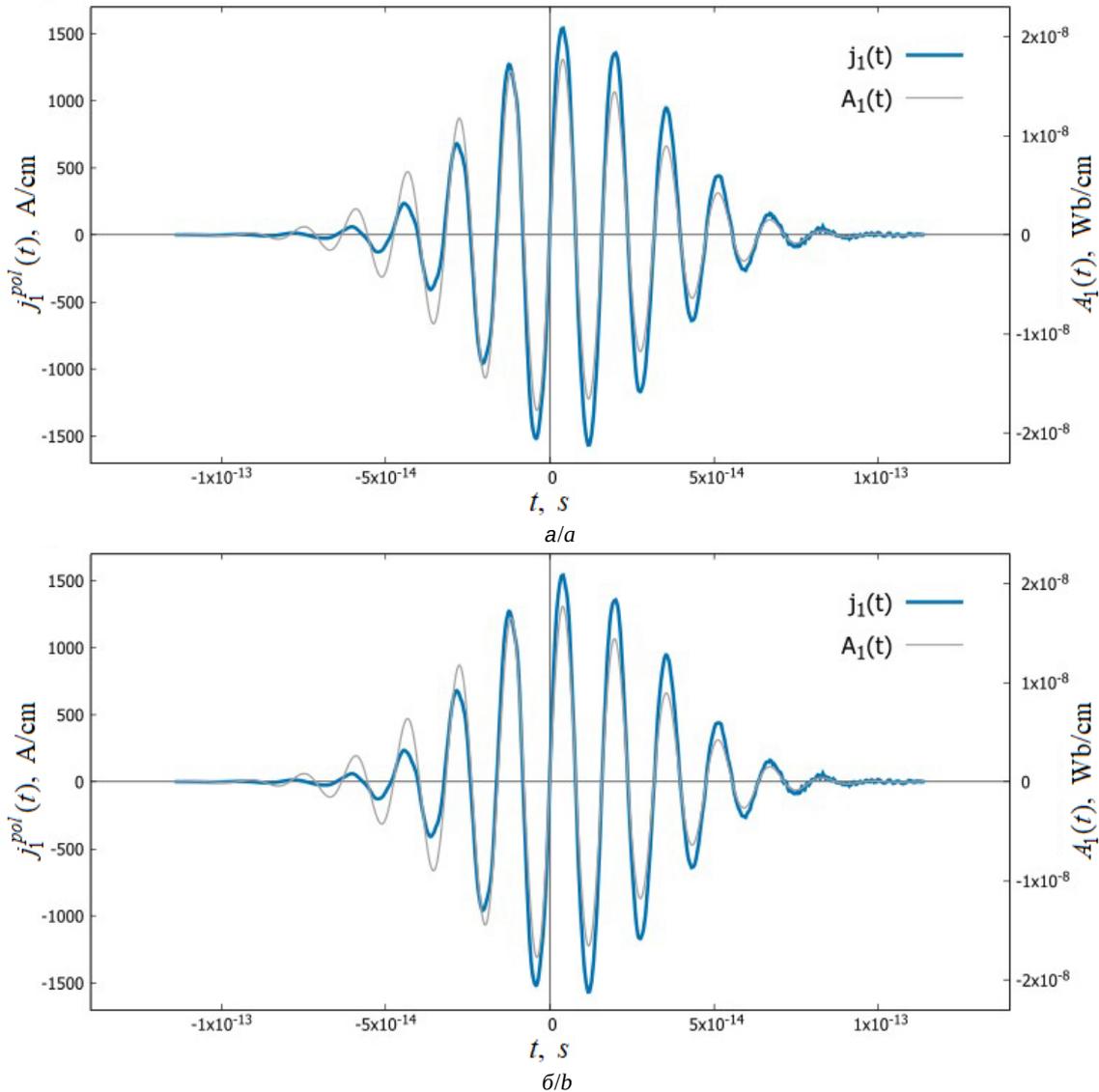


Рис. 3. Поверхностная плотность тока на фоне векторного потенциала внешнего поля $A_1(t)$: а – полный ток $j_1(t)$, б – только поляризационный ток $j_1^{pol}(t)$

Fig. 3. Total surface current density $j_1(t)$ on the background of the vector potential of the external field $A_1(t)$ (a) and only polarization current $j_1^{pol}(t)$ (b)

чимых в эксперименте [5], спектральная плотность велика, но распределена относительно равномерно. Сравнение вкладов от тока проводимости и поляризационного тока показывает, что отклик на основной частоте возбуждающего импульса в основном обусловлен током проводимости. В окрестностях третьей гармоники их вклады сопоставимы, а в области больших частот доминирует вклад поляризационного тока.

Представленные на рис. 4 результаты получены при использовании бездиссипативной модели процесса. В условиях реального эксперимента диссипация присутствует. Результат учета дисси-

пации в модели процесса представлены на рис. 5. Использовано приближение времени релаксации со значением $\tau_{rel} \cong 16 \cdot 10^{-15}$ с, что соответствует одному периоду основной частоты внешнего поля и находится в согласии с оценками [25, 26].

Можно сделать вывод, что релаксация импульсных состояний подавляет высокочастотный спектр вне нечетных гармоник, но при этом практически не приводит к снижению интенсивности нелинейной генерации самих гармоник. В результате полученная спектральная плотность индуцированного излучения оказывается в хорошем согласии с экспериментальными результатами.

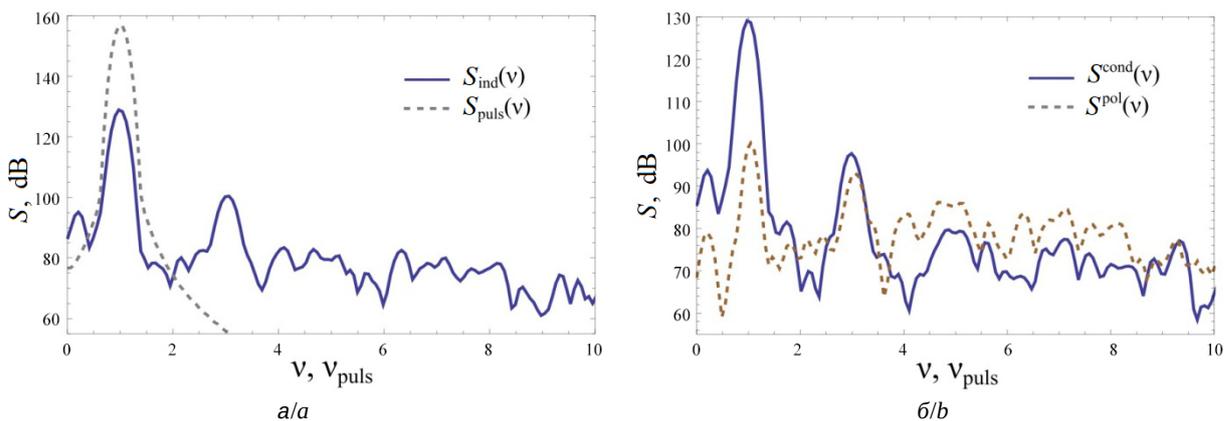


Рис. 4. Спектральные плотности: а – $S_{puls}(v)$ поля импульса и $S_{ind}(v)$ индуцированного поля, б – вклады в $S_{ind}(v)$ тока проводимости $S^{cond}(v)$ и поляризационного тока $S^{pol}(v)$

Fig. 4. Spectral densities of the pulse field $S_{puls}(v)$ and of the induced field $S_{ind}(v)$ (a) and contributions to $S_{ind}(v)$ of the conduction current $S^{cond}(v)$ and polarization current $S^{pol}(v)$ (b)

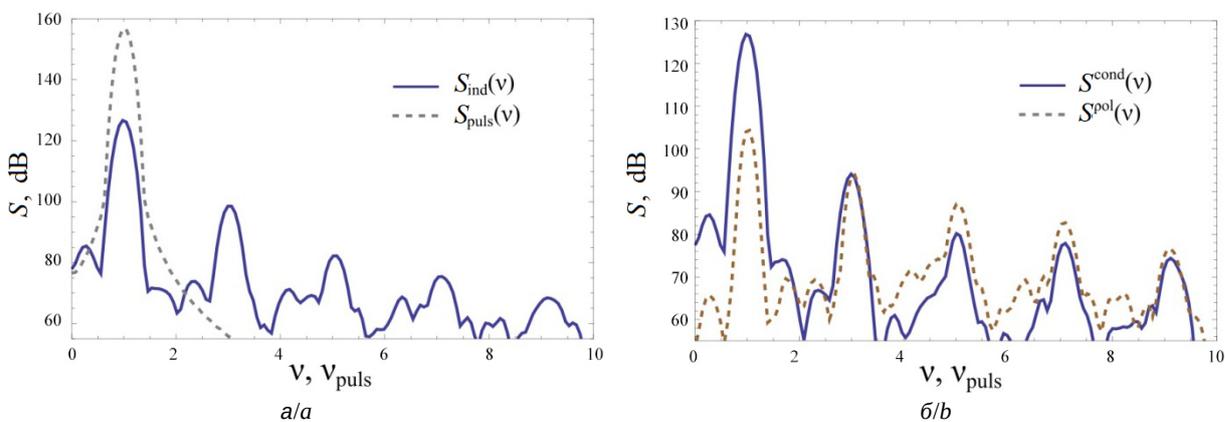


Рис. 5. Спектральные плотности при времени релаксации $\tau_{rel} \cong 16 \cdot 10^{-15}$ с: а – $S_{puls}(v)$ поля импульса и $S_{ind}(v)$ индуцированного поля, б – вклады в $S_{ind}(v)$ тока проводимости $S^{cond}(v)$ и поляризационного тока $S^{pol}(v)$

Fig. 5. Spectral densities at the relaxation time $\tau_{rel} \cong 16 \cdot 10^{-15}$ s of the pulse field $S_{puls}(v)$ and of the induced field $S_{ind}(v)$ (a) and contributions to $S_{ind}(v)$ of the conduction current $S^{cond}(v)$ and polarization current $S^{pol}(v)$ (b)

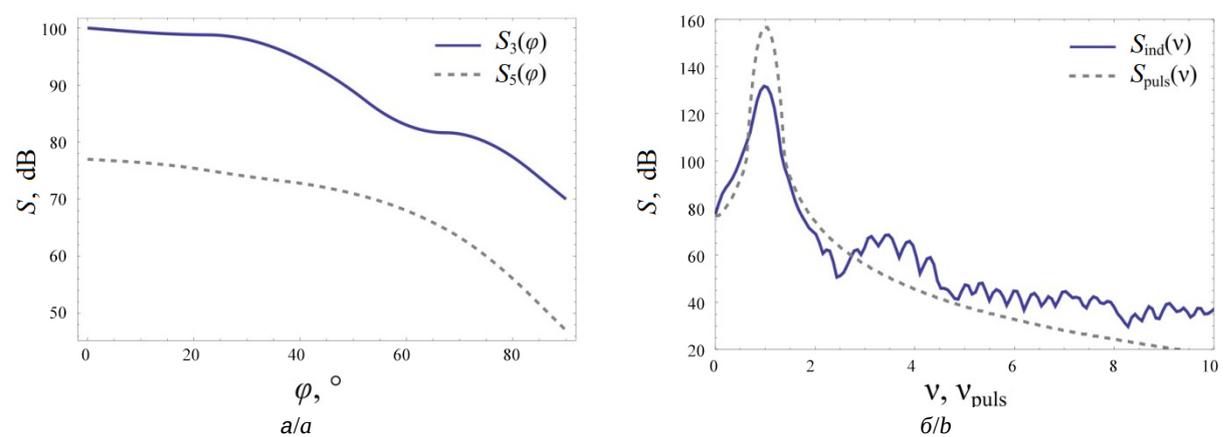


Рис. 6. Зависимости спектральных плотностей: а – от фазового сдвига между компонентами действующего внешнего поля от $\varphi = 0^\circ$ до $\varphi = 90^\circ$ для третьей $S_3(\varphi)$ и пятой $S_5(\varphi)$ гармоник, б – $S_{puls}(v)$ поля импульса и $S_{ind}(v)$ индуцированного поля при круговой поляризации внешнего импульса ($\varphi = 90^\circ$)

Fig. 6. Dependences of the spectral densities on the phase shift between the components of the acting external field from $\varphi = 0^\circ$ to $\varphi = 90^\circ$ for the third $S_3(\varphi)$ and fifth $S_5(\varphi)$ harmonics (a) and $S_{puls}(v)$ of the pulse field and $S_{ind}(v)$ of the induced field with circular polarization of the external pulse ($\varphi = 90^\circ$) (b)



Еще одним эффектом, наблюдавшимся в серии экспериментов [5], было подавление ГВГ при постепенном переходе от линейной поляризации к круговой. На рис. 6 показано, что этот эффект также воспроизводится используемой моделью. На рис. 6, а представлена зависимость спектральной плотности индуцированного излучения в третьей и пятой гармониках от величины фазового сдвига между компонентами поля, соответствующая переходу от линейной поляризации к круговой. На рис. 6, б сопоставлены спектральные плотности импульса внешнего поля с круговой поляризацией и индуцированного поля при сохранении всех остальных параметров неизменными.

Из результатов моделирования следует, что при переходе от линейной поляризации круговой отклик на основной гармонике остается неизменным, а интенсивность 3-й и 5-й гармоник падает почти на три порядка.

Заключение

Использование квантового кинетического уравнения позволяет воспроизвести и проанализировать эволюцию функции распределения электронов в зоне проводимости в условиях действия внешнего электрического поля с произвольной зависимостью от времени. Демонстрация возможностей модели выполнена для коротких импульсов инфракрасного диапазона с параметрами, обеспечивающими нелинейный процесс генерации высших гармоник и возможность сравнения с экспериментальными результатами. Показано, что при использовании импульсов накачки с линейной поляризацией плазменное поле возбужденных носителей наряду с основной гармоникой на частоте внешнего поля имеет кратные ей нечетные гармоники. Продемонстрировано влияние на наблюдаемый высокочастотный спектр релаксационных процессов. При изменении поляризации от линейной к круговой наблюдается ослабление выхода высокочастотных гармоник при сохранении отклика на основной частоте. Полученные результаты находятся в согласии с экспериментальными данными. Выполненная верификация позволяет использовать модель для оптимизации параметров импульсов накачки по задаваемым целевым характеристикам.

Список литературы

1. Meng F., Walla F., Kovalev S., Deinert J., Ilyakov I., Chen M., Ponomaryov A., Pavlov S. G., Hubers H., Abrosimov N. V., Jungemann Ch., Roskos H. G., Thomson M. D. Higher-harmonic generation in boron-doped silicon from band carriers and bound-dopant photoionization // Arxiv.org:2303.01564. <https://doi.org/10.48550/arXiv.2303.01564>
2. Kim D., Lee Y., Chacón A., Kim D. E. Effect of interlayer coupling and symmetry on high-order harmonic generation from monolayer and bilayer hexagonal boron nitride // Symmetry. 2022. Vol. 14. Article number 84. <https://doi.org/10.3390/sym14010084>
3. Calafell A. I., Rozema L. A., Iranzo D. A., Trenti T., Jenke Ph. K., Cox J. D., Kumar A., Bieliaiev H., Nanot S., Peng Ch., Efetov D. K., Hong J.-Y., Kong J., Englund D. R., Abajo F. J. G., Koppens F. H. L., Walther P. Giant enhancement of third-harmonic generation in graphene–metal heterostructures // Nature Nanotechnology. 2021. Vol. 16. P. 318–324. <https://doi.org/10.1038/s41565-020-00808-w>
4. Cha S., Kim M., Kim Y., Choi Sh., Kang S., Kim H., Yoon S., Moon G., Kim T., Lee Y. W., Cho G. Y., Park M. J., Kim Ch.-J., Kim B. J., Lee J. D., Jo M.-H., Kim J. Gate-tunable quantum pathways of high harmonic generation in graphene // Nature Communication. 2022. Vol. 13. Article number 6630. <https://doi.org/10.1038/s41467-022-34337-y>
5. Yoshikawa N., Tamaya T., Tanaka K. High-harmonic generation in graphene enhanced by elliptically polarized light excitation // Science. 2017. Vol. 356. P. 736–738. <https://doi.org/10.1126/science.aam8861>
6. Sato S. A., Hirori H., Sanari Y., Kanemitsu Y., Rubio A. High-order harmonic generation in graphene: Nonlinear coupling of intraband and interband transitions // Phys. Rev. B. 2021. Vol. 103. Article number L041408. <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.103.L041408>
7. Mao W., Rubio A., Sato Sh. A. Terahertz-induced high-order harmonic generation and nonlinear charge transport in graphene // Phys. Rev. B. 2022. Vol. 106. Article number 024313. <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.106.024313>
8. Zurrón Ó., Picón A., Plaja L. Theory of high-order harmonic generation for gapless graphene // New J. Phys. 2018. Vol. 20. Article number 053033. <https://doi.org/10.1088/1367-2630/aabec7>
9. Chen Z.-Y., Qin R. Circularly polarized extreme ultraviolet high harmonic generation in graphene // Opt. Express. 2019. Vol. 27. P. 3761–3770. <https://doi.org/10.1364/OE.27.003761>
10. Zhang Y., Li L., Li J., Huang T., Lan P., Lu P. Orientation dependence of high-order harmonic generation in graphene // Phys. Rev. A. 2021. Vol. 104. Article number 033110. <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.104.033110>
11. Panferov A., Smolyansky S., Blaschke D., Gevorgyan N. Comparing two different descriptions of the I–V characteristic of graphene: Theory and experiment // EPJ Web Conf. 2019. Vol. 204. Article number 06008. <https://doi.org/10.1051/epjconf/201920406008>
12. Smolyansky S. A., Panferov A. D., Blaschke D. B., Gevorgyan N. T. Nonperturbative kinetic description of electron-hole excitations in graphene in a time dependent electric field of arbitrary polarization //



- Particles. 2019. Vol. 2. P. 208–230. <https://doi.org/10.3390/particles2020015>
13. Smolyansky S. A., Blaschke D. B., Dmitriev V. V., Panferov A. D., Gevorgyan N. T. Kinetic equation approach to graphene in strong external fields // *Particles*. 2020. Vol. 3. P. 456–476. <https://doi.org/10.3390/particles3020032>
 14. Груб А. А., Мамаев С. Г., Мостепаненко В. М. Вакуумные квантовые эффекты в сильных полях. М. : Энергоатомиздат, 1988. 288 с.
 15. Bialynicky-Birula I., Gornicki P., Rafelski J. Phase space structure of the Dirac vacuum // *Phys. Rev. D*. 1991. Vol. 44. P. 1825–1835. <https://doi.org/10.1103/PhysRevD.44.1825>
 16. Schmidt S. M., Blaschke D., Röpke G., Smolyansky S. A., Prozorkevich A. V., Toneev V. D. A Quantum kinetic equation for particle production in the Schwinger mechanism // *Int. J. Mod. Phys. E*. 1998. Vol. 7. P. 709–718. <https://doi.org/10.1142/S0218301398000403>
 17. Tarakanov A. V., Reichel A. V., Smolyansky S. A., Vinnik D. M., Schmidt S. M. Kinetics of vacuum pair creation in strong electromagnetic fields // *Progress in Nonequilibrium Green's Functions. Proceedings of the Conference / eds. M. Bonitz, D. Semkat. World Scientific Publishing Co. Pte. Ltd, 2002. P. 393–400. https://doi.org/10.1142/9789812705129_0035*
 18. Blaschke D. B., Prozorkevich A. V., Röpke G., Roberts C. D., Schmidt S. M., Shkirmanov D. S., Smolyansky S. A. Dynamical Schwinger effect and high-intensity lasers. Realising nonperturbative QED // *Eur. Phys. J. D*. 2009. Vol. 55. P. 341–358. <https://doi.org/10.1140/epjd/e2009-00156-y>
 19. Blaschke D., Smolyansky S. A., Panferov A. D., Juchnowski L. Particle production in strong time-dependent fields // *Proceedings of the Helmholtz International Summer School on Quantum Field Theory at the Limits: From Strong Fields to Heavy Quarks. Dubna, Russia, 2016. P. 1–23. <http://dx.doi.org/10.3204/DESY-PROC-2016-04/Blaschke>*
 20. Gavrilov S. P., Gitman D. M., Dmitriev V. V., Panferov A. D., Smolyansky S. A. Radiation problems accompanying carrier production by an electric field in the graphene // *Universe*. 2020. Vol. 6. Article number 205. <https://doi.org/10.3390/universe6110205>
 21. Tarakanov A. V., Reichel A. V., Smolyansky S. A., Vinnik D. V., Schmidt S. M. Kinetics of vacuum pair creation in strong electromagnetic fields // *Proceedings of the conference progress in nonequilibrium Green's functions. Dresden, Germany, 2002. P. 393–400. https://doi.org/10.1142/9789812705129_0035*
 22. Martin P. C., Schwinger J. Theory of many-particle systems. I // *Phys. Rev.* 1959. Vol. 115. P. 1342–1373. <https://doi.org/10.1103/PhysRev.115.1342>
 23. Ахиезер А. И., Пелетминский С. В. Методы статистической физики. М. : Наука. 1977. 367 с.
 24. Novoselov K. S., Geim A. K., Morozov S. V., Jiang D., Katsnelson M. I., Grigorieva I. V., Dubonos S. V., Firsov A. A. Two-dimensional gas of massless Dirac fermions in graphene // *Nature*. 2005. Vol. 438. P. 197–200. <https://doi.org/10.1038/nature04233>
 25. Castro Neto A. H., Guinea F., Peres N. M. R., Novoselov K. S., Geim A. K. The electronic properties of graphene // *Rev. Mod. Phys.* 2009. Vol. 81. P. 109–162. <https://doi.org/10.1103/RevModPhys.81.109>
 26. Abbott T. A., Griffiths D. J. Acceleration without radiation // *Am. J. Phys.* 1985. Vol. 53. P. 1203–1211. <https://doi.org/10.1119/1.14084>
 27. Cheng J. L., Vermeulen N., Sipe J. E. Third-order nonlinearity of graphene: Effects of phenomenological relaxation and finite temperature // *Phys. Rev. B*. 2015. Vol. 91. Article number 235320. <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.91.235320>
 28. Hafez H. A., Kovalev S., Deinert J.-Ch., Mics Z., Green B., Awari N., Min Chen M., Germanskiy S., Lehnert U., Teichert J., Wang Z., Tielrooij K.-J., Liu Zh., Chen Z., Narita A., Müllen K., Bonn M., Gensch M., Turchinovich D. Extremely efficient terahertz high-harmonic generation in graphene by hot Dirac fermions // *Nature*. 2018. Vol. 561. P. 507–511. <https://doi.org/10.1038/s41586-018-0508-1>
 29. Das Sarma S., Adam S., Hwang E. H., Rossi E. Electronic transport in two-dimensional graphene // *Rev. Mod. Phys.* 2011. Vol. 83. P. 407–470. <https://doi.org/10.1103/RevModPhys.83.407>

References

1. Meng F., Walla F., Kovalev S., Deinert J., Ilyakov I., Chen M., Ponomaryov A., Pavlov S. G., Hubers H., Abrosimov N. V., Jungemann Ch., Roskos H. G., Thomson M. D. Higher-harmonic generation in boron-doped silicon from band carriers and bound-dopant photoionization. *Arxiv.org:2303.01564*. <https://doi.org/10.48550/arXiv.2303.01564>
2. Kim D., Lee Y., Chacón A., Kim D. E. Effect of interlayer coupling and symmetry on high-order harmonic generation from monolayer and bilayer hexagonal boron nitride. *Symmetry*, 2022, vol. 14, article no. 84. <https://doi.org/10.3390/sym14010084>
3. Calafell A. I., Rozema L. A., Iranzo D. A., Trenti T., Jenke Ph. K., Cox J. D., Kumar A., Bieliaiev H., Nanot S., Peng Ch., Efetov D. K., Hong J.-Y., Kong J., Englund D. R., Abajo F. J. G., Koppens F. H. L., Walther P. Giant enhancement of third-harmonic generation in graphene–metal heterostructures. *Nature Nanotechnology*, 2021, vol. 16, pp. 318–324. <https://doi.org/10.1038/s41565-020-00808-w>
4. Cha S., Kim M., Kim Y., Choi Sh., Kang S., Kim H., Yoon S., Moon G., Kim T., Lee Y. W., Cho G. Y., Park M. J., Kim Ch.-J., Kim B. J., Lee J. D., Jo M.-H., Kim J. Gate-tunable quantum pathways of high harmonic generation in graphene. *Nature Communication*, 2022, vol. 13, article no. 6630. <https://doi.org/10.1038/s41467-022-34337-y>
5. Yoshikawa N., Tamaya T., Tanaka K. High-harmonic generation in graphene enhanced by elliptically polarized light excitation. *Science*, 2017, vol. 356, pp. 736–738. <https://doi.org/10.1126/science.aam8861>
6. Sato S. A., Hirori H., Sanari Y., Kanemitsu Y., Rubio A. High-order harmonic generation in graphene: Nonlinear coupling of intraband and interband transitions. *Phys.*



- Rev. B, 2021, vol. 103, article no. L041408. <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.103.L041408>
7. Mao W., Rubio A., Sato Sh. A. Terahertz-induced high-order harmonic generation and nonlinear charge transport in graphene. *Phys. Rev. B*, 2022, vol. 106, article no. 024313. <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.106.024313>
 8. Zurrón Ó., Picón A., Plaja L. Theory of high-order harmonic generation for gapless graphene. *New J. Phys.*, 2018, vol. 20, article no. 053033. <https://doi.org/10.1088/1367-2630/aabec7>
 9. Chen Z.-Y., Qin R. Circularly polarized extreme ultraviolet high harmonic generation in grapheme. *Opt. Express*, 2019, vol. 27, pp. 3761–3770. <https://doi.org/10.1364/OE.27.003761>
 10. Zhang Y., Li L., Li J., Huang T., Lan P., Lu P. Orientation dependence of high-order harmonic generation in grapheme. *Phys. Rev. A*, 2021, vol. 104, article no. 033110. <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.104.033110>
 11. Panferov A., Smolyansky S., Blaschke D., Gevorgyan N. Comparing two different descriptions of the I–V characteristic of graphene: Theory and experiment. *EPJ Web Conf.*, 2019, vol. 204, article no. 06008. <https://doi.org/10.1051/epjconf/201920406008>
 12. Smolyansky S. A., Panferov A. D., Blaschke D. B., Gevorgyan N. T. Nonperturbative kinetic description of electron-hole excitations in graphene in a time dependent electric field of arbitrary polarization. *Particles*, 2019, vol. 2, pp. 208–230. <https://doi.org/10.3390/particles2020015>
 13. Smolyansky S. A., Blaschke D. B., Dmitriev V. V., Panferov A. D., Gevorgyan N. T. Kinetic equation approach to graphene in strong external fields. *Particles*, 2020, vol. 3, pp. 456–476. <https://doi.org/10.3390/particles3020032>
 14. Grib A. A., Mamaev S. G., Mostepanenko V. M. *Vakuumnye kvantovye efekty v sil'nykh polyakh* [Vacuum quantum effects in strong fields]. Moscow, Energoatomizdat, 1988. 288 p. (in Russian).
 15. Bialynicky-Birula I., Gornicki P., Rafelski J. Phase space structure of the Dirac vacuum. *Phys. Rev. D*, 1991, vol. 44, pp. 1825–1835. <https://doi.org/10.1103/PhysRevD.44.1825>
 16. Schmidt S. M., Blaschke D., Röpke G., Smolyansky S. A., Prozorkevich A. V., Toneev V. D. A Quantum kinetic equation for particle production in the Schwinger mechanism. *Int. J. Mod. Phys. E*, 1998, vol. 7, pp. 709–718. <https://doi.org/10.1142/S0218301398000403>
 17. Tarakanov A. V., Reichel A. V., Smolyansky S. A., Vinnik D. M., Schmidt S. M. Kinetics of vacuum pair creation in strong electromagnetic fields. In: Bonitz M., Semkat D., eds. *Progress in Nonequilibrium Green's Functions. Proceedings of the Conference*. World Scientific Publishing Co. Pte. Ltd., 2002, pp. 393–400. https://doi.org/10.1142/9789812705129_0035
 18. Blaschke D. B., Prozorkevich A. V., Röpke G., Roberts C. D., Schmidt S. M., Shkirmanov D. S., Smolyansky S. A. Dynamical Schwinger effect and high-intensity lasers. Realising nonperturbative QED. *Eur. Phys. J. D*, 2009, vol. 55, pp. 341–358. <https://doi.org/10.1140/epjd/e2009-00156-y>
 19. Blaschke D., Smolyansky S. A., Panferov A. D., Juchnowski L. Particle production in strong time-dependent fields. In: *Proceedings of the Helmholtz International Summer School on Quantum Field Theory at the Limits: From Strong Fields to Heavy Quarks*. Dubna, Russia, 2016, pp. 1–23. <http://dx.doi.org/10.3204/DESY-PROC-2016-04/Blaschke>
 20. Gavrilov S. P., Gitman D. M., Dmitriev V. V., Panferov A. D., Smolyansky S. A. Radiation Problems Accompanying Carrier Production by an Electric Field in the Graphene. *Universe*, 2020, vol. 6, article no. 205. <https://doi.org/10.3390/universe6110205>
 21. Tarakanov A. V., Reichel A. V., Smolyansky S. A., Vinnik D. V., Schmidt S. M. Kinetics of vacuum pair creation in strong electromagnetic fields. In: *Proceedings of the conference progress in nonequilibrium Green's functions*. Dresden, Germany, 2002, pp. 393–400. https://doi.org/10.1142/9789812705129_0035
 22. Martin P. C., Schwinger J. Theory of many-particle systems. I. *Phys. Rev.*, 1959, vol. 115, pp. 1342–1373. <https://doi.org/10.1103/PhysRev.115.1342>
 23. Ahiezer A. I., Peletminskij S. V. *Metody statisticheskoy fiziki* [Methods of statistical physics]. Moscow, Nauka, 1977. 367 p. (in Russian).
 24. Novoselov K. S., Geim A. K., Morozov S. V., Jiang D., Katsnelson M. I., Grigorieva I. V., Dubonos S. V., Firsov A. A. Two-dimensional gas of massless Dirac fermions in grapheme. *Nature*, 2005, vol. 438, pp. 197–200. <https://doi.org/10.1038/nature04233>
 25. Castro Neto A. H., Guinea F., Peres N. M. R., Novoselov K. S., Geim A. K. The electronic properties of grapheme. *Rev. Mod. Phys.*, 2009, vol. 81, pp. 109–162. <https://doi.org/10.1103/RevModPhys.81.109>
 26. Abbott T. A., Griffiths D. J. Acceleration without radiation. *Am. J. Phys.*, 1985, vol. 53, pp. 1203–1211. <https://doi.org/10.1119/1.14084>
 27. Cheng J. L., Vermeulen N., Sipe J. E. Third-order nonlinearity of grapheme: Effects of phenomenological relaxation and finite temperature. *Phys. Rev. B*, 2015, vol. 91, article no. 235320. <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.91.235320>
 28. Hafez H. A., Kovalev S., Deinert J.-Ch., Mics Z., Green B., Awari N., Min Chen M., Germanskiy S., Lehnert U., Teichert J., Wang Z., Tielrooij K.-J., Liu Zh., Chen Z., Narita A., Müllen K., Bonn M., Gensch M., Turchinovich D. Extremely efficient terahertz high-harmonic generation in grapheme by hot Dirac fermions. *Nature*, 2018, vol. 561, pp. 507–511. <https://doi.org/10.1038/s41586-018-0508-1>
 29. Das Sarma S., Adam S., Hwang E. H., Rossi E. Electronic transport in two-dimensional grapheme. *Rev. Mod. Phys.*, 2011, vol. 83, pp. 407–470. <https://doi.org/10.1103/RevModPhys.83.407>

Поступила в редакцию 19.04.2023; одобрена после рецензирования 05.05.2023; принята к публикации 10.05.2023
The article was submitted 19.04.2023; approved after reviewing 05.05.2023; accepted for publication 10.05.2023