Письма в ЖЭТФ, том 116, вып. 7, с. 426 – 433

О лазерно-индуцированной генерации высших гармоник и смешении волн высокого порядка в графеновой квантовой точке

Б. Р. Авчян, А. Г. Казарян[1)], *К. А. Саргсян, Х. В. Седракян*

Центр Физики Сильных Полей, Ереванский Государственный Университет, 0025 Ереван, Армения

Поступила в редакцию 15 августа 2022 г.
После переработки 23 августа 2022 г.
Принята к публикации 26 августа 2022 г.

Мы представляем результаты численных исследований смешения волн высокого порядка/генерации высших гармоник (СВВ/ГВГ) с учетом процесса многочастичного взаимодействия, вызванным двухчастотным циркулярным сильным лазерным полем в графеновой квантовой точке (ГКТ). Показано влияние относительной фазы такого лазерного поля на спектр генерируемых в ГКТ гармоник высокого порядка. Это может позволить управлять поляризацией генерируемых гармоник. ГКТ описывается моделью ближайшего соседа с сильной связью (СС). Многочастичное взаимодействие рассматривается в расширенном приближении Хаббарда. Мы использовали уже примененный нами метод решения квантовых кинетических уравнений в локальных представлениях для заряженных носителей и получили общую формулу для процессов СВВ/ГВГ в ГКТ. Анализ полученных результатов подтверждает достаточную эффективность ГВГ в треугольной и шестиугольной ГКТ с зигзагообразными краями при определенных фазах двухчастотного циркулярного лазерного поля.

DOI: 10.31857/S123456782219003X, EDN: khrkpg

С появлением лазеров возрос интерес к основным процессам взаимодействия сильных лазерных полей с кристаллами в нелинейной оптике и нанооптике. Последнее представляет собой преобразование несколько фотонов накачки в один фотон с более высокой энергией, генерация высших гармоник (ГВГ) или, более обобщенно, смешением волн более высокого порядка: генерация суммарно-разностной частоты [1]. ГВГ [2] представляет собой строго нелинейный процесс, выходящий за рамки режимов нелинейной оптики. Вплоть до последнего десятилетия исследования были сосредоточены на ГВГ в атомарных и молекулярных газах [3]. Недавно изучение ГВГ начали распространять на двумерные кристаллы и другие наноструктуры. Уникальные электронные и оптические свойства графена как эффективного нелинейно-оптического материала обсуждаются во многих теоретических [4–21] и экспериментальных [22, 23] исследованиях, рассматривающих различные экстремальные нелинейно-оптические эффекты, в частности, смешение волн высокого порядка (СВВ)/ГВГ, происходящее в полях сильного когерентного излучения в многофотонном режиме при возбуждении таких наноструктур [24]. Однако нулевая ширина запрещенной зоны монослойного полуметаллического графена ограничивает возможности применения исходного графена в отличие, например, от двухслойного графена [25]. Для многих нелинейных эффектов отсутствие энергетической щели в графене является фундаментальным ограничением, например, для валейтроники. Последнее невозможно из-за инверсионной симметрии такой системы [26]. В работе [27] продемонстрированы индуцированные светом селективные по долинам возбуждения, и ожидается значительная селективная по долинам ГВГ в обычном графене при использовании комбинации двух полей, основной и ее второй гармоники, циркулярно поляризованных, вращающихся в противоположных направлениях, так называемого бициркулярного лазерного поля. С другой стороны, проблема нулевой энергетической щели в графене также была решена за счет уменьшения поперечного размера графена [28]. Среди углеродных наноструктур в качестве нелинейной среды интерес представляют графеновые наноленты [28, 29], графеноподобные квантовые точки, такие как замкнуто-выпуклые фуллерены различной базовой симметрии [20, 21], и графеновая квантовая точка (ГКТ) различных конечных размеров. Наноструктура графена может быть охарактеризована тем, сохранена ли симметрия подрешетки. ГКТ со щелью можно управлять с помощью его поперечного размера, формы и типа края [28, 30, 31]. В то же время такая наноструктура обладает оптическими свойствами, прин-

1)e-mail: amarkos@ysu.am

ципиально отличными от свойств исходного графена [32, 33], но не менее выдающимися свойствами, чем однослойный графен [4]. Преимущество ГКТ перед графеновыми нанолентами [34, 35] заключается в ограничении квазичастиц в пространстве. Так как ограниченность в пространстве препятствует распространению электронного волнового пакета, замкнутого еще в одном дополнительном измерении, и увеличивает эффективность ГВГ [36–39]. Таким образом, представляет интерес исследование в ГКТ влияния относительной фазы двухчастотного циркулярного лазерного поля на спектр генерируемых гармоник высокого порядка. Согласование симметрии системы свет–квантовая точка может иметь место для ГКТ с определенной групповой симметрией. Последнее имеет решающее значение для выхода ГВГ и может увеличить вероятность генерации гармоник. Им можно управлять с помощью относительной фазы между двумя частотами волны накачки. Это может позволить управлять поляризацией генерируемых гармоник, как это обычно делается при ГВГ в газах [40].

В настоящей работе рассматривается многофотонная ГВГ в плоской квази-нулемерной ГКТ треугольной и шестиугольной форм с зигзагообразными краями, управляемой двухчастотным циркулярным полем, созданным двумя вращающимися навстречу циркулярно поляризованными полями интенсивного когерентного излучения. Изучается роль фазы двухчастотного циркулярного поля высокой интенсивности на процесс ГВГ в плоскости ГКТ. Замкнутая система дифференциальных уравнений для одночастичной матрицы плотности при многофотонном взаимодействии ГКТ и сильного лазерного поля решается численно в рамках микроскопической теории. Кулоновское электрон-электронное взаимодействие (ЭЭВ) описывается в приближении Хаббарда. Полученные решения указывают на значимость влияния полной симметрии волны накачки на нелинейно-оптический отклик ГКТ, учитывая, что последние имеют различную форму с различной точечно-групповой симметрией, а вероятности многофотонной ГВГ будут контролироваться относительной фазой двухчастотного циркулярного сильного когерентного излучения.

Мы изучим нейтральную плоскую ГКТ, ограниченную в плоскости xy. Будем рассматривать сильную электромагнитную (ЭМ) волну, распространяющуюся перпендикулярно плоскости xy. В этом случае ЭМ волна становится однородным квазипериодическим электрическим полем – двухчастотное циркулярное поле с напряженностью $\mathbf{E} = (E_x, E_y)$:

$$E_x(t) = f(t)\left(E_{01}\cos(\omega t + \phi) + E_{02}\cos(2\omega t + \phi)\right), \tag{1}$$

$$E_y(t) = f(t)\left(E_{01}\sin(\omega t + \phi) - E_{02}\sin(2\omega t + \phi)\right), \tag{2}$$

где ϕ – фаза и E_{01}, E_{02} – амплитуды напряженностей двух вращающихся в противоположных направлениях циркулярно поляризованных полей основной волны накачки с соответствующими несущими частотами ω и 2ω, формирующих так называемый “трилистник” [27], $f(t) = \sin^2(\pi t/\mathcal{T})$ – медленно меняющаяся огибающая с длительностью импульса $\mathcal{T}$. Последняя равна 20 периодам волны: $\mathcal{T} = 40\pi/\omega$.

Далее используем метод, уже примененный в ранних работах [37, 38]. Начальную матрицу плотности определим из эмпирического гамильтониана с сильной связью (СС), т.е. “одетого” кулоновским взаимодействием СС-гамильтониана [28]. Этот подход широко используется в физике сильных полей [12, 21, 41–47]. Вкратце, это предложение обосновывается следующим образом. Свободный гамильтониан ГКТ имеет вид:

$$\widehat{H}_0 = -\sum_{i,j,\sigma} t_{ij}^0 c_{i\sigma}^{\dagger} c_{j\sigma} + \frac{1}{2}\sum_{i,j} V_{ij} n_i n_j + \frac{U}{2}\sum_{i\sigma} n_{i\sigma} n_{i\overline{\sigma}}, \tag{3}$$

где операторы $c_{i\sigma}^{\dagger}$, $c_{i\sigma}$ удовлетворяют правилам антикоммутативности. Оператор электронной плотности имеет вид $n_{i\sigma} = c_{i\sigma}^{\dagger} c_{i\sigma}$ и $n_i = n_{i\uparrow} + n_{i\downarrow}$ – полная электронная плотность для узла i. Первый член в свободном гамильтониане (3) представляет собой кинетическую энергетическую часть СС гамильтониана с нулевыми туннельными матричными элементами t_{ij}^0. Второе и третье слагаемые в (3) соответствуют ЭЭВ в рамках расширенного приближения Хаббарда с межузельной $\sim V_{ij}$ и внутриузловой $\sim U$ кулоновскими энергиями отталкивания. Межузловое кулоновское отталкивание описывается переменным по системе расстоянием d_{ij} между парами ближайших соседей: $\sim V_{ij} = V d_{\min}/d_{ij}$ ($d_{\min}$ – минимальное расстояние до ближайшего соседа). Член ЭЭВ взаимодействия в (3) содержит произведения четырех фермионных операторов. Мы рассмотрели кулоновское взаимодействие в рамках феноменологического приближения Хартри–Фока. Используя разложение Хартри–Фока [28], гамильтониан (3) можно аппроксимировать как:

$$\widehat{H}_0^{HF} \simeq -\sum_{i,j,\sigma} t_{ij}^0 c_{i\sigma}^{\dagger} c_{j\sigma} + U\sum_i \left(\overline{n}_{i\uparrow} n_{i\downarrow} + \overline{n}_{i\downarrow} n_{i\uparrow}\right) + \\ + \sum_{i,j} V_{ij}\overline{n}_j n_i - \sum_{i,j,\sigma} V_{ij} c_{i\sigma}^{\dagger} c_{j\sigma}\left\langle c_{i\sigma}^{\dagger} c_{j\sigma}\right\rangle, \tag{4}$$

где $\left\langle c_{i\sigma}^{\dagger}c_{j\sigma}\right\rangle$ – усредненная в поле матрица плотности и $\overline{n}_{i\sigma}=\left\langle c_{i\sigma}^{\dagger}c_{i\sigma}\right\rangle$. Теперь в (4) у нас есть только произведение двух фермионных операторов и гамильтониана (4) можно записать как

$$\widehat{H}_0^{HF}=-\sum_{i,j,\sigma}t_{ij}\left(\left\langle c_{i\sigma}^{\dagger}c_{j\sigma}\right\rangle\right)c_{i\sigma}^{\dagger}c_{j\sigma}. \qquad (5)$$

Фактически это одночастичный гамильтониан СС, заданный с нормированной энергией переноса t_{ij}, которая зависит от матрицы плотности, усредненной в поле. Можно самосогласованно определить матрицу плотности основного состояния $\rho_{0ij}^{(\sigma)}$ [45], а затем вычислить перенормированную энергию переноса $t_{ij}\left(\rho_{0ij}^{(\sigma)}\right)$ или применить феноменологический подход [28]. Таким образом, можно принять t_{ij}, равным экспериментально измеренному интегралу перехода для графеновых наноструктур, и перейти к оценке элементов матрицы плотности по отношению к основному состоянию – полностью заполненной валентной зоне эмпирического СС-гамильтониана (5). Отметим, что это приближение неприменимо для систем, основное состояние которых существенно отличается от полностью заполненной валентной зоны. Например, экситонный конденсат [45]. Однако для графеновых наноструктур экспериментальные доказательства таких явлений отсутствуют. Поэтому в качестве свободного гамильтониана мы взяли:

$$\widehat{H}_0^{HF}\simeq-\sum_{\langle i,j\rangle\sigma}t_{ij}c_{i\sigma}^{\dagger}c_{j\sigma}+U\sum_i(\overline{n}_{i\uparrow}-\overline{n}_{0i\uparrow})n_{i\downarrow}+$$
$$+U\sum_{i\sigma}(\overline{n}_{i\downarrow}-\overline{n}_{0i\downarrow})n_{i\uparrow}+\sum_{\langle i,j\rangle}V_{ij}(\overline{n}_j-\overline{n}_{0j})n_i-$$
$$-\sum_{\langle i,j\rangle\sigma}V_{ij}c_{i\sigma}^{\dagger}c_{j\sigma}\left(\left\langle c_{i\sigma}^{\dagger}c_{j\sigma}\right\rangle-\left\langle c_{i\sigma}^{\dagger}c_{j\sigma}\right\rangle_0\right). \qquad (6)$$

В этом представлении начальное значение матрицы плотности $\left\langle c_{i\sigma}^{\dagger}c_{j\sigma}\right\rangle_0$ вычисляется относительно гамильтониана СС (5) при фиксированном t_{ij}. Таким образом, в статическом пределе гамильтониан Хартри–Фока для ЭЭВ обращается в нуль. Таким образом, ЭЭВ в приближении Хартри–Фока актуально только для квантовой динамики, инициируемой лазерным полем. Взаимодействие света с ГКТ описывается в терминах калибровки длины через истинный скалярный потенциал:

$$\widehat{H}_{\text{int}}=e\sum_{i\sigma}\mathbf{r}_i\mathbf{E}\left(t\right)c_{i\sigma}^{\dagger}c_{i\sigma}$$

с радиус-вектором $\mathbf{r}_i$ и элементарным зарядом e. Из уравнения Гейзенберга $i\hbar\partial\widehat{L}/\partial t=\left[\widehat{L},\widehat{H}\right]$ мы получим эволюционные уравнения для одночастичной матрицы плотности $\rho_{ij}^{(\sigma)}=\left\langle c_{j\sigma}^{\dagger}c_{i\sigma}\right\rangle$. Будем также считать, что система релаксирует со скоростью γ к равновесному $\rho_{0ij}^{(\sigma)}$. Чтобы описать замкнутую систему уравнений для одночастичной матрицы плотности $\rho_{ij}^{(\sigma)}$, будем рассматривать ЭЭВ в рамках приближения Хартри–Фока и гамильтониан (3) аппроксимируем как (6). Таким образом, получается следующее уравнение для матрицы плотности:

$$i\hbar\frac{\partial\rho_{ij}^{(\sigma)}}{\partial t}=\sum_k\left(\tau_{kj\sigma}\rho_{ik}^{(\sigma)}-\tau_{ik\sigma}\rho_{kj}^{(\sigma)}\right)+\left(V_{i\sigma}-V_{j\sigma}\right)\rho_{ij}^{(\sigma)}+$$
$$+e\mathbf{E}\left(t\right)\left(\mathbf{r}_i-\mathbf{r}_j\right)\rho_{ij}^{(\sigma)}-i\hbar\gamma\left(\rho_{ij}^{(\sigma)}-\rho_{0ij}^{(\sigma)}\right), \qquad (7)$$

и матрицы $V_{i\sigma}$, $\tau_{ij\sigma}$ определяются через матрицу плотности $\partial\rho_{ij}^{(\sigma)}$:

$$V_{i\sigma}=\sum_{j\alpha}V_{ij}\left(\rho_{jj}^{(\alpha)}-\rho_{0jj}^{(\alpha)}\right)+U\left(\rho_{ii}^{(\overline{\sigma})}-\rho_{0ii}^{(\overline{\sigma})}\right), \qquad (8)$$

$$\tau_{ij\sigma}=t_{ij}+V_{ij}\left(\rho_{ji}^{(\sigma)}-\rho_{0ji}^{(\sigma)}\right). \qquad (9)$$

Далее численно диагонализуем СС гамильтониан $\widehat{H}_0$. Отметим, что ЭЭВ в пределе Хартри–Фока входит в эмпирический интеграл переноса между ближайшими атомами t_{ij}, который выбирается близким к экспериментальным данным $t_{ij}=2.7$ эВ [28]. Для всех расчетов мы приняли $V=0.3U$ [48, 49]. В гамильтониане мы пренебрегли колебаниями решетки. С помощью численной диагонализации находим собственные состояния $\psi_\mu\left(i\right)$ и собственные энергии ε_μ $(\mu=0,1,...,N-1)$. Результаты численной диагонализации показаны на соответствующем рисунке. Видно, что без туннелирования все энергетические уровни вырождаются. Так, туннелирование сняло вырождение и привело к образованию зоны валентных состояний ниже уровня Ферми $\varepsilon_\mu=0$, и зоны состояний проводимости выше уровня Ферми, и щели на уровне Ферми (см. также [28]). Квантовая динамика ГКТ в сильном периодическом волновом поле управляется замкнутой системой дифференциальных уравнений (7), которые должны быть решены с правильными начальными условиями. Мы строим преимущественно матрицу плотности $\rho_{0ij}^{(\sigma)}$ через заполнение электронных состояний в валентной зоне в соответствии с распределением Ферми–Дирака при нулевой температуре $\rho_{0ij}^{(\sigma)}=\sum_{\mu=N/2}^{N-1}\psi_\mu^*\left(j\right)\psi_\mu\left(i\right)$, с собственным состоянием $\psi_\mu\left(i\right)$ гамильтониана $\widehat{H}_0^{TB}$. Уравнение движения для матрицы плотности решается путем интегрирования по времени уравнения (7) при помощи стандартного алгоритма Рунге–Кутты четвертого порядка. Определим спектр ГВГ, оценивая преобразованием Фурье $\mathbf{a}(\Omega)$ дипольного ускорения $\mathbf{a}(t) = d^2\mathbf{d}/dt^2$. Дипольный момент определяется как $\mathbf{d}(t) = \left\langle \sum_{i\sigma} \mathbf{r}_i c_{i\sigma}^{\dagger} c_{i\sigma} \right\rangle$. Мы нормируем дипольное ускорение коэффициентом $a_0 = \overline{\omega}^2 \overline{d}$, где $\overline{\omega} = 1$ эВ$/\hbar$ и $\overline{d} = 1$ Å. Сила, излучаемая на данной частоте, пропорциональна $|\mathbf{a}(\Omega)|^2$. ГКТ имеют зигзагообразные края для всех случаев. Примем частоту возбуждения $\omega = 0.1$ эВ$/\hbar$, что значительно меньше типичных энергий щелей $U \simeq 3$ эВ, $V \simeq 0.3U$. Вероятность релаксации принята равной $\hbar\gamma = 50$ мэВ. Для большинства расчетов волновое поле (1), (2) предполагается двухчастотным циркулярным полем. Фаза волны равна $\phi = 0$ почти во всех случаях. Изначально рассмотрена компонента $|a_x(\Omega)|$, результаты для $|a_y(\Omega)|$ идентичны. Ось x лежит в плоскости рис. 1 и 2 и направлена вдоль оси x вправо.

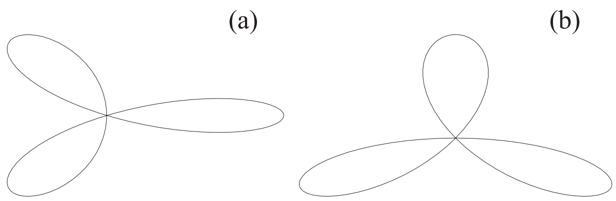

Рис. 1. Схема двухчастотного циркулярного поля ЭМ волны при (a) – $\phi = 0$; (b) – $\phi = 3\pi/2$

На рисунке 1 схематично показано двухчастотное циркулярное ЭМ поле, на рис. 2 и 3 соответственно показаны решетка графена и энергетический спектр СС в окрестности уровня Ферми, $\varepsilon_\mu = 0$, для тре-

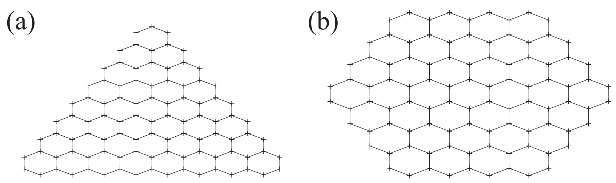

Рис. 2. Схема решеток (a) – треугольной; (b) – шестиугольной ГКТ с зигзагообразными ребрами с соответственно $N = 97$ и $N = 96$ атомами. Расстояние между ближайшими соседними атомами равно $a \simeq 1.42$ Å

угольной и шестиугольной ГКТ для почти одинакового числа атомов углерода. Чтобы сравнить вероятности ГВГ, на последующих рисунках мы представили все результаты для спектров испускания гармоник через нормализованное число атомов N. Далее, мы исследовали зависимость спектров ГВГ от относительной фазы двухчастотного циркулярного поля (1), (2). На рисунке 4a и b компонента $|a_x(\Omega)|$ построена в зависимости от номера гармоники и фазы ϕ соответственно для треугольной и шестиугольной ГКТ. Частоты двух циркулярно поляризованных полей основной волны приняты $\omega = 0.1$ эВ$/\hbar$ и $2\omega = 0.2$ эВ$/\hbar$, а две амплитуды напряженности поля равны $E_{01} = E_{02} = 0.1$ В/Å. Полное ЭМ поле одинаково для $\phi = 0$ и $\phi = 2\pi$. Как и ожидалось, общая вероятность гармоник модулируется при вращении "трилистника" двухчастотного циркулярного поля. Для неограниченного в пространстве графена в низкочастотной волне накачки спектр ГВГ изотропен относительно вектора поляризации двухчастотного циркулярного поля. Для высоких частот зависимость не изотропна, но из-за симметрии углеродной шестиугольной ячейки оптический отклик относительно вектора поляризации двухчастотного циркулярного поля носит периодический характер с периодом $2\pi/3$, а управляемые током гармоники относительно низшего порядка следуют ожидаемому образцу, достигая максимума, когда электроны устремляются к более крутым стенкам [27]. Для ГКТ в "трилистнике" двухчастотного циркулярного поля мы видим совсем другую картину. В этом случае мы имеем сильную анизотропию. Разные ϕ приводят к разным вероятностям ГВГ для одной и той же гармоники. Для наглядности на рис. 5 показана вероятность ГВГ для эффективных относительно невысоких гармоник H19 и H20 в зависимости от фазы. В частности, для треугольной ГКТ мы имеем максимум для H20 на фазе $\phi = 5\pi/12$, а для шестиугольной ГКТ предпочтительнее фазы $\phi = 2\pi/3, 5\pi/3$. Для последнего спектр идентичен при $\phi = 0$ и $\phi = \pi$ из-за троекратной симметрии. Здесь каждое изменение в фазе ϕ на π приводит к повороту трилистника на $2\pi/3$, что дает эквивалентную конфигурацию (как для неограниченного графена [27]). Как видно из рис. 5, при $\phi = 3\pi/2$ (конфигурация поля дана на рис. 1b) для треугольной ГКТ соответствующая кривая для H19, т.е. $(3n+1)$ гармоника, индуцируемая основным импульсом частоты ω, имеет максимум, когда симметрии "трилистника" двухчастотного циркулярного поля и треугольного ГКТ совпадают, и электроны устремляются к более крутым стенкам "трилистника" двухчастотного циркулярного поля. Гармоника H20 (как и для любого $(3n+2)$), индуцируемая 2ω-импульсом, не имеет максимума при $\phi = 3\pi/2$ из-за симметрии (см. также [27]). Рисунок 5 показывает, что в обоих ГКТ максимум на заданной фазе для H19 соответствует минимуму на той же фазе для H20, и наоборот, в силу периодичности волны накачки и сохранения полной энергии системы. Рисунок 4b показывает, что для любой фазы ϕ в шестиугольной ГКТ из-за симметрии отсутству-

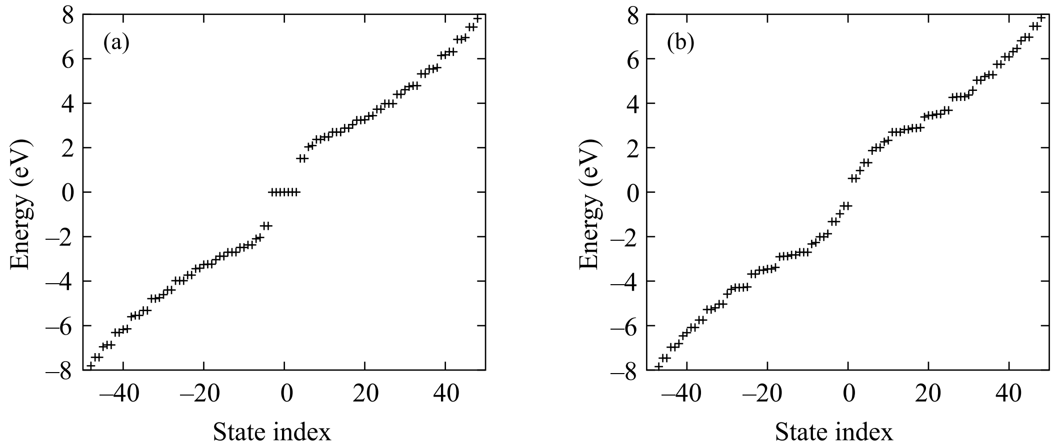

Рис. 3. Собственные энергии в (a) – треугольной; (b) – шестиугольной ГКТ с зигзагообразными ребрами с соответственно $N = 97$ и $N = 96$ атомами

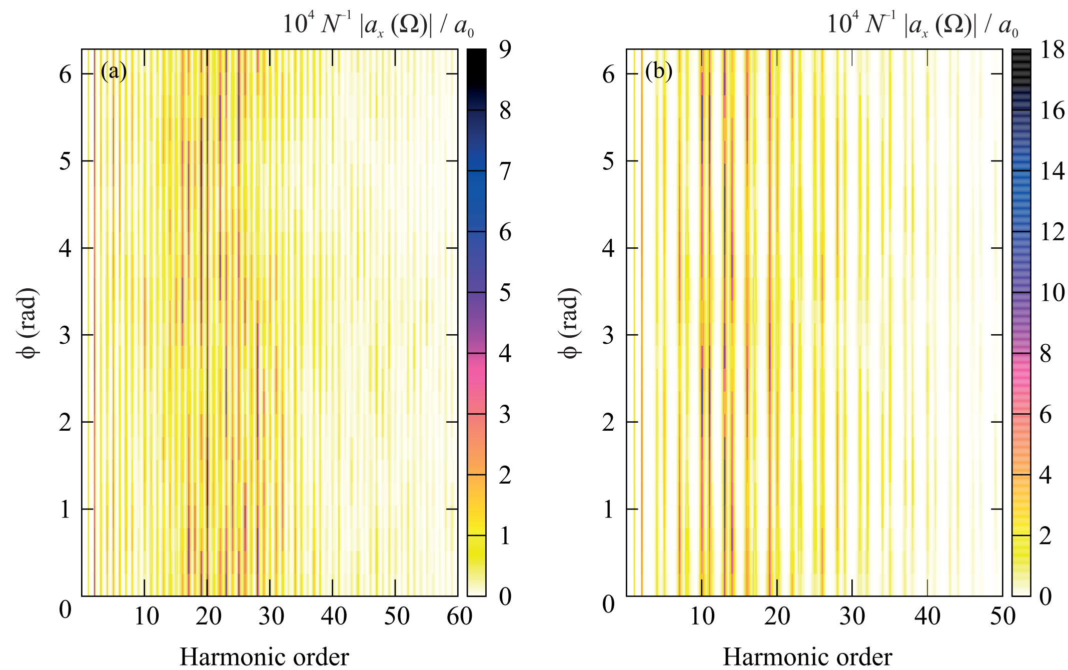

Рис. 4. (Цветной онлайн) Гармоническое испускание как функция двухчастотной фазы ϕ. Спектр излучения ГВГ в режиме сильного поля, выраженный через преобразование Фурье дипольного ускорения $N^{-1}|a_x\,(\Omega)\,|/a_0$ (в относительных единицах) в зависимости от номера гармоники и относительной фазы ϕ двухчастотного циркулярного поля волны накачки, в (a) – треугольной и (b) – шестиугольной ГКТ с зигзагообразными ребрами с соответственно $N = 97$ и $N = 96$ атомами. Частоты двух компонент волны равны $\omega = 0.1\ /\hbar$ и $2\omega = 0.2$ эВ$/\hbar$, а напряженности полей равны $E_{01} = E_{02} = 0.1$ В/Å. Энергии ЭЭВ равны $U = 3$ эВ, $V = 0.9$ эВ. Вероятность релаксации есть $\hbar\gamma = 50$ мэВ

ют гармоники $3n$. Мы также проверили, что все полученные результаты не зависят от конкретных направлений вращения двух вращающихся в противоположных направлениях циркулярно поляризованных полей волны накачки. То есть мы имеем одинаковые результаты при одновременном изменении направлений вращения обоих полей (см. [27]). Далее, для выяснения основных аспектов ГВГ двухчастотного циркулярного поля в ГКТ на рис. 6 компонента $|a_x\,(\Omega)\,|$ построена при разных амплитудах E_{01}, E_{02}. На рисунке 7 спектры ГВГ представлены для шестиугольной ГКТ. Как показано на рис. 6 и 7, в сильном лазерном поле многофотонные гармоники становятся одинаково значимыми как для треугольной, так и для шестиугольной ГКТ в двухчастотном циркулярном поле волны накачки, а энергии отсечки смеща-

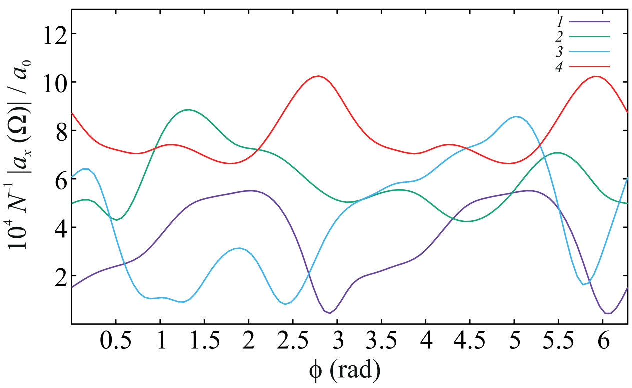

Рис. 5. (Цветной онлайн) Вероятность излучения для гармоник H19 и H20 в режиме сильного поля, выраженная через преобразование Фурье дипольного ускорения $N^{-1}|a_x(\Omega)|/a_0$ (в относ. ед.) в зависимости от фазы ϕ. (1–4) представлены соответственно для H20 в шестиугольной, H20 в треугольной, H19 в треугольной и H19 в шестиугольной ГКТ. Вероятность релаксации $\hbar\gamma = 50$ мэВ. Частоты волны $\omega = 0.1$ эВ$/\hbar$ и $2\omega = 0.2$ эВ$/\hbar$, напряженности полей равны $E_{01} = E_{02} = 0.1$ В/Å. Спектры показаны для умеренных типичных энергий ЭЭВ $U = 3$ эВ, $V = 0.9$ эВ. Кривые представлены в порядке их пересечения с осью y

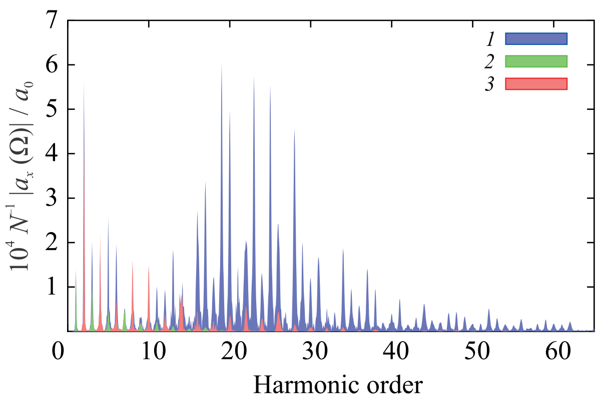

Рис. 6. (Цветной онлайн) То же, что и на рис. 4, но в зависимости от номера гармоники волны накачки для треугольной ГКТ с $N = 97$ атомами, и фаза равна $\phi = 0$. Напряженности поля для (1) $E_{01} = E_{02} = 0.1$ В/Å, (2) $E_{01} = 0.1$ В/Å, $E_{02} = 0$, и (3) $E_{02} = 0.1$ В/Å, $E_{01} = 0$

ются в синюю область. Значительное усиление спектра ГВГ за счет согласования симметрии системы свет–точка имеет место как для треугольной, так и для шестиугольной ГКТ с определенной групповой симметрией. В обоих случаях спектры ГВГ имеют многоступенчатую структуру плато, что связано с возбуждениями собственных энергетических состояний между незанятыми энергетическими уровнями и занятым уровнем [28]. Энергия отсечки гармоник $\hbar\omega N_{\mathrm{cut}}$ существенно возрастает по сравнению с энергиями отсечки ГВГ в линейно поляризованном лазерном поле при $E_{01} = 0$ или $E_{02} = 0$. На рисунках 6 и 7 видно, что в линейно поляризованной волне для рассматриваемых ГКТ с зигзагообразными краями из-за отсутствия инверсионной симметрии в спектре излучения ГВГ присутствуют как нечетные, так и четные гармоники. В отличие от линейно поляризованной волны накачки, как показано на рис. 7, для шестиугольной ГКТ в двухчастотном циркулярном поле спектр излучения ГВГ имеет гармоники $(3n{+}1)$, вызванные основной ω-составляющей импульса (левая круговая поляризация), и $(3n{+}2)$ гармоники, вызванные второй 2ω-составляющей импульса (правая круговая поляризация). На рисунке 7 $3n$ гармоники отсутствуют из-за симметрии, как и в двухчастотном циркулярном поле в атомарной среде [50, 51] и обычном графене [27]. На рисунке 6 для треугольной ГКТ $3n$-гармоники появляются из-за нарушения инверсионной симметрии. Чтобы наглядно показать различия, на рис. 8a и b отдельно показаны результаты для спектров излучения ГВГ, генерируемых сильным двухчастотным циркулярным полем волны накачки в соответственно треугольной и шестиугольной ГКТ при почти одинаковом числе атомов. Как видно из рис. 8, для рассматриваемого значения фазы $\phi = 0$ вероятности ГВГ возрастают для шестиугольной структуры. Рисунок 8 демонстрирует типичное нелинейное поведение ГВГ со множеством плато. Отметим, что спектры, показанные на рис. 8a, как и на рис. 6, богаче. Это является следствием не только интерференции двух разных вкладов, внутризонного и межзонного [21], но и нарушения инверсионной симметрии в треугольной ГКТ, приведшего к появлению $3n$-гармоник. При этом рис. 8 показывает, что доминирующее плато сместилось в сторону более высоких частот, в частности, при $N = 97$ для

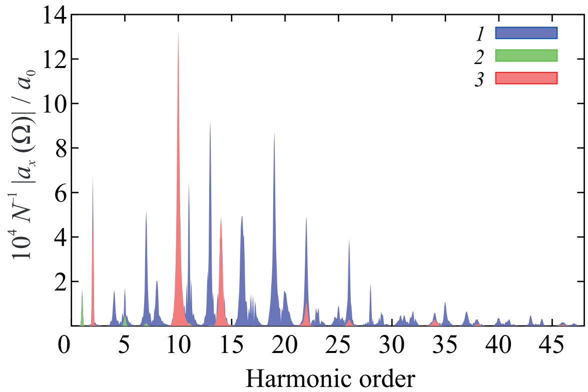

Рис. 7. (Цветной онлайн) То же, что и на рис. 6, но для шестиугольной ГКТ с $N = 96$ атомами

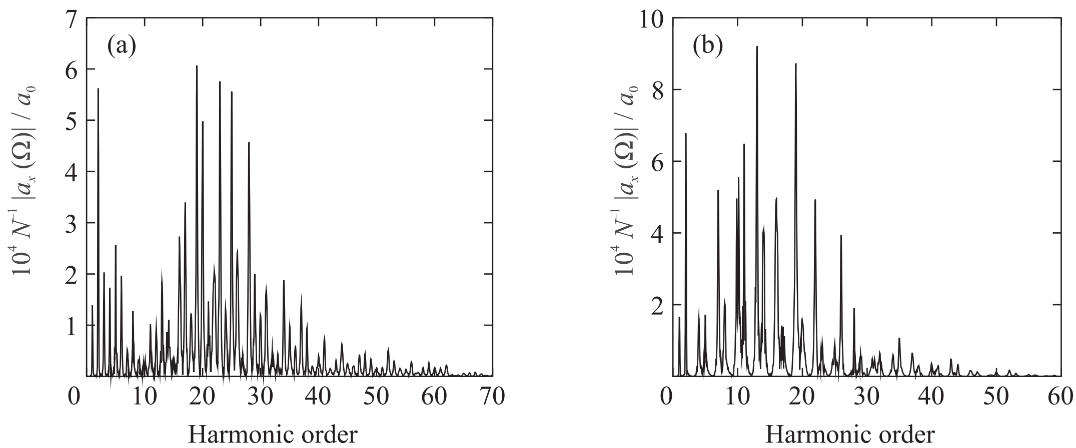

Рис. 8. То же, что и на рис. 6, но только в двухчастотном циркулярном поле при фазе, равной $\phi = 0$ для (a) – треугольной и (b) – шестиугольной ГКТ с зигзагообразными ребрами с соответственно $N = 97$ и $N = 96$ атомами. На рис. (b), $3n$ гармоники отсутствуют из-за симметрии в шестиугольной ГКТ

треугольной ГКТ и $N = 96$ для шестиугольной ГКТ мы имеем эффективную многофотонную генерацию гармоник соответственно с 15-й по 40-ю и с 10-й по 30-ю.

Подводя итоги, отметим, что мы изучили влияние на ГКТ двухчастотного циркулярного поля, образованного двумя вращающимися навстречу циркулярно поляризованными полями основной волны накачки, в частности, а также фазы такого поля. Микроскопическая теория была использована для описания крайне нелинейного отклика такой наноструктуры на интенсивное когерентное излучение. Замкнутая система дифференциальных уравнений для одночастичной матрицы плотности при многофотонном взаимодействии ГКТ с сильным лазерным полем решена численно для ГКТ треугольной и шестиугольной формы с зигзагообразными краями. Как показывают численные результаты, из-за разной симметрии подрешетки одни и те же фазы дают разные парциальные выходы в спектрах ГВГ для треугольной и шестиугольной форм ГКТ с близким числом атомов. Фаза $\phi \neq 0$ двухчастотного циркулярного поля не нарушает инверсионной симметрии, и в шестиугольной ГКТ гармоники $3n$ отсутствуют вне зависимости от ϕ. Полученные результаты показывают, что ГКТ с ограничением квазичастиц в пространстве могут служить эффективной средой для генерации четных и нечетных гармоник высокого порядка в двухчастотном циркулярном поле волны уже умеренной интенсивности. Вероятность ГВГ возрастает на определенных фазах. Полная вероятность ГВГ может модулироваться при вращении “трилистника” двухчастотного циркулярного поля. Энергия отсечки гармоник $\hbar\omega N_{\mathrm{cut}}$ существенно возрастает по сравнению с энергией отсечки ГВГ в случае линейно поляризованного лазерного поля. Из-за отсутствия инверсной симметрии подрешетки в треугольных ГКТ во всех рассмотренных случаях, а также в шестиугольных ГКТ в линейно поляризованной волне при генерации появляются гармоники как нечетного, так и четного порядка вне зависимости от двухцветовой фазы. Для двухчастотного циркулярного лазерного поля, взаимодействующего с шестиугольной ГКТ, мы видим совершенно другую картину. В этом случае мы имеем спектры излучения высоких гармоник, так как $3n + 1$, вызванные основной, $3n + 2$, вызванные второй гармоникой волны накачки, а $3n$ гармоники отсутствуют из-за симметрии для шестиугольной ГКТ. Таким образом, мы предлагаем интересные системы для световолновой наноэлектроники и нелинейной оптики. Это потенциальный способ увеличения квантового выхода и энергии испускаемых фотонов при ГВГ в графеноподобных квантовых точках, что также должно позволить управлять поляризацией генерируемых гармоник.

Авторы глубоко признательны проф. Г. К. Аветисяну и док. физ.-мат. наук Г. Ф. Мкртчяну за постоянные обсуждения и ценные рекомендации.

Работа поддержана Комитетом науки Республики Армения в рамках исследовательского проекта 20TTWS–1C010.

1. R. W. Boyd, *Nonlinear Optics*, Academic Press, San Diego (2003).
2. P. B. Corkum and F. Krausz, Nat. Phys. **3**, 381 (2007).
3. G. Mourou, Appl. Phys. B **65**, 205 (1997).

4. A. H. C. Neto, F. Guinea, N. M. R. Peres, K. S. Novoselov, and A. K. Geim, Rev. Mod. Phys. **81**, 109 (2009).
5. S. A. Mikhailov and K. Ziegler, J. Phys. Condens. Matter **20**, 384204 (2008).
6. H. K. Avetissian, G. F. Mkrtchian, and K. V. Sedrakian, J. Nanophoton. **6**, 061702 (2012).
7. H. K. Avetissian, G. F. Mkrtchian, K. G. Batrakov, S. A. Maksimenko, and A. Hoffmann, Phys. Rev. B **88**, 165411 (2013).
8. I. Al-Naib, J. E. Sipe, and M. M. Dignam, New J. Phys. **17**, 113018 (2015).
9. L. A. Chizhova, F. Libisch, and J. Burgdorfer, Phys. Rev. B **94**, 075412 (2016).
10. H. K. Avetissian, A. G. Ghazaryan, G. F. Mkrtchian, and Kh. V. Sedrakian, J. Nanophoton. **11**, 016004 (2017).
11. D. Dimitrovski, L. B. Madsen, and T. G. Pedersen, Phys. Rev. B **95**, 035405 (2017).
12. H. K. Avetissian and G. F. Mkrtchian, Phys. Rev. B **97**, 115454 (2018).
13. H. K. Avetissian, A. K. Avetissian, B. R. Avchyan, and G. F. Mkrtchian, Phys. Rev. B **100**, 035434 (2019).
14. A. K. Avetissian, A. G. Ghazaryan, and Kh. V. Sedrakian, J. Nanophoton. **13**, 036010 (2019).
15. H. K. Avetissian, A. K. Avetissian, A. G. Ghazaryan, G. F. Mkrtchian, and Kh. V. Sedrakian, J. Nanophoton. **14**, 026004 (2020).
16. A. G. Ghazaryan, H. H. Matevosyan, nd Kh. V. Sedrakian, J. Nanophoton. **14**, 046009 (2020).
17. H. K. Avetissian, *Relativistic nonlinear electrodynamics, The QED vacuum and matter in super-strong radiation fields*, Springer, Berlin (2016).
18. B. R. Avchyan, A. G. Ghazaryan, K. A. Sargsyan, and Kh. V. Sedrakian, JETP **132**(6), 883 (2021).
19. A. G. Ghazaryan, JETP **132(5)**, 843 (2021).
20. G. P. Zhang and Y. H. Bai, Phys. Rev. B **101**, 081412(R) (2020).
21. H. K. Avetissian, A. G. Ghazaryan, and G. F. Mkrtchian, Phys. Rev. B **104**, 125436 (2021).
22. P. Bowlan, E. Martinez-Moreno, K. Reimann, T. Elsaesser, and M. Woerner, Phys. Rev. B **89**, 041408 (2014).
23. N. Yoshikawa, T. Tamaya, and K. Tanaka, Science **356**, 736 (2017).
24. H. K. Avetissian, A. K. Avetissian, G. F. Mkrtchian, and Kh. V. Sedrakian, Phys. Rev. B **85**, 115443 (2012).
25. E. V. Castro, K. S. Novoselov, S. V. Morozov, N. M. R. Peres, J. M. B. Lopes dos Santos, J. Nilsson, F. Guinea, A. K. Geim, and A. H. Castro Neto, Phys. Rev. Lett. **99**, 216802 (2007).
26. J. R. Schaibley, H. Yu, G. Clark, P. Rivera, J. S. Ross, K. L. Seyler, W. Yao, and X. Xu, Nat. Rev. Mater. **1**, 16055 (2016).
27. M. S. Mrudul, A. Jimenez Galan, M. Ivanov, and G. Dixit, Optica **8**, 277 (2021).
28. A. D. Guclu, P. Potasz, M. Korkusinski, and P. Hawrylak, *Graphene quantum dots*, Springer, Berlin (2014).
29. H. K. Avetissian, B. R. Avchyan, G. F. Mkrtchian, and K. A. Sargsyan, J. Nanophoton. **14**, 026018 (2020).
30. S. Luryi, J. Xu, and A. Zaslavsky, *Future trends in microelectronics: Frontiers and innovations*, Wiley, N.Y. (2013).
31. A. D. Guclu, P. Potasz, and P. Hawrylak, Phys. Rev. B **82**, 155445 (2010).
32. O. Voznyy, A. D. Guclu, P. Potasz, and P. Hawrylak, Phys. Rev. B **83**, 165417 (2011).
33. W. L. Wang, S. Meng, and E. Kaxiras, Nano Lett. **8**, 241 (2008).
34. M. Y. Han, B. Ozyilmaz, and Y. Zhang, Ph. Kim, Phys. Rev. Lett. **98**, 206805 (2007).
35. S. Reich, C. Thomson, and J. Maultzsch, *Carbon nanotubes, basic concepts and physical properties*, Wiley-VCH, Weinheim (2004).
36. M. Lewenstein, Ph. Balcou, M. Y. Ivanov, A. L'Huillier, and P. B. Corkum, Phys. Rev. A **49**, 2117 (1994).
37. B. R. Avchyan, A. G. Ghazaryan, K. A. Sargsyan, and Kh. V. Sedrakian, JETP **134**, 125 (2022).
38. B. R. Avchyan, A. G. Ghazaryan, S. S. Israelyan, and Kh. V. Sedrakian, J. Nanophoton. **16**, 036001 (2022).
39. X. Zhang, T. Zhu, H. Du, H.-G. Luo, J. Brink, and R. Ray, Phys. Rev. Research **4**, 033026 (2022).
40. O. Kfir, P. Grychtol, E. Turgut, R. Knut, D. Zusin, D. Popmintchev, T. Popmintchev, H. Nembach, J. M. Shaw, A. Fleischer, H. Kapteyn, M. Murnane, and O. Cohen, Nature Photon **9**, 99 (2015).
41. G. P. Zhang, Phys. Rev. Lett. **91**, 176801 (2003).
42. J. D. Cox, A. Marini, and F. de Abajo, Nat. Commun. **8**, 14380 (2017).
43. J. D. Cox and F. de Abajo, Nat. Commun. **5**, 5725 (2014).
44. E. Malic, T. Winzer, E. Bobkin, and A. Knorr, Phys. Rev. B **84**, 205406 (2011).
45. J. Sabio, F. Sols, and F. Guinea, Phys. Rev. B **82**, 21413 (2010).
46. P. R. Wallace, Phys. Rev. **71**, 622 (1947).
47. H. K. Avetissian, G. F. Mkrtchian, and A. Knorr, Phys. Rev. B **105**, 1 (2022).
48. R. L. Martin and J. P. Ritchie, Phys. Rev. B **48**, 4845 (1993).
49. H. K. Avetissian, S. S. Israelyan, H. H. Matevosyan, and G. F. Mkrtchian, Phys. Rev. A **105**, 063504 (2022).
50. A. Fleischer, O. Kfir, T. Diskin, P. Sidorenko, and O. Cohen, Nat. Photon. **8**, 543 (2014).
51. O. Neufeld, D. Podolsky, and O. Cohen, Nat. Commun. **10**, 1 (2019).