ЖЭТФ, 2023, том 164, вып. 3 (9), стр. 457–466

ГАРМОНИКИ ВЫСШЕГО ПОРЯДКА В ГЕКСАГОНАЛЬНЫХ ГРАФЕНОВЫХ КВАНТОВЫХ ТОЧКАХ

Х. В. Седракян [a], *А. Г. Казарян* [a*], *Б. Р. Авчян* [a], *К. С. Погосян* [a], *Т. М. Маркосян* [b]

[a] *Центр физики сильных полей, Ереванский государственный университет 0025, Ереван, Армения*

[b] *Институт синхротронных исследований «КЕНДЛ» 0022, Ереван, Армения*

Поступила в редакцию 29 марта 2023 г.,
после переработки 29 марта 2023 г.
Принята к публикации 17 апреля 2023 г.

Рассмотрена генерация высших гармоник в плоских графеновых квантовых точках гексагональной формы в рамках независимого квазичастичного приближения — модели сильной связи. Исследовано, как на такой нелинейный эффект влияют сильное оптическое волновое поле, типичная ширина запрещенной зоны и латеральный размер квантовых точек, а также процессы дефазировки. Уравнение движения для матрицы плотности решается путем интегрирования по времени с помощью алгоритма Рунге–Кутты восьмого порядка. Если частота оптической волны намного меньше собственной ширины запрещенной зоны квантовой точки, то выявляются основные аспекты многофотонного излучения высших гармоник в квантовых точках. В этом случае зависимость энергии фотонов отсечки от напряженности оптической волны накачки практически линейна. Но когда частота волны сравнима с шириной запрещенной зоны квантовой точки, энергия отсечки фотонов при увеличении напряженности поля волны насыщается.

DOI: 10.31857/S0044451023090146
EDN: KEGRMN

1. ВВЕДЕНИЕ

Многофотонный процесс генерации высших гармоник (ГВГ) играет особую роль в нелинейных оптических эффектах, вызванных сильным когерентным электромагнитным полем излучения в области оптических частот, напряженность которого сравнима с внутренним электрическим полем в твердом теле. Он позволяет преобразовать низкочастотную волну накачки в видимом или инфракрасном диапазоне в высокочастотное излучение, например, жесткое ультрафиолетовое в твердой среде [1–9]. Есть два вклада в ГВГ в твердых телах: электронно-дырочные переходы внутри незанятых/занятых уровней и рождение электронно-дырочных пар (переходы с занятых уровней на незанятые) и последующая рекомбинация [3–6, 10–12]. Первый дает вклад только для низких гармоник и аналогичен внутризонному току в полупроводнике, второй и есть основной вклад в высокочастотную часть, соответствующий межзонному току, представляющему собой рекомбинацию/рождение электронно-дырочной пары. Какой вклад существеннее, определяется шириной запрещенной зоны твердого тела и параметрами волнового поля, например, частотой или напряженностью поля. Уникальным свойством ГВГ в твердых телах является то, что энергия отсечки спектров ГВГ линейно зависит от напряженности волны накачки [3], тогда как в газах отсечка спектров ГВГ линейно зависит от интенсивности волны [13]. Действительно, ГВГ является одной из характеристик нелинейно-оптического отклика твердых тел. Их нелинейно-оптические свойства сильно зависят от зонной структуры, уровня примесей и других внутренних характеристик твердых тел. Мы будем исследовать нульмерные системы квантовых точек (КТ) [14, 15], которые состоят из конечного числа атомов углерода [16–19]. Энергетические спектры КТ дискретны из-за размерного квантования и аналогичны спектрам обычных атомов. В то же время КТ по-прежнему имеют особенности кристаллической структуры соответствующего твердого тела: в пределах области КТ атомы располагаются периодически и дискретные энергетические уровни КТ обычно можно идентифицировать как принадлежащие разным зонам твердого тела. Таким об-

* E-mail: amarkos@ysu.am

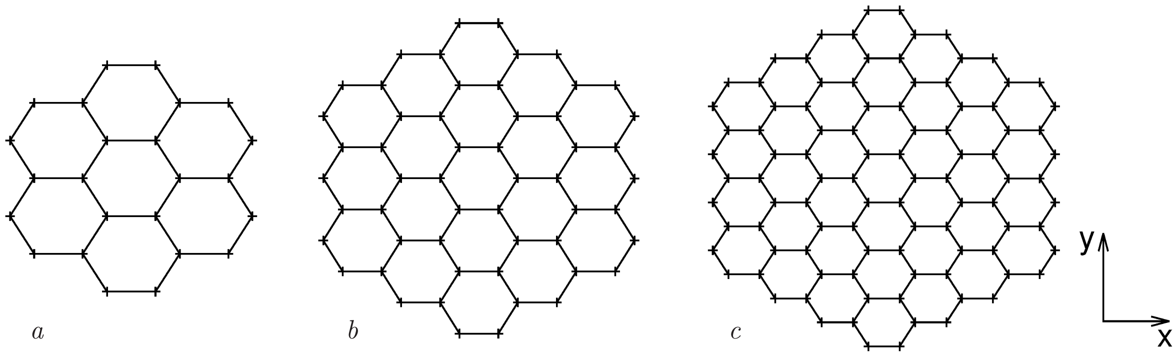

Рис. 1. Геометрическая структура графеновых КТ с 24 (a), 54 (b), 96 (c) атомами. Лазерное поле линейно поляризовано вдоль направления оси x. Расстояние между ближайшими соседними атомами равно $b \simeq 1.42$ Å

разом, спектры ГВГ в КТ могут напоминать спектры соответствующих твердых тел. В работе [20] в рамках одномерной модели прослеживалась трансформация спектра ГВГ из атомарного в спектр кристаллического твердого тела для КТ, что показано для КТ, состоящей всего из шести ядер [20].

В работах [21–23] экспериментально наблюдался сильный гармонический сигнал от графеноподобных КТ, таких как замкнуто-выпуклая фуллереновая плазма. Теоретические работы предсказали сильную ГВГ от молекулы C60 [24–27] и от твердого C60 [28]. Что касается плоских графеновых КТ, ГВГ в этих наноструктурах является неисследованной областью, и интересно заполнить этот пробел. Ожидается, что сильная ГВГ от плоских КТ графена будет обладать новыми свойствами, отсутствующими в графене. Ожидается, что эффективность ГВГ будет увеличиваться с увеличением ограничения размерности пространства, поскольку последнее будет ограничивать распространение электронного волнового пакета [29]. Хотя графен обладает экстраординарными транспортными и оптическими свойствами электронной системы [30], отсутствие энергетической щели сильно ограничивает его применимость. Графеновые КТ имеют щель, которая может влиять на нелинейный процесс ГВГ в КТ [20]. Например, теоретически рассматривалось сильная ГВГ в графеновых КТ, состоящих всего из 24 атомов, и влияние на такой нелинейный эффект процессов расфазировки в КТ [31]. В работах [14,15] преобладает теоретический анализ в одночастичном рассмотрении, но неясно, влияет ли и как латеральный размер КТ графена на процесс ГВГ и электронный отклик субцикла в КТ.

В настоящей работе рассматривается процесс ГВГ в плоских гексагональных графеновых КТ, вызванный интенсивным когерентным излучением, в рамках модели сильной связи [32] — независимого квазичастичного приближения. Взаимодействие электромагнитной волны с точкой рассмотрено в калибровке длины. В рамках микроскопической теории, описывающей экстремальный нелинейно-оптический отклик КТ, численно решается замкнутая система дифференциальных уравнений для одночастичной матрицы плотности при многофотонном взаимодействии КТ с сильным лазерным полем. Энергетическая щель КТ определяется ее латеральным размером и типом края. Отметим, что рассматриваемые КТ доступны экспериментально [33, 34]. Действительно, для экспериментальной проверки ГВГ от графеновых КТ предлагается подготовить массив КТ для увеличения интенсивности соответствующего излучения [31], а измерения можно проводить, когда испускаемое излучение направляется на спектрометр [35]. Массив графеновых КТ также можно использовать для генерации высокочастотных оптических импульсов. Хотя интенсивность таких импульсов может быть низкой, импульсы могут генерироваться в области жесткого ультрафиолета. Настоящее рассмотрение позволит подвести итоги и наметить оптимальные условия ГВГ в графеновых КТ.

Работа построена следующим образом. В разд. 2 приведена система уравнений для одночастичной матрицы плотности. В разд. 3 мы рассматриваем многофотонное возбуждение и генерацию гармоник в КТ с зигзагообразным краем различных латеральных размеров в зависимости от типичных ширин запрещенной зоны в КТ, интенсивности и частоты лазерного излучения. Наконец, выводы приведены в разд. 4

2. ГАМИЛЬТОНИАН СИЛЬНОЙ СВЯЗИ И ОСНОВНОЕ УРАВНЕНИЕ ДЛЯ ОДНОЧАСТИЧНОЙ МАТРИЦЫ ПЛОТНОСТИ

На рис. 1 показаны геометрические структуры гексагональных КТ с зигзагообразными краями с

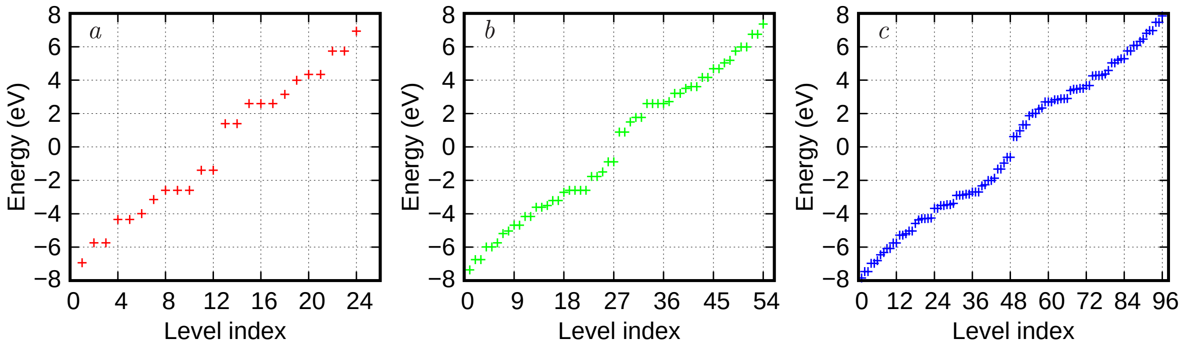

Рис. 2. Собственные энергии графеновых КТ, представленных на рис. 1. Спектры состоят из одинарного, двойного, тройного и четырехкратно вырожденных уровней. Уровни с отрицательной энергией соответствуют валентной зоне, а уровни с положительной энергией — зоне проводимости. Ширина запрещенной зоны 3.00 эВ (a), 1.77 эВ (b), 1.24 эВ (c)

разным числом атомов углерода с соответствующими запрещенными зонами, которые имеют симметрию D_{6h}. Будем исследовать процесс ГВГ в такой КТ с сильной электромагнитной волной, линейно поляризованной в направлении x (см. рис. 1):

$$\mathbf{E}(t) = \widehat{\mathbf{x}}\, E_0\, f(t) \cos \omega t, \tag{1}$$

где $\widehat{\mathbf{x}}$ — единичный вектор поляризации, E_0 — амплитуда, ω — несущая частота, $f(t) = \sin^2(\pi t/\mathcal{T})$ — медленно меняющаяся огибающая, $\mathcal{T}$ — длительность импульса. В качестве последнего принимается n периодов волны:

$$\mathcal{T} = 2n\pi/\omega = \pi\tau_0.$$

Далее мы рассмотрим частоты оптических волн. Например, при $\tau_0 = 2n/\omega = 10$ фс происходит восемь колебаний поля волны накачки.

Мы предполагаем нейтральные плоские КТ, электронная система которых описывается моделью сильной связи с полным гамильтонианом

$$\widehat{H} = \widehat{H}_0^{TB} + \widehat{H}_{int}, \tag{2}$$

где

$$\widehat{H}_0^{TB} = -\sum_{\langle i,j\rangle\sigma} t_{ij} c_{i\sigma}^{\dagger} c_{j\sigma} \tag{3}$$

— гамильтониан КТ свободного графена. Здесь оператор $c_{i\sigma}^{\dagger}$ рождает электрон со спиновой поляризацией σ в узле i, а $\langle i,j\rangle$ пробегает все первые ближайшие узлы перескока на соседние узлы с энергией переноса t_{ij} ($\bar{\sigma}$ поляризация спина, противоположная σ). Взаимодействие света с веществом описывается в калибровке длины через скалярный потенциал

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

где e — элементарный заряд, $\mathbf{r}_i$ — радиус-вектор, $\mathbf{E}(t)$ — напряженностью электрического поля. В гамильтониане мы пренебрегаем колебаниями решетки. Тогда интеграл перескока между ближайшими атомами в позициях $\mathbf{r}_i$ и $\mathbf{r}_j$ аппроксимируется как средняя константа перескока $t_{ij} = 2.7$ эВ, что близко к экспериментально определенному значению [33, 36]. Из уравнения Гейзенберга

$$i\hbar \frac{\partial \widehat{L}}{\partial t} = \left[\widehat{L}, \widehat{H}\right],$$

где $\widehat{L}$ — лагранжиан квантовой системы, можно получить эволюционные уравнения для одночастичной матрицы плотности

$$\rho_{ij}^{(\sigma)} = \left\langle c_{j\sigma}^{\dagger} c_{i\sigma} \right\rangle.$$

Примем, что система релаксирует со скоростью γ к равновесному распределению $\rho_{0ij}^{(\sigma)}$. Таким образом, получаем следующее уравнение для матрицы плотности:

$$i\hbar \frac{\partial \rho_{ij}^{(\sigma)}}{\partial t} = \sum_k \left(t_{kj}\rho_{ik}^{(\sigma)} - t_{ik}\rho_{kj}^{(\sigma)}\right) + \\ + e\,\mathbf{E}(t)\cdot(\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j)\rho_{ij}^{(\sigma)} - i\hbar\gamma\left(\rho_{ij}^{(\sigma)} - \rho_{0ij}^{(\sigma)}\right). \tag{4}$$

Мы численно диагонализируем гамильтониан сильной связи $\widehat{H}_0^{TB}$. Следует отметить, что полные электрон-электронные взаимодействия в настоящем рассмотрении включены в эмпирический интеграл перескоков t_{ij} между ближайшими соседними атомами. С помощью численной диагонализации находим собственные состояния $\psi_\mu(i)$ и собственные энергии ε_μ ($\mu = 0, 1, ..., N-1$) гамильтониана (3) при фиксированном t_{ij}. Результаты численной диагонализации представлены на рис. 2. Видно, что без туннелирования все уровни энергии вырождены. Итак, туннелирование сняло вырождение и привело к образованию зоны валентных состояний ниже уровня Ферми $\varepsilon_\mu = 0$, зоны состояний проводимости выше уровня Ферми и щели поперек уровня Ферми [33]. На рис. 2 также видно, что с ростом числа атомов решетки плотность состояний увеличивается. Это может оказать прямое влияние на выход ГВГ, как будет показано ниже.

Квантовая динамика КТ в периодическом сильном волновом поле определяется замкнутой системой дифференциальных уравнений (4), которая должна быть решена с определенными начальными условиями. Построим матрицу плотности $\rho_{0ij}^{(\sigma)}$ через заполнение электронных состояний в валентной зоне в соответствии с распределением Ферми – Дирака при нулевой температуре,

$$\rho_{0ij}^{(\sigma)} = \sum_{\mu=N/2}^{N-1} \psi_\mu^*(j)\, \psi_\mu(i),$$

с собственным состоянием $\psi_\mu(i)$ гамильтониана $\widehat{H}_0^{TB}$. Уравнение движения для матрицы плотности решается путем численного интегрирования по времени уравнения (4) с помощью алгоритма Рунге – Кутты восьмого порядка.

3. ЧИСЛЕННЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

В этом разделе мы рассмотрим нелинейный отклик плоских графеновых КТ с учетом генерации гармоник при многофотонном возбуждении. Спектр гармоник определяется преобразованием Фурье $\mathbf{a}(\Omega)$ дипольного ускорения $\mathbf{a}(t) = d^2\mathbf{d}/dt^2$. Для сравнения спектров ГВГ-излучения в КТ с разным числом атомов решетки мы получили все результаты для спектров, нормируя их на число атомов N. Дипольный момент $\mathbf{d}(t) = \left\langle \sum_{i\sigma} \mathbf{r}_i c_{i\sigma}^\dagger c_{i\sigma} \right\rangle$ тоже можно нормализовать, разделив на дипольное ускорение $a_0 = \overline{\omega}^2 \overline{d}$, где $\overline{\omega} = 1$ эВ$/\hbar$ и $\overline{d} = 1$ Å. Мощность ГВГ при фиксированной частоте пропорциональна $|\mathbf{a}(\Omega)|^2$. Для рассматриваемого приближения сильной связи частота волны накачки должна быть $\hbar\omega \ll t_{ij}$. На рис. 2 показан соответствующий энергетический спектр в окрестности уровня Ферми, $\varepsilon_\mu = 0$. Состоящие из N атомов КТ, согласно модели сильной связи, имеют N уровней, при этом $N/2$ уровней с отрицательными энергиями до действия волны изначально заняты и принадлежат валентной зоне, а $N/2$ уровней с положительными энергиями пусты и относятся к зоне проводимости. Благодаря размерному квантованию графеновые КТ имеют собственную ширину запрещенной зоны, которая определяется поперечным размером КТ. Основные аспекты многофотонной ГВГ в КТ проявляются, когда частота волны много меньше энергетической щели КТ. Значения ширины запрещенной зоны КТ для числа атомов $N = 24, 54, 96$ соответственно равны 3 эВ, 1.77 эВ, 1.24 эВ. КТ имеет относительно большую ширину запрещенной зоны, например, около 3 эВ при $N = 24$, поэтому для оптической волны накачки с частотами 1–2.5 эВ отсутствуют резонансные переходы внутри системы. С увеличением размера КТ ширина запрещенной зоны за счет размерного квантования уменьшается. Итак, резонансные переходы на относительно малых частотах волны реальны. Как показано в работе [31], влияние релаксационных процессов на ГВГ в графеновых КТ уже значительны для КТ достаточно малых размеров.

Для определения полной населенности зон в КТ при воздействии волны накачки мы сделали замену базиса по формуле

$$\rho_{ij} = \sum_{\mu'} \sum_{\mu} \psi_{\mu'}^*(j) \rho_{\mu\mu'} \psi_\mu(i),$$

где $\rho_{\mu\mu'}$ — матрица плотности в энергетическом представлении. Диагональные элементы $N(t) = \rho_{\mu\mu}(t)$ представляют функции распределения валентной зоны и зоны проводимости, а недиагональные элементы описывают когерентные переходы между валентной зоной и зоной проводимости. На рис. 3 и 4 представлены населенности зон $N(t)$, рассчитанные по известной матрице плотности $\rho_{\mu\mu}(t)$ при воздействии волны накачки с частотой $\omega = 1.5$ эВ$/\hbar$, в зависимости от энергии уровня и номера уровня КТ соответственно. На рис. 3 уровни с положительной энергией, соответствующие зоне проводимости, в основном пусты. Напротив, уровни с отрицательной энергией, соответствующие валентной зоне, заполнены электронами с противоположными спинами. Максимальная разность энергий между уровнями валентной зоны и зоны проводимости составляет около 16 эВ для всех случаев КТ с разным числом атомов. Если при этом высокие гармоники генерируются за счет переходов между уровнями КТ, то величина 16 эВ должна быть максимальной энергией, которая может генерироваться в такой КТ. Населенность уровней КТ, зависящая от времени из-за взаимодействия электронов с волной, приводит к гармоникам с энергиями выше 16 эВ, как обсуждается ниже. Вырожденные энергетические состояния КТ без туннелирования (см. рис. 2) дают одинаковые результаты для населенности зон КТ, взаимодействующих с волной накачки. Поэтому, как видно на рис. 3, для разных энергий результатов (вертикальных линий) меньше, чем на рис. 4 для разных номеров уровней. Рисунки 3, 4 показывают, что с увеличением числа атомов в КТ вероятность зонных состояний возрастает. Последнее может существенно изменить населенность зоны проводи-

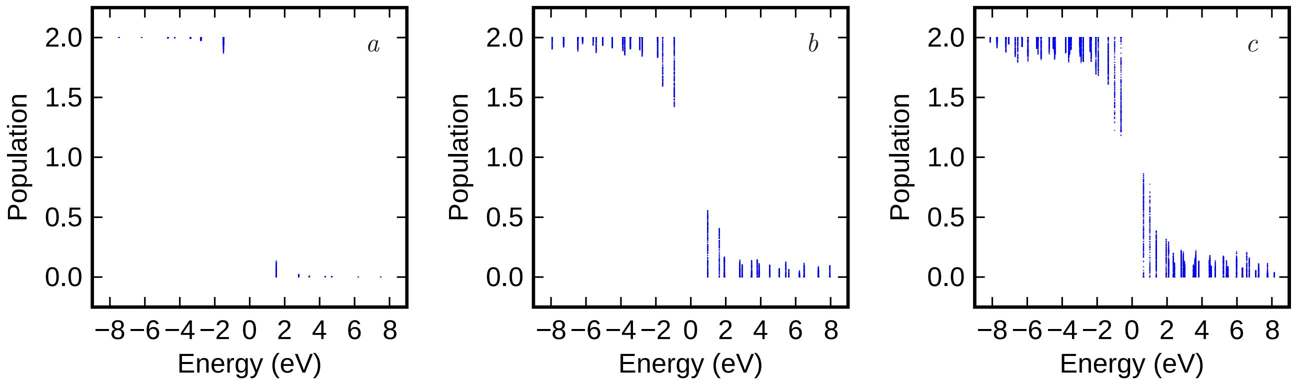

Рис. 3. Зависимости населенности зоны в волне накачки, нормированные на число атомов N, от энергии уровня для КТ с $N = 24$ (a), 54 (b), 96 (c) атомами. Уровни с отрицательной энергией принадлежат валентной зоне, а уровни с положительной энергией — зоне проводимости. Вырожденные энергетические состояния дают одинаковый результат. Время релаксации $\tau = 4$ фс. Частота линейно поляризованной волны $\omega = 1.5$ эВ$/\hbar$, а напряженность волнового поля $E_0 = 0.4$ В/Å

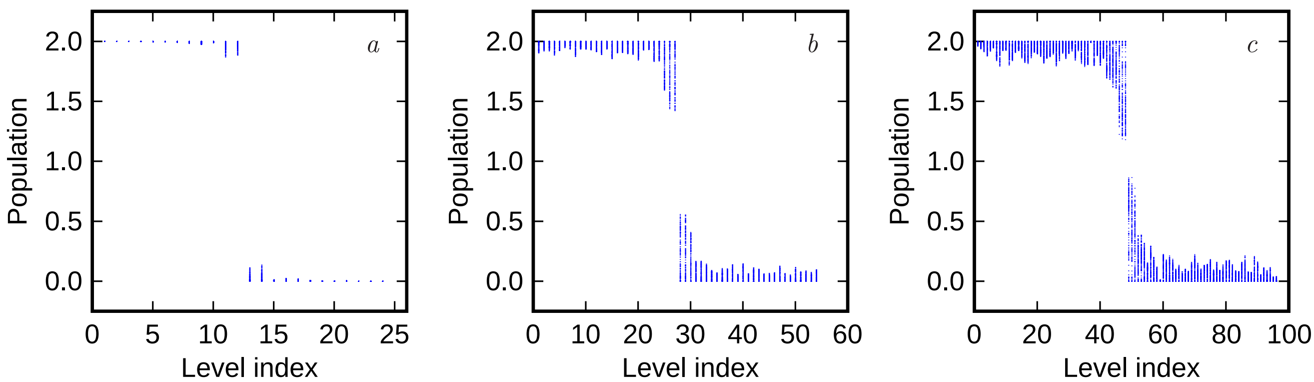

Рис. 4. То же, что и на рис. 3, но в зависимости от номера уровня

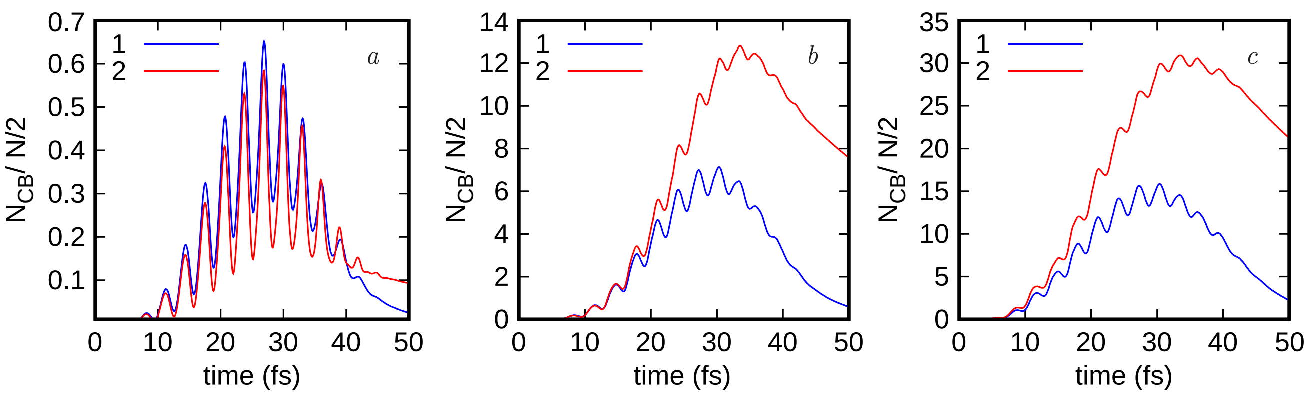

Рис. 5. (В цвете онлайн) Населенность зоны проводимости N_{CB} в зависимости от времени для КТ с 24 (a), 54 (b) и 96 (c) атомами. Результат нормирован на число электронов $N/2$ в зоне проводимости. Частота волны $\omega = 1.5$ эВ$/\hbar$, напряженность поля $E_0 = 0.4$ В/Å. Времена релаксации равны $\tau = 4$ фс (*1*), $\tau = 20$ фс (*2*)

мости для КТ с большим числом атомов. Чтобы показать это, на рис. 5 приведена населенность зоны проводимости в КТ при воздействии волны накачки. Рассчитаем зависящую от времени населенность $N_{CB}(t)$ зоны проводимости с известной матрицей плотности, используя следующее выражение:

$$N_{CB}(t) = \sum_{\mu=0}^{N/2-1} \rho_{\mu\mu}(t),$$

где сумма берется по всем состояниям зоны прово-

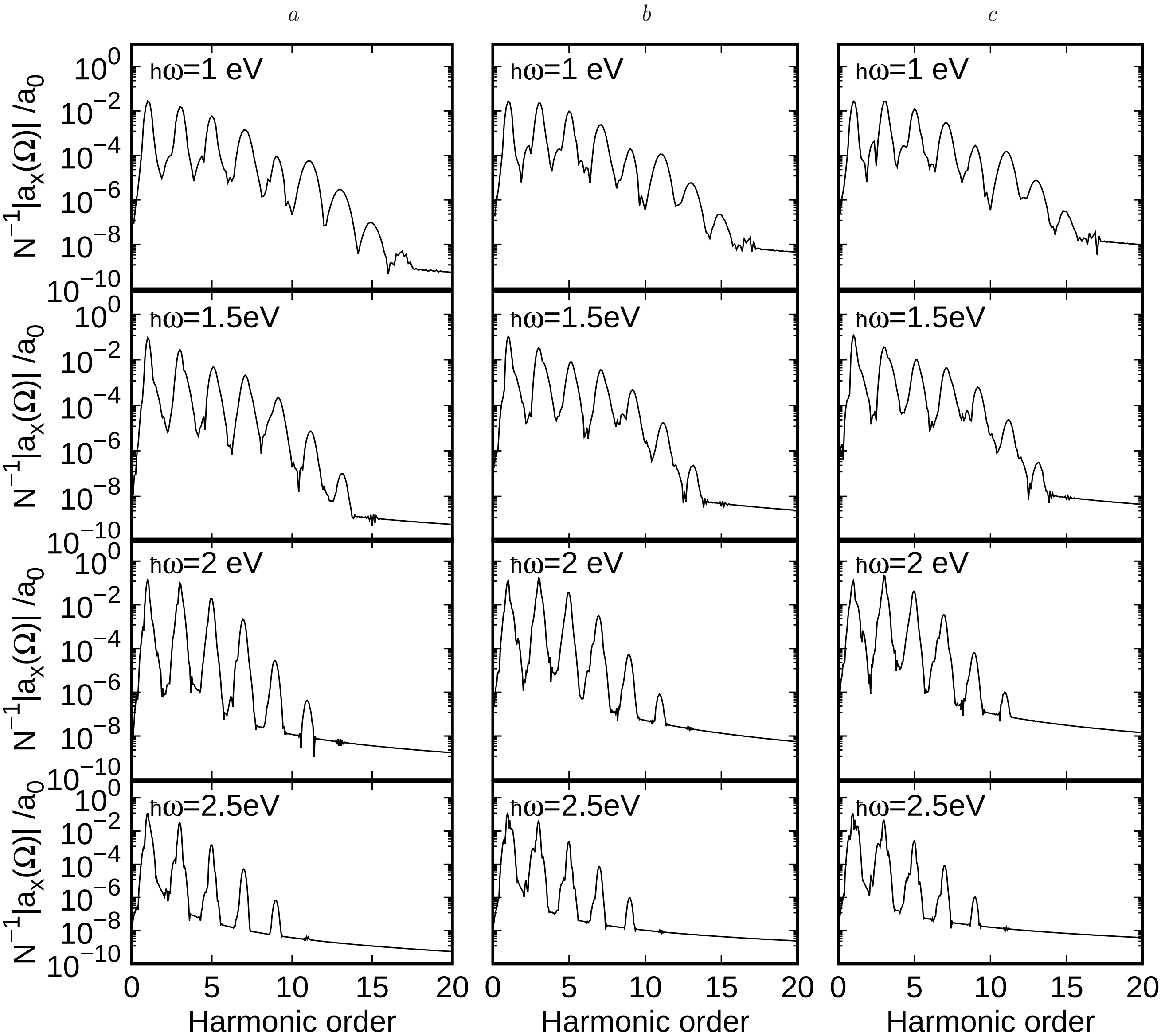

Рис. 6. Спектры ГВГ в режиме сильного поля через преобразование Фурье дипольного ускорения $N^{-1}|a_x(\Omega)|/a_0$ в логарифмическом масштабе в зависимости от номера гармоники для КТ с 24 атомами. Для каждого графика отмечена соответствующая частота волны. Время релаксации $\tau = 4$ фс (a), $\tau = 10$ фс (b), $\tau = 20$ фс (c). Напряженность линейно поляризованного волнового поля $E_0 = 0.4$ В/Å

димости КТ. Зависимости населенности уровней зоны проводимости от времени релаксации чувствительны к частоте волны накачки. Для взятой частоты волны 1.5 эВ$/\hbar$ (рис. 5) с увеличением времени релаксации населенность уровней зоны проводимости подавляется. При частоте волны, близкой к собственной ширине запрещенной зоне КТ, населенность энергетических уровней слабо зависит от времени релаксации [31]. Сравнивая рис. 3, 4 с рис. 5, можно заключить, что населенность зоны проводимости иллюстрирует высокую необратимую динамику электронов, когда населенность после взаимодействия с волной накачки сравнима с максимальной населенностью зоны проводимости во время действия волны накачки.

Спектры излучения в режиме сильного поля для КТ разных размеров представлены на рис. 6–8 для линейно поляризованной волны накачки с фиксированной напряженностью поля $E_0 = 0.4$ В/Å в области оптических частот. Из-за инверсионной симметрии КТ генерируются только нечетные гармоники. Дипольное излучение системы линейно поляризовано вдоль направления x, см. рис. 1. Как показано в работе [31], динамика электронов в поле оптической волны накачки сильно зависит от релаксационных процессов. Чтобы проиллюстрировать такую зави-

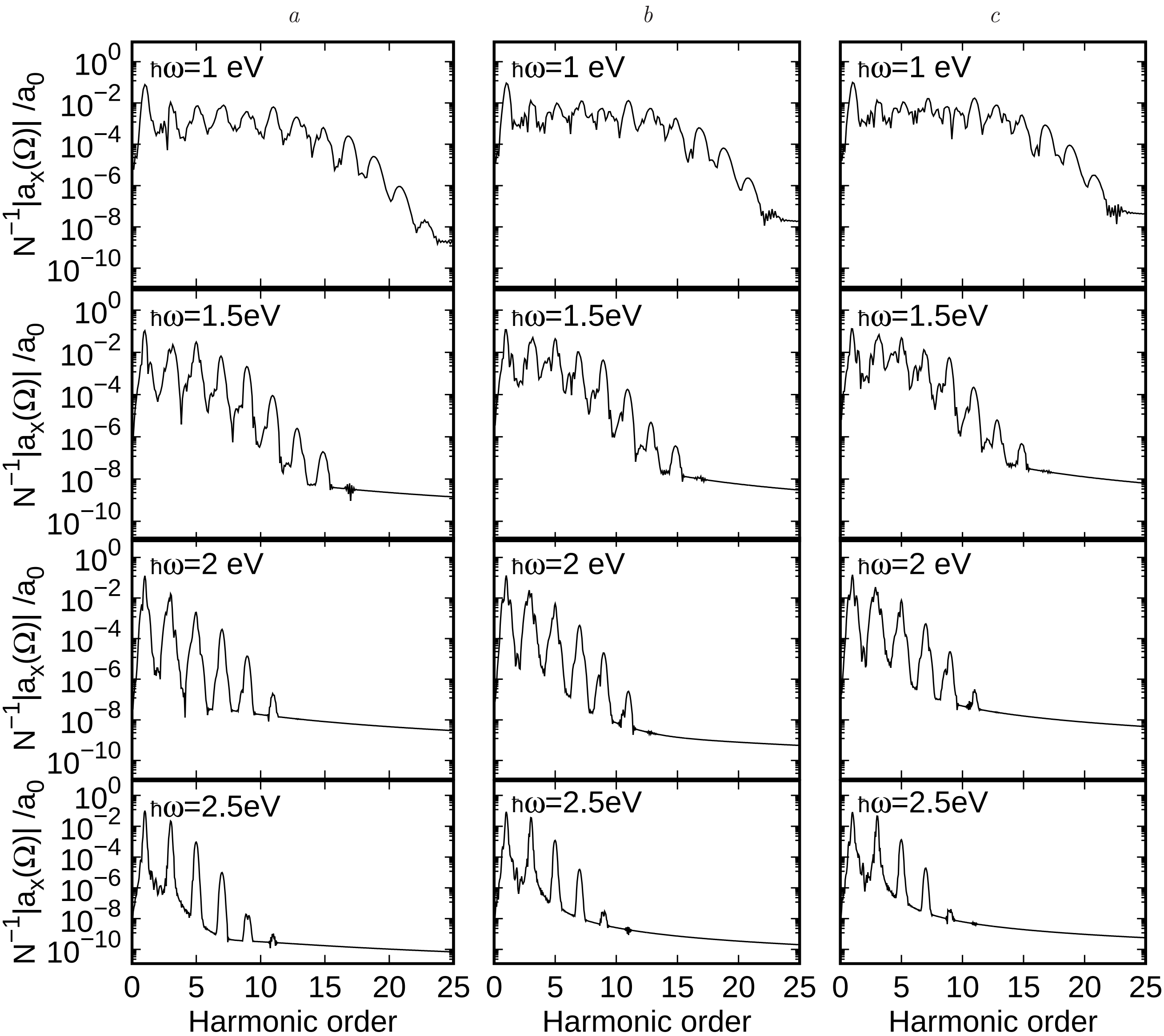

Рис. 7. То же, что и на рис. 6, но для КТ с 54 атомами

симость, мы показываем на рис. 6–8 спектры излучения ГВГ для четырех различных частот волны и трех различных значений времени релаксации. Вероятности релаксации составили $\hbar\gamma = 16.45$ мэВ для времени релаксации $\tau = 4$ фс, $\hbar\gamma = 6.58$ мэВ для $\tau = 10$ фс и $\hbar\gamma = 3.29$ эВ для $\tau = 20$ фс. Как видно на рис. 6–8, в некоторых случаях частота волны немного больше, чем собственная ширина запрещенной зоны КТ, в этом случае генерируются всего несколько высших гармоник. Например, рис. 7*b* показывает, что при времени релаксации 20 фс максимальное число гармоник, генерируемых при $\omega = 1$ эВ$/\hbar$, равно 23, а при частоте $\omega \simeq 2$ эВ$/\hbar$ равно 17.

Рисунки 6–8 показывают также, что частота гармоник уменьшается с увеличением времени релаксации. Это результат влияния релаксации на отсечку гармоник, что также связано с обратимостью электронной динамики, т. е. с увеличением времени релаксации электронная динамика становится более обратимой с меньшей населенностью высоковозбужденных уровней КТ [31]. При частоте волны $\omega = 1$ эВ$/\hbar$, как показано на рис. 6–8, номер гармоники отсечки $n_{cut} = 17$ для КТ с $N = 24$ атомами и $n_{cut} = 23$ для $N = 54$ и $N = 96$ атомов, что не может быть связано с переходом низшего занятого энергетического состояния в высшее незанятое (см. рис. 4). Максимальная разность энергий связана с возбуждениями собственных энергетических состояний между незанятыми энергетическими уровнями и занятыми уровнями и должна составлять $n_{cut}\hbar\omega \simeq 16$ эВ, см. рис. 3*c*. Тогда, как следует из рис. 6–8, номер отсечки спектра высших гармо-

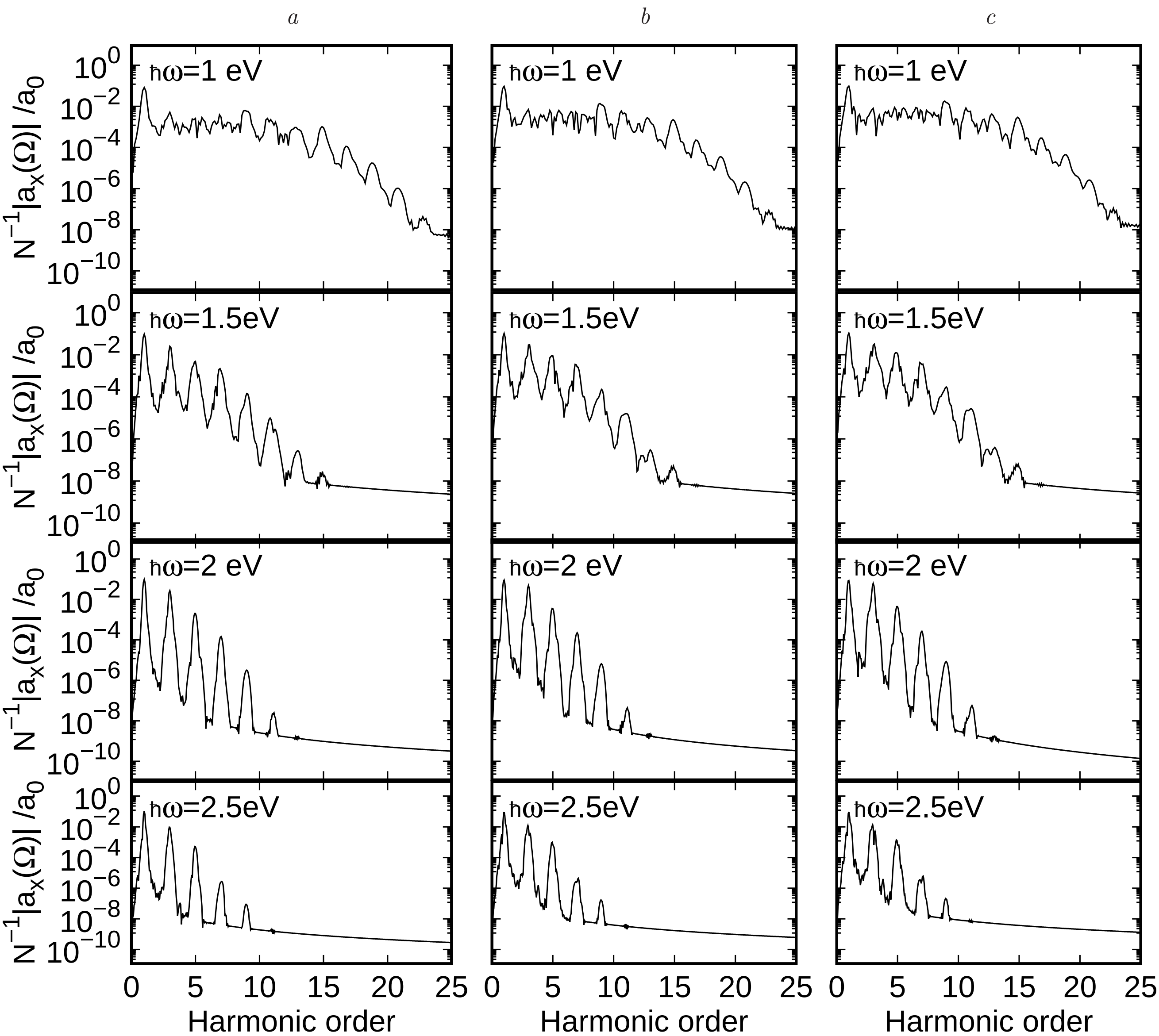

Рис. 8. То же, что и на рис. 6, но для КТ с 96 атомами

ник, излучаемых КТ, значительно больше. Изменение во времени населенностей уровней КТ, т. е. одевание состояний КТ за счет электронно-волновых взаимодействий, приводит к гармоникам с частотами больше чем 16 эВ/$\hbar$, как обсуждалось выше (см. также рис. 3–5).

Кроме того, мы рассмотрели спектры ГВГ в зависимости от поля волны накачки. На рис. 9 приведены спектры ГВГ в зависимости от напряженности поля и порядка гармоники для фиксированной оптической частоты $\omega = 1$ эВ/$\hbar$ в КТ с различным числом атомов углерода. Как показано на рис. 9, вероятность ГВГ увеличивается с ростом числа атомов N или с появлением новых энергетических состояний (см. также рис. 2). В пределах каждого плато гармоника отсечки линейно возрастает с увеличением напряженности волнового поля. Так, для времени релаксации $\tau = 4$ фс достигаются гармоники отсечки $n_{cut} = 17$ и $n_{cut} = 23$ для атомов $N = 24$ и $N = 54$ соответственно, что отвечает переходу низшего занятого энергетического состояния в высшее незанятое через квазистационарные состояния зависящей от времени волновой функции с относительными квазиэнергиями [37], а вероятность ГВГ достигает насыщения. Обратите внимание, что на рис. 6, 7, 9 выявляется линейная зависимость энергии отсечки ГВГ $n_{cut}\hbar\omega$ от напряженности поля волны, аналогичная ГВГ через дискретные уровни [37–39], либо в кристаллах с линейной дисперсией энергии [40–42].

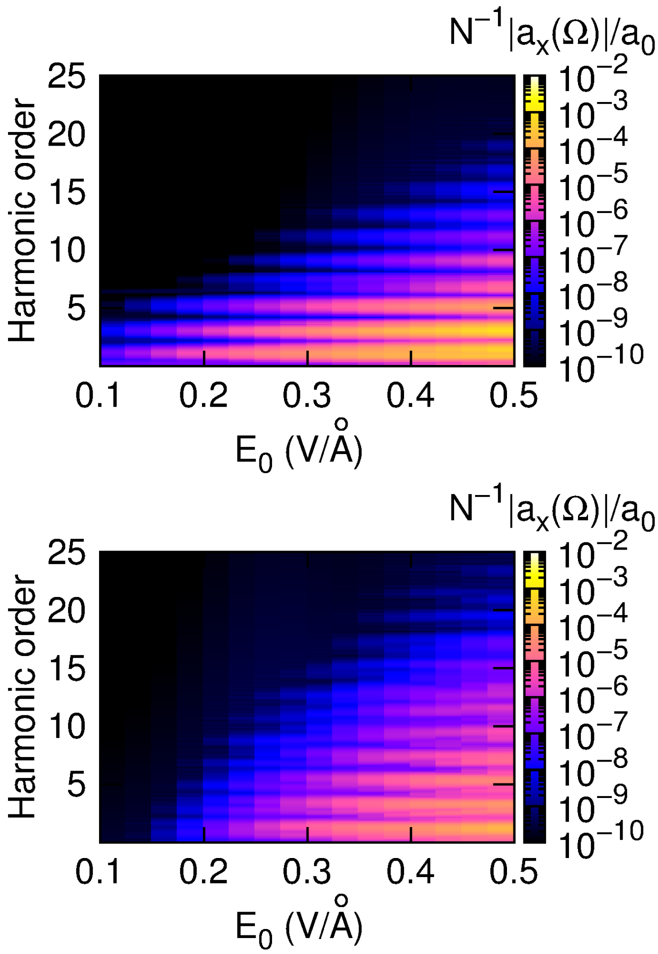

Рис. 9. (В цвете онлайн) Цветные полосы представляют уровень излучения ГВГ в режиме сильного поля в логарифмическом масштабе через преобразование Фурье дипольного ускорения $N^{-1}|a_x(\Omega)|/a_0$ (в условных ед.) в зависимости от номера гармоники и напряженности волнового поля E_0 при фиксированной частоте волны $\omega = 1$ эВ$/\hbar$ для КТ с $N = 24$ атомами и шириной запрещенной зоны 3 эВ (a) и $N = 54$ атомами и шириной запрещенной зоны 1.77 эВ (b). Время релаксации $\tau = 4$ фс

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Мы рассмотрели процессы многофотонного возбуждения и ГВГ в плоских гексагональных графеновых КТ с зигзагообразными ребрами. Для таких КТ применена микроскопическая квантовая теория, описывающая взаимодействие КТ с полем лазера в рамках модели сильной связи. Полученные результаты показывают нелинейное поведение спектров ГВГ со структурой множественных плато, если частота волны намного меньше типичного эмпирического параметра туннелирования между ближайшими атомами, $t_{ij}/\hbar$, и ширины собственной запрещенной зоны графеновой КТ. Последнее вызвано размерным квантованием и зависит от латерального размера точки. Энергия отсечки фотонов в процессе ГВГ в зависимости от напряженности поля волны почти линейная на малых частотах волны накачки, когда соответствующая энергетическая отсечка меньше диапазона энергий, в который входят низший и высший уровни энергии в КТ. Если этот диапазон энергий становится сравнимым с энергетической щелью КТ, что происходит при больших частотах волны, то отсечка в зависимости от напряженности волны накачки выходит на плато. При этом доминирующее плато смещается в сторону более высоких частот с увеличением числа атомов. Следовательно, при изменении латерального размера наноструктуры можно увеличить порядки гармоник в пределах основного плато. Кроме того, энергия отсечки фотонов также смещается в ультрафиолетовую область с увеличением латерального размера наноструктуры. Продемонстрированная модель позволит развить теорию аттосекундной спектроскопии высших гармоник для восстановления электронных свойств графеновых КТ.

Благодарности. Авторы глубоко признательны Г. К. Аветисяну и Г. Ф. Мкртчяну за постоянные обсуждения и ценные рекомендации.

Финансирование. Работа выполнена при поддержке Комитета науки Республики Армения в рамках Проекта 20TTWS-1C010.

ЛИТЕРАТУРА

1. D. von der Linde, T. Engers, G. Jenke, P. Agostini, G. Grillon, E. Nibbering, A. Mysyrowicz, and A. Antonetti, Phys. Rev. A **52**, R25(R) (1995).
2. P. A. Norreys, M. Zepf, S. Moustaizis, A. P. Fews, J. Zhang, P. Lee, M. Bakarezos, C. N. Danson, A. Dyson, P. Gibbon, P. Loukakos, D. Neely, F. N. Walsh, J. S. Wark, and A. E. Dangor, Phys. Rev. Lett. **76**, 1832 (1996).
3. S. Ghimire, A. D. DiChiara, E. Sistrunk, P. Agostini, L. F. DiMauro, and D. A. Reis, Nat. Phys. **7**, 138 (2011).
4. G. Vampa, T. J. Hammond, N. Thire, B. E. Schmidt, F. Legare, C. R. McDonald, T. Brabec, and P. B. Corkum, Nature **522**, 462 (2015).
5. H. K. Avetissian, *Relativistic Nonlinear Electrodynamics, Relativistic Nonlinear Electrodynamics: The QED Vacuum and Matter in Super-Strong Radiation Fields*, Springer, Berlin (2015).

6. G. Ndabashimiye, S. Ghimire, M. Wu, D. A. Browne, K. J. Schafer, M. B. Gaarde, and D. A. Reis, Nature, **534**, 520 (2016).

7. Y. L. Li, Y. S. You, S. Ghimire, T. F. Heinz, H. Z. Liu, and D. A. Reis, Nat. Phys. **13** 262 (2017).

8. Y. Yin, Y. Wu, A. Chew, X. Ren, F. Zhuang, S. Gholam-Mirzaei, M. Chini, Z. Chang, Y. S. You, and S. Ghimire, Nat. Commun. **8**, 724 (2017).

9. N. Klemke, N. Tancogne-Dejean, G. M. Rossi, Y. Yang, F. Scheiba, R. E. Mainz, G. Di Sciacca, A. Rubio, F. X. Kartner, and O. D. Mucke, Nat. Commun. **10**, 1319 (2019).

10. D. Golde, T. Meier, and S. W. Koch, Phys. Rev. B **77**, 075330 (2008).

11. N. Klemke, O. D. Mucke, A. Rubio, F. X. Kartner, and N. Tancogne-Dejean, Phys. Rev. B **102**, 104308 (2020).

12. I. Kilen, M. Kolesik, J. Hader, J. V. Moloney, U. Huttner, M. K. Hagen, and S. W. Koch, Phys. Rev. Lett. **125**, 083901 (2020).

13. J. L. Krause, K. J. Schafer, and K. C. Kulander, Phys. Rev. Lett. **68**, 3535 (1992).

14. R. C. Ashoori, Nature, **379**, 413 (1996).

15. T. Chakraborty, *Quantum Dots*, Elsevier, Amsterdam (1999).

16. D. Pan, J. Zhang, Z. Li, and M. Wu, Adv. Mater. **22**, 734 (2010).

17. S. Chung, R. A. Revia, and M. Zhang, Adv. Mater. **33**, 1904362 (2021).

18. H. Sun, L. Wu, W. Wei, and X. Qu, Mater. Today **16**, 433 (2013).

19. M. Bacon, S. J. Bradley, and T. Nann, Part. Part. Syst. Charact. **31**, 415 (2014).

20. K. K. Hansen, D. Bauer, and L. B. Madsen, Phys. Rev. A **97**, 043424 (2018).

21. R. Ganeev, L. Bom, J. Abdul-Hadi, M. Wong, J. Brichta, V. Bhardwaj, and T. Ozaki, Phys. Rev. Lett. **102**, 013903 (2009).

22. R. Ganeev, L. E. Bom, M. C. H. Wong, J. P. Brichta, V. Bhardwaj, P. Redkin, and T. Ozaki, Phys. Rev. A **80**, 043808 (2009).

23. R. A. Ganeev, J. Mod. Opt. **59**, 409 (2012).

24. G. P. Zhang, Phys. Rev. Lett. **95**, 047401 (2005).

25. G. P. Zhang and T. F. George, Phys. Rev. A **74**, 023811 (2006).

26. G. P. Zhang and T. F. George, J. Opt. Soc. Amer. B **24**, 1150 (2007).

27. L. Jia, Zh. Zhang, D. Z. Yang, Y. Liu, M. S. Si, G. P. Zhang, and Y. S. Liu, Phys. Rev. B **101**, 144304 (2020).

28. G. P. Zhang and Y. H. Bai, Phys. Rev. B **101**, 081412 (2020).

29. M. Lewenstein, P. Balcou, M. Y. Ivanov, A. L'Huillier, and P. B. Corkum, Phys. Rev. A **49**, 2117 (1994).

30. A. H. Castro Neto, F. Guinea, N. M. R. Peres, K. S. Novoselov, and A. K. Geim, Rev. Mod. Phys. **81**, 109 (2009).

31. S. Gnawali, R. Ghimire, K. R. Magar, S. J. Hossaini, and V. Apalkov, Phys. Rev. B **106**, 075149 (2022).

32. P. R. Wallace, Phys. Rev. **71**, 622 (1947).

33. A. D. Guclu, P. Potasz, M. Korkusinski, and P. Hawrylak, *Graphene Quantum Dots*, Springer, Berlin (2014).

34. H. Yoon, M. Park, J. Kim, T. G. Novak, S. Lee, and S. Jeon, Chem. Phys. Rev. **2**, 031303 (2021).

35. E. Goulielmakis and T. Brabec, Nat. Photon. **16**, 411 (2022).

36. A. H. C. Neto, F. Guinea, N. M. R. Peres, K. S. Novoselov, and A. K. Geim, Rev. Mod. Phys **81**, 109 (2009).

37. H. K. Avetissian, B. R. Avchyan, and G. F. Mkrtchian, J. Phys. B **45**, 025402 (2012).

38. H. K. Avetissian, A. G. Markossian, and G. F. Mkrtchian, Phys. Rev. A **84**, 013418 (2011).

39. H. K. Avetissian, A. G. Markossian, and G. F. Mkrtchian, Phys. Lett. A **375**, 3699 (2011).

40. G. Vampa, C. R. McDonald, G. Orlando, D. D. Klug, P. B. Corkum, and T. Brabec, Phys. Rev. Lett. **113**, 073901 (2014).

41. G. Vampa, C. R. McDonald, G. Orlando, P. B. Corkum, and T. Brabec, Phys. Rev. B **91**, 064302 (2015).

42. H. K. Avetissian, A. K. Avetissian, B. R. Avchyan, and G. F. Mkrtchian, Phys. Rev. B **100**, 035434 (2019).