



Известия Саратовского университета. Новая серия. Серия: Физика. 2025. Т. 25, вып. 2. С. 178–188

*Izvestiya of Saratov University. Physics*, 2025, vol. 25, iss. 2, pp. 178–188

<https://fizika.sgu.ru>

<https://doi.org/10.18500/1817-3020-2025-25-2-178-188>, EDN: POTQZM

Научная статья

УДК 004.942:538.958:538.975



## Моделирование отклика графена на действие импульсов дальнего ИК-диапазона

А. Д. Панферов<sup>✉</sup>, 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](mailto:panferovad@sgu.ru), <https://orcid.org/0000-0003-2332-0982>

Новиков Николай Андреевич, программист, [n\\_nik1997@mail.ru](mailto:n_nik1997@mail.ru), <https://orcid.org/0000-0003-2425-805X>

**Аннотация.** С использованием квантового кинетического уравнения для электронной подсистемы графена на основе модели сильной связи ближайших соседей исследованы особенности процесса генерации этим материалом высокочастотных гармоник в условиях воздействия мощных коротких импульсов дальнего ИК-диапазона. В рассматриваемых условиях внешнее электрическое поле формирует в зоне проводимости сильно анизотропное распределение с заселением состояний с высокими значениями энергии далеко от точек Дирака. Возникающий при этом ток проводимости содержит ряд нечетных гармоник, наблюдаемых в спектре индуцированного излучения. Поляризационный ток межзонных переходов не играет существенной роли. Выполнено сравнение с результатами экспериментов по наблюдению высокочастотных гармоник в рассматриваемом диапазоне. Показано, что для обеспечения количественного согласия результатов моделирования с экспериментом необходим корректный учет процесса релаксации неравновесной заселенности. Полученная оценка соответствующего времени релаксации, выступающего в качестве одного из параметров модели, согласуется с имеющимися данными. Такие параметры модели как температура материала и время декогерентности слабо влияют на наблюдаемые характеристики процесса.

**Ключевые слова:** графен, квантовое кинетическое уравнение, модель сильной связи ближайших соседей, генерация высокочастотных гармоник

**Благодарности:** Исследование выполнено при финансовой поддержке Российского научного фонда (проект № 23-21-00047, <https://rscf.ru/project/23-21-00047/>).

**Для цитирования:** Панферов А. Д., Новиков Н. А. Моделирование отклика графена на действие импульсов дальнего ИК-диапазона // Известия Саратовского университета. Новая серия. Серия: Физика. 2025. Т. 25, вып. 2. С. 178–188. <https://doi.org/10.18500/1817-3020-2025-25-2-178-188>, EDN: POTQZM

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

Article

### Simulation the response of graphene to far-infrared pulses

А. Д. Panferov<sup>✉</sup>, Н. А. Novikov

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

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

Nikolay A. Novikov, [n\\_nik1997@mail.ru](mailto:n_nik1997@mail.ru), <https://orcid.org/0000-0003-2425-805X>

**Abstract. Background and Objectives:** The emergence of sources of ultrashort high-intensity laser pulses has made it possible to subject various materials to a strong electric field without the risk of irreversible damage. Nonlinear effects observed under these conditions, such as the generation of high-frequency harmonics, have great potential for practical application. Graphene is considered one of the most promising materials due to the specificity of its band structure. The aim of the work is to demonstrate the applicability of the model based on the quantum kinetic equation in describing the results of the action of an external electric field with frequencies close to the lower limit of the IR range on the electronic subsystem of a material. Comparison of the model behavior at different values of temperature, relaxation time of nonequilibrium population and decoherence time with experimental data will allow us to estimate possible values of these parameters. **Materials and Method:** The work uses a quantum kinetic equation for the charge carrier distribution function in the state space. It allows one to reproduce the behavior of the electron subsystem of the material in an external classical electric field with an arbitrary time dependence. The spectrum of single-electron states is determined using the tight-binding approximation of nearest neighbors. The model parameters are the sample temperature, which determines the initial equilibrium distribution, the relaxation time of the nonequilibrium population of excited states, and the decoherence time.



The implemented efficient computational procedure allows one to reproduce the characteristics of radiation induced by the action of an external field and analyze its spectral composition. The subject of comparison was the published results of experiments on the generation of high-frequency harmonics by far-infrared pulses at the TELBE facility. **Results:** The results presented in the work confirm the applicability of the used model for the frequency range near the lower boundary of the IR. It has been shown that under such conditions the external electric field forms a strongly anisotropic distribution in the conduction band with the population of states with high, up to several eV, energy values. In this case, the initial population of the conduction band, determined by the temperature of the sample at zero chemical potential, is much smaller than that created by the external field and does not significantly affect the observed results of the external field action. On the contrary, the relaxation time of the nonequilibrium population turns out to be the most important parameter determining the achieved values of the carrier density and conduction current. This is due to the fact that its value is small compared to the duration of the half-period of the external field. The estimate of this parameter made on the basis of the comparison with the experimental data is in good agreement with the expected values. Due to the insignificant role of the polarization current reflecting the dynamics of interband transitions, a comparison of the model behavior with the available experimental data does not provide criteria for estimating the decoherence time. **Conclusion:** The results of the work have shown the promise of new tools for modeling, studying, and qualitatively and quantitatively reproducing the characteristics of nonlinear effects under the action of an external electric field on graphene with frequencies close to the lower limit of the IR range. It has been shown that the distinguished role of the conduction current in this frequency range allows one to obtain an independent estimate of the relaxation time of the nonequilibrium population of excited states by comparing the behavior of the model with the experimental results.

**Keywords:** graphene, quantum kinetic equation, tight-binding model, high frequency harmonic generation

**Acknowledgments:** The study was supported by the Russian Science Foundation (project No. 23-21-00047, <https://rscf.ru/project/23-21-00047/>).

**For citation:** Panferov A. D., Novikov N. A. Simulation the response of graphene to far-infrared pulses. *Izvestiya of Saratov University. Physics*, 2025, vol. 25, iss. 2, pp. 178–188 (in Russian). <https://doi.org/10.18500/1817-3020-2025-25-2-178-188>, EDN: POTQZM

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

## Введение

Появление источников сверхкоротких лазерных импульсов высокой интенсивности обеспечило возможность подвергать различные материалы действию сильного электрического поля без риска их необратимого повреждения. Наблюдаемые в этих условиях нелинейные эффекты имеют большие перспективы практического применения [1, 2]. Например, генерация высокочастотных гармоник, источником которых являются токи, создаваемые внутризонными и межзонными переходами [3, 4].

Особенности зонной структуры графена определяют его перспективность в качестве среды для исследования и реализации нелинейных эффектов, управления электронами полем электромагнитной волны [5]. Для воспроизведения нестационарной квантовой динамики электронной подсистемы этого материала в условиях действия внешних электрических полей разработан метод на основе квантового кинетического уравнения [6–8]. Его реализация с использованием приближения безмассовых фермионов обеспечивает хорошие результаты в низкоэнергетической области [9]. При рассмотрении процессов в сильных электрических полях необходим переход к строгому учету реального закона дисперсии с использованием модели сильной связи ближайших соседей (tight-binding model – ТВМ) [10]. Адаптация метода и разработка высокопроизводительной программной реализации вычислительной процедуры [11–13]

для ТВМ позволили выполнять моделирование и анализировать детали процессов, в которых принимают участие далекие от точек Дирака состояния с высокими значениями энергии возбуждения.

Для верификации метода и определения релаксационных параметров квантового кинетического уравнения необходимо сопоставление его результатов с экспериментальными данными. В качестве материала для сравнения можно использовать ряд работ [14–18], в которых исследовались процессы генерации графеном высокочастотных гармоник. В первой из них представлены результаты, полученные в среднем инфракрасном диапазоне при энергии фотонов 0.26 эВ. Они уже использовались для сравнительного тестирования версии квантового кинетического уравнения, реализованной в приближении безмассовых дираковских фермионов [9]. В работах [15, 16] энергия фотонов импульсов накачки составляет близкие 0.28 эВ. Работы [17, 18] выделяются использованием частот из нижней части инфракрасного спектра с диапазоном энергии фотонов  $1.24 \cdot 10^{-3}$ – $2.81 \cdot 10^{-3}$  эВ. Демонстрация результативности метода в этом диапазоне представляется важной для доказательства его универсальности и полноты учитываемых физических процессов.

Используемое исходное кинетическое уравнение выводилось для недиссилиативной квантовой системы в пренебрежении релаксационными процессами. Это позволило точно воспроизво-

дить быстрые процессы на характерных временах, малых или сопоставимых с временем релаксации квантовых состояний рассматриваемой конденсированной среды. При использовании в качестве внешнего возбуждающего воздействия низкочастотных полей дальнего инфракрасного диапазона темп релаксационных процессов на один-два порядка превышает скорость изменения внешнего поля. В этих условиях корректный учет диссипации будет критически важен для получения правильных результатов.

Другой проблемой в этом диапазоне может быть то обстоятельство, что низкочастотные поля уже при напряженности 10–100 кВ/см могут генерировать в материале электроны и дырки с высокими энергиями. Метод должен иметь возможность корректно учитывать вклады таких состояний.

Представленные результаты показывают, что квантовое кинетическое уравнение для графена в версии ТВМ с использованием параметров релаксационных процессов, находящихся в хорошем согласии с имеющимися оценками [19, 20], позволяет воспроизводить результаты экспериментов по генерации в этом материале высокочастотных гармоник мощными короткими импульсами дальнего инфракрасного диапазона.

## 1. Квантовое кинетическое уравнение для графена

Отклик электронов конденсированных сред на действие переменного внешнего электрического поля формируется их коллективной динамикой в нестационарных условиях, определяемой законами квантовой механики. Сложность задачи требует использования ряда упрощающих предположений и обобщений. Стандартным подходом является переход в квазичастичное представление, в котором носители заряда рассматриваются как не взаимодействующие (или слабо взаимодействующие) частицы со специфической зависимостью энергии от импульса – законом дисперсии. В тех случаях, когда рассматриваемые процессы определяются поведением состояний в верхней валентной зоне и в нижней зоне проводимости, сложная зонная структура реальных материалов может быть упрощена до двух уровней, стационарная заселенность которых будет определять равновесное состояние системы, а переходы между ними – динамику в неравновесных условиях.

В рамках такого подхода с использованием строгого описания верхнего уровня валентной зоны и нижнего уровня зоны проводимости

в рамках модели сильно взаимодействующих ближайших соседей атомной решетки графена [10] было получено непертурбативное квантовое кинетическое уравнение [11], определяющее нестационарную эволюцию функции распределения электронов по энергетическим состояниям  $f(\bar{p}, t)$  в недиссипативном режиме. Оно является прямым следствием уравнения Шредингера и может быть представлено в форме замкнутой системы обыкновенных дифференциальных уравнений для самой  $f(\bar{p}, t)$  и вспомогательных функций  $u(\bar{p}, t)$ ,  $v(\bar{p}, t)$ , отражающих динамику процессов рождения и уничтожения пар электронов и дырок в выбранной точке  $\bar{p}$  двумерного импульсного пространства. Учет диссипативных процессов можно обеспечить релаксационными членами в правых частях уравнений с характерным временем релаксации неравновесной заселенности  $\tau_1$  и временем декогерентности  $\tau_2$  [12]:

$$\begin{aligned} \dot{f}(\bar{p}, t) &= -\frac{(f(\bar{p}, t) - f_{in}(\bar{p}))}{\tau_1} + \frac{\lambda(\bar{p}, t)}{2} u(\bar{p}, t), \\ \dot{u}(\bar{p}, t) &= -\frac{(u(\bar{p}, t) - u_{in}(\bar{p}))}{\tau_2} + \\ &+ \lambda(\bar{p}, t) (1 - 2f(\bar{p}, t)) - \frac{2\varepsilon(\bar{p}, t)}{\hbar} v(\bar{p}, t), \\ \dot{v}(\bar{p}, t) &= -\frac{(v(\bar{p}, t) - v_{in}(\bar{p}))}{\tau_2} + \frac{2\varepsilon(\bar{p}, t)}{\hbar} u(\bar{p}, t). \end{aligned} \quad (1)$$

Здесь  $\hbar$  – приведенная постоянная Планка. Коэффициент  $\lambda(\bar{p}, t)$  можно интерпретировать как скорость изменения вероятности заселения уровня (равную нулю в стационарных условиях). Коэффициент  $\varepsilon(\bar{p}, t)$  в стационарных условиях тоже не зависит от времени и выражает энергию состояния через его импульс (закон дисперсии). Их явный вид определяется выбором гамильтониана системы. Предполагается, что систему всегда можно подготовить в начальном стационарном состоянии  $f_{in}(\bar{p})$ ,  $v_{in}(\bar{p})$ ,  $u_{in}(\bar{p})$ . В рассматриваемой задаче причиной перехода к нестационарной эволюции является появление пространственно однородного внешнего электрического поля. Определение его как  $\bar{E}(t) = -\bar{A}(t)$ , где  $\bar{A}(t)$  – векторный потенциал в гамильтоновой калибровке, позволяет ввести зависимость от времени коэффициентов  $\lambda(\bar{p}, t)$  и  $\varepsilon(\bar{p}, t)$  заменой  $\bar{p} \rightarrow \bar{P} = \bar{p} - e\bar{A}(t)$ , где  $e$  – заряд электрона. Для модели ТВМ в системе координат с началом на равном расстоянии между ближайшими не эквивалентными точками Дирака выражения для этих коэффициентов имеют вид [11]:



$$\lambda_{TBM}(\bar{p}, t) = -\frac{4e\hbar V_F^2}{9a\varepsilon_{TBM}^2(\bar{p}, t)} \times \left( E_1(t) \sqrt{3} \left( \cos\left(\frac{\sqrt{3}aP_1}{2\hbar}\right) \cos\left(\frac{aP_2}{2\hbar}\right) + \cos\left(\frac{aP_2}{\hbar}\right) \right) + E_2(t) 3 \sin\left(\frac{\sqrt{3}aP_1}{2\hbar}\right) \sin\left(\frac{aP_2}{2\hbar}\right) \right), \quad (2)$$

$$\varepsilon_{TBM}(\bar{p}, t) = \frac{2\hbar V_F}{\sqrt{3}a} \sqrt{3 - 4 \cos\left(\frac{\sqrt{3}aP_1}{2\hbar}\right) \cos\left(\frac{aP_2}{2\hbar}\right) + 2 \cos(aP_2/\hbar)}. \quad (3)$$

Использованы обозначения:  $V_F$  – скорость Ферми,  $a$  – постоянная кристаллической решетки. Задача двумерна, индексы компонент векторных величин в правой части имеют только два значения  $i = 1, 2$ .

Определение правой части системы уравнений (1) и задание начальных условий обеспечивает возможность исследовать поведение каждого состояния  $\bar{p}$  в однородном в плоскости образца произвольно зависящем от времени внешнем поле.

## 2. Генерация индуцированного излучения

Представленная система уравнений (1) может рассматриваться как модель графена во внешнем электрическом поле в широком диапазоне его параметров. Её поведение должно воспроизводить и сложные динамические режимы. Например, экспериментально наблюдаемый [14–18] эффект генерации гармоник с частотами, лежащими выше частоты внешнего возмущающего воздействия. Источником такого индуцированного излучения является поверхностный ток, появляющийся в неравновесных условиях действия внешнего поля. С учетом условия пространственной однородности моделируемого процесса связь между плотностью поверхности тока и напряженностью поля индуцированного излучения можно оценить по выражению для поля, генерируемого током

с однородной плотностью в бесконечной пластине [21]:

$$\bar{E}(t, z) = -\frac{\mu_0 c}{2} \bar{j} \left( t - \frac{z}{c} \right), \quad (4)$$

где  $z$  – расстояние от пластины,  $c$  – скорость света,  $\mu_0$  – магнитная постоянная. Поскольку поверхностная плотность тока  $\bar{j}$  локализована в плоскости образца, коллинеарное ему поле будет также определяться в используемой системе координат двумя компонентами. Связь (4) будет точной в ближней зоне на расстояниях от поверхности образца, много меньших длины волны возбуждающего излучения. В дальней зоне, на расстояниях больших длины волны возбуждающего излучения, соотношение (4) выполняется при формировании индуцированным излучением плоского фронта. Для обеспечения возможности сопоставления с теоретическими моделями результаты рассматриваемых экспериментов приводятся для условий, при которых обеспечивается справедливость соотношения (4).

Система уравнений (1) позволяет найти значения  $f(\bar{p}, t)$ ,  $u(\bar{p}, t)$ ,  $v(\bar{p}, t)$  для любого состояния  $\bar{p}$ , реализуемого в обратном пространстве при заданной геометрии двумерной кристаллической решетки, в любой момент времени  $t$ . Располагая ими, компоненты поверхностной плотности тока в используемой системе координат можно вычислить через следующие выражения [11]:

$$j_1(t) = e \frac{4V_F^2 \hbar}{3a} \int \frac{d^2 p}{(2\pi\hbar)^2} \left[ 2\sqrt{3} \left( 1 + 2 \cos\left(\frac{aP_1}{\sqrt{3}\hbar}\right) \right) \sin\left(\frac{aP_1}{2\sqrt{3}\hbar}\right) \cos\left(\frac{aP_2}{2\hbar}\right) \frac{f(\bar{p}, t)}{\varepsilon_{TBM}(\bar{p}, t)} - \frac{1}{\sqrt{3}} \left( \cos\left(\frac{\sqrt{3}aP_1}{2\hbar}\right) \cos\left(\frac{aP_2}{2\hbar}\right) + \cos\left(\frac{aP_2}{\hbar}\right) \right) \frac{u(\bar{p}, t)}{\varepsilon_{TBM}(\bar{p}, t)} \right], \quad (5)$$

$$j_2(t) = e \frac{4V_F^2 \hbar}{3a} \int \frac{d^2 p}{(2\pi\hbar)^2} \left[ 2 \left( \cos\left(\frac{\sqrt{3}aP_1}{2\hbar}\right) \sin\left(\frac{aP_2}{2\hbar}\right) - \sin\left(\frac{aP_2}{\hbar}\right) \right) \frac{f(\bar{p}, t)}{\varepsilon_{TBM}(\bar{p}, t)} - \left( 1 + 2 \cos\left(\frac{aP_1}{\sqrt{3}\hbar}\right) \right) \sin\left(\frac{aP_1}{2\sqrt{3}\hbar}\right) \sin\left(\frac{aP_2}{2\hbar}\right) \frac{u(\bar{p}, t)}{\varepsilon_{TBM}(\bar{p}, t)} \right], \quad (6)$$



где интегрирование выполняется по всей зоне Бриллюэна. Токи формируются двумя вкладами, первый из которых определяется заселенностью зоны проводимости  $f(\bar{p}, t)$  (ток проводимости), а второй балансом процессов рождения и уничтожения пар  $u(\bar{p}, t)$ , определяющим поляризацию среды (поляризационный ток).

$$j_1(t) = j_1^{cond}(t) + j_1^{pol}(t), \quad (7)$$

$$j_2(t) = j_2^{cond}(t) + j_2^{pol}(t). \quad (8)$$

Зная  $j_1(t)$  и  $j_2(t)$ , можно определить и характеристики индуцированного излучения.

Решение системы уравнений вида (1) с коэффициентами (2) и (3) возможно только численными методами и выполняется для каждого выбранного значения  $\bar{p}$  независимо. В свою очередь, вычисление интегралов (5) и (6) требует полной информации о функциях  $f(\bar{p}, t)$  и  $u(\bar{p}, t)$  во всей зоне Бриллюэна в течение всего времени действия внешнего поля. Это приводит к сложной вычислительной задаче, потребовавшей специализированных программных решений и мощных вычислительных систем [13]. Разработка соответствующих инструментов предоставила возможность моделировать сложные процессы с реалистичными наборами параметров материала и возмущающего воздействия.

### 3. Параметры внешнего поля

В качестве материала для сравнения были использованы результаты работы [17]. Эксперименты выполнялись в широком диапазоне напряженностей поля накачки от 12 до 85 кВ/см с плоско поляризованными импульсами, генерируемыми сверхпроводящим радиочастотным излучателем на основе ондулятора. Генерируемые импульсы на уровне половины максимума имеют ширину примерно 20% от основной частоты. Подробные результаты представлены для импульсов с центральной частотой  $v_0 = 3.0 \cdot 10^{11}$  Гц (соответствующей энергии  $1.24 \cdot 10^{-3}$  эВ) и напряженности поля 85 кВ/см. Для приведенных

параметров при комнатной температуре наблюдались гармоники  $3v_0$ ,  $5v_0$ ,  $7v_0$  с амплитудными значениями поля  $\sim 430$  В/см,  $\sim 35$  В/см,  $\sim 7$  В/см соответственно.

Было принято решение исследовать работоспособность и особенности поведения модели при этих параметрах. В силу того, что источник излучения не монохроматичен, строго воспроизвести в аналитической форме использовавшееся в экспериментах внешнее поле затруднительно, поэтому для моделирования оно было определено в следующем виде:

$$A_{ext}(t) = A_1(t) = -\frac{E_{10}}{2\pi v_0} e^{-\frac{t^2}{2\tau^2}} \sin(2\pi v_0 t), \quad (9)$$
$$A_2(t) = 0,$$

$$E_{ext}(t) = E_1(t) =$$
$$= E_{10} e^{-\frac{t^2}{2\tau^2}} \left( \cos(2\pi v_0 t) - \frac{t}{2\pi v_0 \tau^2} \sin(2\pi v_0 t) \right),$$
$$E_2(t) = 0. \quad (10)$$

В серии численных экспериментов использованы значения  $E_{10} = 8.5 \cdot 10^4$  В/см,  $v_0 = 3.0 \times 10^{11}$  Гц и длительность импульса  $\tau$ , определенная условием  $2\pi v_0 \tau = 12$ .

Начальное состояние образца определялось распределением Ферми-Дирака при комнатной температуре 20 °C. В первой серии экспериментов использовались значения времени релаксации неравновесной заселенности  $\tau_1 = 100$  фс и времени декогерентности  $\tau_2 = 10$  фс [19, 20].

### 4. Результаты и их обсуждение

Малая энергия фотонов и большая продолжительность действия внешнего поля без изменения его направления в течение каждого периода приводят к очень большой анизотропии формирующегося неравновесного распределения носителей. На рис. 1 для точки Дирака с координатами  $p_1 = 0.0$ ,  $p_2 = 2\pi/3$  ( $p_1$  и  $p_2$  приведены в единицах  $\hbar/a$ ) показана область,

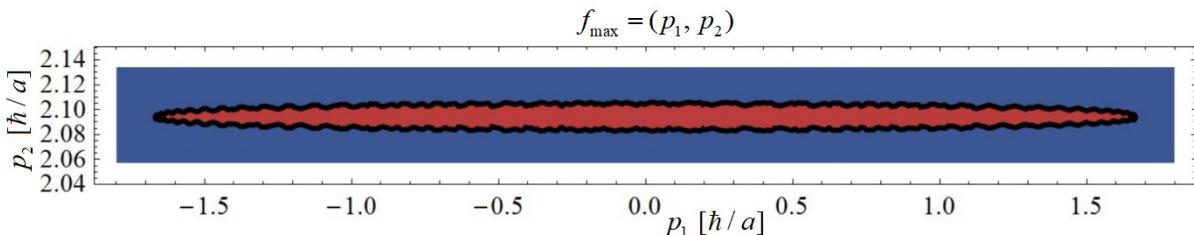


Рис. 1. Область, в которой максимальные значения функции распределения больше или равны 0.5 (цвет онлайн)

Fig. 1. Region in which the maximum values of the distribution function are greater than or equal to 0.5 (color online)



в которой за время действия внешнего поля с указанными выше параметрами функция распределения достигает значения 0.5 или выше. Энергии попадающих в выделенную область возбуждаемых состояний достигают 4 эВ.

Вклады тока проводимости и поляризационного тока в наблюдаемую поверхностную плотность тока показаны на рис. 2.

Из представленных результатов моделирования следует, что в рассматриваемых условиях ток проводимости полностью доминирует и фактически определяет наблюдаемый. В момент максимума внешнего поля при  $t = 0.0$  имеем  $j^{cond}(t)/j^{pol}(t) = 30.47$ , направления токов совпадают. Это подтверждает обоснованность использования в [17] концентрации носителей в зоне проводимости для оценки отклика образца. И у тока проводимости, и у поляризационного тока, наблюдается периодическая знакопеременная зависимость от времени, повторяющая зависимость от времени внешнего поля.

Для оценки спектрального состава поверхностного тока вычислялась зависимость от частоты квадрата модуля его преобразования Фурье (спектр мощности, далее используем для его обозначения  $S(v)$ ). Поскольку предметом анализа являются ряды дискретных значений конечного размера, использовался периодограммный метод с оконной функцией Ханна и усреднением результатов по последовательности перекрывающихся выборок (метод Уэлча) в реализации из пакета Wolfram Mathematica. Полученные значения спектра мощности приведены к логарифмическому масштабу преобразованием  $S(v) \rightarrow 10 \cdot \text{Lg}(S(v))$  с сохранением обозначения  $S(v)$  и выражены в условных единицах.

Полученные результаты приведены на рис. 3. Выраженные нечетные гармоники соответствуют наблюдавшимся в эксперименте. Верхняя граница  $8v_0$  для представленных результатов выбрана в соответствии с диапазоном имеющихся экспериментальных данных [17].

На рис. 4 показано влияние температуры образца на плотность носителей  $\rho(t)$ , формирующих ток проводимости. Зависимость концентрации носителей от времен показано на фоне текущих абсолютных значений напряженности внешнего поля, приведенных в условных единицах. Вычисляемые начальные значения концентрации носителей для температур  $-263^{\circ}\text{C}$ ,  $20^{\circ}\text{C}$  и  $320^{\circ}\text{C}$  составляют  $\sim 1.3 \cdot 10^8$ ,  $\sim 1.5 \cdot 10^{11}$ ,  $\sim 4.9 \cdot 10^{11} \text{ 1/cm}^2$  соответственно, что согласуется с теорией [22]. В момент максимума внешнего поля в недиссипативном режиме концентрация достигает  $\sim 1.9 \cdot 10^{13} \text{ 1/cm}^2$  с ростом к завершению импульса поля до  $\sim 2.3 \cdot 10^{13} \text{ 1/cm}^2$ . Результаты не зависят от температуры образца. Учет диссипации приводит к кратному уменьшению максимума до  $\sim 3.0 \cdot 10^{12} \text{ 1/cm}^2$ . Поскольку время релаксации много меньше периода поля (в 33.3 раза для  $\tau_1 = 100 \text{ фс}$ ), за время каждого полупериода неравновесная заселенность успевает вернуться к значению, близкому начальному равновесному, и вновь вырасти до максимально наблюдаемой. Окончательный возврат к равновесному значению происходит в процессе выключения поля. Интересно отметить, что в [17] полученные результаты интерпретируются с использованием термодинамической модели [23], определяющей нелинейность проводимости образца как результат периодического разогрева внешним полем постоянного количе-

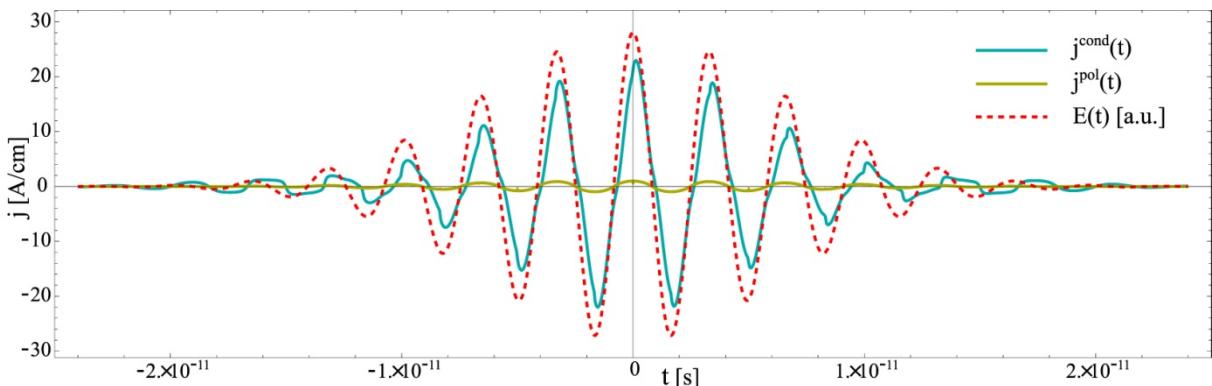
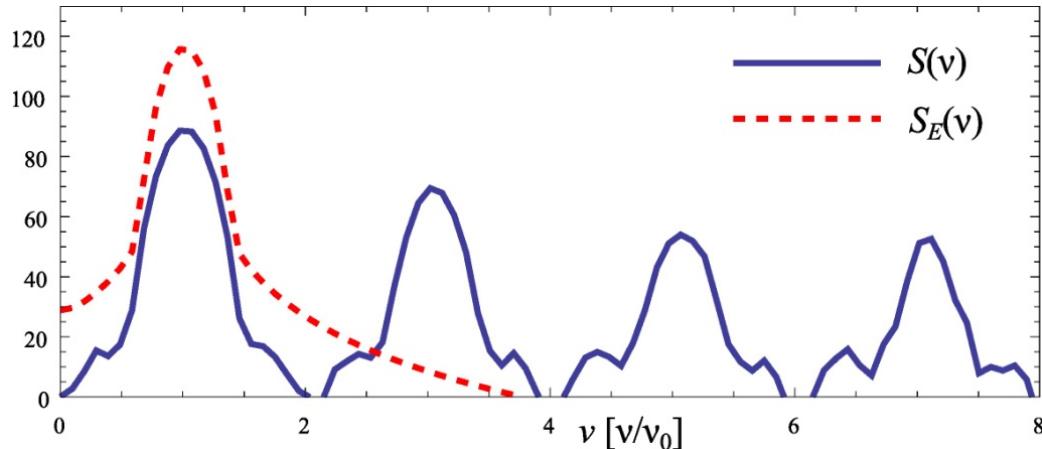
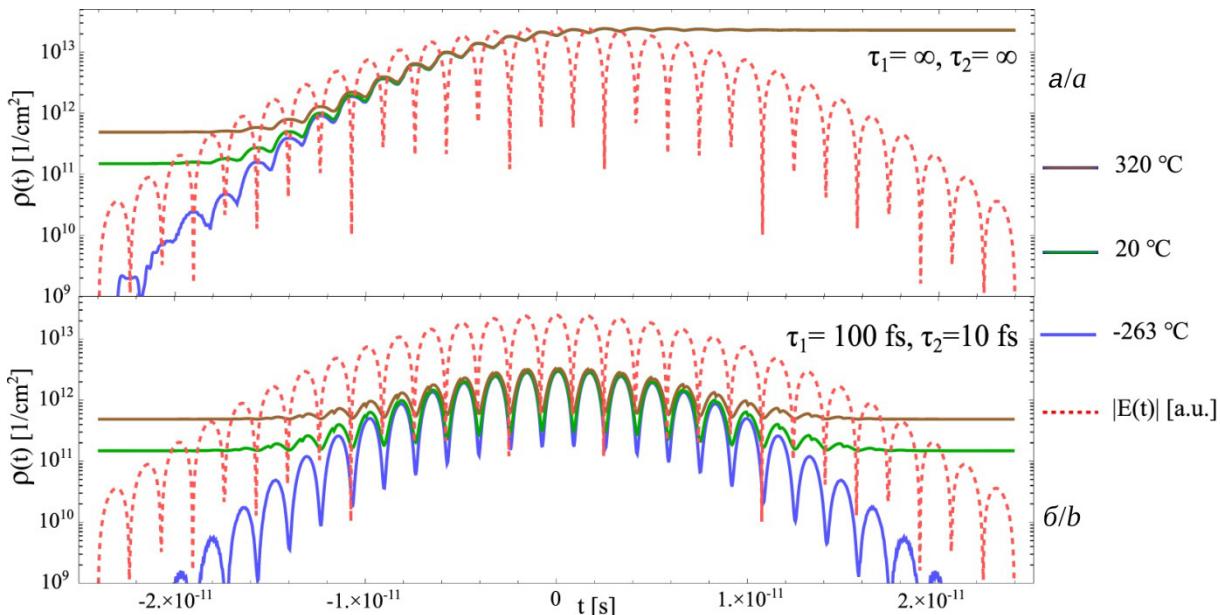


Рис. 2. Поверхностная плотность тока проводимости  $j^{cond}(t)$  и поляризационного тока  $j^{pol}(t)$  на фоне напряженности внешнего электрического поля  $E(t)$  (напряженность поля приведена в условных единицах) (цвет онлайн)

Fig. 2. Surface density of the conduction current  $j^{cond}(t)$  and the polarization current  $j^{pol}(t)$  against the background of external electric field strength  $E(t)$  (the field strength is given in arbitrary units) (color online)

Рис. 3. Спектр поверхностной плотности тока  $S(v)$  и поля импульса (10)  $S_E(v)$  (цвет онлайн)Fig. 3. Spectrum of the surface current density  $S(v)$  and the momentum field (10)  $S_E(v)$  (color online)Рис. 4. Зависимость плотности носителей  $\rho(t)$  от времени при разных температурах в недиссипативном режиме  $\tau_1 = \tau_2 = \infty$  (а) и при релаксационных параметрах  $\tau_1 = 100$  фс и  $\tau_2 = 10$  фс (б) (цвет онлайн)Fig. 4. Dependence of the carrier density  $\rho(t)$  on time at different temperatures in the non-dissipative regime  $\tau_1 = \tau_2 = \infty$  (a) and with relaxation parameters  $\tau_1 = 100$  fs and  $\tau_2 = 10$  fs (b) (color online)

ства имеющихся носителей, оцениваемого как  $\sim 2.1 \cdot 10^{12}$  1/см<sup>2</sup>.

На рис. 5 приведены результаты моделирования 3-й гармоники индуцированного излучения в зависимости от выбранного времени релаксации неравновесной заселенности зоны проводимости. На верхней панели для недиссипативного режима, на нижней для параметров релаксации неравновесной заселенности  $\tau_1 = 200$ , 100 и 47 фс при  $\tau_2 = 10$  фс. Для получения этих результатов по итогам вычисления ряда значений плотности тока (7) с использованием (4) определялось полное индуцированное электрическое поле и оно

подвергалось обработке числовым полосовым фильтром шириной  $2v_0$  с центром в  $3v_0$ .

Результаты недиссипативной версии почти на порядок превосходят значения, фактически наблюдавшиеся в эксперименте [17]. Три варианта режима релаксации демонстрируют сильную зависимость предсказаний используемой модели от времени релаксации неравновесной заселенности состояний. Наиболее близок наблюдавшимся значением результат при  $\tau_1 = 100$  фс. Это подтверждает справедливость оценок [19, 20].

Аналогичные оценки для гармоник  $5v_0$  и  $7v_0$  превосходят по амплитуде результаты экспери-

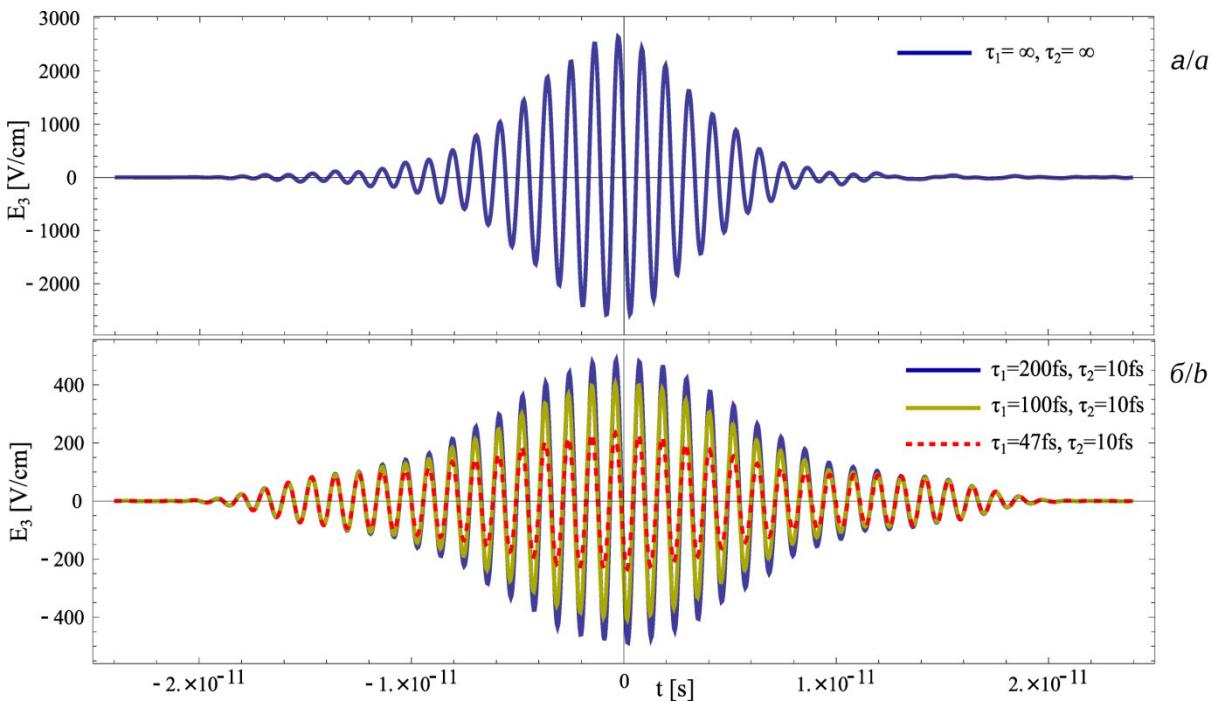


Рис. 5. Третья гармоника индуцированного поля без учета диссипации (а) и для трех вариантов времени релаксации неравновесной заселенности  $\tau_1$  (б) (цвет онлайн)

Fig. 5. Third harmonics of the induced field without taking into account dissipation (a) and for three variants of the relaxation time of the nonequilibrium population  $\tau_1$  (b) (color online)

мента. Для пятой гармоники почти в два раза, а для седьмой более чем в 5 раз. Причиной такого расхождения, скорее всего, является отличие спектрального состава использовавшегося в экспериментах источника импульсов от модельного аналитического выражения (10). Этот вопрос требует более детального исследования.

Варьирование параметра  $\tau_2$  не оказывается существенным образом на спектральных свойствах индуцированного излучения. Как было отмечено выше, в рассматриваемом частотном диапазоне возбуждаемый поверхностный ток практически полностью определяется током проводимости (внутризонной динамикой носителей). Поляризационный ток межзонных переходов, за характеристики которого ответственно время декогерентности  $\tau_2$ , не оказывает существенного влияния на наблюдаемые результирующие токи (5) и (6).

### Заключение

Представленные результаты демонстрируют применимость модели электронной подсистемы графена на основе квантового кинетического уравнения при описании результатов действия внешнего электрического поля с частотами, близкими к нижней границы ИК-диапазона. В таких

условиях внешнее электрическое поле формирует в зоне проводимости сильно анизотропное распределение с заселением состояний с высокими, вплоть до 4 эВ, значениями энергии далеко от точек Дирака. Это требует использования модели сильной связи ближайших соседей для корректного воспроизведения свойств электронных состояний.

Процесс рождения электрон-дырочных пар создает высокий уровень концентрации носителей, из которых формируется ток проводимости, служащий источником индуцированного излучения с набором нечетных высокочастотных гармоник.

В силу высокой эффективности процесса создания новых носителей их начальное равновесное значение, определяемое температурой, не оказывает существенного влияния на характеристики генерируемых гармоник. Еще один параметр модели (время декогерентности), выбор значения которого оказывается на вычисляемых значениях поляризационного тока, также не играет существенной роли в силу полного доминирования тока проводимости в рассматривавшемся диапазоне частот.

Для обеспечения согласия результатов моделирования с экспериментальными данными



определенное значение имеет правильный выбор времени релаксации неравновесной заселенности состояний. Показано, что недиссипативная версия модели обеспечивает только качественное воспроизведение эффекта генерации высокочастотных гармоник с большими различиями в количественных оценках. Выделенная роль времени релаксации неравновесной заселенности позволяет использовать имеющиеся экспериментальные данные для независимого определения этого параметра в рассматриваемых условиях.

## Список литературы

1. Vampa G., Hammond T., Thiré N., Schmidt B. E., Légaré F., McDonald C. R., Brabec T., Corkum P. B. Linking high harmonics from gases and solids // Nature. 2015. Vol. 522. P. 462–464. <https://doi.org/10.1038/nature14517>
2. Hohenleutner M., Langer F., Schubert O., Knorr M., Huttner U., Koch S. W., Kira M., Huber R. Real-time observation of interfering crystal electrons in high-harmonic generation // Nature. 2015. Vol. 523. P. 572–575. <https://doi.org/10.1038/nature14652>
3. Vampa G., McDonald C. R., Orlando G., Klug D. D., Corkum P. B., Brabec T. Theoretical analysis of high-harmonic generation in solids // Phys. Rev. Lett. 2014. Vol. 113. Art. 073901. <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.113.073901>
4. Sato Sh.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. Art. L041408. <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.103.L041408>
5. Higuchi T., Heide Ch., Ullmann K., Weber H. B., Hommelhof P. Light-field-driven currents in graphene // Nature. 2017. Vol. 550. P. 224–228. <https://doi.org/10.1038/nature23900>
6. 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. Art. 06008. <https://doi.org/10.1051/epjconf/201920406008>
7. 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>
8. 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>
9. 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>
10. Wallace P. R. The band theory of graphite // Phys. Rev. 1947. Vol. 71. P. 622–634. <https://doi.org/10.1103/PhysRev.71.622>
11. Панферов А. Д., Щербаков И. А. Реализация квантового кинетического уравнения для графена на основе модели сильного взаимодействия ближайших соседей // Известия Саратовского университета. Новая серия. Серия : Физика. 2024. Т. 24, вып. 3. С. 198–208. <https://doi.org/10.18500/1817-3020-2024-24-3-198-208>
12. Панферов А. Д., Ульянова А. А. Генерация высокочастотных гармоник при взаимодействии разнесенных по частоте лазерных импульсов с монослоем графена // Оптика и спектроскопия. 2024. Т. 132, вып. 10. С. 1067–1075. <https://doi.org/10.61011/OS.2024.10.59422.7048-24>
13. Панферов А. Д., Новиков Н. А., Ульянова А. А. Воспроизведение отклика графена на действие внешнего электрического поля с использованием модели сильно взаимодействующих ближайших соседей // Программные системы: теория и приложения. 2024. Т. 15, вып. 3. С. 3–22. <https://doi.org/10.25209/2079-3316-2024-15-3-3-22>
14. 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>
15. 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 grapheme // Nature Communications. 2022. Vol. 13. Art. 6630. <https://doi.org/10.1038/s41467-022-34337-y>
16. Nakagawa K., Mao W., Sato Sh. A., Ago H., Rubio A., Kanemitsu Y., Hirori H. Hot electron effect in high-order harmonic generation from graphene driven by elliptically polarized light // APL Photonics. 2024. Vol. 9. Art. 076107. <https://doi.org/10.1063/5.0212022>
17. Hafez H. A., Kovalev S., Deinert J.-Ch., Mics Z., Green B., Awari N., Chen M., Germanskiy S., Lehnert U., Teichert J., Wang Z., Tielrooij K.-J., Liu Z., 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>
18. Kovalev S., Hafez H. A., Tielrooij K.-J., Deinert J.-Ch., Ilyakov I., Awari N., Alkaraz D., Soundarapandian K., Saleta D., Germanskiy S., Chen M., Bawatna M., Green B., Koppens F. H. L., Mittendorf M., Bonn M., Gensch M., Turchinovich D. Electrical tunability of terahertz nonlinearity in grapheme // Sci. Adv. 2021. Vol. 7. Art. eabf9809. <https://doi.org/10.1126/sciadv.abf9809>
19. Heide Chr., Eckstein T., Boolakee T., Gerner C., Weber H. B., Franco I., Hommelhoff P. Electronic coherence and coherent dephasing in the optical control of electrons in graphene // Nano Lett. 2021. Vol. 21. P. 9403–9409. <https://doi.org/10.1021/acs.nanolett.1c02538>
20. Kim Y., Kim M. J., Cha S., Choi Sh., Kim Ch.-J., Kim B. J., Jo M.-H., Kim J., Lee J. D. Dephasing dynamics



- accessed by high harmonic generation: Determination of electron–hole decoherence of Dirac fermions // *Nano Lett.* 2024. Vol. 24. P. 1277–1283. <https://doi.org/10.1021/acs.nanolett.3c04278>
21. 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>
  22. Fang T., Konar A., Xing H., Jena D. Carrier statistics and quantum capacitance of graphene sheets and ribbons. // *Appl. Phys. Lett.* 2007. Vol. 91. Art. 092109. <https://doi.org/10.1063/1.2776887>
  23. Mics Z., Tielrooij K.-J., Parvez K., Jensen S. A., Ivanov I., Feng X., Mullen K., Bonn M., Turchinovich D. Thermodynamic picture of ultrafast charge transport in graphene // *Nature Communications.* 2015. Vol. 6. Art. 7655. <https://doi.org/10.1038/ncomms8655>
- ## References
1. Vampa G., Hammond T. J., Thiré N., Schmidt B. E., Légaré F., McDonald C. R., Brabec T., Corkum P. B. Linking high harmonics from gases and solids. *Nature*, 2015, vol. 522, pp. 462–464. <https://doi.org/10.1038/nature14517>
  2. Hohenleutner M., Langer F., Schubert O., Knorr M., Huttner U., Koch S. W., Kira M., Huber R. Real-time observation of interfering crystal electrons in high-harmonic generation. *Nature*, 2015, vol. 523, pp. 572–575. <https://doi.org/10.1038/nature14652>
  3. Vampa G., McDonald C. R., Orlando G., Klug D. D., Corkum P. B., Brabec T. Theoretical analysis of high-harmonic generation in solids. *Phys. Rev. Lett.*, 2014, vol. 113, art. 073901. <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.113.073901>
  4. Sato Sh.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, art. L041408. <https://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.103.L041408>
  5. Higuchi T., Heide Ch., Ullmann K., Weber H. B., Hommelhof P. Light-field-driven currents in grapheme. *Nature*, 2017, vol. 550, pp. 224–228. <https://doi.org/10.1038/nature23900>
  6. 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, art. 06008. <https://doi.org/10.1051/epjconf/201920406008>
  7. 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>
  8. 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>
  9. 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>
  10. Wallace P. R. The band theory of graphite. *Phys. Rev.*, 1947, vol. 71, pp. 622–634. <https://doi.org/10.1103/PhysRev.71.622>
  11. Panferov A. D., Shcherbakov I. A. Tight-binding implementation of the quantum kinetic equation for graphene. *Izvestiya of Saratov University. Physics*, 2024, vol. 24, iss. 3, pp. 198–208 (in Russian). <https://doi.org/10.18500/1817-3020-2024-24-3-198-208>
  12. Panferov A. D., Ulyanova A. A. Generation of high-frequency harmonics by interaction of frequency-spaced laser pulses with a graphene monolayer. *Optics and Spectroscopy*, 2024, vol. 132, iss. 10, pp. 1067–1075 (in Russian). <https://doi.org/10.61011/OS.2024.10.59422.7048-24>
  13. Panferov A. D., Novikov N. V., Ulyanova A. A. Simulation the response of graphene to an external electric field using the exact tight-binding model. *Program Systems: Theory and Applications.* 2024, vol. 15, iss. 3, pp. 3–22 (in Russian). <https://doi.org/10.25209/2079-3316-2024-15-3-3-22>
  14. 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>
  15. 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 grapheme. *Nature Communications*, 2022, vol. 13, art. 6630. <https://doi.org/10.1038/s41467-022-34337-y>
  16. Nakagawa K., Mao W., Sato Sh. A., Ago H., Rubio A., Kanemitsu Y., Hirori H. Hot electron effect in high-order harmonic generation from graphene driven by elliptically polarized light. *APL Photonics*, 2024, vol. 9, art. 076107. <https://doi.org/10.1063/5.0212022>
  17. Hafez H. A., Kovalev S., Deinert J.-Ch., Mics Z., Green B., Awari N., Chen M., Germanskiy S., Lehnert U., Teichert J., Wang Z., Tielrooij K.-J., Liu Z., 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, pp. 507–511. <https://doi.org/10.1038/s41586-018-0508-1>
  18. Kovalev S., Hafez H. A., Tielrooij K.-J., Deinert J.-Ch., Ilyakov I., Awari N., Alkaraz D., Soundarapandian K., Saleta D., Germanskiy S., Chen M., Bawatna M., Green B., Koppens F. H. L., Mittendorf M., Bonn M., Gensch M., Turchinovich D. Electrical tunability of terahertz nonlinearity in grapheme. *Sci. Adv.*, 2021, vol. 7, art. eabf9809. <https://doi.org/10.1126/sciadv.abf9809>
  19. Heide Chr., Eckstein T., Boolakee T., Gerner C., Weber H. B., Franco I., Hommelhoff P. Electronic coherence and coherent dephasing in the optical control of electrons in graphene. *Nano Lett.*, 2021, vol. 21, pp. 9403–9409. <https://doi.org/10.1021/acs.nanolett.1c02538>



20. Kim Y., Kim M. J., Cha S., Choi Sh., Kim Ch-J, Kim B. J., Jo M-H, Kim J., Lee J. D. Dephasing dynamics accessed by high harmonic generation: Determination of electron–hole decoherence of Dirac fermions. *Nano Lett.*, 2024, vol. 24, pp. 1277–1283. <https://doi.org/10.1021/acs.nanolett.3c04278>
21. 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>
22. Fang T., Konar A., Xing H., Jena D. Carrier statistics and quantum capacitance of graphene sheets and ribbons. *Appl. Phys. Lett.*, 2007, vol. 91, art. 092109. <https://doi.org/10.1063/1.2776887>
23. Mics Z., Tielrooij K.-J., Parvez K., Jensen S. A., Ivanov I., Feng X., Mullen K., Bonn M., Turchinovich D. Thermodynamic picture of ultrafast charge transport in grapheme. *Nature Communications*, 2015, vol. 6, art. 7655. <https://doi.org/10.1038/ncomms8655>

Поступила в редакцию 19.10.2024; одобрена после рецензирования 03.02.2025;  
принята к публикации 17.02.2025; опубликована 30.06.2025

The article was submitted 19.10.2024; approved after reviewing 03.02.2025;  
accepted for publication 17.02.2025; published 30.06.2025