Письма в ЖЭТФ, том 123, вып. 10, с. 691 – 699 © 2026 г. 25 мая

Многофотонное резонансное возбуждение и генерация высоких гармоник в больших графеновых квантовых точках

Х. В. Седракян[+], *А. Г. Казарян*[+1)], *А. А. Маркосян*[*]

[+]*Центр Физики Сильных Полей Института Физики, Ереванский Государственный Университет, 0025 Ереван, Армения*

[*]*Magnolia Medical Center, Los Angeles, CA 91601, USA*

Поступила в редакцию 19 марта 2026 г.
После переработки 11 апреля 2026 г.
Принята к публикации 15 апреля 2026 г.

Мы исследовали генерацию высших гармоник в крупных графеновых квантовых точках под воздействием интенсивного лазерного поля. Моделируя шестиугольную квантовую точку графена с зигзагообразными краями из 150 атомов и ее взаимодействие с лазерным полем, мы используем приближение сильной связи для учета многочастичного кулоновского взаимодействия. Наш подробный анализ спектра выявляет многофотонную резонансную природу генерации гармоник, проливая свет на лежащие в основе квантовые процессы. Мы рассмотрели зависимость гармоник отсечки от интенсивности и частоты лазера, предоставляя полезные сведения об оптимальных условиях для усиления процесса генерации высоких гармоник в большой графеновой квантовой точке. Полученные результаты показали, что квантовая точка из 150 атомов демонстрирует значительный рост излучения высоких гармоник по сравнению с уже обсуждавшимися графеновыми квантовыми точками.

DOI: 10.7868/S3034576626050136

Введение. Генерация высоких гармоник (ГВГ) порядка [1, 2] – важный крайне нелинейный оптический процесс при взаимодействии интенсивного лазера с веществом для получения в атомных системах лазерного света, от жесткого ультрафиолетового до мягкого рентгеновского излучения. ГВГ включает многофотонные процессы [3], которые обеспечивают доступ к экстремальному временному разрешению и позволяют перейти к аттосекундной физике [4–8]. Среди наноструктурных материалов с потенциалом для нелинейных экстремальных оптических применений особый интерес представляют аллотропы углерода [9, 10], например, нульмерные наноструктуры, такие как фуллерены [11] и графеновые квантовые точки (ГКТ) [12–15]. ГКТ состоят из одного или нескольких слоев графена и имеют размер менее 100 нм. Общеизвестно, что они химически и физически стабильны и обладают высоким отношением площади поверхности к массе. Благодаря своим исключительным свойствам, таким как низкая токсичность, стабильная люминесценция, химическая стабильность и выраженный эффект квантового ограничения, ГКТ считаются инновационными материалами для биологических, оптоэлектронных, энергетических и экологических применений, особенно, в медицине [16, 17].

При ГВГ повышение эффективности преобразования имеет решающее значение и сильно зависит от плотности излучателей и возможных каналов возбуждения. Атомные кластеры показали перспективность в значительном увеличении интенсивности гармоник по сравнению с атомными системами [18–20], что привело к интересу исследования ГВГ на фуллеренах [21–23] и ГКТ [24–28].

В настоящее время растет интерес к контролю размера, формы, краев и числа слоев в ГКТ [29–34], а также плотности носителей заряда, учитывая его необычные оптические [35–39] и электронные [40–49] свойства. В отличие от протяженного графена, конечный размер ограничения в ГКТ открывает регулируемую энергетическую щель и создает дискретные энергетические спектры, которые сильно зависят от геометрии и структуры края [45]. Нульмерная природа ГКТ ограничивает возбужденные электронные волновые пакеты во всех пространственных направлениях, подавляя их пространственное распространение и повышая эффективность нелинейного излучения [36, 37, 50]. ГВГ была изучена в ГКТ различной геометрии, включая шестиугольные [51–53], треугольные [54] и прямоугольные [55] квантовые точки, выявив сильную чувствительность к симмет-

[1)]e-mail: amarkos@ysu.am

рии, краевым состояниям и электрон-электронным взаимодействиям (ЭЭВ) [36, 37, 50, 56, 57]. Правила отбора, накладываемые симметрией ГКТ, могут подавлять или усиливать определенные порядки гармоник, например, подавление четных гармоник в треугольных квантовых точках [37, 54]. В частности, квантовые точки с зигзагообразными краями содержат локализованные на краях состояния [37, 58], что приводит к оптическим откликам, качественно отличающимся как от объемного графена, так и от одномерных нанолент [59, 60].

Симметрия действующего лазерного поля накладывает свои правила отбора на излучаемые гармоники [61]. В дополнение к одноцветному возбуждению, ГВГ, осуществляемая бихроматическими лазерными полями (БЛП), привлекает все большее внимание как инструмент для управления каналами излучения и правилами отбора [61–68]. В частности, две противовращающиеся компоненты с круговой поляризацией генерируют фигуры Лиссажу, симметрию которых можно регулировать относительными частотами, амплитудами и фазами БЛП [61, 68]. Было показано, что согласование симметрии управляющего поля с симметрией квантовых точек в форме равностороннего треугольника и шестиугольника приводит к значительному усилению когерентного излучения на несколько порядков по сравнению с одноцветным круговым возбуждением той же интенсивности [68].

В данной работе представлены результаты исследования процесса ГВГ при крайне нелинейном взаимодействии большой шестиугольной ГКТ_{150} с зигзагообразными краями с сильным электромагнитным излучением линейной поляризации. Мы раскрыли общую структуру спектра ГВГ, включая его частотную зависимость от интенсивности и частоты лазера и его связь с молекулярными возбуждениями. Мы обобщили и описали оптимальные условия, необходимые для ГВГ в конкретной наноструктуре.

Основная модель и численные результаты. Начнем с описания теоретического подхода. Предполагается, что лежащая в плоскости xy шестиугольная ГКТ_{150} с зигзагообразными краями из 150 атомов взаимодействует с лазерным импульсом в дальнем инфракрасном и терагерцовом диапазонах, который возбуждает когерентную динамику электронов. ГКТ_{150} обладает симметрией точечной группы D_{6h}. Расстояние между ближайшими соседними атомами составляет $\simeq 1.42$ Å. Рассмотрим сильную линейно поляризованную электромагнитную волну, распространяющуюся в направлении, перпендикулярном плоскости xy, когда бегущая электромагнитная волна становится однородным квазипериодическим электрическим полем. Напряженность этого электрического поля, направленного вдоль одной из граней шестиугольной ГКТ_{150}(ось x), определяется соотношением:

$$E\left(t\right)=E_{0}f\left(t\right)\sin\left(\omega t\right), \tag{1}$$

где E_0 – амплитуда и ω – частота волны накачки, $f\left(t\right)=\sin^{2}\left(\pi t/\mathcal{T}\right)$ – медленно меняющаяся огибающая с длительностью импульса $\mathcal{T}$. Последняя равна 20 волновым периодам: $\mathcal{T}=40\pi/\omega$.

Мы предполагаем нейтральную ГКТ_{150}, которая будет описана в рамках модели сильной связи (СС). ЭЭВ описывается в расширенном приближении Хаббарда [29, 38, 69–71]. Полный гамильтониан будет иметь вид:

$$\widehat{H}=\widehat{H}_{0}+\widehat{H}_{\text{int}}, \tag{2}$$

где

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

есть гамильтониан свободной квантовой точки. Здесь $c_{i\sigma}^{\dagger}$ ($c_{i\sigma}$) – оператор рождения (уничтожения) электрона со спиновой поляризацией $\sigma=(\uparrow,\downarrow)$ в узле i, и $\langle i,j\rangle$ есть сумма по ближайшим соседним узлам с энергией переноса t_{ij} ($\overline{\sigma}$ – величина с противоположной спиновой поляризацией); и $n_{i\sigma}=c_{i\sigma}^{\dagger}c_{i\sigma}$ – оператор электронной плотности с полной электронной плотностью в узле i: $n_i=n_{i\uparrow}+n_{i\downarrow}$. Первый и второй члены свободного гамильтониана (3) соответствуют ЭЭВ в рамках расширенного приближения Хаббарда с энергиями кулоновского отталкивания между узлами $\sim V_{ij}$ и в узлах $\sim U$. Кулоновское отталкивание между узлами определяется расстоянием d_{ij} между ближайшими соседними парами и соотношением $V_{ij}=Vd_{\min}/d_{ij}$ ($d_{\min}$ – минимальное расстояние между ближайшими соседями). Третий член в (3) – это часть кинетической энергии гамильтониана СС с туннельными матричными элементами t_{ij} соседних узлов. Он известен как интеграл перескока t_{ij} между ближайшими соседними узлами ГКТ, и обычно принимается равным экспериментальному значению: $t_{ij}\simeq 2.8$ эВ [13]. Колебания решетки в гамильтониане пренебрегаются.

Взаимодействие лазера с квантовой точкой описывается в калибровке длины со скалярным потенциалом в виде:

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

где $\mathbf{r}_i$ – радиус-вектор, e – элементарный заряд. Допустим, что система релаксирует со скоростью γ к равновесному распределению $\rho_{0ij}^{(\sigma)}$. Многочастичное взаимодействие рассматривается в рамках приближения Хартри–Фока. Для описания уравнений для одночастичной матрицы плотности $\rho_{ij}^{(\sigma)} = \left\langle c_{j\sigma}^{\dagger} c_{i\sigma} \right\rangle$, мы предположим, что гамильтониан (3) имеет вид:

$$\widehat{H}_0^{HF} \simeq -\sum_{\langle i,j\rangle\sigma} t_{ij} c_{i\sigma}^{\dagger} c_{j\sigma} + U\sum_i (\overline{n}_{i\uparrow} - \overline{n}_{0i\uparrow}) n_{i\downarrow}$$
$$+U\sum_{i\sigma} (\overline{n}_{i\downarrow} - \overline{n}_{0i\downarrow}) n_{i\uparrow} + \sum_{\langle i,j\rangle} V_{ij} (\overline{n}_j - \overline{n}_{0j}) n_i$$
$$-\sum_{\langle i,j\rangle\sigma} V_{ij} c_{i\sigma}^{\dagger} c_{j\sigma} \left(\left\langle c_{i\sigma}^{\dagger} c_{j\sigma} \right\rangle - \left\langle c_{i\sigma}^{\dagger} c_{j\sigma} \right\rangle_0 \right), \quad (4)$$

где $\overline{n}_{i\sigma} = \left\langle c_{i\sigma}^{\dagger} c_{i\sigma} \right\rangle = \rho_{ii}^{(\sigma)}$. Таким образом, согласно уравнению Гейзенберга [56], уравнения движения для матрицы плотности одной частицы $\rho_{ij}^{(\sigma)}$ будут иметь следующий вид:

$$i\hbar \frac{\partial \rho_{ij}^{(\sigma)}}{\partial t} = \sum_k \left(\tau_{kj\sigma} \rho_{ik}^{(\sigma)} - \tau_{ik\sigma} \rho_{kj}^{(\sigma)} \right) + (V_{i\sigma} - V_{j\sigma}) \rho_{ij}^{(\sigma)}$$
$$+e\mathbf{E}(t)(\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j) \rho_{ij}^{(\sigma)} - i\hbar\gamma \left(\rho_{ij}^{(\sigma)} - \rho_{0ij}^{(\sigma)} \right), \quad (5)$$

где матрицы $V_{i\sigma}$, $\tau_{ij\sigma}$ определятся матрицей плотности $\partial\rho_{ij}^{(\sigma)}$ как:

$$V_{i\sigma} = \sum_{j\alpha} V_{ij} \left(\rho_{jj}^{(\alpha)} - \rho_{0jj}^{(\alpha)} \right) + U \left(\rho_{ii}^{(\overline{\sigma})} - \rho_{0ii}^{(\overline{\sigma})} \right), \quad (6)$$

$$\tau_{ij\sigma} = t_{ij} + V_{ij} \left(\rho_{ji}^{(\sigma)} - \rho_{0ji}^{(\sigma)} \right). \quad (7)$$

Далее мы рассмотрим нелинейный отклик ГКТ, учитывая генерацию гармоник при многофотонном возбуждении, принимая во внимание многочастичное кулоновское взаимодействие с расширенным гамильтонианом Хаббарда. Взаимодействие волны и частицы будет характеризоваться работой волнового электрического поля на межатомном расстоянии b: $\mathcal{W} = eE_0 b$. Нелинейные многофотонные эффекты возникают, когда $\mathcal{W}$ становится сопоставимым или больше, чем энергия фотона $\hbar\omega$ для вовлеченных подоболочек. В нашей модели гексагональные двумерные наноструктуры формируются из π-орбиталей атомов углерода. В результате мы пренебрегаем переходами в σ-орбиталях и между π–σ-орбиталями. Эти орбитали отделены от σ-орбиталей большим энергетическим зазором (~ 10 эВ) в несколько t_{ij} [13]. Следовательно, мы будем рассматривать умеренно сильную волну накачки, когда имеет место соотношение $\hbar\omega \lesssim \mathcal{W} < t_{ij}$. В других случаях следует учитывать и другие подоболочки [72–74]. Мы ограничили максимальную напряженность электрического поля значением 0.3 В/Å, что на два порядка меньше, чем атомная единица электрического поля 51.4 В/Å (0.3 В/Å $\simeq 10^{-2}$ атомной единицы). Как можно оценить, для рассмотренной максимальной напряженности электрического поля 0.3В/Å, $t_{ij} = 2.8$ эВ, $b \simeq 1.42$ Å и частоты $\omega = 0.1$ эВ/$\hbar$, мы имеем: $\mathcal{W}/\hbar\omega = 4.26$ и $\mathcal{W}/t = 0.1$. Для рассмотренной максимальной частоты $\omega = 0.4$ эВ/$\hbar$ и напряженности электрического поля 0.3 В/Å, мы имеем: $\mathcal{W}/\hbar\omega = 1.06$ и $\mathcal{W}/t = 0.1$. Следует отметить, что эти параметры широко используются для графена и его производных [12].

Сначала рассмотрим собственные энергии и возможные переходы рассматриваемой системы до взаимодействия с сильным лазерным импульсом. Эти результаты получены путем численной диагонализации гамильтониана СС. С помощью полученных собственных состояний $\psi_\mu(i)$ мы также вычисляем матричные элементы дипольного момента перехода: $\mathbf{d}_{\mu'\mu} = e\sum_i \psi_{\mu'}^{*}(i)\,\mathbf{r}_i \psi_\mu(i)$. На рисунке 1a показаны результаты для собственных энергий.

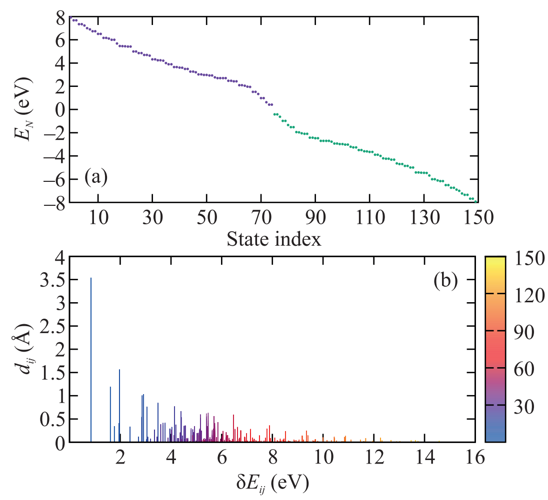

Рис. 1. (Цветной онлайн) Собственные энергии шестиугольной квантовой точки ГКТ$_{150}$ с зигзагообразными краями (a), и абсолютные значения матричных элементов дипольного момента перехода при переходах между валентной областью и областью проводимости (b) как функции разностей индексов состояний j–i и соответствующих разностей энергий δE_{ij}

Чтобы установить связь с концепциями генерации высоких гармоник в твердом состоянии [75] и лучше прояснить микроскопические механизмы ГВГ в ГКТ, мы принимаем общепринятую классификацию занятых состояний как валентную область ($\{v\}$)

и незанятых состояний как область проводимости ($\{c\}$). Для разделения соответствующих вкладов в дипольный спектр ускорения мы переходим от базиса узлов к базису энергетических собственных состояний, используя $\rho_{ij}^{(\sigma)} = \sum_{\mu\mu'} \psi_{\mu'}^{*}(j)\, \varrho_{\mu\mu'}^{(\sigma)} \psi_{\mu}(i)$, где $\varrho_{\mu\mu'}^{(\sigma)}$ – матрица плотности в энергетическом представлении. Тогда дипольное ускорение $\mathbf{a}(t) = d^2\mathbf{d}(t)/dt^2$ можно разложить на вклады внутри областей валентности и проводимости по отдельности, и между ними,

$$\mathbf{a}(t) = \mathbf{a}_{\text{intra}}(t) + \mathbf{a}_{\text{inter}}(t), \tag{8}$$

с составляющей внутри одной области (валентности или проводимости), заданной формулой

$$\mathbf{a}_{\text{intra}}(t) = \sum_{\sigma} \sum_{\mu,\mu' \in \{v\}} \frac{d^2 \varrho_{\mu\mu'}^{(\sigma)}}{dt^2} \mathbf{d}_{\mu'\mu} + \sum_{\sigma} \sum_{\mu,\mu' \in \{c\}} \frac{d^2 \varrho_{\mu\mu'}^{(\sigma)}}{dt^2} \mathbf{d}_{\mu'\mu}, \tag{9}$$

и вклад между областями валентности и проводимости, определяемый как

$$\mathbf{a}_{\text{inter}}(t) = 2\sum_{\sigma} \sum_{\mu' \in \{v\}} \sum_{\mu \in \{c\}} \text{Re}\left(\frac{d^2 \varrho_{\mu\mu'}^{(\sigma)}}{dt^2} \mathbf{d}_{\mu'\mu} \right). \tag{10}$$

Последний член физически соответствует образованию электронно-дырочных пар (переходы из занятых в незанятые орбитали) и их последующей рекомбинации, в то время как предыдущий член – внутри одной области – описывает переход носителей заряда внутри каждой области. На рисунке 1b представлены абсолютные значения матричных элементов дипольного момента перехода при переходах из валентной области в область проводимости и обратно. Рисунок 1 демонстрирует, что инверсионная симметрия ГКТ$_{150}$ приводит к сильно вырожденным состояниям с многочисленными дипольно- разрешенными каналами возбуждения. Оптическая щель в шестиугольной ГКТ$_{150}$ с зигзагообразными краями составляет приблизительно 0.85 эВ, что меньше, чем в ГКТ$_{96}$ (1.24 эВ) или ГКТ$_{54}$ (1.77 эВ). Примечательно, что дипольный момент перехода при межзонных переходах имеет пики приблизительно в диапазоне 0.8–15 эВ, что указывает на наличие эффективного многофотонного возбуждения и последующих высокоэнергетических однофотонных переходов. Эти факторы играют значительную роль в формировании спектра генерации высоких энергий, как будет показано далее.

Для изучения процесса ГВГ в ГКТ$_{150}$ мы вычисляем спектр высоких гармоник с помощью фурье-преобразования дипольного ускорения $\mathbf{a}(t)$:

$$\mathbf{a}(\Omega) = \int_0^{\mathcal{T}} \mathbf{a}(t)\, e^{i\Omega t} dt,$$

где дипольный момент определяется как $\mathbf{d}(t) = e\sum_{i\sigma} \mathbf{r}_i \rho_{ii}^{(\sigma)}(t)$. Спектры ГВГ рассчитаны для умеренных энергий кулоновского отталкивания, $U = 3$ эВ и $V = 0.3U$ [12, 69]. Для многофотонного процесса ГВГ частота импульса волны накачки предполагается много меньше всех характерных энергий ЭЭВ: $\hbar\omega \ll t_{i,j}, V, U$. Скорость релаксации зависит от частоты волны накачки и принимается равной $\gamma = 0.5\omega$. Для удобства мы нормируем дипольное ускорение на множитель $a_0 = e\overline{\omega}^2\overline{d}$, где $\overline{\omega} = 1$ эВ$/\hbar$ и $\overline{d} = 1$ Å. Мощность излучения на данной частоте пропорциональна величине $|\mathbf{a}(\Omega)|^2$. Интегрирование по времени в уравнении (5) выполняется с помощью алгоритма Рунге–Кутты 4-го порядка. В качестве начальной матрицы плотности мы берем полностью заполненную валентную зону и полностью пустую зону проводимости (см. рис. 1a).

Далее мы изучим зависимости процесса ГВГ от частоты накачки в диапазоне $\hbar\omega = 0.1{-}0.4$ эВ. На рисунке 2 показана зависимость спектра ГВГ от

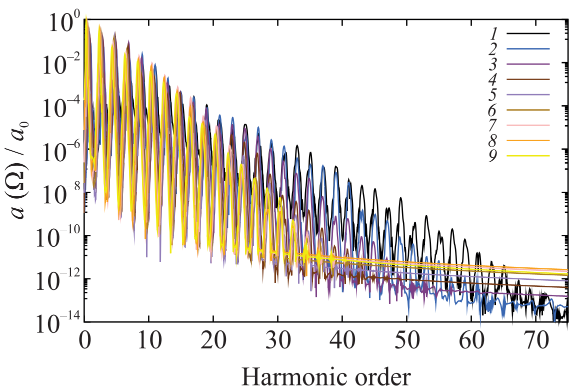

Рис. 2. (Цветной онлайн) Зависимость спектров ГВГ (в логарифмическом масштабе) от частоты волнового поля для ГКТ$_{150}$ с использованием нормированного фурье-преобразования ускорения дипольного момента, $a(\Omega)/a_0$. Амплитуда линейно поляризованной волны, направленной по оси x в плоскости ГКТ, принимается равной $E_0 = 0.3$ В/Å. Спектры показаны для типичных значений энергий ЭЭВ: $U = 3$ эВ, $V = 0.9$ эВ. Скорость релаксации составляет $\gamma = 0.5\omega$. Цветные линии *1–9* соответствуют частотам волны накачки $\omega = 0.1{-}0.4$ эВ$/\hbar$ с шагом в 0.05 эВ$/\hbar$. Для большей видимости, спектры при различных лазерных частотах немного смещены относительно друг друга

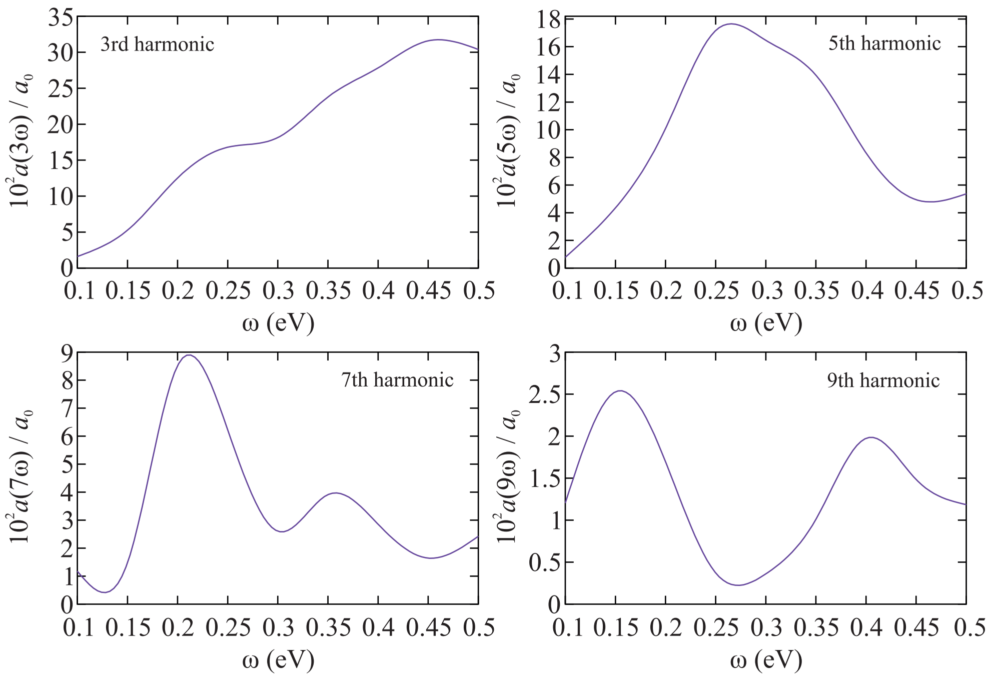

Рис. 3. (Цветной онлайн) Зависимость напряженности излучения, $a(\Omega)/a_0$, для 3-й, 5-й, 7-й и 9-й гармоник от лазерной частоты для данных рис. 2

частоты, и видно, что из-за инверсионной симметрии шестиугольной ГКТ с зигзагообразными краями генерируются только нечетные гармоники. Примечательно, что в области отсечки высоких гармоник появляется характерная особенность, демонстрирующая постепенное уменьшение выхода ГВГ по мере увеличения частоты волнового поля ω. Интересно отметить, что номер гармоники отсечки можно аппроксимировать соотношением $N_{\text{cut}} \sim \omega^{-3/2}$. Сравнивая это со случаем в атомарных газах в процессе ГВГ через свободный континуум, где $N_{\text{cut}} \sim \omega^{-3}$ [2], мы обнаруживаем, что для ГКТ$_{150}$ энергия гармоники отсечки ($\hbar\omega N_{\text{cut}} \sim \omega^{-1/2}$) уменьшается медленнее по мере роста энергии фотона импульса накачки.

Напротив, для низких гармоник мы наблюдаем чередующееся изменение относительно частоты. Такое поведение можно объяснить многофотонными резонансными переходами между валентной зоной и зоной проводимости. Резонансная природа ГВГ дополнительно поясняется на рис. 3, где показана зависимость спектров излучения для 3-й, 5-й, 7-й и 9-й гармоник от частоты волны накачки. Эти гармоники демонстрируют резонансное поведение. Анализируя рис. 1(b), мы видим, что дипольные моменты перехода для межзонных переходов имеют пики вблизи этих резонансных частот, что дополнительно подтверждает многофотонные резонансные переходы. Например, самый высокий пик для 7-й гармоники находится при 0.28 эВ, и из рис. 1b мы видим, что дипольный момент перехода имеет локальный пик при $7\omega \sim 1.96$ эВ/$\hbar$ с несколькими каналами возбуждения.

Резонансное поведение дополнительно подтверждается остаточной заселенностью энергетических уровней зоны проводимости, как показано на рис. 4. Здесь мы показали заселенность энергетических

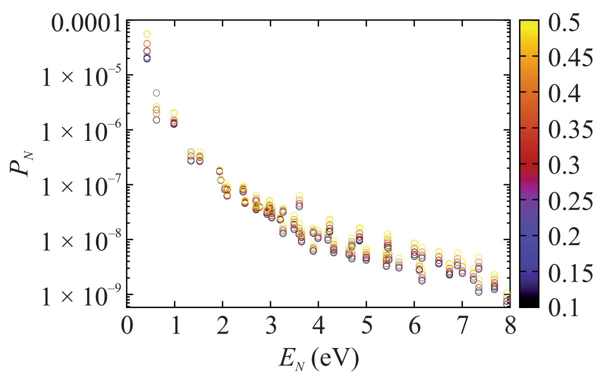

Рис. 4. (Цветной онлайн) Остаточная заселенность энергетических уровней зоны проводимости для данных рис. 2

уровней зоны проводимости после взаимодействия ГКТ с лазерным полем, что демонстрирует значительную заселенность уровней. Это наблюдение дополнительно подтверждает важность многофотонных резонансных переходов в процессе ГВГ в больших квантовых точках, таких как ГКТ$_{150}$, под воздействием интенсивных лазерных полей дальнего инфракрасного и терагерцового диапазона.

Далее мы исследуем зависимость частоты отсечки гармоник от интенсивности волны накачки, анализируя спектры ГВГ при различных интенсивностях. На рисунке 5 представлена зависимость спек-

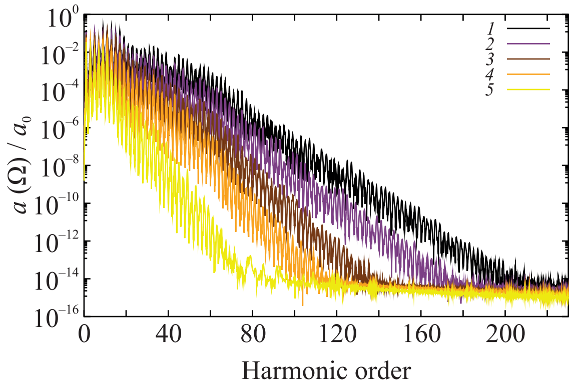

Рис. 5. (Цветной онлайн) Зависимости спектров ГВГ от амплитуды волнового поля показаны для ГКТ$_{150}$ с использованием нормированного фурье-преобразования ускорения диполя, $a(\Omega)/a_0$, построенного в логарифмическом масштабе. Частота волны накачки составляет $\omega = 0.1$ эВ/$\hbar$. Цветные линии *1–5* соответствуют амплитуде волны накачки 0.3, 0.25, 0.2, 0.15, 0.1 В/Å

тра ГВГ от амплитуды волнового поля. В отличие от ГВГ на атомных системах [2], где энергия отсечки пропорциональна интенсивности лазерного поля, в рассматриваемом нами случае энергия отсечки насыщается при высоких интенсивностях волнового поля, и аппроксимируется квадратным корнем из амплитуды напряженности поля при умеренных интенсивностях. Кроме того, на рис. 5 показана значительная нелинейная зависимость гармоник спектра ГВГ в середине плато от амплитуды волны накачки.

Еще одним примечательным аспектом спектра ГВГ в ГКТ является их зависимость от размера квантовой точки. Чтобы выяснить это, на рис. 6 мы сравниваем спектры ГВГ, нормированные на число атомов, для шестиугольных ГКТ$_{96}$ и ГКТ$_{150}$, с зигзагообразными краями. Как видно, наблюдается существенное увеличение спектра ГВГ для ГКТ$_{150}$, тенденция, также наблюдавшаяся для ГКТ в предыдущих исследованиях [51, 53, 54, 61, 68]. Это усиление можно объяснить плотностью состояний, косвенно отраженной на рис. 1 через дипольные моменты переходов. Из рисунка 1 становится очевидно, что ГКТ$_{150}$ обладает значительно большим количеством

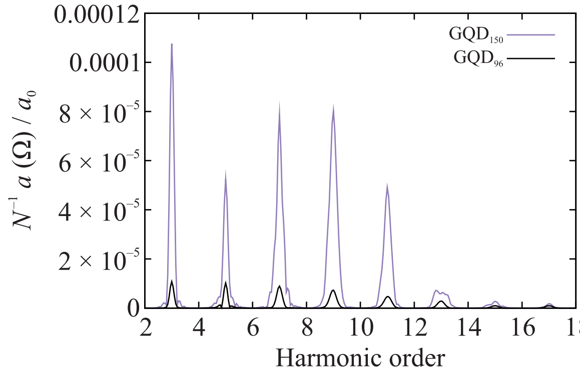

Рис. 6. (Цветной онлайн) Сравнение спектров ГВГ, нормированных на одну частицу, для шестиугольных ГКТ$_{96}$ и ГКТ$_{150}$, с зигзагообразными краями. Частота волнового импульса $\omega = 0.1$ эВ/$\hbar$, амплитуда волны составляет $E_0 = 0.1$ В/Å

каналов перехода, чем ГКТ$_{96}$, что способствует усилению отклика ГВГ.

В процессе ГВГ графеновыми квантовыми точками с зигзагообразными краями, как упоминается во введении, большую, и в ряде случаев доминирующую, роль могут играть краевые состояния [12, 54]. Далее приводится анализ вклада краевых состояний в полный отклик квантовой точки. Рисунок 7 пока-

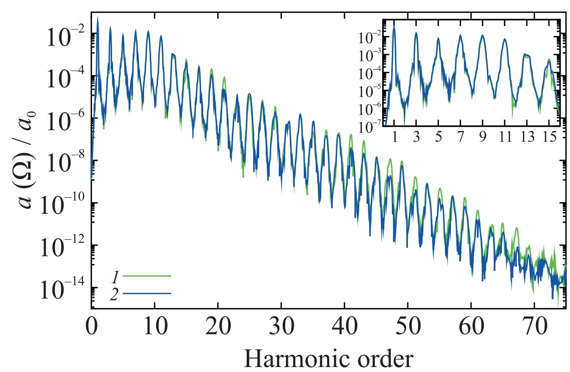

Рис. 7. (Цветной онлайн) Сравнение спектров ГВГ атомов зигзагообразного края (зеленая кривая) и всей шестиугольной ГКТ$_{150}$ (синяя кривая) для данных рис. 6. Вставка показывает ГВГ спектр первых 15 гармоник

зывает, что вклад только края ГКТ$_{150}$ (зеленая кривая) такой же, а для высоких порядков гармоник на один или два порядка больше спектра ГКТ$_{150}$ (синяя кривая).

В заключение отметим, что в данной работе мы изучили экстремальный нелинейный оптический отклик больших ГКТ, уделяя особое внимание шестиугольной ГКТ$_{150}$ с зигзагообразными краями. В нашем анализе использовался точный квантовый расчет спектров ГВГ с помощью приближения СС, учитывающего многочастичное кулоновское взаимодействие. Решая эволюционные уравнения для одночастичной матрицы плотности, мы выявили резонансные эффекты в спектрах ГВГ и наблюдали значительное увеличение выхода ГВГ по сравнению с шестиугольной $ГКТ_{96}$ с зигзагообразными краями. В отличие от ГВГ на атомах, где энергия отсечки прямо пропорциональна интенсивности волны накачки, в $ГКТ_{150}$, при воздействии лазерных импульсов в диапазоне от дальнего инфракрасного до терагерцового, энергия отсечки насыщается при высоких интенсивностях лазерного поля, постепенно уменьшаясь в зависимости от роста частоты волны накачки. Такое поведение подчеркивает уникальный отклик крупных квантовых точек на интенсивные лазерные поля, что может открыть новые возможности для применения в экстремальных нелинейных оптических приложениях.

Финансирование работы. Авторы выражают глубокую благодарность проф. Г. К. Аветисяну и докт. Г. Ф. Мкртчяну за постоянные обсуждения и ценные рекомендации. Данная работа выполнена при поддержке Комитета по Высшему Образованию и Науке Министерства Образования, Науки и Технологий Республики Армения (исследовательский проект 24WS-1C004).

Конфликт интересов. Авторы данной работы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

1. P. B. Corkum, "Plasma perspective on strong field multiphoton ionization", Phys. Rev. Lett. **71**, 1994 (1993).
2. M. Lewenstein, Ph. Balcou, M. Yu. Ivanov, A. L. Huillier, and P. B. Corkum, "Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields", Phys. Rev. A **49**, 2117 (1994).
3. H. K. Avetissian, *Relativistic Nonlinear Electrodynamics: The QED Vacuum and Matter in Super-Strong Radiation Fields* (Springer, N.Y., 2015), v. 88.
4. P. B. Corkum and F. Krausz, "Attosecond science", Nat. Phys. **3**, 381 (2007).
5. F. Krausz and M. Ivanov, "Attosecond physics", Rev. Mod. Phys. **81**, 163 (2009).
6. P. Agostini, "Nobel Lecture: Genesis and applications of attosecond pulse trains", Rev. Mod. Phys. **96**, 030501 (2024).
7. A. L. Huillier, "Nobel Lecture: The route to attosecond pulses", Rev. Mod. Phys. **96**, 030503 (2024).
8. F. Krausz, "Nobel Lecture: Sub-atomic motions", Rev. Mod. Phys. **96**, 030502 (2024).
9. E. H. Falcao and F. Wudl, "Carbon allotropes: beyond graphite and diamond", J. Chem. Technol. Biotechnol. **82**, 524 (2007).
10. S. K. Tiwari, V. Kumar, A. Huczko, R. Oraon, A. De Adhikari, and G. C. Nayak, "Magical allotropes of carbon: prospects and applications", Crit. Rev. in Sol. State and Mat. Sci. **41**, 257 (2016).
11. R. E. Smalley, "Discovering the fullerenes", Rev. of Mod. Phys. **69**, 723 (1997).
12. A. D. Guclu, P. Potasz, M. Korkusinski, and P. Hawrylak, *Graphene quantum dots* (Springer, Berlin, 2014).
13. A. H. Castro Neto, F. Guinea, N. M. R. Peres, K. S. Novoselov, and A. K. Geim, "The electronic properties of graphene", Rev. Mod. Phys. **81**, 109 (2009).
14. A. K. Geim and K. S. Novoselov, "The rise of graphene", Nat. Mater. **6**, 183 (2007).
15. A. K. Geim, "Graphene: Status and prospects", Science **324**, 1530 (2009).
16. G.-Y. Lee, P.-Y. Lo, K.-Ch. Lee, J.-H. Zheng, M. Li, J.-H. Huang, and K.-Ch. Lee, "Integration of PEG and PEI with graphene quantum dots to fabricate pH-responsive nanostars for colon cancer suppression *in vitro* and *in vivo*", FlatChem **31**, 100320 (2022).
17. L. Li, W. Jin, J. Kim, G. Bae, G. Bae, S. H. Yang, B. Cho, S. H. Han, J. Lee, D. Kim, D. K. Kim, Ch. S. Lim, B. H. Hong, and J. P. Lee, "Graphene quantum dots as antifibrotic therapy for kidney disease", ACS Appl. Bio Mater. **8**, 980 (2025).
18. T. D. Donnelly, T. Ditmire, K. Neuman, M. D. Perry, and R. W. Falcone, "High-order harmonic generation in atom clusters", Phys. Rev. Lett. **76**, 2472 (1996).
19. C. Vozzi, M. Nisoli, J. Caumes, G. Sansone, S. Stagira, S. De Silvestri, M. Vecchiocattivi, D. Bassi, M. Pascolini, L. Poletto, P. Villoresi, and G. Tondello, "Cluster effects in high-order harmonics generated by ultrashort light pulses", Appl. Phys. Lett. **86**, 1111121 (2005).
20. O. Smirnova, Y. Mairesse, S. Patchkovskii, N. Dudovich, D. Villeneuve, P. Corkum, and M. Yu. Ivanov, "High harmonic interferometry of multi-electron dynamics in molecules", Nature **460**, 972 (2009).
21. R. Ganeev, L. E. Bom, J. Abdul-Had, M. C. H. Wong, J. P. Brichta, V. R. Bhardwaj, and T. Ozaki, "Higher-order harmonic generation from fullerene by means of the plasma harmonic method", Phys. Rev. Lett. **102**, 013903 (2009).
22. R. Ganeev, L. E. Bom, M. Wong, J.-P. Brichta, V. R. Bhardwaj, P. V. Redkin, and T. Ozaki, "High-order harmonic generation from C60-rich plasma", Phys. Rev. A **80**, 043808 (2009).
23. Г. К. Аветисяна, А. Г. Казарян, Г. Г. Матевосян, Г. Ф. Мкртчян, "Интенсивная генерация высших гармоник вмолекуле фуллерена C180", ЖЭТФ **165**(1), 25 (2024) [H. K. Avetissian, A. G. Ghazaryan, H. H. Matevosyan, and G. F. Mkrtchian, "Intense high harmonic generation in fullerene molecule C180", JETP **165**, 18 (2024)].

24. Б. Р. Авчян, А. Г. Казарян, К. А. Саргсян, Х. В. Седракян, "Генерация высших гармоник в треугольных квантовых графеновых точках", ЖЭТФ **161**(2), 155 (2022) [B. Avchyan, A. Ghazaryan, K. Sargsyan, and Kh. V. Sedrakian, "High harmonic generation in triangular graphene quantum dots", JETP **134**, 125 (2022)].
25. B. R. Avchyan, A. G. Ghazaryan, S. S. Israelyan, and Kh. V. Sedrakian, "High harmonic generation with many-body Coulomb interaction in rectangular graphene quantum dots of armchair edge", J. Nanophotonics **16**, 036001 (2022).
26. Б. Р. Авчян, А. Г. Казарян, К. А. Саргсян, Х. В. Седракян, "О лазерно-индуцированной генерации высших гармоник и смешении волн высокого порядка в графеновой квантовой точке", Письма в ЖЭТФ **116**(7), 426 (2022) [B. R. Avchyan, A. G. Ghazaryan, Kh. A. Sargsyan, and Kh. V. Sedrakian, "On laser-induced high-order wave mixing and harmonic generation in graphene quantum dot", JETP Lett. **116**, 428 (2022)].
27. S. Gnawali, R. Ghimire, K. R. Magar, S. J. Hossaini, and V. Apalkov, "Ultrafast electron dynamics of graphene quantum dots: High harmonic generation", Phys. Rev. B **106**, 075149 (2022).
28. A. G. Ghazaryan, S. V. Sukiasyan, and Kh. V. Sedrakian, "Optical anisotropy of high-order harmonic generation by strong laser radiation in rectangular graphene quantum dot", J. Nanophotonics **18**, 046002 (2024).
29. P. R. Wallace, "The band theory of graphite", Phys. Rev. **71**, 622 (1947).
30. K. S. Novoselov, A. K. Geim, S. V. Morozov, D. Jiang, Y. Zhang, S. V. Dubonos, I. V. Grigorieva, and A. A. Firsov, "Electric field effect in atomically thin carbon films", Science **306**(5696), 666 (2004).
31. K. S. Novoselov, A. K. Geim, S. V. Morozov, D. Jiang, M. I. Katsnelson, I. V. Grigorieva, S. V. Dubonos, and A. A. Firsov, "Two-dimensional gas of massless Dirac fermions in graphene", Nature **438**, 197 (2005).
32. Y. B. Zhang, Y. W. Tan, H. L. Stormer, and P. Kim, "Experimental observation of the quantum Hall effect and Berry's phase in graphene", Nature **438**, 201 (2005).
33. S. Y. Zhou, G. H. Gweon, J. Graf, A. V. Fedorov, C. D. Spataru, R. D. Diehl, Y. Kopelevich, D.-H. Lee, S. G. Louie, and A. Lanzara, "First direct observation of Dirac fermions in graphite", Nat. Phys. **2**, 595 (2006).
34. T. Yamamoto, T. Noguchi, and K. Watanabe, "Edge-state signature in optical absorption of nanographenes: Tight-binding method and time-dependent density functional theory calculations", Phys. Rev. B **74**, 121409 (2006).
35. A. D. Guclu and P. Hawrylak, "Optical control of magnetization and spin blockade in graphene quantum dots", Phys. Rev. B **87**, 035425 (2013).
36. Z. Z. Zhang, K. Chang, and F. M. Peeters, "Tuning of energy levels and optical properties of graphene quantum dots", Phys. Rev. B **77**, 235411 (2008).
37. A. D. Guclu, P. Potasz, and P. Hawrylak, "Excitonic absorption in gate-controlled graphene quantum dots", Phys. Rev. B **82**, 155445 (2010).
38. E. Malic, T. Winzer, E. Bobkin, and A. Knorr, "Microscopic theory of absorption and ultrafast many-particle kinetics in graphene", Phys. Rev. B **84**, 205406 (2011).
39. W. Sheng, M. Korkusinski, A. D. Guclu, M. Zielinski, P. Potasz, E. S. Kadantsev, O. Voznyy, and P. Hawrylak, "Electronic and optical properties of semiconductor and graphene quantum dots", Front. Phys. **7**, 328 (2012).
40. J. S. Bunch, Y. Yaish, M. Brink, K. Bolotin, and P. L. McEuen, "Coulomb oscillations and Hall effect in quasi-2D graphite quantum dots", Nano Lett. **5**, 287 (2005).
41. T. Ihn, S. Gustavsson, U. Gasser, B. Kung, Th. Muller, R. Schleser, M. Sigrist, I. Shorubalko, R. Leturcq, and K. Ensslin, "Quantum dots investigated with charge detection techniques", Solid State Commun. **149**, 1419 (2009).
42. L. A. Ponomarenko, F. Schedin, M. I. Katsnelson, R. Yang, E. W. Hill, K. S. Novoselov, and A. K. Geim, "Chaotic Dirac billiard in graphene quantum dots", Science **320**, 356 (2008).
43. B. Wunsch, T. Stauber, and F. Guinea, "Electron-electron interactions and charging effects in graphene quantum dots", Phys. Rev. B **77**, 035316 (2008).
44. J. Wurm, A. Rycerz, I. Adagideli, M. Wimmer, K. Richter, and H. U. Baranger, "Symmetry classes in graphene quantum dots: universal spectral statistics, weak localization, and conductance fluctuations", Phys. Rev. Lett. **102**, 056806 (2009).
45. F. Libisch, C. Stampfer, and J. Burgdorfer, "Graphene quantum dots: Beyond a Dirac billiard", Phys. Rev. B **79**, 115423 (2009).
46. J. Akola, H. P. Heiskanen, and M. Manninen, "Edge-dependent selection rules in magic triangular graphene flakes", Phys. Rev. B **77**, 193410 (2008).
47. M. Ezawa, "Dirac fermions in a graphene nanodisk and a graphene corner: Texture of vortices with an unusual winding number", Phys. Rev. B **81**, 201402 (2010).
48. P. Potasz, A. D. Guclu, and P. Hawrylak, "Zero-energy states in triangular and trapezoidal graphene structures", Phys. Rev. B **81**, 033403 (2010).
49. P. Potasz, A. D. Guclu, and P. Hawrylak, "Spin and electronic correlations in gated graphene quantum rings", Phys. Rev. B **82**, 075425 (2010).
50. X. Zhang, T. Zhu, H. Du, H.-G. Luo, J. van den Brink, and R. Ray, "Extended high-harmonic spectra through a cascade resonance in confined quantum systems", Phys. Rev. Res. **4**, 033026 (2022).

51. Х. В. Седракян, А. Г. Казарян, Б. Р. Авчян, К. С. Погосян, Т. М. Маркосян, "Гармоники высшего порядка в гексагональных графеновых квантовых точках", ЖЭТФ **164**(3), 457 (2023) [Kh. Sedrakyan, A. Ghazaryan, B. Avchyan, Q. S. Poghosyan, and T. M. Markosyan, "Higher-order harmonics in hexagonal graphene quantum dots", JETP **137**, 395 (2023)].
52. H. K. Avetissian, A. G. Ghazaryan, Kh. V. Sedrakian, and G. Mkrtchian, "Long-range correlation-induced effects at high-order harmonic generation on graphene quantum dots", Phys. Rev. B **108**, 165410 (2023).
53. H. K. Avetissian, G. A. Musayelyan, and G. F. Mkrtchian, "Intense anomalous high harmonics in graphene quantum dots caused by disorder or vacancies", Phys. Rev. B **109**, 085417 (2024).
54. S. Gnawali and V. Apalkov, "High harmonic generation governed by edge states in triangular graphene quantum dots", Phys. Rev. B **108**, 115434 (2023).
55. Y. Qin, X. Feng, and Y. Liu, "Nonlinear refractive index in rectangular graphene quantum dots", Appl. Sci. **9**, 325 (2019).
56. Х. В. Седракян, А. Г. Казарян, Б. Р. Авчян, Г. А. Мусаелян, Т. М. Маркосян, "Генерация высших гармоник с учетом многочастичного кулоновского взаимодействия в графеновой квантовой точке", ЖЭТФ **164(1)**, 56 (2023) [Kh. V. Sedrakian, A. G. Ghazaryan, B. R. Avchyan, G. A. Musayelyan, and T. M. Markosyan, "High harmonic generation with many-particle coulomb interaction in graphene quantum dot", JETP **137**, 47 (2023)].
57. A. G. Ghazaryan, Kh. V. Sedrakian, G. A. Musayelyan, and T. M. Markosyan, "Multiphoton excitation and high harmonic generation in rectangular graphene quantum dot", Phys. Scr. **98**, 055921 (2023).
58. G. P. Zhang, "Hartree-Fock dynamical electron-correlation effects in C60 after laser excitation", Phys. Rev. Lett. **91**, 176801 (2003).
59. A. Guclu, P. Potasz, and O. Voznyy, "Magnetism and correlations in fractionally filled degenerate shells of graphene quantum dots", Phys. Rev. Lett. **103**, 246805 (2009).
60. W. L. Wang, S. Meng, and E. Kaxiras, "Graphene nanoFlakes with large spin", Nano Lett. **8**, 241 (2008).
61. X. Liu, X. Zhu, L. Li, Y. Li, Q. Zhang, P. Lan, and P. Lu, "Selection rules of high-order-harmonic generation: Symmetries of molecules and laser fields", Phys. Rev. A **94**, 033410 (2016).
62. H. K. Avetissian, A. K. Avetissian, B. R. Avchyan, and G. F. Mkrtchian, "Wave mixing and high harmonic generation at two-color multiphoton excitation in two-dimensional hexagonal nanostructures", Phys. Rev. B **100**, 035434 (2019).
63. E. Pisanty, S. Sukiasyan, and M. Ivanov, "Spin conservation in high-order-harmonic generation using bicircular fields", Phys. Rev. A **90**, 043829 (2014).
64. F. Kong, C. Zhang, H. Larocque, H. Larocque, F. Bouchard, Z. Li, M. Taucer, G. Brown, S. Severino, T. J. Hammond, E. Karimi, and P. B. Corkum, "Spin-constrained orbital-angular-momentum control in high-harmonic generation", Phys. Rev. Res. **1**, 032008 (2019).
65. F. Navarrete and U. Thumm, "Two-color-driven enhanced high-order harmonic generation in solids", Phys. Rev. A **102**, 063123 (2020).
66. H. K. Avetissian, G. F. Mkrtchian, and A. Knorr, "Efficient high-harmonic generation in graphene with two-color laser field at orthogonal polarization", Phys. Rev. B **105**, 195405 (2022).
67. B. Ghomashi, S. Walker, and A. Becker, "Generation of elliptically polarized high-order harmonics in cross-polarized bichromatic laser pulses: mechanism and control", J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **58**, 235601 (2025).
68. H. K. Avetissian, A. G. Ghazaryan, G. F. Mkrtchian, and Kh. V. Sedrakian, "High harmonic generation and wave mixing in graphene quantum dots by bichromatic laser fields of circular polarization", Results in Physics **81**, 108579 (2026).
69. R. L. Martin and J. P. Ritchie, "Coulomb and exchange interactions in Cn^{60}", Phys. Rev. B **48**, 4845 (1993).
70. G. Zhang, "Dimerization in a half-filled one-dimensional extended Hubbard model", Phys. Rev. B **56**, 9189 (1997).
71. J. D. Cox and F. de Abajo, "Electrically tunable nonlinear plasmonics in graphene nanoislands", Nat. Commun. **5**, 5725 (2014).
72. A. A. Romanov, A. A. Silaev, T. S. Sarantseva, M. V. Frolov, and N. V. Vvedenskii, "Study of high-order harmonic generation in xenon based on time-dependent density-functional theory", New J. Phys. **23**, 043014 (2021).
73. A. A. Romanov, V. V. Strelkov, and A. A. Silaev, "Simulation of resonance-enhanced high-order harmonic generation and autoionization decay in Ga+ based on time- dependent density-functional theory", Phys. Rev. A **110**, 063109 (2024).
74. A. A. Romanov, A. A. Silaev, and N. V. Vvedenskii, "Resonant enhancement of high-order harmonic generation by Ba and Cs atoms", Phys. Rev. A **111**, 013107 (2025).
75. E. Goulielmakis and T. Brabec, "Room-temperature continuous-wave indirect-bandgap transition lasing in an ultra-thin WS2 disk", Nat. Photonics **16(6)**, 411 (2022).