Письма в ЖЭТФ, том 91, вып. 9, с. 506 – 510 © 2010 г. 10 мая

Двумерные световые пули в массиве углеродных нанотрубок

М. Б. Белоненко[1)], Н. Г. Лебедев*, А. С. Попов*

Лаборатория нанотехнологий Волгоградского института бизнеса, 400048 Волгоград, Россия

*Волгоградский государственный университет, 400062 Волгоград, Россия

Поступила в редакцию 18 февраля 2010 г.

После переработки 22 марта 2010 г.

Рассмотрена задача о распространении двумерных уединенных электромагнитных волн в массиве углеродных нанотрубок. Электромагнитное поле рассматривалось на основе уравнений Максвелла, а электронная система углеродных нанотрубок – на основе кинетического уравнения Больцмана в приближении времени релаксации. Численно проанализировано полученное эффективное уравнение и выявлено состояние электромагнитного поля, которое локализовано в двух пространственных измерениях.

1. Введение. Исследователей в области нелинейной физики все больше привлекают углеродные нанотрубки (УНТ) [1] с момента их экспериментального открытия. Они наиболее близки по своей структуре к идеальным одномерным (1D) системам, это делает их привлекательными для использования в нано- и микроэлектронике. Изучение свойств УНТ привело к необходимости исследовать разного рода нелинейно-оптические явления в нанотрубках [2 – 4].

Выполненные исследователями из Института общей физики РАН измерения зависимости коэффициента пропускания суспензии, содержащей УНТ, от интенсивности падающего лазерного излучения указывают на значительный эффект просветления, приводящий к увеличению коэффициента пропускания от 79% при слабой интенсивности до 81% при интенсивности 40 МВт/см^2 [5]. Создан и исследован эрбиевый волоконный лазер, работающий в режиме самосинхронизации мод, осуществляемом с помощью насыщающегося поглотителя на основе синтезированных методом дугового разряда одностенных углеродных нанотрубок [6, 7]. В работе [8] рассмотрено оптическое поглощение нанотрубкой, обладающей спиральной симметрией, линейно поляризованного излучения. Изучение распространения оптических солитонов (ультра- и предельно коротких импульсов света) в массиве УНТ проведено в работах [9 – 14], где теоретически предсказана возможность существования электромагнитных солитонов и зависимость их характеристик от параметров УНТ.

Однако остался ряд вопросов, требующих дальнейшего развития. Это вопросы, связанные с выходом за рамки 1D приближения и изучение динамики распространения оптического импульса с учетом поперечной дисперсии. Другой интересный вопрос – это задача о динамике 2D оптического импульса, локализованного по обеим координатам. Исследование таких импульсов, получивших название "световые пули" [15, 16], в последнее время стало весьма популярным, что связано и с большим количеством возможных практических применений.

2. Модель и основные уравнения. Рассматриваем ультракороткий оптический импульс, распространяющийся в 2D массиве углеродных нанотрубок. Вектор напряженности электрического поля $\mathbf{E}(\mathbf{x},\mathbf{y},\mathbf{t})$ направлен вдоль оси трубки z, а электромагнитная волна движется в поперечном направлении вдоль оси x (рис.1). Углеродные нанотрубки считаются идеальными, имеющими зигзагообразную структурную модификацию и расположенными на примерно одинаковых расстояниях друг от друга, равных 0.34 нм [1]. Взаимодействие между УНТ не учитывается, поэтому способ упаковки в массив не важен. Для простоты и определенности использовалась тетрагональная упаковка однослойных УНТ в 2D массив с пространственной группой $P4_2/mmc$ (D^9_{4h}) [1].Идеальные углеродные нанотруб-

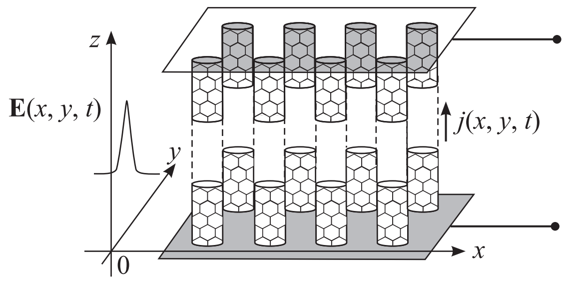

Рис.1. Геометрия задачи. Ультракороткий оптический импульс с напряженностью электрического поля $\mathbf{E}(x, y, t)$ направлен вдоль оси трубки z, движется в поперечном направлении вдоль оси x

[1)] e-mail: mbelonenko@yandex.ru

ки типа “zig-zag” характеризуются хиральными индексами $(n, 0)$, где n определяет число шестичленных колец (гексагонов) вдоль периметра, то есть фактически диаметр трубки. Их электронное строение описывается хорошо известным дисперсионным соотношением, полученным в рамках π-электронного приближения Хюккеля [1]:

$$E(\mathbf{p}) = \pm\gamma\sqrt{1 \pm 4\cos(ap_z)\cos\left(\frac{\pi s}{n}\right) + \cos^2\left(\frac{\pi s}{n}\right)}, \tag{1}$$

где $\gamma \approx 2.7$ эВ – интеграл перескока электрона на узлах кристаллической решетки, $a = 3b/2\hbar$, $b = 0.142$ нм – расстояние между соседними атомами углерода, квазиимпульс $\mathbf{p}$ имеет компоненты (p_z, s), где p_z – компонента импульса электрона вдоль оси нанотрубки, $s = 1, 2, \ldots, n$ – число, которое характеризует квантование импульса вдоль периметра нанотрубки. Разные знаки относятся к зоне проводимости и валентной зоне. Вывод эффективных уравнений неоднократно изложен в работах [9 – 13] для 1D случая. В 2D случае эволюция электромагнитного поля импульса описывается классически на основании уравнений Максвелла [17]. С учетом двухмерности задачи уравнения Максвелла для векторного потенциала $\mathbf{A} = (0, 0, A_z(x, y, t))$ в калибровке $\mathbf{E} = -\frac{1}{c}\frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t}$ будут иметь известный вид:

$$\frac{\partial^2 \mathbf{A}}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \mathbf{A}}{\partial y^2} - \frac{1}{c^2}\frac{\partial^2 \mathbf{A}}{\partial t^2} = -\frac{4\pi}{c}\mathbf{j}. \tag{2}$$

В этом уравнении пренебрегается дифракционным расплыванием лазерного пучка в направлении оси z. Для расчета плотности тока, входящей в уравнение (2), можно воспользоваться полуклассическим приближением. В этом приближении эволюция ансамбля ферми-частиц описывается классическим кинетическим уравнением Больцмана в приближении времен релаксаций [18]:

$$\frac{\partial f}{\partial t} - \frac{q}{c}\frac{\partial A_z}{\partial t}\frac{\partial f}{\partial p_z} = \frac{F_0 - f}{\tau}. \tag{3}$$

Здесь функция распределения $f = f(p_z, s, t)$ неявно зависит от пространственных координат x и y в силу зависимости от них компоненты вектор-потенциала, F_0 – равновесная функция распределения Ферми:

$$\mathbf{F_0} = \frac{1}{1 + \exp(E(\mathbf{p})/k_B T)}, \tag{4}$$

где T – абсолютная температура, k_B – постоянная Больцмана. Время релаксации τ, согласно [19], можно оценить как $\sim 3 \cdot 10^{-13}$ с. Здесь считается, что электронный газ рассматривается невырожденным, что связано с наличием щели в спектре (1) для диэлектрических нанотрубок. В данной работе в рамках используемой полуклассической модели не учтены межзонные переходы.

Это, как показано в [3], дает ограничение на максимальную частоту лазерных импульсов. Так, для типичных нанотрубок данная частота лежит в ближней инфракрасной области. Поскольку в данной работе рассматриваются импульсы, локализованные в пространственной области, имеющей величину порядка длины волны, необходимо учесть, что их спектр будет иметь ширину порядка обратной длительности, что приводит к соответствующему ограничению на длительность импульса, который не может быть короче, чем период волны, лежащей в инфракрасной области спектра. Второе обстоятельство, которое необходимо отметить, состоит в том, что в уравнении (3) не учитываются переходы между состояниями с различными квантовыми числами s. Состояния, характеризуемые различными квантовыми числами s, ортогональны и отличаются распределением волновой функции электрона вдоль окружности нанотрубки. Поскольку электромагнитное поле на таких расстояниях можно считать однородным и в силу ортогональности состояний с разными s, матричные элементы переходов между ними сводятся к нулю, и данные переходы можно не учитывать в кинетическом уравнении.

Выражение для плотности тока $\mathbf{j} = (0, 0, j_z)$ можно записать, воспользовавшись полуклассическим приближением, в виде

$$j_z = \frac{q}{\pi\hbar}\sum_s \int dp_z v_z f, \tag{5}$$

где $v_z = \partial E(\mathbf{p})/\partial p_z$ – скорость электрона в зоне Бриллюена, q – заряд электрона.

Уравнение (3) записано в пренебрежении эффектами, связанными с неоднородностью электромагнитного поля вдоль оси нанотрубки. С одной стороны, это оправдано введенным выше предположением об отсутствии дисперсионного расплывания в направлении оси z, а с другой, нанометровые размеры частиц вещества предполагают выполнение данного приближения с необходимой точностью. Кинетическое уравнение (3) решалось методом характеристик, после чего был сделан переход к бесстолкновительному пределу. Подробно данные выкладки описаны в [9 – 13]. Основная идея состоит в записи выражения для тока через вектор-потенциал, что после перехода к бесстолкновительному пределу позволяет получить используемое далее выражение. Отметим, что аль-

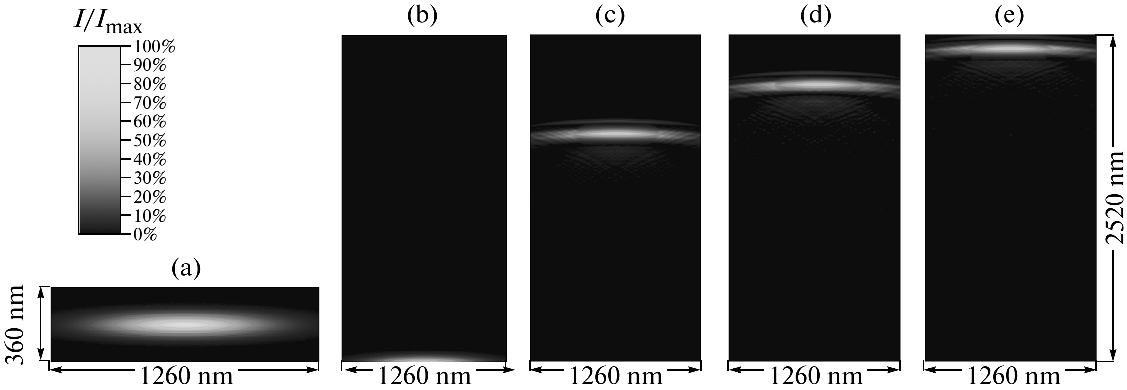

Рис.2. Картина прохождения электромагнитного солитона через двумерный массив нанотрубок типа $(8,0)$. Изображена зависимость интенсивности волны $I(x,y,t) = E^2(x,y,t)$ в различные моменты времени: (a) исходная форма импульса, (b) исходный вид $t = 0$, (c) $t = 2.2 \cdot 10^{-12}$ с, (d) $t = 2.6 \cdot 10^{-12}$ с и (e) $t = 2.9 \cdot 10^{-12}$ с. Поперечная ширина импульса составляет 1260 нм. Интенсивность выражена в тонах серого цвета

тернативный подход, основанный на квантовомеханическом вычислении тока, без использования кинетического уравнения Больцмана был предложен в [14] и приводит к аналогичному выражению для тока.

В результате всех преобразований получается эффективное уравнение для вектор-потенциала следующего вида:

$$\frac{\partial^2 A_z}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 A_z}{\partial y^2} - \frac{1}{c^2}\frac{\partial^2 A_z}{\partial t^2} + \\ + \frac{q}{\pi\hbar}\sum_m c_m \sin\left(\frac{maq}{c}A_z(t)\right) = 0, \quad (6)$$

$$c_m = \sum_s a_{ms} b_{ms}, \quad b_{ms} = \int\limits_{-q_0}^{q_0} \cos(map_z) F_0(\mathbf{p})\, dp_z$$

$$a_{ms} = \frac{1}{\pi}\int\limits_{-\pi}^{\pi} v_z\,(s,p)\sin(mp), dp.$$

Результаты численных расчетов показали, что коэффициенты разложения b_{ms} сильно убывают с ростом индекса m при любых температурах. Как показали классические исследования в одномерном случае, характер распада одиночного импульса сильно зависит от его скорости [20]. При увеличении относительной скорости в 1D случае импульсы начинают взаимодействовать более упруго, и часть их энергии уходит в колебательные моды.

3. Численное моделирование динамики импульса. Полученное эффективное уравнение (6) решалось численно при помощи прямой разностной схемы типа “крест” [21]. Шаги по времени и координате определялись из стандартных условий устойчивости. Шаги разностной схемы уменьшались последовательно в 2 раза до тех пор, пока решение не изменялось в восьмом знаке после запятой. Данные расчетов для 1D случая динамики импульса в массиве углеродных нанотрубок подробно представлены в работах [9 – 13]. Начальный профиль импульса имел гауссов вид. Предельнокороткий импульс разделялся на два, которые имели существенно разную амплитуду.

Результаты теоретических исследований динамики импульса в 2D массиве УНТ без примесей для осесимметричных начальных условий представлены в работе [22]. Показано, что в 2D случае возможны устойчивые нелинейные волны, которые имеют динамику, аналогичную динамике пульсонов 2D нелинейного уравнения sine-Gordon, а приложение постоянного электрического поля к конечной области 2D массива УНТ стабилизирует распространение нелинейной волны – пульсона.

В данной работе сосредоточено внимание на результатах, соответствующих импульсу, локализованному в двух пространственных направлениях. Изучение динамики импульса проводилось, для определенности, в 2D массиве диэлектрических УНТ (8, 0) без примесей. На рис.2 представлена картина распространения электромагнитной волны в массиве нанотрубок без неоднородностей. Изображена зависимость интенсивности волны $I(x,y,t) = E^2(x,y,t)$ в различные моменты времени.

Приведенная зависимость является типичной, и из нее следует, что в массиве углеродных нанотрубок возможно устойчивое распространение импульсов, локализованных в двух измерениях, которые часто называются в литературе “световыми пулями” [15, 16]. Расчеты показали, что, хотя и происходит дифракционное расплывание импульса в направлении, поперечном направлению распространения, в целом импульс сохраняет свою форму. Также необходимо отметить, что происходит частичное искривление фронта импульса, которое возникает вследствие дифракции.

Отметим, что существование "световых пуль" можно предположить и из более простых соображений. Учитывая свойство Лоренц-инвариантности уравнения (6), переходя в систему отсчета, движущуюся со скоростью импульса, и предполагая, что импульс в движущейся системе отсчета имеет вид $A = A(r) = A(x_1^2 + y_1^2)$, где координаты (x_1, y_1) связаны с исходными (x, y) преобразованиями Лоренца, получаем обыкновенное дифференциальное уравнение на вектор-потенциал:

$$\frac{d}{dr}\left(r\frac{dA}{dr}\right) + \frac{q}{\pi\hbar}\sum_m c_m \sin\left(\frac{maqA}{c}\right) = 0. \qquad (7)$$

Среди решений уравнения (7) есть решения, конечные в начале координат и выходящие на плато при $r \to \infty$, что соответствует в силу условия калибровки нулевому значению электрического поля E. Типичный вид такого решения представлен на рис.3.

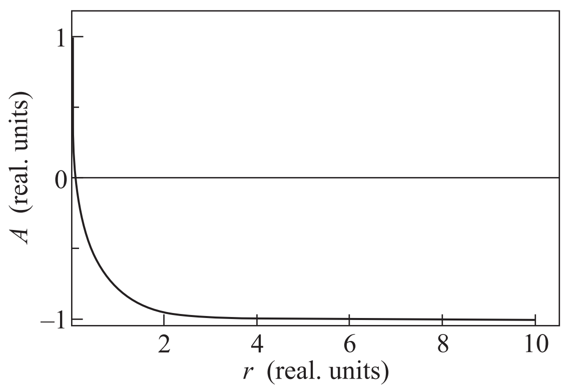

Рис.3. Типичное решение уравнения (7), соответствующее "световой пуле"

На рис.4 показано распределение интенсивностей $I(x,y,t)$ импульса в различные моменты времени по сечению, параллельному плоскости ZY и проходящему через центр импульса. Таким образом, из рисунка видно, что размывание импульса происходит относительно слабо, большая часть энергии, несмотря на затухание, по-прежнему сосредоточено в центре импульса.

На рис.5 показано распределение интенсивностей $I(x,y,t)$ импульса в различные моменты времени по сечению, параллельному плоскости ZX и проходящему через центр импульса. Наглядно видно, что при распространении световой "пули" в моделируемой системе УНТ за ее фронтом возникает дополнительный пик, в который, по-видимому, идет перекачка части энергии из самой пули. Отметим, что данный результат согласуется с результатами исследования в одномерном случае [9 – 13], где также наблюдался дополнительный пик.

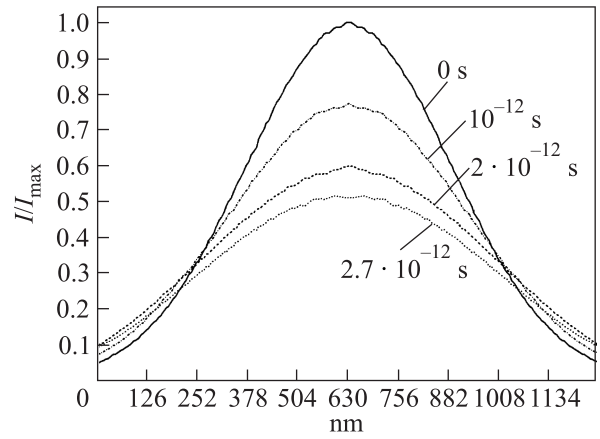

Рис.4. Распределение интенсивностей $I(x,y,t)$ импульса в различные моменты времени по сечению, параллельному плоскости ZY и проходящему через центр импульса. По оси ординат отложено отношение $I/I_{\max}$

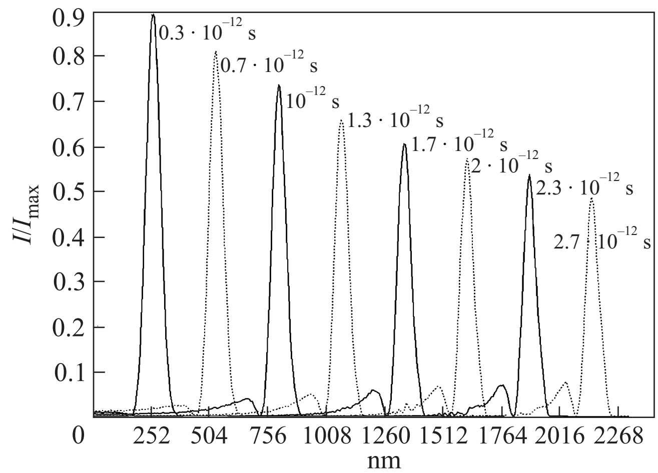

Рис.5. Распределение интенсивностей $I(x,y,t)$ импульса в различные моменты времени по сечению, параллельному плоскости ZX и проходящему через центр импульса. По оси ординат отложено отношение $I/I_{\max}$

4. Заключение. На основании проведенного исследования можно сделать следующие выводы.

1. Предложена модель и получено эффективное уравнение, описывающее динамику предельно короткого 2D лазерного импульса в пучках УНТ. Указаны приближения, используемые при построении модели.

2. Численные расчеты показали, что в 2D случае возможны устойчивые нелинейные волны,

локализованные в двух направлениях световые импульсы, которые являются аналогами "световых пуль".

3. При распространении "пули" в 2D массиве УНТ ее размытие в поперечнике происходит относительно слабо, энергия по-прежнему сосредоточена в центральной области импульса.

4. При распространении пули вслед за ее фронтом возникает дополнительный "всплеск", перекачивающий в себя часть энергии пули.

Работа проведена в рамках реализации ФЦП "Научные и научно-педагогические кадры инновационной России" на 2009–2013 годы (проект № НК-16(3)), а также поддержана Российским фондом фундаментальных исследований (грант # 08-02-00663).

---

1. П. Харрис, *Углеродные нанотрубы и родственные структуры. Новые материалы XXI века*, М.: Техносфера, 2003.
2. S. A. Maksimenko and G. Ya. Slepyan, in: *The Handbook of nanotechnology. Nanometer structure: theory, modeling, and simulation*, Ed. A. Lakhtakia. - Bellingham: SPIE Press, 2004, p. 145–206.
3. G. Ya. Slepyan, S. A. Maksimenko, and V. P. Kalosha, Phys. Rev. **60**, 777 (1999).
4. А. М. Желтиков, *Сверхкороткие импульсы и методы нелинейной оптики*, М.: Физматлит, 2006.
5. Н. Н. Ильичев, Е. Д. Образцова, С. В. Гарнов, Квантовая электроника **34**, 572 (2004).
6. А. В. Таусенев, Е. Д. Образцова, А. С. Лобач, Квантовая электроника **37**, 847 (2007).
7. А. В. Таусенев, Е. Д. Образцова, А. С. Лобач, Квантовая электроника **37**, 205 (2007).
8. А. А. Григорькин, С. М. Дунаевский, Физика твердого тела **51**, 403 (2009).
9. M. B. Belonenko, E. V. Demushkina, and N. G. Lebedev, J. Russian Laser Res. **27**, 457 (2006).
10. М. Б. Белоненко, Е. В. Демушкина, Н. Г. Лебедев, ФТТ **50**, 368 (2008).
11. М. Б. Белоненко, Е. В. Демушкина, Н. Г. Лебедев, Изв. РАН, сер. физ. **72**, 711 (2008).
12. М. Б. Белоненко, Е. В. Демушкина, Н. Г. Лебедев, ЖТФ **78**, 1 (2008).
13. М. Б. Белоненко, Е. В. Демушкина, Н. Г. Лебедев, Хим. физика **27**, 86 (2008).
14. М. Б. Белоненко, Н. Г. Лебедев, Хим. физика **29**, 71 (2010).
15. В. Н. Власов, И. А. Петрищев. В. И. Таланов, Известия ВУЗов. Радиофизика **14**, 1353 (1971).
16. Y. Silberberg, Opt. Lett. **15**, 1282 (1990).
17. Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Электродинамика сплошных сред*, М.: Физ.-мат. лит., 2005.
18. Л. Д. Ландау, Л. П. Питаевский, *Физическая кинетика*, М.: Физматлит, 1979.
19. R. Saito, M. Fujita, and G. Dresselhaus, Phys. Rev. B. **46**, 1804 (1992).
20. P. W. Kitchenside, P. J. Caudrey, and R. K. Bullough, Phys. Scripta. **20**, 673 (1979).
21. Н. С. Бахвалов, *Численные методы (анализ, алгебра, обыкновенные дифференциальные уравнения)*, М.: Наука, 1975.
22. М. Б. Белоненко, С. Ю. Глазов, Н. Г. Лебедев, ФТТ **51**, 1657 (2009).