08

Моделирование динамики предельно коротких оптических импульсов в углеродных нанотрубках со случайными примесями при учете многофотонного поглощения

© С.В. Белибихин, Н.Н. Конобеева, М.Б. Белоненко

Волгоградский государственный университет,
400062 Волгоград, Россия
e-mail: yana_nn@volsu.ru

Поступило в Редакцию 11 ноября 2022 г.
В окончательной редакции 27 декабря 2022 г.
Принято к публикации 23 января 2023 г.

Исследована эволюция предельно короткого импульса в диэлектрическом кристалле с углеродными нанотрубками, в которых содержится примесь со случайными параметрами (уровень энергии, энергия гибридизации электронов). Проанализирована зависимость пространственных характеристик импульса от параметров примеси и числа фотонов, учитываемых в модели.

Ключевые слова: углеродные нанотрубки, примеси, оптический импульс, многофотонное поглощение.

DOI: 10.21883/JTF.2023.03.54850.245-22

Введение

Известно, что при синтезе углеродных нанотрубок (УНТ) [1] зачастую приходится иметь дело с присутствием различного рода примесей, удаление которых очень важно при решении многих прикладных задач, поскольку они существенным образом могут изменить свойства УНТ. При этом очистка от примесей является наиболее трудоемким этапом [2–4]. Однако в некоторых случаях наличие примеси может не оказывать существенного воздействия на характер исследуемого процесса. Отметим, что параметры примеси (уровень энергии, энергия гибридизации электронов) могут оказаться случайными и варьироваться в достаточно широких пределах, вследствие разного окружения примеси, разного случайного ее положения относительно гексагонов нанотрубки (в центре гексагона, на C–C-связи, над атомом углерода), а также наличия других близкорасположенных примесей или адсорбированных атомов. Поэтому в настоящей работе мы изучим влияние такой примеси на динамику предельно короткого оптического импульса при его распространении в нелинейной среде с УНТ с учетом многофотонного поглощения [5] согласно модели, приведенной в работе [6].

Отметим, что решение поставленной проблемы является важным, поскольку УНТ часто используются при разработке устройств оптоэлектроники [7–9], в том числе волноводных структур [10,11] и лазеров предельно коротких импульсов [12].

1. Модель и основные уравнения

Рассмотрим $3D$-электромагнитный импульс, пропускаемый сквозь диэлектрическую матрицу, содержащую массив примесных УНТ. Отметим, что примеси в УНТ распределены случайным образом, что часто наблюдается при получении нанотрубок промышленным способом.

Согласно работе [13], запишем закон дисперсии УНТ, содержащих примеси (ε_{imp}):

$$\varepsilon_{imp}(p,s) = 0.5\Big(2B + \sqrt{-4(D(f+f^*) - \varepsilon(p,s)^2 - D^2)}\Big), \tag{1}$$

где $\varepsilon(p,s) = |f|$ — закон дисперсии для электронов УНТ zigzag без учета примеси [14], $s = 1, 2, \ldots, m$, p — квазиимпульс электрона, B — параметр, характеризующий процессы, связанные с переходами электрона с примесных уровней на одну из подрешеток нанотрубок,

$$B = -\sum_{j=1}^{4} \frac{|\alpha_j|^2}{W_j}, \tag{2}$$

где W_j — энергия электрона, локализованного на j-м примесном уровне, α_j — величины, равные интегралам перескока, отнесенным к концентрации примесей между узлом подрешетки УНТ и j-м примесным уровнем, D — определяет переходы электрона между двумя подрешетками УНТ:

$$D = \sum_{j=1}^{4} \frac{\alpha_{1,j}\alpha^*_{2,j}}{W_j}. \tag{3}$$

Отметим, что мы считаем переходы между примесными уровнями и первой и второй подрешеткой УНТ эквивалентными, поэтому в формуле (2) индексы 1 и 2 у интеграла перескока опущены.

Как видно из формул (2) и 3), мы рассматриваем только 4 уровня примеси, так как выявлено, что с возрастанием номера уровня его влияние ослабляется [13].

Так как электрическое поле сонаправлено оси нанотрубок OZ, то поперечные компоненты равны нулю, и имеем дело только с z-компонентой поля — $E(x, y, z, t)$. Плотность электрического тока задается аналогичным образом: $|bfj = (0, 0, j(x, y, z, t))$.

Далее запишем трехмерное волновое уравнение ненулевой компоненты векторного потенциала в цилиндрической системе координат, и с учетом калибровки $\mathbf{E} = -c^{-1}\partial\mathbf{A}/\partial t$:

$$\Box\mathbf{A} + \frac{4\pi}{c}\mathbf{j}(\mathbf{A}) + \Gamma\frac{\partial\mathbf{A}}{\partial t} - K_P\left(\frac{\partial\mathbf{A}}{\partial t}\right)^{2n_p-1} = 0, \qquad (4)$$

где c — скорость света, n_p — число поглощаемых фотонов (коэффициент при однофотонном поглощении объединен с коэффициентом накачки), K_p — коэффициент поглощения фотонов [15], $\Box$ — оператор Даламбера, Γ — определяет накачку электрического поля, которая выбиралась в виде функции супергаусса шестого порядка с амплитудой Q_Γ:

$$\Gamma = Q_\Gamma \exp\left(-\frac{r^6}{l_\Gamma^6}\right). \qquad (5)$$

Здесь l_Γ определяет ширину усиливающей среды в направлении, перпендикулярном направлению распространения импульса.

Отметим, что в случае предельно коротких импульсов усиление в двухуровневой среде либо пропорционально пройденной дистанции ($\sim z$) [16], либо описывается процессами типа отрицательной диффузии [17,18]. Здесь мы используем упрощенную модель и считаем усиление постоянным в каждой точке z [19]. В настоящей работе внимание сосредоточено на влиянии случайно распределенных примесей в УНТ и многофотонного поглощения на динамику импульса. Учет более сложных моделей усиления выходит за рамки настоящего исследования и будет проведен отдельно.

Выражение для плотности тока вдоль оси УНТ можно записать в виде [20]:

$$j = 2e\sum_{s=1}^{m}\int_{-\pi/a}^{\pi/a}\frac{\partial\varepsilon_{imp}(p, s)}{\partial p}F(p, s)dp, \qquad (6)$$

где e — заряд электрона, $F(p, s)$ — функция распределения Ферми.

Таким образом, эффективное уравнение с учетом симметрии по углу ($\partial/\partial\varphi \to 0$) в силу малости накапливаемого заряда в виду того, что поле неоднородно [21] может быть записано в виде

$$\Box A + \frac{4en_0\gamma_0 a}{c}\sum_{q=1}^{\infty}b_q\sin\left(\frac{aeqA}{c}\right)\exp\left(-\frac{t}{\tau}\right)$$
$$+\Gamma\frac{\partial A}{\partial t} - K_P\left(\frac{\partial A}{\partial t}\right)^{2n_p-1} = 0, \qquad (7)$$

где n_0 — концентрация электронов, $\gamma_0 \approx 2.7\,\text{eV}$, $a = 3b/2\hbar$, $b = 0.142\,\text{nm}$, экспонента здесь учитывает затухание поля импульса на временах, когда интенсивность импульса на его переднем фронте в e раз меньше пиковой интенсивности импульса, τ — время релаксации электронной подсистемы УНТ,

$$n_q = \sum_s \frac{q}{\gamma_0}a_{sq}\int_{-\pi/a}^{\pi/a}F(p', s)dp',$$

$$a_{sq} = \int_{-\pi/a}^{\pi/a}\int_0^{\gamma_0}\frac{\cos(pq)}{\sqrt{2\pi}\Delta}$$
$$\times\exp\left(-\frac{(D-D_0)^2}{2\Delta^2}\right)\varepsilon_{imp}(p, s, D)dDdp, \qquad (8)$$

где a_{sq} — коэффициенты в разложении закона дисперсии электронов (1) в ряд Фурье с учетом случайного распределения параметров примеси по нормальному закону, D_0 — медиана, Δ — дисперсия этого распределения. Поскольку мы считаем, что примесь распределена равномерно по объему массива УНТ и параметры примеси подвержены влиянию большого числа случайных факторов, то гауссово распределение является хорошей моделью в данном случае. Заметим, что мы явно указали аргумент D в законе дисперсии под знаком интеграла, поскольку он также зависит от переменной интегрирования.

В сумме из уравнения (7) учитываем первые 10 слагаемых, поскольку коэффициенты b_q сильно убывают при увеличении q [22].

2. Численное моделирование и результаты

Эффективное уравнение (7) после приведения к безразмерному виду решалось численно при учете начальных условий для векторного потенциала поля в виде функции Гаусса (9a) и Бесселя (9b):

$$A = Q\exp\left(-\frac{z^2}{l_z^2}\right)\exp\left(-\frac{r^2}{l_r^2}\right),$$
$$\frac{dA}{dt} = \frac{2\nu_0 zQ}{l_z^2}\exp\left(-\frac{z^2}{l_z^2}\right)\exp\left(-\frac{r^2}{l_r^2}\right), \qquad (9a)$$

$$A(r, z, 0) = QJ_0\left(\frac{r}{l_r}\right)\exp\left(-\frac{(z-z_0)^2}{l_z^2}\right)\exp\left(-\frac{r}{\gamma}\right),$$
$$\frac{dA(r, z, 0)}{dt} = \frac{Q\nu_0(z-z_0)}{l_z^2}J_0\left(\frac{r}{l_r}\right)$$
$$\times\exp\left(-\frac{(z-z_0)^2}{l_z^2}\right)\exp\left(-\frac{r}{\gamma}\right), \qquad (9b)$$

где Q — амплитуда электромагнитного импульса в начальный момент времени, l_z, l_r — ширина импульса вдоль соответствующих направлений, ν_0 — начальная

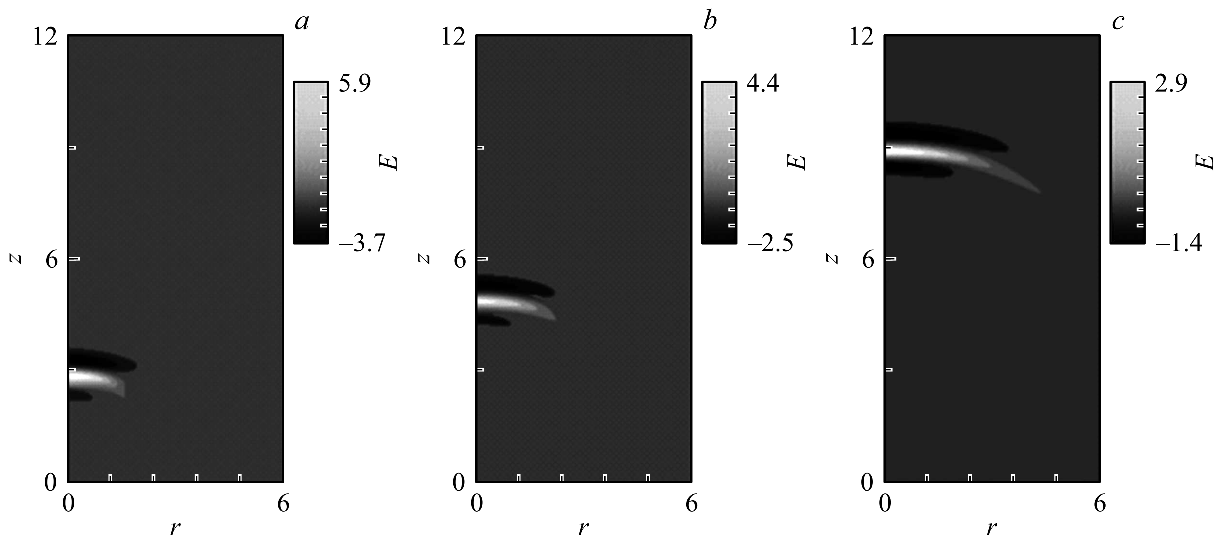

Рис. 1. Зависимость напряженности электрического поля от координат ($D_0 = -B = 0.1\gamma_0$): t, s: a — $2 \cdot 10^{-14}$, b — $6 \cdot 10^{-14}$, c — $8 \cdot 10^{-14}$. Единица по оси E — 10^7 V/m.

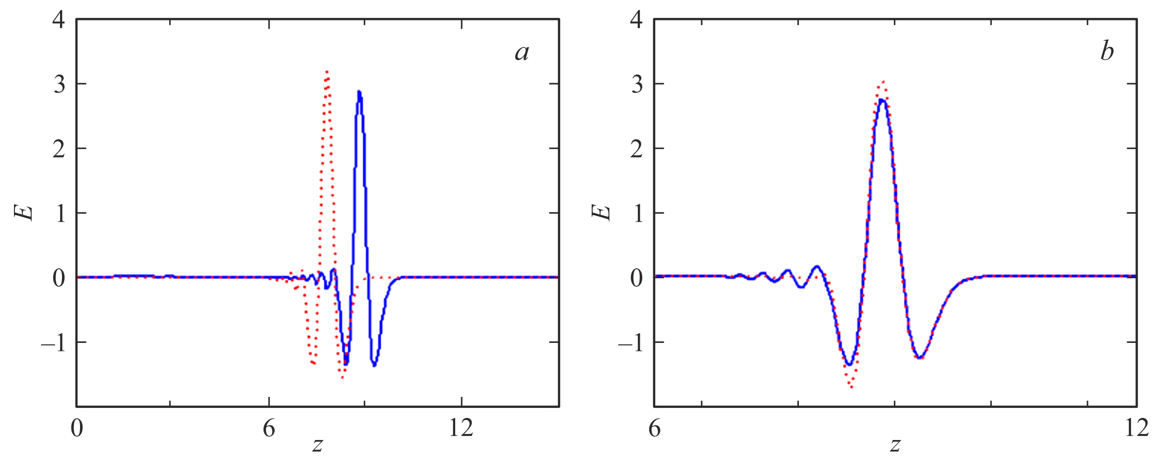

Рис. 2. Продольные срезы поля E при $r = 0$ в зависимости от координаты z для разного числа фотонов ($t = 8 \cdot 10^{-14}$ s): a — начальные условия в виде (7a); b — начальные условия в виде (7b). Сплошная кривая соответствует $n_p = 2$, пунктирная — $n_p = 3$. За единицу по оси E принято 10^7 V/m.

скорость импульса вдоль оси нанотрубок, z_0 — начальное смещение центра импульса по оси OZ, γ — параметр обрезания для функции Бесселя.

Эволюция напряженности поля предельно короткого оптического импульса при его распространении в диэлектрической среде с УНТ с учетом процессов двухфотонного поглощения представлена на рис. 1.

Рисунок демонстрирует локализованное распространение импульса, чему способствует баланс накачки и затухания.

Сравнение случаев с учетом двухфотонного и трехфотонного поглощения приведено на рис. 2.

Из рис. 2 видно, количество поглощенных фотонов влияет как на интенсивность поля, так и на пройденное импульсом расстояние. В случае трехфотонного поглощения амплитуда предельно короткого импульса больше, чем для двух фотонов. Но при этом импульс испытывает задержку. Это объясняется нелинейным поглощением и дальнейшей интерференцией, которые имеют разный характер относительно двух и трехфотонного поглощения. А именно, трехфотонное поглощение более чувствительно к процессам, идущим на фронте и спаде импульса, и менее чувствительно к процессам вблизи его максимума.

Влияние энергии переходов между примесными уровнями и подрешеками УНТ на форму предельно короткого импульса представлено на рис. 3.

Согласно рис. 3, можно заключить, что интегралы перехода между уровнями примеси и подрешетками УНТ оказывают существенное влияние на форму импульса в случае трехфотонного поглощения. Как и ранее, мы связываем это с разным характером четности

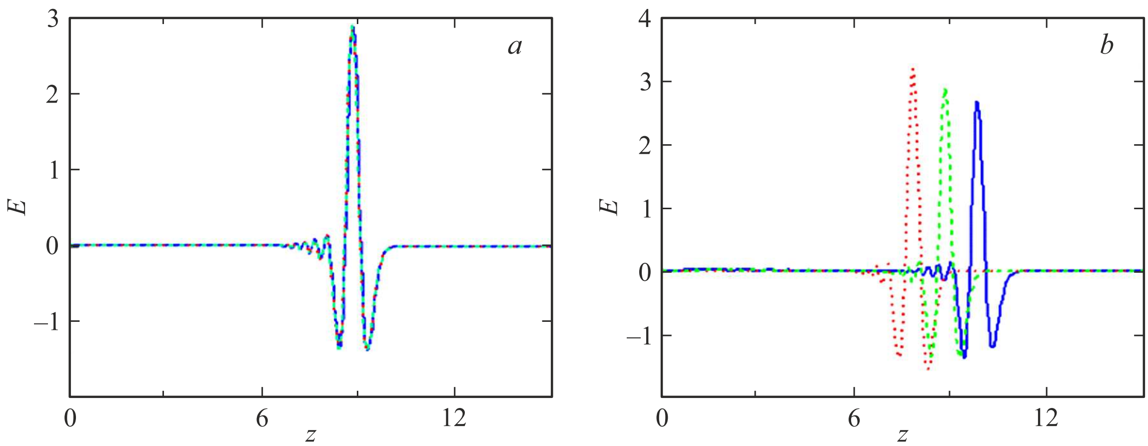

Рис. 3. Продольные срезы поля E в зависимости от координаты z для разного числа фотонов ($t = 8 \cdot 10^{-14}$ s, начальные условия (7a)); n_p: a — 2; b — 3. Сплошная кривая соответствует $D_0 = -B = 0.1\gamma_0$, штриховая — $D_0 = -B = 0.5\gamma_0$, пунктирная — $D_0 = -B = 1.0\gamma_0$. За единицу по оси E принято 10^7 V/m.

слагаемого, ответственного за нелинейное поглощение при обращении времени. А именно, если для двухфотонного поглощения вклад нелинейности, ответственной за поглощение, меньше „работает" на фронте и спаде импульса, то для трехфотонного поглощения его вклад больше.

Отметим, что в случае импульса с поперечным профилем Бесселя параметры примеси B и D не оказывают влияния на форму импульса.

Далее мы исследовали особенности распространения импульса при изменении параметров примеси, отвечающих за ее случайное распределение (D_0, Δ). Проведенные вычисления показали, что параметры случайного распределения примеси не оказывают существенного влияния на динамику импульса. Так, в случае импульса с поперечным профилем Бесселя наблюдается только влияние параметра D_0, который определяет медиану случайного распределения, которое проявляется в изменении амплитуды импульса примерно на 10%. Таким образом, даже при наличии примеси в УНТ последние можно применять в качестве элементов, помещенных в диэлектрическую среду, для локализованного распространения электромагнитного поля. Для импульса с профилем Гаусса в случае трехфотонного поглощения управляющих параметров случайно распределенной примеси больше (интегралы перехода B и D, медиана D_0 и дисперсия Δ). При этом основной эффект связан с изменением скорости распространения предельно короткого импульса при трехфотонном поглощении.

Заключение

Основные выводы можно сформулировать таким образом.

1. Построена модель взаимодействия электромагнитного импульса с нелинейной средой, содержащей УНТ со случайными примесями, при учете процессов многофотонного поглощения и поля накачки.

2. Показано, что наличие примеси со случайно распределенными параметрами в УНТ не влияет на стабильное распространение предельно короткого импульса с начальным профилем в виде функции Гаусса и Бесселя.

3. Обнаружено, что в случае модели, учитывающей трехфотонное поглощение, влияние параметров примеси проявляется в уменьшении скорости распространения предельно короткого оптического импульса.

Финансирование работы

Авторы выражают благодарность Министерству науки и высшего образования РФ в рамках государственного задания за поддержку численного моделирования (проект № 0633-2020-0003).

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

[1] S. Iijima, T. Ichihashi. Nature, **363**, 603 (1993). DOI: 10.1038/363603a0

[2] Л.В. Табулина, Т.Г. Русальская, Б.Г. Шулицкий, Ю.П. Шаман, И.В. Комиссаров, А.Г. Кароза. Известия Вузов. Химия и химическая технология, **60** (6), 89 (2017). DOI: 10.6060/tcct.2017606.5539

[3] Y. Feng, G. Zhou, G. Wang, M. Qu, Z. Yu. Chem. Phys. Lett., **375**, 645 (2003). DOI: 10.1016/S0009-2614(03)00947-3

[4] H. Ribeiro, M.C. Schnitzler, W.M. da Silva, A. Pinheiro Santos. Surfaces and Interfaces, **26**, 101389 (2021). DOI: 10.1016/j.surfin.2021.101389

[5] Y.R. Shen. *The Principles of Nonlinear Optics* (Wiley, NY., 1984)

[6] Н.Н. Конобеева, С.В. Белибихин, М.Б. Белоненко. Опт. и спектр., **130** (6), 974 (2022). DOI: 10.21883/OS.2022.06.52642.3043-21
[7] M. Chernysheva, A. Rozhin, Y. Fedotov, C. Mou, R. Arif, S.M. Kobtsev, E.M. Dianov, S.K. Turitsyn. Nanophotonics, **6** (1), 1 (2017). DOI: 10.1515/nanoph-2015-0156
[8] P. Avouris, M. Freitag, V. Perebeinos. Nature Photonics, **2**, 341 (2008). DOI: 10.1038/nphoton.2008.94
[9] Y.-T. Li, K. Sun, D. Luo, Y.-M. Wang, L. Han, H. Liu, X.-L. Guo, D.-L. Yu, T.-L. Ren. AIP Advances, **11**, 110701 (2021). DOI: 10.1063/5.0063774
[10] D. Yamashita, H. Machiya, K. Otsuka, A. Ishii, Y.K. Kato. APL Photonics, **6**, 031302 (2021). DOI: 10.1063/1.4899127
[11] Z. Ma, L. Yang, L. Liu, S. Wang, L.-M. Peng. ACS Nano, **14** (6), 7191 (2020). DOI: 10.1021/acsnano.0c02139
[12] K. Keu, R.J. Jones, N. Peyghambarian. IEEE Photonics Tech. Lett., **22** (20), 1521 (2010). DOI: 10.1109/LPT.2010.2063423
[13] Э.Г. Федоров, Н.Н. Конобеева, М.Б. Белоненко. Химическая физика, **33** (5), 96 (2014). DOI: 10.7868/S0207401X14050057 [E.G. Fedorov, N.N. Konobeeva, M.B. Belonenko. Russ. J. Phys. Chem. B, **8** (3), 409 (2014). DOI: 10.1134/S1990793114030051]
[14] А.В. Елецкий. УФН, **167**, 945 (1997). DOI: 10.3367/UFNr.0167.199709b.0945 [A.V. Eletskii. Phys. Usp., **40**, 899 (1997). DOI: 10.1070/PU1997v040n09ABEH000282]
[15] В.А. Халяпин, А.Н. Бугай. Известия РАН. Серия физическая, **86** (1), 29 (2022). DOI: 10.31857/S0367676522010148 [V.A. Khalyapin, A.N. Bugay. Bull. Rus. Academy Sci.: Phys., **86** (1), 13 (2022). DOI: 10.3103/S1062873822010130]
[16] Э.М. Беленов, П.Г. Крюков, А.В. Назаркин, А.Н. Ораевский, А.В. Усков. Письма в ЖЭТФ, **47** (9), 442 (1988). [E.M. Belenov, P.G. Kryukov, A.V. Nazarkin, A.N. Oraevskii, A.V. Uskov. JETP Lett., **47**, 523 (1988).]
[17] С.В. Сазонов. Письма в ЖЭТФ, **114** (3), 160 (2021). DOI: 10.31857/S1234567821150040 [S.V. Sazonov. JETP Lett., **114** (3), 132 (2021). DOI: 10.1134/S0021364021150091]
[18] S.V. Sazonov, Laser Phys.Lett., **18**, 105401 (2021). DOI: 10.1088/1612-202X/ac22b6
[19] О. Звелто. *Принципы лазеров* (Лань, СПб, 2008)
[20] Э.М. Эпштейн. ФТТ, **19**, 456 (1976).
[21] A.V. Zhukov, R. Bouffanais, E.G. Fedorov, M.B. Belonenko. J. Appl. Phys., **114**, 143106 2013). DOI: 10.1063/1.4824370
[22] M.B. Belonenko, E.V. Demushkina, N.G. Lebedev. J. Rus. Las. Res., **27**, 457 (2006). DOI: 10.1007/s10946-006-0027-7