

01;05;09

Периодические домены тока в пучках углеродных нанотрубок

© М.Б. Белоненко,¹ Е.В. Демушкина,² Н.Г. Лебедев²

¹ Волгоградский государственный архитектурно-строительный университет,
400074 Волгоград, Россия
e-mail: mbelonenko@yandex.ru

² Волгоградский государственный университет,
400062 Волгоград, Россия
e-mail: nikolay.lebedev@volsu.ru

(Поступило в Редакцию 5 июня 2007 г.)

Исследована динамика распространения периодических электромагнитных волн и индуцируемого ими тока в пучках углеродных нанотрубок. Рассмотрение проводится на основе анализа связанных уравнений на классическую функцию распределения электронов углеродных нанотрубок и уравнений Максвелла для электромагнитного поля. Получено эффективное уравнение, описывающее динамику электромагнитного поля. Выявлены периодические изменения формы электромагнитной волны при распространении в углеродной среде. Подобный эффект связывается с обменом энергией между периодическими колебаниями с разными периодами. Соответствующие области тока, протекающего через углеродные нанотрубки, образуют периодическую доменную структуру. Приведены результаты численных расчетов, позволяющие рассмотреть данный эффект в зависимости от параметров задачи.

PACS: 81.07.De, 78.67.Ch, 42.65.Ky

Введение

Развитие современных технологий предъявляет все более высокие требования к научным разработкам, в особенности в области явлений наномасштабных структур [1]. Уникальные свойства углеродных нанотрубок (УНТ) [2] привели к их широкому изучению и применению в рамках нелинейной оптики. Одним из основных и наиболее перспективных направлений в этой области является исследование распространения в УНТ ультракоротких импульсов света (оптических солитонов) [3–5]. Одной из основных целей современной оптики является создание полностью оптических приборов, в которых светом можно управлять с помощью света [5]. Это привело к тому, что в последнее время наблюдается бурный рост исследований оптических эффектов, связанных со взаимодействием электромагнитных солитонов. Этот интерес стимулируется как успешными экспериментами, в которых получены многомерные оптические солитоны (устойчивые локализованные световые структуры), так и появлением новых материалов, являющихся достаточно перспективными для построения полностью оптических приборов. Поскольку нелинейные свойства УНТ в оптическом диапазоне широко известны [3,4,6], задача поиска оптических солитонов в УНТ представляется достаточно важной и актуальной. Все вышесказанное подтверждает актуальность данной работы.

Модель

Исследование электронной структуры УНТ проведено в достаточно большом количестве работ [2] и, как правило, проводится в рамках анализа динамики π -электронов

в приближении сильной связи. Так, в рамках данной модели закон дисперсии, который описывает электронно-энергетические свойства графена, имеет вид [2]:

$$E(\mathbf{p}) = \pm \gamma \sqrt{1 + 4 \cos(ap_x) \cos(ap_y/\sqrt{3}) + 4 \cos^2(ap_y/\sqrt{3})},$$

где $\gamma \approx 2.7 \text{ eV}$, $a = 3b/2\hbar$, $b = 0.142 \text{ nm}$ — расстояние между соседними атомами углерода в графене, $\mathbf{p} = (p_x, p_y)$. Отметим, что разные знаки относятся к зоне проводимости и валентной зоне. Для получения закона дисперсии в случае УНТ достаточно учесть способ сворачивания графеновой плоскости в цилиндр и наложить условия квантования квазиимпульса \mathbf{p} в направлении вдоль окружности УНТ. Для УНТ типа „zigzag“ дисперсионное уравнение имеет вид

$$E(\mathbf{p}) = \pm \gamma \sqrt{1 + 4 \cos(ap_z) \cos(\pi s/m) + 4 \cos^2(\pi s/m)}, \quad (1)$$

где квазиимпульс \mathbf{p} задается как (p_z, s) , $s = 1, 2, \dots, m$.

При построении модели распространения ультракороткого оптического импульса в пучках нанотрубок в случае геометрии, представленной на рис. 1, будем описывать электромагнитное поле импульса классически, на основании уравнений Максвелла [7]. Так, в калибровке $\mathbf{E} = -\frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t}$ уравнения Максвелла с учетом диэлектрических и магнитных свойств УНТ можно записать как

$$\frac{\partial^2 \mathbf{A}}{\partial x^2} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{A}}{\partial t^2} + \frac{4\pi}{c} \mathbf{j} = 0, \quad (2)$$

причем здесь пренебрегая дифракционным расплыванием лазерного пучка в направлениях, перпендикулярных оси распространения. Вектор-потенциал \mathbf{A} имеет вид $\mathbf{A} = (0, 0, A_z(x, t))$.

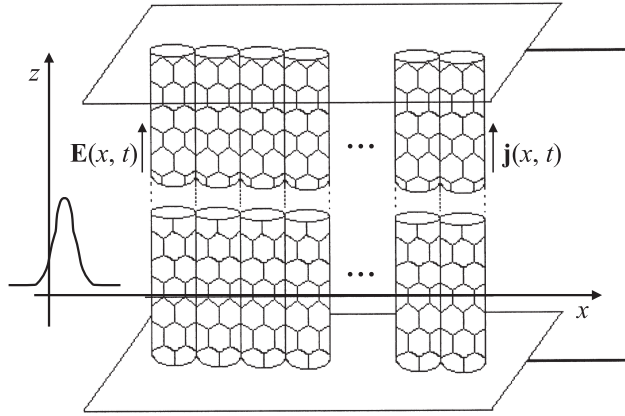


Рис. 1. Геометрия задачи.

Для определения тока воспользуемся полуклассическим приближением [8], взяв закон дисперсии (1) из квантово-механической модели и описывая эволюцию ансамбля частиц классическим кинетическим уравнением Больцмана в приближении времен релаксации:

$$\frac{\partial f}{\partial t} - \frac{q}{c} \frac{\partial A_z}{\partial t} \frac{\partial f}{\partial p_z} = \frac{F_0 - f}{\tau}, \quad (3)$$

Отметим, что в (3) функция распределения $f = f(p_z, s, t)$ неявно зависит от координаты x в силу зависимости от x компоненты вектор-потенциала A_z , следующей из формулы (2); F_0 — равновесная функция распределения Ферми:

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

где T — температура, k_b — постоянная Больцмана.

Время релаксации τ можно оценить, согласно [9], как примерно $3 \cdot 10^{-13}$ с. Отметим также, что при записи уравнения (3) пренебрегалось эффектами, связанными с неоднородностью электромагнитного поля вдоль оси нанотрубки. С одной стороны, это оправдано уже введенным выше предположением о плоском характере волнового фронта лазерного импульса. С другой стороны, за пределами рассмотрения данной работы остается круг вопросов, связанный с наличием подложки, на которой и выращиваются нанотрубки. Так, в частности, учет подложки может привести к наличию в данной системе аналогов поверхностных волн, рассмотрение которых явно выходит за рамки данной работы. Также учет подложки необходим и для рассмотрения круга эффектов, связанных с накоплением в ней заряда и появлением дополнительного электрического поля, направленного вдоль оси нанотрубки.

Необходимо отметить и то обстоятельство, что в рамках используемой нами полуклассической модели не учтены межзонные переходы, что, как показано в [7], дает ограничение на максимальную частоту лазерных импульсов. Так, для наиболее распространенных нано-

трубок данная частота лежит в ближней инфракрасной области.

Уравнение (3) легко решается методом характеристик [10]:

$$f = F_0 \left(p_z + \frac{q}{c} A_z(t) \right) e^{-t/\tau} + \frac{1}{\tau} \int_{-\infty}^t e^{-(t-t')/\tau} F_0 \left(p + \frac{q}{c} (A_z(t) - A_z(t')) \right) dt', \quad (4)$$

и с учетом вышесказанного можно записать выражение для плотности тока $\mathbf{j} = (0, 0, j_z)$:

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

где

$$v_z = \partial E(\mathbf{p}) / \partial p_z.$$

Выражения (2), (3), (5) составляют основную систему уравнений, описывающую рассматриваемую модель.

Эффективное уравнение для вектор-потенциала электрического поля

Учтем, что время релаксации τ мало, это позволяет пренебречь первым слагаемым в (4). После замены $p \rightarrow p - \frac{q}{c}(A_z(t) - A_z(t'))$ выражение для плотности тока примет вид:

$$j_z = \frac{q}{\pi \hbar \tau} \sum_s \int_{-\infty}^t \int_{-q_0}^{q_0} dt' dp_z v_z \left(p - \frac{q}{c} (A_z(t) - A_z(t')) \right) \times F_0(\mathbf{p}) e^{-(t-t')/\tau},$$

где интегрирование ведется по первой зоне Бриллюэна и $q_0 = \frac{2\pi \hbar}{3b}$. Функцию $v_z(x)$ представим (с учетом зависимости закона дисперсии и равновесной функции распределения F_0 от индекса s) в виде ряда Фурье:

$$v_z(s, x) = \sum_m a_{ms} \sin(mx),$$

$$a_{ms} = \frac{1}{\pi} \int_{-\pi}^{\pi} v_z(s, x) \sin(mx) dx.$$

Отметим, что коэффициенты разложения a_{ms} убывают с ростом m , и с достаточной степенью точности можно ограничиться первыми несколькими не исчезающими слагаемыми. Конкретные данные для коэффициентов на примере УНТ (6,0) можно найти в таблице. Тогда плотность тока

$$j_z = \frac{q}{\pi \hbar \tau} \sum_{ms} a_{ms} \int_{-\infty}^t dt' \sin\left(\frac{maq}{c} (A_z(t) - A_z(t'))\right) e^{-(t-t')/\tau} \times \int_{-q_0}^{q_0} dp_z \cos(ma p_z) F_0(\mathbf{p}).$$

Коэффициенты a_{ms} для нанотрубки (6,0) в единицах параметра γ

m	s					
	1	2	3	4	5	6
1	-0.956	-0.849	0	0.849	0.956	0.967
2	0.263	0.339	0	0.339	0.263	0.233
3	-0.111	-0.218	0	0.218	0.111	0.086
4	0.052	0.162	0	0.162	0.052	0.035
5	-0.026	-0.127	0	0.129	0.026	0.015
6	0.013	0.106	0	0.106	0.013	0.007
7	-0.007	-0.091	0	0.091	0.007	0.003

Для исследования интеграла, содержащего временную экспоненту, воспользуемся широко известным в теории полупроводниковых сверхрешеток приемом [11,12], согласно которому после замены переменных $\rho = t - t'$ временной интеграл можно свести к

$$\int_{-\infty}^0 d\rho \exp(-\rho/\tau) \sin\left(\frac{maq}{c}(A_z(t-\rho) - A_z(t))\right).$$

Тогда, обозначив $w = \rho/\tau$, получим:

$$\int_{-\infty}^0 dw \exp(-w) \sin\left(\frac{maq}{c}(A_z(t-w\tau) - A_z(t))\right).$$

Ищем решение в классе быстроубывающих или периодических функций. В первом случае для функции $A_z(t)$ в классе быстроубывающих функций, принимая в учет то обстоятельство, что время τ все-таки достаточно велико при типичных длительностях ультракоротких лазерных импульсов, получаем $A_z(t - w\tau) \approx A_z(-\infty) = 0$. В случае периодических граничных условий к нулю в силу изменения знака синуса стремится выражение $\int_{-\infty}^0 dw \exp(-w) \sin\left(\frac{maq}{c}(A_z(t - w\tau))\right)$.

В обоих случаях временной интеграл приводится к виду

$$\sin\left(\frac{maq}{c}A_z(t)\right) \int_{-\infty}^0 d(-w) \exp(-w).$$

Таким образом, эффективное уравнение можно записать в виде

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

$$c_m = \sum_s a_{ms} b_{ms}, \quad b_{ms} = \int_{-q_0}^{q_0} dp_z \cos(ma p_z) F_0(\mathbf{p}). \quad (6)$$

Как показали результаты численных расчетов, коэффициенты b_{ms} сильно убывают с ростом m при любых

температурах. При температурах порядка комнатных, в силу того что $\gamma \approx 2.7 \text{ eV}$, можно воспользоваться низкотемпературным пределом для функции распределения Ферми.

Все вышесказанное приводит к тому, что, вследствие убывания коэффициентов c_m с ростом m в сумме в уравнении (6), можно ограничиться первыми двумя неисчезающими слагаемыми и получить широко применяемое в приложениях, но не интегрируемое методом обратной задачи рассеяния, двойное уравнение sine-Gordon [13]. Важное достоинство данного уравнения — из него следует теорема площадей, а именно: устойчивы по отношению к изменению формы только импульсы, имеющие определенную „площадь“ („площадь“ импульса $\psi(t)$ определена как $\int_{-\infty}^{\infty} \psi(t) dt$). Импульсы, имеющие большую „площадь“, наоборот, увеличивают ее. Второе, что неоднократно [14,15] отмечалось исследователями двойного уравнения sine-Gordon, — в случае быстро убывающих граничных условий характер взаимодействия импульсов и, главное, характер распада одиночного импульса сильно зависит от его скорости. При увеличении скорости импульсы начинают взаимодействовать все более и более упруго, и меньшая часть их энергии уходит в колебательные моды.

Электромагнитный импульс в пучках углеродных нанотрубок

Особенный интерес представляют результаты исследования динамики импульса электромагнитного поля в нанотрубках разного диаметра. Исследуемые уравнения (2), (3), (5) решались численно при помощи прямой разностной схемы типа „крест“ [16]. Шаги по времени и координате определялись из стандартных условий устойчивости. Шаги разностной схемы уменьшались последовательно в два раза, до тех пор пока решение не изменялось в 8-м значащем знаке.

На рис. 2 представлены результаты исследования изменения формы электромагнитного импульса в зависимости от диаметра нанотрубок ($m, 0$). Соответствующие изменения формы импульсов тока представлены на рис. 3.

Поскольку ток определяется функцией распределения электронов, которая описывается в рамках кинетического уравнения Больцмана в приближении конечного времени релаксации, то электронной системе требуется некоторое время, чтобы ее функция распределения приняла вид, требуемый полем. И импульсы тока будут отставать от импульсов электромагнитного поля. Также очевидно, что интегрирование (усреднение) в (5) приводит к более гладкой форме импульсов тока.

Отметим и уменьшение суммарного тока, протекающего через систему нанотрубок при прохождении электромагнитного импульса, при увеличении атомов вдоль окружности нанотрубки, что представлено на рис. 4.

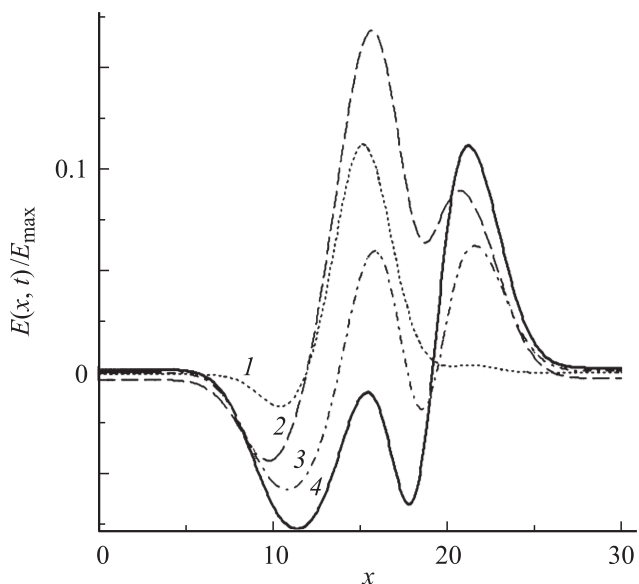


Рис. 2. Формы электромагнитных импульсов при распространении в пучках нанотрубок ($m, 0$) для момента времени $t = 5\tau$: 1 — $m = 6$, 2 — 8, 3 — 10, 4 — 12.

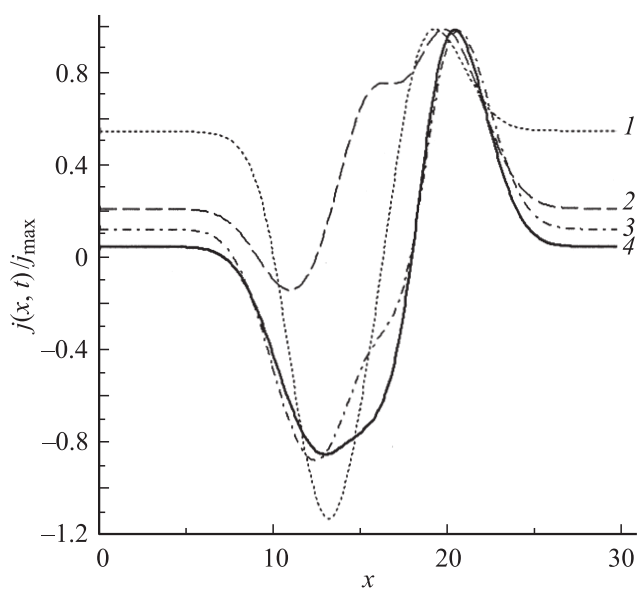


Рис. 3. Формы импульсов тока при распространении в пучках нанотрубок ($m, 0$) электромагнитного одиночного импульса для момента времени $t = 5\tau$. Номера кривых соответствуют значениям m (см. рис. 2).

Такое поведение можно непосредственно связать с изменениями формы импульса электромагнитного поля. Так, при увеличении числа атомов вдоль окружности нанотрубки (т.е. при росте m) увеличивается количество „пиков“ в импульсе. Данный эффект никак не связан с хиральными свойствами, т.е. с тем, является нанотрубка проводником (m кратно 3) или полупроводником. Это еще можно объяснить тем, что при увеличении диаметра нанотрубки растет число типов колебаний электронов (мод), описываемых (1). Это, в свою очередь, приводит к

росту коэффициентов c_m в (6), а значит, и к тому, что система становится более „удаленной“ от интегрируемой. Обмен энергией между колебаниями электронов (модами) приводит к изменению формы импульса и появлению дополнительных „пиков“ в импульсе. Дополнительным свидетельством в пользу такого механизма является изменение формы импульсов электромагнитного поля при изменении времени релаксации в уравнении (3), что представлено на рис. 5.

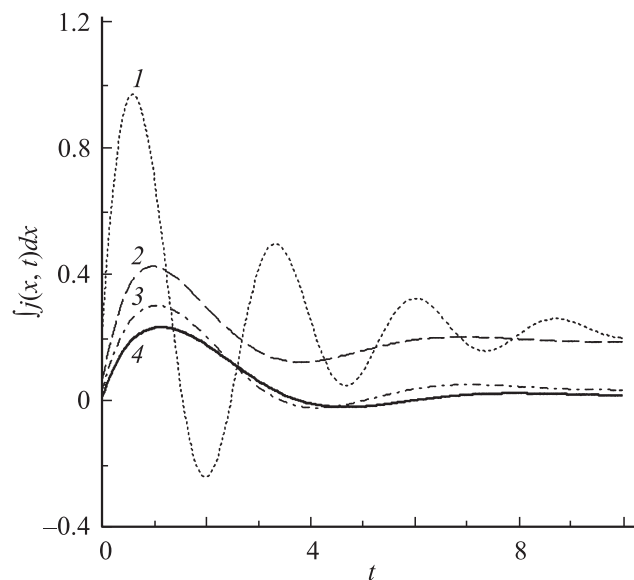


Рис. 4. Суммарный ток, протекающий через пучок нанотрубок, как функция времени. Нормировано на максимальное значение тока для нанотрубки (6, 0). Номера кривых соответствуют значениям m (см. рис. 2).

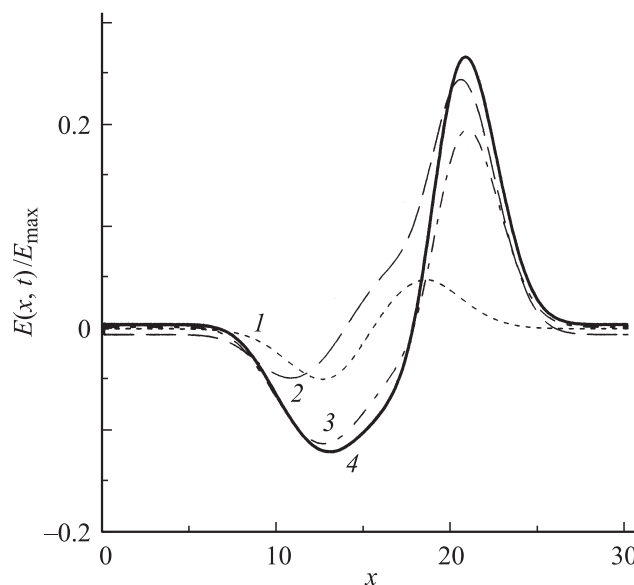


Рис. 5. Изменение формы импульсов электромагнитного поля при изменении времени релаксации (время уменьшено в 2 раза по сравнению с рис. 2) для функции распределения электронов. Остальные параметры и соответствие кривых различным m не изменилось.

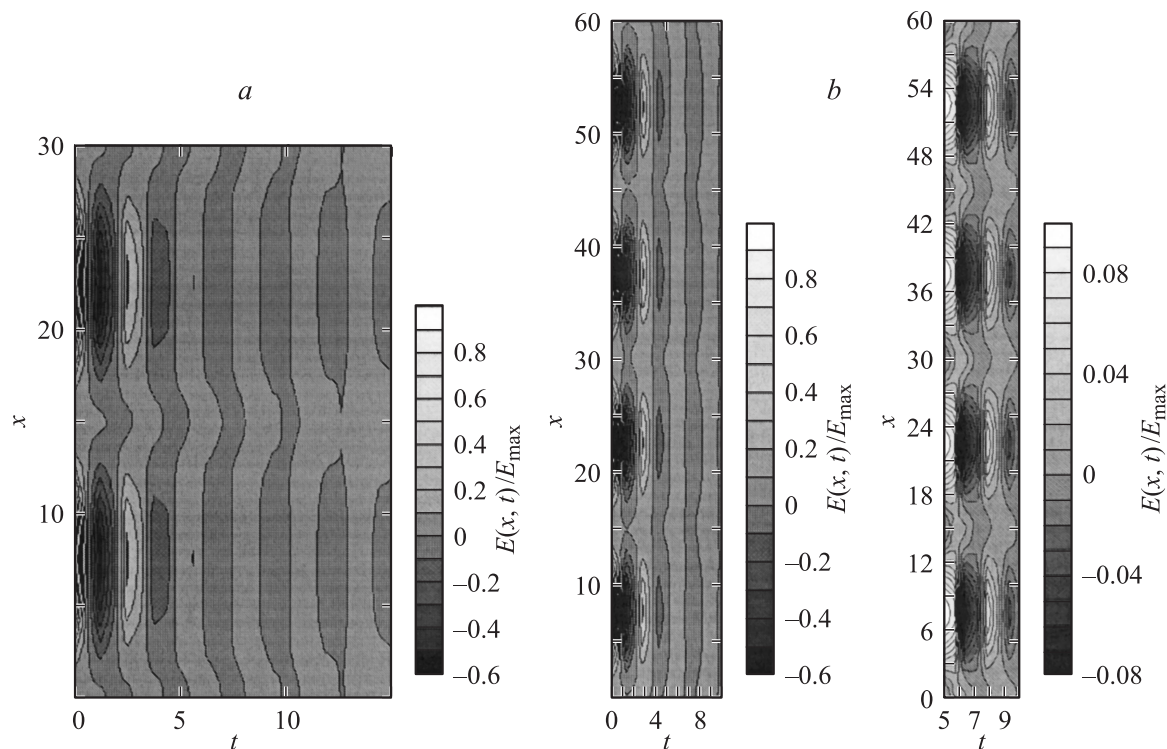


Рис. 6. Распространение импульса электромагнитного поля в системе УНТ: *a* и *b* — разные начальные условия. Яркость выражена в процентах от амплитуды начального импульса, по оси *x* отложено расстояние в μm , по оси *y* — время в единицах τ .

Уменьшение времени релаксации приводит к тому, что электронная подсистема отслеживает изменения в амплитуде электромагнитного поля более быстро, а значит, следует за этими изменениями, не успевая испытать дисперсионное „расплывание“ мод, следующее из закона дисперсии (1). Вследствие этого форма электромагнитного импульса имеет меньше „колебаний“ при уменьшении времени релаксации, что отображено на рис. 5.

Заметим, что при увеличении числа атомов вдоль окружности нанотрубки форма электромагнитного импульса меньше зависит от начальной групповой скорости импульса. Подобное поведение опять-таки связано с тем, что изменение формы импульса определяется числом электронных колебаний, описываемых законом дисперсии (1).

Также необходимо отметить, что подробное исследование двойного уравнения sine-Gordon проводилось только в случае быстроубывающих граничных условий, и ряд особенностей эволюции начального возмущения следующих из требования периодичности граничных условий остался вне рассмотрения. Все это и послужило стимулом для дальнейшего численного исследования системы уравнений (3), (5), (6).

Токовые домены

Исследована динамика распространения периодических электромагнитных волн в пучках углеродных нано-

трубок типа „zig-zag“. При построении модели распространения пучка ультракоротких оптических импульсов в системе нанотрубок использована геометрия, представленная на рис. 1. Распространение периодического пучка импульсов при различных начальных условиях представлено на рис. 6. Видно, что в процессе распространения, на начальном этапе, происходит появление и исчезновение „лишних“ максимумов, т.е. начальное возмущение, имевшее два максимума (рис. 6, *a*), в ходе эволюции приобретает дополнительный максимум, который в дальнейшем исчезает. Данное поведение можно связать с обменом энергией между разными модами, которые характеризуются разными периодами. Отметим, что в данной системе существует достаточно много мод электронных колебаний, закон дисперсии для которых задается выражением (1). Взаимодействие между такими модами и приводит, на наш взгляд, к наблюдаемой картине. Также заметим, что подобное поведение можно связать и с периодическими решениями уравнения sine-Gordon, которые выражаются через функции Вейерштрасса. Взаимодействие между такими решениями вследствие неинтегрируемости системы и дает картину, приведенную выше.

Последовательная эволюция формы периодического электромагнитного импульса при распространении в системе нанотрубок приведена на рис. 7, а эволюция соответствующего импульса тока — на рис. 8. Моменты времени на рис. 7 и 8 одинаковы.

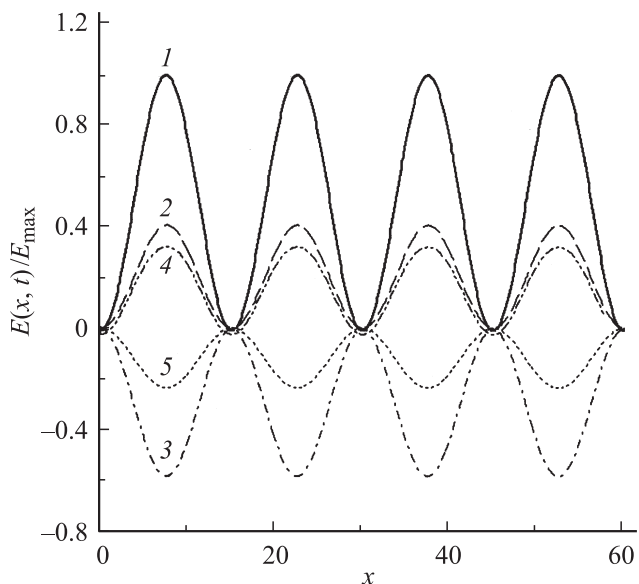


Рис. 7. Эволюция формы электромагнитного импульса при распространении в пучке нанотрубок (здесь и далее по оси абсцисс за единицу принят $1 \mu\text{m}$) для моментов времени: 1 — $t = 0$, 2 — 0.5τ , 3 — 1.5τ , 4 — 2.5τ , 5 — 4τ .

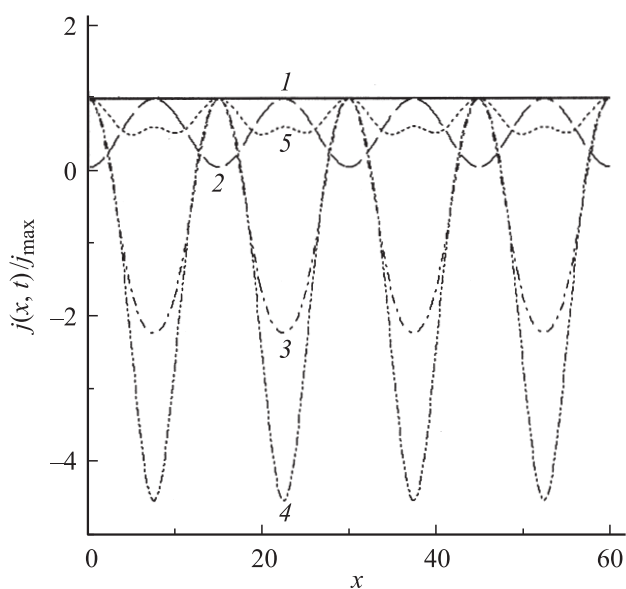


Рис. 8. Эволюция формы импульса тока при распространении в пучке нанотрубок. Моменты времени те же, что и на рис. 7.

Необходимо обратить внимание на то, что динамика импульсов тока также отстает от динамики электромагнитного поля, что объяснялось ранее.

Отметим, что в ходе эволюции импульсы тока приняли регулярную периодическую структуру, характеризующуюся наличием областей с различным направлением тока. Хотя ток внутри таких областей и испытывает периодические изменения как по величине, так и по направлению с течением времени, деление на области сохраняется. Так, различные области могут характери-

зоваться, например, различными амплитудами тока в них. Исходя из этого можно сделать заключение, что в процессе распространения электромагнитной волны в пучке углеродных нанотрубок возникает периодическая структура токов, которая может быть названа доменной. Домены тока здесь возникают из-за взаимодействия периодической электромагнитной волны с системой неравновесных электронов в углеродных нанотрубках.

Заметим, что никаких особенностей эволюции электромагнитного импульса в зависимости от того, с какой групповой скоростью он начинал свое движение в системе нанотрубок, не наблюдалось. На наш взгляд, это связано с независимостью системы уравнений на функцию распределения электронов от скорости в явном виде и с лоренц-инвариантностью уравнений Максвелла.

При варьировании начальных условий, т.е. при изменении формы цуга электромагнитных импульсов, входящих в систему УНТ, наблюдалась эволюция начальных состояний, подобно приведенной на рис. 6. Отметим явную аналогию получившихся осциллирующих состояний с бризерными решениями уравнения sine-Gordon. Особенно сильно характер эволюции зависел, как показали результаты численных расчетов, от времени релаксации функции распределения электронов к равновесному значению.

Заключение

Из приведенного исследования можно сделать следующие выводы.

1. Получена система уравнений, описывающая динамику одиночного ультракороткого лазерного импульса и их периодической последовательности в пучках углеродных нанотрубок, описаны основные приближения.

2. Получено эффективное уравнение для динамики электрического поля в пучке углеродных нанотрубок, которое имеет вид, аналогичный двойному уравнению sine-Gordon. Оценены вклады высших гармоник, которые вносят возмущение в эффективное двойное уравнение sine-Gordon.

3. Суммарный ток, индуцируемый в нанотрубках, определяется временем релаксации функции распределения электронов к равновесному значению.

4. Периодический цуг электромагнитных импульсов при прохождении системы углеродных нанотрубок проходит за время своей эволюции стадии, аналогичные поведению бризеров уравнения sine-Gordon.

5. Импульсы тока генерируются с запаздыванием по отношению к инициирующим импульсам электромагнитного поля, что связано с описанием динамики электронов в рамках классического кинетического уравнения Больцмана в приближении времени релаксации.

6. В ходе распространения периодической электромагнитной волны возникают области с различными значениями амплитуды тока в них, которые могут быть интерпретированы как домены тока.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант № 07-03-96604).

Список литературы

- [1] Пул Ч., Оуэнс Ф. Нанотехнологии. М.: Техносфера, 2004. 328 с.
- [2] Харрис П. Углеродные нанотрубы и родственные структуры. Новые материалы XXI века. М.: Техносфера, 2003. 336 с.
- [3] Maksimenko S.A., Slepuyan G.Ya. Handbook of nanotechnology. Nanometer structure: theory, modeling, and simulation. Bellingham: SPIE press, 2004. P. 145–206.
- [4] Квишарь Ю.С., Агравал Г.П. Оптические солитоны. От волоконных световодов до фотонных кристаллов. М.: Физматлит, 2005. 648 с.
- [5] Гиббс Х. Оптическая бистабильность. Управление светом с помощью света. М.: Мир, 1988. 520 с.
- [6] Slepuyan G.Ya, Maksimenko S.A., Kalosha V.P., Herrmann J., Campbell E.E.B., Hertel I.V. // Phys. Rev. A. 1999. Vol. 60. N 2. P. R777.
- [7] Ландау Л.Д., Лифшиц Е.М. Теоретическая физика. Т. VIII. Электродинамика сплошных сред. М.: Наука, 1982. 621 с.
- [8] Ландау Л.Д., Лифшиц Е.М. Теоретическая физика. Т. X. Физическая кинетика. М.: Наука, 1979. 528 с.
- [9] Tans S.J., Devoret M.H., Dai H., Thess A., Smalley R.E., Geerligs L.J., Dekker C. // Nature. 1997. Vol. 386. N 3. P. 474.
- [10] Крючков С.В. Полупроводниковые сверхпроводники в сильных полях. Волгоград: Перемена, ВПИУ, 1992. 67 с.
- [11] Басс Ф.Г., Булгаков А.А., Тетерев А.П. Высокочастотные свойства полупроводников со сверхрешетками. М.: Наука, 1989. 288 с.
- [12] Эпштейн Э.М. // ФТТ. 1977. Т. 19. Вып. 11. С. 3456.
- [13] Kitchenside P.W., Caudrey P.J., Bullough R.K. // Phys. Scr. 1979. Vol. 20. P. 673.
- [14] Захаров В.Е., Манаков С.В., Новиков С.П., Питаевский Л.П. Теория солитонов: метод обратной задачи. М.: Наука, 1980. 342 с.
- [15] Бахвалов Н.С. Численные методы (анализ, алгебра, обыкновенные дифференциальные уравнения). М.: Наука, 1975. 632 с.
- [16] Горшков К.А., Островский Л.А., Папко В.В. // ЖЭТФ. 1976. Т. 71. С. 585.