Предельно короткие импульсы в оптически анизотропной среде с углеродными нанотрубками с учетом многофотонного поглощения

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

Волгоградский государственный университет, 400062 Волгоград, Россия

e-mail: yana_nn@volsu.ru

Поступила в редакцию 17.12.2021 г. В окончательной редакции 31.01.2022 г. Принята к публикации 08.02.2022 г.

> Исследовано влияние многофотонного поглощения на процесс распространения электромагнитных волн в нелинейной оптически анизотропной среде с углеродными нанотрубками. Получено эффективное уравнение на векторный потенциал электромагнитного поля импульса с учетом второй компоненты поляризации поля, а также двух- и трехфотонных процессов поглощения. Выявлена зависимость компонент поля импульса от параметров задачи.

Ключевые слова: оптическая анизотропия, предельно короткий импульс, многофотонное поглощение.

DOI: 10.21883/OS.2022.06.52642.3043-21

Ввведение

В последние годы популярным становится направление, связанное с изучением особенностей взаимодействия мощного электромагнитного излучения с веществом, что находит много практических приложений в самых неожиданных областях, в том числе биологии, астрофизике и многих других [1,2].

Важно отметить, что при высокой интенсивности излучения главную роль играют многофотонные процессы. Это означает, что в элементарном акте взаимодействия света с атомом вещества поглощается не один, а несколько фотонов.

Со времени теоретической работы М. Гепперт-Майер в 1931 г. этот процесс поглощения широко изучался изза его значения как для фундаментальной науки, так и для технологических приложений. Например, этот процесс можно использовать для преобразования частоты, чтобы реализовать свет с частотой, для которой нет доступных источников света. С фундаментальной точки зрения науки, многофотонные процессы можно использовать для изучения и контроля тех квантовых состояний и химических реакций, к которым нельзя получить доступ с помощью однофотонного процесса [3].

Многофотонное поглощение является причиной многих интересных эффектов в различных средах. Нас в первую очередь будут интересовать среды, содержащие углеродные нанотрубки (УНТ) [4], которые хорошо зарекомендовали себя с точки зрения стабилизации импульса при его распространении в среде с УНТ [5,6]. Отметим лишь некоторые из нелинейных оптических эффектов, вызванных многофотонными процессами. Например, фотолюминесценция в многослойных УНТ и суспензиях графита [7]. Авторы работы [8] предлагают подход для расширения характеристик оптических ограничителей в широком спектральном и временном диапазонах за счет комбинации нелинейного рассеяния от одностенных УНТ и многофотонного поглощения от органических хромофоров. Также отметим, что двухфотонное поглощение представляет собой элегантный метод определения экситонных эффектов в УНТ [9].

В данной работе помимо многофотонного поглощения будут учтены также оптически анизотропные свойства нелинейной среды [10,11], т.е. влияние самой общей поляризации на распространение предельно коротких импульсов.

Модель и основные уравнения

Рассмотрим диэлектрическую анизотропную среду, в которую помещены УНТ с примесью. Оси декартовой системы координат сонаправлены осям кристалла. Оси УНТ лежит в плоскости XOY и образует с осью OX угол α . Направление электрического поля совпадает с осью OX [12].

Закон дисперсии для электронов УНТ имеет вид [13]

$$\varepsilon(p,s) = \pm \gamma_0 \sqrt{1 + 4\cos(ap)\cos\left(\frac{\pi s}{m}\right) + 4\cos^2\left(\frac{\pi s}{m}\right)},$$
(1)

где s = 1, 2, ..., m, нанотрубка имеет тип (m, 0), $\gamma_0 \approx 2.7 \text{ eV}, a = 3b/2, b$ — расстояние между соседними атомами углерода.

Вектор потенциал имеет вид: $\mathbf{A} = (A_x(x, y, z, t), A_y(x, y, z, t), 0)$, плотность электрического тока $\mathbf{j} = (j_x(x, y, z, t), j_y(x, y, z, t), 0)$.

Используя переход к цилиндрической системе координат, а также учитывая калибровку $\mathbf{E} = -c^{-1}\partial \mathbf{A}/\partial t$, запишем трехмерное волновое уравнение на две компоненты

векторного потенциала:

$$A_{x} + \frac{4\pi}{c} j_{x}(A_{x})f(t) + \Gamma_{x} \frac{\partial A_{x}}{\partial t} - F_{1} \left(\frac{\partial A_{x}}{\partial t}\right)^{2n_{p}-1} = 0,$$

$$A_{y} + \frac{4\pi}{c} j_{y}(A_{y})f(t) + \Gamma_{y} \frac{\partial A_{y}}{\partial t} - F_{1} \left(\frac{\partial A_{y}}{\partial t}\right)^{2n_{p}-1} = 0, \quad (2)$$

где первое слагаемое в уравнениях (2) представляет собой оператор Даламбера в цилиндрической системе координат, действующий на компоненты векторного потенциала (A_x, A_y) :

$$\Box A_{x} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial A_{x}}{\partial r} \right) + \frac{\partial^{2} A_{x}}{\partial z^{2}} + \frac{1}{r^{2}} \frac{\partial^{2} A_{x}}{\partial \phi^{2}} - \frac{1}{\nu_{o}^{2}} \frac{\partial^{2} A_{x}}{\partial t^{2}},$$

$$\Box A_{y} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial A_{y}}{\partial r} \right) + \frac{\partial^{2} A_{y}}{\partial z^{2}} + \frac{1}{r^{2}} \frac{\partial^{2} A_{y}}{\partial \phi^{2}} - \frac{1}{\nu_{o}^{2}} \frac{\partial^{2} A_{y}}{\partial t^{2}},$$

$$\nu_{o} = c/n_{x}, \quad \nu_{e} = c/n_{y},$$
 (3)

где r, z, φ — координаты в цилиндрической системе, n_x, n_y — показатели преломления в направлении xи y соответственно, c — скорость света, n_p — число фотонов, F_1 — коэффициент многофотонного поглощения [13]. Параметры Γ_x , Γ_y описывают накачку электрического поля в направлении x и y,

$$f(t) = \begin{cases} 0, & t < t_0(z), \\ \exp(-\frac{t}{t_{\text{rel}}}), & t \ge t_0(z), \end{cases}$$
(4)

где $t_0(z) \cong (z-z_0)/v$ — момент времени, в который интенсивность импульса на его переднем фронте, измеренная в точке с координатой z, в e раз меньше пиковой интенсивности импульса; z_0 — начальная координата "центра масс" импульса в начальный момент времени $t = 0, v \cong c/\sqrt{k_0}$ — аппроксимация скорости импульса по порядку величины, k_0 — усредненная относительная диэлектрическая проницаемость среды (массива нанотрубок), t_{rel} — время релаксации электронной подсистемы УНТ [5].

Отметим, что f(t) — это поправочный коэффициент к выражению для плотности тока в бесстолкновительном приближении, который позволяет учесть затухание тока по экспоненциальному закону под действием релаксации. Данный подход продемонстрирован в работе [14] для сверхрешетки и позволяет учесть влияние столкновений электронов. Поскольку плотность тока в сверхрешетке и в системах с УНТ имеет схожий вид, это позволяет нам применить такой подход и к нашей задаче.

В предыдущих работах по двулучепреломлению наблюдалось сильное расплывание импульса за счет наличия второй компоненты поляризации поля [10,11]. Для стабилизации импульса предлагается использовать накачку внешним полем как вариант ослабления неизбежных диссипативных эффектов, приводящих к затуханию импульса. Так, в работе [15] нами было показано, что распространение трехмерных сверхкоротких импульсов в принципе можно поддерживать в УНТ за счет накачки энергии в импульс через внешнее электромагнитное поле. Выберем параметр Γ, который отвечает за накачку электрического поля с супергауссовым профилем:

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

Здесь l_{Γ} определяет ширину усиливающей среды в направлении, перпендикулярном направлению распространения компоненты *x* или *y* импульса электрического поля, Q_{Γ} — коэффициент усиления, вводимый феноменологически и зависящий от свойств усиливающей среды. Отметим, что выбор коэффициента усиления в виде (5) обусловлен желанием скомпенсировать дифракционное расплывание импульса.

Запишем стандартное выражение для плотности тока вдоль оси УНТ [16]:

$$j = 2e \sum_{s=1}^{m} \int v(p,s) F(p,s) dp, \qquad (6)$$

где e — заряд электрона, интегрирование ведется по первой зоне Бриллюэна, p — компонента квазиимпульса электрона проводимости вдоль оси нанотрубки, $v(p,s) = \partial \varepsilon(p,s)/\partial p$ — скорость электронов, F(p,s) функция распределения Ферми.

В работе [17] показано, что накопление заряда вследствие неоднородности поля для предельно коротких импульсов не дает существенного вклада. Поэтому цилиндрическая симметрия в распределении поля сохраняется и производную по углу можно не рассматривать. В этом случае получаем систему эффективных уравнений на компоненты векторного потенциала:

$$\Box A_{x} + \frac{4en_{0}\gamma_{0}a\cos\alpha}{c}\sum_{q=1}^{\infty}b_{q}\sin\left(\frac{aeq(A_{x}\cos\alpha + A_{y}\sin\alpha)}{c}\right)$$
$$\times f(t) + \Gamma_{x} - F_{1}\left(\frac{\partial A_{x}}{\partial t}\right)^{2n_{p}-1} = 0,$$
$$\Box A_{y} + \frac{4en_{0}\gamma_{0}a\cos\alpha}{c}\sum_{q=1}^{\infty}b_{q}\sin\left(\frac{aeq(A_{x}\cos\alpha + A_{y}\sin\alpha)}{c}\right)$$
$$\times f(t) + \Gamma_{y} - F_{1}\left(\frac{\partial A_{y}}{\partial t}\right)^{2n_{p}-1} = 0,$$
(7)

где *n*₀ — концентрация электронов,

$$b_q = \sum_{s} \frac{q}{\gamma_0} a_{sq} \int_{1Bz} dp' \cos(p'q) \frac{\exp\left(-\varepsilon(p',s)/k_{\rm B}T\right)}{1 + \exp\left(-\varepsilon(p',s)/k_{\rm B}T\right)},$$
(8)

где k_B — постоянная Больцмана, T — температура, a_{sq} — коэффициенты в разложении закона дисперсии электронов (1) в ряд Фурье.

Поскольку коэффициенты, определяемые уравнением (8), уменьшаются с ростом номера q, мы можем учесть только первые 10 слагаемых в уравнениях (7) [18].



Puc. 1. Зависимость интенсивности для х-компоненты поля (a-c) и для *y*-компоненты (d-f) от координат: (a, d) t = 0; $(b, e) t = 5 \cdot 10^{-14}$ s; $(c, f) t = 10^{-13}$ s. I_{max} — максимум интенсивности для каждого момента времени. Единицы по оси *r* и *z* соответствует $2 \cdot 10^{-5}$ m.

Результаты численного моделирования

Система уравнений (7) была решена с использованием численных методов с начальными условиями вида

$$A_{x} = U \exp\left(-\left(\frac{z}{l_{z}}\right)^{2}\right) \exp\left(-\frac{x^{2}+y^{2}}{l_{r}^{2}}\right),$$

$$\frac{d}{dt}A_{x} = \frac{2v_{o}zU}{l_{z}^{2}} \exp\left(-\left(\frac{z}{l_{z}}\right)^{2}\right) \exp\left(-\frac{x^{2}+y^{2}}{l_{r}^{2}}\right),$$

$$A_{y} = 0, \quad \frac{d}{dt}A_{y} = 0, \quad (9)$$

где U — амплитуда электромагнитного импульса на входе в среду с УНТ, l_z , l_r — ширина импульса вдоль соответствующих направлений.

Продемонстрируем графики эволюции электромагнитного поля при его распространении по образцу в случае двухфотонного поглощения на рис. 1.

Из рис. 1 видно, что компонента поля E_x испытывает уширение, которое со временем уменьшается и импульс локализуется в направлении распространения, что обусловлено балансом усиления и затухания импульса. Компонента E_y ведет себя как излучение от импульса, заданного в начальный момент времени, и в ходе распространения этого импульса она также движется в первоначальном поперечном направлении. Это обу-



Рис. 2. Продольные срезы интенсивности: (*a*) для компоненты электрического поля E_x ; (*b*) для компоненты E_y от координаты *z*: кривая 1 - t = 0; кривая $2 - t = 5 \cdot 10^{-14}$ s; кривая $3 - t = 10^{-13}$ s. I_{max} — максимальное значение интенсивности для трех моментов времени.



Рис. 3. Зависимость ширины импульса от времени для числа фотонов $n_p = 2$ (кривая 1) и $n_p = 3$ (кривая 2).

словлено отсутствием компоненты электрического поля вдоль оси *OY* в начальный момент времени.

В отличие от случая анизотропной среды без усиления импульса, когда наблюдалось существенное дисперсионное расплывание импульса, здесь другая ситуация. Импульс становится более локализованным, несмотря на наличие второй компоненты поляризации поля благодаря присутствию в системе накачки.

Оценку величины каждой компоненты электрического поля проведем согласно рис. 2, на котором изобразим срезы вдоль оси *z* по максимуму.

Необходимо сделать следующее замечания. На рис. 2, *b* отсутствует кривая *I*, поскольку в начальный момент времени компонента поля $E_y = 0$. Видно, что величина интенсивности поля для *y*-компоненты на 5 порядков меньше, чем для *x*-компоненты поля. Со временем наблюдается ее затухание (I_y) .

Также нами исследовалась зависимость ширины импульса (расстояние, на котором его интенсивность падает в 2 раза) от времени (рис. 3). Выявлено, что в случае многофотонного поглощения (для двух и трех фотонов) импульсы распространяются устойчиво в плане изменения ширины импульса со временем.

Согласно рис. 1, с и рис. 2, а (кривая 3) на больших временах ($t = 10^{-13}$ s) наблюдается характерный "дребезг", соответствующий режиму генерации высших гармоник. Установим параметры, при которых будет проявляться обнаруженный эффект по форме фурьеспектра импульса в фиксированный момент времени (рис. 4).

Отметим, что на рис. 4, *b* по оси абсцисс откладывается безразмерная частота *w*, т. е. частота, поделенная на характерную угловую частоту электронной подсистемы УНТ в зоне проводимости, так называемую "плазменную частоту" ω_0 электронов в УНТ [14,19], которая аналогична "плазменной частоте" электронов в сверхрешетках. Согласно рис. 4, наибольшее влияние оказывают процессы двухфотонного поглощения, вызывая режим генерации высших гармоник. Случаи электронного и трехфотонного поглощения качественно совпадают.

Заключение

Приведем в заключении работы основные выводы.

1. Построена модель распространения предельно коротких оптических импульсов в оптически анизотропном кристалле с углеродными нанотрубками с учетом многофотонного поглощения.

2. Существенную поперечную дисперсию импульса, связанную с наличием второй компоненты вектора электрического поля, можно подавить с помощью ввода накачки в систему. Это позволяет локализовать предельно короткий оптический импульс в ограниченной области пространства.

3. Выявлен эффект генерации высших гармоник в оптически анизотропной среде, содержащей УНТ, с



Рис. 4. (*a*) Зависимость напряженности электрического поля импульса E_x от координаты в момент времени $t = 10^{-13}$ s для разного количества фотонов *n*: кривая 1 — обычное нелинейное поглощение; кривая $2 - n_p = 2$; кривая $3 - n_p = 3$. Рисунок (*b*) — фурье-спектры. Единица по E_x соответствует 10^7 V/m, по оси $w - 0.1\omega_0$. Для наглядности на рисунке (*a*) кривые 2 и 3 смещены вверх на 10 и 20 единиц соответственно, на рисунке (*b*) — кривые 2 и 3 смещены вверх на 30 и 60 единиц соответственно.

многофотонным поглощением и усилением. Показано, что данным режимом можно управлять за счет подбора параметров многофотонного поглощения.

Финансирование работы

Работа выполнена при поддержке Минобрнауки РФ, Совета по грантам Президента РФ, грант № МД-3173.2021.1.2.

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что конфликт интересов отсутствует.

Список литературы

- Y. Kung, H.-Y. Huang, W.-H. Liao, A.-H. Huang, M.-Y. Hsiao, C.-H. Wu, H.-L. Liu, C. Inserra, W.-S. Chen. Front. Bioeng. Biotechnol., 8, 402 (2020). DOI: 10.3389/fbioe.2020.00402
- J.W. Yoon, Y.G. Kim, I.W. Choi, J.H. Sung, H.W. Lee, S.K. Lee, C.H. Nam. Optica, 8 (5), 630 (2021).
 DOI: 10.1364/OPTICA.420520
- [3] N. Yokoshi, H. Ishihara. Nature Photonics, 12, 125 (2018).
 DOI: 10.1038/s41566-018-0119-2
- [4] S. Rathinavel, K. Priyadharshini, D. Panda. Materials Science and Engineering: B, **268** (3), 115095 (2021).
 DOI: 10.1016/j.mseb.2021.115095
- [5] N.N. Konobeeva, E.G. Fedorov, N.N. Rosanov, A.V. Zhukov, R. Bouffanais, M.B. Belonenko. J. Appl. Phys., **126**, 203103 (2019). DOI: 10.1063/1.5128365
- [6] J.-C. Chiu, Y.-F. Lan, C.-M. Chang, X.-Z. Chen, C.-Y. Yeh, C.-K. Lee, G.-R. Lin, J.-J. Lin, W.-H. Cheng. Optics Express, 18 (4), 3592 (2010). DOI: 10.1364/OE.18.003592
- M. Brennan, T. Kobayashi, J.N. Coleman, M. in het Panhuis, W.J. Blau, H.J. Byrne. In: *Conference on Lasers and Electro-Optics* (2001), paper CThL24.

- [8] N. Izard, C. Ménard, D. Riehl, E. Doris, C. Mioskowski,
 E. Anglaret. Chem. Phys. Lett., **391**, 124 (2004).
 DOI: 10.1016/j.cplett.2004.05.001
- [9] J. Maultzsch, R. Pomraenke, S. Reich, E. Chang, D. Prezzi, A. Ruini, E. Molinari, M.S. Strano, C. Thomsen, C. Lienau. Phys. Rev. B, 72, 241402R (2005). DOI: 10.1103/PhysRevB.72.241402
- [10] N.N. Konobeeva, M.B. Belonenko. Int. J. Mod. Phys. B, 35 (19), 2150197 (2021). DOI: 10.1142/S0217979221501976
- [11] N.N. Konobeeva, M.B. Belonenko. Nanosystems: Physics, Chemistry, Mathematicsthis, **12** (4), 430 (2021).
 DOI: 10.17586/2220-8054-2021-12-4-430-435
- [12] А.Н. Матвеев. Оптика (Высшая школа, Москва, 1985).
- [13] В.А. Халяпин, А.Н. Бугай. Известия РАН. Сер. Физ., 86, № 1, 29 (2022). DOI: 10.31857/S0367676522010148
- [14] Ф.Г. Басс, А.А. Булгаков, А.П. Тетервов. Высокочастотные свойства полупроводников со сверхрешетками (Наука, Москва, 1989).
- [15] Н.Н. Конобеева, М.Б. Белоненко. Опт. и спектр., 123 (4), 615 (2017). DOI: 10.7868/S0030403417100117
 [N.N. Konobeeva, M.B. Belonenko. Opt. Spectrosc., 123, 624 (2017). DOI: 10.1134/S0030400X17100113].
- [16] А.В. Елецкий. УФН, 167, 945 (1997).
 DOI: 10.3367/UFNr.0167.199709b.0945
 [A.V. Eletskii. Physics-Uspekhi, 40 (9). P. 899 (1997).
 DOI: 10.1070/PU1997v040n09ABEH000282].
- [17] A.V. Zhukov, R. Bouffanais, E.G. Fedorov, M.B. Belonenko. J.
 Appl. Phys., **114**, 143106 (2013). DOI: 10.1063/1.4824370
- [18] M.B. Belonenko, E.V. Demushkina, N.G. Lebedev. J. Rus. Las. Res., 27, 457 (2006). DOI: 10.1007/s10946-006-0027-7
- [19] A.V. Zhukov, R. Bouffanais, B.A. Malomed, H. Leblond, D. Mihalache, E.G. Fedorov, N.N. Rosanov, M.B. Belonenko. Phys. Rev. A, 94, 053823 (2016). DOI: 10.1103/PhysRevA.94.053823