Электромагнитные солитоны в пучках углеродных зигзагообразных нанотрубок

© М.Б. Белоненко*, Е.В. Демушкина, Н.Г. Лебедев

Волгоградский государственный университет, 400062 Волгоград, Россия * Волгоградский государственный архитектурно-строительный университет, 400074 Волгоград, Россия

E-mail: mbelonenko@yandex.ru

(Поступила в Редакцию 24 апреля 2007 г.)

На основе связанных уравнений на классическую функцию распределения электронов в углеродных зигзагообразных нанотрубках и уравнений Максвелла для электромагнитного поля выясняется возможность существования солитонов. Они возникают вследствие согласованного изменения классической функции распределения и электрического поля, создаваемого неравновесными электронами углеродной нанотрубки. Получено эффективное уравнение, описывающее динамику электромагнитного поля. Приведены данные численных расчетов, свидетельствующие о существовании солитонов. Исследованы характеристики солитонов в зависимости от диаметра зизгагообразных нанотрубок.

Работа поддержана Российским фондом фундаментальных исследований (грант № 07-03-96604).

PACS: 78.67.Ch, 81.07.De

1. Введение

Современные технологии предъявляют все более высокие требования к научным разработкам в области явлений наномасштабных структур. Это прежде всего связано с прогрессом вычислительной техники, где уменьшение размеров устройств увеличивает их быстродействие и уменьшает потребляемую энергию. Одну из ведущих ролей в электронике XXI века начинают играть углеродные нанотрубки (УНТ) с их уникальными электронными и механическими свойствами [1,2]. Их весьма малый нанометровый диаметр и микронная длина указывают на то, что они наиболее близки по своей структуре к идеальным одномерным (1D) системам. Отметим, что одномерные системы обладают рядом специфических свойств, делающих их весьма привлекательными для использования в области нано- и микроэлектроники. Именно поэтому УНТ — идеальные объекты для проверки теории квантовых явлений, в частности квантового транспорта в низкоразмерных твердотельных системах. Отметим также, что ценность получаемой в экспериментах информации во многом зависит от успеха в ее интерпретации, т.е. в установлении корректных соотношений между спектральными и другими характеристиками вещества и особенностями его электронной структуры. Поэтому физические методы исследования требуют применения последовательных теоретических подходов и эффективных моделей.

Упомянутые свойства УНТ 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]. Как известно [4], одной из основных целей современной оптики является создание полностью оптических приборов, в которых светом можно управлять с помощью света. Это обстоятельство в свою очередь привело к тому, что в последнее время наблюдается бурный рост исследования 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 оптических солитонов в УНТ представляется достаточно важной и актуальной.

2. Основные соотношения и уравнения

Исследование электронной структуры УНТ приведено в достаточно большом количестве работ и, как правило, проводится в рамках анализа динамики *π*-электронов в приближении сильной связи. Так, в рамках данной модели закон дисперсии, который описывает 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 = 0.152 nm — расстояние между соседними атомами углерода в графене, $p = (p_x, p_y)$. Отметим, что знаки плюс и минус относятся к зоне проводимости и валентной зоне соответственно. Для получения закона дисперсии в случае УНТ достаточно учесть способ сворачивания графеновой плоскости в цилиндр и наложить условия квантования квазиимпульса *p* в направлении вдоль окружности УНТ.

)



Рис. 1. Геометрия задачи.

Так, для (*m*, 0) УНТ, на свойствах которых остановимся для определенности задачи, соответственно получаем

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

где квазиимпульс **р** задается как $(p_z, s), s = 1, 2, ..., m$. При построении модели распространения ультракороткого оптического импульса в системе нанотрубок в случае геометрии, представленной на рис. 1, будем описывать электромагнитное поле импульса классически, на основании уравнений Максвелла. Так, в интересующем нас случае, в калибровке $\mathbf{E} = -\frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t}$, уравнения Максвелла с учетом диэлектрических и магнитных свойств УНТ [6] можно записать как

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

причем здесь мы пренебрегаем дифракционным расплыванием лазерного пучка в направлениях, перпендикулярных оси распространения. Считается, что вектор-потенциал **A** имеет вид $\mathbf{A} = (0, 0, A_z(x, t))$.

Для определения тока воспользуемся полуклассическим приближением [7], взяв закон дисперсии (1) из квантово-механической модели и описывая эволюцию ансамбля частиц кинетическим уравнением Больцмана в приближении времен релаксации

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

Отметим, что в (3) функция распределения $f = f(p_z, s, t)$ неявно зависит от координаты x в силу зависимости компоненты вектор-потенциала A_z , следующей из (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 [8], как $3 \cdot 10^{-13}$ s. Отметим, также, что при записи уравнения (3) мы пренебрегали эффектами, связанными с неоднородностью электромагнитного поля вдоль оси нанотрубки. С одной стороны, это оправдано уже введенным 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 настоящей 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 [6], дает ограничение на максимальную частоту лазерных импульсов. Так, для УНТ данная частота лежит в ближней инфракрасной области.

Уравнение (2) легко решается методом характеристик [9]

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

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

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

где, как и обычно, групповая скорость определяется выражением $v_z = \partial E(\mathbf{p})/\partial p_z$.

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) — и сделаем замену: $p \rightarrow p - \frac{e}{c} (A_z(t) - A_z(t'))$. Выражение для плотности тока примет вид

$$j_{z} = \frac{q}{\pi \hbar \tau}$$

$$\times \sum_{s} \int_{-\infty}^{t} \int_{-q_{0}}^{q_{0}} dt' dp_{z} v_{z} \left[p - \frac{q}{c} \left(A_{z}(t) - A_{z}(t') \right) \right]$$

$$\times F_{0}(\mathbf{p}) e^{-(t-t')/\tau},$$

где для УНТ зигзаг-типа интегрирование ведется по первой зоне Бриллюэна и $q_0 = \frac{2\pi\hbar}{3b}$. Функцию $v_z(x)$

s = 3s = 4s = 1s = 2s = 5s = 6-0.9560.956 m = 1-0.8490 0.849 0.967 0.263 0.339 0 0.339 0.263 0.233 m = 2m = 3-0.111-0.2180 0.218 0.111 0.086 0.052 0.162 0 0.162 0.052 0.035 m = 4-0.026m = 5-0.1270 0.129 0.026 0.015 m = 60.013 0.106 0 0.106 0.013 0.007 m = 7-0.007-0.0910 0.091 0.007 0.003

Коэффициенты a_{ms} для нанотрубок типа (6, 0) в единицах γ

с учетом зависимости закона дисперсии и равновесной функции распределения F_0 от индекса *s* представим в виде

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

Отметим, что коэффициенты разложения a_{ms} убывают с ростом m, и с достаточной степенью точности можно ограничиться первыми отличными от нуля членами в разложении. Конкретные данные для коэффициентов на примере УНТ типа (6, 0) можно найти в таблице. Тогда получим

$$j_{z} = \frac{q}{\pi \hbar \tau} \sum_{ms} a_{ms} \int_{-\infty}^{\tau} dt' \sin\left[\frac{maq}{c} (A_{z}(t) - A_{z}(t'))e^{-(t-t')/\tau}\right]$$
$$\times \int_{-q_{0}}^{q_{0}} dp_{z} \cos(map_{z})F_{0}(\mathbf{p}).$$

Для исследования интеграла, содержащего временную экспоненту, воспользуемся широко известным в теории полупроводниковых сверхрешеток приемом [10,11]. Проводя замену $\rho = t - t'$, временной интеграл можно свести к виду

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

Или, обозначая $w = \rho/\tau$, получаем

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

Учитывая, что ищем решение для функции $A_z(t)$ в классе быстроубывающих функций и то обстоятельство, что время τ достаточно велико по сравнению с типичными длительностями ультракоротких лазерных

импульсов, заметим, что $A_z(t - w\tau) \approx A_z(-\infty) = 0$ и временной интеграл приводится к виду

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

Таким образом, эффективное уравнение можно записать в виде

$$\frac{\partial^2 A_z}{\partial x^2} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 A_z}{\partial t^2} + \frac{q}{\pi \hbar \tau} \sum_m c_m \sin\left(\frac{maq}{c} A_z(t)\right) = 0,$$
$$c_m = \sum_s a_{ms} b_{ms}, \quad b_{ms} = \int_{-q_0}^{q_0} dp_z \cos(map_z) F_0(\mathbf{p}). \quad (6)$$

Как показали результаты численных расчетов, коэффициенты b_{ms} сильно убывают с ростом m (т.е. с увеличением диаметра (m, 0) УНТ) при любых температурах. При реальных же температурах, при которых проводятся исследования нанотрубок, в силу того, что $\gamma \approx 2.7$ eV, можно воспользоваться низкотемпературным пределом для функции распределения Ферми.

Все изложенное приводит к тому, что вследствие убывания коэффициентов с_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 [12]. Важным достоинством данного уравнения является то, что из него следует теорема площадей, а именно: устойчивы по отношению к изменению формы только импульсы, имеющие определенную "площадь" ("площадь" импульса $\psi(t)$ определена как $\int\limits_{-\infty}^{\infty}\psi(t)dt$). Импульсы, имеющие большую "площадь", стремятся уменьшить ее до фиксированной, а имеющие меньшую "площадь", наоборот, увеличивают ее. Второе, что неоднократно [13] отмечалось исследователями двойного уравнения sine-Gordon, это характер взаимодействия импульса 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. Все это и послужило стимулом для дальнейшего численного исследования системы уравнений (2), (3), (5).

Основные результаты численного моделирования

Исследуемые уравнения решались численно при помощи прямой разностной схемы типа крест [14]. 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 значащем знаке.



Рис. 2. Распространение импульса электромагнитного поля в системе УНТ. v = 0.5c (*a*) и 0.8*c* (*b*). Яркость дана в процентах от амплитуды начального импульса, по оси абсцисс отложено расстояние в единицах длины связи С–С, по оси ординат — время в единицах τ . Здесь и далее начальный профиль импульса гауссов.

Распространение импульсов при разных скоростях для УНТ (6, 0) наглядно изображено на рис. 2. Видно, что ультракороткий импульс разделяется на два и импульсы имеют существенно различную амплитуду. Отметим, что аналогичное поведение наблюдалось при исследовании аналога уравнения sine-Gordon в нелинейных линиях передачи с дисперсией [15].

Так, последовательная эволюция формы электромагнитного импульса при распространении в пучках нанотрубок (6,0) приведена на рис. 3, а эволюция соответствующего импульса тока — на рис. 4. Моменты времени на рис. 3 и 4 одинаковы.

Обратим внимание на то, что ультракороткий импульс "сбрасывает" излишнюю "площадь", которая отделяется от импульса, и эволюция тока запаздывает по сравнению с эволюцией электрического поля. Первое обстоятельство связано с тем фактом, что, как уже упоминалось выше, рассматриваемую систему можно хорошо описать в рамках двойного уравнения sine-Gordon, для которого существует аналог теоремы площадей. При дальнейшем увеличении "площади" начального импульса наблюдался распад на большее количество импульсов, аналогичный тому, что приводится в [15]. Второе обстоятельство связано с тем фактом, что проводилось моделирование динамики электронов, описываемых в рамках кинетического уравнения Больцмана с конечным временем релаксации, и электронной системе требовалось некоторое время, чтобы ее функция распределения приняла вид, требуемый полем.



Рис. 3. Эволюция формы электромагнитного импульса при распространении в системе нанотрубок (здесь и на рис. 4–7, 9: по оси абсцисс отложено расстояние в единицах длины С–С связи для моментов времени t = 0 (1), 2.33 τ (2), 4.66 τ (3) и 7 τ (4).



Рис. 4. Эволюция формы импульса тока при распространении в системе нанотрубок для моментов времени t = 0 (1), 2.33 τ (2), 4.66 τ (3) и 7 τ (4).



Рис. 5. Формы электромагнитного импульса в момент времени $t = 2.33\tau$ при различных групповых скоростях. v = 0.2c (1), 0.5c (2) и 0.8c (3). Моделирование проведено для пучков углеродных нанотрубок типа (6, 0).

Особенности эволюции электромагнитного импульса в зависимости от того, с какой групповой скоростью он начинал свое движение в УНТ, представлены на рис. 5.

Из рис. 5 видно, что при увеличении начальной скорости импульса импульс "сбрасывает" гораздо меньшую "площадь". Также обратим внимание на укручение фронта импульса и на то, что у импульса, имеющего большую начальную скорость, процесс "сброса" излишка "площади" начинается позднее. Непосредственный расчет показал, что более "скоростной" импульс индуцирует при своем движении в системе УНТ большой ток, который также определяется и временем релаксации функции распределения электронов к равновесному значению.

Необходимо отметить, что при варьировании начальных условий, т. е. при изменении формы электромагнитного импульса, входящего в систему УНТ, наблюдалась эволюция начального состояния в состояние, которое аналогично по поведению бризерному решению уравнения sine-Gordon. Особенно сильно характер эволюции зависел, как показали результаты расчетов, от начальной групповой скорости импульса.

Особенный интерес представляют результаты исследования динамики импульса электромагнитного поля в нанотрубках разного типа. Так, на рис. 6 представлены результаты исследования изменения формы импульса в зависимости от типа нанотрубок. Соответствующие изменения формы импульсов тока показаны на рис. 7.

Поскольку ток определяется функцией распределения электронов, а она в свою очередь описывается в рамках кинетического уравнения Больцмана с конечным временем релаксации, электронной системе требуется некоторое время, чтобы ее функция распределения приняла вид, требуемый полем, а значит и импульсы тока будут отставать от импульсов электромагнитного поля. Также очевидно, что интегрирование (усреднение) в (5) приводит к более гладкой форме импульсов тока.

Отметим также и уменьшение суммарного тока, протекающего через систему нанотрубок при прохождении электромагнитного импульса при увеличении атомов вдоль окружности нанотрубки, которое представлено на рис. 8.



Рис. 6. Формы электромагнитных импульсов при распространении в пучках нанотрубок (m, 0) для момента времени $t = 5\tau$. Время релаксации $\tau = 3 \cdot 10^{-13}$ s.



Рис. 7. Формы импульсов тока при распространении в системе нанотрубок (m, 0) электромагнитного одиночного импульса для момента времени t = 5 s.



Рис. 8. Суммарный ток через пучок нанотрубок, нормированный на максимальное значение тока для нанотрубок (6, 0), как функция времени (в единицах τ).



Рис. 9. Изменение формы импульсов электромагнитного поля при изменении времени релаксации для функции распределения электронов. Время релаксации для функции распределения электронов здесь уменьшено в 2 раза по сравнению с рис. 6: $\tau = 1.5 \cdot 10^{-13}$ s. Остальные параметры те же, что и ранее.

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 "колебаний" в импульсе. Данный эффект никак не связан с тем, является ли данный тип нанотрубки металлическим или нет. Такое поведение можно связать с 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 данная система становится более "удаленной" от интегрируемой. Обмен энергией между колебаниями электронов (модами) приводит к изменению формы импульса и появлению дополнительных "колебаний" 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. 9.

Так, 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). Именно это и приводит к тому, что форма электромагнитного импульса имеет меньше "колебаний" при уменьшении времени релаксации, что отображено на рис. 9.

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

5. Выводы

Из проведенного исследования можно сделать следующие выводы.

 Получена система уравнений, описывающая динамику ультракороткого лазерного импульса в пучках УНТ, и описаны приближения, которые рассматриваются в задаче.

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

3) Установлено, что импульс, входящий в нанотрубки с большей групповой скоростью, индуцирует большой ток. Суммарный ток, текущий через систему нанотрубок, определяется как "площадью" электромагнитного импульса, так и временем релаксации функции распределения электронов к равновесному значению.

4) Электромагнитный импульс при прохождении через УНТ разделяется на два, причем меньший импульс имеет величину, определяемую начальной групповой скоростью импульса. Подобное поведение связывается с наличием аналога теоремы площадей в системах, описываемых двойным уравнением sine-Gordon.

 Импульс тока генерируется с запаздыванием по отношению к инициирующему импульсу электромагнитного поля, что связано с описанием динамики электронов в рамках классического кинетического уравнения Больцмана в приближении времени релаксации.

6) При увеличении числа атомов вдоль окружности нанотрубки происходит изменение формы импульса в сторону увеличения числа максимумов. Подобное поведение связывается с процессами дисперсии электронов в электронной подсистеме и следует из закона дисперсии электронов в одиночной нанотрубке.

 Суммарный ток, протекающий через систему нанотрубок, при прохождении через них одиночного электромагнитного импульса уменьшается при увеличении числа атомов вдоль окружности нанотрубки.

Список литературы

- Нанотехнология в ближайшем десятилетии. Прогноз направления исследований / Под ред. М.К. Роко, Р.С. Уильямс, П. Аливисатос. Мир, М. (2002).
- [2] П. Харрис. Углеродные нанотрубы и родственные структуры. Новые материалы XXI века. Техносфера. М. (2003).
- [3] S.A. Maksimenko, G.Ya. Slepyan. In: Handbook of nanotechnology. Nanometer structure: theory, modeling, and simulation / Ed. A. Lakhtakia. SPIE press, Bellingham (2004).
- [4] Х. Гиббс. Оптическая бистабильность. Управление светом с помощью света. Мир, М. (1988).
- [5] G.Ya. Slepyan, S.A. Maksimenko, V.P. Kalosha et al. Phys. Rev. A 60, R777 (1999).
- [6] Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц. Теория поля. Физ.-мат. лит., М. (1988).
- [7] Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц. Физическая кинетика. Физ.мат. лит., М. (1979).
- [8] S.J. Tans, M.H. Devoret, H. Dai et al. Nature 386, 474 (1997).
- [9] С.В. Крючков. Полупроводниковые сверхрешетки в сильных полях. Перемена, Волгоград (1992).
- [10] Ф.Г. Басс, А.А. Булгаков, А.П. Тетервов. Высокочастотные свойства полупроводников со сверхрешетками. Наука, М. (1989).
- [11] Э.М. Эпштейн. ФТТ 19, 3456 (1977).
- [12] Солитоны / Пер. с англ. Под ред. Р. Буллафа, Ф. Кодри. Мир, М. (1983).
- [13] P.W. Kitchenside, P.J. Caudrey, R.K. Bullough. Phys. Scr. 20, 673 (1979).
- [14] Н.С. Бахвалов. Численные методы (анализ, алгебра, обыкновенные дифференциальные уравнения). Наука, М. (1975).
- [15] К.А. Горшков, Л.А. Островский, В.В. Папко. ЖЭТФ 71, 585 (1976).