Предельно короткие оптические импульсы в деформированном графене в рамках калибровочной теории

© О.С. Ляпкосова, Н.Г. Лебедев, М.Б. Белоненко

Волгоградский государственный университет,
Волгоград, Россия
E-mail: lyapkosovaolga@mail.ru

(Поступила в Редакцию в окончательном виде 3 июня 2013 г.)

Изучена эволюция оптических импульсов, распространяющихся в деформированном графене. Получено эффективное волновое уравнение для векторного потенциала электромагнитного поля. Деформация растяжения графеновых слоев описана с помощью эффективного вектор-потенциала в рамках калибровочной теории. Приведено численное решение полученного волнового уравнения, проанализирована зависимость величины напряженности импульса и его формы от величины внешней деформации.

Работа проведена в рамках реализации ФЦП „Научные и научно-педагогические кадры инновационной России“ на 2009–2013 гг. (проект №-НК-16(3)), а также поддержана РФФИ (грант № 11-02-97054).

1. Введение

С момента экспериментального открытия графена [1,2], представляющего собой планарную гексагональную структуру, состоящую из монослоя атомов углерода, ведутся интенсивные исследования в области влияния упругой деформации на его механические и физические свойства [3,4]. Успех использования углеродных наноматериалов в микроэлектронике зависит от того, в какой степени удастся эффективно управлять электронными и нелинейными параметрами отдельных графеновых листов. Один из подходов к этой проблеме основан на чувствительности нелинейных характеристик графена к механическому воздействию.

Процесс нелинейного распространения света в углеродных наноструктурах вызывает повышенный интерес в связи с возможностями практического применения нелинейных эффектов, а также в связи с вероятностью усиления предельно коротких оптических импульсов в углеродных нанотрубках и графене [5]. Теоретическому исследованию этого процесса посвящен ряд наших работ [6–9], в которых рассматривались идеализированные, недеформированные объекты. Внешние деформации могут значительным образом повлиять на прохождение оптических импульсов через углеродные наночастицы.

Связь между механической нагрузкой и нелинейными характеристиками наноматериалов открывает возможность управления свойствами графена и нанотрубок, входящих в состав разнообразных электронных устройств. Внешняя деформация будет выступать в роли датчика давления, способного влиять на параметры прибора и контролировать физические процессы, протекающие в нем. Это позволит значительно расширить диапазон выбора составляющих частей устройства, так как поле напряжений может изменять нелинейные и электронные свойства системы в соответствии с предъявляемыми требованиями. Поэтому теоретическое исследование влияния внешних деформаций на нелинейные свойства наноматериалов представляется актуальным в свете создания устройств современной электроники.

В качестве объекта исследования выбран графен как перспективный углеродный материал, обладающий экстремально высокой проводимостью.

2. Выбор модели

В разработанной модели рассматривается динамика распространения предельно короткого оптического импульса в системе графеновых слоев, подвергнутых линейным деформациям растяжения. Рассматривается взаимодействие предельно короткого электромагнитного импульса только с электронной подсистемой графеновых слоев. Графеновые листы считаются идеальными, расположенными на одинаковых расстояниях друг от друга, составляющих 0.34 nm. Взаимодействие между слоями считается слабым и в работе не учитывается. Вектор напряженности электрического поля $\mathbf{E}(z,t)$ направлен вдоль оси x, параллельно плоскостям графеновых листов, а электромагнитная волна движется в поперечном направлении вдоль оси z в системе монослоев графена, ориентированных в плоскостях, перпендикулярных этой оси (рис. 1). Электронная система считается свободной, находящейся во внешнем периодическом кулоновском потенциале жесткой решетки.

Электронно-энергетические свойства графена описываются с помощью двумерного дисперсионного соотношения, которое в рамках приближения Хюккеля свободных π-электронов имеет следующий вид [10]:

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

где $\gamma \approx 2.5\,\text{eV}$ [11] — интеграл перескока, $a = 3b/2\hbar$, $b = 0.142\,\text{nm}$ — расстояние между соседними атомами углерода в графене, $\mathbf{p} = (p_x, p_y)$ — квазиимпульс электрона в зоне Бриллюэна. Разные знаки в дисперсионном

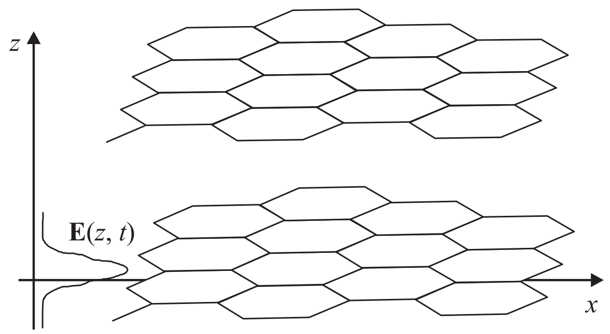

Рис. 1. Геометрия модели распространения предельно короткого электромагнитного импульса в системе графеновых слоев.

соотношении относятся к зоне проводимости и валентной зоне.

При построении модели распространения предельно короткого электромагнитного импульса в системе деформированных монослоев графена электромагнитное поле импульса целесообразно описывать классически на основании уравнений Максвелла. Вывод эффективных уравнений для недеформированных материалов наглядно изложен в работах [6–9].

Из уравнений Максвелла [12] нетрудно получить эффективное уравнение для вектор-потенциала электромагнитного поля в лоренцевой калибровке [6–9]

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

$$c_m = \int\limits_{p_y} a_m b_m, \quad b_m = \int\limits_{-q_0}^{q_0} dp_x \cos(map_x) F_0(p),$$

$$v_x = \partial E(\mathbf{p})/\partial p_x, \quad v_x(p_x) = \sum_m a_m \sin(mp_x),$$

$$a_m = \frac{1}{\pi}\int\limits_{-\pi}^{\pi} v_x(p_x)\sin(mp_x)dp_x,$$

$$F_0 = \frac{1}{1+\exp(E(\mathbf{p})/k_B T)}, \tag{2}$$

где вектор-потенциал $\mathbf{A} = \big(A(z,t), 0, 0\big)$ содержит одну компоненту и направлен вдоль оси x; T — абсолютная температура; k_b — постоянная Больцмана; q_0 — импульс на границе зоны Бриллюэна. Время релаксации электронов $\tau = 3 \cdot 10^{-13}$ s можно оценить согласно работе [13]. Отсчет величины вектор-потенциала начинается со значения $A(t=-\infty) = 0$, поэтому в аргументе функции синуса подразумевается разность потенциалов, сохраняющая калибровочную инвариантность эффективного уравнения.

3. Калибровочное поле напряжений в графене

Для введения в модель многослойного графена поля напряжений воспользуемся калибровочной теорией. Под действием внешних механических нагрузок в графене возникают поля напряжений, направленные на компенсацию деформационных эффектов. Важно отметить, что эти деформации и связанные с ними поля также свойственны графену в температурных пределах, приводящих к тепловым флуктуациям. Индуцированные внешние поля напряжений можно характеризовать эффективным вектор-потенциалом $\mathbf{A}'$, который выступает в качестве калибровочного поля, изменяющего импульс электронов в графене. Такие калибровочные поля обсуждаются в контексте электрон-фононных взаимодействий преимущественно для синтезированного графена [3,4].

В деформированном графене все межатомные связи оказываются неэквивалентными, и три прыжковых интеграла в приближении ближайших соседей могут иметь разную величину. В соответствии с этим введем калибровочный векторный потенциал $\mathbf{A}' = (A'_x, A'_y)$. Принимая во внимание неэквивалентность прыжковых интегралов, можно записать компоненты векторного потенциала [14]

$$A'_x = \frac{\sqrt{3}}{2}(\gamma_3 - \gamma_2),$$

$$A'_y = \frac{1}{2}(\gamma_2 + \gamma_3 - 2\gamma_1), \tag{3}$$

где γ_i $(i = 1, 2, 3)$ — прыжковые интегралы, определяющие энергию электрона, переходящего с заданного атома углерода на ближайшие.

В случае слабо деформированной кристаллической решетки, полагая, что атомное расстояние мало по сравнению с постоянной решетки a, каждый прыжковый интеграл можно разложить в ряд до второго слагаемого [14]

$$\gamma_i = \gamma + \frac{\beta\gamma}{a^2}\boldsymbol{\rho}_i(\mathbf{u}_i - \mathbf{u}_0), \tag{4}$$

где γ — невозмущенный интеграл перескока, $\boldsymbol{\rho}_i$ — радиус-вектор ближайших соседей, $\mathbf{u}_i$ — вектор смещения i-го атома, $\mathbf{u}_0$ — вектор смещения центрального атома, β — электронный параметр Грюнайзена [14],

$$\beta = \frac{\partial \ln\gamma}{\partial \ln a} \simeq 2. \tag{5}$$

В приближении сплошной среды (в континуальном пределе) смещение каждого атома углерода можно разложить в ряд [14]

$$\mathbf{u}_i - \mathbf{u}_0 \propto (\boldsymbol{\rho}_i \nabla)\mathbf{u}(\mathbf{r}), \tag{6}$$

где $\mathbf{u}(\mathbf{r})$ — поле смещений.

Подставляя (4) в (3) с учетом (6), можно окончательно получить компоненты эффективного калибровочного поля [3,4]

$$A'_x = c\,\frac{\beta\gamma}{a}\,(u_{xx} - u_{yy}),$$

$$A'_y = -c\,\frac{2\beta\gamma}{a}\,u_{xy}, \qquad (7)$$

где c — численный параметр, зависящий от особенностей химической связи в веществе. Далее можно положить для графена константу $c = 1$ [3,4].

Таким образом, калибровочное поле деформаций пропорционально тензору деформации $u_{\alpha\beta}$, который определяет локальные деформации решетки. Задавая деформационное поле $\mathbf{u}(\mathbf{r})$, получаем, что тензор деформаций в линейном приближении имеет известный вид [15]

$$u_{\alpha\beta} = \frac{\partial_\alpha u_\beta + \partial_\beta u_\alpha}{2}. \qquad (8)$$

Калибровочный потенциал меняет зонную структуру путем калибровки импульса на величину $-qA'/c$ так же, как и внешнее электромагнитное поле. Вклады электромагнитного поля и деформаций решетки сводятся к сумме соответствующих векторных потенциалов. С учетом поправок, связанных с введением поля напряжений и, следовательно, с появлением калибровочного поля в эффективном уравнении для вектор-потенциала, в уравнении (2) к компоненте потенциала в аргументе функции синус прибавляется соответствующая поправка (7), обусловленная внешней деформацией. В модели не учитываются конечные размеры графеновых слоев, а также сдвиговые деформации (повороты межатомных связей), т. е. полагается $u_{xy} = 0$. Учет последних является отдельной задачей и предметом дальнейшего исследования. Исходя из этих предположений в эффективном уравнении для векторного потенциала учитывается только одна поправка A'_x, появившаяся в результате введения поля деформаций.

Продольная и поперечная компоненты тензора деформаций связаны известным соотношением [15]

$$u_{yy} = -\mu u_{xx}, \qquad (9)$$

где $\mu = 0.19$ — коэффициент Пуассона для графена [16].

В результате эффективное уравнение для векторного потенциала можно переписать в следующем виде:

$$\frac{\partial^2 A_x}{\partial x^2} - \frac{1}{c^2}\frac{\partial^2 A_x}{\partial t^2} + \frac{q}{\pi\hbar} \times \sum_m c_m \sin\left(\frac{maq}{c}\Big(A_x(t) + A'_x\Big)\right) = 0, \qquad (10)$$

где

$$A'_x = c\,\frac{\beta\gamma u_{xx}}{a}\,(1+\mu). \qquad (11)$$

Уравнение (10) по прежнему является калибровочно-инвариантным, поскольку деформационный потенциал $A'(t = -\infty) = 0$ для недеформированного кристаллита.

4. Обсуждение результатов

Полученное эффективное волновое уравнение (10) решалось численно с использованием прямой разностной схемы типа „крест“ [17]. Расчетная область имела размеры 1000 шагов по оси координаты и 1000 шагов по оси времени. Шаги по времени и координате определялись с помощью стандартных условий устойчивости схемы. В процессе расчета шаги разностной схемы уменьшались последовательно в 2 раза до тех пор, пока решение не изменялось в восьмом значащем знаке. С учетом деформации графеновых листов найдена зависимость напряженности электрического поля предельно короткого электромагнитного импульса от пространственных координат, и изучена его эволюция. Полученное решение оказалось устойчивым к дальнейшим уменьшениям шагов по времени и координате.

В качестве исходного предельно короткого электромагнитного импульса использовался импульс, содержащий одно колебание напряженности электрического поля. Начальное условие для уравнения (10) выбиралось в следующем виде:

$$A(x,t) = A_0 \exp\left(\frac{z' - v't'}{\sqrt{1' - v'^2}}\right), \qquad (12)$$

где A_0 — амплитуда векторного потенциала, $z' = z/a$ — безразмерная координата, $a = 0.246$ nm — постоянная решетки, $t' = t/\tau$ — безразмерное время, $v' = v/c$ — безразмерная скорость электромагнитного импульса, c — скорость света.

На рис. 2, a показана картина прохождения электромагнитной волны в системе графеновых листов, подвергнутых деформации растяжения, в сравнении с недеформированным случаем. Модуль относительной деформации растяжения $u_{xx} = 0.001$. Расчеты показали, что деформации изменяют форму исходного импульса. Наблюдается изменение формы импульсов: появляется вторичный импульс, следующий за исходным. На рис. 2, b представлена разность ΔE напряженности электромагнитного импульса E_1 в системе графеновых слоев, в которых создано поле напряжений с относительной деформацией $u_{xx} = 0.001$, и напряженности E_0 в отсутствие деформации, т. е. $u_{xx} = 0$, взятые в один и тот же расчетный момент времени t.

На рис. 3–5, так же как и на рис. 2, b, показаны разности напряженностей $\Delta E(t) = E(u_{xx} \neq 0, t) - E(u_{xx} = 0, t)$ электромагнитного импульса в графене при последовательном увеличении модуля относительной деформации до предельного значения, которое еще целесообразно рассматривать: $u_{xx} = 0.01, 0.1, 0.25$.

Из рисунков хорошо видно, что наблюдается эффект „выпрямления“ предельно короткого электромагнитного импульса при его прохождении через монослои графена, причем степень и „знак“ выпрямления напрямую зависят от величины внешней деформации. Эффект „выпрямления“ проявляется в том, что уже при малых деформациях наблюдается нарушение симметрии

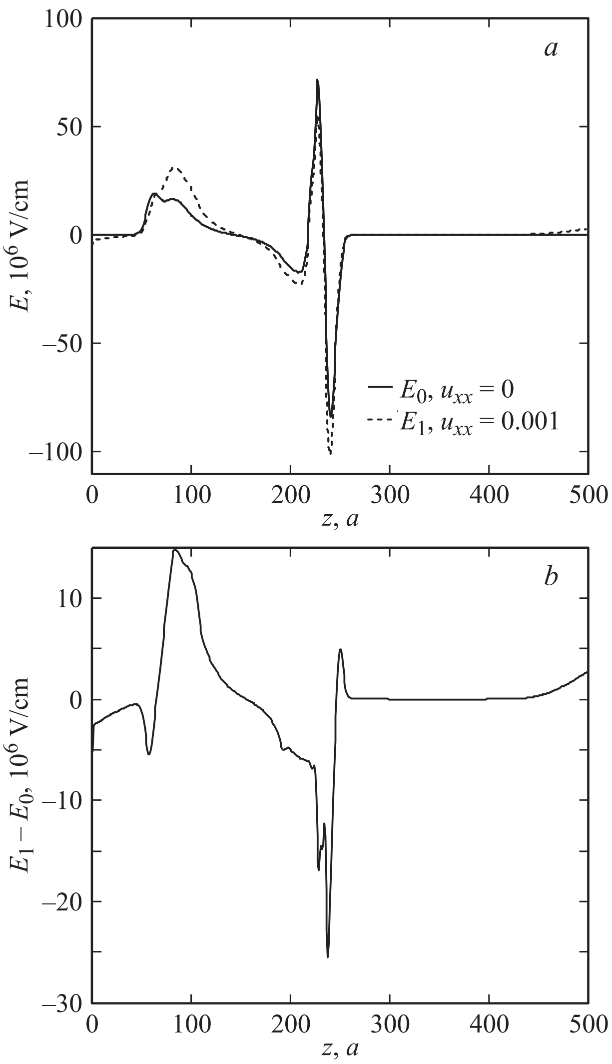

Рис. 2. *a*) Напряженность электрического поля электромагнитного импульса как функция координаты z в момент времени $t = 15 \cdot 10^{-13}$ s. Пунктирная линия — форма электромагнитного импульса при деформации $u_{xx} = 0.001$. *b*) Разность напряженностей поля импульса $E_1 - E_0$ в поле напряжений $u_{xx} = 0.001$ и в отсутствие внешней деформации ($u_{xx} = 0$) как функция координаты z.

электромагнитного импульса: уменьшение верхнего и увеличение нижнего пиков, соответствующих максимуму и минимуму напряженности электрического поля (рис. 2, *a*). Это означает, что происходит перераспределение энергии импульса из „верхней“ его части в нижнюю. Графики разности напряженностей электрических полей импульсов в деформированном и недеформированном случаях количественно показывают, насколько велико выпрямление. Кроме того, при малых деформациях ($u_{xx} = 0.001, 0.01$) выпрямление происходит в отрицательную область напряженности, а с ростом деформации ($u_{xx} = 0.1, 0.25$) — в положительную область.

Периодическое изменение степени и „знака“ выпрямления импульса с увеличением деформации связано с представлением плотности тока (скорости электронов в зоне Бриллюэна) в виде периодической гармонической функции, входящей в последнее слагаемое эффективного уравнения (10) и включающей в качестве аргумента деформационный калибровочный вектор-потенциал.

С физической точки зрения деформация растяжения приводит к увеличению длин межатомных связей. Следствием этого являются увеличение энергии перехода электронов между соседними узлами решетки и изменение закона дисперсии, что в свою очередь приводит к изменению эффективной нелинейности, т. е. последнего слагаемого в уравнении (10). Электромагнитный импульс, попадая в систему графеновых листов, взаимодействует с ансамблем коллективизированных элек-

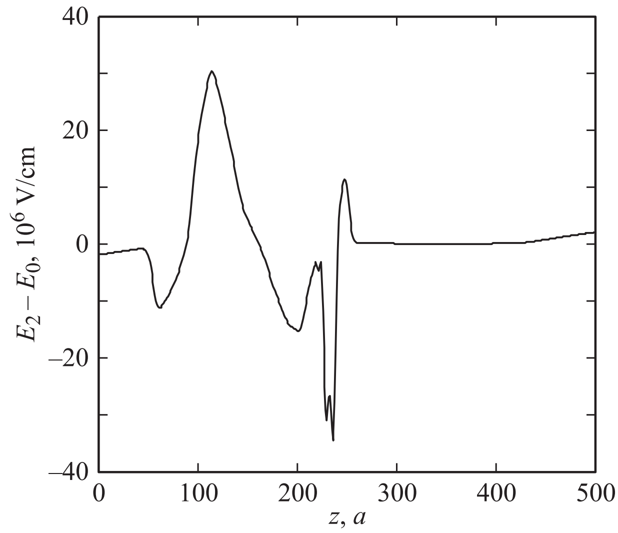

Рис. 3. Разность напряженностей поля импульса $E_2 - E_0$ в поле напряжений $u_{xx} = 0.01$ и в отсутствие внешней деформации как функция координаты z.

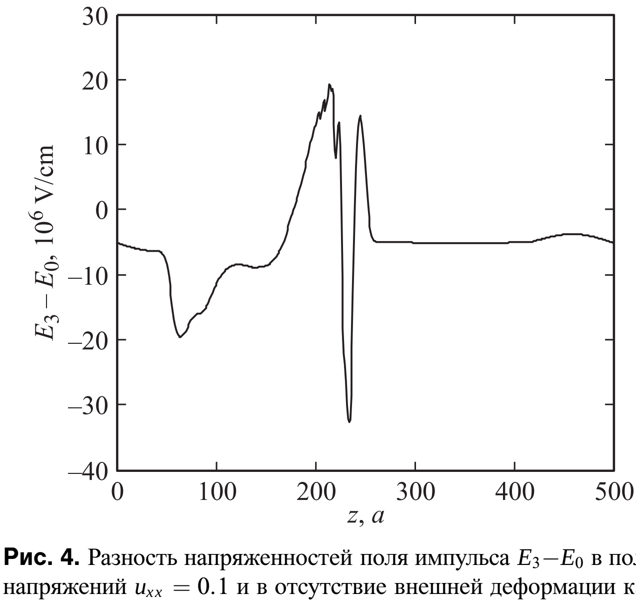

Рис. 4. Разность напряженностей поля импульса $E_3 - E_0$ в поле напряжений $u_{xx} = 0.1$ и в отсутствие внешней деформации как функция координаты z.

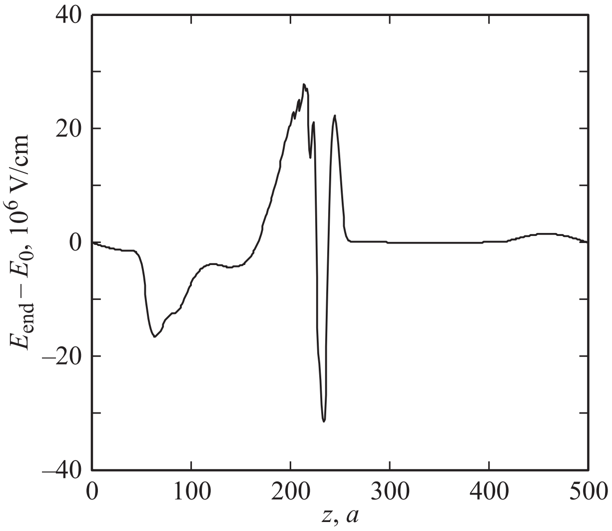

Рис. 5. Разность напряженностей поля импульса $E_{\rm end}-E_0$ в поле напряжений $u_{xx}=0.25$ с максимально возможной деформацией и в отсутствие внешней деформации как функция координаты z.

тронов и индуцирует электрический ток в направлении оси нанотрубки — оси x. Интенсивность импульса в целом уменьшается за счет передачи энергии электронной подсистеме. Спектр рассматриваемых π-электронов, согласно формуле (1), ограничен, и в пределах зоны Бриллюэна их энергия меняется периодически с изменением импульса. Воздействие импульса на электронную подсистему осуществляется посредством силы со стороны электрической составляющей, электроны начинают двигаться в зоне проводимости. Колебания вектора напряженности электрического поля импульса происходят быстрее, чем электроны успевают поменять направление движения. В итоге, когда вектор **E** импульса поменял направление, скорость электронов осталась направленной противоположно действующей силе. В этот период электромагнитный импульс отдает больше энергии на изменение направления и величины скорости электронов. В результате проявляется эффект „выпрямления“ электромагнитного импульса: один пик импульса увеличивает свою интенсивность, другой уменьшает.

Таким образом, проведенные исследования показали, что, варьируя механическую нагрузку, можно контролировать процесс распространения оптического импульса в монослоях графена, т.е. управлять электромагнитным полем с помощью поля напряжений, или акустических деформаций, что представляет особенный интерес с точки зрения практических приложений.

5. Заключение

В работе проанализировано распространение предельно коротких оптических импульсов через деформированные слои графена при разных значениях относительной деформации растяжения. Учет деформации проведен путем введения в волновое уравнение калибровочного эффективного вектор-потенциала.

С помощью численного интегрирования волнового уравнения показан эффект „выпрямления“ предельно короткого электромагнитного импульса при его прохождении через деформированные слои графена.

Полученный эффект может быть использован для осуществления внешнего контроля над формой и эволюцией электромагнитного импульса, проходящего через графеновые образцы. Выявленная зависимость позволяет управлять электромагнитным полем импульса с помощью поля напряжений (или акустических фононов), которое может быть введено в систему путем механического воздействия.

Список литературы

[1] С.В. Морозов, К.С. Новоселов, А.К. Гейм. УФН **178**, 776 (2008).
[2] Ю.Е. Лозовик, С.П. Меркулова, А.А. Соколик. УФН **178**, 758 (2008).
[3] K. Sasaki, Y. Kawazoe, R. Saito. Prog. Theor. Phys. **113**, 463 (2005).
[4] J.L. Maenes. Phys. Rev. B **76**, 045 430 (2007).
[5] А.М. Желтиков. Сверхкороткие импульсы и методы нелинейной оптики. Физматлит, М. (2006). 296 с.
[6] M.B. Belonenko, E.V. Demushkina, N.G. Lebedev. J. Russian Laser Res. **27**, 457 (2006).
[7] М.Б. Белоненко, Е.В. Демушкина, Н.Г. Лебедев. ФТТ **50**, 367 (2008).
[8] М.Б. Белоненко, Е.В. Демушкина, Н.Г. Лебедев. Изв. РАН. Сер. физ. **72**, 28 (2008).
[9] Н.Н. Янюшкина, М.Б. Белоненко, Н.Г. Лебедев. Опт. и спектр. **108**, 658 (2010).
[10] П. Харрис. Углеродные нанотрубы и родственные структуры. Новые материалы XXI века. Техносфера, М. (2003). 336 с.
[11] J.W. Mintmire, C.T. White. Carbon **33**, 893 (1993).
[12] Ю.А. Ильинский, Л.В. Келдыш. Взаимодействие электромагнитного излучения с веществом. Изд-во МГУ, М. (1989). 304 с.
[13] R. Saito, M. Fujita, G. Dresselhaus, M.S. Dresselhaus. Phys. Rev. B **46**, 1804 (1992).
[14] H. Suzuura, T. Ando. Phys. Rev. B **65**, 235 412 (2002).
[15] Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц. Теоретическая физика. Т. VII. Теория упругости. Наука, М. (1987). 248 с.
[16] H. Rafii-Tabar. Computation physics of carbon nanotubes. Cambridge University Press. (2008). 493 p.
[17] Н.С. Бахвалов. Численные методы (анализ, алгебра, обыкновенные дифференциальные уравнения). Наука, М. (1975). 632 с.