16

Диссипативные солитоны в углеродных нанотрубках

© М.Б. Белоненко[1], Н.Г. Лебедев[2], Е.В. Сочнева[2]

[1] Волгоградский государственный педагогический университет,
Волгоград, Россия
[2] Волгоградский государственный университет,
Волгоград, Россия
E-mail: mbelonenko@yandex.ru

(Поступила в Редакцию в окончательном виде 2 июня 2010 г.)

Установлена теоретическая возможность существования аналогов диссипативных солитонов в массивах углеродных нанотрубок при воздействии на массив внешним однородным высокочастотным электрическим полем. Электромагнитное поле было рассмотрено в рамках уравнений Максвелла, а электроны проводимости углеродных нанотрубок описывались при помощи кинетического уравнения Больцмана в приближении времен релаксации. Внешнее переменное поле служит для накачки энергией электронной подсистемы, в то время как конечное время релаксации приводит к диссипации энергии. Обнаружена генерация периодической последовательности электромагнитных импульсов, что может быть применено для получения частот терагерцевого диапазона.

Работа проведена в рамках реализации ФЦП „Научные и научно-педагогические кадры инновационной России“ на 2009–2013 гг. (грант № НК-16(3)), а также поддержана Российским фондом фундаментальных исследований (грант № 08-02-00663).

1. Введение

Начиная с пионерских работ [1,2] изучение солитонов как нелинейных устойчивых образований различной природы проходило по двум путям: поиск физических ситуаций, которые описываются уже изученными моделями, и обобщение известных моделей для приближения к реальным физическим ситуациям, прежде всего путем учета диссипации, неизбежно присутствующей в любых системах. Отметим в связи с этим прежде всего исследования в области „опрокидывающихся солитонов“ [3,4]. Наиболее интересное обобщение, на наш взгляд, было получено сравнительно недавно [5–8] и связано с понятием диссипативных солитонов. Если учесть, что устойчивость солитонов обеспечивается балансом дисперсии и нелинейности, то в случае диссипативных солитонов выдвигается дополнительное требование баланса между поступающей энергией и энергией, рассеянной вследствие диссипации. Такое обобщение является наиболее естественным для сред, в которых нельзя пренебречь диссипативными процессами и можно предположить баланс дисперсии и нелинейности. Теория диссипативных солитонов получила большое развитие, и данные структуры были найдены в различных физически интересных ситуациях: полупроводниковых оптических усилителях, лазерных системах с насыщающимся поглощением, магнитооптике и пр. [9–12]. Вместе с тем хорошо известно, что углеродные нанотрубки (УНТ) обладают уникальными нелинейными свойствами, позволяющими предполагать существование в них обычных солитонов [4–15]. Сочетание относительно простого строения углеродных нанотрубок с их квазиодномерностью делает эти вещества весьма привлекательными для изучения как теоретиками, так и экспериментаторами. Так, например, при помощи редукции к уравнению Кортевега-де-Фриза были исследованы нелинейные свойства углеродных нанотрубок, связанные с негармоничностью потенциала взаимодействия между соседними атомами углерода [16]. В работах [17,18] изучались вопросы, связанные с нелинейным откликом углеродных нанотрубок на электромагнитное поле. Нелинейность, согласно выводам, сделанным в этих работах, возникает вследствие изменения классической функции распределения электронов и непараболического закона дисперсии электронов.

Возможность существования солитонов и зависимость их параметров от параметров углеродных нанотрубок были установлены в работах [19,20], и естественно возникает вопрос о существовании диссипативных солитонов. Поскольку существует естественный механизм диссипации энергии, связанный с рассеянием электронов углеродных нанотрубок на примесях и неоднородностях, необходимо предложить способ „подпитки“ энергией. В качестве такого способа предлагается помещать систему углеродных нанотрубок во внешнее однородное высокочастотное поле, которое будет играть роль „накачки“.

Все изложенные выше обстоятельства и послужили стимулом для написания настоящей работы.

2. Описание модели

Исследование электронной структуры УНТ приведено в достаточно большом количестве работ [21,22] и проводится в рамках анализа динамики π-электронов в приближении сильной связи. Так, в рамках данной модели закон дисперсии, который описывает свойства

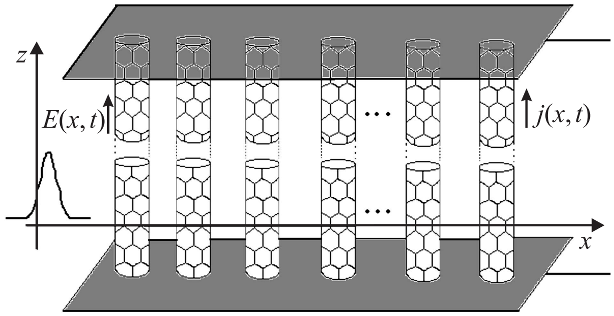

Рис. 1. Геометрия задачи.

графена, имеет вид [23]

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

где $\gamma \approx 2.7\,\text{eV}$, $d = 3b/2\hbar$, $b = 0.142\,\text{nm}$ — 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. Так, для УНТ типа zigzag, на свойствах которых и остановимся для определенности задачи, соответственно получаем

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

где квазиимпульс $\mathbf{p}$ задается как (p_z, s), $s = 1, 2\ldots m$. При построении нашей модели распространения ультракороткого оптического импульса в системе нанотрубок в случае геометрии, представленной на рис. 1, будем описывать электромагнитное поле импульса классически, на основании уравнений Мксвелла. Так, в калибровке $\mathbf{E} = -\frac{1}{c}\frac{\partial\mathbf{A}}{\partial t}$ уравнения Максвелла с учетом диэлектрических и магнитных свойств УНТ [24] можно записать как

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

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

Отметим, что здесь речь идет о непрерывном массиве нанотрубок, который часто получается при их выращивании. В этом случае возникает вопрос о необходимости уточнения закона дисперсии электронов в УНТ (1) с учетом их возможного перескока между различными нанотрубками, но, как показывают квантово-химические оценки, величина соответствующего интеграла перескока много меньше γ, и возникающими изменениями можно пренебречь.

Для определения тока воспользуемся полукалссическим приближением [18], взяв закон дисперсии (1) из квантово-механической модели и описывая эволюцию ансамбля частиц классическим кинетическим уравнением Больцмана в приближении времен релаксации

$$\frac{\partial f}{\partial t} - \frac{e}{c}\frac{\partial A_z}{\partial t}\frac{\partial f}{\partial p_z} = \frac{F_0 - f}{\tau}, \tag{3}$$

где e — заряд электрона.

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). Зависимостью же функции распределения от координаты z можно пренеберечь согласно [18]. F_0 — равновесная функция распределения Ферми

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

где T — температура, k_b — постоянная Больцмана. Время релаксации τ можно оценить согласно [18] примерно как $3 \cdot 10^{-13}\,\text{s}$. 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 настоящей работы остается круг вопросов, связанный с наличием подложки, на которой и выращиваются нанотрубки.

Необходимо отметить и то обстоятельство, что в рамках используемой нами полуклассической модели не учтены межзонные переходы, что, как показано в [18], дает ограничение на максимальную частоту лазерных импульсов. Для типичных нанотрубок данная частота лежит в ближней инфракрасной области.

Уравнение (2) легко решается методом характеристик

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

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

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

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

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

3. Внешнее переменное высокочастотное поле и эффективные уравнения

Будем рассматривать переменное электрическое поле $A_z(t)$ как состоящее из двух частей: поле распространяющегося импульса $A(t)$ и поле внешней высокочастотной накачки: $A_z(x,t) = A(x,t) + \frac{cE_0 \cos w_0 t}{w_0}$, где E_0 — амплитуда, а w_0 — частота внешнего высокочастотного поля. Условие высокочастотности здесь понимается как $w_0 \gg 1/\tau$, т. е. фактически частота внешнего поля должна лежать в оптическом диапазоне. Поле импульса $A(t)$ будет как обычно удовлетворять уравнению Максвелла

$$\frac{\partial^2 A(x,t)}{\partial x^2} - \frac{1}{c^2}\frac{\partial^2 A(x,t)}{\partial t^2} + \frac{4\pi}{c} j = 0. \tag{6}$$

Выражение для тока будет состоять из двух слагаемых

$$j_z = \frac{e}{\pi\hbar}\sum_s \int_{-q_0}^{q_0} dp_z dp_z v_z F_0\left(p_z + \frac{q}{c}A_z(t)\right)e^{-t/\tau} + \frac{e}{\pi\hbar\tau}$$
$$\times \sum_s \int_{-q_0}^{q_0} dp_z \int_{-\infty}^{t} e^{-(t-t')/\tau} v_z F_0\Big[p_z + \frac{q}{c}\big(A_z(t) - A_z(t')\big)\Big]dt', \tag{7}$$

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

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

$$a_{ms} = \frac{1}{\pi}\int_{-\pi}^{\pi} v_z(s,x)\sin(mx)dx. \tag{8}$$

Далее произведем в первом слагаемом замену $p = p_z + \frac{q}{c}A_z(t)$, а во втором — $p = p_z + \frac{q}{c}\big(A_z(t) - A_z(t')\big)$.

В первом слагаемом будем соответственно иметь

$$v_z(s,p) = \sum_m a_{ms}\sin\left[m\left(p - \frac{q}{c}A_z(t)\right)\right]$$
$$= \sum_m a_{ms}\left[m\left(p - A(x,t) - \frac{cE_0\cos w_0 t}{w_0}\right)\right]$$
$$= -\sum_m a_{ms}\cos(mp)\sin\left[m\left(A(x,t) + \frac{cE_0\cos w_0 t}{w_0}\right)\right],$$

где уже учтено, что вследствие четности F_0 слагаемые, содержащие $\sin(mp)$, при интегрировании по p вклада не дадут. Далее можно произвести усреднение по периоду колебаний высокочастотного поля и записать

$$v_z(s,p) = -\sum_m a_{ms}B_m(E_0)\cos(mp)\sin\big[m\big(A(x,t)\big)\big],$$

$$B_m(E_0) = \frac{w_0}{2\pi}\int_0^{2\pi/w_0}\cos\left(\frac{cmE_0\cos w_0 t}{w_0}\right)dt. \tag{9}$$

Аналогично выполняется усреднение по периоду высокочастотного поля и во втором слагаемом в (7). Отметим, что коэффициенты $B_m(E_0)$ изменяют знак, что и позволяет увидеть возможность усиления при воздействии высокочастотного поля. Так, если в (7) перейти к бесстолкновительному пределу и ограничиться в (8) только одним слагаемым, то можно получить уравнение sine-Gordon [19,20]. Как следует из теории уравнения sine-Gordon [25], если величина $\operatorname{sgn}\big(B_1(E_0)\big)$ меняет знак, то импульсы малой амплитуды становятся неустойчивыми и стремятся увеличить свою площадь по π. Это соответствует в теории самоиндуцированной прозрачности случаю инвертированной среды [26]. В нашем же случае это будет соответствовать безынверсионному усилению электромагнитных импульсов малой амплитуды за счет взаимодействия с внешним высокочастотным переменным полем.

Все это и послужило стимулом для дальнейшего численного исследования уравнения (6) с учетом (7)−(9).

4. Основные результаты численного моделирования

Исследуемые уравнения решались численно при помощи прямой разностной схемы типа „крест“ [27]. Шаги по времени и координате определялись из стандартных условий устойчивости. Далее начальное условие выбиралось в виде гауссового решения с амплитудой A_0. Такое начальное условие соответствует тому, что на образец подается предельно короткий импульс, состоящий из двух „полуколебаний“ электрического поля и имеющий нулевую „площадь“. Значения таких параметров, как $\gamma \approx 2.7\,\text{eV}$, $b = 0.142\,\text{nm}$, выбирались исходя из геометрии задачи, а также оценивались, например, при помощи квантово-химического полуэмпирического метода MNDO [28] из расчетов электронного строения углеродных нанотрубок.

Распространение импульса при начальной скорости $v = 0.5c$ (c — скорость света) для углеродной нанотрубки типа (6, 0) приведено на рис. 2.

Предельно короткий импульс разделяется на два (с образованием провала в месте максимума импульса) и далее эти импульсы начинают распространяться. В свою очередь в ходе распространения каждый из импульсов, образовавшихся из первоначального, разделяется на два и т. д. Аналогичное поведение (разделение первоначального импульса на два и их дальнейшее распространение) наблюдалось при исследовании динамики предельно коротких импульсов в системах нанотрубок [19,20].

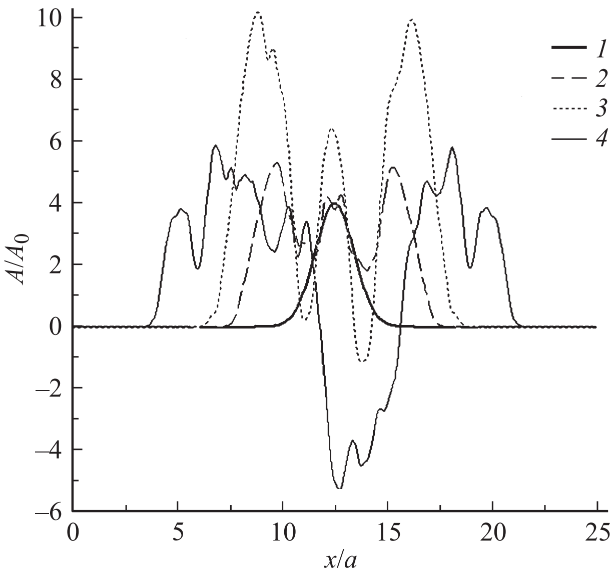

Рис. 2. Амплитуда импульса электромагнитного поля в системе УНТ с усилением и поглощением при различных значениях t/τ. Здесь и на рис. 3–5 по оси ординат отложена амплитуда импульса в относительных единицах, $a = 1\,\mu$m. t/τ: *1* — 0, *2* — 1, *3* — 2, *4* — 4.

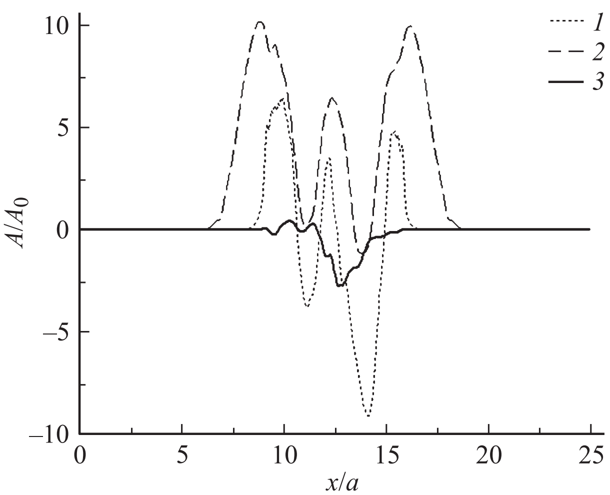

Рис. 3. Амплитуда импульса электромагнитного поля в системе УНТ в зависимости от величины внешнего переменного поля. $t/\tau = 2$. $\tilde{E}$: *1* — 0.1, *2* — 1, *3* — 5.

В данном случае в силу того, что в системе существует усиление, и импульс начинает усиливаться до тех пор, пока не наступит баланс между диссипацией и усилением, разделившиеся импульсы обладают примерно одинаковой амплитудой и процесс „разделения“ повторяется. Отметим еще раз, что процесс „разделения“ импульсов на два и дальнейшего усиления повторяется и в итоге на выходе будет периодический цуг импульсов.

Здесь видно, что величина амплитуды разделившихся импульсов в фиксированный момент времени определяется амплитудой внешнего высокочастотного поля, и при некоторых значениях амплитуды этого поля в соответтсвии с изложенным ранее (раздел 3) величина $B_t(E_0)$ меняет знак и усиление исчезает, в этом случае динамика импульса в данной среде аналогична динамике, представленной в работах [15,16]. Видно также и то, что усиление определяется величиной внешнего высокочастотного поля.

На рис. 4 представлена зависимость формы импульса, распространяющегося в нашей системе, от величны γ.

Ток в уравнении (6) пропорционален величине γ (в силу пропорциональности $v_z(s, p)$ этой величине); согласно рис. 4, увеличение γ приводит к увеличению

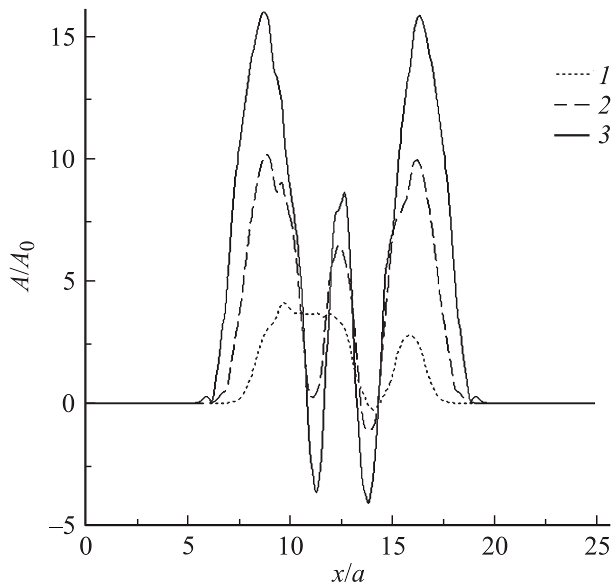

Рис. 4. Амплитуда импульса электромагнитного поля в системе УНТ в зависимости от величины γ. $t/\tau = 2$. γ, eV: *1* — 0.1, *2* — 0.5, *3* — 1.

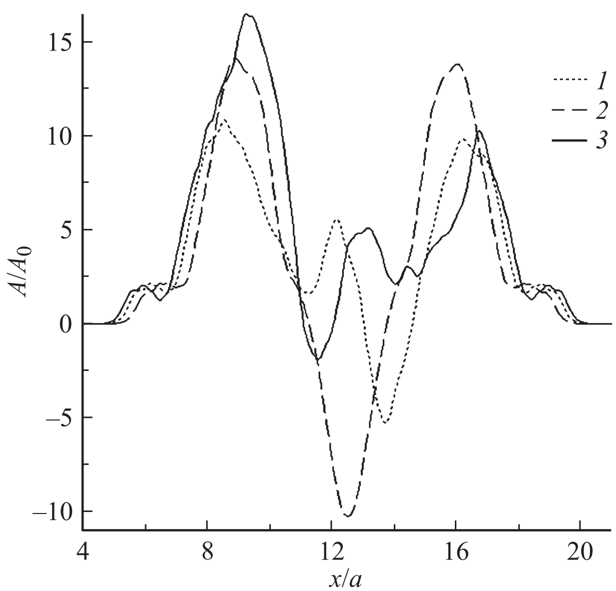

Рис. 5. Зависимости распределения поля импульса в пространстве от амплитуды импульса в начальный момент времени. $t/\tau = 3$. $A_{\max}(x/a, 0)/A_0$: *1* — 4, *2* — 7, *3* — 10.

амплитуды образующихся импульсов. Это обстоятельство в свою очередь указывает на то, что данные импульсы образуются и за счет конкуренции дисперсии и нелинейности в рассматриваемой системе. Отметим, что при малой величине γ, как видно из рис. 4, нелинейности недостаточно, чтобы „раскачать“ образование „устойчивого“ импульса, и происходит просто дисперсионное расплывание.

Важной отличительной особенностью диссипативных солитонов является то, что их форма слабо зависит от начальных условий. С целью проверки выполнения этой особенности в рассматриваемой нами системе была исследована зависимость формы распада импульса от начальной амплитуды A_0 (рис. 5).

Здесь можно заметить, что по мере удаления от места локализации импульса в начальный момент времени, импульсы, соответствующие разным начальным условиям, начинают приобретать одинаковую форму и различия между ними уменьшаются. Это в свою очередь дает возможность считать, что в рассматриваемой нами системе наблюдаются те же самые особенности, что и при образовании диссипативных солитонов.

Необходимо также отметить, что в [5–8] под диссипативными солитонами понимались пространственно локализованные решения, в то время как в настоящей работе наблюдался режим, который соответствует скорее образованию „решетки“, состоящей из диссипативных солитонов. Отметим, что это обстоятельство можно связать с тем, что диссипативные солитоны, согласно приведенным выше работам, существуют только в узком диапазоне параметров, а также с тем, что рассматриваемая нами система даже без учета диссипации и усиления за счет внешнего высокочастотного поля далека от интегрируемой. Таким образом, изучаемая нами физическая система может быть рассмотрена как новая среда, в которой возможно существование диссипативных солитонов или решеток из диссипативных солитонов.

5. Заключение

Сформулируем основные выводы настоящей работы.

1) Получена система уравнений, описывающая динамику электрического поля в системе углеродных нанотрубок в присутствии внешнего высокочастотного переменного поля и с учетом диссипации энергии в электронной подсистеме.

2) Установлено, что в рассматриваемой системе возникает последовательность импульсов, которая образуется путем „развала“ начального импульса и дальнейшего усиления за счет внешнего высокочастотного поля с последующим развалом и усилением.

3) При изменении амплитуды внешнего высокочастотного поля возможен режим, когда усиления не происходит, и импульс распадается за счет дисперсии в системе углеродных нанотрубок.

4) Форма возникающей последовательности импульсов (т.е. пики электрического поля, которые постоянно разделяются на аналогичные пики) на больших расстояниях слабо зависит от начальных условий вследствие наличия диссипации и усиления в данной системе.

Список литературы

[1] N.J. Zabusky, M.D. Kruskal. Phys. Rev. Lett. **15**, 240 (1965).
[2] R.M. Miura, C.S. Gardner, M.D. Kruscal. Math. Phys. **9**, 1204 (1968).
[3] О.И. Богоявленский. Изв. АН СССР. Сер. мат. **54**, *6*, 1123 (1990).
[4] О.И. Богоявленский. Опрокидывающиеся солитоны. Наука, М. (1991). 320 с.
[5] Н.Н. Ахмедиев, А. Анкевич. Диссипативные солитоны. Физматлит, М. (2008). 504 с.
[6] Н.Н. Розанов. УФН **170**, 462 (2000).
[7] Н.Н. Розанов, С.В. Федоров, А.Н. Шацев. ЖЭТФ **129**, 625 (2006).
[8] S. Barland, J.R. Tredicce, M. Brambilla, L.A. Lugiato, S. Balle, M. Giudici, T. Maggipinto, L. Spinelli, G. Tissoni, T. Knödl, M. Miller, R. Jäger. Nature **419**, 699 (2002).
[9] S. Fauve, O. Thual. Phys. Rev. Lett. **64**, 282 (1990).
[10] S. Longhi, A. Geraci. Appl. Phys. Lett. **67**, 3062 (1995).
[11] A.D. Boardman, M. Xie. Opt. Soc. Am. B **14**, 3102 (1997).
[12] A.D. Boardman, M. Xie. J. Opt. B **3**, 5244 (2001).
[13] G.A. Vinogradov, T.Yu. Astakhova, O.D. Gurin, A.A. Ovchinnikov. Abstracts of invited lectures and contributed papers „Fullerenes and Atomic Clusters“. St. Petersburg, Russia (1999). P. 189.
[14] T.Yu. Astakhova, O.D. Gurin, M. Menon, G.A. Vinogradov. Phys. Rev. B **64**, 035 418 (2001).
[15] М.Б. Белоненко, Е.В. Демушкина, Н.Г. Лебедев. Хим. физика **25**, *6*, 75 (2006).
[16] М.Б. Белоненко, Е.В. Демушкина, Н.Г. Лебедев. Хим. физика **25**, *7*, 93 (2006).
[17] S.A. Maksimenko, G.Ya. Slepyan. In: The Handbook of nanotechology. Nanometer structure: theory, modeling, and simulation / Ed. A. Lakhtakia. SPIE Press, Bellingham (2004).
[18] G.Ya. Slepyan, S.A. Maksimenko, V.P. Kalosha, J. Herrmann, E.E.B. Campbell, I.V. Hertel. Phys. Rev. A **61**, 777 (1999).
[19] M.B. Belonenko, E.V. Demushkina, N.G. Lebedev. J. Rus. Laser Res. **27**, *5*, 457 (2006).
[20] М.Б. Белоненко, Н.Г. Лебедев, Е.В. Демушкина. ФТТ **50**, *2*, 367 (2008).
[21] M.F. Lin, K.W. Shung. Phys. Rev. B **50**, *23*, 17 744 (1994).
[22] R. Saito, M. Fujita, G. Dresselhaus, M.S. Dresselhaus. Phys. Rev. B **46**, *3*, 1804 (1992).
[23] P.R. Wallace. Phys. Rev. **71**, *9*, 622 (1947).
[24] Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц. Теоретическая физика. Т. 2. Теория поля. Наука, М. (1988). 509 с.
[25] Р. Буллаф, Ф. Кодри. Солитоны. Мир, М. (1983). 408 с.
[26] S.L. McCall, E.L. Hahn. Phys. Rev. **183**, *2*, 457 (1969).
[27] Н.С. Бахвалов. Численные методы (анализ, алгебра, обыкновенные дифференциальные уравнения). Наука, М. (1975). 632 с.
[28] А.Л. Ивановский. Квантовая химия в материаловедении. Нанотубулярные формы вещества. УрО РАН, Екатеринбург (1999). 176 с.