

Генерация высших гармоник при распространении предельно короткого оптического импульса в среде углеродных нанотрубок с нелинейным поглощением

© Н.Н. Конобеева, М.Б. Белоненко

Волгоградский государственный университет,
400062 Волгоград, Россия

e-mail: yana_nn@volsu.ru

Поступила в редакцию 19.10.2019 г.

В окончательной редакции 04.12.2019 г.

Принята к публикации 14.12.2019 г.

Рассмотрена задача о распространении предельно короткого оптического импульса в среде углеродных нанотрубок с нелинейным поглощением и усилением. Нелинейное поглощение описано феноменологически на основе литературных данных. Рассмотрен режим, в котором коэффициент усиления выше коэффициента линейного поглощения. Этот режим также описан феноменологически. Сам предельно короткий оптический импульс рассмотрен на основе уравнений Максвелла с микроскопически вычисленной зависимостью тока от поля импульса. Показана возможность эффективной генерации высших гармоник, которые изначально не присутствовали в импульсе.

Ключевые слова: углеродные нанотрубки, нелинейное поглощение, оптические импульсы.

DOI: 10.21883/OS.2020.04.49204.289-19

Задача о генерации высших гармоник [1–3] по сути является одной из первых задач нелинейной оптики. Данная задача решалась неоднократно, как теоретически, так и экспериментально [4–6]. Отметим, что в рамках данной задачи также рассматривались как непрерывное излучение, так и ультра- [7–9] и предельно [10–13] короткие импульсы. Причина столь интенсивного исследования данной области состоит в основном в том, что генерация высших гармоник является, по-видимому, одним из самых перспективных способов получения когерентного излучения ближнего рентгеновского диапазона. Как известно, для получения высших гармоник достаточно присутствия в материальных уравнениях, которые дополняют уравнения Максвелла, той или иной нелинейности. В этой связи, нелинейные свойства углеродных нанотрубок (УНТ) широко известны [14,15]. Собственно, и сами УНТ и родственные им структуры неоднократно предлагались для получения высших гармоник [16–18]. Также известно и о процессах распространения ультра- и предельно коротких импульсов в данной системе [19–21]. Влияние среды на распространение таких импульсов также неоднократно было исследовано [22,23]. В этом рассмотрении остался открытым вопрос о влиянии релаксации в УНТ на динамику распространения импульсов, особенно учет реальной релаксации, наблюдаемой в экспериментах [24,25]. Отметим, что реальную экспериментально наблюдаемую релаксацию можно разделить на две части: линейную (по амплитуде импульса) и нелинейную. Если учет линейной части релаксации не представляет особого труда [26,27], то учет нелинейной части сопряжен с рядом трудностей, как экспериментального, так и теоретического характера. Оставляя в стороне вопросы эксперимента, со-

средоточимся на трудностях теоретического характера. Прежде всего, это корректное задание вида нелинейного поглощения. Поскольку задачи с нелинейным поглощением практически не решаются аналитически, встает и вопрос о выборе численной схемы. Также важен и вопрос калибровки в уравнениях Максвелла. Отметим, что возможна генерация высших гармоник и просто за счет нелинейного поглощения. Все это и послужило стимулом для написания настоящей работы.

Основные уравнения

Рассмотрим распространение трехмерных предельно коротких электромагнитных импульсов в массиве зигзагообразных углеродных нанотрубок. Для определенности положим, что электромагнитный импульс распространяется вдоль оси нанотрубок (ось Oz), а вектор его электрического поля коллинеарен вертикальной оси (рис. 1).

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

Для компоненты электрического поля, направленной вдоль оси УНТ (с учетом калибровки: $\mathbf{E} = -\partial\mathbf{A}/c\partial t$), запишем трехмерное волновое уравнение:

$$\frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 A}{\partial t^2} - \Gamma \frac{\partial A}{\partial t} = \frac{\partial^2 A}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 A}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 A}{\partial z^2} + \frac{4\pi}{c} j(A) - F_1 \left(\frac{\partial A}{\partial t} \right)^3 - \frac{F_2 \frac{\partial A}{\partial t}}{1 + \Delta \left(\frac{\partial A}{\partial t} \right)^2}, \quad (1)$$

где параметр Γ описывает накачку электрического поля (за вычетом линейного поглощения) [28] и, соответ-

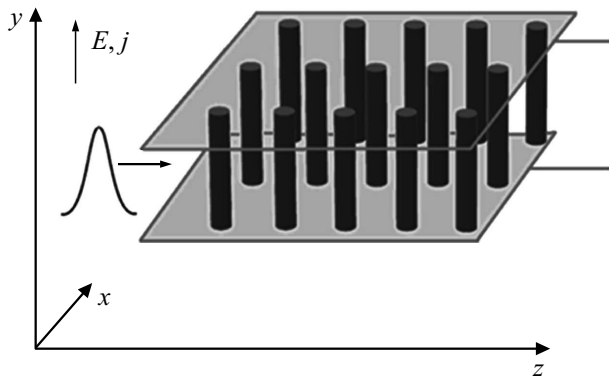


Рис. 1. Геометрия задачи.

ственно, его усиление, c — скорость света. Отметим, что накачка здесь введена феноменологически и, в общем случае, зависит только от пространственных координат, F_1, F_2 — коэффициенты нелинейного поглощения [29], вид и значение которых берутся из экспериментальных работ.

Далее перейдем в цилиндрическую систему координат и перепишем уравнение (1) в следующем виде:

$$\frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 A}{\partial t^2} - \Gamma \frac{\partial A}{\partial t} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial A}{\partial r} \right) + \frac{\partial^2 A}{\partial z^2} + \frac{1}{r^2} \frac{\partial^2 A}{\partial \phi^2} + \frac{4\pi}{c} j(A) - F_1 \left(\frac{\partial A}{\partial t} \right)^3 - \frac{F_2 \frac{\partial A}{\partial t}}{1 + \Delta \left(\frac{\partial A}{\partial t} \right)^2}, \quad (2)$$

r, z, ϕ — координаты в цилиндрической системе, $r^2 = x^2 + y^2$.

Запишем стандартное выражение для плотности тока:

$$j = 2e \sum_{s=1}^m \int_{ZB} v_s(p) \cdot f(p, s) dp, \quad (3)$$

где e — заряд электрона, p — компонента квазиимпульса электрона проводимости вдоль оси нанотрубки (ось Oy), $v_s(p) = \frac{\partial \varepsilon_s(p)}{\partial p}$ — скорость электронов, $f(p, s)$ — функция распределения Ферми, $\varepsilon_s(p)$ — закон дисперсии, который описывает свойства электронов УНТ и имеет вид [30]:

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

где $s = 1, 2, \dots$, нанотрубка имеет тип $(m, 0) \approx 2.7$ eV, $a = 3b/2\hbar$, $b = 0.142$ nm — расстояние между соседними атомами углерода.

В общем случае при распространении предельно короткого импульса в массиве УНТ, вследствие неоднородности поля импульса, может возникнуть неоднородность тока, вследствие чего возможно накопление заряда в какой-то области. Однако, проведенные ранее расчеты [31] показали, что эффектом накопления заряда для

фемтосекундных импульсов можно пренебречь. Вследствие этого можно считать, что сохраняется цилиндрическая симметрия в распределении поля и мы получаем одно эффективное уравнение на вектор-потенциал:

$$\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial A}{\partial r} \right) + \frac{\partial^2 A}{\partial z^2} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 A}{\partial t^2} + \frac{4\pi n_0}{c} \sum_{q=1}^{\infty} b_q \cos\left(\frac{aeqA}{c}\right) \times \frac{aeq}{c} \cdot f(t) - F_1 \left(\frac{\partial A}{\partial t} \right)^3 - \frac{F_2 \frac{\partial A}{\partial t}}{1 + \Delta \left(\frac{\partial A}{\partial t} \right)^2} + \Gamma \frac{\partial A}{\partial t} = 0, \quad (5)$$

n_0 — концентрация электронов,

$$f(t) = \begin{cases} 0, & t < t_0(z) \\ \exp\left(-\frac{t}{t_{rel}}\right), & t \geq t_0(z) \end{cases}, \quad (6)$$

$t_0(z) \cong (z - z_0)/v$ — 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 [32]. Отметим, что $f(t)$ (формула (6)) представляет собой поправочный коэффициент к выражению для плотности тока в бесстолкновительном приближении, который записан эмпирически на основе обобщения и анализа результатов численного моделирования и представляет собой грубую аппроксимацию для плотности тока в приближении времени релаксации. Подобный подход учета влияния столкновений электронов предложен при исследовании распространения электромагнитных волн в сверхрешетке [33], плотность тока в которой имеет схожий вид с плотностью тока для систем с УНТ. Таким образом мы хотели показать, что импульс тока, индуцируемый предельно коротким оптическим импульсом, затухает по экспоненциальному закону при учете релаксационных процессов.

$$b_q = \sum_s a_{sq} \int_{ZB} dp \cdot \cos(pq) \frac{\exp(-\varepsilon_s(p)/k_B T)}{1 + \exp(-\varepsilon_x(p)/k_B T)}, \quad (7)$$

k_B — постоянная Больцмана, T — температура, a_{sq} — коэффициенты в разложении закона дисперсии электронов (4) в ряд Фурье:

$$\varepsilon_s(p) = \frac{1}{2\pi} \sum_{s=1}^m \sum_{q=1}^{\infty} a_{sq} \cos(pq), \quad (8)$$

$$a_{sq} = \int_{ZB} dp \cdot \cos(pq) \varepsilon_s(p). \quad (9)$$

Отметим, что вследствие убывания коэффициентов b_q (формула (7)) с ростом q в сумме можно ограничиться первыми 15 не исчезающими слагаемыми [34] и получить обобщенное уравнение sine-Gordon [35].

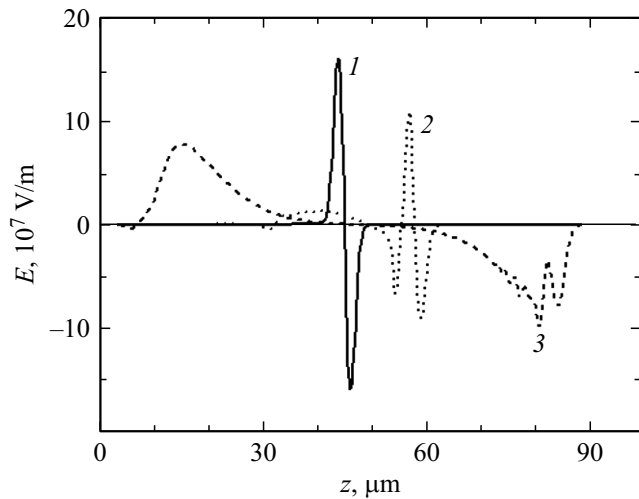


Рис. 2. Эволюция импульса ($F_1 = 0.1, F_2 = 0.1, t_{rel} = 10^{-12}$ s): $t = 0$ (1), $5 \cdot 10^{-14}$ s (2), $15 \cdot 10^{-14}$ s (3).

Результаты численного моделирования

Уравнение (5) решалось численно с начальными условиями следующего вида:

$$A(r, z, 0) = Q \exp\left(-\frac{(z - z_0)^2}{l_z^2}\right) \exp\left(-\frac{(r - r_0)^2}{l_r^2}\right),$$

$$\frac{dA(r, z, 0)}{dt} = 2v \frac{(z - z_0)}{l_z^2} \cdot Q \exp\left(-\frac{(z - z_0)^2}{l_z^2}\right) \times \exp\left(-\frac{(r - r_0)^2}{l_r^2}\right), \quad (10)$$

здесь Q — амплитуда импульса, v — его начальная скорость в направлении z , l_z, l_r определяют ширину импульса.

Возникающая эволюция электромагнитного поля при его распространении по образцу в случае одного колебания электрического поля представлена на рис. 2.

Согласно рис. 2, на больших временах ($t = 15 \cdot 10^{-14}$ s) наблюдается характерный „дребезг“, соответствующий режиму генерации высших гармоник. Установим параметры, при которых будет проявляться обнаруженный эффект.

Процесс генерации высших гармоник оценивался по форме фурье-спектра импульса в фиксированный момент времени (рис. 3).

Из рис. 3 видно, что с увеличением накачки „дребезг“ усиливается. Причем при значениях меньше некоторого ($\Gamma = 0.5$, при выборе параметров, указанных в подписи к рисунку) генерация высших гармоник и вовсе не наблюдается. На наш взгляд, это связано с тем, что при малых значениях усиления высшие гармоники просто подавляются релаксацией.

Далее исследуем влияние параметра нелинейного поглощения с насыщением F_2 на поведение импульса при распространении в массиве углеродных нанотрубок (рис. 4).

Необходимо отметить, что имеется некое оптимальное значение F_2 (рис. 4, b), которое соответствует наибольшему выходу во вторую гармонику. Это и понятно, если учесть, что слагаемое с F_2 описывает релаксацию с насыщением. Начиная с некоторого значения амплитуды поля импульса происходит насыщение, и процесс генерации высших гармоник подавляется (т. е. не происходит его роста вследствие насыщения). В то же самое время амплитуда основной гармоники (на самом деле пакета гармоник, которые лежат вблизи основной, далее мы используем этот термин для краткости) продолжает расти за счет усиления. Это и приводит к снижению эффективного выхода в высшие гармоники.

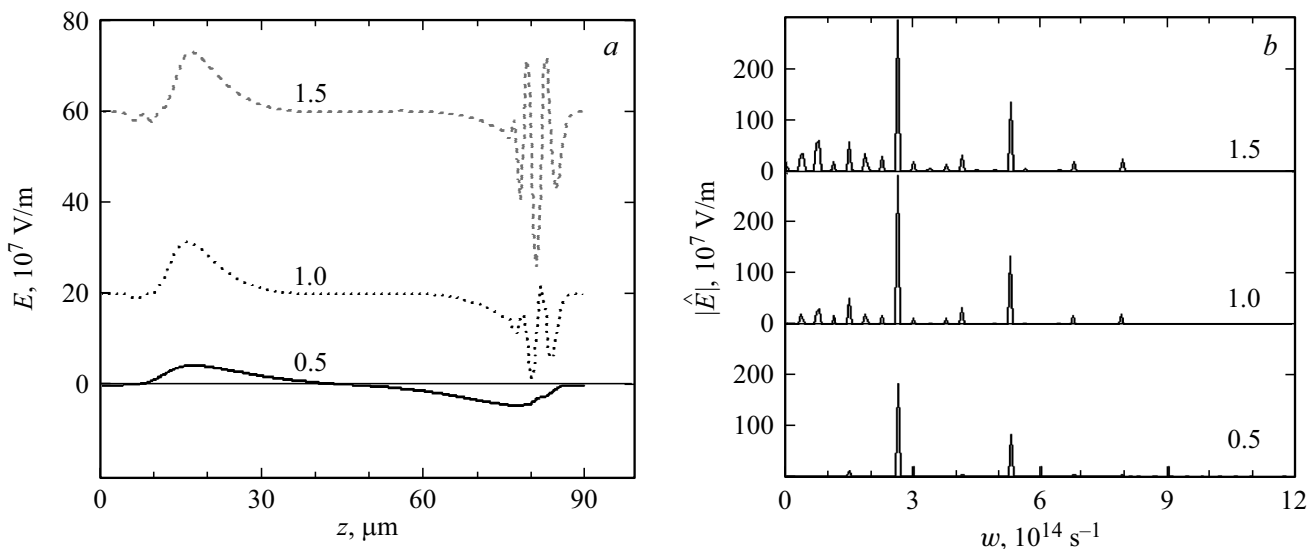


Рис. 3. Зависимость напряженности электрического поля импульса от координаты (a) и модули фурье-спектров в момент времени $t = 15 \cdot 10^{-14}$ s (для значений коэффициента усиления $\Gamma = 0.5, 1.0, 1.5$ (b)). Для наглядности на рисунке (a) кривые 1.0 и 1.5 смещены вверх на 20 и 60 единиц 10^7 V/m соответственно.

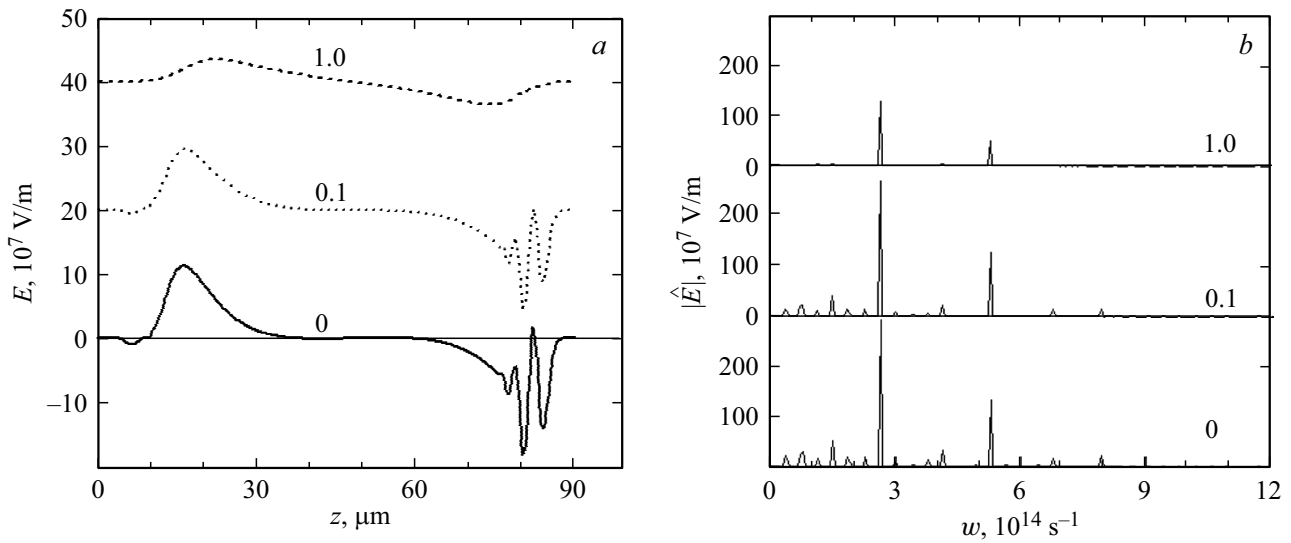


Рис. 4. Зависимость напряженности электрического поля импульса от координаты (а) и модули Фурье-спектров (b) в момент времени $t = 15 \cdot 10^{-14}$ s для $F_1 = 0$ и значений коэффициента нелинейного поглощения с насыщением $F_2 = 0, 0.1, 1.0$. Для наглядности на рисунке (а) кривые 0.1 и 1.0 смещены вверх на 20 и 40 единиц 10^7 V/m соответственно.

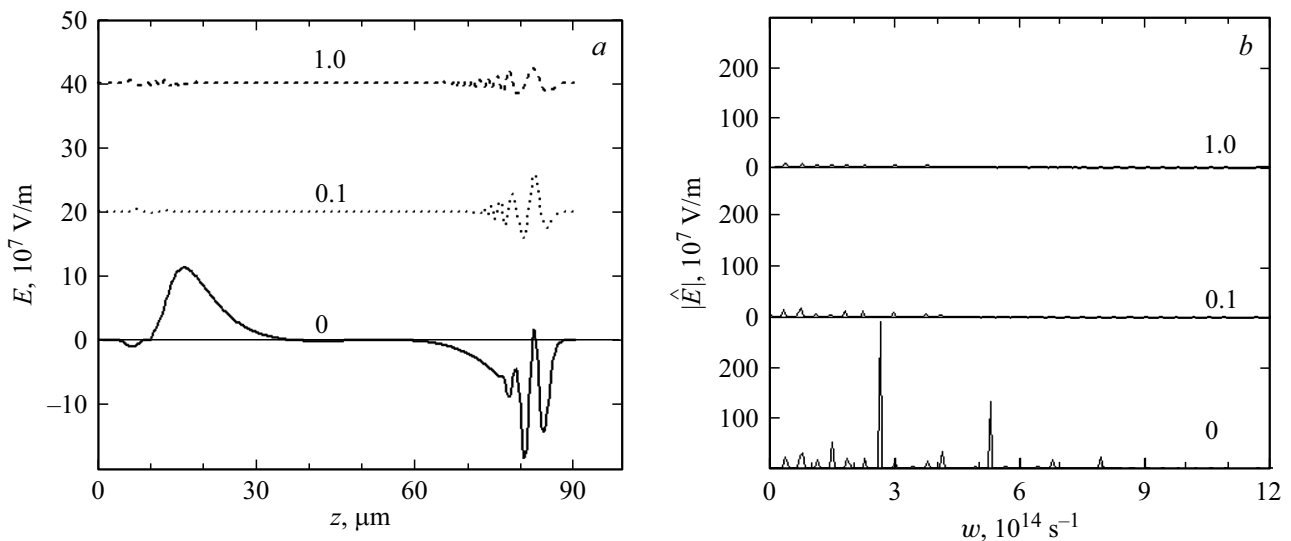


Рис. 5. Зависимость напряженности электрического поля импульса от координаты (а) и модули спектров Фурье (b) в момент времени $t = 15 \cdot 10^{-14}$ s для $F_2 = 0$ и значений коэффициента нелинейного поглощения $F_1 = 0, 0.1, 1.0$. (Для наглядности на рисунке (а) кривые 0.1 и 1.0 смещены вверх на 20 и 40 единиц 10^7 V/m соответственно).

Зависимость напряженности электрического поля импульса от координаты в фиксированный момент времени для разных значений коэффициента нелинейного поглощения F_1 представлена на рис. 5.

Согласно рис. 5, параметры нелинейного поглощения наряду с усилением Γ оказывают сильное влияние на форму предельно короткого оптического импульса. Варьируя величину нелинейного поглощения с насыщением, можем переходить из одного режима в другой (от генерации высших гармоник до оптического диапазона).

И, наконец, зависимость напряженности электрического поля импульса от координаты в фиксированный

момент времени для разных значений времени релаксации представлена на рис. 6.

Как и ранее, при значениях времени релаксации меньше некоторого порога генерация высших гармоник не наблюдается. Это связано с тем, что при малых значениях времени релаксации высшие гармоники просто подавляются релаксацией. Время релаксации определяется как бездефектностью и беспримесностью образца, так и температурой. В принципе при охлаждении можно увеличить время релаксации даже для дефектных образцов. Это, в свою очередь, открывает возможности для

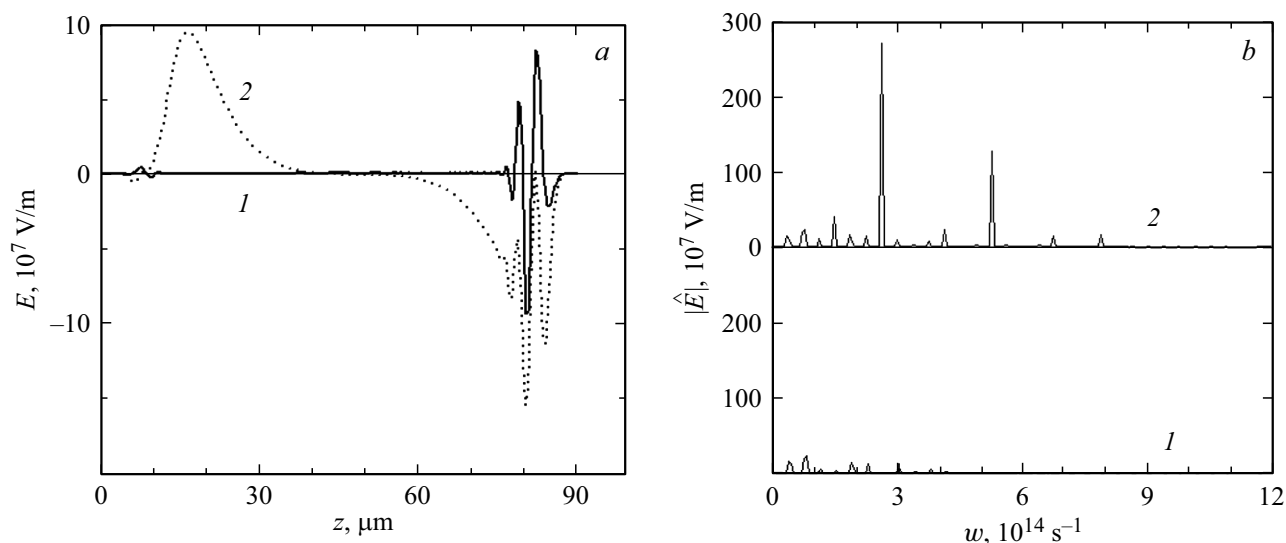


Рис. 6. Зависимость напряженности электрического поля импульса от координаты (а) и модули спектров Фурье (b) в момент времени $t = 15 \cdot 10^{-14}$ s для значений времени релаксации $t_{rel} = 10^{-14}$ s (1), 10^{-12} s (2).

построения датчиков температуры, на основе измерения выхода высших гармоник.

Заключение

1. Построена модель распространения предельно короткого оптического импульса в среде углеродных нанотрубок с нелинейным поглощением и усилением.

2. Обнаружен эффект генерации высших гармоник в среде с углеродными нанотрубками нелинейным поглощением и усилением.

3. Показано, что режимом генерации высших гармоник можно управлять за счет подбора параметров накачки, нелинейного поглощения и температуры.

4. Выявлено, что наиболее сильное влияние на форму импульса и соответственно спектры Фурье оказывает нелинейное поглощение с насыщением, величина которого определяет режим (генерация высших гармоник или ее отсутствие).

Финансирование работы

Коновеева Н.Н. выражает благодарность за финансовую поддержку Министерству науки и высшего образования РФ в рамках государственного задания (проект № 2.852.2017/4.6). Белоненко М.Б. благодарит за финансовую поддержку Российский фонд фундаментальных исследований и Администрацию Волгоградской области (проект № 19-43-340005 p_a).

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что конфликт интересов отсутствует.

Список литературы

- [1] Келдыш Л.В. // ЖЭТФ. 1965. Т. 47. В. 5. С. 1945.
- [2] Lewenstein M., Balcou Ph., Ivanov M.Yu., L'Huillier A., Corkum P.B. // Phys. Rev. A. 1994. V. 49. P. 2117. doi 10.1103/PhysRevA.49.2117
- [3] Becker W., Long S., McIver J.K. // Phys. Rev. A. 1994. V. 50. P. 1540. doi 10.1103/physreva.50.1540
- [4] L'Huillier A., Lompre L.A., Ferray M., Li X.F., Manfray G., Manus C. // J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 1988. V. 21. P. 31. doi 10.1209/0295-5075/5/7/005
- [5] Figueira de Morisson Faria C., Kopold R., Becker W., Rost J.M. // Phys. Rev. A. 2002. V. 65. P. 023404. doi 10.1103/PhysRevA.65.023404
- [6] Zheltikov A.M., Koroteev N.I., Fedotov A.B. // Laser Physics. 1994. V. 4. P. 569.
- [7] Seres J., Seres E., Verhoef A.J., Tempea G., Strelci C., Wobrauschek P., Yakovlev V., Scrinzi A., Spielmann C., Krausz F. // Nature. 2005. V. 433. P. 596. doi 10.1038/433596a
- [8] Popmintchev T., Chen M.-C., Popmintchev D., Arpin P., Brown S., Ališauskas S., Andriukaišis G., Balčiūnas T., Mücke O.D., Pugzlys A., Baltuška A., Shim B., Schrauth S.E., Gaeta A., Hernández-Garsía C., Plaja L., Becker A., Jaron-Becker A., Murnane M.M., Kapteyn H.C. // Science. 2012. V. 336. P. 1287. doi 10.1126/science.1218497
- [9] Chang Z., Rundquist A., Wang H., Murnane M.M., Kapteyn H.C. // Phys. Rev. Lett. 1997. V. 79. N 16. P. 2967.
- [10] Popmintchev T., Chen M.-C., Popmintchev D., Arpin P., Brown S., Ališauskas S., Andriukaišis G., Balčiūnas T., Mücke O.D., Pugzlys A., Baltuška A., Shim B., Schrauth S.E., Gaeta A., Hernández-Garsía C., Plaja L., Becker A., Jaron-Becker A., Murnane M.M., Kapteyn H.C. // Science. 2012. V. 336. N. 6086. P. 1287. doi 10.1126/science.1218497
- [11] Gao X., Shim B., Downer M.C. // Optics Lett. 2019. V. 44. N 4. P. 779. DOI: 10.1364/OL.44.000779

- [12] Takahashi E., Nabekawa Y., Otsuka T., Obara M., Midorikawa K. // *Phys. Rev. A*. 2002. V. 66. P. 021802. doi 10.1103/PhysRevA.66.021802
- [13] Eyring S., Kern C., Zürich M., Spielmann C. // *Opt. Express*. 2012. V. 20. N 5. P. 5601. doi 10.1364/OE.20.005601
- [14] Shi J., Chu H., Li Y., Zhang X., Pana H., Li D. // *Nanoscale*. 2019. V. 11. P. 7287. doi 10.1039/C8NR10174D
- [15] Белоненко М.Б., Глазов С.Ю., Лебедев Н.Г., Мещерякова Н.Е. // *ФТТ*. 2009. Т. 51. В. 8. С. 1657.
- [16] Ganeev R.A., Naik P.A., Singhal H., Chakera J.A., Kumar M., Joshi M.P., Srivastava A.K., Gupta P.D. // *Phys. Rev. A*. 2011. V. 83. P. 013820. doi 10.1103/PhysRevA.83.013820
- [17] Ganeev R.A., Suzuki M., Kuroda H. // *Eur. Phys. J. D*. 2016. V. 70. N 1. art.no.21. doi 10.1140/epjd/e2015-60414-y
- [18] Baharib A., Daneshfara N., Khosravia Y. // *Carbon*. 2009. V. 47. N 2. P. 457. doi 10.1016/j.carbon.2008.10.025
- [19] Белоненко М.Б., Лебедев Н.Г., Попов А.С. // *Письма в ЖЭТФ*. 2010. Т. 91. В. 9. С. 506. doi 10.1134/S0021364010090067
- [20] Конобеева Н.Н., Белоненко М.Б. // *Опт. и спектр.* 2018. Т. 12. № 3. С. 405. doi 10.21883/OS.2018.09.46557.41-18
- [21] Sleruyan G.Ya., Maksimenko A.S., Kalosha V.P., Gusakov A.V., Herrmann J. // *Phys. Rev.* 2001. V. 63. id053808. doi 10.1103/PhysRevA.63.053808
- [22] Янюшкина Н.Н., Белоненко М.Б., Лебедев Н.Г. // *Опт. и спектр.* 2011. Т. 111, № 1. С. 92. doi 10.1134/S0030400X1107023X
- [23] Янюшкина Н.Н., Белоненко М.Б. // *Опт. и спектр.* 2013. Т. 114. № 1. С. 173. doi 10.1134/S0030400X13010281
- [24] Dyatlova O.A., Koehler C., Vogel P., Malic E., Jain R.M., Tvrdu K.C., Strano M.S., Knorr A., Woggon U. // *Phys. Rev. B*. 2014. V. 90. P. 155402. doi 10.1103/PhysRevB.90.155402
- [25] Jiang J., Saito R., Grüneis A., Chou S.G., Samsonidze G.G., Jorio A., Dresselhaus G., Dresselhaus M.S. // *Phys. Rev. B*. 2005. V. 71. P. 045417. doi 10.1103/PhysRevB.71.045417
- [26] Белоненко М.Б., Демушкина Е.В., Лебедев Н.Г. // *ФТТ*. 2008. В. 2. С. 368. doi 10.1007/s11451-008-2027-7
- [27] Белоненко М.Б., Демушкина Е.В., Лебедев Н.Г. // *Химическая физика*. 2008. Т. 27. № 9. С. 86.
- [28] Konobeeva N., Belonenko M. // *EPJ Web of Conferences*. 2017. V. 161. P. 02012. doi 10.1051/epjconf/201716102012
- [29] Kataraju N., Kumar S., Sood A.K. // *Appl. Phys. Lett.* 2007. V. 91. P. 251103. doi 10.1063/1.2825409
- [30] Eletsii A.V. // *Physics-Uspekhi*. 1997. V. 40. N 9. P. 899. doi 10.3367/UFNr.0167.199709b.0945
- [31] Zhukov A.V., Bouffanais R., Fedorov E.G., Belonenko M.B. // *J. Appl. Phys.* 2013. V. 114. P. 143106. doi 10.1063/1.4824370
- [32] Konobeeva N.N., Fedorov E.G., Rosanov N.N., Zhukov A.V., Bouffanais R., Belonenko M.B. // *J. Appl. Phys.* 2019. V. 126. P. 203103. doi 10.1063/1.5128365
- [33] Басс Ф.Г., Булгаков А.А., Тетервов А.П. *Высокочастотные свойства полупроводников со сверхрешетками*. М.: Наука, 1989. 288 с.
- [34] Belonenko M.B., Demushkina E.V., Lebedev N.G. // *J. Rus. Las. Res.* 2006. V. 27. N 5. P. 457. doi 10.1007/s10946-006-0027-7
- [35] Li P., Mihalache D., Malomed B.A. // *Phil. Trans. R. Soc. A*. 2018. V. 376 (2124). P. 20170378. doi 10.1098/rsta.2017.0378.