

ЭЛЕКТРОДИНАМИКА КВАЗИОДНОМЕРНЫХ СТРУКТУР УГЛЕРОДА: ИДЕИ, МЕТОДЫ, ПЕРСПЕКТИВЫ

С. А. Максименко, Г. Я. Слепян

Фундаментальные этапы развития современной электродинамики тесно связаны с потребностями радио- и оптоэлектроники, проектированием и реализацией новых средств передачи и обработки информации. Становление квантовой электроники потребовало создания теории открытых квазиоптических резонаторов [1]. Синтез высококачественных оптических волокон сделал реальной волоконно-оптическую связь. Это привело к развитию теории открытых диэлектрических волноводов (в том числе нерегулярных и нелинейных) [2, 3]. Прогресс микроэлектроники СВЧ стимулировал работы по электродинамике микрополосковых и других планарных структур [4]. Современный этап развития электродинамики связан с созданием высокоэффективных компьютерных методов, применимых для описания тел с произвольной пространственной конфигурацией и диссипацией энергии [5]. Успехи современной наноэлектроники (в том числе оптического диапазона) связаны как с успехами в технологии, так и с достижениями в области фундаментальной физики, описывающей электронные, механические и оптические свойства наноструктур. Достижения физики и технологии твердотельных наноструктур привели к созданию научного фундамента их широкого применения в наноэлектронике и других областях [6]. Началось интенсивное создание ее элементной базы. Можно с уверенностью утверждать, что одно из магистральных направлений развития современной электродинамики будет связано с электродинамическим моделированием наноструктур и элементов наноэлектроники. В связи с этим возникают новые постановки задач, а хорошо известные в электродинамике приемы и методы применительно к новым объектам наполняются новым содержанием.

Твердотельные наноструктуры представляют собой наноразмерные неоднородности различной природы и конфигурации внутри полупроводниковых и диэлектрических сред. Их круг весьма широк: это квантовые стенки, квантовые нити и квантовые точки [7, 8], фуллерены и нанотрубки [9, 10], скульптурные тонкие пленки [11] и т. д. Несмотря на различную физическую природу этих объектов, их объединяют весьма малые размеры в одном или нескольких направлениях, всего на 1–2 порядка превышающие характерное межатомное расстояние. При этих условиях в полной мере проявляется квантовая природа движения носителей тока, а традиционное для электродинамики введение материальных параметров среды посредством макроскопического усреднения становится невозможным или, по крайней мере, требует модификации.

Первый этап развития современной физики твердого тела был полностью посвящен однородным средам. Итогом моделирования среды было дисперсионное уравнение для связанных состояний электромагнитного поля и носителей заряда. Его решения соответствуют собственным волнам среды, так называемым

квазичастицам [12], которые отличаются от свободных частиц сложным видом дисперсионной характеристики (зависимости энергии от квазиимпульса).

Переход к наноразмерным неоднородностям создал условия для дифракции и рассеяния квазичастиц, их преобразования друг в друга, подобно тому, как это имеет место для электромагнитных волн в нерегулярных электродинамических волноводах. Существенную роль при этом играют резонансные взаимодействия различных мод и соответствующие условия согласования. Первый шаг на данном пути был сделан при построении теории квантовых полупроводниковых сверхрешеток [13]. Хотя последние и не являются наноструктурами (типичные значения периода для них ~ 1 мкм), их высокочастотные и оптические свойства оказались весьма нестандартными: наличие отрицательной дифференциальной проводимости, распространение продольных (плазменных) волн и т. д.

Процессы взаимодействия различных мод в наноструктурах оказываются еще более сложными ввиду большего разнообразия взаимодействующих мод и сложной трехмерной конфигурации неоднородностей. Соответственно электромагнитные свойства наноструктурных материалов также оказываются более богатыми и разнообразными. В частности, современная квантовая теория кластеров и квазиодномерных проводников [14–16], лежащая в основе описания электронных свойств квазиодномерных структур углерода, предсказывает возможность создания мономолекулярных электронных приборов – диодов, транзисторов и т. д. Таким образом, в настоящее время создаются предпосылки для нового шага в решении проблемы миниатюризации устройств передачи, приема и обработки информации. Другой важный аспект приложений новых типов нанoeлектронных приборов – создание мономолекулярных логических схем, которые могут стать основой для новых поколений компьютеров, отличающихся сверхминиатюрными размерами при уникальной эффективности. Следует подчеркнуть, что процессы приема, передачи и обработки информации в мономолекулярных структурах основываются на квантовых процессах переноса заряда в них (это обстоятельство отражает, в частности, факт широкого использования в научной литературе таких терминов, как квантовые компьютеры, квантовые информационные системы и т. д.). Используемые в них физические механизмы – туннельный эффект, лавинно-пролетные и резистивные неустойчивости, взаимодействие заряженных квазичастиц с периодическим потенциалом – встречались и ранее в физике твердого тела. Однако применительно к нанотрубкам характер этих эффектов существенно меняется ввиду квазиодномерного характера проводимости последних. Поэтому классические результаты, относящиеся к трехмерным макроскопическим образцам, не могут быть перенесены на нанотрубки; требуются новые фундаментальные исследования электромагнитных и электронных процессов в квазиодномерных макромолекулах вообще и углеродных нанотрубках в частности. Следует заметить, что для многих типов наноструктур характерно наличие киральной симметрии. В силу этого в них можно ожидать проявления ряда эффектов, выявленных ранее для макроскопических киральных сред как в линейном [17], так и нелинейном [18, 19] режиме.

В данной работе обобщаются исследования в области электродинамики и теории электронного переноса различных наноструктур, выполненные в лабора-

тории гамма-оптики НИИ ЯП в течение последних пяти лет. Эти исследования охватывают линейную электродинамику углеродных нанотрубок и массивов таких нанотрубок [20–25], нелинейный перенос и нелинейные оптические эффекты в нанотрубках [26–28] и базируются на едином [30] подходе. В свою очередь, развиваемый подход использует аналогию между электромагнитными процессами в наноструктурах и объектах макроскопической электродинамики СВЧ и аккумулирует хорошо известные методы и приемы электродинамики [5, 31]. Изложение ведется на примере ряда частных задач электродинамики углеродных нанотрубок. Следует, однако, отметить, что указанные частные задачи, помимо самостоятельного принципиального и прикладного интереса, служат хорошей иллюстрацией общих тенденций развития современной электродинамики наноструктур, а развитые методы находят применение при исследовании, например, электромагнитных процессов в квантовых точках и массивах таких точек [32–37].

1. Линейная электродинамика углеродных нанотрубок

1.1. Фуллерены и нанотрубки – поверхностные структуры углерода.

Среди различных наноструктур особое место занимают поверхностные структуры углерода – фуллерены и нанотрубки. Их основой является плоский монокристаллический слой графита (графен), конфигурация кристаллической структуры которого показана на рис. 1. Ряд общих вопросов, касающихся поверхностных структур углерода (технология получения, структурные и физические свойства, перспективы применения), изложен в обзорах [8, 9]. В случае фуллеренов (открыты в 1985 г. [38]) плоская поверхность графена преобразуется в замкнутую сферу, включающую в себя правильные шестиугольники (число которых зависит от размера фуллерена) и 12 правильных пятиугольников.

В случае нанотрубок (открыты в 1991 г. [39]) графитовая поверхность преобразуется в протяженную структуру типа полого цилиндра (рис. 2). Диаметр нанотрубок лежит в пределах 1–15 нм, а длина составляет 1–10 мкм. Способы преобразования плоской поверхности графена в цилиндрическую могут быть различными. Их удобно описать двумя целочисленными индексами (m, n) , указывающими координаты атома, который в результате сворачивания должен

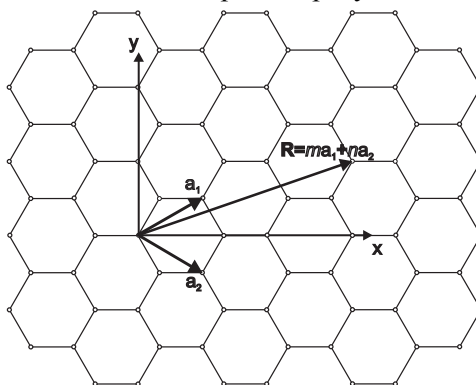


Рис. 1. Схематическая конфигурация кристаллической решетки графена

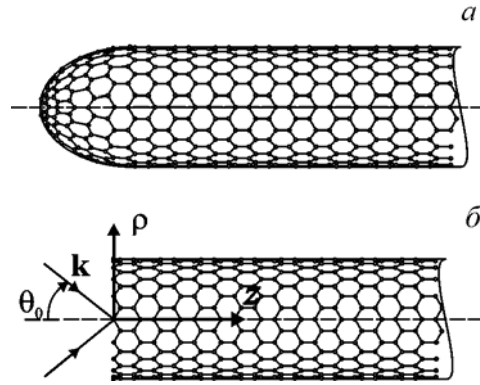


Рис. 2. Углеродная нанотрубка с закрытым (а) и открытым (б) концами

совпасть с атомом, лежащим в начале координат (см. рис. 1). Радиус нанотрубки R_{cn} и геометрический угол киральности θ_{cn} выражаются равенством

$$R_{cn} = \frac{\sqrt{3}}{2\pi} b \sqrt{m^2 + mn + n^2}, \quad \text{tg} \theta_{cn} = \frac{\sqrt{3}n}{2m + n}, \quad (1)$$

где $b = 0,142$ нм – расстояние между соседними атомами в элементарной ячейке графена. Наиболее простые конфигурации образуются индексами $(m, 0)$ (zigzag) и (m, m) (armchair). В других случаях говорят о киральных нанотрубках.

Синтезированы как однослойные, так и многослойные нанотрубки [40]. Последние представляют собой семейство N коаксиально расположенных многослойных цилиндров (расстояние между слоями 0,34 нм, $N \sim 10-12$). Наряду с углеродными нанотрубками имеются и нанотрубки, легированные азотом и бором [41]. При описании нанотрубок мы используем двумерный декартов базис (x, y) для графена (см. рис. 1) и цилиндрический базис (ρ, ϕ, z) для нанотрубок (рис. 2). Переход от графена к нанотрубке типа zigzag осуществляется подстановкой $\{x \rightarrow z, y \rightarrow \phi\}$, а к armchair – подстановкой $\{y \rightarrow z, x \rightarrow \phi\}$.

1.2. Электронная дисперсия в нанотрубках. Электромагнитные процессы в любой среде определяются ее электронными свойствами. Исследование электронной структуры нанотрубок и процессов электронного переноса в них являлось предметом большого числа теоретических и экспериментальных работ. В настоящем разделе мы кратко остановимся на основных результатах названных исследований. При этом мы ограничимся рассмотрением динамики π -электронов в приближении сильной связи [42, 43], которое учитывает взаимодействие лишь трех соседних атомов в гексагональной структуре. В рамках данной модели электронные свойства графена описываются хорошо известным законом дисперсии [44]

$$\mathcal{E}(\mathbf{p}) = \pm \gamma_0 \sqrt{1 + 4 \cos(ap_x) \cos\left(\frac{a}{\sqrt{3}} p_y\right) + 4 \cos^2\left(\frac{a}{\sqrt{3}} p_y\right)}, \quad (2)$$

в котором $\gamma_0 \cong 2,7$ эВ – интеграл перекрытия, $a = 3b/2\hbar$, $p_{x,y}$ – проекции квазиимпульса \mathbf{p} . Верхний и нижний знаки в (2) относятся к зоне проводимости и валентной зоне соответственно. Химический потенциал графита равен нулю. Областью определения квазиимпульса \mathbf{p} (первая зона Бриллюэна) является шестиугольник, показанный на рис. 3. Вершины шестиугольника являются точками Ферми, в которых $\mathcal{E}(\mathbf{p})=0$. Это указывает на отсутствие запрещенной зоны для π -электронов в графене. Напомним, что графен является полуметаллом: в нем отсутствует запрещенная зона, но плотность состояний на уровне Ферми равна нулю [44]. Дисперсионные свойства нанотрубок существенно отличаются от свойств графена в силу изменения топологии структуры. В цилиндрической структуре электроны, находящиеся в начале координат и в точке $\mathbf{R} = m\mathbf{a}_1 + n\mathbf{a}_2$, идентичны, что приводит к квантованию поперечной компоненты квазиимпульса:

$$p_\phi = \hbar s / R_{cn}. \quad (3)$$

Продольная компонента квазиимпульса при этом остается непрерывной. Соотношение (3) и подстановка $\{p_x \rightarrow p_z, p_y \rightarrow p_\phi\}$ позволяют получить из (2) закон дисперсии для нанотрубок типа zigzag:

$$\mathcal{E}(\mathbf{p}) = \pm \gamma_0 \sqrt{1 + 4 \cos(ap_z) \cos\left(\frac{\pi s}{m}\right) + 4 \cos^2\left(\frac{\pi s}{m}\right)}, \quad s = 1, 2, \dots, m. \quad (4)$$

Для нанотрубок типа armchair закон дисперсии может быть получен аналогичным образом, с помощью подстановки $\{p_x \rightarrow p_\phi, p_y \rightarrow p_z\}$.

Как следует из уравнения (4), первая зона Бриллюэна в нанотрубках не является шестиугольником, а представляет собой семейство одномерных зон – отрезков прямых линий внутри шестиугольника. В зависимости от того, проходят ли эти линии через вершины шестиугольника (точки Ферми) или минуют их, запрещенная зона либо исчезает, либо появляется в электронном спектре. Для 1D-зон плотность состояний в точках Ферми становится конечной. В соответствии с этим нанотрубка является либо металлом, либо полупроводником. Из рис. 3 видно, что нанотрубки типа armchair обладают металлической проводимостью при всех значениях m , тогда как нанотрубки типа zigzag являются металлами только при $m = 3q$, где q – целое число.

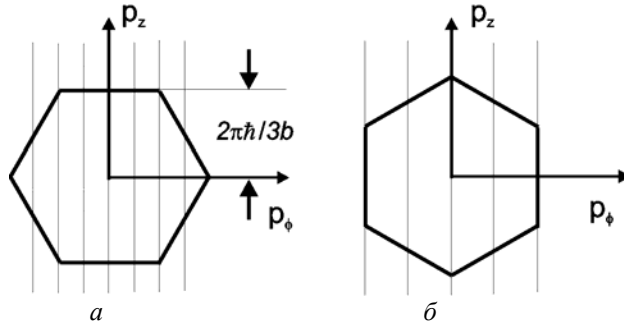


Рис. 3. Конфигурация первой зоны Бриллюэна для (а) zigzag и (б) armchair нанотрубок

Характер проводимости нанотрубки может изменяться при помещении ее в продольное магнитостатическое поле [45]. Это дает возможность управлять проводимостью в широких пределах, варьируя величину намагниченности. Важной особенностью киральной нанотрубки является появление киральной азимутальной компоненты тока при приложении напряжения к ее концам [41, 26]. В результате траектория полного тока в киральной нанотрубке представляет собой спиральную линию, несмотря на изотропию проводимости графена.

1.3. Динамическая проводимость нанотрубки. Для построения аналитической модели проводимости нанотрубки вначале мы рассмотрим движение π -электронов по цилиндрической поверхности однослойной нанотрубки в полуклассическом приближении: закон дисперсии $\mathcal{E}(\mathbf{p})$ берется из квантово-механической модели, а движение ансамбля частиц описывается классическим кинетическим уравнением Больцмана для функции распределения $f(\mathbf{p}, z, t)$ [46]:

$$\frac{\partial f}{\partial t} + eE_z \frac{\partial f}{\partial p_z} + v_z \frac{\partial f}{\partial z} = J(F(\mathbf{p}); f(\mathbf{p}, z, t)). \quad (5)$$

В этом уравнении e – заряд электрона; $v_z = \partial \mathcal{E}(\mathbf{p}) / \partial p_z$ – его скорость; $J(F, f)$ – интеграл столкновений; $F(\mathbf{p}) = [1 + \exp\{\mathcal{E}(\mathbf{p}) / k_B T\}]^{-1}$ – равновесная функция распределения Ферми; T – температура. Для вычисления интеграла столкновений мы воспользуемся приближением времени релаксации, согласно которому $J(F(\mathbf{p}), f(\mathbf{p}, z, t)) \cong \nu [F(\mathbf{p}) - f(\mathbf{p}, z, t)]$ и $\nu = 1/\tau$ – частота релаксации. Значения среднего времени свободного пробега электрона τ для нанотрубок, приводимые в литературе, существенно отличаются друг от друга. Ниже мы используем оценку $\tau = 3 \times 10^{-13}$ с [47].

Полуклассическая модель описывает только внутризонное движение π -электронов и не учитывает межзонных переходов. Это ограничивает применимость данной модели со стороны высоких частот:

$$\omega < \omega_l = \begin{cases} 2v_F / R_{cn}, & \text{для металлических трубок,} \\ 2v_F / 3R_{cn}, & \text{для полупроводниковых трубок.} \end{cases} \quad (6)$$

В этом выражении $v_F = 3b\gamma_0 / 2\hbar$ – скорость π -электронов на уровне Ферми. Для типичных нанотрубок значения ω_l лежат в инфракрасной области.

Теперь, когда установлена область применимости полуклассического приближения, мы можем использовать его для вычисления аксиального тока в прямолинейной бесконечно длинной нанотрубке. Этот ток возникает под действием электрического поля бегущей волны $E_z = \text{Re}[E_z^0 \exp\{i(hz - \omega t)\}]$, где h – константа распространения. Будем решать уравнение (5) в линейном по полю приближении. Используя стандартную технику, представим $f = F + \text{Re}[\delta f \exp\{i(hz - \omega t)\}]$, где δf – искомое малое возмущение, для которого можно получить

$$\delta f = -i \frac{\partial F}{\partial p_z} \frac{eE_z^0}{\omega - hv_z + i\nu}. \quad (7)$$

Плотность поверхностного аксиального тока $j_z = \text{Re}[j_z^0 \exp\{i(hz - \omega t)\}]$ выражается равенством

$$j_z = \frac{2e}{(2\pi\hbar)^2} \iint v_z f d^2\mathbf{p}, \quad (8)$$

которое удобно представить в виде $j_z^0 = \sigma_{zz}(h, \omega) E_z^0$, где аксиальная проводимость нанотрубки имеет следующий вид:

$$\sigma_{zz}(h, \omega) = \frac{2e^2}{(2\pi\hbar)^2} \iint \frac{\partial F}{\partial p_z} \frac{v_z d^2\mathbf{p}}{\omega - \hbar v_z + i\nu}. \quad (9)$$

Интегрирование в (9) выполняется по первой зоне Бриллюэна. Итак, мы получили закон динамической проводимости нанотрубки в виде $\mathbf{J} = \sigma(\omega)\mathbf{E}$, аналогичном материальным уравнениям объемных проводящих сред в классической электродинамике. Однако имеются существенные различия. Как и в классическом случае, при выводе закона проводимости нами выполнена процедура макроскопического усреднения, но роль физически бесконечно малого 3D-объема в нашем случае играет элемент 2D-поверхности. Таким образом, \mathbf{J} есть плотность поверхностного тока. Дальнейший анализ сводится к вычислению конкретного вида тензора проводимости с использованием той или иной структурной модели нанотрубки. В частных случаях (i) металлической нанотрубки малого радиуса и (ii) произвольной нанотрубки большого радиуса ($m \rightarrow \infty$) аналитический результат может быть получен на основе приближенного закона дисперсии π -электронов, введенного в работе [48]: $\mathcal{E}(\mathbf{p}) \cong \pm v_F |\mathbf{p} - \mathbf{p}_F|$. Здесь \mathbf{p}_F – постоянная величина, определяемая как квазиимпульс на уровне Ферми. В обоих указанных частных случаях применимость приближенного закона дисперсии обуславливается тем, что главный вклад в проводимость дают окрестности точек Ферми. Соответствующие формулы приведены в [23]. В общем случае интегрирование по квазиимпульсу в выражении (9) должно выполняться численно. Однако, как указано в [23], если фазовая скорость электромагнитной волны значительно больше средней скорости электронов в нанотрубке, оказывается возможным пренебречь пространственной нелокальностью поверхностного тока, описываемой третьим слагаемым в левой части (5), и считать $\hbar = 0$ в выражении (9), которое в такой ситуации сводится к виду

$$\sigma_{zz}(0, \omega)|_{(m,0)} = -\frac{2ie^2}{\sqrt{3}\pi\hbar mb} \frac{1}{\omega + i\nu} \sum_{s=1}^m \int_{-\pi/a}^{\pi/a} v_z^2(p_z, s) \frac{\partial F}{\partial \mathcal{E}} dp_z, \quad (10)$$

$$\sigma_{zz}(0, \omega)|_{(m,m)} = -\frac{2ie^2}{3\pi\hbar mb} \frac{1}{\omega + i\nu} \sum_{s=1}^m \int_{-\sqrt{3}\pi/a}^{\sqrt{3}\pi/a} v_z^2(p_z, s) \frac{\partial F}{\partial \mathcal{E}} dp_z \quad (11)$$

для нанотрубок типа zigzag и armchair соответственно. Рис. 4 представляет $\sigma_{zz}(0, \omega)|_{(m,0)}$ в зависимости от радиуса нанотрубки (индекса m). Поскольку нанотрубки типа armchair являются всегда металлическими, аналогичная

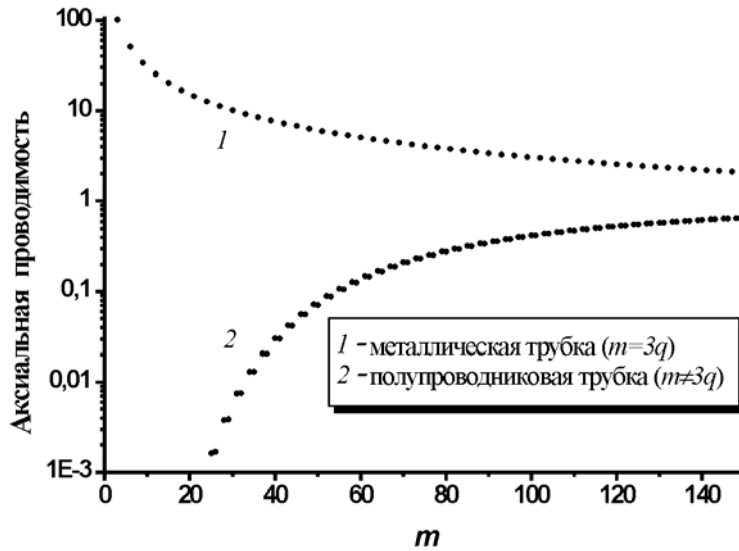


Рис. 4. Нормированная аксиальная проводимость нанотрубки типа zigzag

$$\sigma_{zz}(0, \omega) \Big|_{(m,0)} / \sigma_{\infty}, \quad \sigma_{\infty} = \lim_{m \rightarrow \infty} \sigma_{zz}$$

зависимость проводимости от радиуса нанотрубки является для них монотонной. Вне зависимости от типа нанотрубок при $m \rightarrow \infty$ их проводимость стремится к одному и тому же предельному значению, которое соответствует проводимости графена [44].

Для снятия ограничений (6) необходима строгая квантовомеханическая теория проводимости в углеродных нанотрубках. Такая теория построена в работах [21–23]. В рамках этой теории вместо уравнения Больцмана (5) рассматривается уравнение Лиувилля для матрицы плотности в двухзонном приближении. Не останавливаясь на деталях, приведем выражение, описывающее аксиальную проводимость нанотрубки в случае, когда роль переходов между валентной зоной и зоной проводимости является существенной:

$$\begin{aligned} \sigma_{zz}(0, \omega) = & -\frac{ie^2 \omega}{\pi^2 \hbar R_{cn}} \frac{1}{(\omega + i0)^2} \sum_{s=1}^m \int_{1stBZ} dp_z \frac{\partial F(p_z, s)}{\partial p_z} \frac{\partial \mathcal{E}(p_z, s)}{\partial p_z} + \\ & + \frac{ie^2 \omega}{2\pi^2 \hbar R_{cn}} \sum_{s=1}^m \int_{1stBZ} dp_z \frac{|\theta_{cv}(p_z, s)|^2}{\mathcal{E}(p_z, s)} \frac{F[-\mathcal{E}(p_z, s)] - F[\mathcal{E}(p_z, s)]}{\hbar^2 (\omega + i0)^2 - 4\mathcal{E}^2(p_z, s)}. \end{aligned} \quad (12)$$

Эффект релаксации вводится в это уравнение феноменологически, путем подстановки $(\omega + i0)^2 \rightarrow \omega(\omega + i\nu)$. Первый член в полученном уравнении описывает внутризонное движение π -электронов и, с учетом указанной подстановки, идентичен полуклассическим формулам (10) – (11). Второй член соответствует прямым переходам между валентной зоной и зоной проводимости и не может быть получен в рамках классической теории. Рис. 5 иллюстрирует поведение аксиальной проводимости в области оптических переходов.

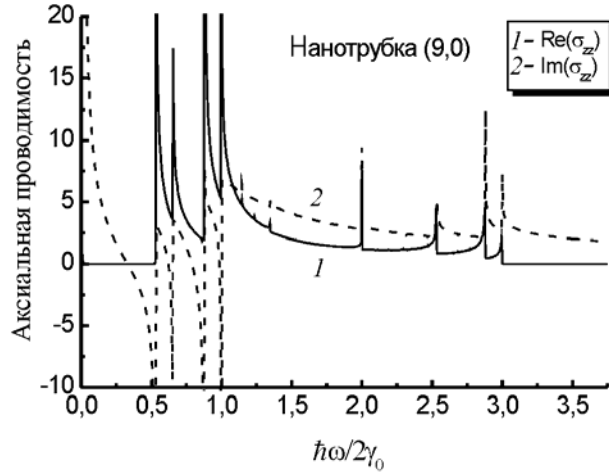


Рис. 5. Частотная зависимость полной аксиальной проводимости нанотрубки типа zigzag (9,0). Проводимость нормирована на величину $e^2 / 2\pi\hbar$

1.4. Эффективные граничные условия для нанотрубок. Используя представленную выше модель аксиальной проводимости, мы можем теперь задать эффективные граничные условия (ЭГУ) на поверхности нанотрубки. Такой подход определяет общий метод решения широкого круга задач электродинамики наноструктур. Главная идея метода состоит в том, что периодическая структура заменяется гладкой однородной поверхностью, на которой определяются подходящие ЭГУ для электромагнитного поля. Эти условия выбираются таким образом, что пространственная структура электромагнитного поля, индуцированного эффективным током, текущим по однородной гладкой поверхности, и пространственная структура электромагнитного поля реального тока в решетке оказываются идентичными на некотором расстоянии от поверхности. Параметры решетки при этом входят в коэффициенты ЭГУ.

ЭГУ возникают в результате усреднения микроскопических полей по физически бесконечно малому элементу цилиндрической поверхности. Принимая непрерывность тангенциальной составляющей электрического поля на поверхности трубки и аксиальной компоненты магнитного поля, мы получаем:

$$E_{\phi,z} \Big|_{\rho=R_{cn}+0} - E_{\phi,z} \Big|_{\rho=R_{cn}-0} = 0, \quad H_z \Big|_{\rho=R_{cn}+0} - H_z \Big|_{\rho=R_{cn}-0} = 0. \quad (13)$$

Следующее условие вытекает из уравнения для аксиальной проводимости нанотрубки [22, 23]. Не останавливаясь на деталях, приведем конечное выражение

$$\left(1 + \gamma(\omega) \frac{\partial^2}{\partial z^2}\right) \left(H_{\phi} \Big|_{\rho=R_{cn}+0} - H_{\phi} \Big|_{\rho=R_{cn}-0}\right) = \frac{4\pi}{c} \sigma_{zz}(\omega) E_z \Big|_{\rho=R_{cn}}. \quad (14)$$

Здесь $\gamma(\omega) = l_0 / [k(1 + i\nu/\omega)]^2$, $k = \omega/c$ – волновое число в свободном пространстве, величина l_0 характеризует вклад пространственной неоднородности поля. Для металлических нанотрубок малого радиуса и нанотрубок произвольного

типа большого радиуса в работах [22, 23] найдены простые оценки $l_0 \cong (v_F / c)^2$ и $l_0 \cong 3(v_F / c)^2 / 4$ соответственно. Численные расчеты дают $l_0 \sim 10^{-5}$ для металлических нанотрубок.

Равенства (13) и (14) образуют полную систему ЭГУ для электромагнитного поля на поверхности нанотрубки. Их вид аналогичен эквивалентным граничным условиям Вайнштейна – Сивова [49, 50] для сетчатых структур и частопериодических решеток в макроскопической электродинамике СВЧ.

1.5. Поверхностные электромагнитные волны в нанотрубках. Как пример применения ЭГУ рассмотрим распространение поверхностных волн вдоль изолированной бесконечно длинной нанотрубки, расположенной в свободном пространстве. Проводимость нанотрубки предполагаем аксиальной. Исследуемые собственные волны удовлетворяют однородным уравнениям Максвелла, граничным условиям (13) – (14) и условиям отсутствия сторонних источников на бесконечности. Данная постановка задачи аналогична задаче о собственных волнах спиральных замедляющих систем СВЧ–диапазона [49]. Для ее решения используется метод частичных областей. Все пространство разбивается на две цилиндрические частичные области – внутри и вне трубки. Как и в [49], представим искомые электромагнитные поля через скалярный потенциал Герца Π_e :

$$\mathbf{E} = \nabla \frac{\partial \Pi_e}{\partial z} + k^2 \Pi_e \mathbf{u}_z, \quad \mathbf{H} = -ik(\nabla \Pi_e) \times \mathbf{u}_z. \quad (15)$$

Единичный вектор \mathbf{u}_z направлен вдоль оси нанотрубки. Тогда из уравнений Максвелла и условий на бесконечности ($\rho \rightarrow \infty$) получаем:

$$\Pi_e = A \begin{Bmatrix} I_\ell(\kappa\rho)K_\ell(\kappa R_{cn}) \\ I_\ell(\kappa R_{cn})K_\ell(\kappa\rho) \end{Bmatrix} e^{ihz} e^{i\ell\phi}, \quad (16)$$

где A – неизвестный постоянный коэффициент; h – искомое волновое число; $\kappa = \sqrt{h^2 - k^2}$; I_ℓ, K_ℓ – модифицированные функции Бесселя первого и второго рода. Верхняя строка в (16) соответствует области $\rho < R_{cn}$, нижняя – области $\rho > R_{cn}$. Уравнения (15) и (16) автоматически удовлетворяют ЭГУ (13). Подставляя эти уравнения в условие (14) и используя выражение для Вронскиана модифицированных функций Бесселя, мы приходим к дисперсионному уравнению поверхностной волны в нанотрубке:

$$\left(\frac{\kappa}{k}\right)^2 I_\ell(\kappa R_{cn})K_\ell(\kappa R_{cn}) = \frac{ic}{4\pi\kappa R_{cn}\sigma_{zz}} \left[1 - \frac{1 + (\kappa/k)^2}{(1 + i\nu/\omega)^2} l_0 \right]. \quad (17)$$

Уравнение (17) носит общий характер: оно применимо как к однослойным, так и многослойным нанотрубкам, в зависимости от диапазона частот в нем может быть использован как полуклассический (10) – (11), так и квантовомеханический (12) закон проводимости.

Результаты численного исследования уравнения (17) приведены на рис. 6,

который представляет комплекснозначный коэффициент замедления $\beta = k/h$ азимутально-симметричной ($l = 0$) поверхностной волны в металлической (9,0) нанотрубке. Детальное обсуждение азимутально-несимметричных мод дано в работе [22]. В низкочастотном режиме ($\omega < \nu$), которому соответствует диапазон $kb < 10^{-7}$, имеет место сильное затухание ($\text{Im}(\beta) \sim \text{Re}(\beta)$). Таким образом, можно констатировать, что в низкочастотном режиме нанотрубки как волноводы поверхностных волн не представляют интереса. Существенно, что для типичных длин нанотрубок $l_{cn} \sim 1 \mu\text{м}$ выполняется условие $l_{cn} \text{Re}(h) \ll 1$. Это означает, что нанотрубки проводят низкочастотные электрические сигналы подобно электрическим цепям, без сопутствующих волновых эффектов.

В отличие от рассмотренного низкочастотного предела, в инфракрасном диапазоне ($10^{-5} < kb < 10^{-3}$ или $3 \cdot 10^{12} \text{ с}^{-1} < \omega/2\pi < 3 \cdot 10^{14} \text{ с}^{-1}$) в нанотрубках могут распространяться слабозатухающие поверхностные волны. Таким образом, выполненный анализ приводит к концепции нановолновода поверхностных волн на основе нанотрубок. Такие нановолноводы могут стать высокоэффективными элементами наноэлектроники. В работе [22] было показано, что в инфракрасном диапазоне замедление сигнала $\text{Re}(\beta)$ в полупроводниковых нанотрубках на порядок меньше, чем в металлических, а соответствующие величины $\text{Im}(\beta)$ сравнимы. Это позволяет сделать вывод о том, что в полупроводниковых трубках эффект затухания существенно превосходит этот эффект в металлических трубках. Более того, поскольку полупроводниковые трубки характеризуются сильным замедлением ($2 \cdot 10^{-3} < \text{Re}(\beta) < 2 \cdot 10^{-2}$), то в таких трубках электромагнитное поле оказывается сильно локализованным вблизи поверхности. Отметим, наконец, что в инфракрасном диапазоне коэффициент замедления

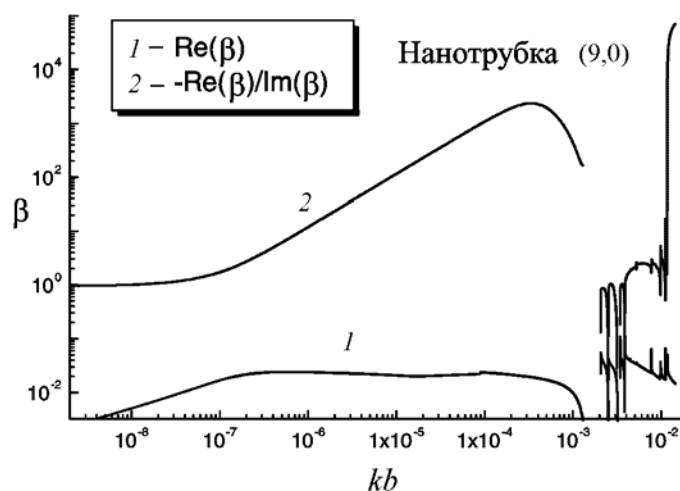


Рис. 6. Коэффициент замедления $\beta = k/h$ для азимутально-симметричной поверхностной волны в металлической (9,0) нанотрубке

$\text{Re}(\beta)$ и фазовая скорость поверхностной волны $v_{ph} = \text{Re}(\omega / h)$ являются практически частотно независимыми. Следовательно, волновой пакет будет распространяться в нанотрубке без существенных искажений, что является весьма важным для возможных применений в наноэлектронике. Подобные поверхностные волны будут существовать и в многослойной нанотрубке, которую можно представить как совокупность однослойных трубок с расстоянием между слоями $\sim 0,34$ нм. В [42] показано, что электронное взаимодействие слоев пренебрежимо мало. Это означает, что внутри слоя электроны движутся так же, как в однослойной трубке соответствующего радиуса. В такой ситуации для каждого слоя остаются справедливыми граничные условия (13) и (14), хотя величина проводимости изменяется от слоя к слою. Таким образом, строгая постановка задачи о поверхностной волне для N -слойной трубки подразумевает введение $N+1$ коаксиальных частичных областей с граничными условиями (13) и (14) на границах каждой из них. Изменение числа слоев является эффективным средством управления характеристиками поверхностной волны.

1.6. Краевые эффекты в нанотрубках. При рассмотрении поверхностных волн в нанотрубках была использована модель бесконечно длинной нанотрубки. Учет конечных размеров является принципиальным, так как может привести к резонансным дифракционным эффектам, которые подобны имеющим место в антенных вибраторах [51]. Действительно, в области оптических частот длина и радиус реальных нанотрубок удовлетворяют условиям $kR_{cn} \ll 1$, $kl_{cn} \sim 1$. Именно такими условиями характеризуются антенные вибраторы в технике СВЧ. Данная аналогия не только свидетельствует о важности исследования резонансов, связанных с конечной длиной трубок, но и указывает способ исследования: задача об излучении поверхностной волны с открытого конца полубесконечной нанотрубки решается методом Винера – Хопфа [51]. Переход к нанотрубке конечной длины можно осуществить либо при помощи модифицированного метода факторизации, либо используя интегральные уравнения типа Леонтовича – Левина в сочетании с вариационными принципами (подобно тому, как делается в теории антенн [52]).

Рассмотрим дифракцию на открытом конце нанотрубки электромагнитного поля, заданного E -поляризованной цилиндрической волной, распространяющейся под углом θ_0 к оси нанотрубки (см. рис. 2). Скалярный потенциал Герца такой волны хорошо известен:

$$\Pi_e^{(i)} = -\frac{i}{k \sin^2 \theta_0} H_l^{(\mu)}(k\rho \sin \theta_0) e^{ikz \cos \theta_0} e^{il\phi},$$

где $H_l^{(\mu)}(\cdot)$ – цилиндрические функции Ханкеля 1-го и 2-го рода ($\mu=1, 2$). Скалярный потенциал Герца рассеянного поля $\Pi_e^{(s)}$ удовлетворяет уравнению Гельмгольца и связан с искомыми электромагнитными полями соотношениями (15). Используя далее ЭГУ (13)–(14), найдем граничные условия для потенциала в следующем виде:

$$\begin{aligned}
& \left(1 + \frac{l_0}{k^2} \frac{\partial^2}{\partial z^2} \right) \left(\frac{\partial \Pi_e^{(s)}}{\partial \rho} \Big|_{\rho=R_{cn}+0} - \frac{\partial \Pi_e^{(s)}}{\partial \rho} \Big|_{\rho=R_{cn}-0} \right) = \\
& = \frac{4\pi}{ikc} \sigma_{zz}(\omega) \left(\frac{\partial^2 \Pi_e^{(s)}}{\partial z^2} + k^2 \Pi_e^{(s)} \right) + \Phi(\phi, z), \quad 0 < z < \infty, \\
& \frac{\partial \Pi_e^{(s)}}{\partial \rho} \Big|_{\rho=R_{cn}+0} = \frac{\partial \Pi_e^{(s)}}{\partial \rho} \Big|_{\rho=R_{cn}-0}, \quad -\infty < z < 0, \\
& \Pi_e^{(s)} \Big|_{\rho=R_{cn}+0} = \Pi_e^{(s)} \Big|_{\rho=R_{cn}-0}, \quad -\infty < z < \infty, \tag{18}
\end{aligned}$$

где $\Phi(\phi, z) = (4\pi / ic)k\sigma_{zz}(\omega)\sin^2\theta_0\Pi_e^{(i)}(R_{cn}, \phi, z)$ и динамическая проводимость нанотрубки $\sigma_{zz}(\omega)$ определена выражением (12). К граничным условиям (18) следует добавить условия излучения, вытекающие из принципа предельного поглощения, и условия на ребре, выражающие отсутствие на остром ребре стороннего источника. Условие на ребре выражается в конечности энергии поля в любой конечной области пространства, содержащей ребро.

Рассматриваемая граничная задача может быть решена методом Винера – Хопфа. В качестве первого шага выделим азимутальную зависимость поля, положив $\Pi_e(\rho, \phi, z) = y(\rho, z)\exp(il\phi)$, и введем функцию $Y(\rho, \alpha)$ как фурье-образ функции $y(\rho, z)$. Функция $Y(\rho, \alpha)$ удовлетворяет уравнению Бесселя

$$\frac{\partial^2 Y}{\partial \rho^2} + \frac{1}{\rho} \frac{\partial Y}{\partial \rho} - \left(\nu^2 + \frac{l^2}{\rho^2} \right) Y = 0,$$

в котором $\nu = \sqrt{\alpha^2 - k^2}$. Учитывая конечность потенциала Герца внутри и снаружи трубки и условия излучения, получим решение

$$Y(\rho, \alpha) = \begin{cases} A(\alpha)K_l(\nu\rho), & \rho > R_{cn}, \\ D(\alpha)I_l(\nu\rho), & 0 < \rho < R_{cn}. \end{cases} \tag{19}$$

Теперь перейдем к нахождению функций $A(\alpha)$ и $D(\alpha)$. Представим $Y(\rho, \alpha) = Y_-(\rho, \alpha) + Y_+(\rho, \alpha)$, где $Y_{\pm}(\rho, \alpha)$ – функции, аналитические в верхней и нижней комплексных полуплоскостях соответственно. В этом случае

$$Y_-(\rho, \alpha) = \int_{-\infty}^0 y(\rho, z)e^{i\alpha z} dz, \quad Y_+(\rho, \alpha) = \int_0^{\infty} y(\rho, z)e^{i\alpha z} dz.$$

Левая часть первого равенства в граничных условиях (18) может быть интерпретирована как поверхностная плотность тока $J(z)\exp(il\phi)$. Переходя к фурье-образу этой функции, получим

$$J_+(\alpha) = \nu A(\alpha) \left[K_{l+1}(\nu R_{cn}) - \frac{l}{\nu R_{cn}} K_l(\nu R_{cn}) \right] - \nu D(\alpha) \left[I_{l+1}(\nu R_{cn}) - \frac{l}{\nu R_{cn}} I_l(\nu R_{cn}) \right].$$

Подставим это выражение в первое равенство граничных условий (18), а связь между функциями $A(\alpha)$ и $D(\alpha)$ найдем из второго равенства, которое выражает непрерывность продольной составляющей электромагнитного поля как на поверхности нанотрубки, так и на ее продолжении в область $z < 0$. Из полученных алгебраических уравнений легко найти искомое уравнение Винера – Хопфа относительно двух неизвестных функций $J_+(\alpha)$ и $Y_-(R_{cn}, \alpha)$:

$$J_+(\alpha)G(\alpha)R_{cn} = Y_-(R_{cn}, \alpha) - \frac{\tilde{\Phi}(\alpha)}{\xi v^2}. \quad (20)$$

В этом уравнении

$$G(\alpha) = K_l(vR_{cn})I_l(vR_{cn}) - \frac{\Gamma}{R_{cn}\xi v^2}, \quad \tilde{\Phi}(\alpha) = \frac{kH_l^{(\mu)}(kR_{cn} \sin \theta_0)}{\alpha + k \cos \theta_0}, \quad (21)$$

$\tilde{\Phi}(\alpha)$ – фурье-образ функции $\Phi(\phi, z) \exp(-i\phi)$, $\xi = -4\pi i \sigma_{zz}(\omega) / ck$,

$$\Gamma = 1 - l_0 \alpha^2 / k^2.$$

Основная идея аналитического решения уравнения (20) заключается в применении к известным функциям, входящим в (20), процедур факторизации и разложения [51], в результате которых мы получаем два независимых уравнения для функций $J_+(\alpha)$ и $Y_-(R_{cn}, \alpha)$. Это позволяет выразить общее решение для дифрагированного поля в виде квадратур. Осуществить факторизацию функции $G(\alpha)$ можно по формуле [53]:

$$\ln[G_{\pm}(\alpha)\sqrt{\alpha \pm k}] = \frac{1}{2\pi i} \int_{-\infty \pm \alpha_0}^{+\infty \pm \alpha_0} \ln[\sqrt{\alpha'^2 - k^2} G(\alpha')] \frac{d\alpha'}{\alpha' \pm \alpha}, \quad (22)$$

где α_0 – действительное число, удовлетворяющее неравенству $0 < \alpha_0 < \text{Im}(k)$.

Множитель $\sqrt{\alpha'^2 - k^2}$ введен для обеспечения асимптотики подынтегральной функции, необходимой для сходимости интеграла. Найти аналитическое выражение для интеграла в (22) невозможно, и поэтому факторизация считалась численно. Следуя стандартной процедуре метода Винера – Хопфа, приходим (см. работу [53]) к следующим выражениям для компонент поля снаружи трубки:

$$E_z(\rho, \phi, z) = \frac{\eta_l(\theta_0)}{2\pi ik} e^{i\phi} \int_C e^{-i\alpha z} \frac{(\alpha - k)K_l(v\rho)I_l(vR_{cn})}{(\alpha + k \cos \theta_0)G_+(\alpha)} d\alpha,$$

$$E_\rho(\rho, \phi, z) = -i \frac{\eta_l(\theta_0)}{2\pi k} e^{i\phi} \int_C e^{-i\alpha z} \frac{\sqrt{\alpha - k}}{\sqrt{\alpha + k}} \frac{\alpha[K_{l+1}(v\rho) - lK_l(v\rho)/(v\rho)]I_l(vR_{cn})}{(\alpha + k \cos \theta_0)G_+(\alpha)} d\alpha, \quad (23)$$

где $\eta_l(\theta_0) = H_l^{(\mu)}(kR_{cn} \sin \theta_0)[G_+(k \cos \theta_0)(1 + \cos \theta_0)]^{-1}$, контур интегрирования показан сплошной линией на рис. 7. Поле внутри трубки можно получить заменой местами ρ и R_{cn} в формулах (23). Оставшиеся компоненты полей \mathbf{H} и \mathbf{E} легко представить в аналогичном виде.

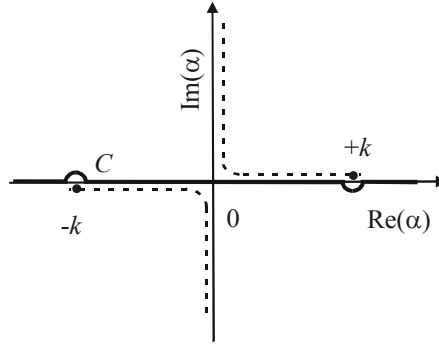


Рис. 7. Контур интегрирования C в плоскости комплексной переменной α . Пунктирными линиями обозначены разрезы

Интегральные представления (23) являются точными аналитическими выражениями для поля, рассеянного полубесконечной нанотрубкой. Они справедливы как в дальней зоне, так и вблизи трубки. Сходимость интегралов в (23) в ближней зоне существенно замедляется, поэтому численное интегрирование в этом случае требует определенных предосторожностей. В дальней зоне мы можем асимптотически оценить интегралы в (23), используя метод перевала. Стандартная процедура приводит к следующим результатам:

$$E_z \sim F(\theta, \theta_0) \sin \theta \frac{\exp\{ik\sqrt{\rho^2 + z^2}\}}{k\sqrt{\rho^2 + z^2}}, \quad H_\phi, E_\phi \sim F(\theta, \theta_0) \frac{\exp\{ik\sqrt{\rho^2 + z^2}\}}{k\sqrt{\rho^2 + z^2}}, \quad (24)$$

где

$$F(\theta, \theta_0) = \eta_l(\theta_0) \frac{J_l(kR_{cn} \sin \theta)}{G_-(k \cos \theta)(\cos \theta + \cos \theta_0)} \operatorname{ctg} \frac{\theta}{2} \exp(-i\pi/4), \quad (25)$$

$\theta = \pi/2 + \arctg(z/\rho)$, угол θ_0 указан на рис. 2, б. Функция $F(\theta, \theta_0)$ называется амплитудой рассеяния края, связанной с излучением сферических волн. Полная амплитуда рассеяния содержит также компоненты, связанные с возбуждением поверхностных поляритонов [23].

Для иллюстрации полученных результатов нами рассчитывалась величина $P_l(\theta) \sim |F_l(\theta, \theta_0)|^2$, описывающая распределение рассеянной мощности по направлениям в дальней зоне. Во всех расчетах мы полагали $l=0$, так как для реалистичных распределений падающих полей именно это слагаемое оказывается доминирующим. Для постоянной релаксации, как и ранее, использовалась оценка $1/\nu = \tau = 3 \times 10^{-13}$ с [47]. На рис. 8 показана частотно-угловая зависимость плотности рассеянной мощности для металлической нанотрубки (9,0). Как видно из рисунка, частотная зависимость при фиксированном угле θ характеризуется резкими осцилляциями: рассеяние значительно возрастает на частотах, отвечающих резонансным оптическим переходам. Следует отметить, что резонансные пики рассеяния для металлической нанотрубки больше, чем для полупроводниковой. Видно, что сравнительно слабая отстройка частоты от условия

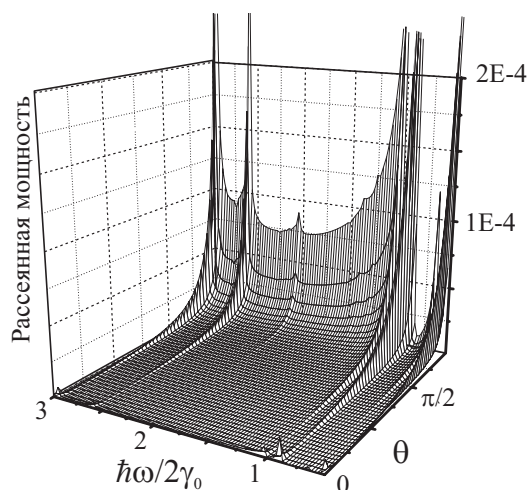


Рис. 8. Плотность рассеянной мощности $P_0(\theta)/[4\pi/c(1 + \cos\theta_0)^2]$ для металлической нанотрубки (9,0) в частотной полосе межзонных переходов при $\theta_0 = \pi/4$

точного резонанса значительно уменьшает интенсивность рассеяния. Таким образом, можно заключить, что интенсивное рассеяние в нанотрубках связано физически с тем, что падающее на край трубки поле возбуждает в ней плазмон, распространяющийся от края вдоль оси.

2. Нелинейные электромагнитные процессы в нанотрубках

Выше неоднократно подчеркивалось, что наноструктуры характеризуются сильной пространственной неоднородностью и широким набором элементарных резонансных возбуждений. Помимо этого, в широком интервале частот от СВЧ до ультрафиолетового для наноструктур характерна также и достаточно сильная динамическая нелинейность. Эта нелинейность может проявиться в различных типах электродинамических взаимодействий: распространение солитонов, оптическая бистабильность, динамический хаос, генерация высших гармоник. Перечисленные эффекты представляют интерес с двух точек зрения: во-первых, они могут использоваться для исследования физических свойств наноструктур, их диагностики. Во-вторых, эти эффекты открывают ряд уникальных возможностей управления характеристиками электромагнитного излучения, что весьма перспективно для различных приложений в оптике и наноэлектронике.

В общем случае, ввиду пространственной неоднородности наноструктур, описание в них нелинейных электродинамических эффектов представляет собой весьма сложную задачу, так как приводит к проблеме нелинейной теории дифракции волн. По этой причине в каждом конкретном случае используются специальные системы упрощающих предположений, позволяющих свести исходную задачу к математической модели, допускающей аналитическое исследование или компьютерный анализ. Отметим два подхода, имеющих наиболее широкие перспективы приложений к наноструктурам. Первый подход основан

на выделении вклада резонансных эффектов путем разложения поля по специально выбранной системе собственных мод [31]. Он был развит применительно к задачам нелинейной макроскопической электродинамики и, в частности, использован для анализа бистабильности в нелинейных дифракционных решетках в окрестности аномалий Вуда [31]. Другой подход, электродинамика нелинейных композитов, основывается на технике макроскопического усреднения электромагнитного поля в системе из большого числа нелинейных рассеивателей, размеры и расстояния между которыми значительно меньше длины волны (см., например, [18, 54]).

В качестве примера задач нелинейной электродинамики наноструктур рассмотрим проблему генерации высших гармоник углеродными нанотрубками [27, 28]. Физический интерес к генерации высших гармоник обусловлен, в первую очередь, перспективой создания источников когерентного излучения для дальнего ультрафиолетового и мягкого рентгеновского диапазонов. В качестве подходящих нелинейных сред рассматривались газы [55–59] и поверхности твердых тел [60–62]. В газовых средах генерация нечетных гармоник высоких порядков обусловлена туннелированием электронов с атомных орбиталий в состояния непрерывного спектра и возвращением их обратно под действием сильного осциллирующего поля накачки. Во втором случае генерация гармоник (как четных, так и нечетных) обеспечивалась быстрыми, с релятивистскими скоростями, переходами электронов через границу твердое тело – вакуум. В качестве волны накачки использовались субпикосекундные импульсы титан-сапфирового лазера с плотностью энергии $\sim 10^{14}$ Вт/см². Структура огибающей спектра в обоих случаях оказывается качественно одинаковой: участок со сравнительно слабой зависимостью интенсивности линии от ее номера (плато) резко обрывается при достижении некоторого критического номера гармоники. Коэффициент преобразования по энергии волны накачки в волны высших гармоник составляет в области плато величину 10^{-6} – 10^{-7} . В работах [27, 28] нами предложен иной механизм генерации высших гармоник. Его описание дано в следующем разделе.

2.1. Спектр плотности наведенного тока в одиночной нанотрубке.

Пусть углеродная нанотрубка взаимодействует с мощным лазерным импульсом, электрическое поле которого поляризовано вдоль ее оси. Предположим, что частота поля накачки ω_1 удовлетворяет неравенствам (6), позволяющим пренебречь вкладом межзонных переходов в движение π -электронов. Это означает, что движение последних является квазиклассическим и описывается уравнением Больцмана для функции распределения $f(\mathbf{p}, t)$:

$$\frac{\partial f}{\partial t} + \frac{e}{c} \frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t} \frac{\partial f}{\partial \mathbf{p}} = \nu [F(\mathbf{p}) - f(\mathbf{p}, t)] \quad (26)$$

с начальным условием $f(\mathbf{p}, 0) = F(\mathbf{p})$, в котором $F(\mathbf{p})$ – равновесная функция распределения Ферми. Заметим, что в (26) отброшено слагаемое, описывающее пространственную зависимость функции распределения. Оценка, позволяющая обосновать данное упрощение, приведена в [28]. Вектор-потенциал \mathbf{A} связан с

электрическим полем соотношением $\mathbf{E} = -(1/c)\partial\mathbf{A}/\partial t$. Ввиду того, что амплитуды высших гармоник малы в сравнении с амплитудой волны накачки, можно воспользоваться приближением заданного поля [27]. В рамках этого приближения поле, входящее в уравнение (26), полагается равным полю волны накачки: $E_{z1} = E_1 \cos(\omega_1 - k_1 x)$. Предположим далее, что ширина спектра волны накачки удовлетворяет условию $\nu \ll \Delta\omega \ll \omega_1$. Это позволяет воспользоваться квазистационарным приближением [27]: E_1 полагается постоянной величиной и в (26) отбрасывается интеграл столкновений. Физический смысл сделанного допущения заключается в том, что пренебрегается релаксационными процессами, поскольку они не успевают развиться за время порядка длины импульса накачки. В квазистационарном приближении уравнение (26) решается точно:

$$f(\mathbf{p}, t) = F(\mathbf{p} + e\mathbf{A}/c).$$

Продольная компонента плотности поверхностного тока выражается равенством

$$j_z = \frac{2e}{(2\pi\hbar)^2} \iint v_z(\mathbf{p}) F(\mathbf{p} + e\mathbf{A}/c) d^2\mathbf{p}, \quad (27)$$

где $v_z = \partial\mathcal{E}(\mathbf{p})/\partial p_z$. Разлагая $\mathcal{E}(p_z, s)/\gamma_0$ и $F(\mathbf{p})$ в интеграле (27) в ряды Фурье по p_z с коэффициентами \mathcal{E}_{sq} и F_{sq} соответственно, можно представить интеграл (27) в виде [27]

$$j_z = \sum_{M=0}^{\infty} j_z^{(2M+1)} \sin[(2M+1)\omega_1 t], \quad (28)$$

где

$$j_z^{(2M+1)} = j_0 \sum_{s=1}^m \sum_{q=1}^{\infty} q \mathcal{E}_{sq} F_{sq} J_{2M+1}(\Lambda q). \quad (29)$$

Для нанотрубок типа zigzag $j_0 = 16e\gamma_0 / \sqrt{3}\hbar mb$ и $\Lambda = 3beE_1 / 2\hbar\omega_1$, а для нанотрубок типа armchair $j_0 = 16e\gamma_0 / 3\hbar mb$ и $\Lambda = \sqrt{3}beE_1 / 2\hbar\omega_1$.

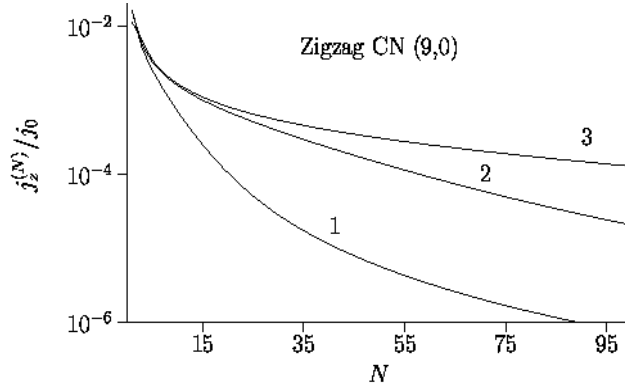


Рис. 9. Огибающая спектра плотности тока высших гармоник в металлической нанотрубке для различных значений интенсивности импульса накачки

На рис. 9 приведены типичные спектры плотности тока для различных интенсивностей волн накачки. В случае накачки импульсом титан-сапфирового лазера с длиной волны $\lambda = 0,8$ мкм значению параметра $\Lambda = 1$ соответствует величина поля $E_1 = 7 \cdot 10^9$ В/м либо интенсивность $I_1 = 1,3 \cdot 10^{13}$ Вт/см². Наиболее существенная физическая особенность приведенных спектров отмечена в работе [27] и заключается в отсутствии частоты отсечки, характерной для спектров, исследованных в [55–62]. Физической причиной данного эффекта является специальный закон дисперсии, присущий π -электронам в проводящих нанотрубках.

В данном разделе мы остановились на анализе генерации гармоник тока в металлических нанотрубках. Расчеты показывают, что рассмотренные свойства присущи также и полупроводниковым трубкам. Однако в последних процесс затухания гармоник с ростом номера выражен гораздо сильнее. Нами выполнено исследование гармоник тока высших порядков в изолированной нанотрубке. Следующим шагом в анализе данной проблемы стало исследование высших гармоник поля в массивах упорядоченных нанотрубок с учетом дисперсии. Как показано в работе [21] на основе теории эффективной среды, такой массив является анизотропной двулучепреломляющей средой. Последовательный анализ генерации высших гармоник поля в массивах нанотрубок с учетом фазового согласования дан в [28].

2.2. Отрицательная дифференциальная проводимость в одиночной нанотрубке. Вольт-амперные характеристики (ВАХ) для туннелирующих электронов в изолированных одностенных нанотрубках при низких температурах были измерены в [47, 63]. При таких температурах $k_B T \ll \mathcal{E}_C, \Delta \mathcal{E}$ и проводимость обусловлена разделенными электронными состояниями. Здесь \mathcal{E}_C – энергия заряда, $\Delta \mathcal{E} = \pi \hbar v_F / l_{cn}$ – расстояние между энергетическими уровнями. В работе [47] приведены значения $\Delta \mathcal{E} \cong 0,6$ мэВ для нанотрубок с $l_{cn} \cong 3$ мкм; оценка $\mathcal{E}_C \cong e^2 \ln(l_{cn} / R_{cn}) / \kappa l_{cn}$ представлена в [68], где $\kappa = 1,4$ – безразмерная постоянная. Для нанотрубок, описанных в [47], $R_{cn} \cong 0,7$ нм и, таким образом, $\mathcal{E}_C \cong 2,5$ мэВ, что хорошо соответствует экспериментальным данным [47]. При таких условиях ток обусловлен электронами, туннелирующими через нанотрубку в присутствии кулоновской блокады, наведенной дальнедействующим (неэкранированным) кулоновским взаимодействием. Вследствие этого ВАХ, которые наблюдались в [47,] аналогичны полученным при помощи сканирующей туннельной микроскопии. В результате при низких температурах нормализованная дифференциальная проводимость $(V/I)(dI/dV)$ оказывается пропорциональной локальной плотности состояний. Поэтому описанные в [47, 63] ВАХ несут важную информацию об электронной структуре нанотрубок. С другой стороны, туннелирование в макромолекулах (в нанотрубках, в частности) может служить в качестве основы для разработки мономолекулярных транзисторов [64, 14].

В данном разделе проводится теоретический анализ ВАХ нанотрубок при комнатных температурах, когда $k_B T > \mathcal{E}_C, \Delta \mathcal{E}$. Ток обусловлен квази-

частицами – π -электронами, движущимися в поле кристаллической решетки. Нелинейность ВАХ появляется благодаря нелинейным свойствам газа квазичастиц. Предсказана отрицательная дифференциальная проводимость (ОДП) $dI/dV < 0$ в нанотрубках при определенных значениях напряжения внешнего электрического поля.

Рассмотрим одностенную нанотрубку, помещенную в однородное аксиальное постоянное электрическое поле $E_z = V/l_{cn}$, где V – напряжение на концах нанотрубки. Будем рассматривать движение π -электронов как классическое движение квазичастиц с законом дисперсии, полученным из квантовой теории. С учетом гексагональной структуры кристаллической решетки углеродной нанотрубки приближение сильной связи дает соотношение (4) для нанотрубок zigzag и аналогичное – для armchair. Движение квазичастиц в постоянном внешнем аксиальном электрическом поле описывается уравнением Больцмана (5), в котором положено $\partial/\partial t = \partial/\partial z = 0$, а интеграл столкновений задан в приближении времени релаксации. В зависимости от величины времени релаксации релаксационный член может описывать электрон-фононное рассеяние, электрон-электронные столкновения и т. д.

Используя метод, впервые развитый применительно к теории квантовых полупроводниковых решеток [13], мы можем построить точное решение кинетического уравнения, не вводя ограничения на напряжение электрического поля. Функция распределения $f(\mathbf{p})$ периодична по p_z с периодом $2\pi/a$, и, принимая во внимание поперечное квантование (3), ее можно записать в виде

$$f(\mathbf{p}) = \Delta p_\phi \sum_{s=1}^m \delta(p_\phi - s\Delta p_\phi) \sum_{r \neq 0} f_{rs} e^{iar p_z}, \quad (30)$$

где f_{rs} – неизвестные коэффициенты, $\delta(x)$ – дельта-функция Дирака. Равновесная функция распределения $F(\mathbf{p})$ может быть разложена в аналогичный ряд

$$F(\mathbf{p}) = \Delta p_\phi \sum_{s=1}^m \delta(p_\phi - s\Delta p_\phi) \sum_{r \neq 0} F_{rs} e^{iar p_z} \quad (31)$$

с коэффициентами

$$F_{rs}(\mathbf{p}) = \frac{a}{2\pi} \int_0^{2\pi/a} \frac{1}{1 + \exp\{[\mathcal{E}(p_z, s) - \mu]/k_B T\}} e^{-iar p_z} dp_z. \quad (32)$$

В этом уравнении μ – химический потенциал, равный нулю для нелегированных нанотрубок. Появление примесей в кристаллической структуре приводит к тому, что химический потенциал приобретает значения, отличные от нуля. Подстановка обоих разложений в кинетическое уравнение дает $f_{rs} = F_{rs}/(1 + i\pi\Omega)$, где $\Omega = aeE_z$ – шарковская частота для нанотрубок типа zigzag и $\Omega = aeE_z/\sqrt{3}$ – для нанотрубок типа armchair.

Поверхностная плотность тока определяется интегралом по первой зоне Бриллюэна (8). Далее, принимая во внимание, что $v_z = \partial\mathcal{E}(\mathbf{p})/\partial p_z$, мы можем представить $\mathcal{E}(p_z, s)/\gamma_0$ в виде ряда Фурье:

$$\frac{1}{\gamma_0} \mathcal{E}(p_z, s) = \frac{\Delta p_\phi}{\gamma_0} \sum_{s=1}^m \delta(p_\phi - s \Delta p_\phi) \sum_{r \neq 0} \mathcal{E}_{rs} e^{iarp_z} \quad (33)$$

с коэффициентами, аналогичными (32):

$$\mathcal{E}_{rs} = \frac{a}{2\pi\gamma_0} \int_0^{2\pi/a} \mathcal{E}(p_z, s) e^{-iarp_z} dp_z.$$

Дальнейшие манипуляции приводят к уравнению

$$j_z(E_z) = \frac{8e\gamma_0}{\sqrt{3}\hbar mb} \sum_{r=1}^{\infty} \frac{r^2 \Omega \tau}{1 + (r\Omega \tau)^2} \sum_{s=1}^m F_{rs} \mathcal{E}_{rs}. \quad (34)$$

В рамках рассматриваемой модели это уравнение является основой для отыскания ВАХ нанотрубок и впервые было получено в работе [28].

Прямое численное интегрирование при вычислении коэффициентов F_{rs} и \mathcal{E}_{rs} встречает определенные трудности из-за быстро осциллирующего характера подынтегральной функции. В связи с этим использован следующий прием. При помощи замены $z = \exp\{iarp_z\}$ исходные интегралы сведены к интегралам по замкнутому контуру $|z| = 1$ в комплексной плоскости: подынтегральные функции имеют в плоскости z две пары точек ветвления. Кроме того, подынтегральная функция для F_{rs} имеет внутри единичной окружности бесконечное число полюсов первого порядка. По теореме Коши исходные интегралы выражены через интеграл по берегам разрезов и ряды вычетов (для F_{rs}). Интегралы по берегам разрезов не содержат осциллирующего множителя и легко находятся численно. Ряды вычетов сходятся быстро и также суммируются численно.

Необходимо оценить ограничения, вытекающие из изложенной теоретической модели. Как было сказано выше, движение квазичастиц описывается классическим кинетическим уравнением Больцмана. Таким образом, межзонные переходы и квантовомеханические поправки в описании внутризонного движения не учитываются в предложенной модели. Первое из этих приближений является правомочным при условии, что выполняется неравенство $\Omega \leq \omega_l$, а второе предположение требует выполнения $\Omega \leq \delta\varepsilon$. В этих неравенствах ω_l определяет нижнюю границу частоты оптических переходов (6), а $\delta\varepsilon$ – ширину разрешенной зоны.

С учетом оценки $\delta\varepsilon \sim \gamma_0$ и неравенства (6) оба ограничения на штарковскую частоту приводят к предельному напряжению внешнего электрического поля: $|E_z| < \gamma_0 / 2eR_{cn}$. В принятой модели также не учитывалось кулоновское взаимодействие между электронами. Роль этого взаимодействия применительно к углеродным нанотрубкам рассматривалась в ряде работ [65–68]. Было установлено, что близкодействующее взаимодействие электронов, типичное для массивов нанотрубок, не вносит существенного вклада при высоких температурах. Поскольку кулоновское взаимодействие в отдельных трубках неэкранировано, оно проявляет себя иным образом: обеспечивая наблюдаемые эффекты в

широком диапазоне температур. Поэтому результаты, полученные на основе нашей модели, применимы преимущественно к массивам углеродных нанотрубок. Для отдельных трубок эта модель должна быть изменена с учетом дальнего действующего кулоновского взаимодействия. Как следует из [65], результатом учета кулоновского взаимодействия является изменение зависимости времени релаксации τ от температуры.

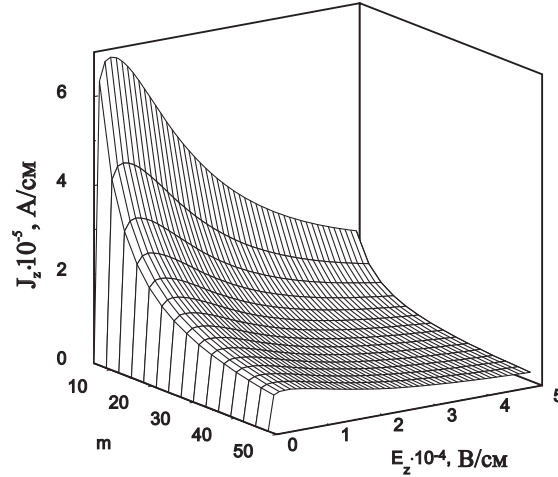


Рис. 10. Вольт-амперная характеристика металлической нанотрубки типа zigzag. $T = 287,5$ К, $\tau = 3 \cdot 10^{-12}$ с

На рис. 10 показана ВАХ для нелегированных ($\mu = 0$) металлических нанотрубок типа zigzag. Из рисунков видно, что при небольших напряжениях внешнего электрического поля зависимость j_z от E_z является линейной, что соответствует области омической проводимости. С увеличением напряжения внешнего поля величина $\partial j_z / \partial E_z$ уменьшается и при $E_z = E_z^{\max}$ плотность тока достигает максимальной величины j_z^{\max} . Дальнейшее увеличение напряжения приводит к уменьшению j_z . Таким образом, мы предсказываем наличие области отрицательной дифференциальной проводимости (ОДП) $\partial j_z / \partial E_z < 0$. Напряжение внешнего поля $E_z^{\max} = 3,2 \cdot 10^3$ В/см, при котором ОДП проявляет себя, оказывается неожиданно слабым. Действительно, нелинейность в рассматриваемых структурах определяется величиной aE_z ; аналогичная ситуация имеет место в квантовых сверхрешетках с пространственными периодами порядка 10^{-6} см [13, 69], которые гораздо больше характерного размера решетки графена b . Несмотря на это, ОДП проявляется в них практически при таких же напряжениях внешних полей. Отсюда можно сделать вывод о гораздо большей нелинейности в нанотрубках. Для того чтобы объяснить этот феномен, сравним механизм нелинейной проводимости в нанотрубках и в сверхрешетках. Квантовые сверхрешетки характеризуются законом дисперсии $\mathcal{E}(\mathbf{p}) = \Delta[1 - \cos(2ap_z/3)]$, где Δ – интеграл перекрытия. Применяя описанный выше метод к этому закону дисперсии, получаем вместо

(34) выражение $j_z(E_z) = \sigma_{zz} E_z / (1 + i\pi\Omega)$, в котором $\sigma_{zz} = \lim_{E_z \rightarrow 0} (\partial j_z / \partial E_z)$ – линейная проводимость. Из сравнения двух выражений для плотности тока можно заключить, что специфической особенностью нанотрубок является наличие высших штарковских гармоник. Как показывают численные расчеты, число существенных штарковских компонент составляет 70–150 для металлических трубок и 200–300 для полупроводниковых. В результате роль высших штарковских компонент в нанотрубках значительна и интегральная нелинейность нанотрубок гораздо сильнее, чем в сверхрешетках.

Наличие примесей и дефектов в кристаллической решетке обеспечивает дополнительный канал рассеяния носителей заряда. Этот механизм может быть описан количественно подстановкой $\tau \rightarrow \tau_{eff} = \tau\tau_1(\tau + \tau_1)^{-1}$, где время релаксации τ_1 обусловлено наличием примесей и дефектов. В силу того, что $\tau_{eff} < \tau$, неидеальность приводит к увеличению E_z^{max} и уменьшению величины $\partial j_z / \partial E_z$ в области ОДП.

Таким образом, нами предсказано наличие эффекта ОДП в достаточно длинных углеродных нанотрубках при комнатных температурах. Подчеркнем, что ОДП обеспечивает токовую неустойчивость. Как результат, одновременно приложенные постоянное и переменное электрические поля должны приводить к динамической локализации электронов и к двумерному аналогу самоиндуцированной прозрачности, подобно тому как это имеет место в полупроводниковых сверхрешетках. Вышеупомянутые эффекты ответственны за абсолютную отрицательную проводимость, существование которой, таким образом, предсказывается в нанотрубках. Это должно выразиться в появлении областей абсолютной отрицательной проводимости и активных свойств нанотрубок, которые обеспечивают возможность создания генераторных нанодиодов в микроволновом и инфракрасном диапазонах. Такая возможность относится как к отдельным нанотрубкам, так и к их массивам.

Предсказанный механизм ОДП, обусловленный взаимодействием π -электронов с верхней границей зоны проводимости и проявляющийся в пространственно однородных углеродных нанотрубках, не является единственным. Другой механизм ОДП рассмотрен в [16,70] применительно к неоднородным трубкам и определяется туннелированием π -электронов через потенциальный барьер в зоне неоднородности.

3. Квантовая электродинамика нанотрубок

3.1. Уравнения Максвелла для операторов электромагнитного поля. В большинстве задач электродинамики наноструктур предполагается, что число фотонов, участвующих в процессе, достаточно велико и электромагнитное поле может быть описано классически. Исключения составляют задачи спонтанного излучения атомов и электромагнитные флуктуации в наноразмерных объектах. Для решения таких задач возникает необходимость выполнения квантования электромагнитного поля в наноструктурах. В силу того что размер неоднородностей значительно меньше длины волны фотона, данная проблема оказывается

весьма нетривиальной в сравнении с задачей спонтанного излучения атомов в однородных средах.

Стандартные схемы квантования электромагнитного поля основаны на его модовых представлениях. В качестве таких мод в свободном пространстве служат плоские волны, для объемных резонаторов используются собственные моды замкнутой полости и т. п. При переходе к квантовому описанию электромагнитного поля коэффициенты таких модовых представлений становятся операторами рождения-уничтожения фотонов соответствующей моды. Поскольку наноструктуры представляют собой сильно неоднородные открытые системы, указать подходящую систему собственных мод оказывается, как правило, затруднительным. В связи с этим применительно к квантовой электродинамике наноструктур более адекватным выглядит иной подход, развиваемый в последние годы для диэлектрических сред с поглощением и дисперсией [71–74]. Суть подхода заключается в отказе от модовых представлений и выполнении квантования на уровне уравнений Максвелла в материальных средах: вместо векторов \mathbf{E} , \mathbf{H} , \mathbf{D} и \mathbf{B} вводятся соответствующие операторы, удовлетворяющие требуемым коммутационным соотношениям, а физически наблюдаемые величины вычисляются как средние значения указанных операторов. Следуя [71–74], введем оператор электрического поля следующим соотношением:

$$\hat{\mathbf{E}}(\mathbf{r}) = \hat{\mathbf{E}}^{(+)}(\mathbf{r}) + \hat{\mathbf{E}}^{(-)}(\mathbf{r}),$$

в котором

$$\hat{\mathbf{E}}^{(+)}(\mathbf{r}) = \int_0^{\infty} \hat{\underline{\mathbf{E}}}(\mathbf{r}, \omega) d\omega, \quad \hat{\mathbf{E}}^{(-)}(\mathbf{r}) = [\hat{\mathbf{E}}^{(+)}(\mathbf{r})]^*. \quad (35)$$

Аналогичное выражение записывается также для оператора магнитной индукции $\hat{\mathbf{B}}(\mathbf{r})$. Операторы $\hat{\mathbf{E}}(\mathbf{r})$, $\hat{\mathbf{B}}(\mathbf{r})$ удовлетворяют уравнениям Максвелла:

$$\begin{aligned} \nabla \cdot [\varepsilon(\mathbf{r}, \omega) \hat{\underline{\mathbf{E}}}] &= \frac{1}{4\pi} \hat{\underline{\rho}}(\mathbf{r}, \omega), & \nabla \cdot \hat{\underline{\mathbf{B}}} &= 0, \\ \nabla \times \hat{\underline{\mathbf{B}}} &= -ik\varepsilon(\mathbf{r}, \omega) \hat{\underline{\mathbf{E}}} + \frac{4\pi}{c} \hat{\underline{\mathbf{J}}}(\mathbf{r}, \omega), & \nabla \times \hat{\underline{\mathbf{E}}} &= ik\hat{\underline{\mathbf{B}}}, \end{aligned} \quad (36)$$

в которых $\varepsilon(\mathbf{r}, \omega)$ – комплексная диэлектрическая проницаемость, удовлетворяющая соотношениям Крамерса – Кронига в произвольной точке пространства. Операторы $\hat{\underline{\rho}}(\mathbf{r}, \omega)$ и $\hat{\underline{\mathbf{J}}}(\mathbf{r}, \omega)$ есть операторы шумового заряда и шумового тока, связанные с оператором шумовой поляризации $\hat{\underline{\mathbf{P}}}(\mathbf{r}, \omega)$ соотношениями

$$\hat{\underline{\rho}}(\mathbf{r}, \omega) = -\nabla \cdot \hat{\underline{\mathbf{P}}}(\mathbf{r}, \omega), \quad \hat{\underline{\mathbf{J}}}(\mathbf{r}, \omega) = -i\omega \hat{\underline{\mathbf{P}}}(\mathbf{r}, \omega), \quad (37)$$

где $\hat{\underline{\mathbf{P}}}(\mathbf{r}, \omega) = (i/2\pi)\sqrt{\hbar\varepsilon''(\mathbf{r}, \omega)} \hat{\mathbf{f}}(\mathbf{r}, \omega)$. Двумя штрихами помечена мнимая часть диэлектрической проницаемости, компоненты векторного бозонного поля $\hat{\mathbf{f}}(\mathbf{r}, \omega)$ удовлетворяют коммутационным соотношениям

$$\begin{aligned} [\hat{f}_\alpha(\mathbf{r}, \omega), \hat{f}_\beta^*(\mathbf{r}', \omega')] &= \delta_{\alpha\beta} \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}') \delta(\omega - \omega'), \\ [\hat{f}_\alpha(\mathbf{r}, \omega), \hat{f}_\beta(\mathbf{r}', \omega')] &= [\hat{f}_\alpha^*(\mathbf{r}, \omega), \hat{f}_\beta^*(\mathbf{r}', \omega')] = 0. \end{aligned} \quad (38)$$

Можно показать [75], что бозонные поля $\mathbf{f}(\mathbf{r}, \omega)$ и $\mathbf{f}^*(\mathbf{r}, \omega)$ играют роль фундаментальных динамических переменных для системы «электромагнитное поле + диэлектрическая среда, удовлетворяющая соотношениям Крамерса – Кронига», описываемой гамильтонианом

$$\hat{\mathbf{H}} = \hbar \int d^3 \mathbf{r} \int_0^{\infty} \omega \hat{\mathbf{f}}^*(\mathbf{r}, \omega) \otimes \hat{\mathbf{f}}(\mathbf{r}, \omega) d\omega. \quad (39)$$

Символ \otimes отмечает внешнее произведение векторов – диаду. Следует подчеркнуть, что введение шумовых заряда и тока является принципиальной особенностью процедуры квантования, предложенной в [71–74]. Именно благодаря этим величинам удастся получить правильные соотношения коммутации для операторов электромагнитного поля в диссипативной среде.

Одним из важнейших приложений изложенной схемы квантования является задача о динамике возбужденного двухуровневого атома, расположенного внутри (или вблизи) диэлектрического тела с проницаемостью $\varepsilon(\mathbf{r}, \omega)$ [75,76]. Рассматривается электрический дипольный переход, характеризуемый дипольным моментом $\boldsymbol{\mu}$ и частотой ω_A , в электрически нейтральном атоме, расположенном в точке $\mathbf{r} = \mathbf{r}_A$. Полный гамильтониан данной системы представляется суммой трех слагаемых, первое из которых – гамильтониан (39), второе – гамильтониан свободного атома и третье – гамильтониан взаимодействия атома с внешним полем [75]. В указанной работе для рассматриваемой системы найдено общее выражение для времени спонтанного излучения τ_{sp} :

$$\Gamma = \frac{1}{\tau_{sp}} = \frac{8\pi}{\hbar} k_A^2 \mu_\alpha \mu_\beta \text{Im}[G_{\alpha\beta}(\mathbf{r}_A, \mathbf{r}_A, \omega_A)], \quad (40)$$

где $k_A = \omega_A / c$, $G_{\alpha\beta}$ – классический тензор Грина, учитывающий наличие диэлектрического тела. По повторяющимся индексам предполагается суммирование. Формуле (40) может быть дана следующая физическая интерпретация. Спонтанное излучение есть процесс взаимодействия возбужденного атома с нулевыми колебаниями электромагнитного поля. Наличие диэлектрического тела с проницаемостью $\varepsilon(\mathbf{r}, \omega)$ приводит к дифракции нулевых мод на этом теле подобно тому, как это имеет место для обычных электромагнитных полей. Указанный эффект учитывается отличием тензора $G_{\alpha\beta}$ от тензора Грина свободного пространства $G_{\alpha\beta}^{(0)}$. Принимая во внимание, что

$$\text{Im}[G_{\alpha\beta}^{(0)}(\mathbf{r}_A, \mathbf{r}_A, \omega_A)] = \omega \delta_{\alpha\beta} / 6\pi c,$$

из (40) нетрудно найти хорошо известную [76] формулу для времени спонтанного излучения в свободном пространстве: $\tau_{sp}^{(0)} = 3\hbar / 4k_A^3 \mu^2$. Отметим также, что в [75] вычислен лэмбовский сдвиг частоты перехода при наличии диэлектрического тела, который отличается от соответствующего значения в свободном пространстве.

Равенство (40) применялось для анализа различных физических ситуаций, таких как определение времени спонтанного излучения возбужденного атома внутри сферической микрополости [75], исследование влияния эффектов локального поля на спонтанное излучение в оптически плотных газах и твердых диэлектриках [76]. Далее мы покажем, как изложенная схема квантования электромагнитного поля может быть адаптирована применительно к изучению процесса спонтанного излучения в углеродных нанотрубках.

3.2. Спонтанное излучение возбужденного атома в углеродной нанотрубке. Рассмотрим спонтанное излучение возбужденного атома, расположенного внутри углеродной нанотрубки на расстоянии ρ_0 от ее оси. Вектор дипольного момента атома предполагается параллельным оси. Изложенная выше схема квантования электромагнитного поля при применении к нанотрубкам нуждается в определенной модификации ввиду двумерного характера их проводимости. Как результат, шумовой заряд и шумовой ток также становятся двумерными – распределенными по цилиндрической поверхности $\rho = R_{cn}$. Выше нами было продемонстрировано, что наиболее адекватным инструментом рассмотрения многих задач электродинамики нанотрубок является метод ЭГУ. Применение данного формализма к задаче о спонтанном излучении атома в нанотрубке приводит, как и в работе [75], к формуле (40). При этом, поскольку дипольный момент атома предполагается параллельным оси нанотрубки, физический интерес представляет лишь продольная компонента тензора Грина. Выразим эту компоненту через скалярную функцию Грина атома в нанотрубке \bar{G} :

$$G_{zz} = \frac{1}{k^2} \left(\frac{\partial^2 \bar{G}}{\partial z^2} + k^2 \bar{G} \right). \quad (41)$$

В свою очередь, эта функция представима в следующем виде:

$$\bar{G} = \begin{cases} \tilde{G}^+, & \rho > R_{cn}, \\ G_0 + \tilde{G}^-, & \rho < R_{cn}, \end{cases}$$

где $G_0 = \exp(ik\rho)/4\pi\rho$ – функция Грина свободного пространства, а \tilde{G}^\pm – неизвестные функции, удовлетворяющие однородному уравнению Гельмгольца и граничным условиям на поверхности нанотрубки, вытекающим из ЭГУ (13) – (14):

$$\begin{aligned} \tilde{G}^+ \Big|_{\rho=R_{cn}} &= (G_0 + \tilde{G}^-) \Big|_{\rho=R_{cn}}, \\ \Delta \left(\frac{\partial \tilde{G}^+}{\partial \rho} - \frac{\partial \tilde{G}^-}{\partial \rho} \right) \Big|_{\rho=R_{cn}} &+ \frac{4\pi i}{ck} \sigma_{zz}(\omega) \left(\frac{\partial^2 \bar{G}}{\partial z^2} + k^2 \bar{G} \right) \tilde{G}^+ \Big|_{\rho=R_{cn}} = \Delta \frac{\partial G_0}{\partial \rho} \Big|_{\rho=R_{cn}}. \end{aligned} \quad (42)$$

Здесь $\Delta = 1 + \gamma(\omega) \partial^2 / \partial z^2$, функция $\sigma_{zz}(\omega)$ определена равенствами (10) – (12).

Будем искать функции \tilde{G}^\pm в виде разложений по цилиндрическим функциям:

$$\tilde{G}^+ = \frac{1}{2} \sum_{p=-\infty}^{\infty} e^{ip\varphi} \int_C A_p(h) K_p(\kappa\rho) e^{ihz} dh, \quad \tilde{G}^- = \frac{1}{2} \sum_{p=-\infty}^{\infty} e^{ip\varphi} \int_C B_p(h) I_p(\kappa\rho) e^{ihz} dh, \quad (43)$$

в которых $\kappa = \sqrt{h^2 - k^2}$; контур интегрирования C в комплексной плоскости показан на рис. 7; $A_p(h)$ и $B_p(h)$ – неизвестные функции. Используя аналогичное разложение для G_0 при $\rho_0 < R_{cn}$

$$G_0 = -\frac{1}{32} \sum_{p=-\infty}^{\infty} e^{ip\phi} \int_C I_p(\kappa\rho_0) K_p(\kappa R_{cn}) e^{ihz} dh$$

и граничные условия (42), легко находим для $B_p(h)$ выражение

$$B_p = \frac{\tilde{\beta} R_{cn} \kappa^2 I_p(\kappa\rho_0) K_p^2(\kappa R_{cn})}{16[1 - \tilde{\beta} R_{cn} \kappa^2 I_p(\kappa\rho_0) K_p(\kappa R_{cn})]},$$

в котором $\tilde{\beta}(\omega) = 4\pi i \sigma_{zz}(\omega) / [ck(1 - \gamma(\omega)h^2)]$. Используя далее формулу (40), приходим к следующему выражению для времени спонтанного излучения атома внутри нанотрубки: $\Gamma = \zeta \Gamma_0$, где

$$\zeta = 1 + \frac{3\pi R_{cn}}{16k_A^3} \sum_{p=-\infty}^{\infty} \text{Im} \int_C \frac{\tilde{\beta}_A \kappa_A^4 I_p^2(\kappa_A \rho_0) K_p^2(\kappa_A R_{cn})}{1 - \tilde{\beta}_A R_{cn} \kappa_A^2 I_p(\kappa_A \rho_0) K_p(\kappa_A R_{cn})} dh \quad (44)$$

и $\kappa_A = \sqrt{h^2 - k_A^2}$, $\tilde{\beta}_A = \tilde{\beta}(\omega_A)$. Коэффициент ζ непосредственно характеризует влияние дифракции нулевых мод на время спонтанного излучения атома внутри нанотрубки. Следует подчеркнуть, что интеграл в (44) нельзя преобразовать к интегралу в конечных пределах, как это сделано в работе [78] для идеально проводящего цилиндра. Это обстоятельство отражает вклад в спонтанное излучение атома поверхностных волн нанотрубки. По аналогии с классической теорией дифракции можно ожидать, что этот вклад весьма значителен (см. [23], где показано, что модель идеально проводящего цилиндра не дает корректного описания электродинамических свойств нанотрубок).

Итак, в настоящей работе выполнен анализ широкого круга задач линейной и нелинейной электродинамики и теории электронного переноса углеродных нанотрубок, предложены достаточно общие методы решения таких задач, исследованы физические следствия, порождаемые необычными свойствами этого нового состояния углерода, обсуждены некоторые возможные приложения исследованных эффектов. В заключение мы кратко остановимся на ближайших наиболее важных и интересных, с нашей точки зрения, проблемах электродинамики нанотрубок, которые предстоит решить в будущем.

Учитывая успехи технологии выращивания упорядоченных массивов нанотрубок, одной из таких проблем является *дифракция электромагнитных волн на периодических структурах из нанотрубок*. Основы исследования этой проблемы заложены в работах [79, 21, 23]. При этом предполагалось, что периодическая структура является частой в сравнении с длиной волны, и для нее вводилась модель искусственной однородной среды с эквивалентными материальными параметрами. Гораздо больший интерес представляет случай, когда период

соизмерим с длиной волны. При этом в решетке из нанотрубок будут возникать резонансные дифракционные эффекты, характерные для периодических систем (зонная структура, эффекты дифракции Брэгга и т. д.). Одно из возможных применений таких структур – фотонные кристаллы оптического диапазона. Для решения задачи могут быть использованы обычные методы теории дифракции на периодических структурах.

Однако возможность и корректность применения этих методов зависит от решения другой задачи – *о дифракции электромагнитных волн на изолированной нанотрубке конечной длины*. Физический интерес к данной проблеме диктуется тем, что в конечной нанотрубке возможны токовые резонансы, подобные имеющим место в антенных вибраторах [53]. В принципе, нанотрубка способна существенно изменить диаграмму направленности элементарного атомного излучателя и может использоваться как высокоэффективная антенна оптического диапазона в нанoeлектронике (в том числе и для спонтанных излучателей). Принципиальная основа решения проблемы нанотрубки конечной длины заложена в [24] (см. также разд. 1.6 настоящей работы), где методом Винера – Хопфа построено точное решение дифракционной задачи для полубесконечной нанотрубки.

Развитие технологических методов синтеза наноструктур показало, что равновесные конфигурации нанотрубок не исчерпываются регулярными структурами, у которых радиус и угол кривизны не меняются вдоль продольной координаты. В частности, в [80] были синтезированы *плавные переходы между нанотрубками различных конфигураций* (например, между нанотрубками типа (8,0) и (7,1) либо (8,0) и (5,3)). С точки зрения электродинамики, такой переход является отрезком нерегулярного открытого волновода. Распространение поверхностной волны через такой отрезок будет сопровождаться ее трансформацией в излучаемые волны. Для анализа эффектов такого типа возможно применение метода поперечных сечений, обобщенного на открытые структуры в [3].

В работе [81] были синтезированы *нанотрубки с синусоидально гофрированной поверхностью*. Отметим, что в зависимости от технологических условий выращивания гофр может быть как слабым, так и сильным, – в последнем случае речь идет о периодической системе связанных фуллеренов квазисферической либо сфероидальной формы. Кроме того, в [81] были синтезированы периодически изогнутые и периодически скрученные трубки, в том числе образующие спиральные структуры. Теоретический расчет равновесных нерегулярных конфигураций выполнен в [81] на основе методов статической теории упругости. Ясно, что в периодически деформированных нанотрубках возможно распространение собственных электромагнитных волн, однако свойства этих волн будут существенно отличаться от свойств поверхностной волны, рассмотренной выше для регулярных нанотрубок. В частности, в их формировании будут весьма существенны дифракционные эффекты, связанные с периодичностью. Для анализа дисперсионных и диссипативных свойств таких волн перспективно применение методов теории периодических волноводов.

Дальнейшего развития требует и представленная в разд. 2 теория нелинейных эффектов в нанотрубках. Действительно, теория генерации высших гармоник в нанотрубках основана на полуклассическом приближении: в качестве

уравнений движения используется уравнение Больцмана, а квантовая природа носителей тока учитывается лишь законом дисперсии. В рамках такого подхода не учитывается вклад межзонных переходов, что налагает существенные ограничения на частоты и интенсивности рассматриваемого излучения. Более строгая квантовая теория должна основываться на уравнениях Лиувилля для матрицы плотности в двухзонном приближении.

Конечно, приведенный перечень проблем не претендует на полноту, однако и он показывает, что круг их весьма широк, а традиционные для современной электродинамики схемы и методы могут быть с успехом адаптированы применительно к наноструктурам.

В заключение мы с удовольствием выражаем благодарность за многолетнее плодотворное сотрудничество профессору А. Lakhtakia (Pennsylvania State University, USA), кандидату физико-математических наук О. М. Евтушенко (Институт радиофизики и электроники, Харьков), доктору J. Herrmann (Max Born Institute for Nonlinear Optics and Short Pulse Spectroscopy, Germany), доктору физико-математических наук В. П. Калоше (НИИ ЯП БГУ). Мы также благодарим наших молодых коллег А. В. Гусакова, А. С. Максименко, Н. Н. Крапивина, внесших существенный вклад в совместные исследования нанотрубок. Данная работа была бы невозможна без финансовой поддержки со стороны БГУ, Белорусского республиканского фонда фундаментальных исследований, межвузовской программы «Нанoeлектроника», международных программ INTAS (проект 97-2018) и BMBF (проект WEI-001-98). Авторы признательны Институту Макса Борна (Берлин, Германия) за создание прекрасных условий для выполнения исследований по генерации высших гармоник в нанотрубках.

Литература

1. Вайнштейн Л. А. Открытые резонаторы и открытые волноводы. М., 1966.
2. Адамс М. Введение в теорию оптических волноводов. М., 1984.
3. Шевченко В. В. Плавные переходы в открытых волноводах. М., 1969.
4. Нефедов Е. И., Фиалковский А. Т. Полосковые линии передачи. М., 1980.
5. Plynsky A. S., Slepyan G. Ya., Slepyan A. Ya. Propagation, scattering and dissipation of electromagnetic waves. London: Peregrinus, 1993.
6. Withers J. C., Loutfy R. O., Lowe T. P. // Fullerene Sci. and Tech. 1997. Vol. 5. P. 1–31.
7. Banyai L., Koch S. W. Semiconductor quantum dots. World series on atomic, molecular and optical physics Vol. 2. Singapore: World Scientific, 1993.
8. Bimberg D., Grundmann M., Ledentsov N. N. Quantum dot heterostructures. Chichester: John Wiley & Sons, 1999.
9. Dresselhaus M. S., Dresselhaus G., Eklund P. C. Science of fullerenes and carbon nanotubes. New York: Academic Press, 1996.
10. Saito R., Dresselhaus G., Dresselhaus M. S. Physical properties of carbon nanotubes. London: Imperial College Press, 1998.
11. Lakhtakia A., Messier R., Brett M. J. and Robbie K. // J. Mat. Res. 1996. Vol. 1. P. 165–176.
12. Каганов М. И. Электроны, фононы, магноны. М., 1979.
13. Басс Ф. Г., Булгаков А. А., Тетервов А. П. Высокочастотные свойства полупроводников со сверхрешетками. М., 1989.
14. Joachim C., Gimzewski J. K., Tang H. // Phys. Rev. B. 1998. Vol. 58. P. 16407–16417.
15. Antonov R. D., Johnson A. T. // Phys. Rev. Lett. 1999. Vol. 83. P. 3274–3277.

16. Farajian A. A., Estarjani K., Kawazoe Y. // Phys. Rev. Lett. 1999. Vol. 82. P. 5084–5087.
17. Slepyan G. Ya., Gurevich A. V., Maksimenko S. A. // Phys. Rev. E. 1995. Vol. 51. P. 2543–2549.
18. Slepyan G. Ya., Maksimenko S. A., Bass F. G., Lakhtakia A. // Phys. Rev. E. 1995. Vol. 52. P. 1049–1058.
19. Slepyan G. Ya., Lakhtakia A., Maksimenko S. A. // Microwave Opt. Techn. Lett. 1996. Vol. 12. P. 342–346.
20. Slepyan G. Ya., Maksimenko S. A., Lakhtakia A. et al. // Phys. Rev. B. 1998. Vol. 57. P. 9485–9497.
21. Lakhtakia A., Slepyan G. Ya., Maksimenko S. A. et al. // Carbon. 1998. Vol. 36. P. 1833–1838.
22. Slepyan G. Ya., Maksimenko S. A., Lakhtakia A. et al. // Phys. Rev. B. 1999. Vol. 60. P. 17136–17149.
23. Maksimenko S. A., Slepyan G. Ya. Electrodynamic properties of carbon nanotubes // Electromagnetic Fields in Unconventional Structures and Materials. /Ed. by: O. N. Singh and A. Lakhtakia. New York, John Wiley & Sons, Inc., 2000. P. 217–255.
24. Slepyan G. Ya., Krapivin N. A., Maksimenko S. A. et al. AEU Int. J. Electron. Commun. 2001. Vol. 55. P. 273–280.
25. Slepyan G. Ya., Maksimenko S. A., Lakhtakia A., Yevtushenko O. M. // Synthetic Metals, 2001 (to be published).
26. Yevtushenko O. M., Slepyan G. Ya., Maksimenko S. A. et al. // Phys. Rev. Lett. 1997. Vol. 79. P. 1102–1105.
27. Slepyan G. Ya., Maksimenko S. A., Kalosha V. P. et al. // Phys. Rev. A. 1999. Vol. 61. P. R777–R780.
28. Maksimenko S. A., Slepyan G. Ya. // Phys. Rev. Lett. 2000. Vol. 84. P. 362–365.
29. Slepyan G. Ya., Maksimenko S. A., Kalosha V. P. et al. // Phys. Rev. A. 2001. Vol. 63. № 053808.
30. Slepyan G. Ya., Maksimenko S. A. // 8th Int. Conf. on Electromagnetics of Complex Media Bianisotropic'2000, Lisboa, Portugal, September 27–29, 2000, Proc. P. 175–180.
31. Bass F. G., Slepyan G. Ya., Slepyan G. Ya. // Microwave and Opt. Techn. Lett. 1998. Vol. 19. P. 203–208.
32. Maksimenko S. A., Kalosha V. P., Ledentsov N. N. et al. // 7th Int. Conf. on Complex Media Bianisotropics'98, Braunschweig, Germany, June 3–6, 1998: Proc. P. 81–84.
33. Slepyan G. Ya., Maksimenko S. A., Kalosha V. P. et al. // Phys. Rev. B. 1999. Vol. 59. P. 1275–1278.
34. Maksimenko S. A., Slepyan G. Ya., Kalosha V. P. et al. // J. Electronic Materials. 2000. Vol. 29. P. 494–503.
35. Maksimenko S. A., Slepyan G. Ya., Ledentsov N. N. et al. // Semiconductor Sci. and Techn. 2000. Vol. 15. P. 491–496.
36. Maksimenko S. A., Slepyan G. Ya., Ledentsov N. N. et al. // 8th Int. Symp. Nanostructures: physics and technology, St. Petersburg, Russia, 19–23 June, 2000: Proc. P. 219–223.
37. Maksimenko S. A., Slepyan G. Ya., Kalosha V. P. et al. // Mater. Sci. & Eng. B. 2001. Vol. 82. P. 215–217.
38. Kroto H. W., Heath J. R., O'Brien S. C. et al. // Nature. 1985. Vol. 318. P. 162–163.
39. Iijima S. // Nature. 1991. Vol. 354. P. 56–58.
40. Ebbesen T. W. // Physics Today. 1996. Vol. 49. P. 26–32.
41. Miyamoto Y., Louie S. G., Cohen M. L. // Phys. Rev. Lett. 1996. Vol. 76. P. 2121–2124.
42. Lin M. F., Shung K. W.-K. // Phys. Rev. B. 1994. Vol. 50. P. 17744–17747.
43. Saito R., Fujita M., Dresselhaus G., Dresselhaus M. S. // Phys. Rev. B. 1992. Vol. 46. P. 1804–1811.
44. Wallace P. R. // Phys. Rev. 1947. Vol. 71. P. 622–634.
45. Tian W., Datta S. // Phys. Rev. B. 1994. Vol. 49. P. 5097–5100.
46. Ландау Л. Д., Лифшиц Е. М. Физическая кинетика. М., 1979.

47. Tans S. J., Devoret M. H., Dai H. et al. // Nature (London). 1997. Vol. 386. P. 474–477.
48. Mintmire J. W., White C. T. // Phys. Rev. Lett. 1998. Vol. 81. P. 2506–2509.
49. Вайнштейн Л. А. Электромагнитные волны. М., 1988.
50. Конторович М. И., Астрахан М. И., Акимов В. П., Ферсман Г. А. Электродинамика сетчатых структур. М., 1987.
51. Вайнштейн Л. А. Теория дифракции и метод факторизации. М., 1966.
52. Леонтович М. А., Левин М. Л. // ЖТФ. 1944. Т. 14. С. 481–506.
53. Mittra R., Lee S. W. Analytical techniques in the theory of guided waves. New York: The Macmillan Company; London: Collier-Macmillan Limited, 1971.
54. Shalaev V. M. Nonlinear optics of random media: Fractal composites and metal-dielectric films. Berlin: Springer, 2000.
55. L'Huillier A., Schafer K., Kulander K. // Phys. Rev. Lett. 1991. Vol. 66. P. 2200–2203.
56. Krause J., Schafer K., Kulander K. // Phys. Rev. Lett. 1992. Vol. 68. P. 3535–3538.
57. L'Huillier A., Balcou P. // Phys. Rev. Lett. 1993. Vol. 70. P. 774–777.
58. Macklin J., Kmetec J., Gordon III C. // Phys. Rev. Lett. 1993. Vol. 70. P. 766–769.
59. Corkum P. // Phys. Rev. Lett. 1993. Vol. 71. P. 1994–1997.
60. Kohlweyer S., Tsakiris G. D., Wahlstrom C.-G. et al. // Opt. Comm. 1995. Vol. 117. P. 431–435.
61. Von der Linde D., Engers T., Jenke G. et al. // Phys. Rev. A. 1995. Vol. 52. P. R25–R27.
62. Norreys P. A., Zepf M., Moustazis S. et al. // Phys. Rev. Lett. 1996. Vol. 76. P. 1832–1835.
63. Bezryadin A., Verschueren A. R. M., Tans S. J., Dekker C. // Phys. Rev. Lett. 1998. Vol. 80. P. 4036–4039.
64. Tans S. J., Verschueren R. M., Dekker C. // Nature (London). 1998. Vol. 393. P. 49–52.
65. Kane C. L., Balents L., Fisher M. P. A. // Phys. Rev. Lett. 1997. Vol. 79. P. 5086–5089.
66. Balents L., Fisher M. P. A. // Phys. Rev. B. 1997. Vol. 55. P. R11973–R11976.
67. Krotov Yu. A., Lee D.-H., Louie S. G. // Phys. Rev. Lett. 1997. Vol. 78. P. 4245–4248.
68. Egger R., Gogolin A. O. // Phys. Rev. Lett. 1997. Vol. 79. P. 5082–5085.
69. Дудин Е. П., Жаров А. А., Игнатов А. А. // ЖЭТФ. 1998. Т. 114. С. 2246–2262.
70. Leonard F., Tersoff J. // Phys. Rev. Lett. 2000. Vol. 85. P. 4767–4770.
71. Glauber R. J., Lewenstein M. // Phys. Rev. A. 1991. Vol. 43. P. 467–491.
72. Matloob R., Loudon R., Barnett S. M., Jettors J. // Phys. Rev. A. 1995. Vol. 52. P. 4823–4837.
73. Gruner T., Welsch D.-G. // Phys. Rev. A. 1996. Vol. 53. P. 1818–1829.
74. Scheel S., Knoll L., Welsch D.-G. // Phys. Rev. A. 1998. Vol. 58. P. 700–706.
75. Dung H. T., Knoll L., Welsch D.-G. // Phys. Rev. A. 2000. Vol. 62, № 053804.
76. Fleischhouer M. // Phys. Rev. A. 1999. Vol. 60. P. 2534–2539.
77. Берестецкий В. Б., Лифушиц Е. М., Путаевский Л. П. Квантовая электродинамика. М., 1989.
78. Klimov V. V., Ducloy M. // Phys. Rev. A. 2000. Vol. 62, № 043818.
79. Garsia-Vidal F. J., Pitarke J. M., Pendry J. B. // Phys. Rev. Lett. 1997. Vol. 78. P. 4289–4292.
80. Chico L., Crespi V. H., Benedict L. H. et al. // Phys. Rev. Lett. 1996. Vol. 76. P. 971–974.
81. Xie S. S., Li W. Z., Qian L. X. et al. // Phys. Rev. B. 1996. Vol. 54. P. 16436–16439.

**ELECTRODYNAMICS
OF QUASI-ONE-DIMENSIONAL CARBON STRUCTURES:
IDEAS, APPROACHES, PERSPECTIVES**

S. A. Maksimenko, G. Ya. Slepyan

The paper presents an overview of theoretical results obtained in the Gamma-optics laboratory, INP, during last five years on electrodynamics and transport properties of carbon nanotubes (CNs). Consideration is given in the microwave, the infrared and the visible regimes. The investigation comprises linear electrodynamics of CNs and CN-based arrays [20–25], nonlinear

transport in CNs and their nonlinear optical properties [26–29], quantum electrodynamics of CNs. A common approach has been applied [30]. This approach utilizes an analogy between nanostructures and objects of classical electrodynamics which allows application to nanostructures of well-developed methods originated from classical electrodynamics of microwaves [5,31]. A set of particular problems has been considered. The analyses allowed us to reveal some specific properties of CNs and, simultaneously, to illustrate basic tendencies inherent in present-day studying of nanostructures. Moreover, methods and approaches developed for CNs found application in investigation of electrodynamics of quantum dots and quantum dot ensembles [32–37].

First, microscopic consideration of a CN's conductivity and Coulomb screening is undertaken both in the semi-classical approximation and on the basis of a rigorous quantum-mechanical model. Analytical expressions for the dynamic conductivity are derived and numerical results for different types of CNs are presented. Effective boundary conditions for the electromagnetic field and the electrostatic potential in CNs are stated on the nanotube surface providing thereby the most appropriate tool for solving electrodynamic problems involving CNs. A detailed analysis of the eigenwave problem in a single homogeneous CN is presented. The existence of surface TM-waves is pointed out and frequency ranges are shown to exist wherein these waves can propagate to distances essentially exceeding the CN length. That allows the concept of nanotubes as nanowaveguides.

Scattering of electromagnetic cylindrical waves by an isolated, semi-infinite, open-ended, single-shell, zigzag carbon nanotube (CN) is considered in the optical regime. The CN is modeled as a smooth homogeneous cylindrical surface with impedance boundary conditions known from quantum-mechanical transport theory. An exact solution of the diffraction problem is obtained by the Wiener-Hopf technique. The differences between the scattering responses of metallic and semiconducting CNs are discussed.

The high harmonic generation by metallic carbon nanotubes exposed to an intense ultrashort pulse has been theoretically investigated in the semi-classical approximation. The mechanism of nonlinearity provided by the motion of π -electrons has been considered. It has been shown that the high density of states of π -electrons in metallic carbon nanotubes and the specific dispersion law inherent in hexagonal crystalline structure result in the efficient generation of high-order harmonics with intensities which fall down smoothly with harmonic number, without cutoff and with efficiency much larger than in gases with the same pump intensity. We have studied phase matching for different harmonics in a rope of parallel aligned CNs in dependence on the angle of incidence.

A theoretical model and computations of the I-V characteristics of long carbon nanotubes in a strong axial dc-fields at room temperatures have been presented. The effect of negative differential conductivity has been predicted. It has been shown that $|dI/dV|$ for metal carbon nanotubes in the region of the negative differential conductivity significantly exceeds corresponding values for semiconducting ones. The predicted effect makes possible the design of wave-generating nanotube-based diodes for submillimeter and infrared ranges.

A brief review of unsolved problems of electrodynamics of nanotubes, with the emphasis on potential applications, is presented.