

2003 р. w 7-2(6-7)

Вынужденное комбинационное рассеяние квантовыми точками в условиях резонансного увеличения локального поля

Ал. Г. Алексанян

Рассмотрена возможность ВКР квантовыми точками. Получено выражение для комплексной восприимчивости на частоте стоксовой волны в зависимости от размера квантовой точки, в случае резонансных переходов. Показано, что учет увеличения локального поля приводит к значительному понижению значения пороговой интенсивности при котором возникает ВКР.

1. Известно, что эффект гигантского комбинационного рассеяния (ГКР) состоит в относительно огромном ($10^5 \div 10^6$) раз возрастании эффективного сечения комбинационного рассеяния света молекулами, адсорбированными на поверхности благородных металлов. [1] С точки зрения приложений метод ГКР при установлении соответствующего технологического контроля может послужить весьма мощным методом изучения свойств поверхностей раздела твердых тел, для детектирования очень слабых линий, а также в условиях вынужденного комбинационного рассеяния (ВКР) служить источником когерентного излучения. В настоящее время, принято считать, что основная причина возникновения гигантских резонансов состоит в резком увеличении локального поля световой волны [2].

В последние годы привлечение высоких технологий в процесс создания твердотельных наноструктур позволило контролируемо получать, с помощью электронно-лучевой литографии, квантовые точки (КТ) из квантовых слоев гетероструктуры [3] также внедрять их в барьеры [4]

Поэтому, на наш взгляд, представляется весьма актуальным рассмотрение ВКР квантовыми точками, при этом аккумуляторами возбуждающего излучения может служить субмикроскопическая структура квантового слоя. Другими словами в предлагаемой структуре квантовый слой состоит из микрокристаллов двух типов: в одном спектр в плоскости перехода непрерывный (микрокристалл А), а в другом спектр квантован (КТ) (см. рис.1)

2. Для выяснения основных особенностей ВКР в указанной структуре, рассмотрим представленный на рис.2 двухфотонный процесс между квантовыми состояниями (ij) зоны проводимости КТ. Компоненту поляризации $\underline{E}(\omega_2)$ и комплексной восприимчивости $\chi(\omega_2)$ на чистоте ω_2 рассеянной волны находим с помощью решения уравнения для матрицы плотности в приближении времени релаксации [5]

$$i\hbar \frac{\partial \rho_{ij}}{\partial t} = \eta \omega_{ij} \rho_{ij} + [\mu_j^\dagger \rho]_{ij} - \frac{i\hbar}{\tau_{ij}} \rho_{ij} \quad (1)$$

где $\omega_{ij} = (E_i - E_j)/\hbar$, τ_{ij} - время релаксации.

методом теории возмущения, где следует произвести следующее разложение

из кн.

$$\rho_0 = \sum \mu^\lambda \cdot \rho_0^{(\lambda)}$$

μ - малый безразмерный параметр, характеризующий внешнее возмущение $\mu \cdot H'$, λ - порядок возмущения.

Полный гамильтонный состоит из суммы невозмущенного гамильтона H_0 с собственными состояниями $|\psi_i\rangle$ и гамильтона взаимодействия

$$H' = -R E \quad (2)$$

В поле E включены члены с возбуждающей частотой ω_2 т.е.

$$E = \frac{\tilde{E}_1}{2} e^{i\omega_1 t} + \frac{\tilde{E}_2}{2} e^{i\omega_2 t} + K.C. \quad (3)$$

Матричный элемент дипольного момента R равен

$$R_{ij} = e \int \psi_j^* r \psi_i dr \quad (4)$$

Далее будем полагать, что все КТ идентичны, т.е. все линии имеют лоренцеву форму, а все сигналы — точно резонансную частоту.

Матричные элементы оператора ρ с временной зависимостью $e^{i\omega_2 t}$ и с резонансным знаменателем при $\omega_2 = \omega_{34}$, описывающие рассеянную волну, определяются из соответствующих членов теории возмущений [5], которая ведет от возбуждающего поля ω_1 к ρ_{34} через резонансные взаимодействия при условии, что система в начале находится в состоянии $|1\rangle$ при $t=0$

$$\rho_{ij}(t=0) = \delta_{i1} \delta_{j1}$$

Действительно, из (1) имеем следующее уравнение для недиагональных матричных элементов первого порядка оператора плотности $\delta_{oi}^{(1)}$

$$i\hbar \left(\frac{\partial}{\partial t} + i\omega_{ij} + \frac{1}{\tau_{ij}} \right) \rho_{ij}^{(1)} = \sum_k \left(H'_{ik} \rho_{kj}^{(0)} - \rho_{ik}^{(0)} H'_{kj} \right), i \neq j \quad (5)$$

С учетом $\rho_{ij}^{(0)} = \delta_{i1} \delta_{j1}$, следующее из (1), легко можно убедиться, что правая часть (5)

отлична от нуля лишь при $K=1$, если $j=1$, т.е.

$$i\hbar \left(\frac{\partial}{\partial t} + i\omega_{i1} + \frac{1}{\tau_{i1}} \right) \rho_{i1}^{(1)} = H'_{i1} \quad (6)$$

Представив H' с временной зависимостью

$$H' = \frac{\tilde{H}'}{2} (e^{i\omega_2 t} + e^{-i\omega_2 t}),$$

окончательно получим с учетом эрмитовости оператора

$$\rho(\rho_{ii}^{(1)} = (\rho_{ii}^{(1)})^*) (i = 4)$$

$$\rho_{14}^{(1)} = \frac{\tilde{H}_{14}^* e^{i\omega_1 t}}{2i\eta \left(-i\omega_1 - i\omega_{14} - \frac{1}{\tau_{14}} \right)} + \frac{\tilde{H}_{14}^* e^{-i\omega_1 t}}{2i\eta \left(i\omega_1 - i\omega_{14} - \frac{1}{\tau_{14}} \right)} \quad (7)$$

который описывает резонансный переход $|1\rangle - |4\rangle$, так как $\omega_1 = \omega_{14}$.

Уравнение для недиагональных матричных элементов второго порядка оператора плотности ($\rho_{13}^{(2)}$) следует из (1) при $i=1$; $j=3$

$$i\eta \left(\frac{\partial}{\partial t} + i\omega_{13} + \frac{1}{\tau_{13}} \right) \rho_{12}^{(2)} = \sum_l (H_{1l}^* \rho_{l3}^{(1)} - \rho_{1l}^{(1)} H_{l3}^*) (l \neq 1) \quad (8)$$

С учетом того, что все недиагональные матричные элементы первого порядка кроме $\rho_{11}^{(1)}$ равны нулю, правая часть последнего уравнения упрощается и принимает вид $\sum_l -\rho_{1l}^{(1)} H_{l3}^* = -\rho_{14}^{(1)} H_{43}^*$. Т.е. для оператора взаимодействия можно написать

следующую временную зависимость

$$H_{43}^* = \frac{\tilde{H}_{43}^*}{2} (e^{i\omega_1 t} + e^{-i\omega_1 t})$$

И так как $\rho_{14}^{(1)}$ имеет временную зависимость вида $e^{\pm i\omega_1 t}$, то правая часть (8) будет содержать члены с зависимостью $e^{i(\omega_1 - \omega_2)t}$. Тогда $\partial / \partial t \rightarrow i(\omega_1 - \omega_2)$ и легко убедиться с учетом эрмитовости оператора ρ , что

$$\rho_{31}^{(2)} = (\rho_{13}^{(2)})^* = \frac{(\rho_{14}^{(1)})^* \tilde{H}_{43}^* \tau_{13} e^{i\omega_2 t}}{2i\eta}, (\omega_{31} = \omega_1 - \omega_2) \quad (9)$$

Т.К.

$$\rho_{13}^{(2)} = - \frac{\rho_{14}^{(1)} \tilde{H}_{43}^* \cdot e^{-i\omega_2 t}}{2i\eta \left(i(\omega_1 - \omega_2) - i\omega_{31} + \frac{1}{\tau_{13}} \right)}$$

Уравнение для недиагональных матричных элементов третьего порядка оператора плотности ($\rho_{43}^{(3)}$) имеет вид

$$i\eta \left(\frac{\partial}{\partial t} + i\omega_{43} + \frac{1}{\tau_{43}} \right) \rho_{43}^{(3)} = \sum_f (H_{4f}^* \rho_{f3}^{(2)} - \rho_{4f}^{(2)} H_{f1}^*) = H_{41}^* \rho_{13}^{(2)} \quad (10)$$

($f=1$), так как резонансный знаменатель, удовлетворяющий условиям задачи имеет только член $\rho_{13}^{(2)}$.

$$H_{41}^* = \frac{\tilde{H}_{41}^*}{2} (e^{i\omega_1 t} + e^{-i\omega_1 t})$$

и так как $\rho_{13}^{(2)}$ имеет временную зависимость $e^{i(\omega_1 - \omega_2)t}$, следовательно в правой части (10) имеется зависимость $e^{-i\omega_2 t}$, т.е. $\frac{\partial}{\partial t} \rightarrow -i\omega_2$, которое приводит к следующим выражениям

$$\rho_{34}^{(3)} = (\rho_{43}^{(3)})^* = - \frac{\tilde{H}_{43} \rho_{31}^{(2)} e^{-i\omega_1 t}}{2i\eta \left(i\omega_2 - i\omega_{43} + \frac{1}{\tau_{43}} \right)} = \frac{(\tilde{H}_{14}^*)^2 (\tilde{H}_{43}^*) \tau_{13} \tau_{43} \tau_{14} e^{i\omega_2 t}}{8i\eta^3} \quad (11)$$

Мы получили матричные элементы оператора плотности ρ , описывающие резонансные переходы в рассматриваемой системе, совершаемые при ВКР. А матричные элементы операторов взаимодействия H' даются следующими выражениями:

$$H_{14}^* = -R_{14} \vec{E}_1 \quad (12)$$

$$H_{43}^* = -R_{43} \vec{E}_2 \quad (13)$$

где для квадрата матричного элемента дипольного момента имеем

$$|R_{nn}|^2 = \frac{e^2 \eta^2}{2m^2 a^2 \omega_{nn}^2} \frac{32n^2 n^2}{[n^2 - n^2]^2} \delta_{n-n}, 2k \pm 1 \delta_{nn} \delta_{nn}$$

Выражение (14) получено для КТ, списываемый моделью бесконечно глубокой трехмерной потенциальной ямы, в случае когда волна поляризована по оси X (рис.1).

Поляризация $P(\omega_2)$ вычисляется из соотношения

$$P(\omega_2) = N(\rho_{34}^{(3)}) R_{43} + k.c.) \quad (15)$$

N- число КТ в единице объема слоя.

Из выражений для $\rho_{34}^{(3)}$ и (15) находим

$$P(\omega_2) = \varepsilon_0 X E(\omega_2),$$

$$\text{где } X(\omega_2) = \frac{iN|R_{14}|^2|R_{34}|^2\tau_{13}^*\tau_{14}\tau_{34}|E_1|^2}{36\pi^2\varepsilon_0} \quad (16)$$

3. Для выяснения резонансных свойств рассматриваемой среды, представим, что в ней распространяется электромагнитная волна (возбуждающее излучения) с вектором напряженности параллельно плоскости слоя. Локальное поле внутри микрокристалла A состоит поля падающей волны E_1 с частотой ω_1 поля дериаризации микрокристалла A и поля Лоренца [6]

$$\vec{E}_{\text{elie}}(\omega) = \vec{E}_1 + \alpha 4\pi \vec{P}_A + \beta 4\pi \vec{P} \quad (17)$$

где α и P_A — соответственно фактор деполяризации и дипольный момент единицы объема микрокристалла, β - константа поля Лоренца, $\vec{P} = n_A \vec{\mu}_A$, n_A - плотность

$\vec{\mu} = \vec{P}_A v_A$ - дипольный момент микрокристалла.

Поляризация микрокристалла связана с локальным полем известным соотношением [6.]

$$\vec{P}_A = \frac{\varepsilon(\omega) - 1}{4\pi} \vec{E}_{\text{elie}}, \quad (18)$$

где $\varepsilon(\omega_1) = \varepsilon'(\omega_1) + i\varepsilon''(\omega_1)$ - комплексная диэлектрическая проницаемость.

Таким образом

$$\vec{P} = \frac{\varepsilon - 1}{4\pi} v_0 \vec{E}_{\text{elie}}, \quad (19)$$

где $v_0 = v_A n_A$ - суммарный объем занимаемый микрокристаллами в единице объема слоя.

Из (17), (18), (19) получим

$$\vec{E}_{\text{elie}} = L(\omega_1) \vec{E}_1, \text{ где}$$

$$L(\omega_1) = [1 + [\varepsilon(\omega_1) - 1](\alpha - \beta v_0)]^{-1} \quad (20)$$

Отсюда видно, что $E_{\text{лок}}$ достигает максимума при $\omega_1 = \omega_0$, которое определяется из условия

$$1 + [\varepsilon'(\omega_0) - 1](\alpha - \beta v_0) = 0 \quad (21)$$

т.к. при этом $|L(\omega_1)|$ достигат максимума

т.к. $\varepsilon^y = \varepsilon_0 - \frac{\omega_p^2}{\omega_1^2}$, где $\omega_p^2 = 4\pi e^2 / m^*$ - плазменная частота электронов

проводимости микрокристалла

ε_0 - вклад в диэлектрическую проницаемость междузонными переходами (при $\eta\omega_1 < \varepsilon_0$: $\varepsilon_0 \approx const$)

Из (20) и (21) вблизи ω_0 имеем

$$|L(\omega_1)|^2 = \frac{\gamma(\varepsilon^* - 1)^2}{(\omega_1^2 - \omega_0^2)^2 + \gamma\varepsilon^{*2}} \quad (22)$$

$$\omega_0 = \omega_p \left(\varepsilon_0 - \frac{\beta v_0 - \alpha + 1}{\beta v_0 - \alpha} \right)^{-1/2} \quad (23)$$

где $\gamma = (\omega_1 \omega_0 / \omega_p)^4$

В нашем случае удобно управлять частотой ω_0 т.к. ω_p можно изменять варьируя концентрацией электронов в зоне проводимости микрокристалла.

Так как в рассматриваемой структуре, близко расположенных микрокристаллов, локальное поле действующее на КТ резонансно возрастает, то особый интерес представляет оценка порога ВКР.

Для нахождения порога генерации колебаний на частоте ω_2 подставим выражение (16) в уравнение для поля в резонаторе [5],

$$\ddot{E}(\omega_2) + \frac{1}{\tau_\delta} \dot{E}(\omega_2) + \omega_c^2 E(\omega_2) = -\frac{1}{\varepsilon} P(\omega_2) \quad (24)$$

где $\frac{E(\omega_2)}{\tau_\delta}$ характеризует потери энергии, τ_δ - время жизни фотона в резонаторе.

Принимая во внимание, что $E(\omega_2) = \frac{\bar{E}_2}{2} e^{i\omega_2 t} + kc$ пороговое условие

можно записать в виде

$$\frac{i\omega_2}{\tau_\delta} \bar{E}_2 = \frac{\omega_2^2 \varepsilon_0}{2} X \bar{E}_2 \quad (25)$$

Учитывая (16) в (25) имеем

$$\frac{1}{\tau_\delta} = \frac{\omega_2 \varepsilon_0}{2} \frac{N |R_{14}|^2 |R_{34}|^2 \tau_{13}^* \tau_{14} \tau_{34}}{36\eta^2} |L(\omega_1)|^2 |\bar{E}_1|^2 \quad (26)$$

Приведем численные оценки фактора усиления $|L(\omega_1)|^2$ при $\omega_1 = \omega_0$, т.е.

$|L|^2 = \left[\frac{\varepsilon_1(\omega_0) - 1}{\varepsilon^*(\omega_0)} \right]^2$. Для типичных значений $\varepsilon^* \approx 3, \left(\frac{\omega_p}{\omega_0} \right)^2 \approx 36, \varepsilon_0 \approx 5 \div 10,$
 $|L|^2 \approx 10 \div 10^2$

Таким образом учет эффективного локального поля приведет к значительному уменьшению в $|L(\omega_1)|^2$ раз интенсивности возбуждающей волны.

Литература

- [1]. Furtak T.E., Reyes J. Surface Sci., 1980 V.93, p.351
- [2]. Moscovits M. — Solid State Comm., 1979 v. 32, p.59
- [3]. Steffen R. et.al. — Appl. Phys. Lett. 68, 225, 1996
- [4]. Т.Ин. и др. УФН т.1686 N2, 132 1998
- [5]. Р.Пантелб Г.Путхоф "Основы квантовой электроники" Изд-во "Мир" Мю, 1972 с.161
- [6]. Киттель "Введение в физику твердого тела" "Наука" М., 1978 с. 470