

ДЕТЕКТУВАННЯ ВИЩИХ ГАРМОНІК МОДУЛЯЦІЙНИХ СПЕКТРІВ

Теоретично проаналізовано збільшення чутливості модуляційних методик при проведенні спектроскопічних вимірювань на вищих гармоніках синфазної та зсунутої за фазою на $\pi/2$ складової низькочастотного модулюючого збурення. Показано, що використання другого модулюючого збурення приводить до збільшення роздільної здатності вже на першій гармоніці низькочастотного збурення.

In theory the increase of sensitiveness of modulation methods is analyzed during conducting of the spectroscopy measuring on the higher harmonic of in phase and out of phase on $\pi/2$ constituent of low-frequency modulating excite. It is shown, that the use of the second modulating excite results in the increase of resolve ability already on the first harmonic of low-frequency excite.

Використання модуляційних методик для дослідження квантоворозмірних структур зумовлює необхідність розвитку квантово-механічного підходу до розрахунку модуляційних спектрів. У працях [1,2] за допомогою модуляційних методик визначено ширину лінії, резонансну енергію, силу осцилятора і дипольний момент переходу для квантових точок. Водночас теорія модуляційних спектрів на вищих гармоніках представлена через аналіз похідних N -го порядку та розклад у ряд гауссіанівської та лоренціанівської форми лінії [3-5].

У даній статті для розрахунку модуляційних спектрів поглинання на вищих гармоніках низькочастотного модулюючого збурення використано аналітичні розв'язки нестационарного рівняння Шредінгера та числові розв'язки рівнянь Блоха. Це надає можливість проаналізувати характеристики модуляційних спектрів у когерентному і не когерентному наближеннях. Рівняння описують взаємодію електромагнітного випромінювання з дворівневою квантовою системою, енергетичне положення кожного з рівнів якої змінюється у часі за гармонічним законом із різною амплітудою. Тоді з рівняння Шредінгера отримуємо систему двох диференціальних рівнянь для амплітуд хвильових функцій $a_1(t)$ та $a_2(t)$ незбуреної дворівневої квантової системи:

$$\begin{cases} \frac{\partial a_1(t)}{\partial t} = ia_1(t)\delta\sin(\Omega t) - ia_2(t)F e^{-i(\omega-\omega_{12})t}, \\ \frac{\partial a_2(t)}{\partial t} = -ia_1(t)F e^{i(\omega-\omega_{12})t} - ia_2(t)\delta\sin(\Omega t). \end{cases} \quad (1)$$

З розв'язку системи в адиабатичному наближенні отримано такі ймовірності переходу між двома нестационарними рівнями дворівневої квантової системи при взаємодії з електромагнітним випромінюванням [6]:

$$|a_2(t)|^2 = \frac{F^2}{2\omega^2(t)} \left(1 - \cos \left(2 \int_0^t \omega(t) dt \right) \right), \quad (2)$$

$$\text{де } \omega(t) = \sqrt{F^2 + \left(\frac{\omega - \omega_{12}}{2} + \delta \cdot \sin \Omega t \right)^2}, \quad F = \frac{d_{12}E}{\hbar},$$

Ω – частота низькочастотного збурення, ω – частота електромагнітного випромінювання, ω_{12} – резонансна частота переходу, d_{12} – дипольний момент переходу, E – напруженість електромагнітного поля, F – частота Рабі, параметр δ – виражена у частотних одиницях амплітуда низькочастотного модулюючого збурення.

Досліджено залежності збільшення чутливості модуляційних методик від величин Ω , δ , d_{12} , E або $F = d_{12}E/\hbar$. Величини змінювались так: Ω від 0,01 до 100 Гц, δ в межах 10^7 – 10^{14} Гц, F в межах 10^7 – 10^{11} Гц.

За допомогою числового розв'язку рівнянь Блоха, записаних для елементів матриці густини ρ після заміни змінних $2\rho_{21}(t)\exp(i\omega t) = \alpha(t) - i\beta(t)$ та $n(t) = \rho_{22}(t) - \rho_{11}(t)$:

$$\frac{d\alpha(t)}{dt} = -F \sin(\delta \cos(\Omega t)) \cdot n(t) - G_2 \cdot \alpha(t),$$

$$\frac{d\beta(t)}{dt} = -F \cos(\delta \cos(\Omega t)) \cdot n(t) - G2 \cdot \beta(t),$$

$$\frac{dn(t)}{dt} = F \sin(\delta \cos(\Omega t)) \cdot \alpha(t) -$$

$$- F \cos(\delta \cos(\Omega t))\beta(t) + G1(n(t) + 1),$$

проведено дослідження впливу $G1^{-1}$ поперечного і $G2^{-1}$ повздовжнього часів релаксації на положення та амплітуду піків у модуляційних спектрах.

Отримані ймовірності переходу (2) та числові розв'язки рівнянь Блоха були використані для розрахунку залежності від часу коефіцієнта поглинання в системах з дискретним та неперервним розподілом густини станів [7,8]. Модуляційні спектри поглинання отримані як частотні залежності від ω розкладів у ряд Фур'є часових залежностей коефіцієнта поглинання на гармоніках кратних частоті Ω низькочастотного модулюючого збурення.

Розглянемо трирівневу квантову систему, в якій енергетичне положення двох рівнів E_2 і E_3 , що квазірезонансно збуджуються електромагнітним випромінюванням, досить близьке. Тоді з отриманих модуляційних спектрів поглинання на першій гармоніці синфазної та зсунутої за фазою на $\pi/2$ складової низькочастотного модулюючого збурення їх не можна ідентифікувати. Загальний вигляд кривих модуляційного спектру такий, що ідентифікувати кількість рівнів, які збуджуються електромагнітним випромінюванням, неможливо (рис. 1а).

Побудувавши модуляційний спектр на вищій гармоніці, можна отримати кращу роздільну здатність та ідентифікувати два близько розміщені рівні, що взаємодіють з електромагнітним випромінюванням. Так, порівняння кількості піків у модуляційних спектрах на сьомій гармоніці дає можливість визначити, що з електромагнітним випромінюванням взаємодіють два рівні з енергіями E_2 і E_3 . Зліва на рис. 1 показано модуляційні спектри поглинання для окремих рівнів (суцільна і пунктирна крива) на першій (рис. 1а), другій, зсунутій за фазою на $\pi/2$ відносно синфазної складової низькочастотного модулюючого збурення (рис. 1б) та сьомій (рис. 1в) гармоніці. Праворуч наведено результуючий модуляційний спектр поглинання на першій (рис. 1а), другій (рис. 1б) та сьомій (рис. 1в) гармоніці, який отримано для двох рівнів. Як видно з рис. 1, суттєві відмінності у модуляційних спектрах для окремого рівня і для двох близько розміщених рівнів, а саме кількість піків, спостерігаються лише починаючи з сьомої

гармоніки. Характерним спектром поглинання на сьомій гармоніці для одного збудженого рівня є спектр із шістьма піками, тоді як для двох збуджених рівнів спектр містить вісім піків (рис. 1в). Аналогічні результати отримуються як на синфазній, так і на зсунутій за фазою на $\pi/2$ гармоніках низькочастотного модулюючого збурення.

Складність інтерпретації модуляційних спектрів на ще більш високих гармоніках низькочастотного збурення пов'язана зі зменшенням абсолютного значення низькочастотного відгуку динаміки коефіцієнта поглинання, оскільки відгук на кожній вищій гармоніці завжди менший за відгук на попередній.

Дослідження збільшення роздільної здатності від параметрів квантової системи та електромагнітного випромінювання показало, що зменшення: дипольного моменту переходу, напруженості електромагнітного випромінювання, часу життя рівнів і параметра δ спричинює збільшення роздільної здатності спектроскопічних досліджень вже на нижчих гармоніках. Так, якщо дипольний момент переходів між рівнями d_{12} і d_{13} на рис. 1 буде значно менший, то відмінності в модуляційному спектрі можна отримати вже на третій гармоніці. Однак, зменшення всіх зазначених параметрів спричинює також і до зменшення амплітуди піків у спектрах, що ускладнює реєстрацію.

Останнім часом для експериментів використовують два модулюючі фактори (модуляція амплітуди і частоти електромагнітного випромінювання). На рис. 1г, наведено модуляційний спектр на першій гармоніці, який відрізняється від, зображеного на рис. 1а, тим, що, крім модуляції частоти, присутня також і модуляція амплітуди електромагнітного випромінювання. Як видно з рис. 1г ідентифікувати ті ж два близько розміщені рівні з енергіями E_2 і E_3 можна не тільки побудовою модуляційних спектрів на вищих гармоніках, але й за допомогою використання другого модулюючого фактора. У даному випадку відмінності у спектрах спостерігаються вже на першій гармоніці.

На практиці часто необхідно ототожнити особливості в модуляційних спектрах із певними деталями структури енергетичних зон. На рис. 2а наведено модуляційний спектр на першій гармоніці, що відповідає розподілу густини станів з рис. 2 (вставка).

Використання модуляційної спектроскопії вищих порядків для дослідження особливостей розподілу комбінованої густини станів показав (рис. 2б), що піки, пов'язані з плавним розподі-

лом комбінованої густини станів, зникають на вищих гармоніках низькочастотного збурення: точці перегину a у розподілі густини станів відповідає нульовий відгук у модуляційному спек-

трі, у критичних точках m_1 і m_2 маємо збільшення кількості піків у модуляційних спектрах на вищих гармоніках, яке характерне для модуляційної спектроскопії вищих порядків дискретного рівня.

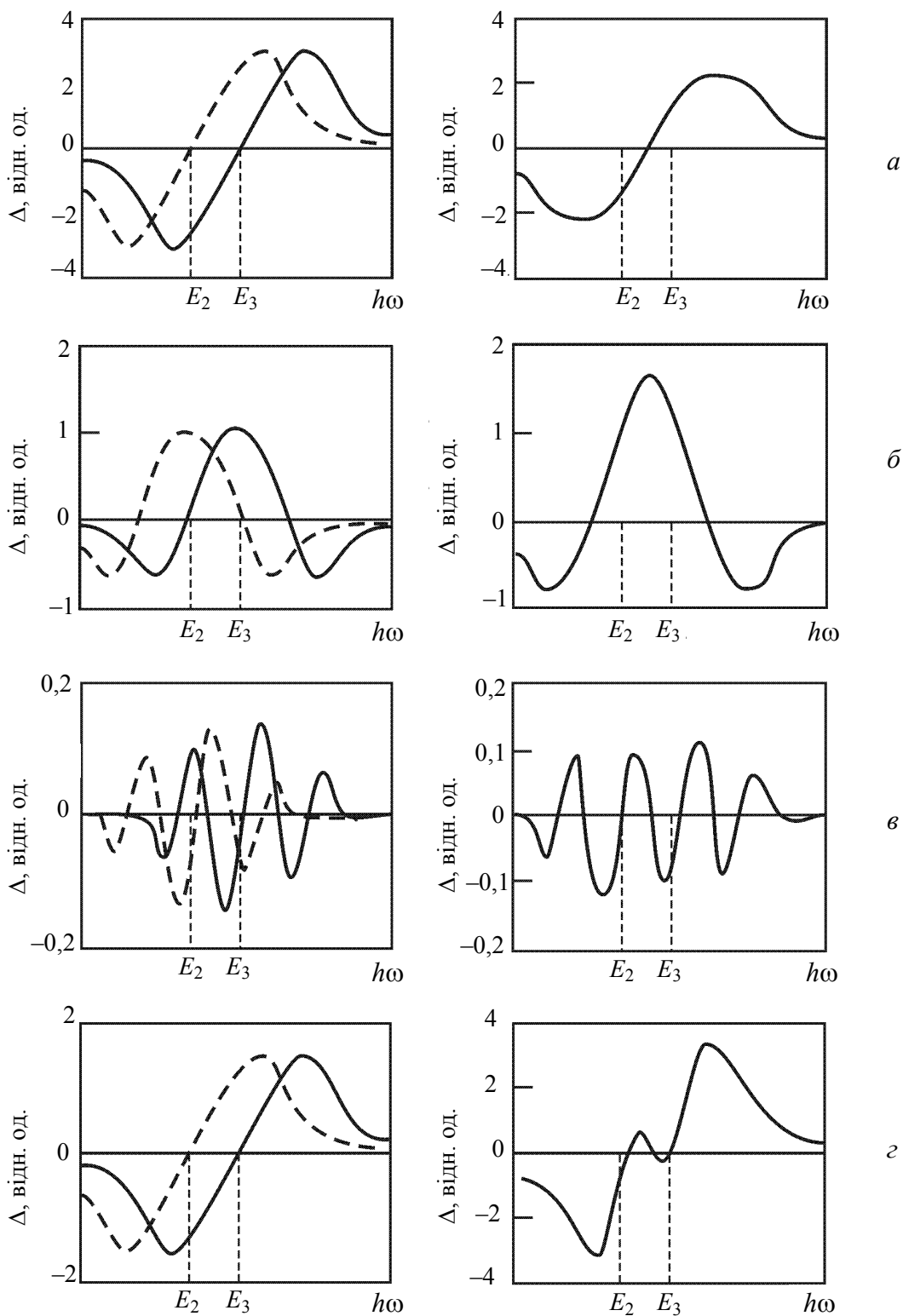


Рис.1. Модуляційні спектри поглинання трирівневої системи на першій (а), другій (б) та сьомій (в) гармоніці низькочастотного збурення, а також при наявності двох модулюючих факторів (г)

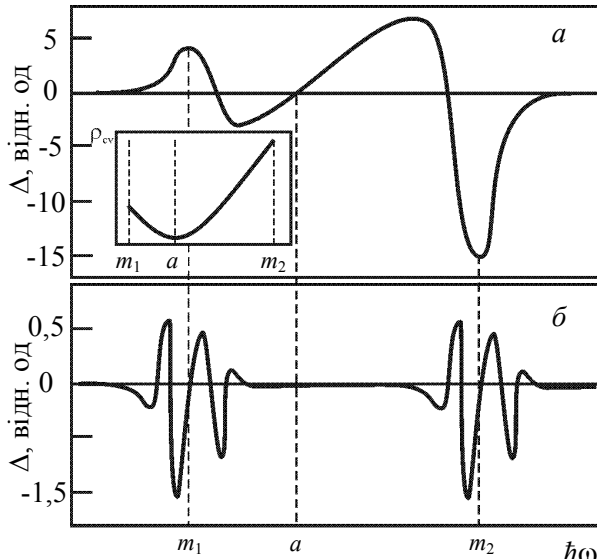


Рис. 2. Модуляційний спектр поглинання на синфазній з низькочастотним збуренням гармоніці $\sin(\Omega t)$ (а) і на гармоніці $\sin(7\Omega t)$ (б)

Перевагою запропонованого методу розрахунку модуляційних спектрів на вищих гармоніках є те, що аналізувати зміну в часі коефіцієнта поглинання можна для різних моделей розподілу густини станів. Так, при розгляді переходів без збереження хвильового вектора між двома зонами, в яких густина станів $\rho = \text{const}$, у модуляційному спектрі на третій гармоніці отримуємо у точках перетину кривою осі абсцис точне енергетичне положення границь зон. Водночас у модуляційному спектрі на першій гармоніці такої інформації немає. Крім того, цей метод дає можливість безпосередньо відстежити вплив таких параметрів як дипольний момент переходу, час життя рівнів та інших на амплітуду і положення піків у модуляційних спектрах.

СПИСОК ЛІТЕРАТУРИ

1. Stievater T.H., Xiaogin Li, Guest R.J. Wavelength modulation spectroscopy of single quantum dots // Appl. Phys. Lett. – 2002. – **80**, No.11. – P.1876-1878.
2. Bonadeo N.H., Lenihan A.S. Single quantum dot states measured by optical modulation spectroscopy // Appl. Phys. Lett. – 1999. – **75**, No.19. – P.2933-2935.
3. Dharamsi A.N., Lu Y. High-resolution spectroscopy using high-order derivative techniques // Appl. Phys. Lett. – 1994. – **65**, No.18. - P.2257-2259.
4. Dharamsi A.N. A theory of modulation spectroscopy with applications of higher harmonic detection // J. Phys. D. Appl. Phys. – 1995. – **29**. - P.540-549.
5. J.M.Supplee, E.A.Whittaker, A.Keith Theoretical description of frequency modulation and wavelength modulation spectroscopy // J. Opt. Soc. Am. B. – 1998. – **15**, No.7. – P.1833-1838.
6. Стахіра Й.М., Демків Л.С. Квантові переходи в квазістаціонарній дворівневій системі // УФЖ. – 2000. - **45**, №10. - С.1240-1243.
7. Демків Л.С. Розрахунок модуляційних спектрів поглинання // Вісник ЛНУ. Серія фізична. – 2000. – **32**. – С.57-60.
8. Куреев В.П. Физика полупроводников. – М.: Высшая школа, 1975.