

低维半导体异质结中的量子相干红外发射 机理理论研究^{*}

孙伟峰[†] 李美成 赵连城

(哈尔滨工业大学材料科学与工程学院, 信息材料科学与技术系, 哈尔滨 150001)

(2009 年 11 月 18 日收到; 2009 年 12 月 7 日收到修改稿)

给出了一种在非粒子反转条件下量子阱和量子点激光器的红外发射机理. 此种红外发射是基于在同一作用区产生并作为红外场相干源的两种带间跃迁激光场的共振非线性混合. 这种频率下转换机理并不依赖于在半导体激活媒质中的长时相干假定条件, 在室温和泵注入电流条件下仍然有效. 频率下转换的固有效率可以达到相当于每个可见光子产生一个红外光子的量子极限值. 根据红外发射的可参变特性, 这种非粒子反转的方法尤其适用于长波红外工作范围.

关键词: 半导体异质结, 量子相干, 红外发射, 非线性混合

PACC: 4250, 4255P, 4265K

1. 引 言

低维半导体异质结空间量子化产生的电子能级之间跃迁的波长能够很容易地控制在几个到几百个微米之间, 这使注入光泵的制作成为可能. 因此低维半导体异质结几乎可以理想地应用于中红外线和远红外线的发射. 但是有一个主要问题是由于存在随远红外波长增加而愈加重要的自由载流子吸收和衍射, 所以红外场会产生很强的非共振损失, 因为激发态寿命非常短暂, 所以保持为了克服损失所必需的子能带间跃迁高增益和足够大的粒子数反转是非常困难的. 为了解决这一问题, 有很多快速耗尽低能级激光发射态上粒子数的办法, 例如, 通过发射声子, 粒子(电子或空穴)共振随穿到邻近半导体层或跃迁到较低子带能级^[1-3], 甚至产生带间复合^[4,5]. 此问题的最新进展请参见文献[6, 7]. 这些研究最成功的一点就是实现了雪崩量子激光器^[1,8]. 在这种激光器中, 低能级激光发射态的粒子数减少是通过超晶格的隧道效应或者跃迁到更低能级来实现的, 这些更低的能级与低能级激光发射态的能量差和长波光学波(LO)声子的能量

相近^[9].

这里我们提出了另一种非粒子反转的带内跃迁红外激光发射的可能性. 这种红外发射机理需要在同时发生的带间跃迁产生的激光场的帮助下才能实现. 这种激光场是频率下转换到红外波段的相干源. 利用自生激光场可以实现注入电流泵并且可以克服与外场驱动相关的问题(光束叠加, 源吸收, 空间不均匀性), 这些问题是半导体中下转换机理所固有的^[6]. 另外, 与子带间跃迁近似共振的非线性波混合(mixing)得到了极大地增强. 我们知道共振太赫波的产生可以通过外部激光场的非线性混合在 GaAs/AlGaAs 量子阱中得以实现^[10]. 同时, 对于自生驱动光场的相干作用产生的红外场, 共振单光子吸收还可以得到消除^[11]. 包括以上特性的诸多光电子过程组成了一个涵盖多种物理效应和前景应用的重要研究领域. 这里我们只考虑半导体异质结构中自生光场的非线性混合和红外发射过程. 为了避免误解, 我们要注意到本文讨论的红外发射机理不同于用共振随穿和法诺(Fano)类型干涉来建立子带间跃迁强相干性的方法^[12]. 这些量子干涉的概念一般是指带内跃迁的长时相干, 而我们的方法并不要求较长的移相时间. 这里我们主要注重

^{*} 国家自然科学基金(批准号:50502014, 50972032), 国家高技术研究发展计划(批准号:2009AA03Z407)资助的课题.

[†] E-mail: kingstel@163.com

的是可以极大增强与带间跃迁近似共振的非线性波混合现象.

我们这里讨论的机理和最近报道的在三耦合量子阱中共振四波混合产生的高效相干红外发射具有一些相同的特性^[13]. 另外,在两个共振外光场的作用下产生的不同频率的相干微波发射也已经被观察到^[14]. Korsunsky 等^[15]曾提出用与 Vanier 等^[14]相同的方法来产生太兆赫波发射.

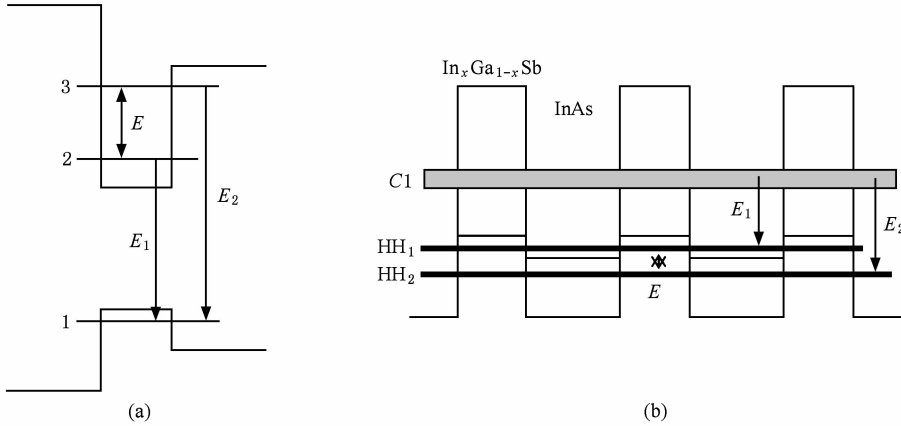


图 1 三能级发射的分类能级示意图(相邻的两个带间跃迁 $2 \rightarrow 1$ 和 $3 \rightarrow 1$ 的激光场 E_1 和 E_2 产生相干红外场 E) (a) 非对称量子阱; (b) 二类 $\text{InAs}/\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{Sb}$ 超晶格

我们在半导体工作区中运用简化的自由电子模型,其中描述电子-电子和电子-声子散射的碰撞积分被唯象的弛豫和抽运速度项所代替. 但是在计算带间和子带间跃迁的电子波函数,能级以及偶极矩时,我们全方面考虑了半导体的能带结构. 为此,我们还运用了包络函数近似下的八带 $k \cdot p$ 模型^[16-18],并且考虑了各能带(导带,重空穴,轻空穴和自旋分裂带)之间的混合(耦合)作用来计算能带结构. 偶极矩的计算值用来对红外发射强度进行数值估算. 模型中的方程和对主要近似的进一步细节讨论将在第三节中进行. 我们要求三能级中的所有跃迁都能被量子力学的选择定则所允许. 在量子阱(QW)中,一般就要利用非对称性结构,例如,具有不同势垒高度的方阱. 例如在 $\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}/\text{GaAs}/\text{Al}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{As}$ 8 nm 宽的量子阱中,通过相隔 100 meV (12 μm) 的两个最低导带子带 (C_1-C_2) 之间跃迁以及两个最低重空穴子带 (HH_1-HH_2) 之间跃迁 (70 μm) 都能够产生可参变的红外发射. 另外,在一些二类超晶格当中,各子带之间的较强的混合(mixing)作用,使得各同类子带之间的偶极矩不为零. 例如 $\text{InAs}(10 \text{ ML})/\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{Sb}(10 \text{ ML})$ (ML 表

2. 三能级跃迁机理

我们考虑最简单的情形,在发射过程只有空间量子限制产生的三个能级参与:一个重空穴能级(最低能级)和两个电子能级(如图 1(a)所示),或一个电子能级和两个空穴能级(如图 1(b)所示).

示分子单层)超晶格(SL)当中,子带间跃迁 $C_1-\text{HH}_1$ 和 HH_1-HH_2 都能够产生红外发射,并且可通过改变超晶格参数(各层厚度, $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{Sb}$ 合金层的合金含量 x)来控制所发射的红外波长(在中远红外波段)^[19,20]. 我们的计算结果表明使用具有中间半透明势垒的非对称双量子阱以及二类超晶格结构对于产生红外激光发射非常有利. 两种跃迁(量子阱的 $C_1-\text{HH}_1$ 和 $C_2-\text{HH}_1$, 二类超晶格的 $C_1-\text{HH}_1$ 和 $C_1-\text{HH}_2$)偶极矩的比率在很大的参数范围内约为 3. 非对称的 QWs 和二类超晶格结构还能够被用于强直流电场偏置或重空穴子带和轻空穴子带之间强耦合的条件下. $\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}/\text{GaAs}(5-8 \text{ nm})/\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}$ QW 和 $\text{InAs}(12 \text{ ML})/\text{In}_{0.1}\text{Ga}_{0.9}\text{Sb}(12 \text{ ML})$ SL 就是典型的例子,它们的第二重空穴子带 HH_2 和第一轻空穴子带 LH_1 在 Γ 点非常接近,因此存在强烈的耦合. 这种情况下,两个干涉光场分别来源于 $C_1-\text{HH}_1$ 和 $C_1-\text{LH}_1$ 跃迁,而红外场则由 $C_1-\text{HH}_2$ 跃迁产生.

还有一种备受关注的结构就是量子点(QD),例如在自组装 InAs/GaAs 量子点中,能产生所有三种跃迁的三能级结构很容易实现^[21,22].

当注入电流密度达到阈值 J_{th} 的时候, 基态电子和空穴的复合跃迁开始产生光发射. 当抽运电流增加时, 还能够由激发态产生光发射, 并且由于激发态的能态密度更高, 具有更高的最大增益, 激光器可以完全转换到激发态的激光发射. 已经有人对 QW 和 QD 激光器中的激发态激光发射进行了研究^[6,23,24]. 研究发现通过优化激光器参数, 基态和激发态同时发射激光的区域能够达到约 $J_{th} - 2J_{th}^{[23,24]}$. 为了得到足够宽的双波激光发射区域 ($\Delta J \sim (0.1 - 0.2)J_{th}$), 两个波长的增益要比较接近.

在激光腔中提供一个或两个强光驱动场会引发许多种共振耦合机理, 红外场就是由这种机理而产生的. 这里我们集中考虑的就是这样的一种机理, 两种频率分别为 ω_1 和 ω_2 的相干光场将产生激发频率为频差 $\omega_1 - \omega_2$ 的感应电子振荡. 尤其要注意的是, 激发相干红外光偏振是随参数变化的, 但是与红外跃迁的两个能级上的粒子数差值的符号无关. 产生的输出红外辐射强度依赖于红外偏振和空腔谐振模的耦合系数. 显然, 偏振波的纵波波数 k_x 等于两个光场纵波波数差 $k_{1x} - k_{2x}$. 因此只有具有以上波数的波模才能够得到有效的激发(相匹配条件). 当这种波模的频率等于两个光场的频差时, 场的强度达到最大. 这就要求对波导进行特殊设计, 因为半导体材料对可见光和红外波的折射系数是不同的. 而对于远红外发射, 通过少量掺杂就可以实现对折射系数的有效控制, 这使得设计更加方便和灵活.

3. 基本模型

为了量化以上所讨论的物理机理, 通过定态求解三个场的耦合电子密度矩阵方程组和电磁场麦克斯韦方程, 计算了激发的红外偏振和红外场. 可以很方便地将所有的场展开成一个空腔谐振模的正规组 F_α 并且引入缓慢变化的场和偏振的复振幅. 例如, 对于 $3 \rightarrow 2$ 跃迁产生的红外场, 可以写成

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \sum_{\alpha} \frac{1}{2} \varepsilon_{\alpha}(t) \mathbf{F}_{\alpha}(\mathbf{r}) \exp(-i\omega t) + c. c. \quad (1)$$

假定波模在 x 传播方向上简单地依从于 $\exp(\pm ik_x x)$, 其中, 折射系数 $\mu = k_x c / \omega$, 而横向结构由具体的波导来确定.

在引入拉贝 (Rabi) 复频率 $e(t) = dE(t)/2\hbar$ 以后, 波模的场方程可以写成

$$\begin{aligned} & \frac{de}{dt} + [\kappa + i(\omega_c - \omega)] e \\ & = \frac{2\pi i \omega d^2 N}{\hbar \mu^2} \int_{V_c} \sum_j \sigma_{32}^j F(\mathbf{r}) d^3 r, \end{aligned} \quad (2)$$

其中, d 是红外跃迁的偶极矩, N 为作用区中总的电子态体密度, ω_{32} 是 $3 \rightarrow 2$ 跃迁的中心频率, ω_c 为某一 k_x 下红外空腔谐振模的频率, κ 和 V_c 分别是谐振腔的损失和体积. 变量 σ_{32}^j 是密度矩阵元 ρ_{32}^j 的缓变幅度, 指数 j 标示着对非均匀展宽线有贡献的不同电子态. 对于 QD 系统, j 只是标示着不同的量子点. 而在 QW 系统中, j 则标示不同平行准动量 \mathbf{k}_{\parallel} 的电子态, \mathbf{k}_{\parallel} 与量子阱或超晶格的层平面 (x - y 平面) 平行. 我们只考虑准动量 \mathbf{k}_{\parallel} 守恒的跃迁.

用同样的方程来表述具有相应参数 μ , d , ω , ω_c , κ , k_x , g 和标识 1 或 2 的两个光场 $\mathbf{E}_{1,2}$:

$$\begin{aligned} & \frac{de_1}{dt} + [\kappa_1 + i(\omega_{c1} - \omega_1)] e_1 \\ & = \frac{2\pi i \omega_1 d_1^2 N}{\hbar \mu_1^2} \int_{V_c} \sum_j \sigma_{21}^j F_1(\mathbf{r}) d^3 r, \end{aligned} \quad (3)$$

$$\begin{aligned} & \frac{de_2}{dt} + [\kappa_2 + i(\omega_{c2} - \omega_2)] e_2 \\ & = \frac{2\pi i \omega_2 d_2^2 N}{\hbar \mu_2^2} \int_{V_c} \sum_j \sigma_{31}^j F_2(\mathbf{r}) d^3 r. \end{aligned} \quad (4)$$

我们注意到对于可参变的激发红外场, 光场可以有任意的偏振方向. 特别是在 QW 激光器中, 红外场是典型的 z 方向偏振的, 而光场是优先在 y 方向偏振的.

变量 σ_{ik} 和粒子数差 $n_{ik} = \rho_{ii} \hbar \rho_{kk}$ ($i, k = 1, 2, 3$) 由包含弛豫和抽运的唯象速度的密度矩阵方程组得到

$$\begin{aligned} & \frac{d\sigma_{21}}{dt} + \Omega_{21} \sigma_{21} = ie_1 n_{12} - ie_2 \sigma_{32}^* + ie^* \sigma_{31}, \\ & \frac{d\sigma_{31}}{dt} + \Omega_{31} \sigma_{31} = ie_2 n_{13} - ie_1 \sigma_{32} + ie \sigma_{21}, \\ & \frac{d\sigma_{32}}{dt} + \Omega_{32} \sigma_{32} = ie n_{23} - ie_1^* \sigma_{31} + ie_2 \sigma_{21}^*, \end{aligned} \quad (5)$$

其中

$$\begin{aligned} \Omega_{21} &= \gamma_{21} + i(\omega_{21} + \delta_j - \omega_1), \\ \Omega_{31} &= \gamma_{31} + i(\omega_{31} + \delta_j - \omega_2), \\ \Omega_{32} &= \gamma_{32} + i(\omega_{32} + \delta_j - \omega_2 + \omega_1), \end{aligned} \quad (6)$$

其中, 为了简化方程, 所有 σ 和 Ω 的标识 j 都被省略. 物理量 δ_j 为第 j 个态的跃迁频率与中心频率 ω_{21} , ω_{31} , 或 ω_{32} 之差. 粒子数差 $n_{ik} = \rho_{ii} - \rho_{kk}$ 由方程 (2) — (6) 和 ρ_{ii} ($i, k = 1, 2, 3$) 的三个方程以及下面

要给出的粒子数弛豫和抽运的唯象速度同时确定.

我们知道,这是对 k 空间中载流子多体 (many-body) 动力学的一种非常简化的描述. 因为所有的散射过程都被并入到与 k 无关的唯象弛豫速度的描述当中. 在这里把半导体的工作区基本上当作一个有效的三能级作用区,载流子在 k 空间的分布和一些可能的结构缺陷会在这个区域中导致非均匀展宽. 同时,通过完整的考察半导体的能带结构,我们研究了光跃迁的能级,波函数和偶极矩. 我们运用了包络函数近似下的八带 $k \cdot p$ 模型^[16-18],包括四个能带(导带,重空穴,轻空穴和自旋分裂带)之间在 Γ 点的混合(耦合)作用. 这种比较完整的半导体电子结构能够充分的表征电磁场和电子-空穴振子之间的共振相互作用,并且合理的展现动态激光发射的基本参数,例如,阈值抽运,激光发射输出强度等^[25]. 这也是我们要用这种模型来进行半导体激光动力学计算的原因. 当然这种模型不能够描述与多体作用相关的特性,例如,一些观察到的积聚激发发射,禁带重整 (renormalization) 等. 为了描述热平衡时间(100 fs)尺度下的瞬时过程,必须对载流子输运进行相对论处理. 对于 QW 激光器,自发带间和子带间跃迁以及泵注入的速度一般比子带内散射的速度小得多. 子带内散射使得子带上的粒子趋于准热平衡状态. 因此,我们可以把粒子数的唯象速度方程表示如下^[25]:

$$\begin{aligned} \frac{d\rho_{11}}{dt} + r_1(\rho_{11} - \bar{\rho}_{11}) &= -2\text{Im}[e_1^* \sigma_{21}] \\ &\quad - 2\text{Im}[e_2^* \sigma_{31}], \\ \frac{d\rho_{22}}{dt} + r_2(\rho_{22} - \bar{\rho}_{22}) &= 2\text{Im}[e_1^* \sigma_{21}], \\ \frac{d\rho_{33}}{dt} + r_3(\rho_{33} - \bar{\rho}_{33}) &= 2\text{Im}[e_2^* \sigma_{31}], \end{aligned} \quad (7)$$

其中, r_i ($i=1,2,3$) 是子带内散射率, ρ_{ii} (δ_j) 为无强激光场环境下的泵入粒子数分布. 预计它们非常接近于费米-狄拉克分布,其费米能级由抽运和自发跃迁之间的平衡来确定. 强烈的激光场使能量分布较窄和较宽的空穴和电子的热能迅速增加. 但是,通过散射,空穴态会迅速地被邻近分布的空穴所重新填充. 这种产生光谱带宽的“泵”(子带内热散射)的速度要比维持总的电子分布的外部注入泵快得多. 对于自组装量子点激光器,束缚在量子点中的载流子和二维润湿层中的自由电子之间的相互作用问题仍然存在着争论. 在最简单的情况下,我们把量子点考虑成类似单原子系统,对于第 j 个量子

点,表示方程如下:

$$\begin{aligned} \frac{d\rho_{11}}{dt} &= -2\text{Im}[e_1^* \sigma_{21}] - 2\text{Im}[e_2^* \sigma_{31}] \\ &\quad + r_{21}\rho_{22} + r_{31}\rho_{33} - R_1\rho_{11}, \\ \frac{d\rho_{22}}{dt} &= 2\text{Im}[e_1^* \sigma_{21}] + r_{32}\rho_{33} - r_{21}\rho_{22}, \\ \frac{d\rho_{33}}{dt} &= 2\text{Im}[e_2^* \sigma_{31}] + R - (r_{31} + r_{32})\rho_{33}, \end{aligned} \quad (8)$$

其中, r_{ik} 是 $i \rightarrow k$ 跃迁的弛豫速度, R 为泵入能级 3 的速率, R_1 为电子从能级 1 移出的速率. 为了简化,我们假定用相同的注入速度双极注入电子和空穴到能级 3 和 1,所以总的粒子密度保持不变. 要注意这里要求 $R = R_{1\rho_{11}}$.

我们可以直接得到方程组(2)-(7)或方程组(2)-(6)和(8)的定态解. 如果红外场的拉贝频率比 γ_{ik} 小得多,就可以只保留对 e 的零级和一级项,从而得到红外跃迁的感应极化

$$\sigma_{32}(v_j) \approx \frac{e_2 e_1^*}{\tilde{\Omega}_{32}} \left(\frac{n_{12}}{\Omega_{21}^*} + \frac{n_{13}}{\Omega_{31}} \right) + eF(v_j), \quad (9)$$

其中

$$\begin{aligned} \tilde{\Omega}_{32} &= \Omega_{32} + \frac{|e_1|^2}{\Omega_{31}} + \frac{|e_2|^2}{\Omega_{21}^*}, \\ F(v_j) &= \frac{in_{23}}{\tilde{\Omega}_{32}} + \frac{i|e_1|^2 n_{12}}{\Omega_{21} \Omega_{31} \tilde{\Omega}_{32}} - \frac{i|e_2|^2 n_{13}}{\Omega_{21}^* \Omega_{31}^* \tilde{\Omega}_{32}} \\ &\quad + \frac{i|e_1|^2 |e_2|^2}{|\tilde{\Omega}_{32}|^2} \left(\frac{1}{\Omega_{21}^* \Omega_{31}^*} - \frac{1}{\Omega_{21} \Omega_{31}} \right) \\ &\quad \times \left(\frac{n_{13}}{\Omega_{31}^*} + \frac{n_{12}}{\Omega_{21}} \right). \end{aligned} \quad (11)$$

红外偏振的表达式(9)中包含两种不同来源的贡献. 前面的两项不和 e 成正比,描述了两个强光场混合产生的偏振. 后面的一项与红外场 e 成正比,由表达式(11)表示. 方程(11)尽管比较长,但是其物理意义却非常清楚. 方程(11)中第一项表示的是正比于红外跃迁粒子数差 n_{23} 的单光子共振吸收;第二项来自于方程(5)中的乘积 $e_1^* \sigma_{31}$,表达了光场 e_1 和偏振 σ_{31} 的混合,其中偏振 σ_{31} 由一个双光子项激发 $\sigma_{31} \propto e \sigma_{21} \propto ee_1 n_{12}$. 这种激发 σ_{32} 相干的方式相当于我们熟知的非粒子反转激光发射的“阶梯型式”^[11];第三项来自于乘积 $e_2 \sigma_{21}^*$,表示两个光频振荡的混合作用. 这里的偏振 σ_{21}^* 由正比于 $e \sigma_{31}^*$ 的拉曼双光子项激发,而 $\sigma_{31}^* \propto e_2^* n_{13}$,结果,对红外偏振的贡献与 $|e_2|^2 n_{13}$ 成正比,相当于“ Λ 型式”^[11].

方程(11)中的其余各项则表示更高阶的多光子过程,在存在两个强光场的条件下不可忽略. 例如,正比于 $|e_1|^2|e_2|^2n_{13}$ 的项部分来自于乘积 $e_1^* \sigma_{31}$,而其中 $\sigma_{31} \propto ee\sigma_{32}^*$ 和 $\sigma_{32}^* \propto e_1e_2^* n_{13}$ 来源于两个强光场的混合. 其他几项的来源可以较容易的用同样方法找到. 红外场的大小可以表示为

$$e \simeq \frac{ig^2e_1^*e_2}{\kappa + \tilde{\kappa}} \sum_j \left(\frac{n_{12}(v_j)}{\Omega_{21}^* \tilde{\Omega}_{32}} + \frac{n_{13}(v_j)}{\Omega_{31} \tilde{\Omega}_{32}} \right), \quad (12)$$

其中

$$g^2 = \frac{2\pi\omega d^2 NG}{\hbar\mu^2}$$

是红外场和偏振的耦合系数,而

$$\tilde{\kappa} = -ig^2 \sum_j F(v_j) \quad (13)$$

描述的是对红外场的线性磁化率. 这里的 G 是红外场的光限制因子,用来量度模场分布与工作区的重叠程度.

(12)式中,假定对于特定的空腔振动模严格共振 $\omega_c = \omega_3 - \omega_2$ 的波数为 $k_x \approx k_{2x} - k_{1x}$. 另外,要将 κ 替换为 $i(\omega_c - \omega) + \kappa$.

将 σ_{21} 和 σ_{31} 的表达式代入以后,可以由方程式(7)或(8)得到粒子数差 n_{12} 和 n_{13} . 推出的 n_{12} 和 n_{13} 是 δ_j 和 $e_{1,2}$ 的函数,其表达式在由方程(7)和(8)所描述的模型中具有相同的通式. 这是因为描述受激跃迁式子在两种情况下都相同. 因此,我们明确地要用方程组所描述的“QW类”模型.

根据方程式(11)的讨论,物理量 $\text{Re } \kappa^-$ 包含由方程式(11)得到的 $F(v)$,代表两个强光场下的共振红外吸收损失. 其值在非粒子反转下可以为负. 这说明确实有非粒子反转的激光发射的可能性:弱自发红外场的指数放大. 与随参数变化的非线性过程不同,这种过程甚至可以在只有一个光场的条件下发生. 这种情况下,存在一种“经典”的阶梯类(L类)型式非粒子反转激光发射^[11,26]. 但是,其驱动场不是由外部施加的,而是在激活媒质中自己产生. 半导体中自生驱动场的非粒子反转激光发射的研究在其他文献中也有所报道^[26,27]. 本文中,为了和红外波段的非共振损失相比较,忽略自生驱动场的可能性和方程式(12)中的相关项 $|\tilde{\kappa}|$. 一般情况下,这样的问题应该通过数值计算加以解决,不过可以对在一些限制条件下的实际激光器参数可以进行有意义的简化,这就能够获得红外强度依赖于主要参数的表达式(参见第四节).

4. 红外发射频率

在本节,估算在两个强激光场的作用下产生的红外场强度. 首先说明一下输入到以上这些方程中的典型参数值. 我们设定, $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ 量子阱和 InAs 自组装量子点生长在 GaAs 或 $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ 衬底上, $\text{InAs}/\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{Sb}$ 超晶格则生长在 GaSb 衬底上. 典型的红外跃迁偶极矩的值 d 为1—3 nm,而光跃迁的值为(0.3—1) nm^[6,22]. 室温下,光和红外线偏振的弛豫速度 γ_{ik} 在QW和SL激光器中为5—10 meV(弛豫时间 ≤ 0.1 ps)^[25,28],而在自组装QD激光器中则要低好几倍(弛豫时间 ~ 1 ps). 在红外谱范围内,共振腔损失主要来源于自由载流子的吸收. 在载流子密度达到激发态激光发射所必需的高密度 $N \geq 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ 时,体材料激活媒质的材料损失在 $\lambda \approx 6 \mu\text{m}$ 处约为 100 cm^{-1} 数量级,并根据主要散射机理的不同,随 λ^2 或 λ^3 增大^[29]. 尽管厚包覆层中的掺杂浓度相对较小,约为 $4 \times 10^{16} - 4 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$,但是因为重叠因子非常大 $G \sim 1$,会产生重要的损失. 大损失是所有与半导体自由载流子相关的远红外激光发射型式的主要问题. 但是,要注意的是,损失增大并不是当今可参变红外激光发射型式的主要限制,因为它并没有禁止发射而只是降低了红外场的强度. 这种远红外发射的可能性是所提出发射机理的一个主要优点. 另外,在QD激光器中,由于态填充作用和较低的激活媒质固有损失,可在较低载流子密度的条件下获得激发态激光发射.

4.1. 谱线均匀展宽

谱线均匀展宽主要存在于高质量的量子阱,超晶格和量子点中. QW和SL中的非均匀展宽主要原因是生长缺陷导致的界面粗糙,外延层厚和势垒波动. 对于自组装量子点来说,现有结构中存在着由量子点尺寸散布造成的较大非均匀展宽 ≥ 20 meV,这明显比均匀线宽大得多.

对于定态条件下的纯均匀展宽,在共振频率 $\omega_1 = \omega_{21}$ 和 $\omega_2 = \omega_{31}$ 处的密度矩阵方程以及场 $e_{1,2}$ 的波方程为

$$\begin{aligned} \frac{\kappa_1}{g_1^2} &= -\frac{n_{12}}{\gamma_{21}} + \frac{|e_2|^2}{\gamma_{21}\tilde{\gamma}_{32}} \left(\frac{n_{13}}{\gamma_{31}} + \frac{n_{12}}{\gamma_{21}} \right), \\ \frac{\kappa_2}{g_2^2} &= -\frac{n_{13}}{\gamma_{31}} + \frac{|e_1|^2}{\gamma_{21}\tilde{\gamma}_{32}} \left(\frac{n_{13}}{\gamma_{31}} + \frac{n_{12}}{\gamma_{21}} \right), \end{aligned} \quad (14)$$

其中

$$\begin{aligned}\tilde{\gamma}_{32} &= \gamma_{32} + |e_1|^2/\gamma_{31} + |e_2|^2/\gamma_{21}, \\ g_1^2 &= \frac{2\pi\omega_1 d_1^2 N G_1}{\hbar\mu_1^2}, \\ g_2^2 &= \frac{2\pi\omega_2 d_2^2 N G_2}{\hbar\mu_2^2}.\end{aligned}$$

将粒子数差的表达式代入到方程(12),就得到

$$|e| \approx \frac{|e_1||e_2|}{\gamma_{32}} \left(\frac{\omega d^2 \kappa_1 G}{\omega_1 d_1^2 G_1 \kappa} + \frac{\omega d^2 \kappa_2 G}{\omega_2 d_2^2 G_2 \kappa} \right), \quad (15)$$

或者,根据场的强度

$$\begin{aligned}|E|^2 &\approx |E_1|^2 \frac{|E_2|^2}{|E_2|_s^2} \left(\frac{d\omega\kappa_1 G}{d_1\omega_1 G_1 \kappa} \right)^2 \\ &+ |E_2|^2 \frac{|E_1|^2}{|E_1|_s^2} \left(\frac{d\omega\kappa_2 G}{d_2\omega_2 G_2 \kappa} \right)^2,\end{aligned} \quad (16)$$

其中,我们引入了量 $|E_{1,2}|_s^2$,其定义如下:

$$|E_{1,2}|_s^2 \equiv \left(\frac{\hbar\gamma_{32}}{d_{1,2}} \right)^2. \quad (17)$$

如果我们假设方程组(6)中的所有 γ_{ik} 都相同,并且和参加激光发射的载流子寿命的倒数处于同一数量级,方程(17)则表示饱和强度.在量子阱和超晶格中产生某一波模的载流子注入由极化弛豫的散射过程所确定,这看起来似乎是正确的.而对量子点来说,弛豫机理有很多种并且有待于进一步研究^[30-32].对于某一确定的波长,方程式(15)中决定下转换效率的重要参数是 $\eta = (\kappa_{1,2}/G_{1,2})(G/\kappa)$.红外损失的主要来源是自由载流子的吸收.对光场而言,比率 $\kappa_{1,2}/G_{1,2}$ 与光跃迁的材料增益相同,在量子阱中约在 10^3 cm^{-1} 数量级,在量子点中约在 10^4 cm^{-1} 数量级,而超晶格中比率则在前两者之间.因此,即使是材料的红外损失高到 $10^3-10^4 \text{ cm}^{-1}$ 的数量级,参数 η 仍然能够接近于1.正如我们已经提到过的,掺杂包覆层中的吸收会主导红外损失.通过我们的详细计算,分离限制红外($\lambda = 8 \text{ }\mu\text{m}$)和光模($\lambda = 0.73$ 和 $\lambda = 0.8 \text{ }\mu\text{m}$)的GaAs(GaSb)基结构中的 η 值约为0.5—0.8(0.1—0.4).因为 κ 和 G 分别随波长的增大而增加和减小,所以 η 随着波长的增大而减小.例如,在量子雪崩激光器中,17 μm 波长处的测量值 $2\kappa \approx 150 \text{ cm}^{-1}$.如果 $2\kappa_1/G_1 \approx 1500 \text{ cm}^{-1}$,那么在 $G \sim 0.01$ 时,得到 $\eta \sim 0.1$.

4.2. 谱线非均匀展宽

这里我们假设非均匀宽度比 u_{ik} 比均匀带宽 γ_{ik} 大很多,而且比严格共振激光场在非均匀展宽线中

心为 $\omega_1 = \omega_{21}$ 和 $\omega_2 = \omega_{31}$ 时的拉贝频率也要大得多.我们考察两种不同的情况,建立了清晰的公式:1)光场强度远小于饱和值;2)光场强度远大于饱和值.在1)情况下,粒子数具有与无产生场的泵维持下相似的谱分布.当 $u_{ik} \gg \gamma_{ik}$ 时,非均匀谱线的精确形状并不重要,对于红外场可简单表示为

$$|e| \approx \frac{2|e_1||e_2|}{(\gamma_{21} + \gamma_{32})} \frac{u_{21}\omega d^2 \kappa_1 G}{u_{32}\omega_1 d_1^2 \kappa G_1}, \quad (18)$$

或者写成场强的形式

$$|E|^2 \approx |E_1|^2 \frac{|E_2|^2}{|E_2|_s^2} \left(\frac{2\gamma_{32}}{\gamma_{32} + \gamma_{21}} \frac{d\omega u_{21} \kappa_1 G}{d_1 \omega_1 u_{32} \kappa G_1} \right)^2, \quad (19)$$

其中 $|E_2|_s^2 = \hbar^2 \gamma_{32}^2 / d_2^2$.方程式(18)与方程式(15)相似,除了非均匀线宽的比率预计接近于1.可以看到,与均匀展宽跃迁相比红外线与光的强度比并没有多少改变,但是阈限条件当然会改变,所以注入电流值会大很多.在2)情况下的粒子分布中,在一空穴窄谱分布区光场模的谱位得到强激发.量子点激光器或大功率多量子阱激光器就是这种情况.为了简化计算,我们假设两个光场的拉贝频率绝对值相等, $|e_1| = |e_2|$,所有 γ_{ik} 和 γ_i 与 γ 由相同的值,并且 $u_{21} = u_{31} = u$.

即便是进行了所有的这些简化,粒子数差的通解还是非常繁琐:

$$\begin{aligned}n_{12} + n_{13} &= [A(\bar{\rho}_{12} + \bar{\rho}_{13}) + 12\gamma\delta^2 |e_1|^4 |\Omega|^2 \\ &\times (\bar{\rho}_{12} - \bar{\rho}_{13})] |\tilde{\Omega}|^2 |\Omega|^6 / D,\end{aligned} \quad (20)$$

$$\begin{aligned}n_{12} - n_{13} &= [B(\bar{\rho}_{12} - \bar{\rho}_{13}) + 4\gamma\delta^2 |e_1|^4 |\Omega|^2 \\ &\times (\bar{\rho}_{12} + \bar{\rho}_{13})] |\tilde{\Omega}|^2 |\Omega|^6 / D,\end{aligned} \quad (21)$$

其中

$$A = |\tilde{\Omega}|^2 |\Omega|^6 + 2|e_1|^2 |\tilde{\Omega}|^2 |\Omega|^4 + 4\delta^2 |e_1|^4 |\Omega|^2 + 8\delta^2 |e_1|^6,$$

$$B = |\tilde{\Omega}|^2 |\Omega|^6 + 6|e_1|^2 |\tilde{\Omega}|^2 |\Omega|^4 + 12\gamma^2 |e_1|^4 (|\Omega|^2 + 2|e_1|^2),$$

$$D = AB - 3(2\delta|\Omega||e_1|^2)^4,$$

$$|\Omega|^2 = \gamma^2 + \delta^2,$$

$$|\tilde{\Omega}|^2 = \delta^2 + \gamma^2(1 + 2|e_1|^2/|\Omega|^2)^2.$$

表达式(20)和(21)必须要被代入方程(3),(4)和(12)中.我们将被积函数展开成参量 $\gamma/|e_1| \ll 1$ 的

幂级数并且保留主要的非零项,那么就只剩下很多包含不同 δ 多项式的分式的积分. 对所有参数的函数关系可以由积分的变量代换得出,然后对积分进行数值计算,给出各项前面的数值因子. 许多积分互相抵消,而且只有来自于偶极矩值为 $\delta \sim i|e_1|$ 的项保留下来. 空穴的色散谱宽度预计将在 $|e_1|$ 的数量级. 将所有余下的项相加并且保留数值系数到一位有效数字,我们得到了出奇简单的结果

$$|e| \approx \frac{u|e_1||e_2|}{\gamma u_{32}} \left| 0.9 \frac{g^2 \kappa_1}{g_1^2 \kappa} - 0.1 \frac{g^2 \kappa_2}{g_2^2 \kappa} \right|. \quad (22)$$

理论上说,如果在频率 ω_2 时的损失比频率 ω_1 大很多,方程(22)中的两项就能够互相抵消(需要考虑对 $\gamma/|e_1|$ 展开式中的其他项). 然而,这种情况只在抽运对 $3 \rightarrow 2$ 跃迁提供粒子反转时才会发生. 由抽运下但无发射时的 $3 \rightarrow 2$ 跃迁中心处粒子数差的表达式,可以清楚地看到这一点,

$$\bar{\rho}_{23}(\delta = 0) \approx \frac{u|e_1|}{\gamma^2} \left(1.5 \frac{\kappa_1}{g_1^2} - 1.1 \frac{\kappa_2}{g_2^2} \right). \quad (23)$$

对于基态子带与较高子带之间的跃迁,在适度的抽运速度下粒子反转不一定能得以实现.

用来推导方程(9)的必要条件 $e < \gamma$ 一定意味着渐近方程(22)中 $|e| \ll |e_1|$, 因为方程(22)是在极限 $|e_1| \gg \gamma$ 条件下得到的.

由表达式(16),(19),(22)能够预知红外强度正比例地随光场强度乘积急速增长. 当然,这种趋势只能保持在红外强度达到饱和值之前. 当红外场强度大于饱和值时,红外场开始耗尽电子数,并且成非线性饱和增长. 在最优条件下,下转换的内部效率能够达到相当于一个可见光子产生一个红外

光子的极限量子值. 在中红外波段(5—10 μm),如果我们取红外损失的值为 100 cm^{-1} ,最大红外功率为 10 mW 的数量级. 这里假设激光器参数为 $\eta \sim 0.1$ (参见方程(15)后面的讨论). 在强声子色散($\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ 结构中 $\lambda \geq 50 \mu\text{m}$)的剩余射线区以外,由于损失的快速增大,红外功率预计为 $\leq 1 \text{ mW}$. 然而,低损失红外波导的制造取已经取得了显著的进步,例如,文献[33]报道的波导损失在 $9.5 \mu\text{m}$ 波长已经低达 14 cm^{-1} .

5. 结 论

我们的论证和计算证实了在多量子阱,超晶格和量子点激光二极管中非线性的波混合能够产生子带间跃迁的相干红外激光发射. 这种发射的前提条件是两个光波的同时激光发射,用以提供必要的驱动场. 这种机理不需要红外跃迁的粒子数反转,而且阈值电流由产生本征带间激光发射所必需的最小注入电流来确定. 尤为重要,利用空穴子带间的跃迁,所提出的可参变发射型式还可用于远红外波段($\lambda \sim 10\text{—}100 \mu\text{m}$)的红外激光发射. 在传统的激光器中,因为很难达到激光发射的阈值,所以随波长增加的红外损失确实是一个重要问题. 而在提出的红外激光发射情况下,由于红外发射具有可参变的特性,损失的增加只会导致输出强度的减弱,并不会造成红外激光发射的彻底消失,即不会有一般激光器中低于阈值的行为.

对于实际当中的器件,目的就是要使因子 $(\kappa_{1,2}/G_{1,2})(G/\kappa)$ 最大化,而且在远红外光谱范围内,只通过对波导层的适当掺杂,便可相对较容易地控制红外波模的折射系数并提供相匹配.

[1] Faist J, Capasso F, Sivco D L, Sirtori C, Hutchinson A L, Cho A Y 1994 *Science* **264** 553
 [2] Khan-ngern S, Larkin I A 2000 *Phys. Lett. A* **266** 209
 [3] Boucaud P, Sauvage S, Houel J 2008 *C. R. Physique* **9** 840
 [4] Singh J 1996 *IEEE Photonics Technol. Lett.* **8** 488
 [5] Kisin M V, Strosio M A, Belenky G, Luryi S 2002 *Physica B* **316-317** 223
 [6] Kapon E 1999 *Semiconductor Lasers* (San Diego: Academic Press)
 [7] Li S S, Su Y K 1998 *Intersubband Transitions in Quantum Wells: Physics and Devices* (Boston: Kluwer)

[8] Sirtori C, Nagle J 2003 *C. R. Physique* **4** 639
 [9] Capasso F, Gmachl C, Tredicucci A, Hutchinson A L, Sivco D L, Cho A Y 1999 *Opt. Photonics News* **10** 33
 [10] Kono J, Su M Y, Cerne J, Sherwin M S, Allen Jr S J, Inoshita T, Noda T, Sakaki H 1998 *Nucl. Instrum. Meth. B* **144** 115
 [11] Harris S E 1989 *Phys. Rev. Lett.* **62** 1033
 Scully M O, Zhu S Y, Gavrielides A 1989 *Phys. Rev. Lett.* **62** 2813
 Scully M O, Zubairy M S 1997 *Quantum Optics* (Cambridge: Cambridge University Press)
 [12] Imamoglu A, Ram R J 1994 *Opt. Lett.* **19** 1744

- Schmidt H, Nikonov D E, Campman K L, Maranowski K D, Gossard A C, Imamoglu A 1999 *Laser Phys.* **9** 797
- [13] Hao X Y, Li J H, Yang X X 2009 *Opt. Commun.* **282** 3339
- [14] Vanier J, Godone A, Levi F 1998 *Phys. Rev. A* **58** 2345
- [15] Korsunsky E A, Kosachov D V 2000 *J. Opt. Soc. Am. B* **17** 1405
- [16] Johnson N F, Ehrenreich H, Hui P M, Young P M 1990 *Phys. Rev. B* **41** 3655
- [17] Heller E R, Fisher K, Szmulowicz F 1995 *J. Appl. Phys.* **77** 5739
- [18] Kim S H, Li S S 2003 *Physica E* **16** 199
- [19] Hales V J, Poulter A J, Nicholas R J 2000 *Physica E* **7** 84
- [20] Joullié A, Christol P 2003 *C. R. Physique* **4** 621
- [21] Mowbray D J, Harris L, Fry P W, Ashmore A D, Parnell S R, Finley J J, Skolnick M S, Hopkinson M, Hill G, Clark J 2000 *Physica E* **7** 489
- [22] Songmuang R, Kiravittaya S, Sawadsaringkarn M, Panyakeow S, Schmidt O G 2003 *J. Cryst. Growth* **251** 166
- [23] Tokuda Y, Tsukada N, Fujiwara K, Nakayama T 1986 *Appl. Phys. Lett.* **49** 1629
- [24] Chen T R, Zhuang Y, Xu Y J, Zhao B, Yariv A, Ungar J, Oh S 1992 *Appl. Phys. Lett.* **60** 2954
- [25] Chow W W, Koch S W 1999 *Semiconductor-Laser Fundamentals* (Berlin: Springer)
- [26] Joshi A, Xiao M 2006 *Prog. Opt.* **49** 97
- [27] Lukin M D, Hemmer P R, Scully M O 2000 *Adv. At. Mol. Opt. Phys.* **42** 347
- [28] Hartig M, Ganiere J D, Selbmann P E, Devaud B, Rota L 1999 *Phys. Rev. B* **60** 1500
- [29] Jensen B, Palik E D 1985 *Handbook of Optical Constants of Solids* (Orlando FL: Academic)
- [30] Heitz R, Mukhametaznov I, Born H, Grundmann M, Hoffmann A, Madhukar A, Bimberg D 1999 *Physica B* **272** 8
- [31] Fedorov A V, Baranov A V, Rukhlenko I D, Masumoto Y 2003 *Solid State Communications* **128** 219
- [32] Bogaart E W, Haverkort J E M, Mano T, Nötzel R, Wolter J H 2006 *Physica E* **32** 163
- [33] Sirtori C, Kruck P, Barbieri S, Page H, Nagle J, Beck M, Faist J, Oesterle U 1999 *Appl. Phys. Lett.* **75** 3911

Theoretical investigation of infrared generation mechanism by quantum coherence in low-dimensional semiconductor heterostructures*

Sun Wei-Feng[†] Li Mei-Cheng Zhao Lian-Cheng

(Department of Information Material Science and Technology, School of Material Science and Engineering, Harbin Institute of Technology, Harbin 150001, China)

(Received 18 November 2009; revised manuscript received 7 December 2009)

Abstract

We present an infrared generation mechanism without population inversion between subbands in quantum well and quantum dot lasers. The infrared generation scheme is based on the resonant nonlinear mixing of the two optical laser fields. These two optical fields come from two interband transitions in the same active region and serve as the coherent drive for infrared field. This mechanism of frequency down conversion should work efficiently at room temperature with injection current pumping, not relying on any *ad hoc* assumptions of long-lived coherence in the semiconductor active medium. Under optimized waveguide and cavity parameters, the intrinsic down-conversion efficiency can reach the limiting quantum value corresponding to one infrared photon generated by one optical photon. Because the proposed infrared generation is parametric, the proposed scheme without population inversion is especially promising for long-wavelength infrared operation.

Keywords: semiconductor heterostructure, quantum coherence, infrared generation, nonlinear mixing

PACC: 4250, 4255P, 4265K

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 50502014, 50972032), 863 Project (Grant No. 2009AA03Z407).

[†] E-mail: kingstel@163.com