

准抛物型多量子阱结构中光学二次谐波

詹 达 三 潘 少 华

中国科学院物理研究所, 北京, 100080

1990年2月1日收到

研究在掺杂 n-i-p-i 的抛物多量子阱结构中, 由于非简谐修正项所导致的子带间光学二次非线性响应(对应于 $\chi^{(2)}$). 计算表明, $\chi^{(2)}$ 比 GaAs 体材料高一至二个数量级, 而其共振跃迁频率位于中红外区域.

PACC: 4265K; 7890

一、引 言

交替地运用 n 和 p 型掺杂的工艺所制造的 n-i-p-i 结构, 称掺杂超晶格, 其导带(和价带)具有近似抛物型的周期势能曲线^[1](图1). 由于这种势能形状, 基态粒子所遇到的势垒显然宽于激发态. 因此, 只要适当选择材料参数, 可以使相邻量子阱的基态是彼此隔离的; 而同时却使激发态, 通过势垒穿透, 形成能带. 由于基态间彼此隔离, 即使通过掺杂

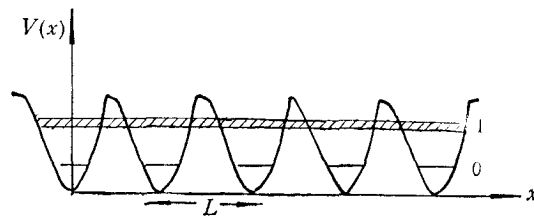


图1 准抛物多量子阱势及子能带示意图

等方法使基态布居, 在电场作用下因隧穿而渗漏的电流(暗电流)是很小的. 这是掺杂超晶格(doping superlattice)比组份超晶格(compositional superlattice)优越之处. (因为组分超晶格的导带具有近似于周期方阱的势能曲线^[2], 基态粒子所遇到的势垒同激发态的一样窄, 因此难以避免较大的暗电流.) 掺杂超晶格的这种特点对制备红外器件是有用的. 尽管掺杂超晶格的出现比组份超晶格晚得多^[3], 但由于上述优点, 近年来已有人注意研究它的光学性质, 并探讨其应用前景, 例如关于红外吸收的研究^[3]和关于在外场作用下光跃迁的研究^[4]. 但他们的研究仅限于纯抛物多量子阱中的线性吸收系数. 而实际上这种量子阱的势能曲线并非严格抛物型的, 尤其是为了某些特定的目的, 有意识地增加结构上空间反演非对称性的成份而调节 n 和 p 型掺杂的参数. 因此必须在势能中加上非抛物项, 即非简谐项. 本文的研究表明, 只要有适度的非简谐项, 准抛物多量子阱子带间光跃

迁所造成的二阶光学非线性系数 $\chi^{(2)}$, 可达到可观的数量级。子带间光跃迁所对应的波长落在中红外区域, 故可期望将准抛物多量子阱结构发展成为中红外倍频材料。

二、包络波函数与子能带

多量子阱结构和超晶格的波函数, 可视为原子晶格布洛赫函数同包络波函数^[1]之乘积, 后者来源于沿量子阱生长方向(图 1 中 x 轴)的量子限制效应和超周期性。由于这种效应, 体材料的各个布里渊区被划分成许多个微布里渊区, 对应于许多个子能带^[2]。电子在子带间的跃迁只发生在包络波函数的本征态间, 而布洛赫函数可以认为保持不变。这种量子阱包络波函数态之间的共振跃迁频率对应于中红外波长(λ 为 $10\mu\text{m}$ 附近)。这种跃迁就是本文所关心的, 产生中红外二次谐波的元过程。

众所周知, 纯抛物势 $\left(\frac{1}{2} Kx^2\right)$ 来源于弹性恢复力 $(-Kx)$, 这种线性力不能使振子与辐射场发生非线性耦合。非线性光学过程的发生(例如二次谐波的产生)依赖于非简谐力的存在。而在实际的掺杂超晶格中, 总有些非线性机制存在^[3]。而且尤为重要的是, 人们普遍称赞多量子阱制备工艺具有人工剪裁功能, 它可以灵活地设定势能形状, 以适应多种实用目的。因此应该在势能中加上非简谐项。正如非线性光学的基本文献和教程所常用的那样^[6], 用 ax^3 代表势能的非抛物项, 因为它对应于最简单的非谐性力 ($\sim x^2$), 但又足以说明非线性光学过程的一切基本特点。

正如引言中所强调的, 准抛物多量子阱中的基态是隔离的, 激发态因隧穿耦合而形成子带。为了说明二次谐波的产生的元过程以及 $\chi^{(2)}$ 的数量级, 可以像文献[3]那样采用二能带模型, 而且由于上述原因又令第一个子能带退化为一个单能级, 故实为一能级(基态)一子能带(第一激发态), 如图 1 所示。其中的子能带由单量子阱的第一激发态, 通过紧束缚方法而导出。因此首先象文献[3]那样, 求孤立单势阱的解。包括非简谐项之后, 单个准抛物量子阱的包络波函数由如下薛定谔方程给出:

$$\left(-\frac{\hbar^2}{2m^*} \frac{d^2}{dx^2} + \frac{1}{2} Kx^2 + ax^3\right) \phi(x) = E\phi(x), \quad (1)$$

式中 m^* 为电子的有效质量, 曲率 K 和非谐系数 a 应由掺杂参数^[4]控制。(1) 式的解 $\phi_n(x)$ 为简谐振子波函数 $\phi_i^{(0)}$ 的线性迭加^[7], 只需保留至 a 的一次幂, 则基态和第一激发态分别表为

$$\phi_0(x) = \phi_0^{(0)} - \frac{a}{2\alpha^3\hbar\omega_0} \left[\frac{3}{\sqrt{2}} \phi_1^{(0)}(x) + \frac{1}{\sqrt{3}} \phi_3^{(0)}(x) \right], \quad (2)$$

$$\phi_1(x) = \phi_1^{(0)} + \frac{a}{\alpha^3\hbar\omega_0} \left[\frac{3}{2\sqrt{2}} \phi_0^{(0)}(x) - 3\phi_2^{(0)}(x) - \frac{1}{\sqrt{3}} \phi_4^{(0)}(x) \right], \quad (3)$$

式中 $\omega_0 = \sqrt{K/m^*}$, $\alpha = \sqrt{m^*\omega_0/\hbar}$ 。由于能量只有二阶修正, 故若只保留至 a 的一次幂, 方程(1)所给出的能量本征值同简谐振子的能量一样, 即 $(n + 1/2)\hbar\omega_0$ 。

其次, 考虑多量子阱情况。结合包络函数近似^[8]和紧束缚方法^[9], 超晶格的波函数由下式给出:

$$\phi_n(x) = u_0 \frac{e^{i\mathbf{k}_t \cdot \mathbf{r}_t}}{\sqrt{A}} \sum_v \frac{e^{iqvL}}{\sqrt{N}} \phi_n(x - vL), \quad (4)$$

与本文有关的二个子带(子能级)本征能量则分别为

$$E_0 = \frac{\hbar^2 k_t^2}{2m^*} + \frac{1}{2} \hbar \omega_0, \quad (5)$$

$$E_1 = \hbar^2 k_t^2 / 2m^* + 3\hbar \omega_0 / 2 + 2t_1 \cos(qL), \quad (6)$$

式中 $\mathbf{k}_t$ 和 $\mathbf{r}_t$ 分别为横向(图1 yz 平面)的波矢和位矢, A 为量子阱横向截面积, u_0 为能带极值附近的体材料原胞周期函数, L 和 q 分别为超晶格周期(图1)和超晶格波矢, N 为量子阱个数, t_1 为交迭积分. 由(5)式可见, 第1子带的宽度为 $4t_1$. t_1 应为非零值, 但对一般多量子阱参数, 有 $2t_1 \ll \hbar \omega_0$ (第一激发态子能带半宽度远小于能级间隔), 故在估计 t_1 时可以忽略非谐系数 a 的影响, 采用纯抛物量子阱的交迭积分值^[3].

综上所述, 方程(1)中包含非简谐项后, 对电子态的主要影响体现在(2)和(3)式的波函数中, 进而决定超晶格的波函数(4)式, 从而使电子态间的光致跃迁, 具有截然不同的选择定则, 它体现出非线性光学过程产生的主要物理机制.

三、子带光学非线性响应

对于简谐振子, 只有相邻能级间的电偶极矩阵元 ($-ex_{n,n\pm 1}$) 不为零, 故单光子跃迁只发生在相邻能级之间. 但从非线性光学可以知道, 所有对 $\chi^{(2)}$ 有贡献的元过程都是呈闭合形式, 例如: $0 \rightarrow 1 \rightarrow 2 \rightarrow 0$, $0 \rightarrow 1 \rightarrow 1 \rightarrow 0$, $0 \rightarrow 1 \rightarrow 0 \rightarrow 0$. 对于简谐振子, $2 \rightarrow 0$, $1 \rightarrow 1$, $0 \rightarrow 0$ 等过程都是禁戒的, 闭合形式的过程都不能发生, 故 $\chi^{(2)}$ 恒为零. 而对非简谐振子的情况却不相同, 由于每个能级都是奇、偶宇称的混合态, 如(2)、(3)式所示, 闭合形式的过程都可以发生. 根据(2)、(3)式以及关于 $\phi_i^{(0)}$ 的递推公式^[7], 得二能级模型中的三个矩阵元如下(只保留至 a 一次幂):

$$x_{00} = \langle \phi_0 | x | \phi_0 \rangle = -3a/2\alpha^4 \hbar \omega_0, \quad (7)$$

$$x_{01} = x_{10} = \langle \phi_1 | x | \phi_0 \rangle = 1/\alpha \sqrt{2}, \quad (8)$$

$$x_{11} = \langle \phi_1 | x | \phi_1 \rangle = -9a/2\alpha^4 \hbar \omega_0. \quad (9)$$

在计算子带跃迁矩阵元时, 如文献[3]那样忽略不同量子阱间的波函数重迭, 则从(4)式得如下近似关系:

$$\langle \phi_{n'} | x | \phi_n \rangle \approx \langle \phi_{n'} | x | \phi_n \rangle \delta_{\mathbf{k}_t \mathbf{k}_t'} \delta_{qq'}. \quad (10)$$

上式等号右端的二个 δ 函数来自以下的物理关系: $K \ll k_t$ 和 $K \ll q$ (这里 K 为红外光子波数), 因为 $K \sim 1/\lambda$, $k_t \sim 1/a_0$, $q \sim 1/L$ ($\lambda \approx 10 \mu\text{m}$, $a_0 \approx 5 \text{\AA}$, $L \approx 100 \text{\AA}$). 因此在光致跃迁过程中, 光子动量的贡献可以忽略, 粒子动量守恒体现于如下的选择定则: $\mathbf{k}_t = \mathbf{k}_t'$ 和 $q = q'$.

运用非线性极化率公式^[6]时要包括所有 $(\mathbf{k}_t, \mathbf{k}_t')$ 和 (q, q') 态间的跃迁, 但由于(10)式的 δ 函数, $\chi^{(2)}$ 成为

$$\begin{aligned} \chi^{(2)}(2\omega) = & \frac{2}{\epsilon_0 V} \sum_{k_i} \sum_q \left(\frac{-2e^3}{\hbar^2} \right) \sum_{n'nq} \frac{1}{2\omega - \omega_{ng} + i\Gamma_{ng}} \\ & \cdot \left\{ \frac{x_{nn'} x_{n'g} x_{gn}}{\omega - \omega_{n'g} + i\Gamma_{n'g}} (\rho_{gg} - \rho_{n'n'}) \right. \\ & \left. - \frac{x_{nn'} x_{n'g} x_{gn}}{\omega - \omega_{nn'} + i\Gamma_{nn'}} (\rho_{n'n'} - \rho_{nn}) \right\}. \end{aligned} \quad (11)$$

上式中因数 2 来源于对电子自旋态求和, V 为多量子阱体积, ω 为基波频率, ϵ_0 为真空介电常数, $\omega_{ng} = (E_n - E_g)/\hbar$, ρ_{gg} 为费密分布函数, Γ_{ng} 为子带内弛豫率, 它取决于电子与声子碰撞以及电子与电子碰撞等机制, 在用半经典理论导出 $\chi^{(2)}$ 时, Γ_{ng} 是唯一地引入方程^[6], 为简单起见, 本文也像许多别的文献(例如文献[4])那样设 Γ_{ng} 与下标无关, 记为 Γ . 上式求和号下的 n', n, g 各取值 0 和 1. ω_{ng} 可为正 ($n=1, g=0$), 零 ($n=g$) 或负值 ($n=0, g=1$). 显然只有包含共振分母的项在(11)式中有较大贡献, 故只需保留这样的项, 于是(11)式化为

$$\begin{aligned} \chi^{(2)}(2\omega) = & \frac{2}{\epsilon_0 V} \sum_{k_i} \sum_q \left(\frac{2e^3}{\hbar^2} \right) \frac{(x_{11} - x_{00}) |x_{10}|^2}{\omega - \omega_0 + i\Gamma} \\ & \times \left[\frac{1}{2\omega + i\Gamma} - \frac{1}{2\omega - \omega'_0 + i\Gamma} \right] \cdot (\rho_{00} - \rho_{11}), \end{aligned} \quad (12)$$

式中 ω'_0 为子带间跃迁频率, 由(5)和(6)式得出

$$\omega'_0 = \omega'_0(q) = \omega_0 + 2t_1 \cos(qL)/\hbar. \quad (13)$$

将(7)和(9)式代入(12)式得

$$\begin{aligned} \chi^{(2)}(2\omega) = & \frac{2}{\epsilon_0 V} \sum_{k_i} \sum_q \frac{3ae^3}{\alpha^6 \hbar^3 \omega_0} \cdot \frac{1}{(\omega - \omega'_0 + i\Gamma)} \\ & \times \left[\frac{1}{2\omega - \omega'_0 + i\Gamma} - \frac{1}{2\omega + i\Gamma} \right] \cdot (\rho_{00} - \rho_{11}). \end{aligned} \quad (14)$$

上式中只有 ρ_{nn} 与 k_i 有关, 故可先将求和号求出如下 ($n=0$ 或 1):

$$\begin{aligned} \frac{2}{V} \sum_{k_i} \rho_{nn} = & \frac{1}{\pi NL} \int_0^\infty \frac{k_i dk_i}{1 + \exp[(E_n(k_i) - E_F)/k_B T]} \\ = & \frac{m^* k_B T}{\pi NL \hbar^2} \ln \{ 1 + \exp[(E_F - E_n^0)/k_B T] \}, \end{aligned} \quad (15)$$

式中 k_B 为玻耳兹曼常数, T 为绝对温度, E_F 为费密能量. $E_0(k_i)$ 和 $E_1(k_i)$ 由(5)和(6)式给出, (15)式已用了这个函数关系将积分求出, 式中 $E_n^{(0)} = E_n(k_i=0)$, ($n=0, 1$). 将(15)式代入(14)式得

$$\begin{aligned} \chi^{(2)}(2\omega) = & \frac{3ae^3}{\epsilon_0 \alpha^6 \hbar^3 \omega_0} \left(\frac{m^* k_B T}{\pi NL \hbar^2} \right) \sum_q \frac{1}{(\omega - \omega'_0 + i\Gamma)} \\ & \times \left[\frac{1}{2\omega - \omega'_0 + i\Gamma} - \frac{1}{2\omega + i\Gamma} \right] \end{aligned}$$

$$\cdot \ln \frac{\{1 + \exp[(E_F - E_0)/k_B T]\}}{\{1 + \exp[(E_F - E_0 - \hbar\omega'_0)/k_B T]\}}, \quad (16)$$

式中只有 $\omega'_0 = \omega'_0(q)$ 为 q 的函数, 由(13)式给出.

从物理上看, 仅当(16)式能量分母之一趋于 0 时, 才具有重要的实际意义, 这就是所谓的共振增强. 有两种共振频率情况, 分述如下:

1. 当 $\omega \approx \omega_0$ 时, (16)式中除 $1/(\omega - \omega'_0 + i\Gamma)$ 外的因数为 q 的缓变函数, 而且对(16)式的主要贡献来自 $\omega'_0(q) \approx \omega$ 附近, 故可让其余因子中的 $\omega'_0(q) = \omega$, 且据 $\Gamma \ll \omega$ 条件舍去其余因数中的 Γ , 于是(16)式简化为

$$\begin{aligned} \chi^{(2)}(2\omega) = & \frac{3ae^3}{\epsilon_0 \alpha^6 \hbar^3 \omega_0} \left(\frac{m^* k_B T}{\pi N L \hbar^2} \right) \frac{1}{2\omega} \ln \frac{\{1 + \exp[(E_F - E_0)/k_B T]\}}{\{1 + \exp[(E_F - E_0 + \hbar\omega)/k_B T]\}} \\ & \cdot \sum_q \frac{1}{\omega - \omega_0 - 2t_1 \cos(qL)/\hbar + i\Gamma}. \end{aligned} \quad (17)$$

2. 当 $2\omega \approx \omega_0$ 时, 除按上述精神简化式子外, 还可让非共振项 $1/(2\omega + i\Gamma)$ 为零, 于是(16)式化为

$$\begin{aligned} \chi^{(2)}(2\omega) = & \frac{3ae^3}{\epsilon_0 \alpha^6 \hbar^3 \omega_0} \left(\frac{m^* k_B T}{\pi N L \hbar^2} \right) \left(\frac{-1}{\omega} \right) \ln \frac{\{1 + \exp[(E_F - E_0)/k_B T]\}}{\{1 + \exp[(E_F - E_0 - 2\hbar\omega)/k_B T]\}} \\ & \cdot \sum_q \frac{1}{2\omega - \omega_0 - 2t_1 \cos(qL)/\hbar + i\Gamma}. \end{aligned} \quad (18)$$

将(17)式与(18)式对比可见, 以上两种情况, 在各自的共振频率附近 $\chi^{(2)}(2\omega)$ 有相同的数量级. 下面将只对实用上更重要的 $\omega \approx \omega_0$ 情况, 即(17)式作数值计算.

四、数值举例

在作数值计算时, 采用文献中常用的一些典型值, 而且对它们的出处及意义作适当说明: 超晶格周期 $L = 132 \text{ \AA}$; 振子能级间隔 $\hbar\omega_0 = 117 \text{ meV}$ (其共振跃迁波长 $\lambda = 10.6 \mu\text{m}$, 对应 CO_2 激光器的最强输出谱线); 迭加积分 $t_1 = 3 \text{ meV}$ (相当于第一激发子能带的宽度为 12 meV); 掺杂浓度 $N_D = 3 \times 10^{17} / \text{cm}^3$ (由此可推算出费密能 $E_F \simeq 50.1 \text{ meV}$), 以上数据引自文献 [3]. 有效质量 $m^* = 0.0665 m_0$; 超晶格周期数 $N = 50$, 以上两数据引自文献 [9]. 子能带内弛豫时间 τ 的实验报道值较分散, 约在 1 至 10 ps 之间^[10], 并且因样品而异. 在对 $\chi^{(2)}(2\omega)$ 作理论估计时, 为稳妥起见取较大 $\hbar\Gamma$ 值, 即让 $\hbar\Gamma = 0.4 \text{ meV}$, 对应于 $\tau \approx 1.6 \text{ ps}$. 因为可在室温条件下做实验, 取 $T = 300 \text{ K}$. 非谐系数 a 在文献上未见现成数据, 为了符合上文所作微扰处理(如(2), (3)式)的条件, 也为了在工艺上易于实现, 设在整个 $0 \leq |x| \leq L/2$ 范围内, 非谐项比简谐项小得多, 于是有

$$a = \eta \hbar \omega_0 \alpha^3 / 4, \quad \eta \approx 0.1. \quad (19)$$

这相当于即使在 $|x| = 2/\alpha = 2 \sqrt{2} x_0$ 时, 非谐项仍只有简谐项的十分之一, 而从下面的数值例子可见, $2/\alpha \approx L/2$, 这就保证在整个 $|x|$ 范围内, $a|x|^3 \ll \frac{1}{2} m^* \omega_0^2 x^2$.

将(19)式以及关系式 $\frac{\hbar^2 \alpha^2}{2m^*} = \hbar\omega_0/2$ 代入 (17) 式, 并利用 $Lq = 2\pi l/N$ ($l = 1, 2, \dots, N$) 得

$$\chi^{(2)}(2\omega) = C \frac{\omega_0}{\omega} \ln \frac{\{1 + \exp[(E_F - E_0)/k_B T]\}}{\{1 + \exp[(E_F - E_0 - \hbar\omega)/k_B T]\}} \\ \times \frac{1}{N} \sum_{l=1}^N \frac{\hbar\omega_0}{\hbar(\omega - \omega_0) - 2t_1 \cos\left(\frac{2\pi l}{N}\right) + i\hbar\Gamma}, \quad (20)$$

式中 C 是与 ω 无关的参数, 即

$$C = \frac{3}{8\pi} \eta \frac{e}{e_0} \frac{1}{L\alpha} \frac{k_B T}{\hbar\omega_0} \left(\frac{e}{\hbar\omega_0}\right)^2. \quad (21)$$

将前面各参数代入上式得 $C = 8.266 \times 10^{-10} \text{ m/V}$. 关于(20)式 $|\chi^{(2)}(2\omega)|$ 的数值计算结果示于图 2. 图 2 表明, 在谐振子共振跃迁能量 ($\hbar\omega_0 = 117 \text{ meV}$) 附近共约 20 meV 范围内, $|\chi^{(2)}(2\omega)| \geq 10^{-8} \text{ M/V}$, 比 GaAs 体材料的二次谐波系数大一至二个数量级.

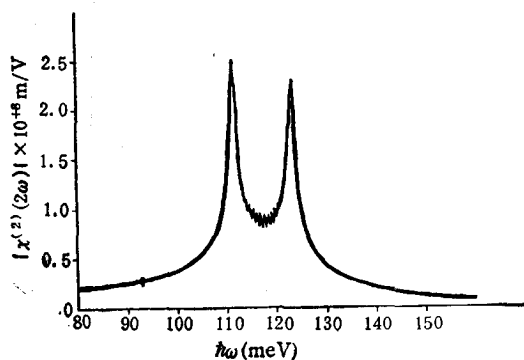


图 2 $|\chi^{(2)}(2\omega)|$ 与 $\hbar\omega$ 的关系曲线

总之, 本文所研究的准抛物多量子阱的 $|\chi^{(2)}(2\omega)|$ 比 GaAs 体材料的二次谐波系数大 10 到 100 倍, 而且有相当宽的调谐范围, 波段在中红外区域. 这在实用上是相当有价值的. 另外值得一提的是, $|\chi^{(2)}(2\omega)|$ 呈现双峰(见图 2).

- [1] G. H. Dohler, *IEEE J. Quantum Electron.*, **QE-22**(1986), 1682.
- [2] L. Esaki, *IEEE J. Quantum Electron.*, **QE-22**(1986), 1611.
- [3] R. P. G. Karunasiri and K. L. Wang, *Superlattices and Microstructures*, **4**(1988), 661.
- [4] S. L. Chuang and D. Ahn, *J. Appl. Phys.*, **65**(1989), 2822.
- [5] G. Bastard, *Phys. Rev.*, **24B**(1981), 5693.
- [6] Y. R. Shen, *The Principles of Nonlinear Optics*, John Wiley & Sons, Inc., (1984), Chaps. 1 & 2.
- [7] E. Hutchisson, *Phys. Rev.*, **37**(1931), 45.
- [8] C. Kittel, *Introduction to Solid State Physics*, 5th edition, John Wiley & Sons, Inc., (1976), Chap. 5.
- [9] B. F. Levine *et al.*, *Appl. Phys. Lett.*, **50**(1987), 273.
- [10] F. H. Julien *et al.*, *Appl. Phys. Lett.*, **53**(1988), 116;

M. C. Tatham *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **63**(1989), 1637.

OPTICAL SECOND HARMONIC NONLINEARITY IN QUASI PARABOLIC MULTIQUANTUM WELL STRUCTURE

ZHAN DA-SAN PAN SHAO-HUA

Institute of Physics, Academia Sinica, Beijing, 100080

(Received 1 February 1990)

ABSTRACT

In this article, we consider the optical second harmonic nonlinearity (corresponding to $\chi^{(2)}$) associated with intersubband transitions in a doped parabolic multi-quantum well structure, due to the anharmonic correction. The calculation indicates that the $\chi^{(2)}(2\omega)$ is larger than that of the bulk GaAs by 1 to 2 orders of magnitude, and the resonant transition frequencies are in the middle infrared region.

PACC: 4265K; 7890