

双波泵浦量子阱子带共振跃迁的非线性光学性质

曹小龙^{1,2,3*}, 车永莉^{2,3}, 姚建铨^{2,3}

(1. 山东科技大学 机械电子工程学院, 山东 青岛 266590;

2. 天津大学 精密仪器与光电子工程学院, 天津 300072;

3. 光电信息技术教育部重点实验室(天津大学), 天津 300072)

摘要: 设计了组分为 $\text{Al}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}/\text{GaAs}/\text{Al}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{As}$ 阶梯形量子阱结构, 其导带子带能级可与中红外双波长 CO_2 激光器的泵浦光光子能量共振. 计算了此量子阱对两束泵浦光的二阶非线性差频系数 $\chi_{\text{DFG}}^{(2)}$ 及三阶非线性系数 $\chi_{\omega_1}^{(3)}$ 和 $\chi_{\omega_2}^{(3)}$ 的表达式; 在导带分别为抛物线形和非抛物线形两种条件下, 对比研究了三个非线性系数随两束泵浦光波长的变化. $\chi_{\text{DFG}}^{(2)}$, $\chi_{\omega_1}^{(3)}$ 和 $\chi_{\omega_2}^{(3)}$ 随两束泵浦光波长 λ_{p1} 和 λ_{p2} 都是呈现出先增大后减小的变化趋势, 对应不同泵浦波长, 存在一个峰值; 相比于导带为抛物线形, 在非抛物线条件下三个非线性系数随短波长的泵浦光 λ_{p1} 的变化出现“红移”现象, 而随长波长的泵浦光 λ_{p2} 的变化峰值位置基本相同; 由量子限制效应导致的两种导带情况下子带能级变化, 即与泵浦光光子共振条件发生变化, 是出现“红移”的原因; 而峰值数值上的差异, 主要由量子阱子带能级间的跃迁矩阵元和两种导带条件下不同的能级差决定.

关键词: 非线性光学性质; 非对称量子阱; 非抛物线形; 跃迁矩阵元

中图分类号: O472+.3; O437.1 **文献标识码:** A

Nonlinear optical effects in asymmetric quantum well based on resonant subband transitions

CAO Xiao-Long^{1,2,3*}, CHE Yong-Li^{2,3}, YAO Jian-Quan^{2,3}

(1. College of Mechanical and Electronic Engineering, Shandong University of Science and Technology, Qingdao 266590, China;

2. College of Precision Instrument and Opto-electronics Engineering, Tianjin University, Tianjin 300072, China;

3. Key Laboratory of Opto-electronics Information Technology (Tianjin University), Ministry of Education, Tianjin 300072, China)

Abstract: Based on resonant subband transitions, the second-order and third-order nonlinear optical effects in an asymmetric quantum well (AQW) with the structure of $\text{GaAs}/\text{Al}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{As}/\text{Al}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}$ have been theoretically investigated on the conditions of parabolic and non-parabolic bands. With the increase of two pump wavelengths λ_{p1} and λ_{p2} separately, the second-order nonlinear difference frequency susceptibility $\chi_{\text{DFG}}^{(2)}$ and the two third-order nonlinear susceptibilities $\chi_{\omega_1}^{(3)}$ and $\chi_{\omega_2}^{(3)}$ increase to a maximum value, and then drops down rapidly. In comparison with the condition of parabolic subband, the curves of $\chi_{\text{DFG}}^{(2)}$, $\chi_{\omega_1}^{(3)}$ and $\chi_{\omega_2}^{(3)}$ show obvious red-shift as a function of the short pump wave λ_{p1} on the condition of nonparabolic subband. However, with the increase of long pump wave λ_{p2} , no changes of peak position have been discovered. The physical origin of all red-shift in nonlinear optical effects is the different energy level gaps on the two conditions of subband, which causes the changes in resonant condition. The primary reason for different peak values is the different transition matrix elements, and the other reason is energy level gaps.

Key words: nonlinear optical effect, asymmetric quantum well, non-parabolicity, transition matrix element

PACS: 73.21.Fg, 42.65.-k, 78.67.-n

收稿日期: 2015-12-04, 修回日期: 2016-04-01

Received date: 2015-12-04, revised date: 2016-04-01

基金项目: 国家自然科学基金(61271066), 山东科技大学人才引进科研启动基金(2014RCJJ020)

Foundation items: Supported by National Natural Science Foundation of China(61271066), Science Research Foundation for Talent Introduction of Shandong University of Science and Technology(2014RCJJ020)

作者简介(Biography): 曹小龙(1977-), 男, 山东德州人, 博士, 讲师, 主要研究方向为太赫兹技术.

* 通讯作者(Corresponding author): E-mail: caoxiaolong63@126.com

引言

近年来,基于子带跃迁(intersubband transitions-ISBT)技术的量子阱结构引起了人们极大的兴趣.采用合适的方法获得更大的非线性效应,是非线性光学研究的重点内容之一.量子限制作用导致了量子阱结构的导带和价带中可以形成许多的子带能级结构,可以对子带能级间光学跃迁的跃迁波长、跃迁矩阵元、跃迁粒子数及弛豫时间等进行人工调节,从而容易实现泵浦光与子带能级间发生共振^[1-3].

由于二阶非线性极化率与偶极矩阵元为立方关系,而量子阱子带能级间的跃迁具有很大的偶极矩阵元,宏观上即表现为非中心对称结构特征的偶极材料可产生远大于相应体材料的二阶非线性系数.1983年,Gurnick和De Temple^[4]首先通过理论计算具有非对称MORSE势的GaAs/AlGaAs量子阱结构,得到比GaAs体材料大10-100倍的二阶非线性系数.1989年,Fejer^[5]等人采用电致GaAs/AlGaAs非对称量子阱结构,获得了比GaAs体材料大73倍的二次谐波系数.2007年,Mikhail和Belkin^[6]等人在量子级联激光器(QCL)中采用两束波长为7.6 μm和8.7 μm的泵浦光进行内腔非线性光学差频,获得了波长为62 μm的THz波的输出.2011年,美国西北大学的Razeghi等人^[7]同样利用内腔非线性差频方式实现了具有高功率、窄线宽特点的THz辐射源,室温下输出功率达到10 mW.国内的曹俊诚课题组在理论和实验方面对THz QCL展开了一系列的研究,研制出半绝缘等离子体波导THz QCL,并实现了基于THz QCL和THz量子阱探测器的文件、图片以及音频传输演示^[8-10].除了二阶非线性过程,量子阱的子带共振增强效应同样适用于三阶非线性过程.Federico等^[11]早在1994年就从实验上观测到量子阱的共振增强三阶非线性效应.Karabulut等^[12]在2007年指出,通过调整量子阱的结构参数及泵浦光强度可以容易地控制量子阱的线性及非线性子带共振跃迁光吸收过程.从实用的角度来说,三阶非线性系数及非线性折射率是非线性光学材料的重要参数,在新型光电子器件^[13]、全光开关^[14]和高速调制器^[15]等方面具有重要的应用.

本文设计了适宜中红外CO₂激光器双波长共振泵浦的非对称GaAs量子阱结构,通过计算出GaAs量子阱导带子带跃迁间二、三阶非线性系数表达式,讨论了导带非抛物线形条件、量子阱阱宽和泵

浦光波长对各非线性系数的影响,这对于研究非线性光学理论及优化高次谐波产生器件的性能、研究和开发新型非线性光学材料及其他半导体THz器件应用技术方面提供了一定的理论依据.

1 数值计算

根据Manley-Rowe关系,对于波长相对较短的近红外激光(~1 μm),为了提高转换效率,采用波长更长的中红外波段激光器(~10 μm)作为差频泵浦光源可提高光子转换效率.所设计的阶梯型的非对称量子阱三能级结构如图1所示,其导带子带间的能级差在meV量级,容易实现与中红外波段的CO₂激光器双波泵浦光子能量发生共振.

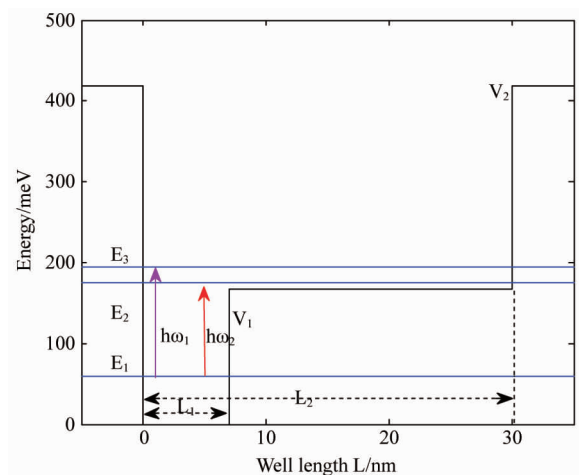


图1 三能级阶梯形非对称量子阱结构示意图
Fig. 1 Conduction-band diagram of the structure

所设计的非对称量子阱组份为GaAsGaAs/Al_{0.2}Ga_{0.8}As/Al_{0.5}Ga_{0.5}As,考虑到一定的非对称性,选取深阱宽度L₁=7 nm,浅阱宽度L₂=30 nm,若假定量子阱底的势能为0,此时图1中两个势垒高度分别为V₁=167 meV和V₂=418 meV,这可确保在改变阱宽L₂时最高子能级E₃还能限制在阱中.当导带为抛物线形时,其单粒子遵循的薛定谔方程为:

$$\left[- \left(\frac{\hbar^2}{2m^*(z)} \nabla^2 + V(z) \right) \right] \psi = E\psi \quad (1)$$

对应的相邻能级可表示为:

$$E = \frac{\hbar^2 k^2}{2m^*} \quad (2)$$

在导带为非抛物线形条件下,其薛定谔方程表示为^[16]:

$$\hat{H}\psi(z) = - \frac{\hbar^2 \gamma(z)}{2m^*(z)} \frac{d^4}{dz^4} \psi(z) - \frac{\hbar^2}{2m^*(z)} \frac{d^2}{dz^2} \psi(z)$$

$$+ V(z)\psi(z) = E\psi(z) \quad (3)$$

对应的相邻能级可表示为^[17]:

$$E = \frac{\hbar^2 k^2}{2m^*} (1 - \gamma k^2) \quad (4)$$

$$\gamma = \frac{\hbar^2}{2m^*} \left(1 - \frac{m^*}{m_0}\right)^2 \frac{3 + 4y + 2y^2}{3 + 5y + 2y^2} \frac{1}{E_g} \quad (5)$$

式(1)-式(5)中 m_0 表示自由电子质量, m^* 表示导带底电子的有效质量, k 为波数, γ 是非抛物线形参数, $y = \Delta/E_g$, Δ 即轨道自旋轨道分裂, 值为 $\Delta = 0.34 - 0.04x$ (eV).

由密度矩阵理论及迭代方法^[18-19], 密度矩阵算符的运动方程可写为:

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = \frac{1}{i\hbar} [H_0 + H' - i\hbar \frac{\Gamma}{2}, \rho] = \frac{1}{i\hbar} [H_0 + H', \rho] - \Gamma \rho \quad (6)$$

其中 Γ 是衰减算符, H' 是微扰. 在仅考虑微扰的情况下, 密度算符可展开为级数形式

$$\rho(t) = \rho_0 + \rho_1(t) + \rho_2(t) + \rho_3(t) + \rho_4(t) + \dots + \rho_r(t) \dots \quad (7)$$

式(7)中 ρ_0 为没有微扰的情况下的密度算符. 在能量表象中, ρ_0 是一个对角矩阵, 相应的密度算符为:

$$\rho_0 = A e^{-H_0/kT} \quad (8)$$

式(8)中的 A 为常数, k 为波尔兹曼常数, T 为热力学温度. 由式(7)、式(8)可得各阶密度矩阵所满足的运动方程, 表示为:

$$i\hbar \frac{\partial \rho_1}{\partial t} = [H_0, \rho_1] + [H', \rho_0] + i\hbar \Gamma \rho_1 \quad (9)$$

$$i\hbar \frac{\partial \rho_2}{\partial t} = [H_0, \rho_2] + [H', \rho_1] + i\hbar \Gamma \rho_2 \quad (10)$$

.....

$$i\hbar \frac{\partial \rho_r}{\partial t} = [H_0, \rho_r] + [H', \rho_{r-1}] + i\hbar \Gamma \rho_r \quad (11)$$

.....

从上述各式可以看出, 若 ρ_0 和 H' 为已知, 则可通过逐次求解方程的方法, 分别求出各阶密度矩阵.

在外光场入射情况下, 外光场通常表现为数目有限的单色波的组合, 可简单地表示为傅里叶级数的形式, 表示为:

$$E(r, t) = \sum_n E(\omega_n, r) e^{-i\omega_n t} \quad (12)$$

因光波波长远大于介质粒子的线度, 可采用电偶极近似, 微扰哈密顿算符可写成傅里叶级数形式, 表示为:

$$\begin{aligned} H'(t) &= -E(r, t) \cdot P \\ &= -\sum_n P \cdot E(\omega_n, r) e^{-i\omega_n t} \end{aligned}$$

$$= \sum_n H'(\omega_n) e^{-i\omega_n t} \quad (13)$$

式(13)中, P 为极化强度矢量, 则哈密顿微扰可表示为:

$$H'(\omega_n) = -P \cdot E(\omega_n, r) \quad (14)$$

与此对应的各阶密度矩阵可写作傅里叶级数形式, 表示为:

$$\rho_r(t) = \sum_n \rho_r(\omega_n) e^{-i\omega_n t} \quad (15)$$

研究量子阱中的非线性光学差频时, 一般可采用三能级系统进行讨论, 即导带中最低的基态、第一激发态和第二激发态对应的三个子带能级. 在计算中只考虑共振项, 在略去非共振项后得到的二阶非线性差频系数 $\chi^{(2)}(\omega_1 - \omega_2)$ 可表示为:

$$\begin{aligned} \chi^{(2)}(\omega_1 - \omega_2) &= \frac{N}{\epsilon_0} R_{12} R_{13} R_{23} \cdot \\ &\left\{ \frac{-\rho_{11}^{(0)}}{(\hbar(\omega_1 - \omega_2) - (E_3 - E_2) + i\hbar\Gamma_{32})(E_2 - E_1 - \hbar\omega_2 + i\hbar\Gamma_{21})} \right. \\ &\left. + \frac{-\rho_{11}^{(0)}}{(\hbar(\omega_1 - \omega_2) - (E_3 - E_2) + i\hbar\Gamma_{32})(\hbar\omega_1 - (E_3 - E_1) + i\hbar\Gamma_{31})} \right\} \quad (16) \end{aligned}$$

在近似双共振的条件下, 有 $\hbar\omega_1 \approx E_3 - E_1$, $\hbar\omega_2 \approx E_2 - E_1$, $\hbar\omega_T \approx E_3 - E_2$. 由于电子占据能级的概率有 $\rho_{11}^{(0)} \gg \rho_{22}^{(0)} \gg \rho_{33}^{(0)}$, (16) 式可近似地简写为:

$$\begin{aligned} \chi_{\text{DFG}}^{(2)} &\approx -\rho_{11}^{(0)} \frac{Ne^3}{\epsilon_0 \hbar^2} R_{12} R_{13} R_{23} \frac{\omega_T - \omega_{32} + j(\Gamma_{21} + \Gamma_{31})}{\omega_T - \omega_{32} + j\Gamma_{32}} \times \\ &\frac{1}{(\omega_1 - \omega_{31} + j\Gamma_{31})(\omega_{21} - \omega_2 + j\Gamma_{21})} \quad (17) \end{aligned}$$

根据同样方法计算, 可得到量子阱对两束泵浦光的两个三阶非线性系数 $\chi^{(2)}(\omega_1)$ 和 $\chi^{(3)}(\omega_2)$, 分别表述为:

$$\begin{aligned} \chi^{(3)}(\omega_1) &= \frac{N}{\epsilon_0} \frac{R_{13}}{[\hbar\omega_1 - (E_3 - E_1) + i\hbar\Gamma_{31}]} \cdot \\ &\left\{ \frac{-\rho_{11}^{(0)} R_{31} R_{31} R_{13}}{[\hbar\omega_1 - (E_3 - E_1) + i\hbar\Gamma_{31}]} \cdot \left(\frac{1}{i\hbar\Gamma_{11}} + \frac{1}{i\hbar\Gamma_{33}} \right) \right. \\ &+ \frac{-\rho_{11}^{(0)} R_{31} R_{31} R_{13}}{[(E_3 - E_1) - \hbar\omega_1 + i\hbar\Gamma_{13}]} \cdot \left(\frac{1}{i\hbar\Gamma_{11}} + \frac{1}{i\hbar\Gamma_{33}} \right) \\ &+ \frac{-\rho_{11}^{(0)} R_{31} R_{21} R_{12}}{[\hbar\omega_2 - (E_2 - E_1) + i\hbar\Gamma_{21}]} \cdot \frac{1}{i\hbar\Gamma_{11}} \\ &+ \frac{-\rho_{11}^{(0)} R_{31} R_{21} R_{12}}{[(E_2 - E_1) - \hbar\omega_2 + i\hbar\Gamma_{12}]} \cdot \frac{1}{i\hbar\Gamma_{11}} \\ &+ \frac{-\rho_{11}^{(0)} R_{31} R_{21} R_{12}}{[\hbar(\omega_1 - \omega_2) - (E_3 - E_2) + i\hbar\Gamma_{32}][\hbar\omega_1 - (E_3 - E_1) + i\hbar\Gamma_{31}]} \\ &\left. + \frac{-\rho_{11}^{(0)} R_{31} R_{21} R_{12}}{[\hbar(\omega_1 - \omega_2) - (E_3 - E_2) + i\hbar\Gamma_{32}][\hbar\omega_1 - (E_3 - E_1) + i\hbar\Gamma_{31}]} \right\} \quad (18) \end{aligned}$$

$$\chi^{(3)}(\omega_2) = \frac{N}{\varepsilon_0} \frac{R_{12}}{[\hbar\omega_2 - (E_2 - E_1) + i\hbar\Gamma_{21}]} \cdot \left\{ \frac{-\rho_{11}^{(0)} R_{21} R_{21} R_{12}}{[\hbar\omega_2 - (E_2 - E_1) + i\hbar\Gamma_{21}]} \cdot \left(\frac{1}{i\hbar\Gamma_{11}} + \frac{1}{i\hbar\Gamma_{22}} \right) + \frac{-\rho_{11}^{(0)} R_{21} R_{21} R_{12}}{[(E_2 - E_1) - \hbar\omega_2 + i\hbar\Gamma_{12}]} \cdot \left(\frac{1}{i\hbar\Gamma_{11}} + \frac{1}{i\hbar\Gamma_{22}} \right) + \frac{-\rho_{11}^{(0)} R_{21} R_{31} R_{13}}{[\hbar\omega_1 - (E_3 - E_1) + i\hbar\Gamma_{31}]} \cdot \frac{1}{i\hbar\Gamma_{11}} + \frac{-\rho_{11}^{(0)} R_{21} R_{31} R_{13}}{[(E_3 - E_1) - \hbar\omega_1 + i\hbar\Gamma_{13}]} \cdot \frac{1}{i\hbar\Gamma_{11}} + \frac{-\rho_{11}^{(0)} R_{21} R_{31} R_{13}}{[(E_3 - E_2) - \hbar(\omega_1 - \omega_2) + i\hbar\Gamma_{23}][\hbar\omega_2 - (E_2 - E_1) + i\hbar\Gamma_{21}]} + \frac{-\rho_{11}^{(0)} R_{21} R_{31} R_{13}}{[(E_3 - E_2) - \hbar(\omega_1 - \omega_2) + i\hbar\Gamma_{23}][(\omega_3 - \omega_1) - \hbar\omega_1 + i\hbar\Gamma_{13}]} \right\} \quad (19)$$

在式(16)~(19)中, ω_1 表示两束泵浦光中短波长泵浦光的角频率, ω_2 表示长波长泵浦光的角频率, N 表示量子阱中自由载流子的体密度, 可取值为 $5 \times 10^{22} \text{ m}^{-3}$; 波尔频率 $\omega_{ij} = (E_i - E_j)/\hbar$, $R_{ij} = \langle i | z | j \rangle$ 表示为电子在子带 i, j 能级间的带间跃迁矩阵元 ($i, j = 1, 2, 3$); Γ_{ij} 是弛豫系数, 一般可只考虑 $\Gamma_{ij} = 1/T_1$ ($i = j$) 和 $\Gamma_{ij} = 1/T_2$ ($i \neq j$) 两个不同的弛豫值, $\Gamma = 1/T_1$, T_1 是量子阱导带子带间弛豫的平均时间, 取 $T_1 = 1 \text{ ps}$, $T_2 = 0.14 \text{ ps}$ ^[20-21]. $\rho_{11}^{(0)}$ 为在热平衡情况下电子占据 E_1 能级的概率, 在计算中认为值近似为 1; ω_T 表示两束泵浦光差频产生的 THz 波的角频率.

2 计算结果与分析

假定导带为抛物线形和非抛物线形两种情况下, 通过计算薛定谔方程可得到三个能级值、波函数及各跃迁矩阵元.

表 1 导带两种条件下的能级值和跃迁矩阵元
Table 1 The energy levels and transition matrix elements under the conditions of parabolic and non-parabolic bands

	E_1/meV	E_2/meV	E_3/meV	$R_{12}/10^{-10}\text{m}$	$R_{13}/10^{-10}\text{m}$	$R_{23}/10^{-10}\text{m}$
parabolicity	58.84	172.15	186.18	8.37	11.75	41.84
Non-parabolicity	56.71	170.03	181.43	12.94	11.58	262.5

从表中可以看出, 两种导带情况下进行对比, 能级越高, 各能级值相差越大, 同时能级间的差值也越大; 能级越高, 导带的非线性作用越明显, 这是造成两种导带情况下 E_3 相差较大的原因. 对于跃迁矩阵元, 同样由于导带的非线性作用, 与 1、3 能级相关的 R_{13} 在两种导带情况下相差很小, 而与 1、2 能级相关的 R_{12} 相差较大, 与 2、3 能级间相关的跃迁矩阵元

R_{23} 差异最大; 根据跃迁矩阵元的定义, 其值的差异源于两种导带情况下三个子带能级对应的波函数不同^[22]. 将表中数值代入式(17)~(19)后, 可对量子阱的二阶非线性差频系数及两个三阶非线性系数与两束泵浦光波长之间的关系进行分析.

2.1 二阶非线性差频系数

从图 2 可以看出, 当保持长波长泵浦光 $\lambda_{p2} = 10.64 \mu\text{m}$ 不变时, 在导带为抛物线形和非抛物线形两种条件下二阶非线性差频系数 $\chi_{\text{DFG}}^{(2)}$ 随短波长泵浦光 λ_{p1} 的变化曲线相似. 两种导带情况下 $\chi_{\text{DFG}}^{(2)}$ 随泵浦光 λ_{p1} 的增大都呈现出先增大后减小的变化趋势, 在共振位置附近的变化非常尖锐, 但峰值的位置和数值均不同. 两种导带情况下 $\chi_{\text{DFG}}^{(2)}$ 的峰值分别位于 $9.756 \mu\text{m}$ 和 $9.96 \mu\text{m}$ 处, 数值大小分别为 $1.61 \times 10^{-5} \text{ m/V}$ 和 $1.539 \times 10^{-4} \text{ m/V}$, 在数值上相差了一个数量级. 从式(17)可以看出, 此时 $\chi_{\text{DFG}}^{(2)}$ 峰值的差异主要由跃迁矩阵元乘积 $R_{12} R_{13} R_{23}$ 决定, 在导带为抛物线形和非抛物线形两种情况下, 此矩阵元乘积分别为 $4114.8594 \times 10^{-30}$ 和 $39334.365 \times 10^{-30}$, 同样相差一个数量级. 相比导带为抛物线形条件, 在导带非抛物线形条件下峰值位置发生了“红移”, 移动了 $0.204 \mu\text{m}$.

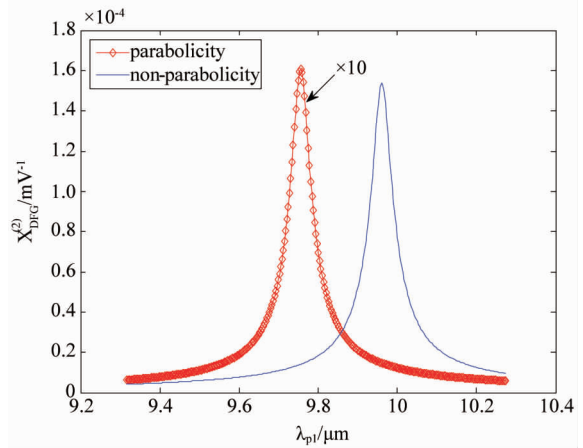


图 2 二阶非线性差频系数 $\chi_{\text{DFG}}^{(2)}$ 随泵浦光波长 λ_{p1} 的变化 ($\lambda_{p2} = 10.64 \mu\text{m}$)

Fig. 2 The second-order nonlinear difference frequency susceptibility $\chi_{\text{DFG}}^{(2)}$ as a function of the pump wavelength λ_{p1} ($\lambda_{p2} = 10.64 \mu\text{m}$)

固定短波长泵浦光的波长 $\lambda_{p1} = 9.69 \mu\text{m}$ 保持不变, 图 3 中描述了二阶非线性差频系数 $\chi_{\text{DFG}}^{(2)}$ 随长波长泵浦光 λ_{p2} 的变化. 从图中可以看出, 在导带为抛物线形和非抛物线形条件下峰值的位置大致相同, 几乎都在 $10.96 \mu\text{m}$ 处, 峰值分别为 0.512×10^{-5}

m/V 和 1.055×10^{-5} m/V, 相差约一倍. 在共振位置附近, 曲线的变化相对图 2 来说, 变化相对较为平缓.

由二阶非线性系数的表达式可知, 由于导带的非抛物线形作用造成与导带抛物线形时的各能级值不同, 即能级差也不同, 使得与对应泵浦光的共振位置不同. 在图 2 中, 两种导带情况下的量子阱导带子带中的基态和第二激发态对应的能级差值 $\Delta E_{31} = (E_3 - E_1)_{\text{parabolicity}} - (E_3 - E_1)_{\text{nonparabolicity}} = 2.6212$ meV, 而 $9.756 \mu\text{m}$ 和 $9.96 \mu\text{m}$ 处对应的光子能量差为 2.6083 meV, 与能级差值 ΔE_{31} 相符, 能级差的变化造成 $\chi_{\text{DFG}}^{(2)}$ 随泵浦光波长 λ_{p1} 变化中共振位置的不同, 这是出现“红移”现象的原因; 而在图 3 中, 长波长的泵浦光与第一激发态对应的能级 E_2 共振, 此时两种导带情况下 E_2 和 E_1 间的能级差 $\Delta E_{21} = (E_2 - E_1)_{\text{parabolicity}} - (E_2 - E_1)_{\text{nonparabolicity}} = -0.0104$ meV, 差值很小, 即两种导带情况下 $\chi_{\text{DFG}}^{(2)}$ 随长波长泵浦光 λ_{p2} 的变化共振峰值位置大致相同. 由于导带两种情况下所取的弛豫系数数值相同, 图 2 和图 3 中非线性系数半高宽的较大差异, 认为是泵浦光子能量趋向于能级共振点的快慢趋势不同导致.

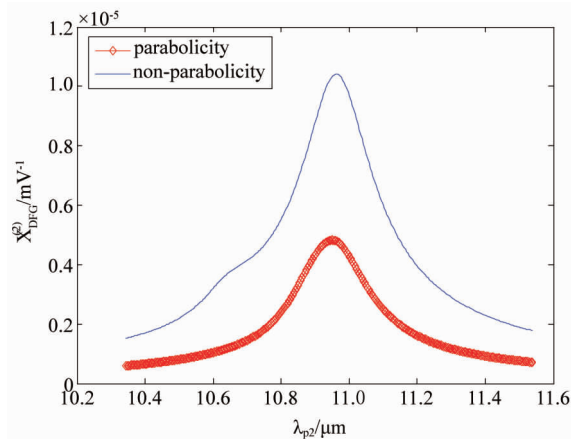


图 3 二阶非线性差频系数 $\chi_{\text{DFG}}^{(2)}$ 随泵浦光波长 λ_{p2} 的变化 ($\lambda_{p1} = 9.69 \mu\text{m}$)

Fig. 3 The second-order nonlinear difference frequency susceptibility $\chi_{\text{DFG}}^{(2)}$ as a function of the pump wavelength λ_{p2} ($\lambda_{p1} = 9.69 \mu\text{m}$)

2.2 三阶非线性系数

对于量子阱对短波长泵浦光的三阶非线性系数 $\chi_{\omega_1}^{(3)}$, 由图 4 可以看出, 导带抛物线形和非抛物线形情况下随短波长泵浦光 λ_{p1} 的变化峰值位置不同, 但同样分别位于 $9.756 \mu\text{m}$ 和 $9.96 \mu\text{m}$ 处, 和图 2、图 3 中二阶非线性差频系数的峰值位置相同; 共振位

置附近的曲线变化非常尖锐, 其峰值大小分别为 $1.185 \times 10^{-20} \text{ m}^2 \text{ V}^{-2}$ 和 $1.137 \times 10^{-20} \text{ m}^2 \text{ V}^{-2}$. 由式 (7) ~ (19) 可以看出, 二阶和三阶非线性系数的表达式分母都是由 $E_3 - E_1$ 、 $E_2 - E_1$ 和 $E_3 - E_2$ 所构成, 与图 2 相比, 相同的能级值及各能级差导致了与泵浦光子能量共振点相同, 这是造成峰值位置相同的原因. 从式 (18) 看出, 与三阶非线性系数相关的是跃迁矩阵元 R_{13} 在两种导带情况下的数值相差很小, 决定了 $\chi_{\omega_1}^{(3)}$ 两种导带情况下的峰值近似相等.

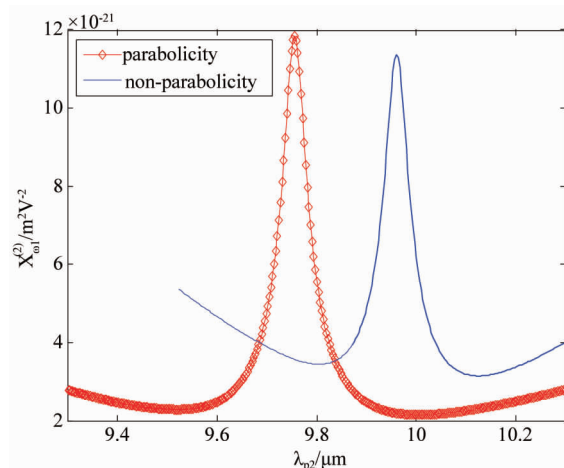


图 4 三阶非线性系数 $\chi_{\omega_1}^{(3)}$ 数随泵浦光波长 λ_{p1} 的变化 ($\lambda_{p2} = 10.64 \mu\text{m}$)

Fig. 4 The third-order nonlinear susceptibility $\chi_{\omega_1}^{(3)}$ as a function of the pump wavelength λ_{p1} ($\lambda_{p2} = 10.64 \mu\text{m}$)

图 5 中描述了量子阱对短波长泵浦光的三阶非线性系数 $\chi_{\omega_1}^{(3)}$ 随长波长泵浦光波长 λ_{p2} 的变化情况. 在导带为抛物线和非抛物线形情况下, 两条曲线形状相同, 都是先增大再减小, 峰值位置相同, 都位于 $10.96 \mu\text{m}$ 处, 峰值位置附近的曲线变化相对平缓; 共振位置相同, 说明量子带能级与泵浦光光子的共振条件相同; 两种导带条件下的峰值分别为 $8.002 \times 10^{-21} \text{ m}^2 \text{ V}^{-2}$ 和 $3.735 \times 10^{-20} \text{ m}^2 \text{ V}^{-2}$, 非抛物线形条件下峰值大的多, 这说明在跃迁矩阵元 R_{13} 近似相等情况下, 峰值的大小主要由能级值决定. 由式 (18) 可以看出, 在导带非抛物线形条件下, 处于分母位置的 E_3 、 E_2 与基态能级 E_1 间的能级差值相对更小, 这是造成非抛物线形条件下峰值更大的原因.

图 6 说明了当固定长波长泵浦光的波长 λ_{p2} 为 $10.64 \mu\text{m}$ 不变时, 量子阱对长波长泵浦光的三阶非线性系数 $\chi_{\omega_2}^{(3)}$ 随短波长泵浦光 λ_{p1} 的变化情况. 在导带为抛物线和非抛物线形两种条件下的峰值位置还是在 $9.756 \mu\text{m}$ 和 $9.96 \mu\text{m}$ 处, 其大小分别为 2.98

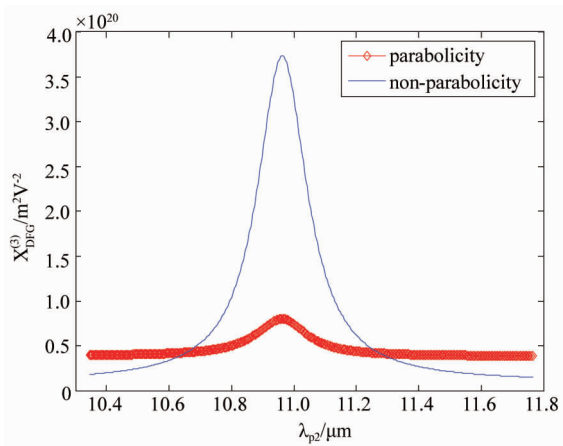


图5 三阶非线性系数 $\chi_{\omega_1}^{(3)}$ 随泵浦光波长 λ_{p2} 的变化 ($\lambda_{p1} = 9.69 \mu\text{m}$)

Fig. 5 The third-order nonlinear susceptibility $\chi_{\omega_1}^{(3)}$ as a function of the pump wavelength λ_{p2} ($\lambda_{p1} = 9.69 \mu\text{m}$)

$\times 10^{-19} \text{ m}^2 \text{ V}^{-2}$ 和 $3.663 \times 10^{-19} \text{ m}^2 \text{ V}^{-2}$, 在共振位置附近的曲线变化非常尖锐.

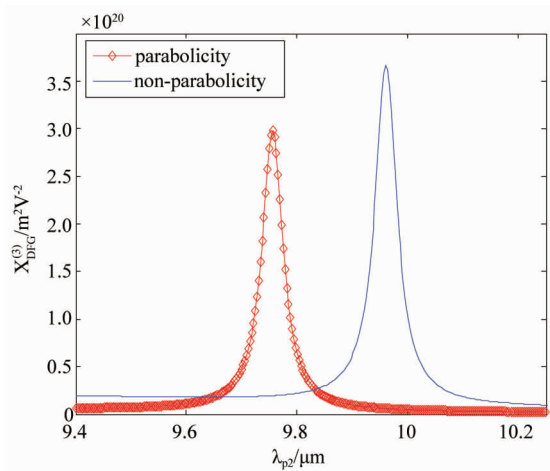


图6 三阶非线性系数 $\chi_{\omega_2}^{(3)}$ 随泵浦光波长 λ_{p1} 的变化 ($\lambda_{p2} = 10.64 \mu\text{m}$)

Fig. 6 The third-order nonlinear susceptibility $\chi_{\omega_2}^{(3)}$ as a function of the pump wavelength λ_{p1} ($\lambda_{p2} = 10.64 \mu\text{m}$)

量子阱对长波长泵浦光的三阶非线性系数 $\chi_{\omega_2}^{(3)}$ 随长波长泵浦光 λ_{p2} 的波长变化如图7所示. 随着 λ_{p2} 的增大, $\chi_{\omega_2}^{(3)}$ 在导带为抛物线形和非抛物线形条件下的变化趋势都是先增大再减小, 相比与图6, 曲线在共振位置附近的变化相对平缓; 峰值对应的位置相同, 都在 $10.96 \mu\text{m}$ 处, 峰值位置对应着和量子阱能级的共振点处, 峰值大小分别为 $8.565 \times 10^{-20} \text{ m}^2 \text{ V}^{-2}$ 和 $1.941 \times 10^{-19} \text{ m}^2 \text{ V}^{-2}$.

从图6和图7中两个三阶非线性系数随两束泵

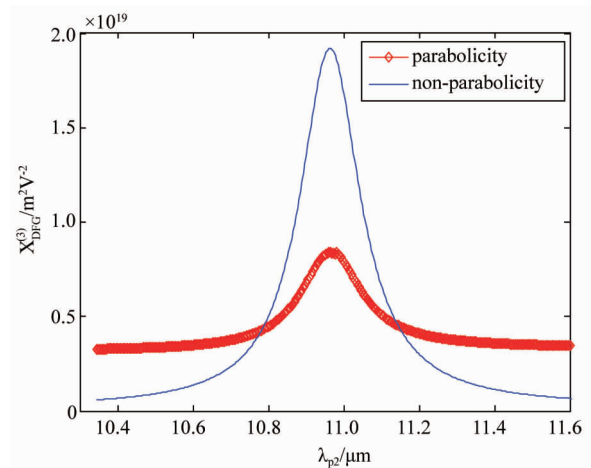


图7 三阶非线性系数 $\chi_{\omega_2}^{(3)}$ 随泵浦光波长 λ_{p2} 的变化 ($\lambda_{p1} = 9.69 \mu\text{m}$)

Fig. 7 The third-order nonlinear susceptibility $\chi_{\omega_2}^{(3)}$ as a function of the pump wavelength λ_{p2} ($\lambda_{p1} = 9.69 \mu\text{m}$)

浦光波长的变化可以看出, 量子阱对长波长泵浦光 λ_{p2} 的三阶非线性系数 $\chi_{\omega_2}^{(3)}$ 随短波长泵浦光 λ_{p1} 的变化, 在导带非抛物线形时相比导带为抛物线形时出现“红移”现象. 出现“红移”现象的原因与讨论的二阶非线性差频系数的变化情况相同, 都是由于对应短波长泵浦光 λ_{p1} 时出现的较大能级差的改变, 从而导致与能级相关的共振条件不同; 而两个三阶非线性系数随泵浦光 λ_{p2} 的变化, 峰值位置相同, 同样是因为两种导带条件下对应的能级差 ($E_2 - E_1$) 变化很小, 共振条件基本相同.

3 结论

设计了一种非对称量子阱结构, 其导带子带能级可与两束中红外双波长 CO_2 激光器泵浦光子发生共振. 研究了此量子阱结构对两束泵浦光的二阶非线性差频系数和两个三阶非线性系数随两束泵浦光波长的变化, 结果表明, 导带的非抛物线形对子带能级跃迁具有明显影响. 由于导带的非抛物线形, 量子限制效应发生变化, 能级越高影响越大. 两种导带情况下 E_3 与 E_1 间能级差较大的变化导致了二阶非线性差频系数与三阶非线性系数随短波长泵浦光变化存在“红移”; 而因两种导带情况下 E_2 与 E_1 间能级差变化很小, 对应共振峰值位置基本相同. 其峰值的大小, 主要由两种导带情况下跃迁矩阵元决定, 在跃迁矩阵元近似相等情况下, 由各能级间的能级差决定. 三个非线性系数随短波长泵浦光的变化曲线在共振位置附近相对尖锐, 而随长波长泵浦光的

变化在共振位置附近相对平缓,说明非线性系数对高能级更敏感。

References

- [1] Yang W X, Hou J M, Lee R K. Highly efficient four-wave mixing via intersubband transitions in InGaAs/AlAs coupled double quantum well structures [J]. *Journal of Modern Optics*, 2009, **56**(6):716-721.
- [2] Ma P, Fedoryshyn Y, Jäckel H. Ultrafast all-optical switching based on cross modulation utilizing intersubband transitions in InGaAs/AlAs/AlAsSb coupled quantum wells with DFB grating waveguides [J]. *Optics Express*, 2011, **19**(10):9461-74.
- [3] Gajic A, Radovanovic J, Milanovic V, et al. Optimizing optical nonlinearities in GaInAs/AlInAs quantum cascade lasers [J]. *Nuclear Technology and Radiation Protection*, 2014, **29**:10-16.
- [4] Gurnick M K, Detemple, T A, Synthetic nonlinear semiconductors [J]. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 1983, **19**(5):791-794.
- [5] Fejer M M, Yoo S J B, Byer R L. Observation of extremely large quadratic susceptibility at 9.6-10.8 μm in electric-field-biased AlGaAs quantum wells [J]. *Physical Review Letters*, 1989, **62**(9):1041-1044.
- [6] Mikhail A B, Federico C. Terahertz difference frequency generation in quantum cascade lasers [J]. *Optical Society of America*, 2007, 1-55752-834-9.
- [7] Lu Q Y, Bandyopadhyay N, Slivken S, et al. Room temperature single-mode terahertz sources based on intracavity difference-frequency generation in quantum cascade lasers [J]. *Applied Physics Letters*, 2011, **99**:131106.
- [8] WAN Wen-Jian, YIN Rong, TAN Zhi-Yong, et al. Study of 2.9 THz quantum cascade laser based on bound-to-continuum transition [J]. *Acta Phys. Sin.* (万文坚, 尹嵘, 谭智勇, 等. 2.9 THz 束缚态向连续态跃迁量子级联激光器研制. *物理学报*). 2013, **62**(21):210701.
- [9] TAN Zhi-Yong, CHEN Zhen, HAN Ying-Jun, et al. Experimental realization of wireless transmission based on terahertz quantum cascade laser [J]. *Acta Phys. Sin.* (谭智勇, 陈镇, 韩英军, 等. 基于太赫兹量子级联激光器的无线信号传输的实现. *物理学报*). 2012, **61**(9):098701.
- [10] Tan Z Y, Gu L, Xu T H, et al. Real-time reflection imaging with terahertz camera and quantum-cascade laser [J]. *Chinese Optics Letters*, 2014, **12**(7):070401.
- [11] Federico C, Carlo S, Alfred Y C. Coupled quantum well semiconductors with giant electric field tunable nonlinear optical properties in the infrared [J]. *IEEE Journal Quantum Electronics*, 1994, **30**(5):1313-1326.
- [12] Karabulut İ, Atav Ü, Safak H, et al. Linear and nonlinear intersubband optical absorptions in an asymmetric rectangular quantum well [J]. *The european physical journal B*, 2007, **55**:283-288.
- [13] Kim K Y, Lee B. Proposal on the suppression of optical absorption by quantum interference via parallel-perpendicular kinetic energy coupling effect [J]. *IEEE Journal Quantum Electronics*, 2001, **37**(3):546-551.
- [14] Yoshida H, Mozume T, Neogii A, et al. Ultrafast all-optical switching at 1.3 μm /1.55 μm InGaAs/AlAsSb/InP coupled double quantum well structures for interband transitions [J]. *Electronics Letters*, 1999, **35**(13):1103-1105.
- [15] Meyer J R, Hoffman C A, Bartoli F J. Infrared electro-optical modulators based on field-induced Γ -L inter valley transfer [J]. *Applied Physics Letters*, 2001, **67**(19):2756-2758.
- [16] Milanovic V, Radovanovic J, Ramovic S. Influence of nonparabolicity on boundary conditions in semiconductor quantum wells [J]. *Physics Letters A*, 2009, **373**(34):3071-3074.
- [17] Hiroshima T, Lang R. Effect of conduction-band nonparabolicity on quantized energy levels of a quantum well [J]. *Applied Physics Letters*, 1986, **49**(8):456.
- [18] Boyd R W. *Nonlinear Optics* [M], Academic Press, Boston, 1992.
- [19] Rosencher E, Bois Ph. Model system for optical nonlinearities: Asymmetric quantum well [J]. *Physical Review B*, 1991, **44**(20):11315-11327.
- [20] Kuhn K J, Lyenga R G U, Yee S. Free carrier induced changes in absorption and refractive index for intersubband optical transitions in $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}/\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ quantum wells [J]. *Journal of Applied Physics*, 1991, **70**(9):5010-5017.
- [21] Ahn D, Chuan S L. Calculation of linear and nonlinear intersubband optical absorptions in a quantum well model with an applied electric field [J]. *IEEE Journal Quantum Electronics*, 1987, QE23(12):2196-2204.
- [22] Cao X L, Yao J Q, Zhu N, et al. Design of GaAs/ $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ asymmetric quantum wells for THz-wave by difference frequency generation [J]. *Optoelectronics Letters*, 2012, **8**(3):0229-0232.