文章编号: 1672-2892(2011)03-0336-07

太赫兹 QCL 的电子结构计算和设计

段素青, 楚卫东, 张 伟, 杨 宁

(北京应用物理与计算数学研究所,北京 100088)

摘 要:通过电子结构和波函数的设计实现电子选择性注入及粒子数反转是制备太赫兹量子级联激光器(QCL)的基础。本文介绍了求解外场下超晶格 QCL 电子结构的分区级数解法及非正交基 对角化方法,并将计算结果与国际上啁啾超晶格及共振声子模式 QCL 的相关实验结果进行了对比, 二者的精确吻合证明了计算方法的准确性。在此基础上给出了一种共振声子模式 QCL 超晶格的有 源区设计方案,并讨论了外场偏离设计值对 QCL 特性的影响。

关键词: 太赫兹; 量子级联激光器; 分区级数解法 中图分类号: TN202 **文献标识码:** A

Calculation and design of electronic structures for terahertz Quantum Cascade Lasers

DUAN Su-qing, CHU Wei-dong, ZHANG Wei, YANG Ning (Institute of Applied Physics and Computational Mathematics, Beijing 100088, China)

Abstract: The theoretical basis of superlattice terahertz Quantum Cascade Lasers(QCL) is to achieve the electron selective injection and the population inversion of the radiative states by energy level structure and wave function design. In this work, the power series method and the non-orthogonal basis diagonalization method were employed to calculate the electronic structures of the superlattice within the electric field, which are in excellent agreement with the experimental results in corresponding references. Then an active region design of resonant-phonon model was presented and the influences of the deviation of external field from the design value were discussed.

Key words: terahertz; Quantum Cascade Lasers; power series method

太赫兹频谱范围通常定义在0.1 THz~10 THz,波长在30 µm~3 mm,无论在电子技术或光子技术领域,该波 段均缺乏经济、耐用及高效的元件,其电磁波谱技术相对处于欠发展状态。20世纪70年代前苏联Kazarinov R F 和Suris R A指出,利用多量子阱的光子辅助隧穿可以实现光增益^[1]。基于此,20世纪80年代Capasso F等人提出利 用顺序共振隧穿结构实现红外半导体激光器的设想^[2],即量子级联激光器(QCL)的理论雏形。1994年,第1支工作 波长为4.2 µm的QCL在Bell实验室制备成功^[3],此后工作于中红外波段的QCL取得了突飞猛进的进展,可以以连 续波模式工作于室温的中红外QCL得以实现。而工作在更长波长的太赫兹QCL直到2002年才得以首次实现^[4],这 主要是由于太赫兹QCL两幅射态间能差很小,电子的选择性注入和粒子数反转条件的获得比中红外QCL更难,需 要更精巧的有源区设计。通过理论与实验工作者的不断努力,近年来出现了包括啁啾超晶格模式、束缚-连续态 转变模式^[5]、共振声子模式^[6]等在内的多种新颖的太赫兹QCL设计,工作温度及功率亦不断得到提升^[7-8]。有关太 赫兹QCL的更详细介绍可参见Williams B S的综述文章^[9]。

有源区超晶格电子结构(包括外场下能级结构、波函数分布等)的设计是太赫兹 QCL 理论设计的主要课题之一,也是 QCL 设计和制备的基础。通过超晶格电子结构的设计,帮助实现载流子的选择性注入及辐射态间的粒子数反转。

本文给出太赫兹超晶格 QCL 电子结构的理论计算方法以及一个基于共振声子模式的超晶格 QCL 设计结果, 简要讨论电场对 QCL 工作特性的影响。

1 外场下超晶格能级结构和波函数的求解

超晶格QCL有源区一般由100~200个重复单元构成,每个基本单元中含有一定数量不同尺寸的量子阱,不同 单元间的耦合一般较小,因此计算电子结构时只需包含几个重复单元,甚至只需1个单元即可。本文采用分区级 数解法,得到1个单元中每个量子阱的束缚能级和波函数,以这些波函数作为1组非正交基,将超晶格的哈密顿量 对角化,进而得到整个体系的束缚能级结构和波函数。

1.1 外场下单个量子阱的能级和波函数:分区级数解法

均匀电场下单个 GaAs/AlGaAs 量子阱的势函数如图 1 所示,其中量子阱使用有限高方势阱模型,对于 GaAs/ Al_xGa_{1-x}As,带阶(band offset)与组分 x 的关系可由下式确定: band offset=1.247x(eV)。导带、价带带阶比取为 7:3,则相应 导带阱深 131 meV。

在电场下, x→∞时,势能趋于负无穷,只有在一定条件下,体系才存在寿命足够长的束缚态。由准稳态近似^[10],可将势垒一定距离外的势取为平的(如图1所示),这样解得的束缚态同样准确。从微扰论的角度看,这是因为当 x→±∞时, 微扰哈密顿量趋于无穷大,由于零级波函数衰减很快,只要电场不是很大,实际计算的一级和二级微扰能量很小。





实验中电子的有效质量、介电常数等在势阱和势垒材料中是不同的,当x较小时,这些能带及材料参数差别较小,故计算中均取GaAs材料的参数。

图1中的三角势阱能级和波函数可基于势阱区的爱里函数及势垒区的指数函数,利用边界条件求得。本文不 使用这种解法,而是使用分区级数解法^[11]进行求解。在有效质量近似下,分区级数解法是求解定态薛定谔方程 束缚态的一种有效手段。对具有解析解的势场,分区级数给出的解能够精确到小数点后12~13位,对各种无法解 析求解的复杂限制势,亦可给出精确的能量和波函数。使用分区级数解法的一个好处是便于今后研究限制势形状 对体系的影响,如通过改变限制势的幂次模拟势垒/势阱界面过渡原子层时,分区级数解法可以方便地求解。

一维体系的分区级数解法基本原理如下。一维薛定谔方程可写为:

$$\frac{d^2}{dx^2} + [E - V(x)]\Psi(x) = 0$$
(1)

式中:第一项为粒子动能项;V(x)为粒子势能,其势函数可以展开成级数形式: $V(x) = \sum_{i=1}^{K} v_i x^i$,则式(1)可写为:

$$\left[\frac{\mathrm{d}^2}{\mathrm{d}x^2} - \sum_{i=-1}^{K} w_i x^i\right] \Psi(x) = 0$$
⁽²⁾

式中: $w_{-1} = v_{-1}$; $w_0 = -E + v_0$; $w_i = v_i (i = 1, 2, \dots, K)$ 。式(2)的解在常点及奇点邻域可展开成不同的级数形式,并利用衔接条件求解。

1) 分区级数

式(2)在常点 $x = x_0$ 附近有泰勒解:

$$\Psi(x) = C \sum_{n=0}^{\infty} c_n (x - x_0)^n + D \sum_{n=0}^{\infty} d_n (x - x_0)^n$$
(3)

式中: $c_0 = d_1 = 1, c_1 = d_0 = 0$, 代人式(2)中可得递推公式:

$$c_n = \frac{-1}{n(n-1)\rho_0^2} \left[(n-1)(n-2)2x_0c_{n-1} + (n-2)(n-3)c_{n-2} - \sum_{m=0}^{\min\{n-2,K+2\}} Y_m c_{n-m-2} \right]$$
(4)

式中 $Y_m = \sum_{i=m-2}^{K} w_i C_{i+2}^m x_0^{i+2-m}$ 。 $d_n \pi c_n$ 的递推公式相同,不再重复。

式(2)在非正则奇点 x→±∞ 附近有非正则解:

$$\Psi(x) = \exp\left[Q(x)\right]G(x)$$
(5)
$$\vec{x} + : \quad Q(x) = \sum_{i=0}^{\bar{K}} q_i x^i, q_j = \frac{1}{2j\bar{K}_{q_{\bar{K}}}} \left[w_{j+\bar{K}-2} - \sum_{i=j+1}^{\bar{K}-1} i(j+\bar{K}-i)q_i q_{j+\bar{K}-i} \right], \bar{K} = K/2 + 1;$$

$$G(x) = \sum_{k=0}^{N} c_k x^{-k}, c_j = \frac{1}{a_0 j} \left\{ -\sum_{l=1}^{\min\{j, n_1+1\}} a_l (j-l) c_{j-l} + \sum_{l=0}^{\min\{j+1-(n_1-n_2), n_2+2\}} b_l c_{j+1-(n_1-n_2-l)} + c_{j-(n_1+1)} [-j+(n_1+1)] (-j+n_1) \right\}$$

2) 衔接条件

对于图1中的一维限制势, $x = \pm \infty$ 是方程的非正则奇点,其余均为常点。区间 ($-\infty,\infty$)可按奇点的性质分为3 个区:泰勒区 ($x_{-\infty},x_{\infty}$),非正则区 ($-\infty,x_{-\infty}$]和 [x_{∞},∞)。确定泰勒区和非正则区的分界 $x_{\pm\infty}$ 后,可利用分界处波函数 及其导数的比值连续性条件,确定能量*E*及相应的波函数。泰勒区和非正则区的分界可由经验取得,亦可以利用 有限差分确定分区边界的方法,提高级数解法的适用性和自动化程度。

在非正则区式(2)的非正则解式(5),在 $x = x_{o}$ 处波函数与其导数的比值为:

$$K_{\infty} = \frac{\Psi(x_{\infty})}{\Psi'(x_{\infty})} = \frac{\sum_{n=0}^{\infty} c_n x_{\infty}^{-n}}{\sum_{n=0}^{\infty} -nc_n x_{\infty}^{-n-1} + \sum_{n=0}^{\infty} c_n x_{\infty}^{-n} \sum_{n=0}^{\bar{K}} nq_n x_{\infty}^{n-1}}$$
(6)

一般来说泰勒区较大,为了提高精确度,可将泰勒区分为N个小区间。设第i个区间为[x_i, x_{i+1}),取该区间中 心点 $x_i^C = (x_i + x_{i+1})/2$ 作为级数解的展开点,展开半径为 $\Delta_i = (x_i - x_{i+1})/2$,通解为:

$$\Psi_{i}(\rho) = C_{i} \sum_{n=0}^{\infty} c_{i,n} (x - x_{i}^{C})^{n} + D_{i} \sum_{n=0}^{\infty} d_{i,n} (x - x_{i}^{C})^{n}$$
(7)

在每个区间, 定义:

$$S_{1}(i) = \sum_{n=0}^{\infty} c_{i,n} \Delta_{i}^{n}, S_{2}(i) = \sum_{n=0}^{\infty} d_{i,n} \Delta_{i}^{n}, S_{3}(i) = \sum_{n=0}^{\infty} (-1)^{n} c_{i,n} \Delta_{i}^{n}, S_{4}(i) = \sum_{n=0}^{\infty} (-1)^{n} d_{i,n} \Delta_{i}^{n}, S_{5}(i) = \sum_{n=0}^{\infty} n c_{i,n} \Delta_{i}^{n-1}, S_{6}(i) = \sum_{n=0}^{\infty} n d_{i,n} \Delta_{i}^{n}, S_{6}(i)$$

由波函数及其导数的连续性,可得:

$$\begin{cases} C_{i-1}S_{1}(i-1) + D_{i-1}S_{2}(i-1) = C_{i}S_{3}(i) + D_{i}S_{4}(i) \\ C_{i-1}S_{5}(i-1) + D_{i-1}S_{6}(i-1) = C_{i}S_{7}(i) + D_{i}S_{8}(i) \end{cases}$$

$$(8)$$

定义传递矩阵 $\mathbf{T}_{i-1,i} = \begin{bmatrix} S_3(i) & S_4(i) \\ S_7(i) & S_8(i) \end{bmatrix}^{-1} \begin{bmatrix} S_1(i-1) & S_2(i-1) \\ S_5(i-1) & S_6(i-1) \end{bmatrix}$, 可得 $\begin{bmatrix} C_N \\ D_N \end{bmatrix} = \mathbf{T}_{1,N} \begin{bmatrix} C_1 \\ D_1 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} T_{11} & T_{12} \\ T_{21} & T_{22} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} C_1 \\ D_1 \end{bmatrix} \circ$ 在 $x = x_{\pm\infty}$ 处, 由波函数及其导数的比值连续可得 $\frac{S_3(1)C_1 + S_4(1)D_1}{S_7(1)C_1 + S_8(1)D_1} = K_{-\infty}$, $\frac{S_3(N)C_N + S_4(N)D_N}{S_7(N)C_N + S_8(N)D_N} = K_{\infty} \circ$ 此两式 可写为 $\begin{bmatrix} M_{11} & M_{12} \\ M_{21} & M_{22} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} C_1 \\ D_1 \end{bmatrix} = 0$ 。由方程有非零解的条件可得到能量E及相应的波函数。

1.2 超晶格的电子能级和波函数:非正交基对角化

图 2 为 2 个量子阱在外电场下的限制势示意图, 对 2 个量子阱(图中实线)采用分区级数解法,可得它们的能级结构和波函数,体系真实的势函数如图中虚线所示。利用 2 个量子阱的束缚态波函数作为非正交基,可以将哈密顿量对角化,得到能级结构和波函数。QCL 超晶格几个重复单元或 1 个单元的能级结构和波函数可用同样方法得到。

非正交基对角化基本原理:若基函数 $\phi_1,\phi_2,...,\phi_n$ 为非正交基,则广义本征值方程为(H - EM)C = 0。体系的本征能量为本征方程|H - EM| = 0的n个根,C为相应的系数矩阵。其中重叠矩阵M为:



Fig.2 Confinement of quantum wells in the electric field 图 2 两个量子阱在外电场下的限制势示意图



1.3 算法精确性的检验

对QCL超晶格,选用2类不同的设计模式来校验算法的准确性,这2类模式分别为啁啾超晶格和共振声子模式。 1) 啁啾超晶格模式

对于啁啾超晶格模式,超晶格每个重复单元的能带结构中包含2个微带,能量较高微带中的最低态和能量较 低微带中的最高态分别作为上下辐射态,两微带之间的能隙一般小于纵光学声子的能量。

图3为文献[4]中啁啾超晶格模式QCL两个重复单元的结构和能带示意图,其中1个重复单元由7个量子阱组成,势垒/势阱尺寸(nm)依次为: 4.3/18.8/0.8/15.8/0.6/11.7/2.5/10.3/2.9/10.2/3.0/10.8/3.3/9.9,其中第1数个为势垒尺寸,外电场强度为3.5 kV/cm。文献计算得到两辐射态之间能差为18 meV(4.35 THz),其间的偶极矩阵元为7.8 nm,实验测得的辐射光频率约为4.4 THz(18.2 meV)。



Fig.3 Theoretical and experimental results of chirped superlattice THz QCL(extracted from Ref.4) 图 3 啁啾超晶格模式 QCL 能级结构理论计算结果和实验测得的 THz 辐射结果(摘录自文献[4])

图 4 为采用 1 个单元(7 个量子阱)利用分区级数解法和非正交基对角化得到的能级结构。计算得到的两辐射态之间能差为 18.2 meV,与文献理论计算一致,且更接近实验测量结果。计算得到的偶极矩阵元为 7.6 nm,与文献计算结果很接近。



Fig.5 Energy levels and the norms of corresponding wave functions

波函数分布(摘录自文献[12])

of resonant phonon QCL(extracted from Ref.12)

图 5 共振声子模式 QCL 超晶格 2 个重复单元的能级结构和

 $E_{65}=11.4 \text{ eV}$ $f_{65}=0.91$

z₆₅=6.7 nm

 g.4 Energy inversion and the norms of corresponding wave functions of chirped superlattice QCL calculated by the power series and non-orthogonal basis diagonalization method
 图 4 分区级数解法和非正交基对角化得到的啁啾超晶格模式

QCL一个基本单元的能级结构和波函数分布

2) 共振声子模式

在共振声子模式中,下辐射态与注入态之间的能差近似等于纵光学声子的能量*E*_{L0}=36 meV,且要求下辐射态与注入态波函数有较大空间交叠,而上辐射态与注入态空间交叠尽量小,以帮助获得粒子布居数的反转。

图5为文献[12]中共振声子模式的QCL示意图及理论计算结果。在该实验中,整个超晶格由152个重复单元组成,每个单元包含5个量子阱,1个单元中势阱和势垒尺寸依次为4.4/7.7/2.8/6.9/3.6/15.7/1.7/10.2/2.5/8.3(nm),其中第1个数为势垒,外电场为9.5 kV/cm。1个单元中的第5和第6个态可作为辐射态,第1,2,3态为注入态。由图中波函数分布可看出,下辐射态5与注入态有较大交叠,而上辐射态6与注入态交叠很小。文献计算辐射态5,6的能差为11.4 meV,相当于2.755 THz。实验测量的辐射光频率为3 THz,相当于12.4 meV。文献计算的下辐射态与注入态的能差为38.2 meV。

图6为采用本文方法计算的同样结构的超晶格的能级和波函数(模方)分布示意图。计算中首先只取1个单元, 计算两辐射态能差为12.8 meV,与实验测得的12.4 meV接近。下辐射态与注入态的能差为36.8 meV,接近纵光学 声子的能量36 meV。波函数的分布亦表明下辐射态与注入态重叠较大,而上辐射态与注入态重叠较小。



Fig.6 Electronic structures of resonant phonon QCL calculated by power series and non-orthogonal basis diagonalization 图 6 分区级数解法和非正交基对角化得到的共振声子模式 QCL 超晶格 1 个基本单元(左图) 和 2 个基本单元(右图)的能级结构和波函数分布

采用2个单元,即10个量子阱再次计算,得到的两辐射态能差为12.7 meV,更接近实验值,下辐射态与注入态的能差为36.6 meV。用2个单元计算的结果与1个单元计算的结果相近,说明不同单元间的耦合对能量的影响较小。此外,计算的辐射态间的电偶极为Z₆₅=6.05 nm,振子强度为0.83。

需要说明的是,上述电子结构计算方案是一种单粒子态的计算,并未考虑超晶格中电荷分布形成场畴时对体 系电子结构的影响,但与文献比较可以看到,这样的单粒子计算已经获得了与实验结果吻合很好的效果。这主要 是由于超晶格QCL工作时,各级单元间电子基本处于共振隧穿情形,超晶格中的电荷积累效应很小,因此单粒子 的计算就可以很准确地反映体系的电子结构特征。当超晶格QCL各级结构偏离共振隧穿条件较远时,电荷的积累 和场畴的形成会对体系的电子结构产生重要影响,需要进行自洽计算。

2 QCL 超晶格结构设计——电子结构

图 7 为本文设计的共振声子模式 QCL 超晶格结构基本单元及电子结构示意图。超晶格结构基本单元由 4 个量子阱组成(图中虚线矩形区域为 1 个基本单元), 1 个单元中势垒/势阱尺寸为: 5.4/7.9/2.5/6.6/4.1/15/3.3/9(nm), 其中第 1 个数为势垒, 外电场为 10.5 kV/cm, 计算得到的电子能级结构显示:

1) 第1,2个态可作为注入/收集态;

2) 第4,5个态分别作为下、上辐射态(图中黑色粗线), 两辐射态能差 E_{54} =12.6 meV,相当于3.05 THz;两辐射态之 间振子强度为0.94,在共振声子模式设计中为较大的数值;

3) 下辐射态与注入/收集态之间能差为40.9 meV,且二 者空间交叠较大,上辐射态与注入/收集态交叠很小。

超晶格结构确定后, 合适的外电场可使得:

 下辐射态与注入态之间能差接近纵光学声子的能量, 有助于下辐射态粒子布居数的降低;

 2) 任一单元上辐射态与前一单元注入态能量接近,增加 每一级上辐射态的注入;

3)两辐射态之间振子强度较大(共振声子模式中两辐射态之间振子强度一般较小,约为0.5~1)。

图 8 为外电场强度减小 0.5 kV/cm 时体系能级结构和波函数变化示意图。可以看到,当外电场减小时:



Fig.7 A design of superlattice QCL with resonant phonon model 图 7 共振声子模式 QCL 超晶格结构设计

1) 下辐射态与注入态之间能差减小,当此能差明显小于纵光学声子的能量*E*_{L0}=36 meV时,会明显影响下辐射态布居数的耗尽;

2)两辐射态之间的能差减小,QCL辐射波长增大,频率降低,前一单元注入态与本单元上辐射态能差减小;
 3)两辐射态之间的振子强度减小。

图9为外电场强度增加0.5 kV/cm时体系能级结构和波函数变化的示意图。可以看到当外电场增加时:

1) 下辐射态与注入态之间能差增大;

2) 两辐射态之间能差增大,则QCL辐射波长减小,频率增大;

3) 两辐射态间振子强度减小。

总体来看,外电场略为偏离最佳设计电场时,体系波函数的改变不大,尤其下辐射态仍能保持与注入态具有 较大空间重叠,上辐射态与注入态保持较小重叠。以上结果说明共振声子模式QCL设计中,对外加电场偏离设计 值有一定容忍度。



Fig.8 Changes of energy levels and wave functions of resonant phonon QCL with the electric field smaller than the design value 图 8 电场小于设计值时共振声子模式 QCL 能级结构和 波函数分布的改变



Fig.9 Changes of energy levels and wave functions of resonant phonon QCL with the electric field smaller than the design value 图 9 电场大于设计值时共振声子模式 QCL 能级结构和 波函数分布的改变

3 结论

利用分区级数解法和非正交基对角化,可以精确地得到外场下超晶格量子级联激光器的电子结构,以此为基础可以设计不同波长的 QCL,找到最佳结构参数,并进一步讨论外电场偏离最佳设计值对 QCL 特性的影响。

参考文献:

- Kazarinov R F, Suris R A. Possibility of the amplification of electromagnetic waves in a semiconductor with a superlattice[J]. Sov. Phys. Semicond., 1971,5(4):707-709.
- [2] Capasso F, Mohammed K, Cho A Y. Sequential resonant tunneling through a multiquantum well superlattice[J]. Applied Physics Letters, 1986,48(17):478-480.
- [3] Faist J, Capasso F, Sivco D L, et al. Quantum Cascade Laser[J]. Science, 1994,264(5158):553-558.
- [4] Koler R, Tredicucci A, Beltram F, et al. Terahertz semiconductor-heterostructure laser[J]. Nature, 2002, 417(6885):156-159.
- [5] Alton J,Barbieri S,Worrall C,et al. Optimum resonant tunneling injection and influence of doping density on the performance of THz bound-to-continuum cascade lasers[C]// Proc. SPIE. San Jose:[s.n.], 2005,5727:65-73.
- [6] Williams B S, Callebaut H, Kumar S, et al. 3.4-THz quantum cascade laser based on longitudinal-optical-phonon scattering for depopulation[J]. Appl. Phys. Lett., 2003,82(7):1015-1017.
- [7] Williams B S,Kumar S,Hu Q,et al. Operation of terahertz quantum-cascade lasers at 164K in pulsed mode and at 117K in continuous-wave mode[J]. Opt. Express, 2005,13(9):3331-3339.
- [8] Williams B S,Kumar S,Hu Q,et al. High-power terahertz quantum-cascade lasers[C]// CLEO/QELS2006. Long Beach:[s.n.], 2006:1-2.
- [9] Williams B S. Terahertz quantum-cascade lasers[J]. Nature Photonics, 2007,1:517-525.
- [10] 宋嘉麟,唐道华. 电场下 GaAs/Ga1-xAlxAs 量子阱中的子带和激子[J]. 物理学报, 1989, 38(3):385-392.
- [11] Zhu J L,Li Z Q,Yu J Z,et al. Size and shape effects of quantum dots on two-electron spectra[J]. Phys. Rev. B, 1997,55(23): 15819-15823.
- [12] Williams B S,Kumar S,Callebaut H,et al. Terahertz quantum-cascade laser at λ≈100 µm using metal waveguide for mode confinement[J]. Applied Physics Letters, 2003,83(11):2124-2126. (下转第357页)