

doi: 10.3969/j.issn.0490-6756.2017.06.021

半抛物量子阱中二阶非线性光学性质的研究

李俊生, 张志海, 孙东升, 杨亮亮

(盐城师范学院新能源与电子工程学院, 盐城 224002)

摘要: 本文对外加电场作用下 GaAs/AlGaAs 半抛物量子阱非线性光整流和二次谐波极化率进行了研究. 首先, 本文运用密度矩阵和迭代的方法获得外加电场作用半抛物量子阱系统光整流和二次谐波极化率的表达式. 同时, 采用有限差分法求得外加电场作用下该系统的能级和波函数, 避免了精确求解过程中的多重不恰当近似. 结果表明: 1) 有限差分法计算结果相当精确; 2) 外加电场和受限势频率与系统能级、受限势形状、以及光整流和二次谐波极化率有着密切的关系, 同时, 可以通过外加电场和受限势频率实现对该系统光整流和二次谐波极化率的有效调控. 将为基于子带跃迁的光电子器件的制备提供理论基础.

关键词: 量子阱; 有限差分法; 光整流; 二次谐波; 非线性光学

中图分类号: 0437 **文献标识码:** A **文章编号:** 0490-6756(2017)06-1263-06

The study of two-order nonlinear optical properties in semiparabolic quantum well

LI Jun-Sheng, ZHANG Zhi-Hai, SUN Dong-Sheng, YANG Liang-Liang

(College of New Energy and Electronic Engineering, Yancheng Teachers' College, Yancheng 224002, China)

Abstract: Studies aimed at understanding the nonlinear optical properties of GaAs/AlGaAs semiparabolic quantum well under applied electric have focused on optical rectification and second harmonic generation. These studies have taken two complimentary approaches: (1) the compact-density-matrix approach and iterative method have been used to obtain the expressions of optical rectification and second harmonic generation; (2) the finite difference techniques have been used to obtain the energy eigenvalues and their corresponding eigenfunctions of the semiparabolic quantum well under applied electric field. The energy eigenvalues, the shape of the confined potential, optical rectification and second harmonic generation are modulated by the confined potential frequencies and electric field. So the results of a number of numerical experiments indicate that the nonlinear optical rectification and second harmonic generation strongly depends on the confined potential frequencies and applied electric field. This gives a new degree of freedom in various device applications based on the intersubband transitions of electrons.

Keywords: Quantum well; Finite difference method; Optical rectification; Second harmonic generation; Nonlinear optics

1 引言

在过去的几年里,半导体量子阱光学性质已得到深入研究. 这是因为非线性效应在量子阱上可以得到显著地增强. 对于块体材料,因为晶体结构的对称性,非线性效应不是非常强. 同样,对于具有对称结构纳米半导体材料,偶数阶非线性光学效应通常在理论上消失. 因此,对称量子阱非线性光学系数一般为零. 但随着对称性的破缺,量子阱非线性光学系数将不再为零. 为了在量子阱中获得更强的二阶非线性光学系数,可通过外部施加的电场移除对称性的途径实现^[1]. 近年来,电场作用下二阶非线性光学特性得到了广泛关注. 在 2003 年, Li Zhang 和 Xie Hong-Jing^[2-3] 讨论了电场下半抛物量子阱的非线性光学特性. 2005 年郑允宝对电场下非对称量子阱中的非线性光学性质进行了研究. 另外, Ibrahim Karabulut 和 Haluk S-afak^[4] 在 2005 年还对电场下半抛物量子阱光整流效应进行了详尽地讨论. 2014~2016 年, Yuan Jian-Hui^[5-10] 讨论了电场下对称与非对称高斯(半抛物)量子阱的非线性光学特性. 但是为了能够精确求得系统的能级和波函数,采用了一系列的近似. 本文对有限差分法应用于量子力学求解量子阱能级和波函数可行性的分析,我们将通过有限差分的方法对电场下半抛物量子阱的光学性质进行深入地研究.

2 基本原理

在有效质量近似条件中,系统的哈密顿可以写为:

$$H = -\frac{\hbar^2}{2m_e^*} \left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} + \frac{\partial^2}{\partial z^2} \right) + V(z) + q\eta Fz \quad (1)$$

其中,半抛物量子阱势场为:

$$V(z) = \begin{cases} \frac{1}{2} m_e^* \omega_0^2 z^2 & z \geq 0 \\ \infty & z < 0 \end{cases} \quad (2)$$

在这里, z 表示量子阱的生长方向, $\eta = \pm 1$ 分别表示施加的外电场方向沿着(或逆着)生长方向, m_e^* 为材料中的有效质量, \hbar 是普朗克常数, F 是平行于 z 方向上施加的电场的强度, ω_0 是受限谐振子势的频率, q 是电荷的绝对值.

利用有限差分法,方程(1)可以离散化

$$-\frac{\hbar^2}{2m_e^*} \frac{\varphi_{i+1} + \varphi_{i-1} - 2\varphi_i}{\Delta^2} + V_i \varphi_i + qFz_i \varphi_i = E \varphi_i, \quad i=1, 2, \dots, N \quad (3)$$

定义: $t = -\frac{\hbar^2}{2m_e^* \Delta^2}; \zeta_i = qFz_i$, 其中 $\Delta = z_2 - z_1, \hbar$ 是约化普朗克常数. 考虑到束缚条件: $\varphi_0 = \varphi_{N+1} = 0$, 方程(2)可以矩阵化

$$[H][\varphi] = E[\varphi] \quad (4)$$

利用有限差分法,可以得到系统的能级和对应的波函数. 下一步,我们将使用紧凑密度矩阵法和迭代过程来推导半抛物子阱的 SHG 系数,在外电磁场 $F(t) = E_0 \cos\omega t$ 激发下,定义 ρ 作为单电子密度矩阵. 可以得到密度矩阵的运动方程为:

$$\frac{\partial \rho_{ij}}{\partial t} = \frac{1}{\hbar} [H_0 - qz \vec{E}(t), \rho]_{ij} - \Gamma_{ij} (\rho - \rho^{(0)})_{ij} \quad (5)$$

其中, H_0 为无电磁场 $\vec{E}(t)$ 的哈密顿系统, $\rho^{(0)}$ 是其密度矩阵, Γ_{ij} 是弛豫率. 式(5)由如下迭代法进行计算:

$$\rho(t) = \sum_n \rho^{(n)}(t) \quad (6)$$

$$\frac{\partial \rho_{ij}^{n+1}}{\partial t} = \frac{1}{\hbar} \{ [H_0, \rho^{(n+1)}]_{ij} - i\hbar \Gamma_{ij} \rho_{ij}^{(n+1)} \} - \frac{1}{i\hbar} [qz, \rho^{(0)}]_{ij} \vec{E}(t) \quad (7)$$

系统中电子的极化强度可以表示为:

$$p(t) = (\epsilon_0 \chi^{(1)} \vec{E} e^{i\omega t} + \epsilon_0 \chi_{2\omega}^{(2)} \vec{E}^2 e^{2i\omega t}) + c. c + \epsilon_0 \chi_0^{(2)} \vec{E}^2 \quad (8)$$

其中, $\chi^{(1)} \chi_0^{(2)} \chi_{2\omega}^{(2)}$ 分别为线性磁化率,光整流和二次谐波, ϵ_0 是真空介电常数. 系统的 n 阶极化强度又可以表示为:

$$p^{(n)} = \frac{1}{V} \text{Tr}(\rho^{(n)} qz) \quad (9)$$

其中, V 是相互作用的体积,并且 Tr 表示在矩阵 $\rho^{(n)} qz$ 对角元素求迹. 利用方程(9),通过迭代的方式,可以获得 SHG 极化率计及二阶非线性光整流的解析表达式为:

$$\chi_{2\omega}^{(2)} = \frac{q^3 \sigma M_{12} M_{23} M_{31}}{\epsilon_0} \times \frac{1}{(E_{31} - 2\hbar\omega + i\hbar\Gamma_0)(E_{21} - \hbar\omega + i\hbar\Gamma_0)} \quad (10)$$

$$\chi_0^{(2)} = \frac{q^3 \delta}{\epsilon_0 \hbar^2} M_{12}^2 \delta_{12} \times \frac{2E_{21}^2}{[(E_{21} - \hbar\omega)^2 + \Gamma_0^2][(E_{21} + \hbar\omega)^2 + \Gamma_0^2]} \quad (11)$$

其中, σ 是量子阱中电子的体积密度, $\hbar\omega$ 是光子的能量, Γ_0 是弛豫率, E_{ij} 是两种不同的电子态的能级差, M_{ij} 是由 $M_{ij} = \langle i | z | j \rangle$ 给出的非对角线矩阵

元素, 其中 $(i, j=0, 1, 2)$, $\delta_{01} = \mu_{11} - \mu_{00}$.

3 分析与讨论

在有限差分方法在对电场诱导半抛物量子阱二

次谐波极化率理论研究过程中, 采用的参数如下^[7]: $m_e^* = 0.067m_0$ (m_0 为电子质量), 频率 $\omega_0 = 3.6 \times 10^{14}$ Hz, $\sigma = 5.0 \times 10^{24} \text{ m}^{-3}$, $\Gamma_0 = 1/0.14 \text{ ps}$ 编写程序, 并借助 Matlab 工具进行计算, 得到图表如下:

表 1 半抛物量子阱几个低能级态的能级

Tab. 1 The energy levels of several low energy states in a semi parabolic quantum well

Electric field value (10^7 V/m)	Exact solution(eV)			Differential calculation solution(eV)		
	E_1	E_2	E_3	E_1	E_2	E_3
0.0	0.355435	0.829347	1.303260	0.3541	0.8273	1.3008
0.5	0.367740	0.847838	1.326387	0.3664	0.8458	1.3238
1.0	0.379938	0.866231	1.349418	0.3785	0.8641	1.3468
1.5	0.392031	0.884527	1.372353	0.3906	0.8824	1.3697
2.0	0.404022	0.902728	1.395194	0.4025	0.9005	1.3925
2.5	0.415914	0.920834	1.417941	0.4144	0.9186	1.4152
3.0	0.427709	0.938849	1.440596	0.4261	0.9366	1.4378
3.5	0.439411	0.956772	1.463160	0.4378	0.9545	1.4603
4.0	0.451020	0.974605	1.485634	0.4493	0.9722	1.4828
4.5	0.462540	0.992349	1.508018	0.4608	0.9899	1.5051
5.0	0.473973	1.010007	1.530314	0.4722	1.0076	1.5274

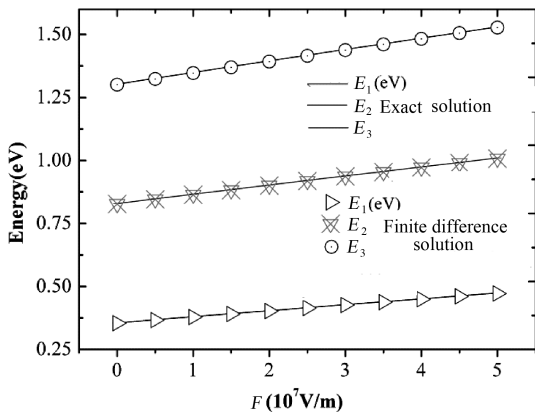


图 1 半抛物量子阱几个低能激发态能级

Fig. 1 Schematic diagrams for the energy levels of several low energy states in a semi parabolic quantum well

经过计算, 抛物与半抛物量子阱几个低能激发态能级如表 1 和图 1 所示, 从表中可以看出有限差分结果和精确求解结果符合非常好. 对于半抛物量子阱情况, 有限差分结果与精确解对比, 相对误差小于 0.4%. 因此, 利用有限差分方法进行求解是合理的. 有限差分法、量子力学中的本征值问题和 Matlab 计算工具有机地结合起来, 将量子力学求解本征值和波函数就转化为求解矩阵的本征值和本征矢, 在一定精度要求范围内, 可以反映出实际系统的能级和波函数. 从表 1 与图 1 中可以看出, 随着电场强度的增加, 半抛物量子阱的几个最低能级都是在增加的. 主要原

因在于电场的存在, 使得受限量子阱有效半径减小, 从而引起能级增加, 电场越大, 有效半径越小, 因此各能级随电场增加是增大的.

图 2(a) 为 $\eta = +1$ 时, 在三个不同场强 $F=0, 2 \times 10^7, 5 \times 10^7 \text{ V/m}$ 下 SHG 极化率 $\chi_{2\omega}^{(2)}$ 与光子能量 $\hbar\omega$ 的关系, (b) 与 (c) 分别为电场 F 下的能级差 ΔE (eV) 与矩阵元素 $M_{12}M_{23}M_{31}$. 从图 2(a) 可以知道: (1) 随着电场强度的增加, 峰值所对应的光子能量随之增加, 也就是说电场能够诱导光谱蓝移; (2) 随着电场强度的增加, 光谱发生劈裂, 并且谱线宽度也在增加; (3) 随着电场强度的增加, 二次谐波极化率峰值逐渐减小. 为了解释上述现象, 我们分别讨论了能级差 ΔE (eV) (图 2(b)) 与矩阵元素 $M_{12}M_{23}M_{31}$ ((图 2(c)) 随电场强度的变化情况. 从图 2(b) 中, 我们可以看出, 随着电场强度的增加, E_{21} 和 $E_{31}/2$ 能级都在增加, 并且两者之间的能级差值不断的增大. 由方程(10)我们可以知道峰值对应的光子能量约在 E_{21} 或者 $E_{31}/2$ 附近, 因此很容易解释电场诱导的光谱蓝移. 在图(a)中 $F=0$ 和 2 时, 我们可以看到一个峰值的波峰, 主要原因在于 E_{21} 和 $E_{31}/2$ 能级相近, 满足近似双光子共振条件. 随着电场的增加(如 $F=5$), E_{21} 和 $E_{21} - E_{31}/2$ 两者之间的差值不断增大, 从而导致近似的双光子共振条件不能得到满足, 这时单峰将会劈裂成为两个不同的双峰, 由此便可解释随着电场强度增加, 光谱发生劈裂的原因. 当双光

子共振条件不能满足时,此时两个最大峰值主要来自两个单光子共振,随着电场的增加,两个共振能量也随之增大,并且两者之间的差值也在变大,因此可以解释谱线宽度随着电场的增加而增大. 图 2(a)和(b)可以看出谱线最大峰值所对应的光子共振能在

$E_{31}/2$ 附近,因此最大峰值约为 $|M_{12}M_{23}M_{31}|/(E_{21} - E_{31}/2)$. 由图 2(c)可知,几何因子 $|M_{12}M_{23}M_{31}|$ 随着电场强度的增加而减小,而由图 2(b)可以看出 $E_{21} - E_{31}/2$ 两者之间的差值不断增大,因此随着电场强度的增加,二次谐波极化率峰值不断减小.

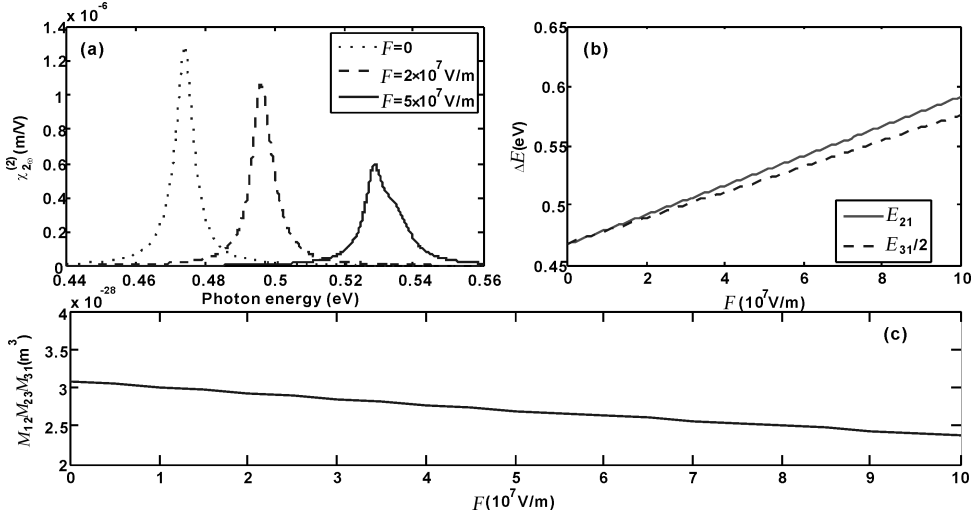


图 2 (a)为 $\eta=+1$ 时在三个不同场强 $F=0, 2 \times 10^7, 5 \times 10^7$ V/m 下 SHG 极化率 $\chi_{2\omega}^{(2)}$ 与光子能量 $\hbar\omega$ 的关系; (b)与(c)分别为电场 F 下的能级差 ΔE (eV)与矩阵元素 $M_{12}M_{23}M_{31}$

Fig. 2 The second harmonic susceptibility versus the photon energy for $\eta=+1$ with three different strengths of the electric field $F=0, 2 \times 10^7, 5 \times 10^7$ V/m (a); the energy levels space ΔE (eV) (b), and the matrix elements $M_{12}M_{23}M_{31}$ (c) are plotted as a function of the electric field F , respectively

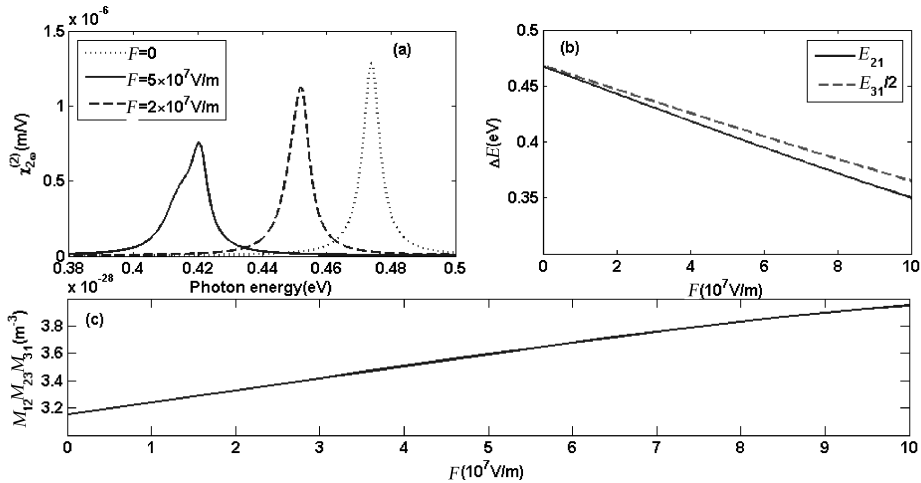


图 3 (a)为 $\eta=-1$ 时在三个不同场强 $F=0, 2 \times 10^7, 5 \times 10^7$ V/m 下 SHG 极化率 $\chi_{2\omega}^{(2)}$ 与光子能量 $\hbar\omega$ 的关系; (b)与(c)分别为电场 F 下的能级差 ΔE (eV)与矩阵元素 $M_{12}M_{23}M_{31}$

Fig. 3 The second harmonic susceptibility versus the photon energy for $\eta=-1$ with three different strengths of the electric field $F=0, 2 \times 10^7, 5 \times 10^7$ V/m (a); the energy levels space ΔE (eV) (b), and the matrix elements $M_{12}M_{23}M_{31}$ (c) are plotted as a function of the electric field F , respectively

图 3(a)为 $\eta = -1$ 时,在三个不同场强 $F=0, 2 \times 10^7, 5 \times 10^7$ V/m 下 SHG 极化率 $\chi_{2\omega}^{(2)}$ 与光子能

量 $\hbar\omega$ 的关系,(b)与(c)分别为电场 F 下的能级差 ΔE (eV)与矩阵元素 $M_{12}M_{23}M_{31}$. 从图 3(a)可以知

道:(1)随着电场强度的增加,峰值所对应的光子能量在减小,也就是说电场能够诱导光谱红移;(2)随着电场强度增加,光谱发生劈裂,并且谱线宽度也在增加;(3)随着电场强度的增加,二次谐波极化率峰值逐渐减小. 为了解释上述现象,我们分别讨论了能级差 ΔE (eV) (图 3 (b)) 与矩阵元素 $M_{12}M_{23}M_{31}$ ((图 3(c))随电场强度的变化情况. 从图 3(b)中,可以看出,随着电场强度的增加, E_{21} 和 $E_{31}/2$ 能级都在减小,并且随着电场的增加,两者之间的能级差值不断的增大,因此很容易解释电场诱导的光谱红移. 和图 2(a)中相同,随着电场强度的增加,近似的双光子共振条件向着单光子共振条

件转变,这个时候单峰将会劈裂成为两个不同的双峰,光谱发生劈裂,同时,由于两个单光子光子共振能之间的差值随着电场强度增加而增大,从而谱线宽度逐渐增大. 由图 2(a)和(b)可知谱线最大峰值所对应的光子共振能在 E_{21} 附近,因此最大峰值约为 $|M_{12}M_{23}M_{31}|/(E_{31}/2 - E_{21})$. 图 2(c)中可以看出几何因子 $|M_{12}M_{23}M_{31}|$ 随着电场强度的增加而增大,从图(b)可知 E_{21} 与 $E_{31}/2$ 间的差值也在不断增大,但 $E_{31}/2 - E_{21}$ 随电场的变化较 $|M_{12}M_{23}M_{31}|$ 大,因此,随着电场强度的增加,二次谐波极化率峰值随之不断减小.

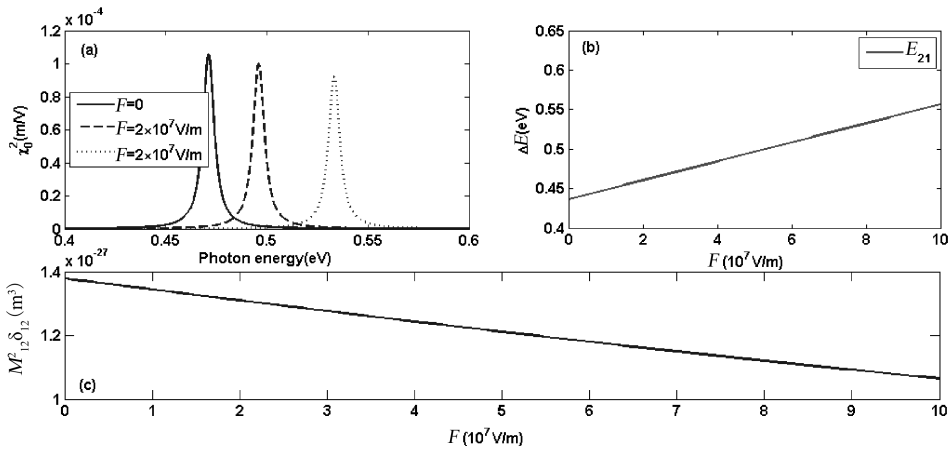


图 4 (a)为 $\eta = +1$ 时在三个不同场强 $F=0, 2 \times 10^7, 5 \times 10^7$ V/m 下光整流系数 $\chi_0^{(2)}$ 与光子能量 $\hbar\omega$ 的关系;(b)与(c)分别为能级差 ΔE (eV)和几何因子 δ 与电场 F 间的关系.

Fig. 4 The optical rectification versus the photon energy for $\eta = +1$ with three different strengths of the electric field $F=0, 2 \times 10^7, 5 \times 10^7$ V/m (a); the energy levels space ΔE (eV) (b), and the matrix elements δ (c) are plotted as a function of the electric field F , respectively

图 4(a)为 $\eta = +1$ 时,在三个不同场强 $F=0, 2 \times 10^7, 5 \times 10^7$ V/m 下光整流系数 $\chi_0^{(2)}$ 与光子能量 $\hbar\omega$ 的关系,从图 4(a)中可以看出:(1)随着电场强度的增加,峰值谱线发生蓝移,主要原因在于随着电场强度的增加, E_{21} 能级在增加(见图 4(b));(2)随着电场强度的增加,谱线峰值在减小. 从方程(10)可以知道,谱线峰值约在 E_{21} 附近,换句话说,当光子能量满足条件 $E_p = E_{21}$ 时,单光子共振条件得到满足,此时光整流系数将会出现一个峰值. 由方程(10)可以知道,谱线峰值正比于几何因子 δ ,从图(c)中可以看到几何因子 δ 随着电场强度的增加而减小,由此可以解释谱线峰值随着电场强度的增加而减小.

图 5(a)为 $\eta = -1$ 时,在三个不同场强 $F=0, 2 \times 10^7, 5 \times 10^7$ V/m 下的光整流系数 $\chi_0^{(2)}$ 与光子能

量 $\hbar\omega$ 的关系,和图 4(a)不同的是:(1)随着电场强度的增加,谱线发生红移,原因在于随着电场强度的增加, E_{21} 能级逐渐减小(见图 5(b)).(2)随着电场强度的增加,谱线峰值也随之增加,原因在于几何因子 δ 随着电场强度的增加而增大.

4 结 论

文中主要研究了外加恒定电场对半抛物量子阱中二次谐波和光整流产生的影响. 所运用的研究方法主要是用有限差分的方法,研究在非对称抛物量子阱中的二阶光学非线性,并通过 Matlab 画出波形图. 研究结果表明,电场对半抛物量子阱中二次谐波和光整流产生的影响是比较明显的. 数值结果表明,当电场的方向是沿量子阱的生长方向时,二次谐波极化率和非线性光整流总是随着电场

强度增强而减弱. 然而, 当电场方向与量子阱的生长方向相反时, 随着电场强度增强, 二谐波极化率仍被削弱, 而非线性光整流得到加强. 沿着或逆着

量子阱生长方向施加电场增强时能够引起二次谐波和光整流谱线发生蓝移或红移效应, 可以通过量子阱能级结构进行合理的解释.

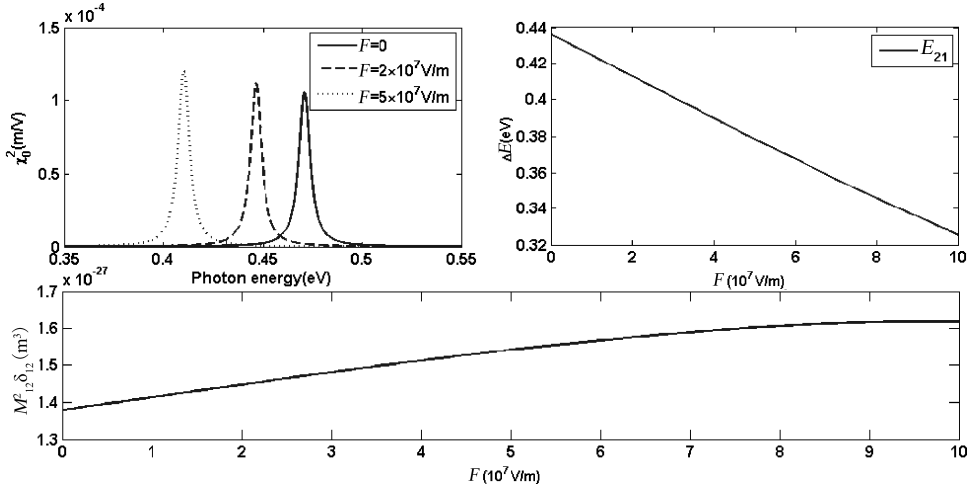


图 5 (a) 为 $\eta = -1$ 时在三个不同场强 $F=0, 2 \times 10^7, 5 \times 10^7$ V/m 下的光整流系数 $\chi_0^{(2)}$ 与光子能量 $\hbar\omega$ 的关系; (b) 与 (c) 分别为能级差 ΔE (eV) 和几何因子 δ 与电场 F 间的关系
Fig. 5 The optical rectification versus the photon energy for $\eta = -1$ with three different strengths of the electric field $F=0, 2 \times 10^7, 5 \times 10^7$ V/m (a); the energy levels space ΔE (eV) (b), and the matrix elements δ (c) are plotted as a function of the electric field F , respectively

参考文献:

- [1] Zhang Z H, Zou L L, Guo K X, *et al.* The effect of hydrostatic pressure, temperature and magnetic field on the nonlinear optical properties of asymmetrical Gaussian potential quantum wells [J]. Phys E, 2016, 77: 90.
- [2] Zhang L, Xie H J. Electric field effect on the second-order nonlinear optical properties of parabolic and semiparabolic quantum wells [J]. Phys Rev B, 2003, 68: 235315.
- [3] Zhang L, Xie H J. Electro-optic effect in a semiparabolic quantum well with an applied electric field [J]. Mod Phys Lett B, 2003, 9: 347.
- [4] Ibrahim K, Haluk S. Nonlinear optical rectification in semiparabolic quantum wells with an applied electric field [J]. Phys B, 2005, 368: 82.
- [5] Yuan J H, Chen N, Mo H, *et al.* The second harmonic generation in symmetrical and asymmetrical Gaussian potential quantum wells with applied electric field [J]. Supperlatt Microstruct, 2015, 88: 389.
- [6] Yuan J H, Zhang Z H. Comment on "linear and nonlinear optical absorption coefficients and refractive index changes in asymmetrical Gaussian potential quantum wells with applied electric field" [J]. Supperlatt Microstruct, 2015, 88: 1.
- [7] Yuan J H, Zhang Y, Mo H, *et al.* The second-harmonic generation susceptibility in semiparabolic quantum wells with applied electric field [J]. Opt Commun, 2015, 356: 405.
- [8] Yuan J H, Chen N, Zhang Z H, *et al.* Energy spectra and the third-order nonlinear optical properties in GaAs/AlGaAs core/shell quantum dots with a hydrogenic impurity [J]. Supperlatt Microstruct, 2016, 100: 957.
- [9] Yuan J H, Chen N, Zhang Y, *et al.* Electric field effect on the second-order nonlinear optical properties in semiparabolic quantum wells [J]. Phys E, 2016, 77: 102.
- [10] Zhang Z H, Zou L L, Guo K X, *et al.* The nonlinear optical rectification in asymmetrical and symmetrical Gaussian potential quantum wells with applied electric field [J]. Opt Commun, 2016, 359: 316.