

影响 AlGaIn/GaN 量子级联激光器性能的因素研究

孙京南¹ 孙文军¹ 赵立萍² 李娟¹ 李孟洋¹ 支洪武¹

(¹ 哈尔滨师范大学物理与电子工程学院, 黑龙江 哈尔滨 150025)
² 牡丹江师范学院物理系, 黑龙江 牡丹江 157012)

摘要 在已有理论基础之上,采用严格的计算方法对激光器实现太赫兹(THz)波的辐射进行了可能性分析。利用传递矩阵法,通过 Matlab 软件计算了基于 AlGaIn/GaN 材料体系的三能级量子级联激光器导带子能级与电子波函数的分布,详细分析了由该材料特有的极化效应所产生的极化场,得出了在近共振条件下偶极跃迁元、外加电场、垒层 Al 组分及导带子能级能级差之间的关系,并研究了它们对激光器性能的影响。分析结果表明,实现受激辐射的条件非常严格,Al 组分取 0.15 或 0.16 时较为适宜,同时外加电场需大于 63 kV/cm,但不能过大,这样才能满足近共振条件,实现粒子数反转达到太赫兹量子级联激光。在 Al 组分为 0.15,外加电场为 69.0 kV/cm 时激光器的偶极跃迁元最大,表明跃迁几率也最大,对激光器的性能有利,可以为量子级联激光器构造较好的有源区。

关键词 量子级联激光器;有源区;极化;偶极跃迁元;Al 组分;传递矩阵法

中图分类号 O43 **文献标识码** A **doi**: 10.3788/AOS201232.0214002

Study of the Factors Influencing the Properties of AlGaIn/GaN Quantum Cascade Lasers

Sun Jingnan¹ Sun Wenjun¹ Zhao Liping² Li Juan¹ Li Mengyang¹ Zhi Hongwu¹

¹ Heilongjiang Key Laboratory for Advanced Functional Materials Excited State Processes,
School of Physics and Electronic Engineering Harbin Normal University, Harbin, Heilongjiang 150025, China
² Department of Physics, Mudanjiang Teachers College, Mudanjiang, Heilongjiang 157012, China

Abstract Based on the predecessor's theoretical achievements, probabilistic analysis for realizing terahertz (THz) radiation of lasers by strict calculation method is given. The distributions of conduction subband structure and the electron wave function of GaN-based three-level quantum cascade lasers are solved with the transfer matrix method by Matlab, the polarization field of material is analyzed detailedly. The relationships among dipole matrix element, applied external electric field, the barrier layer of Al composition and energy difference of conduction subband in near-resonant conditions are calculated, and their effects on properties of lasers are studied. The analysis of the results shows that realizing stimulated radiation is very strict, it is proper that the composition of Al is 0.15 or 0.16, and the external electric field intensity is greater than 63 kV/cm, but is not too large. In this case, the near-resonant conditions can be satisfied, so that population inversion is realized to reach THz quantum cascade lasing. While the largest dipole matrix element is obtained at the composition of Al of 0.15 and the external electric field intensity of 69.0 kV/cm, indicating that transition probability is also the largest. It is beneficial for the properties of lasers, thus the preferable active region can be constructed for quantum cascade lasers.

Key words quantum cascade laser; active region; polarization; dipole matrix element; Al composition; transfer matrix method

OCIS codes 140.5965; 140.3070; 260.5430; 140.3430

收稿日期: 2011-06-21; **收到修改稿日期**: 2011-09-11

基金项目: 黑龙江省 2011 年研究生创新科研资金(YJSCX2011-414HLJ)、黑龙江省青年基金(QC06C043)、哈尔滨市青年基金(2006RFQXG055)、黑龙江省教育厅骨干教师项目(1251G031)和哈尔滨师范大学预研项目(08XYS-01)资助课题。

作者简介: 孙京南(1986—),女,硕士研究生,主要从事量子级联激光器有源区的设计方面的研究。

E-mail: sunlanlan1986@sohu.com

导师简介: 孙文军(1975—),男,博士,副教授,主要从事影像光学与光电检测等方面的研究。

E-mail: swjgood0139@126.com(通信联系人)

1 引 言

量子级联激光器(QCL)^[1~3]是一种基于导带子带间跃迁的半导体激光器,其激射是利用量子阱的限制效应引起导带内激发态间粒子数反转产生的。1994年以来,通过分子束外延(MBE)及有机金属化学气相外延(MOCVD)材料生长技术已实现了多种材料系统的量子级联激光器器件生长^[4~6],比如 GaAs/AlGaAs、AlInAs/GaInAs 与 AlGaN/GaN。一般设计要求激发低能态与基态间的带隙略大于纵向光学(LO)声子能量,然而前两种材料自身存在缺点,它们的 LO 声子能量分别为 36 meV(GaAs)和 34 meV(InGaAs),与室温下的热激发能(26 meV)相差很小,电子从基态向下一级抽运的效率降低,使得激光器不易实现室温下的受激辐射。而 AlGaN/GaN 材料具有良好的耐高温性,其 LO 声子能量为 90 meV,远大于热激发能,利用其量子阱中超快的 LO 声子散射^[7]能够迅速减少激发低能态上的粒子数,易实现室温下的粒子数反转,提高激光器的性能。

有源区^[8]是量子级联激光器的核心,其内部导带电子子能级和波函数的分布是决定粒子数能否实现反转的重要条件,进而决定激光器能否实现受激辐射,因此对子能级和波函数的计算是设计量子级联激光器的先导和基础。本文以 AlGaN/GaN 材料制备的三能级量子级联激光器为研究对象,因为该材料具有很强的极化效应,所以在计算时要对极化加以考虑。通过 Matlab 软件用传递矩阵法^[9]求解激光器的一维薛定谔方程,进而确定在各阱中子带的能级位置及其波函数的分布,讨论了偶极跃迁元、外加电场、Al 组分三个参数对激光器的影响。偶极跃迁元越大,激光器导带内激发高能态向低能态跃迁的几率就越大;当 Al 组分增大时,所需外加电场也随之增大;Al 组分越小,偶极跃迁元越大。

2 理论分析计算

依据有效质量理论,设沿 c 轴生长的 AlGaN/GaN 量子级联激光器其导带电子子能级满足的薛定谔方程^[10~16]为

$$-\frac{\hbar^2}{2} \frac{d}{dz} \left[\frac{1}{m^*(z)} \frac{d\psi_i}{dz} \right] + (\Delta U + eFz)\psi_i = E_i\psi_i, \quad (1)$$

其中 $m^*(z)$ 代表电子的有效质量,而阱和垒中电子的有效质量分别为

$$m_w^*(\text{GaN}) = 0.22m_0, \quad (2)$$

$$m_b^*(\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}) = [0.33x + 0.22(1-x)]m_0, \quad (3)$$

其中的 m_0 为静电子有效质量, x 为 $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 中的 Al 组分。(1)式中 ΔU 为势垒、势阱材料导带底的能量差,

$$\Delta U = 0.7[E_g(x) - E_g(0)], \quad (4)$$

$$E_g(x) = E_g(\text{AlN})x + E_g(\text{GaN})(1-x) - 1.0x(1-x) = 6.13x + 3.42(1-x) - 1.0x(1-x), \quad (5)$$

(4)式中的 $E_g(0)$ 为 GaN 材料的禁带宽度。(1)式中 F 为总电场, $F = F_0 + F_p$, F_0 是外加电场, F_p 是内建场,内建场由极化效应产生,包括自发极化和压电极化。在垒层 $F_p = F_b$, F_b 为垒层的内建场,

$$F_b = L_w(P_{\text{tot}}^w - P_{\text{tot}}^b)/[\epsilon_0(L_b\epsilon_w + L_w\epsilon_b)]; \quad (6)$$

在阱层 $F_p = F_w$, F_w 为阱层的内建场,

$$F_w = L_b(P_{\text{tot}}^b - P_{\text{tot}}^w)/[\epsilon_0(L_w\epsilon_b + L_b\epsilon_w)], \quad (7)$$

式中 L_w, L_b 分别为阱层、垒层的厚度, ϵ_0 是真空介电常数, ϵ_w, ϵ_b 分别是阱、垒中的介电常数, P_{tot}^w 为阱层总的极化强度,

$$P_{\text{tot}}^w = P_{\text{sp}}^w + P_{\text{pz}}^w, \quad (8)$$

式中 P_{tot}^b 为垒层总的极化强度,

$$P_{\text{tot}}^b = P_{\text{sp}}^b + P_{\text{pz}}^b, \quad (9)$$

式中 $P_{\text{sp}}^w, P_{\text{sp}}^b$ 分别为阱、垒层自发极化(PSP)强度。自发极化是由 GaN, AlGaN 自身晶格常数不匹配引起的,方向与材料生长方向相反,AlGaN 的自发极化强度与 Al 组分有关,自发极化强度可统一表示为

$$P_{\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}}^{\text{sp}} = -0.090x - 0.034(1-x) + 0.019x(1-x). \quad (10)$$

式中 $P_{\text{pz}}^b, P_{\text{pz}}^w$ 分别为垒层和阱层的压电极化(PPE)强度。压电极化是由于 GaN 与 AlGaN 两种材料的晶格常数不匹配引起的,AlGaN, AlN 和 GaN 的压电极化强度表达式分别为

$$P_{\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}}^{\text{pz}} = xP_{\text{AlN}}^{\text{pz}}[\epsilon(x)] + (1-x)P_{\text{GaN}}^{\text{pz}}[\epsilon(x)], \quad (11)$$

$$P_{\text{AlN}}^{\text{pz}} = -1.808\epsilon + 5.624\epsilon^2, \quad (12)$$

$$P_{\text{GaN}}^{\text{pz}} = -0.918\epsilon + 9.541\epsilon^2, \quad (13)$$

式中的 ϵ 为介电常数,

$$\epsilon(x) = \frac{c_0 - c(x)}{c(x)}, \quad (14)$$

c_0 和 $c(x)$ 是沿 c 轴生长的无应变晶格常数和应变晶格常数, $c_0 = 5.185 \times 10^{-10} \text{ m}^{[17]}$, $c(x) = (0.4982x + 0.5185) \text{ nm}$ 。材料沿 z 方向生长,(1)式中的 E_i 与 ψ_i 分

别是第 i 个子能级的能量和波函数。

通过计算得到以上参数,将其分别代入薛定谔方程得到量子级联激光器两个周期单元的导带子能级和电子波函数在各阱中的分布。

3 结果分析与讨论

本文在 Sun 等^[18,19]报道的结构基础之上,细致研究了有源区为图 1 所示结构的 AlGaIn/GaN 材料的三能级量子级联激光器,其垒层为 AlGaIn,衬底为 GaN 材料^[20]。

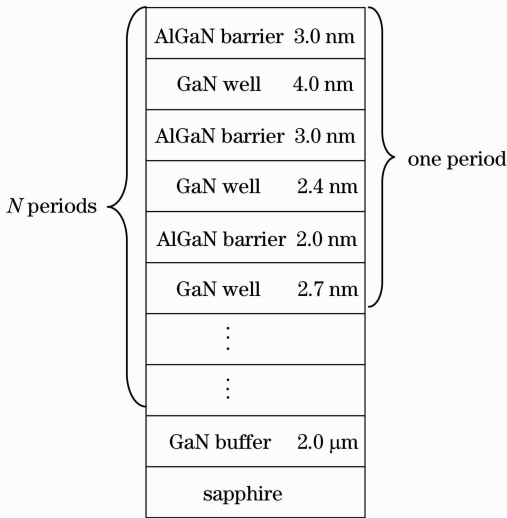


图 1 QCL 有源区的结构示意图

Fig. 1 Schematic diagram of active layer structure in QCL

通过 Matlab 计算得到在外加电场 $F_0 = 69$ kV/cm、Al 组分为 0.15 时,该结构 $\text{Al}_{0.15}\text{Ga}_{0.85}\text{N}/\text{GaN}$ 量子级联激光器两个周期的导带子能级和电子波函数在阱中的分布,如图 2 所示。由图 2 可以看出,阱层与垒层的势能向相反方向变化,这是由于极化效应导致阱层与垒层产生方向相反的内建场。第 1 周期阱层的主能级为 E_1, E_2 和 E_3 ,第 2 周期为 E_4, E_5 和 E_6 。由于太赫兹波段的量子级联激光器导带电子子能级很小, E_2 与 E_1 能级间利用超快的 LO 声子散射可迅速减少 E_2 能级上的粒子数,从而实现粒子数反转,就需要设计 E_2 与 E_1 能级差略大于 LO 声子能量,即 $\Delta E_{21} \geq 90$ meV。同时 E_4 与 E_3 能级间要发生电子隧穿来实现第 2 周期到第 1 周期的级联,就需要 E_4 与 E_3 能级差略大于零,即 $\Delta E_{43} \geq 0$ 。以上需要满足的两个条件即为近共振条件。 E_3 与 E_2 能级间跃迁释放光子,实现太赫兹波的辐射。通过计算得到 E_3 与 E_2 能级差为 $\Delta E_{32} = 0.0171$ eV,即为激光器激发的光子能量,激光波长约为 $72.5 \mu\text{m}$,频率约为 4.1 THz。而

E_2 与 E_1 能级差为 $\Delta E_{21} = 0.0943$ eV,与 AlGaIn/GaN 材料的 LO 声子能量(90 meV)接近,同时 E_4 与 E_3 能级的差 $\Delta E_{43} = 0.0058$ eV 略大于 0,满足近共振条件。用同样的方法计算外加电场在 58 ~ 72 kV/cm 之间时该结构的导带子能级和电子波函数,得到外加电场与导带电子主能级差间的关系,如图 3 所示。由图 3 可看出,当 $F_0 \geq 63$ kV/cm 时,有 $\Delta E_{21} \geq 90$ meV, $\Delta E_{43} \geq 0$,但随着外加电场的增大, ΔE_{21} 也在增大,当 ΔE_{21} 增加到一定程度时, E_2 与 E_1 能级差 ΔE_{21} 比 LO 声子能量大很多,不满足近共振条件,也就不利于激光器的粒子数反转。

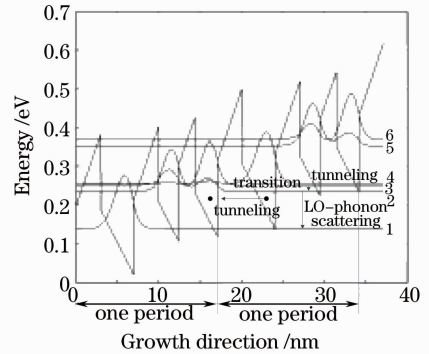


图 2 外加电场 $F_0 = 69$ kV/cm、Al 组分 $x = 0.15$ 时子带的能级结构和电子波函数

Fig. 2 Band structure, subband energy separations and wave functions of the active region under the external electric field $F_0 = 69$ kV/cm, the Al composition $x = 0.15$

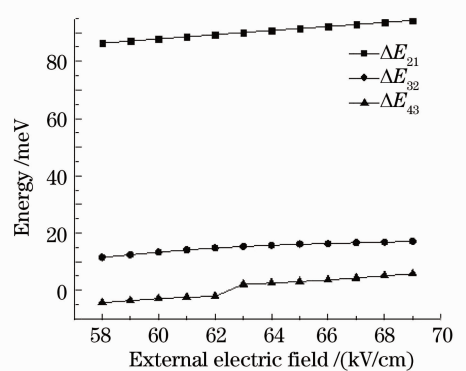


图 3 Al 组分 $x = 0.15$ 时,外加电场 F_0 与能级差 ΔE 之间的关系

Fig. 3 Relation between the external electric field F_0 and subband energy separations ΔE when the Al composition $x = 0.15$

计算该结构激光器在外加电场不变 $F_0 = 69$ kV/cm,垒层 Al 组分取 0.10 ~ 0.20 时,Al 组分与能级差 ΔE 之间的关系,如图 4 所示。由图 4 得

知 Al 组分取 0.15~0.18 时有 $\Delta E_{21} \geq 90$ meV, $\Delta E_{43} \geq 0$, 但取 0.17 或 0.18 时存在 $\Delta E_{21} > 100$ meV, 比 90 meV 高出较多, 不满足近共振条件, 所以 Al 组分取 0.15 或 0.16 较为适宜。

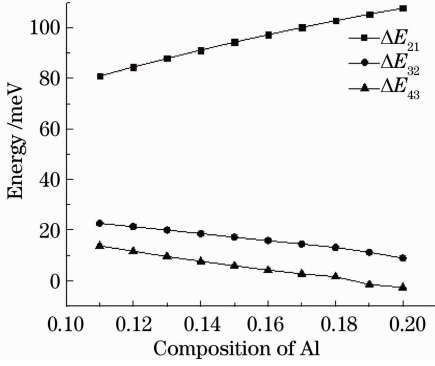


图 4 在外加电场 $F_0 = 69$ kV/cm 时, Al 组分与能级差 ΔE 之间的关系

Fig. 4 Relation between the Al composition and subband energy separations when the external electric field $F_0 = 69$ kV/cm

通过计算还得到在 Al 组分取 0.10~0.21 时, 外加电场 F_0 与偶极跃迁元 Z_{32} 的关系, 如图 5 所示,

偶极跃迁元的表达式为 $Z_{ji} = \int \phi_j^* z \phi_i dz$, 其中 ϕ_i 和 ϕ_j 分别是第 i 个子能级和第 j 个子能级的波函数,

ϕ_j^* 是 ϕ_j 的复共轭, 偶极跃迁元是表征第 j 个能级向第 i 个能级跃迁几率的量。分析可知, 在外加电场相同时, 低 Al 组分的激光器其偶极跃迁元 Z_{32} 相对较大, 因为在低 Al 组分情况下, 能级 E_3 与 E_2 的间距相对要小, 使得两能级上的电子波函数耦合系数更大, 跃迁几率就更大。而高 Al 组分的薄膜质量差对阱中电子波函数的约束强, 会降低辐射跃迁条件削弱 Z_{32} , 同时所需外加电场也随之增大才能满足近共振条件, 实现粒子数反转。由图 4 已知 Al 组分取 0.15 或 0.16 较为适宜, 表 1 为 Al 组分取 0.15, 0.16, 外加电场 F_0 取 66~70 kV/cm 时所对应的 Z_{32} 数值。综合图 5 和表 1, 得到在 Al 组分为 0.15、外加电场 F_0 为 69 kV/cm 时, 偶极跃迁元 Z_{32} 取得最大值, 即 E_3 向 E_2 能级跃迁的几率最大, 此时偶极跃迁元为 $Z_{32} = 2.0785$ nm。图 6 为结构不变、外加电场不变时, Al 组分与偶极跃迁元的关系。由图 6 可看出, 高的 Al 组分对应的偶极跃迁元 Z_{32} 下降得很快, 且高 Al 组分的 AlGaN/GaN 材料不易获得, 所以 Al 组分约为 0.15、外加电场 $F_0 = 69$ kV/cm 时, 对该激光器性能较为有利, 且可获得太赫兹波段的激光波长。

表 1 结构不变, Al 组分分别为 0.15, 0.16 时, 外加电场 F_0 取 66~70 kV/cm 所对应的 Z_{32}
Table 1 Z_{32} values for the structure at the Al composition $x=0.15, 0.16$ when the external electric field F_0 is from 66 to 70 kV/cm

$F_0 / (\text{kV/cm})$	Z_{32} / nm	
	$x=0.15$	$x=0.16$
66	2.0223	1.8108
67	2.0596	1.9614
68	2.0753	2.0302
69	2.0785	2.0591
70	2.0741	2.0675

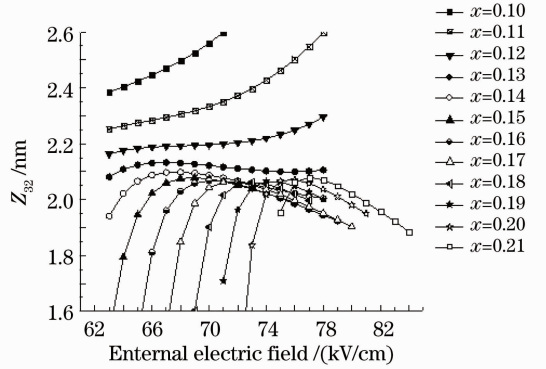


图 5 不同 Al 组分下, 外加电场 F_0 与偶极跃迁元 Z_{32} 的关系

Fig. 5 Relation between the external electric field F_0 and the dipole transition element Z_{32} with different Al compositions

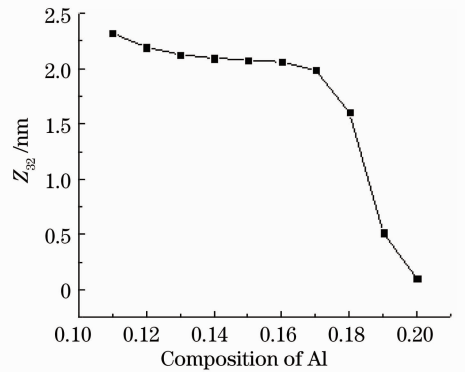


图 6 在外加电场 $F_0 = 69$ kV/cm 时, Al 组分与偶极跃迁元 Z_{32} 的关系

Fig. 6 Relation between the Al composition and the dipole transition element Z_{32} when the external electric field $F_0 = 69$ kV/cm

4 结 论

通过求解 AlGaN/GaN 材料量子级联激光器双周期的一维有效质量薛定谔方程, 得到了导带电子

子能级与波函数的分布。比较分析发现,当外加电场 F_0 的最小值为 63 kV/cm 时,文中的结构在三能级系统下跃迁,Al 组分取 0.15 或 0.16 较为适宜,进而实现在近共振条件下的级联激射。当 Al 组分为 0.15,外加电场为 69 kV/cm 时偶极跃迁元取得最大值。不考虑阱和垒的厚度对激光器性能的影响,依据上述理论可以设计较好的 AlGaIn/GaN 量子级联激光器的有源区,进而实现太赫兹波段的受激辐射。除了上述理论中的因素对激光器性能有影响外,也可改变阱或垒的宽度来研究激光器性能的改变。

参 考 文 献

- Liu Junqi, Liu Fengqi, Che Xiaoling *et al.*. Progress on the material structure design of GaAs-based quantum cascade lasers [J]. *Micronanoelectronic Technology*, 2004, (8): 6~13
刘俊岐,刘峰奇,车晓玲等. GaAs 基量子级联激光器材料结构设计的进展[J]. 微纳电子技术, 2004, (8): 6~13
- Li Aizhen. The invention and advancement on unipolar quantum cascade lasers[J]. *Chinese J. Lasers*, 2010, **37**(9): 2213~2220
李爱珍. 单极型量子级联激光器的发明及其进展[J]. 中国激光, 2010, **37**(9): 2213~2220
- Chen Guichu, Fan Guanghan, Chen Lianhui. Circuit simulation for modulation characteristics of quantum cascade semiconductor laser[J]. *Acta Optica Sinica*, 2004, **24**(10): 1344~1348
陈贵楚,范广涵,陈练辉. 量子级联激光器调制特性的电路模拟[J]. 光学学报, 2004, **24**(10): 1344~1348
- Liu Junqi, Lu Xiuzhen, Guo Yu *et al.*. GaAs/AlGaAs quantum cascade lasers[J]. *Chinese J. Semiconductors*, 2005, **26**(3): 624~626
刘俊岐,路秀真,郭瑜等. GaAs/AlGaAs 量子级联激光器[J]. 半导体学报, 2005, **26**(3): 624~626
- Lang Jiahong, Gu Biao, Xu Yin *et al.*. Research progress of the GaN-based semiconductor materials[J]. *Laser & Optoelectronics Progress*, 2003, **40**(3): 45~49
郎佳红,顾彪,徐茵等. GaN 基半导体材料研究进展[J]. 激光与光电子学进展, 2003, **40**(3): 45~49
- Lang Jiahong, Gu Biao, Xu Yin *et al.*. The GaN-based semiconductor materials LDs [J]. *Laser Technology*, 2003, **27**(4): 321~324
郎佳红,顾彪,徐茵等. GaN 基材料半导体激光器综述[J]. 激光技术, 2003, **27**(4): 321~325
- Benjamin S. Williams, Hans Callebaut, Sushil Kumar *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
- Gao Shaowen. Electron Kinetics in Terahertz Quantum Cascade Laser[D]. Shanghai: Shanghai Institute of Microsystem and

- Information Technology, Chinese Academy of Sciences, 2004. 36~40
高少文. 太赫兹量子级联激光器电子动力学研究[D]. 上海:中国科学院上海微系统与信息技术研究所, 2004. 36~40
- Wang Yifeng, Tang Libin. Direct solution of one-dimensional Schrödinger equation through finite difference and Matlab matrix computation[J]. *Infrared*, 2010, **31**(3): 42~46
王忆锋,唐利斌. 通过有限差分法和 Matlab 矩阵运算直接求解一维薛定谔方程[J]. 红外, 2010, **31**(3): 42~46
 - Zheng Xiaoqi. The Design of Nitride Semiconductor Quantum Cascade Laser[D]. Beijing: Beijing Jiaotong University, 2006. 17~25
郑小秋. 氮化物半导体量子级联激光器的设计[D]. 北京:北京交通大学, 2006. 17~25
 - Li Hua. GSMBE Growth and Characterization of Fundamental and QCL Materials [D]. Shanghai: Shanghai Institute of Microsystem and Information Technology, Chinese Academy of Sciences, 2007. 54~58
李华. 气态源分子束外延材料生长及特性和量子级联激光器材料生长研究[D]. 上海:中国科学院上海微系统与信息技术研究所, 2007. 54~58
 - G. Traetta, A. Passaseo, M. Longo *et al.*. Effects of the spontaneous polarization and piezoelectric fields on the luminescence spectra of GaN/Al_{0.15}Ga_{0.85}N quantum wells[J]. *Physica E*, 2000, **7**(3-4): 929~933
 - Polarization effects and energy band diagram in AlGaIn/GaN heterostructure[J]. *Appl. Phys. A*, 2007, **87**(4): 679~682
 - Vincenzo Fiorentini, Fabio Bernardini, Oliver Ambacher. Evidence for nonlinear macroscopic polarization in III-V nitride alloy heterostructures [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2002, **80**(7): 1204~1206
 - H. M. Ng, R. Harel, S. N. G. Chu *et al.*. The effect of built-in electric field in GaN/AlGaIn quantum wells with high AlN mole fraction[J]. *J. Electronic Materials*, 2001, **30**(3): 134~137
 - Chen Guichu, Fan Guanghan. Effect of Al composition on the properties of GaN-based quantum cascade laser[J]. *Chinese J. Luminescence*, 2009, **30**(4): 473~476
陈贵楚,范广涵. Al 组分对 AlGaIn/GaN 量子级联激光器性能的影响[J]. 发光学报, 2009, **30**(4): 473~476
 - Akihiro Ishida, Kazuma Matsue, Yoku Inoue *et al.*. Design and preparation of AlN/GaN quantum wells for quantum cascade laser applications [J]. *Jpn. J. Appl. Phys.*, 2005, **44**(8): 5918~5922
 - Greg Sun, Richard A. Soref, Jacob B. Khurgin. Active region design of a terahertz GaN/Al_{0.15}Ga_{0.85}N quantum cascade laser [J]. *Superlattices and Microstructures*, 2005, **37**(2): 107~113
 - G. S. Huang, T. C. Lu, H. H. Yao *et al.*. GaN/AlGaIn active regions for terahertz quantum cascade lasers grown by low-pressure metal organic vapor deposition [J]. *J. Cryst. Growth*, 2007, **298**(10): 687~690
 - Wataru Terashima, Hideki Hirayama. Spontaneous emission from GaN/AlGaIn terahertz quantum cascade laser grown on GaN substrate[J]. *Phys. Status Solidi C*, 2011, **8**(7-8): 2302~2304