

柱形量子点中的三阶极化率*

刘翠红^{1,2}

(1 华南师范大学激光生命科学研究所以, 广州 510631)

(2 广州大学 物理与电子工程学院电子信息系, 广州 510006)

摘 要 利用量子力学的密度矩阵理论, 在有效质量近似下, 采用有限深势阱模型, 导出了柱形量子点的三阶非线性极化率的解析表达式. 通过数值计算, 分析了 GaAs/Al_βGa_{1-β}As 柱形量子点的三阶非线性极化率与量子点尺寸、掺杂浓度、入射光的频率和偏振方向等参量的关系. 结果表明, 三阶极化率峰值位置与这些参量密切相关, 并且对于确定频率和偏振方向的入射光以及材料的掺杂浓度, 存在与之相匹配的量子点尺寸, 使三阶极化率达到极大, 比体材料的相应值高出 2 个数量级以上.

关键词 量子点; 密度矩阵理论; 三阶极化率; 非线性光学

中图分类号 O469 **文献标识码** A

0 引言

近二十年以来, 对半导体量子点的研究无论是在基础理论方面还是在应用开发方面都十分活跃. 在量子点结构中, 由于载流子在三维空间受限, 呈现具有分立能级的量子态, 致使其非线性光学参数, 包括非线性饱和, 非线性吸收系数和非线性折射率都得到极大的增强, 半导体微结构的这种独特的非线性光学性质使得它们在锁模, 高速调制器, 光学双稳态以及新型的激光器等光电子器件方面有广阔的应用前景^[1~4], 因此, 半导体量子点的非线性光学效应成为当前人们研究的热点之一.

1983 年, R. K. Jain 和 R. C. Lind 发现市售的半导体微晶 CdS_{1-β}Se_β 材料呈现高达 $1.3 \times 10^{(-8)}$ esu 的三阶极化率^[5], 此后, 人们对半导体量子点的非线性极化率, 尤其是三阶极化率的实验和理论研究表现出浓厚的兴趣. 过去大多数有关三阶极化率的理论研究都是把量子点当作理想的球形来处理^[6~10], 而且只侧重于激子效应和尺寸效应的作用. 实际上, 量子点按其几何形状可分为矩形、梯形、三角形、锥形、柱形或薄盘量子点等多种形式^[11]. 文献^[10, 12]曾用量子力学中的密度矩阵理论研究了被真空包围的盘状量子点的三阶极化率, 并且考虑了极化子效应对三阶极化率产生的影响^[13]. 本文用同样的理论方法讨论柱形量子点的三阶非线性极化率的解析表达式, 其中量子点的约束势为有限深势阱. 通过计算, 揭示柱形量子点三阶非线性极化率与掺杂浓度、量子点尺寸以及入射光的频率和偏振方向

的关系.

1 Hamiltonian 和电子能态

考虑被约束在厚度为 $2d$, 半径为 R 的柱形量子点中的单电子, 设阱深为 V , 采用有效质量近似, 则系统的哈密顿量可写为

$$H = -\frac{\hbar^2}{2m^*} \nabla^2 + V \quad (1)$$

其中 m^* 为电子的有效质量

$$m^* = \begin{cases} m_a & |z| \leq d, r \leq R \\ m_b & |z| > d, \text{或 } r > R \end{cases} \quad (2)$$

为简单起见, 沿用 Lazarenkova 等人的方法^[14], 认为受限势 V 可分解为

$$V = V(z) + V(r) \quad (3)$$

式中

$$V(z) = \begin{cases} 0, & |z| \leq d \\ V_0, & |z| > d \end{cases} \quad (4)$$

以及

$$V(r) = \begin{cases} 0, & r \leq R \\ V_0, & r > R \end{cases} \quad (5)$$

因此, 本征态和本征值分别为

$$E_{nl} = E_n + E_l \quad (6)$$

$$\Psi_{nl} = f_n(z) \phi_l(r, \theta) \quad (7)$$

式中 ϕ_l 径向部分

$$\phi_l(r, \theta) = \begin{cases} (2\pi)^{-1/2} A J_1(\kappa \frac{r}{R}) e^{i\theta}, & r \leq R \\ (2\pi)^{-1/2} B K_1(N \frac{r}{R}) e^{i\theta}, & r > R \end{cases} \quad (8)$$

这里

$$\kappa = \sqrt{\frac{2m_a(E_l - E_n)}{\hbar^2}} R \quad (9)$$

$$N = \sqrt{\frac{2m_b(V_0 - E_l)}{\hbar^2}} R \quad (10)$$

*广东省自然科学基金(编号:05001873), 广州市高校科技计划项目(编号:2028)
Tel:020-85217070 Email:chliu@fescmail.net
收稿日期:2004-07-20

以及归一化常数为

$$B = AJ_l(\kappa)/K_l(N) \quad (11)$$

$$A = \int_0^R J_l(\kappa \frac{r}{R}) J_l(\kappa \frac{r}{R}) r dr + [J_l(\kappa)/K_l(N)]^2 \cdot \int_R^\infty K_l(N \frac{r}{R}) K_l(N \frac{r}{R}) r dr \quad (12)$$

J_l 和 K_l 分别是 l 阶的 Bessel 函数和第一类变型 Bessel 函数.

另一方面, 轴向的波函数可写为

$$f_n(z) = \begin{cases} C \sin kd \exp [K(d-z)], & d < z < \infty \\ C \sin kz, & -d \leq z \leq d \\ C \sin kd \exp [K(d+z)], & -\infty < z < -d \end{cases} \quad (13)$$

或

$$f_n(z) = \begin{cases} D \cos kd \exp [K(d-z)], & d < z < \infty \\ D \cos kz, & -d \leq z \leq d \\ D \cos kd \exp [K(d+z)], & -\infty < z < -d \end{cases} \quad (14)$$

这里 C 和 D 是归一化常数, 而能级 E_n 取决于下列两式

$$k = \sqrt{\frac{2m_a E_n}{\hbar^2}} \quad (15)$$

$$K = \sqrt{\frac{2m_b (V_0 - E_n)}{\hbar^2}} \quad (16)$$

式中 k 和 K 可解下列方程组得到

$$\begin{cases} \frac{k}{m_a} \tan(kd) - \frac{K}{m_b} = 0 \\ \frac{K}{m_a} \cot(kd) + \frac{k}{m_b} = 0 \end{cases} \quad (17)$$

2 三阶非线性极化率

下面进一步用量子力学密度矩阵的方法来推导柱形量子点的三阶非线性极化率公式. 设系统受到一束偏振方向沿单位矢量 α 的单模场激发

$$E(t) = \tilde{E} e^{i\omega t} + \tilde{E}^* e^{-i\omega t} \quad (18)$$

假定外加光场与系统的相互作用很弱, 因此可把光场的扰动看作微扰来处理. 根据量子力学理论, 单电子密度矩阵 ρ 算符随时间演化遵从如下刘维方程

$$\frac{\partial \rho_{ij}}{\partial t} = \frac{1}{i\hbar} [H - H', \rho]_{ij} - \Gamma_{ij} (\rho - \rho^{(0)})_{ij} \quad (19)$$

式中 $\rho^{(0)}$ 是未受扰动时的密度矩阵, Γ_{ij} 是弛豫率, 且 $\Gamma_{ij} = 1/\gamma_{ij}$, γ_{ij} 为弛豫时间; H 是系统未受扰动时的哈密顿量, H' 表示光场对系统扰动的哈密顿量, 采用电偶极子近似, 则

$$H' = eE\alpha \cdot r \quad (20)$$

这里 r 是电子的位矢. 为了解式 (19), 利用文献 [15] 的方法, 把 ρ 展开成幂级数的形式

$$\rho_{ij}(t) = \sum_n \rho_{ij}^{(n)}(t) \quad (21)$$

则

$$\frac{\partial \rho_{ij}^{(n+1)}}{\partial t} = \frac{1}{i\hbar} \{ [H, \rho^{(n+1)}]_{ij} - i\hbar \Gamma_{ij} \rho_{ij}^{(n+1)} \} - \frac{1}{i\hbar} [e\alpha \cdot r, \rho^{(n)}]_{ij} E(t) \quad (22)$$

类似地, 也把电极化强度展开为幂级数形式

$$P(t) = \sum P^{(n)}(t) \quad (23)$$

又电场 $E(t)$ 引起的系统电极化强度 $P(t)$ 可通过密度矩阵算符 ρ 表示为

$$P^{(n)}(t) = N \text{Tr}(e z \rho^{(n)}) \quad (24)$$

式中 N 是粒子数密度.

考虑热平衡情况下各状态的初始位相是无规的, 故 $\rho_{ij}^{(0)}$ 的非对角元应为零. 此外, 为简单起见, 不失一般性, 设

$$\rho_{ii}^{(0)} = \begin{cases} 1, & i=1 \\ 0, & i \neq 1 \end{cases} \quad (25)$$

利用这个初始条件, 从式 (22) 可递推得 ρ 的各级解, 其中

$$\rho_{ij}^{(3)} = F_{ij}(3\omega) \sum_{\alpha, \beta} F_{\alpha j}(2\omega) H'_{\alpha} H'_{\alpha \beta} H'_{\beta i} [F_{\beta j}(\omega) (\rho_{\beta j}^{(0)} - \rho_{\beta j}^{(0)}) + F_{\alpha \beta}(\omega) (\rho_{\alpha \alpha}^{(0)} - \rho_{\beta \beta}^{(0)})] - F_{i\alpha}(2\omega) H'_{\alpha} H'_{\alpha \beta} H'_{\beta j} [F_{\beta i}(\omega) (\rho_{\alpha \alpha}^{(0)} - \rho_{\beta \beta}^{(0)}) + F_{\beta j}(\omega) (\rho_{ii}^{(0)} - \rho_{\beta \beta}^{(0)})] \quad (26)$$

这里

$$F_{ij}(\omega) = \hbar (\omega - \omega_{ji} + j\Gamma_{ij})^{-1} \quad (27)$$

$$\omega_{ji} = \frac{E_j - E_i}{\hbar} \quad (28)$$

另一方面, 根据本构方程

$$P = \epsilon_0 \chi^{(1)} E + \epsilon_0 \chi^{(2)} EE + \epsilon_0 \chi^{(3)} EEE + \dots \quad (29)$$

电极化强度 $P(t)$ 也可以展开为电场 E 的级数形式, 只取前三阶项, 如果按 ω 的幂次排列, 则

$$P(t) = \frac{1}{2} \epsilon_0 \tilde{E}^2 \chi_0^{(2)} + \left(\frac{1}{2} \epsilon_0 \chi_{\omega}^{(1)} \tilde{E} e^{-i\omega t} + \frac{3}{8} \epsilon_0 \chi_{\omega}^{(3)} \tilde{E}^3 e^{-i\omega t} + \frac{1}{4} \epsilon_0 \chi_{2\omega}^{(2)} \tilde{E}^2 e^{-2i\omega t} + \frac{1}{8} \epsilon_0 \chi_{3\omega}^{(3)} \tilde{E}^3 e^{-3i\omega t} + c. c. \right) \quad (30)$$

这里 ϵ_0 是真空中介电常数, 由于讨论的这个系统具有中心对称性, 二阶非线性极化率必为零, 因此上式改写为

$$P(t) = \frac{1}{2} \epsilon_0 \chi_{\omega}^{(1)} \tilde{E} e^{-i\omega t} + \frac{3}{8} \epsilon_0 \chi_{\omega}^{(3)} \tilde{E}^3 e^{-i\omega t} + \frac{1}{8} \epsilon_0 \chi_{3\omega}^{(3)} \tilde{E}^3 e^{-3i\omega t} + c. c. \quad (31)$$

这里, $\chi_{\omega}^{(1)}$ 是线性极化率, 而 $\chi_{\omega}^{(3)}$ 和 $\chi_{3\omega}^{(3)}$ 是三阶非线性光学极化率, 其中 $\chi_{\omega}^{(3)}$ 表示介质与入射场同一频率 ω 的非线性响应成分, 它对应于介质的非线性折射率和非线性吸收系数, $\chi_{3\omega}^{(3)}$ 则称为三次谐波产生 (THG), 它描述的是, 当频率为 ω 的光场入射到介质时, 介质中产生频率为 3ω 的辐射场. 下面只讨论 THG.

考虑系统的对称性,由式(23)、(24)和(31),便可得到三阶非线性光学极化率

$$\chi^{(3)}_{(3\omega)} = \frac{N}{\epsilon_0 \hbar^3} \sum_i \sum_k \frac{H'_{ki}}{(3\omega - \omega_{ik} + j\Gamma_{ik})} \cdot \left[\sum_l \sum_q \left[\frac{H'_{il} H'_{lq} H'_{qk}}{(2\omega - \omega_{kl} + j\Gamma_{kl})(\omega - \omega_{kq} + j\Gamma_{kq})} - \frac{H'_{il} H'_{lq} H'_{qk}}{(2\omega - \omega_{kl} + j\Gamma_{kl})(\omega - \omega_{ql} + j\Gamma_{ql})} - \frac{H'_{il} H'_{qk} H'_{lk}}{(2\omega - \omega_{li} + j\Gamma_{li})(\omega - \omega_{lq} + j\Gamma_{lq})} + \frac{H'_{il} H'_{qk} H'_{lk}}{(2\omega - \omega_{li} + j\Gamma_{li})(\omega - \omega_{qk} + j\Gamma_{qk})} \right] \right] \quad (32)$$

式中

$$H'_{ij} = \langle \Psi_i | H' | \Psi_j \rangle \quad (33)$$

并且,由系统的对称性知,当 $i - j = 2n, n = 0, \pm 1, \pm 2 \dots$ 时, $H'_{ij} = 0$.

3 计算结果和讨论

下面以 GaAs/Al_βGa_{1-β}As 量子点为例进行数值计算. 计算过程采用四能级系统,并选择如下参数^[7,17]: 粒子数密度 $N = 10^{15} \text{ cm}^{-3}$, 以及弛豫量 $\hbar \Gamma_{12} = \hbar \Gamma_{23} = \hbar \Gamma_{34} = 1 \text{ meV}$, $\hbar \Gamma_{13} = \hbar \Gamma_{24} = 0.3 \text{ meV}$, $\hbar \Gamma_{14} = 0.1 \text{ meV}$, 有效质量 $m_a = 0.067m_0, m_b = m_a + 0.083\beta$. 根据文献[14], 势阱深度 V_0 与掺杂浓度 β 的关系为, $V_0 = 600(1.155\beta + 0.37\beta^2)$. 计算结果见下列各图.

图 1 给出掺杂浓度 β 分别为 1 和 0.5 时三阶极化率的模随入射光频率变化的曲线. 由于掺杂浓度的改变,使得电子的能级间隔随之而发生改变,因此,三阶极化率峰值位置也发生了移动.

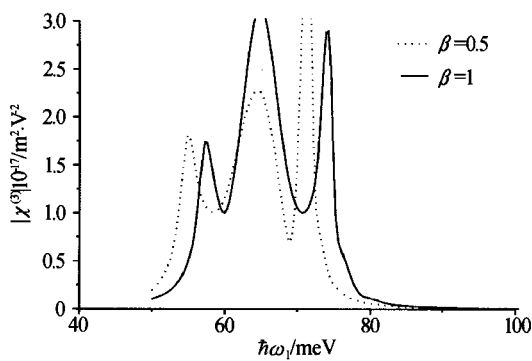


Fig. 1 不同的掺杂浓度 β 对应的三阶极化率的模随入射光频率变化的曲线,入射光偏振方向沿 x 轴,量子点半径为 8 nm

Fig. 1 Variations of THG $|\chi^{(3)}|$ as a function of the photon energy for the quantum dot of radius $R = 8 \text{ nm}$ with different Al concentrations, the polarizations of the incident wave vectors parallel to x -axis

图 2 和图 3 分别给出入射光偏振方向沿 x 轴和 z 轴时,三阶极化率的实部和虚部随入射光频率变化的关系. 从图中可以看到,THG 不仅与掺杂浓

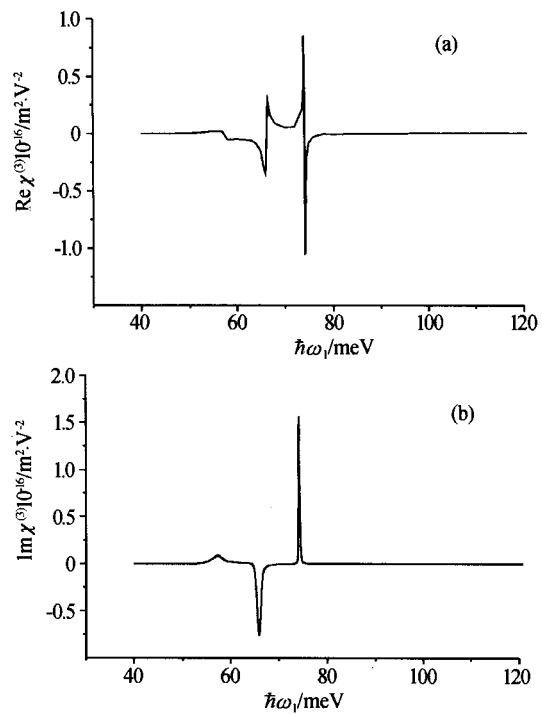


图 2 入射光偏振方向沿 x 轴的三阶极化率 a) 实部, b) 虚部随入射光频率变化的曲线,量子点半径为 8 nm, $\beta = 0.4$

Fig. 2 Variations of a) imaginary part and b) real part of THG as a function of the photon energy for the quantum dot with radius $R = 8 \text{ nm}$ and Al concentrations $\beta = 0.4$, the polarizations of the incident wave vectors parallel to x -axis

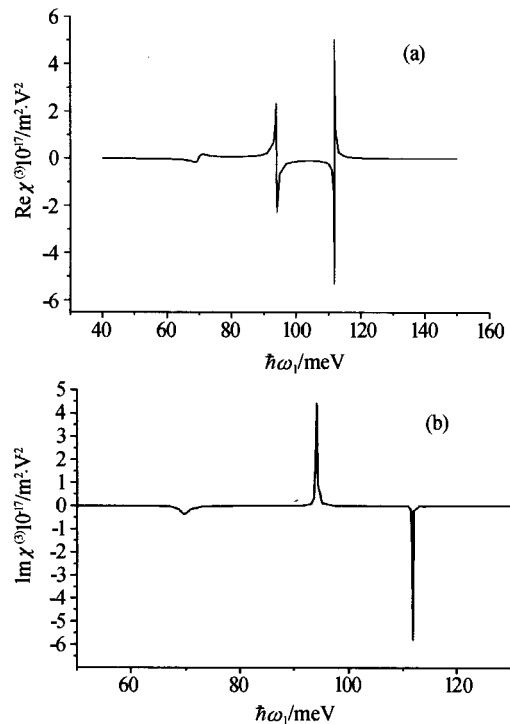


图 3 入射光偏振方向沿 z 轴的三阶极化率 a) 实部, b) 虚部随入射光频率变化的曲线,量子点厚度为 12 nm, $\beta = 0.4$

Fig. 3 Variations of a) imaginary part and b) real part of THG as a function of the photon energy for the quantum dot thickness $D = 12 \text{ nm}$ and Al concentrations $\beta = 0.4$, the polarizations of the incident wave vectors parallel to z -axis

度或势阱深度有关,而且与入射光偏振方向和量子点的尺寸有更密切的关系;当掺杂浓度、量子点的尺寸以及入射光偏振方向等参量选定后,存在若干个与之匹配的人射光频率,使三阶极化率的实部或虚部取极大值.换言之,三阶极化率峰值及其对应的人射光的频率与量子点的尺寸、入射光偏振方向和掺杂浓度等人工可控参量有关.从图中还可以看到,适当选取参量,三阶极化率可达 $10^{-16} \text{ m}^2/\text{V}^2$ 的数量级,至少比相应的体材料高 2 个数量级^[15].

4 结论

利用密度矩阵方法,在有效质量近似下,采用有限深势阱模型,计算了 $\text{GaAs}/\text{Al}_\beta\text{Ga}_{1-\beta}\text{As}$ 柱形量子点的三阶非线性极化率.结果显示,三阶极化率峰值位置不仅与量子点尺寸有关,而且与入射光频率、偏振方向和材料的掺杂浓度密切相关.此外,上述讨论的是子带间的跃迁,能级间距完全可以通过量子点尺寸,掺杂浓度加以控制,从上面各图还可以看到,三阶极化率的峰值落在 100 meV 附近,这相当于 $12.4 \mu\text{m}$ 的波长.因此,这里讨论的系统可用于制作红外光电探测器和电光调节器.

参考文献

- 1 Yoffe A D. Semiconductor quantum dots and related systems; electronic, optical, luminescence and related properties of low dimensional systems. *Adv Phys*, 2001, **50**(1): 1~208
- 2 Banfi G P, Degiorgio V, Ricard D. Non-resonant optical nonlinearities of semiconductor nanocrystals. *Adv Phys*, 1998, **47**(3): 447~510
- 3 Yoffe A D. Quantum size effects and electronic properties of semiconductor microcrystallites (zero dimensional system) and some quasi-two-dimensional systems. *Adv Phys*, 1993, **42**(2): 173~266
- 4 胡水龙,徐旭明,于天宝. 光量子阱单滤波,多通道开关. 光子学报, 2004, **33**(8): 1104~1106
Hu S L, Xu X M, Yu T B. *Acta Photonica Sinica*, 2004, **33**(8): 1104~1106
- 5 Jain R K, Lind R C. Degenerate four-wave mixing in semiconductor-doped glass. *J Opt Soc Am*, 1983, **73**(5): 647~653
- 6 Banyai L, Hu Y Z, Lindberg M, et al. Third-order optical nonlinearities in semiconductor microstructures. *Phys Rev B*, 1988-II, **38**(12): 8142~8153
- 7 Takagahara T. Biexciton states in semiconductor quantum dots and their nonlinear optical properties. *Phys Rev B*, 1989-I, **39**(14): 10206~10231
- 8 Riblet P, Tanaka S, Ramvall P, et al. Size-dependent optical nonlinearities in GaN quantum dots. *Solid State Commun*, 1999, **109**(6): 377~381
- 9 Nandakumar P, Vijayan C, Murti Y V G S. Quantum size effects on the third order optical nonlinearity of CdS quantum dots in Nafion. *Opt Commun*, 2000, **185**(15): 457~465
- 10 Sauvage S, Boucaud P, Glotin F, et al. Third-harmonic generation in InAs/GaAs self-assembled quantum dots. *Phys Rev B*, 1999-I, **58**(15): 9830~9833
- 11 张党卫,张景文,侯洵. 利用 x 射线衍射分析自组织生长的量子点结构. 光子学报, 2002, **31**(7): 838~840
Zhang D W, Zhang J W, Hou X. *Acta Photonica Sinica*, 2002, **31**(7): 838~840
- 12 刘翠红,郭康贤,陈传誉,等. 量子盘中的三阶非线性光学极化率. 发光学报, 2001, **22**(2): 135~138
Liu C H, Guo K X, Chen C Y, et al. *Chin J Lumine*, 2001, **22**(2): 135~138
- 13 Liu Cuihong, Guo Kangxian, Chen Chuanyu, et al. Polaron effects on the third-order nonlinear optical susceptibility in a quantum disk. *Physica E*, 2002, **15**(4): 217~228
- 14 Lazarenkova O L, Balandin A A. Miniband formation in a quantum dot crystal. *J Appl Phys*, 2001, **89**(10): 5509~5515
- 15 Shen Y R. The Principles of Nonlinear Optics. New York: Wiley, 1984. 35~68
- 16 Adachi S. GaAs, AlAs, and $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ material parameters for use in research and device applications. *J Appl Phys*, 1985, **58**(3): R1~R29
- 17 Zhang Li, Xie Hongjing, Chen Chuanyu. Second-order nonlinear optical susceptibility of a semi-parabolic quantum well with a applied electric field. *Acta Photonica Sinica*, 2003, **32**(4): 437~440
- 18 Moss D J, Ghahramani E, Sipe J E, et al. Band-structure calculation of dispersion and anisotropy in for third-harmonic generation in Si, Ge, and GaAs. *Phys Rev B*, 1990, **41**(3): 1542~1560

Third-order Nonlinear Optical Susceptibility in a Cylindrical Quantum Dot

Liu Cuihong^{1,2}

¹*Institute of Laser Life Science, South China Normal University, Guangzhou 510631*

²*Guangzhou University, School of Physics and Electronic Engineering, Guangzhou 510405*

Received date: 2004-07-20

Abstract Under the effective mass approximation, the analytic expression for the third-harmonic generation (THG) in cylindrical quantum dots was derived by using the density matrix method. The numerical calculations were performed on a cylindrical GaAs/Al_βGa_{1-β}As quantum dot with different incident photon energy, polarizations, and under various dot dimensions and Al concentrations. It is found that the THG is more than two orders of magnitude larger than that of bulk GaAs under appropriate conditions.

Keywords Quantum dot; Density matrix method; Third-harmonic generation; Nonlinear optical

Liu Cuihong was born in Feb. , 1964. Now she is a postdoctor of Institute of Laser Life Science, South China Normal University, China. She obtained the Ph. D. degree in 2002 from Beijing Normal University. Now her research interest now is optical nonlinearities in low-dimensional semiconductor structures.

