

С. И. Петров, М. В. Клименко, А. В. Шулика

**ОПТИЧЕСКАЯ ПЕРЕСТРОЙКА СПЕКТРАЛЬНЫХ ХАРАКТЕРИСТИК  
КВАНТОВО-КАСКАДНЫХ СТРУКТУР ДЛЯ СПЕКТРОСКОПИЧЕСКОГО ОБНАРУЖЕНИЯ  
ВЗРЫВЧАТЫХ ВЕЩЕСТВ**

Харьковский национальный университет радиоэлектроники  
14, пр. Ленина, Харьков, 61166, Украина  
E-mail: [mikhail-klimenko@yandex.ru](mailto:mikhail-klimenko@yandex.ru)

Предложен новый метод перестройки спектральных характеристик усиления квантово-каскадных структур. Перестройка осуществляется с использованием оптической накачки в непрерывном режиме и основана на эффекте заполнения фазового пространства. Согласно результатам математического моделирования оптических свойств квантово-каскадных структур, предложенный метод позволяет реализовать перестройку спектральной характеристики усиления в пределах до 1,1 мэВ без значительного изменения величины коэффициента усиления в максимуме. Полученные результаты представляют интерес для спектроскопического обнаружения взрывчатых веществ. Ил. 6. Библиогр.: 8 назв.

**Ключевые слова:** квантово-каскадная структура, спектральная характеристика поглощения, матрица плотности, межзонные переходы, межподзонные переходы, оптическая перестройка, эффект заполнения фазового пространства.

В последнее десятилетие все большую актуальность приобретает проблема бесконтактного спектроскопического детектирования взрывчатых веществ. В связи с этим особый интерес представляет спектроскопия терагерцевого (ТГц) диапазона [1, 2]. Интерес к ТГц-спектроскопии обусловлен большой проникающей способностью ТГц-излучения и наличием особенностей в спектральных характеристиках поглощения ряда взрывчатых веществ в диапазоне 1...4 ТГц. Среди таких веществ следует отметить тринитротолуол (TNT), гексоген (RDX), пентаэритрит-тетранитрат (PETN) и др. [1], спектральные характеристики поглощения которых приведены на рис. 1.

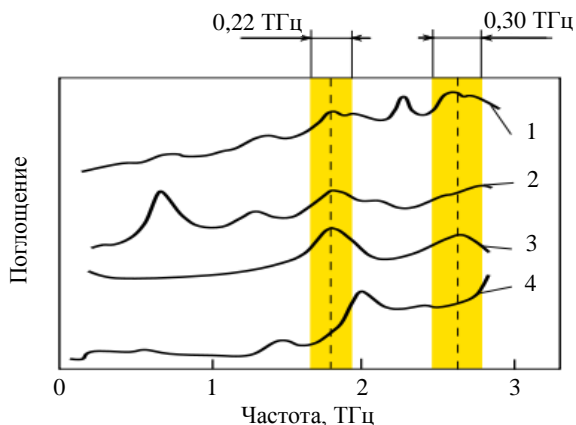


Рис. 1. Спектральные характеристики поглощения некоторых взрывчатых веществ [2]: 1 – Semtex; 2 – RDX; 3 – PETN; 4 – TNT

Из указанных взрывчатых веществ PETN характеризуется наибольшими значениями бризантности, сравнительно высокими значениями скорости детонации и фугасности при хорошей химической стойкости, что делает его одним из наиболее опасных веществ в случае террористической угрозы. Анализ сообщений средств массо-

вой информации свидетельствует о частых случаях использования PETN в террористических актах [3]. Кроме того, это вещество входит в состав других синтетических взрывчатых веществ, таких как Semtex [4], поэтому в настоящее время задача обнаружения PETN является особо актуальной. В вышеуказанном диапазоне частот спектральная характеристика PETN содержит два пика поглощения на частотах 1,8 и 3,7 ТГц. Ширина спектральных полос поглощения на уровне половинной мощности пиков составляет 0,22 и 0,3 ТГц соответственно.

У других веществ, встречающихся в быту, спектры поглощения в ТГц-диапазоне, как правило, монотонно возрастают или содержат множество пиков, ширина которых гораздо меньше 1 мэВ. Следовательно, обнаружение в спектральной характеристике поглощения некоторого исследуемого вещества двух пиков на частотах 1,8 и 3,7 ТГц с шириной полосы поглощения, равной приблизительно 2...4 мэВ, свидетельствует о вероятном присутствии в нем PETN или его смесей (например, Semtex).

Однако для практической реализации спектроскопического обнаружения каждого из пиков поглощения необходимо обладать высокоэффективным перестраиваемым источником лазерного ТГц-излучения, диапазон перестройки которого соизмерим с шириной детектируемого пика. Этим требованиям удовлетворяют квантово-каскадные структуры (ККС) [2].

Для того чтобы квантовая эффективность лазера при перестройке не изменялась, совместно с перестройкой резонатора необходимо осуществлять и перестройку спектральных характеристик активного вещества. В работе [5] была показана возможность электрической перестройки ККС в пределах 34...36 ТГц (8,33...8,80 мкм) без значительного изменения интенсивности фото-

люми-несценции. Лазерные ККС, генерирующие в диапазоне 2...5 ТГц (8...20 мэВ), основаны на резонансных фононных переходах в инжекторе [6]. Особенность таких структур состоит в том, что электрическая перестройка сопровождается быстрым затуханием коэффициента усиления [6]. В этой работе нами предложен альтернативный метод перестройки спектральной характеристики усиления ККС с использованием межзонной оптической накачки; показано, что при определенном спектральном составе и интенсивности накачки можно получить перестройку без значительного изменения коэффициента усиления в максимуме спектральной характеристики.

**1. Влияние межзонных вынужденных переходов на межподзонные процессы поглощения и усиления.** Нами рассматривается перестройка спектральных характеристик так называемой трехъямной ККС [6], которая позволяет получать ТГц-излучение (энергия излучения равна 15 мэВ) при температуре 180 К. Рассматриваемая структура находится под постоянным электрическим смещением с напряженностью электростатического поля 12 кВ/см. Ее активная область содержит две подзоны, которые являются туннельно-связанными с подзонами инжектора. Перенос электронов в инжекторе осуществляется посредством резонансного рассеяния на оптических продольных фононах.

Схема энергетических подзон рассматриваемой структуры представлена на рис. 2, где символы  $\Omega_{ij}$  обозначают частоты Раби для различных типов переходов. Этот рисунок совпадает с аналогичной схемой [6] за исключением дополнительной пары валентных подзон  $v1$  и  $v2$ , которые необходимо включить в модель для описания влияния оптической накачки на межзонных переходах.

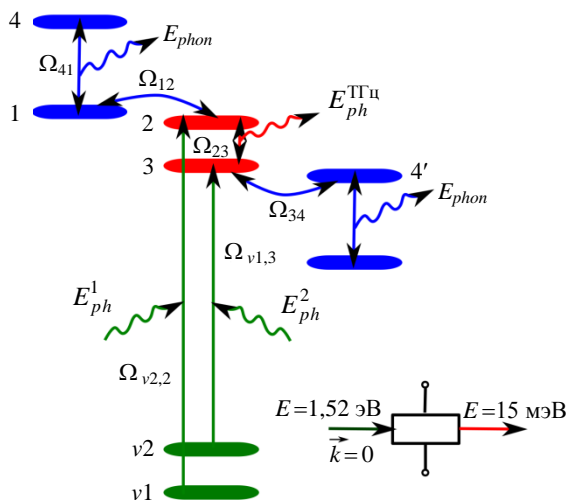


Рис. 2. Схема энергетических подзон рассматриваемой ККС

Предложенный нами метод спектральной перестройки основан на управлении распределением электронов в активных подзонах зоны проводимости за счет оптически индуцированных межзонных переходов. Изменение населенности подзон в свою очередь приведет к изменению коэффициента поглощения/усиления вследствие эффекта заполнения фазового пространства [7]. Согласно теории матрицы плотности, взаимная зависимость населенности подзон и оптического отклика среды является следствием математической связи элементов матрицы плотности, которая определяется системой полупроводниковых уравнений Блоха [7]. В результате энергетические переходы между одной из пар подзон, вероятность которых определяется одним из недиагональных элементов матрицы плотности, влияет на остальные элементы матрицы. Изменение населенности подзон зоны проводимости в результате межзонной оптической накачки представляет собой разновидность нелинейного оптического эффекта, приводящего к насыщению спектральной линии поглощения. Следовательно, связь между интенсивностью излучения управляющих сигналов и изменением населенности подзон можно получить из аналитического выражения, описывающего насыщение спектральной линии поглощения  $\alpha = \alpha_0 / (1 + I/I_0)$ , где  $\alpha$  – коэффициент нелинейного поглощения с учетом насыщения,  $\alpha_0$  – линейный коэффициент поглощения,  $I$  – интенсивность излучения накачки,  $I_0$  – интенсивность насыщения. Подставив в это выражение известную формулу для коэффициента линейного поглощения на межзонных переходах, основанную на «Золотом правиле Ферми», после ряда приближений получим:

$$\Delta N_j = \frac{N_j^0}{1 + \frac{I_0}{I_k}}, \quad (1)$$

где  $\Delta N_j$  – концентрация оптически индуцированных электронов в  $j$ -й подзоне зоны проводимости;  $N_j^0$  – концентрация электронов в  $j$ -й подзоне зоны проводимости при отсутствии управляющих сигналов;  $I_k$  – интенсивность накачки в  $k$ -м канале;  $I_0$  – интенсивность насыщения.

При выводе выражения (1) использовалось приближение слабой зависимости от волнового вектора дипольного матричного элемента и интенсивности накачки. Интенсивность насыщения для GaAs/AlGaAs-гетероструктур с квантовыми ямами зависит от времени спонтанной рекомбинации, частоты излучения накачки и ширины квантовой ямы. Согласно выражению, полученному в [8] в режиме слабого сигнала, интен-

сивность насыщения равна  $I_0 = 490 \text{ Вт/см}^2$  для GaAs/AlGaAs-гетероструктур с квантовой ямой толщиной  $100 \text{ \AA}$ .

Помимо оптически сгенерированных электронов, в зоне проводимости находится некоторое количество неравновесных носителей заряда, обусловленных токовой накачкой и участвующих в генерации ТГц-излучения. В общем случае они не подчиняются распределению Ферми-Дирака. Однако, как показывают вычисления в совокупности с экспериментальными данными, их функция распределения в стационарном случае хорошо аппроксимируется функцией Ферми-Дирака. Таким образом, зная общее число электронов в подзоне и используя аппроксимацию функциями Ферми-Дирака, мы можем вычислить функцию распределения отдельно для каждой подзоны. Функция распределения электронов необходима для вычисления оптического отклика ККС.

Линейные оптические свойства ККС в стационарном состоянии определяются из решения поляризационного уравнения, являющегося одним из полупроводниковых уравнений Блоха [7]:

$$i\hbar\dot{p}_k = (E_k^2 - E_k^2)p_k + \hbar\Omega_{23}(n_e^2 - n_e^2) + i\gamma_{23}, \quad (2)$$

где  $p_k$  – микроскопическая поляризация;  $\Omega_{23} = \varepsilon(t)d_k^{23}$  – частота Раби;  $\varepsilon(t)$  – напряженность электрического поля излучения;  $d_k^{23}$  – дипольный матричный элемент;  $n_e^2$  и  $n_e^3$  – функции распределения активных подзон зоны проводимости;  $\gamma_{23}$  – энергия дефазировки.

Данное выражение получено на основе упрощенной матрицы плотности, выведенной в работе [6]. Для получения этого уравнения мы пренебрегли неравновесными когерентными процессами обмена электронами между инжекторами и активной областью, что является достаточно хорошим приближением в случае стационарного режима генерации. Уравнение (2) является частью системы большого количества обыкновенных дифференциальных уравнений, определенных в каждой точке  $k$ -пространства. Уравнения являются связанными из-за наличия описывающих коллективные явления членов, которые содержатся в перенормированных значениях частоты Раби и энергии подзон. Полученная система уравнений решалась численно методом Рунге-Кутты 4-го порядка. Микроскопическая поляризация определяет коэффициент поглощения посредством следующего выражения:

$$\alpha(\omega) = \frac{\omega c}{n} F \left[ \frac{1}{V} \sum_k (d_k^{23} p_k + c.c.) \right], \quad (3)$$

где  $F$  – оператор преобразования Фурье;  $\omega$  – циклическая частота;  $n$  – показатель преломления;

$c$  – скорость света в вакууме;  $V$  – объем активной области.

В этой работе эффекты многих тел [7] учитывались на уровне приближений Хартри-Фока. Их учет в данном случае необходим, так как он определяет энергию сдвига подзоны, равную порядка единиц миллиэлектрон-вольт. Коллективные эффекты вносят вклад в сдвиг спектральных характеристик наряду с эффектом заполнения фазового пространства.

Выражения (1)–(3) определяют связь между коэффициентом поглощения и интенсивностью управляющих сигналов в различных каналах накачки.

## 2. Оптические управляющие сигналы.

Рассматриваемая нами оптическая накачка подается в непрерывном режиме для ККС, выведенной в режим генерации. Для того чтобы сформулировать требования к спектральному составу оптических управляющих сигналов, с помощью которых осуществляется межзонная накачка, рассмотрим значения интеграла перекрытия огибающих функций электронов и дырок, представленные на рис. 3.

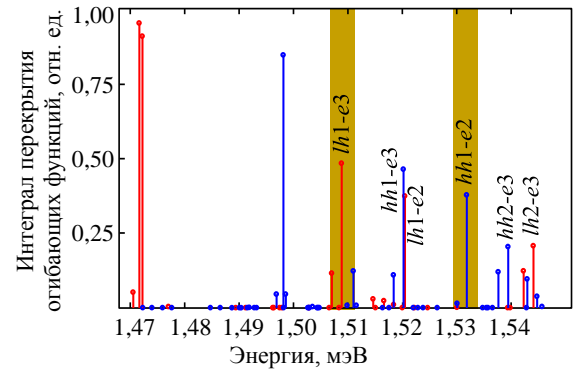


Рис. 3. Интеграл перекрытия огибающих функций электронов и дырок, принадлежащих различным парам подзон. Закрашенные области отображают ширину полосы излучения накачки в каждом из каналов

Интеграл перекрытия огибающих функций прямо пропорционален дипольному матричному элементу, который определяет правила отбора и отображает интенсивность энергетического перехода между заданной парой подзон. На рисунке символами обозначены межзонные энергетические переходы в активной области ККС. Все переходы с энергией до 1,5 эВ, происходящие в широких квантовых ямах инжекторов, нами не рассматриваются, поскольку они слабо влияют на межподзонные оптические переходы, происходящие в активной области. Как следует из результатов вычислений, наиболее интенсивные энергетические переходы с участием активных лазерных подзон зоны проводимости  $e2$  и  $e3$  осуществляются между следующими парами подзон:

- первая подзона легких дырок  $lh1$  и подзона электронов  $e3$ ;
- первая подзона тяжелых дырок  $hh1$  и подзона электронов  $e3$ ;
- первая подзона легких дырок  $lh1$  и подзона электронов  $e2$ ;
- первая подзона тяжелых дырок  $hh1$  и подзона электронов  $e2$ .

Из этой совокупности возможных каналов накачки мы выбрали  $lh1-e3$  и  $hh1-e2$  с энергиями перехода 1,51 и 1,53 эВ соответственно. Такой выбор объясняется большим спектральным расстоянием между их энергиями переходов. В результате существует возможность использования двух оптических сигналов с разной частотой, что позволит независимо управлять населенностью каждой из активных. Поскольку энергетический зазор между подзонами  $hh1-e3$  и  $lh1-e2$  почти совпадает, осуществление накачки в этих каналах приведет к одновременному заселению подзон  $e2$  и  $e3$ , что затруднит управление спектральными характеристиками.

**3. Результаты математического моделирования.** На рис. 4 представлены результаты вычисления спектральных характеристик для случая, когда управляющий оптический сигнал подается только по одному из каналов:

- 1 – отсутствие управляющих сигналов;
- 2 –  $I = 100 \text{ Вт/см}^2$  (канал  $v2-e2$ );
- 3 –  $I = 150 \text{ Вт/см}^2$  (канал  $v2-e2$ );
- 4 –  $I = 50 \text{ Вт/см}^2$  (канал  $v1-e3$ );
- 5 –  $I = 100 \text{ Вт/см}^2$  (канал  $v1-e3$ );
- 6 –  $I = 150 \text{ Вт/см}^2$  (канал  $v1-e3$ );
- 7 –  $I = 200 \text{ Вт/см}^2$  (канал  $v1-e3$ );
- 8 –  $I = 250 \text{ Вт/см}^2$  (канал  $v1-e3$ ).

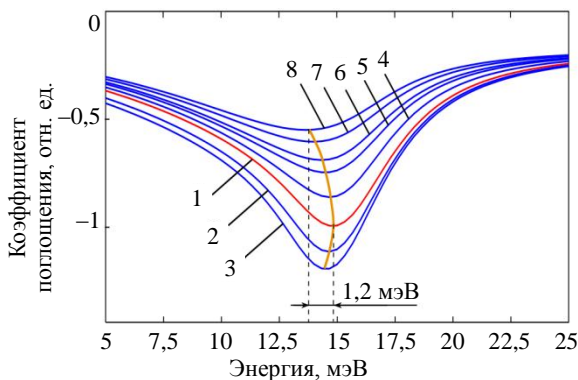


Рис. 4. Спектральные характеристики поглощения для разных значений интенсивности управляющего сигнала в одном из каналов накачки

В случае, когда управляющие сигналы отсутствуют (кривая 1), максимум спектральной характеристики поглощения соответствует 14,5 мэВ, а значения коэффициента поглощения являются отрицательными, что характеризует

режим усиления ККС. Как следует из данных, представленных на рис. 4, если накачка осуществляется в канале  $v1-e3$  (кривые 4–8), происходит общее уменьшение коэффициента усиления, сопровождаемое сдвигом максимума спектральной характеристики в область малых энергий. Если накачка осуществляется в канале  $v2-e2$  (кривые 2 и 3), наблюдается увеличение коэффициента усиления и сдвиг спектральной характеристики в область малых энергий. Уменьшение усиления происходит по причине заселения нижней лазерной подзоны, а увеличение – вследствие увеличения населенности верхней подзоны. Сдвиг экстремумов спектральных характеристик происходит из-за заполнения электронами  $k$ -пространства в той или иной подзоне в окрестности центра зоны Бриллюэна.

Результаты численного моделирования, представленные на рис. 5, показывают, что одновременной накачкой в обоих каналах можно добиться перестройки спектральной характеристики без значительного изменения коэффициента усиления в максимуме.

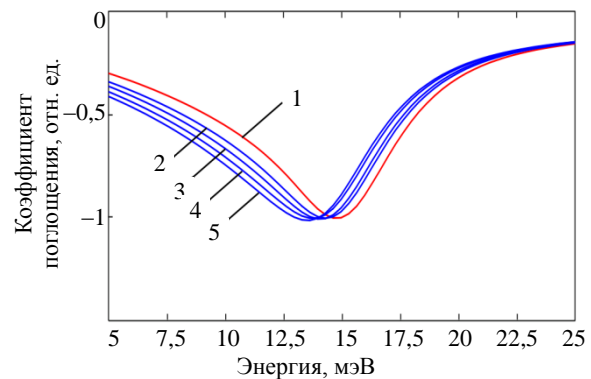


Рис. 5. Спектральные характеристики поглощения для разных значений интенсивности управляющих сигналов, подаваемых одновременно по обоим каналам накачки

Здесь 1 – отсутствие управляющих сигналов; 2 –  $I(v1-e3) = 80 \text{ Вт/см}^2$ ,  $I(v2-e2) = 100 \text{ Вт/см}^2$ ; 3 –  $I(v1-e3) = 130 \text{ Вт/см}^2$ ,  $I(v2-e2) = 163 \text{ Вт/см}^2$ ; 4 –  $I(v1-e3) = 180 \text{ Вт/см}^2$ ,  $I(v2-e2) = 240 \text{ Вт/см}^2$ ; 5 –  $I(v1-e3) = 230 \text{ Вт/см}^2$ ,  $I(v2-e2) = 309,3 \text{ Вт/см}^2$ . Сохранение величины коэффициента усиления при перестройке приведет к постоянству квантовой эффективности прибора. Перестройка, полученная за счет оптически индуцированного заселения активных подзон, обусловлена эффектом непараболичности подзон. При увеличении общей концентрации носителей заряда в зоне проводимости область в  $k$ -пространстве, где присутствует инверсия населенности, сдвигается на периферию зоны Бриллюэна. В этих точках  $k$ -пространства энергия переходов меньше по сравнению с центром зоны Бриллюэна.

Таким образом, в общем случае величина сдвига спектральной характеристики зависит от непараболичности подзон. Чем больше разность эффективных масс верхней и нижней подзон, тем больше диапазон перестройки при заполнении  $k$ -пространства. В рассматриваемом случае GaAs/AlGaAs возможно достичь перестройки в пределах 1,0 мэВ.

На рис. 6 показаны необходимые значения интенсивности накачки, позволяющие получить перестройку без изменения величины коэффициента усиления в максимуме спектральной характеристики.

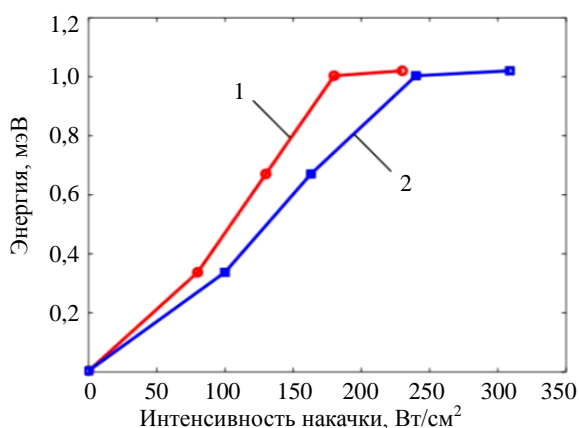


Рис. 6. Зависимость энергии перестройки спектральной характеристики усиления от интенсивности накачки в каналах  $\nu_1-\epsilon_3$  (кривая 1) и  $\nu_2-\epsilon_2$  (кривая 2)

Как следует из представленных на рисунке данных, оптическая перестройка нелинейно зависит от интенсивности сигналов накачки и претерпевает насыщение начиная с значений интенсивностей 177 Вт/см² в канале  $\nu_1-\epsilon_3$  и 240 Вт/см² в канале  $\nu_2-\epsilon_2$ , при этом достигнув значения перестройки 1 мэВ. Термин «насыщение» в данном случае означает, что дальнейшее увеличение интенсивности оптической накачки не меняет положение пика спектральной характеристики усиления на энергетической шкале. Каждому значению энергии перестройки на рис. 6 соответствуют два значения интенсивности накачки, которые не равны друг другу. Кроме того, по мере увеличения энергии сдвига пика спектральной характеристики усиления разность интенсивностей между ними увеличивается. Таким образом, для увеличения перестройки и сохранения неизменного уровня усиления необходимо производить увеличение интенсивности накачки в каждом из каналов с разной скоростью по определенному закону.

**Выводы.** Таким образом, показана возможность оптической перестройки спектральной характеристики усиления трехъямной ККС без значительного изменения коэффициента усиления в максимуме. Это позволит, используя совместно

оптическую перестройку ККС и перестройку резонатора лазера, получить сдвиг частоты генерации без изменения выходной мощности прибора. Перестройка осуществляется путем оптической накачки на межзонных переходах, которая подается на ККС, пребывающей в режиме генерации. Результаты математического моделирования показывают, что в трехъямной ККС сдвиг спектральной характеристики усиления достигает 1,0 мэВ, что составляет порядка 10 % от центральной частоты. Полученное значение приблизительно равно ширине полос поглощения *PETN* в ТГц-диапазоне частот. Это делает возможным применение оптической перестройки для спектроскопического обнаружения этого вещества. В случае если квантово-каскадный лазер настроен на центральную частоту одного из пиков поглощения *PETN*, такая перестройка позволит с большим разрешением получить участок спектральной характеристики исследуемого вещества, на основании которого можно определить наличие или отсутствие пика поглощения, характеризующего взрывчатое вещество. Таким образом, используя два перестраиваемых квантово-каскадных лазера, каждый из которых настроен на определенный пик поглощения спектральной характеристики *PETN*, можно с большой достоверностью провести детектирование этого вещества.

Сдвиг максимума спектральной характеристики определяется эффектом непараболичности подзон. Дальнейшего увеличения полосы перестройки можно достичь, используя полупроводниковые материалы со значительной непараболичностью зоны проводимости, такие как разреженные полупроводниковые нитриды. Увеличение диапазона перестройки в 5 раз позволит использовать всего один источник для спектроскопического анализа *PETN*.

1. *Leahy-Hoppa M. R.* Terahertz spectroscopy techniques for explosives detection / M. R. Leahy-Hoppa, M. J. Fitch, R. Osiander // *Anal. Bioanal. Chem.* – 2009. – 395. – P. 247–257.
2. *Security application of terahertz technology* / M. C. Kemp, P. F. Taday, B. E. Cole et al. // *Proc. of SPIE.* – 2003. – 5070. – P. 44–52.
3. *Hsu S. S.* Equipment to detect explosives is available // *The Washingtonpost* [Электронный ресурс]. – Режим доступа: <http://www.washingtonpost.com/wp-dyn/content/article/2009/12/27/AR2009122702021.html>. – Загл. с экрана.
4. *Akhavan J.* The chemistry of explosives / J. Akhavan. – 2<sup>nd</sup> edition. – Cambridge: The Royal Society of Chemistry, 2004. – 181 p.
5. *Electrically tunable, high performance quantum-cascade laser* / A. Bismuto, R. Terazzi, M. Beck, J. Faist // *Appl. Phys. Lett.* – 2010. – 96, N 14. – 141105(3 p.).
6. *Dupont E.* Simplified density-matrix model applied to three-well terahertz quantum cascade lasers / E. Dupont, S. Fatholouloumi, H. C. Liu // *Phys. Rev. B.* – 2010. – 81, N 20. – 205311(18 p.).
7. *Haug H.* Quantum theory of the optical and electronic properties of semiconductors / H. Haug, S. W. Koch. – 4<sup>th</sup> edition. – Singapore: World Scientific, 2004. – 453 p.

8. Room temperature excitonic nonlinear absorption and refraction in GaAs/AlGaAs multiple quantum well structures / D. S. Chemla, D. A. B. Miller, P. W. Smith et al. // IEEE J. Quantum Electron. – 1983. – QE-20, N 3. – P. 265–275.

S. I. Petrov, M. V. Klymenko, O. V. Shulika

OPTICAL SPECTRAL TUNING  
IN QUANTUM-CASCADE STRUCTURES  
FOR SPECTROSCOPIC SENSING  
OF EXPLOSIVES

In this paper we propose a new approach to spectral tuning in quantum-cascade structures. Based on phase space filling effect, spectral tuning is accompanied by the continuous optical pump. According to mathematical modeling of optical properties of quantum cascade-structures, proposed method allow to realize tuning in the range up to 1.1 meV without significant changes of peak gain magnitude. Obtained results are of interest for spectroscopic sensing of explosives.

**Key words:** quantum-cascade structure, absorption spectra, density matrix, interband transitions, intersubband transitions, optical pump, phase space filling effect.

С. І. Петров, М. В. Клименко, О. В. Шуліка

ОПТИЧНЕ ПЕРЕСТРОЮВАННЯ  
СПЕКТРАЛЬНИХ ХАРАКТЕРИСТИК  
КВАНТОВО-КАСКАДНИХ СТРУКТУР  
ДЛЯ СПЕКТРОСКОПІЧНОГО ВИЯВЛЕННЯ  
ВИБУХОВИХ РЕЧОВИН

Запропоновано новий метод перестроювання спектральних характеристик підсилювання квантово-каскадних структур. Перестроювання здійснюється з використанням оптичної накачки в безперервному режимі та базується на ефекті заповнення фазового простору. Згідно з результатами математичного моделювання оптичних властивостей квантово-каскадних структур, запропонований метод дозволяє здійснити перестроювання спектральної характеристики підсилення в діапазоні до 1,1 меВ без суттєвих змін величини коефіцієнта підсилення в максимумі. Одержані результати є корисними в галузі спектроскопічного виявлення вибухових речовин.

**Ключові слова:** квантово-каскадна структура, спектральна характеристика поглинання, матриця густини, міжзонні переходи, міжпідзонні переходи, оптичне перестроювання, ефект заповнення фазового простору.

*Рукопись поступила 24.11.10 г.*