



太赫兹半导体激光光频梳研究进展

廖小瑜 曹俊诚 黎华

Research progress of terahertz semiconductor optical frequency combs

Liao Xiao-Yu Cao Jun-Cheng Li Hua

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 69, 189501 (2020) DOI: 10.7498/aps.69.20200399

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200399>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

太赫兹量子级联激光器频率梳的色散

Group velocity dispersion analysis of terahertz quantum cascade laser frequency comb

物理学报. 2019, 68(10): 109501 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190217>

光频链接的双光梳气体吸收光谱测量

Optical frequency linked dual-comb absorption spectrum measurement

物理学报. 2018, 67(9): 090701 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180150>

奇异谱分析用于提升双光梳激光测距精度

Singular spectrum analysis for precision improvement in dual-comb laser ranging

物理学报. 2018, 67(1): 010601 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20171922>

基于飞秒锁模光纤激光脉冲基频光的差频产生红外光梳

Fiber-type difference frequency generation infrared optical frequency comb based on the femtosecond pulses generated by a mode-locked fiber laser

物理学报. 2018, 67(9): 094207 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20172503>

基于嵌套三角形包层结构负曲率太赫兹光纤的研究

Research on negative curvature terahertz fiber based on nested triangle structure cladding

物理学报. 2020, 69(16): 167801 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200457>

光梳主动滤波放大实现锶原子光钟二级冷却光源

Optical frequency comb active filtering and amplification for second cooling laser of strontium optical clock

物理学报. 2018, 67(8): 080601 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20172733>

专题: 低维材料非线性光学与器件

太赫兹半导体激光光频梳研究进展*

廖小瑜¹⁾²⁾ 曹俊诚¹⁾²⁾ 黎华^{1)2)†}

1) (中国科学院上海微系统与信息技术研究所, 中国科学院太赫兹固态技术重点实验室, 上海 200050)

2) (中国科学院大学, 材料与光电研究中心, 北京 100049)

(2020年3月16日收到; 2020年4月23日收到修改稿)

光频梳由一系列等间距、高稳定性的频率线组成. 由于具有超高频率稳定性和超低相位噪声, 光频梳在精密光谱测量、成像、通信等领域具有重要应用. 在太赫兹波段, 基于半导体的电抽运太赫兹量子级联激光器具有大功率输出、宽频率覆盖范围等特点, 是产生太赫兹光频梳的理想载体. 本文主要介绍基于太赫兹半导体量子级联激光器光频梳的研究进展, 详细列举了自由运行、主动稳频和被动稳频模式下产生光频梳的方法. 双光梳光谱可以克服传统太赫兹光谱仪需要机械扫描系统而难以实现实时光谱检测的难题, 是光频梳应用的主要方向. 在光频梳基础之上, 本文还介绍了采用两个太赫兹量子级联激光器产生双光梳的方法和应用.

关键词: 太赫兹量子级联激光器, 色散, 光频梳, 双光梳

PACS: 95.85.Gn, 42.55.Px, 42.50.Nn, 42.60.Lh

DOI: 10.7498/aps.69.20200399

1 引言

光频梳^[1]由一系列等间距、高稳定性的频率线组成. 它可以用两个频率参数完全定义, 即载波偏移频率 (f_{ceo}) 和重复频率 (f_{rep}). 一旦这两个频率已知, 光频梳的每一个频率就可以被确定. 为了较好地理解光频梳的结构及其稳定性^[2], 在这里考虑脉冲在具有载波频率为 f_c , 长度为 L 的激光腔中循环的理想情况. 如图 1(a) 所示^[3], 在时域上, 耦合出谐振腔的脉冲序列具有严格的周期包络函数, 其重复频率由激光腔中光的群速度和腔长决定, 即 $f_{\text{rep}} = V_g/2L$ (其中 V_g 是由往返时间和腔长定义的腔体平均群速度). 从图 1(a) 可以看出, 相邻脉冲并不完全相同, 这是由于在激光谐振腔中存在色散. 脉冲包络线 $A(t)$ 以 V_g 传播, 而载波以其相位速度 V_p 传播, V_g 通常不等于 V_p , 因此载波在腔内每次

往返之后相对于脉冲包络移动一个相位角 $\Delta\varphi$. 在频域上, 通过傅里叶变换得到的光频梳呈现为梳齿状, 并且每条频率线满足关系式 $f_n = n f_{\text{rep}} + f_{\text{ceo}}$, 其中 f_{rep} 的范围一般从几十兆赫兹到几千兆赫兹, n 的值大约在 10^5 — 10^6 之间^[4]. 偏移频率 f_{ceo} 通过“自参考”方法测量^[5,6], 但这需要光频梳的光谱范围超过一个光学倍频. 如图 1(b) 所示, 首先取出低频信号 $\omega_n = n\omega_r + \omega_0$, 并将其以非线性倍频的方式得到 $2\omega_n$ ($2\omega_n = 2n\omega_r + 2\omega_0$), 再将其与高频信号 ω_{2n} ($\omega_{2n} = 2n\omega_r + \omega_0$) 进行拍频, 取得拍频信号 ω_0 ($\omega_0 = 2\omega_n - \omega_{2n}$), 即为偏移频率.

早期, 光频梳的产生是通过二阶 ($\chi^{(2)}$) 非线性效应——电光 (electro-optics, EO) 调制的方法^[7,8], 这种方法使用固定频率的微波信号去调制单频率的激光产生边带谱线, 当这种边带发生级联过程之后就能产生一定宽度的光频梳. 这种传统光频梳因为大部分都依赖于铌酸锂电光调制器, 所以产生的

* 国家优秀青年科学基金 (批准号: 62022084)、国家自然科学基金 (批准号: 61875220, 61575214, 61404150, 61405233, 61704181)、中国科学院“从 0 到 1”原始创新项目 (批准号: ZDBC-LY-JSC009)、国家重点研发计划 (批准号: 2017YFF0106302, 2017YFA0701005)、上海市优秀学术带头人 (批准号: 20XD1424700) 和上海市青年拔尖人才开发计划资助的课题.

† 通信作者. E-mail: hua.li@mail.sim.ac.cn

光谱带宽非常窄, 其最宽的频谱宽度大约只有 10—20 nm. 铌酸锂材料作为电光材料之一, 同时具有二阶和三阶非线性效应, 因为其调制电压高, 导致产生边带的效率较低, 使得实验结果不理想. Zhang 等^[9] 提出了一种新的方法, 首次在铌酸锂集成光子芯片上实现了宽谱电光梳. 在片上制备了高质量的纳米铌酸锂^[10] 微环腔和高频微波金属电极, 直接在超高 Q 值铌酸锂微环内对光子施加高频微波调制, 器件结构如图 2(a) 所示. 黑色细线是刻蚀的铌酸锂波导和微环, 上下两端的金色部分是金属 Au 接地, 中间金色的 Signal 是信号端射频调制, 这两端被电压驱动使得环上下两半部分产生的调制相位相反. 实验最终得到频梳线超过 900 条, 带宽超过 80 nm, 重复频率为 10.453 GHz (图 2(b)). 这种结构不仅继承了传统电光频率梳的稳定性, 而且体积小, 功耗低, 解决了色散对电光频率梳宽度的限制, 具有高电光响应、低极光损耗、高度共局域的微场和光场, 它的极易重构性 (脉冲重复频率可调节) 使得光频梳具有更为广泛的应用领域. Marin-Palomo 等^[11] 在实验过程中不仅利用氮化硅微谐振器产生了光频梳, 还利用其超高速数据传输的性质, 以 179 个独立的载波波长, 实现了用 75 km 的单模光纤传输 50 MB 的数据, 通信容量超过 50 亿台手机或者 200 万路高清电视的总和.

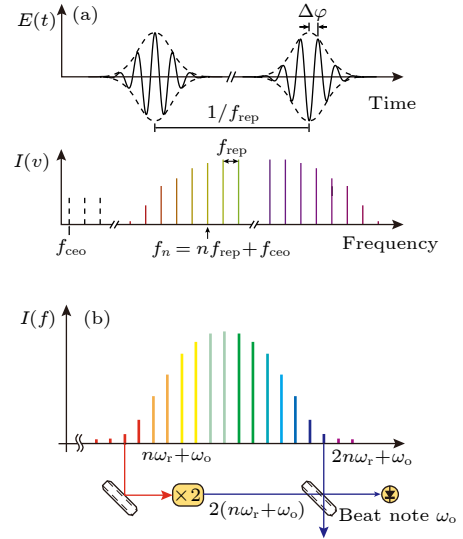


图 1 (a) 光频梳的时域和频域光谱^[3]; (b) 自参考方法测量光频梳的偏移频率^[2]

Fig. 1. (a) Time domain and frequency domain spectra of the optical frequency comb^[3]; (b) measuring the offset frequency of the optical comb using a self-reference method^[2].

以上讨论产生光频梳的方法均用到了微环谐振腔, 产生波段均在通信范围内. 基于微环谐振腔的光频梳可用于芯片级和数据高速率传输, 而具有上述光谱特性的光频梳也已在在中红外波段得到了证实和应用. 有研究者提出在中红外波段的单通差频混频器^[12], 采用的方法为差频生成 (difference frequency generation, DFG) 方法. 这种方法可以

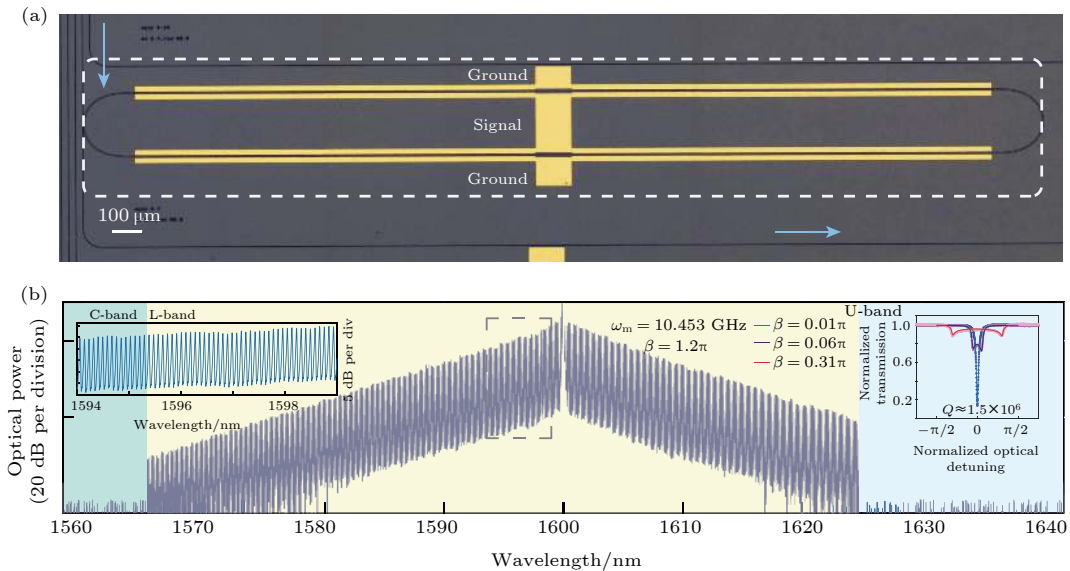


图 2 (a) 铌酸锂微环谐振腔的显微图; (b) EO 梳的输出光谱, 带宽超过 80 nm, 频梳线超过 900 条, 左侧插图为虚线框的放大, 右侧插图为在不同调制指数 β 的情况下测量的透射光谱^[9]

Fig. 2. (a) Micrograph of a fabricated lithium niobate microring resonator. (b) Output spectrum of the EO comb generated from the microring resonator, the bandwidth exceeding 80 nm and more than 900 comb lines. The left inset shows a magnified view of the dotted. The right inset shows the measured transmission spectrum for several different modulation indices β ^[9].

使得产生的光频梳平均功率在微瓦至毫瓦量级,并且能使用常用的检测方案进行测量,最终可实现波长范围在 3.2—4.8 μm , 平均功率高达 1.07 W, 重复频率为 82 MHz 的中红外辐射调谐. Gubin 等^[13]提出了基于 Er^{3+} 光纤飞秒激光器和双模 He-Ne 光学频率标准的光学时钟, 研究方案包括周期性极化铌酸锂 (PPLN) 晶体中的 DFG 工艺, 用于将 Er^{3+} 光纤飞秒激光器光频梳的近红外波段下变频到中红外波段. 同时, Adler 等^[14]在中红外波长区域实现了一种基于高功率光学参量振荡器 (optical parametric oscillator, OPO) 的光频梳, 采用的是 MgO 掺杂的 PPLN 晶体, 实现了 2.8—4.8 μm 范围内连续可调谐, 平均功率高达 1.5 W. 基于非线性光学的光源的关键是需要提高光子转换过程的效率, 采用 OPO 的方法恰好能够达到这一目的.

光频梳的应用及其广泛, 它是光通信、精密计量等^[15]的基本工具^[16,17]. 通过利用光频梳高度稳定的频率线, 可以使用其作为标尺测量绝对频率; 其次, 利用光频梳产生的超短脉冲, 可以结合抽运探针技术, 研究半导体材料以及分子中载流子的时间分辨动态过程等. 更值得注意的是, 光频梳是 2005 年诺贝尔物理学奖的重要研究内容, 获奖人分别为美国哈佛大学的 Glauber R J, 美国国家标准技术研究院的 Hall J L 以及德国马普量子光学所的 Hänsch T W. 其中, Hänsch T W 和 Hall J L 因对超精细激光光谱学 (包括光频梳技术的发展) 作出重大贡献而获此殊荣.

尽管在中红外和近红外波长中光频梳发展迅速, 但仍然需要其他波长的相干梳源来满足各种光谱范围的应用要求, 尤其是太赫兹 (Terahertz, THz) 频率范围内存在大量吸收气体和化学物质的“指纹”, 这对于诸如气体示踪, 有毒物质检测等实际应用而言极其重要. 近年来, THz 波以其独特的性能和广泛的应用^[18,19]受到世界各国的关注, 随着其应用于交叉研究的学科领域不断扩大, THz 波与光频梳相结合存在潜在的研究前景.

2 太赫兹半导体激光光频梳

太赫兹波通常是指频率为 100 GHz—10 THz, 波长为 3 mm—30 μm 的电磁波^[20–24], 位于微波和红外光之间. 许多分子和固体在 THz 波段具有很强的吸收谱, 因此 THz 技术可以用于光谱学及成

像^[25]应用; 许多可见光不透明材料如纸、塑料和陶瓷等在 THz 波段能被穿透, 因此 THz 技术还能用于武器、毒品和炸药等安检应用^[26–28]. 相比于微波, THz 波波长短, 具有更高的空间分辨率. 相比于高能 X 射线成像, THz 能量低, 成像不会损伤目标体^[29]. 由于很多生物大分子的旋转和振动能量大都在 THz 波段, 且 THz 波光子能量低不会损害生物体, 因此 THz 技术还可以用于对疾病的诊断以及蛋白质和 DNA 分子特性的研究^[30–32]. 此外, THz 波作为载波具有比微波更高的带宽, 非常适合局域网和高速无线通信领域^[33–35]. THz 波相比于红外线具有更好的穿透能力, 因此在短距离范围内, 太赫兹通信具有很高的保密性和抗干扰能力. 它还可以解决计算数百 THz 光学频率的问题, 有助于高精度光谱应用的发展, 制造新的全光学原子钟, 预计最终可以超过当今最先进的铯钟^[2].

THz 波与光频梳的结合是研究趋势, 而缺少高功率、低造价、轻质量、小体积的 THz 辐射源是限制其应用最主要的因素之一. 在传统的半导体激光器中, 例如 GaAs 电光晶体和 ZnTe 电光晶体, 它们通过光整流效应, 不需要外加直流偏置电场, 可以直接作为辐射器发出 THz 波. 但由于在晶体内部光脉冲传播速度快于 THz 脉冲的传播速度, 很难在 THz 这样宽的频段内做到相位匹配, 并且辐射出的 THz 波能量主要取决于抽运激光转换成 THz 波的效率, 导致其能量极低, 应用范围很窄. 除此之外, 利用超短脉冲触发电导天线辐射 THz 波虽然可以通过外加电场的大小来获得能量较强的 THz 波, 但是光电导天线^[36–38]产生的 THz 波频率较低, 只能满足很小一部分的频率范围. 因此, 不管是使用非线性晶体中的光整流还是光电导天线中的光混合, 这些技术都需要外部的飞秒激光抽运, 使得系统体积庞大, 这对于实现更小型化, 更高的 THz 频率, 跨越更宽的 THz 波段是满足不了的.

2002 年, 世界上第一个太赫兹量子级联激光器 (THz quantum cascade laser, THz QCL)^[39,40]由意大利和英国剑桥大学的科学家合作研制完成. 它是一种全固态电泵浦的单极性 THz 源, 电子通过子带间的光学跃迁辐射出光子, 子带能级之间的能量差由量子阱和势垒的宽度决定, 通过改变势阱和势垒的宽度, 可以改变激射能级之间的能量差, 从而控制辐射光子的频率. 其次, QCL 是一种级联

的结构, 它的有源区由几十甚至上百个重复的周期组成, 电子在每个周期内释放光子, 这样使得器件的输出功率大幅度提升. THz QCL 产生的光频梳, 具有紧凑、高精度、高稳定性和高输出功率^[41,42]的特点, 可以与传统的傅里叶光谱学结合作为宽带激光光源. 由于 THz QCL 光频梳在不使用标准激光器和标准材料的情况下能够实现绝对校准, 它还适用于分子指纹识别, 包括气体分子、非法药物、生物分子和爆炸物品等. 此外, 利用 THz QCL 实现光频梳大幅度提高了当前 THz 频段测量的频谱精度. 之前 THz 光谱仪的分辨率在 GHz 量级, 无法实现很多窄线宽 THz 谱线的测量, 而 THz QCL 光频梳的频率稳定性可以达到 kHz—MHz 量级, 频谱分辨率至少提高 3 个数量级. 不仅如此, THz QCL 具有低阈值电流密度、高转换效率、单模窄光谱线宽、小远场发射角等优异性能^[43], 已成为 1—5 THz 范围内应用最广泛的辐射源, 是产生光频梳的理想选择.

半导体激光器产生光频梳的天然机制是四波混频. 如图 3(a) 和图 3(b) 所示^[44], 四波混频是一种基于三阶光学非线性的非线性效应, 当有至少两种不同频率分量的光在同一非线性介质中传播时就有可能产生四波混频效应. 假如输入光中有两个频率 ν_1 和 ν_2 ($\delta = \nu_2 - \nu_1$), 由于差频折射率调制的存在, 会产生两个新的频率分量, 即 $\nu_1 - \delta$ 和 $\nu_2 + \delta$. 梳齿的形成则是通过在激光器有源区中电子子带间跃迁的共振激发进行四波混频的结果.

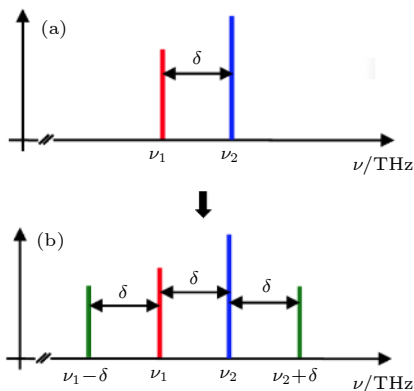


图 3 (a) 两个间隔为 δ 的初始频率 ν_1 和 ν_2 ; (b) 四波混频过程后的频率分布图, 绿色曲线为产生的新的频率边带, 频率分别为 $\nu_1 - \delta$ 和 $\nu_2 + \delta$ ^[44]

Fig. 3. (a) Initial mode frequencies, ν_1 and ν_2 , separated by δ ; (b) final frequencies resulting from four-wave mixing, with the two sidebands at $\nu_1 - \delta$ and $\nu_2 + \delta$ shown in green^[44].

然而, 要实现宽带、高频率稳定性的 THz QCL 激光光频梳, 仅仅依靠四波混频是不够的. 通常, 人们可以通过激光器群速度色散调控、主动和被动稳频等技术来进一步扩展光频梳频率覆盖范围、降低相位噪声、提高频率稳定性.

2.1 群速度色散调控

对于 THz QCL 产生光频梳而言, 如果实验装置中没有任何额外的锁模机制, 就把这种激光器称作在自由运行 (free-running) 模式下工作. 而在自由运行模式中, 四波混频 (four wave mixing, FWM) 过程^[45]是微谐振腔-半导体激光器^[46]产生光频梳的重要机制.

有源区的设计及优化都是为了补偿色散问题, 色散是衡量 THz QCL 频率梳的重要指标之一^[47], 较大的色散会破坏 THz QCL 频率梳的稳定性, 限制频谱的宽度. 在 QCL 中, 一般将电磁波的群速度定义为波的整体形状 (称为波的调制或者包络) 在空间中传播的速度^[48]. 如果某一介质的折射率是频率的函数, 则不同频率的波在其腔内传播的速度会不同, 不同频率的光就会有光程差以及产生不同的折射角, 这种现象就被称为群速度色散 (GVD)^[49], 用 (1) 式表示:

$$\text{GVD} = \frac{\partial}{\partial \omega} \frac{1}{Vg(\omega)} = \frac{\partial}{\partial \omega} \frac{n(\omega) + \omega \frac{\partial(\omega)}{\partial \omega}}{c}. \quad (1)$$

宽带 QCL 可以通过四波混频过程作为锁相机制来实现光频梳, 而四波混频产生模式增殖主要取决于腔内的 GVD. 在 QCL 中, GVD 主要包括三个组成部分: 材料色散、波导色散和增益色散, 用 (2) 式表示:

$$\text{GVD} = \text{GVD}_{\text{mat}} + \text{GVD}_{\text{mod}} + \text{GVD}_{\text{gain}}. \quad (2)$$

Zhou 等^[50]研究了器件结构 (比如波导脊条宽度, 分别选为 100 μm , 150 μm 和 200 μm) 对 QCL 工作的影响, 系统计算讨论了材料色散、波导色散和增益色散. 在实验中, 首先计算了器件的波导损耗和钳制增益, 如图 4(a) 所示, 灰色曲线代表未钳制的增益. 由于增益钳制效应^[51], 当增益超出阈值增益时, 会被钳制到阈值增益的值, 因此图中的实线与虚线重合. 接着利用 Kramers-Kronig 关系计算出色散随频率变化的折射率, 在一般情况下消光系数是频率的函数, 那么折射率 n 也是频率的函数, 所以通过关系式 (1) 得到每一种相应的 GVD

之后, 将三种 GVD 结合就可以得到器件总的 GVD, 如图 4(b) 所示. 在器件的激光区域内, 其总的色散主要由钳制后的增益决定, 但考虑到增益钳制效应, 波导色散和材料色散仍然对器件的总色散有着重要贡献. GVD 的存在会限制频谱的宽度, 出现高噪声区域, 以及出现拍频信号展宽等不稳定因素, 因此, 为了提高梳齿区域在光频梳整个动态范围内的比值, 需要一种补偿激光器固有色散的方法 [52,53].

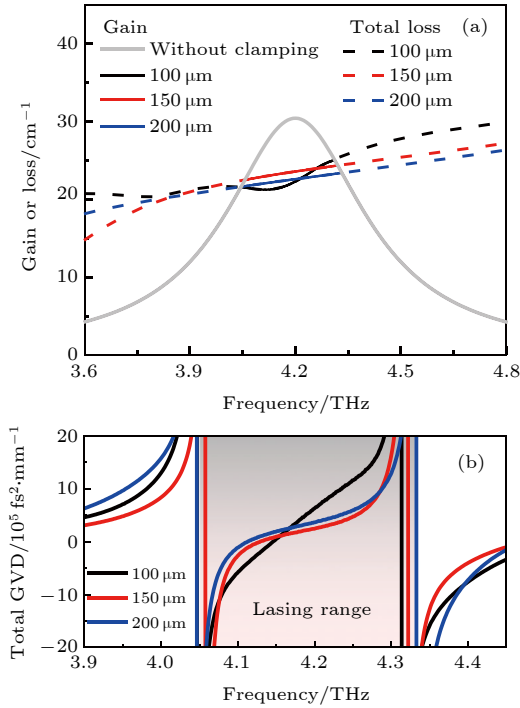


图 4 (a) 不同脊条宽度下器件的钳制增益和总损耗与频率的关系; (b) 不同脊条宽度下的总 GVD, 其中 4.05—4.35 THz 的阴影区域代表 THz QCL 的激光区域 [50].
Fig. 4. (a) Calculated clamped gain and total loss as function of frequency for lasers with different ridge widths; (b) total GVDs at different ridge widths. The shaded area from 4.05 to 4.35 THz represents the lasing range of the THz QCL [50].

传统半导体激光器的有源区大部分都采用同质型结构, 是由在光波导上基于同一材料简单设计的重复单元组成. 这种结构的特征在于均匀的线宽展宽, 意味着由于模式竞争会使得增益带宽变窄, 因此, 为了获得展宽的增益带宽, 使得色散的影响足够小, 可以考虑与这种有源区结构相对的——异质型结构 [54,55]. 这种结构通过工艺技术使得每层材料的中心频率不同, 通过堆叠在一起形成有源区 [56,57]. 它相对于同质型 QCL 有更加平坦的增益

带宽, 具有固有的宽带发射和良好的高温性能 (可高达 160 K). Rösch 等 [58] 通过此方法实现了一种在连续波中工作的半导体激光器, 如图 5(a) 所示. 器件主要采用双面金属波导结构 [59], 将光场限制在上下两层金属之间, 达到提高模式限制因子的目的. 有源区每层材料的中心频率被分别设计在 2.3, 2.6 和 2.9 THz. 图 5(a) 为器件的增益带宽, 证明了此结构相对于单一频率设计的有源区来说增益带宽大大增加, 并且从图 5(b) 可以看出在激光模式之间有着均匀的功率分布, 光谱频率从 1.64 THz 到 3.35 THz (波长从 89.5 μm 到 183 μm), 实现了跨越一个倍频程 [60] 的光谱, 有利于提高光频梳梳齿的稳定性. Burghoff 等 [61] 提出如图 6(a) 所示的器件结构. 在图中, 啁啾波纹型的结构刻蚀在激光器的一端, 其周期随着振幅的增大逐渐减小, 长波长的光 (具有较高的群速度) 在反射之前能传播到腔的末端, 而短波长的光在到达末端之前就已经被反射, 从而调节了光的相位, 得到了近 500 GHz 的光谱频率覆盖范围, 在 3.5 THz 附近模式数量超过 70 (图 6(b)). 这种啁啾波纹型结构使辐射出的 THz 波功率升高, 光谱带宽展宽, 可以形成紧凑的太赫兹光谱仪, 实现更精确测量.

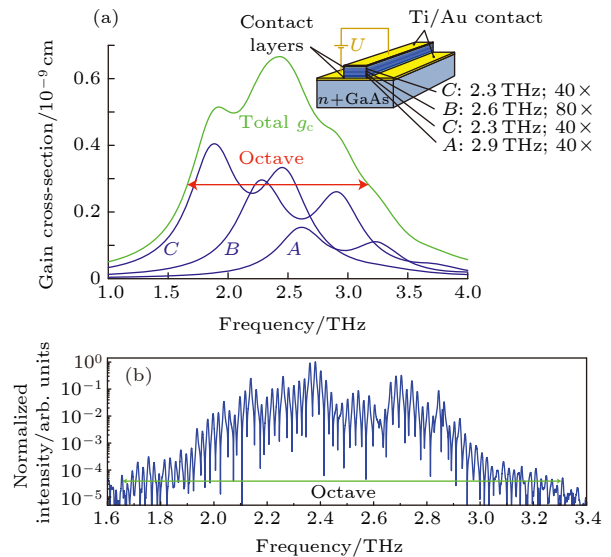


图 5 (a) 计算器件的横截面增益 g_c , 蓝色曲线为有源区单独每一部分的增益曲线, 绿色曲线为有源区总的增益曲线, 插图为激光器有源区的设计模型; (b) 激光器的发射光谱, 跨越了一个倍频程 [58].
Fig. 5. (a) Calculated gain cross-section g_c . Blue curves: individual designs. Green curve: total active region. Inset: design of the laser active region. (b) Octave-spanning spectrum of laser [58].

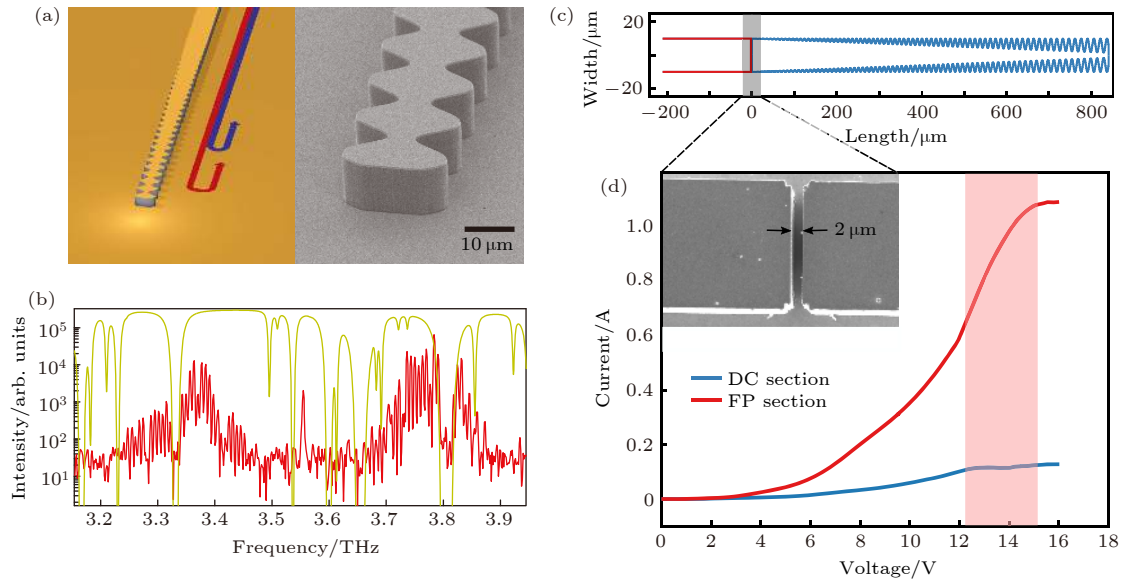


图 6 (a) 啁啾波纹型结构, 红色为较长波长的波, 蓝色为较短波长的波; (b) 温度为 50 K 时, THz QCL 梳的光谱, 黄线表示为水汽吸收^[61]; (c) 两段式器件结构示意图, 直流部分为蓝色, FP 的一部分为红色; (d) 每一段结构的电流-电压特性, 粉色阴影区域表示激光器的动态范围, 插图为实际设备空气间隙的 SEM 照片^[63]

Fig. 6. (a) Schematic of the chirped corrugation. The red wave has longer wavelength, while the blue wave has shorter wavelength. (b) Spectrum of the THz QCL comb at a temperature of 50 K. Atmospheric absorption is shown in yellow^[61]. (c) Schematic of the device in a two-section configuration. The DC section is shown in blue; part of the FP section is in red. (d) Current-voltage characteristics for each section. The pink-shaded area indicates the entire dynamic range of lasing. The inset shows the SEM photo for the air gap in the real device^[63].

除了对有源区的设计改进, 还可以选择在激光腔外优化, 改变光的耦合方式. Villares 等^[47] 提出在 QCL 梳的背面集成 Gires-Tournois 干涉仪 (GTI 镜), GTI 反射镜直接沉积在器件的背面, 由几层 Al_2O_3 和 SiO_2 交替形成, 并以金层作为顶层. 在结构中, GTI 充当高反射镜引入色散, 其引入的色散具有周期性, 而其周期性取决于材料的长度和折射率, 通过精确控制这些参数, 一个 GTI 反射镜就可以在 QCL 梳中引入正色散或者负色散, 从而抵消激光器的固有色散. Hillbrand 等^[62] 在不改变 QCL 本身的情况下, 在激光器背面放置一个平面镜, 镜子与器件的端面形成 Gires-Tournois 腔. 这种基于外部可调的 GTI 反射镜, 通过调节端面到镜子的距离, 增强或减小色散, 补偿色散的同时不再观察到高相位噪声状态. 通过 GTI 反射镜引入的相位还可用于调谐光频梳的 f_{ceo} , 并且梳子的 f_{rep} 不受影响, 因此, 这种外部 GTI 结构提供了用于独立调谐 f_{ceo} 和 f_{rep} 的工具, 实现了光频梳的全频率稳定. 但他们所研究的波段在中红外波段, 为了在 THz QCL 中引入 GTI 结构进行器件性能提升, Yang 等^[63] 提出一种在两段式结构中实现色散补

偿的方案, 实验结构如图 6(c) 和图 6(d) 所示. 这种结构包括两个部分, 一个 F-P 腔和一个直流控制的短腔, 短腔可以充当一个调制器的角色. 在两者之间具有 $2 \mu\text{m}$ 长的空气间隙, 这个窄的间隙允许直流部分独立偏置, 以至于有效地“平衡”掉 F-P 腔中与偏置相关的色散, 从而实现色散补偿. 最终在 3.5 THz 处得到了约 600 GHz 的频谱覆盖范围, 并且整个梳齿模式变得“牢固”.

2.2 主动稳频

2.2.1 射频注入锁模

当相位噪声很大时, 激光器工作在不稳定的状态, 光频梳的梳齿可能会在某一特定频率附近左右“摇摆”, 这时, 如果采用主动锁模调制方法^[64], 即外加一个射频 (radio-frequency, RF) 信号去抑制这种不稳定性, 那么就能提高模式相干性, 同时还可以展宽 THz QCL 光频梳的发射光谱^[65]. 在 THz QCL 器件的工艺加工中, 为了减小器件有源区的增益饱和, 需要设计结构提高有源区的上能级寿命. 目前, 在能实现相对较长的上能级寿命且性能最好的 QCL 结构中, 有源区采用的是束缚态向

连续态跃迁的设计^[66–68]. 因为其具有较高的电子注入效率, 能够最大限度的提高激光能级之间的粒子数反转^[66].

Barbieri 等^[69] 使用发射波长在 1.55 mm (发射频率为 193 THz) 的商用锁模掺铒飞秒激光器, 对发射频率为 2.5 THz 的 QCL 进行异步采样, 实验装置如图 7 所示. 通过直接调制其偏置电流获得 QCL 的锁模, 将重复频率为 13.3 GHz 的 QCL 锁相到飞秒激光器重复频率 (96.5 MHz) 的谐波上, 得到了图 8(a)–(d) 的结果图. 可以看出,

随着调制频率和功率的上升, 纵模数量逐渐增大, 激光器稳定工作. 对于这种技术, 它具有两个突出的优势. 首先, 它几乎可以在任何时间量程上对 THz QCL 波形进行相干采样, 能够确定器件工作在主动锁模机制; 其次, 它能够控制 QCL 的载波包络相位, 使得梳齿更加稳定. 另外, 由于子带间光学跃迁的窄增益带宽或者由于有源区的不均匀堆叠都会导致 THz 光谱不均匀, 在长腔 THz QCL 基于束缚态向连续态跃迁和共振声子设计的情况下, Wan 等^[70] 演示了均匀展宽的发射光谱,

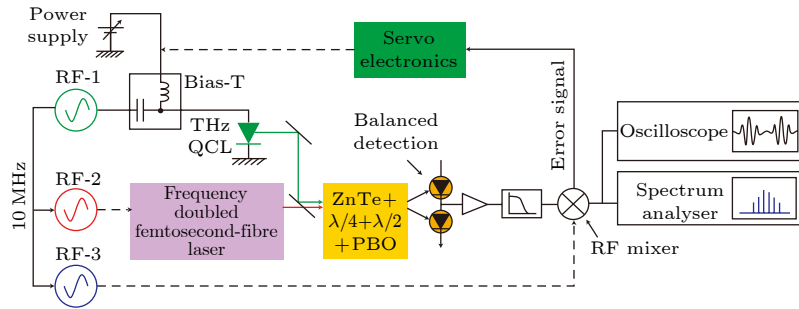


图 7 THz QCL 主动锁模实验装置图, THz QCL 发射频率为 2.5 THz, 重复频率为 13.3 GHz^[69]

Fig. 7. Experimental setup of THz QCL active mode-locking. The emitting frequency of THz QCL is 2.5 THz and its repetition frequency is 13.3 GHz^[69].

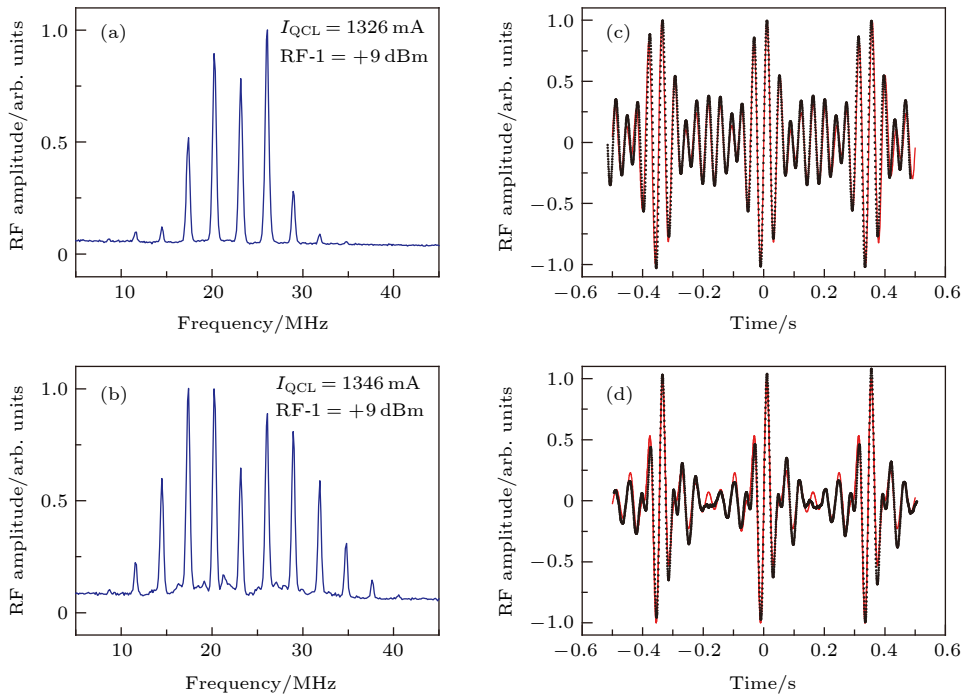


图 8 (a), (b) 对 THz QCL 同时进行注入和锁相的情况下, 改变 RF 功率和电流得到的拍频信号图; (c), (d) 对应条件下在时域内测得的波形, 图中的黑点为实验值, 红色曲线为理论计算值, 其中假设了所有模式具有等相位^[69]

Fig. 8. (a), (b) In the case of simultaneous injection and phase-locking of THz QCL, the beat-note signal diagram obtained by changing the RF power and the current. (c), (d) The waveforms are measured in the time domain under the corresponding conditions. The black dots in the figure are experimental values. The red curves are the result of theoretical calculations by assuming that all modes have equal phase^[69].

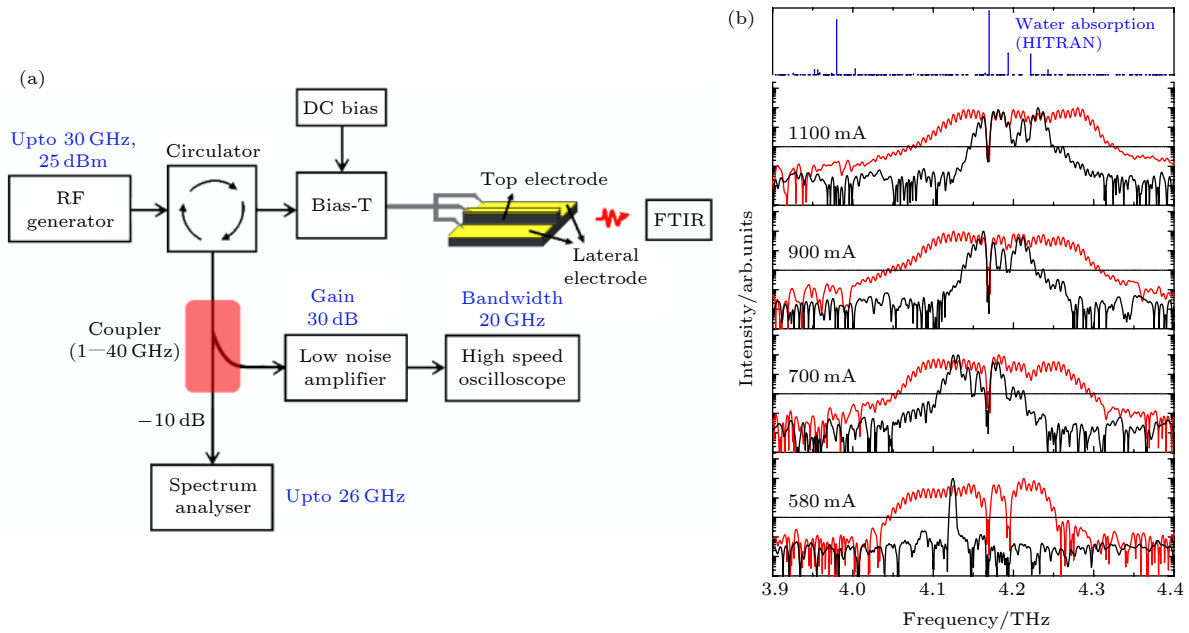


图 9 (a) RF 调制 THz QCL 实验装置图; (b) 不同调制电流下的 THz 发射光谱图, 蓝色曲线为从 HITRAN 数据库提取 3.9—4.2 THz 范围内的水吸收线^[70]

Fig. 9. (a) Experimental setup of RF modulation to THz QCL; (b) THz emission spectra under different modulation current. The water absorption lines in the frequency range from 3.9 to 4.4 THz extracted from the HITRAN database^[70].

实验装置如图 9(a) 所示. 在图 9(b) 中, 不同电流下的驱动电流使 THz 光谱相对于自由运行模式下的光谱发生了不同程度展宽, 并且在从 HITRAN 数据库提取 3.9—4.4 THz 内的水吸收线中, 最强的吸收线位于 4.17 THz. 相比而言, 在自由运行模式下工作的激光器, 它们辐射出的 THz 波的激光模式不相干且不稳定, 而进行 RF 调制^[71]之后, 不仅抑制了这种不稳定性并且还恢复了模式相干性, 同时使得 THz 光谱强烈展宽.

以上讨论的激光器谐振腔均为传统的法布里-珀罗腔 (F-P 腔)^[72], 而从 1998 年开始, 已有人提出两段耦合腔式的结构^[73]来实现激光器高稳定单纵模工作^[74—76]. RF 调制信号作用在较短耦合腔的上方, 以此来达到主动锁模的目的, 这样的方式能使得器件电容减小, 相比于传统 F-P 腔可以实现更高的调制效率^[77]. 在 THz QCL 中, 两段耦合腔结构有很强的模式选择 (也就是损耗调制), 所以能阻止激光器多模激射, 并且短腔在产生与 F-P 腔相似的模式间隔时消耗更少的电功率.

2.2.2 相位种子

激光器自发辐射的放大被用于触发激光器激射, 由于自发辐射的相位是随机的, 所以每次激光器开始工作时载波相位也是随机的, 这阻碍了激光

场的相位分析检测. 如果将一个具有相干性的 THz 脉冲注入到 QCL 中, 那么就迫使激光器以固定相位激射, 这种技术称作为相位种子^[78]. 相位种子可允许发射的激光场用飞秒激光同步采样, 并在时域当中测量. 由于电场振荡能直接在时域中测量, 那么 QCL 就可被用作时域光谱中的激光源, 辐射 THz 波.

图 10(a) 表示了如何通过具有固定相位的 THz 脉冲相干注入到 QCL 中, 来设置 QCL 激射的载波相位的实验装置图. RF 脉冲信号由飞秒激光辐射到快速光电二极管上产生. 采用 Bias-T 将 RF 脉冲信号和直流偏置同时加载到 QCL 器件上. 同时, 飞秒抽运光束照射在交叉式天线上产生 THz 脉冲, 产生的 THz 脉冲经过抛物面镜耦合, 进入到 QCL 的一个端面上, 而从另一个端面出来的输出光场则被 ZnTe 晶体中的电光采样测量得到. 为了保证实验进程稳定发生, 需要测量 QCL 输出与 THz 脉冲上的不同电压的变化情况, 如图 10(b) 所示, 给出了不同天线电压 (也就是不同 THz 脉冲幅度) 与输出光场的关系, 对于天线电压小于 0.25 V 的情况, QCL 输出光场取决于输入 THz 脉冲的幅度, 意味着此时 QCL 的增益是被腔内的自发辐射钳制, 而对于大于 500 ps 的时间区域, 由于 QCL

增益即饱和, 输出场的幅度在 0.25 V 和 1 V 的天线电压下几乎不会改变. 注入的脉冲场取代了 QCL 的自发辐射, 并通过触发激光发射来设置载波相位, 与其他技术相比^[79], 相位控制辐射不需要主动反馈机制或者激光器稳定机制, 并且可被用作时域光谱系统^[80]的激光源.

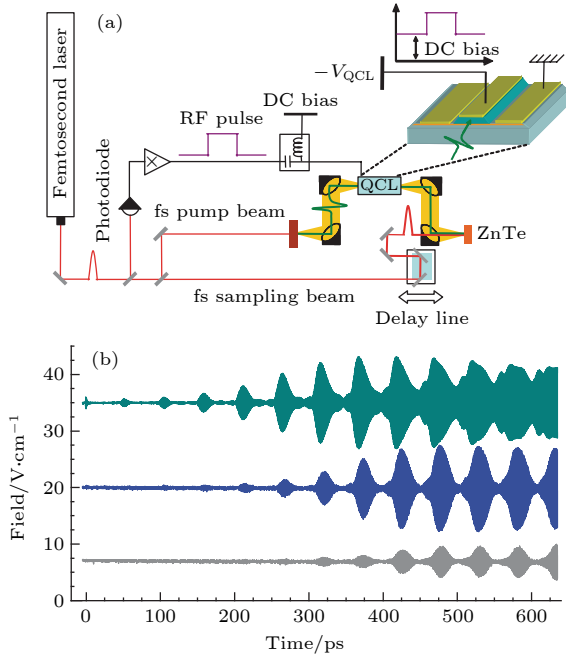


图 10 (a) 通过注入相干 THz 脉冲实现 QCL 载波相位固定的实验装置; (b) 在不同输入 THz 脉冲幅度条件下测量的 QCL 输出光场, THz 脉冲幅度正比于天线电压, 分别为 1 V (绿色曲线)、0.25 V (蓝色曲线) 和 0.06 V (灰色曲线)^[78]

Fig. 10. (a) Experimental setup for achieving the carrier phase fixed in QCL by injecting coherent THz pulse. (b) Measured fields of the QCL output for various input THz pulse amplitudes. The THz pulse amplitude is proportional to the antenna voltage with 1 V (green curve), 0.25 V (blue curve) and 0.06 V (grey curve)^[78].

2.3 被动稳频

主动稳频都需要外加的微波电子设备来实现, 而被动稳频可以通过无源锁模来产生光脉冲, 不需要向激光器引入外部信号. 通常是使用激光腔中的光波来引起可饱和吸收体的变化, 而这个变化又会引起腔内光的变化^[81]. 可饱和吸收体, 是一种透射率与光强相关的材料, 当光线通过时, 理想的可饱和吸收体会将低强度的光吸收, 而在光强足够高时让其穿过, 通过这样来减少相位噪声和自稳定梳齿模式. 该技术在带间二极管和掺杂有量子阱结构的光纤激光器中应用广泛, 但在 THz QCL 中, 由于

腔内非线性吸收不足, 对于具有超低相位噪声或超窄线宽的梳齿模式具有很大的困难. Li 等^[82]基于多层石墨烯样品构建了具有 THz 非线性反射器的 QCL 复合腔, 展示了 THz QCL 中的无源梳齿模式运行和脉冲生成, 如图 11(a) 所示. 15 层石墨烯样品被转移到硅透镜上 (GiSAM), 靠近 QCL 的出射端, 形成化合物腔, 并且与 Si 之间的界面和空气间隙形成了 GTI 反射镜, 用于补偿激光增益介质的色散. 插图说明了 THz 波的传播方式. 在图 11(b) 中, 很明显具有石墨烯样品的腔使得梳齿模式增加, 带宽展宽并且双光梳线宽变窄, 验证了被动稳频锁模成功. 高度稳定的无源双光梳技术可以作为用于 THz 计量应用的强大工具, 可实现快速光谱分析, 产生的超短太赫兹脉冲可以研究各种材料 (例如 2D 材料和 III-V 半导体) 的载流子动力学.

3 双光梳

与传统的傅里叶变换红外光谱和时域光谱^[83]相比, 双光梳光谱^[84]在快速数据采集和高光谱分辨率方面^[85]都具有优势. 双光梳光谱, 即利用两个 THz QCL 形成多外差光谱^[86]. 与单光梳不同的是, 双光梳是通过两个光频梳相邻模式之间频率相减的方式产生的. 从理论上而言, 不仅仅是相邻最近的两个模式拍频, 还可能与之相隔较远的模式拍频来产生双光梳信号. 但在实验中发现, 由于在环境中存在噪声等因素, 与距离越远的模式拍频时, 功率会越来越小, 模式不断被抑制, 因此使得到的拍频信号数目有限. 如果可以证明双光梳光谱的每个模式之间是等间隔的, 那么意味着这两个光频梳也具有基本等间隔的频梳线.

3.1 片上双光梳

Rösch 等^[87]在 THz 频率范围内直接集成了片上双光梳源, 器件结构见图 12(a), 其中一个 QCL 作为探测器, 另一个 QCL 的光耦合进入探测器中, 为了扩展光谱带宽, 有源区都采用异质型结构. 在自由运行模式下, 两个 QCL 产生多外差拍频信号, 得到图 12(b) 的结果图, 跨越了 30 个模式, 对应于光谱的 630 GHz 带宽. 此外, Li 等^[88]提出在片上双光梳上进行双射频注入的技术 (图 12(c)), 两条微带线置于两个 QCL 梳的正后方, 以不同频率对 QCL 进行双注入. 这种结构在当两个光频梳发射

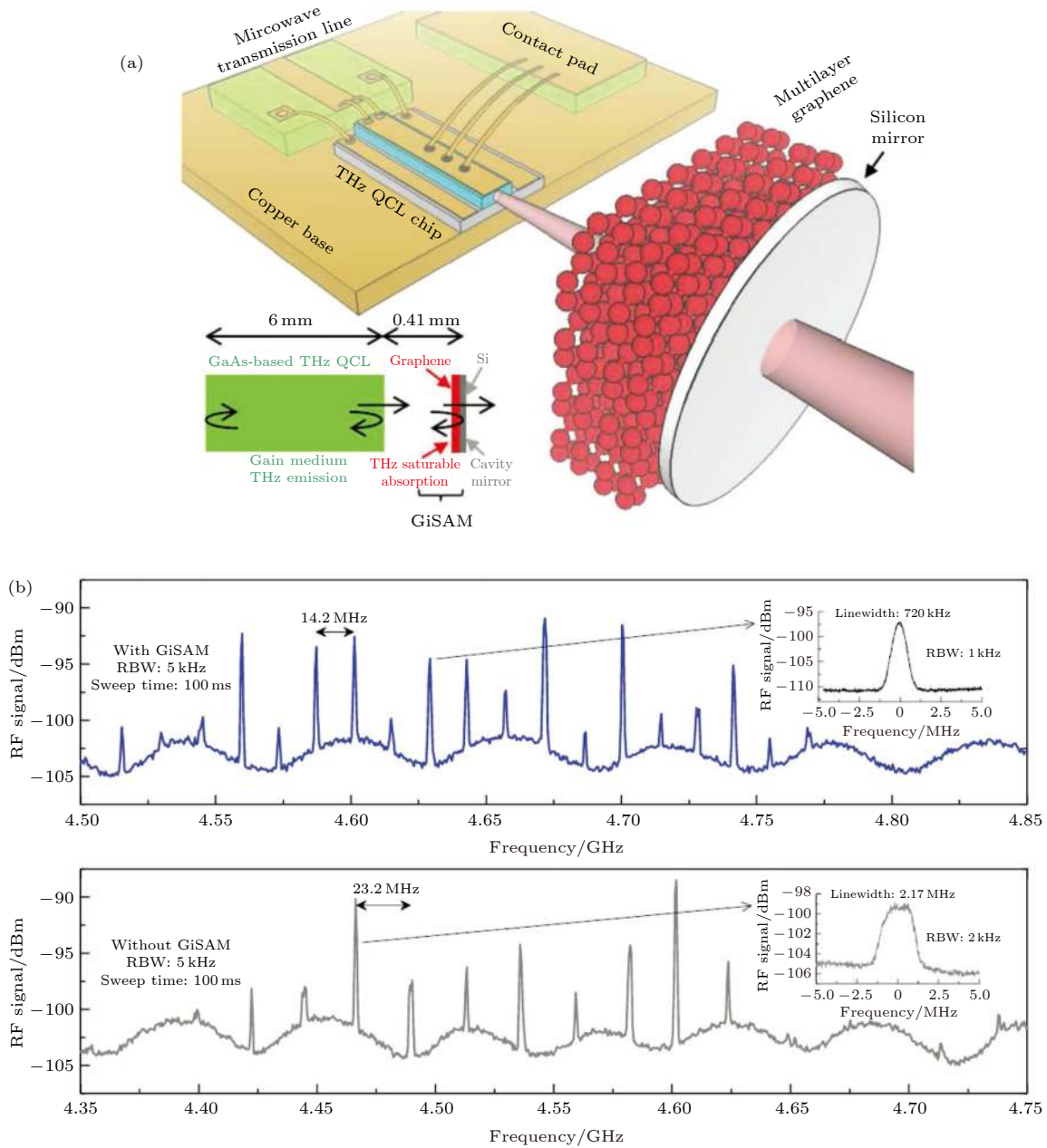


图 11 (a) 石墨烯耦合 QCL 结构示意图, 插图为 THz 波在复合腔中的传播示意图; (b) 具有 GiSAM 与不具有 GiSAM 的双光梳和线宽^[82]

Fig. 11. (a) Schematic of the graphene-coupled QCL. Inset: Illustration of the terahertz light propagation in the compound cavity. (b) Dual-comb and linewidth with and without GiSAM^[82].

光谱高度重叠的情况下, 即使双 RF 注入信号功率微弱, 也能够将光频梳带宽从自由运行模式下的 86 GHz 展宽到 166 GHz, 并且双光梳梳齿线宽从自由运行模式下的 1.14 MHz 降低到 490 kHz (图 12(d)). 这种采用自检测的方法不仅使得实验装置简洁, 实际应用性更加广泛, 而且使得更多的 THz 模式参与双光梳的产生, 展宽了发射光谱以及双光梳光谱. 但在实验中, 需要注意的是对两个光频梳 (QCL) 的选择, 因为光耦合功率与激光器

的光注入锁定有关. 测试表明, 如果两个 QCL 空间上的距离过小或者光耦合过强, 则会发生注入锁定, 也就是两个光频梳之间的拍频信号没有差异, 导致不会观察到双梳光谱, 因此应避免梳齿之间的强光耦合.

3.2 双光梳光谱检测

片上双光梳将两个 QCL 制作在同一衬底上. 由于两个 QCL 处在真空环境, 并且通过衬底实现

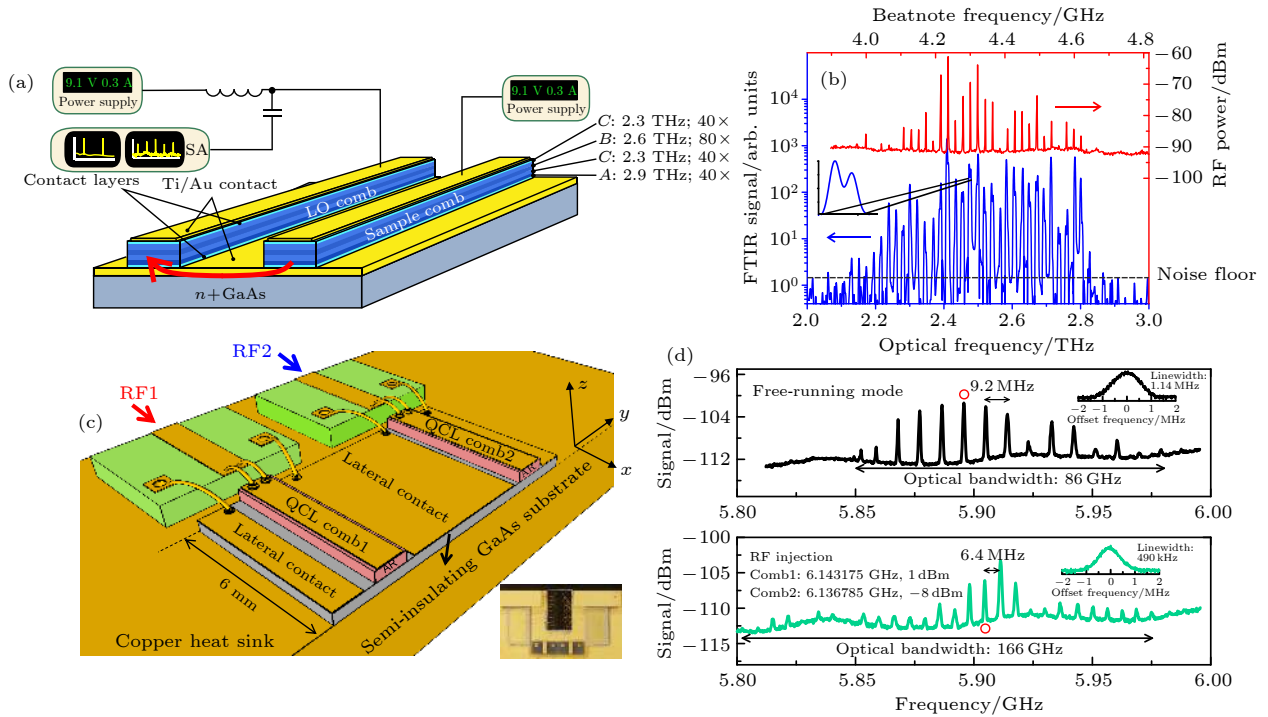


图 12 (a) 片上双光梳的实验原理图; (b) 双光梳光谱, 其中蓝色曲线为光谱图, 插图为放大的两相邻梳齿的峰值, 红色曲线为从本地振荡梳中提取出的多外差光谱^[87]; (c) 双 RF 注入下的片上双光梳结构示意图, 插图为实际双光梳装置的光学照片; (d) 自由运行模式和 RF 注入模式下的下转换双光梳谱^[88]

Fig. 12. (a) Schematics of the dual-comb on chip. (b) Optical spectrum (blue curve). The inset shows that the modes consist of two peaks corresponding to the two combs. In red is the corresponding multi-heterodyne spectrum extracted from the current bias of the LO laser^[87]. (c) Schematics of the on-chip dual-comb system under double injection. The inset shows an optical photo of the mounted dual-comb device. (d) The down-converted dual-comb spectra in free-running mode and under a microwave double injection^[88].

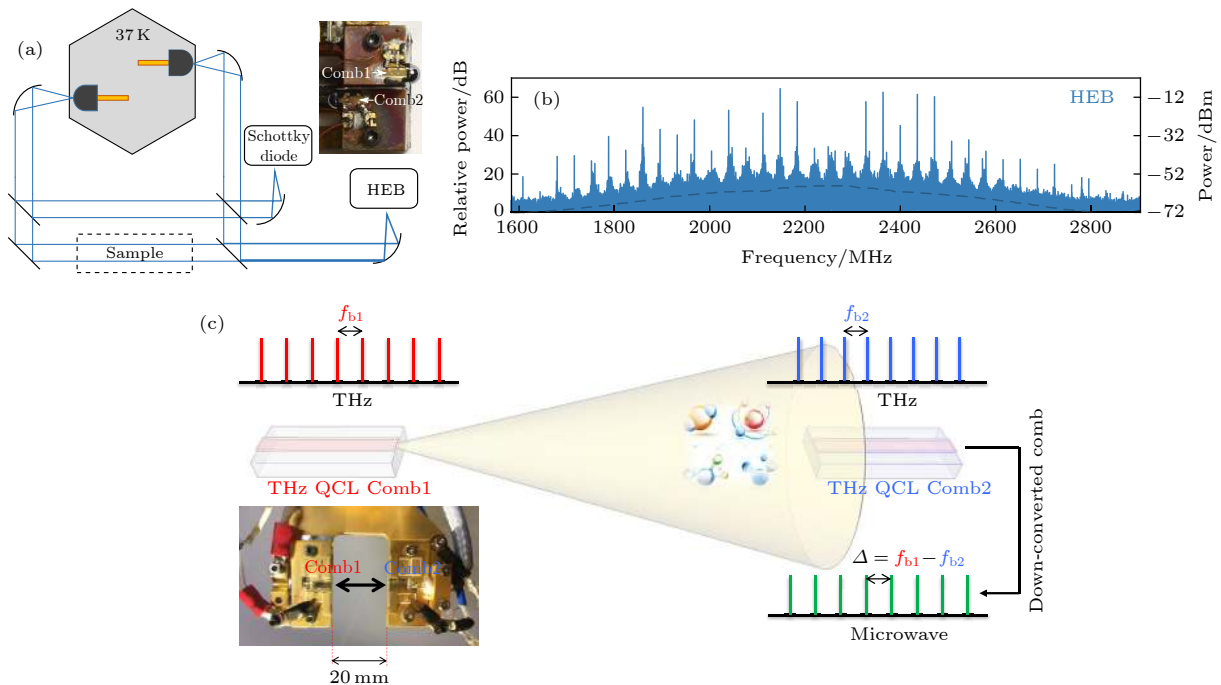


图 13 (a) 分离式双光梳实验装置图, 插图显示了铜支架上的两个通过硅透镜耦合的频率梳; (b) 在 HEB 上得到的多外差信号光谱^[89]; (c) 紧凑型双光梳实验模拟图, 插图为实际实验装置^[91]

Fig. 13. (a) Experimental setup for separating dual-comb system. Inset shows real laser frequency combs on the copper mount, both of which are silicon lens-coupled. (b) Multiheterodyne signal obtained from the HEB^[89]. (c) Experimental simulation diagram for compact dual-comb system. The illustration shows the actual experimental device^[91].

光耦合, 所以无法进行有效的样品光谱检测. 于是, 要使得 THz 双光梳能够进行光谱检测, 需要采用新的方案. 2016 年, Hu 等 [89] 首次实现了基于两个 THz QCL 光频梳的分离多外差光谱. 如图 13(a) 所示, 这两个 QCL 被安装在同一低温冷却器内, 以最大限度减少了环境带来的影响. 两个光频梳的相邻梳齿之间进行“拍频”操作, 拍频信号的频率降到微波量级, 在 2.2 GHz 左右由热电子辐射计 (hot-electron bolometer, HEB) [90] 测量得到双光梳谱 (图 13(b)).

在此基础上, Li 等 [91] 提出了一种基于两个 QCL 的紧凑型 THz 多外差光谱仪, 如图 13(c) 所示. 两个 THz QCL “面对面” 放置, Comb1 的光耦合进入 Comb2 中, 与 Comb2 中的模式进行拍频下转换产生双光梳梳齿. 左下角插图为实际实验装置的照片. 这种系统中没有多余的移动部件, 只需

要一个低温恒温器, 也没有光学透镜用于光学耦合和对准, 同时还利用了 QCL 频率梳的自检测, 获得了不同载波频率下的多个双光梳光谱 (频率下的多个双光梳光谱图 13(c) 为实验模拟图以及光梳梳齿的耦合方式). 采用这种分离式双光梳, 可以形成便携式系统在各种应用场景中实现, 还能通过在两个光频梳之间放置样品来进行物质识别或者高光谱成像. Sterczewski 等 [92] 已经实验性地演示了使用双芯片级半导体激光光频梳的高光谱成像系统, 如图 14 所示, 两个 THz QCL 反向放置来发射反平行 THz 光束, 这些光束由硅透镜和离轴抛物面镜进行准直, 其中一束光聚焦在样品上, 经过硅分束器再次准直后与本地振荡器发出的 THz 波合并, 然后由 HEB 收集. 此时若进行频率下转换到微波阶段, 那么样品信息则可以通过频谱分析仪数字化后得到. 图 14(b)–(e) 为不同条件下的测试结果.

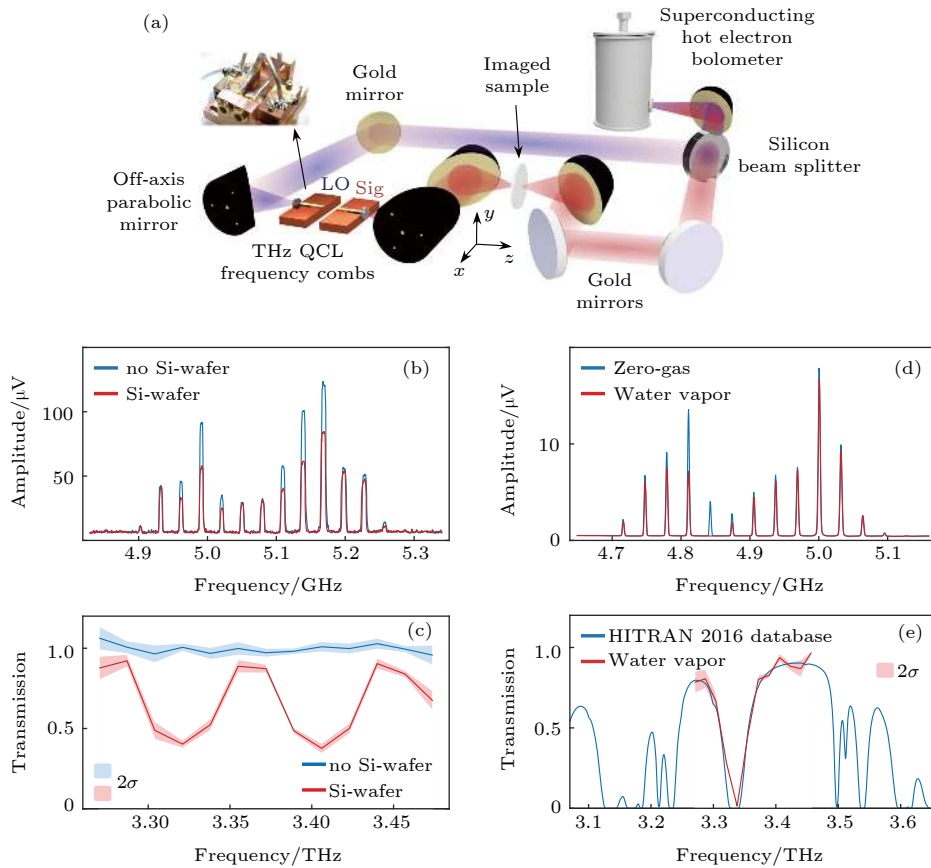


图 14 (a) 双光梳高光谱成像系统; (b) 在光路中放入 (红色) 或者不放入 (蓝色) 硅片获取的拍频信号光谱; (c) 根据 (a) 计算出的透射光谱; (d) 在零水汽 (蓝色) 和相对湿度为 23% (红色) 下获取的拍频信号光谱; (e) 根据 (d) 计算的透射光谱, 蓝色曲线为从 2016 HITRAN 数据库获得的参数 [92]

Fig. 14. (a) Dual-comb hyperspectral imaging system. (b) Beat note spectra acquired with (red) or without (blue) a silicon wafer inserted in the beam path. (c) Transmission spectra calculated from the beat note spectra in (b). (d) Beat note spectra acquired with zero gas (blue) and atmospheric water vapor at 23% relative humidity (red). (e) Transmission spectra calculated from (d); the blue curve is extracted from the HITRAN 2016 database [92].

不仅如此, 其系统通过对 α -D-GMH, α -D-LMH 和 LHHM 的固体压制磁盘进行光栅扫描, 获得了 81×53 像素的高光谱图像. 双光梳光谱的高速采集数据速率和芯片级尺寸相结合, 对于生物医学和制药行业中的未来成像应用具有巨大吸引力.

4 总 结

光频梳的出现, 彻底改变了在中红外及 THz 领域中, 光谱学、生物科学和天文学等的发展. 光频梳技术, 是基于激光的高精度光谱技术, 即以极高的精度确定原子和分子的光线颜色. 它的成就, 不仅仅只限于开发高精度的时钟, 改进全球定位系统, 还有化学探测器让安检人员更快识别有害物质, 让医生可以通过检测病人呼出气体的化学成分来诊断疾病; 以及长距离通信使单根光纤传输的信息量增加好几个数量级和激光雷达的灵敏度和探测范围更高更广等. 并且 THz QCL 光频梳的成谱系统可实现超高分辨率 (kHz—MHz 量级) 的 THz 成谱, 超越当前所有商用 THz 光谱仪至少 3 个数量级. 本文介绍了光频梳在自由运行模式, 主动稳频和被动稳频下产生的基于半导体激光器的光频梳, 还介绍了双光梳的概念以及对光频梳的进一步优化——色散补偿. 虽然 THz QCL 光频梳紧凑性强, 输出功率高, 发射光谱宽等优点为其发展奠定了基础, 但其不能室温工作等因素使得它的发展缓慢, 目前有关 THz 光频梳的研究仍然需要进一步地探索和深入.

感谢中国科学院上海微系统与信息技术研究所的万文坚博士、李子平博士、周康、管玟、赵逸然在本文准备过程中给予的支持.

参考文献

[1] Diddams S A 2010 *J. Opt. Soc. Am. B* **27** B51
 [2] Udem T, Holzwarth R, Hänsch T W 2002 *Nature* **416** 233
 [3] Schliesser A, Picqué N, Hänsch T W 2012 *Nat. Photon.* **6** 440
 [4] Füsler H, Bieler M 2014 *J. Infrared Millim. Terahertz Waves* **35** 585
 [5] Reichert J, Niering M, Holzwarth R, Weitz M, Udem T, Hänsch T W 2000 *Phys. Rev. Lett.* **84** 3232
 [6] Diddams S A, Jones D J, Ye J, Cundiff S T, Hall J L, Ranka J K, Windeler R S, Holzwarth R, Udem T, Hänsch T W 2000 *Phys. Rev. Lett.* **84** 5102
 [7] Beha K, Cole D C, Del'Haye P, Coillet A, Diddams S A, Papp S B 2017 *Optica* **4** 406

[8] Kourogi M, Nakagawa K, Ohtsu M 1993 *IEEE J. Quantum Electron.* **29** 2693
 [9] Zhang M, Buscaino B, Wang C, Shams-Ansari A, Reimer C, Zhu R, Kahn J M, Lončar M 2019 *Nature* **568** 373
 [10] Wang C, Zhang M, Yu M, Zhu R, Hu H, Loncar M 2019 *Nat. Commun.* **10** 978
 [11] Marin-Palomo P, Kemal J N, Karpov M, Kordts A, Pfeifle J, Pfeiffer M H P, Trocha P, Wolf S, Brasch V, Anderson M H, Rosenberger R, Vijayan K, Freude W, Kippenberg T J, Koos C 2017 *Nature* **546** 274
 [12] Fischer C, W. Sigrist M 1970 *Top. Appl. Phys.* **99**
 [13] Gubin M A, Kireev A N, Konyashchenko A V, Kryukov P G, Shelkovich A S, Tausenev A V, Tyurikov D A 2009 *Appl. Phys. B* **95** 661
 [14] Adler F, Cossel K, J Thorpe M, Hartl I, Fermin M, Ye J 2009 *Opt. Lett.* **34** 1330
 [15] Scalari G, Faist J, Picqué N 2019 *Appl. Phys. Lett.* **114** 150401
 [16] Jun Y, Schnatz H, Hollberg L W 2003 *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.* **9** 1041
 [17] Wang Y, Soskind M G, Wang W, Wysocki G 2014 *Appl. Phys. Lett.* **104** 031114
 [18] Kumar S 2011 *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.* **17** 38
 [19] Siegel P 2002 *IEEE Trans. Microw. Theory Tech.* **50** 910
 [20] Ferguson B, Zhang X 2002 *Nat. Mater.* **1** 26
 [21] Cao J 2003 *Phys. Rev. Lett.* **91** 237401
 [22] Tonouchi M 2007 *Nat. Photon.* **1** 97
 [23] Walther C, Fischer M, Scalari G, Terazzi R, Hoyler N, Faist J 2007 *Appl. Phys. Lett.* **91** 131122
 [24] Carr G, Martin M, McKinney W, Jordan K, Neil G, Williams G 2002 *Nature* **420** 153
 [25] Woolard D L, Brown R, Pepper M, Kemp M 2005 *Proc. IEEE* **93** 1722
 [26] Federici J, Schulkin B, Huang F, Gary D, Barat R, Oliveira F, Zimdars D 2005 *Semicond. Sci. Technol.* **20** S266
 [27] Kawase K, Ogawa Y, Yuuki W, Inoue H 2003 *Opt. Express* **11** 2549
 [28] Chen J, Chen Y, Zhao H, Bastiaans G, Zhang X C 2007 *Opt. Express* **15** 12060
 [29] Kawase K, Shibuya T, Hayashi S, Suizu K 2010 *C. R. Physique* **11** 510
 [30] Fischer B, Walther M, Jepsen P 2002 *Phys. Med. Biol.* **47** 3807
 [31] Siegel P 2004 *IEEE Trans. Microw. Theory Tech.* **52** 2438
 [32] Castro-Camus E, Johnston M B 2008 *Chem. Phys. Lett.* **455** 289
 [33] Kleine-Ostmann T, Pierz K, Hein G, Dawson P, Koch M 2004 *Electron. Lett.* **40** 124
 [34] Grant P D, Laframboise S R, Dudek R, Graf M, Bezinger A, Liu H 2009 *Electron. Lett.* **45** 952
 [35] Chen Z, Tan Z Y, Han Y J, Zhang R, Guo X G, Li H, Cao J C, Liu H 2011 *Electron. Lett.* **47** 1002
 [36] Burford N M, El-Shenawee M O 2017 *Opt. Eng.* **56** 010901
 [37] Tani M, Hirota Y, Que C T, Tanaka S, Hattori R, Yamaguchi M, Nishizawa S, Hangyo M 2007 *J. Infrared Millim. Waves* **27** 531
 [38] Yasui T, Kabetani Y, Saneyoshi E, Yokoyama S, Araki T 2006 *Appl. Phys. Lett.* **88** 241104
 [39] Scalari G, Walther C, Fischer M, Terazzi R, Beere H, Ritchie D, Faist J 2009 *Laser Photon. Rev.* **3** 45
 [40] Belkin M A, Fan J A, Hormoz S, Capasso F, Khanna S P, Lachab M, Davies A G, Linfield E H 2008 *Opt. Express* **16** 3242

- [41] Brandstetter M, Deutsch C, Krall M, Detz H, MacFarland D C, Zederbauer T, Andrews A M, Schrenk W, Strasser G, Unterrainer K 2013 *Appl. Phys. Lett.* **103** 171113
- [42] Danylov A, Erickson N, Light A, Waldman J 2015 *Opt. Lett.* **40** 5090
- [43] Williams B S 2007 *Nat. Photon.* **1** 517
- [44] Li H, Laffaille P, Gacemi D, Apfel M, Sirtori C, Leonardon J, Santarelli G, Rosch M, Scalari G, Beck M, Faist J, Hansel W, Holzwarth R, Barbieri S 2015 *Opt. Express* **23** 33270
- [45] Friedli P, Sigg H, Hinkov B, Hugi A, Riedi S, Beck M, Faist J 2013 *Appl. Phys. Lett.* **102** 222104
- [46] Gmachl C, Sivco D, Colombelli R, Capasso F, Cho A 2002 *Nature* **415** 883
- [47] Villares G, Riedi S, Wolf J, Kazakov D, Stüss M J, Jouy P, Beck M, Faist J 2016 *Optica* **3** 252
- [48] Faist J, Villares G, Scalari G, Rösch M, Bonzon C, Hugi A, Beck M 2016 *Nanophotonics* **5** 272
- [49] Villares G, Faist J 2015 *Opt. Express* **23** 1651
- [50] Zhou K, Li H, Wan W J, Li Z P, Liao X Y, Cao J C 2019 *Appl. Phys. Lett.* **114** 191106
- [51] Li H, Cao J, T. Lu J 2008 *J. Appl. Phys.* **103** 103113
- [52] Burghoff D, Yang Y, Hayton D J, Gao J R, Reno J L, Hu Q 2015 *Opt. Express* **23** 1190
- [53] Cappelli F, Villares G, Riedi S, Faist J 2015 *Optica* **2** 836
- [54] Wienold M, Schrottke L, Giehler M, Hey R, Anders W, Grahn H T 2010 *Appl. Phys. Lett.* **97** 071113
- [55] Dean P, Valavanis A, Keeley J, Bertling K, Lim Y L, Alhathloul R, Burnett A D, Li L H, Khanna S P, Indjin D, Taimre T, Rakić A D, Linfield E H, Davies A G 2014 *J. Phys. D Appl. Phys.* **47** 374008
- [56] Turčinková D, Scalari G, Castellano F, Amanti M I, Beck M, Faist J 2011 *Appl. Phys. Lett.* **99** 191104
- [57] Rösch M, Beck M, Stüss M J, Bachmann D, Unterrainer K, Faist J, Scalari G 2018 *Nanophotonics* **7** 237
- [58] Rösch M, Scalari G, Beck M, Faist J 2014 *Nat. Photon.* **9** 42
- [59] Williams B S, Kumar S, Callebaut H, Hu Q, Reno J L 2003 *Appl. Phys. Lett.* **83** 2124
- [60] Finneran I, Good J, Holland D, Carroll P, Allodi M, Blake G 2015 *Phys. Rev. Lett.* **114** 163902
- [61] Burghoff D, Kao T Y, Han N, Chan C W I, Cai X, Yang Y, Hayton D J, Gao J R, Reno J L, Hu Q 2014 *Nat. Photon.* **8** 462
- [62] Hillbrand J, Jouy P, Beck M, Faist J 2018 *Opt. Lett.* **43** 1746
- [63] Yang Y, Burghoff D, Reno J, Hu Q 2017 *Opt. Lett.* **42** 3888
- [64] Barbieri S, Gellie P, Santarelli G, Ding L, Mainault W, Sirtori C, Colombelli R, Beere H, Ritchie D 2010 *Nat. Photon.* **4** 636
- [65] Gellie P, Barbieri S, Lampin J-F, Filloux P, Manquest C, Sirtori C, Sagnes I, Khanna S P, Linfield E H, Davies A G, Beere H, Ritchie D 2010 *Opt. Express* **18** 20799
- [66] Faist J, Beck M, Aellen T, Gini E 2001 *Appl. Phys. Lett.* **78** 147
- [67] Amanti M I, Scalari G, Terazzi R, Fischer M, Beck M, Faist J, Rudra A, Gallo P, Kapon E 2009 *New J. Phys.* **11** 125022
- [68] Wienold M, Schrottke L, Giehler M, Hey R, Grahn H T 2011 *J. Appl. Phys.* **109** 073112
- [69] Barbieri S, Ravaro M, Gellie P, Santarelli G, Manquest C, Sirtori C, Khanna S P, Linfield E H, Davies A G 2011 *Nat. Photon.* **5** 306
- [70] Wan W J, Li H, Zhou T, Cao J C 2017 *Sci. Rep.* **7** 44109
- [71] Wang F, Nong H, Fobbe T, Pistore V, Houver S, Markmann S, Jukam N, Amanti M, Sirtori C, Moudjji S, Colombelli R, Li L, Linfield E, Davies G, Mangeney J, Tignon J, Dhillon S 2017 *Laser Photon. Rev.* **11** 1700013
- [72] Wienold M, Röben B, Schrottke L, Grahn H T 2014 *Opt. Express* **22** 30410
- [73] Coldren L A, Miller B I, Iga K, Rentschler J A 1981 *Appl. Phys. Lett.* **38** 315
- [74] Tsang W T, Olsson N A, Logan R A 1983 *Electron. Lett.* **19** 488
- [75] Coldren L, Koch T 1984 *IEEE J. Quantum Electron.* **20** 659
- [76] Ebeling K J, Coldren L A, Miller B I, Rentschler J A 1983 *Appl. Phys. Lett.* **42** 6
- [77] Li Z, Li H, Wan W, Zhou K, Cao J, Chang G, Xu G 2018 *Opt. Express* **26** 32675
- [78] Oustinov D, Jukam N, Rungsawang R, Madeo J, Barbieri S, Filloux P, Sirtori C, Marcadet X, Tignon J, Dhillon S 2010 *Nat. Commun.* **1** 69
- [79] Udem T, Reichert J, Holzwarth R, Diddams S, Jones D, Ye J, Cundiff S, Hansch T, Hall J 2007 *The Hydrogen Atom* (Berlin Heidelberg: Springer-Verlag) p125
- [80] Auston D H, Cheung K P 1985 *J. Opt. Soc. Am. B* **2** 606
- [81] Liang G, Hu X, Yu X, Shen Y, Li L H, Davies A G, Linfield E H, Liang H K, Zhang Y, Yu S F, Wang Q J 2015 *ACS Photonics* **2** 1559
- [82] Li H, Yan M, Wan W, Zhou T, Zhou K, Li Z, Cao J, Yu Q, Zhang K, Li M, Nan J, He B, Zeng H 2019 *Adv. Sci.* **6** 1900460
- [83] Han P Y, Tani M, Usami M, Kono S, Kersting R, Zhang X C 2001 *J. Appl. Phys.* **89** 2357
- [84] Hu G, Mizuguchi T, Oe R, Nitta K, Zhao X, Minamikawa T, Li T, Zheng Z, Yasui T 2018 *Sci. Rep.* **8** 11155
- [85] Jerez B, Walla F, Betancur A, Martin-Mateos P, de Dios C, Acedo P 2019 *Opt. Lett.* **44** 415
- [86] Bernhardt B, Ozawa A, Jacquet P, Jacquy M, Kobayashi Y, Udem T, Holzwarth R, Guelachvili G, Hänsch T W, Picqué N 2010 *Nat. Photon.* **4** 55
- [87] Rösch M, Scalari G, Villares G, Bosco L, Beck M, Faist J 2016 *Appl. Phys. Lett.* **108** 171104
- [88] Li Z, Wan W, Zhou K, Liao X, Yang S, Fu Z, Cao J C, Li H 2019 *Phys. Rev. Appl.* **12** 044068
- [89] Yang Y, Burghoff D, Hayton D J, Gao J R, Reno J L, Hu Q 2016 *Optica* **3** 499
- [90] Richter H, Semenov A D, Pavlov S G, Mahler L, Tredicucci A, Beere H E, Ritchie D A, Il'in K S, Siegel M, Hübers H W 2008 *Appl. Phys. Lett.* **93** 141108
- [91] Li H, Li Z, Wan W, Zhou K, Liao X, Yang S, Wang C, Cao J C, Zeng H 2020 *ACS Photonics* **7** 49
- [92] Sterczewski L A, Westberg J, Yang Y, Burghoff D, Reno J, Hu Q, Wysocki G 2019 *Optica* **6** 766

SPECIAL TOPIC—Nonlinear optics and devices of low-dimensional materials

Research progress of terahertz semiconductor optical frequency combs*

Liao Xiao-Yu¹⁾²⁾ Cao Jun-Cheng¹⁾²⁾ Li Hua^{1)2)†}

1) (*Key Laboratory of Terahertz Solid State Technology, Shanghai Institute of Microsystem and Information Technology, Chinese Academy of Science, Shanghai 200050, China*)

2) (*Center of Materials Science and Optoelectronics Engineering, University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China*)

(Received 16 March 2020; revised manuscript received 23 April 2020)

Abstract

Optical frequency comb consists of a series of equally spaced and highly stable frequency lines. Due to the advantages of the ultra-high frequency stability and ultra-low phase noise, the optical frequency combs have important applications in high precision spectroscopy, imaging, communications, etc. In the terahertz frequency range, semiconductor-based electrically pumped terahertz quantum cascade lasers have the characteristics of high output power and wide frequency coverage, and are the ideal candidates for generating terahertz optical frequency combs. In this article, we first briefly introduce the research progress of the optical frequency comb in the communication and the mid-infrared bands. Then we mainly review the research progress of the optical frequency combs based on the terahertz semiconductor quantum cascade laser (QCL) operating in free-running, active frequency stabilization and passive frequency stabilization modes. In free running mode, the terahertz QCL frequency comb is mainly limited by the large group velocity dispersion which results in a small comb bandwidth. Therefore, the dispersion compensation is one of the important methods to stabilize the optical frequency comb and broaden the spectral bandwidth. At present, the active frequency stabilization mode is a relatively matured method to realize the optical frequency combs in terahertz QCLs. In this article, we also detail the methods and applications of terahertz QCL dual-comb operations, including on-chip dual-comb and dual-comb spectroscopy. Compared with the Fourier transform infrared spectroscopy and time domain spectroscopy, the terahertz dual-comb spectroscopy has advantages in fast data acquisition (real-time) and high spectral resolution. The emergence of the dual-comb technique not only verifies the concept of optical frequency combs, but also further promotes the applications of frequency combs.

Keywords: terahertz quantum cascade laser, dispersion, frequency comb, dual-comb

PACS: 95.85.Gn, 42.55.Px, 42.50.Nn, 42.60.Lh

DOI: 10.7498/aps.69.20200399

* Project supported by the National Science Fund for Excellent Young Scholars of China (Grant No. 62022084), the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 61875220, 61575214, 61404150, 61405233, 61704181), the “From 0 to 1” Innovation Program of Chinese Academy of Sciences, China (Grant No. ZDBC-LY-JSC009), the Major National Development Project of Scientific Instrument and Equipment, China (Grant Nos. 2017YFF0106302, 2017YFA0701005), the Shanghai Outstanding Academic Leaders Plan, China (Grant No. 20XD1424700), and the Shanghai Youth Top Talent Support Program, China.

† Corresponding author. E-mail: hua.li@mail.sim.ac.cn