



中国科学院大学
University of Chinese Academy of Sciences

博士学位论文

太赫兹量子级联激光器光频梳及双光梳研究

作者姓名: 李子平

指导教师: 黎华 研究员

中国科学院上海微系统与信息技术研究所

学位类别: 工学 博士

学科专业: 微电子学与固体电子学

培养单位: 中国科学院上海微系统与信息技术研究所

2020 年 6 月

**Terahertz quantum cascade laser frequency comb and
dual-comb**

**A dissertation submitted to the
University of Chinese Academy of Sciences
in partial fulfillment of the requirement
for the degree of
Doctor of Philosophy
in Microelectronics and Solid-state Electronics**

By

Li Ziping

Supervisor: Professor Li Hua

**Shanghai Institute of Microsystem and Information Technology
Chinese Academy of Sciences**

June, 2020

中国科学院大学 学位论文原创性声明

本人郑重声明：所呈交的学位论文是本人在导师的指导下独立进行研究工作所取得的成果。尽我所知，除文中已经注明引用的内容外，本论文不包含任何其他个人或集体已经发表或撰写过的研究成果。对论文所涉及的研究工作做出贡献的其他个人和集体，均已在文中以明确方式标明或致谢。本人完全意识到本声明的法律结果由本人承担。

作者签名：李子平
日期：2020.6.5

中国科学院大学 学位论文授权使用声明

本人完全了解并同意遵守中国科学院大学有关保存和使用学位论文的规定，即中国科学院大学有权保留送交学位论文的副本，允许该论文被查阅，可以按照学术研究公开原则和保护知识产权的原则公布该论文的全部或部分内容，可以采用影印、缩印或其他复制手段保存、汇编本学位论文。

涉密及延迟公开的学位论文在解密或延迟期后适用本声明。

作者签名：李子平
日期：2020.6.5

导师签名：黎华
日期：2020.6.5

摘 要

光频梳是由一系列等间距分布且高度稳定的频率线组成的宽带相干光源。自从 2005 年获得诺贝尔物理学奖以来, 将光频梳技术扩展至各个频段成为当前研究热点。太赫兹 (THz) 是许多物质“指纹峰”的主要频段, 发展太赫兹光频梳对推动太赫兹光谱学的发展至关重要。双光梳是由光频梳发展而来的新型多外差光谱技术, 对比远红外傅里叶变换光谱仪、太赫兹时域光谱仪等传统 THz 光谱手段, 双光梳不需要任何运动部件即可实现快速高分辨率的光谱分析。太赫兹量子级联激光器 (THz QCL) 是一种基于子带间电子跃迁辐射太赫兹波的单极性器件, 得益于高输出功率、宽频谱覆盖范围、高调制频率等优势, 是发展 1-5 THz 光频梳及双光梳的理想辐射源。本文围绕 THz QCL 高速调制、光频梳、双光梳展开系统研究。主要研究成果和创新点如下:

1. 实现微波注入调制耦合腔 THz QCL, 产生均匀的密集多纵模模式分布。在半导体激光器中, 微波注入是产生边带实现主动锁模的主要调制手段。两端式的耦合腔波导结构由于较小的寄生电容, 相比传统 Fabry-Pérot 谐振腔具有更高的调制效率。对于 THz QCL, 耦合腔结构具有强大的损耗调制能力, 可防止激光器多模激射。当微波调制频率等于激光器基模与高阶横模的差频频率及其谐波频率时, 耦合腔 THz QCL 由单模工作转为等间距分布的多模工作, 模式间距被锁定为注入的 RF 频率, 频谱覆盖最大展宽至 50 GHz。耦合腔结构为 THz QCL 主动锁模提供了一种新颖的方法。此外, 主动锁模的耦合腔 THz QCL 具有高分辨光谱学所需要的密集模式分布, 并具有更高的调制效率。

2. 提出一种利用 THz QCL 片上双光梳直接测量 THz QCL 光频梳载波包络偏移频率噪声的方法, 采用微波双注入调制直接给出频率线宽为 490 kHz。此外, 通过有限元分析, 表明两个光频梳之间的弱耦合足以通过非线性多外差产生双光梳, 并针对不同的耦合功率评估 THz QCL 检测器的噪声等效功率。同时, 采用双注入技术稳定光频梳并增加双光梳带宽, 在较弱功率的 RF 注入调制下, 双光梳带宽实现从 86 GHz 显著扩大到 166 GHz。

3. 解决 THz QCL 自探测关键科学问题, 实现了一种结构紧凑且具有实时成谱能力的太赫兹双光梳系统。由于 QCL 中子带间的快速电子跃迁, 无需高速探

测器，通过激光器自探测获得双光梳谱。此外，通过构造室温样品检测腔，利用紧凑型双光梳成功对半导体样品和水汽进行 THz 光谱测量，表明该双光梳在实用性方面的潜力。同时，该双光梳结构紧凑，有望扩展至太赫兹成像、显微及近场显微应用中。

关键词：太赫兹，量子级联激光器，主动锁模，光频梳，双光梳

Abstract

A frequency comb is a broadband coherence source consisting of a series of equally spaced and highly stabilized frequency lines. Since the Nobel Prize in Physics in 2005, the expansion of frequency comb technology into various frequency bands has become a current research hotspot. In the terahertz frequency range where abundant absorption lines (fingerprints) of molecules are located, the frequency comb finds attractive applications in spectroscopy by employing the dual-comb technique. Different from the traditional Fourier transform infrared or time domain spectroscopies, the dual-comb multiheterodyne spectroscopy is a compact system that enables fast and high-resolution spectroscopy without requiring any moving parts. Terahertz quantum cascade lasers (THz QCL) is a unipolar device which radiates terahertz wave based on electronic transition between intersubbands. Due to high output power, broad frequency coverage, high modulation frequency, THz QCL is an ideal candidate for developing 1-5 THz frequency comb and dual-combs. In this thesis, we carried out a systematic study on THz QCL high speed modulation, frequency comb and dual-comb. The main research results and innovations are as follows:

1. Microwave injection technology is adopted to actively modulating coupled-cavity THz QCL to produce dense multi-longitudinal modes with equally spacing. The radio frequency (RF) modulation is a powerful tool, which is used for generating sidebands in semiconductor lasers for active mode-locking. The two-section coupled-cavity laser geometry shows advantages over traditional Fabry-Pérot cavities in the RF modulation efficiency, because of its reduced device capacitance of short section cavity. For THz QCL, the two-section coupled-cavity configuration can strongly prevent the laser from multimode emissions. This is because of its strong mode selection (loss modulation), which the cavity geometry introduces. The RF modulation is efficient at the frequency that equals the difference frequency between the fundamental and higher order transverse modes of the laser, and its harmonics. When the laser is modulated at the second harmonic of the difference frequency, the sideband generation in coupled-

cavity terahertz QCLs and the generated sidebands are equally spaced by the injected microwave frequency. Our results, which are presented here, provide a novel approach for modulating terahertz coupled-cavity lasers for active mode-locking. The coupled-cavity geometry shows advantages in generating dense modes with short cavities for potential high-resolution spectroscopy.

2. We proposed a method for directly measuring the carrier envelope offset frequency noise of THz QCL frequency comb using on-chip dual-comb. The frequency linewidth is given to 490 kHz by double microwave injection modulation. A finite-element analysis shows that a weak optical coupling between the two laser combs is sufficient for generating dual-comb lines via the nonlinear multiheterodyne frequency beatings. Furthermore, a microwave double injection is employed to stabilize the comb frequency and broaden the optical comb bandwidth. We find that even with weak radio-frequency powers, the optical comb bandwidth can be significantly broadened from 86 to 166 GHz.

3. We solved the key scientific problems of THz QCL self-detection, and demonstrated a compact and real-time terahertz multiheterodyne spectrometer. Due to the fast intersubband transitions in QCLs, the dual-comb lines can be detected by employing the laser self-detection scheme. Furthermore, we demonstrate practical terahertz transmission dual-comb spectroscopy with our device, by implementing a short air path at room temperature. Spectra are shown of semiconductor samples and of moist air, the latter allowing rapid monitoring of the relative humidity. Our devices should be readily extendable to perform imaging, microscopy, and near-field microscopy in the terahertz regime.

Keywords: terahertz, quantum cascade laser, active mode-locking, frequency comb, dual-comb

目 录	
第 1 章 绪论	1
1.1 引言	1
1.2 太赫兹量子级联激光器	5
1.2.1 太赫兹辐射产生方式简述	5
1.2.2 太赫兹量子级联激光器的特点	11
1.2.3 太赫兹量子级联激光器的发展概况	19
1.3 光频梳	24
1.3.1 太赫兹光频梳的实现方式	27
1.3.2 光频梳的光谱学应用	36
1.4 太赫兹双光梳	40
1.4.1 双光梳原理	40
1.4.2 太赫兹双光梳研究进展	42
1.5 论文出发点及内容构成	47
第 2 章 耦合腔量子级联激光器主动调制	49
2.1 引言	49
2.1.1 耦合腔结构	49
2.2 耦合腔太赫兹量子级联激光器	50
2.2.1 耦合腔量子级联激光器性能表征	53
2.2.2 耦合腔量子级联激光器模间拍频和远场测试	54
2.3 耦合腔量子级联激光器主动调制	59
2.3.1 耦合腔量子级联激光器射频注入调制	60
2.3.2 微波整流测试	62
2.4 本章小结	65
第 3 章 太赫兹片上双光梳系统	67
3.1 引言	67
3.2 基于太赫兹量子级联激光器片上双光梳器件	68
3.2.1 片上双光梳光学耦合方式	69
3.2.2 太赫兹片上双光梳基本性能表征	71
3.3 片上双光梳光谱	73
3.3.1 太赫兹量子级联级联激光器光谱	73
3.3.2 片上双光梳光谱	75

3.3.3 不同载波频率的双光梳光谱	79
3.3.4 太赫兹量子级联激光器自检测性能	80
3.4 本章小结	82
第 4 章 紧凑型太赫兹多外差双光梳系统	83
4.1 引言	83
4.2 太赫兹双光梳系统结构	83
4.2.1 太赫兹双光梳耦合率计算	84
4.2.2 太赫兹双光梳驱动电流范围	86
4.3 太赫兹双光梳光谱	88
4.3.1 双光梳光谱测试方法	88
4.3.2 紧凑型双光梳光谱	88
4.3.3 太赫兹双光梳光谱幅值噪声	91
4.4 紧凑型多外差双光梳光谱应用	92
4.4.1 多外差双光梳光谱对水汽吸收峰的测量	93
4.4.2 太赫兹多外差双光梳光谱对 GaAs 标准具的测量	96
4.4.3 多外差双光梳系统中光学反馈的讨论	96
4.4.4 多外差双光梳系统中双探测可行性分析	97
4.4.5 光频梳梳齿与双光梳梳齿的对应关系	97
4.5 本章小结	99
第 5 章 基于锁相环技术的太赫兹光频梳	101
5.1 引言	101
5.2 电学锁相环原理简述	102
5.3 光频梳中噪声控制	102
5.4 电学锁相环对重复频率的锁定	104
5.4.1 电学锁相环技术实现光频梳完全锁定的讨论	107
5.5 本章小结	108
第 6 章 总结与展望	109
参考文献	113
作者简历及攻读学位期间发表的学术论文与研究成果	127
致谢	131

图形列表

1.1 电磁波谱中个频段对应的物理过程	4
1.2 电子学手段产生太赫兹辐射	6
1.3 共振隧穿二极管	8
1.4 单行载流子光电二极管	9
1.5 单行载流子光电二极管产生太赫兹辐射	9
1.6 光电导天线产生太赫兹波示意图	10
1.7 QCL 电子输运模型	12
1.8 子带间、带间跃迁的区别	13
1.9 QCL 级联结构示意图	15
1.10 束缚态向连续态跃迁能带结构	16
1.11 共振声子能带结构	17
1.12 束缚态到连续态与共振声子结合的有源区结构能带	18
1.13 QCL 远场特性改善	21
1.14 光子晶体改善远场特性	22
1.15 亚毫米波至近红外波段光频梳	24
1.16 光频梳原理	25
1.17 自参考技术	27
1.18 相位种子注入技术	28
1.19 QCL 微波整流曲线	30
1.20 FP 腔 THz QCL 主动调制	31
1.21 THz QCL 被动锁模	32
1.22 微腔光频梳	33
1.23 THz QCL 自锁模的形成	34
1.24 中红外 QCL 中色散计算	35
1.25 啁啾反射镜色散补偿结构	36
1.26 GTI 色散补偿结构	37
1.27 光频梳在光谱学中的应用	39
1.28 双光梳原理	40
1.29 片上双光梳结构	43
1.30 QCL 光频梳 + 高速探测器双光梳系统	44
1.31 HEB、肖特基二极管对双光梳光谱质量的影响	46
1.32 双光梳高光谱成像系统	47

2.1 耦合腔损耗调制	50
2.2 耦合腔 THz QCL 器件性能	52
2.3 耦合腔 THz QCL 电学模间拍频信号	55
2.4 耦合腔 THz QCL 远场特性	56
2.5 THz QCL 远场特性模拟	57
2.6 模间拍频信号产生过程	58
2.7 500 mA 下耦合腔 THz QCL 的主动调制行为	59
2.8 600 mA 下耦合腔 THz QCL 的主动调制行为	61
2.9 700 mA 下耦合腔 THz QCL 的主动调制行为	62
2.10 耦合腔 THz QCL 长腔调制	63
2.11 耦合腔 THz QCL 微波整流测试 (10 dBm)	64
2.12 耦合腔 THz QCL 微波整流测试 (25 dBm)	64
3.1 THz QCL 片上双光梳	69
3.2 片上双光梳耦合方式	70
3.3 片上双光梳电流-电压-功率曲线	71
3.4 片上双光梳远场分析	73
3.5 自由运行及主动调制下的太赫兹光谱	74
3.6 片上双光梳光谱	76
3.7 锁定带宽测试 (0 dBm)	78
3.8 锁定带宽测试 (-10、10 dBm)	79
3.9 在不同载波频率的下变频双光梳光谱	80
3.10 THz QCL 的噪声谱密度	81
3.11 2019 ITQW 最佳学生海报奖	82
4.1 紧凑型太赫兹双光梳多外差系统	84
4.2 紧凑型太赫兹双光梳基本特性表征	85
4.3 20 K 下光频梳 2 的电学拍频信号随驱动电流的变化	86
4.4 20 K 下光频梳 1 的电学拍频信号随驱动电流的变化	87
4.5 双光梳系统电学连接方式	88
4.6 模间电学拍频信号线宽测试	88
4.7 双光梳光谱	89
4.8 THz-RF 链	90
4.9 太赫兹双光梳幅值噪声测试 (积分时间 200 ms)	91
4.10 太赫兹双光梳幅值噪声测试 (积分时间 1 s)	92
4.11 太赫兹光谱测试	92
4.12 分离式太赫兹双光梳光谱对水汽、GaAs 标准具测试	93

4.13 不同相对湿度下测得的下变频双光梳光谱.....	94
4.14 不同载波双光梳信号强度随 RH 的变化	95
4.15 由 GaAs 标准局引起的光反馈对双光梳的影响.....	96
4.16 ACS Photonics 期刊前封面	98
5.1 锁相环原理图	102
5.2 消除双光梳中共模噪声	103
5.3 THz QCL 与参考光频梳锁定	103
5.4 THz QCL 模间拍频频率随电流的变化	104
5.5 PLL 锁相系统电学连接图	105
5.6 自由运行与 PLL 锁相下电学模间拍频信号对比.....	106

表格列表

3.1 耦合功率为 1、10 和 100 nW 对应的响应率和 NEP	81
---	----

第1章 绪论

1.1 引言

太赫兹 (terahertz, THz)^[1-3] 波段是指频率从 100 GHz 到 10 THz (波长约 3 mm 到 30 μm), 介于毫米波与红外光之间的波谱范围。由于其波谱位置的独特性, 太赫兹波兼具微波的电学特性及红外波的光学特性, 这使得太赫兹技术无论在通讯、雷达还是在物质谱检测、医疗成像等方面都有巨大的应用潜力。在太赫兹波的产生及探测方面, 也存在有电子学及光子学两种技术手段。仅从太赫兹波产生的方式来看, 无论从电子学方面如单行载流子光电二极管 (high-speed uni-traveling carrier photodiodes, UTC-PD)、共振隧穿二极管 (resonant tunnel diodes, RTD) 等, 还是从光子学方面如光电导天线、气体激光器等, 每种方式都或多或少受到频谱范围、输出功率、远场特性、转化效率、调制特性及工作温度等方面的制约。由于缺乏高效的太赫兹辐射源、高灵敏度高响应的太赫兹探测器及高速深调制的太赫兹调制器等功能器件, 在整个频谱中仍存在“太赫兹空隙 (Terahertz Gap)”。

太赫兹波在电磁波谱中位置的独特性及广阔的应用前景决定了太赫兹技术在国家战略地位的重要性。因为太赫兹波是目前为止尚未被完全开发利用的波谱, 在有限的频谱资源中, 率先掌握太赫兹技术是夺得该波段使用开发权的先决条件, 太赫兹技术的发展将直接决定我国在频谱资源争夺中的话语权。国际上的多个国家同样把太赫兹技术作为其战略性科技方向, 如美国麻省理工科技评论杂志把太赫兹技术列为“改变未来世界十大技术”之一; 欧盟积极组织针对太赫兹技术的跨国大型研究项目, 如 WANTED 计划、THz-Bridge 计划等; 日本将太赫兹技术列为“国家支柱十大科技战略目标”之首。

另一方面, 太赫兹技术在无线通讯、光谱检测、无损成像等军民方面有迫切的应用需求。在无线通信应用的大背景下, 数据总量与日俱增, 流量增长必然带来对频谱资源的进一步需求, 而用于移动通信的频谱资源稀缺, 目前第五代移动通信技术 (5G) 的频谱已经到达毫米波波段^[4]; 此外随着人们对网络速度的要求也越来越高, 根据香农定理, 为了提供足够的带宽, 需要采用更高频的载波。继 5G 技术之后, 6G 技术应运而生, 极有可能向更高频波段即太赫兹波段

延伸。太赫兹波段尚未被国际通信标准组织申请使用，频率是目前无线通讯载波（如 4G 通讯技术载波约 1.8 到 2.7 GHz）三个数量级以上，高速的待开发波段为未来通信技术发展提供丰富的频谱资源。当然载波频率的增加意味着通讯信号的方向性更强以及更短的传输距离和更弱的障碍物穿透能力，随之带来更高的设备成本（如中继信号站的建设、移动终端设备更替等），但是在下一代通信技术容量饱和之前，基于太赫兹技术的无线通信的需求只会越来越迫切^[5]。此外，基于太赫兹通讯技术的战场通讯，不仅能提高数据传输速率，而且具有天然的保密特性^[6]：首先太赫兹通讯技术具有很高的技术壁垒；其次，太赫兹通讯的载波频率很宽（理论上可以采用“THz 空隙”中的任意频率作为载波），在不知道对方载频的情况下，想要在如此宽频范围内捕捉到通讯的载频是非常困难的；另外太赫兹波的方向性很强，在充满障碍物甚至火灾、风沙的恶劣战场环境中，不易发生衍射，可以有效防止通讯信号被窃听。太赫兹作为载波的无线通信概念早在十几年前便已经提出^[7]，目前已经在多个方面取得进展。比如作为无线通讯中重要的器件——调制器^[8]，实现低插入损耗、高调制频率、100% 调制深度^[9]。此外无线通讯中必需的诸如多路复用器^[10]、滤波器^[11]等器件的研究也有了重要进展。在通讯系统方面，也有实验室演示系统被报道出来。比如日本 NTT 微系统集成实验室的 Hirata 等人采用高速 UTC-PD 和 InP 基高电子迁移率晶体管 (high-electron mobility transistor, HEMT) 产生 120 GHz 太赫兹信号，实现在超过 1 公里传输距离下 10-Gbits/s 的数据传输^[12]。中国科学院上海微系统与信息技术研究所 Chen 等人采用太赫兹光子学器件成功实现利用 4 THz 载波进行模拟音频视频信号的实时传输演示^[13,14]。

在生物医学检测领域，太赫兹波恰好对应生物大分子相互作用能级，如氢键、分子转动与取向、分子振动等，根据这一特性多数生物分子在太赫兹波段会存在独特的吸收峰，因此太赫兹光谱技术在辨别生物组织成分、解释生物分子间细胞间相互作用方面具有重要的应用价值。不仅如此，由于太赫兹波的能量较低（太赫兹波段的一个光子能量约为 X-Ray 光子能量的百万分之一），在进行生物医学检测中不会对生物组织造成任何不可逆的伤害，恰好迎合医学无损检测的需求。在太赫兹生物医学检测领域，目前已经取得丰硕的科研成果。德国的 Fischer 和 Japsen 等人将 DNA 晶胞模型仿真的 THz 光谱与 DNA 的 THz 指纹谱对比，揭示指纹吸收峰源于 DNA 氢键的伸缩运动^[15]；美国华盛顿大学 Arbab 等

人采用 THz-TDS 系统实现非接触烧伤诊断^[16]；美国 Korter 等人采用分子动力学方法对半胱氨酸 (cysteine) 和丝氨酸 (serine) 模拟获得 THz 光谱，经过对比发现其吸收指纹峰的差异主要来源于 O-H 键和 S-H 键的结合强度不同^[17]；上海理工大学 Zhu 等人对抗糖尿病药物进行 THz 光谱分析，采用药效基因分析方法 (pharmacophore analysis) 完成太赫兹特征振动频率的计算与分析^[18]。上海微系统所 Zhou 等人基于太赫兹量子级联激光器和超光谱特异材料太赫兹室温探测器的多色太赫兹成像系统，成功区分甲萘醌、青霉素、草酸铜等化学物质，并且利用该系统对转移性脑瘤组织进行多色成像，可以清晰的分辨出正常组织和癌变组织^[19]。

在这里，我们把太赫兹医疗成像系统与目前主流医疗成像系统进行简单对比，以说明太赫兹技术在“精准医疗”的现代医学趋势下的优势。目前基于 X-Ray 的医疗成像系统具有临床使用时间长、技术积累丰富、分辨率高等优势，但是也存在设备成本昂贵、成像时间长、对生物组织产生电离损伤等缺点。而基于太赫兹技术的医疗成像系统具有天然的技术优势和广阔的市场需求。其一，由于生物组织中富含水分，不同组织的含水量不同，甚至同一组织的不同状态（如正常与病变状态）含水量也会不同，水在太赫兹波段的吸收强度又很大，恰恰利用这一点，高透过率太赫兹扫描可以根据组织含水量的不同将待测部位以直观的形态描绘出来，甚至可以直接标定出病变位置；其二，生物大分子的结构演化与相互作用的能级恰好落在太赫兹波段，是实现生物组织功能、病变等分子水平的动态过程成像的潜在技术手段；其三，成像速度快，特别是太赫兹双光梳成像成谱技术可实时成像，太赫兹波天然的组织非电离性可以实现真正意义上的无创、非侵入、实时成像；其四，基于太赫兹技术的医疗成像系统具有体积小、集成度高等特点，可以作为模块化工具与目前主流成像系统兼容，大大减小了市场推广成本。

公共安全一直是社会的热点问题，在当今世界局势仍然动荡的环境下，高人口密度 (如机场、火车站、热门景点等) 和高安保等级 (如重要会议等) 场所的安检尤为重要。传统安检设备大都基于 X-Ray 检查，强辐射对人体尤其是孕妇、婴儿产生不可逆的电离伤害；X-Ray 分辨率高，涉及人体隐私等社会伦理问题；无法对特定危险物准确识别，安检效率低。而基于微波毫米波的新型安检设备，虽然避免了对人体产生辐射损伤的问题，但是限制于较长的波长，其空间分辨率过

低, 只能依靠算法等辅助手段提高安检成功率。太赫兹波同 X-Ray、微波毫米波一样, 对衣物、纸张等在可见光范围内不透光的物体具有透视功能, 同样可以用于安检中。此外, 太赫兹波相比 X-Ray, 不会对人体产生伤害, 虽然其分辨率与 X-Ray 无法比拟, 但是具有高对比度成像和保护人体隐私的优势。与微波毫米波相比, 其波长更短, 可以达到更高的空间分辨率。基于太赫兹技术安检设备的另一大优势在于许多物质在太赫兹波段具有独特的吸收峰, 诸如毒品、炸药、特种气体^[20-22] 等危险品, 结合基于吸收峰的物质识别算法, 太赫兹安检设备可以大幅提高安检可靠性。

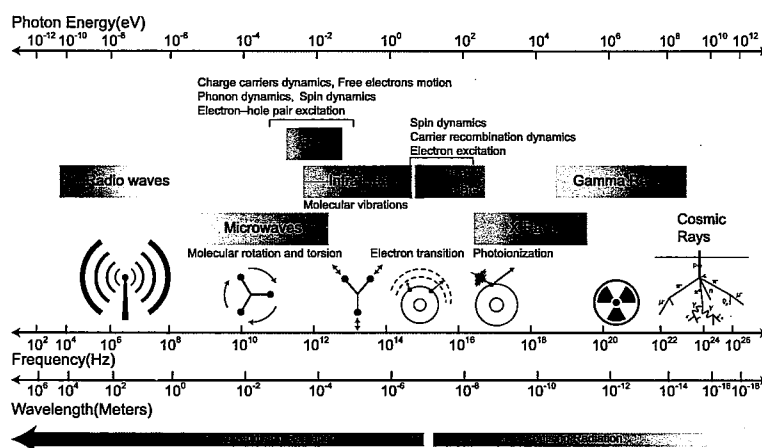


图 1.1 通过使用不同波长的电磁波激励样品, 可以探索多种超快物理过程^[23]

Figure 1.1 The schematic of ultrafast dynamic processes excited by electric/optical pulse with different wavelength^[23]

太赫兹技术应用的另一个前沿领域是作为测量表征手段, 以提供高空间分辨率、高时间分辨率和高光谱分辨率的测量推动科学技术的进步。在生物医学范畴, 实现对 DNA 链结合、生物分子的结构演化与传输等动态过程的描述是突破医学领域技术瓶颈的关键之一, 上述生物过程涉及的能量尺度恰好发生在太赫兹波段; 在物理学范畴, 电荷载流子动力学、声子动力学、自旋动力学等超快过程的研究需要高空间分辨率和高时间分辨率的测量。当太赫兹技术以传统成像方式应用于安检、医疗、传感器等领域时, 由于物理衍射极限的限制, 其分辨率在 mm 量级, 仍足以应对上述应用场景^[24]。但是随着微纳米技术的不断发展, 人们对微纳尺度的无损、非接触的表征的兴趣越来越大, 探测波波长与被探测物之间巨大的不匹配决定太赫兹传统成像方式无法胜任。为了摆脱瑞利判据的限制, 实现太赫兹成像系统亚波长的分辨率, 研究人员提出了多种解决方案,

如激光太赫兹发射显微镜 (laser terahertz emission microscopy, LTEM)、近场成像技术等。LTEM 利用飞秒激光激发待测样品产生太赫兹脉冲, 通过分析脉冲信号获得待测样品内部载流子动力学等信息^[25]。日本的国家先进工业科学技术研究所 Mochizuki 等人采用 LTEM 研究了 Si/SiO₂ 的表面电位^[26]。另一种重要的方案是太赫兹技术与扫描式隧道显微镜 (Scanning tunneling microscope, STM) 相结合, 如图1.1所示^[23], 以近场成像的方式获得原子级别的空间分辨率和亚皮秒的时间分辨率, 为揭示上述超快物理过程提供全新的手段^[27]。来自加拿大艾伯塔大学的 Hegmann 采用 THz-STM 在硅原子尺度上探索超快非平衡隧穿动力学^[28], 德国雷根斯堡大学 Cocker 等人用低电流低温度 THz-STM 对有机戊烯分子进行研究, 并通过泵浦探测的方法, 揭示了太赫兹频率上的相干分子振动^[29]。然而, 目前的 THz-STM 技术受限于太赫兹辐射产生方式, 还不具备高光谱分辨能力。基于太赫兹技术的超空间、时间、频谱分辨率的测量设备, 将是提高我国在物理、化学、医学等领域竞争力的国之利器^[30]。

综上所述, 太赫兹技术是一个重要的前沿交叉研究领域, 涉及材料科学、生物医学、物理化学等基础学科研究, 国防、安防、通讯、检测等诸多军民领域。相比于微波和近红外波段, 太赫兹技术的发展还处于初级阶段, 各类应用大多仍处于系统整体结构方案提出、方案可行性论证及实验室研究阶段, 真正推入市场少之又少。太赫兹技术发展建立在太赫兹关键功能器件性能的提高, 作为核心器件之一——太赫兹辐射源, 目前仍聚焦于如何获得紧凑、高效且相干的太赫兹激光器。

1.2 太赫兹量子级联激光器

1.2.1 太赫兹辐射产生方式简述

由于太赫兹在光谱中的独特地位, 来自电子学和光子学两个领域的科研人员聚集在一起, 共同为弥合“太赫兹空隙”而努力^[1]。在太赫兹电子学辐射源方面, 如图1.2^[31]所示, 方式有微波单片集成电路 (microwave monolithic integrated circuits, MMIC)^[32]、RTD^[33]、差频器 (difference frequency generation, DFG)^[34]等。电子学方式的优势在于继承射频集成电路工艺, 实现硅基集成。硅基器件^[35]带来的低成本、便携、高度集成等优势更有利于太赫兹技术从实验室走向市场。但电子学方式的缺点也是显而易见: 激射频率大都聚集在太赫兹低频段 (<1 THz),

随着频率的增加,辐射功率也急剧下降。这是由于高频(太赫兹频率)工作状态下,有源器件的环路增益下降、高频寄生效应及无源元件的损耗都会成为影响输出功率的重要因素。

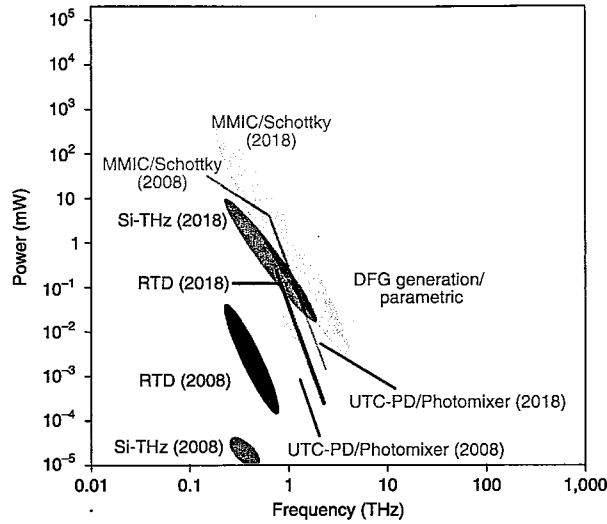


图 1.2 电子学手段产生太赫兹辐射^[31]

Figure 1.2 Terahertz radiation generated by electronics^[31]

太赫兹倍频器/混频器^[36]基于传统半导体技术,将振荡器产生的低频微波信号通过非线性器件倍频及有源三端器件放大实现低频太赫兹信号输出,具有体积小、兼容 CMOS 工艺、成本低、室温工作等特点,输出的太赫兹频率稳定度高。硅基 CMOS 倍频器、肖特基二极管等是太赫兹倍频器的研究热点。硅基 CMOS 太赫兹倍频器根据不同的电路结构可以分为推推倍频器、注入锁定倍频器和混频倍频器。随着纳米工艺的发展,CMOS 器件特征尺寸不断减小,硅基 CMOS 倍频器的截至频率和最大震荡频率不断向更高频方向延伸。以色列特拉维夫大学的研究团队基于 65 nm CMOS 工艺设计的推推太赫兹倍频器,实现 159-169 GHz 范围内 5.8% 微调谐压控振荡器 (Voltage Controlled Oscillator, VCO),最大输出功率 +1 dBm,最大功率效率 1.43%^[37]。基于 130 nm SiGe BiCMOS 工艺,奥地利约翰开普勒林茨大学的研究团队采用推推电路结构实现约 300 GHz 的太赫兹倍频器,最大功率 +0.2 dBm,最大功率效率 0.9 %^[38]。基于肖特基二极管、异质结势垒变容管 (Hetero-structure Barrier Varactor diode, HBV) 的太赫兹倍频器在高输出功率、高工作频率及低相位噪声方面也取得巨大进展,该类太赫兹倍频器可以在室温下覆盖 0.1-1.2 THz 频谱,产生 mW 量级的输出功率。然而,利用倍频或混频产生太赫兹信号的方式均有转换效率低、难以向高频扩展的缺点。

太赫兹共振隧穿二极管是另一种重要的电子学太赫兹辐射源,工作在太赫兹频段的共振隧穿二极管最早可追溯至上世纪八十年代,利用 AlAs/GaAs 材料体系实现 200 GHz 的频率振荡^[39]。随着三五族化合物材料生长技术的改进和 InP 基等材料体系的应用,太赫兹共振隧穿二极管目前已经可以实现最高近 2 THz 的振荡^[40]和百 μW 量级^[41]的太赫兹辐射,是目前震荡频率最高的电子学器件。下面对共振隧穿二极管的工作原理和目前在太赫兹波段的研究进展做简要介绍。共振隧穿二极管的代表性能带结构为双势垒单势阱结构,在外加偏压的作用下,电子发生量子隧穿,隧穿时间在飞秒量级,产生高频振荡^[42]。随着外加偏压的增加,共振隧穿二极管出现负微分电阻特性,结合短路波导、平面天线、狭缝天线、共面波导等结构作为谐振腔,实现太赫兹辐射。共振隧穿二极管的实际构成除核心隧穿结构外,还有 n+ 重掺杂的电子发射极、集电极、隔离层、欧姆接触层和衬底层,图1.3为半绝缘 InP 衬底上基于 GaInAs/AlAs 材料体系的双势垒共振隧穿二极管结构^[43]。目前国际上开展太赫兹共振隧穿二极管研究的单位主要有日本东京工业大学^[41,43,44]、德国达姆施塔特工业大学^[45,46]、英国格拉斯哥大学^[47,48]等。日本东京工业大学自 2005 年开始展开基于狭缝天线太赫兹共振隧穿二极管展开研究,目前可见报道的该组可实现最高 1.92 THz 振荡频率^[44],在提高振荡功率方面,该组采用注入锁定的方式进行相干功率合成,在 620 GHz 达到输出功率 610 μW ^[41]。德国达姆施塔特工业大学的研究团队将狭缝天线太赫兹共振隧穿二极管与 Vivaldi 天线结合,实现 1.1 THz 的振荡,输出功率为 40 μW ^[45]。英国格拉斯哥大学面向太赫兹无线通信应用开发共面波导结构太赫兹共振隧穿二极管,实现 166 GHz 振荡频率 170 μW 输出功率^[47]。得益于太赫兹共振隧穿二极管的高紧凑性、易集成、室温工作及一定功率的输出,该类电子学太赫兹辐射源在太赫兹通信^[49]、太赫兹成像^[50]等方面具有重大的应用价值。然而作为电子学太赫兹辐射源,进一步提高输出功率和振荡频率仍是当前的研究难点。

单行载流子光电二极管 (uni-travelling-carrier photodiode, UTC-PD) 是 1997 年 Ishibashi 等人为了改善传统 PIN 二极管低饱和输出功率、低响应速率而提出的新型二极管结构,其突出的创新点是用 P 型重掺杂的吸收层和宽带隙的收集层取代 PIN 二极管中的耗尽吸收层,在 UTC-PD 中只有电子作为有效载流子,从而有效避免了光生空穴引起的空间电荷效应^[51],提高光电二极管的饱和输出功率。同时电子迁移率比空穴迁移率大,传统 PIN 二极管的响应带宽制约于空穴的

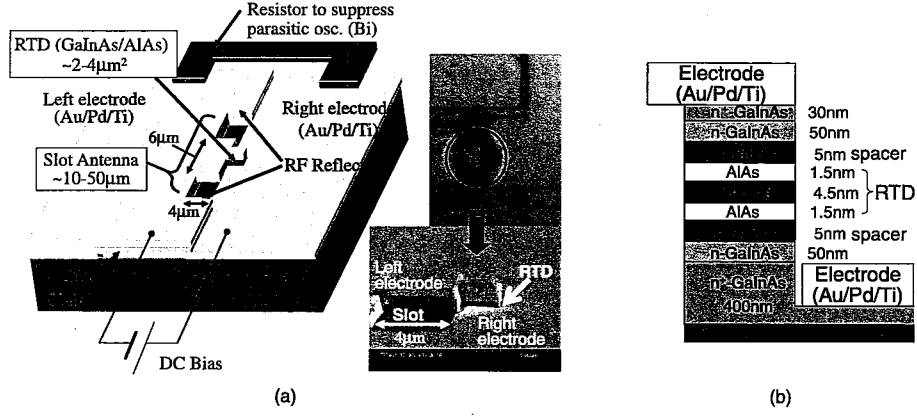
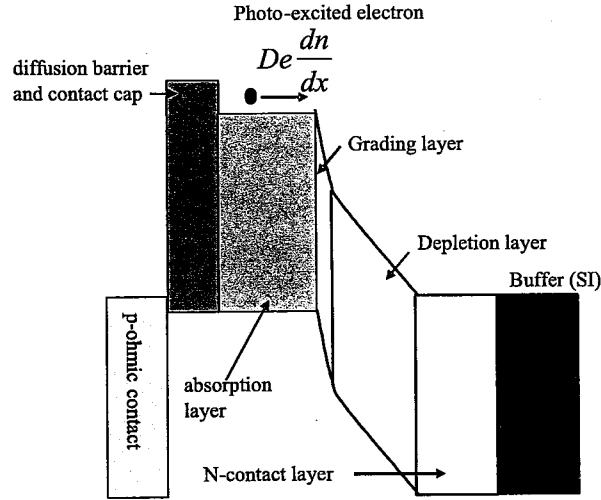


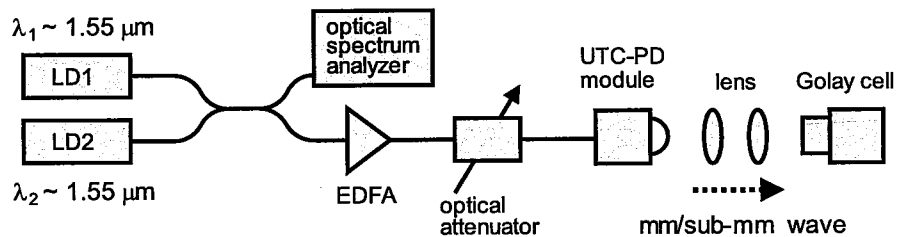
图 1.3 (a) 集成狭缝天线结构的共振隧穿二极管 (b) 双势垒共振隧穿二极管的材料结构^[43]
 Figure 1.3 (a) RTD integrated with slot antenna (b) The layer structure of RTD with GaInAs/AlAs double-barrier structure^[43]

响应时间，因此 UTC-PD 的响应速率较高，具有较高的 3 dB 带宽^[52]。UTC-PD 的典型能带结构如图1.4所示^[53]，其工作过程可以描述为：入射光子被 P 型掺杂的吸收层捕获产生光生载流子，光生空穴在反向偏压下迅速弛豫，而光生电子由于阻挡层的存在只能向收集层扩散，即形成单行载流子。光生空穴作为吸收层中的多数载流子，其弛豫时间非常短，对光电二极管工作速度的影响微乎其微，而光生电子在内建电场和外加偏压的作用下，产生过冲效应迅掠过收集层，为了进一步加快光生电子的漂移速度，通常在吸收层和收集层之间添加过渡层，保证导带连续性。UTC-PD 的响应时间主要由光生电子在吸收层中的扩散时间和收集层中的漂移时间决定，这种空穴快速弛豫、电子快速漂移的设计极大提升了器件的响应功率和响应带宽。UTC-PD 作为光探测器具有高响应速度（400 GHz^[54]）、高饱和功率、高动态范围（40 dB^[55]）、高集成度和室温工作的优势，其研发之初就被应用于高速通信系统中，且已实现高达 80 Gbit/s 的通信速率^[56]。

除了作为光探测器之外，UTC-PD 还可以作为太赫兹电子学辐射源，并且在高输出功率和高振荡频率方面具有天然的优势。UTC-PD 具有更高的饱和输出功率，这意味着可以接收更多的光子而不会产生空间电荷效应，有利于产生高功率的太赫兹辐射。另一方面，UTC-PD 的响应时间短，3 dB 带宽大，有利于太赫兹辐射向高频延伸。如图1.5所示，是基于高频 UTC-PD 产生太赫兹辐射的常用方法^[57]，频率为 λ_1 和 λ_2 (λ_1 - λ_2 为太赫兹量级) 的两束信号经过掺铒光纤放大器 (EDFA) 和光学衰减器后在 UTC-PD 产生混频信号，混频产生的太赫兹信

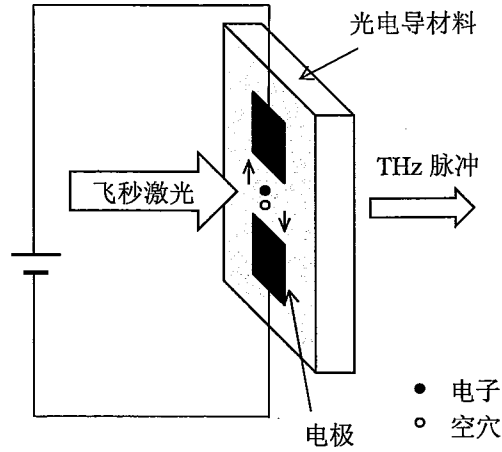
图 1.4 单行载流子光电二极管典型能带结构^[53]Figure 1.4 The typical band structure of uni-travelling-carrier photodiode^[53]

号由与 UTC-PD 集成的天线辐射出去。目前，以日本 NTT 光子实验室为代表在大功率高频 UTC-PD 太赫兹辐射源方面取得了重要进展，如 2004 年该 Nakajima 等人将 UTC-PD 辐射频率提高到 0.7-1.6 THz，在 1.04 THz 处获得 10.9 μW 的功率^[58]。英国伦敦大学 Seeds 等人将频率进一步提高至 2.5 THz^[59]。在应用方面，浙江大学的 Yu 等人基于 UTC-PD 太赫兹辐射源实现在 350-475 GHz 频段容量高达 120 Gbits/s 的太赫兹无线传输系统^[60]。

图 1.5 单行载流子光电二极管产生太赫兹辐射及功率测量方法^[57]Figure 1.5 Method for generating terahertz radiation by uni-travelling-carrier photodiode and measuring the power by Golay Cell^[57]

除电子学和光子学两大太赫兹辐射源之外，还有一类由超快激光泵浦产生太赫兹辐射的方式，如光电导天线（Photoconductive Antenna, PCA）、半导体表面效应^[61]、光整流效应^[62]等，其中 PCA 得益于宽谱、室温工作的特点，广泛应用于 THz-TDS 系统中^[21]。

PCA 即天线电极间隙缩小至亚毫米或微米量级的超快半导体光电导开关

图 1.6 光电导天线产生太赫兹波示意图^[63]Figure 1.6 Schematic diagram of terahertz wave generated by photoconductive antenna^[63]

(Photoconductive semiconductor switch, PCSS)，其产生太赫兹脉冲的过程可由图1.6说明。当脉宽为 fs 量级的超快激光以大于光电导材料能带间隙的能量照射在天线间隙中的光电导材料时，光电导材料表面产生大量的电子-空穴对。在外加偏置电场的作用下，这些自由光生载流子加速向天线电极方向运动，形成光电流。这种瞬变的光电流将储存的静电势能以电磁脉冲的形式向外辐射出来，fs 量级的激光脉冲辐射出的电磁波脉宽在 ps 量级，其频率刚好在太赫兹频段。由此过程可以看出，PCA 太赫兹辐射源的三个重要组成部分分别是光电导材料、天线结构和超快激光源。自从 1984 年 Auston 等人利用硅作为光电导材料首次实现太赫兹辐射以来^[64]，寻找并生长合适的光电导材料一直是提高光电导器件性能的重要途径。光电导材料的诸多特性，如载流子寿命、载流子迁移率、击穿电压、零偏暗电流、暗电阻率等都会影响一个光电导器件的最大输出功率、最大泵浦功率、偏压、带宽和信噪比 (Noise-signal Ratio, NSR)^[65]。最先应用的硅基材料由于较长的载流子寿命已经出现性能提升瓶颈，目前研究最多的材料是半绝缘砷化镓 (SI-GaAs)、低温生长的 GaAs (LT-GaAs)、InGaAs 等三五族材料。另一个研究的重点是天线结构，设计良好的几何形状和适配的几何尺寸可以在很大程度上优化 PCA 的性能。常见的天线结构偶极子、蝶形极子、对数螺旋、大孔径天线等，不同的天线结构具有不同的特点，比如偶极子天线结构简单，适用于组成天线阵列；对数螺旋线与对数周期等结构可以获得较宽频率覆盖的太赫兹辐射。随着纳米制造技术的进步，纳米天线、光学纳米腔等新型结构逐步应用于 PCA 中，进一步增强泵浦激光与光电导材料的相互作用^[66]，从而获得更高的辐射功

率。目前 PCA 太赫兹辐射源的泵浦激光多采用飞秒激光器, 在选用泵浦源时需要考虑中心波长、脉冲宽度和平均功率等。为了能够使光电导材料发生电子跃迁产生自由载流子, 泵浦激光的光子能量必须大于光电导材料的禁带宽度, 比如 GaAs 的光电导材料用 800 nm 的光激发最有效^[67], 而 InGaAs 则需要采用 1.55 μm 光^[68]。脉冲宽度与太赫兹频谱范围有关, 更窄的泵浦激光可以获得更宽的太赫兹谱。在 PCA 饱和功率之内, 随着泵浦激光功率的增强, 获得的太赫兹辐射的功率也会增加。当然在实际的设计中, 还需要考虑光电导材料光子吸收机制、光电导材料因泵浦激光发生温度变化等其他因素。

PCA 太赫兹辐射源的典型应用是 THz-TDS 系统, 除此之外, 基于光电导天线的太赫兹通讯、太赫兹成像等应用也有报道^[69]。但作为太赫兹辐射源, PCA 仍存在转换效率不足、辐射功率低等方面的缺陷, 另外, 由于光电导天线需要飞秒激光器激发, 不可避免的增加了系统的复杂性, 应用场景受到很大限制。

上述以太赫兹倍频器/混频器、太赫兹共振隧穿二极管、太赫兹单行载流子光电二极管为例简单介绍了太赫兹电子学辐射源的研究进展, 足以清晰的表现出电子学辐射源在太赫兹低频段的优势, 同时也难以向 1 THz 以上的更高频方向发展的现状, 这也是许多太赫兹电子学辐射源被称之为毫米波器件的原因。以光电导天线太赫兹辐射源为例介绍了借助超快激光技术发展而来产生太赫兹辐射的方法, 因为结构不够紧凑、辐射功率低等原因在应用方面收到极大限制。另一类重要的太赫兹辐射源是基于太赫兹光子学技术, 是由红外波段向低频发展而来的各类激光器, 如气体激光器、自由电子激光器和半导体激光器^[70]。其中太赫兹量子级联激光器 (Terahertz Quantum Cascade Laser, THz QCL) 被认为是 1-5 THz 范围内最高效的电泵浦太赫兹辐射源, 随着 THz QCL 的研究不断深入, THz QCL 的性能不断突破, 逐渐成为推动太赫兹技术应用的关键。尤其与目前国际研究热点——光频梳结合之后, 基于 THz QCL 的太赫兹光频梳及双光梳技术成为一个新兴的热门领域^[30]。本论文的主要工作即为基于主动调制技术实现 THz QCL 光频梳, 并设计双光梳系统。下面针对本论文的研究背景, 分别详细介绍 THz QCL、光频梳和双光梳。

1.2.2 太赫兹量子级联激光器的特点

我们通过分解“Terahertz Quantum Cascade Laser”一词来逐一介绍 THz QCL 的器件特点。

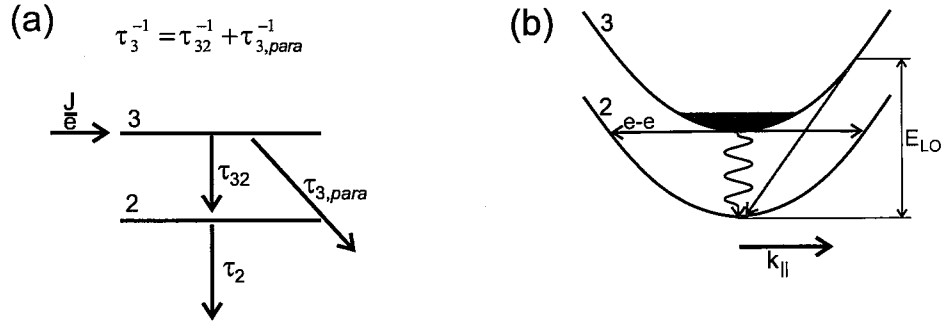


图 1.7 (a) QCL 器件中电子输运简易模型 (b) 电子从 3 能级到 2 能级的弛豫路径^[71]

Figure 1.7 (a) Sample model of electron transport in QCL (b) Electron relaxation path from level 3 to level 2^[71]

“Terahertz”即太赫兹，表明该类器件的工作频段。之所以特意标注，是因为 THz QCL 是从中红外（Mid-Infrared）发展而来，而这个过程也并非易事，这主要是因为一太赫兹波的能量低于红外波，发生辐射弛豫的能量间隔也比红外波小得多，在如此小的能量间隔下难以实现粒子数反转；二太赫兹波的波长长于红外波，低损耗的波导设计面临困难。如图1.7(a)为电子在 QCL 两个能级中运输的最简易模型，电子以电流密度 J 注入到上能级 3，然后向下能级 2 辐射跃迁（辐射跃迁时间为 τ_{32} ），同时 3 能级的电子也会发生寄生散射（散射时间为 $\tau_{3,para}$ ），3 能级的电子总寿命为 τ_3 。2 能级的电子寿命为 τ_2 ，求解此二能级系统的速率方程可以得到反转离子数 ΔN ：

$$\Delta N = \frac{J}{e} \left(1 - \frac{\tau_2}{\tau_{32}} \right) \quad (1.1)$$

由上式可知，若要在 3 能级实现粒子数反转，需要 $\tau_2 \ll \tau_{32}$ ，同时 τ_3 尽可能大^[71]。这意味着下能级实现快速的电子的抽运的同时需保持住上能级的粒子数。在 THz QCL 中，纵光学声子（Longitudinal-optical phonon, LO 声子）能量大于发生辐射弛豫的能级间隔，若要保证上能级电子不会因为 LO 声子散射而减少，必须采用低温抑制 LO 声子散射。如图1.7(b)所示，低温且激光激射阈值之下的上能级电子寿命取决于电子-电子散射、电子-杂质散射、表面粗糙散射和热活化 LO 声子散射，之所以没有考虑自发辐射的因素，是因为对于 THz QCL 的能带结构而言，非辐射散射率要远大于自发辐射效率。其中电子-电子散射率正比于 N_3/E_{32} （ N_3 指 3 能级电子数， E_{32} 指 2、3 能级间隔），即低温和低填充态下，上能级的电子寿命相对较长，但是为了实现激光器高功率激射，上能级需要注入

大量的电子，从这个角度讲存在最大反转粒子数的限制。另外，由于 2、3 能级之间间隔很小，实现精确的电子注入也是困难之一。QCL 由中红外发展到太赫兹波段的另一个挑战是设计低损耗波导。在中红外波段，波导结构仅由折射率小于有源区的介质层即可实现光模式限制，但对于 THz 波的波长较长，依据此概念的波导结构未免太大了些。另一方面，QCL 器件作为电泵浦的半导体激光器，需要高掺杂层实现上下电极欧姆接触，而大量的自由载流子对 THz 波吸收严重，这对于 THz QCL 而言也是一大挑战。

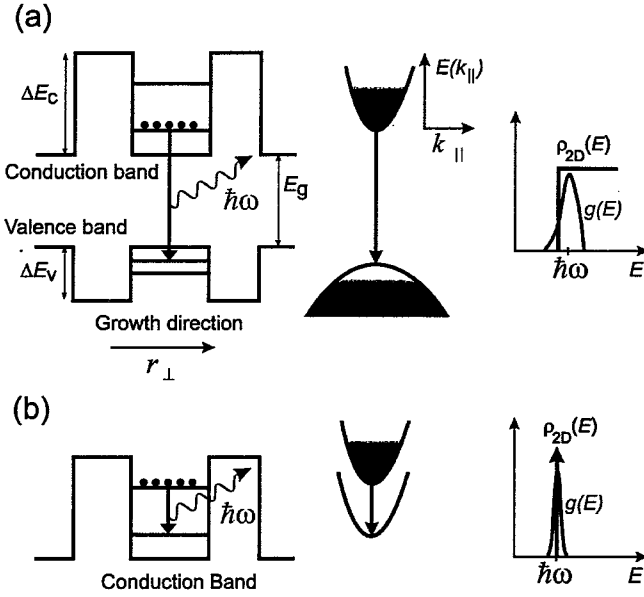


图 1.8 (a) 二维量子阱结构中带间电子辐射跃迁示意图 (b) 二维量子阱结构中子带间电子辐射跃迁示意图^[72]

Figure 1.8 (a) Schematic diagram of interband electronic transitions in a two-dimensional quantum well (b) Schematic diagram of intersubband electronic transitions in a two-dimensional quantum well^[72]

“Quantum”，即量子，体现在 QCL 独特的能带结构。在传统的双极性半导体激光器中，通过电子从导带底跃迁到价带顶辐射光子，这类激光器属于带间激光器，光子能量（即频率）完全取决于激光器材料本身的带隙，虽然可以通过量子阱结构或者改变应变层厚度等方式调节带隙，但双极性器件的带隙最小为 40 meV，而 1 THz 的光子能量约为 4.13 meV，由此可见传统带间激光器在没有外场辅助情况下是无法辐射出 THz 光的。获得能量间隔为 meV 量级的能带结构成为太赫兹半导体激光器的重要前提。在异质结量子阱结构中，当半导体层的厚度（大概为几埃到几十埃）小于电子德布罗意波长时会产生量子限制效应，在导

带（或价带）中产生离散的子带，通过设计半导体异质结薄层厚度可以改变子带间的能级差，理论上可以实现最小几个 meV，最大异质结带价能量 ΔE_c (或 ΔE_v) 的能量间隔，从而调整在子带间发生辐射跃迁产生的光子频率^[73]。带间和子带间电子辐射跃迁方式的区别可参考图1.8。子带间激光器的概念最早可以追溯到20世纪60年代MIT研究人员Lax提出的利用强磁场实现Ge晶体中朗道能级的粒子数反转^[74]。在1971年，苏联科学家Kazarinov和Suris提出在超晶格结构中可以利用子带间跃迁实现光放大^[75]，超晶格的概念于1970年由Esaki和Tsu提出，指的是两种不同材料周期性叠加，重复的量子阱和势垒可以看作是超晶格结构^[76]。直到1994年，Bell实验室的Faist及其合作者基于InGaAs/AlInAs/InP材料体系成功研制第一个QCL^[77]。从1971年提出理论预测到1994年实验室第一个QCL成功激射，再到2002年第一个THz QCL研制成功^[78]，分子束外延（Molecular Beam Epitaxy, MBE）技术起到了关键的作用。QCL的有源区结构由成百上千个半导体薄层组成，为了实现量子限制效应，每个薄层仅为几个原子的厚度，而有源区总厚度在10 μm 左右，不仅如此，在有源区设计时需要引入用于光模式限制、欧姆接触等需要掺杂的半导体层，控制各层材料的界面平整度、生长厚度、掺杂浓度等是一个非常具有挑战的工作。因为在材料生长的过程中如果生长速率、生长时间和掺杂浓度的精确度达不到要求，就会造成有源区各层的厚度与设计值出现偏差，而且这种偏差会随着生长层数的变多而逐渐积累，其结果直接导致有源区能带结构发生变化，轻则出现激射频率变化，重则导致无法实现粒子数反转，无法激射。MBE是一种在超高真空环境下通过产生分子束或原子束实现高精度控制外延生长的技术，该技术的出现将薄膜生长精度提升到纳米量级。MBE技术与“能带工程”的完美结合促成了QCL器件的成功。

“Cascade”，即级联，突出QCL能带的周期性特点。如上文分析“Terahertz”一词中所述，子带间非辐射跃迁的寿命（ps量级）要远远短于带间电子-空穴非辐射复合时间（ns量级），尤其是温度的变化以及上激光能级电子数目变多，会很大程度限制反转粒子数，从而导致单一量子阱结构具有比较低的辐射功率。因此，子带间激光器往往采用多级串联的周期性结构，即级联机构，以期获得足够的增益。QCL的有源区通常是由数十个甚至上百个周期组成的多量子阱（Multi-quantum well, MQW），电子会连续地在每个周期中发生辐射跃迁，对于N个周期的多量子阱，一个电子就会产生N个光子，这样的设计极大提高了QCL的辐

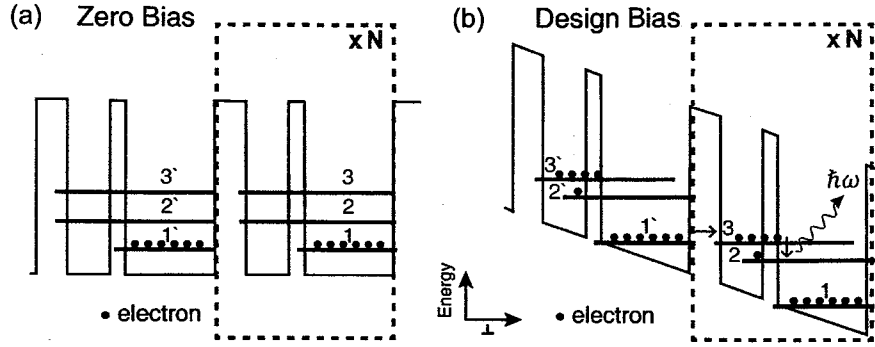


图 1.9 (a) 零偏压下 QCL 级联结构示意图 (b) 偏压下 QCL 级联结构示意图。水平方向为材料外延生长方向^[79]

Figure 1.9 (a) The cascade scheme in QCLs under zero bias (b) The cascade scheme in QCLs under voltage bias. The horizontal direction is the material growth direction^[79]

射功率。图1.9形象的表现了在零偏压和有偏压下 QCL 的级联结构，其中水平方向为材料的生长方向，图 (a)(b) 中被虚线框起的部分为重复结构，周期为 N 。我们也借由此图说明 QCL 的工作原理，当然图1.9并非是真的 QCL 能带结构图。事实上，由不同电子抽运方式决定的不同有源区，在能带结构上大不相同。下文会详细介绍束缚态向连续态跃迁及共振声子跃迁等有源区结构。在零偏压时，导带结构不发生变化，各个周期中的上下激发态能级 3、2 与基态能级 1 分别对齐，电子处于能量最低的基态能级 1 上。当施加一定的偏压后，导带结构在外加偏压的作用下发生倾斜，导带中各个周期中的子能级随之发生变化，上一周期的基态能级 1' 与下一周期的上激发态能级 3 对齐，通过量子隧穿效应实现电子的 $1' \rightarrow 3$ 跃迁，辐射跃迁发生在上下激发态能级 $3 \rightarrow 2$ ，2 能级的电子通过 LO 声子散射等机制快速无辐射弛豫至 1 能级，随后再在下一周期中重复上述作业，从而产生大量的太赫兹光子。

简言之，THz QCL 可以描述为是一种基于子带间电子跃迁产生太赫兹辐射的电泵浦单极激光器。根据上述对器件特点描述我们可以得出 THz QCL 的优势：首先辐射波长不由半导体材料本身决定，而是由多量子阱结构中子带能级差决定，理论上我们可以采用任意一种材料结构实现多量子阱。但是目前在太赫兹波段多采用 $\text{GaAs}/\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ 材料体系，一方面是因为该材料体系的 MBE 生长技术十分成熟，另一方面通过改变 $\text{GaAs}/\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ 中 Al 组分改变势垒层高度，而且 GaAs 和 AlAs 的晶格常数相差无几（分别是 0.357 和 0.356 nm），可以在 GaAs 衬底上生长任意 Al 组分的 $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ 而无需担心晶格匹配问题。其次一

个电子的注入在 N 级级联结构中可以辐射 N 个光子，转换效率高，可以获得大的输出功率。THz QCL 还有一个重要的优势在于激发过程仅由电子参与，在子带间的弛豫时间远小于带间激光器的电子-空穴复合时间，因此 THz QCL 具有很高的调制响应。此外，THz QCL 也兼具半导体激光器的其他优势，比如：结构紧凑、重量轻、易集成等。当然 THz QCL 也具有一些不利于应用的方面，首先 THz QCL 必须在低温下甚至超低温（液氮温度）下工作，这是由 THz QCL 的原理决定。频率为 1 THz 的光子能量大概为 4.13 meV，而常温下的热噪声能量大概是 20 meV，所以 THz QCL 在常温且如果没有外场辅助的情况下难以激射。从能级的角度分析，高温下 LO 声子散射加剧导致子带中上激发能级的电子迅速减少，粒子数反转难以维持，从而导致 THz QCL 失效^[80,81]。THz QCL 的有源区增益谱较窄，容易产生单纵模。这是因为 THz QCL 中子带间跃迁的联合态密度是一个 δ 型函数，也就意味发生辐射跃迁产生的光子能量均为 $\hbar\omega$ 。在实际的 THz QCL 器件中，其增益谱会因为能级同质展宽和材料生长引起的能级非同质展宽导致其增益谱具有一定的线宽，即便如此，也无法与带间激光器相比。当然，这种窄增益谱在某些应用场景下反而独具优势，比如在通讯应用中往往需要单一的频率作为载波。而针对窄增益谱，目前也有多种方式实现 THz QCL 宽谱激射，比如采用多有源区堆叠^[82,83]、双上能级到多下能级跃迁^[84]、短周期超晶格结构^[85]、以及下文将介绍的射频注入锁模^[86]等方法。

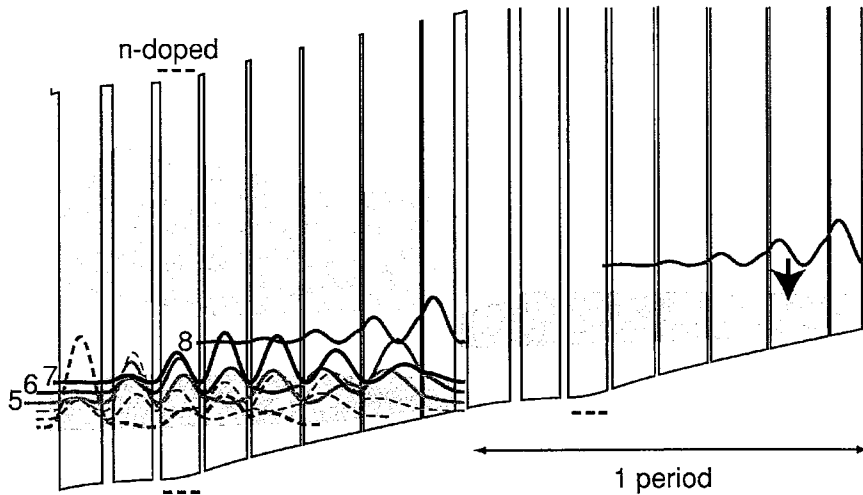


图 1.10 束缚态向连续态跃迁有源区能带示意图，计算条件为 $T = 40$ K，偏压 2.55 kV/cm^[87]

Figure 1.10 Computed BTC energy band profile at $T = 40$ K, under an electric field of 2.55 KV/cm^[87]

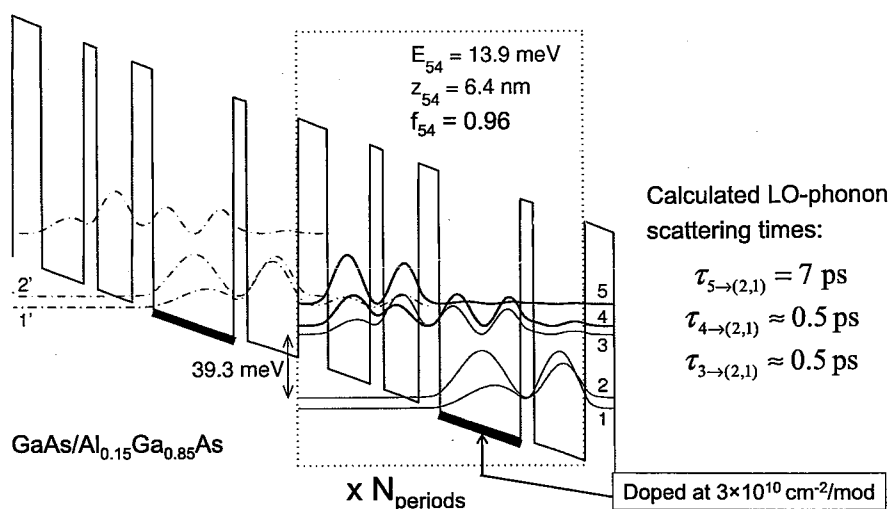


图 1.11 共振声子有源区结构能带示意图，计算条件偏压 12.2 kV/cm^[88]

Figure 1.11 Computed PR energy band profile under an electric field of 12.2 KV/cm^[88]

目前具有代表性的有源区结构有束缚态向连续态 (bound to continuum, BTC) 结构^[87] 和共振声子 (resonant phonon, RP) 结构^[88]。不同有源区结构的 THz QCL 器件性能差异很大。2003 年 Faist 团队的 Scarlari 等人根据 BTC 结构实现中心频率为 3.5 THz 的 QCL，在脉冲模式下，获得最大输出功率 20 mW ($T = 20$ K)，最高工作温度达到 90 K；在连续波模式 (continuous-wave mode, CW mode) 下，最大输出功率 15 mW ($T = 10$ K)，最高工作温度 55 K。如图 1.10 所示，BTC 结构电子辐射跃迁发生在束缚的上激发能级 (能级 8) 和下激发能级组成的微带 (能级 5、6、7) 之间，电子以对角辐射的方式发生跃迁。在一定偏压下 (图 1.10 施加的偏压为 2.55 kV/cm)，能级 8 与上一周期的微带中心对齐，以实现更高效率的电子注入。该结构最大的优势是器件的工作电压小，阈值电流密度低，可以减少器件本身产生的焦耳热。另一种是 2003 年 Williams 提出的 RP 结构，图 1.11 是该有源区结构的能带示意图，该 THz QCL 基于 GaAs/Al_{0.15}Ga_{0.85}As 材料体系，工作在 3.44 THz (14.2 meV 光子能量)，脉冲工作模式下，最高工作温度 65 K，最大峰值功率 2.5 mW。如图 1.11 所示，电子辐射跃迁发生在能级 5→4，能级 4 的电子通过共振隧穿落到能级 3，能级 3 和能级 4 的电子通过 LO 声子散射快速弛豫到基态能级 1 和能级 2 (约 0.5 ps)，在外加偏压的作用下 (图 1.11 施加的偏压为 12.2 kV/cm) 下，能级 1 和能级 2 作为下一周期的电子库，通过共振隧穿注入到下一周期的能级 5。该结构最大的优势是利用 LO 声子散射实现电子的快速抽运，从而保证激励能级 5 与能级 4 之间形成最大的反转粒子数。另一大优势在于下激

射能级与基态能级之间的能量差大（约为 39.3 meV），可以有效防止电子的热反注入，因此该有源区结构具有更高的工作温度。实际上，目前的高功率、高工作温度的 THz QCL 有源区结构大都采用 RP 结构或基于此结构进行的改进^[89-91]。

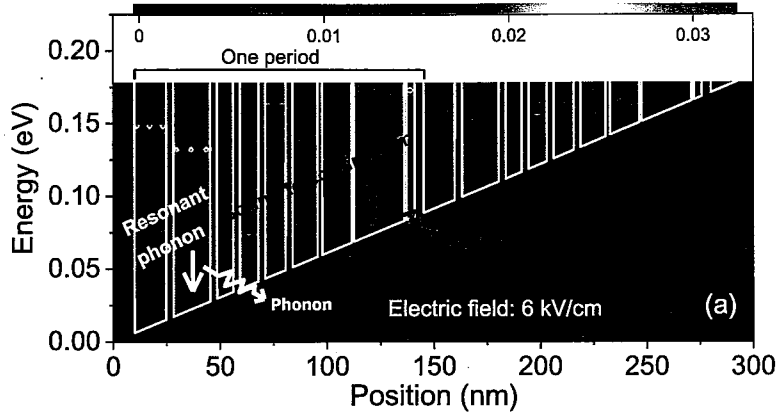


图 1.12 束缚态到连续态与共振声子结合的有源区结构能带示意图，计算偏压 6 kV/cm。其中红色箭头代表电子从束缚态向连续态辐射跃迁产生光子，黄色箭头表示电子从微带区域迅速弛豫到基态能级向外辐射 LO 声子^[86]

Figure 1.12 Conduction band structure of the hybrid active region, which combines BTC with RP under an electric field of 6 kV/cm. The red arrow represents the photon produced by the electron transition in BTC region, and the yellow arrow indicates that the rapid relaxation of the electron by releasing the LO phonon^[86]

本论文中采用的 THz QCL 均基于同一种有源区结构，该有源区设计上最大的特点是由 BTC 与 RP 结合而成，如图1.12所示，采用 GaAs/Al_{0.15}Ga_{0.85}As 材料体系^[92,93]。电子辐射跃迁发生在 BTC 部分中，发挥该结构具有的高电子注入效率、低阈值电流密度的优势。下激励能级的电子抽运方式由 RP 部分负责，有利于实现高输出功率和高工作温度。本论文重点讨论的太赫兹光频梳及双光梳技术，需要 THz QCL 具备较高的性能：THz QCL 在自由运行下需具备尽可能宽的光谱；THz QCL 需具备较低的阈值电流密度。BTC 与 RP 结合的混合结构恰好满足实验要求，具体有源区材料生长过程及 THz QCL 器件性能将在下文中具体讨论。

THz QCL 的波导以脊型波导为主，有半绝缘表面等离子体（Semi-insulating surface plasmon, SISF）波导^[94,95]和双面金属（Metal-Metal, MM）波导^[96,97]。半绝缘表面等离子体波导中主要依靠上电极（Ti/Au）和下接触层实现对光模式的限制，对光模式的限制作用较低，有大量的模式泄漏到衬底中。而双面金属波导

结构中, 模式完全被限制在上下电极之间, 波导限制因子接近 1, 因此双面金属波导 THz QCL 通常具有比较低的阈值电流密度。另外也是因为模式几乎被限制在竖直仅有 $10\ \mu\text{m}$ 左右的波导结构中, 太赫兹波的波长与波导的物理尺寸处于同一量级, 导致双面金属波导 THz QCL 的远场光斑极其发散, 应用受到很大限制。

两种波导结构的优劣比较还体现在制作工艺。本文不对具体工艺流程展开细致说明, 具体工艺流程及工艺条件优化结果可参考文献^[70]。一般来说半绝缘表面等离子体波导的整个工艺分为制作上电极、刻蚀脊型波导、制作下电极和减薄抛光四步, 涉及三次光刻(上下电极图形转移、脊型波导图形转移)和两次 lift-off 工艺(若采用干法刻蚀脊型波导还需再生长介质掩模)。而双面金属波导工艺分为晶圆 Au-Au 热压键合、衬底去除、制作上电极、刻蚀脊型波导、减薄抛光五步, 涉及两次光刻(上电极图形转移、脊型波导图形转移)和一次 lift-off 工艺(若采用干法刻蚀脊型波导还需再生长介质掩模), 其中 Au-Au 热压键合的质量对整个工艺流程至关重要。从工艺制作角度来说, 双面金属波导要比半绝缘表面等离子体波导更复杂。另外, 在有源区结构中, 通常有意的设计较厚的下接触层(如上接触层厚度为 $50\ \text{nm}$, 下接触层厚度为 $400\ \text{nm}$), 如此设计也是考虑到同一外延片将同时用于制作两种工艺。较厚的下接触层对半绝缘表面等离子体波导是有利的, 一方面在刻蚀脊型波导时可以提高工艺的容错率, 避免过刻蚀, 另一方面较厚的重掺杂层可以提供更好的光模式限制。但是自由载流子会对 THz 光有较大的吸收, 因此在双面金属波导中还需要适当的减薄下接触层, 让工艺变得更加复杂。

得益于较大的功率输出、较小的远场发散角和成熟简单的工艺流程, 本文均采用半绝缘表面等离子体波导 THz QCL。

1.2.3 太赫兹量子级联激光器的发展概况

世界上第一个实现激射的 QCL 工作频点为 $4.3\ \mu\text{m}$, 属于中红外激光器^[77]。目前中红外 QCL 已经实现室温连续波工作, 最大输出功率达到百瓦量级。相关的研究进展可参考综述文章^[98,99], 在此不再赘述。本节将着重介绍 THz QCL 在高性能以及光子晶体等方面的研究进展。

自从 2002 年世界上第一个 THz QCL 实现激射以来, THz QCL 的性能不断提升, 在激射频率范围、输出功率、光束质量方面都取得了不错的进展。到目

前为止, THz QCL 已经可以在 0.8-5.4 THz 范围内实现激射^[100], 在脉冲模式下最大输出功率达到 2.4 W (工作温度 10 K)^[101], CW 模式下最大输出功率 0.23 W (工作温度 15 K)^[102]。在工作温度方面, 目前可见报道的 THz QCL 最高工作温度为 199.5 K^[103], 要知道 2005 年 THz QCL 在脉冲工作模式下最高温度就已经达到了 164 K^[104], 说明 THz QCL 的工作温度研究进展并不如其他特性一样顺利, 目前来看基于现有的有源区设计和 GaAs/AlGaAs 材料体系仍难以实现室温激射^[105,106]。工作温度成为 THz QCL 进一步推向应用的关键瓶颈。目前解决工作温度的方法主要有以下几种: 一借助磁场等外场辅助实现粒子数反转, 提高 THz QCL 工作温度, 如 2008 年 Wade 等人在 16 T 磁场下, 创造 225 K 的 GaAs/AlGaAs THz QCL 最高工作温度^[107]。二是开发新的有源区结构和采用新的材料体系, GaAs 的 LO 声子能量为 36 meV, 而在 GaN 中为 92 meV, 因此 GaN/AlGaAs 是最有希望突破工作温度限制的材料体系^[108], 在 2019 年 Li 等人基于 GaN/AlGaAs 将 THz QCL 工作温度提高到 230 K, 但是该激光器的激射频率为 7.74 THz, 随着激射频率的降低, 提高工作温度会越来越困难^[109]。三是采用双波长中红外 QCL 腔内差频 (Difference-frequency generation, DFG) 产生太赫兹波段的方式实现室温工作, 但是此方案严重依赖于中红外 QCL 性能和外耦效率^[110], 目前只能实现微瓦量级的输出功率。不可否认, 液氦或液氮方式的制冷让 THz QCL 系统无法像电子学器件一样紧凑, 但是随着斯特林制冷机等电学制冷效率的提升和 THz QCL 工作温度不断提高, 并不会对 THz QCL 的应用产生太多的影响。在面向具体应用场景时, 输出功率、光束质量、频率稳定性等特性的重要性要远比工作温度重要的多。

光束质量 (远场发散角) 决定了 THz QCL 与波导、天线和探测器等的耦合效率, 由于金属限制层的引入, 尤其是对于双面金属波导结构, THz QCL 的光束质量通常难以满足应用需求, 不仅准直性差, 且异常发散^[113]。双面金属波导本征模的远场在 θ 方向 180° 范围内均有模式分布, 具有较差的空间相干性。为了改善此类问题, 目前主流的解决方案有集成光学元件、天线、或采用光子晶体等。在波导端面集成透镜等光学元件是最直接的方案, 2018 年 Wan 等人采用双面金属波导端面集成硅透镜的方案, 成功实现了 $2.4^\circ \times 2.6^\circ$ 的远场光斑^[111], 图 1.13(a)(b) 分别展示了该方案的装配图和远场测试结果。该方案由于其宽带的特性, 不存在选模机制, 几乎适用于所有 THz QCL。但是需要细致的操作保证

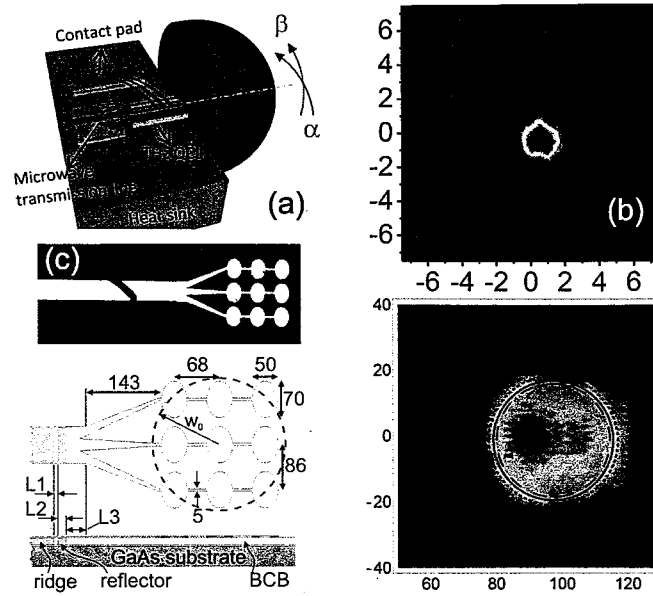


图 1.13 (a) 双面金属波导集成硅透镜 (b) 双面金属波导集成硅透镜的远场光斑 (c) 3×3 贴片天线阵列的显微镜图片和示意图 (d) 仿真模拟的双面金属波导基模电场分布^[111,112]

Figure 1.13 (a) Schematic of the MM THz QCL with a silicon lens coupler (b) Far-field beam pattern of a MM THz QCL with a silicon lens coupler at drive current of 5 A (c) The microscope image and drawing of the 3×3 patch antenna array (d) The beam pattern of a MM THz QCL with patch antenna array^[111,112]

激光器与透镜焦点对齐，否则会对远场质量产生影响。电磁喇叭天线等结构广泛应用于微波器件中用于提高外耦率和准直性，受此启发，Matthias 等人在双面金属波导端面集成如图 1.13(c) 所示的平面天线，图 1.13(d) 是集成天线后的测试结果，受限于天线阵列数目 (2×2 或 3×3)，最终的实验结果并没有获得小的远场光斑，但是光斑呈现良好的高斯分布，而且天线与双面金属波导之间的耦合率超过 90%，集成平面天线的方案在光束整形方面仍表现出较大的潜力^[112]。

与上述两种方案相比，设计灵活的光子晶体更受科研人员的青睐。二阶分布反馈 (Distributed Feedback, DFB) 结构是第一种用于光束整形的光子晶体^[117]，但是面发射的二阶 DFB 结构由于较低的表面发射损耗而更倾向于支持非对称模式发射，这会导致具有两个波瓣的远场光斑。作为一种解决方案，是 Tsung-Yu Kao 在 2010 年提出的基于二阶 DFB 结构的锁相阵列面发射 THz QCL^[114]，如图 1.14(a) 所示。具体实施方法是利用一段弯曲波导耦合器将每段二阶 DFB 首尾相连，波导耦合器的长度被设计成可以锁定所有 DFB 中的相位，获得在相控阵方向 (脊型波导方向) 约 10° 的远场发散角 (图 (b))。2009 年 Amanti 等人提出三

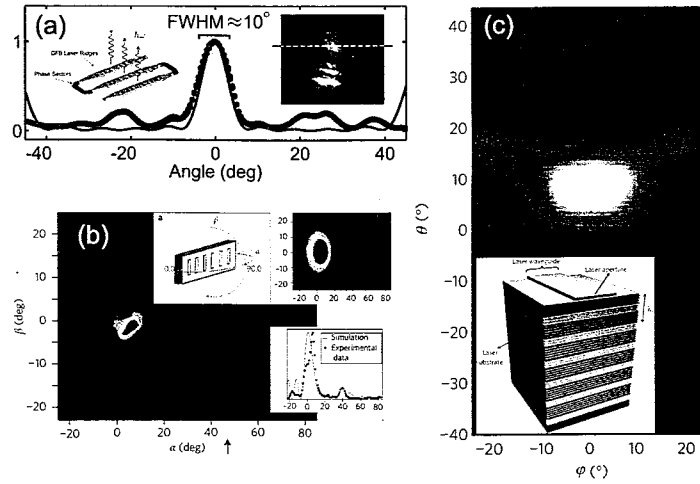


图 1.14 (a) 二阶分布反馈锁相阵列 THz QCL (插图) 及远场光斑在相控阵方向的强度分布
(b) 三阶分布反馈锁相阵列 THz QCL 远场光斑 (插图为该 THz QCL 的示意图) (c)
伪表面等离子体 THz QCL (插图) 及远场光斑^[114-116]

Figure 1.14 (a) Schematic of the second-order DFB phase-locked array THz QCL (insert) and Far-field plots of (b) Far-field beam pattern of the third-order DFB phase-locked array THz QCL and the inset is a schematic of the device (c) Schematic of the SSP THz QCL (insert) and Far-field beam pattern^[114-116]

阶 DFB 结构实现光束准直 (远场发散角约 10°)，在这种结构中一阶和二阶衍射模式与自由空间实现相位匹配而耦合到空气中，反馈由三阶衍射提供，进而实现选模功能^[115]，其结构与远场光斑如图 1.14(b) 所示。三阶 DFB 结构的 THz QCL 最小光束发散角受相干长度的影响，目前可以实现的最小发散角为 $6^\circ \times 11^\circ$ ^[118]，引入锁相机制后可进一步缩小到 $6^\circ \times 8^\circ$ ^[119]。另外也可以通过在激光腔外设计无源光子晶体器件实现光束整形，这种方案的好处是为设计和制造光子晶体提供了更大的自由度，而不会影响激光器本身的性能，需要面临的最大挑战是提高光子晶体与太赫兹波之间的耦合率。最具代表性的方案是美国哈弗大学 Yu 在 2010 年提出的伪表面等离子体结构 (spoof surface plasmon, SSP)，该结构通过聚焦粒子束 (focus ion beam, FIB) 在高掺杂衬底上刻蚀多条亚波长沟槽，如图 1.14(c) 所示，其中蓝色和粉色分别表示较深、较浅两种不同深度不同周期的沟槽结构^[116]。在上文介绍双面金属波导中提过，在上下金属层包裹的有源区端口处 (亚波长尺寸)，太赫兹波发生非菲涅尔反射，不仅无法高效输出耦合而且具有超过 180° 的发散角。在没有任何干预的情况下，太赫兹波除了直接发射到远场之外，还存在于器件端面的平面波中，即这两种分量的波矢相等。而在波导中的波矢约为

(有源区的有效折射率约为 3.5), 存在严重的波矢失配。在伪表面等离子结构结构中, 靠近端口处的沟槽结构(蓝色)会增加器件表面的波矢, 从而更多的太赫兹波被引到伪表面等离子结构中而不是直接发射到远场。较深的沟槽(粉色)充当二阶光栅, 将伪表面等离子结构的能量散射到远场中。通过这种方法, 有效的扩大 THz QCL 的出光孔径, 将双面金属波导的远场发散角由 180° 降到 10° , 其远场光斑如图 1.14(c) 所示。除了以上提到的几种典型的光子晶体结构之外, 还有与伪表面等离子结构类似的平面锥形外耦合器^[120]、介电负载表面等离子波导(Dielectric-loaded surface plasmon, DLSP)^[121] 等结构, 用于获得更小的远场发散角。

光子晶体技术不仅用于光束整形, 在改善 THz QCL 功率效率、波长选择、频率调谐等特性和垂直腔面发射激光器 (Vertical-external-cavity surface-emitting-laser, VECSEL)^[122,123]、随机激光器 (Random Lasers)^[124] 等新颖 THz QCL 中也扮演者重要的角色。2005 年 Dunbar 等人第一次把光子晶体概念引入 THz QCL 中, 实现 THz QCL 的单模激射^[125]。随后光子晶体结构逐渐引起 THz QCL 领域的科研人员注意。实现频率调谐最直接的方式是改变 THz QCL 的驱动电流和工作温度(这两种方式的核心均是改变有效介电常数), 但是此两种方法的频率调谐动态范围较窄^[126,127]。结合光子晶体结构之后, 可以更有效地进行频率调谐, 同时具有更宽的动态范围, 如将二维光子晶体(如周期排列空气孔、介电柱)结构发展为 QCL 的有源谐振器, 实现激光器单模可调谐^[128]。在提高功率效率方面, 改变 DFB 的占空比、周期排列空气孔的尺寸和周期等光子晶体方案越来越多收到重视, 2018 年 Jin 等人采用二阶与四阶 DFB 混合结构实现了目前可见报道的最高斜率效率 (Power slope efficiency, PSE) 993 mW/A, 输出功率 170 mW^[129]。另外上文介绍的伪表面等离子结构结构亦可说明光子晶体结构可以通过调谐外耦合系数扩大出光孔径, 达到提高输出功率的目的^[116]。光子晶体与 THz QCL 结合后产生了非常多新奇的现象和令人振奋的性能提升, 设计灵活的光子晶体已经成为 THz QCL 领域的一个热门的研究领域。

性能不断提高的 THz QCL 为太赫兹无线通信、快速成像、高分辨率成像、太赫兹光谱等应用提供了良好的器件基础。有关 THz QCL 近年来在应用方面的进展可以参考文献^[130,131]。值得特别关注的是, THz QCL 另一个非常有潜力的应用——太赫兹光频梳及双光梳技术。

1.3 光频梳

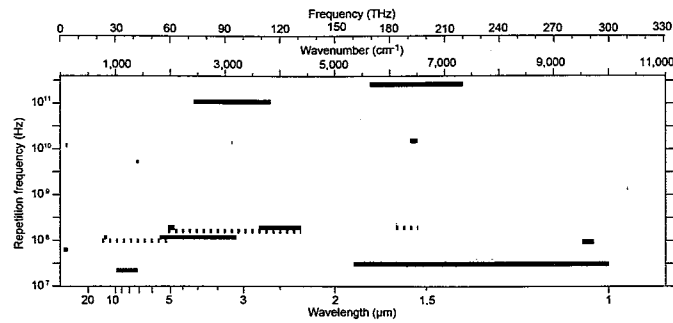


图 1.15 亚毫米波到近红外波段内可实现光频梳的各类激光源。其中黑色代表飞秒激光器，红色代表半导体激光器，深蓝色代表微谐振腔，紫色为差频激光器，绿色为光学参量振荡器，青色为电光调制器^[132]

Figure 1.15 Available laser sources for frequency comb in the sub-millimeter wave to near-infrared range: femtosecond laser (bar in black), semiconductor lasers (red), microresonator (blue), difference frequency (violet), optical parametric oscillators (green), electro-optic modulators (cyan)^[132]

光频梳^[133,134]指在频域具有一系列等间距分布且相位关系确定的频率线组成的宽带相干光源。自从 20 世纪 70 年代光频梳（当时称为锁模激光器）首次应用于无多普勒效应的双光子激光谱测试以来^[135,136]，光频梳技术以提供高精度高稳定性的计量手段为天文学^[137]、原子钟^[138]、距离测量、光学传感、频率测量、分子光谱学等领域带来革命性的进展。John L. Hall 和 Theodor W. Hänsch 两位科学家凭借对光频梳做出的开创性贡献获得 2005 年诺贝尔物理学奖，极大振奋了相关领域的科研人员，促进了光频梳技术近几年的飞速发展。尤其是在光谱学领域，光频梳具有的宽谱覆盖和高稳定性，对精细光谱学具有重要的应用意义。在电磁波中，每一频段的波谱在物质光谱检测领域都是非常重要的。以吸收光谱为例，作为一种应用最久和范围最广的光谱学技术，通过对比电磁波在与待测物质相互作用前后的功率来获得物质成分和能级结构。因为吸收过程只能发生在两个对应能级之间，即两种不同状态的物质或两种物质。不同频率的电磁波具有不同的能量，能涵盖特定物质的吸收峰。因此，在各个波段实现光频梳操作是精细光谱学的重要前提，图 1.15 是 Picqué 和 Hänsch 总结的从亚毫米波到近红外之间的光频梳发展现状^[132]。其中黑色线条指光频梳基于飞秒激光器实现，红色为半导体激光器，深蓝色为微谐振腔光频梳，紫色为差频激光器光频梳，绿色

为光学参量振荡器光频梳，青色为电光调制器光频梳。发展太赫兹波段光频梳同样十分重要，正如前文对太赫兹波的介绍，太赫兹光频梳十分适合应用于揭示分子尺度甚至电子-电子之间相互作用过程等分子光谱学，其次，利用太赫兹光频梳产生的超短脉冲，结合泵浦探测（pump-probe）技术可以分辨半导体材料或分子中载流子在时间尺度上的动态过程^[30]。而 THz QCL 是 1-5 THz 波段内实现光频梳最理想的辐射源。

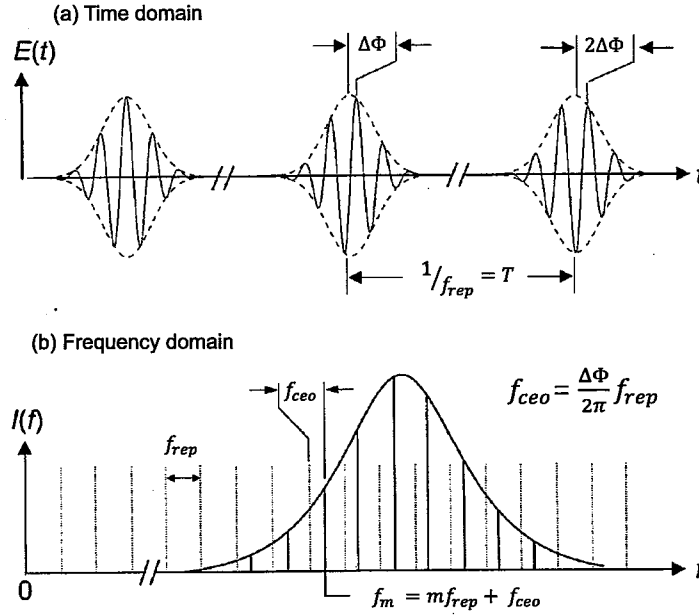


图 1.16 光频梳原理。(a) 在时域上，超短脉冲序列具有固定重复频率 f_{rep} ，而且载波（实线）与包络（虚线）之间存在固定的相位差 $\Delta\phi$ ，相位差随着脉冲序列产生叠加（b）在频域上，存在一系列等间距 f_{rep} 分布的纵模，实线代表梳齿，虚线代表载波包络偏移频率 f_{ceo} ^[139]

Figure 1.16 Principle of a frequency comb. (a) In the time domain, the ultra-short pulses enjoy a period of T , and the carrier (solid line) is shifted by $\Delta\phi$ relative to the envelop (dash line) from pulse to pulse. (b) In the frequency domain, the space of the teeth is equal to the repetition frequency f_{rep} , and the solid lines represent the teeth, dashed lines represent the carrier-envelop offset frequency f_{ceo} ^[139]

光频梳的概念来源可以追溯到超快光学，根据傅里叶变换，时域的超短脉冲对应于频域的宽谱辐射，而超短激光脉冲多采用锁模方式。锁模激光器产生的超短脉冲具有两个重要特征，是形成光频梳的关键。一是锁模激光器以重复频率 f_{rep} 产生超短脉冲序列， f_{rep} 与激光器谐振腔结构、腔长和有效折射率有关。

对于线性谐振腔:

$$f_{\text{rep}} = \frac{c}{2nL} \quad (1.2)$$

对于环形谐振腔:

$$f_{\text{rep}} = \frac{c}{nL} \quad (1.3)$$

其中 c 为光速, n 为谐振腔介质的折射率, L 为腔长。在频域 f_{rep} 体现为各梳齿(纵模)之间的间隔。另一个重要的特征是由于谐振腔内色散的存在, 群速度与相速度不一致, 载波在腔内往返一次并不会完全重复与原包络的相同的相位关系, 而会产生一个相位差 $\Delta\phi$, 这种时域上的相位漂移在频域上的表现为各纵模分量会沿着固定的方向产生频率偏移, 称为载波包络偏移频率 f_{ceo} ,

$$f_{\text{ceo}} = \frac{\Delta\phi}{2\pi} f_{\text{rep}} \quad (1.4)$$

因此, 整个光频梳可以被 f_{ceo} 、 f_{rep} 两个参数表示:

$$f_m = f_{\text{ceo}} + m f_{\text{rep}} \quad (1.5)$$

其中, m 为正整数, 代表光频梳中的第 m 根梳齿。当 f_{ceo} 、 f_{rep} 被确定之后, 光频梳在频率空间就如尺子一样, 每根梳齿具有确定的频率(刻度), 通过记录未知频率与梳齿之间的拍频信号就可以确定在光频梳范围内的任何未知频率大小。

重复频率 f_{rep} 可以通过超快光电二极管测量, 对于 THz QCL 光频梳, 只要做好高频信号阻抗匹配, 再辅以低噪放大器等微波器件, 采用电学拍频方法就可以获得高信噪比的 f_{rep} 。相比较而言, f_{ceo} 的测试要困难的许多。 f_{ceo} 频率常采用自参考方法 (f to $2f$ self-referencing, $f-2f$) 测量, 如图1.17所示, 其原理可以简单的描述为在光频梳的低频段选取一根梳齿 f_n 并将其二倍频:

$$2f_n = 2f_{\text{ceo}} + 2n f_{\text{rep}} \quad (1.6)$$

另选取第 $2n$ 根梳齿 f_{2n} :

$$f_{2n} = f_{\text{ceo}} + 2n f_{\text{rep}} \quad (1.7)$$

与 $2f_n$ 混频即可得到 f_{ceo} , 并采用机械伺服器、色散补偿器等实现频率稳定^[141,142]。这种方法对光频梳的谱宽具有非常高的要求, 因为原理上至少为倍频程的光频

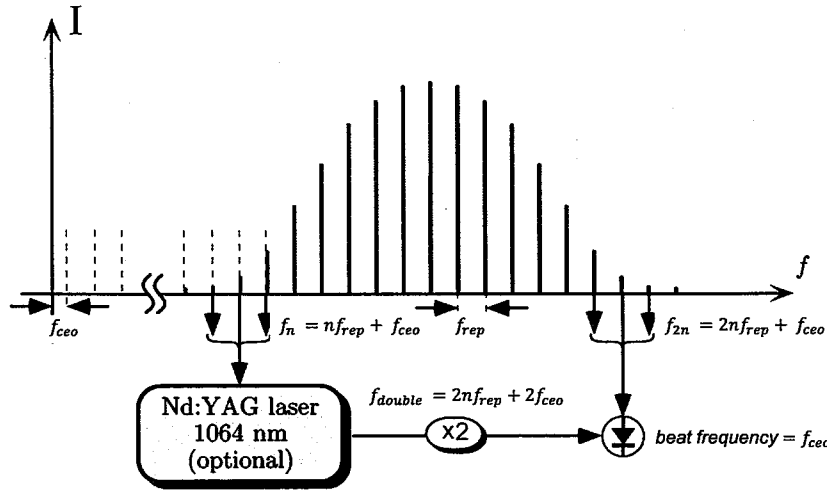


图 1.17 自参考方法获得载波包络偏移频率示意图，其中 Nd:YAG 激光器作为可选件，用于辅助产生二倍频^[140]

Figure 1.17 The f to $2f$ self-referencing method, in which Nd: YAG laser is used as an option to assist in generating the second harmonic $2f$ ^[140]

梳才能通过 $f-2f$ 方法得到 f_{ceo} 并实现锁定。从这个意义上讲，只有实现倍频程及以上的超宽谱覆盖锁模激光器才能称之为光频梳。但是值得注意的是，并非所有光频梳的应用都需要测量 f_{ceo} ，例如，在一些光谱学应用中并非依赖于 f_{ceo} 获得相关测量结果^[136,143]。另外，作为 THz QCL，设计具有倍频程超宽增益的有源区结构和在超过倍频程的光谱中实现光频梳都是极其困难的，其中涉及复杂的子带微带设计、色散补偿结构设计等。因此，本文认为处于锁模状态的 THz QCL 等同于实现太赫兹光频梳。至于 f_{ceo} 锁定的问题，在 THz QCL 光频梳中可以通过双光梳技术绕过 f_{ceo} 的提取、锁定，利用光频梳光谱与双光梳光谱之间的关系、各梳齿之间的强相干性，直接对梳齿进行锁定，进而实现整个光谱的锁定。有关此部分内容，将在第5章详细说明。

1.3.1 太赫兹光频梳的实现方式

强相干性是光频梳的一个重要特点，即各纵模模式相位固定。THz QCL 自发辐射产生的激光模式是互不相干的，因此实现 THz QCL 光频梳的一个思路是用相位关系固定的 THz 脉冲作为种子注入到 THz QCL 中，取代无相位关系的自发辐射。2010 年 Oustinov 等人报道了以飞秒激光产生相干的太赫兹脉冲作为种子实现 THz QCL 强相干辐射。实验装置如图1.18(a)所示，飞秒激光器产生的超短脉冲一方面用来激发电二极管产生脉冲电流，该脉冲电流经过放大器之

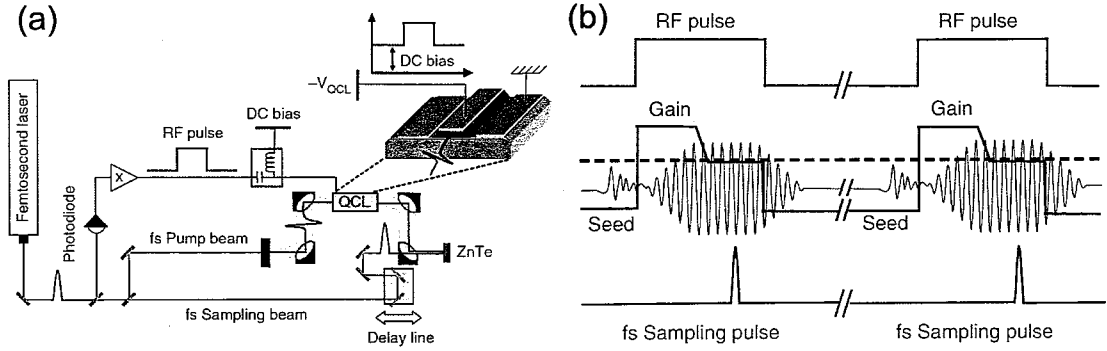


图 1.18 (a) 相位种子注入技术实验装置。(b) 种子激光注入 THz QCL 中产生太赫兹相干辐射过程^[144]

Figure 1.18 (a) The experimental setup of phase seeding of a THz QCL (b) The process of THz QCL generated coherent radiation by phase seeding^[144]

后与直流偏置通过 T 型偏置器 (Bias-T) 一同电泵浦 THz QCL; 另一方面超短脉冲经过光电导天线产生相干太赫兹辐射, 经过离轴抛物面镜耦合进 THz QCL 中, 作为种子脉冲取代自发辐射。另外该实验装置同时集成了测量 THz QCL 时域脉冲的装置: 除激发电二极管的部分飞秒超短脉冲之外, 剩余的飞秒激光再次一分为二, 一部分用于泵浦光电导天线, 剩余的经过延迟线后由离轴抛物面镜汇聚到 ZnTe 晶体上, 同时汇聚到 ZnTe 晶体的还有 THz QCL 辐射的相干太赫兹脉冲, 通过电光取样法 (electro-optic sampling) 将太赫兹脉冲在时域上绘制出来。图 1.18(b) 简单描述了相位种子注入技术产生太赫兹波的过程: 当 THz QCL 增益低于阈值时, 相干的太赫兹脉冲被注入到 THz QCL 中, 几乎同时 THz QCL 施加脉冲电压, 使增益大于阈值。由于初始状态下 QCL 谐振腔中没有激光场, 不受钳制效应的限制, 种子脉冲和腔内的自发辐射都会被增益, 直到增益饱和。如果注入的太赫兹种子脉冲场强大于自发辐射, 则最终只有种子脉冲会被放大, 实现 THz QCL 直接强相干辐射^[144]。这种方式的好处在于无需有源反馈、激光稳定机制就可以直接实现 THz QCL 强相干辐射, 可认为直接以光频梳状态工作, 而且提供了测试 THz QCL 时域脉宽的便利, 但是其缺点也是显而易见的, 由图 1.18(a) 可以看出, 系统中需要飞秒激光器、光电二极管、光电导天线等, 结构复杂, 并没有发挥 THz QCL 结构紧凑的优势。

上文提到, 处于锁模状态的 THz QCL 可认为是以光频梳模式工作, 因此实现 THz QCL 光频梳的另一个重要思路是 THz QCL 锁模。目前主要有两种方式: 主动锁模, 被动锁模。前者是将 THz QCL 腔内增益或损耗调制在谐振腔往返频

率上, 后者是利用可饱和吸收体对脉冲信号进行修正。

在 THz QCL 中常采用射频 (radio frequency, RF) 注入锁定技术实现主动锁模, 在激光腔中引入一定功率的 RF 信号, 频率等于激光腔中的光子的往返频率, 即光频梳中的 f_{rep} [86,111,145,146]。从频域角度更便于理解, 在没有外加调制的情况下, 由于激光器受工作温度、偏置电压等无规则扰动, 谐振腔有效折射率会发生变化, 进而会导致的 f_{rep} 随之发生振荡, 此时激光器处于非锁模状态。当频率等于谐振腔光子往返频率的 RF 信号注入谐振腔中后, 一方面可以稳定其腔内光子的往返频率, 将频域上的各纵模之间的间隙完全锁定为 f_{rep} , 提高频率的稳定性, 另一方面可以在有源区增益谱范围内激发更多的纵模突破阈值, 在时域上缩短脉宽, 实现锁模。通过改变注入 RF 功率的大小, 可以调制信号在时域上的脉宽, 甚至可以通过改变注入 RF 频率, 在非共振情况下同样实现激光器多纵模激励 [146]。因此 RF 注入锁定技术是一种十分灵活的锁模方式。

1989 年 Bowers 等人首次将射频注入技术应用于激光二极管的主动锁模 [147], 但是激光二极管的上激励能级电子寿命很长 (ns 量级), 所以其调制响应曲线存在共振弛豫峰。共振弛豫可以简单理解为当泵浦条件 (如偏置电压) 发生变化时, 受激辐射和饱和增益引起的反转粒子数通过阻尼振荡慢慢趋近于稳态。这种共振弛豫的现象限制了激光二极管的调制带宽。而对于 THz QCL——子带间跃迁的单极性半导体激光器, 其上激励能级电子寿命非常短 (ps 量级 [148]), 载流子趋于平衡的过程主要依靠声子散射, 这是一个过阻尼、强衰减的超快过程, 因此 THz QCL 在调制响应曲线中不存在共振弛豫峰, 采用射频注入技术具有天然的优势 [149]。上述仅能说明 THz QCL 有源区可以被很高频率的 RF 所调制, 但是并非等同于 THz QCL 器件, 其中重要的影响因素是 THz QCL 实际制作工艺中引入的寄生电容以及器件与高频同轴线缆之间阻抗匹配等。有关 THz QCL 寄生参数对 RF 注入主动调制的影响及调制特性的改善是本文的重点之一, 具体内容将在第2章详细说明。

在阻抗匹配方面, 2017 年中科院上海微系统所 Gu 等人采用同一批工艺封装了两个相同尺寸的半绝缘表面等离子体波导 THz QCL, 分别在液氮制冷器和低温探针台中测量器件的微波整流曲线, 即调制响应特性。测试结果如图1.19所示, 在低温探针台中, 探针直接接触 THz QCL 上电极, 器件的调制频率达到 11.5 GHz (3 dB 带宽), 而在液氮制冷器中, 由于金丝键合引起的电感, 3 dB 带宽仅

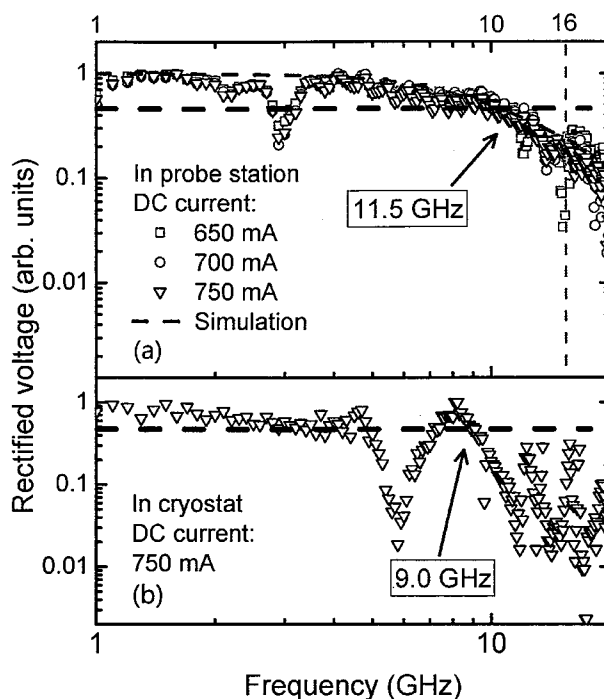


图 1.19 (a) 在低温探针台中的 THz QCL 调制响应曲线。(b) 在液氮制冷器中的 THz QCL 调制响应曲线^[150]

Figure 1.19 (a) Rectified voltage signal of THz QCL in a probe station (b) Rectified voltage signal of THz QCL in a cryostat^[150]

为 9 GHz，另外在 6 GHz 附近，出现很大的凹陷，这是由于高频同轴线缆与 THz QCL 阻抗不匹配引起的界面强反射。通过网络矢量分析仪对 THz QCL 的 S11 参数测试，得到器件在往返频率附近的阻抗，根据该阻抗值即可设计阻抗匹配器，从而减小外部电路对 RF 注入锁定调制的影响^[150]。有关 RF 射频锁定技术最新的进展是 2017 年 Wan 等人利用该技术对半绝缘表面等离子体波导 THz QCL 进行主动锁模，实现 330 GHz 的匀质宽谱，纵模模式由无注入锁定的 15 个增加到 44 个，该指标成为 BTC 有源区结构 THz QCL 的世界纪录，并将此运用到氨气气体检测中^[86]。2019 年奥地利固态电子技术研究所的 Schwarz 等人采用该技术不仅实现了 THz QCL 光频梳，还针对此技术在改善光反馈等方面做了深入研究^[151]。

实现锁模的另一种方式是被动锁模，作为一种无源的方案，其最突出的优势是无需 RF 等有源信号的干预，结构更紧凑，同时在时域上具有更窄的脉宽。在 RF 注入锁定中，调制信号的脉宽在很大程度上限制了 THz QCL 的时域脉宽。具体而言，Ippen 提出主动锁模能够实现的最窄脉宽 $1/\sqrt{\omega_g}$ ，而被动锁模所能达到

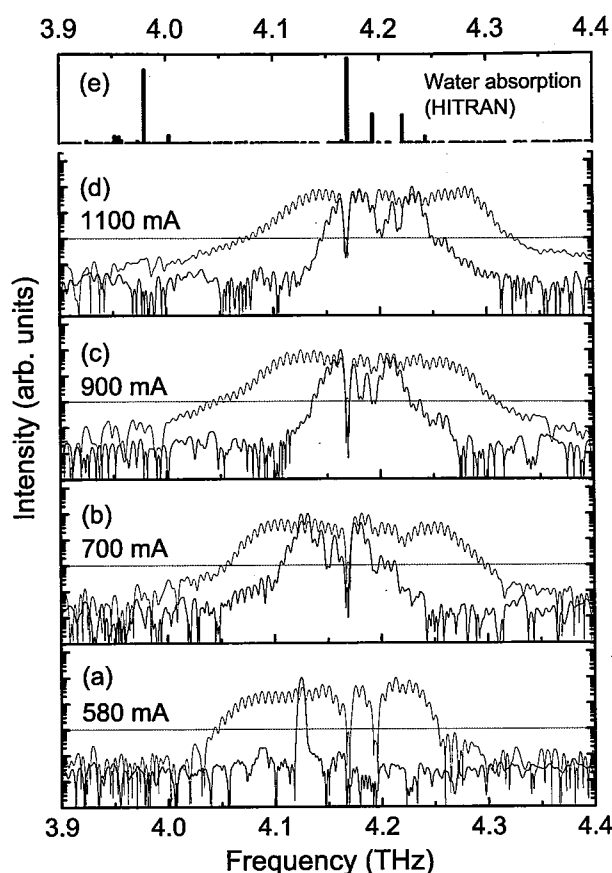


图 1.20 在不同状态下 THz QCL 发射谱，其中被 RF 注入锁定的为红色，自由运行的为黑色。(a) - (d) 代表不同驱动电流。(e) 是该波段内的水汽吸收峰^[86]

Figure 1.20 The THz QCL emission spectra under RF injection locked (red) and free-running (black), measured at different current. (e) The water absorption line in the range from 3.9 to 4.4 THz.

的最窄脉宽为 $1/\omega_g$ ，其中 ω_g 代表 THz QCL 增益谱宽^[152]。集成可饱和吸收体是实现被动锁模最常用的方法。我们从时域的角度简单阐明可饱和吸收实现锁模的原理。锁模激光器的重要特征是时域上的超短脉冲。在激光谐振腔中插入可饱和吸收体后，腔内脉冲需多次经过吸收体方能突破阈值实现激射。而每次经过时，吸收体会对脉冲中的弱信号有较大的吸收，而强的尖峰信号却衰减很小。如果吸收体的吸收高能级寿命远远小于脉冲在腔内的往返时间，则在将脉冲经过吸收体之后，透过率很快下降，仍保持对弱信号较大的损耗。经过多次振荡，强弱信号经受同样的有源区增益和相差悬殊的吸收体损耗，其结果是强脉冲形成固定振荡，而弱信号被吸收殆尽，实质对脉冲实现短脉冲修正。采用可饱和吸收体实现被动锁模的关键是寻找在太赫兹波段具有强非线性的物质。2018 年 Li 等人

创新性的设计了一种集成多层石墨烯的可饱和吸收反射镜（Graphene-integrated saturable absorption mirror, GiSAM），首次实现 THz QCL 被动锁模。GiSAM 方案如图1.21(a)所示，15 层石墨烯材料以去耦合方式堆叠在 0.3 mm 厚度的 Si 衬底上，具有半透半反特性的高阻 Si 一方面作为腔面反射镜，形成外谐振腔结构；另一方面作为多层石墨烯的衬底。通过 Z 扫描（z-scan）技术，石墨烯在太赫兹波段呈现明显的饱和吸收特性如图1.21(b)所示。通过图1.21(c)所示的泵浦探测技术，得到 THz QCL 光频梳的时域信号，脉宽为 16 ps^[153]。

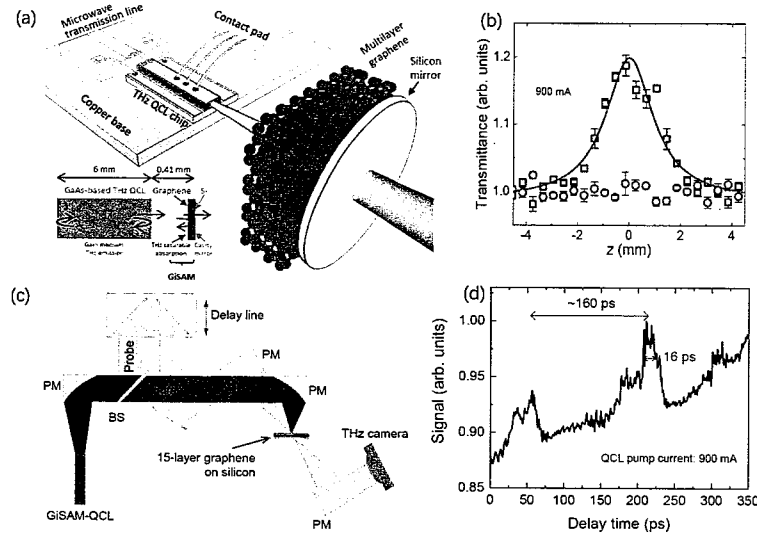


图 1.21 (a) 集成多层石墨烯的可饱和吸收反射镜的 THz QCL (b) 石墨烯可饱和吸收效应 (c) 泵浦探测光路示意图 (d) THz QCL 光频梳时域信号脉宽^[153]

Figure 1.21 (a) Schematic of GiSAM (b) Normalized transmission of graphene saturable absorber (c) Experimental setup of THz pump-probe (d) The THz pulse width is measured in time domain^[153]

以锁模激光器的思路实现 THz QCL 光频梳，不得不引入复杂的光学或电学设计。激光器自由运行模式时就能实现光频梳操作，这对实际的应用更有意义。在自由运行的中红外 QCL 中，已经证实当腔内色散足够低的时候，可由非线性腔体引起的四波混频（four-wave mixing, FWM）机制实现光频梳^[155,156]。这种机制与微谐振腔光频梳（科尔光频梳或微光频梳）^[154]十分类似，我们以此为例介绍 FWM 主导形成光频梳的过程。图1.22(a)是微腔光频梳的典型模型，可调谐连续波激光器发出的单一频率的光经过光学放大器之后进入高 Q 值微谐振腔，其中该单频光的频率等于微谐振腔的一个腔模，由该谐振腔的非线性（ $\chi^{(3)}$ ）触发 FWM，进而产生光频梳。首先该单频光因简并四波混频在其左右间隔 f_r 处产

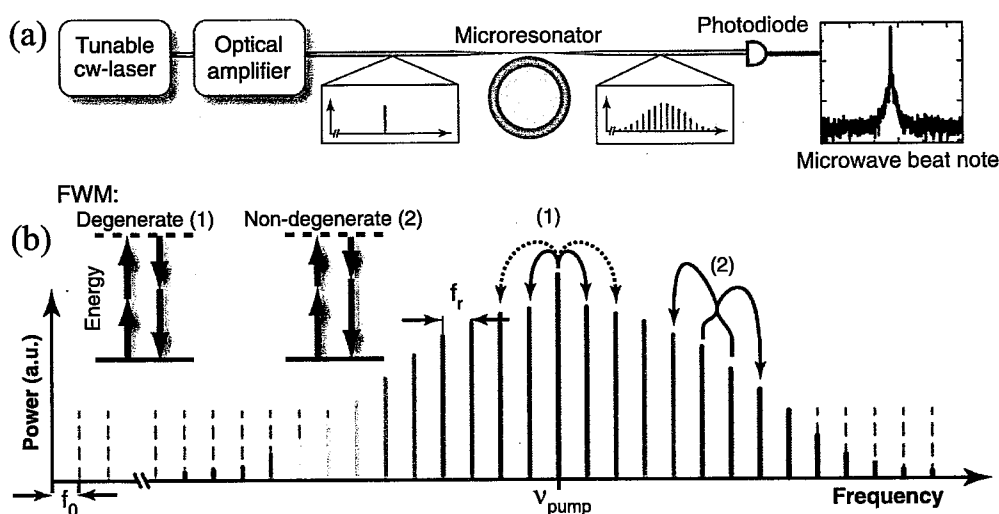


图 1.22 (a) 微腔光频梳典型构成 (b) 四波混频形成光频梳过程^[154]

Figure 1.22 (a) Schematics of the microresonator comb. (b) How the FWM mechanism generates the comb^[154]

生边模（如图1.22(b)中(1)所示过程），随后非简并四波混频负责其余边模产生（图1.22(b)中(2)所示过程）。因为FWM过程严格遵循能量守恒，因此产生的所有模式都具有相等的间隔，即所有模式构成光频梳。但是这个过程同时受到微谐振腔色散的影响，上述过程若发生在无色散的理想情况下，FWM产生的边模与微谐振腔的腔模重叠，该过程处于被谐振加强的状态。但如果在有色散干扰的情况下，FWM产生的边模无法与腔模匹配，对最终光频梳的产生具有非常大的影响。在QCL中（无论是中红外还是THz），与微谐振腔光频梳最大的不同在于没有外部泵浦激光以实现初始的简并四波混频过程。取而代之的是QCL在电泵浦下对自发辐射的激光进行增益，由于空间烧孔效应，在自由运行下的激光器多模激射。那么，在QCL中FWM是如何形成光频梳？

针对QCL中FWM主导形成光频梳的理论还在不断修正，但是目前被广泛接受的一种解释是基于注入锁定提出的。图1.23描述了FWM产生边带实现注入锁定的过程。在图(a)中，QCL以多纵模方式激射，由于空间烧孔的不均匀性及色散的影响，各纵模之间的间距是随机变化的，即此时QCL为非锁定状态。在图(b)中，由于QCL有源区具有强非线性，纵模会因FWM产生边带，请注意，由FWM产生的边带因为能量守恒所以间距相等。当产生的边带处于腔模的带宽中，就会修正初始模式，最终实现全部模式的锁定。但是这种过程形成光频梳的模式间距并非一定等于谐振腔的往返频率，而是由初始腔模的带宽决定，如图

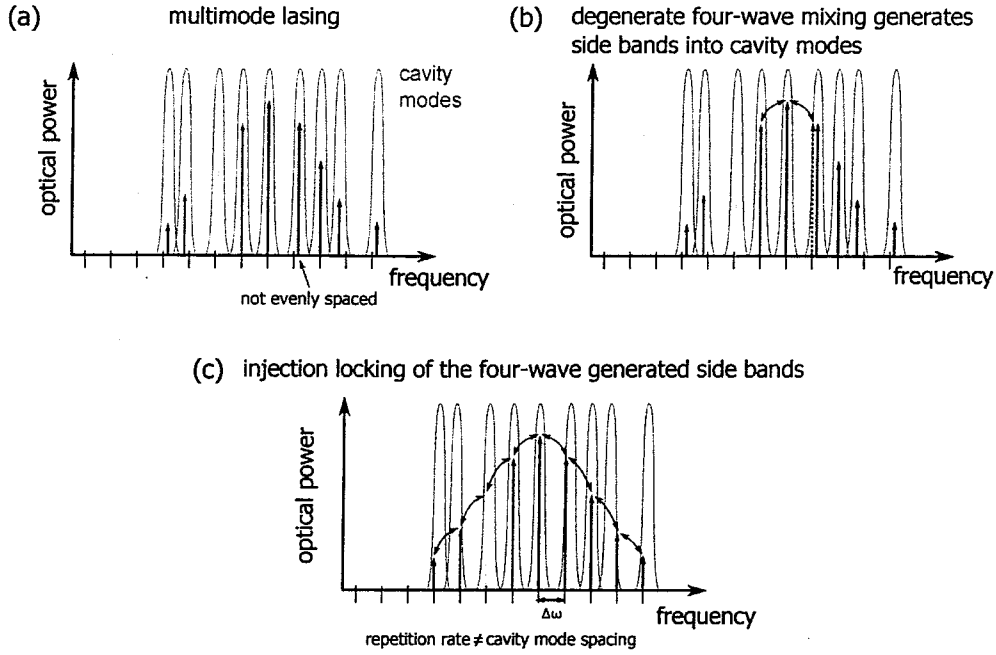


图 1.23 (a) QCL 多模激射状态 (b) 简并四波混频产生边带，该边带频率在腔模带宽之内
(c) 四波混频产生的边带锁定各纵模^[154]

Figure 1.23 (a) QCL lases multimodes in freerunning mode (b) FWM generates side bands into cavity modes (c) The side bands from FWM lock the cavity modes

(c) 所示。图1.23仅表示了最简单的情形，在实际中复杂的多。理论上每一根纵模都可以由简并四波混频产生边带，而每两个纵模也可以由非简并四波混频产生边带，最终激光器只能以一个固定的模式间距实现稳定激射，经过复杂的竞争之后方能达到稳态，而这种暂时的稳态也可能被增益的变化打破。

根据注入锁定理论，FWM 形成光频梳的关键是产生的边带位于腔模的带宽之内。一方面我们可以通过增加腔模的锁定范围 Δf 。由公式：

$$\Delta f \propto \frac{\kappa f_{\text{FSR}}}{2\pi^2} \sqrt{\frac{I_{\text{FWM}}}{I_{\text{cavity}}}} \quad (1.8)$$

其中 κ 是耦合系数， f_{FSR} 指模式间距， I_{FWM} 、 I_{cavity} 分别代表 FWM 产生的边带强度和原始纵模强度。提高 FWM 产生的边带强度可以扩大锁定范围，换言之，需要 QCL 有源区具有强非线性（高 $\chi^{(3)}$ 系数）。另一方面如果谐振腔中的色散较大，FWM 在 QCL 中形成光频梳会受到很大限制^[157]。本文中讨论的色散特指群速度色散（group velocity dispersion, GVD）。色散即折射率随频率发生变化，当频谱覆盖范围较大时，相邻两个模式之间的间距就会发生变化，从而导致无法形成宽谱光频梳^[158]。

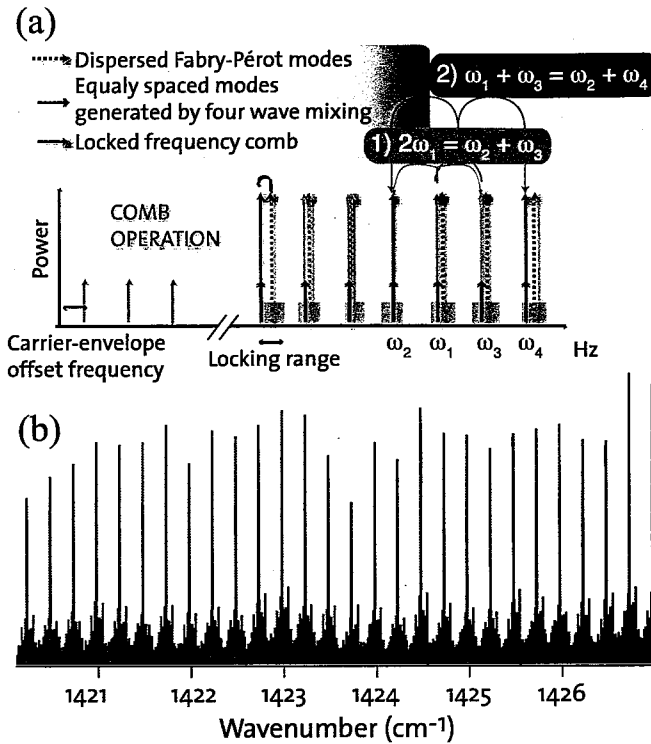


图 1.24 (a) 色散引起的非均匀分布的纵模被四波混频产生的边带注入锁定 (b) 四波混频锁模激光器的光谱, 频谱覆盖范围超过 60 cm^{-1} [155,157]

Figure 1.24 (a) The dispersed cavity modes is locked by FWM mechanism (b) The spectrum of the FWM MIR QCL comb [155,157]

在中红外 QCL 中, 色散理论发展迅速, 基于 FWM 的光频梳在 2002 年已经研制成功。如图 1.24 所示, Faist 等人通过对中红外 QCL 的色散设计, 实现频谱覆盖范围超过 60 cm^{-1} 的宽谱覆盖 [155]。对于 THz QCL 而言, 研究中主要集中在系统色散的理论计算和色散补偿结构设计。2014 年 Faist 等人针对 THz QCL 光频梳的色散研究指出, 增益介质、子带间电子跃迁吸收和波导损耗是色散的主要成因 [82]。2019 年中科院上海微系统所 Zhou 等人分别针对双面金属波导和半绝缘表面等离子体波导两种结构进行色散计算。特别的, 利用有限元仿真表明较窄的脊条宽度会导致器件衬底中出现高阶模, 破坏了原有的本征模式分布, 从而使器件的波导损耗发生振荡, 造成较大色散 [159]。在色散补偿结构方面, 目前主要有啁啾反射镜 (double-chirped mirrors, DCM) [156] 和 Gires-Tournois 干涉仪 (GTI) 两种结构 [157,160]。无论哪种色散补偿结构, 其基本的原理都是利用补偿结构的色散变化与有源区的相反, 从而抑制色散对光频梳产生的影响。如图 1.25(a) 所示, 是啁啾反射镜的典型结构, 其实现的方法是在双面金属波导结构波导的一端制

作啁啾分布的布拉格反射镜。当脉冲在该结构中传输时，长波长的分量（具有较高的群速度）传播到该结构的尽头才能发生发射，而短波长分量则会更早的发生反射，相当于针对不同波长巧妙的改变了谐振腔的长度，进而实现色散补偿。虽然该结构在此之前已经应用在近红外和可见光波段^[161]，但是该小组提出的方案更进一步的将结构直接集成在双面金属波导之上，而不是作为一个分离的单元。图1.26(b) 是 GTI 的典型结构，其特点是在谐振腔的一端集成具有不同反射率的短腔，一般而言其前端面具有较低的反射率（如图中为 0.1），后端面具有较高的反射率（如图中为 1），通过引入与频率相关的相位差异实现色散补偿^[160]。实际上，在图1.21(a) 中提到的 GiSAM 结构中，THz QCL 谐振腔、空气间隙和 Si 之间组成的复杂谐振腔结构，在某种意义上也属于 GTI 结构。

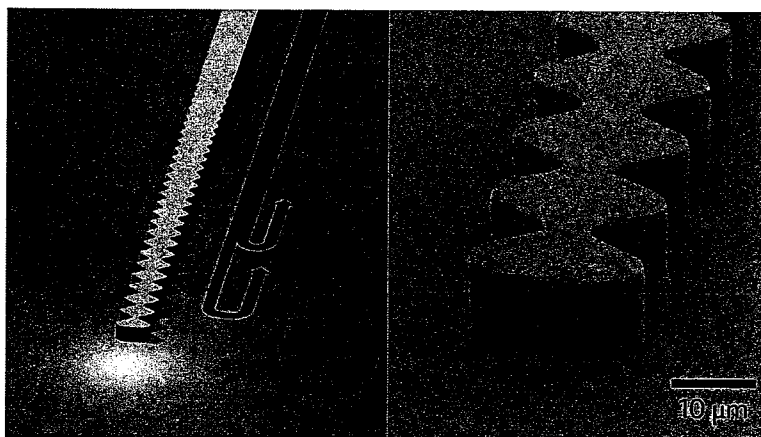


图 1.25 啁啾反射镜色散补偿结构示意图。左，不同频率的波在反射镜结构中不同未知发生反射。右，啁啾反射镜 SEM 图^[156]

Figure 1.25 Schematic diagram of DCM. Left, the longer-wavelength wave reflects later (blue), while the shorter-wavelength reflects earlier (blue). Right, The SEM image^[156]

1.3.2 光频梳的光谱学应用

在分子光谱学应用的大背景下，对太赫兹光谱分辨率、采集时间、信噪比（signal-to-noise, SNR）和频谱覆盖范围等提出了非常高的要求。傅里叶变换红外光谱（fourier transform infrared spectroscopy, FTIR）、太赫兹时域光谱（terahertz time-domain spectroscopy, THz-TDS）技术作为目前最成熟的商用太赫兹成谱手段，在成谱性能进一步提高方面均面临着巨大的挑战，并且这种挑战很大程度上受限于其技术本质——傅里叶时域技术的限制而难以应对。首先上述两种方式都不得不采用机械移动的方式（延迟线）来获取高信噪比时域光谱，将离散化

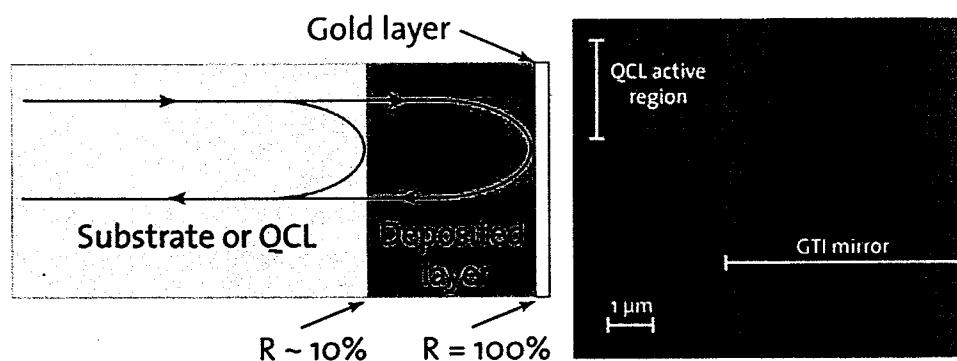


图 1.26 GTI 色散补偿结构示意图。左，GTI 原理示意图。右，SEM 图^[160]

Figure 1.26 GTI for dispersion compensation. Left, The principle of GTI. Right, The SEM image^[160]

的时域曲线经傅里叶变换后获得频谱信息，因此成谱过程需要“扫描”“变换”两个过程，这无可避免的增加了频谱采集时间。在光谱分辨率方面，理论上对于 FTIR 来说可以实现无限高分辨率，但是分辨率与迈克尔逊干涉仪（FTIR 的核心部件）中的动镜位移量成反比，由基本的傅里叶理论可知，距离为 L 的动镜位移量可以获得的分辨率为 $c/2L$ ，其中 c 为光速。目前商用的 FTIR 光谱仪可以实现 MHz 量级的分辨率，但是付出了庞大笨重的设备的代价。FTIR 和 THz-TDS 最大的优势在于具有非常宽谱的覆盖范围，如 Menlo System 公司生产的 TERA K15 型号的 THz-TDS 可以提供大于 5 THz 的带宽和大于 90 dB 的动态范围。

太赫兹光频梳为太赫兹光谱测试提供了新的手段。基于 THz QCL 光频梳的光谱仪具有输出功率大、分辨率高等特点，同时具有较宽的频谱覆盖范围。虽然无法做到宽如 THz-TDS 一样的频谱覆盖，但是基于子带间跃迁结构的有源区具有很大的设计灵活性，几乎可以满足在 1-5 THz 之内任意范围内的激射，在结合实际的光谱检测方案之后，通过更换激光器或调谐等技术，实现超宽谱覆盖并不困难。针对制约 FTIR 和 THz-TDS 发展的输出功率、光谱采集时间、光谱分辨率等问题，THz QCL 光频梳都具有天然的优势。作为一种直接在频域成谱的方式，首先可以摆脱傅里叶变换的计算时间，特别的，双光梳成谱技术甚至可以实现实时成谱，这对 FTIR 和 THz-TDS 来说都是不可能的事情。THz QCL 光频梳光谱分辨率取决于重复频率 f_{rep} ，而重复频率与激光器的腔长成反比，即可通过增加激光器的谐振腔长提高光谱分辨率，目前我们已经实现可见报道的最长 Fabry-Pérot 腔 QCL 光频梳激射，15 mm 对应的重复频率约为 2.48 GHz，该分辨

率已经可以与目前中端 FTIR 和 THz-TDS 设备的分辨率所媲美。但是 15 mm 绝非 THz QCL 谐振腔长的极限, 通过有效的散热设计、均匀电注入、色散工程以及波导结构设计等, 该尺寸可以进一步扩大。定义光频梳的另一个频率 f_{ceo} 同样具有可调谐性, 利用斯塔克效应 (Stark shift) 可实现低于 f_{rep} 频率的调谐, 从这个角度而言, THz QCL 光频梳光谱具有表征出频谱覆盖范围内的任意吸收峰的能力。

Picqué 对光频梳在光谱学中的应用方案做了系统的归纳, 如图 1.27 所示^[132], 大概可以分为五种: 直接利用光频梳光谱技术 (图 a)、拉齐姆光频梳光谱 (图 b) (ramsey-comb spectroscopy)、色散谱仪-光频梳光谱 (图 c)、迈克尔逊干涉-光频梳光谱 (图 d) 和双光梳光谱 (图 e)。但是在太赫兹波段中最具有可行性的是双光梳光谱技术。任何光谱系统中都必须考虑三个重要的元素: 激光源、探测器和频率识别方案。上述基于光频梳提供了多种频率识别方案, 在太赫兹波段中, 探测器的制约也非常重要。由于目前仍缺乏高效、高灵敏度的宽谱探测器, 上述前四种方案都难以有效的从其他波段移植到太赫兹波段。

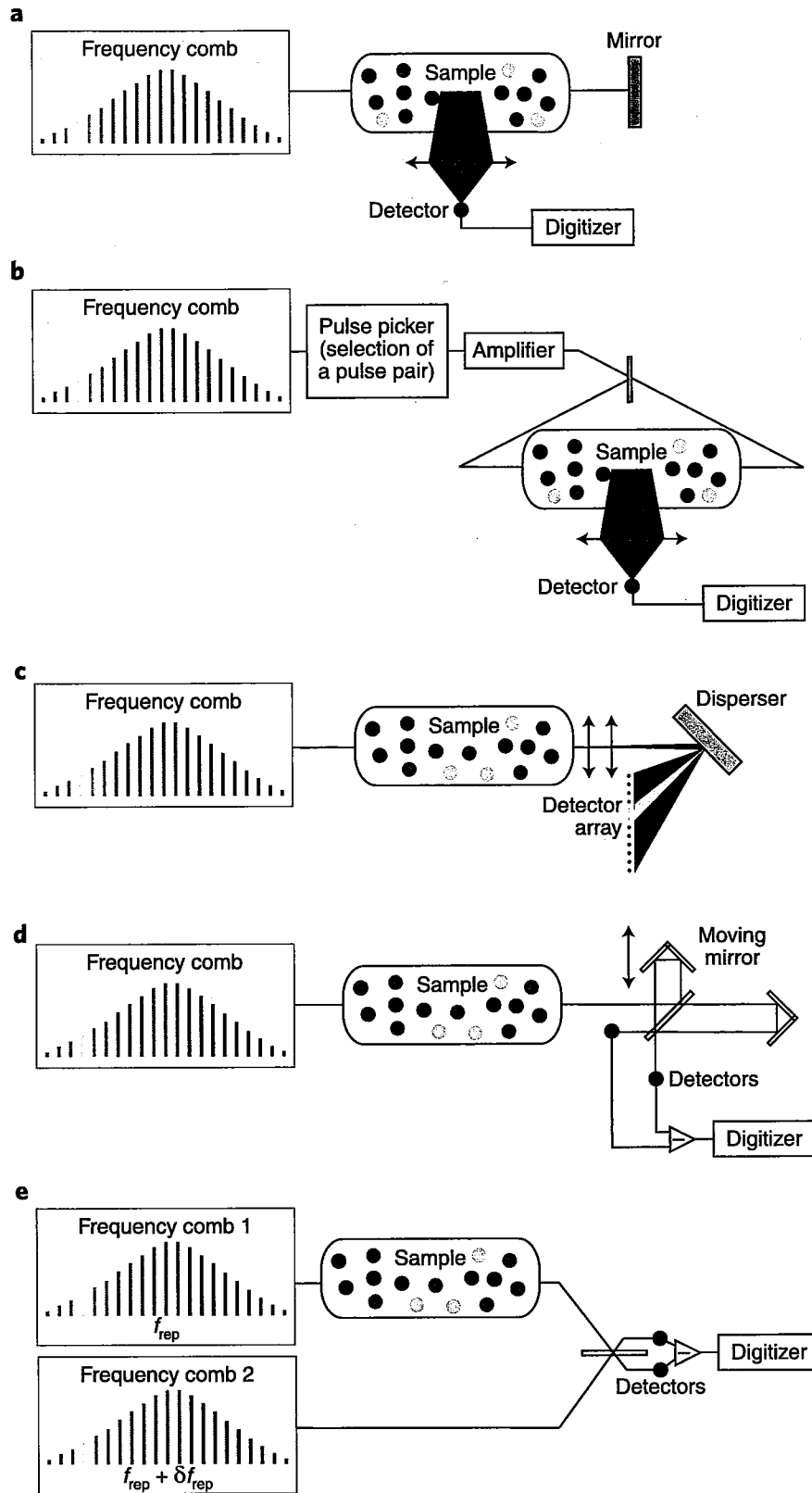


图 1.27 (a) 直接光频梳光谱 (b) 拉齐姆光频梳光谱 (c) 色散谱仪-光频梳光谱 (d) 迈克尔逊干涉-光频梳光谱 (e) 双光梳光谱^[132]

Figure 1.27 (a) Direct frequency comb spectroscopy (b) Ramsey-comb spectroscopy (c) Disperser-frequency comb spectroscopy (d) Michelson interferometer-frequency comb Fourier transform spectroscopy (e) Dual-comb spectroscopy^[132]

1.4 太赫兹双光梳

双光梳光谱方法最初由 Schiller 在 2002 年提出^[162]，其基本构成如图1.27(e)所示。顾名思义，双光梳由两个光频梳构成，这两个光频梳具有相同的频谱覆盖范围，但是具有不同的重复频率。为了表达方便，在本节中光频梳 1 的载波包络偏移频率为 $f_{\text{ceo},1}$ ，重复频率为 $f_{\text{rep},1}$ 。另一个光频梳 2，作为本振 (Local oscillator, LO)，载波包络偏移频率为 $f_{\text{ceo},2}$ ，重复频率为 $f_{\text{rep},2}$ 。假设

$$f_{\text{rep},2} = f_{\text{rep},1} + \delta f_{\text{rep}}$$

其成谱的过程为：光频梳 1 的激光经过样品之后与 LO 的激光相互作用，其拍频信号由快速探测器获得。针对典型的 THz QCL 双光梳系统，探测器将获得一个处于 RF 波段的光频梳。因此双光梳光谱最大的优势除了保留光频梳光谱技术的特点之外，由于独特的频率识别方案而绕过太赫兹波段探测器。

1.4.1 双光梳原理

双光梳的基本原理为多外差光谱检测。我们分别从时域和频域两个角度阐述双光梳光谱技术的原理。

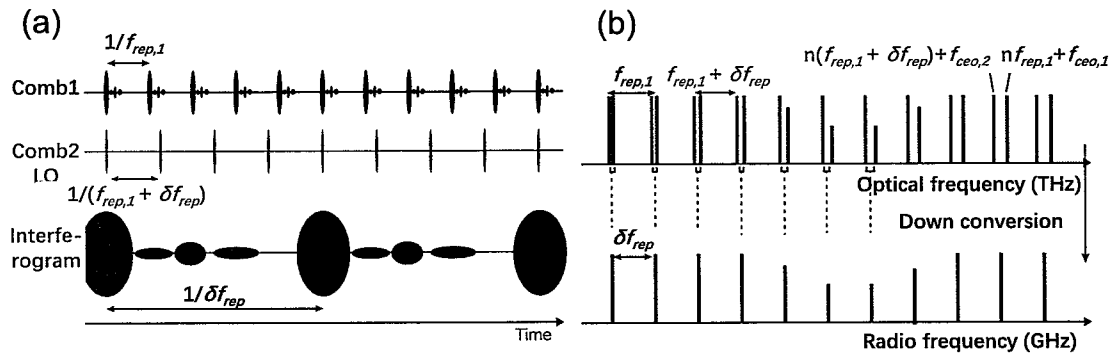


图 1.28 (a) 双光梳时域谱 (b) 双光梳频域谱

Figure 1.28 (a)The time domain of dual-comb (b)The frequency domain of dual-comb

在时域上，光频梳 1 产生的脉冲会以一定的延时与 LO 产生的脉冲发生重叠，并且该延时会以 $\delta f_{\text{rep}}/f_{\text{rep},1}^2$ 在脉冲对中依次叠加。当光频梳 1 的脉冲与待测样品相互作用之后，其重复波形会被 LO 在 0 到 $1/f_{\text{rep},1}$ 光学延迟之间进行周期性的光学采样，并在探测器上获得以时间为函数的干涉信号。周期为 $1/\delta f_{\text{rep},1}$ 的干涉信号通过傅里叶变换就可以得到包含样品吸收信息的光谱。可以看出，作

为多外差探测技术，其过程与 FTIR（或 THz-TDS）过程极为类似，但是双光梳光谱技术至少具有两方面的重要优势：首先在双光梳以一种完全静态的过程实现时域光谱扫描，不存在由移动部件（FTIR 中的动镜）带来的分辨率和采集时间的限制。其次，在探测器上获得的是处于 RF 波段的 GHz 量级信号，成熟的信号采集、放大和分析技术可以有效提高信噪比。

在频域上，光频梳 1 和光频梳 2 可以分别用以下公式定义：

$$f_{n,1} = f_{\text{ceo},1} + n f_{\text{rep}} \quad (1.9)$$

$$f_{m,2} = f_{\text{ceo},2} + m f_{\text{rep},2} \quad (1.10)$$

暂且假设 $n=m$ ，光频梳 1 和光频梳 2 的第 n 根梳齿互相拍频产生的双光梳信号为：

$$f_n = (f_{\text{ceo},1} - f_{\text{ceo},2}) + n \delta f_{\text{rep}} \quad (1.11)$$

可以看出，获得的双光梳信号同样为光频梳，其载波包络偏移频率为 $f_{\text{ceo},1} - f_{\text{ceo},2}$ ，重复频率为 δf_{rep} 。对于典型的 THz QCL 双光梳，该下转换频率通常落在 RF 波段，GHz 量级。因此，采用常规频谱分析仪可以直接观到 THz QCL 的双光梳信号。双光梳信号的每根梳齿的强度与光频梳 1 和光频梳 2 息息相关，如图 1.28(b) 所示，样品吸收的影响导致光频梳 1 的某几根梳齿强度减弱，对应的，在双光梳光谱中也出现了强度的变化。上式的前提是假设 $n=m$ ，即光频梳 1 和光频梳 2 中对应的梳齿产生拍频。实际上，光频梳 1 中的所有梳齿均可以与光频梳 2 产生双光梳信号，即可以在多个载波频率上观察到双光梳信号。

太赫兹双光梳技术实际上是 THz 波段与 RF 波段之间的“桥梁”，通过这座“桥梁”，太赫兹光谱系统摆脱太赫兹探测器的限制，可以采用更加成熟的高速混频器，甚至基于 THz QCL 的自探测技术，无需探测器。另外，THz 波与 RF 的关系是一一对应的，我们称之为双光梳的“溯源性”。依照这种关系，我们甚至可以通过已知太赫兹波段吸收峰的物质实现双光梳与光频梳之间的校准，被校准过的双光梳中的每根梳齿同时代表了太赫兹光频梳梳齿，这样根据频谱分析仪上双光梳光谱强度变化可以直接获得物质在太赫兹波段的吸收峰。当然，双光

梳的原理决定了其光谱是非连续的，但是正如上文中介绍的一样，载波包络偏移频率具有一定的可调谐性，通过调谐其中一个光频梳的载波包络偏移频率，就可以获得无间隙光谱。

双光梳光谱技术具有的高频谱分辨率、快速采集时间（甚至实时采集）、一定的频谱覆盖范围、结构简单紧凑等特点，使其成为测量物质太赫兹光谱最具有潜力的方式。

1.4.2 太赫兹双光梳研究进展

虽然在近红外、中红外波段早已经实现双光梳多外差光谱测试^[163]，但是在太赫兹波段，尤其是基于 THz QCL 双光梳的多外差光谱实验的报道却少得多，目前国际上主要有 MIT 的 Hu^[164]、瑞士苏黎世大学 Faist^[165]、普林斯顿大学的 Wysocki^[166]，国内有中科院上海微系统所在进行相关方面的工作。主要因为用于双光梳多外差光谱系统中的 THz QCL 光频梳需要同时在输出功率、阈值电流、远场光斑、频谱范围、色散等具有优异的性能，当涉及到双光梳系统之后还要在高速太赫兹探测器、低温高速信号提取、太赫兹光路设计、太赫兹光谱分析等多个方面具有一定的科研积累，因此存在较高的技术壁垒。基于 QCL 光频梳的双光梳系统目前主要有 QCL+ 高速探测器（或高速混频器）和片上双光梳两种方案。本小节将重点介绍这两种方案的研究进展和趋势。

THz QCL 本身可以作为探测器，即具有自探测或自混频的能力。自探测是一种非常成熟的技术手段，已广泛运用于自混频成像^[167]、扫频干涉成像^[168]及表征 QCL 性能方面^[169,170]。激光器中电子动力学行为受光子输运的影响^[171]，而 THz QCL 的上激励能级寿命非常短，因此快速的调制可以被反映到驱动电流的变化上。在 THz QCL 双光梳系统中，光频梳 1 的辐射耦合进另一个光频梳 2（在这里我们称之为 LO）中，两个激光器发生多外差混频产生的信号视为对 LO 激光器偏置的快速调制。通过 T 型偏置器可以将这种快速振荡的信号提取出来，该信号就是光频梳 1 与光频梳 2 多外差混频产生的电学 RF 信号，即双光梳信号。此外，也可以同时获取两个光频梳的重复频率（模间拍频信号，beatnote）。

THz QCL 片上双光梳具有代表性的工作是 2016 年 Faist 等人完成的^[172]。结构如图 1.29(a) 所示，两个具有相同物理尺寸（50 $\mu\text{m} \times 1.9 \text{ mm}$ ）的双面金属波导 THz QCL，以 450 μm 间距被制作在同一衬底上，其中 LO comb 不仅连接外部的直流偏置，同时通过 T 型偏置器的 AC 端连接频谱分析仪，而 sample comb 仅

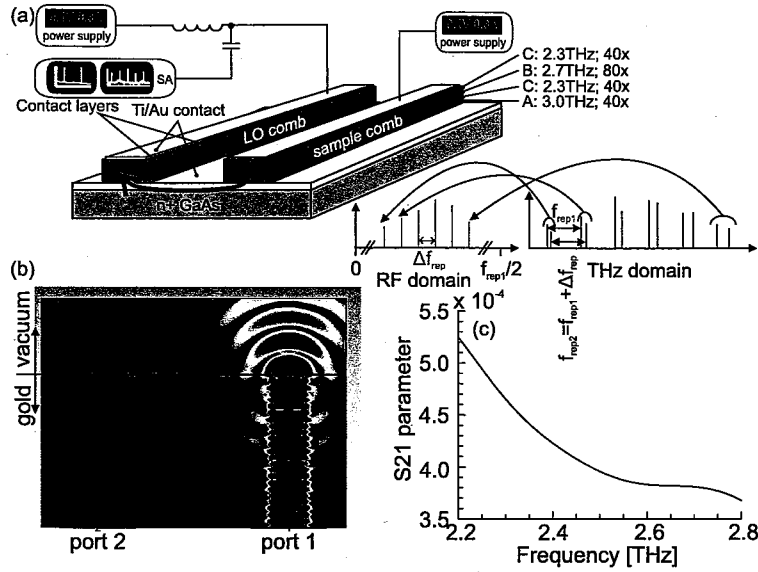


图 1.29 (a) 片上双光梳结构示意图 (b) 有限元仿真片上双光梳电场分布 (c) S21 随仿真频率的变化^[172]

Figure 1.29 (a) Schematics of on-chip dual-comb (b) Finite element simulation of the dual-comb on chip (c) The S21 parameter is displayed indicating the fraction of E-field coupling from port 1 to port 2^[172]

连接直流偏置。根据文章介绍，这两个 THz QCL 光频梳采用同样的宽增益谱有源区结构（多有源区堆叠），在增益中心处有较为平坦的色散曲线，因此可在自由运行下以光频梳模式工作。图 (a) 右下角的插图简单示意了双光梳的形成过程，该过程在本章节图1.4已详细介绍过。图 (b) 是采用有限元仿真工具（CST Microwave Studio）模拟两个光频梳之间的耦合率，其仿真方法有较大参考价值：在 sample comb 的一端注入宽谱（2-3 THz）太赫兹信号，信号沿着波导传播并最终向自由空间发射，根据 LO comb 一端接收的信号强度衡量耦合效率，结果即是仿真软件中计算的 S21 参数。由于该双光梳结构采用双面金属波导，太赫兹信号被严格限制在波导结构中，在 (a) 图中的红色箭头即表示真实的双光梳耦合方式。图 (c) 表示 S21 随频率变化的曲线。在这里计算 S21 参数是十分必要的，因为形成双光梳对两个光频梳频率的要求主要有两点：一是有重叠的频谱范围，保证两个光频梳梳齿之间较强的互相作用；二是重复频率略有不同，如果相同，那么 $\delta f_{\text{rep}} = 0$ ，就无法在下转换的 RF 波段中形成光频梳。重叠的频谱范围由相同的有源区结构天然决定，对于重复频率，可以适当的改变驱动电流，在 THz QCL 中其模间拍频信号信号会随着驱动电流的增加产生红移（red shift）。但是

如果两个光频梳之间的耦合过大,则会产生注入锁定的现象,其效果类似于前文提到的相位种子注入技术^[144],结果使两个光频梳之间完全同步,具有相同的重复频率。但是如果 S21 参数过小,两个光频梳之间耦合率过低甚至无耦合,同样无法产生双光梳信号。关于耦合率的问题,目前所见报道均是采用仿真计算获得 S21 参数,受限于片上双光梳的结构,还无法在实验上反映出耦合率变化对双光梳影响的动态过程。

片上双光梳最大的特点是两个光频梳同时集成在同一衬底上,带来的最大的优势就是利用 THz QCL 自探测技术,无需引入额外的光路系统和探测器,结构更加紧凑。同时两个光频梳共享相同的温度变化,而温度变化会导致模式产生漂移。如果两个光频梳的温度变化同步,原理上可以消除在多外差光谱中温度引起的噪声^[173]。但是对于片上双光梳最大的问题是由于参与多外差光谱的两个 THz QCL 光频梳都在密闭的超低温环境中,光频梳之间的耦合只发生在距离出射端面很近的自由空间中(以双面金属波导为例),这样的结构是不具备对物质进行光谱检测能力的。虽然 Wang 等人在 2014 年基于片上双光梳实现了对物质的高分辨率多外差成谱,但是多外差信号的获取并非依靠 QCL 的自探测技术,而是 MCT 探测器(中红外波段)^[163]。严格来说,并非是片上双光梳系统。

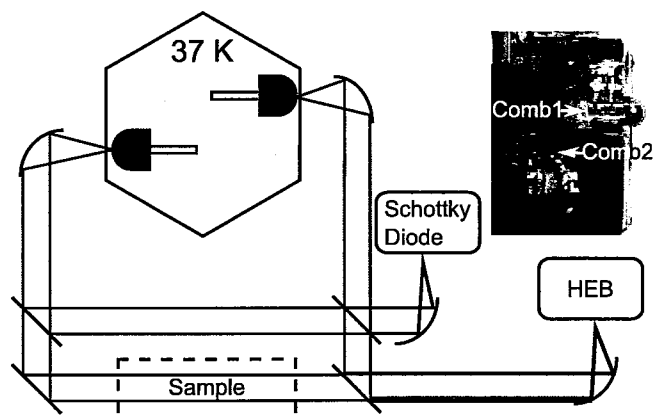


图 1.30 THz QCL 光频梳 + 高速探测器的双光梳成谱方案^[164]

Figure 1.30 Multiheterodyne detection based on THz QCL comb + fast external detector^[164]

目前片上双光梳的主要应用体现在 THz QCL 光频梳的证明。在太赫兹波段缺乏高频谱分辨率的光谱仪,直接证明 THz QCL 光频梳一直是一个难题。虽然较窄的模间拍频信号可以一定程度上说明 THz QCL 以光频梳模式工作,但是这无法反映光频梳梳齿的个数。换言之,窄模间拍频信号是证明光频梳的必要条件而

非充分条件。通过 SWIFT (shifted wave interference fourier transform spectroscopy, SWIFT) 测量可以证明光频梳各梳齿之间的强相干性, 但是该测量需要高速太赫兹探测器, 系统非常复杂^[156]。而片上双光梳系统为间接证明太赫兹光频梳提供了非常简单的方法。双光梳中的每根梳齿的形成需要太赫兹波段梳齿的直接参与, 双光梳的模式数量反映了太赫兹光频梳的模式数, 而双光梳的信号可以被商用频谱分析仪直接获得^[153,159,174]。

图1.30是 Hu 等人在 2016 年报道的基于 THz QCL 光频梳实现多外差光谱的实验装置, 是利用外部高速探测器实现太赫兹双光梳光谱的典型结构。其工作过程大概为: 光频梳 1 (左) 的光频梳信号由离轴抛物面镜准直后被分束镜一分为二, 其中未透过样品的一路信号与光频梳 2 (右) 的光频梳信号一同被肖特基二极管 (schottky diode) 探测, 作为参考信号; 另一路与样品相互作用后与光频梳 2 光频梳信号一同被 HEB (hot electron bolometer, HEB) 探测, 作为样品信号^[164]。肖特基二极管^[175] 和 HEB^[176] 是常用的太赫兹探测器, 具有高速、高灵敏度和高动态范围的特性, 特别适用于在 THz QCL 双光梳多外差光谱系统中。另外太赫兹量子阱探测器 (terahertz quantum well photodetector, THz QWP) 得益于高调制频率及与 THz QCL 良好的频谱匹配性, 逐渐引起人们的关注, 并有望用于 THz QCL 双光梳系统中^[177]。

图1.31(a)(b) 是分别由 HEB 和肖特基二极管测到的多外差信号。HEB 是在液氮制冷的超低温 (4 K) 环境下工作, 具有更好的灵敏度, 相对于肖特基二极管, 其获得的多外差光谱具有更高的信噪比。肖特基二极管最大的优势使可以室温工作, 并且具有较高的线性响应。由此可以看出, THz QCL 双光梳 + 高速探测器的光谱很大程度上受探测器的限制。

Wysocki 等人在太赫兹成像与光谱信息方面有更多的考虑。他们把二维扫描成像与 THz QCL 双光梳多外差成谱技术结合起来, 在二维图像中的每一个像素点同时包含光谱信息, 从而将二维图像转化为包含更多信息的三维超光谱数据体。其双光梳高光谱成像系统如图1.32所示。同样的该系统中光路的汇聚和准直采用硅透镜和离轴抛物面镜, 多外差信号由超导 HEB 收集。利用该系统成功对 α -D-GMH, α -D-LMH 和 LHHM 三种混合物质的固体压盘实现 81×53 像素的高光谱图像^[166]。

THz QCL 双光梳 + 高速探测器方案的优势主要体现在以下几点: 在光路设

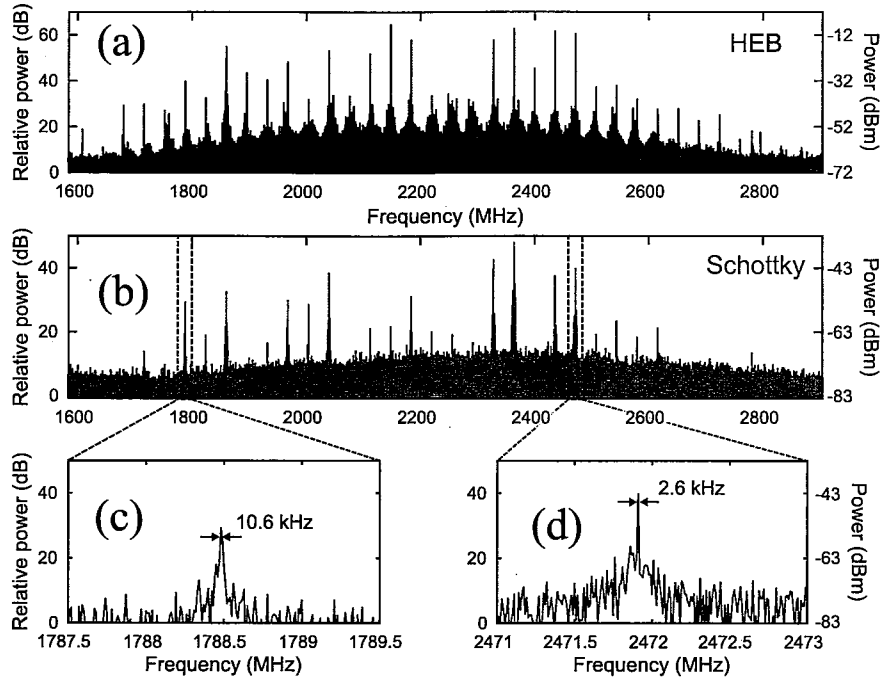
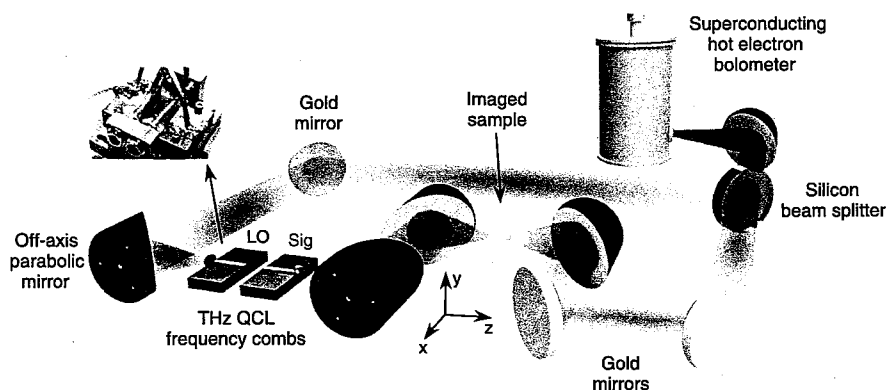


图 1.31 由 HEB (a) 和肖特基二极管 (b) 探测到的多外差信号。其中 (c) (d) 为双光梳信号线宽^[164]

Figure 1.31 Multiheterodyne signal on the HEB (a) and schottky diode (b). (c) and (d) show the linewidth of dual-comb frequency lines^[164]

计上具有更高的灵活性，比如可以参考图1.30中的光路同时获取参考信号和光谱信号，并通过消除共模噪声等进一步减小光谱信号的线宽。也可以参考图1.32中的光路设计，在样品表面获得更高的太赫兹能量密度，从而泵浦出不同相下物质的太赫兹光谱信息^[178]；多外差光谱具有较大的动态范围，因为双光梳的非脉冲特性不容易使探测器发生饱和；在脉冲模式下工作的 THz QCL 可以降低制冷功率的限制，同时结合锁相放大器等获得较高的信噪比。

但是，引入高速探测器必须使用离轴抛物面镜、硅透镜等光学元件形成一定的光路，其光路复杂成度与 THz-TDS 并无太大区别。因此，采用此方案的 THz QCL 双光梳光谱系统体积往往比较庞大。

图 1.32 双光梳高光谱成像系统^[166]Figure 1.32 Dual-comb hyperspectral imaging system^[166]

1.5 论文出发点及内容构成

中国科学院上海微系统与信息技术研究所太赫兹课题组是国内率先开展太赫兹技术研究的科研单位之一，在 2010 年率先自主完成国内第一支 THz QCL^[179]。在关键太赫兹器件的物理、制备、测试以及太赫兹通信、成像、成谱等应用方面有深厚的技术积淀。

本论文的研究对象是束缚态向连续态跃迁与共振声子结合有源区结构^[86,93]、半绝缘表面等离子体波导结构 THz QCL。研究方向为改善 THz QCL 射频调制特性、太赫兹双光梳系统等。研究方法以实验为主，辅以仿真模拟。研究工作包括 THz QCL 波导结构设计、建模仿真、工艺制作、性能表征、主动调制方案设计、双光梳系统设计、双光梳光谱测试应用等，其中工艺部分在本论文中不做具体阐述。

论文组织结构如下：

第二章，提出耦合腔波导结构，提高主动调制效率，在 THz QCL 中激发出更多边带。

第三章，将双射频注入调制技术引入 THz QCL 片上双光梳系统，有效展宽双光梳谱，实现 THz QCL 光频梳中载波包络偏移频率噪声直接测量。

第四章，提出紧凑型分离式双光梳系统，完成基于自探测技术的太赫兹双光梳光谱检测。

第五章，提出电学锁相环稳定双光梳的设想，实现对 THz QCL 光频梳重复频率锁定。

第六章，总结全文工作，提出未来工作方向。

第2章 耦合腔量子级联激光器主动调制

2.1 引言

RF 注入调制技术是半导体激光器产生边带、实现主动锁模非常有效的工具。THz QCL 具有更短的上能级寿命，可以被调制及注入锁定到 GHz 量级的频率。然而 THz QCL 调制频率往往受限于工艺加工过程中引入的寄生参数，通过对其波导结构的电路模型分析，有助于指导进一步提高调制频率和调制效率。

THz QCL 的波导结构于微波传输线结构十分类似，因此，我们可采用传输线理论提取 THz QCL 器件的电路模型，将其等效为电感-电容-电阻的 LRC 电路，其调制特性由电路中等效的电容值、电感值决定。THz QCL 可以看作一个上下电极之间形成的平行板电容器，其电容值与上电极面积成正比，与上下电极之间的距离即有源区的厚度成反比。等效电容值越大，频率响应衰减的越快，电容值越小，3 dB 衰减对应的频率越高，越适合高频调制。而 THz QCL 中有源区的厚度由 MBE 外延决定，无法改变，为了减小等效电容，只有通过减小上电极面积实现。本章节的出发点是通过设计具有更小上电极面积的耦合腔结构，提高 THz QCL 的调制效率和调制频率。

本章节的主要内容如下：首先对所制备的耦合腔 THz QCL 的光-电流-电压特性和不同驱动电流下的光谱进行表征。然后，进行模间拍频测量，根据准单模光谱和电学拍频信号提出高阶横模被激发的假设。为了进一步证明假设，结合仿真和实验数据对远场光斑进行分析。并且基于 THz QCL 有源区强非线性解释电学拍频信号的产生过程。最后，在拍频信号的频率下对耦合腔 THz QCL 进行 RF 注入调制，为 THz QCL 主动锁模提供了一种新的方法。

2.1.1 耦合腔结构

对于红外波段的半导体激光器，利用半导体刻蚀技术将一个 Fabry-Pérot (FP) 腔一分为二得到的两段式耦合腔结构^[180]，已被广泛用于纵模选择，以实现稳定的单模激射^[181–184]，或用于锁模以产生超短脉冲^[185]。在纵模选择应用中，耦合腔中的短腔相当于一个外腔反射镜，可以调制长腔的腔面反射率，从而调制器件的传播损耗实现纵模选择。如图2.1，采用一维传输矩阵计算不同长短腔尺寸的耦合腔损耗调制行为，红色阴影覆盖的区域为有源区增益范围。通过数值计

算,发现耦合腔结构的传播损耗存在周期性的变化,其周期等于短腔的自由光谱范围 (free spectral range, FSR), 腔内纵模之间的间距等于长腔 FSR, 由于 THz QCL 较窄的有源增益带宽, 只有传播损耗最小的模式才能够激发, 因此耦合腔结构常用于单模 THz QCL^[184]。

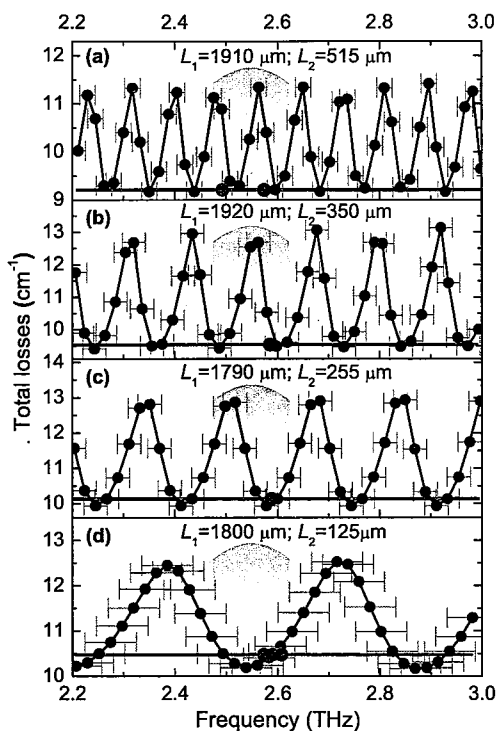


图 2.1 不同长短腔尺寸, 计算得到的耦合腔的损耗调制行为^[184]

Figure 2.1 Total propagation losses for the coupled-cavity lasers^[184]

耦合腔结构在主动锁模应用中, RF 射频调制信号可以仅从短腔注入而不非作用于整个 FP 腔, 这样由于减小了寄生电容从而获得更高的调制效率, 这也是本节的重点研究内容。在被动锁模应用中, 短腔可以通过施加反偏压充当可饱和吸收体的角色, 实现脉冲整形^[186–189]。在色散补偿应用中, 通过在两段谐振腔施加不同的偏压, 实现双独立色散结构, 从而解决偏压导致的色散变化^[190]。另外, 在绪论中介绍的 GTI 色散补偿结构, 同样具有耦合腔的结构特征^[159]。

2.2 耦合腔太赫兹量子级联激光器

在 THz QCL 中引入耦合器结构实现高效 RF 注入调制并非如二极管激光器或中红外 QCL 一样顺利, Li 等人采用耦合腔结构实现单纵模 THz QCL 之后, 曾对短腔进行主动调制。然而, 即使在强 RF 调制下, 耦合腔 THz QCL 仍表现为

单模，没有出现边带或锁模现象^[184]。其主要原因 THz QCL 的有源区增益范围太窄，而短腔调制周期又很小，导致各本征纵模之间的损耗差异很大，仅有极少数被增益的模式处于低损耗状态。我们欲将 THz QCL 在其往返频率上进行调制，换言之，需要 THz QCL 以多纵模的方式激射，采用较宽增益的有源区和最大限度的抑制耦合腔选模机制是必须要考虑的两个要素。^[191]

本章节介绍的耦合腔 THz QCL，其增益区为 BTC 与 PR 相结合的结构，具有较大的增益范围。该有源区多量子阱层共有 76 个周期，每个周期中自下向上依次生长势垒层 ($\text{Al}_{0.15}\text{Ga}_{0.85}$ ，黑体标注)、势阱层 (GaAs)，厚度为 $4/14.4/3.3/16.8/3/7.5/3/8.5/3/9.4/3/11.5/2/13.5/1/23/1/3.7$ ，单位为 nm，其中下划线为掺杂层，掺杂材料 Si，浓度为 11.9×10^{16} 。除多量子阱层之外，在半绝缘衬底上生长 200 nm 的缓冲层 GaAs，以减少衬底表面对外延层的影响，然后生长 200 nm 刻蚀阻挡层 $\text{Al}_{0.55}\text{Ga}_{0.45}\text{As}$ ，该层在 THz QCL 工艺衬底去除步骤中用以保护多量子阱层。 $\text{Al}_{0.55}\text{Ga}_{0.45}\text{As}$ 因为高 Al 组分，与 GaAs 在腐蚀液中反应速率不同，比如在柠檬酸溶液中 GaAs 腐蚀速率快 $\text{Al}_{0.55}\text{Ga}_{0.45}\text{As}$ ，而在 HF 酸溶液中只有 $\text{Al}_{0.55}\text{Ga}_{0.45}\text{As}$ 被腐蚀，而 GaAs 基本不反应。接着生长 400 nm 厚的下接触层 GaAs，该层为重掺杂层，掺杂材料 Si，掺杂浓度 3×10^{18} ，一方面用于与电极形成良好的接触，另一方面在半绝缘表面等离子体波导结构中充当电磁模式限制层。在多量子阱的上面同样需要生长一层同样掺杂浓度的上接触层 GaAs，该层厚度为 50 nm。高掺杂浓度的上接触层如果没有任何其他外延层覆盖的话，会很快被氧化而无法与金属电极形成良好的欧姆接触，为了解决这个问题，通常在上接触层上面生长一层低温 GaAs 层，厚度为 3.5 nm。由于低温生长的 GaAs 具有很高的缺陷态密度，费米能级的钉扎效应会保证上接触层与金属电极接触，所以无需担心该层对欧姆接触的影响。该有源区结构的半绝缘表面等离子体波导 THz QCL，在主动调制下可实现 330 GHz 的匀质光频梳^[86]，该带宽几乎是文献^[184]中激光带宽的两倍。

本章节采用的耦合腔 THz QCL 是基于半绝缘表面等离子体波导波导 FP 腔 THz QCL 制作而成，耦合腔工艺过程如下：FP 腔的波导尺寸为 $200 \mu\text{m} \times 2.5 \text{ mm}$ ，将解理好的 THz QCL 以铜片为介质安装在散热铜热沉上，随后使用金丝键合将上下电极引出用以进行电流驱动。封装完成的 FP 腔 THz QCL 使用聚焦粒子束 (focus ion beam, FIB) 刻蚀深度大于 $12 \mu\text{m}$ 的空气间隙，将上电极连同有源区一

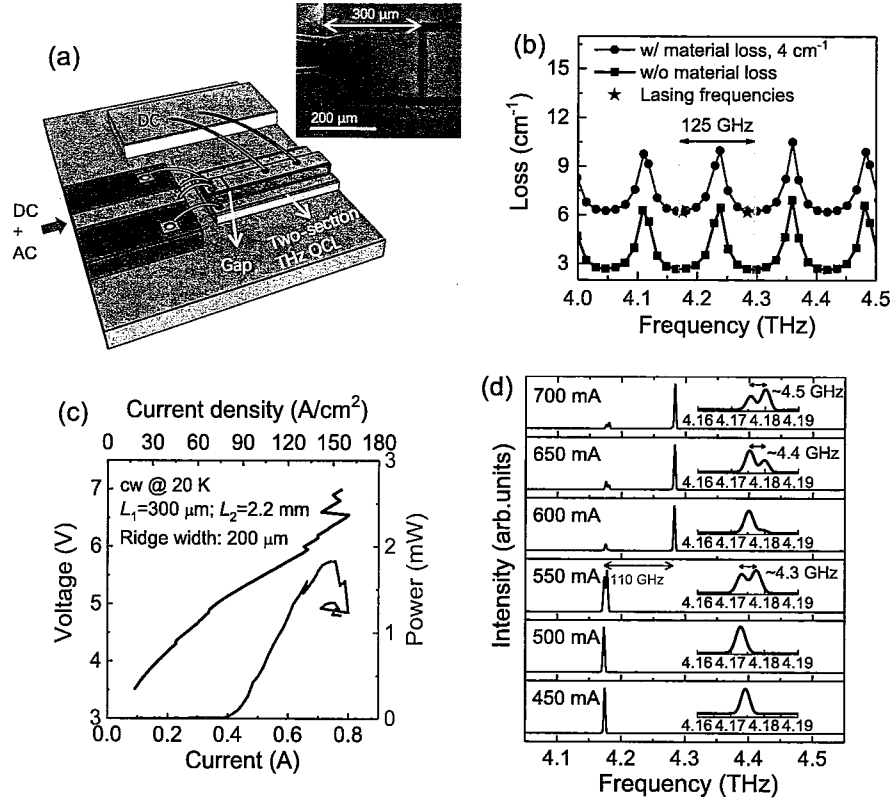


图 2.2 (a) 耦合腔 THz QCL 示意图, 插图为短腔和空气间隙部分的扫描电子显微镜图片
 (b) 采用一维传输矩阵计算耦合腔 THz QCL 传播损耗 (黑色), 绿色损耗曲线为考虑材料损耗常数 4 cm^{-1} 。其中红星标注的地方为 (d) 图中测到的频率。(c) 连续波模式耦合腔 THz QCL 在 20 K 温度下的功率-电流-电压曲线。(d) 耦合腔 THz QCL 在不同电流驱动下的光谱, 工作温度 20 K

Figure 2.2 (a) Schematic of the coupled-cavity THz QCL, the inset is a scanning electron microscope image of the fabricated short cavity and air gap of the laser. (b) Calculated total propagation losses as a function of eigen mode frequency of the coupled-cavity with material loss (green) and without material loss (black). The scatters are the calculated results and the red stars are the measured lasing frequencies obtained from (d). (c) Measured light-current-voltage (L-I-V) characteristic of the coupled-cavity laser in continuous wave (cw) mode at 20 K. (d) Normalized terahertz emission spectra as a function of drive current without RF modulation at 20 K. The insets are magnified spectra to clearly show the spectral degeneracy

分为二，其中短腔 $L1 = 300 \mu\text{m}$ ，长腔 $L2 = 2.2 \text{ mm}$ 。为了实现 RF 的高效注入和电学拍频信号的提取，特意在短腔的后端安装用以实现阻抗匹配的微波传输线。耦合腔 THz QCL 器件结构如图2.2(a)所示，电泵浦方式为 $L2$ 仅施加直流偏置， $L1$ 与微波传输线连接，同时用于射频调制及直流泵浦。在本文中所有的测试中，长短两腔将同时被施加相同的直流偏置，下文不再赘述。

在图2.2(b)中，采用一维传输矩阵^[184]方法分别计算该耦合腔结构在无材料吸收（黑色）和考虑恒定材料吸收 4 cm^{-1} （绿色）的传播损耗曲线。离散的黑点代表由长腔共振决定的本征频率，频率间隔等于长腔的 FSR。耦合腔的传播损耗曲线呈现出由短腔共振引起的周期性变化，周期为 125 GHz ，对应于短腔的 FSR。长短腔的 FSR 计算均遵循以下公式：

$$\text{FSR} = \frac{c}{2Ln} \quad (2.1)$$

其中， c 为光速， n 为 THz QCL 有源区有效折射率， L 为长/短腔长度。本章节认为 $n = 4$ ，该数据来源于文献^[86]中，该文献报道的 6 mm 长 FP 腔半绝缘表面等离子体波导 THz QCL 的电学拍频信号为 6.2 GHz ，由上式反推可得到该外延片的有效折射率。由于激光器增益钳制效应，只有损耗最小的本征频率才能实现激射，如图 (b) 中红星标注的位置，该频率很好的吻合了图 (d) 中利用 FTIR 测试的激射频率。

2.2.1 耦合腔量子级联激光器性能表征

图2.2(c)为本实验采用的耦合腔 THz QCL 在 20 K 温度下连续模式的功率-电流-电压曲线（light-current-voltage, LIV）。在 cw 模式下，该耦合腔 THz QCL 的最大功率为 1.8 mW ，功率由太赫兹功率计（Ophir 3A-p THz）直接测得。由于 THz 波在大气中存在严重的水汽吸收，为了尽可能接近器件的真实辐射功率，在功率测试光路中采用干燥空气或高纯氮气降低损耗，但光路收集效率、离轴抛物面镜反射损耗等因素不可避免，实验测得的功率仍然低于器件的实际功率。

图2.2(d)显示了耦合腔 THz QCL 在自由运行（无任何外部调制）下整个电流动态范围内的太赫兹发射光谱，光谱数据由 FTIR 光谱仪（Bruker v80）测得，光谱分辨率为 0.1 cm^{-1} （ 3 GHz ）。与功率测量类似，为了减少水汽吸收，在 FTIR 腔内保持 2 mbar 真空，在外部耦合光路中采用高纯氮气保持干燥。在 $450\text{--}550$

mA 范围内, 耦合腔 THz QCL 以准单模方式工作, 频率约为 4.17 THz。这是因为当激光器工作在阈值电流附近时, 增益范围很窄, 只有单一的本征频率模式存在在激光器的增益带宽中。随着驱动电流的增加, 由于烧孔效应, 增益曲线蓝移且展宽, 在本器件中表现为激光器转为双模激射, 主要模式蓝移至 4.28 THz。4.17 THz 和 4.28 THz 两个主要频率相差约 110 GHz, 与图 2.2(b) 中具有最小损耗的本征模式 (红星标注) 之间间距 125 GHz 基本吻合, 存在的部分偏差是由于计算中采用的折射率和腔长存在一定的误差。值得注意的是图 (d) 中的插图, 插图为主要模式的放大图, 更能展现出光谱的具体细节。当驱动电流为 550、650、700 mA 时, 可以清楚看到 4.17 THz 频率由两个模式构成, 模式间距为 4.3 GHz, 此频率远远低于长/短腔的 FSR, 因此我们提出该耦合腔 THz QCL 并非以单一的本征模工作, 同时有高阶横模参与。

2.2.2 耦合腔量子级联激光器模间拍频和远场测试

尽管图 2.2(d) 显示在整个电流驱动范围之内, 耦合腔 THz QCL 均以准单模形式工作, 但是受限于 FTIR 的分辨率, 无法对 THz QCL 精细光谱进行表征。同时无法避免因响应率过低导致微弱的纵模无法检测。模间拍频技术是间接反映太赫兹光谱信息的常用方法。当 THz QCL 以多纵模形式工作时, 不同的纵模之间可以相互拍频, 该模间拍频信号可以通过电学或光学 (依靠 THz 高速探测器^[177]) 方法测量。得益于良好的阻抗匹配设计, 本实验选择直接从短腔后的微波传输线中提取模间拍频信号。在具体实施中, 一旦激光器的两个纵模之间的频率差小于测试系统的带宽 (由 T 型偏置器、高频同轴线缆、放大器等最低带宽决定), 拍频信号就可以在 T 型偏置器的 AC 端获取, 同时低噪声放大器、带通滤波器等微波设备有助于获取更大的信噪比, 频谱分析仪 (最大测量范围 26 GHz) 能够灵敏的检测该拍频信号。

对于耦合腔 THz QCL, 如果在 4.17 和 4.28 THz 的两个模式是完全纯净的单模, 那么在频谱分析仪上无法探测到任何拍频信号的。然而, 在图 2.3 中, 整个电流驱动范围之内始终存在两个拍频信号, ~ 4 GHz 和 ~ 8 GHz。根据 FSR 计算公式, 长腔和短腔对应的往返频率分别是 17 GHz 和 125 GHz, 如果是同一横模的多个纵模产生拍频, 在频谱分析仪上至少可以观察到 17 GHz 的信号。在拍频测量中除 ~ 4 GHz 和 ~ 8 GHz 之外并无其他信号, 这意味着耦合腔 THz QCL 几乎是单纵模工作的。那么在拍频信号光谱中得到的信号很显然并非来自同一横

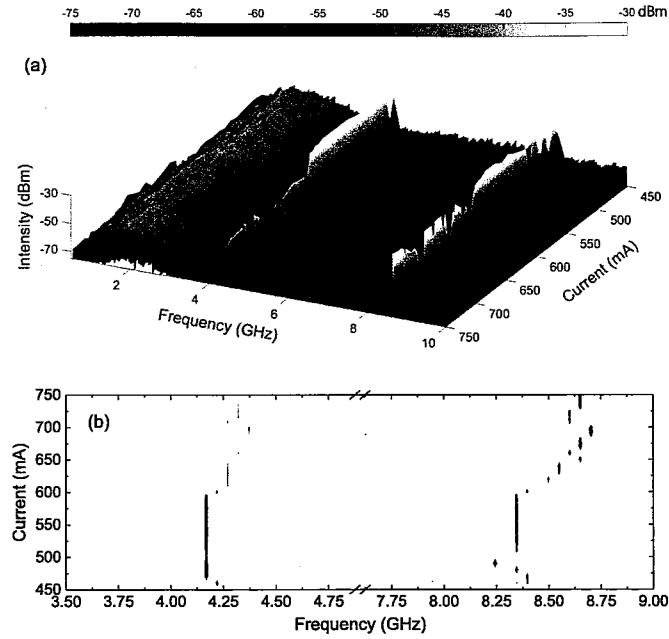


图 2.3 (a) 20 K 下, 耦合腔 THz QCL 自由运行时电学模间拍频信号 (b) 在 4 GHz 和 8 GHz 附近拍频信号随驱动电流的变化。测试中频谱分析仪的频率分辨率 RBW 为 100 kHz, 取 20 次平均值

Figure 2.3 (a) Electrical inter-mode beatnote mapping of the coupled-cavity laser in free running mode at 20 K. (b) Magnified inter-mode beatnote evolutions around 4 and 8 GHz. The resolution bandwidth used in this measurement is 100 kHz and each trace is averaged for 20 times

模, 而是极有可能有高阶横模参与。这与在太赫兹光谱中提出的假设相吻合。在图2.2(d)中显示的两个模式间距也同为 4 GHz 左右, 这两个模式分别来自基横模和高阶横模。另外我们注意到, ~ 8 GHz 的拍频信号始终是 ~ 4 GHz 的两倍, 关于这个信号的产生我们在下文会详细阐述。

在图2.3(b)中, 我们重点关注了两个拍频信号信号随驱动电流变化的趋势。在耦合腔 THz QCL 中, 拍频信号信号随着电流的增加均呈现出明显的蓝移趋势, 这与 FP 腔 THz QCL 中红移趋势完全不同^[86]。我们认为这可能是高阶横模存在的另一个证据。其产生蓝移现象的原因可解释为: 随着驱动电流的增加, 基横模和高阶横模向相反的方向发生偏移, 或高阶横模比基横模具有更快的蓝移速度, 最终导致拍频信号的蓝移现象。

最能直接证明高阶横模存在的是在 THz QCL 远场中出现高阶横模光斑, 因此我们在不同驱动电流下进行远场测量。图2.4(a)显示了在远场光斑图中 α 和 β

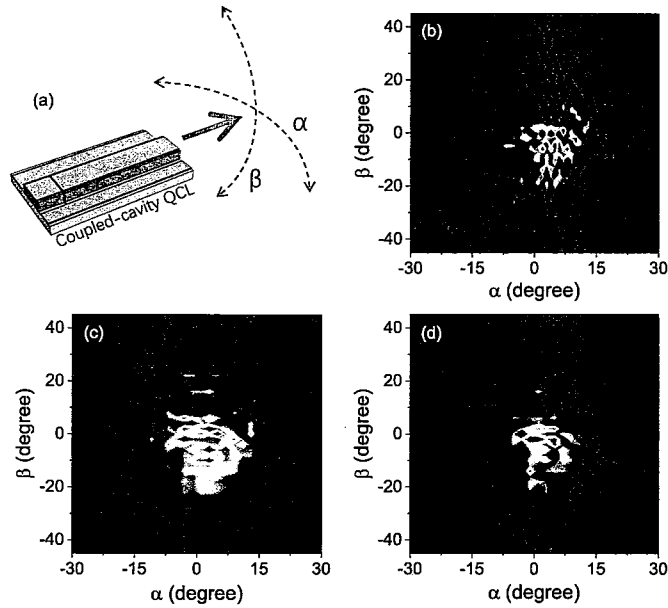


图 2.4 (a) 耦合腔 THz QCL 远场光斑测量中 α 和 β 方向的定义 (b) (c) (d) 分别是 500、600 和 700 mA 驱动电流下的远场光斑图

Figure 2.4 (a) Laser geometry and definitions of α and β directions for the far-field measurements of the coupled-cavity THz QCL. (b),(c)and(d) are the measured far-field beam profiles at 500, 600 and 700 mA, respectively

方向的定义。固定在旋转台上的高速太赫兹探测器 Golay cell 在距离耦合腔 THz QCL 端面 10 cm 的球面上沿 α 和 β 两个方向进行步进式扫描，为了提高空间分辨率，在 Golay cell 受光面制作直径约 1 mm 的针孔。在远场测试中，耦合腔 THz QCL 以脉冲形式工作，为了实现与 Golay cell 联动，对激光器泵浦电源施加以 10 Hz 的慢调制。图2.4(b)(c)(d) 分别时在 500、600 和 700 mA 驱动电流下的远场光斑。理论上，高阶横模与基模之间会存在很强的竞争关系，反映在远场光斑中在 α 方向会出现两个波瓣。然而在图2.4中只存在一个光斑，这其实与我们的假设是相悖的。但是仅以此证明假设不成立是过于武断的，因为远场光斑的测量精度很大程度受限于太赫兹探测器。另外不同于功率和光谱测试，努力营造出干燥的环境。远场光斑测试是在开放的空间中进行，存在严重的水汽吸收。上述两个因素都可能使弱高阶横模光斑无法被探测到。

为了进一步利用远场特性证明高阶横模的存在，我们采用有限元仿真工具绘制了二维 THz QCL 模型的近场电场分布，如图2.5(a)(b) 所示，分别是基模和高阶横模的电场分布情况。通过傅里叶变换，分别绘制出基模和高阶横模的远场光斑，如图2.5(c)(d) 所示。如果耦合腔 THz QCL 仅存在基模或者高阶横模，仿真

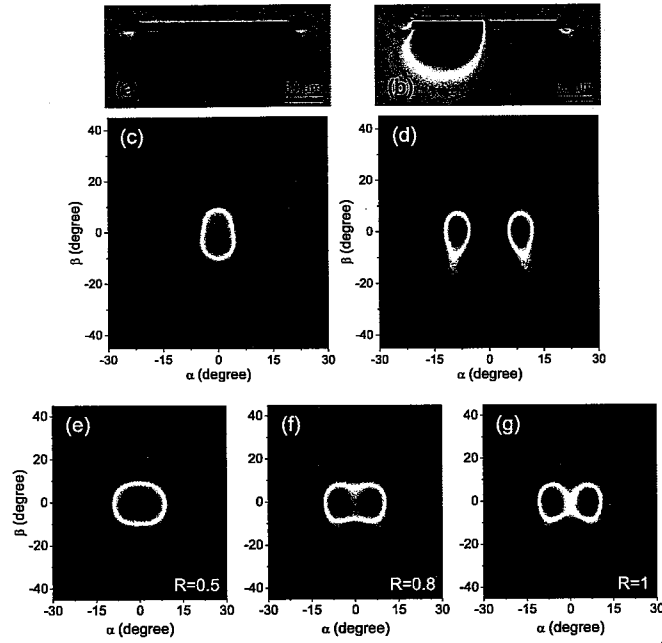


图 2.5 (a) (b) 分别是基模和高阶横模的电场 (实部) 模拟分布。(c) (d) 分别是基模和高阶横模的远场强度模拟分布。(e) (f) (g) 将基模和高阶横模远场强度叠加后的模拟光斑, 功率比 R 分别为 0.5, 0.8, 1, 其中 R 定义为高阶横模与基模的强度比

Figure 2.5 Near- and far-field simulation for the fundamental and higher order modes. (a) and (b) are the calculated electric field (real part) distributions of the fundamental and higher order modes on the laser facet, respectively. (c) and (d) are the simulated normalized far-field intensity patterns of the fundamental and higher order modes, respectively. (e), (f) and (g) are the composed far-field patterns by superimposing the fundamental and higher order mode patterns with different values of R that is defined as the power ratio of the higher order mode to the fundamental mode

得到的远场分布与实验有较大的偏差。鉴于此, 我们认为在耦合腔 THz QCL 中基模和高阶横模同时存在, 其远场光斑是基模和高阶横模的叠加。为此, 我们定义了一个参数 R , R 为高阶横模与基模的强度比。图2.5(e)(f)(g) 分别以 $R = 0.5$ 、0.8、1 将 (c)(d) 两种模式的远场进行叠加获得的远场光斑。可见, 当 $R = 0.5$ 时 (高阶横模贡献较小), 远场仍然呈现单个光斑。当高阶横模的强度与基模的强度相等, 即 $R = 1$ 时, 远场呈现明显的两个光斑。我们可以推断在耦合腔 THz QCL 中, 高阶横模与基模同时存在, 但其功率比基模弱, 因此在图2.4中远场只有一个光斑。此外, 通过对比图2.5(c) 与 (e)(f)(g), 当高阶横模参与形成远场光斑后, α 方向的远场发散角就会增加到约 30° , 此发散角与图2.4中获得的实验结果吻合良好。至此, 我们利用仿真的方法从远场的角度再一次为高阶横模的存在

提供了证据。

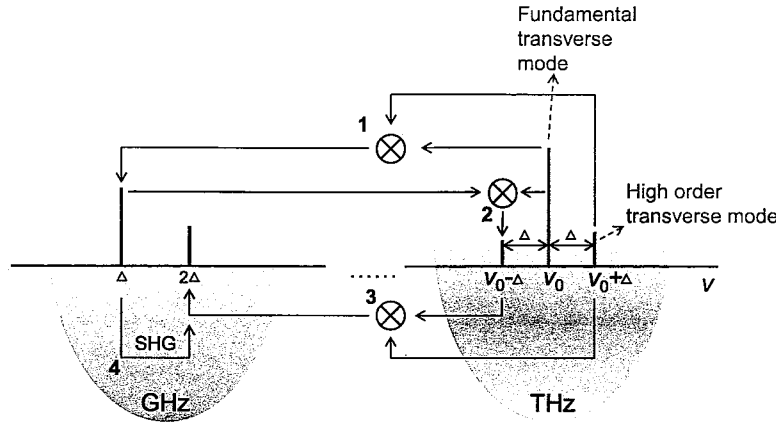


图 2.6 在2.3中两个拍频信号产生过程示意图

Figure 2.6 Schematic of the generation of the two-beatnote frequencies observer in fig. SHG: second harmonic generation

图2.2(d) 中光谱模式发生分裂、图2.3(b) 中 beatnote 随电流增加蓝移、图2.4、2.5的远场光斑情况，我们从三个角度证明在耦合腔 THz QCL 中基模与高阶横模同时激发。在图2.3中，除了 ~ 4 GHz 拍频信号信号之外，还存在其二次谐波信号 ~ 8 GHz。图2.6基于 THz QCL 有源区强非线性 ($\chi^{(2)}$)，解释两个拍频信号的产生的过程。如前文所述， ~ 4 GHz 拍频信号 (Δ) 由基模 v_0 和高阶横模 $v_0 + \Delta$ 互相拍频产生，如过程 1 所示。然后 Δ 信号与基模信号 v_0 拍频，在基模 v_0 左侧产生边带 $v_0 - \Delta$ ，如过程 2 所示。最后边带信号 $v_0 - \Delta$ 与高阶横模信号 $v_0 + \Delta$ 拍频产生 ~ 8 GHz 拍频信号 (2Δ)，如过程 3 所示。同时 Δ 信号可以直接倍频至 2Δ ，如过程 4 所示。由于 THz QCL 有源区的强非线性 ($\chi^{(2)}$)，对于 2Δ 信号的产生，二倍频 (second harmonic generation, SHG) 要比拍频过程的效率更高。此外，基于有源区的非线性 ($\chi^{(3)}$)，四波混频效应也会参与边带的形成。

另外，需要注意的是基横模和高阶横模是相互正交的，原理上这两个模式无法耦合。但是由于制作工艺的影响，耦合腔结构并非基于完美的 FP 腔制作而成，因此不同阶横模之间仍然会发生非常低效的耦合。在实验中，我们所获得的拍频信号信号强度非常低，即使在测试中使用了低噪声放大器 (30 dB)，最终获得的信号强度也约为 -38 dBm。作为比较，在文献^[86] 中，FP 腔 THz QCL 本征横模中各纵模之间的拍频信号，即使无放大器，其强度也达到在 -40 到 -50 dBm。

需要再说明两个拍频信号 Δ 与 2Δ 之间强度的对比。鉴于 2Δ 形成的复杂性，

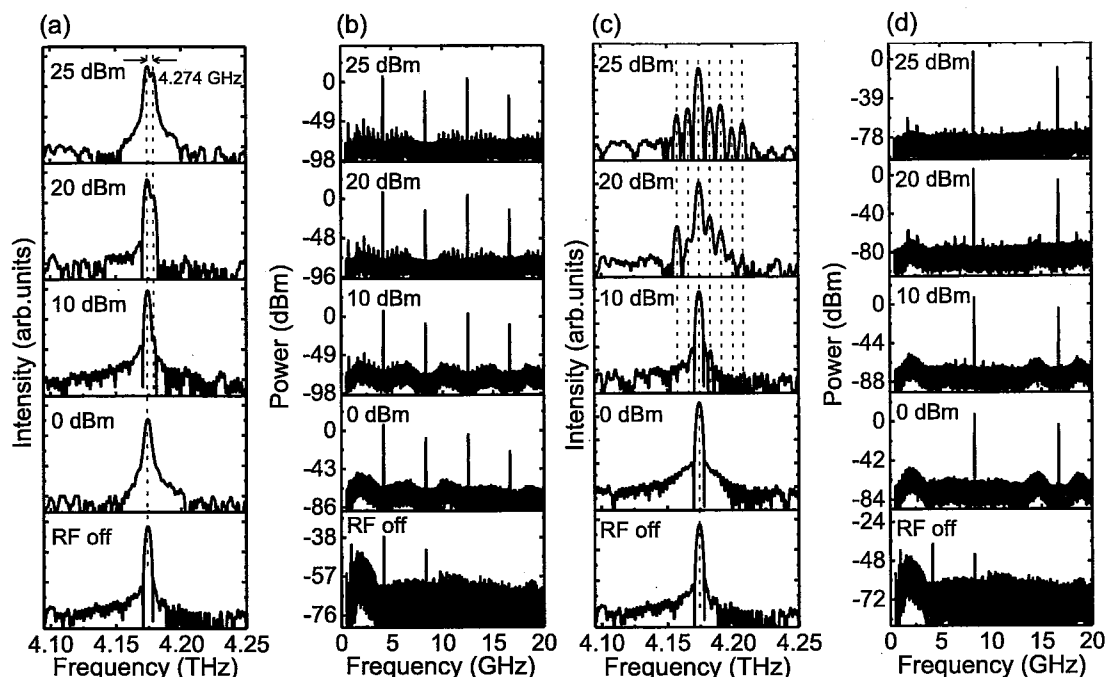


图 2.7 在 500 mA 驱动电流下，不同功率 RF 注入调试的耦合腔 THz QCL 光谱 (a) (c) 和电学拍频信号 (b) (d)。其中，(a) (b) 注入频率为 Δ ，(c) (d) 注入频率为 2Δ

Figure 2.7 Terahertz emission spectra (a)(c) and RF spectra(b)(d) of the coupled-cavity terahertz laser under RF modulation on the short section with various RF power measured at a drive current of 500 mA. In (a) and (b), the modulation frequency is set as $\Delta = 4.274$ GHz; and in (c) and (d), the modulation frequency is 2Δ . In each subfigure, the bottom panel shows the results without RF modulation (RF off). The dashed lines in (a) and (c) are used to locate the mode positions

理论上其强度要比 Δ 小得多，但是在图2.3中，当驱动电流大于 600 mA 时， 2Δ 甚至比 Δ 具有更高的强度。这种异常的现象我们将其归结为当前系统更有利于 2Δ 频率的信号传输。实际上，拍频信号信号是经过耦合腔结构、金线、微波传输线、同轴线缆、微波有源器件等非常复杂路线才被频谱分析仪获取，并未对其进行特别优化。在图2.11中，我们针对耦合腔 THz QCL 进行微波整流测试。可以看到，在高驱动电流下， 2Δ 比 Δ 具有更高的调制响应，这也解释了 2Δ 拍频信号信号较强的异常现象。

2.3 耦合腔量子级联激光器主动调制

耦合腔 THz QCL 在自由运行模式下，基模和高阶横模同时激发，产生两个拍频信号信号。虽然此信号并非是一横模下不同纵模的拍频信号，但是仍可作

为指导频率，进行耦合腔 THz QCL 射频注入调制。正如我们实验的出发点一样，仅向短腔中注入一定功率的 RF 信号。T 型偏置器 (Bais-T) 的 AC 端为了能够同时提取电学模间拍频和注入 RF 信号，通过环形器分别与频谱分析仪和 RF 信号源连接，DC 端连接直流电源，混合端通过高频同轴线缆与短腔后的微带线连接。

2.3.1 耦合腔量子级联激光器射频注入调制

图2.7是对耦合腔 THz QCL 进行 RF 注入调制后的光谱图和拍频信号信号。实验条件统一为：500 mA 驱动电流，20 K 工作温度，cw 工作模式。其中 (a)(b) 的调制频率为 $\Delta = 4.274$ GHz (500 mA 耦合腔 THz QCL 的拍频信号频率)，(c)(d) 的调制频率为 2Δ 。为了更清楚的比较，我们在每一个子图的底部一行添加了自由运行时 (RF off) 的情况。可以看到，当注入频率为 Δ ，RF 功率提高到 10 dBm 时，出现第一个边带。然而，即使 RF 功率提高到 25 dBm，仍然只有第一个边带，如图2.7(a)。当注入频率为 2Δ 时，显现出非常明显的调制效果，如图2.7(c) 所示，随着注入功率的增加，边带个数逐渐增多。在 25 dBm 功率下，耦合腔 THz QCL 由单模增加到 7 个纵模。在图 (a)(c) 中，特意标注出虚线用于精确标定不同模式的峰值位置。一旦耦合腔 THz QCL 在 RF 注入调制下出现边带，其相邻模式之间的间距就被牢牢锁定在注入 RF 信号的频率上，这是实现主动锁模的重要标志。值得注意的是，不同于 FP 腔中，在 RF 注入锁定下产生的边带都是（或非常接近）谐振腔的本征模，在图 (a)(c) 中激发产生的边带并非激光腔的本征模。但是，即使耦合腔 THz QCL 没有在长腔的 FSR 频率上被调制，仍然可以激发出边带。这是由于激光被 RF 注入调制实质是对驱动电流的幅度调制，从而在太赫兹场中实现了幅度调制，即产生边带。很明显， Δ 与 2Δ 并非是耦合腔结构的往返频率 (图2.2(b))，因此产生的边带也非激光器某单一横模下的纵模，我们只能判断这些被激发的边带模式是附加在基模或更高阶横模上。在文献^[146]中，同样报道了类似的结果，Stefano Barbieri 等人对 2.8 THz QCL 进行 RF 注入调制，调制频率从 2 GHz 逐渐增加到 13 GHz，而该 THz QCL 的往返频率为 12.3 GHz，即使在非共振情况下，仍然实现激光器由单模向多模转变。

在图2.7(b)(d) 中，分别绘制了不同 RF 调制频率对应的拍频信号光谱。在频谱分析仪带宽内，可以明显观察到 Δ 与 2Δ 的谐波信号。当注入频率为 2Δ 时，自由运行产生的 Δ 被明显抑制。这可以解释为，当激光被 2Δ RF 注入调制，太赫兹模式间距被锁定为 2Δ ，而非 Δ 。请注意，这种现象与 FP 谐振腔 THz QCL 也

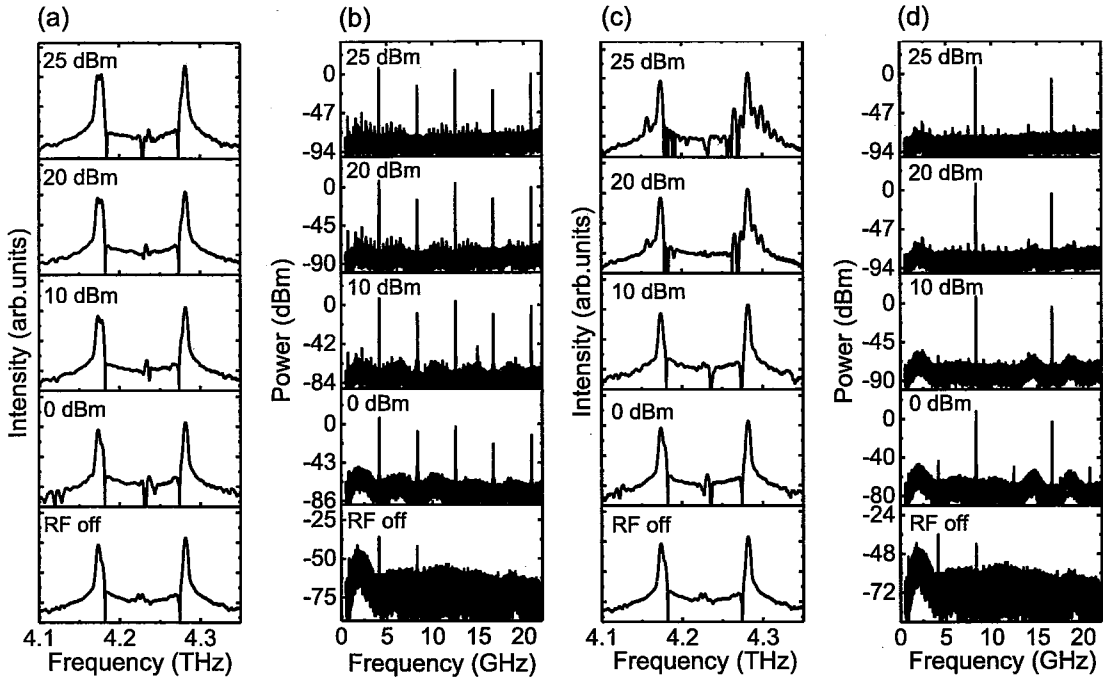


图 2.8 在 600 mA 驱动电流下, 不同功率 RF 注入调试的耦合腔 THz QCL 光谱 (a) (c) 和电学拍频信号 (b) (d)。其中, (a) (b) 注入频率为 Δ , (c) (d) 注入频率为 2Δ 。

Figure 2.8 Terahertz emission spectra (a)(c) and RF spectra(b)(d) of the coupled-cavity terahertz laser under RF modulation on the short section with various RF power measured at a drive current of 600 mA. In (a) and (b), the modulation frequency is set as $\Delta = 4.172$ GHz; and in (c) and (d), the modulation frequency is 2Δ . In each subfigure, the bottom panel shows the results without RF modulation (RF off)

是不同的。在 FP 谐振腔中仅存在基横模, 即使调制信号频率为往返频率的二倍频, 太赫兹模式间隔仍然保持为 FP 腔往返频率。

图2.8、2.9分别记录了在 600、700 mA 电流驱动下太赫兹光谱和拍频信号光谱, 其边带产生效果和原理与 500 mA 的情况类似, 在此不再赘述。

上述实施 RF 注入锁定均是通过耦合腔中的短腔实现的。在图2.10中, 我们利用同一外延片、工艺、波导尺寸制作另一耦合腔 THz QCL, 唯一不同的是此次将 RF 调制信号加载到长腔部分, 短腔作为激光发射端, 如图2.10(a) 所示。图 (b) 显示新耦合腔 THz QCL 的电学拍频信号为 ~ 4 GHz 和 ~ 8 GHz。图 (c) 为无调制下激光器的光谱, (d)(e) 分别是在 4 GHz, 25 dBm 和 8 GHz, 25 dBm 的 RF 信号调制下激光器的太赫兹光谱。同样的, 在 8 GHz 下出现边带。通过与图2.7对比, 可以清楚的得出结论: 短腔在 RF 注入调制中具有更大的优势。

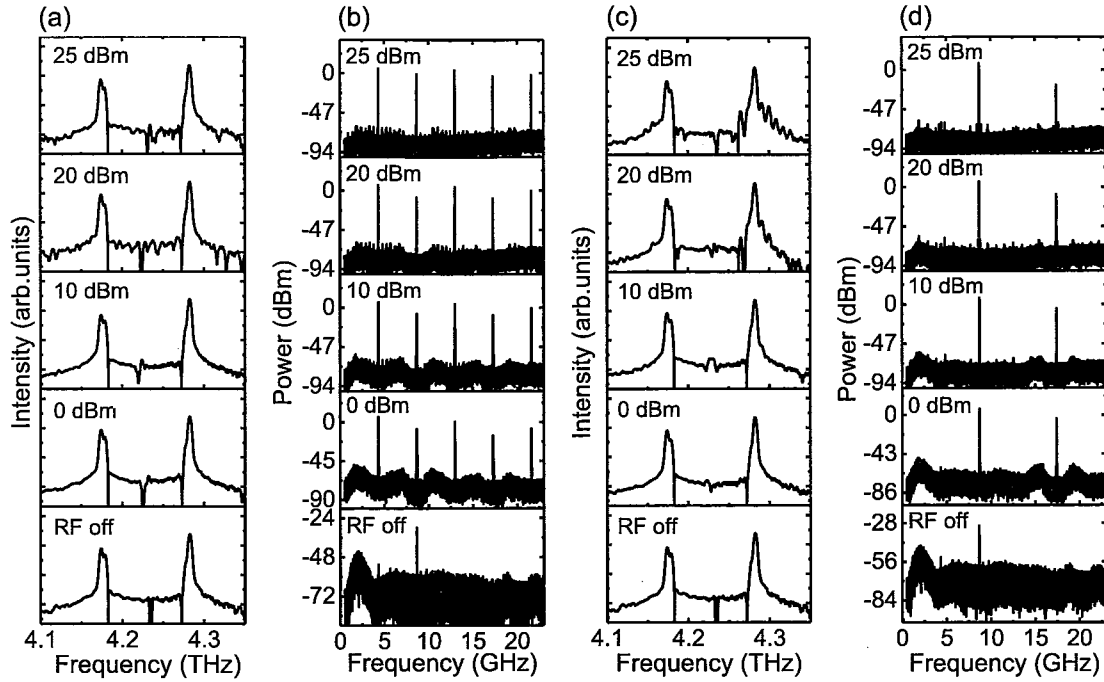


图 2.9 在 700 mA 驱动电流下，不同功率 RF 注入调试的耦合腔 THz QCL 光谱 (a) (c) 和电学拍频信号 (b) (d)。其中，(a) (b) 注入频率为 Δ ，(c) (d) 注入频率为 2Δ

Figure 2.9 Terahertz emission spectra (a)(c) and RF spectra(b)(d) of the coupled-cavity terahertz laser under RF modulation on the short section with various RF power measured at a drive current of 700 mA. In (a) and (b), the modulation frequency is set as $\Delta = 4.325$ GHz; and in (c) and (d), the modulation frequency is 2Δ . In each subfigure, the bottom panel shows the results without RF modulation (RF off).

2.3.2 微波整流测试

从太赫兹调制光谱来看，二次谐波 2Δ 的调制效率明显高于 Δ 。为了研究产生这种差异的原因，我们对耦合腔 THz QCL 进行微波整流测试。微波整流技术是研究半导体芯片调制响应的一种常用方法^[192]，在本例中具体实施方法如下：将不同强度的 RF 信号（图2.11为 10 dBm，图2.12为 25 dBm）从 1 到 15 GHz 扫频经 T 型偏置器注入到耦合腔短腔中，同时由 T 型偏置器加载的还有 THz QCL 工作所需的驱动电流，使用锁相放大器从 T 型偏置器的直流端口测量由器件返回的整流电压或电流。同时使用函数发生器对 RF 信号源以 50 kHz 频率进行幅度调制。图2.11为在 500、600 和 750 mA 驱动电流下的归一化整流信号随注入 RF 频率变化，RF 信号强度为 10 dBm。在图2.12中，给出 RF 信号强度为 25 dBm 的情况。很明显，在所有驱动电流下， 2Δ 具有比 Δ 更高的调制响应。这可以解释为什么 ~ 8 GHz 比 ~ 4 GHz 的调制信号能够激发出更多的边带。另一方面，对

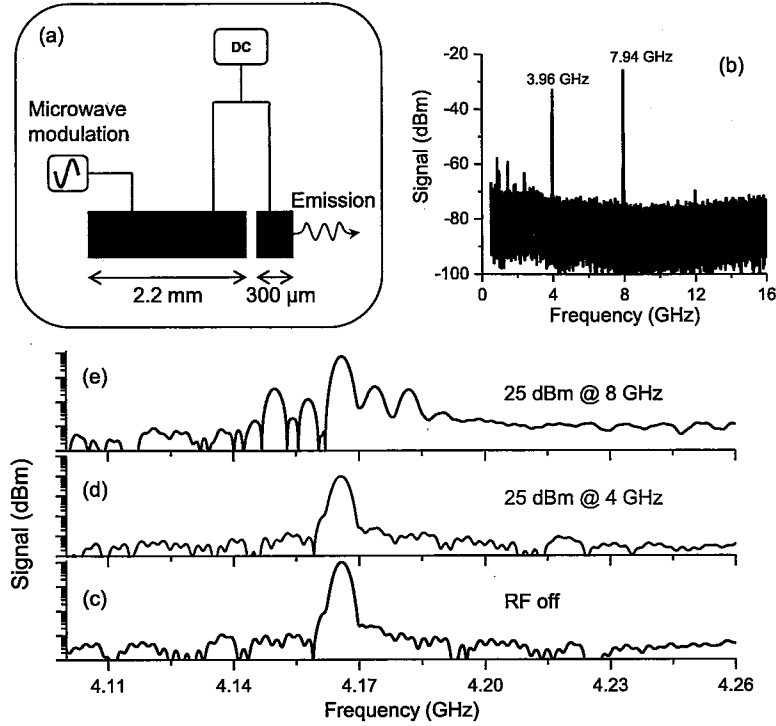


图 2.10 (a) 长腔注入 RF 调制信号器件示意图。(b) 由长腔提取的电学拍频信号。(c)(d)(e) 分别在自由运行、4 GHz、8 GHz 对耦合腔 THz QCL 进行射频注入调制光谱

Figure 2.10 Effects of microwave modulation on the long cavity of the coupled-cavity THz QCL.

(a) Schematic demonstration of the measurement setup. (b) Inter-mode beatnote signal of the laser. (c) Emission spectrum of the coupled-cavity THz QCL without RF modulation. (d) and (e) are the emission spectra of the coupled-cavity THz QCL measured with RF modulations at 4 GHz and 8 GHz, respectively, with a RF power of 25 dBm

比图2.7、2.8、2.9，即使调制频率同为 2Δ ，600、750 mA 驱动电流下产生的边带数量少于 500 mA。RF 注入调制的结果取决于施加到激光器上的振幅调制深度，而调制深度由图2.2(c)中的 L-I 的斜率决定。显然，在 500 mA 处具有比 600、750 mA 更大的斜率效率。因此，在 500 mA 下能够获得更好的调制效果。

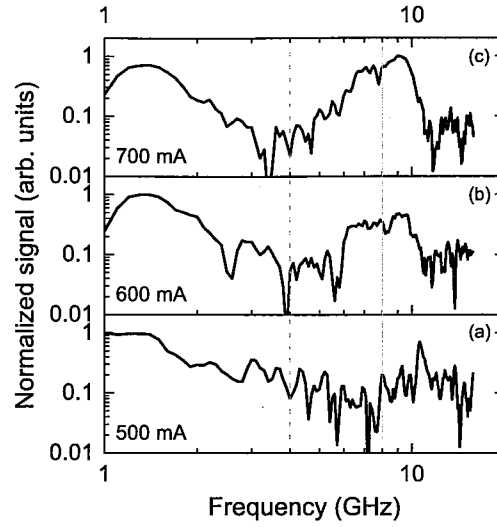


图 2.11 在 500 mA (a)、600 mA (b)、700 mA (c) 驱动电流下耦合腔 THz QCL 的微波整流信号，RF 信号功率为 10 dBm，频率从 1 到 15 GHz 扫频。虚线和实线分别代表 Δ 和 2Δ

Figure 2.11 Microwave rectifications measured at QCL driven currents of 500 mA (a), 600 mA (b) and 700 mA (c). The RF power is fixed at 10 dBm and the frequency is swept from 1 to 15 GHz. The dashed and solid vertical lines show the inter-mode beatnote frequencies around Δ and 2Δ , respectively

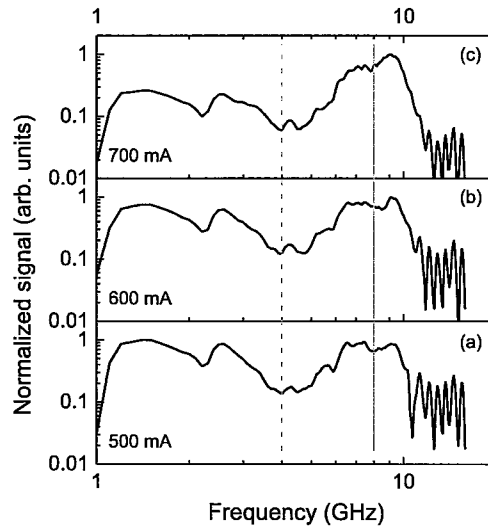


图 2.12 在 500 mA (a)、600 mA (b)、700 mA (c) 驱动电流下耦合腔 THz QCL 的微波整流信号，RF 信号功率为 25 dBm，频率从 1 到 15 GHz 扫频。虚线和实线分别代表 Δ 和 2Δ

Figure 2.12 Microwave rectifications measured at QCL driven currents of 500 mA (a), 600 mA (b) and 700 mA (c). The RF power is fixed at 25 dBm and the frequency is swept from 1 to 15 GHz. The dashed and solid vertical lines show the inter-mode beatnote frequencies around Δ and 2Δ , respectively

2.4 本章小结

最终, 我们通过对耦合腔中短腔结构进行 RF 注入调制, 实现最多 6 个边带的产生。虽然产生的模式数目远小于 RF 对 FP 腔 THz QCL 的调制, 但是该技术至少存在两方面的优势: 首先, 利用耦合腔结构, 可以产生模式间距更小的模式, 可用于光频梳高分辨率成谱应用。其次, 利用比 FP 腔短的多的谐振腔结构即可产生更小的模式间距, 虽然增加 FP 腔的腔长同样可以获得较小的模式间距, 但一味的增加 FP 腔的长度, 不仅需要考虑注入电流均匀性的问题, 还面临着 THz QCL 输出功率的降低, 而且更长的 FP 腔结构需要更高的电功率驱动。在横模控制方面, 针对 FP 腔, 虽然可以采用增加波导宽度激发高阶模, 但这意味着波导结构对横模选择能力的降低, 有可能同时激发二阶、三阶甚至更高阶模式, 使模式分布更加复杂。同时, 当横模模式增多时, 将很难找到一个共振频率或“种子”频率。而耦合腔结构在模式控制方面明显更具优势。

对比文献^[86]的工作, 我们目前没有完成全增益激射, 因此利用 RF 注入调制实现耦合腔 THz QCL 宽谱激射仍有很大的空间。提高耦合腔激光器性能有多种方式: (1) 优化耦合腔长度, 构建 GTI 结构。短腔可作为 GTI 结构中的反射镜, 有效降低损耗调制, 克服模式选择效应, 并在 QCL 中实现色散补偿。(2) 采用双面金属波导结构, 该波导具有比半绝缘表面等离子体波导更高的射频注入调制效率。(3) 进一步改进射频电路。如图 2.11、2.12 所示, 由于系统线路中阻抗不匹配, 导致调制响应曲线曲折变化很大。

总之, 该章节我们主要报道了耦合腔 THz QCL 首次实现主动调制。由于耦合腔结构的模式选择效应, 激光器在自由运行时呈现准单模形式工作。模间拍频测量和远场分析表明, 在耦合腔 THz QCL 中, 基横模与高阶横模同时激发。基于 THz QCL 有源区的非线性和四波混频效应, 分析了模间拍频信号的产生。对耦合腔 THz QCL 在模间拍频信号基模及二次谐波处进行 RF 注入调制, 最多产生 6 个边带, 频谱范围达到 50 GHz。在实现频谱展宽的耦合腔 THz QCL 中, 各纵模被严格锁定在注入的 RF 频率上。两段式的耦合腔 THz QCL 在 RF 注入调制下显示出高分辨成谱应用所需要的密集模式分布, 显示出更高的调制效率。通过优化波导几何结构和射频电路, 可进一步提高耦合腔 THz QCL 的性能。

第3章 太赫兹片上双光梳系统

3.1 引言

双光梳是由两个光频梳构成的多外差光谱技术。因此在正式介绍太赫兹双光梳工作之前，有必要简单介绍一下我们组在太赫兹光频梳方面的研究，这些优秀的研究成果为太赫兹双光梳器件提供了重要的基础。我们组在2010年实现首个国内全自主 THz QCL 激射之后^[179]，又率先展开太赫兹光频梳方面的研究。最早可追溯到 Li 在其博士论文^[70]中提到“基于 THz QCL 与 THz QWP 的通信研究”的初步构想，THz QCL 具有高达 13 GHz 的频率调制特性，并提出采用微波整流技术测量 THz QCL 频响特性的实验方案。在2016年 Gu^[150]将脊型波导的 THz QCL 视为三端共面波导结构，提出 LRC 电路模型，并采用传输线理论分析 THz QCL 的电路模型。通过对 S11 曲线进行拟合，获得 THz QCL 电路模型的分布参数以及高频阻抗。为 THz QCL 微弱的电学拍频信号高效提取提供优秀的阻抗匹配设计。进一步的，Gu 详细介绍了 THz QCL 微波整流法的原理，从仿真和实验两方面证明 THz QCL 的截止频率高达 15.9 GHz，并且发现拍频信号与注入的 RF 信号具有强烈的相互作用。2017 年和 2018 年，Wan 等人^[86,111]分别对半绝缘表面等离子体波导和双面金属波导两种结构进行 RF 主动注入调制。在半绝缘表面等离子体波导 THz QCL 中，利用 RF 调制技术可以有效的调制激光和展宽太赫兹发射光谱，实现 330 GHz 的匀质光谱覆盖，且模式间距被完全锁定为注入的 RF 频率。在双面金属波导 THz QCL 中，通过 RF 注入调制，填补 THz QCL 自由运行下的模式空缺，实现 340 GHz 的匀质宽谱。2019 年 Li^[153]设计了一种将石墨烯与高阻硅结合的 GiSAM 结构，利用石墨烯的可饱和吸收特性，实现 THz QCL 增强型被动锁模光频梳，并基于泵浦-探测技术首次扫描出 THz QCL 光频梳的时域信号，该工作被 *Advanced Science* 遴选为封面文章。同年，Zhou^[159,193]针对半绝缘表面等离子体、双面金属两种波导 THz QCL，综合考虑波导损耗、子带电子跃迁吸收、镜面损耗等各种因素，基于 Kramers-Kronig 关系分别计算了器件的波导损耗、钳制效应、材料损耗等导致的色散，并设计了一种用于色散补偿的 GTI 结构。进一步的，针对半绝缘表面等离子体波导 THz QCL，Zhou 等人指出 150 μm 脊宽的 THz QCL 具有更小的群速度色散，更有利

于 THz QCL 光频梳及双光梳的形成。因此在本文中的半绝缘表面等离子体波导 THz QCL 脊宽均采用 $150\ \mu\text{m}$ 。

以上简单总结了我们组近几年在太赫兹光频梳方面的工作，基于性能优秀的 THz QCL，实现 RF 主动调制技术^[86,111,150]、GiSAM 被动锁模技术^[153]、太赫兹光频梳系统色散计算^[159]以及第2章介绍的耦合腔太赫兹激光器锁模等。上述工作为太赫兹双光梳的研究提供了非常宝贵的实验基础和极具价值的参考。

本章节将主要介绍基于半绝缘表面等离子体波导 THz QCL 的太赫兹片上双光梳系统^[194]与 Faist 等人完成的片上双光梳^[172]最大的不同在于：一是采用半绝缘表面等离子体波导而非双面金属波导；二是采用 RF 注入调制技术实现光频梳，而非利用超宽增益有源区结构实现的自启动光频梳。由于波导结构的不同，本章节介绍采用有限元电磁建模的方法，研究两个光频梳之间的耦合问题。将 RF 注入调制技术引入片上双光梳中，具有显著拓宽双光梳带宽和测量 THz QCL 光频梳载波包络偏移频率噪声的能力。

3.2 基于太赫兹量子级联激光器片上双光梳器件

本章节中采用的半绝缘表面等离子体波导 THz QCL 被有意制作成 $150\ \mu\text{m} \times 6\ \text{mm}$ 的尺寸。波导结构尺寸对 QCL 光频梳具有重要的影响，K. Zhou 等人通过对不同脊宽的半绝缘表面等离子体波导 THz QCL 色散进行系统计算，发现对于 4.2 THz 的 QCL， $150\ \mu\text{m}$ 具有更平坦的色散曲线，这有利于激光器以光频梳模式工作^[159]。另一方面选择 6 mm 腔长同样是基于稳定光频梳的考虑。可以解释如下：随着腔长的增加，模式间距会降低（即重复频率降低）。对于给定的激光器增益带宽，在频域中的模式将更加密集。为了更清楚的阐述，我们只考虑增益中心旁边的两个相邻边模，较长腔中的这两个相邻边模强度比较短腔中大，因此，在长腔激光器中，由 QCL 有源区非线性所引起的四波混频效应将更加有效，这将显著减小拍频信号线宽，即有利于 QCL 以光频梳模式工作。此外，较低的往返频率有利于提高 RF 注入调制效率。如图3.1所示，同一衬底上的两个 THz QCL 光频梳被安装在散热铜热沉上，在每个光频梳后面分别安装微带线，用于进行 RF 注入调制以及检测拍频信号信号和下转换的双光梳光谱。

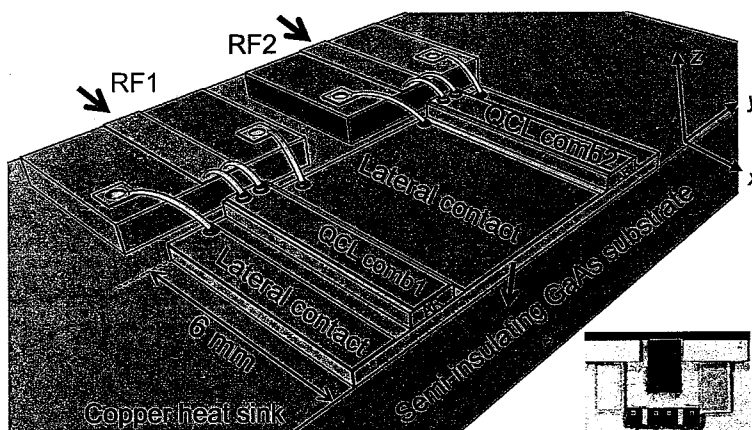


图 3.1 基于 THz QCL 的片上太赫兹双光梳系统示意图。两个光频梳的腔长均为 6 mm，宽为 150 μm ，由同一外延片经传统半导体工艺制作而成。插图为封装在散热铜热沉上的片上太赫兹双光梳光学照片

Figure 3.1 Schematic illustration of the on-chip terahertz QCL dual-comb device. The two QCL combs with a cavity length of 6 mm and a ridge width of 150 μm are on the same chip processed from the same wafer. The inset shows an optical photo of the mounted dual-comb device.

3.2.1 片上双光梳光学耦合方式

为了探究光频梳之间的光耦合机制，采用 CST Microwave Studio 有限元仿真工具对上述片上双光梳结构进行场分布计算。采用的仿真方法如下：选择 CST 软件中自定义模块，构建简化的 3D 模型，采用高频问题类型、时域求解器、背景设置为 Normal；为了节省计算时间、降低对计算机的要求，同时保证计算的准确性，激光器腔长缩短为波长的 4 倍（300 μm ），结构中上下电极材料用完美电导体（perfect electrical conductivity, PEC）代替；宽谱太赫兹信号（3.5-4.7 THz）由光频梳 1 的波导端口 Port1 注入，太赫兹信号沿光频梳 1 波导传输并耦合进入自由空间，自由空间的部分太赫兹辐射会耦合进光频梳 2 波导中并最终达到光频梳 2 波导端口 Port2，CST 软件中 $|S_{21}|$ 即反映了两个光频梳之间的耦合效率。图 3.2(a) 比较了有源区（ $z = 5 \mu\text{m}$ ）和半绝缘 GaAs 衬底（ $z = -100 \mu\text{m}$ ）中 x - y 电场分布。图 (a) 电场分布计算中，光频梳之间的间距被固定为 1.6 mm，尽管在空间距离上相隔甚远，但是从电场分布中可以看出仍存在光耦合。不同于双面金属波导 THz QCL 片上双光梳^[172]，单面等离子体波导 THz QCL 片上双光梳光耦合不仅发生在波导-自由空间-波导中，更多的还经由衬底发生耦合。如图 3.2(b) 为 comb1 y - z 平面的电场分布，显示了单个半绝缘表面等离子体波导 THz QCL 的典

型电场分布，下接触层对电磁场模式的限制作用弱于金属层，有大量的电场泄露到半绝缘衬底中，因此波导-衬底-波导的耦合路径是真实存在的。

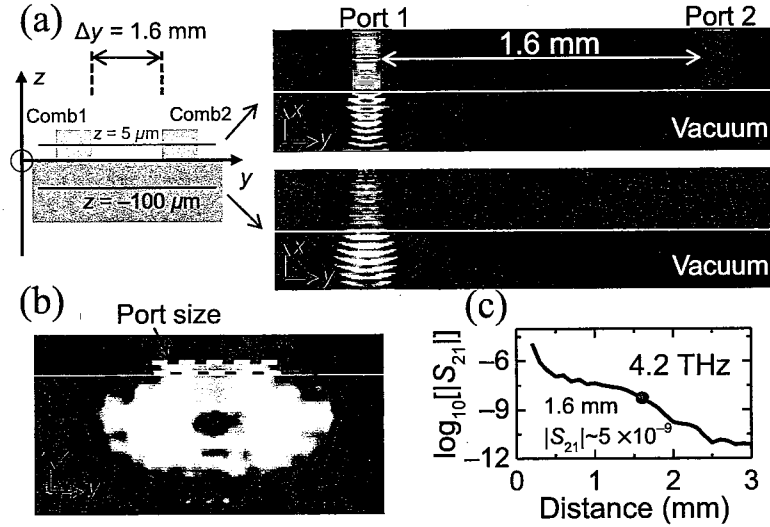


图 3.2 (a) 在 $x-y$ 平面，QCL 有源区（右上插图） $z = 5 \mu\text{m}$ 和衬底（右下插图） $z = -100 \mu\text{m}$ 的电场分布。(b) 在 $y-z$ 平面上的电场分布。(c) $|S_{21}|$ 随光频梳之间间距的变化

Figure 3.2 Electromagnetic simulations of the dual-comb device. (a) Calculated distributions of the absolute value of the electric field in $x-y$ planes with $z = 5 \mu\text{m}$ in the QCL active region (right-upper panel) and $z = -100 \mu\text{m}$ in the substrate (right-lower panel). The signal is injected from waveguide Port1 into the laser ridge and coupled to waveguide Port2 of the other laser comb. (b) Calculated electric field distribution of Comb1 in a $y-z$ plane. (c) $|S_{21}|$ as a function of distance between the two laser combs

在图3.2(c)中，我们定量计算了两个光频梳之间耦合强度随空间距离的变化， $|S_{21}|$ 参数反映的是 4.2 THz（本例采用的 THz QCL 光频梳中心频率）信号的耦合率。当两个光频梳之间的距离为 1.6 mm 时， $|S_{21}|$ 约为 5×10^{-9} 。需要特别提出的是，为了简化计算过程并更真实的反映耦合率，计算区域使用的是图3.2(b)中白色矩形勾勒出的非常小的端口，并且只选择 Port2 上的一个光学模式来计算。但这种计算与真实的耦合率仍有较大的误差，不同于双面金属波导对电磁场有接近 1 的限制作用，在半绝缘表面等离子体波导中存在大量的模式泄露（如图3.2(a)(b)），因此经由衬底发生的光耦合会使实际耦合率大于图 (c) 中的计算值。

虽然图3.2(d)无法准确反映实际的耦合率，但是随着两个光频梳之间的距离减小， $|S_{21}|$ 参数显著增强。正如我们在片上双光梳的前期工作中发现的一样，当两个光频梳距离为 200-400 μm 时，由于耦合率过大 ($|S_{21}| \sim 10^{-9}$)，产生光注

入锁定，导致光频梳 1 与光频梳 2 具有相同的重复频率，无法实现双光梳。

尽管发生耦合的光强很弱，但是因为 THz QCL 的电流调制或微扰对光耦和非常敏感，因此仍然可以实现对电学模间拍频信号和双光梳多外差光谱信号的检测。这种快速的自探测机制在绪论中已详细介绍过，在这里对其原理再做简要描述：当太赫兹信号辐射到 QCL 中，粒子数反转或增益将会被光子调制，这种调制行为会转换为驱动电流的变化，振荡电信号可使用频谱分析仪测量。因此基于自探测的多外差检测带宽由 QCL 载流子带间跃迁时间和增益恢复时间确定^[172,195]。最近，有文章报道 THz QCL 的增益恢复时间为 30-50 ps^[196]，由此可大致获得 20 GHz ($1/\tau$) 的截止频率。6 mm 腔长对应拍频信号频率为 6 GHz 左右^[86]，低于 THz QCL 探测的截止频率，因此 QCL 在本例中可作为探测器。

3.2.2 太赫兹片上双光梳基本性能表征

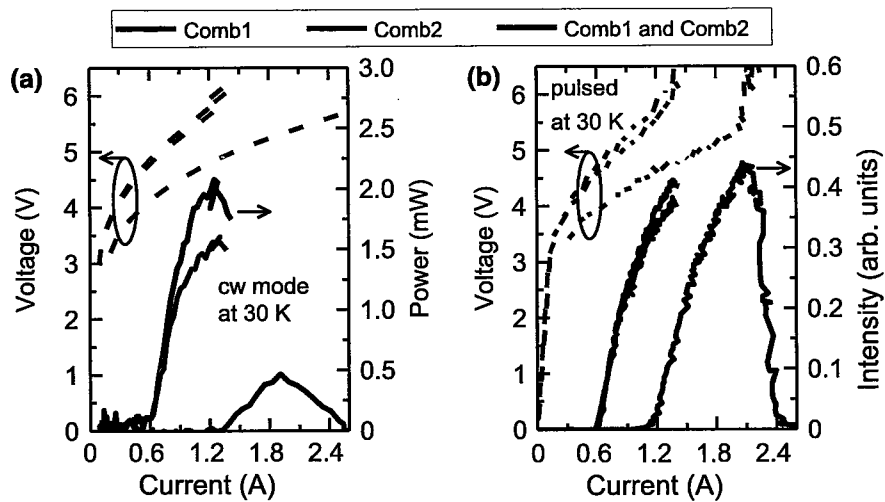


图 3.3 分别在连续波模式 (a) 和脉冲模式 (b) 下太赫兹双光梳的功率-电流 (实线) 和电压-电压 (虚线) 曲线。其中，黑色代表只有光频梳 1 工作，红色代表只有光频梳 2 工作，蓝色代表同时工作。器件工作均为 30 K

Figure 3.3 L-I (solid) and V-I (dashed) curves of the laser combs measured in cw mode (a) and pulsed mode (b). Black and red curves denote the characteristics of Comb1 and Comb2, respectively, measured when one laser is electrically pumped and the other one is switched off. The blue curves are recorded as both lasers are pumped in parallel. In (b), a repetition rate of 10 kHz and a duty cycle of 10% are used. All the data are taken at 30 K.

图3.3记录了太赫兹双光梳功率-电流-电压曲线。与上一章节中 THz QCL 功

率测试方法一样,对于连续波模式功率使用太赫兹平均功率计(Ophir, 3A-P THz)测量,对于脉冲模式功率通过 Golay cell 探测器测量。

如图3.3(a)所示,在连续波模式下,光频梳1(光频梳2)在不考虑任何损耗的情况下最高功率达到 2 mW (1.5 mW),一旦两个光频梳同时以连续波模式工作,总功率显著缩小至 0.5 mW。不仅功率下降,最大输出功率 $P_{\max}$ 对应的驱动电流 $I_{\max}$ 也并没有随着激光器尺寸发生线性缩放。当只有光频梳1(光频梳2)工作时, $I_{\max}$ 约为 1.2 A,理论上,如果光频梳1和光频梳2同时工作,因为两个光频梳具有相同的器件尺寸, $I_{\max}$ 应当为 2.4 A。然而,从图(a)中可以看出,当两个光频梳同时工作时, $I_{\max}$ 远远小于预期值,但是阈值电流 I_{th} (1.2 A)却恰好是单个光频梳(0.6 A)两倍。在上述连续波模式下功率比较中, $I_{\max}$ 与 I_{th} 指出器件散热问题是造成双光梳功率退化的主要原因。为了证明我们的假设,如图3.3(b),我们又在 10% 占空比的脉冲模式下表征双光梳的 L-I-V 特性。在脉冲模式下,器件的直流偏置会被施加 10 Hz 和 10 kHz 的双重调制,可有效降低器件的发热。在图(b)中,光频梳1(光频梳2)的脉冲功率达到 0.4 (0.4) 左右(Golay cell 功率值未经过校准,在此只显示无量纲的相对值),当两个光频梳同时工作时,其功率略高于 0.4,但功率仍与 0.8 有较大的差距,而 $I_{\max}$ 上升到 2 A,与连续波模式下有较大的提升。连续波、脉冲模式的 L-I-V 测量显示,在双光梳系统中,器件产生的焦耳热会造成器件的性能严重退化。

图3.4(a)(b)中分别为光频梳1和光频梳2在脉冲下测量的远场光斑。具体测量方式请参考2.2.2章节。尽管两个激光器具有相同的器件尺寸,并且 L-I-V 特性相似,但是其远场光斑仍有较大差异。图(c)为光频梳1和光频梳2同时工作获得的远场光斑,图(d)是人为将图(a)(b)的强度叠加。通过对比,图(c)与(d)的远场具有很大的相似性,这说明两个激光器之间是弱耦合作用的,很大程度上具有独立性,光模式并未受到彼此的干扰,因此在连续波模式下功率的退化是因为器件热效应而非光模式发生改变。

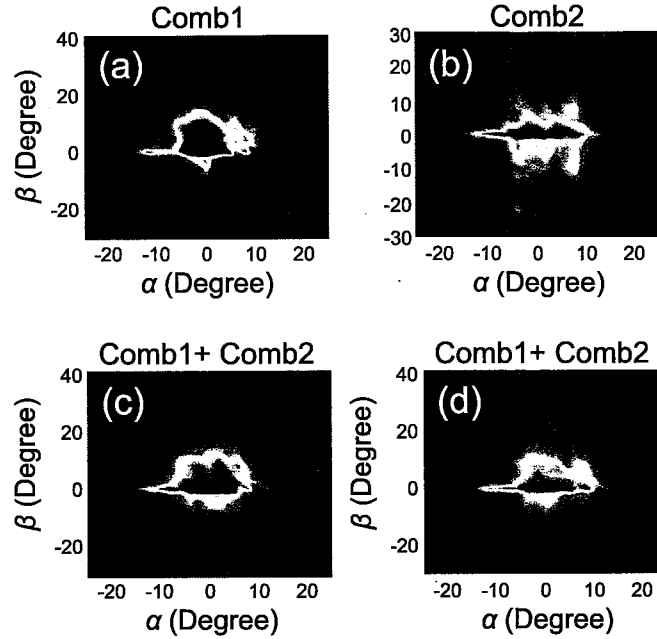


图 3.4 (a)(b) 分别使在 932 mA 和 968 mA 驱动电流下光频梳 1 和光频梳 2 的远场光斑。(c) 两个激光器同时工作时的远场光斑。(d) 叠加 (a)(b) 光斑。器件工作温度均为 30 K

Figure 3.4 (c) and (d) are the measured far-field beam patterns of Comb1 driven at 932 mA and Comb2 driven at 968 mA, respectively. (c) The far-field pattern measured when the two laser combs are simultaneously switched on. (d) Constructed far-field pattern by superimposing (a) and (b). All the data are taken at 30 K

3.3 片上双光梳光谱

3.3.1 太赫兹量子级联级联激光器光谱

在此再重申一下对形成双光梳的两个 THz QCL 在光谱方面的要求：首先两个 THz QCL 以光频梳形式工作，具有重叠的光谱范围；其次具有不同的重复频率。图3.5(a) 为两个 THz QCL 在自由运行下的太赫兹光谱，测试方法请参考2.2.1章节。为了满足以上两点，我们有意的对光频梳 1 和光频梳 2 施以不同的驱动电流，分别为 932 mA 和 968 mA。如图所示，在 30 K 工作温度下，两个光频梳的频谱在 4.06-4.26 THz 范围内高度重叠，连续跨越 200 GHz。图 (b) 为光频梳 1 和光频梳 2 同时工作的光谱，覆盖范围为 4.08-4.26 THz，频谱范围缩小仍然归因于器件温度变化。特别的，在图 (b) 中，我们在接近光频梳 1 和光频梳 2 的重复频率（图3.6(a)）上分别对其 RF 注入调制，注入频率分别为 6.143 175 GHz (1 dBm)、6.136 785 GHz (-8 dBm)，以稳定太赫兹光频梳并增加梳齿。图 (a) 和 (b) 中的插图 of 光谱峰值的局部放大，然而受限于 FTIR 的分辨率 (3 GHz)，光

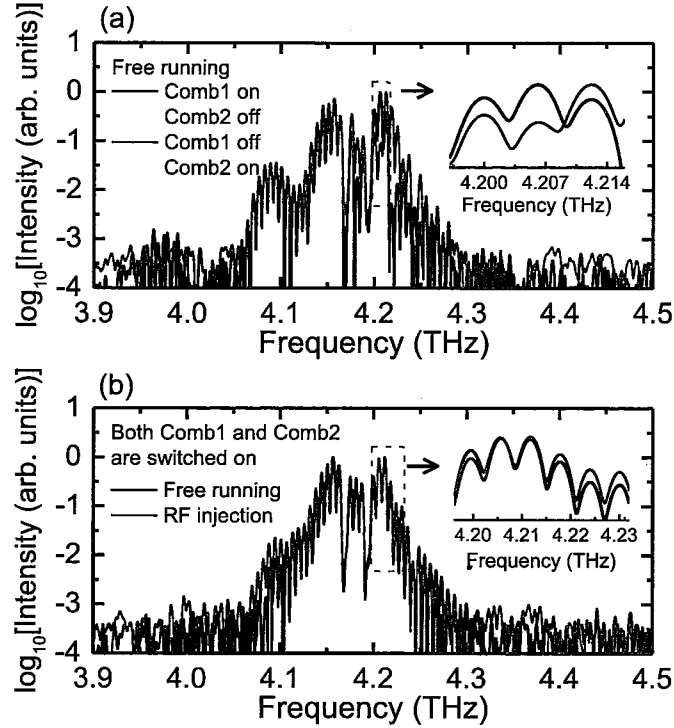


图 3.5 (a) 光频梳 1 (光频梳 2) 单独自由运行时的太赫兹光谱, 其中插图虚线矩形框中的光谱放大图 (b) 光频梳 1 与光频梳 2 同时工作时的太赫兹光谱, 其中黑色代表自由运行, 红色代表激光器被 RF 注入调制, 光频梳 1 注入的 RF 频率为 6.143 175 GHz (1 dBm), 光频梳 2 注入的 RF 频率为 6.136 785 GHz (-8 dBm)。光频梳 1 (光频梳 2) 的驱动电流均为 932 mA (968 mA), 器件工作温度均为 30 K

Figure 3.5 Terahertz emission spectra of the two laser combs. (a) The free-running laser spectra measured when one of the lasers is switched on and the other one is switched off. The inset shows an enlargement of the spectrum outlined in the dashed rectangular box. (b) The emission spectra measured when both lasers are switched on in free-running mode (black) and with RF injections (red). The inset shows an enlargement of the spectrum outlined in the dashed rectangular box. The rf injection frequencies for Comb1 and Comb2 are 6.143 175 GHz (1 dBm) and 6.136 785 GHz (-8 dBm), respectively. The currents used for driving Comb1 and Comb2 are set to be 932 and 968 mA, respectively. All the data are recorded at a stabilized heat-sink temperature of 30 K

频梳 1 和光频梳 2 梳齿之间的频率差无法被完全分辨。需要说明的是，在双 RF 注入调制中，我们特意以低功率 RF 信号注入，这是因为在双光梳系统，采用 RF 注入调制的主要目的为稳定光频梳重复频率，而非用于展宽太赫兹光谱。此外，如果一味的增加注入功率，甚至会对双光梳产生干扰，此问题在下节将会详细阐述。

3.3.2 片上双光梳光谱

图3.6显示了本章节最重要的实验结果——双光梳光谱。利用 THz QCL 光频梳自检测机制，实现电学拍频信号和双光梳光频信号的检测。具体实验过程如下：在双光梳光谱实验中，932 mA 驱动电流经 T 型偏置器 DC 端施于光频梳 1，RF 信号源经 T 型偏置器 AC 端与光频梳 1 后微带线连接；968 mA 驱动电流经 T 型偏置器 DC 端施于光频梳 2，光频梳 2 同时作为双光梳系统探测器，因此，频谱分析仪与 RF 信号源经过环形器与 T 型偏置器 AC 端连接。为了提高双光梳信号信噪比，在频谱分析仪与 T 型偏置器之间使用增益 30 dB 的低噪声放大器，此外启用频谱分析仪内置的前置放大器。光频梳 1 和光频梳 2 的工作温度保持为 30 K。

图3.6(a)为光频梳 1 和光频梳 2 在自由运行下的拍频信号，分别为 f_{BN1} 、 f_{BN2} ，相差约 10 MHz，频谱分析仪的分辨率带宽（resolution bandwidth, RBW）为 100 kHz。插图分别为 f_{BN1} 、 f_{BN2} 的线宽，58 kHz（RBW = 300 Hz）、2 kHz（RBW = 1 kHz）。虽然光频梳 1 和光频梳 2 是基于同一外延片、工艺和波导结构尺寸制作而成，但是由于工艺和封装过程中引入的误差，导致其线宽等具有一定的差异。另外，为了保证两个光频梳具有不同的重复频率，特意使用了不同的驱动电流，这也会对线宽具有一定的影响。

高度重叠的频谱范围和稍有差异的重复频率允许我们继续进行双光梳实验。如图3.6(b)，两个光频梳在自由运行下产生多外差双光梳信号，具有 15 个光学模式（RBW = 500 Hz），即代表两个光频梳共有 15 对太赫兹梳齿参与了双光梳形成，对应太赫兹光谱范围约为 86 GHz（ $14 \times 6.14 \approx 86$ GHz），在图3.5中，测量的太赫兹频谱范围是 180 GHz，这说明在自由运行下仅有少部分的太赫兹模式参与双光梳形成。值得注意的是，在双光梳光谱中，模式间距为 9.2 MHz，十分接近 $f_{\text{BN1}} - f_{\text{BN2}} = 10$ MHz，其中的细微差异是由于不同测试之间的频率漂移造成，这与在绪论中介绍双光梳原理时提到的公式十分吻合，证明该多外差信号确实

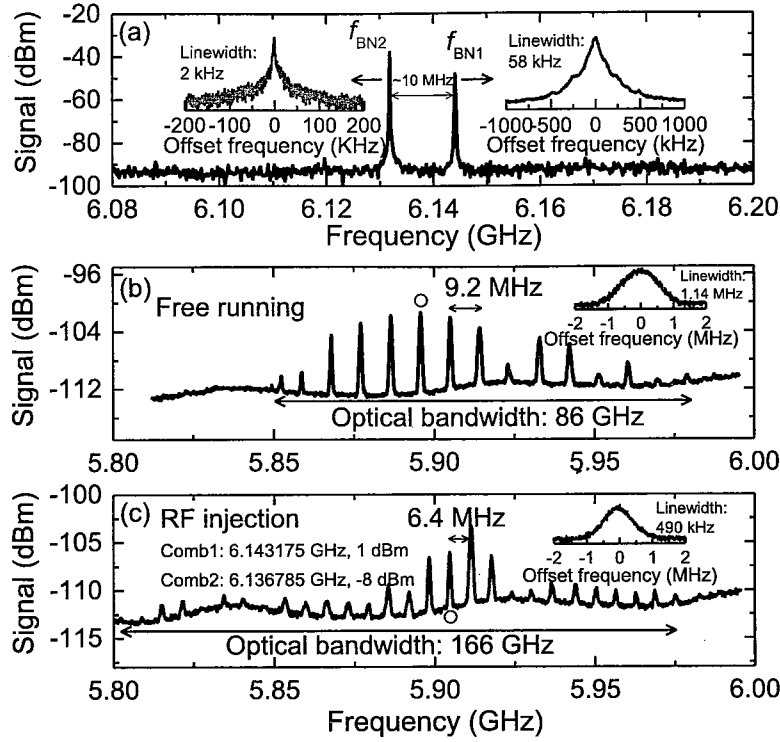


图 3.6 (a) 自由运行下光频梳 1 和光频梳 2 的电学模间拍频 (RBW = 100 kHz), 拍频线宽分别为 58 kHz (蓝色, 光频梳 1, RBW = 1 kHz) 和 2 kHz (红色, 光频梳 2, RBW = 300 Hz) (b) 在自由运行下双光梳光谱 (RBW = 500 Hz), 插图为双光梳线宽, 1.14 MHz (RBW = 300 Hz) (c) 在双射频注入下双光梳光谱 (RBW = 500 Hz), 插图为双光梳线宽, 490 kHz (RBW = 300 Hz)

Figure 3.6 Dual comb. (a) Intermode beatnote spectra of the two combs in free-running mode. The spectra are taken with a resolution bandwidth (RBW) of 100 kHz. The insets show the intermode beatnote linewidths for Comb1 (blue, RBW = 1 kHz) and Comb2 (red, RBW = 300 Hz). (b) The down-converted dual-comb spectrum of the laser combs in free-running mode measured with an RBW of 500 Hz. The inset depicts the typical linewidth of the mode marked with a red circle (RBW = 300 Hz). (c) The down-converted dual-comb spectrum of the laser combs under a microwave double injection measured with an RBW of 500 Hz. The inset depicts the typical linewidth of the mode marked with a red circle (RBW = 300 Hz). The laser Comb1 and Comb2 are injected at 6.143 175 GHz with a power of 1 dBm and 6.136 785 GHz with a power of -8 dBm, respectively. Comb1 and Comb2 are electrically pumped at 932 and 968 mA, respectively.

是由两个光频梳互相拍频形成。另外, 在图3.9中, 我们在另一片上双光梳器件中获得了不同载波的双光梳信号, 以再次证明双光梳形成过程。在图 (b) 插图对双光梳光谱中红色圆圈标记的梳齿进行线宽测量, 为 1.14 MHz (RBW = 300

Hz)。另外,我们发现多外差双光梳信号强度较弱(约-100 dBm),这主要是由于 THz QCL 自混频机制的限制,我们在下一节针对 THz QCL 的探测性能将进行详细讨论。

在图3.6(c)中,我们同时对两个光频梳进行 RF 注入调制,测量锁模状态下的双光梳光谱信号。同时,为了证明双 RF 注入调制具有可调性,进行注入的信号频率并未严格等于 f_{BN1} 、 f_{BN2} 。实验中对光频梳 1 和光频梳 2 分别注入的 $\text{RF}_1 = 6.143\ 175\ \text{GHz}$ 、 $\text{RF}_2 = 6.136\ 785\ \text{GHz}$,频率差为 6.4 MHz 而非 9.2 MHz。在双 RF 注入调制之后,可以看到双光梳光谱明显展宽,光模式增加到 28 个,对应于太赫兹光谱范围约 166 GHz ($27 \times 6.14 \approx 166\ \text{GHz}$),与图3.5显示的 180 GHz 带宽相差无几,这意味着在弱 RF 信号注入下,光频梳光谱范围扩大,几乎所有的太赫兹模式均参与双光梳形成。图(c)插图显示双光梳梳齿线宽从 1.14 MHz 减小到 490 kHz。在双光梳光谱中,梳齿线宽代表着光频梳重复频率和载波包络偏移频率共同引起的噪声。当 THz QCL 光频梳被 RF 注入调制,光频梳中的重复频率已与注入的 RF 信号同步,双光梳梳齿的线宽仅代表光频梳中载波包络偏移噪声。因此双 RF 注入调制的太赫兹片上双光梳,提供了一种测量太赫兹光频梳载波包络偏移频率的一种方法。在本例中,载波包络偏移噪声水平为 490 kHz,结合自由运行下双光梳线宽 1.14 MHz,可以粗略推算出光频梳重复频率的噪声约为 650 kHz。

针对图3.6的实验结果,综合来看,RF 注入调制能有效稳定光学模式并扩展光频梳频谱范围。在这里,由于注入的 RF 信号较弱,与自由运行下的 THz QCL 相比,还无法使更多的纵模突破阈值,注入的 RF 信号仅能够稳定已有的模式,从而拓宽光频梳光谱范围。理论上,随着注入 RF 信号强度的增加,会激发出更多的纵模,进一步展宽光频梳光谱。但不幸的是,随着 RF 功率的增加,双光梳光谱会突然消失。这是因为本例的片上双光梳系统中,没有 RF 屏蔽层,容易发生 RF 串扰效应,强 RF 信号注入谐振腔中,反而会导致另一 THz QCL 太赫兹模式紊乱。但是文献^[86]报道了采用 25 dBm 的高强度 RF 信号调制半绝缘表面等离子体波导 THz QCL,实现 330 GHz 的匀质连续宽谱。通过针对 RF 串扰优化波导结构后,可期望提高注入 RF 信号的功率,进一步扩大双光梳光谱范围。

如上文所述,我们并未在光频梳 1 和光频梳 2 谐振腔往返频率 f_{BN1} 、 f_{BN2} 上进行调制,以此来证明对光频梳(或双光梳)的 RF 注入调制具有一定的可调

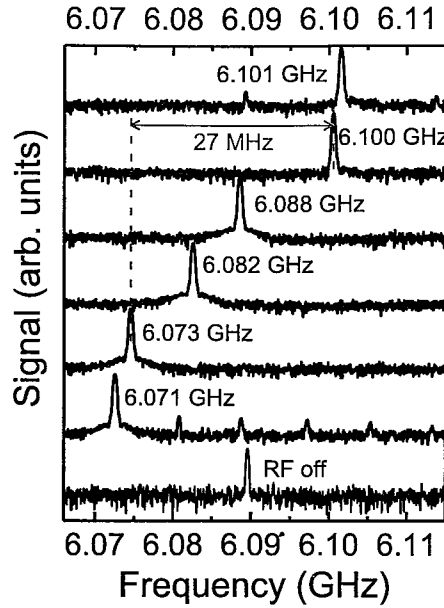


图 3.7 光频梳 1 在 0 dBm 注入功率下的锁定带宽，驱动电流为 980 mA，工作温度为 30 K。
Figure 3.7 Locking bandwidth of the laser Comb1 measured at a drive current of 980 mA at 30 K. The RF power is set to 0 dBm and the frequency is swept from 6.071 to 6.101 GHz. For reference, the bottom panel shows the intermode beat-note spectrum without RF injection.

谐性，最终成功实现双光梳光谱展宽，而且双光梳重复频率被锁定为注入的 RF 频率之差，6.4 MHz。进一步的，锁定带宽（或注入 RF 调谐范围）成为太赫兹光频梳的重要参数。对此我们的实验方案是：固定 RF 功率，在光频梳 1 的拍频信号附近进行扫频注入，观察拍频信号行为。图3.7为光频梳 1 在 980 mA 电流驱动下，对 0 dBm 的 RF 信号锁定带宽，激光器工作温度为 30 K。当 RF 信号有 6.071 到 6.101 GHz 扫频注入光频梳 1 中时，拍频信号依次表现为逐渐靠近注入信号、与注入信号锁定、与注入信号分开。当 RF 频率为 6.073 到 6.100 GHz 时，重复频率被锁定在注入的 RF 信号频率上，因此对于此工作状态下的光频梳 1，0 dBm 的锁定带宽为 27 MHz。

THz QCL 的锁定带宽很大程度上取决于 RF 信号功率。在图3.8中，我们又分别测试了光频梳 1 在 980 mA、30 K 下，-10 dBm 和 10 dBm 两种 RF 强度的锁定带宽，分别为 9 MHz 和 35 MHz。通过对比可以看出锁定带宽随 RF 功率单调增加。但是，正如前文所述，当前的双光梳系统只能采用较低强度的 RF 信号调制。一旦集成有良好的 RF 屏蔽结构，更强的 RF 注入不仅能够进一步扩大双光梳光谱，还能实现更宽的锁定带宽。

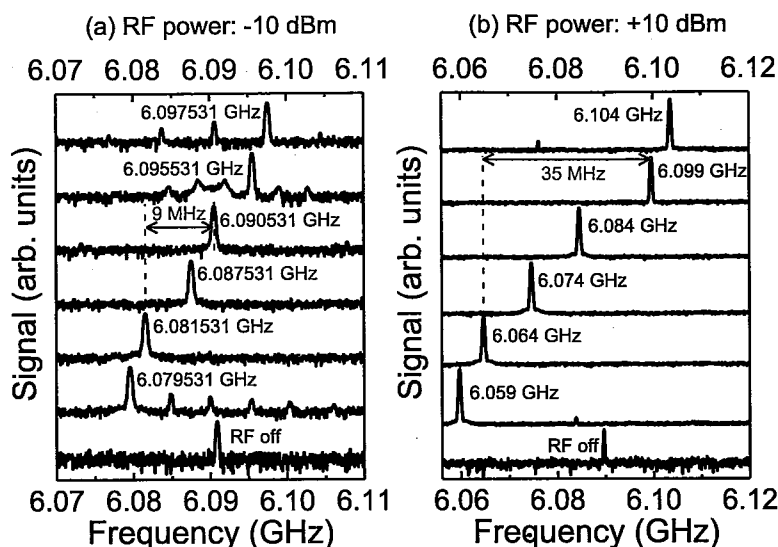


图 3.8 光频梳 1 在 -10 dBm (a)、10 dBm (b) 注入功率下的锁定带宽，驱动电流为 980 mA，工作温度为 30 K。

Figure 3.8 Locking bandwidth of the laser Comb1 measured at a drive current of 980 mA at 30 K. The RF power is set to 0 dBm and the frequency is swept from 6.071 to 6.101 GHz. For reference, the bottom panel shows the intermode beat-note spectrum without RF injection.

3.3.3 不同载波频率的双光梳光谱

在图3.9中，我们利用另一片上双光梳系统检测到不同载波频率的双光梳光谱。在本例中光频梳 1 和光频梳 2 分别施加 970 mA、1000 mA 电流，工作温度稳定为 22 K。在自由运行下，两个 THz QCL 表现出较窄的拍频信号信号，分别是 6.061 488 GHz, 6.091 258 GHz，拍频信号频率差为 29.77 MHz。由于复杂的多外差混频方式，因此可以在不同的载波频率上发现双光梳光谱。比如，光频梳 1 的梳齿可以与左侧相邻的 comb2 梳齿产生下变频的双光梳梳齿，同样也可以与右侧相邻的光频梳 2 梳齿产生下变频的双光梳梳齿，甚至，可以与次相邻的光频梳 2 梳齿互相拍频。正如图3.9中左右图所示，分别在 5.8 GHz 和 6.3 GHz 附近观察到双光梳光谱，左图双光梳重复频率为 29.47 MHz（右图为 29.47 MHz），与光频梳重复频率差 29.77 MHz 基本吻合。其中存在的细微差异可以归因于该双光梳系统由自由运行形成，并未外加调制。不仅如此，在更低频 250 MHz 左右，也观察到一系列双光梳模式，但是由于低噪声放大器、频谱分析仪等在低频段引入较高的噪声水平，因此低频双光梳信号信噪比较差。

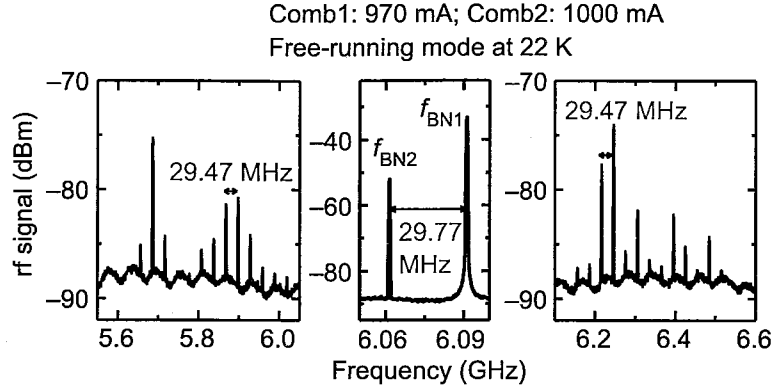


图 3.9 在不同载波频率的下变频双光梳光谱。中图：光频梳 1 与光频梳 2 的拍频频率；左图：载波为 ~ 5.8 GHz 的双光梳光谱；右图：载波为 ~ 6.3 GHz 的双光梳光谱。RBW = 300 kHz，器件工作温度 22 K。

Figure 3.9 Down-converted dual-comb spectra obtained at different carrier frequencies. Middle panel: intermode beatnote frequencies measured from comb1 and comb2. Left panel: dualcomb spectrum measured at frequencies around 5.8 GHz. Right panel: dual-comb spectrum measured at frequencies around 6.3 GHz. All the data are recorded when the two laser combs are operated in free-running mode at a stabilized temperature of 22 K. The RBW parameter used for the measurement is 300 kHz.

3.3.4 太赫兹量子级联激光器自检测性能

噪声等效功率（noise equivalent power, NEP）定义为信噪比为 1 时所需的入射辐射功率，是表征探测器性能的典型参数。为了更好的了解 THz QCL 作为探测器对多外差混频信号的检测能力，借鉴表征探测器性能的思路，计算 THz QCL 的 NEP 值。为了导出 NEP，需要两个重要的参数：响应率和噪声谱密度（noise spectral density）。响应率（单位为 V/W）等于光生电压与耦合光功率之比。在片上双光梳系统中，由光频梳 1 耦合进光频梳 2 的光功率很难具体量化，考虑到 THz QCL 光频梳的总输出功率，我们在以下计算中考虑三种情况，耦合功率分别为 1、10、和 100 nW。在本例中，响应 R（单位为 dBm），即外差信号强度，由频谱分析仪获得，具体关系为：

$$R \text{ (dBm)} = P_0 \text{ (dBm)} + 10 \times \log_{10} \frac{f_{lw}}{f_{RBW}}, \quad (3.1)$$

其中， P_0 是给定 RBW (f_{RBW}) 下频谱分析仪显示的信号强度， f_{lw} 是被测信号线宽。在图 3.6(b) 中，红色圆圈标注的双光梳梳齿强度 $P_0 = -101$ dBm，线宽 $f_{lw} = 1.14$ MHz，频谱分析仪 $f_{RBW} = 500$ Hz，因此 $R = -67.4$ dBm。考虑到频谱分析

仪阻抗为 $50\ \Omega$ ，那么响应可以换算为 $9.5 \times 10^{-5}\ \text{V}$ 。在不同的耦合功率下，计算得到响应率，如表3.1所示。

表 3.1 耦合功率为 1、10 和 100 nW 对应的响应率和 NEP

Table 3.1 Responsivity and NEP parameters of the QCL detector evaluated for optical power values of 1, 10, and 100 nW

Power (nW)	Responsivity (V/W)	NEP ($\text{pW}/\sqrt{\text{Hz}}$)
1	9.5×10^4	0.21
10	9.5×10^3	2.1
100	9.5×10^2	21

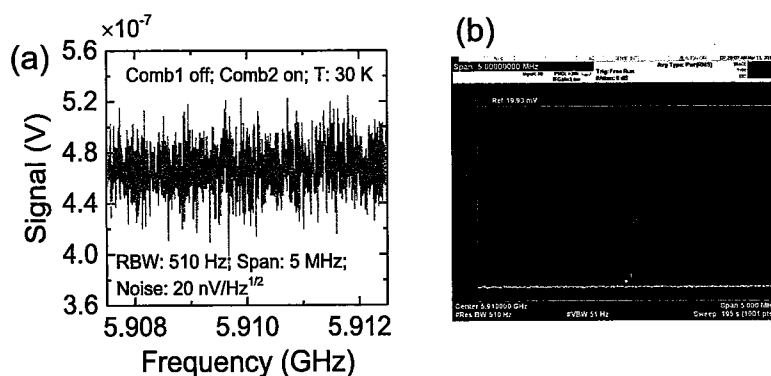


图 3.10 (a) 在 30 K 下，对光频梳 2 施加 968 mA 电流，光频梳 1 关闭，记录的 5.91 GHz 左右的噪声轨迹 (b) 频谱分析仪测试界面截屏

Figure 3.10 Noise measurement of laser Comb2 investigated in this work. (a) Recorded trace of the noise at a frequency of around 5.91 GHz. The laser Comb2 is operated in cw mode at 968 mA at 30 K and Comb1 is switched off. (b) Photocopy of the spectrum analyzer screen for the noise measurement

图3.10记录的是计算 NEP 的另一个重要参数，噪声谱密度。在 30 K，连续波模式下，光频梳 2 以 968 mA 电流驱动，光频梳 1 关闭，测得噪声谱密度为 $20\ \text{nV}/\sqrt{\text{Hz}}$ 。最终，如表3.1所示，得到 THz QCL 在 1、10 和 100 nW 耦合功率下的 NEP 分别为 0.21、2.1 和 $21\ \text{pW}/\sqrt{\text{Hz}}$ 。THz QCL 与量子阱红外光电探测器 (quantum-well infrared photodetectors, QWIP) 均是基于半导体多量子阱结构的光电器件，且均工作在太赫兹波段，通过对比二者有助于我们正确评估 THz QCL 的 NEP。对于 QWIP 而言，典型的 NEP 值在 0.14 到 $10\ \text{pW}/\sqrt{\text{Hz}}$ 之间^[177,197–199]。由于 THz QCL 并未针对多外差混频探测做耦合方式等方面的优化，因此 NEP 应

该大于 QWIP, 我们认为, THz QCL 的 NEP 为 $21 \text{ pW}/\sqrt{\text{Hz}}$ 左右是可取的, 即光频梳 1 与光频梳 2 之间耦合光功率约为 100 nW。

该项工作以 “On-chip dual-comb semiconductor-based terahertz sources under double microwave injections” 为题在 THz QCL 领域顶级会议 “2019 Infrared Terahertz Quantum Workshop (2019 ITQW)” 向各国专家学者展示, 荣获最佳学生海报奖。



图 3.11 2019 ITQW 最佳学生海报奖

Figure 3.11 2019 ITQW Best student poster award

3.4 本章小结

最终, 我们基于双 RF 注入调制技术实现 THz QCL 片上双光梳系统。证明即使在较弱的 RF 强度下, 也能有效稳定光频梳模式间距, 实现双光梳光谱范围从 86 GHz 扩大到 166 GHz, 接近太赫兹光频梳 180 GHz 光谱带宽。此外, 在双 RF 注入调制下, 双光梳梳齿线宽从 1.14 MHz 降低到 490 kHz, 提供了直接测量光频梳载波包络偏移频率噪声的方法。通过射频屏蔽结构的设计, 提高注入 RF 信号功率, 有望进一步拓宽双光梳光谱。

第4章 紧凑型太赫兹多外差双光梳系统

4.1 引言

傅里叶变换红外光谱 (Fourier Transform Infrared Spectroscopy, FTIR)、太赫兹时域光谱 (Terahertz Time-domain Spectroscopy, THz-TDS) 在进行光谱测量时, 均是通过机械控制的运动元件扫描时域信号, 再经过傅里叶变换获得频谱光谱数据。相比之下, 双光梳光谱在数据采集、光谱分辨率方面都具有无可比拟的优势。绪论针对三种太赫兹光谱方法已进行详细的对比, 还介绍了太赫兹双光梳的两种主要方式: 光频梳 + 高速探测器, 片上双光梳系统。尽管目前基于光频梳 + 高速探测器的双光梳系统已经应用于物质的太赫兹光谱检测, 但是该类双光梳系统往往需要复杂精细的光路结构, 体积庞大, 性能也受限于高速探测器。片上双光梳系统固然紧凑, 但是两个光频梳之间的耦合主要发生在激光器端面边缘和衬底中, 且整个系统置于高真空超低温环境下, 不具备对物质成谱的条件。

太赫兹双光梳光谱技术目前的发展趋势仍然是快速、高分辨率、结构紧凑小型化。本章节中我们提出了一种基于 THz QCL 自探测技术的紧凑型太赫兹梳多外差双光梳谱仪。在本系统中无需移动的结构、复杂的光路、外部探测器, 全部系统均集成在一个低温恒温器中。利用该系统, 成功测量了 GaAs 标准具的透过率和太赫兹波段的水汽吸收峰。

4.2 太赫兹双光梳系统结构

本章节中紧凑型太赫兹多外差双光梳系统中的 THz QCL 光频梳同样采用束缚态向连续态跃迁与共振声子结合的有源区结构, 波导为半绝缘表面等离子体, 尺寸为 $150\text{ }\mu\text{m} \times 6\text{ mm}$ 。有源区结构、波导结构和尺寸的选择均是基于稳定的光频梳工作模式考虑, 具体原因请参照绪论及3.2章节中的有关介绍, 在此不再赘述。图4.1为紧凑型太赫兹多外差双光梳系统示意图。其中, 图 (a) 介绍了该双光梳系统的探测原理及光学耦合方式。不同于片上双光梳中两个光频梳同向辐射太赫兹波, 在此双光梳系统中, 两个光频梳在空间上完全分开, 相对辐射太赫兹脉冲, 因此可以在光频梳之间引入待测样品。与片上双光梳相同的是同样采用 THz QCL 自探测技术, 其中光频梳 1 辐射出的太赫兹脉冲与样品相互作用之后

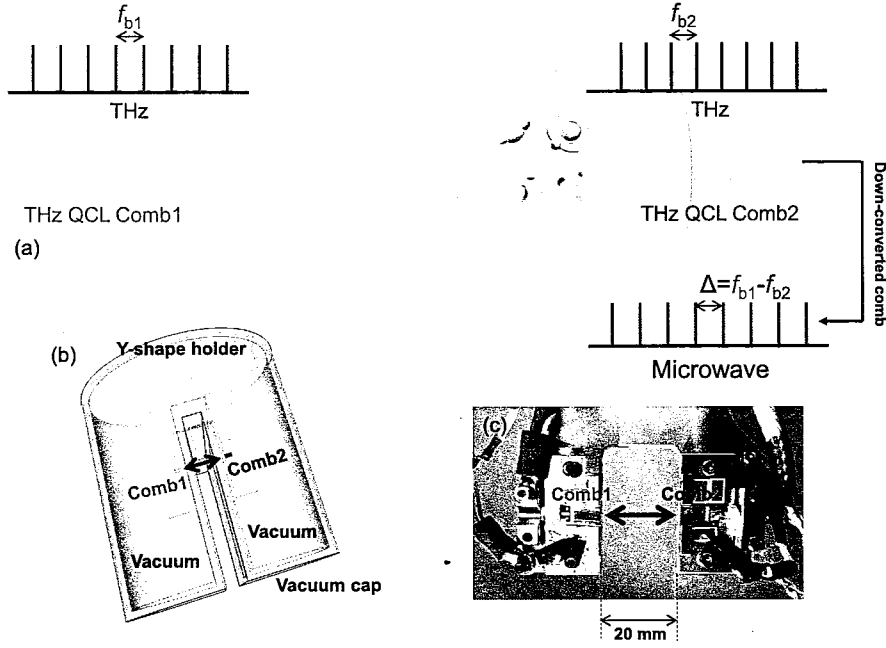


图 4.1 紧凑型太赫兹双光梳多外差系统原理图 (a)，结构示意图 (b)，实物图 (c)

Figure 4.1 Schematics of the compact terahertz dual-comb multiheterodyne system. (a) Optical coupling of the two terahertz QCL combs and illustration of microwave frequency synthesis. (b) Y-shape dual-comb geometry with a vacuum cap. (c) Photo of the Y-shape holder. The distance between the two output laser facets is 20 mm

耦合进入光频梳 2，并与光频梳 2 的太赫兹梳齿相互作用，产生下转换的微波光频梳，即多外差双光梳信号，该信号由光频梳 2 探测。如图 (b) 所示，通过 Y 型样品架实现图 (a) 中的耦合方式。请注意虽然两个 THz QCL 光频梳在空间上是分开的，但是由于 Y 型样品架的设计，并非等同于前文绪论中提到的光频梳 + 高速探测器双光梳系统中两个光频梳的完全空间分离，实际上，此系统中的两个光频梳仍然共享相同的温度变化，在一定程度上在此双光梳光谱中消除了温度变化带来的噪声影响。两个光频梳位于 Y 型样品架的两个分支上，并由高密度聚乙烯 (high-density polyethylene, HDPE) 材料制成的真空罩维持腔内真空度。该真空罩结构的独特性体现在光频梳之间创建了一个自由空间的样品腔。图 (c) 为集成两个光频梳的 Y 型样品架实物照片，光频梳端到端的距离为 20 mm。

4.2.1 太赫兹双光梳耦合率计算

从图 4.1(a) 中可以看出，由于太赫兹 QCL 具有一定的远场发散角，从光频梳 1 发出的太赫兹辐射只有很少一部分耦合进光频梳 2 中。与片上双光梳类似，

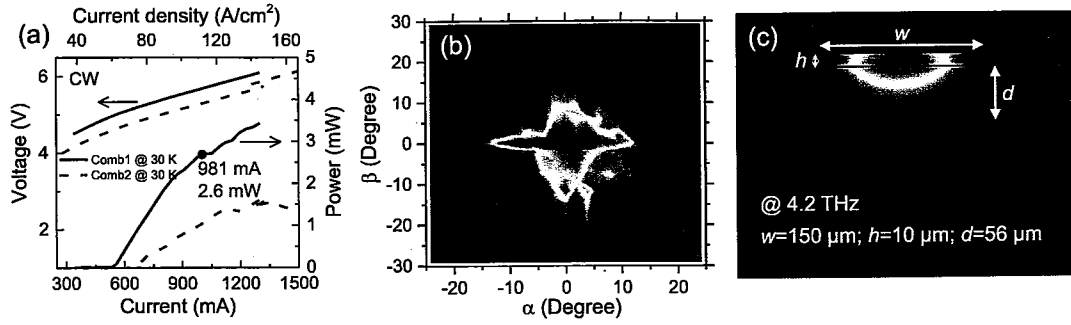


图 4.2 (a) 在 30 K, cw 模式下工作的两个光频梳功率-电流-电压曲线。(b) 在 1000 mA 驱动电流下 comb1 的远场光斑。(c) THz QCL 中基横模 (4.2 THz) 电场分布, w 、 h 、 d 分别代表波导脊条宽、高和光学模式向衬底中渗透深度

Figure 4.2 (a) Light-current-voltage characteristics in continuous wave (cw) mode of the two lasers recorded at a stabilized temperature of 30 K. (b) Far-field beam profile of Comb1 measured at 1000 mA. (c) Calculated two-dimensional electric field distribution of the fundamental mode at 4.2 THz for the QCL structure. w , h , and d denote the ridge width, the ridge height, and the depth into the substrate that the optical mode can reach, respectively

量化耦合功率是我们工作的一个重点。计算过程如下：耦合进光频梳 2 的功率 P 可以写成，

$$P = P_0 \times \frac{\int_{\alpha} \int_{\beta} I(\alpha_0, \beta_0) d\alpha d\beta}{\int \int_{total} I(\alpha, \beta) d\alpha d\beta}, \quad (4.1)$$

其中, P_0 是到达光频梳 2 端面处的光频梳 1 功率, $I(\alpha, \beta)$ 指图 4.2(b) 中光频梳 1 的远场强度分布, α 和 β 分别表示水平竖直两个方向。公式 4.1 中的分子项用于计算远场中与光频梳 2 相互作用的强度。 α_0 与 β_0 是考虑光频梳 2 端面电场分布 (图 4.2(c)) 以及两个光频梳之间的距离 20 mm 而获得的水平和竖直角。公式 4.1 的分母项表示总的远场强度。在计算中, 考虑 HDPE 窗片及空气中水汽吸收等, 认为 50% 的功率损耗, P_0 可以估计为 1.3 mW (光频梳 1 的 L-I-V 测试请参考图 4.2(a))。根据图 (c) 所示的光频梳 2 端面电场分布, α_0 与 β_0 的范围分别为 -0.09° 至 $+0.09^\circ$, -0.21° 至 $+0.21^\circ$ 。因此与光频梳 2 相互作用的远场强度占总强度的比值 $R = 3.81 \times 10^{-4}$ 。最后, 估算出注入光频梳 2 产生多外差光谱的功率 $P \sim 490 \text{ nW}$ 。请注意, 在耦合功率计算中, 远场光斑的数据是由 1° 的分辨率测量获得 (测量方法请参考 2.2.2 章节), 而在公式 4.1 的积分运算中需要更精确的积分域, 因此采用插值法是远场光斑的原始数据以 0.01° 为步长进行网格化。

耦合功率的大小对于多外差双光梳光谱至关重要，正如我们在第3章介绍的一样，本章节提出的双光梳光谱方案同样基于 THz QCL 自探测技术，如果耦合率过大，会导致注入锁定。一旦两个光频梳彼此锁定，导致重复频率完全一样，就无法形成双光梳。也正是基于此，本双光梳系统无需任何光学元件（如硅透镜、离轴抛物面镜等）改善光路以获得较大耦合。实际上，为了避免注入锁定，光频梳 1 和光频梳 2 安装在 Y 型样品架上时，并非完全端面对端面，而是有意的通过上下移动或偏转等方式保证较小的耦合率，但这会导致上述计算的耦合率与实际情况存在一定的误差。分离式太赫兹多外差双光梳系统更多的是面向实际的光谱测量应用而提出的测试方法，因此我们的重心将主要放在多外差双光梳光谱质量上。至于耦合率的变化对双光梳光谱影响的动态过程，目前此系统还无法对其表征。

4.2.2 太赫兹双光梳驱动电流范围

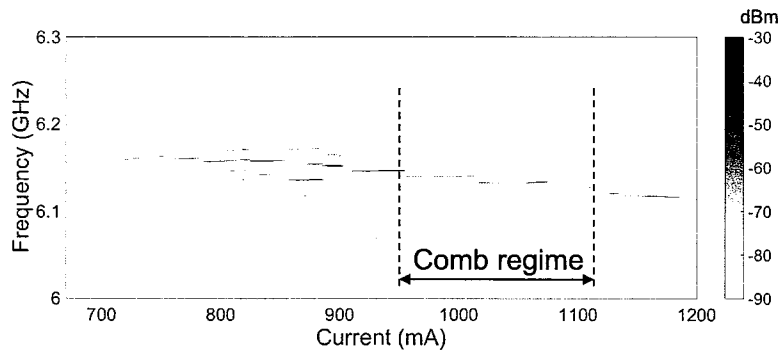


图 4.3 20 K 下光频梳 2 的电学拍频信号随驱动电流的变化 (RBW = 100 kHz)

Figure 4.3 Intermode beat note mapping of laser Comb2 measured with an RBW of 100 kHz

在3.2.2章节中，我们通过片上双光梳的 L-I、远场光斑表征得出双光梳器件工作时产生的焦耳热会严重退化器件性能。同样的，在本章节的双光梳系统中，焦耳热问题也需要关注。如图4.1b 中，虽然本系统的两个光频梳并非在同一衬底上，但是光频梳 1 与光频梳 2 安装在 Y 型散热镀金铜样品架上，由同一低温制冷器控制温度。一方面光频梳 1 与光频梳 2 分享相同的温度变化，这有利于提高双光梳光谱质量。另一方面，当光频梳 1 与光频梳 2 同时工作时，为了维持光频梳的工作状态，需要制冷器由较大制冷功率，因此本方案选择的制冷方式为液氮流制冷。

在图4.2(a) 中，光频梳 1 和光频梳 2 显示出较低的阈值电流和较大的电流驱

动范围 (580-1200 mA)。这种优异的特性让双光梳驱动电流范围的选择有了更高自由度，但是在整个驱动电流范围内，THz QCL 并不是始终以光频梳模式工作。进行双光梳实验之前，首要的需确定太赫兹双光梳的驱动电流范围，采用的方法为测量不同电流下的电学模间拍频信号。

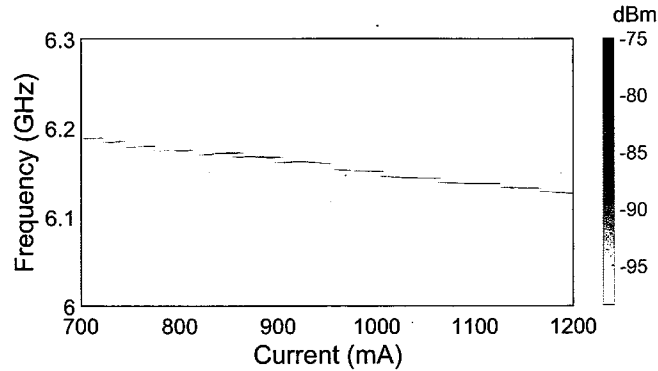


图 4.4 20 K 下光频梳 1 的电学拍频信号随驱动电流的变化 (RBW = 100 kHz)

Figure 4.4 Intermode beat note mapping of laser Comb1 measured with an RBW of 100 kHz

图4.3绘制出光频梳 2 在整个动态范围内的拍频信号。随着驱动电流的增加，拍频频率呈现出明显的红移。当驱动电流低于 900 mA 时，拍频信号要么有较宽的线宽，要么有多个模式，这意味着在此电流驱动下，太赫兹模式彼此相干性较差，模式间距多变，无法称之为以光频梳模式工作。而驱动电流在 950-1100 mA 之间时，具有单一拍频信号且具有较窄的线宽，这意味着 THz QCL 以光频梳模式工作。同理，在图4.4中，我们同样测试了光频梳 1 的拍频信号随驱动电流的变化。在 900-1100 mA 的驱动电流范围之内，光频梳 1 具有较窄的拍频信号线宽。需要说明的是，光频梳 1 的拍频信号强度要明显弱于光频梳 2，这是因为针对光频梳 1 的拍频信号测量时，没有安装用于阻抗匹配的微带线，仅将 RF 探头靠近 THz QCL 波导。由于没有物理上的直接接触，因此测到的信号要比光频梳 2 弱的多（弱 45 dB 左右），这也可以解释在图4.4中，全动态范围内都表现出较好的拍频信号。综合考虑器件的焦耳热及光频梳驱动电流范围，两个光频梳在 950-1100 mA 之间的电流范围内驱动。

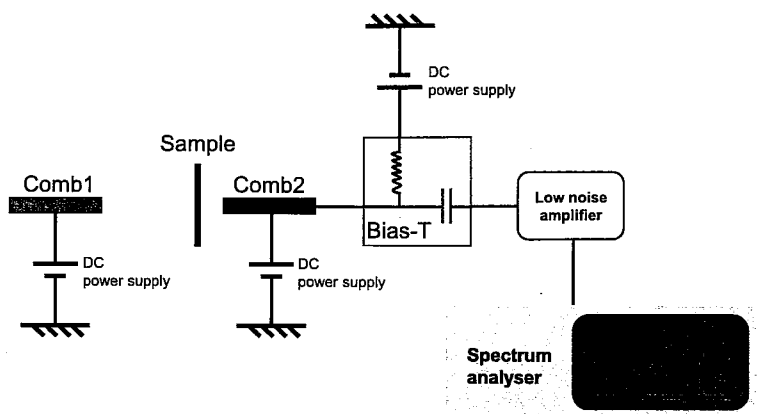


图 4.5 双光梳系统电学连接方式

Figure 4.5 Schematics of the dual-comb measurement setup

4.3 太赫兹双光梳光谱

4.3.1 双光梳光谱测试方法

图4.5显示了在本例中使用的双光梳光谱测量方法。其中光频梳 1 由直流电源驱动，发出的太赫兹辐射与样品相互作用之后耦合进光频梳 2 中，与光频梳 2 的太赫兹辐射拍频，产生外差双光梳信号。该信号由 T 型偏置器从光频梳 2 中提取出来，被低噪声放大器放大之后显示在频谱分析仪上。同时光频梳 1 和光频梳 2 的拍频信号也经由此线路提取。光频梳 2 的工作电流由 T 型偏置器 DC 端注入。

4.3.2 紧凑型双光梳光谱

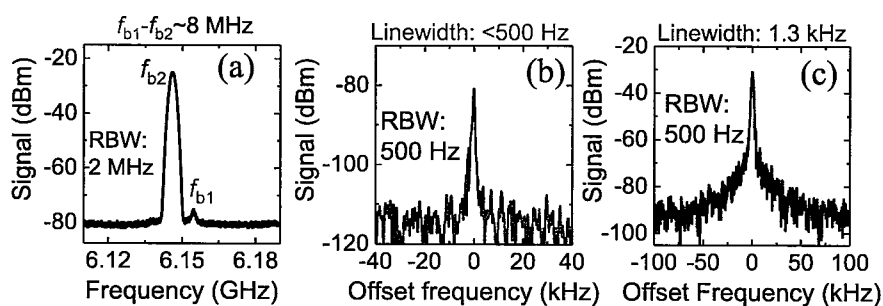


图 4.6 (a) 光频梳 1 与光频梳 2 同时工作时，由光频梳 2 检测到的电学模间拍频信号 (RBW = 2 MHz)。(b) (c) 分别为光频梳 1 和光频梳 2 的拍频信号线宽

Figure 4.6 (a) Intermode beat notes measured from the detection comb (Comb2) with an RBW of 2 MHz when the two laser combs are simultaneously switched on. (b, c) Measured line widths of f_{b1} and f_{b2} , respectively

在图4.6中，光频梳 1 与光频梳 2 分别以 1000 mA、945 mA 电流驱动下测得的拍频信号， f_{b1} 与 f_{b2} 。频率差 $\Delta f = 8$ MHz。在图 (a) 中， f_{b2} 强度明显高于 f_{b1} ，这是因为信号是由光频梳 2 作为外差探测器探测。在图4.6(b) 和 (c) 中，分别显示了两个光频梳拍频信号线宽 (RBW = 500 Hz)。请注意，所有测试中，THz QCL 均是以自由运行模式工作，因此光频梳是依靠于四波混频效应自启动形成的。

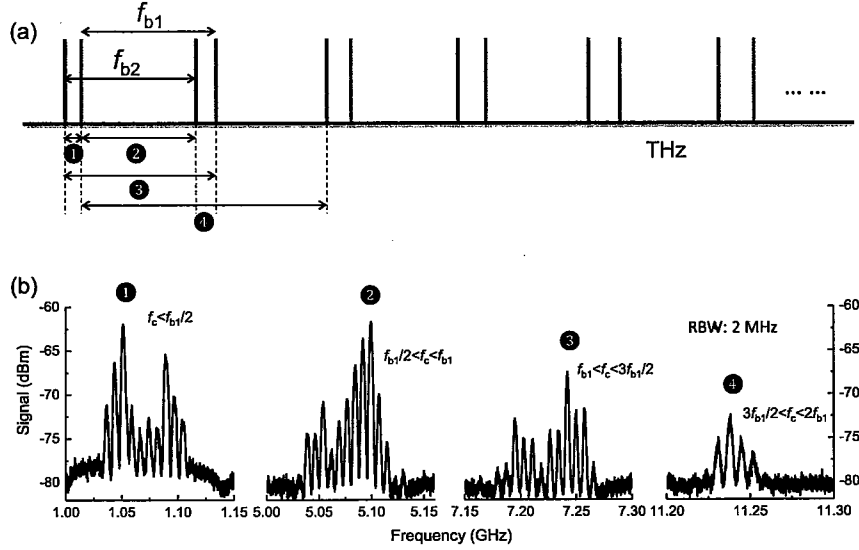


图 4.7 (a) 不同载波双光梳产生过程 (b) 双光梳光谱

Figure 4.7 (a) Schematic plot of the different dual-comb generation processes. (b) Measured dual-comb spectra at different frequencies following the processes 1, 2, 3, and 4 shown in (a)

图4.7显示了在没有任何样品情况下的双光梳光谱，在不同载波上，共观察到 4 组双光梳信号（图 (b)）。双光梳每根梳齿是由来自两个光频梳的梳齿对拍频产生的，不同间距的梳齿对相互作用可以在微波范围内不同的载波上产生双光梳，在图 (a) 中我们简要的描绘这个过程：在 THz 波段，红色梳齿是光频梳 1 产生，重复频率为 f_{b1} ；蓝色梳齿是光频梳 2 产生，重复频率为 f_{b2} 。根据图4.6，重复频率的频率差为 Δf 。不仅相邻的太赫兹梳齿可以互相拍频（如过程 1 和 2），在次相邻甚至更远的两个太赫兹模式之间也可以产生双光梳信号（如过程 3 和 4）。例如在过程 1 发生在间距最小的两个梳齿对中，因此产生的双光梳信号具有最低频的载波。由于太赫兹梳齿对之间非线性耦合强度的差异以及不同频率下微波线缆的衰减不同，导致在不同载波的双光梳信号强度和模式个数都不相同。

我们注意到，在图4.7中，过程 1 与过程 2 产生的双光梳光谱相对于中心频率

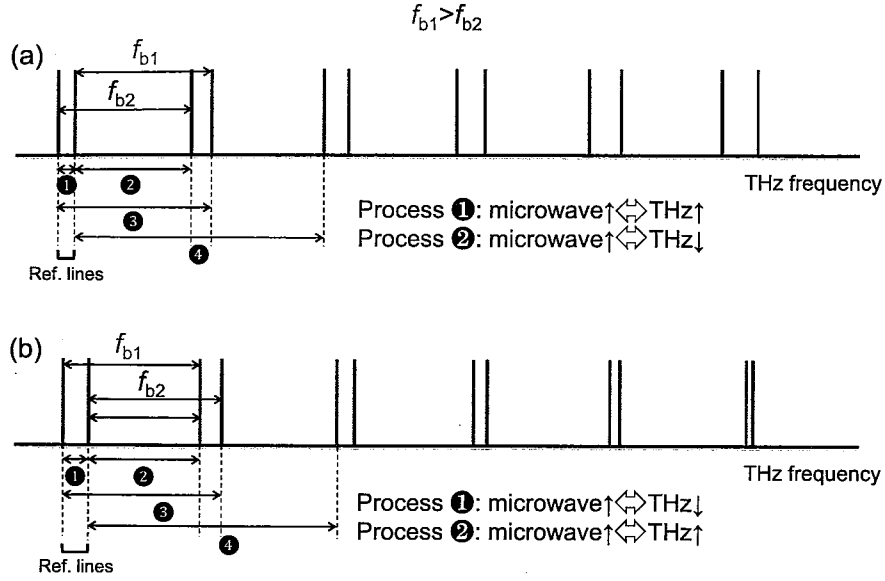


图 4.8 对于 $f_{b1} > f_{b2}$ ，光频梳梳齿对相对位置与 THz-RF 链的关系 (a) 参考线位置，光频梳 2 在光频梳 1 左边 (b) 参考线位置，光频梳 1 在光频梳 2 左边

Figure 4.8 Line position dependences of the microwave and terahertz frequency link for $f_{b1} > f_{b2}$. (a) The blue reference line (Comb2) is on the left side of the red reference line (Comb1). (b) The red reference line (Comb1) is on the left side of the blue reference line (Comb2).

(约 $(1.07 + 5.08) / 2 = 3.075$ GHz) 呈现出一定的镜像关系。这种镜像效应表明这两个双光梳光谱之间具有相反的 THz-RF 链。我们以图4.8来阐明不同的 THz-RF 链对双光梳光谱的影响。THz-RF 链对于双光梳光谱至关重要，它决定着太赫兹光频梳梳齿与双光梳梳齿之间的对应关系。原则上，THz-RF 链很大程度上取决于 f_{b1} 与 f_{b2} 的大小以及两个太赫光频梳梳齿对的相对位置。在图4.8中，我们假定于 $f_{b1} > f_{b2}$ 。请关注参考线位置（过程 1），在图 (a) 中，蓝色太赫兹梳齿（来自光频梳 2）位于红色梳齿（光频梳 1）的左侧，则随着太赫兹频率的增加，过程 1 产生的双光梳梳齿频率以 $\Delta f = f_{b1} - f_{b2}$ 递增，而过程 2 产生的微波梳齿频率逐渐减小。类似地，在图 (b) 中，红色太赫兹梳齿（来自光频梳 1）位于蓝色梳齿（光频梳 2）左侧，则情况与图 (a) 恰好相反：过程 1 产生的双光梳梳齿频率随着太赫兹频率增加而减小，而过程 2 逐渐增大。如果 $f_{b2} > f_{b1}$ ，那么上述过程恰好相反。

正如前文所述，本系统中的两个 THz QCL 均是在自由运行下自启动形成的光频梳，因此两个光频梳梳齿相对位置未知，亦无法用图4.8的方法确定 THz-RF

链。在下一节中，将介绍采用水汽吸收峰和 GaAs 标准具透射谱等确定 THz-RF 链的方法。此外，图4.7中表现出来的镜像关系，恰好也说明了双光梳光谱信号是由两个光频梳多外差拍频产生的。

4.3.3 太赫兹双光梳光谱幅值噪声

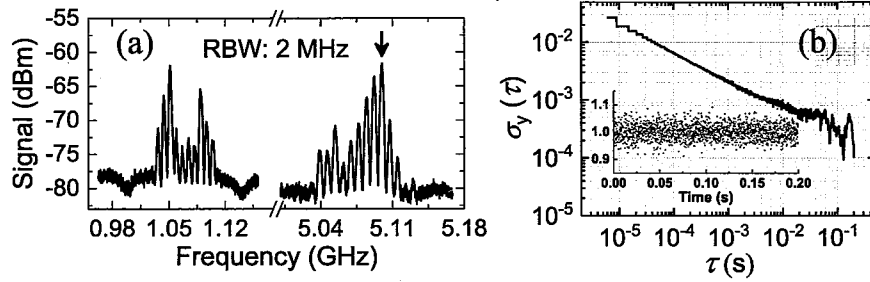


图 4.9 (a) 在 1.07 GHz、5.08 GHz 附近双光梳光谱 (RBW = 2 MHz) (b) 图 a 中蓝色箭头标注的双光梳梳齿幅值艾伦方差，积分时间 200 ms

Figure 4.9 (a) Representative dual-comb spectra at approximately 1.07 and 5.08 GHz. (b) Allan deviation of the amplitudes of the dualcomb line, as indicated by the blue arrow in (a). The inset shows the oscillations of the amplitude of the dual-comb line

噪声特性是表征光频梳的重要参数，可简单划分为相位噪声和振幅噪声。其中相位噪声的一个重要方面指光频梳中模间拍频频率的振荡，如 Gustavo Villares 等人在中红外双光梳系统中（光频梳 + 高速红外探测器 MCT），基于多外差测量方法表征中红外光频梳的模式间距精度为 7.5×10^{-16} [165]。在光谱测试应用中，幅值噪声决定双光梳系统的可用动态范围。为了评估本例中双光梳多外差光谱系统的幅值噪声特性，我们借鉴频率稳定性的表征方法，对双光梳梳齿幅值进行艾伦偏差（Allan deviation）分析。通过频谱分析仪以 $2 \mu\text{s}$ 时间分辨率采集 200 ms 内特定梳齿（图4.9(a)中蓝色箭头标记处）的振幅随时间的振荡，并将其归一化（如图4.9(b)插图），对该数据进行艾伦偏差分析，如图4.9(b)。当积分时间小于 20 ms 时，艾伦偏差随积分时间单调减小，当积分时间大于 20 ms 时，艾伦偏差出现振荡。然而在积分时间为 1 s 的艾伦偏差测试中，这种振荡不会出现，如图4.10。因此我们将这种振荡行为归因于测试过程中出现的机械振荡。与其他相似工作对比，以验证我们的双光梳光谱系统具有较好的幅值噪声控制。Gustavo Villares 等人对中红外双光梳幅值噪声进行艾伦偏差分析，其量级为 10^{-1} 到 10^{-3} 之间（积分时间 1 ms）[165]，在本例中为 10^{-3} 量级。同样基于 THz QCL 的双光梳系统，Sterczewski L. A. 等人报道的艾伦偏差量级为 10^{-2} （积分时间 100 ms）[166]，

在本例中为 10^{-4} 量级^[200]。

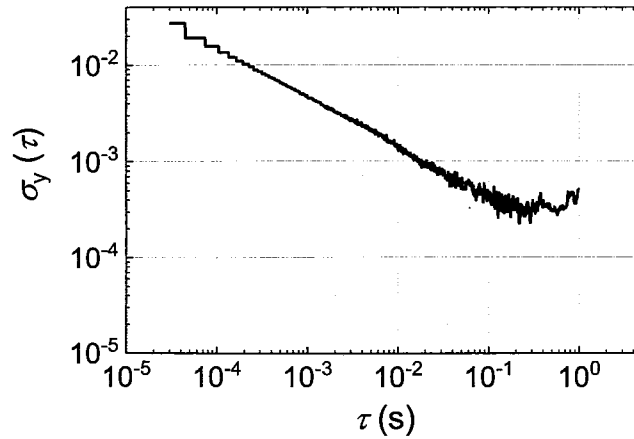


图 4.10 图4.9a 中蓝色箭头标注的双光梳梳齿幅值艾伦方差，积分时间 1 s

Figure 4.10 Allan deviation of the amplitudes of the dual-comb line indicated by a blue arrow in Fig. 4.9a for a total acquisition time of 1 s

4.4 紧凑型多外差双光梳光谱应用

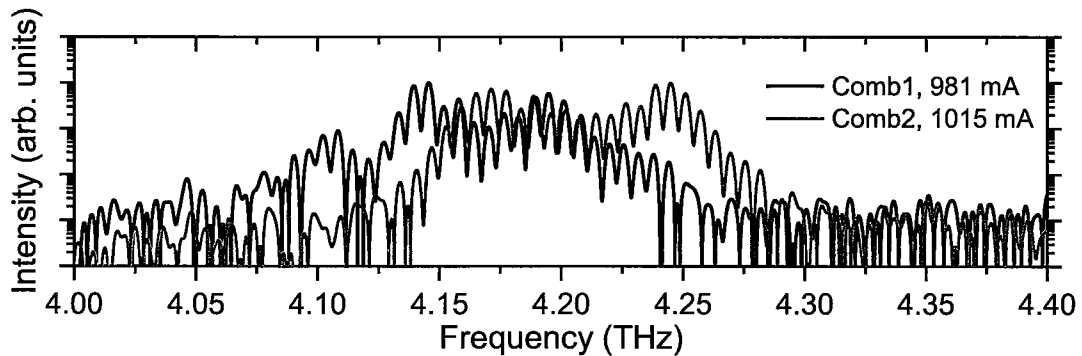


图 4.11 光频梳 1（黑色）与光频梳 2（红色）的太赫兹光谱，其中阴影部分为频谱覆盖区域

Figure 4.11 Emission spectra of the QCL comb1 (black) and comb2 (red). The shaded area depicts the frequency regime where the two laser combs are spectrally overlapped for dual-comb generations

在图4.11中，显示了光频梳 1 与光频梳 2 分别在 981 mA 和 1015 mA 驱动电流下的太赫兹光谱，工作温度为 34.5 K。其中阴影为太赫兹光谱重叠部分，即参与双光梳形成的太赫兹模式。请注意，图4.11中两个光频梳的驱动电流与工作温度与图4.7并不相同，因此双光梳带宽、数目、中心频率等不同。图4.12(a)中插图为此条件下产生的双光梳光谱，共 21 个模式，对应太赫兹光谱带宽为 120

GHz，与图4.11阴影部分基本吻合。

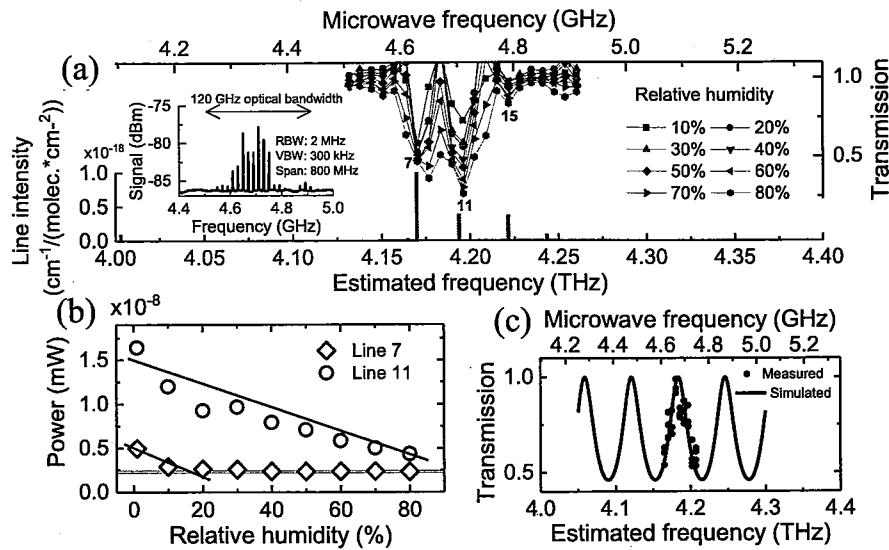


图 4.12 (a) 在不同 RH 值下双光梳光谱强度，将所有数据按 1%RH 数据进行归一化。其中第 7、11、15 三根梳齿在不同 RH 值下显示出较大的变化，分别对应 4.17、1.193 和 4.221 THz 水汽吸收峰。插图为在 1% 下的双光梳光谱。(b) 第 7、11 根梳齿功率随 RH 的变化曲线。(c) 使用双光梳多外差光谱系统测量 625 μm 厚的 GaAs 标准具透射谱，其中黑色曲线为一维传输矩阵计算的透射曲线

Figure 4.12 (a) Peak intensities of dual-comb spectra at different RH values. All the data were normalized to the results measured at 1%RH. The numbers 7, 11, and 15 denote the line index of the dual-comb spectra that correspond to the three water absorptions at 4.17, 4.193, and 4.221 THz, respectively. The inset shows a typical dual-comb spectrum measured with an RH of 1%. (b) Power as a function of RH for lines 7 and 11. The scatters are measured results, and the solid lines show the linear relationship between the measured power and the RH. The horizontal line shows the noise level of the dual-comb measurement system. (c) Transmission of a 625-μm-thick GaAs etalon measured using the dual-comb system. The circles are the extracted peak intensities from the dual-comb lines. The black curve is a simulation for comparison.

4.4.1 多外差双光梳光谱对水汽吸收峰的测量

首先我们利用太赫兹多外差双光梳光谱对水汽在 4.13-4.27 THz 波段内的吸收峰进行测量。

测量过程如下：将样品腔（图4.5(b)）置于可改变相对湿度（relative humidity, RH）的密闭空间内，在不同 RH 下由频谱分析仪记录双光梳光谱，频谱分析仪

设置 $\text{RBW} = 2 \text{ MHz}$ ，显示带宽 (video bandwidth, VBW) = 300 kHz。

数据处理方法如下：以 1%RH 下的双光梳光谱强度作为参考，将不同 RH 的双光梳光谱相对参考光谱归一化处理，图4.12(a) 为处理后的光谱数据，显示不同 RH 下每根双光梳梳齿的强度。

数据分析方法如下：在 4.139-4.261 THz 波段内存在水汽吸收峰，会导致某根或某几根太赫兹光频梳梳齿强度降低，根据 THz-RF 链，相应的某根或某几根双光梳梳齿会随着 RH 呈现处较大的强度变化。在图4.12(a) 中，我们注意到在 4.63 GHz 和 4.71 GHz（第 7、11 根双光梳梳齿）处显示出较大的水汽吸收。为了粗略的校准 THz-RF 的对应关系，从 HITRAN 数据库中了解到，在该双光梳覆盖的太赫兹波段内存在两个强吸收峰，分别为 4.17 THz 和 4.193 THz，在图4.12(a) 中以蓝线标记。至此，我们根据已知吸收峰的物质（水）确定了 THz-RF 之间的对应关系。

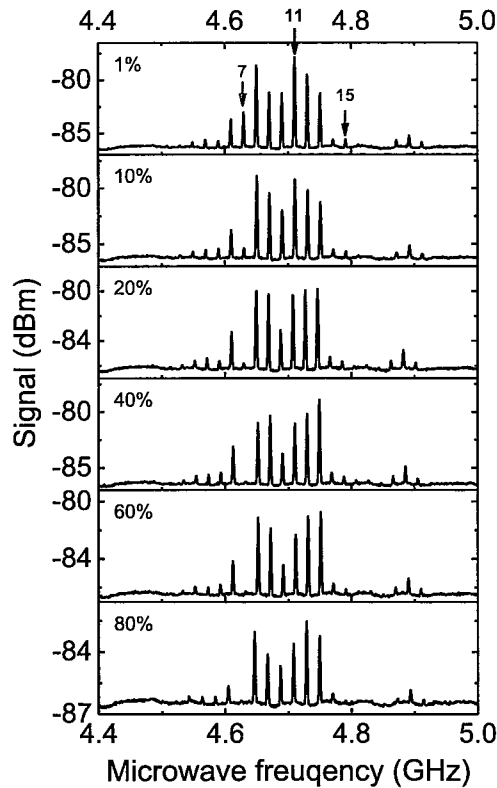


图 4.13 不同相对湿度下测得的下变频双光梳光谱

Figure 4.13 Down-converted dual-comb spectra measured at different relative humidity values.

The arrows in the top panel show the line index

需要再说明的是，根据 HITRAN 数据库，4.17 THz 具有比 4.193 THz 更高的

吸收率，原则上在双光梳光谱范围内第7根梳齿显示处更大的强度变化。但这与我们的测试结果相矛盾。这是由于多外差双光梳光谱系统的信噪比限制导致的。特意的，我们绘制了第7、11根双光梳梳齿强度随RH变化的曲线，如图4.12(b)所示。第11根梳齿（绿色圆圈标记，对应4.193 THz）强度随RH强度呈线性关系，遵循兰波特吸收定律^[201,202]。但是第7根梳齿（红色菱形标记，对应4.17 THz）强度随着RH增大迅速下降，当RH大于20%时，其强度已经下降到噪声水平（灰色水平线处，约 $(2.17-2.48) \times 10^{-9}$ mW，噪声水平来自于图4.13。换言之，第7根梳齿在RH为20%时便已经“饱和”，无法在整个RH范围内观察到如11梳齿一样的线性关系。另外，在图4.13中，通过对比不同RH下的双光梳光谱也可以发现第7根梳齿在20%时就几乎“消失”了。这种情况同样发生在第15根梳齿（对应于4.221 THz强吸收峰），因此在双光梳光谱中第15根梳齿的强度变化较小。

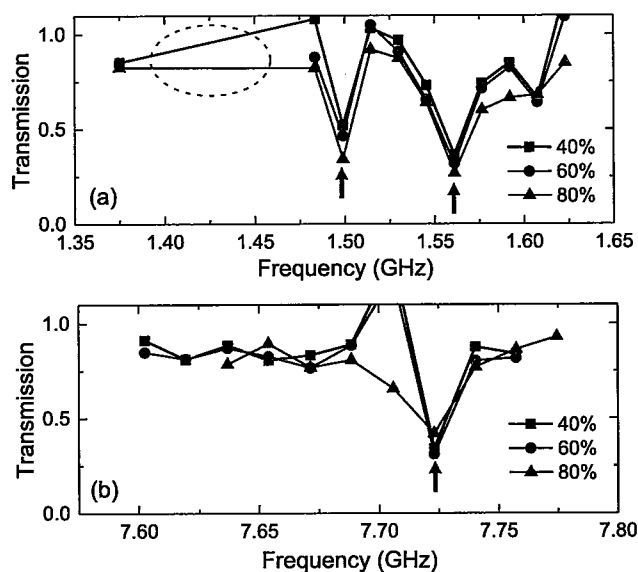


图 4.14 载波为 1.5 GHz 和 7.7 GHz 处双光梳梳齿强度随 RH 的变化。

Figure 4.14 Transmission of water vapors at different RH from 40% to 80% measured using the first (a) and third (b) group of dual-comb lines. The data are normalised to the trace measured at 1% RH. In a, the dual-comb line in the dashed circle are missing due to the poor signal to noise ratio. The red arrows mark the possible water absorptions.

另外，我们记录了不同载波的双光梳信号随RH值变化曲线，如图4.14，测量过程、数据处理方法同上。在低频段，由于低噪声放大器、频谱分析仪等会引入更大的噪声，因此具有较小的信噪比，甚至导致模式缺失（图(a)虚线标记

处)，也从侧面证明了在图4.12中第 7 根梳齿因信噪比而无法随 RH 呈线性变化的现象。

4.4.2 太赫兹多外差双光梳光谱对 GaAs 标准具的测量

我们利用太赫兹多外差双光梳光谱对 $625\ \mu\text{m}$ GaAs 标准具进行透过率测试，以进一步验证其成谱能力。

图4.12(d) 显示的是 $625\ \mu\text{m}$ GaAs 标准具的透过率。其中红色圆点为该系统测得的实验数据，测试方法与水汽吸收峰类似，将 GaAs 标准具的双光梳光谱与参考光谱（无 GaAs 标准具）做强度比值，绘制微波波段透过率曲线。根据水汽吸收峰确定的太赫兹光频梳梳齿与双光梳梳齿的对应关系，确定 GaAs 标准具在太赫兹波段的透过率曲线。通过一维传输矩阵方法计算的 GaAs 透过率（黑色线条）同时绘制在图 (d) 中。在测试中，由于 GaAs 标准具较厚，导致本就较弱的太赫兹光频梳梳齿无法透过，最终获得的实验数据带宽只有约 50 GHz。但实验数据与仿真结构的一致性验证了多外差双光梳光谱系统的物质成谱能力。

4.4.3 多外差双光梳系统中光学反馈的讨论

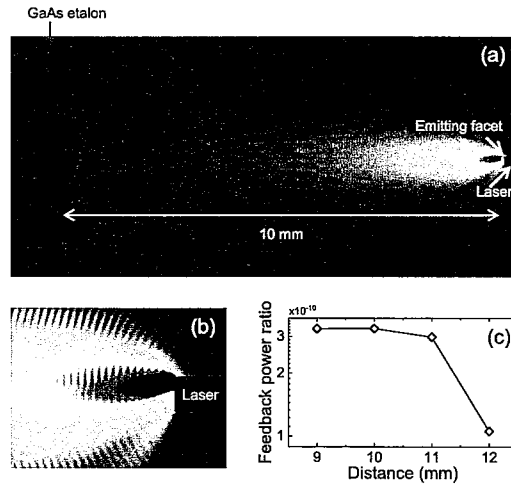


图 4.15 (a) 针对 GaAs 标准具产生光反馈的二维有限元仿真模型。(b) 激光端面电场分布。(c) 反馈功率与激光器和标准具之间距离的关系

Figure 4.15 Finite-element simulation of the feedback effect induced by the GaAs etalon. (a) Calculated electric field distribution when the GaAs etalon is 10 mm away from the laser emitting facet. (b) Zoom-in of (a) in the close range of the laser. (c) Calculated feedback power ratio as a function of distance between the laser and the etalon.

光反馈是影响光频梳和双光梳质量的重要因素，尤其对基于 THz QCL 自探

测机制的双光梳系统。光反馈可视为对腔内模式的微扰，而自探测技术对即使很小的光耦合都十分敏感。另一方面，本例中太赫兹光频梳是基于四波混频自启动形成，对微扰的抗干扰性较差。在对水汽测试中，不存在反射镜面，较难形成光反馈。但将 GaAs 标准具放入双光梳系统之后，会一定程度上增强光反馈，因此研究当前双光梳系统的光反馈是十分必要的。我们采用的方法是使用有限元仿真工具量化从 GaAs 标准具反馈回的激光功率。

图4.15(a)为有限元仿真二维模型，GaAs 标准具放置在距离激光器端面 10 mm 处。初始功率为 P_i 的波导基模注入进波导中并向自由空间辐射（图 (b)），从 GaAs 标准具反馈回的电场（ P_r ）由波导端口处的端面收集，该端面具有与激光器波导横截面相同的尺寸。然后可以计算出反馈功率比（ P_r / P_i ）以量化当前双光梳系统中的反馈效果。图 (c) 中我们计算了不同距离下功率反馈比，在没有任何准直光学元件的辅助下，反馈功率比在 10^{-10} 量级，这种反馈量不足以影响光频梳及双光梳工作。

4.4.4 多外差双光梳系统中双探测可行性分析

在当前的双光梳系统中，由光频梳 2 作为探测器。理论上另一个激光器光频梳 1 也可以用于多外差光谱信号检测。如果可以同时获取由光频梳 1 和光频梳 2 检测的双光梳信号，则可消除共模噪声，显著提高双光谱质量。但在光频梳 1 中没有针对高频信号高效提取的设计，因此所测得的 RF 信号要比从光频梳 2 中弱得多。对比图4.6(c)与图4.9(a)中，双光梳信号比拍频信号弱 30 dB 左右。如果我们简单的假设光频梳 1 检测双光梳信号，根据图4.3中拍频信号强度为 -85 dBm，考虑 30 dB 的差值，光频梳 1 检测到的双光梳信号大概为 -105 dBm，这个功率是低于本系统的噪声水平的（-86 dBm）。此外，根据图4.2(a)中，comb2 的输出功率远小于 comb1，因此耦合进光频梳 1 中的功率也低于光频梳 2 作为探测器的情况。基于上述两个因素，在本例中难以同时检测来自光频梳 1 和光频梳 2 的双光梳信号以降低噪声水平。

4.4.5 光频梳梳齿与双光梳梳齿的对应关系

前文中我们根据载波为 1.07 GHz 和 5.08 GHz 的双光梳光谱呈现镜像关系，解释 THz-RF 链与 f_{b1} 和 f_{b2} 的相对大小、两个太赫光频梳梳齿对的相对关系之间的联系。双光梳技术是太赫兹与微波之间的“桥梁”，但不清楚太赫兹光

频梳梳齿与双光梳梳齿之间的对应关系，即使获得物质的双光梳光谱，我们仍然无法得知其太赫兹光谱。在本例中，我们根据 HITRAN 数据库中水汽吸收峰、GaAs 标准具的透射谱建立了太赫兹与微波之间的对应关系：对于载波为 5.08 GHz (1.07 GHz) 的双光梳光谱，双光梳梳齿频率的增加对应于太赫兹光频梳梳齿频率的增加（减小）。一旦这种关系被确定，意味着我们在频谱分析仪上直接可视的每根双光梳梳齿，都唯一对应着太赫兹光频梳梳齿。这是太赫兹多外差双光梳光谱技术实现快速成谱的关键。

该项工作以 “Toward compact and real-time terahertz dual-comb spectroscopy employing a self-detection scheme” 为题发表在 ACS Photonics，并遴选为前封面论文。



图 4.16 ACS Photonics 期刊前封面

Figure 4.16 The front cover of the ACS Photonics

4.5 本章小结

本章节的主要工作为提出一种利用太赫兹多外差光谱技术实现样品太赫兹光谱测量的方法，并通过水汽、GaAs 标准具的测试验证了可行性。目前整个系统还有诸多要改进的地方。首先该系统没有采用任何频率稳定措施，无法适用于高精度测量。理论上可以通过 RF 注入调制技术、锁相技术等改善频率稳定性和带宽。此外，可以通过 RF 注入调制、改变驱动电流等方式对太赫兹光频梳的 f_{ceo} 和 f_{rep} 微调谐，实现无间隙超高分辨率光谱测量。其次，我们无法保证已经找到了两个光频梳的耦合率与注入锁定之间的平衡，耦合率影响双光梳信号的动态过程对提高光谱系统信噪比具有重要的指导价值。第三，可以进一步提高两个太赫兹光频梳之间的相干性，以增加系统的稳定性。最后，面向气体光谱测试中，可控压力气体池将极大提高测量精度。

总而言之，本章节中我们基于 THz QCL 自探测机制，展示了一种结构紧凑且具有实时成谱能力的太赫兹双光梳系统。通过 ~ 490 nW 的太赫兹光耦合，成功获得了多外差双光梳光谱。120 GHz 光学带宽的双光梳系统具有对水汽、GaAs 标准具实时成谱的能力。我们认为该系统是实现太赫兹实时高分辨率成谱的最佳解决方案，并且在有毒物质识别、气体追踪及太赫兹高分辨成像等方面具有巨大应用潜力。

第5章 基于锁相环技术的太赫兹光频梳

5.1 引言

前文提到光频梳在频域上重要的特点是具有固定的重复频率,即各纵模模式间隔相等。为此,可以通过注入与重复频率相等的 RF 信号实现模式锁定,这种主动调制的方式在半导体激光器光频梳中获得极大的成功。但是,RF 注入调制技术需要面临的一个重要的问题是需要先由频谱分析仪获得拍频信号,以此信号为指导确定注入的 RF 频率。这是需要人为干预的过程,无论在拍频信号获取还是频率注入都难以保证误差的控制。此外,工作温度、驱动电流的变化都会导致拍频信号发生漂移,因此严格来说,RF 注入调制技术并非是共振调制。电学锁相环(Phase Locked Loop, PLL)是一种可以将输入频率与本振频率(Local Oscillator, LO)互相锁定的技术,广泛应用于现代通信与电子系统中^[203]。我们注意到,目前商用的 PLL 技术主要的工作频段之一为微波射频,即拍频信号所处波段。在本章节中,我们的工作出发点为基于 PLL 技术实现 THz QCL 锁模,以期提高光频梳稳定性和频谱覆盖范围。

在光纤锁模激光器中,载波包络偏移频率最常用的锁相方式即为 PLL 技术,这主要得益于光纤激光器具有倍频程的超宽增益范围,可以采用前文提到的 $f-2f$ 技术提取载波包络偏移频率。此外,借鉴于 PLL 技术发展而来的光学锁相环(OPLL)逐渐在相干光通信、光传感等应用场景中发挥重要作用。其主要思路是将参与锁定同步的电信号扩展为光波之间的锁相,主要面向的仍然是光纤激光器。PLL 技术在半导体激光器中,尤其是 THz QCL 中的应用受到很大限制。首要的问题是在太赫兹波段很难形成可以作为参考的 LO。其次,与光纤激光器相比,THz QCL 的增益带宽小得多,即使通过多有源区堆叠的方式实现倍频程增益,却仍然面临着严重的色散问题,因此载波包络偏移频率通常难以获得。实际上,对于 THz QCL 的主要应用场景之一,高精度光谱学,载波包络偏移频率是否已知对于光谱结构并未有太大影响。其最重要的是保证 THz QCL 光频梳具有强相干性,即具备高模式稳定性。本章节的主要工作为基于 PLL 技术锁定 THz QCL 光频梳重复频率,并讨论将多外差双光梳技术与 PLL 技术结合实现 THz QCL 光频梳完全锁定的可行性。本章节不对 PLL 模块进行开发,只简单阐述基本原理。

5.2 电学锁相环原理简述

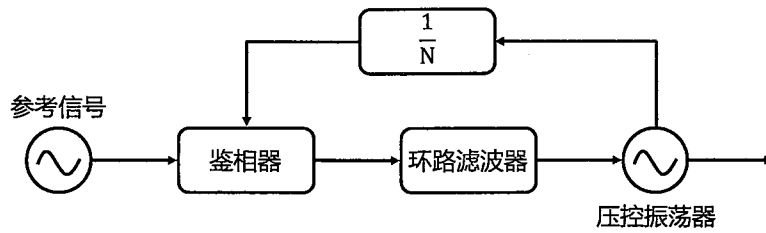


图 5.1 锁相环原理图

Figure 5.1 Phase-locked loop schematic

锁相环技术最早可以追溯到 1932 年 Bellescize 提出的同步检波理论。它是一种通过负反馈机制实现输入信号与参考信号相位同步的技术。当两个信号不同时，PLL 能够根据两个信号的差异产生一个误差信号，由该误差信号反馈调节系统输出，直到二者保持一致。图5.1为典型的 PLL 结构，基本构成包括鉴频鉴相器（Phase Detector, PD）、环路滤波器（Loop Filter, LP）、压控振荡器（Voltage Controlled Oscillatro, VCO）。

鉴频鉴相器的基本功能是对输入的待锁信号与 LO 信号进行比较，由内部的电荷泵产生一个差异信号提供给后续的环路滤波器处理。在电学 PLL 结构中，鉴相器主要分为以模拟乘法器为代表的模拟鉴相和异或门代表的数字鉴相两种。环路滤波器为类低通滤波器，基本功能为滤除鉴相器的差异信号中高频部分，将直流至低频部分送至压控振荡器。环路滤波器常见的形式有 RC 积分型、无源比例积分型和有源比例积分型。环路滤波器的时间常数一定程度上决定 PLL 系统完成锁定的时间。压控振荡器是 PLL 系统中最为重要的部分，其主要作用是输出一个由电压控制频率的电磁信号，实际上，PLL 系统的性能很大程度上取决于压控振荡器的调频特性和其相位噪声。

5.3 光频梳中噪声控制

在光频梳中，对相位噪声和幅值噪声的良好控制可有效提高光谱精度和可用动态范围。在4.3.3章节中，我们展示了如何利用频谱分析仪对幅值噪声进行艾伦方差分析，并在双光梳系统中获得较低的幅值噪声。但是对于 THz QCL 光频梳相位噪声的测量，目前还鲜有报道。主要因为相比于中红外 QCL 或光纤激光器，THz QCL 不仅受热噪声等固有噪声及自发辐射等量子噪声的限制，由于其

工作条件较为苛刻，THz QCL 对外部干扰更为敏感，主要包括驱动电流的波纹噪声、温度漂移、机械振动等等。

因此本例中，我们采用高稳定性电流源系统，能够在高达 2.5 A 的输出电流情况下仍然保持噪声水平低于 $1 \text{ nA}/\sqrt{\text{Hz}}$ ，十分适合对 THz QCL 的驱动。

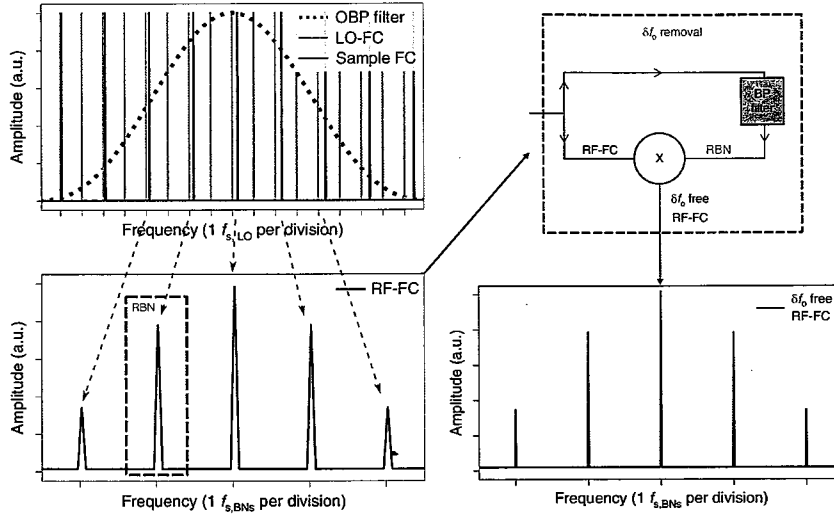


图 5.2 消除双光梳中共模噪声^[204]

Figure 5.2 Mechanism to remove common-mode-noise^[204]

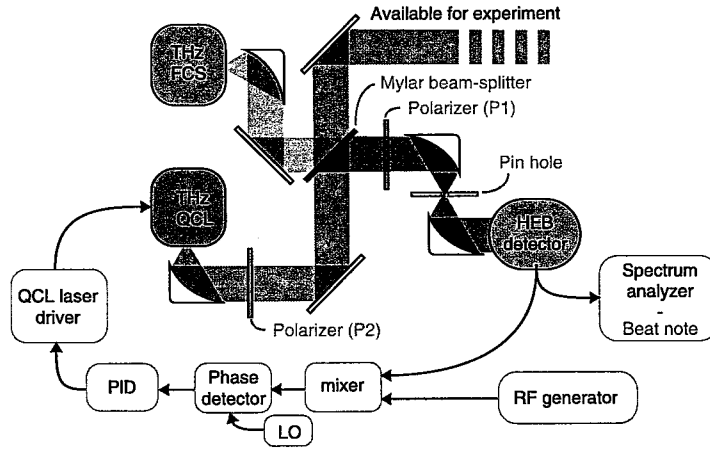


图 5.3 THz QCL 与参考光频梳锁定^[205]

Figure 5.3 Beatnote detection and phase-locking by HEB detector^[205]

目前可行的针对光频梳与双光梳降低噪声的方式有以下几种：一是尽可能少的环境干扰，如本例中采用低于 $1 \text{ nA}/\sqrt{\text{Hz}}$ 的高稳定驱动电流源、液氮流制冷、光学隔振平台等。二是消除共模噪声，如图5.2中，通过匹配的带通滤波器将双光梳中的一根梳齿滤出作为参考梳齿（图中RBN），将RBN与其他梳齿混频之

后去除双光梳中的共模噪声^[204]。三是通过与参考光频梳锁定，如图5.3所示，参考的光频梳由飞秒光纤激光器泵浦铌酸锂光电导天线产生，参考光频梳与 THz QCL 在 HEB 探测器上混频产生拍频信号，通过 PLL 系统对该信号锁定，进而实现将 THz QCL 的梳齿与参考光频梳锁定^[205]。从光频梳的两个基本频率参量来看，控制相位噪声无非是对载波包络偏移频率和重复频率分别进行处理。鉴于本例中 THz QCL 的最大频谱覆盖范围仍然没有达到倍频程，无法提取载波包络偏移频率，因此初步的，我们采用 PLL 技术对光频梳重复频率进行锁定。进一步的，我们将提出双探测技术及多外差光频技术实现噪声控制的方式。

5.4 电学锁相环对重复频率的锁定

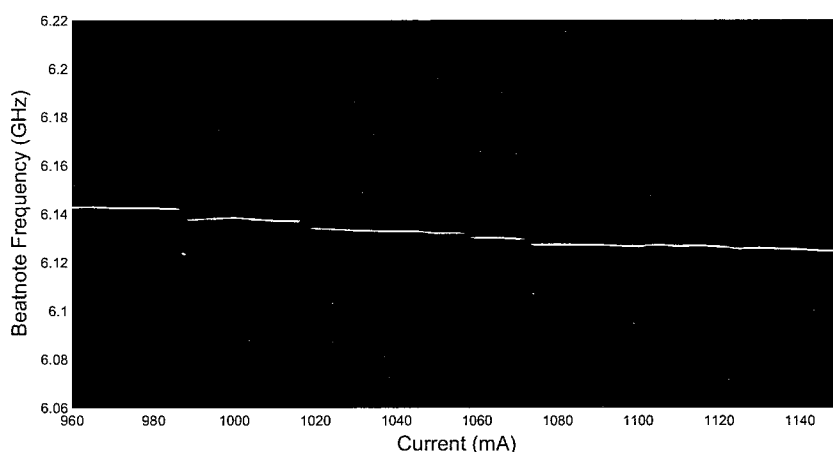


图 5.4 THz QCL 模间拍频频率随电流的变化

Figure 5.4 Inter-mode beatnote mapping of the THz QCL measured in the current range from 960 to 1160 mA

在对 THz QCL 进行重复频率锁相之前，先对其在自由运行下的拍频信号随电流变化进行测试。测试方法如2.2.2章节一样，采用 T 型偏置器将拍频信号从 THz QCL 谐振腔中提取出来，经低噪声放大器放大之后由频谱分析仪测得。频谱分析仪保持 $RBW = 3 \text{ kHz}$ ， $VBW = 10 \text{ kHz}$ ， $\text{span} = 1 \text{ GHz}$ 不变，以 10 mA 为间隔测试从 960 mA 到 1160 mA 各电流驱动下的拍频信号，随后使用 matlab 绘图工具将所有数据组合成三维光谱数据，如图5.4所示，在拍频信号光谱中，颜色代表信号强度。由图可以看出，本例中的 THz QCL 本身表现出较好的拍频特性，在所测电流范围内，呈现出较好的单模特性。这说明自由运行下，THz QCL 受四波混频作用，天然的受到腔内往返频率调制，从这一特性来看，该 THz QCL

各纵模之间具有较强的相干性，以准光频梳模式工作。另外重要的一点是，本例 THz QCL 的拍频信号随电流的增加呈现出线性的红移趋势，斜率大概为 120 kHz/mA。这是能够利用 PLL 进行重复频率锁相的重要基础，也为后续进行锁相相关参数设置提供参考。

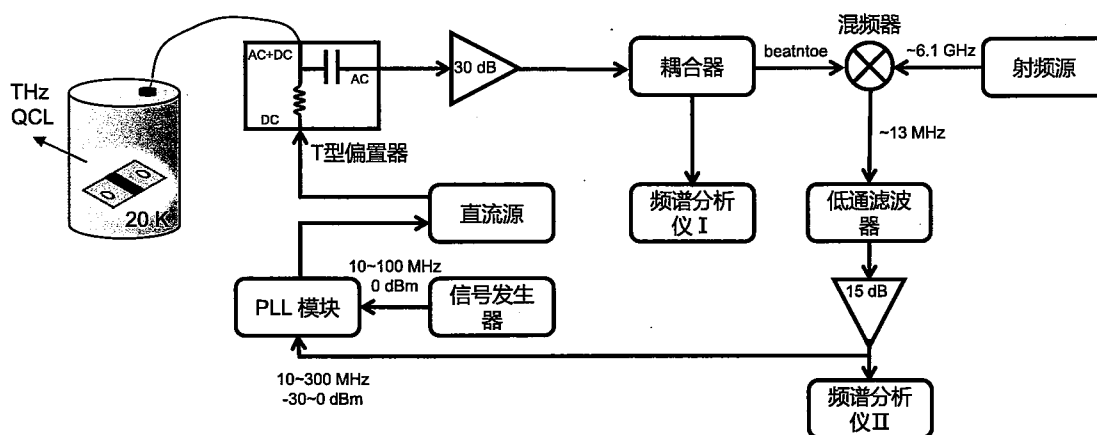


图 5.5 PLL 锁相系统电学连接图

Figure 5.5 Schematic plot of the PLL experimental setup

图5.5是本章节采用 PLL 系统对 THz QCL 重复频率进行锁相的实验装置图（仅涉及电学连接部分）。依据拍频信号随驱动电流线性变化的特性，PLL 系统调制对象仅涉及驱动电流，同时保持 THz QCL 的工作温度 20 K 不变。本例中采用的 PLL 系统对输入 LO 信号和待锁定信号 RF 有频率和强度的要求。具体为：本振 LO 信号频率 10 - 100 MHz，强度 0 dBm（600 mVpp）；待锁定信号 RF 频率 10 - 300 MHz，强度 -30 - 0 dBm。为了满足系统要求，LO 信号为信号发生器提供的正弦波信号，强度 600 mVpp。由图5.4，本例中 THz QCL 的拍频信号约为 6.13 GHz，强度为 -40 dBm，不满足 PLL 系统对 RF 信号要求。处理方法是先将 T 型偏置器中的拍频信号先经过 30 dB 的低噪声放大器（30 dB），再与射频源信号经混频器差频，为了提高信号纯净度，信号经过低通滤波器（DC-14 MHz）后被低噪声放大器（15 dB）再次放大，然后作为待锁信号 RF 输入 PLL 系统。特别的，为了能够实时检测拍频信号锁定状态，在拍频信号被差频之前，即在低噪声放大器（30 dB）与混频器之间由双向耦合器提取部分拍频信号信号进行检测。同时，在拍频信号被差频之后，即在低噪声放大器（15 dB）与 PLL 系统之间也由频谱分析仪实时检测信号。

图5.6是对拍频信号锁定之前与之后的对比。在图 (a) 中，拍频信号未锁定之

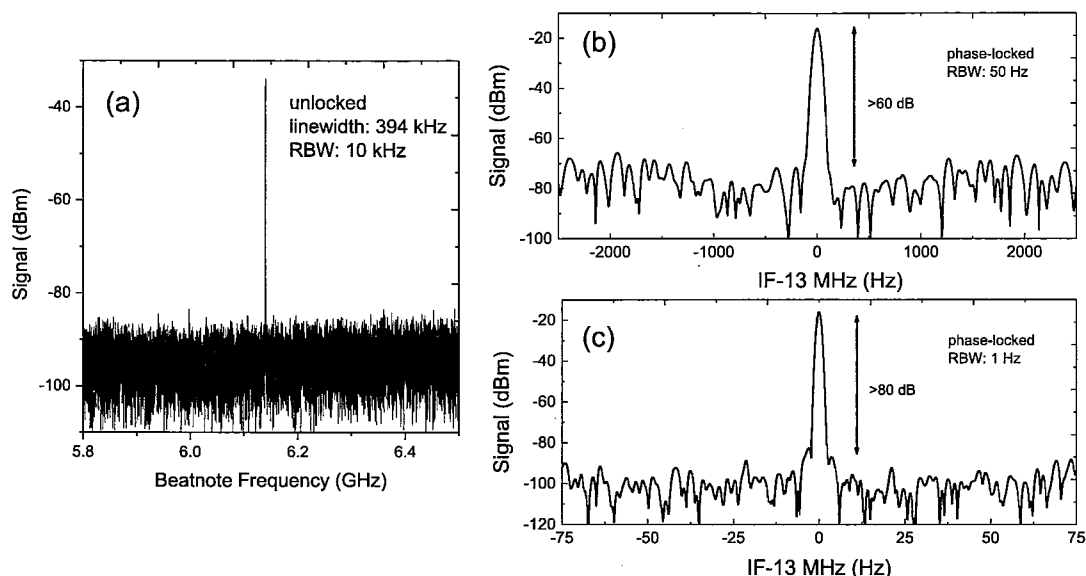


图 5.6 自由运行与 PLL 锁相下电学模间拍频信号对比

Figure 5.6 Beatnote spectra of the free-running THz QCL(a), PLL-locked THz QCL with a RBW of 50 Hz(b) and 1 Hz(c)

前，其全宽半高（FWHM, -3 dB 线宽）约为 390 kHz（RBW = 100 kHz）。在锁定之后，如图 (b)、(c)，在 RBW = 50 Hz 时，FWHM = 1 Hz，信噪比 > 60 dB；在 RBW = 1 Hz 时，FWHM < 1 Hz，信噪比 > 80 dB。至此，我们通过 PLL 系统成功的对 THz QCL 重复频率锁相，实现基于 PLL 技术的太赫兹光频梳。

此外，我们将锁相前后的太赫兹光谱进行对比，尝试从光谱的角度证明太赫兹光频梳操作。理论上，当重复频率被锁定之后，THz QCL 中各纵模之间相干作用增强，腔内模式趋于高度稳定，会有更多的纵模突破损耗实现激射，表现为 THz QCL 光谱展宽。在实验中我们发现经过 PLL 锁相之后，其频谱的确具有展宽趋势。但很明显，从模式数目比较，PLL 锁相的效果要远远低于 RF 注入调制。这种现象可以解释如下：首先对于 RF 注入锁定技术（图1.20），即使在非共振调制下，RF 信号仍然表现出非常强大的锁模能力。实际上，注入的 RF 信号会尽可能接近拍频信号，而且由图1.23可知，腔模本身具有一定的带宽，即使 RF 与拍频信号不完全相等，仍然可以实现腔模锁定。而在 PLL 系统中，实际对腔模产生调制的信号是由谐振腔天然产生的拍频信号，其功率远小于注入的 RF 信号，自然调制效果要弱。其次，我们在 PLL 锁定状态下特意测量了多个 THz QCL 的太赫兹光谱，各光谱不同的地方在于 THz QCL 激射端面与太赫兹光谱仪（FTIR）之间耦合率。在实验中我们发现，当 THz QCL 与 FTIR 腔外耦合镜（离

轴抛物面镜) 趋于对准的过程中, 拍频信号呈现逐渐“失锁”的趋势。这是因为在对准的过程中, 光反馈作用逐渐加强, THz QCL 对外部光反馈的扰动极为敏感。其本质原因仍然可归于参与腔模调制的仅为谐振腔本身产生的弱拍频信号。造成的后果是, 在太赫兹光谱测试中只能以低收集效率进行测试, 受限于 FTIR 的灵敏度, 一些弱的边模无法被探测到, 测得的光谱范围要比真实光谱窄。即便如此, 在逐渐增加耦合效率中, 光谱仍然具有展宽的趋势。因此, 我们仍认为从太赫兹光谱的角度证明了基于 PLL 技术实现了 THz QCL 光频梳。

5.4.1 电学锁相环技术实现光频梳完全锁定的讨论

上文基于 PLL 技术实现了对太赫兹光频梳中重复频率的锁定, 保证了光频梳各纵模之间具有相等的间距, 但由于载波包络偏移频率没法锁定, 光频梳仍然会发生整体的抖动。对于锁定 THz QCL 光频梳的载波包络偏移频率目前仍面临一些困难, 其原因在前文多次陈述。而 PLL 技术与多外差双光梳技术无疑为我们提供了一种更可行的办法。

双光梳系统在噪声控制方面具有天然的优势。无论是片上双光梳系统还是在第4章中提出的分离式双光梳, 一大特点就是两个光频梳共享相同的工作环境, 这意味着无论是外部机械振动还是工作温度的漂移, 都会对两个光频梳产生相同的影响。因此, 理论上温度、震动引起的噪声可作为两个光频梳的共模噪声, 而对双光梳不产生影响。双光梳系统具有控制噪声优势的另一种解释是相干检测。在太赫兹光谱检测中, THz-TDS 最大的优势是具有较宽的频谱覆盖范围和较高的信噪比。前者是因为泵浦光电导天线的激光具有飞秒量级的线宽, 后者是因为相干探测。在 TDS 中, 利用延迟探测脉冲对太赫兹电场进行采样, 从而保证 TDS 只对与探测脉冲同时发生的噪声敏感。从时域角度理解双光梳的形成也可看做是相干探测的过程 (图1.28), 因此双光梳系统具有较高的信噪比。

双光梳系统在噪声控制的另一面优势在于可以灵活的与 PLL 技术结合。PLL 技术之所以难以在太赫兹波段直接施用, 主要原因是缺乏太赫兹波段的 LO 以及缺少太赫兹波段的有源器件 (光滤波器、光放大器等)。而太赫兹双光梳的主要工作波段是 PLL 技术应用擅长的微波波段。因此我们这里提出一种基于太赫兹双光梳和 PLL 技术实现太赫兹光频梳完全锁定的方案。具体实施方法为: 利用带通滤波器获得双光梳一根梳齿, 利用 PLL 技术将其与外部 LO 锁定。由于光频梳与双光梳之间的强相干性, 将双光梳光谱锁定就意味着光频梳被锁定。

5.5 本章小结

本章节的主要工作是采用高稳定电源系统与 PLL 锁相模块，实现对 THz QCL 光频梳重复频率的锁定。一方面验证了 PLL 技术应用于太赫兹光频梳中的可行性，另一方面提出了太赫兹双光梳与 PLL 结合实现光频梳完全锁定的方案。PLL 技术在光频梳中最大的优势在于可实现完全的共振调制，另外在光频梳噪声控制方面具有独特的优势。借由 PLL 技术深入研究 THz QCL 的噪声来源，这对揭示 THz QCL 固有的基本物理机制、提高器件性能至关重要。

第6章 总结与展望

太赫兹技术是一个重要的前沿交叉研究领域，具有广阔的应用前景及重要的战略地位。THz QCL 是 1-5 THz 内最高效的电泵浦半导体激光器，是发展太赫兹光谱、成像、通讯等应用的重要辐射源。光频梳自从 2005 年获得诺贝尔物理学奖以来，引发了各个频段研究光频梳的热潮。发展基于 THz QCL 的太赫兹光频梳是当下两大热点领域的结合，无论是对丰富光频梳技术覆盖波段还是促进太赫兹技术应用都有重大的意义。得益于 THz QCL 的单极特性，具有 ps 量级的载流子寿命，十分适合主/被动锁模调制而形成太赫兹光频梳。太赫兹双光梳技术是基于光频梳发展而来的新兴光谱手段，是表征太赫兹光频梳的有力工具，对推动太赫兹光谱实用化具有非常大的潜力。本文基于束缚态向连续态跃迁与共振声子结合的有源区结构、半绝缘表面等离子体波导的 THz QCL，针对太赫兹光频梳及双光梳，主要做了以下几方面的工作：

1. 针对 Fabry-Pérot 谐振腔 THz QCL 调制频率受寄生电容限制的问题，提出采用耦合腔结构进一步提高调制频率和调制效率。首先采用一维传输矩阵模拟耦合腔结构中纵模选择机制，为谐振腔尺寸提供重要参考。接着采用聚焦离子束工艺制作耦合腔结构，并对其基本特性进行测试。最后在基模与高阶横模拍频及二倍频频率上对耦合腔 THz QCL 进行 RF 注入调制，最多产生 6 个边带，由单纵模工作转为频谱覆盖 50 GHz 的多纵模工作，并且纵模之间的间距被严格锁定在注入的频率上，首次实现耦合腔 THz QCL 锁模。此外，本项工作中采用了 FTIR 光谱测试、拍频信号光谱及远场测试、仿真等多种手段对 THz QCL 精细光谱模式进行表征，并基于有源区强非线性对模间拍频信号的形成做出解释，这种系统的测试及分析方法对表征 THz QCL 精细光谱具有重要的指导意义。

2. 在 RF 注入锁定技术实现 THz QCL 光频梳的基础上，我们将此技术引入到双光梳中，实现双 RF 注入调制的片上双光梳系统。实验中分别对两个光频梳进行弱 RF 注入，双光梳频谱范围从自由运行下的 86 GHz 扩展到 166 GHz，双光梳模式间距锁定为注入 RF 信号频率之差。本工作的重要意义在于：一是再一次以双光梳的角度证明太赫兹光频梳，不仅如此，在弱 RF 信号注入锁定之后，双光梳光学频谱覆盖范围几乎等于太赫兹光谱，这意味着 RF 注入技术有效稳定太

赫兹光频梳模式间距，几乎所有太赫兹模式均参与双光梳的形成；二是在双 RF 注入锁定之后，双光梳梳齿线宽从 1.14 MHz 降为 490 kHz，该线宽直接反映了太赫兹光频梳中载波包络偏移频率噪声。此外，本工作首次针对 THz QCL 自检测性能进行分析，经评估 THz QCL 作为探测器的 NEP 大概为 $21 \text{ pW}/\sqrt{\text{Hz}}$ 。

3. 提出一种太赫兹多外差探测双光梳光谱技术，并采用此方案对水汽吸收峰、GaAs 标准具透射率进行测试。该工作最大的创新点在于通过合理设计太赫兹光频梳之间耦合方式，利用 THz QCL 自探测技术实现对物质太赫兹光谱检测。最大的特点在于系统中无移动的结构、无光学元件辅助的光路系统、结构紧凑，利用频谱分析仪即可获得光谱数据，光谱采集时间短，光谱分辨率高，可实现无间隔光谱扫描。在实验中，重点测试了不同 RH 下的水汽吸收峰，通过与 HITRAN 数据库对比，表现出很高的一致性。测试了 GaAs 标准具的透射率，与仿真结果基本吻合。此外该工作重点讨论了 THz-RF 之间对应关系和太赫兹双光梳中幅值噪声。该项工作对于推动太赫兹光谱技术具有重要的启示意义。

4. 采用电学锁相环技术实现太赫兹光频梳重复频率锁定。在频谱分析仪 RBW = 1 Hz 测试下，拍频信号信号 FWHM < 1 Hz，信噪比高达 80 dB。此外，该工作重点讨论了基于 PLL 和双光梳技术实现太赫兹光频梳完全锁定的方案。PLL 技术的引入将为探究太赫兹光频梳噪声构成和控制提供新的思路。

以上简要总结了全文的主要工作。按照递进的研究思路对 THz QCL 光频梳展开了较为系统的研究：从提高 RF 主动调制频率入手，到提高太赫兹片上双光梳性能、探索基于自探测技术的双光梳光谱测试方案，及最终探索实现太赫兹光频梳完全锁定的方法。当然在此过程中仍然存在诸多需要进一步研究探索的问题：

1. 在耦合腔 THz QCL 研究中，实际上并没有实现预想的自由运行下本征横模多模激射，主要原因是耦合腔结构没有经过系统优化。另一方面，我们注意到耦合腔结构在 THz QCL 中具有十分灵活的应用，比如用作色散补偿器，因此下一步的重点工作是结合 GTI 结构，在实现多模激射的同时保证腔内平坦的色散曲线。

2. 在双光梳中，我们注意到光频梳之间耦合率的大小对于双光梳光谱质量至关重要，但是受限于目前的结构，还无法探究不同耦合率对双光梳光谱影响的动态过程。另外，分离式双光梳结构具有高度的可开发性，目前仅在自由运行下

进行光谱测试,未来可以考虑采用主/被动锁模、PLL 锁相、色散补偿器等多种方式进一步提升系统性能。

3. 本文的主要研究手段为实验论证而弱于理论计算。比如在光频梳噪声表征中,通过 PLL 技术几乎可以屏蔽由电流、温度、机械震动等外界因素引入的噪声,这为深入研究 THz QCL 的噪声组成等理论计算提供非常好的实验数据。