

doi: 10.11823/j.issn.1674-5795.2024.04.02

# 基于量子级联激光器的光频梳研究应用综述

马泽军<sup>1,3,4</sup>, 马钰<sup>1</sup>, 刘峰奇<sup>2</sup>, 陆全勇<sup>1\*</sup>

(1.北京量子信息科学研究院, 北京 100190; 2.中国科学院半导体研究所, 北京 100083;

3.中国科学院物理研究所, 北京 100193; 4.中国科学院大学, 北京 100049)

**摘要:** 深入探讨了量子级联激光器(Quantum Cascade Laser, QCL)中光频梳的工作机制, 包括其产生光频梳的方式以及相关的非线性效应(如四波混频效应)对其运行的影响。阐述了QCL波导设计的重要性, 分析了QCL光频梳在中红外和太赫兹波段的应用前景。指出可通过完善理论模型、对自启动谐波光频梳的物理机理进行理论解释等方式, 提高光频梳的设计效率。展望了环形QCL在孤子通讯、光谱测量等领域的发展方向。

**关键词:** 量子级联激光器; 光学频率梳; 相干通讯; 半导体光电器件

中图分类号: TB96; O43; O47 文献标志码: A 文章编号: 1674-5795 (2024) 04-0029-18

## Review on research and applications of optical frequency combs based on quantum cascade lasers

MA Zejun<sup>1,3,4</sup>, MA Yu<sup>1</sup>, LIU Fengqi<sup>2</sup>, LU Quanyong<sup>1\*</sup>

(1.Beijing Academy of Quantum Information Science, Beijing 100190, China; 2.Institute of Semiconductors,

Chinese Academy of Sciences, Beijing 100083, China; 3.Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences,

Beijing 100193, China; 4.University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

**Abstract:** In this paper, the mechanism of optical comb in Quantum Cascade Laser (QCL) are discussed, including the way of generating optical comb and the influence of related nonlinear effects (such as four-wave mixing effect) on its operation. The importance of waveguide design for quantum cascade laser is elaborated, and the application prospects of QCL optical frequency comb in mid-infrared and terahertz bands are analyzed. It is pointed out that the design efficiency of optical frequency comb can be increased by improving the theoretical model and explaining the physical mechanism of self-starting harmonic optical frequency comb. The development direction of loop quantum cascade lasers in soliton communication and spectral measurement is prospected.

**Key words:** quantum cascade laser; optical frequency comb; coherent communication; semiconductor optoelectronic devices

## 0 引言

光学频率梳(Optical Frequency Comb, OFC)<sup>[1]</sup>由光源产生的相干辐射组成, 其光谱由一组完全等

间隔的模式构成, 这些模式之间具有明确的相位关系。在某些类型的设备中, 光学模式之间的明确相位关系可能会自发形成, 也可以通过对光源进行有源或无源锁模来获得。

收稿日期: 2024-07-04; 修回日期: 2024-08-12

基金项目: 国家自然科学基金面上项目(62274014); 国家自然科学基金重点项目(62235016); 北京市科学技术委员会、港澳台科技合作项目(Z221100002722018)

引用格式: 马泽军, 马钰, 刘峰奇, 等. 基于量子级联激光器的光频梳研究应用综述[J]. 计测技术, 2024, 44(4): 29-46.

Citation: MA Z J, MA Y, LIU F Q, et al. Review on research and applications of optical frequency combs based on quantum cascade lasers[J]. Metrology & Measurement Technology, 2024, 44(4): 29-46.



稳定的 OFC 光谱可以作为频域中的标尺，应用于许多前沿领域，例如高精度光谱<sup>[2-5]</sup>、大容量通信系统<sup>[6]</sup>和阿秒脉冲生成<sup>[7]</sup>等。其中，在光谱学检测方面，传统的检测方法大多基于傅里叶变换红外光谱仪，其工作原理是通过移动迈克尔逊干涉仪动镜，与定镜形成光程差并产生干涉，从而分析光谱特性，分辨力一般在几吉赫兹至几十兆赫兹量级。而基于光频梳搭建的双梳光谱(Dual-Comb Spectroscopy, DCS)仪由2个互相干涉、重复频率稍有不同的光频梳源构成，分辨力在千赫兹以下，采样时间为微秒量级，可满足精密测量要求<sup>[8-11]</sup>。在通信方面，光频梳输出的光信号可作为波分复用光通信中的多波长光源<sup>[12-14]</sup>。

光频梳一般由锁模飞秒激光器产生，在这类激光系统中，光脉冲在激光腔内传播，脉冲的特征由电场  $E_{(t)}$  的包络函数来描述<sup>[2]</sup>，每当光脉冲经过一个腔面反射后，部分光脉冲被耦合出去形成激光，从而输出在时域上形成一系列周期光脉冲的时序波形，这些光脉冲由空腔往返时间  $T_{rt} = 2L/v_g$  隔开，其中， $L$  为激光器的腔长， $v_g$  为激光腔内光脉冲的群速度，光脉冲的载波以相速度  $v_p$  在腔内传播，如图1所示。

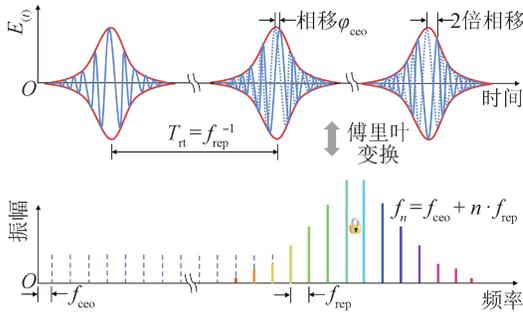


图1 光频梳产生原理图<sup>[10]</sup>

Fig.1 Schematic diagram of optical frequency comb generation<sup>[10]</sup>

一般情况下，由于色散的存在，群速度和相速度是不相同的，电场在每次往返后相对于脉冲包络发生位移，相位差为  $\varphi_{ceo}$ ，称为载波包络偏置(Carrier Envelope Offset, CEO)相位。相邻光脉冲之间的电场随  $\varphi_{ceo}$  的不同而不同<sup>[10]</sup>。在频域上，相邻模式之间由重复频率  $f_{rep} = 1/T_{rt}$  分开，形成间隔相等的梳尺。每个模式的电场可以表示为  $E_n$  ( $n$  为模式指数，为整数)，其相对应的频率为  $f_n$ ， $f_n$  为重复

频率  $f_{rep}$  的整数倍，并偏移于载波包络偏置频率  $f_{ceo}$ 。虽然电场包络线代表了完全周期性的时间波形，但由于  $\varphi_{ceo}$  非零，一般情况下电场本身不是周期性的。电场  $E_{(t)}$  可以写为<sup>[11]</sup>

$$E_{(t)} = \sum_n E_n e^{-i(n\omega_{rep} + \omega_{ceo})t} + C \quad (1)$$

式中： $C$  为积分常数； $E_n$  为  $E_{(t)}$  的傅里叶变换的复模式， $E_n = A_n e^{i\varphi_n}$  ( $A_n$  为模式振幅， $A_n = |E_n|$ ； $\varphi_n$  为相位)； $\omega_{ceo}$  为载波包络补偿角频率， $\omega_{ceo} = 2\pi f_{ceo}$ ； $\omega_{rep}$  为重复角频率， $\omega_{rep} = 2\pi f_{rep}$ ； $\omega_{ceo} < \omega_{rep}$  且  $\omega_{ceo} = \varphi_{ceo} / T_{rt}$ 。因此在一个稳态下，对全域积分可得

$$E_{(t)} = \sum_{n=-\infty}^{+\infty} A_n e^{-i(n\omega_{rep} + \omega_{ceo})t} + C \quad (2)$$

$$E_{(t+\tau_n)} = \sum_{n=-\infty}^{+\infty} A_n e^{-in\omega_{rep}\tau_n - i2\pi n} e^{-in\omega_{ceo}t} e^{-\frac{i2\pi n\omega_{ceo}}{\omega_{rep}}\tau_n} + C \quad (3)$$

$$= E_{(t)} e^{-i\varphi_{ceo}} + C$$

进而得到

$$f_{ceo} = \frac{\varphi_{ceo} f_{rep}}{2\pi} \quad (4)$$

由此，光频梳可以在频域上表示为  $f_n = n f_{rep} + f_{ceo}$ 。频率  $f_{ceo}$  和  $f_{rep}$  一般在 MHz ~ GHz 范围内，频率  $f_n$  在光学频率范围内， $n$  的值大约在  $10^5 \sim 10^6$  之间。激光发出的总输出波形取决于模式振幅  $A_n$  和相位  $\varphi_n$ ，如果连续的梳状模式具有相同的相位，则他们将相互作用并产生光脉冲。如果光频梳的光谱宽度可以达到倍频程，那么通过  $f-2f$  方法<sup>[15]</sup> 可以得到  $f_{ceo}$  并实现有效的锁定，即  $f_{2n} = 2n f_{rep} + f_{ceo}$ ，通过运算即可得出  $f_{ceo}$ 。倍频程对未来光频梳精密测量的发展非常有意义，但是通过能带设计实现具有倍频程的增益范围十分困难，目前还在探索阶段。虽然无法测得 QCL 光频梳的  $f_{ceo}$ ，但并不是所有的应用都需要确定  $f_{ceo}$ ，例如光谱学应用，只需要得到相对频率变化即可。

本文首先介绍 QCL 的基本原理，分析列举了自运行 QCL 光频梳的原理和研究现状，然后从色散工程和微腔设计两方面介绍了 QCL 光频梳设计的前沿工作，重点阐述了中红外至太赫兹波段光频梳对光谱学的重要意义，最后对 QCL 光频梳的应用前景和发展趋势进行展望。

## 1 量子级联激光器中的光频梳

### 1.1 量子级联激光器

1971年，两位苏联科学家提出了 QCL 的物理

思想<sup>[16]</sup>: 在外置偏压下, 半导体多量子阱结构的子带能级可呈现阶梯式分布, 电子从注入区高能态依次隧穿至激光上能级, 发射光子跃迁至激光下能级, 再通过快速弛豫进入下一个级联周期。随着分子束外延(Molecular Beam Epitaxy, MBE)技术的进步, 多层超薄材料的制备成为可能, 世界上第一支QCL于1994年在美国贝尔实验室诞生<sup>[17]</sup>。2002年, FAIST J小组研究得到全球范围内首个能够于室温条件下不间断工作, 且激发波长为 $9.1\ \mu\text{m}$ 的中红外多模法布里-珀罗(Fabry-Pérot Interferometer, FP)QCL, 其对应的连续输出功率达到 $17\ \text{mW}$ <sup>[18]</sup>。2011年, RAZEGHI小组研究得到了激光波长为 $4.6\ \mu\text{m}$ 的FP腔QCL, 室温条件下连续输出功率极大值达到 $5\ \text{W}$ , 这是至今还未被打破的纪录<sup>[19]</sup>。同年, 该小组又研究得到了激光波长为 $4.6\ \mu\text{m}$ 的分布反馈式QCL, 室温条件下其连续输出功率极大值为 $2.4\ \text{W}$ <sup>[20]</sup>。此后, 该小组于2019年研制出第一支室温条件下工作的太赫兹(THz)差频QCL光频梳<sup>[21]</sup>。2019年, ZHOU W等人<sup>[22]</sup>采用口袋型注入区设计, 降低高能载流子的逃逸, 研制的QCL实现了脉冲条件下20%的电光转换效率。他们采用片上集成光学相控阵列原理与技术解决连续工作条件下的散热问题, QCL连续输出功率达 $8.2\ \text{W}$ , 为QCL在所有激光波段内的最高片上连续输出功率记录。

当前, 制约QCL广泛应用的瓶颈之一是其制备成本居高不下。2020年, 中国科学院半导体研究所WANG H等人<sup>[23]</sup>采用束缚-连续跃迁的有源区设计, 实现了 $7.7\ \mu\text{m}$ 的磷化铟(InP)为衬底的QCL, 在室温下其输出功率达到 $1.17\ \text{W}$ , 电光转换效率为 $9.08\%$ 。2023年, 同组的FEI T等人采用MOCVD技术研制出室温下连续功率达 $3\ \text{W}$ 的 $4.6\ \mu\text{m}$ 波段QCL和室温下连续功率达 $1\ \text{W}$ 的 $9.0\ \mu\text{m}$ 波段QCL, 如图2所示, 达到国际领先水平<sup>[24]</sup>。

QCL中含有的有源工作层, 存在两大区——有源区以及注入区, 两者构建出了周期。有源区呈现出十分典型的耦合三量子阱结构; 注入区选用了递变超晶格。结合图3能够观察到该设备有源工作层所对应的物理环节。当处于一定的外场作用下, 有源区中由3个量子阱可得到三大最低能级 $n_1$ 、 $n_2$ 、 $n_3$ , 其中,  $n_3$ 、 $n_2$ 能级属于电子受激

跃迁所对应的上、下两大激发态能级。仅需要合理设计各阱的实际宽度与间隔, 即可使两者能量差 $E_3-E_2$ 与激光器所能够达到的激光波长相对应, 而且使 $E_2-E_1$ 转化成某特定光学声子的能量<sup>[25-30]</sup>。

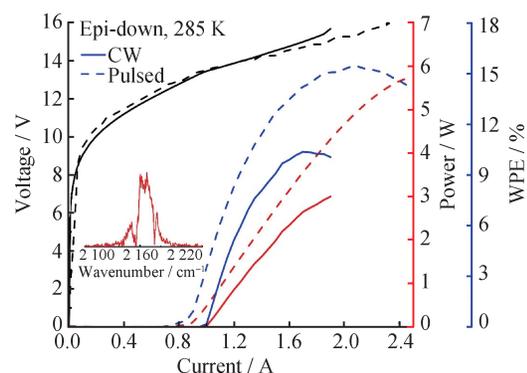


图2 对QCL器件连续波(Continuous Wave, CW)和脉冲模式的P-I-V以及插座效率(Wall-Plug Efficiency, WPE)表征<sup>[24]</sup>

Fig.2 Characterization of CW, pulse P-I-V and WPE for QCL device<sup>[24]</sup>

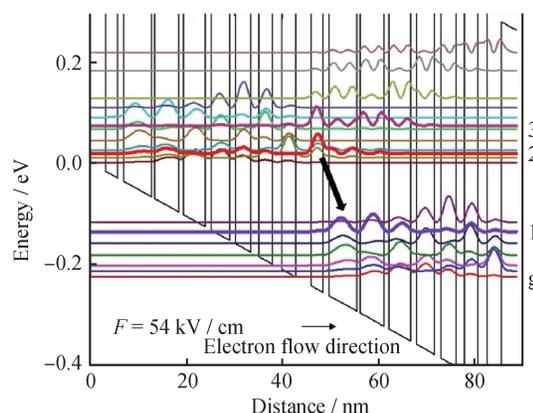


图3 量子级联结构能带结构原理图<sup>[31]</sup>

Fig.3 Schematic diagram of band structure of quantum cascade structure<sup>[31]</sup>

QCL所呈现的异质结构中存在的半导体激光二极管系统, 均以带间跃迁为基础实现。在添加一定的正向偏压之后, 导带电子及其相应的价带空穴均会被注入至相应的有源区, 借助带间电子和空穴间进行的复合而激射。激光源自电子和空穴之间进行的复合, 复合过程中, 某电子空穴对即可形成某光子, 而激光波长取决于材料实际的禁带宽度<sup>[32]</sup>。

因此, 这类器件的关键特性在于能够设计活性介质的能带结构, 这使得在中红外和太赫兹波段设计相干光源成为可能<sup>[33-36]</sup>, 这两个波段通常不

在双极半导体激光器的覆盖范围内。中红外区域对于光谱学应用领域尤为重要,因为在这一范围内存在许多分子的旋转-振动吸收线<sup>[37-45]</sup>。THz波段对于固态拓扑材料成像领域也具有一定重要性,因为这些材料在此波段具有特征共振。THz波段还可以应用于诊断和天文学研究<sup>[46-47]</sup>。THz波与光频梳的结合是当下的研究趋势,而缺少高功率、低造价、轻质量、小体积的太赫兹辐射源是限制该技术应用的主要因素之一。目前已经有一些 QCL

在太赫兹光谱区域的应用研究,LI H等人针对THz波段的QCL光频梳的片上实现、色散研究、锁模和应用方面做了很多工作<sup>[48-54]</sup>。在这些技术中,QCL被认为是中红外和THz波段光频梳的重要来源。本文对QCL光频梳的发展及原理进行简要阐释,并针对不同应用场景下的QCL光频梳进行了梳理。

## 1.2 光频梳的产生

QCL光频梳技术发展历程如图4所示。

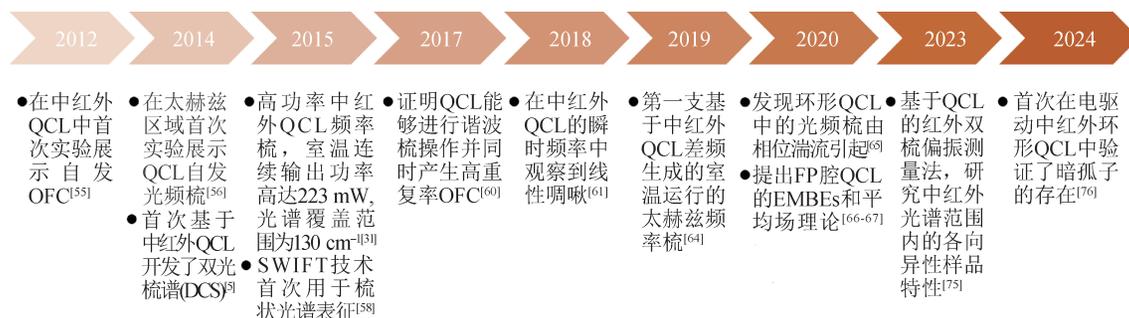


图4 QCL光频梳技术发展历程

Fig.4 QCL optical frequency comb technology development history

2012年, HUGI A等人在中红外QCL中首次实验展示自发光频梳<sup>[55]</sup>。2014年, BURGHOF D等人制备的QCL自发光频梳,在太赫兹区域首次实验展示<sup>[56]</sup>;同年, KHURGINJ B等人通过Maxwell-Bloch形式理论预测了QCL梳状光谱的调频(Frequency-Modulated, FM)行为<sup>[57]</sup>。2015年, BURGHOF D等人开发的移波干涉傅立叶变换光谱(Shifted-Wave Interference Fourier Transform Spectroscopy, SWIFT)技术首次用于梳状光谱表征<sup>[58]</sup>。2016年, MANSURIPUR T S等人在中红外QCL中观察到谐波态<sup>[59]</sup>。2017年, KAZAKOV D等人证明QCL能够进行谐波梳操作并同时产生高重复率OFC<sup>[60]</sup>。2018年, SINGLETON M等人在中红外QCL的瞬时频率中观察到线性啁啾<sup>[61]</sup>。2019年, OPAČAK N等人提出FM梳状光谱的主方程<sup>[62]</sup>;同年, CAPPELLI F等人开发了用于光频梳表征的傅里叶变换分析梳状发射(Fourier-transform Analysis of Comb Emission, FACE)技术用以研究太赫兹梳状光谱的时域特性<sup>[63]</sup>; LU Q等人研制出第一支室温条件下工作的太赫兹QCL光频梳<sup>[64]</sup>。2020年, PICCARDO M等人发现环形QCL中的光频梳由相位湍流引起<sup>[65]</sup>;

BURGHOF D和 SILVESTRI F等人提出了FP腔QCL的有效半导体麦克斯韦-布洛赫方程(Effective Semiconductor Maxwell-Bloch Equations, EMBEs)和平均场理论<sup>[66-67]</sup>; WANG F等人报道了太赫兹QCL中的谐波梳状光谱<sup>[68-69]</sup>。2021年, COLUMBO L等人提出了用于有源环形腔和无源环形腔的广义Lugiato-Lefever方程(Lugiato-Lefever Equation, LLE); COLUMBO等人预测了在光学驱动环形QCL中存在稳定腔孤子<sup>[70-71]</sup>; OPAČAK N等人发现了在调频梳状光谱形成过程中由Bloch增益引起的巨大的Kerr非线性效应<sup>[72]</sup>; MENG等人首次在自由运行环形QCL中实验观察到Kerr孤子<sup>[73]</sup>。2022年, PISTORE V等人研发了基于太赫兹光频梳的自检测近场光学显微镜装置<sup>[74]</sup>。2023年, HINRICHS K等人基于QCL的红外双梳偏振测量法(Infrared Dual-Comb Polarization, IR-DCP),研究中红外光谱范围内的各向异性样品特性<sup>[75]</sup>。2024年, OPAČAK N等人首次在电驱动中红外环形QCL中验证了暗孤子的存在<sup>[76]</sup>。

### 1.2.1 模式锁定

发射超短脉冲是产生光频梳的充分条件,但

不是必要条件。输出波形的周期性是光频梳形成的充分条件，这对模式相位  $\varphi_n$  的大小没有任何要求，只要保证相位差随时间恒定就可以，不一定为零。具体可分为2种情况<sup>[77]</sup>：①相位差为零，即锁模激光器，输出强度由脉冲序列决定，被视为调幅(Amplitude-Modulated, AM)光频梳；②一些激光光源发射出几乎恒定强度的波形，而他们的光谱仍然由间隔相等的多纵模组成，激光输出的瞬时频率被周期性地扫描，其值变化很大，被称为FM光频梳。光频梳中模式振幅和相位满足一定的关系，激光输出强度恒定<sup>[78-81]</sup>。

主动锁模的概念<sup>[14]</sup>如图5(a)、5(b)和图5(c)所示。主动锁模依赖于激光腔内集成的调制部分，以此获得粒子数反转来提供必要的光学增益。AM光频梳是通过调制部分(最常见的是声光或电光调制器)对强度进行强调制而形成的<sup>[78]</sup>。通过施加频

率等于往返频率的射频调制，调制器诱导激光腔内损耗的正弦振荡。理想情况下，每次当损耗处于最小值时，都能获得一个狭窄的净增益窗口，从而产生一个光脉冲。

被动锁模<sup>[14]</sup>如图5(d)、5(e)和图5(f)所示，锁模脉冲的发射通过非线性效应实现，不需要在激光腔内集成射频调制器。被动锁模由传播脉冲驱动，与主动锁模相比，可以实现更短的光脉冲，因为非线性的响应时间比调制方式要快得多。但是实现被动锁模也很困难，其产生条件是有源区材料需要具有较长的增益恢复时间，至少要长于激光在腔体往返的时间。被动锁模可基于Kerr透镜产生，但更常见的是基于可饱和吸收体产生<sup>[82-84]</sup>。可饱和吸收体由一种介质组成，其光学损耗在高光强下会降低，由于可饱和吸收体的动态足够快，可以立即根据光强变化而变化。

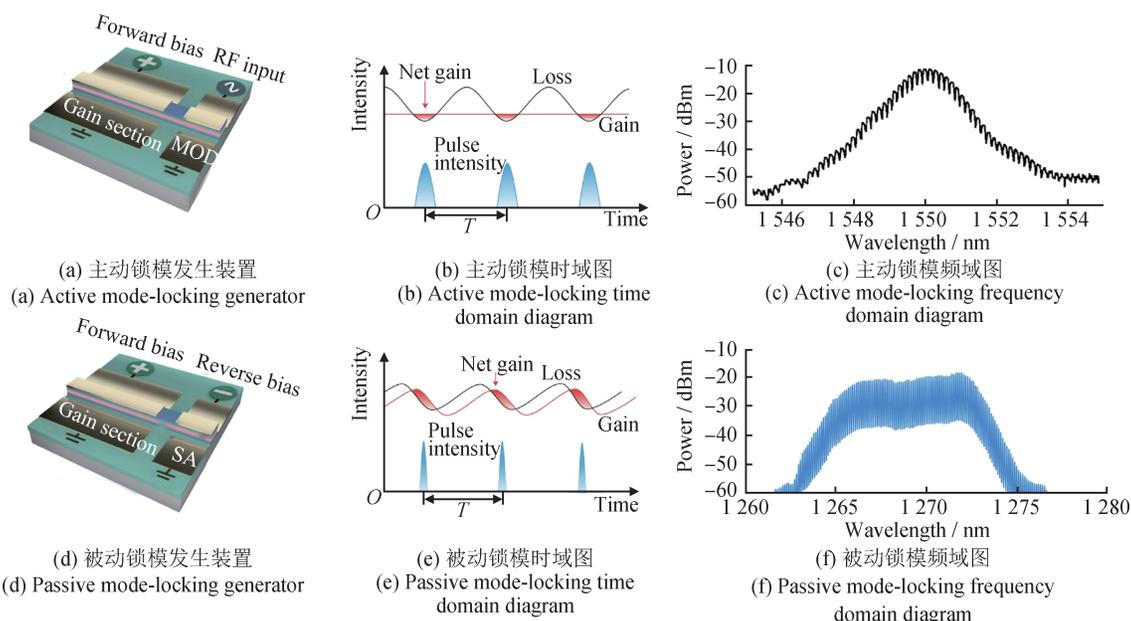


图5 主动锁模与被动锁模相关物理过程与现象<sup>[14]</sup>

Fig.5 Relational physical processes and phenomena of active and passive mode-locking<sup>[14]</sup>

QCLsFM梳是自启动的，不需要任何额外的元件来形成周期性的激光输出<sup>[14, 85]</sup>，这对于小型化、集成化应用非常有吸引力。此外，QCLsFM梳也不需要很长的增益恢复时间。FM梳在近十年已经成为研究的热点，并且在多种半导体激光器类型中被发现。

### 1.2.2 非线性效应

麦克斯韦方程组中有一个方程式是用来描述

电磁波的产生过程的，即

$$\nabla \times H = J + \frac{\partial D}{\partial t} \quad (5)$$

式中： $\nabla$ 为梯度算子， $H$ 为磁场强度， $J$ 为位移电流， $\frac{\partial D}{\partial t}$ 为束缚态电子的极化随时间变化产生的电磁场，由此可以得到

$$D = \varepsilon_0 E(t) + P(t) \quad (6)$$

式中： $E(t)$ 为外加电场， $t$ 为时间， $P(t)$ 为诱导极

化,  $\varepsilon_0$ 为介电常数。当物质受到辐射照射时, 束缚电子开始振荡, 产生 $P(t)$ ,  $P(t)$ 与 $E(t)$ 的干涉是材料光学性质的根源。

$$P(t) = \varepsilon_0(\chi^{(1)}E(t) + \chi^{(2)}E^2(t) + \chi^{(3)}E^3(t) + \dots) \quad (7)$$

式中:  $\chi$ 为磁化率。

如果入射辐射的强度很低, 束缚电子的运动可以看作被束缚在谐波势上的带电粒子的运动, 与最低能值完全对称。在这种情况下, 材料的线性光学性质由诱导极化决定, 其线性磁化率由 $\chi$ 充分表征。相反, 当入射场有足够高的强度时, 谐波电位的近似开始失效, 电势为非对称, 电子可以看作被失谐电势所限制。这种非对称势是材料光学性质的所有非线性效应的根源。

与上述大体积介质中的非线性效应形成鲜明对比的是, 量子受限系统中的非线性光学, 即量子阱中的非线性光学<sup>[86-87]</sup>, 这些类型的系统可以被认为是人工原子。在异质结构中束缚电子的势能可以被设计为一种特定的方式, 这样就可以制造人为的非对称结构。正如文献[86]中的QCLs, 其有源区是设计好的InGaAs/InAlAs交替的超晶格结构(一般几百或上千层), 具有很高非线性系数的人工材料展现了丰富的非线性效应, 而通过这些非线性效应可以进行模式锁定, 如图6(a)所示, 包括四波混频、差频等。

同时, 能带设计也可以进行一些改良。利用2个具有不同带隙能量的半导体实现量子阱是实现人工非线性光学特性的一种方式。在非对称量子阱的情况下, 通过设计特定的能量态和量子阱的相互耦合, 可以生成具有强非线性敏感性的结构<sup>[88-90]</sup>。不对称(耦合)量子阱结构如图6(b)和图6(c)所示。量子阱的宽度决定子带能级位置, 势垒宽度和高度决定子带交叠。这样构成的不对称耦合量子阱具有较高的非线性效应, 在差频太赫兹器件<sup>[20, 91]</sup>的能带结构设计领域已有相关报道。

### 1.2.3 四波混频效应

四波混频(Four Wave Mixing, FWM)效应为产生自由运行的QCLs光频梳的本源<sup>[92-93]</sup>。QCLs光频梳与传统光频梳的不同之处是, 由于子带间跃迁的增益恢复较短, QCLs光频梳的激光输出不由一系列短脉冲组成。实际上, 光频梳的产生并不严格等同于短脉冲的产生, 光频梳形成的必要条件

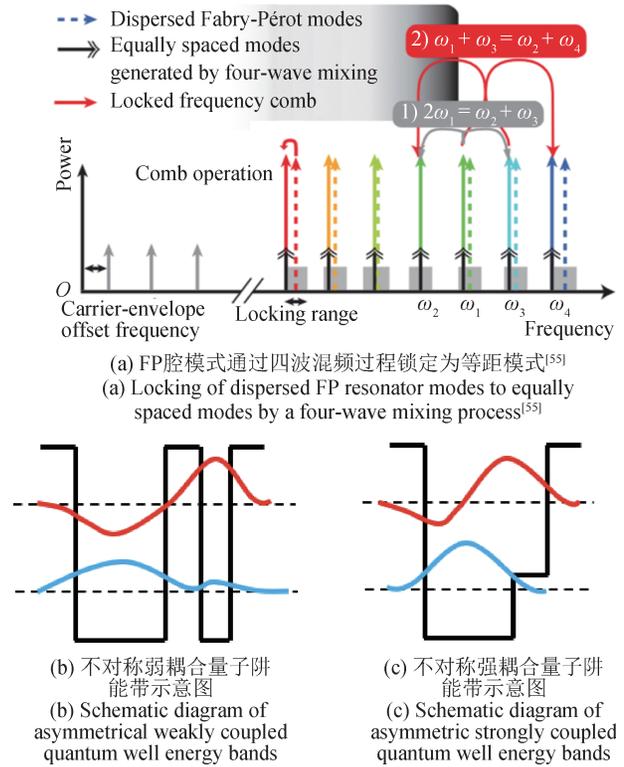


图6 非线性效应示意图

Fig.6 Schematic diagram of nonlinear effect

是模间距相等, 这是激光器的不同模式均锁定的结果。超短脉冲的发射是一个特例, 其模式之间的相位差等于零。而QCLs光频梳模态之间的相位差随机分布, 但相位差随着时间的推移是恒定的。QCLs光频梳依靠自身强大的FWM效应, 可以实现不同纵模之间相互锁定。对于非简并情况, FWM过程需要3个光波参与, 产生第4种频率的光波。假定3种输入光波的频率和波矢分别为 $(\omega_1, \mathbf{k}_1)$ 、 $(\omega_2, \mathbf{k}_2)$ 、 $(\omega_3, \mathbf{k}_3)$ , 由于QCLs光频梳基于三阶非线性效应, 其相应的非线性极化强度矢量 $\mathbf{P}$ 为

$$\mathbf{P} = \varepsilon_0 \chi^{(3)} E_1 E_2 [E_3]^* e^{-i[(\omega_1 + \omega_2 - \omega_3)t - (\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_3)x]} \quad (8)$$

式中:  $E_1$ 、 $E_2$ 为电场强度,  $E_3$ 为共轭,  $t$ 为传播时间,  $x$ 为位移,  $i$ 为虚数单位。式(8)中的 $\mathbf{P}$ 可以看作四波混频产生的电磁波, 该电磁波的方程可以写为 $E_4 e^{-i(\omega_4 t - \mathbf{k}_4 x)}$ , 因此可以得到 $\omega_4 = \omega_1 \pm \omega_2 \pm \omega_3$ 和 $\mathbf{k}_4 = \mathbf{k}_1 \pm \mathbf{k}_2 \pm \mathbf{k}_3$ , 其中 $\mathbf{k}_i = n_i \omega_i / c$ ,  $n$ 为折射率,  $c$ 为光速。

上述为波矢匹配条件, 也是实现FWM的必要条件, 通常称为相位匹配条件。相位匹配条件是所有非线性光学效应产生过程中必须考虑的条件,

QCL光频梳研制及其射频注入研究包括二次倍频、差频、和频、光参量振荡等。然而，相位并不能完美匹配，因为不同频率的光波在同一介质中折射率不同，以不同的群速度传播，引起群速度色散(Group Velocity Dispersion, GVD)。波矢 $k_4$ 和频率 $\omega_4$ 之间存在色散关系 $k_4 = \omega_4 n(\omega) / c$ ，导致匹配条件不能被同时满足，只有精确控制GVD后，FWM效应才能有效发生。

## 2 量子级联激光器光频梳的设计

### 2.1 光频梳的色散工程

GVD对于QCLs光频梳操作至关重要，因此，了解在QCLs腔中产生GVD的不同因素(包括材料

色散、波导色散和增益色散)很重要。与传统设备相比，异质QCL具有很低的GVD<sup>[94]</sup>。而调节影响锁定纵向模式能力的GVD主要依靠波导结构的设计，比如常应用于中红外波段的耦合波导结构<sup>[95-97]</sup>和针对长波长(THz波段)的半绝缘等离子波导或者双面金属波导结构<sup>[98-100]</sup>。

2017年，BIDAUX Y等人<sup>[98]</sup>使用了等离子激元增强的波导，如图7所示，在这样的波导中，有源区域(Active Region, AR)位于两个低掺杂InP底部和顶部包层之间。在顶部包层的最后一层中，增加掺杂使等离子体频率接近激光频率。降低顶部包层的折射率可增加基模限制、减少与器件金属顶部接触相关的光损耗。

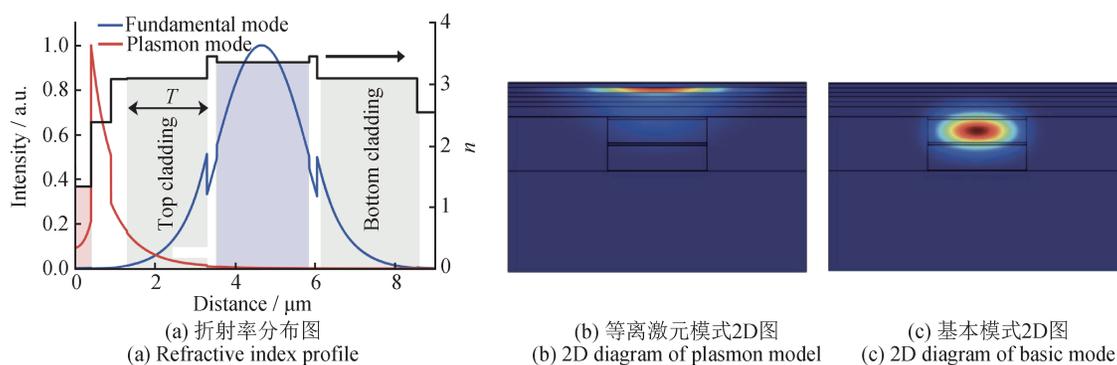


图7 等离子激元增强的波导示意图<sup>[98]</sup>

Fig.7 Schematic diagram of waveguide with plasmon enhancement<sup>[98]</sup>

2024年，WU D P等人<sup>[101]</sup>利用基于光模耦合器件顶部包层设计的无源电介质波导来演示色散补偿。如图8(a)所示，该器件在靠近有源区域集成了无源InGaAs波导。器件正面的扫描电子显微镜(Scanning Electron Microscopy, SEM)图像如图8(b)所示。每个波导都有一个与频率相关的传播矢量，波导的设计使这2个传播矢量大小与谐振频率 $\omega_0$ 相等。在此频率下，如果2个光学模式具有相等的GVD，则他们耦合形成对称和反对称超模。由于耦合，超模从具有较高(相应耦合较低)群速度的分支切换到具有较低(相应耦合较高)群速度的分支，这些超模具有谐振抑制(相应耦合增强)GVD，可用于色散补偿。使用二维有限元求解器模拟各种几何形状的光学模式，并在中心激光波长处瞄准零GVD。沿所制造器件生长轴的折射率分布如图8(c)所示，QCL的横截面热分布如图8(d)所示。两种模拟结构都采用了外延面向下的安装方式，

固定在焊接到铜散热器上的金刚石基座上，温度由热电冷却器控制。

### 2.2 环形量子级联激光器中的光频梳

从具有旋转对称性的环形几何结构中产生光频梳的现象具有研究价值，因为在这种结构中，由于谐振器的行波特性，空间烧孔效应可以忽略不计。2020年，MENG B等人首次展示了从电泵浦环形激光器中生成光频梳的实例<sup>[102]</sup>，这项研究使用了色散补偿的埋藏异质结构环形腔，该腔体具有非常光滑的侧壁，最大程度地减少了顺时针和逆时针两种空间模式之间的反向散射。SEITNER L等人近期的研究为分析反向散射在激光动力学中的作用提供了理论指导<sup>[103]</sup>。激光器的输出通过波导侧壁的散射捕获，在超越某个阈值后，激光器进入单向工作状态，在该状态下测得的射频拍频线宽低于900 Hz，相较FP光频梳有了显著改善。

图9(a)展示了环形QCL的光谱演变过程，研

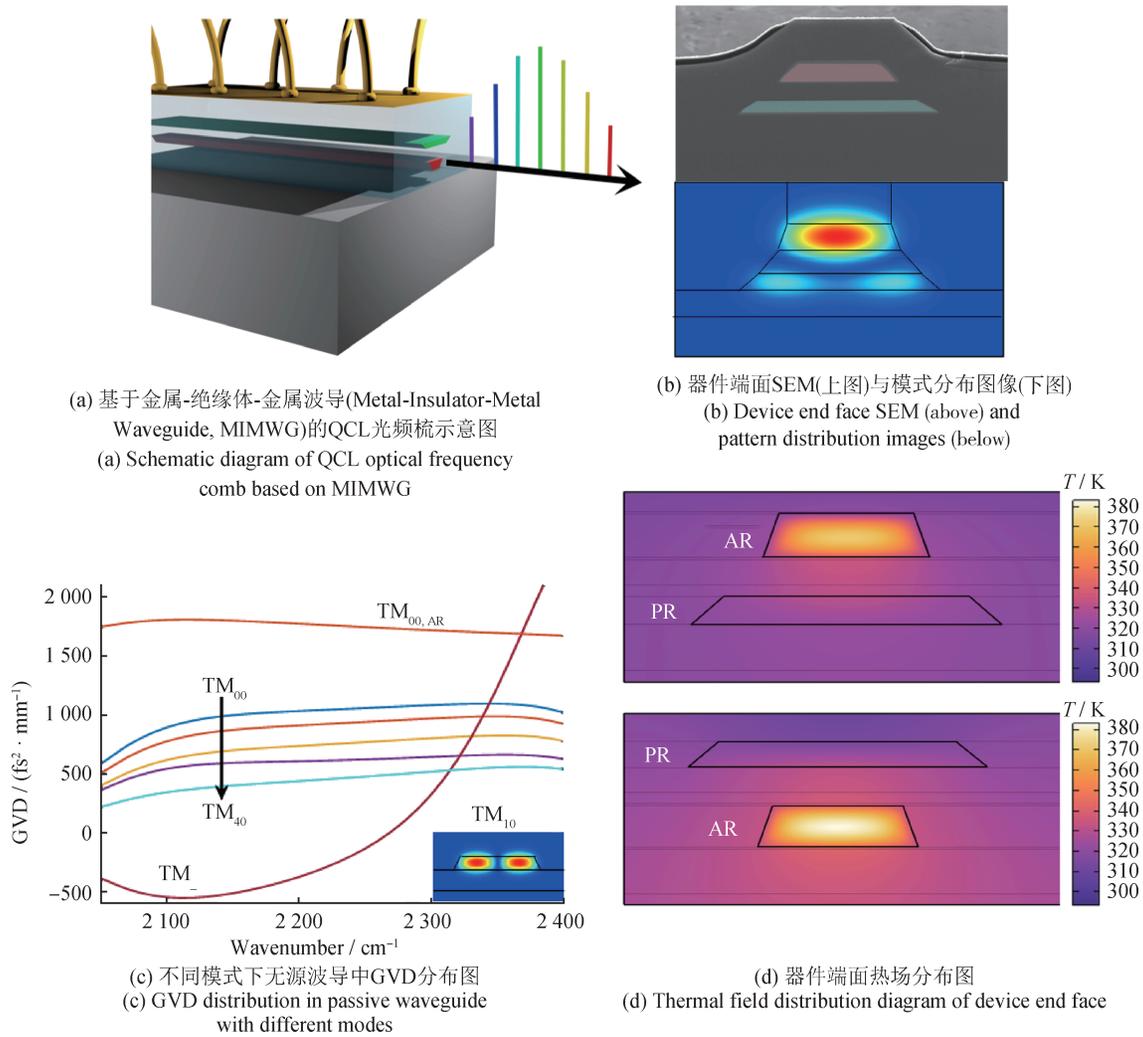


图8 金属-绝缘体-金属波导色散补偿QCL示意图<sup>[101]</sup>  
Fig.8 Metal-insulator-metal waveguide dispersion compensation QCL diagram<sup>[101]</sup>

研究人员通过多异频实验对该结果进行了严格验证。2020年,另一项研究也发现了自由悬浮环形几何结构中的光频梳,这促使研究者们探究了一种被称为相位湍流的不稳定机制<sup>[65]</sup>。研究表明,通过考虑复杂Ginzburg-Landau(CGLE)方程,单模解可能出现不稳定性。线宽增强因子对经典的GVD和克尔非线性之间的相互作用至关重要,而这两者是产生参量光频梳所需的关键因素。环形光频梳的模式数量少于FP光频梳,并且这些模式遵循一个特征的 $\text{sech}^2$ 包络,如图9(b)所示。在一个对照环形激光器中引入一个刻蚀狭缝作为缺陷,强制腔内形成驻波,研究发现,在这种情况下,频谱更类似于FP光频梳,这进一步证实了空间烧孔效应的存在和影响<sup>[104]</sup>。虽然 $\text{sech}^2$ 包络已经暗示孤子的存在<sup>[105]</sup>,但研究人员仍进行了严格测量以重建

时间波形,并测量了3 ps的脉冲宽度。需要通过光学滤波来消除孤子的色散波背景,研究者使用定制光学器件执行了该操作。具有特征包络的环形QCL的耗散Kerr孤子的频谱和重建的时间波形如图9(c)所示。2023年,HECKELMANN I等人还将光频梳的生成描述为变形环激光器合成空间中的量子行走<sup>[106-107]</sup>。

2024年,OPAČAK N等人<sup>[108]</sup>在电驱动的中红外环形半导体激光器中演示了一种名为Nozaki-Bekki(NB)孤子的光学耗散孤子,他们以满足环形周期性边界条件的行进暗脉冲系列中的局域波形出现。器件中的有源激光增益材料提供了很大的克尔非线性,因此不需要使用频率调谐的外部光泵。NB孤子表现为相干的单向传播暗脉冲,其特征是宽而平滑的光谱包络。可见的脉冲肩部表示

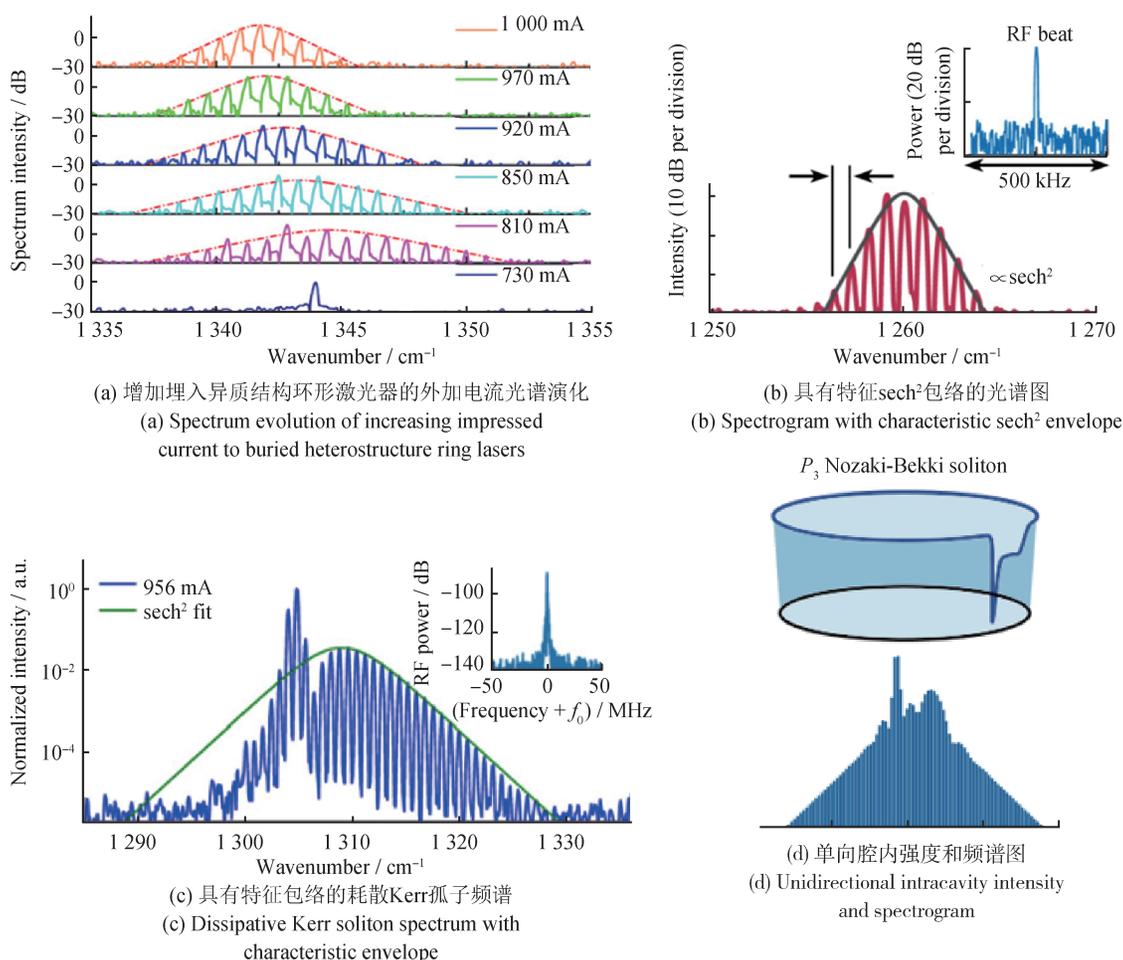


图9 环形QCL频域图<sup>[107-108]</sup>

Fig.9 Circular QCL frequency domain diagram<sup>[107-108]</sup>

激波，使波形稳定在环形周期性边界条件下，如图9(d)所示。

### 3 量子级联激光器光频梳的光谱应用

光频梳在频域中起到了“标尺”的作用，为诸多领域开辟了新的技术途径，如基础时间计量学、光谱学和频率合成等。特别是在光谱学中，光频梳技术的精度和速度已经超越了傅里叶光谱仪，该技术对于中红外波段测量尤为重要，因为大多数气体分子的基本转动-振动带都在这一范围内<sup>[109]</sup>。大多数中红外光频梳源是近红外锁模超快激光通过非线性晶体转换而来的<sup>[110]</sup>，在光频梳光谱应用中，这种方法实现了前所未有的光谱覆盖范围、分辨力和灵敏度<sup>[111-114]</sup>。另一种产生光频梳的方法是利用连续波激光泵浦超高品质因数的微谐振器。为了扩大中红外梳状光源在光谱学中的

应用，更紧凑且自由运行的宽带QCL光频梳是更为理想的选择。

DCS利用一对光频梳源的光频梳特性来进行宽带光学测量，无需使用任何移动部件或色散元件。在DCS中，通过一对具有相互光谱重叠的光源之间的光学外差，实现了光学域与微波域之间的连接。这2个光源之间的相互作用会产生类似傅里叶变换红外光谱中的干涉图，但不同之处在于，外差谱是通过电场的互相关而非自相关实现的。

进行双梳多外差实验可以进一步研究梳的相干性<sup>[5]</sup>。图10(a)显示了DCS原理的示意图。该技术基于2个光频梳的多外差跳动，2个光频梳的梳线间距略有不同，从参考检测器中提取多外差信号。在大多数DCS配置中，一个梳子用作本地振荡器，而另一个梳子用于检测样品，如图10(b)所示。由于一对一映射，每个多外差拍包含关于

测试样本梳状线的光频率处样本吸收信息。由2个QCL梳的多外差差拍生成的典型时域干涉图如图10(c)和图10(d)所示。与观察到零延迟时间突发的传统双梳设置的干涉图不同,2个FM梳的跳动显示出几乎恒定的幅度。2024年,本课题组报

告了一种具有高速封装的混合单片集成波导(Hybrid Monolithic Integrated Waveguides, HMIWG)结构,用于 $\lambda \sim 4.6 \mu\text{m}$ 的自检测中红外QCL的DCS,其具有高输出功率、宽光谱覆盖范围和强梳状相干性。

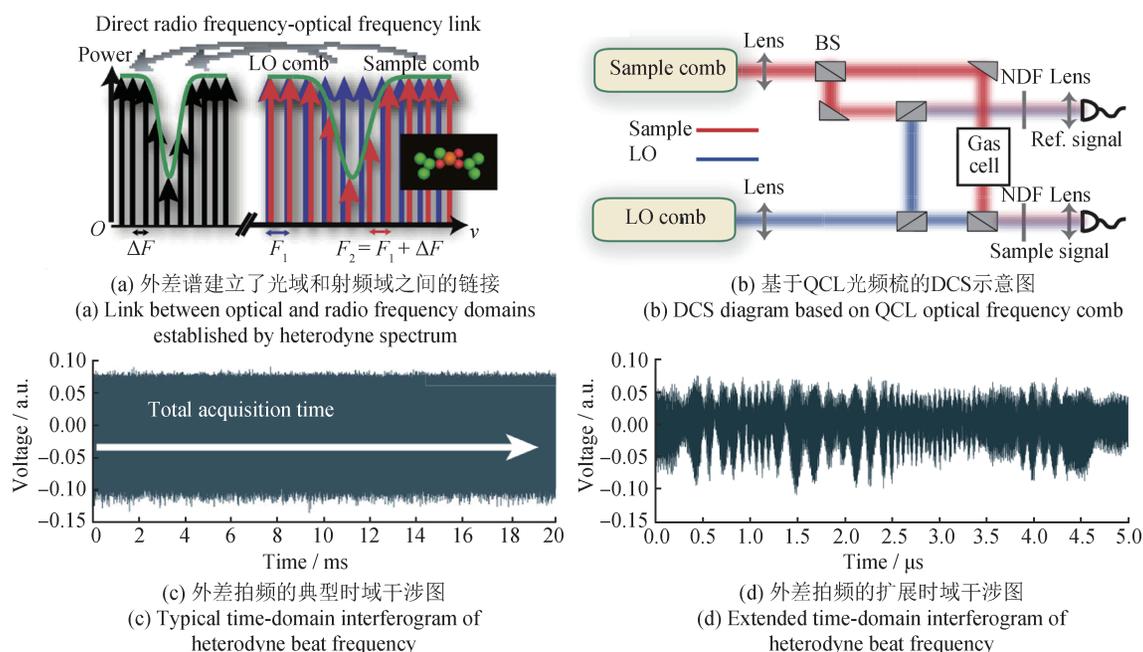


图10 双光梳光谱原理图<sup>[5]</sup>

Fig.10 Schematic diagram of double comb spectrum<sup>[5]</sup>

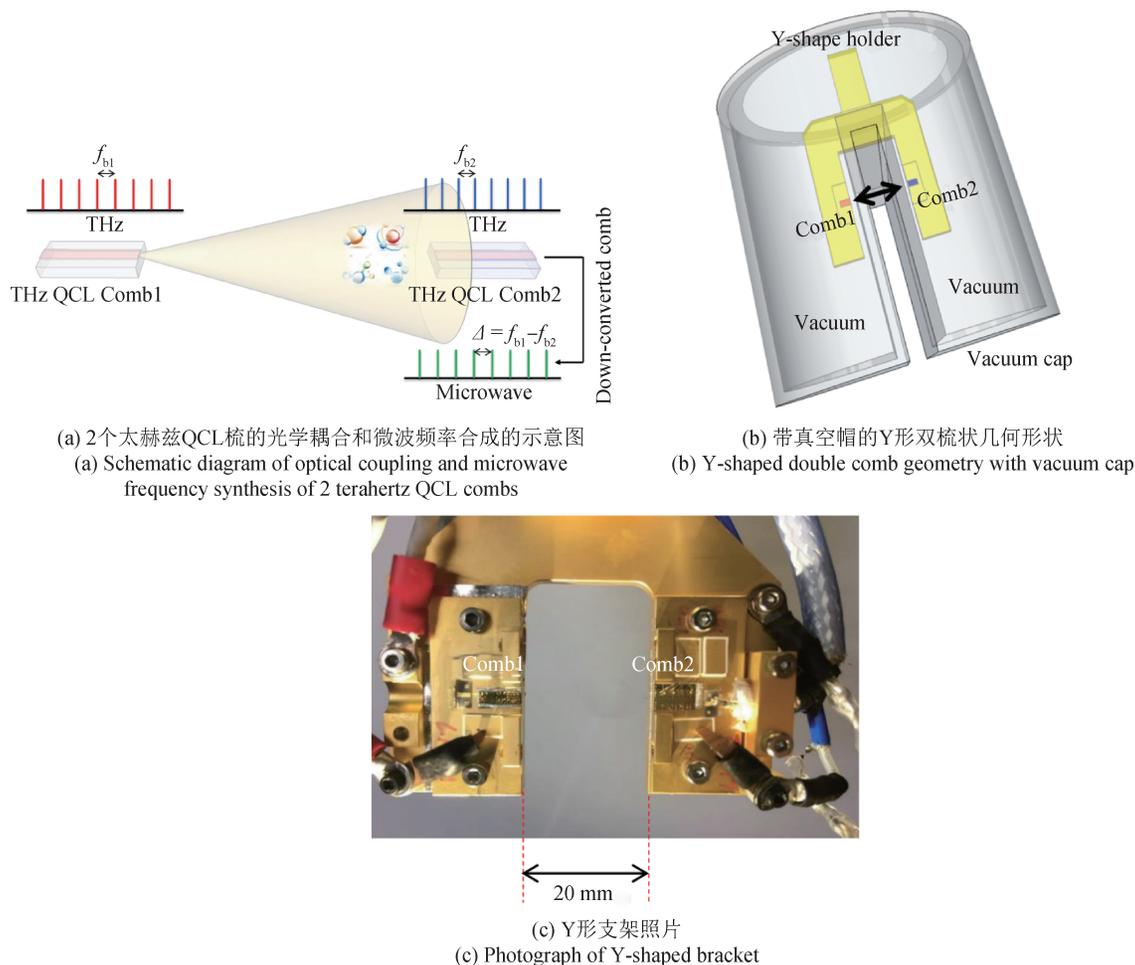
2019年,LI H等人<sup>[115]</sup>利用QCL梳的自检测,成功获得了自由空间光耦合产生的不同载波频率下的多个DCS。此外,他们使用多外差双梳系统测量了GaAs标准量具的吸水率和透射率,微波-太赫兹频率之间的链接关系也被确定。图11(a)显示了紧凑型太赫兹多外差双梳系统的原理图,2个太赫兹QCL分别为Comb1和Comb2,Comb1具有混合有源区域,Comb2具有单个等离子体激元波导,两者面对面放置。2个激光梳在空间上分离,因此多外差系统可通过在激光梳之间引入样本实现快速光谱检测。通过设计Y形支架,可以实现紧凑的多外差检测,如图11(b)所示,2个激光梳位于支架的2个分支上,并具有高密度聚乙烯真空盖,旨在在梳间创建一个样品室。图11(c)显示了Y形支架的照片,其中2个激光梳安装在分支上。

DCS在生物物理学方面具有重要应用,研究人员利用生物相关系统(例如蛋白质、多肽、核酸)对(时间分辨)红外光谱进行了广泛的研究<sup>[116]</sup>。红

外光谱能够揭示这些分子系统在孤立状态下以及在生物相关环境中的结构和功能信息。最受关注的光谱区域是酰胺I带(约 $1600 \sim 1800 \text{ cm}^{-1}$ ),因为他在多肽光谱中非常显著;相比之下,酰胺II带和酰胺III带( $1450 \sim 1600 \text{ cm}^{-1}$ 和 $1300 \sim 1450 \text{ cm}^{-1}$ )则研究较少<sup>[117-119]</sup>。

通过双光梳红外差谱可以跟踪侧链的质子化和去质子化过程以及氧化还原状态的变化。如果需要获得位点特异性的信息,可以使用位点特异性的红外探针(例如CO、CN、 $\text{N}_3$ 、NO基团和非标准氨基酸)研究生物分子中的特定目标<sup>[120]</sup>。红外光谱的一个重要优势在于其能够在飞秒到数小时的时间尺度上确定动态变化,而这些时间尺度与生物物理学研究需求相对应。

QCL光频梳结合了GHz重复频率、 $50 \sim 100 \text{ cm}^{-1}$ 的光谱覆盖范围和超过 $50 \text{ mW}$ 的光功率,在 $1 \mu\text{s}$ 时间分辨力下获得的光谱能够覆盖酰胺及其他吸收带的典型宽度,并且在 $1 \text{ ms}$ 积分时间内传输噪

图11 Y形QCL双光梳原理示意图<sup>[115]</sup>Fig.11 Principle diagram of Y-shaped QCL double optical comb<sup>[115]</sup>

声低至  $10^{-3} \sim 10^{-4}$  dB。2022年, SCHUBERT L等人<sup>[121]</sup>研究了视黄醛席夫碱的C=N伸缩振动模式及蛋白质在  $1680 \sim 1620 \text{ cm}^{-1}$ 区域的构象变化,以及在  $1770 \sim 1720 \text{ cm}^{-1}$ 范围内的天冬氨酸质子化过程。

DCS还可应用于涉及高压和高温的燃烧系统,以及涉及多种物质的快速反应动力学系统,例如激波管。通常需要在每次激波管实验后清洁设备、更换防爆膜,且该实验需要消耗大量样品气体,这导致每个工作日的重复实验次数非常有限。因此,必须以较高的灵敏度和小于1 ms的非常有限的积分时间来测量目标物质的温度和压力。在此基础上,需要解析气态物质的吸收线和可能使探测器饱和的热气体的热发射所对应的光谱分辨力。

2020年, PINKOWSKI N H等人<sup>[122]</sup>利用QCL的DCS,首次将燃料(丙炔)氧化成水的激波管实验

中针对2个单独的分布式反馈激光诊断进行了验证,如图12(a)所示。2种激光诊断的形态结果如图12(b)所示,该结果与USC Mech. II动力学机制数值模型相比较,具有良好的一致性。同年, GIANELLA M等人<sup>[123]</sup>为了证明光谱交错方法的能力,测量了甲烷的低压(107 hPa)气相吸收和色散光谱。在此压力下,甲烷吸收线半峰处的全宽约为400 MHz。在图12(c)和图12(d)中,测量的光谱沿着使用高分辨力传输分子吸收数据库(High-Resolution Transmission Molecular Absorption Database, HITRAN)模拟的吸收光谱显示<sup>[124]</sup>。

2022年, LEPÈRE M等人<sup>[125]</sup>首次开发出了一种采用QCL的中红外高分辨力DCS步进扫描方法,该方法以VILLARES G等人描述的光谱交错方法为基础<sup>[126]</sup>,依赖于对激光器的逐步调谐。与同时调谐激光器相比,该技术利用异差拍频信号直接测

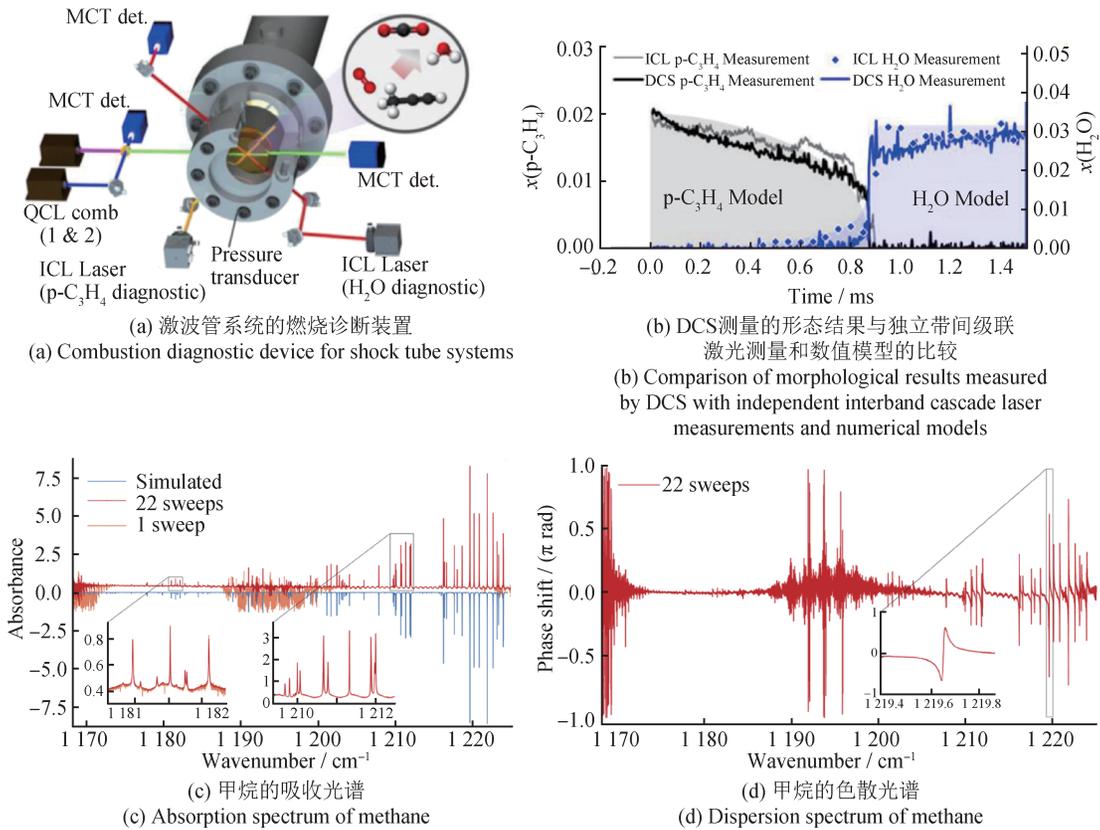


图12 气体燃烧测试示意图<sup>[122-124]</sup>

Fig.12 Gas combustion test diagram<sup>[122-124]</sup>

量相对频率轴，无需依赖高带宽锁定环路或外部频率标尺(采集卡的时钟除外)。此外，步进扫描保留了双梳测量的微秒时间分辨力，适用于反应气体或脉冲分子束的瞬态测量研究。研究中使用的激光器光谱在  $1283 \sim 1333 \text{ cm}^{-1}$  的范围内与分子光谱重叠，这个范围非常适合研究甲烷  $\nu_4$  基带的 Q 分支以及 P 和 R 分支的低旋转能级。图 13(a) 中给出了  $0.185 \text{ mbar}$  压力下纯甲烷的测量透射光谱以及基于 HITRAN 数据库中的线参数计算的透射光谱。图 13(b) 显示了在双梳实验中同时测量的色散谱。

#### 4 总结与展望

光频梳是一种具有精确和等间隔频率模式的光源，广泛应用于高精度光谱、通信系统和阿秒脉冲生成等领域。光频梳通常由锁模飞秒激光器产生，其光谱在频域上形成等间隔的梳状模式。通过设计精细的光学腔和选择合适的激光器，可以实现具有极高分辨力的光频梳。光频梳技术，特别是基于 QCL 的光频梳，展现了在高精度测量和通信系统中的巨大潜力，其应用正在快速发展，

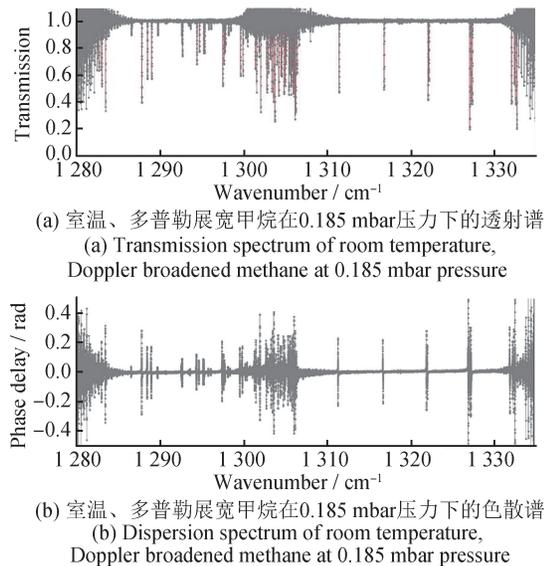


图13 甲烷气体光谱图<sup>[125]</sup>

Fig.13 Methane gas spectra<sup>[125]</sup>

并且有望取得新的进步，特别是在光谱学、传感和自由空间通信领域，其中利用光频梳的节拍作为传输信号的载体已经得到了广泛应用。QCL 光频梳未来的研究方向主要包括：

## 1) 在基础物理方面

需要对自启动谐波光频梳的物理机理进行理论解释。谐波梳与基础物理相关,具有多种潜在应用前景。非线性克尔介质有望产生更高的每模功率和更宽的谐波态模式间距,从而生成宽带区域,进而使谐波梳更适合宽带光谱应用。此外,理论上预测的调幅谐波状态有望应用于泵浦和探针光谱。谐波梳模式的自跳动产生的微波和太赫兹辐射使这些机制有望应用于无线通信领域的新型系统。

## 2) 在器件应用方面

未来需要重点研究环形腔 QCL 光频梳技术。在环形腔中发现的自由运行操作的 Kerr 孤子,将对基于孤子的通信系统和光谱测量等领域的发展产生重大影响。

## 参考文献

- [1] UDEM T, HOLZWARTH R, HÄNSCH T W. Optical frequency metrology [J]. *Nature*, 2002, 416 (6877): 233-237.
- [2] LOMSADZE B, CUNDIFF S T. Frequency combs enable rapid and high-resolution multidimensional coherent spectroscopy[J]. *Science*, 2017, 357(6358): 1389-1391.
- [3] CINGÖZ A, YOST D C, ALLISON T K, et al. Direct frequency comb spectroscopy in the extreme ultraviolet [J]. *Nature*, 2012, 482(7383): 68-71.
- [4] WEICHMAN M L, CHANGALA P B, YE J, et al. Broadband molecular spectroscopy with optical frequency combs [J]. *Journal of Molecular Spectroscopy*, 2019, 355: 66-78.
- [5] VILLARES G, HUGI A, BLASER S, et al. Dual-comb spectroscopy based on quantum-cascade-laser frequency combs [J]. *Nature Communications*, 2014, 5(1). DOI: 10.1038/ncomms6192.
- [6] HU H, OXENLØWE L K. Chip-based optical frequency combs for high-capacity optical communications [J]. *Nanophotonics*, 2021, 10(5): 1367-1385.
- [7] PUPEZA I, ZHANG C, HÖGNER M, et al. Extreme-ultraviolet frequency combs for precision metrology and attosecond science [J]. *Nature Photonics*, 2021, 15 (3): 175-186.
- [8] FAIST J, VILLARES G, SCALARI G, et al. Quantum cascade laser frequency combs [J]. *Nanophotonics*, 2016, 5(2): 272-291.
- [9] DIDDAMS S A. The evolving optical frequency comb [J]. *J. Opt. Soc. Am. B.*, 2010, 27(11): 51-62.
- [10] VILLARES G F F. Quantum cascade laser frequency combs for spectroscopy applications [D]. Zurich: ETH, 2016.
- [11] HENRY N C, BURGHOFF D, KHURGIN J B. Mitigating offset frequency drift in frequency combs using a customized power law dispersion [J]. *Optics Letters*, 2020, 45(13): 3525-3528.
- [12] TORRES-COMPANY V, WEINER A M. Optical frequency comb technology for ultra-broadband radio-frequency photonics [J]. *Laser & Photonics Reviews*, 2014, 8(3): 368-393.
- [13] MARIN-PALOMO P, KEMAL J N, KARPOV M, et al. Microresonator-based solitons for massively parallel coherent optical communications [J]. *Nature*, 2017, 546 (7657): 274-279.
- [14] CHANG L, LIU S, BOWERS J E. Integrated optical frequency comb technologies [J]. *Nature Photonics*, 2022, 16(2): 95-108.
- [15] DIDDAMS S A, JONES D J, YE J, et al. Direct link between microwave and optical frequencies with a 300 THz femtosecond laser comb [J]. *Physical Review Letters*, 2000, 84 (22): 5102-5105. DOI: 10.1103/PhysRevLett.84.5102.
- [16] KAZARINOV R F. Possibility of amplification of electromagnetic waves in a semiconductor with a superlattice [J]. *Sov. Phys. Semicond.*, 1971, 5(4): 707-709.
- [17] FAIST J, CAPASSO F, SIVCO D L, et al. Quantum cascade laser [J]. *Science*, 1994, 264(5158): 553-556.
- [18] MAULINI R, BECK M, FAIST J, et al. Broadband tuning of external cavity bound-to-continuum quantum-cascade lasers [J]. *Applied Physics Letters*, 2004, 84 (10): 1659-1661.
- [19] BAI Y, BANDYOPADHYAY N, TSAO S, et al. Room temperature quantum cascade lasers with 27% wall plug efficiency [J]. *Applied Physics Letters*, 2011, 98(18). DOI: 10.1063/1.3586773.
- [20] LU Q Y, BAI Y, BANDYOPADHYAY N, et al. 2.4 W room temperature continuous wave operation of distributed feedback quantum cascade lasers [J]. *Applied Physics Letters*, 2011, 98(18). DOI: 10.1063/1.3588412.
- [21] LU Q, WANG F, WU D, et al. Room temperature terahertz semiconductor frequency comb [J]. *Nature Communications*, 2019, 10(1). DOI: 10.1038/s41467-019-10395-7.

- [22] ZHOU W, LU Q Y, WU D H, et al. High-power, continuous-wave, phase-locked quantum cascade laser arrays emitting at 8  $\mu\text{m}$  [J]. *Optics Express*, 2019, 27(11): 15776–15785.
- [23] WANG H, ZHANG J C, CHENG F M, et al. Watt-level, high wall plug efficiency, continuous-wave room temperature quantum cascade laser emitting at 7.7  $\mu\text{m}$  [J]. *Optics Express*, 2020, 28(26): 40155–40163.
- [24] FEI T, ZHAI S, ZHANG J, et al. 3 W Continuous-wave room temperature quantum cascade laser grown by metal-organic chemical vapor deposition [J]. *Photonics*, 2023, 10(1). DOI: 10.1063/1.3238263.
- [25] MEYER J R, ZHANG D, BEWLEY W W, et al. Type II inter-band cascade and vertical-cavity surface-emitting mid-IR lasers [J]. *IEEE Proceedings Optoelectronics*, 1998, 145(5): 275–280.
- [26] YANG M J, MOORE W J, BENNETT B R, et al. Optimum growth parameters for type II infrared lasers [J]. *Journal of Applied Physics*, 1999, 86(4): 1796–1799.
- [27] NOSHO B Z, BARVOSA-CARTER W, YANG M J, et al. Interpreting interfacial structure in cross-sectional STM-Images of semiconductor or hetero structures [J]. *Surface Science*, 2000, 465(3): 361–371.
- [28] YANG M J, MOORE W J, YANG C H, et al. Determination of temperature dependence of GaSb absorption edge and its application for transmission thermometry [J]. *Journal of Applied Physics*, 1999, 85(9): 6632–6635.
- [29] YANG M J, MEYER J R, BEWLEY W, et al. Type-I antimonide quantum wells for midinfrared lasers [J]. *Optical Materials*, 2001, 17(1/2): 179–183.
- [30] CANEDY C L, BEWLEY W, KIM C S, et al. Dependence of type I "W" mid-infrared photoluminescence and lasing properties on growth conditions [J]. *Journal of Applied Physics*, 2003, 94(3): 1347–1355.
- [31] LU Q Y, RAZEGHI M, SLIVKEN S, et al. High power frequency comb based on mid-infrared quantum cascade laser at  $\lambda \sim 9 \mu\text{m}$  [J]. *Applied Physics Letters*, 2015, 106(5). DOI: 10.1063/1.5020747.
- [32] KAZARINOV R F. Possible amplification of electromagnetic waves in a semiconductor with a superlattice [J]. *Soviet Physics Semiconductors*, 1971, 5(4): 707–709.
- [33] VITIELLO M S, SCALARI G, WILLIAMS B, et al. Quantum cascade lasers: 20 years of challenges [J]. *Optics Express*, 2015, 23(4): 5167–5182.
- [34] VITIELLO M S, TREDICUCCI A. Physics and technology of Terahertz quantum cascade lasers [J]. *Advances in Physics: X*, 2021, 6(1). DOI: 10.1080/23746149.2021.1893809.
- [35] KÖHLER R, TREDICUCCI A, BELTRAM F, et al. Terahertz semiconductor-heterostructure laser [J]. *Nature*, 2002, 417(6885): 156–159.
- [36] CHO A Y, ARTHUR J R. Molecular beam epitaxy [J]. *Progress in Solid State Chemistry*, 1975, 10: 157–191.
- [37] VILLARES G, FAIST J. Quantum cascade laser combs: effects of modulation and dispersion [J]. *Optics Express*, 2015, 23(2): 1651–1669.
- [38] SIRTORI C, CAPASSO F, FAIST J, et al. Resonant tunneling in quantum cascade lasers [J]. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 1998, 34(9): 1722–1729.
- [39] POGNA E A A, SILVESTRI C, COLUMBO L L, et al. Terahertz near-field nanoscopy based on detectorless laser feedback interferometry under different feedback regimes [J]. *APL Photonics*, 2021, 6(6). DOI: 10.1063/5.0048099.
- [40] GIORDANO M C, MASTEL S, LIEWALD C, et al. Phase-resolved terahertz self-detection near-field microscopy [J]. *Optics Express*, 2018, 26(14): 18423–18435.
- [41] PISTORE V, POGNA E A A, VITI L, et al. Self-induced phase locking of terahertz frequency combs in a phase-sensitive hyperspectral near-field nanoscope [J]. *Advanced Science*, 2022, 9(28). DOI: 10.1002/adv.202200410.
- [42] GUO X, HE X, DEGNAN Z, et al. Near-field terahertz nanoscopy of coplanar microwave resonators [J]. *Applied Physics Letters*, 2021, 119(9). DOI: 10.1063/5.0061078.
- [43] GUO X, BERTLING K, RAKIĆ A D. Optical constants from scattering-type scanning near-field optical microscope [J]. *Applied Physics Letters*, 2021, 118(4). DOI: 10.1063/5.0036872.
- [44] POGNA E A A, VITI L, POLITANO A, et al. Mapping propagation of collective modes in  $\text{Bi}_2\text{Se}_3$  and  $\text{Bi}_2\text{Te}_{2.2}\text{Se}_{0.8}$  topological insulators by near-field terahertz nanoscopy [J]. *Nature Communications*, 2021, 12(1). DOI: 10.1038/s41467-021-26831-6.
- [45] LIM Y L, BERTLING K, TAIMRE T, et al. Coherent imaging using laser feedback interferometry with pulsed-mode terahertz quantum cascade lasers [J]. *Optics Express*, 2019, 27(7): 10221–10233.

- [46] DARMO J, TAMOSIUNAS V, FASCHING G, et al. Imaging with a Terahertz quantum cascade laser [J]. *Optics Express*, 2004, 12(9): 1879–1884.
- [47] KULESA C. Terahertz spectroscopy for astronomy: from comets to cosmology [J]. *IEEE Transactions on Terahertz Science and Technology*, 2011, 1(1): 232–240.
- [48] LI H, LAFFAILLE P, GACEMI D, et al. Dynamics of ultra-broadband terahertz quantum cascade lasers for comb operation [J]. *Optics Express*, 2015, 23(26): 33270–33294.
- [49] ZHOU K, LI H, WAN W J, et al. Ridge width effect on comb operation in terahertz quantum cascade lasers [J]. *Applied Physics Letters*, 2019, 114(19). DOI: 10.1063/1.5090788.
- [50] LI Z, WAN W, ZHOU K, et al. On-chip dual-comb source based on terahertz quantum cascade lasers under microwave double injection [J]. *Physical Review Applied*, 2019, 12(4). DOI: 10.1103/PhysRevApplied.12.044068.
- [51] LI H, LI Z, WAN W, et al. Toward compact and real-time terahertz dual-comb spectroscopy employing a self-detection scheme [J]. *ACS Photonics*, 2019, 7(1): 49–56.
- [52] ZHAO Y, LI Z, ZHOU K, et al. Active stabilization of terahertz semiconductor dual-comb laser sources employing a phase locking technique [J]. *Laser & Photonics Reviews*, 2021, 15(4). DOI: 10.1002/lpor.202000498.
- [53] GUAN W, LI Z, WU S, et al. Relative phase locking of a terahertz laser system configured with a frequency comb and a single-mode laser [J]. *Advanced Photonics Nexus*, 2023, 2(2): 026006–026009.
- [54] LI Z, MA X, ZHOU K, et al. Terahertz semiconductor dual-comb sources with relative offset frequency cancellation [J]. *Laser & Photonics Reviews*, 2023, 17(4). DOI: 10.1002/lpor.202200418.
- [55] HUGI A, VILLARES G, BLASER S, et al. Mid-infrared frequency comb based on a quantum cascade laser [J]. *Nature*, 2012, 492(7428): 229–233.
- [56] BURGHOFF D, KAO T Y, HAN N, et al. Terahertz laser frequency combs [J]. *Nature Photonics*, 2014, 8(6): 462–467.
- [57] KHURGIN J B, DIKMELIK Y, HUGI A, et al. Coherent frequency combs produced by self frequency modulation in quantum cascade lasers [J]. *Applied Physics Letters*, 2014, 104(8). DOI: 10.1063/1.4866868.
- [58] BURGHOFF D, YANG Y, HAYTON D J, et al. Evaluating the coherence and time-domain profile of quantum cascade laser frequency combs [J]. *Optics Express*, 2015, 23(2): 1190–1202.
- [59] MANSURIPUR T S, VERNET C, CHEVALIER P, et al. Single-mode instability in standing-wave lasers: The quantum cascade laser as a self-pumped parametric oscillator [J]. *Physical Review A*, 2016, 94(6). DOI: 10.1103/PhysRevA.94.063807.
- [60] KAZAKOV D, PICCARDO M, WANG Y, et al. Self-starting harmonic frequency comb generation in a quantum cascade laser [J]. *Nature Photonics*, 2017, 11(12): 789–792.
- [61] SINGLETON M, JOUY P, BECK M, et al. Evidence of linear chirp in mid-infrared quantum cascade lasers [J]. *Optica*, 2018, 5(8): 948–953.
- [62] OPAČAK N, SCHWARZ B. Theory of frequency-modulated combs in lasers with spatial hole burning, dispersion, and Kerr nonlinearity [J]. *Physical Review Letters*, 2019, 123(24). DOI: 10.1103/PhysRevLett.123.243902.
- [63] CAPPELLI F, CONSOLINO L, CAMPO G, et al. Retrieval of phase relation and emission profile of quantum cascade laser frequency combs [J]. *Nature Photonics*, 2019, 13(8): 562–568.
- [64] LU Q, WANG F, WU D, et al. Room temperature terahertz semiconductor frequency comb [J]. *Nature Communications*, 2019, 10(1). DOI: 10.1038/s41467-019-10395-7.
- [65] PICCARDO M, SCHWARZ B, KAZAKOV D, et al. Frequency combs induced by phase turbulence [J]. *Nature*, 2020, 582(7812): 360–364.
- [66] BURGHOFF D. Unraveling the origin of frequency modulated combs using active cavity mean-field theory [J]. *Optica*, 2020, 7(12): 1781–1787.
- [67] SILVESTRI C, COLUMBO L L, BRAMBILLA M, et al. Coherent multi-mode dynamics in a quantum cascade laser: amplitude- and frequency-modulated optical frequency combs [J]. *Optics Express*, 2020, 28(16): 23846–23861.
- [68] WANG F, PISTORE V, RIESCH M, et al. Ultrafast response of harmonic modelocked THz lasers [J]. *Light: Science & Applications*, 2020, 9(1): 457–464. DOI: 10.1038/s41377-020-0288-x.

- [69] FORRER A, WANG Y, BECK M, et al. Self-starting harmonic comb emission in THz quantum cascade lasers [J]. *Applied Physics Letters*, 2021, 118(13). DOI: 10.1063/5.0041339.
- [70] COLUMBO L, PICCARDO M, PRATI F, et al. Unifying frequency combs in active and passive cavities: Temporal solitons in externally driven ring lasers [J]. *Physical Review Letters*, 2021, 126(17). DOI: 10.1103/PhysRevLett.126.173903.
- [71] PRATI F, BRAMBILLA M, PICCARDO M, et al. Soliton dynamics of ring quantum cascade lasers with injected signal [J]. *Nanophotonics*, 2020, 10(1): 195–207.
- [72] OPAČAK N, CIN S D, HILLBRAND J, et al. Frequency comb generation by Bloch gain induced giant Kerr nonlinearity [J]. *Physical Review Letters*, 2021, 127(9). DOI: 10.1103/PhysRevLett.127.093902.
- [73] MENG B, SINGLETON M, HILLBRAND J, et al. Dissipative Kerr solitons in semiconductor ring lasers [J]. *Nature Photonics*, 2022, 16(2): 142–147.
- [74] PISTORE V, POGNA E A A, VITI L, et al. Self-induced phase locking of terahertz frequency combs in a phase-sensitive hyperspectral near-field nanoscope [J]. *Advanced Science*, 2022, 9(28). DOI: 10.1002/adv.202200410.
- [75] HINRICHS K, BLEVINS B, FURCHNER A, et al. Mid-infrared dual-comb polarimetry of anisotropic samples [J]. *Natural Sciences*, 2023, 3(2). DOI: 10.1002/ntls.20220056.
- [76] OPAČAK N, KAZAKOV D, COLUMBO L L, et al. Nozaki-Bekki solitons in semiconductor lasers [J]. *Nature*, 2024, 625(7996): 685–690.
- [77] HAUS H A. Mode-locking of lasers [J]. *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, 2000, 6(6): 1173–1185.
- [78] KUIZENGA D, SIEGMAN A. FM and AM mode locking of the homogeneous laser-Part I: theory [J]. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 1970, 6(11): 694–708.
- [79] KUIZENGA D, SIEGMAN A. FM-laser operation of the Nd:YAG laser [J]. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 1970, 6(11): 673–677.
- [80] AMMANN E, MCMURTRY B, OSHMAN M. Detailed experiments on helium-neon FM lasers [J]. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 1965, 1(6): 263–272.
- [81] TIEMEIJER L F, KUINDERSMA P I, THUIJS P J A, et al. Passive FM locking in InGaAsP semiconductor lasers [J]. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 1989, 25(6): 1385–1392.
- [82] IPPEN E P. Principles of passive mode locking [J]. *Applied Physics B*, 1994, 58: 159–170.
- [83] HAUS H A. Theory of mode locking with a fast saturable absorber [J]. *Journal of Applied Physics*, 1975, 46(7): 3049–3058.
- [84] HAUS H. Theory of mode locking with a slow saturable absorber [J]. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 1975, 11(9): 736–746.
- [85] JOUY P, WOLF J M, BIDAUX Y, et al. Dual comb operation of  $\lambda \sim 8.2 \mu\text{m}$  quantum cascade laser frequency comb with 1 W optical power [J]. *Applied Physics Letters*, 2017, 111(14): 141102–141112.
- [86] ROSENCHER E, FIORE A, VINTER B, et al. Quantum engineering of optical nonlinearities [J]. *Science*, 1996, 271(5246): 168–173.
- [87] CAPASSO F, SIRTORI C, CHO A Y. Coupled quantum well semiconductors with giant electric field tunable nonlinear optical properties in the infrared [J]. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 1994, 30(5): 1313–1326.
- [88] BLOEMBERGEN N. Nonlinear optics and spectroscopy [J]. *Reviews of Modern Physics*, 1982, 54(3). DOI: 10.1103/RevModPhys.54.685.
- [89] BELKIN M A, CAPASSO F. New frontiers in quantum cascade lasers: high performance room temperature terahertz sources [J]. *Physica Scripta*, 2015, 90(11). DOI: 10.1088/0031-8949/90/11/118002.
- [90] BELKIN M A, CAPASSO F, BELYANIN A, et al. Terahertz quantum-cascade-laser source based on intracavity difference-frequency generation [J]. *Nature Photonics*, 2007, 1(5): 288–292.
- [91] BELKIN M A, CAPASSO F, XIE F, et al. Room temperature terahertz quantum cascade laser source based on intracavity difference-frequency generation [J]. *Applied Physics Letters*, 2008, 92(20). DOI: 10.1063/1.2919051.
- [92] WALROD D, AUYANG S Y, WOLFF P A, et al. Observation of third order optical nonlinearity due to intersubband transitions in AlGaAs/GaAs superlattices [J]. *Applied Physics Letters*, 1991, 59(23): 2932–2934.
- [93] FRIEDLI P, SIGG H, HINKOV B, et al. Four-wave mixing in a quantum cascade laser amplifier [J]. *Applied Physics Letters*, 2013, 102(22). DOI: 10.1063/1.

- 4807662.
- [94] PARZ W, MÜLLER T, DARMO J, et al. Intersubband gain - induced dispersion [J]. *Optics Letters*, 2009, 34 (2): 208–210.
- [95] BIDAUX Y, KAPSALIDIS F, JOUY P, et al. Coupled-waveguides for dispersion compensation in semiconductor lasers [J]. *Laser & Photonics Reviews*, 2018, 12 (5). DOI: 10.1002/lpor.201700323.
- [96] BIDAUX Y, SERGACHEV I, WUESTER W, et al. Plasmon-enhanced waveguide for dispersion compensation in mid-infrared quantum cascade laser frequency combs [J]. *Optics Letters*, 2017, 42(8): 1604–1607.
- [97] JOUY P, WOLF J M, BIDAUX Y, et al. Dual comb operation of  $\lambda \sim 8.2 \mu\text{m}$  quantum cascade laser frequency comb with 1 W optical power [J]. *Applied Physics Letters*, 2017, 111(14). DOI: 10.1063/1.4985102.
- [98] BIDAUX Y, FEDOROVA K A, LIVSHITS D A, et al. Investigation of the chromatic dispersion in two - section InAs/GaAs quantum-dot lasers [J]. *IEEE Photonics Technology Letters*, 2017, 29(24): 2246–2249.
- [99] YANG Q, LÖSCH R, BRONNER W, et al. On high-peak-power strain-compensated GaInAs/AlInAs quantum cascade lasers ( $\lambda \sim 4.6 \mu\text{m}$ ) based on a slightly diagonal active region design [J]. *Applied Physics Letters*, 2008, 93 (25). DOI: 10.1063/1.3054165.
- [100] BISMUTO A, TERAZZI R, BECK M, et al. Influence of the growth temperature on the performances of strain-balanced quantum cascade lasers [J]. *Applied Physics Letters*, 2011, 98(9). DOI: 10.1063/1.3561754
- [101] WU D P, MA Y, SUN Y Q, et al. Monolithic dispersion engineered mid - infrared quantum cascade lasers frequency comb [J]. *Photonics Research*, 2024, 12 (11) : 11–20.
- [102] MENG B, SINGLETON M, SHAHMOHAMMADI M, et al. Mid-infrared frequency comb from a ring quantum cascade laser [J]. *Optica*, 2020, 7(2): 162–167.
- [103] SEITNER L, POPP J, HECKELMANN I, et al. Back-scattering - induced dissipative solitons in ring quantum cascade lasers [J]. *Physical Review Letters*, 2024, 132 (4). DOI: 10.1103/PhysRevLett.132.043805.
- [104] KAZAKOV D, OPAČAK N, BEISER M, et al. Defect-engineered ring laser harmonic frequency combs [J]. *Optica*, 2021, 8(10): 1277–1280.
- [105] HERR T, BRASCH V, JOST J D, et al. Temporal solitons in optical microresonators [J]. *Nature Photonics*, 2014, 8 (2): 145–152.
- [106] HECKELMANN I, BERTRAND M, DIKOPOLTSEV A, et al. Quantum walk comb in a fast gain laser [J]. *Science*, 2023, 382(6669): 434–438.
- [107] KACMOLI S, GMACHL C F. Quantum cascade disk and ring lasers [J]. *Applied Physics Letters*, 2024, 124(1). DOI: 10.1063/5.0180606.
- [108] OPAČAK N, KAZAKOV D, COLUMBO L L, et al. Nozaki-Bekki solitons in semiconductor lasers [J]. *Nature*, 2024, 625(7996): 685–690.
- [109] KEILMANN F, GOHLE C, HOLZWARTH R. Time-domain mid-infrared frequency-comb spectrometer [J]. *Optics Letters*, 2004, 29(13): 1542–1544.
- [110] ADLER F, COSSEL K C, THORPE M J, et al. Phase-stabilized 1.5 W frequency comb at  $2.8 \sim 4.8 \mu\text{m}$  [J]. *Optics Letters*, 2009, 34(9): 1330–1332.
- [111] JOHNSON T A, DIDDAMS S A. Mid-infrared upconversion spectroscopy based on a Yb: fiber femtosecond laser [J]. *Applied Physics B*, 2012, 107: 31–39.
- [112] FOLTYNOWICZ A, BAN T, MASŁOWSKI P, et al. Quantum-noise-limited optical frequency comb spectroscopy [J]. *Physical Review Letters*, 2011, 107 (23). DOI: 10.1103/PhysRevLett.107.233002.
- [113] ADLER F, THORPE M J, COSSEL K C, et al. Cavity-enhanced direct frequency comb spectroscopy: technology and applications [J]. *Annual Review of Analytical Chemistry*, 2010, 3(1): 175–205.
- [114] VODOPYANOV K L, SOROKIN E, SOROKINA I T, et al. Mid-IR frequency comb source spanning  $4.4 \sim 5.4 \mu\text{m}$  based on subharmonic GaAs optical parametric oscillator [J]. *Optics Letters*, 2011, 36(12): 2275–2277.
- [115] LI H, LI Z, WAN W, et al. Toward compact and real-time terahertz dual-comb spectroscopy employing a self-detection scheme [J]. *ACS Photonics*, 2019, 7(1): 49–56.
- [116] BARTH A. Infrared spectroscopy of proteins [J]. *Biochimica et Biophysica Acta (BBA) - Bioenergetics*, 2007, 1767(9): 1073–1101.
- [117] DE CAMPOS VIDAL B, MELLO M L S. Collagen type I amide I band infrared spectroscopy [J]. *Micron*, 2011, 42 (3): 283–289.
- [118] OBERG K A, RUYSSCHAERT J M, GOORMAGHTIGH E. The optimization of protein secondary structure determination with infrared and circular dichroism spectra [J].

- European Journal of Biochemistry, 2004, 271 (14) : 2937-2948.
- [119]CAI S, SINGH B R. A distinct utility of the amide III infrared band for secondary structure estimation of aqueous protein solutions using partial least squares methods [J]. Biochemistry, 2004, 43(9): 2541-2549.
- [120]MA J, PAZOS I M, ZHANG W, et al. Site-specific infrared probes of proteins [J]. Annual Review of Physical Chemistry, 2015, 66(1): 357-377.
- [121]SCHUBERT L, LANGNER P, EHRENBERG D, et al. Protein conformational changes and protonation dynamics probed by a single shot using quantum - cascade - laser - based IR spectroscopy [J]. The Journal of Chemical Physics, 2022, 156(20). DOI: 10. 1063/5. 0088526.
- [122]PINKOWSKI N H, DING Y, STRAND C L, et al. Dual-comb spectroscopy for high-temperature reaction kinetics [J]. Measurement Science and Technology, 2020, 31 (5). DOI: 10. 1088/1361-6501/ab6ecc.
- [123]GIANELLA M, NATARAJ A, TUZSON B, et al. High-resolution and gapless dual comb spectroscopy with current - tuned quantum cascade lasers [J]. Optics Express, 2020, 28(5): 6197-6208.
- [124]GORDON I E, ROTHMAN L S, HILL C, et al. The HITRAN2016 molecular spectroscopic database [J]. Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer, 2017, 203: 3-69.
- [125]LEPÈRE M, BROWET O, CLÉMENT J, et al. A mid-infrared dual-comb spectrometer in step-sweep mode for high-resolution molecular spectroscopy [J]. Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer, 2022, 287. DOI: 10. 1016/j. jqsrt. 2022. 108239.
- [126]VILLARES G, HUGI A, BLASER S, et al. Dual-comb spectroscopy based on quantum-cascade-laser frequency combs [J]. Nature Communications, 2014, 5 (1). DOI: 10. 1038/ncomms6192.

(本文编辑: 刘宇轩)



第一作者: 马泽军(1999—), 男, 博士研究生, 主要研究方向为红外半导体光电器件。



通信作者: 陆全勇(1983—), 男, 研究员, 博士, 主要研究方向为现代半导体量子激光光源及系统。