

引用格式: ZHOU Binru, MA Yu, ZHANG Shichen, et al. Recent Development of Quantum Cascade Lasers for On-chip Sensing (Invited)[J]. Acta Photonica Sinica, 2023, 52(10):1052409

周斌茹, 马钰, 张世晨, 等. 面向片上传感量子级联激光器的研究进展(特邀)[J]. 光子学报, 2023, 52(10):1052409

# 面向片上传感量子级联激光器的研究进展 (特邀)

周斌茹<sup>1,2,3</sup>, 马钰<sup>1</sup>, 张世晨<sup>1</sup>, 刘峰奇<sup>4</sup>, 陆全勇<sup>1</sup>

(1 北京量子信息科学研究院 量子材料与器件研究部, 北京 100193)

(2 中国科学院物理研究所 北京凝聚态物理国家实验室, 北京 100190)

(3 中国科学院大学 物理学院, 北京 100049)

(4 中国科学院半导体研究所 半导体材料科学重点实验室, 北京 100083)

**摘要:**作为一种新型半导体激光器,量子级联激光器因其独特的子带间跃迁机制,具有高速响应、高非线性、输出波长大范围可调等特点。近年来随着输出光功率和电光转化效率等性能指标的快速提升,量子级联激光器已成为中红外至太赫兹波段(波长约为 3~300  $\mu\text{m}$ )的主流激光光源,在大气污染监控、气体检测、太赫兹成像、生物医疗以及空间光通信等领域具有重要科学意义和应用价值。本文阐释了量子级联激光器的发展历程以及工作原理;分别重点讨论了中红外量子级联激光器在高效率、大功率、波长可调谐以及片上传感的应用等方面的研究进展,并对基于中红外量子级联激光器差频太赫兹光源和光频梳的发展进行叙述,最后进行了简要总结与展望。

**关键词:**量子级联激光器;片上传感;光频梳;太赫兹

中图分类号:TN

文献标识码:A

doi:10.3788/gzxb20235210.1052409

## 0 引言

在可见光和近红外激光器技术与市场日趋成熟与饱和的背景下,传感与环境检测等应用领域对于中远红外激光光源的需求逐渐提升,因此进一步发展中远红外激光器日益迫切。中远红外区包括两个高透过率的大气窗口(3~5  $\mu\text{m}$ , 8~14  $\mu\text{m}$ ),该区域空气中悬浮颗粒对于光线传输质量的散射较小,因而光线传输距离大大增加<sup>[1]</sup>。此外,大量气体分子如 CO、CH<sub>4</sub>、NH<sub>3</sub>、SO<sub>2</sub>、HCl 等,可在 2~20  $\mu\text{m}$ (500~5 000  $\text{cm}^{-1}$ )的中红外光谱区发生强烈的特征振动跃迁<sup>[2]</sup>。因此,中远红外激光光源在分子传感、痕量气体检测、健康监测、红外对抗、自由空间光通信以及光谱分析等领域有广泛的应用<sup>[3-5]</sup>。

目前,可产生红外波段光源的器件包括:量子阱激光器、固体激光泵浦光参量振荡器、带间级联激光器、量子级联激光器(Quantum Cascade Laser, QCL)等。量子阱激光器作为常规的半导体激光光源,其利用导带电子和价带空穴在量子阱中的复合来激发光子,其激发光的波长取决于半导体材料的禁带宽度<sup>[6]</sup>。而中远红外波段的光子能量为 0.04~0.4 eV,远小于绝大多数量子阱激光器材料自身带隙,因此传统量子阱激光器很难覆盖中远红外以及太赫兹波段。采用固体激光泵浦光参量振荡器产生中远红外的装置一般体积较大、效率低,在实际应用中具有较多限制<sup>[7]</sup>。此外,带间级联激光器可以覆盖 3~6  $\mu\text{m}$  波段,其基于电子在导带和价带间的跃迁,因此其阈值电流密度、阈值功率都明显降低,但对于中红外甚至更远波段,带间级联激光器性能呈下降趋势<sup>[8,9]</sup>。相较于其他可产生中红外源的激光光源,量子级联激光器具有体积小、能效高、波长可调谐等优势,目前其波长范围已扩展到 3~25  $\mu\text{m}$  和 1~6 THz 波段,是中红外波段最具潜力的激光光源。

基金项目:国家自然科学基金(Nos. 62274014, 62235016),北京市科学技术委员会(No. Z221100002722018)

第一作者:周斌茹, zhoubr2023@baqis.ac.cn

通讯作者:陆全勇, luqy@baqis.ac.cn

收稿日期:2023-08-15;录用日期:2023-09-19

<http://www.photon.ac.cn>

本文重点对中红外量子级联激光器的研究及发展概况进行综述。首先介绍量子级联激光器的发展历程,并对其基本原理及工作机制进行阐释。随后围绕不同应用背景下对量子级联激光器的要求,分别介绍了中红外量子级联激光器在高效率、大功率、波长可调谐、单模激射、差频太赫兹光源和光频梳以及片上传感的应用等方面的研究进展。最后进行简要总结与展望。

## 1 量子级联激光器工作原理和发展历程

1970年前后,半导体超晶格与量子阱<sup>[10]</sup>的发现开辟了半导体能带工程用于低维量子结构与器件研究的新方向。能带工程也被称为波函数工程或量子剪裁工程,其物理内涵是指利用分子束外延(Molecular Beam Epitaxy, MBE)或金属有机化学气相沉积(Metal Organic Chemical Vapor Deposition, MOCVD)等具有单原子层级加工水平的超薄外延生长技术,通过改变材料的类型、组分、厚度及掺杂浓度等关键参数,设计并制备具有预期能带特性与量子限制效应的低维结构材料与器件,如半导体超晶格、量子阱、量子线与量子点及其光电子量子器件等<sup>[11, 12]</sup>。几十年来,能带工程技术在低维体系物理研究和量子功能器件中取得了一系列成果并被广泛应用。利用能带工程设计制备激光器的研究经历了四个重要阶段:半导体异质结激光器、应变量子阱激光器、量子线激光器以及量子点激光器,上述器件都基于偏压下导带和价带间载流子的辐射复合,激发光波长取决于材料的带隙能量。

在1994年,美国Bell实验室的FAIST J和CAPASSO F等<sup>[13]</sup>首次报道了利用分子束外延技术制备的以InGaAs/InAlAs为有源区的InP基量子级联激光器,其是以电子在多层量子阱结构导带的子带间跃迁产生激射的新型半导体激光器,激射波长为4.2  $\mu\text{m}$ ,该工作开辟了半导体激光器的新领域。

如图1所示,量子级联激光器的有源工作层是电子辐射跃迁的核心区域,其是基于超晶格或者多量子阱结构,主要包括有源区(active region)和注入区(injector region)<sup>[14]</sup>。当量子阱层厚度与电子的德布罗意波长处于同一数量级时,由于量子尺寸限制效应的存在,电子在垂直于量子阱方向上的运动为量子化,即出现了一系列分立的子带能级<sup>[15]</sup>。电子由势垒共振隧穿进入有源区的上能级,并由高能级跃迁至低能级,发射光子。随后电子由出口势垒隧穿进入注入区,经过弛豫冷却后进入下一个级联结构进行跃迁并发射光子。以此往复,通过级联结构可使一个电子产生与级数相同的 $N$ 个光子。量子级联激光器的出现有效突破了现有半导体激光器在输出波段上的限制,可通过调节量子阱厚度调节输出波长<sup>[16]</sup>。与传统的二极管激光器相比,由于没有俄歇复合的影响,量子级联激光器的阈值电流相比于二极管激光器有所降低,具有较高的阈值电流和功率斜率效率的温度特性<sup>[17]</sup>。

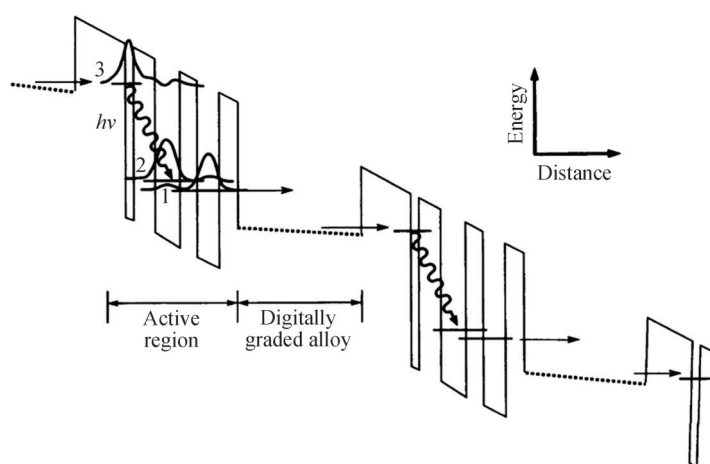


图1 首次报道的量子级联激光器的能带图<sup>[13]</sup>

Fig. 1 Energy band diagram of the first reported quantum cascade laser<sup>[13]</sup>

2002年,BECK M等<sup>[18]</sup>制备了第一个室温连续工作的掩埋异质结型量子级联激光器,其激射波长为9.1  $\mu\text{m}$ ,室温下器件的光输出功率为3 mW。2006年,FAIST J课题组<sup>[19]</sup>首次报道了基于外部谐振腔的可调谐中红外量子级联激光器,其波长调谐范围为8.2~10.4  $\mu\text{m}$ 。国内从事量子级联激光器研究的单位主要有中

中国科学院半导体研究所、中国科学院上海微系统与信息技术研究所、中国科学院长春光学精密机械与物理研究所等。2009年,中国科学院半导体研究所刘峰奇课题组<sup>[20]</sup>首次采用固体源分子束外延技术生长出室温连续工作的量子级联激光器,填补了国内空白。近年来,该课题组已制备了多支中红外至 THz 范围内的高性能量子级联激光器,并达到国际先进水平。中国科学院上海微系统与信息技术研究所及中国科学院长春光学精密机械与物理研究所分别在 THz QCL 光频梳及激光合束方面取得了一定进展<sup>[21, 22]</sup>。从 1994 年被首次研制成功至今,量子级联激光器受到了越来越多科研团队的关注及研究,其在民事和军用领域的应用被不断挖掘。

## 2 大功率、高效率量子级联激光器

近年来,量子级联激光器在远距离有害物和爆炸物探测、生物医疗、红外对抗及远程自由空间光通信领域有重要的应用价值。由于灵敏度及范围与激光器的输出功率成正比,因此进一步提高器件的输出功率和电光转化效率是研究人员努力的目标之一。通过对器件结构设计、材料外延生长技术以及器件制备工艺进行改进,量子级联激光器的输出功率、电光转换效率、光束质量、阈值电流密度等关键参数被不断优化。

目前,输出功率的提升重点集中于量子级联激光器有源区结构的改进,如双声子共振设计、单声子共振设计、非共振抽取有源区设计、浅阱有源区设计、束缚-连续跃迁结构等。图 2(a)显示了 QCL 内载流子的限制和输运问题。可以看出除了流过器件的理想电流外,还有基于更高能级传输和逃逸到连续态中的漏电流路径。这主要决定于两个因素:上激光能级与寄生能级的间距( $\Delta_{\text{sp}}$ )和随电压变化的载流子逃逸能量( $\Delta_{\text{esc}}$ )。为了提高上激光能级的注入效率,首先需要采用应变补偿设计来提高导带带阶从而增加 $\Delta_{\text{esc}}$ ,其次需要能带设计在不引起交叉吸收的前提下尽量提高 $\Delta_{\text{sp}}$ 。2008年,美国西北大学 BAI Y 等<sup>[26]</sup>采用双声子共振有源区设计,利用气态源 MBE 技术实现了激光波长 4.6  $\mu\text{m}$  的大功率、室温连续波工作的量子级联激光器,其输出光功率达到瓦级 $\sim 1.3 \text{ W}$ 。其基于四阱耦合系统,通过三个子带能级依次释放两个纵光学声子来实现对电

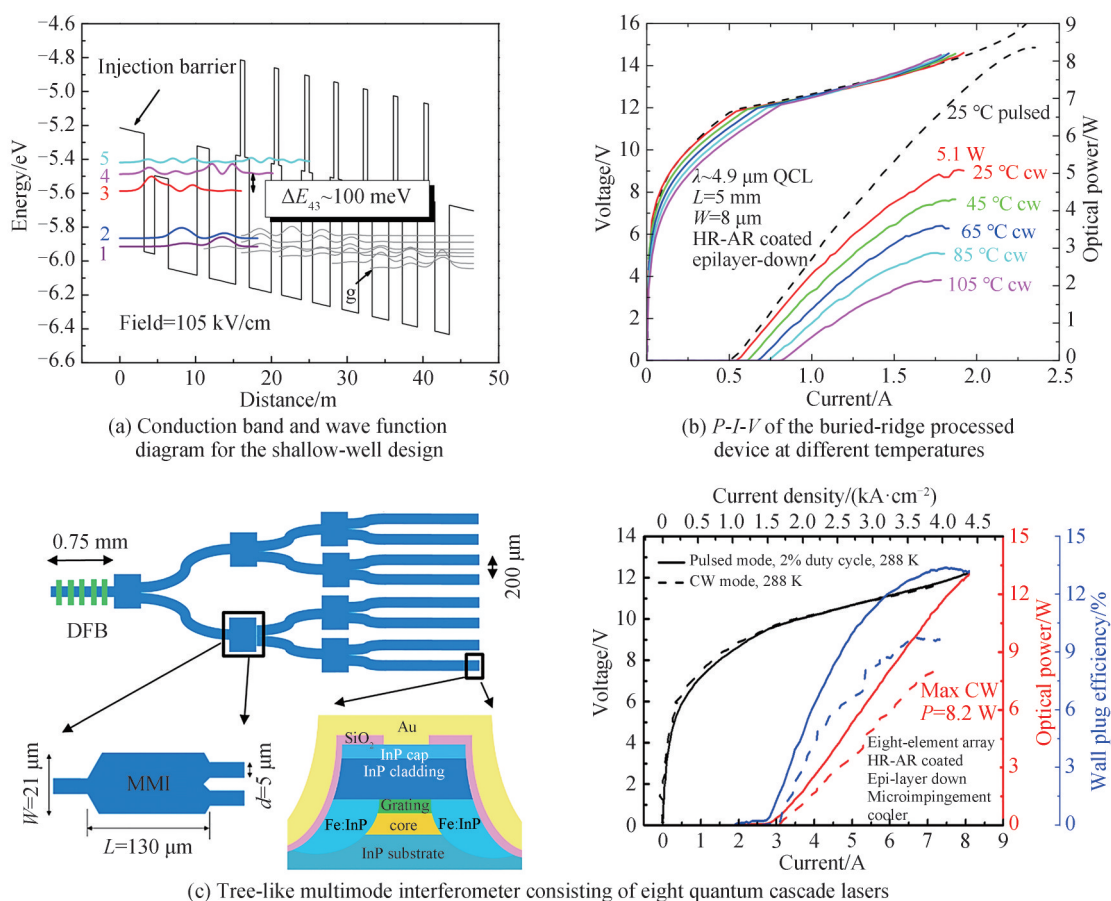


图 2 大功率量子级联激光器有源区设计图及装置示意图<sup>[23-25]</sup>

Fig. 2 Design diagram of the active region of a high-power quantum cascade laser and schematic diagram of the device<sup>[23-25]</sup>

子的抽运,其具有较高的载流子注入效率。由于双声子共振有源区设计对于量子阱和垒的厚度要求较高,若两个相邻较低子带间能量与纵向光学声子能量不匹配,则会影响下能级电子的抽运,因此厚度发生偏差极易引起级联的中断。而束缚-连续跃迁的有源区设计基于三阱垂直有源区和超晶格有源区的思路<sup>[27]</sup>,其不仅具有三阱垂直有源区有效共振隧穿的特点,又具有超晶格有源区高粒子数反转的优势。FAIST J研究团队<sup>[28]</sup>基于斜跃迁的束缚-连续跃迁的有源区结构设计,在8.5  $\mu\text{m}$ 波长处实现了0.45 W的室温下连续输出光功率。随后,美国西北大学研究团队<sup>[29]</sup>在前述工作的基础上,又制备了基于单声子共振设计的4.8  $\mu\text{m}$ 及10  $\mu\text{m}$ 的量子级联激光器,其中激光波长4.8  $\mu\text{m}$ 的器件室温下连续波输出功率为3.4 W,电光转换效率为15.5%。此外,LYAKH A等<sup>[30]</sup>采用非共振抽取设计,利用MBE生长了波长为4.6  $\mu\text{m}$ 的量子级联激光器,该设计降低了载流子热逃逸效应,其室温下连续输出光功率为3 W,电光转换效率为12.7%。

2011年,BAI Y等<sup>[23]</sup>报道了激光波长4.9  $\mu\text{m}$ 的InP基量子级联激光器,其室温连续波输出功率达到5.1 W,脉冲电光转换效率达到27%,如图2(a)~(b)。该器件的有源区基于浅阱高垒设计,包括5种材料,分别是用于应力平衡/补偿的量子阱 $\text{In}_{0.69}\text{Ga}_{0.31}\text{As}$ 和势垒 $\text{In}_{0.36}\text{Al}_{0.64}\text{As}$ 、AlAs插入层以及晶格匹配的 $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}$ 和 $\text{In}_{0.52}\text{Al}_{0.48}\text{As}$ 层,这种结构可以极大地降低载流子泄露而实现了高的载流子注入效率。2016年,美国佛罗里达中部大学的LYAKH A等<sup>[31]</sup>报道了基于 $\text{Al}_{0.78}\text{In}_{0.22}\text{As}/\text{In}_{0.69}\text{Ga}_{0.31}\text{As}$ 双阱有源区设计的量子级联激光器,在室温脉冲下波长为5.6  $\mu\text{m}$ 的器件可实现28.3%的电光转换效率。2020年,美国西北大学WANG F等<sup>[32]</sup>在BAI Y等的工作基础上,采用50周期的有源区,4.9  $\mu\text{m}$ 激光波长的器件在室温脉冲工作下的输出光功率为23 W,脉冲电光转换效率达到了31%。同时,该团队<sup>[33]</sup>通过重新对InP基量子级联激光器设计埋脊再生工艺,并引入后抛光技术,使器件表面平坦化。平面化的器件几何形状改善了热传导和可靠性,最重要的是提高了连续波工作时的功率和效率。器件在室温连续工作下,输出功率及电光转换效率分别为5.6 W、20%,在液氮温度下电光转换效率达到41%。在低温80 K以下时,载流子的热回填效应可忽略不计,为此BAI Y等<sup>[34]</sup>通过将注入区设计为单阱结构,在大幅降低电压缺陷的同时亦可提高载流子的注入效率。在40 K的温度下,5  $\mu\text{m}$ 量子级联激光器的电光转换效率实现了创纪录的53%。

如图2(c)所示,在长波长8  $\mu\text{m}$ 波段,2019年ZHOU W等<sup>[24]</sup>采用口袋型注入区设计,降低高能载流子的逃逸,QCL实现脉冲条件下20%的电光转换效率。为了解决连续工作条件下的散热问题,采用片上集成光学相控阵列原理与技术,连续输出功率达8.2 W,为QCL在所有激光波段内的最高片上连续输出功率记录。当前量子级联激光器的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<sup>[35]</sup>采用束缚-连续跃迁的有源区设计,实现了7.7  $\mu\text{m}$ 的InP基量子级联激光器,其在室温下输出功率达到1.17 W,电光转换效率为9.08%。2023年,同组的FEI T等采用MOCVD技术研制出室温连续功率达3 W的4.6  $\mu\text{m}$ 波段量子级联激光器和室温连续功率达1 W的9.0  $\mu\text{m}$ 波段量子级联激光器,达到国际领先水平<sup>[36]</sup>。图3(b)总结了基于MBE和MOCVD技术的高性能量子级联激光器。MOCVD技术是当前产业

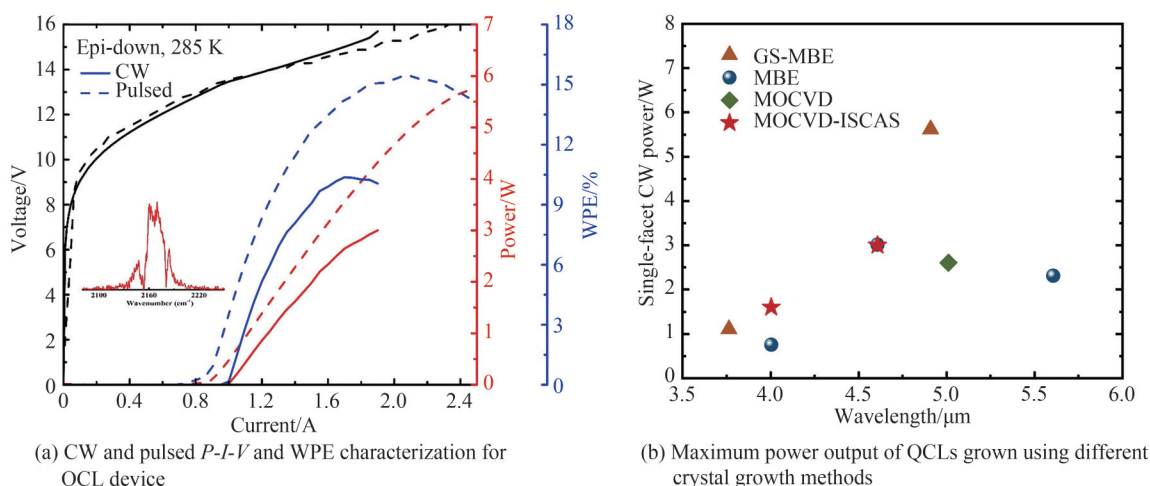


图3 采用不同晶体生长方法生长的QCL室温连续工作输出的最高功率<sup>[30, 36, 37]</sup>

Fig. 3 Maximum power output from room temperature continuous operation of QCLs grown using different crystal growth methods<sup>[30, 36, 37]</sup>

界最常用的 III-V 化合物半导体外延技术,基于 MOCVD 技术的高性能量子级联激光器的研制成功预示着其产业化的巨大前景。

### 3 波长可调谐量子级联激光器

宽调谐量子级联激光器在化学、天文、物理和生物领域具有一定的应用价值。特别是,通过使用配备相应宽调谐单模 QCL 的激光吸收光谱,可以同时测量电磁 (EM) 光谱中红外线范围内的多个分子吸收特征,从而实现对多种痕量气体的高分辨率光谱分析。波长调谐量子级联激光器的常用制备方法主要包括两种:单片可调谐量子级联激光器以及外腔 (External Cavity, EC) 量子级联激光器<sup>[38]</sup>。

除了宽调谐范围外,应用于气体传感、光谱分析等领域的量子级联激光器还需具有高边模抑制比的单模性能。基于双沟道法布里-珀罗 (Fabry-Pérot, FP) 腔的量子级联激光器<sup>[39]</sup>由于具有易加工、光反馈效率高等优势,受到大量研究人员的关注。但其光反馈不具有选模机制,在光谱和远场分布上均表现出显著的多模激射。因此,得到窄线宽、单纵模的量子级联激光器成为了研究热点。现阶段国内外已报道了一系列低功耗低阈值的单模量子级联激光器,其在气体检测领域发挥了重要作用。

#### 3.1 单模量子级联激光器

产生量子级联激光器单模的方式包括:集成外部谐振腔、分布反馈、分布布拉格反射 (Distributed Bragg Reflections, DBR)、超短腔 QCL 以及耦合腔 QCL 等。1997 年,FAIST J 等<sup>[40]</sup>将分布反馈机制应用到量子级联激光器中,在表面波导层中制备一级 DFB 光栅,得到  $5.4 \mu\text{m}$  和  $8 \mu\text{m}$  波段器件的室温脉冲单模工作。2010-2011 年,LU Q Y 等<sup>[41, 42]</sup>采用低损耗等离子体耦合表面光栅设计,先后研制出室温连续输出功率达瓦级和 2.4 W 的单模 DFB 量子级联激光器。2012 年,ZHANG J C 等<sup>[43]</sup>首次报道了波长  $4.6 \mu\text{m}$ 、非制冷室温连续工作的单模 DFB 量子级联激光器,腔长为 1.5 mm 器件的阈值功耗为 2.3 W,该值为当时国际最低值,对于 2 mm 腔长的器件,其连续输出光功率为 125 mW。2014 年,XIE F 等<sup>[44]</sup>通过集成 DBR 结构实现了连续波输出功率为 2 W 和波长为  $4.48 \mu\text{m}$  的单模量子级联激光器,其边模抑制比为 30 dB。如图 4 所示,2020 年,LU Q Y 等<sup>[45]</sup>通过对分布式反馈光栅耦合设计的优化以及反射层的改进,制备了波长范围为  $3.8 \sim 8.3 \mu\text{m}$  内的高效率单模量子级联激光器,室温下连续输出功率达 5 W,墙插效率为 16.6%。二级 DFB 光栅 QCL 适用于实现面发射,尽管在脊方向的光束质量高,但在垂直于脊方向的发散角很大,使得光束呈狭长椭圆分布。因此,研究人员提出了将二维光子晶体分布反馈 (Photonic Crystal Distributed Feedback, PCDFB) 耦合机制<sup>[46]</sup>引入量子级联激光器中,以此得到单色性好、光束质量高、大功率的器件。BAI Y 等<sup>[47]</sup>采用电子束曝光

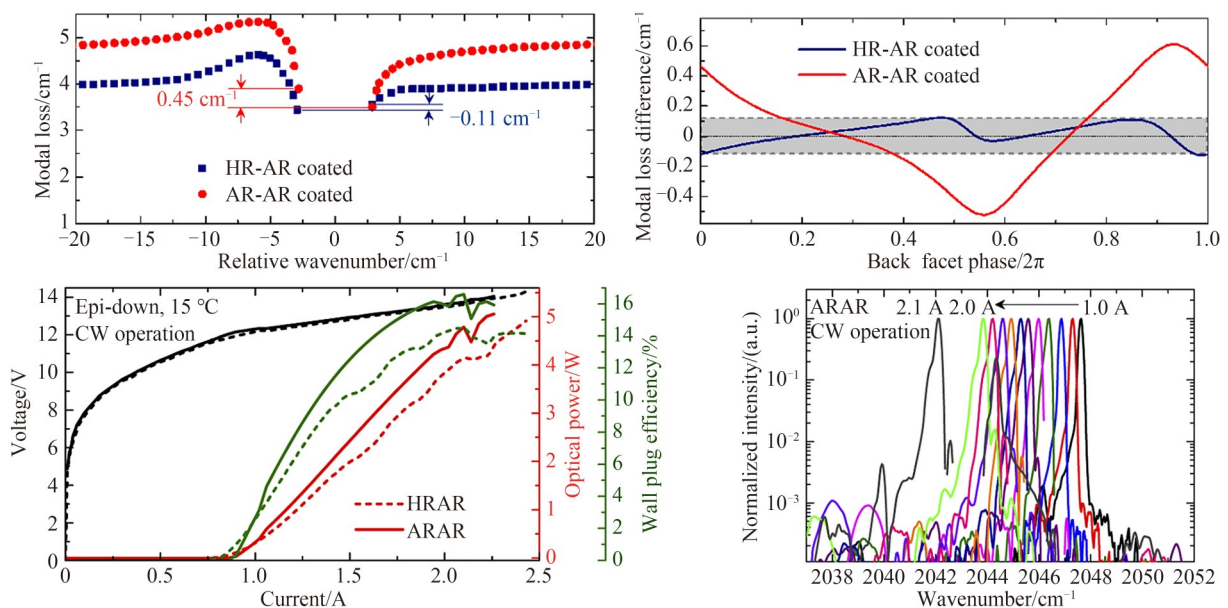


图4 单模量子级联激光器实例<sup>[41, 45]</sup>

Fig. 4 Example of single-mode quantum cascade laser<sup>[41, 45]</sup>

(Electron Beam Lithography, EBL)技术制备了第一批边发射PCDFB QCL,通过增加有源区掺杂浓度和InP阻挡层厚度,实现了单模工作,输出功率为12 W,发散角为 $2.6^\circ$ ,偏离腔面法线方向 $-23^\circ$ 。EBL技术虽然精度高,但其装置昂贵且工艺过程较为耗时。相较而言,全息曝光技术可以高效、低成本地大面积制备周期性结构。基于此,中国科学院半导体研究所刘峰奇研究团队<sup>[48, 49]</sup>采用此技术成功制备了一系列PCDFB量子级联激光器,并实现了器件的单模、高功率和近衍射极限远场发散角工作。

### 3.2 EC中红外量子级联激光器

得益于量子级联激光器性能的提升以及腔体配置的优化,外腔式量子级联激光器现已成为各种应用中最重要的调谐方法之一。EC-QCL主要包括脉冲外腔、连续波外腔以及连续调谐量子级联激光器,其结构主要有Littrow以及Littman-Metcalf配置两种<sup>[50-52]</sup>。对于Littrow配置,光栅的一阶衍射光束作为光反馈反射回激光腔,零阶光束则作为激光输出,同时可通过旋转光栅角度来达到单模、波长调谐的目的,但存在光束随光栅旋转发生位移及调模的问题。而在Littman-Metcalf中,一阶衍射光束通过附加镜反射回光栅,随后反馈至器件。其波长调谐通过调谐附加镜实现,因此该配置具有固定的光束方向和自由跳模调谐。但考虑到Littrow配置的机械结构更简单、波长选择性更有效且输出效率高,因此目前的EC-QCL以Littrow配置为主。

2001年,LUO G P等<sup>[50]</sup>首次报道了量子级联激光器与外腔的集成,该量子级联激光器由三个量子阱有源区组成,采用Littrow配置实现了单模及波长可调谐。在80 K时,EC-QCL在 $4.5\ \mu\text{m}$ 、 $5.1\ \mu\text{m}$ 波长处分别实现了 $\sim 65\ \text{nm}$ 及 $\sim 88\ \text{nm}$ 的调谐范围。2007年,瑞士苏黎世联邦理工学院的MOHAN A等<sup>[53]</sup>首次报道了室温连续工作的EC-QCL,装置示意图如图5(a)所示,其波长调谐范围为 $7.96\sim 8.84\ \mu\text{m}$ ,在 $20\ ^\circ\text{C}$ 下,器件的输出光功率为20 mW。CENTENO R等<sup>[54]</sup>报道了一种用于对具有宽带和单线吸收特征的分子进行红外振动光谱分析的高功率、可广泛调谐的连续波外腔量子级联激光器,结果展示于图5(b)中。其在 $8\ \mu\text{m}$ 波长处实现了 $1129\sim 1432\ \text{cm}^{-1}$  ( $1.9\ \mu\text{m}$ )的调谐范围,输出光功率为200 mW。2022年,中国科学院半导体研究所SUN Y Q等<sup>[55]</sup>报道了基于EC-QCL的爆炸物和危险材料高灵敏度快速检测系统,采用此装置对三硝基甲苯(TNT)进行检测,灵敏度达到 $1\ \mu\text{g}/\text{cm}^2$ 。尽管EC-QCL性能得到了很大程度的提升,但引入额外的外部

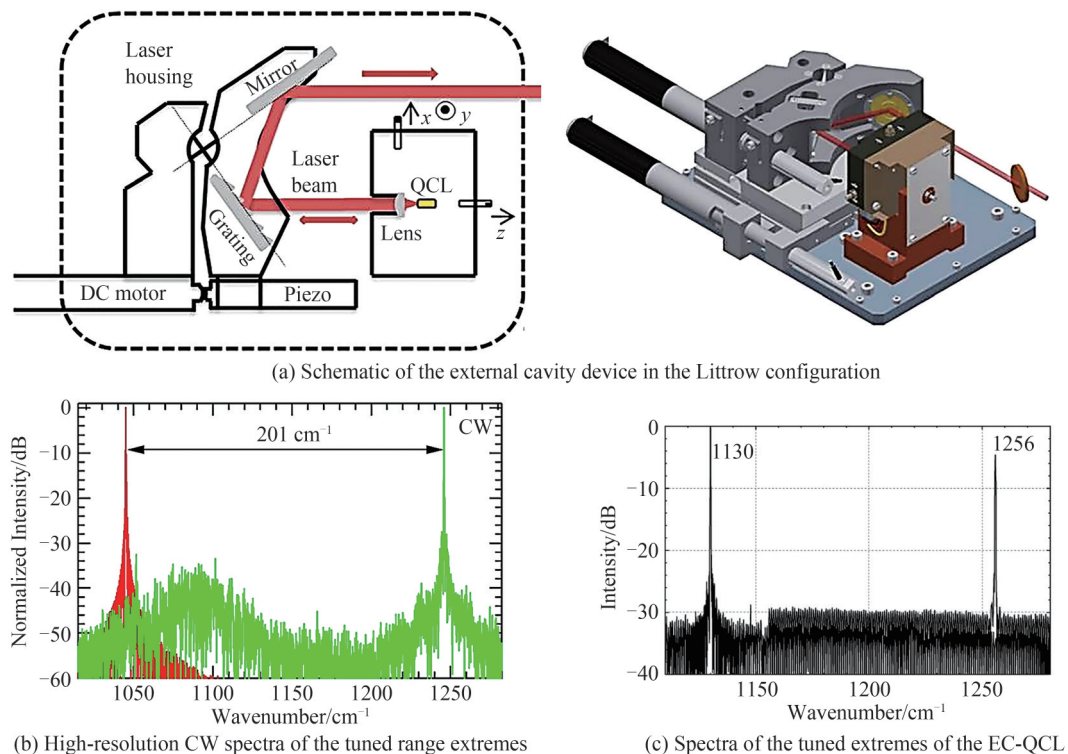


图5 EC量子级联激光器实例<sup>[53, 54, 56]</sup>

Fig. 5 Example of external cavity-quantum cascade laser<sup>[53, 54, 56]</sup>

元件大大增加了整个结构的复杂性,并使EC-QCL对振动更加敏感,成本也相对较高,因此需采用其他方案来弥补EC-QCL的局限性。

### 3.3 单片可调谐量子级联激光器

单片可调谐的量子级联激光器为克服EC-QCL存在的局限提供了新的方法,其主要包括DFB-QCL阵列、采样光栅-QCL(Sampled Grating-QCL,SG-QCL)、耦合腔QCL以及沟道型-QCL(slot-QCL)等。2009年,哈佛大学CAPASSO F研究团队<sup>[57]</sup>报道了32个DFB-QCL组成的阵列,如图6(a)中所示,通过改变光栅周期实现了8.71~9.47  $\mu\text{m}$ 范围的波长调谐。美国西北大学SLIVKENS等<sup>[58]</sup>将光栅周期为753、768及783 nm的一阶光栅直接定义在有源区顶部的300 nm InGaAs层上,通过改变注入的直流电流,使制备的4.8  $\mu\text{m}$ 波长的SG-QCL实现了270 nm调谐范围。次年,该研究团队在上述研究的基础上,报道了基于数字级联光栅-采样光栅分布式反馈(Digital Concatenated Grating-Sampled Grating Distributed Feedback, DCG-SGDFB)的量子级联激光器<sup>[59]</sup>,器件的设计如图6(b)所示,部分补偿了标准高效量子级联激光器核心中光学增益的波长依赖性,实现了500 nm的全调谐范围,且为单模激射,边模抑制比 $>20$  dB。FUCHSP等<sup>[60]</sup>报道了InP基FP耦合腔量子级联激光器,长短腔长度分别为1402、590  $\mu\text{m}$ ,实现的可调谐范围为242 nm。相较于耦合腔QCL,slot-QCL的制备工艺简单,调谐范围大,接近于SG-QCL的调谐宽度。2014年,南洋理工大学MENG B等<sup>[61]</sup>报道了基于双节蚀刻槽结构的10  $\mu\text{m}$ 可调谐、单片、单模量子级联激光器,实现了785 nm的单模调谐范围,相当于相对调谐范围的7.8%,整个调谐范围内的边模抑制比为20 dB。2022年,该研究团队LI J H等<sup>[62]</sup>报道了基于中红外区槽波导结构的单模、宽调谐量子级联激光器阵列,在室温下调谐范围为71  $\text{cm}^{-1}$ ,采用此原理设计的另一个slot-QCL阵列调谐范围为41  $\text{cm}^{-1}$ ,其连续调谐及简易的制备过程使该阵列器件成为中红外传感和光谱应用的合适候选器件。

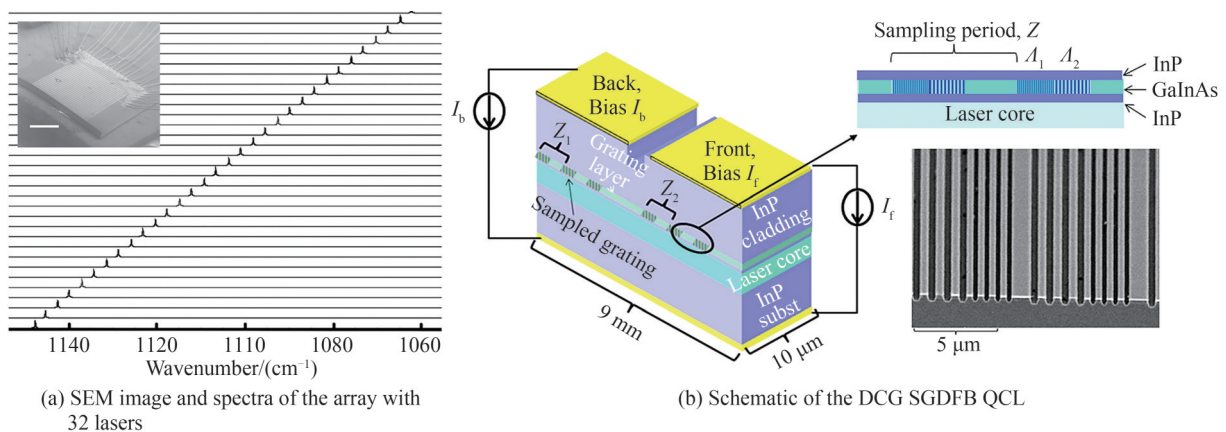


图6 单片可调谐量子级联激光器示意图<sup>[57, 59]</sup>

Fig. 6 The schematic diagram of monolithic tunable quantum cascade laser<sup>[57, 59]</sup>

## 4 量子级联激光器光频梳

光频梳(Optical Frequency Comb, OFC)是一种独特的激光源,其在频域上表现为一系列离散、等间隔的相干光谱线,在光通信、频率计量、原子钟、测距、光谱学分析以及低噪声微波产生等领域具有广泛的应用。2005年,HÄNSCH W以及HALL Y由于在激光精密光谱学包括光频梳技术领域取得的成就,获得诺贝尔物理学奖<sup>[63]</sup>,自此,光频梳技术进入了快速发展阶段。目前,多种技术已被证实可用于产生光频梳,包括锁模激光器、Kerr-非线性微谐振器<sup>[64, 65]</sup>,然而上述技术难以实现中红外波段至太赫兹(THz)范围(波长 $\lambda$ 为3~300  $\mu\text{m}$ )的光频梳。为了解决上述问题,差频产生、光参量振荡以及光波导天线等方案被提出<sup>[66]</sup>,但上述方案所需的光学装置较复杂,这无疑对光频梳的实际应用增加困难。

由于导带内子带跃迁的量子级联激光器具有极高的非线性,2012年,FAIST J等利用其有源区的强三阶非线性系数,证明了在波导群速率色散(group velocity dispersion)足够低的设计下,量子级联激光器可通过四波混频(four-wave mixing)效应将色散的FP模式锁定成具有固定相位的等频率间隔的光频梳模式,实

现了中红外量子级联激光器光频梳输出<sup>[67]</sup>。2014年,该团队<sup>[68]</sup>提出了一种基于量子级联激光器光频梳的紧凑型半导体电驱动双梳光谱仪,同时利用该双梳光谱仪演示了GaAs和水蒸气的宽带高分辨率(80 MHz)吸收光谱。2015年,VILLARES G等<sup>[69]</sup>报道了一种基于中红外量子级联激光器频率梳的片上双梳源,通过在量子级联激光器旁集成微加热器实现对于双梳偏移频率的控制,该工作阐释了紧凑型、片上集成双梳系统的可行性。2017年,美国西北大学LU Q Y等<sup>[70]</sup>实现了大功率、高效率的中红外量子级联激光器光频梳,通过四波混合技术实现高效宽带锁模,制备的光频梳光电转化效率达6.85%,在 $\lambda \sim 8 \mu\text{m}$ 处具有高达880 mW的高功率输出,适用于 $\sim 290$ 种模式,覆盖 $110 \text{ cm}^{-1}$ 的光谱范围。随后在2019年,该研究团队<sup>[71]</sup>继续报道了一种室温太赫兹光频梳,其基于腔内集成DFB光栅的下转化单模中红外量子级联激光器产生,器件的剖面示意图如图7(b)所示,其频率范围为2.2~3.3 THz,室温下连续波功率达 $5 \mu\text{W}$ 。2022年,JAIDL M等<sup>[72]</sup>采用芯片键合的方式实现了无缺陷环形太赫兹量子级联激光器与硅衬底的结合,并观察到频谱带宽为70 GHz的光频梳,该技术为未来硅基异质集成太赫兹器件的制备及应用奠定了基础。

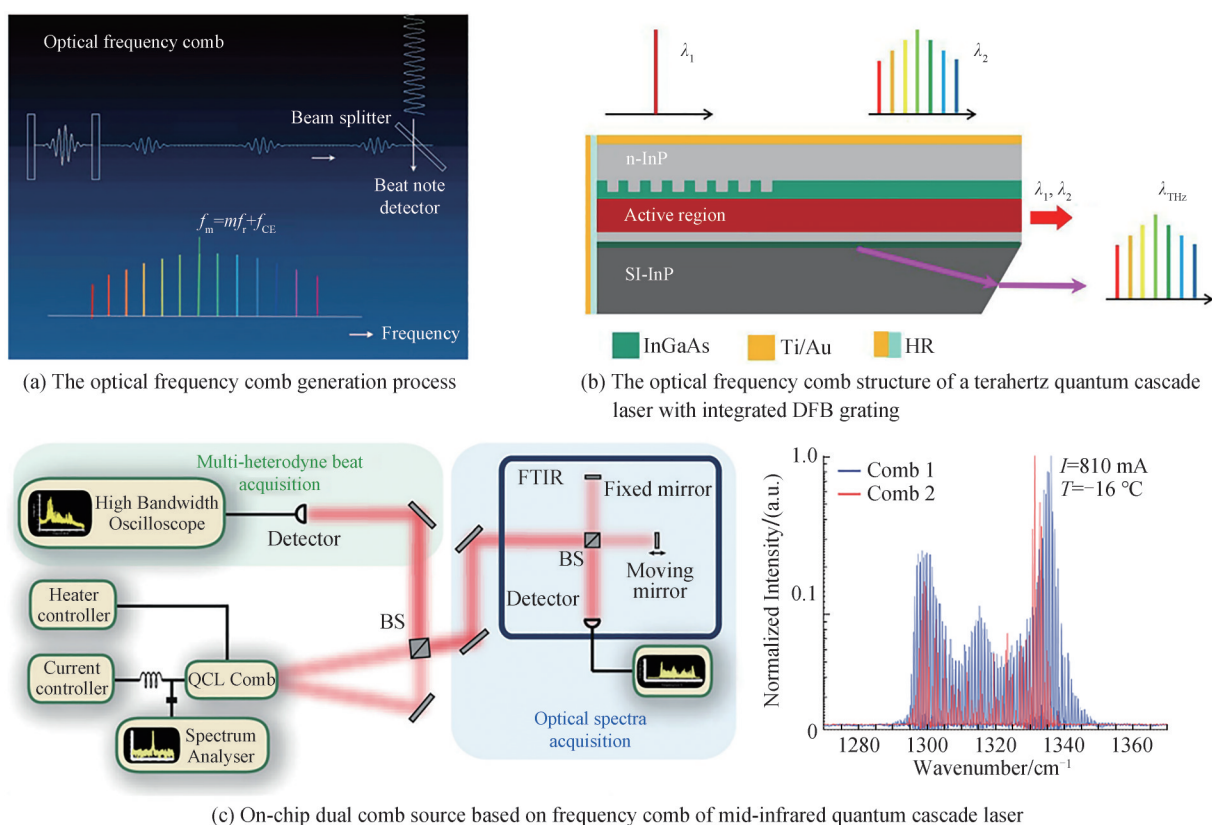


图7 量子级联激光器光频梳示意图<sup>[63, 69, 71]</sup>

Fig. 7 The schematic diagram of quantum cascade laser frequency comb<sup>[63, 69, 71]</sup>

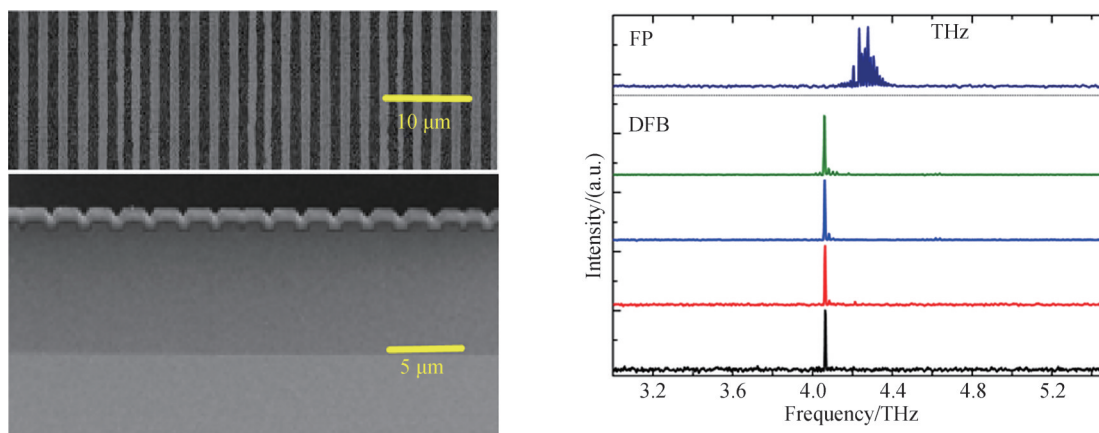
## 5 基于量子级联激光器室温差频太赫兹光源

从20世纪80年代太赫兹电子器件和太赫兹时域光谱学的研究开始,太赫兹(0.3~10 THz)领域的研究迅速由基础科学扩展到现实应用中<sup>[73, 74]</sup>。相比于高频的红外和低频的微波波段,THz波段电磁波是一种非电离辐射,其对生物组织辐射影响很小,能量仅为X射线透视、散射等电离辐射的百万分之一,可应用于机场、地铁等入口处的无害安检和成像检测。此外,许多分子气体如硫化氢( $\text{H}_2\text{S}$ )、甲醛( $\text{H}_2\text{CO}$ )等在该波段有较强的吸收作用,具有比红外波段更明显的特征吸收峰,并且线型重叠较少,使得气体的辨识更加容易。目前,肖特基二极管、共振隧穿二极管、碰撞离化雪崩二极管等电子器件在1 THz以下的低频段都可以产生室温THz光辐射<sup>[75]</sup>,但其频率很难覆盖1 THz以上。GaAs基的THz量子级联激光器的激光波长可覆盖1~5 THz范围<sup>[76]</sup>,低温时输出功率也达到了瓦级大关,但至今仍未实现室温工作。针对上述问题,研究人员提出了基于中红外量子级联激光器的腔内差频(Different Frequency Generation, DFG)方案,其可产生室温工

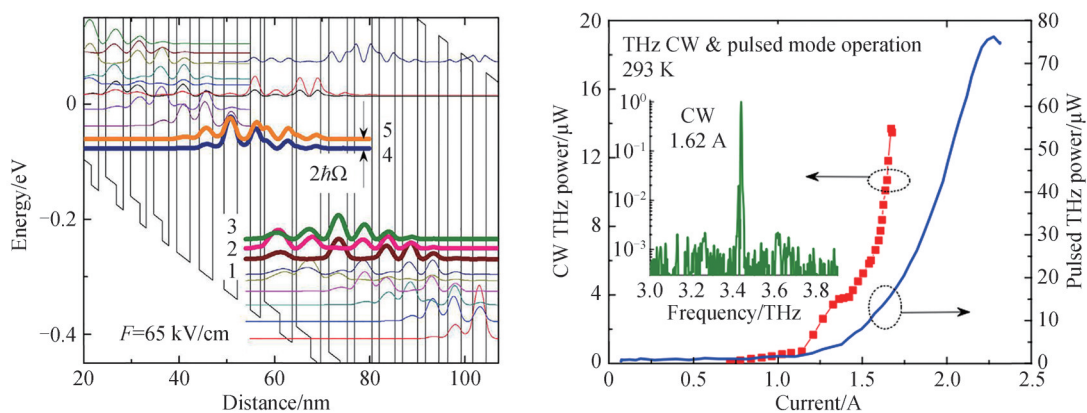


作、频率覆盖1~5 THz的光源。

中红外QCL差频产生室温THz波的研究极富挑战性,需要具有良好的中红外QCL研究基础。2007年哈佛大学CAPASSO F组<sup>[77]</sup>首次报导了THz-DFG QCL,他们采用相匹配模式,80 K输出功率约60 nW。2011年,LU Q Y等<sup>[78]</sup>首次实现了室温单模THz-DFG QCL光源,如图8(a)所示,其提出采用复式光栅波导来实现单模双波长激励,该工作可将差频的THz波长温度漂移系数降低到中红外波段的十分之一,使得THz-DFG QCL成为波长更稳定的紧凑型THz光源。随后通过优化波导层厚度、掺杂及器件工艺,实现了3.5 THz下峰值功率1.9 mW<sup>[79]</sup>,3.6 THz连续波功率14  $\mu$ W<sup>[80]</sup>(图6(b))。此外,美国德州大学奥斯汀分校的BELKIN M组<sup>[81]</sup>提出采用Cerenkov泄露模式替代以往的相匹配模式,使得THz辐射功率提高至 $\mu$ W量级。2015年,RAZEGHI M等<sup>[3]</sup>通过优化波导及有源区,利用倒装焊解决散热问题,实现了3.5 THz最高峰值功率约为1.9 mW,连续波输出功率为14  $\mu$ W。2016年,LU Q Y等<sup>[80]</sup>在美国西北大学报道了一种基于腔内差频产生的强耦合应变平衡量子级联激光器设计,并在国际上首次实现室温连续THz输出,激发功率为14  $\mu$ W。2019年,日本滨松光电公司研究团队<sup>[82]</sup>基于差频产生技术实现了宽带太赫兹量子级联激光器,并利用该光源实现了医学成像。



(a) SEM image of a complex grating waveguide and the spectrum of a room temperature single mode THz



(b) Strain-balanced active region band structure and output power as functions of current for THz DFB-QCL

图8 基于量子级联激光器室温差频太赫兹光源实例<sup>[78, 80]</sup>

Fig. 8 Example of room temperature differential frequency terahertz light source based on quantum cascade laser.<sup>[78, 80]</sup>

## 6 量子级联激光器在片上传感等领域的应用

目前,随着量子级联激光器的快速发展,其在诸多领域发挥关键作用。特别地,具有响应速度快、对目标气体特异性强等特点的气体传感技术已被证明是一种可靠的痕量气体测量技术,其在生物医疗、军事领域有很大的应用前景,越来越引起研究人员的关注。传统的气体传感技术大多基于分离传感器等组装,限制了在实际中的应用。相比分立式气体传感技术,片上集成的气体传感技术可在微纳尺度内检测目标物,

满足微型化/芯片化、轻量化、低功耗气体检测的需求,成为“载人航天、星际(如火星)探测”等深空气体探测领域的优选解决方案。

2013年,SCHWARZ B等<sup>[83]</sup>基于开发的双功能量子级联激光器和探测器有源区,实现了量子级联激光器与量子级联探测器(Quantum Cascade Detectors, QCD)的片上集成,其可作为中红外气体传感器。如图9(a)所示,2016年,美国西北大学ZHOU W J等<sup>[84]</sup>将8个SGDFB-QCL组成的阵列与片上合束器进行集成,实现了6.2~9.1  $\mu\text{m}$ 波长范围内的可调谐QCL光源。并采用该可调谐光源对甲烷进行了快速宽带光谱测量( $520\text{ cm}^{-1}$ ),其结果与使用标准低速红外光谱仪得到的测试结果非常吻合。这种紧凑型的单片大范围可调谐激光技术为近红外光谱和化学传感带来新的机遇。随后,WANG R J等<sup>[85]</sup>报道了一种可室温连续工作的硅基DFB-QCL阵列,通过将InP基外延键合至硅-波导衬底上实现了硅基片上集成,其为实现可同时检测多种气体的全集成硅光子传感器提供了可能。2020年,YOO K M等<sup>[86]</sup>设计制备了带有孔状光子晶体波导(Holey Photonic Crystal Waveguides, HPCW)和亚波长光栅包层波导(Sub-Wavelength grating cladding Waveguides, SWW)的全悬浮InGaAs波导器件,同时与单片集成的QCL/QCD相结合,对5 ppm的 $\text{NH}_3$ 进行检测。其中,QCL/QCD集成SWW传感器的最小可检测气体浓度为84 ppb( $\text{ppb}=10^{-9}$ ),该工作为InGaAs-InP基InGaAs膜悬浮波导首次在该波长处展示气体传感结果。2022年,HINKOV B等<sup>[87]</sup>报道了将量子级联激光器、波导区及探测器进行全单片集成的中红外传感器,如图9(c),其可实现对于物质的原位检测,芯片尺寸 $<5\text{ mm}\times 5\text{ mm}$ 。此外,GUO Q等<sup>[88]</sup>报道了一种单片集成边发射传感器,其通过将QCL与QCD集成,传输距离可达到1.16 mm。2023年,PILAT F等<sup>[89]</sup>通过将4对DFB-QCL及QCD单片集成,实现了6.1  $\mu\text{m}$ 的QCL/QCD传感阵列,将该单片传感在水中进行了灵敏度测试,其相对检出限介于120~150 ppm( $\text{ppm}=10^{-6}$ )间,该工作中红外光谱范围内进行快速动态液体光谱测量及气体检测奠定了基础。另外,QCL的皮秒级载流子寿命赋予其内禀的高速特性,当对其进行合适的高速封装后,QCL亦可实现高速响应探测,因而基于QCL光频梳及太赫兹光源在片上传感具有巨大应用前景。

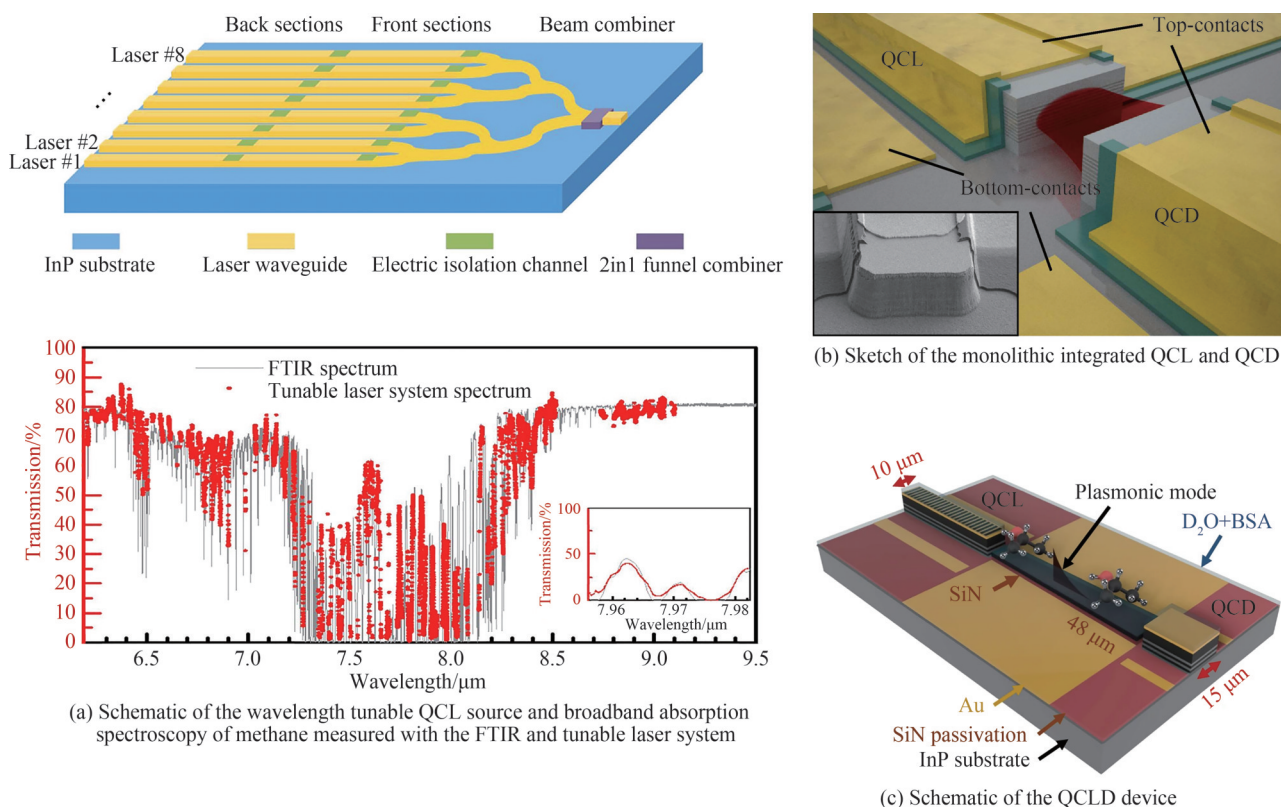


图9 片上传感的量子级联激光器实例<sup>[83, 84, 87]</sup>

Fig. 9 Example of quantum cascade laser facing on-chip sensing<sup>[83, 84, 87]</sup>

## 7 结论

经历了过去三十多年的研究,量子级联激光器得到了突飞猛进的发展,已成为中红外和太赫兹波段的主流激光光源,在片上传感、气体检测、自由空间光通信、定向红外对抗以及生物医疗等领域具有广阔的应用前景。本文对量子级联激光器的发展及原理进行简要阐释,并梳理了不同应用场景下的量子级联激光器,包括大功率、高效率、单模、波长可调谐、光频梳、差频太赫兹光源以及片上传感上的应用等。目前,量子级联激光器在医疗、气体检测、红外对抗等领域已开始实现商用化。因其优异的性能,相信在未来量子级联激光器的价值会被不断挖掘,在人民生命健康及国家科技发展方面扮演重要角色。

### 参考文献

- [1] CORRIGAN P, MARTINI R, WHITTAKER E A, et al. Quantum cascade lasers and the Kruse model in free space optical communication [J]. *Optics Express*, 2009, 17(6): 4355-4359.
- [2] VAMPA G, HAMMOND T J, THIRE N, et al. Linking high harmonics from gases and solids [J]. *Nature*, 2015, 522(7557): 462-464.
- [3] RAZEGHI M, LU Q Y, BANDYOPADHYAY N, et al. Quantum cascade lasers: from tool to product [J]. *Optics Express*, 2015, 23(7): 8462-8475.
- [4] GMACHL C, CAPASSO F, SIVCO D L, et al. Recent progress in quantum cascade lasers and applications [J]. *Reports on Progress in Physics*, 2001, 64(11): 1533-1601.
- [5] TITTEL F K, RICHTER D, FRIED A. Mid-infrared laser applications in spectroscopy [M]. SOROKINA I T, VODOPYANOV K L, *Solid-State Mid-Infrared Laser Sources*, 2003; 445-510.
- [6] ROELKENS G, LIU L, LIANG D, et al. III-V/silicon photonics for on-chip and inter-chip optical interconnects [J]. *Laser & Photonics Reviews*, 2010, 4(6): 751-779.
- [7] ZHANG K S, COUDREAU T, MARTINELLI M, et al. Generation of bright squeezed light at 1.06  $\mu\text{m}$  using cascaded nonlinearities in a triply resonant CW periodically-poled lithium niobate optical parametric oscillator [J]. *Physical Review A*, 2001, 64(3): 033815.
- [8] OLAFSEN L J, AIFER E H, VURGAFTMAN I, et al. Near-room-temperature mid-infrared interband cascade laser [J]. *Applied Physics Letters*, 1998, 72(19): 2370-2372.
- [9] MEYER J R, VURGAFTMAN I, YANG R Q, et al. Type-II and type-I interband cascade lasers [J]. *Electronics Letters*, 1996, 32(1): 45-46.
- [10] ESAKI L, TSU R. Superlattice and negative differential conductivity in semiconductors [J]. *Ibm Journal of Research and Development*, 1970, 14(1): 61-65.
- [11] 王占国. 低维半导体结构材料及其器件应用研究进展 [J]. *世界科技研究与发展*, 2000, 22(1): 1-8.
- [12] SMITH A M, NIE S M. Semiconductor nanocrystals: structure, properties, and band gap engineering [J]. *Accounts of Chemical Research*, 2010, 43(2): 190-200.
- [13] FAIST J, CAPASSO F, SIVCO D L, et al. Quantum cascade laser [J]. *Science*, 1994, 264(5158): 553-556.
- [14] TONOUCHE M. Cutting-edge terahertz technology [J]. *Nature Photonics*, 2007, 1(2): 97-105.
- [15] TIWARI S, WAHL J A, SILVA H, et al. Small silicon memories: confinement, single-electron, and interface state considerations [J]. *Applied Physics a-Materials Science & Processing*, 2000, 71(4): 403-414.
- [16] ZLATANOVIC S, PARK J S, MORO S, et al. Mid-infrared wavelength conversion in silicon waveguides using ultracompact telecom-band-derived pump source [J]. *Nature Photonics*, 2010, 4(8): 561-564.
- [17] CHEN Lianghui, YANG Guowen, LIU Yuxian. Development of semiconductor lasers [J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2020, 47(5): 0500001.  
陈良惠, 杨国文, 刘育衔. 半导体激光器研究进展 [J]. *中国激光*, 2020, 47(5): 0500001.
- [18] BECK M, HOFSTETTER D, AELLEN T, et al. Continuous wave operation of a mid-infrared semiconductor laser at room temperature [J]. *Science*, 2002, 295(5553): 301-305.
- [19] MAULINI R, MOHAN A, GIOVANNINI M, et al. External cavity quantum-cascade laser tunable from 8.2 to 10.4  $\mu\text{m}$  using a gain element with a heterogeneous cascade [J]. *Applied Physics Letters*, 2006, 88(20): 201113.
- [20] LIU F Q, LIL, WANG L J, et al. Solid source MBE growth of quantum cascade lasers [J]. *Applied Physics a-Materials Science & Processing*, 2009, 97(3): 527-532.
- [21] LI Z P, WAN W J, 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): 044068.
- [22] ZHANG J, PENG H Y, WANG J, et al. Dense spectral beam combining of quantum cascade lasers by multiplexing a pair of blazed gratings [J]. *Optics Express*, 2021, 30 2: 966-971.
- [23] 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): 181102.
- [24] 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.
- [25] BAI Y, BANDYOPADHYAY N, TSAO S, et al. Highly temperature insensitive quantum cascade lasers [J]. *Applied Physics Letters*, 2010, 97(25): 251104.
- [26] BAI Y, DARVISH S R, SLIVKEN S, et al. Room temperature continuous wave operation of quantum cascade lasers with watt-level optical power [J]. *Applied Physics Letters*, 2008, 92(10): 101105.
- [27] FAIST J, BECK M, AELLEN T, et al. Quantum-cascade lasers based on a bound-to-continuum transition [J]. *Applied Physics Letters*, 2001, 78(2): 147–149.
- [28] BISMUTO A, TERAZZI R, BECK M, et al. Electrically tunable, high performance quantum cascade laser [J]. *Applied Physics Letters*, 2010, 96(14): 141105.
- [29] RAZEGHI M, SLIVKEN S, BAI Y B, et al. High power quantum cascade lasers [J]. *New Journal of Physics*, 2009, 11(1): 125017.
- [30] LYAKH A, MAULINI R, TSEKOUN A, et al. 3 W continuous-wave room temperature single-facet emission from quantum cascade lasers based on nonresonant extraction design approach [J]. *Applied Physics Letters*, 2009, 95(14): 141113.
- [31] LYAKH A, SUTTINGER M, GO R, et al. 5.6  $\mu\text{m}$  quantum cascade lasers based on a two-material active region composition with a room temperature wall-plug efficiency exceeding 28% [J]. *Applied Physics Letters*, 2016, 109(12): 121109.
- [32] WANG F H, SLIVKEN S, WU D H, et al. Room temperature quantum cascade laser with  $\sim 31\%$  wall-plug efficiency [J]. *AIP Advances*, 2020, 10: 075012.
- [33] WANG F, SLIVKEN S, WU D H, et al. Continuous wave quantum cascade lasers with 5.6 W output power at room temperature and 41% wall-plug efficiency in cryogenic operation [J]. *Aip Advances*, 2020, 10(5): 055120.
- [34] RAZEGHI M, BANDYOPADHYAY N, BAI Y, et al. Recent advances in mid infrared (3–5 $\mu\text{m}$ ) quantum cascade lasers [J]. *Optical Materials Express*, 2013, 3: 1872–1884.
- [35] 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.
- [36] 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): 47.
- [37] MAWST L J, BOTEZ D. High-power mid-infrared ( $\lambda \sim 3\text{--}6 \mu\text{m}$ ) quantum cascade lasers [J]. *IEEE Photonics Journal*, 2022, 14(1): 1–25.
- [38] MENG B, WANG Q. Broadly tunable single-mode mid-infrared quantum cascade lasers [J]. *Journal of Optics*, 2015, 17(2): 023001.
- [39] WANG Y, SOSKIND M G, WANG W, et al. High-resolution multi-heterodyne spectroscopy based on Fabry-Perot quantum cascade lasers [J]. *Applied Physics Letters*, 2014, 104(3): 031114.
- [40] FAIST J, GMACHL C, CAPASSO F, et al. Distributed feedback quantum cascade lasers [J]. *Applied Physics Letters*, 1997, 70(20): 2670–2672.
- [41] 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): 181106.
- [42] LU Q Y, BAI Y, BANDYOPADHYAY N, et al. Room-temperature continuous wave operation of distributed feedback quantum cascade lasers with watt-level power output [J]. *Applied Physics Letters*, 2010, 97(23): 231119.
- [43] ZHANG J C, LIU F Q, TAN S, et al. High-performance uncooled distributed-feedback quantum cascade laser without lateral regrowth [J]. *Applied Physics Letters*, 2012, 100(11): 112105.
- [44] XIE F, CANEAU C G, LEBLANC H P, et al. High power and high temperature continuous-wave operation of distributed Bragg reflector quantum cascade lasers [J]. *Applied Physics Letters*, 2014, 104(7): 071109.
- [45] LU Q Y, SLIVKEN S, WU D H, et al. High power continuous wave operation of single mode quantum cascade lasers up to 5 W spanning  $\lambda \sim 3.8\text{--}8.3 \mu\text{m}$  [J]. *Optics Express*, 2020, 28(10): 15181–15188.
- [46] VURGAFTMAN I, MEYER J R. Photonic-crystal distributed-feedback lasers [J]. *Applied Physics Letters*, 2001, 78(11): 1475–1477.
- [47] BAI Y, GOKDEN B, DARVISH S R, et al. Photonic crystal distributed feedback quantum cascade lasers with 12 W output power [J]. *Applied Physics Letters*, 2009, 95(3): 031105.
- [48] LU Q Y, ZHANG W, WANG L J, et al. Holographic fabricated photonic-crystal distributed-feedback quantum cascade laser with near-diffraction-limited beam quality [J]. *Optics Express*, 2009, 17(21): 18900–18905.
- [49] LU Q Y, GUO W H, ZHANG W, et al. Room temperature operation of photonic-crystal distributed-feedback quantum cascade lasers with single longitudinal and lateral mode performance [J]. *Applied Physics Letters*, 2010, 96(5): 051112.

- [50] LUO G P, PENG C, LE H Q, et al. Grating-tuned external-cavity quantum-cascade semiconductor lasers [J]. Applied Physics Letters, 2001, 78(19): 2834-2836.
- [51] LUO G P, PENG C, LE H Q, et al. Broadly wavelength-tunable external cavity mid-infrared quantum cascade lasers [J]. IEEE Journal of Quantum Electronics, 2002, 38(5): 486-494.
- [52] MAULINI R, YAREKHA D A, BULLIARD J M, et al. Continuous-wave operation of a broadly tunable thermoelectrically cooled external cavity quantum-cascade laser [J]. Optics Letters, 2005, 30(19): 2584-2586.
- [53] MOHAN A, WITTMANN A, HUGI A, et al. Room-temperature continuous-wave operation of an external-cavity quantum cascade laser [J]. Optics Letters, 2007, 32(19): 2792-2794.
- [54] CENTENO R, MARCHENKO D, MANDON J, et al. High power, widely tunable, mode-hop free, continuous wave external cavity quantum cascade laser for multi-species trace gas detection [J]. Applied Physics Letters, 2014, 105(26): 261907.
- [55] SUN Y Q, YANG K, LIU J H, et al. High sensitivity and fast detection system for sensing of explosives and hazardous materials [J]. Sensors and Actuators B-Chemical, 2022, 360(4): 131640.
- [56] WITTMANN A, HUGI A, GINI E, et al. Heterogeneous high-performance quantum-cascade laser sources for broad-band tuning [J]. IEEE Journal of Quantum Electronics, 2008, 44(11-12): 1083-1088.
- [57] LEE B G, BELKIN M A, PFLUGL C, et al. DFB quantum cascade laser arrays [J]. IEEE Journal of Quantum Electronics, 2009, 45(5): 554-565.
- [58] SLIVKEN S, BANDYOPADHYAY N, TSAO S, et al. Sampled grating, distributed feedback quantum cascade lasers with broad tunability and continuous operation at room temperature [J]. Applied Physics Letters, 2012, 100(26): 261112.
- [59] SLIVKEN S, BANDYOPADHYAY N, BAI Y, et al. Extended electrical tuning of quantum cascade lasers with digital concatenated gratings [J]. Applied Physics Letters, 2013, 103(23): 231110.
- [60] FUCHS P, SEUFERT J, KOETH J, et al. Widely tunable quantum cascade lasers with coupled cavities for gas detection [J]. Applied Physics Letters, 2010, 97(18): 181111.
- [61] MENG B, TAO J, HUI LI X, et al. Tunable single-mode slot waveguide quantum cascade lasers [J]. Applied Physics Letters, 2014, 104(20): 201106.
- [62] LI J H, SUN F Y, JIN Y H, et al. Widely tunable single-mode slot waveguide quantum cascade laser array [J]. Optics Express, 2022, 30(1): 629-640.
- [63] HANSCH T W. Nobel lecture: passion for precision [J]. Reviews of Modern Physics, 2006, 78(4): 1297-1309.
- [64] DEL'HAYE P, SCHLIESSER A, ARCIZET O, et al. Optical frequency comb generation from a monolithic microresonator [J]. Nature, 2007, 450(7173): 1214-1217.
- [65] UDEM T, HOLZWARTH R, HANSCH T W. Optical frequency metrology [J]. Nature, 2002, 416(6877): 233-237.
- [66] SCHLIESSER A, PICQUE N, HANSCH T W. Mid-infrared frequency combs [J]. Nature Photonics, 2012, 6(7): 440-449.
- [67] 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.
- [68] VILLARES G, HUGI A, BLASER S, et al. Dual-comb spectroscopy based on quantum-cascade-laser frequency combs [J]. Nature Communications, 2014, 5(1): 5192.
- [69] VILLARES G, WOLF J, KAZAKOV D, et al. On-chip dual-comb based on quantum cascade laser frequency combs [J]. Applied Physics Letters, 2015, 107(25): 251104.
- [70] LU Q Y, WU D H, SLIVKEN S, et al. High efficiency quantum cascade laser frequency comb [J]. Scientific Reports, 2017, 7(1): 43806.
- [71] LU Q Y, WANG F H, WU D H, et al. Room temperature terahertz semiconductor frequency comb [J]. Nature Communications, 2019, 10(1): 2403.
- [72] JAIDL M, OPACAK N, KAINZ M A, et al. Silicon integrated terahertz quantum cascade ring laser frequency comb [J]. Applied Physics Letters, 2022, 120(9): 091106.
- [73] BRADLEY F, ZHANG X. Materials for terahertz science and technology [J]. Physics, 2003, 32(5): 286-293.
- [74] ZHAO H, TAN Y, ZHANG R, et al. Anion-water hydrogen bond vibration revealed by the terahertz Kerr effect [J]. Optics Letters, 2021, 46(2): 230-233.
- [75] BERRY C W, WANG N, HASHEMI M R, et al. Significant performance enhancement in photoconductive terahertz optoelectronics by incorporating plasmonic contact electrodes [J]. Nature Communications, 2013, 4(1): 1622.
- [76] KHALATPOUR A, PAULSEN A K, DEIMERT C, et al. High-power portable terahertz laser systems [J]. Nature Photonics, 2021, 15(1): 16-20.
- [77] 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.
- [78] LU Q Y, BANDYOPADHYAY N, SLIVKEN S, et al. Room temperature single-mode terahertz sources based on

- intracavity difference-frequency generation in quantum cascade lasers [J]. *Applied Physics Letters*, 2011, 99 (13): 131106.
- [79] LU Q Y, BANDYOPADHYAY N, SLIVKEN S, et al. Continuous operation of a monolithic semiconductor terahertz source at room temperature [J]. *Applied Physics Letters*, 2014, 104(22): 221105.
- [80] LU Q Y, WU D H, SENGUPTA S, et al. Room temperature continuous wave, monolithic tunable THz sources based on highly efficient mid-infrared quantum cascade lasers [J]. *Scientific Reports*, 2016, 6(1): 23595.
- [81] VIJAYRAGHAVAN K, ADAMS R W, VIZBARAS A, et al. Terahertz sources based on Cerenkov difference-frequency generation in quantum cascade lasers [J]. *Applied Physics Letters*, 2012, 100(25): 251104.
- [82] NAKANISHI A, FUJITA K, HORITA K, et al. Terahertz imaging with room-temperature terahertz difference-frequency quantum-cascade laser sources [J]. *Optics Express*, 2019, 27(3): 1884-1893.
- [83] SCHWARZ B, REININGER P, DETZ H, et al. Monolithically integrated mid-infrared quantum cascade laser and detector [J]. *Sensors*, 2013, 13(2): 2196-2205.
- [84] ZHOU W J, BANDYOPADHYAY N, WU D H, et al. Monolithically, widely tunable quantum cascade lasers based on a heterogeneous active region design [J]. *Scientific Reports*, 2016, 6(1): 25213.
- [85] WANG R J, SPRENGEL S, BOEHM G, et al. Broad wavelength coverage 2.3  $\mu\text{m}$  III-V-on-silicon DFB laser array [J]. *Optica*, 2017, 4(8): 972-975.
- [86] YOO K M, MIDKIFF J, ROSTAMIAN A, et al. InGaAs membrane waveguide: a promising platform for monolithic integrated mid-infrared optical gas sensor [J]. *Acs Sensors*, 2020, 5(3): 861-869.
- [87] HINKOV B, PILAT F, LUX L, et al. A mid-infrared lab-on-a-chip for dynamic reaction monitoring [J]. *Nature Communications*, 2022, 13(1): 4753.
- [88] GUO Q, ZHANG J, YANG K, et al. Monolithically integrated mid-infrared sensor with a millimeter-scale sensing range [J]. *Optics Express*, 2022, 30(22): 40657-40665.
- [89] PILAT F, SCHWARZ B, BAUMGARTNER B, et al. Beyond Karl Fischer titration: a monolithic quantum cascade sensor for monitoring residual water concentration in solvents [J]. *Lab Chip*, 2023, 23(7): 1816-1824.

## Recent Development of Quantum Cascade Lasers for On-chip Sensing (Invited)

ZHOU Binru<sup>1,2,3</sup>, MA Yu<sup>1</sup>, ZHANG Shichen<sup>1</sup>, LIU Fengqi<sup>4</sup>, LU Quanyong<sup>1</sup>

(1 *Division of Quantum Materials and Devices, Beijing Academy of Quantum Information Sciences, Beijing 100193, China*)

(2 *Beijing National Laboratory for Condensed Matter Physics, Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China*)

(3 *School of Physical Sciences, University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China*)

(4 *Key Laboratory of Semiconductor Materials Science, Institute of Semiconductors, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100083, China*)

**Abstract:** Mid-infrared to terahertz spectral regions (3~300  $\mu\text{m}$ ) are of particular interest to sensing and monitoring since a large number of gases such as CO, CH<sub>4</sub>, NH<sub>3</sub>, SO<sub>2</sub>, HCl, etc., has strong characteristic vibrational transitions. These molecular fingerprints enables fast and precise detection when a high power laser and a sensitive detector is applied. A morden sensing system normally includes a separate laser, a detector, and a gas chamber, which makes the system rather bulky and expensive. A chip-based sensing system on the other hand, with all the components integrated on a single chip, will greatly reduce the size, weight, power, and cost of the system. Currently, there are limited light source candidates for mid-infrared and terahertz spectral bands. Devices that can generate light sources in the infrared band include: quantum well lasers, solid-state laser-pumped optical parametric oscillators, interband cascade lasers, and quantum cascade lasers. As a conventional semiconductor laser light source, quantum well laser is based on the optical transition between the conduction band electrons and valence band holes in the quantum wells, its emitting wavelength is determined by the band gap of the semiconductor quantum material. The photon energy in the mid- and far-infrared bands ranges from 0.04~0.4 eV, which is much smaller than the bandgap of the majority of quantum well laser materials themselves. It is difficult for traditional quantum well lasers to cover the mid- and far-infrared as well as terahertz bands. Devices using

solid-state laser-pumped optical parametric oscillators to generate the mid- and far-infrared emission are generally large in size and low in efficiency, and have limitations in practical applications. In addition, based on cascade transition between the conduction band and the valence band, interband cascade lasers can cover the 3~6  $\mu\text{m}$  band. These type of laser is of much lower threshold current density and threshold power density. However, for the mid-infrared and even further wavelength bands, the performance of interband cascade lasers shows a decreasing trend. Based on intersubband transition in the conduction bands, Quantum Cascade Laser (QCL) is a new type of semiconductor laser source with high responsivity, high nonlinearity, and wide spectral coverage from mid-infrared to terahertz band. Compared with other laser sources that can produce mid-infrared sources, quantum cascade lasers have the advantages of small size, high energy efficiency, and wider wavelength tunability, and their wavelength ranges have been extended to the 3~25  $\mu\text{m}$  and 1~6 THz bands, which make them the most promising laser light sources in the mid-infrared band.

In recent years, quantum cascade lasers have important applications in the fields of long-range hazardous and explosive detection, biomedicine, infrared countermeasures and long-range free-space optical communications. Since the sensitivity and detecting range are proportional to the output power of the lasers, further improvement of the output power and electro-optical conversion efficiency of the devices is one of the most important goals of QCL research. By improving the device structure design, material epitaxial growth technology, and device preparation process, the output power, electro-optical conversion efficiency, beam quality, threshold current density, and other key parameters of quantum cascade lasers have been continuously optimized. In addition, broadly tuned, single-mode quantum cascade lasers with high side-mode suppression ratio have also become a research hotspot due to their urgent needs in gas sensing, spectroscopic measurements and other fields. Further, difference-frequency generation terahertz light sources and on-chip sensing technologies based on quantum cascade lasers are attracting more and more attention for the potential applications.

With the recent rapid development in output power and wall-plug efficiency, QCL is becoming the most promising laser source in mid-IR and THz regions. The high power characteristic together with the strong absorption at zero bias makes QCL the ideal platform for on-chip sensing. This paper focuses on the recent development mid-infrared quantum cascade lasers and their application in on-chip sensing. Firstly, the history and working principle of quantum cascade lasers is introduced. Subsequently, the research progress of mid-infrared quantum cascade lasers in wall-plug efficiency, output power, wavelength tunability, single-mode operation, optical frequency comb, THz difference-frequency generation are summarized and their application in on-chip sensing are also discussed.

**Key words:** Quantum cascade lasers; On-chip sensing; Optical frequency comb; Terahertz

**OCIS Codes:** 140.5965; 140.3600; 140.3070; 140.3570