Email:ycyk704@163.com TEL:010-68382327 010-68382557

# 11.4µm 外腔宽调谐量子级联激光器研究

张宇露,黄 彦,高志强,周建发,刘 蓓,钟 亮, 徐 暠,陈 旭,史 青,彭泳卿 (北京遥测技术研究所 北京 100076)

**摘要:**光谱法是目前最主要的痕量气体检测手段之一。外腔量子级联激光器因其宽调谐、窄线宽、中红外波段输出等特点成为痕量检测系统中的重要激光光源。针对有毒有害大气污染物检测需求,采用新型 Littrow 外腔技术,实现中心波长 11.4µm 中红外波段 827.7cm<sup>-1</sup>~928.7cm<sup>-1</sup>(波长 10.7µm~12.08µm)宽调谐激光输出,线宽小于 1cm<sup>-1</sup>。该 波段的宽调谐激光输出是国内首次报道,解决了三氯乙烯、光气、萘等痕量有毒有害气体同时在线检测的难题。

关键词: 外腔量子级联激光器; 气体检测; 宽调谐; 闪耀光栅; 中红外

中图分类号: TN248.4 文献标识码: A 文章编号: CN11-1780(2020)04-0034-06

# Research on broadly tuning external cavity quantum cascade laser of 11.4µm

ZHANG Yulu, HUANG Yan, GAO Zhiqiang, ZHOU Jianfa, LIU Bei, ZHONG Liang,

XU Hao, CHEN Xu, SHI Qing, PENG Yongqing

(Beijing Research Institute of Telemetry, Beijing 100076, China)

**Abstract:** Spectroscopy was one of the most important methods for trace gas detection. External cavity quantum cascade laser (EC-QCL) had become an important laser light source in trace detection system. Because the output of the laser was broadly tuning, narrowly line width, and mid-infrared band. For on-line detection of toxic and harmful atmospheric pollutants, Littrow outer cavity technology was used to realize the laser center-wavelength of 11.4µm broadly tuning 827.7 cm<sup>-1</sup>~928.7cm<sup>-1</sup>(10.7µm ~12.08µm) in the mid-infrared band, and the line width less than 1cm<sup>-1</sup>. The narrowly line width and broadly tuning laser output in this band is the first reported in China. The laser solves the problem of simultaneous on-line detection of trace toxic and harmful gases such as trichloroethylene, phosgene and naphthalene.

Key words: External cavity quantum cascade laser; Gas detection; Broadly tuning; Blazed grating; Mid-infrared

# 引 言

大气污染带来的环境气体组分复杂多样使气体检测的下限要求不断提升,传统的电化学检测已经 无法满足目前的气体分析需求。光谱法作为一种新型的痕量气体检测手段正在飞速发展,其基于光谱 学原理,利用光和气体分子相互作用的特性来实现测量。绝大多数的气体分子基频吸收峰位于中红外 波段<sup>[1]</sup>(3µm~14µm),因此,对于该波段的激光光源有迫切需求。

目前,输出中红外波段的激光器主要有参量震荡激光器与量子级联激光器 QCL(Quantum Cascade Laser)。参量震荡固体激光器通过泵浦掺杂可激发中红外波段激光粒子的光学晶体实现激光输出,因其体积大、功耗高、波长精度不高使其在痕量气体检测仪的应用中受限。而量子级联激光器成为了该检测领域中的主要光源,它属于一类新型的半导体激光器。在高精密光谱检测系统中,具有宽调谐范围、窄的输出线宽特征的外腔量子级联激光器备受关注。

国内外有诸多研究机构对外腔量子级联激光器 EC-QCL(External Cavity Quantum Cascade Laser) 开展研究,国外 Daylight 公司、日本滨松等目前已有成熟的商业产品,具体所实现的参数指标如表 1 所示。

Table 1 Technicalities comparison QCL at home and abroad				
研究单位	年份	中心波长 (µm)	调谐范围(cm <sup>-1</sup> )	类型
纳沙泰尔大学	2004 <sup>[2]</sup>	10	150	样机(原理)
纳米结构物理实验室	2007 <sup>[3]</sup>	8.4	120	样机(原理)
普林斯顿大学与莱斯大学	$2008^{[4]}$	5.3	155	样机(原理)
苏黎世大学	2009 <sup>[5]</sup>	9.5	432	样机(原理)
内梅亨大学	2014 <sup>[6]</sup>	8	303	样机(原理)
弗朗禾费研究所	2017 <sup>[7]</sup>	8.7	300	样机(原理)
清华大学	2014 <sup>[1]</sup>	4.7	131	样机(原理)
华中师范大学	2016 <sup>[8]</sup>	6.9	300	样机(原理)
中科院半导体所	2016 <sup>[9]</sup>	7.2	128	样机(原理)
北京遥测技术研究所	2018 <sup>[10]</sup>	8.7	334	样机(工程)
Daylight 公司	2008	8.8	190	商业产品
		11.2	115	商业产品
Pranalytica 公司	2015	9.2	156	商业产品
Block 公司	2012	9	280	商业产品
日本滨松	2017	8.5	180	商业产品

表 1 国内外 EC-QCL 技术指标对比 1 Technicalities comparison QCL at home and abr

从表 1 可以看出,目前仅有 Daylight 公司在波长 11.2μm 有相关的产品.国内外其它外腔量子级联 激光器的研究工作与产品主要集中在中心波长小于 10μm 的波段范围,这在一定程度上限制了光谱检 测气体的种类,因为部分有毒有害气体的吸收峰位于波长更长的波段。本文首次在国内实现了中心波 长 11.4μm 中红外波段 827.7cm<sup>-1</sup>~928.7cm<sup>-1</sup>(波长 10.7μm~12.08μm)宽调谐激光输出,激光线宽小于 1cm<sup>-1</sup>,该光源可有效解决三氯乙烯、光气、萘等痕量有毒有害气体同时在线检测的难题。

# 1 外腔量子级联激光器原理

### 1.1 量子级联激光器发光原理

如图 1 (a) 所示, 传统半导体激光器中通过导带电子和价带空穴的带间复合跃迁产生光子, 波长取决于半导体材料的禁带宽度; 对于量子级联激光器而言, 在产生光子时并不会对空穴有需要, 导带和子带之间的电子跃迁产生了光子, 因而二者间隙不同, 就会输出不同的波长。电子在一个有源区量子阱中完成子带间跃迁后, 位于跃迁下能级的电子通过弛豫区/注入区注入到下一个有源区量子阱中的跃迁上能级, 再次进行跃迁, 依此类推形成阶梯式级联, 如图 1 (b) 所示。



图 1 QCL 基本原理示意图 Fig. 1 The QCL schematic diagram of basic principle 由于导带子带间隙远小于禁带宽度,因此,QCL输出波长比传统半导体激光器更长,而且导带子带间隙可以通过改变材料量子阱厚度而改变。目前,通过改变 QCL 的量子阱厚度已实现输出波长从中 红外(约 3μm)到太赫兹波段的覆盖,使得 QCL 具备了作为光谱气体检测光源的基础。

# 1.2 外腔量子级联激光器原理

EC-QCL 实质是在量子级联激光器的外部引入光学反馈元件,构建两个法布里-珀罗腔,量子级联激光器芯片的自然解理面构成激光器的内腔,外部光学反馈元件与芯片端面构成激光器外腔。外腔对激光纵模进行选择,构成单纵模反馈,从而输出单频激光。因此,当芯片具备宽带光谱时,可以通过改变外腔参数,最终获得宽光谱、窄线宽的激光输出。

目前常见的 EC-QCL 腔型结构有两种,一种是 Littrow 结构,一种是 Littman 结构,如图 2 所示。



Fig. 2 Two external cavity structures

当采用 Littrow 这种外腔结构时,返回激光芯片中的衍射光为一级衍射原路返回,是衍射光栅对 芯片输出的激光进行了衍射选择,部分零级光形成损耗,特定波长的光经过光栅选择原路返回,进而 实现线宽压窄和边模抑制。相比 Littrow 结构,Littman 结构增加了一个可以调节的平面镜,入射光入 射到光栅,产生入射到平面镜的一级衍射光,与平面镜垂直入射的光线反射到光栅形成二次衍射后, 返回到增益芯片有源区中,形成单纵模振荡。该结构通过旋转平面镜来实现波长的调谐,由于发生两 次衍射,输出的激光线宽更窄,但是增加了损耗,整个结构更加复杂<sup>[1,11,12]</sup>。

外腔量子级联激光器的激射原理与其他激光器相同,其主要特点是具有外部模式选择器件,在实现激光单纵模、窄线宽输出的同时,保证激光器的宽调谐输出。如图 3 所示的一种外腔结构,是在传统的 Littrow 外腔下做的改进<sup>[13]</sup>,最终的激光输出端为激光芯片的后端面。其不仅可以避免传统结构激光输出方向不固定的缺点,且输出端为激光芯片的自然结离面,有利于降低腔损耗,提升激光功率。



Fig. 3 The improved Littrow configuration

# 2 外腔量子级联激光器研制

## 2.1 激光器元器件

外腔激光输出波长是通过腔内选模器件进行选择,而激光输出性能主要由芯片的自发辐射谱决定。

本文采用的量子级联增益芯片为 Alpes Lasers 公司的 BG-11-14 宽谱芯片,其出厂激光芯片的输出光谱 覆盖范围为 820 cm<sup>-1</sup>~935cm<sup>-1</sup>。宽谱激光芯片要求驱动信号宽度在百纳秒量级,由 Alpes Lasers 公司 的 S-2 脉冲电源提供驱动,最高重复频率 1MHz,输出电压 8V~20V 可调,脉宽可调,最大输出峰值 电流 8A(平均电流 2.5A)。

量子级联激光芯片光电转换效率较低<sup>[14,15]</sup>,大面积热沉、自然风冷等传统的散热方式不能满足其 需求,本文采用热电制冷器(TEC)和热敏电阻闭环控制实现激光器的恒温工作。温控方案如图 4 所 示,采用的热敏电阻为新疆理化所 10K@25℃热敏电阻。由于宽调谐量子级联激光器通常作为一个器 件应用于各类分析仪器中,其外界温度环境较为复杂,一级 TEC 不能满足激光器温控需求,因此采用 RMT 公司的二级 TEC,型号为 2MC10-081-10,0 负载环境温度为 50℃时,最大温差可实现 100K。温 控部分驱动为自主研制的控制器,温度稳定性可实现 0.01℃,配套上位机软件。图 5 和图 6 所示分别 为激光芯片驱动以及自主研发的温度控制硬件电路。



图 4 激光器温度控制方案 Fig. 4 The laser temperature control scheme



图 5 S-2 型脉冲电源 Fig. 5 The S-2 pulse power module



图 6 自主研制的温控驱动 Fig. 6 The temperature control driver independently developed

光栅、腔内透镜及其装配件基本构成了优化后 Littrow 结构的外腔部分。本研究采用的腔内透镜 为非球面透镜 C037TME-F,由 Thorlabs 公司提供,透镜的选择是基于光谱透过率以及数值孔径等因素, 其在中远红外波段透过率大于 99.5%。闪耀光栅的选择也极其重要,光栅刻线数影响着激光输出的线 宽<sup>[10]</sup>,本研究采用的是刻线数为 150/mm 的闪耀光栅 GR1325-15106,当刻线方向与激光芯片偏振方向 垂直时,光栅具有高达 0.9 的一级光衍射效率,该光栅由 Thorlabs 公司提供。

#### 2.2 激光器样机

激光器整机内部结构如图 7 所示,采用腔型为优化后的 Littrow,为确保激光器的连续可调,光栅 夹持在可以精密调节的光学镜架上。

# 2.3 激光输出特性

在环境温度 25℃、激光芯片温度控制在 18℃、芯片电压 14.25V、脉宽 300ns、占空比 5%条件下 对搭建的激光输出线宽、调谐范围、功率特性、波长及功率稳定性进行测试。

本项目所获得激光输出线宽小于 1cm<sup>-1</sup>, 满足痕量光谱气体检测需求, 典型波数 910cm<sup>-1</sup>处线宽测 试结果如图 8 所示, 采用的测试设备为 Bristol 公司的 771B-MIR 中远红外激光频谱仪。外腔量子级联

激光器输出调谐范围与线宽是影响检测气体种类和下限的关键参数。如前文所述,理想状态下的外腔 选模激光输出是单纵模,但是在图 8 中,有明显的多纵模输出现象。当激光芯片的状态是非常稳定的 连续驱动状态时,只有在激光芯片开机启动的一瞬间存在模式竞争的问题,线宽会非常接近单纵模, 一般线宽在 KHz 量级。但是本研究中芯片驱动为脉冲驱动,芯片处于不停的关闭启动状态中,每个周 期都存在模式竞争,而每个周期中外部环境因素的微小不同,如振动、温度以及腔长等,都会带来被 选出的模式状态不同,多个周期的累积效果就会带来线宽的展宽,最终表现为多个激光纵模的输出, 脉冲工作模式激光线宽为 1 cm<sup>-1</sup>~5 cm<sup>-1</sup>,即 GHz 量级。

通过光学调整架调整光栅转角,中远红外激光频谱仪实时检测激光器输出波长,获得该激光器的 光谱调谐范围为 827.7cm<sup>-1</sup>~928.7cm<sup>-1</sup>,具体如图 9 所示,激光器总调谐范围为 101cm<sup>-1</sup>,在此范围内 三氯乙烯、光气、萘等痕量有毒有害气体均有良好的气体吸收峰。驱动电压 14.25V 时,在整个调谐范 围内激光输出功率随波长的变化特性如图 10 所示,激光器在中心波数 880.05cm<sup>-1</sup>(波长 11.363μm) 处有最高输出平均功率 1.846mW,峰值功率 36.9mW。我们可以看到激光输出功率分布特点为中间强, 两边弱,这是由于激光芯片自身的谱线强度分布具有这样的规律,越到边缘处,腔内越难达到激光输 出的条件,最终达到调谐范围的上限。所以在外腔激光中,当光栅由中心波数向两侧转动时,激光输 出的波数随之变化,但也带来了功率的下降。



激光器整机稳定性是决定其是否可实际应用的关键因素,将光栅衍射角固定输出波数为 880.05cm<sup>-1</sup>处,激光器温度 18℃,每隔 10 分钟,测试激光器输出平均功率和波数,2 个小时内,激光 器输出平均功率和波数随时间变化关系如图 11 所示,稳定性良好。 40

32

24

16

8

0

peak power/mW



Fig. 10 Power vs. wavenumber curve

功率随波数变化特性



#### 3 结束语

图 10

本文针对目前对长波宽调谐量子级联激光器的需求,开展了中心波长为 11.4um 的外腔量子级联 激光器研制,最终实现激光输出调谐范围 827.7cm<sup>-1</sup>~928.7cm<sup>-1</sup>(波长 10.7µm~12.08µm),激光线宽小 于 1cm<sup>-1</sup>, 是国内首次报道该波段激光的宽调谐输出。该激光器激光输出性能满足目前光谱痕量气体 检测需求,是三氯乙烯、光气、萘等痕量有毒有害气体同时在线检测的理想光源,对大气环境监测系 统向小型化、轻量化方向发展有着重要影响。

#### 参考文献

- [1] 谭松. 应用于痕量气体检测的量子级联激光器研究[D]. 北京: 清华大学, 2014.
- [2] RICHARD M, MATTIAS B. Broadband tuning of external cavity bound-to-continuum quantum-cascade lasers[J]. Applied Physics Letters, 2004, 84(10): 1659.
- [3] MOHAN A, WITTMANN A, HUGI A. Room-temperature continuous-wave operation of an external cavity quantum cascade lasers[J]. Optics Letters, 2007, 32(19): 2792-2794.
- [4] WYSOCKI G, LEWICKI R, Curl R F, et al. Widely tunable mode-hop free external cavity quantum cascade lasers for high resolution spectroscopy and chemical sensing[J]. Applied Physics B: Lasers and Optics, 2008, 92(3): 305–311.
- [5] HUGI A, TERAZZI R, BONETTI Y. External cavity quantum cascade laser tunable from 7. 6 to 11. 4μm[J]. Applied Physics Letters, 2009, 95(6): 061103.
- [6] CENTENO R, MARCHENKO D. High power, widely tunable, mode-hop free, continuous wave external cavity quantum cascade laser for multi-species trace gas detection[J]. Molecular and Laser Physics Appl. Phys., 2014, 105: 261907.
- [7] BUTSCHEK L, HUGGER S, JARVIS J, et al. Real-time spectroscopy enabled by external cavity QCLs with MOEMS diffraction gratings[J]. Proc. of SPIE, 2017, 10111: 101112G.
- [8] ZHAO Zhibin, WANG Lijun, JIA Zhiwei, et al. Low-threshold external-cavity quantum cascade laser around 7. 2µm[J]. Optical Engineering, 2016, 55(4): 046116.
- [9] LUO Wei, DUAN Chuanxi. A broadband pulsed external-cavity quantum cascade laser operating near 6. 9µm[J]. Chin. Phys. Lett, 2016, 33(2): 024207.
- [10] 高志强. 宽调谐外腔量子级联激光器技术研究[D]. 北京: 北京遥测技术研究所, 2018.
- [11] 杨展鹏. 1. 06µm 外腔可调谐半导体激光器研究[D]. 成都:西南交通大学, 2015.
- [12] 张怡. 外腔半导体激光器的研究[D]. 天津: 天津大学, 2005.
- [13] EUGENE M, MARSHALL C, JINHONG K. The design and performance characterization of a tunable external cavity quantum cascade laser utilizing thermo optically tuned thin film filters[J]. SPIE Next Generation Spectroscopic Technologies, 2014, 9101: 910101.
- [14] 颜祺. 外腔半导体激光器的温度控制[D]. 天津: 天津大学, 2006.
- [15] TRACY T. External cavity quantum cascade lasers for spectroscopic applications[D]. Princeton University, 2012.