

DISS. ETH NO. 23558

**QUANTUM CASCADE LASER FREQUENCY COMBS
FOR SPECTROSCOPY APPLICATIONS**

A thesis submitted to attain the degree of
DOCTOR OF SCIENCES of ETH ZURICH
(Dr. sc. ETH Zurich)

presented by

GUSTAVO FILIPE FERREIRA VILLARES

Diplôme d'Ingénieur, Institut d'Optique Graduate School
(Palaiseau, France)

Diplôme d'Ingénieur, Ecole Supérieure de Physique et Chimie
Industrielles
(Paris, France)

born on 21.01.1988

citizen of Brazil

accepted on the recommendation of

Prof. Dr. Jérôme Faist, examiner
Prof. Dr. Nathalie Picqué, co-examiner
Prof. Dr. Carlo Sirtori, co-examiner

2016

Abstract

An optical frequency comb consists of a broadband coherent radiation whose spectrum is characterized by equally spaced spectral lines, thus creating a precise ruler in the frequency domain. First introduced in the context of optical clocks, frequency combs have led to a plethora of applications in different fields, such as arbitrary waveform generation, frequency/time transfer, calibration of astronomical spectrographs or of tunable lasers, coherent LIDAR, optical telecommunication and molecular spectroscopy. Underlying all the applications of frequency combs is the possibility of generating a source with broadband phase coherence, wide spectral coverage, and absolute frequency traceability. This increasing number of applications impose different requirements in terms of precision and accuracy, robustness and simplicity, spectral coverage and number of comb teeth available. Remarkably, frequency combs can be experimentally realized in a variety of systems, making this technology extremely versatile.

The potential benefits of frequency combs in the context of molecular spectroscopy are numerous, as such technique would combine high accuracy and precision together with wide spectral coverage. In addition, the benefits of such spectroscopy method are further improved when performed in the Mid-IR spectral region, as the fundamental roto-vibrational bands of most light molecules lie in this spectral range, therefore increasing the system sensitivity. Among all frequency comb spectroscopy techniques, dual-comb spectroscopy is emerging as an attractive technique as individual comb teeth can be resolved in very short time scales. Finally, compactness, robustness and simplicity are also important requirements in order to deploy Mid-IR frequency comb spectroscopy systems in practical applications.

This work explores the development of optical frequency combs based on QCLs for dual-comb spectroscopy applications. QCLs are mature semiconductor lasers capable of generating radiation in the Mid-IR and THz parts of the spectrum. Moreover, broadband QCLs can achieve frequency comb operation using FWM as a phase-locking mechanism. Combined

with the short gain recovery time inherent to intersubband transitions, QCL frequency combs show a phase signature comparable to a frequency-modulated laser. As the comb formation takes place directly in the QCL active region, QCL frequency combs offer the unique possibility of a completely integrated chip-based system capable of performing broadband high-resolution spectroscopy, ideal for applications requiring the detection of several different molecules masked by a complex background.

Nevertheless, various questions remain regarding the frequency comb operation of QCLs. In the first part of this work, we describe a theoretical model based on a Maxwell-Bloch formalism that can be successfully used to model the frequency comb formation of QCLs. In particular, the effect of the device dispersion can be studied. We show that comb formation persists in the presence of weak cavity dispersion ($500 \text{ fs}^2 \text{ mm}^{-1}$) but disappears when much larger values are used ($30\,000 \text{ fs}^2 \text{ mm}^{-1}$) for devices operating in the Mid-IR spectral range. For the second part of this work, we investigate experimentally how the comb operation of QCLs is influenced by the device dispersion. We demonstrate that a dispersion compensation scheme based on a GTI directly integrated into the QCL comb improves the comb performance. In particular, we show that the current range where the comb operates increases, effectively suppressing the high-phase-noise regime typically observed in QCL combs. The CW output power of these combs can be as high as $\sim 150 \text{ mW}$, and their optical spectra are centered at 1330 cm^{-1} ($7.52 \mu\text{m}$) with up to 70 cm^{-1} of optical bandwidth.

As QCL combs are attractive for high-resolution molecular spectroscopy applications, the successful operation of spectroscopy systems based on QCL combs will depend on understanding the frequency noise of these lasers. In a third part of this work, we demonstrate, by characterizing the FNPSD of a QCL comb, that the FWM process effectively correlates the quantum frequency noise of the individual comb modes. This result proves that FWM does not introduce any contribution to the frequency noise, demonstrating that QCL combs are well suited for high-resolution spectroscopy applications.

In the final part of this work, we present a compact, semiconductor-based, electrically driven dual-comb spectrometer based on QCL frequency combs. As a proof of principle, we demonstrate broadband high-resolution absorption spectroscopy of a GaAs etalon showing broad absorption features as well as water vapor at atmospheric pressure. Furthermore, we use the dual-comb system to demonstrate a mode equidistance fractional accuracy of 7.5×10^{-16} relative to the carrier optical frequency, a value close to those measured for microresonator-based combs. In addition, we present an on-chip dual-comb source based on QCL frequency combs. Control of the combs repetition and offset frequencies is obtained by integrating micro-heaters next to each laser. A full control of the dual-comb system is demonstrated, by measuring a multi-heterodyne beating corresponding to an optical bandwidth of 32 cm^{-1} centered at 1330 cm^{-1} ($7.52 \mu\text{m}$). These

results demonstrate that this device represents a critical step towards compact Mid-IR dual-comb systems.

Résumé (French)

Un peigne de fréquence optique est une source cohérente à large étendue spectrale, dont le spectre est constitué de raies équiespacées, créant ainsi un peigne dans le domaine fréquentiel. Premièrement introduits dans le contexte des horloges atomiques, les peignes de fréquence ont connu pléthore d'applications dans différents domaines comme pour la génération de formes d'onde arbitraires, le transfert temps-fréquence, la calibration de spectrographes astronomiques et de lasers accordables, le LIDAR cohérent, les télécommunications optiques ainsi que pour la spectroscopie moléculaire. A la base de toutes les applications des peignes de fréquence réside la possibilité de la génération d'une source cohérente en phase sur une large bande, à large étendue spectral et avec une connaissance de la fréquence absolue. Ce nombre croissant d'applications impose différents besoins en termes de précision et d'exactitude, de robustesse et de simplicité, d'étendue spectral et de nombre de peignes disponibles. Un point remarquable est que les peignes de fréquence peuvent être réalisés dans une variété de systèmes, faisant cette technologie extrêmement versatile.

Les bénéfices potentiels des peignes de fréquence dans le contexte de la spectroscopie moléculaire sont nombreux, puisque cette technique permet la combinaison de haute exactitude et précision sur une large étendue spectrale. Les bénéfices d'une telle méthode spectroscopique sont améliorés d'avantage lorsque celle-ci est employée dans la région du spectre correspondant à l'infrarouge moyen, puisque les premières harmoniques des bandes d'absorptions due aux rotations et vibrations de la plupart des molécules sont concentrées dans cette région spectrale, permettant ainsi l'augmentation de la sensibilité du système. Parmi toutes les techniques spectroscopiques à base de peignes de fréquence, la spectroscopie à deux peignes de fréquence connaît un engouement puisque les dents des peignes peuvent être résolues individuellement dans des temps d'acquisitions très brefs. Finalement, compacité, robustesse et simplicité sont aussi d'importants critères afin de pouvoir déployer des systèmes spectroscopiques à base de peignes de fréquence dans l'infrarouge moyen pour des applications pratiques.

Ce travail explore le développement de peignes de fréquence optique basés sur des lasers à cascade quantique visant comme application la spectroscopie à deux peignes de fréquence. Les lasers à cascade quantique sont des sources lasers à base de semi-conducteurs capables de générer de la lumière dans les domaines de l'infrarouge moyen ainsi que dans le THz, et ont atteint aujourd'hui une grande maturité. De surcroît, les lasers à cascade quantique à large étendue spectrale sont capables de générer des peignes de fréquence en utilisant le mélange à quatre ondes comme mécanisme de verrouillage de phase. Combiné à des temps de relaxation de l'inversion de population extrêmement courts inhérent aux transitions intersousbande, les peignes de fréquence basés sur des lasers à cascade quantique montrent une signature de phase comparable à celle d'un laser modulé en fréquence. Puisque la formation du peigne de fréquence a lieu directement dans la région active du laser, les peignes de fréquence basés sur des lasers à cascade quantique offre la possibilité unique d'un système spectroscopique complètement intégré dans une puce électronique capable d'acquérir des spectres large bande à haute résolution spectrale, idéal pour des applications nécessitants de détecter différentes molécules masquées par un fond complexe.

Néanmoins, une variété de questions sont encore à l'ordre du jour concernant l'opération de lasers à cascade quantique en tant que peignes de fréquence. Dans une première partie, nous décrivons un modèle théorique basé sur un formalisme des équations de Maxwell-Bloch qui est capable de modéliser avec succès la formation d'un peigne de fréquence dans un laser à cascade quantique. En particulier, l'effet de la dispersion du laser peut être étudié. On montre la formation du peigne de fréquence subsiste en présence d'une faible dispersion de la cavité ($500 \text{ fs}^2 \text{ mm}^{-1}$) mais disparaît sous la présence de valeurs élevées de la dispersion ($30\,000 \text{ fs}^2 \text{ mm}^{-1}$) pour des lasers opérants dans le infrarouge moyen. Dans une deuxième partie, on investigate expérimentalement comment est influencée la formation du peigne de fréquence dans des lasers à cascade quantique sous influence de dispersion. On démontre que le contrôle de la dispersion basé sur un interféromètre de Gires-Tournois directement intégré sur le laser à cascade quantique améliore les performances du peigne de fréquence. En particulier, on observe une augmentation de la plage de courant dans le lequel le peigne de fréquence est observé, supprimant ainsi le régime à haut bruit de fréquence typiquement observé dans des peignes de fréquence à base de lasers à cascade quantique. La puissance optique en continue générée par ces peignes de fréquence peut être aussi élevée que $\sim 150 \text{ mW}$, et leurs spectres optique sont centrés à 1330 cm^{-1} ($7.52 \mu\text{m}$) avec une étendue spectrale de 70 cm^{-1} .

Puisque les peignes de fréquence basés sur des lasers à cascade quantique sont attrayants pour des applications en spectroscopie moléculaire à haute résolution spectrale, l'opération de systèmes spectroscopiques basés sur ces sources nécessite la compréhension du bruit de fréquence de ces lasers. Dans une troisième partie, on montre, par une caractérisation de la densité spectrale de bruit de fréquence de ce type de source, que le mélange

à quatre ondes est responsable de la corrélation du bruit de fréquence quantique des différents modes du peigne de fréquence. Ce résultat prouve que le mélange à quatre ondes n'introduit aucune contribution au bruit de fréquence, démontrant que des peignes de fréquence basés sur des lasers à cascade quantique sont fortement adaptés aux applications en spectroscopie à haute résolution spectrale.

Dans une dernière partie, on présente un système compact et contrôlé électriquement permettant la spectroscopie à deux peignes de fréquence, en utilisant des peignes de fréquence basés sur des lasers à cascade quantique. Comme démonstration de principe, on démontre la possibilité de spectroscopie d'absorption à large étendue spectrale et à haute résolution en utilisant un étalon en Arséniure de gallium contenant des signatures de transmission à large bande ainsi que la vapeur d'eau à pression atmosphérique. De surcroît, on utilise ce système pour montrer une exactitude relative de l'espacement des modes de 7.5×10^{-16} , lorsque normalisé par la porteuse optique, valeur proche de celle atteinte par des peignes de fréquence basés sur des micro-résonateurs. En outre, on présente une source à deux peignes de fréquence basée sur des lasers à cascade quantique entièrement intégrée dans une puce électronique. Le contrôle des fréquences de répétition et des fréquences de décalage porteuse-enveloppe est obtenu en intégrant un micro-radiateur proche de chaque laser. Un contrôle total du système à deux peignes de fréquences est montré en mesurant les différents battements hétérodynes, correspondant à une étendue spectrale de 32 cm^{-1} , centrés à 1330 cm^{-1} ($7.52 \mu\text{m}$). Ces résultats montrent que ce dispositif représente une étape importante dans l'obtention de systèmes compacts à deux peignes de fréquence dans l'infrarouge moyen.