

## Phase-locking the quantum cascade laser to the femtosecond laser

「フェムト秒レーザーと QCL の位相同期制御」

### 1. イントロダクション

近年、量子カスケードレーザー (QCL) の開発が進み、それに対する応用研究が盛んに行われている。QCL の特徴としては、半導体中のバンド構造の制御によって、中赤外からテラヘルツ領域の広い範囲で任意の周波数を発振可能で、小型、高出力、室温動作可能といった利点がある。そのことから、ガス分光用光源やイメージング用光源として注目されている。しかし、QCL をフリーランニングで使用する場合には、発振線幅が広すぎるといった問題があり、その線幅をいかに狭く出来るかが課題となっている。そこで従来、QCL とガスレーザーをヘテロダインミキシングすることで、ガスの吸収線に QCL を周波数ロックしていた[1]。しかしこの手法では、ある特定の周波数でしか発振できない点や、QCL の制御用だけのためにガスレーザーを使うので実用的ではないといった問題があった。

本稿では、QCL と非常に安定したフェムト秒レーザー光を位相同期することで QCL の線幅を狭窄化するという観点から論文紹介を行っていく。

### 2. Continuous-wave coherent imaging with terahertz quantum cascade lasers using electro-optic harmonic sampling

#### 2.1. イントロダクション

近年、QCL を用いたテラヘルツ周波数イメージングの研究が盛んに行われている。その背景には、QCL 自体の出力が数十 mW 程度まで上昇したことが挙げられる。しかし、十分に感度があり、高速でコンパクトなシステム実現のためには検出器に問題があるとされていた。

そこで、いくつかのグループのイメージングシステムでは、ゴーレイセルやパイロ検出器などが使用され、最近では QCL ベースのイメージングシステムにアモルファスシリコンのマイクロボロメトリックカメラが使用されている[2]。イメージング技術では、Loffler らによってモード同期 Ti:Sa レーザーの繰り返し周波数の高調波を局部発振器として、水晶で安定化された 0.6THz のガン発振器とミキシングされ実験が行われた[3]。この場合、位相/周波数安定性が非常に高かったため両方のソースはフリーランニングであった。しかし THz-QCL はサブ kHz の量子ノイズ限界線幅を持ち、それが  $1/f^2$  ノイズによって影響を与えることが示された[4]。

そこで本稿ではモード同期フェムト秒ファイバーレーザーパルスを用いて実験を行っており、これにより QCL 放射がサンプリングされる。RF 領域ではフェムト秒レーザーの高調波と THz 波によってヘテロダインビート信号が発生し、この最低次のビート信号を位相同期に利用することで 2 つのソースのジッターを除去することが出来る。

本研究ではフェムト秒レーザーコムと 2.5THz の QCL を使用して、イメージングを行った。

## 2.2. 実験装置

図 2.2.1 に実験系を示す. EO1 は, フェムト秒レーザーコムと QCL の周波数をロックした場合, EO2 は, イメージターゲットに反射後の QCL ビームを検出する場合となっている. 実験では, QCL と近赤外コムビームはそれぞれビームスプリッターで分けられ, 厚さ 2mm,  $\langle 1, \bar{1}, 0 \rangle$  の ZnTe 結晶に集光される. さらに,  $\lambda/4$  板,  $\lambda/2$  板, 偏光ビームスプリッターを通過する. その過程において QCL はシングルモードで, 780nm (385THz) の中心から  $\pm 2.5$ THz において 2 つのサイドバンドを生成する. コムのバンド幅は QCL 周波数の約 2 倍で,  $|(v_{\text{QCL}} - n \times f_{\text{rep}})|$  となる (図 2.2.2). ここで,  $v_{\text{QCL}}$  は QCL の放射周波数,  $f_{\text{rep}}$  はフェムト秒レーザーの繰り返し周波数 (250MHz),  $n$  は整数である. ビート信号は, Si フォトダイオードを用いたバランス検出器で検出され, バンド幅 200MHz でアンプされる.

QCL 周波数をロックするため, EO1 によって生成したビート信号は RF シンセサイザー (RF1) により生成した 10MHz の信号とミキシングされる. エラー信号 ( $f_{\text{beat}} - f_{\text{RF1}}$ ) は, PLL 回路で QCL 電流を制御し, フェムト秒レーザーの繰り返し周波数の  $\sim 10^4$  高調波と  $v_{\text{QCL}}$  は位相同期される.

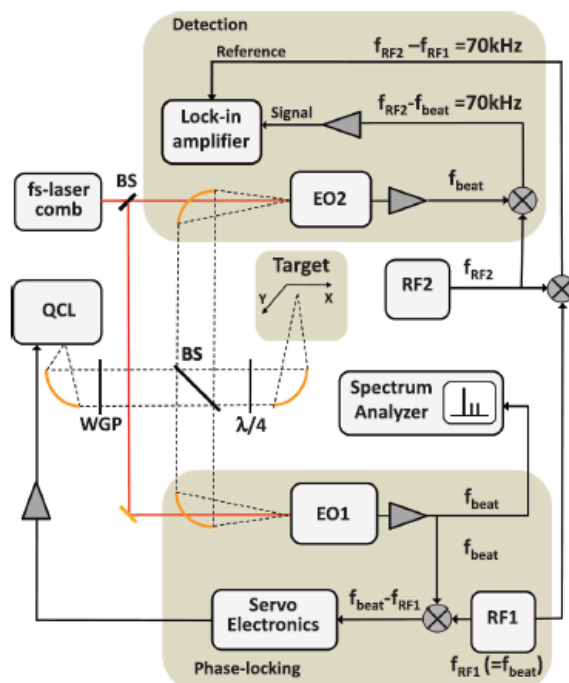


図 2.2.1 実験装置

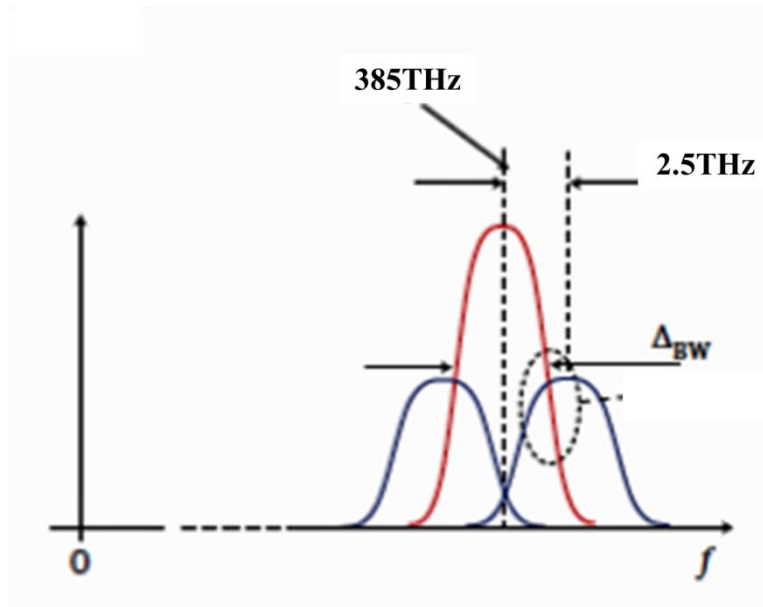


図 2.2.2 サイドバンド

### 2.3. 実験結果

図 2.3.1 に  $\text{RBW}=10\text{Hz}$  のスペアナで EO1 において THz パワー  $250\mu\text{W}$  の時の位相同期ビート信号のスペクトルを示す. QCL ビームの半分は軸外し放物面鏡によって, イメージターゲットに集光されている. THz 放射の半分はターゲットから反射し, EO2 に集光される.

図 2.3.2(a)-(c)は,それぞれ 10 セントユーロコインのグレーカラースケールでの振幅, パワー, 位相イメージを示す. これは, 自動 XY ステージを用いてミラーの焦点面中の対象物を高速スキャンして得られた. またイメージは, ロックイン時間  $30\text{ms}$ , ダイナミックレンジ  $60\text{dB}$  として,  $2.2\text{mm/s}$  のスピードで X 方向にスキャンして得られ, 図 2.3.2(b)に示される. コインの左側の縦線の幅は, 粗面計によって計測され,  $160\mu\text{m}$  であった. 図 2.3.2(c)は位相イメージでロックインアンプから記録された. 振幅, パワープロットを比較して浮彫のエッジがはっきりと表れている. ここで時間スケール上での位相安定性は  $\pm 1^\circ$  であることがわかった. そしてこの位相安定性は, 実験装置の機械的安定性による制限である. 大きな特徴である高さは  $\lambda/2=60\mu\text{m}$  より大きいことを表面形状測定装置で確かめた. さらに, ロックインアンプの表れる位相は  $\pm\pi$  で制限される.

図 2.3.2(d)は, 部分的に位相イメージを処理したものを示す. ここでは, 図 2.3.2(c)のピクセルに  $2\pi$  を足したり引いたりすることによって処理が行われている.

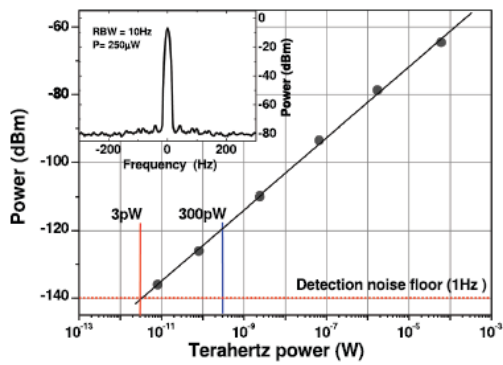


図 2.3.1 実験結果

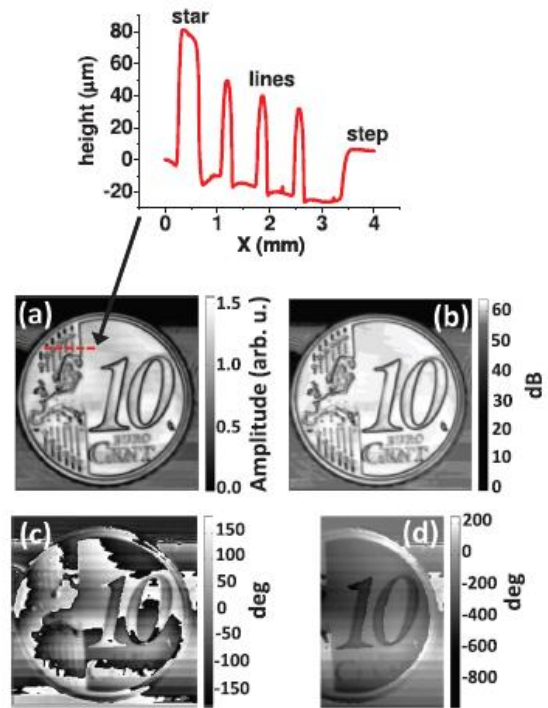


図 2.3.2 ユーロコインのイメージ

## 2.4. まとめ

本研究では、フェムト秒レーザーコムと 2.5THz-QCL の位相同期を行い、その状態でイメージングを行った。従来ではサブ kHz であった QCL の線幅を数 Hz に狭窄化できており、今回のイメージングでは 3pW/Hz のノイズ検出限界と、3°/h より小さい位相安定性を得た。セットアップはそれほど難しくはなさそうなので、早く THz-QCL を使いこなせるようになってフェムト秒レーザーと位相同期を行いたいと考える。

### 3. Comb-assisted subkilohertz linewidth quantum cascade laser for high-precision mid-infrared spectroscopy

#### 3.1. イントロダクション

差周波発生器 (DFG) や光パラメトリック発振器 (OPO) は優れたスペクトル特性を持ち、高感度化・高精度化に適した中赤外光を生成できる。そして、これらの基礎となっている光周波数コムシンセサイザー (OFCS) による QCL の直接位相同期は、周波数安定性を向上させることが出来ると報告され、近年、中赤外の QCL が  $2\mu\text{m}$  の OFCS に位相同期された。この場合、QCL の線幅は OFCS コムの位相ノイズに制限されるが、本稿では、最終的に OFCS のコム線幅より QCL を狭帯化することを目的として実験を行った[5][6]。そして 1ms で 1kHz 未満の線幅が、周波数ノイズパワースペクトル密度の分析から測定された。

#### 3.2. 実験装置

図 3.2.1 に実験系を示す。実験に用いられた DFG ソースの詳細は図 3.2.2 に示される。光周波数コムシンセサイザー (OFCS) によってリファレンスされた Nd:YAG レーザー (1064nm) と ECLD (854nm) は、 $\text{LiNbO}_3$  によってミキシングされ発生する。QCL 放射の一部は BS1 によって分けられ、透過光が位相同期に使われる。BS3 によって反射された DFG ソースは QCL 放射と重ね合わされ、バンド幅 200MHz の HgCdTe 検出器に送られる。100MHz のビート信号は QCL と DFG ソースの両方の数  $\mu\text{W}$  を使って検出される。ビートは手作りの位相検出器によって処理され、100MHz 局部発振器と比較される。そして、エラー信号を位相同期回路に与える。手作り PID 装置はエラー信号を処理し、QCL に流す電流を高速に制御する FET のゲートに送られる。

BS1 によって反射された QCL 放射は、BS4 によって分けられ反射光は高フィネスキャビティに入射される。ここでビームはキャビティ内を往復し、透過光は FFT スペクトラムアナライザーで周波数ノイズパワースペクトル密度が測定される。

BS4 を透過した QCL 放射は二つに分けられ一つはチョッパーを通過してガスセルへ、もう一方はそのままガスセルへ入射されロックイン検出される。それによりラムディップを検出する。この方法はラムディップ分光法 (飽和吸収分光法) と呼ばれ、図 3.2.3 にラムディップを示す。セルに入射したレーザー光の周波数をセル内の原子の共鳴周波数に近づけると、光を吸収する原子が増えるため透過強度は少なくなる。しかし共鳴周波数と同じ光になると、1箇所では光を吸収しなくなり急激に透過強度が強くなる。このためドップラー広がり頂点にくぼみ (ラムディップ) ができ、これは自然広がりだけで決まる。よって自然幅のみの高分解能なスペクトルを得ることが出来る。

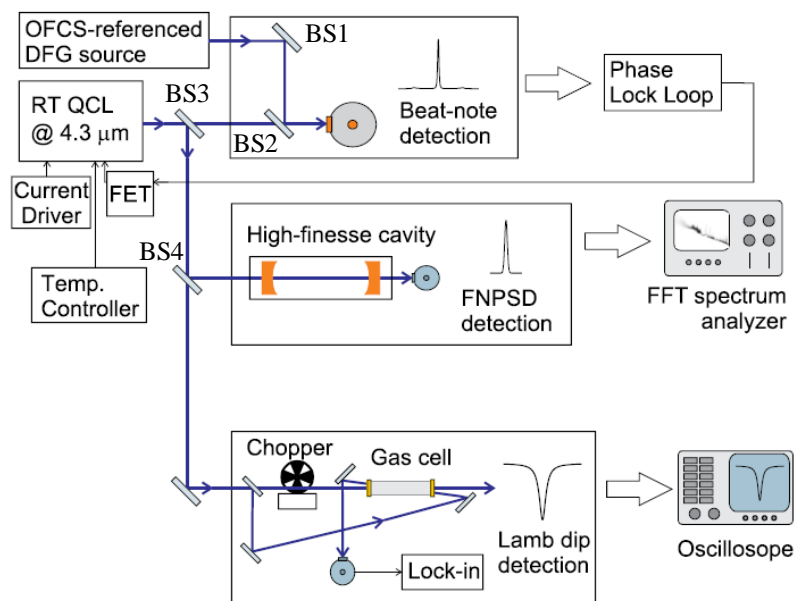


図 3.2.1 実験装置

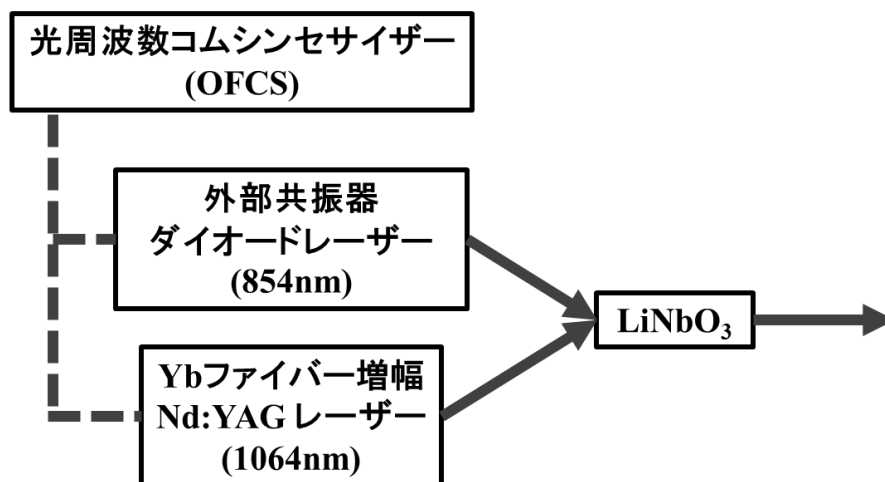


図 3.2.2 DFG ソースの詳細

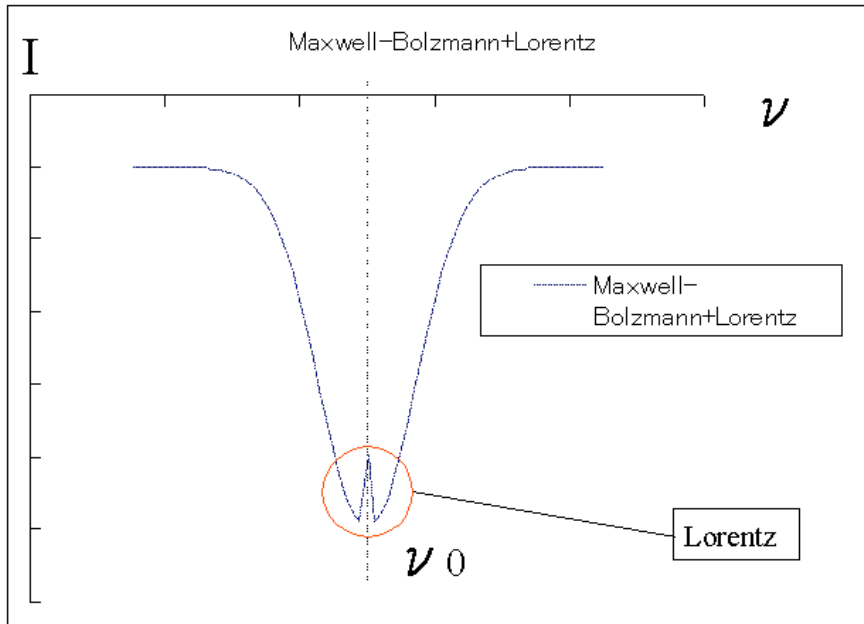


図 3.2.3 ラムディップ

### 3.3. 実験結果

図 3.3.1 に FFT スペアナで取得したビート信号を示す. 完全に異なる検出器や装置を使用したにもかかわらず, 250kHz の同期バンド幅となり, 位相同期効率 $\eta=73\%$ であった. そして,  $\eta = e^{-\theta_{rms}^2}$ から, 0.56rad の残差 rms 位相ノイズを得た.

図 3.3.2 において, 高フィネスキャビティを用いて得た位相同期 QCL の周波数ノイズパワースペクトル密度 (FNPSD) は, トレース b に示される. 同様のキャビティは DFG-FNPSD (トレース c), 分子線に周波数同期した時の QCL-FNPSD (トレース d) の測定のためにも使用された. ここで FNPSD は, どの程度の周波数安定化がなされたかを確認するためのものであり, 値が小さいほど安定化出来ているということを示している.

フリーランニング (a) と位相同期条件 (b) での FNPSD のグラフより, 周波数 250kHz 付近で同じ値となっていることから, 同期バンド幅は 250kHz であることが分かる.

また図 3.3.3 にガス分光の結果を示す. 今回のセットアップにより高精度化が達成できたおかげで, とても狭い範囲 (2~27Pa) で  $\text{CO}_2$  ガスの圧力を変化させても中心周波数を捕捉することが出来た.  $P=0$  での挿入値,  $\nu_0=69297478.7978\pm 0.0014\text{MHz}$  は, システム上の圧力シフトにより修正された  $\text{CO}_2$  遷移の絶対周波数である.

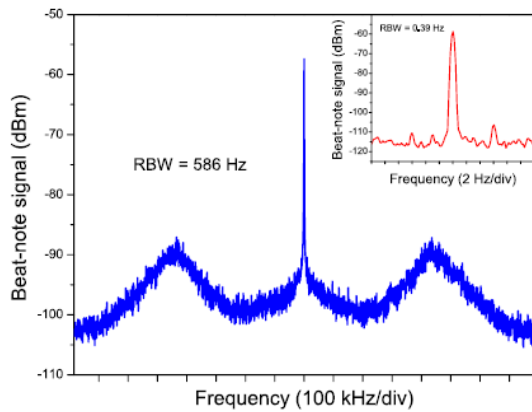


図 3.3.1 位相同期スペクトル

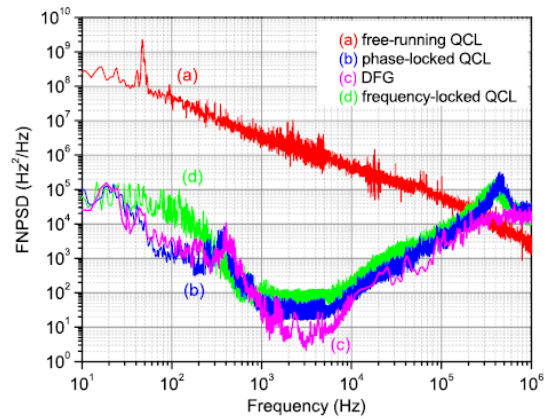


図 3.3.2 実験結果 (FNPSD)

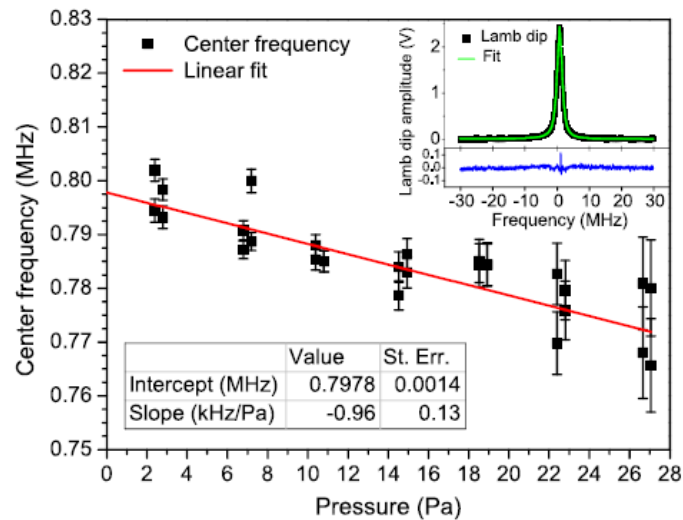


図 3.3.3 実験結果 (ガス分光)

### 3.4. まとめ

本研究では、中赤外の QCL を OFCS でリファレンスされた DFG 源と位相同期した。それにより、サブ kHz 線幅の QCL 放射を達成した。この時の QCL の周波数安定性は  $6 \times 10^{-13}$  である。そしてその装置を用いて、 $\text{CO}_2$  遷移の絶対周波数測定も行われた。最終的な目標である、OFCS のコム線幅より QCL の線幅を狭窄化することは達成できていないが、1kHz 以下の線幅と高い周波数安定性が実現できているため、実用的なガス分光などでの利用が期待できると考える。



## 4. Coherent sampling of active mode-locked terahertz quantum cascade lasers and frequency synthesis

### 4.1. イントロダクション

THz-QCL の発達により研究が盛んに行われているが、テラヘルツ領域における検出技術の不足が問題となっていた。しかし最近、6.3 $\mu\text{m}$  で動作する QCL のモード同期が 2 光子の量子井戸検出器を用いた自己相間系によって行われた[7]。この場合、特定のアクティブ領域は、非放射の上側の寿命状態を数十ピコセカンドまで増加させるように設計しなければならない。また中赤外の QCL と比べて、THz-QCL は光フォノンエネルギーより下のレーザー遷移エネルギーによって 5~10ps の非放射緩和時間を持つ[8]。

そこで本稿では、THz-QCL のアクティブモード同期を行っている。この方法にはモード同期フェムト秒レーザーを用いており、非同期光サンプリング法として知られている。ここ 10 年間でフェムト秒レーザーは、近赤外や中赤外領域において光パルス合成や、マルチヘテロダイン分光法を行うために使われている。

本実験では、市販のモード同期エルビウム添加型フェムト秒レーザーを用いて THz-QCL のモード同期を行った。

### 4.2. 実験原理

QCL のモード同期は、バイアス電流の直接変調により実現される。そして非同期サンプリングは、フェムト秒レーザーと位相同期された THz-QCL により行われた。図 4.2a に時間領域での繰り返し周波数 $\sim 13.3\text{GHz}$  の THz-QCL パルスを示す。また図 4.2d には、周波数領域で見た時のフェムト秒レーザーコムを示す。繰り返し周波数  $f_{rep}^{QCL} = 13.3\text{GHz}$  間隔でコムが並んでおり、時間領域においてはその逆数間隔になっている。

また、図 4.2b には繰り返し周波数 96.5MHz のフェムト秒レーザーコムの時間領域を示す。そして、図 4.2e には周波数領域に変換したものを示している。こちらも繰り返し周波数  $f_{rep}^s = 96.5\text{MHz}$  間隔になっており、これと THz-QCL パルスを同時にバランス検出することによって、THz-QCL パルスが RF 領域にダウンコンバートされた状態で自動的にサンプリングされ、図 4.2c, f のように測定される。ここで、2つのサンプル点間の有効時間ステップ  $\Delta t_s$  は  $\Delta t_s = \Delta f / (f_{rep}^s * f_{rep}^{QCL})$  によって与えられる。

また本研究で用いられている RF インジェクションロックについて説明する。これは非常に安定した周波数を持つ発振器などで電氣的に変調してやることにより、THz-QCL などの放射をロックする手法であり、本実験においては非常に安定したシンセサイザーを用いて THz-QCL を電気変調することでインジェクションロックを行っている[9]。

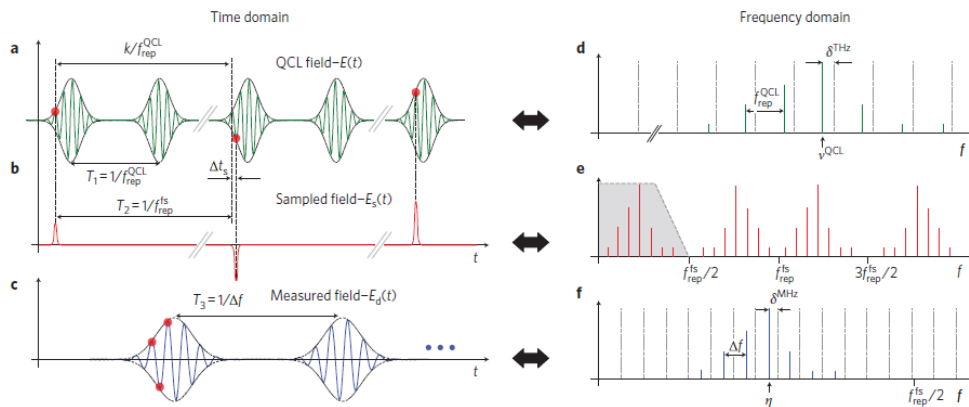


図 4.2 測定原理

### 4.3. 実験装置

QCL とフェムト秒レーザーの位相同期のための実験装置を、図 4.3.1 に示す。3 台のシンセサイザーを用いているが、RF-1 の 10MHz リファレンスをそれぞれ共有している。まず RF-1 は Bias-T の補助として用いられ、周波数  $f_{RF1}$  で一定となるように QCL のバイアス電流を変調する。また RF-2 は、フェムト秒レーザーの位相同期に使われ、フェムト秒レーザーの共振器長を制御するための piezo 素子変換器やステッピングモーター内にフィードバックすることで達成された。

そのフェムト秒ファイバーレーザー光と THz-QCL 放射は、同時に ZnTe 結晶上に集光される。そして、 $\lambda/4$  板、 $\lambda/2$  板を通過して、偏光ビームスプリッターで 2 つに分けられる。サンプリングビームはその後、バンド幅  $\sim 300\text{MHz}$  の高速バランス検出器、バンド幅  $50\text{MHz}$  のローパスフィルターによってフィルタリングして検出される。その後、RF ミキサーにより RF3 とミキシングされ、エラー信号はサーボ制御電子機器を用いてビート周波数が一定となるように制御される。その時のビート周波数は、オシロスコープやスペクトラムアナライザーで計測できるようになっている。

図 4.3.2 は本研究で使用した THz-QCL の電気-光学特性を示す。放射スペクトルは、 $7.5\text{GHz}$  のスペクトル分解能を持つ FTIR スペクトルメーターで取得する。装置は長さ  $3\text{mm}$ 、幅  $240\mu\text{m}$  の溝で、シングルプラズモン導波管を組み込んでいる。THz-QCL は、液体ヘリウムクライオスタットのコールドヘッド上に乗っており、 $20\text{K}$  の温度で安定化されている。低い電流 ( $1.24\text{A}$ 、図 4.3.2b) において、放射はシングルモードで、中心波長は  $2.5\text{THz}$  である。より高い電流 ( $1.35\text{A}$ 、図 4.3.2c) においては、3 つの縦モードを確認し、 $\sim 26.6\text{GHz}$  より分けられている。最大放射パワーは  $\sim 17\text{mW}$  (図 4.3.2a) で、パイロ検出器で測定された。

図 4.3.2d は、図 4.3.2c と同じ電流で QCL を動かした時、得られた放射スペクトルを示す。そして、 $f_{RF1} = 13.32\text{GHz}$ 、RF パワー  $+10\text{dBm}$  で変調の結果、 $f_{RF1}$  により分けられた  $\sim 10\text{FP}$  モードの出現が観察された。

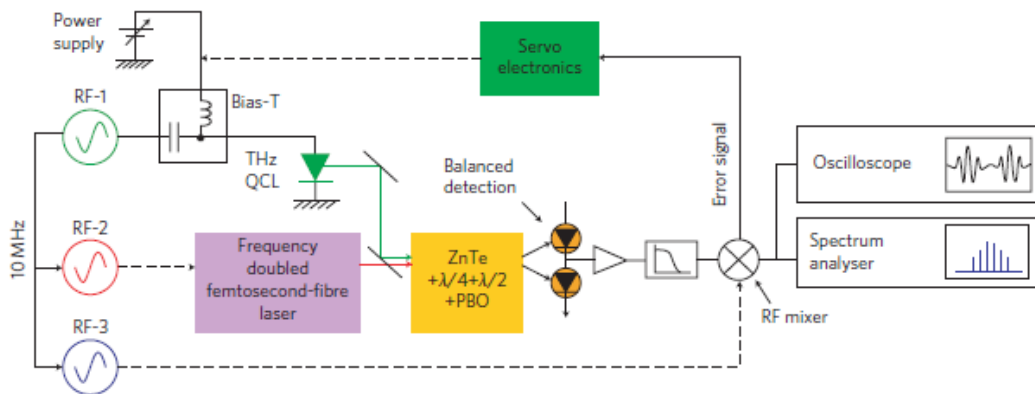


図 4.3.1 実験装置

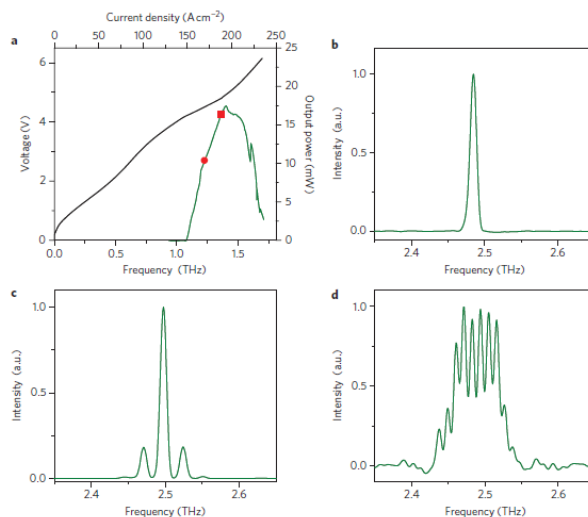


図 4.3.2 THz-QCL 特性

#### 4. 4. 実験結果

図 4.4a は 100kHz-RBW, スイープ時間 5.5ms のスペアナで記録された  $E_d(t)$  のスペクトルの例を示す. ここで, QCL は 20K の温度で維持され, 1.35A の電流において CW 波として発振される. 装置電流はその時, +10dBm の RF パワー, 変調周波数  $f_{RF1}=13.321794\text{GHz}$  で変調され, RF-2 の周波数は  $f_{RF2}=f_{rep}^s=96.513\text{MHz}$  にセットされた. 9 本の狭い線は, スペクトルではっきりと観察でき,  $\Delta f = f_{RF1} - 138 \times f_{rep}^s = 3\text{MHz}$  によって分けられる. そして, 周波数  $\eta + m \times \Delta f$  での QCL スペクトルのダウンコンバート縦 THz モードに相当する. スイープ時間  $\sim 5\text{ms}$  での瞬間線幅は 100kHz のオーダーである. 図 4.4b は図 4.4a と同じスペクトルを示す. このスペクトルは,  $\sim 1\text{s}$  にスイッチオンされたスペアナの最大ホールド機能で獲得しているが,

線は実際の結果としてかなり広く、 $\nu_{QCL}$  は  $f_{rep}^{fs}$  と位相同期していないことが分かる。

図4.4cは  $f_{rep}^{QCL}$ ,  $\nu_{QCL}$  と  $f_{rep}^{fs}$  の位相同期を同時にすることで得たダウンコンバートQCLスペクトルを示す。図4.4bと同じ条件下で測定した。この場合  $f_{RF3}$  は、21.3MHz にセットされ、スペクトルの左 (L0) から6番目の線に位相同期している。位相同期ループのバンド幅で示す赤矢印の線の両サイド上の広いウイングの場所は~1.5MHzである。にもかかわらず、スペアナの最大ホールド機能は数秒間 ON にして、すべての線幅は100kHzであった。

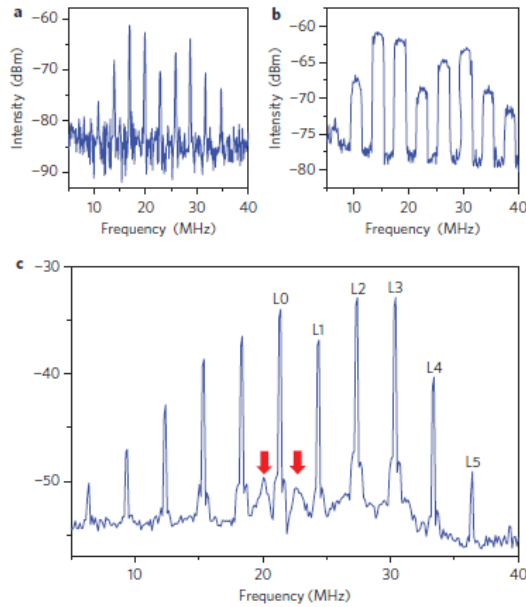


図 4.4 実験結果

#### 4.5. まとめ

本実験では、RF シンセサイザーを用いたバイアス電流の変調によってアクティブモード同期を示すことが出来た。さらに、RF-1 と位相同期された QCL の繰り返し周波数と、モード同期フェムト秒ファイバーレーザーの繰り返し周波数の高調波によって放射パルス列の検出も可能となった。そして、THz-QCL の線幅の狭窄化にも成功した。

この研究では、パルス発振の THz-QCL を用いていたのと、新しく RF インジェクションロックという技術が用いられていたため複雑に感じたが、ある程度理解することが出来た。

## 5. 結言

今回の雑誌会では、フェムト秒レーザーの繰り返し周波数と QCL の位相同期を行っている論文を紹介した。1つ目の論文では、QCL の位相同期により、従来ではサブ kHz の線幅だったものを数 Hz まで狭帯化することに成功した。2つ目の論文では、中赤外の QCL を用いた位相同期を行っており、高い周波数安定性とこれを用いてガスの吸収線の測定を行った。さらに 3つ目の論文では、パルス発振の THz-QCL とフェムト秒ファイバーレーザーの位相同期を行っており、高い周波数安定性が得られた。

全体を通して QCL の安定化を行うことで、スペクトル幅の狭帯化が達成できている。さらに、RF インジェクションロックという概念も紹介した。QCL の制御方法などの基礎知識を知ることが出来たので、早く THz-QCL を使いこなしてファイバーレーザーとのビート信号の検出を行いたいと考える。また自分でも THz-QCL の位相同期の実験を行いたいと考える。

## 参考文献

- [1]A. A. Danylov, T. M. Goyette, J. Waldman, M. J. Coulombe, A. J. Gatesman, R. H. Giles, X. Qian, N. Chandrayan, S. Vangala, K. Termko, W. D. Goodhue, and W. E. Nixon, *Opt. Express* **18**, 16264-16272 (2010).
- [2]F. Simoens, J. Meilhan, B. Delplanque, S. Gidon, G. Lasfargues, J. L. Dera, D. T. Nguyen, J. L. Ouvrier-Buffet, S. Pocas, T. Maillou, O. Cathabard, and S. Barbieri, *Proc. SPIE* **8363**, 83630D (2012).
- [3]T. Löffler, T. May, C. am Weg, A. Alcin, B. Hils, and H. G. Roskos, *Appl. Phys. Lett.* **90**, 091111 (2007).
- [4]S. Barbieri, J. Alton, H. E. Beere, E. H. Linfield, S. Withington, D. A. Ritchie, A. Lassaad, G. Scalari, and J. Faist, *Opt. Lett.* **29**, 1632 (2004).
- [5]S. Barbieri, P. Gellie, G. Santarelli, L. Ding, W. Maineult, C. Sirtori, R. Colombelli, H. Beere, and D. Ritchie, *Nat. Photonics* **4**, 636 (2010).
- [6]A. Mills, D. Gatti, J. Jiang, C. Mohr, W. Mefford, L. Gianfrani, M. Fermann, I. Hartl, and M. Marangoni, *Opt. Lett.* **37**, 4083 (2012).
- [7]Christine Y. Wang, Lyuba Kuznetsova, V. M. Gkortsas, L. Diehl, F. X. Kärtner, M. A. Belkin, A. Belyanin, X. Li, D. Ham, H. Schneider, P. Grant, C. Y. Song, S. Haffouz, Z. R. Wasilewski, H. C. Liu and Federico Capasso, *Opt. Express* **17**, 12929-12943 (2009).
- [8]Maria I Amanti, Giacomo Scalari, Romain Terazzi, Milan Fischer, Mattias Beck, Jérôme Faist, Alok Rudra, Pascal Gallo and Eli Kapon, *New J. Phys.* **11**, 1-19 (2009).
- [9] Pierre Gellie, Stefano Barbieri, Jean-François Lampin, Pascal Filloux, Christophe Manquest, Carlo Sirtori, Isabelle Sagnes, Suraj P. Khanna, Edmund H. Linfield, A. Giles Davies, Harvey Beere, David Ritchie, *Opt. Express* **18**, 20799-20816 (2010).