

Diss. ETH No. 21138

# Single-mode and Comb Operation of Broadband Quantum Cascade Lasers

A dissertation submitted to  
ETH ZÜRICH

for the degree of  
Doctor of Sciences

presented by  
Andreas Hugi

Master of Science in Micro- and Nanotechnology  
University of Neuchâtel  
born on March 20, 1981  
citizen of Grenchen, SO - Switzerland

accepted on the recommendation of

Prof. Dr. Jérôme Faist, examiner  
Prof. Dr. Frank K. Tittel, co-examiner  
Prof. Dr. Tobias Kippenberg, co-examiner

May 2013

# Abstract

The quantum cascade laser is a unipolar semiconductor laser based on intersubband transitions in quantum wells. The realization of broadly tunable single-mode quantum cascade lasers and optical frequency-comb quantum cascade lasers in the mid-infrared is particularly interesting due to the fundamental roto-vibrational absorption bands present within this wavelength range. Nowadays, the quantum cascade laser operates in continuous-wave operation at room-temperature and features multi-watt optical output powers. The small footprint, the freedom in design and the tailorable emission wavelength make these lasers the ideal light sources for compact, field-deployable, robust and cost-efficient mid-infrared spectroscopic systems.

The presented work deals with the design and realization of broadband quantum cascade lasers in the mid-infrared spectral region. Broadband homogeneous and inhomogeneous gain can be engineered, nonlinearities can be tailored and the group-velocity dispersion can be controlled. In the course of this work, such broadband quantum cascade lasers are employed in different application scenarios. One being the use of these active regions as a gain element for broadband tuning an external-cavity configuration. New active region designs help to push tuning-ranges to new boundaries. We reach tuning-ranges around the center wavelength of 18 % in continuous-wave operation and 40 % in pulsed mode. The measured output power is 140 mW in continuous-wave, respectively 1 W peak power in pulsed mode. In collaboration with the Swiss Federal Laboratories for Material Science and Technology (EMPA) and BLOCK-engineering, we perform broadband spectroscopy covering  $280\text{ cm}^{-1}$  on three different substances using an external-cavity quantum cascade laser.

These broadband laser sources can also be used to replace conventional glowbars in Fourier-transform interferometers. These high-brightness sources offer potentially better signal-to-noise ratios. Furthermore, due to the available high-power, they allow the measurement of highly-absorbing samples, such as liquids. Performed under comparable conditions, we benchmark a glowbar against a broadband quantum cascade

laser. The quantum cascade laser yields an increase in signal-to-noise ratio of roughly 15 dB.

In the last part of the presented work, optical frequency-comb operation of a broadband quantum cascade laser is demonstrated. Today's mid-infrared combs are mainly based on down-converted, mode-locked near-infrared lasers in nonlinear crystals. A novel and noteworthy comb generation scheme is based on the optical pumping of an ultra high-quality factor microresonator with a continuous-wave laser source. Such combs also start to penetrate the mid-infrared region. However, all these generation schemes depend on a chain of optical elements. A more direct, all electrical injection comb generation scheme based on a semiconductor laser is preferable. We demonstrate an optical frequency-comb at  $7\ \mu\text{m}$  featuring a bandwidth of 308 nm, which corresponds to a wavelength coverage of  $\frac{\Delta\lambda}{\lambda} = 4.4\%$ . We measure intermode beat stabilities of  $\Delta\nu < 10\ \text{Hz}$ . Four-wave mixing mode-proliferation combined with gain provided by the broadband quantum cascade laser leads to a fixed phase relation similar to that of a frequency-modulated laser. A novel characterization technique for frequency-combs is presented and analyzed in this work, the so called intermode beat spectroscopy. This technique can be used to characterize combs featuring a frequency-modulated like output. We use the intermode beat spectroscopy to analyze the quantum-cascade-laser frequency-comb. These results are achieved in collaboration with Alpes Lasers and H.C. Liu from the Shanghai Jiao Tong University in Shanghai.

# Zusammenfassung

Der Quantenkaskadenlaser ist ein unipolarer Halbleiterlaser, welcher auf optischen Übergängen in Quantentöpfen basiert. Die Herstellung von einerseits breit abstimmbaren einmodigen Lasersystemen, sowie andererseits optischen Frequenzkämmen im mittleren Infrarot Bereich, basierend auf Quantenkaskadenlasern, ist äusserst interessant, da sich die fundamentalen Absorptionsbänder der meisten leichten Moleküle in diesem Wellenlängenbereich befinden. Heutzutage kann der Quantenkaskadenlaser bei Raumtemperatur in Dauerstrich (CW) betrieben werden und verfügt über mehrere Watt optische Ausgangsleistung. Die geringe Grösse, die Freiheit im Design, sowie die Anpassung der Wellenlänge, macht diesen Laser zur idealen Lichtquelle für kompakte, im Feld einsetzbare und robuste Spektroskopie-Systeme.

Die hier präsentierte Arbeit handelt vom Design und der Herstellung von breitbandigen, im mittleren Infrarotbereich emittierenden Quantenkaskadenlasern. Breitbandige homogene und inhomogene Verstärkung kann entworfen, nichtlineare Prozesse können kontrolliert und die Gruppengeschwindigkeitsdispersion kann beeinflusst werden. Im Zuge dieser Arbeit werden solche Quantenkaskadenlaser in verschiedenen Szenarien eingesetzt. Zum einen werden sie als Verstärkungselement in einer externen Kavität eingesetzt. Das ermöglicht ihre breit abstimmbare, einmodige Emission. Neue Designs der aktiven Region helfen die Grenzen der Abstimmbarkeit zu erweitern. Wir realisieren eine Abstimmbarkeit von 18 % im CW- und 40 % im gepulsten Betrieb. Die Ausgangsleistung beträgt 140 mW im CW- und 1 W maximale Leistung im gepulsten Betrieb. Des Weiteren präsentieren wir breitbandige Spektroskopie-Messungen über  $280 \text{ cm}^{-1}$ . Diese Messungen wurden in Kollaboration mit der eidgenössischen Materialprüfungs- und Forschungsanstalt (EMPA) und BLOCK-engineering durchgeführt.

Diese breitbandigen Quantenkaskadenlaser können auch als Ersatz zur gewöhnlichen Glühbirne in Fourier-transform Interferometern eingesetzt werden. Die starke Lichtdichte offeriert potenziell ein besseres Signal-zu-Rausch Verhältnis. Zusätzlich kann die Laserlichtquelle auch stark absorbierende Medien durchdringen. Ein Beispiel

hierfür sind wässrige Lösungen. Messungen, welche unter vergleichbaren Konditionen durchgeführt wurden, zeigen eine Verbesserung des Signal-zu-Rausch Verhältnisses um 15 dB.

Der letzte Teil der Arbeit präsentiert die Resultate von optischen Frequenzkamm Quantenkaskadenlaser. Heutzutage basieren optische Frequenzkämme meist auf herunterkonvertiertem, modengekoppeltem Laserlicht im nahen Infrarotbereich. Dies wird durch nichtlineare Interaktionen in Kristallen erreicht. Eine neue und beachtenswerte Art der Frequenzkammerzeugung basiert auf CW-Laserlicht gepumpten Mikroresonatoren mit sehr hohem Q-Faktor. Diese Frequenzkämme erreichen heutzutage auch den mittleren Infrarot-Bereich. All diese Frequenzkämme basieren jedoch auf der Aneinanderreihung von mehreren optischen Elementen. Ein direkter, nur elektrisch gepumpter Frequenzkammgenerator, basierend auf einem Halbleiterlaser ist wünschenswert. Wir präsentieren einen optischen Quantenkaskadenlaser-Frequenzkamm bei  $7\ \mu\text{m}$  Wellenlänge mit einer Bandbreite von 308 nm. Dies entspricht einer Wellenlängenabdeckung von 4.4%. Wir messen eine Zwischenmoden-Stabilität von  $< 10\ \text{Hz}$ . Modengenerierung basierend auf vier-Wellen Mischung, zusammen mit der vom breitbandigen Quantenkaskadenlaser gelieferten Verstärkung, sind dafür verantwortlich, dass der Laser eine Phasenverhältnis vorweist, welche einem Frequenzmodulierten Signal ähnlich ist. Ein neuartiges Analyseverfahren für Frequenzkämme, die Zwischenmodenschwebung-Spektroskopie, wird präsentiert. Dieses Verfahren kann auch auf Laser angewendet werden, welche eine Phasenverhältnis ähnlich einem Frequenzmodulierten Signal aufweisen. Wir benutzen die Zwischenmodenschwebung-Spektroskopie um unseren Quantenkaskadenlaser-Frequenzkamm zu charakterisieren. Diese Resultate wurden in Kollaboration mit Alpes Lasers und H.C. Liu von der Shanghai Jiao Tong Unversität in Shanghai realisiert.