

УДК 621.373.826

## ПРЕЦИЗИОННЫЕ СПЕКТРОМЕТРЫ НА ОСНОВЕ КВАНТОВО-КАСКАДНЫХ ЛАЗЕРОВ. ПРОБЛЕМЫ И ВОЗМОЖНЫЕ ПУТИ ИХ РЕШЕНИЯ

© 2011 г. *В.Л. Вакс, Е.Г. Домрачева, С.И. Приползин, Е.А. Собакинская, М.Б. Черняева*

Институт физики микроструктур РАН, Нижний Новгород

vax@ipm.sci-nnov.ru

Поступила в редакцию 03.10.2011

Рассматриваются возможности создания прецизионных ТГц спектрометров на основе квантово-каскадных лазеров. Выявлены проблемы, возникающие при использовании квантово-каскадных лазеров в качестве источников излучения ТГц частотного диапазона, и предложены возможные варианты их решения. В качестве приемника излучения для прецизионного ТГц спектрометра предлагается использовать смесители и детекторы на горячих электронах.

*Ключевые слова:* квантово-каскадный лазер, ТГц частотный диапазон, НЕВ-смеситель, метод нестационарной ТГц газовой спектроскопии, метод управления частотой квантово-каскадного лазера, направленность излучения, одномодовый режим генерации, ширина линии генерации, рабочая температура.

### Введение

Малые концентрации детектируемых газов, а также сложный состав многокомпонентных газовых смесей (например, атмосферный воздух, выдыхаемый воздух, «запахи» биологических тканей и т.д.) налагают жесткие требования на характеристики аппаратуры прямого обнаружения микропримесей на основе ТГц-методов: чувствительность на уровне единиц ррб, высокая разрешающая способность (десятки кГц). Кроме того, прибор, предназначенный для работы в реальных условиях, должен обладать высоким быстродействием и быть прост в эксплуатации.

На сегодняшний день всем вышперечисленным требованиям удовлетворяет лишь метод нестационарной ТГц газовой спектроскопии, обеспечивающий наилучшее приближение к теоретическому пределу чувствительности, а также частотное разрешение, ограниченное лишь эффектом Доплера [1]. Практически реализуемая чувствительность таких спектрометров составляет в сканирующем режиме порядка 0.2 ррб. Кроме высокой чувствительности и спектрального разрешения такие приборы имеют время измерения порядка 1–2 с, что позволяет проводить анализ в режиме реального времени. Прогресс этого метода в ТГц частотный диапазон позволяет повысить чувствительность анализа и, следовательно, достоверность метода обнаружения микропримесей, т.к. именно в этом диапазоне находятся наиболее интенсивные линии поглощения многих газов.

Для продвижения методов прецизионной спектроскопии в ТГц-диапазон необходимы, прежде всего, источники излучения с определенными характеристиками: доплеровское разрешение ( $\sim 10^{-6}$ ), измерение частоты с точностью  $\sim 10^{-8}$ – $10^{-10}$  и плавная перестройка частоты в широком спектральном диапазоне. Кроме того, нужны высокочувствительные детекторы ТГц-излучения с хорошим быстродействием.

Как уже упоминалось выше, на наш взгляд, одним из наиболее перспективных источников ТГц-излучения для создания прецизионных детекторов микропримесей (например, взрывчатых веществ (ВВ), молекул – биомаркеров различных заболеваний и т.д.) являются источники на основе квантово-каскадных лазеров (ККЛ). Что касается приемников ТГц-излучения, то наиболее перспективными для применения в реальных системах ТГц-анализа многокомпонентных газовых смесей, по-видимому, являются смесители и детекторы на горячих электронах (НЕВ).

Однако создание прецизионных ТГц-спектрометров на основе ККЛ и НЕВ сопряжено с рядом трудностей, связанных как с изготовлением ТГц ККЛ с необходимыми параметрами излучения, так и с управлением и оптимизацией пучка полученного ТГц-излучения.

### Основная часть

Хорошо известно [2], что ККЛ представляют собой униполярные полупроводниковые лазеры, основанные на межподзонных переходах

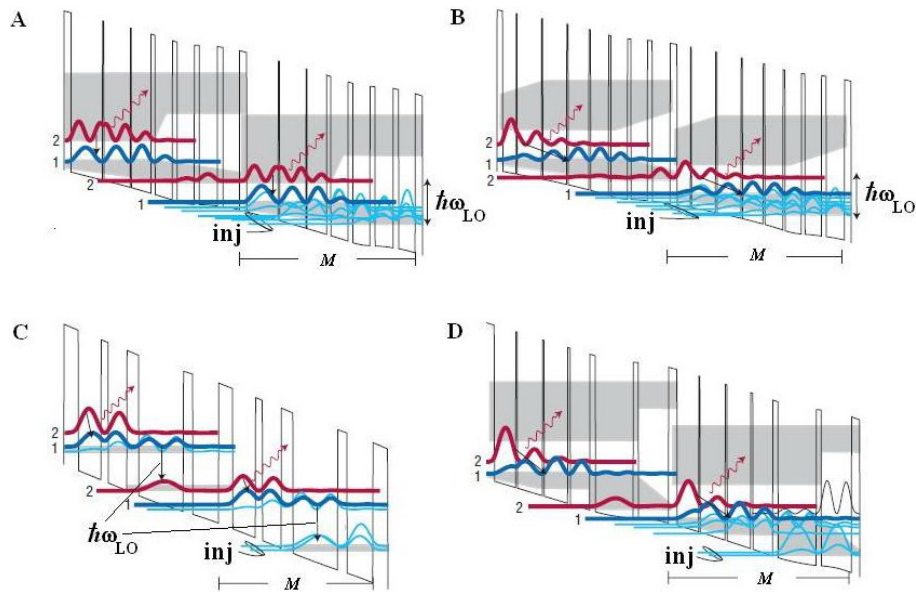


Рис.1. Схемы квантовых переходов в основных типах ТГц ККЛ: А) чирпированная СР  $M \approx 105$  нм; В) переходы из связанного состояния в континуум  $M \approx 110$  нм; С) резонансное взаимодействие с фононами  $M \approx 55$  нм; D) чередование переходов при взаимодействии с фотонами и фононами  $M \approx 130$  нм

в гетероструктурах. В отличие от традиционных диодных лазеров, где оптические переходы идут между зонами и приводят к рекомбинации электронов и дырок, в ККЛ все переходы совершаются только электронами и идут между подзонами, принадлежащими одной зоне проводимости [3].

На сегодняшний день разработано и создано несколько типов ТГц ККЛ:

- на основе чирпированных сверхрешеток (СР);
- на переходах из связанного состояния в континуум (bound to continuum);
- на основе резонансного взаимодействия с фононами (resonant-phonon);
- на базе гибридных «перемежающихся» структур (hybrid interlaced).

Здесь под гибридом имеется в виду дизайн активной среды ККЛ, объединяющий два подхода: рабочий переход из связанного состояния в континуум и опустошение континуума посредством переходов при резонансном взаимодействии с оптическими фононами. Под «перемежающимися» структурами понимается чередование в структуре слоев, где осуществляются переходы при взаимодействии с фотонами и фононами.

Вид этих структур и схемы квантовых переходов в них при генерации ТГц-излучения представлены на рис.1.

Такой тип лазеров позволяет получить достаточно высокую мощность излучения. Так, выходные мощности при криогенных температурах составляют обычно десятки мВт; для ККЛ на 4.4 ТГц получены выходные мощности

248 мВт в импульсном и 138 мВт в непрерывном режиме. Рабочая температура некоторых ТГц ККЛ достигает в настоящее время 225 К и может обеспечиваться элементами Пельтье. Дизайн полупроводниковых структур позволяет изменять частоту рабочего межподзонного перехода в широких пределах ТГц-спектра: от 1.2 до 4.8 ТГц [3].

Для применения ККЛ в спектроскопии высокого разрешения необходимо решить ряд важных задач.

#### 1. Обеспечение направленности излучения ККЛ

Низкая направленность излучения ККЛ и неоднородный волновой фронт связаны с субволновым поперечным размером лазерной структуры. Ряд работ в последнее время был посвящен улучшению направленности и структуры излучения терагерцовых ККЛ с помощью плазмонной антенны, внешнего резонатора, дизайна резонатора для вертикального вывода излучения, рупорной антенны и др. [4, 5]. Полученные результаты показали возможность существенного улучшения направленности, однако надежный и простой способ – получение аксиально-симметричного узкого пучка с однородным волновым фронтом до сих пор является проблемой. Одним из путей ее преодоления может стать использование интерференции излучения от продольного распределения источников в резонаторе лазера [6]. Этот путь требует разработки дизайна резонатора для контроля фазовой скорости продольной моды.

## 2. Обеспечение одномодового режима генерации ККЛ

Другой важной проблемой, препятствующей использованию ККЛ в ТГц-спектроскопии высокого разрешения, являются отсутствие одномодового режима генерации. Селекция продольных мод ККЛ в пределах полосы усиления осуществляется в основном с помощью распределенной обратной связи, которая создается периодической решеткой на продольной грани резонатора (щели в металлическом контакте, или модуляции показателя преломления). Селекция низшей поперечной моды обеспечивается малыми поперечными размерами резонатора. Перестройка частоты ККЛ может осуществляться модуляцией инжекционного тока (в пределах  $0.05 \text{ см}^{-1}$ ) и изменением температуры (в пределах  $0.1 \text{ см}^{-1}$ ) [7]. Небольшое увеличение диапазона перестройки ( $0.4 \text{ см}^{-1}$ ) возможно с использованием внешних резонаторов с подвижными зеркалами или с помощью решеток. В более широких пределах ( $\sim 10 \text{ см}^{-1}$ ) могут перестраиваться ККЛ, основанные на нелокальных переходах, за счет штарковского сдвига частоты перехода [8].

## 3. Обеспечение узкой ширины линии генерации ККЛ

Важным этапом в разработке прецизионного источника излучения на основе ККЛ является создание системы фазовой автоподстройки частоты (ФАПЧ), т.к. обычно ширина линии генерации ККЛ составляет несколько десятков МГц, что неприемлемо для ТГц-спектроскопии высокого разрешения. На сегодняшний день в литературе известно несколько работ по созданию системы ФАПЧ для ККЛ ТГц-диапазона. Стабилизация ККЛ на частоте 3.0 ТГц по сигналу молекулярного лазера позволила получить ширину линии излучения с учетом накопления сигнала на уровне 65 кГц [9]. В других экспериментах также с использованием газовых лазеров была зафиксирована ширина линии ККЛ меньше 30 кГц [7,10]. Отметим, что существенным недостатком таких систем является то, что указанные параметры могут реализовываться только на частоте генерации молекулярного лазера. Существенным прорывом в этой области должна стать система ФАПЧ ККЛ по высокостабильному источнику излучения микроволнового диапазона, что обеспечит как работоспособность в широком диапазоне частот, так и плавную перестройку частоты источника. Первая попытка разработки такой системы была предпринята в [11]. С использованием сверхпроводящего смесителя и опорного микроволнового генератора частоты авторам удалось до-

биться ширины линии генерации ККЛ на уровне 10 Гц. Однако, судя по спектру стабилизированного ККЛ, речь идет о реализации эффекта затягивания частоты, что не является полноценным режимом ФАПЧ.

Кроме того, применение ККЛ в нестационарной спектроскопии требует также создания системы частотной (фазовой) модуляции, которая обеспечит многократное взаимодействие ТГц-излучения с исследуемым газом.

## 4. Обеспечение высокой рабочей температуры ККЛ

Основной проблемой ТГц ККЛ является достаточно низкая рабочая температура, которая не превышает 186 К [12]. Такие температуры требуют использования специальных охлаждающих систем для импульсных и непрерывно излучающих ККЛ источников. Одним из вариантов решения этой проблемы может стать подход, основанный на генерации разностной частоты. Так, авторами [13] получена генерация на частоте  $\sim 5$  ТГц с выходной мощностью 7 мкВт ( $T=80 \text{ К}$ ), 1 мкВт ( $T=250 \text{ К}$ ) и 300 нВт ( $T=300 \text{ К}$ ). Очевидно, что для увеличения выходной мощности такого лазера при комнатных температурах, помимо выбора активной среды, необходимо дальнейшее усовершенствование волноводов.

## 5. Обеспечение широкой полосы и чувствительности приема ТГц излучения

Разработка приемных систем в ТГц-диапазоне также представляет актуальную задачу, которой посвящено большое количество работ. Для регистрации непрерывного излучения в диапазоне  $100 \div 1600$  ГГц разработаны сверхпроводящие приемники (SIS-смесители), чувствительность которых близка к квантовому пределу [14]. Полоса их приема составляет порядка 10%. Примером таких систем являются SIS-смесители на основе туннельных переходов Nb-AlO<sub>x</sub>-Nb [15]. Шумовая температура лучших образцов SIS-смесителей составляет 26 К при 500 ГГц, 70 К при 680 ГГц, 220 К при 950 ГГц и 350 К при 1.1 ТГц. Для более высоких частот ( $\nu \geq 2.0$  ТГц) чувствительность таких болометров на порядок меньше.

Особый интерес сейчас вызывают приемники и смесители на горячих электронах [16–19], работающие в диапазоне до  $\nu=6.0$  ТГц при гелиевых температурах (рис. 2). В основе работы этих приборов лежит эффект разогрева электронов в тонких пленках сверхпроводников при поглощении ими электромагнитного излучения. Для создания рабочей температуры детектор помещается в гелиевый криостат с оптическими

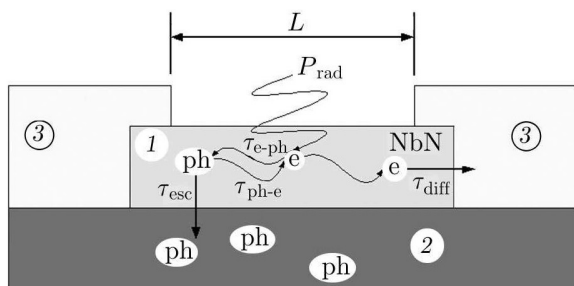


Рис. 2. Схематическое изображение сверхпроводящего смесителя на горячих электронах: 1 – сверхпроводящая пленка, 2 – подложка, 3 – контактные площадки,  $P_{rad}$  – мощность падающего излучения

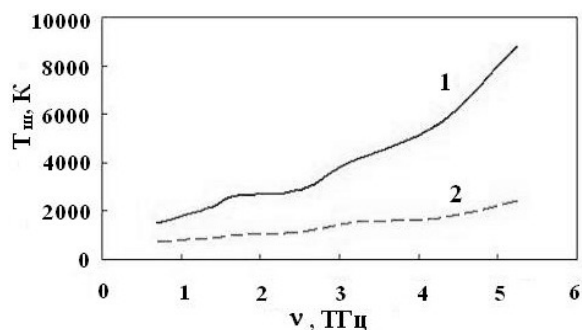


Рис. 3. Зависимость шумовой температуры приемника (1) и смесителя (2) от частоты падающего излучения

Таблица

Технические характеристики НЕВ-детекторов различного типа

Характеристика	Широкополосный детектор	Скоростной детектор
Спектральный интервал	1 – 2000 мкм	1 – 1000 мкм
Чувствительность	50 В/Вт	4 В/Вт
Эквивалентная мощность шума	$10^{-11}$ Вт/Гц <sup>-1/2</sup>	$10^{-10}$ Вт/Гц <sup>-1/2</sup>
Динамический диапазон	10 – 100	300
Импеданс	50 Ом	50 Ом
Постоянная времени	1 нс	20 пс
Рабочая температура	4.5 К	7 – 10 К
Ток смещения	5 мА	5 мА

окнами. Детектор представляет собой чувствительный элемент, включенный в логарифмическую спиральную антенну, которая, в свою очередь, прижата к плоской стороне вытянутой сферической линзы.

Лабораторные исследования показали, что в интервале частот 1–6 ТГц эти смесители на сегодняшний день не имеют себе равных – их типичная температура шума изменяется от 1000 К на частоте 700 ТГц до 8800 К на частоте 5.2 ТГц (рис. 3). Технические характеристики НЕВ-детекторов двух типов [16, 17] приведены в табл.

Фактически на данный момент НЕВ-детекторы являются единственными устройствами ТГц-диапазона, работающими с сигналами с высокой частотой модуляции. Уже появились работы, где сообщается о применении этих устройств в ТГц-системах с гетеродинным приемом, где роль гетеродина играет ККЛ [20, 21]. Реализованные на сегодня характеристики НЕВ-смесителей, а также предварительные результаты их интегрирования в единую систему совместно с ККЛ позволяют рассчитывать на создание быстродействующего, высокочувствительного приемника для нестационарного прецизионного спектрометра ТГц-диапазона.

Из сказанного выше очевидно, что для создания нестационарного прецизионного спектрометра ТГц-диапазона необходимы терагерцовые ККЛ с высокими рабочими температурами ( $T \approx 300$  К), излучающие однододовое ТГц-

излучение мощностью несколько десятков мВт, с улучшенной направленностью и структурой. Для такого ККЛ требуется также система быстрой частотной модуляции, связанная с системой ФАПЧ. Источник ТГц-излучения на основе ККЛ, используемый для возбуждения молекул, будет применен как гетеродин, поэтому необходима разработка малошумящего широкополосного смесителя и его интеграция с ККЛ. Блок-схема прецизионного ТГц-спектрометра представлена на рис. 4.

Смесители, основанные на эффекте горячих электронов в сверхпроводящей тонкой пленке NbN, обеспечивают чувствительность, приближающуюся к квантовому пределу, время отклика порядка нескольких миллисекунд и высокое спектральное разрешение (не хуже 20 кГц) одновременно. Сочетание этих характеристик делает НЕВ наиболее предпочтительным для регистрации узких линий в ТГц-диапазоне. У смесителей на основе диодов с барьером Шоттки (ДБШ) или СИС-структур (сверхпроводник – изолятор – сверхпроводник) имеются существенные недостатки, которые ограничивают их использование в предлагаемой системе. Так, смесители на ДБШ требуют большой мощности гетеродина, а их чувствительность резко падает на частотах выше 1 ТГц. СИС-смесители хорошо работают на частотах около 1 ТГц и ниже. НЕВ-смесители используют маломощный гетеродин и показывают высокую чувствительность

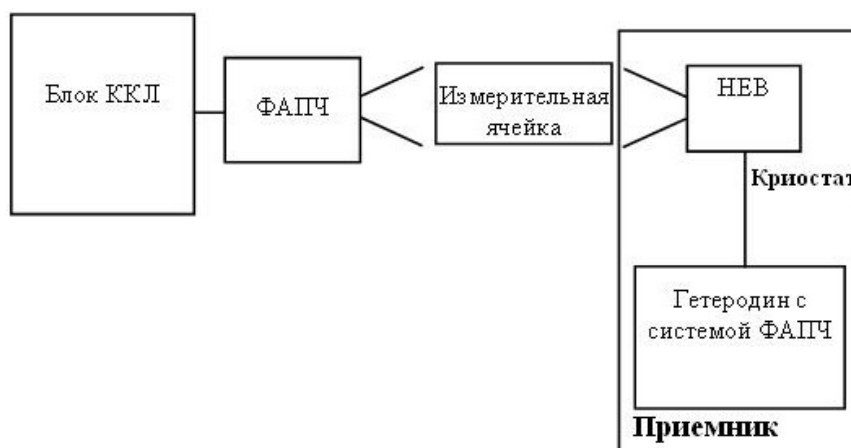


Рис. 4. Блок-схема прототипа прецизионного ТГц спектрометра на основе ККЛ и НЕВ

( $8h\nu/k$ , где  $h$  – постоянная Планка,  $k$  – постоянная Больцмана) на частотах до 5 ТГц.

Современные технологии производства NbN НЕВ-смесителей основаны на том, что слой Au осаждается на пленку NbN без нарушения вакуума, что делает границу Au-NbN более чистой. Это, в свою очередь, уменьшает сопротивление контакта и потери сигнала. Более того, чистая граница раздела между антенной и мостиком NbN приводит к увеличению ширины полосы зоны за счет дополнительного охлаждения электронов из-за диффузии горячих электронов к контактам антенны. Технология *in situ* позволяет достигать рекордно низкой шумовой температуры приемника (750 К при частоте гетеродина 2.5 ТГц) и рекордно большой зоны и полосы шума 6.5 ТГц [16, 17].

Еще одним важным элементом спектрометра является измерительная газовая ячейка. Проведенные исследования показали, что наиболее оптимальным вариантом ячейки для компактного спектрометра является герметизированный металлический волновод круглого сечения (диаметр 50 мм) длиной 1 м из нержавеющей стали с прозрачными для излучения окнами под углом 45°. Предусматривается возможность нагрева ячейки до температуры выше 100°C. Рабочее давление в ячейке составляет 0.05 Торр.

### Заключение

Таким образом, выполнение всех перечисленных выше рекомендаций позволит разработать и создать компактный нестационарный спектрометр ТГц-диапазона с высокой чувствительностью и спектральным разрешением для быстрого детектирования химических агентов и взрывчатых веществ в атмосферном воздухе. Ожидаемая чувствительность спектрометра позволит регистрировать концентрации целого

ряда газов на уровне  $1\pm 0.1$  ppb. Реализованный ТГц-спектрометр может стать первым в ряду нового поколения высокочувствительных газовых анализаторов, которые обычно используются для контроля атмосферного воздуха вблизи и внутри важных и стратегических объектов.

*Работа выполнена при поддержке Министерства образования и науки Российской Федерации (государственный контракт № 14.740.11.1134).*

### Список литературы

1. Vaks V.L., Brailovsky A.B., Khodos V.V. Millimeter Range Spectrometer with Phase Switching – Novel Method for Reaching of the Top Sensitivity // *Infrared & Millimeter Waves*. 1999. Vol. 20. №5. P. 883–896.
2. Solid-State Mid-Infrared Laser Sources. Ser. Topics in Applied Physics. Vol.89. Eds. I.T. Sorokina, K.L. Vodopyanov. Berlin-Heidelberg: Springer. 2003. 558 p.
3. Williams B. Terahertz quantum-cascade lasers // *Nature Photonics*. 2007. Vol.1. P. 517–525.
4. Yu N., Fan J., Wang Q. et al. Small-divergence semiconductor lasers by plasmonic collimation // *Nature Photonics*. 2008. Vol. 2. P. 564–570.
5. Mainault W., Gellie P., Andronico A., et al. Metal-metal terahertz quantum cascade laser with micro-transverse-electromagnetic-horn antenna // *Appl. Phys. Lett.* 2008. Vol. 93. P. 183508(1)–183508(3).
6. Orlova E.E., Hovenier J.N., Klaassen T.O., et al. Antenna model for wire lasers // *Phys. Rev. Lett.* 2006. Vol. 96. P. 173904(1)–173904(4).
7. Barkan A., Tittel F.K., Mittleman D.M., et al. Linewidth and tuning characteristics of terahertz quantum cascade lasers // *Optics Letters*. 2004. Vol. 29. Iss. 6, P. 575–577.
8. Walther C., Fischer M., Scalfari G., et al. Quantum cascade lasers operating from 1.2 to 1.6 THz // *Appl. Phys. Lett.* 2007. Vol. 91. P. 131122(1)–131122(3).
9. Betz A.L., Boreiko R.T., Williams B.S., et al. Frequency and phase-lock control of a 3 THz quantum cascade laser // *Optics Letters*. 2005. Vol. 30. Iss. 14. P. 1837–1839.

10. Barbieri S., Alton J., Beere H. E., et al. Heterodyne mixing of two far-infrared quantum cascade lasers by use of a pointcontact Schottky diode // *Optics Letters*. 2004. Vol. 29. Iss. 14. P. 1632–1634.
11. Hovenier J.N., Adam A.J.L., Kasalynas I. et al. Phase-locking on the beat signal of a two-mode 2.7 terahertz metal-metal quantum cascade laser // *Proceedings Symposium IEEE/LEOS Benelux Chapter*, p. 125, 2006, Eindhoven.
12. Kumar S., Hu Q., Reno J.L. 186 K operation of terahertz quantum-cascade lasers based on a diagonal design // *Appl. Phys. Lett.* 2009. Vol. 94. P. 131105(1)–131105(3).
13. Belkin M., Capasso F., Xie F. Room temperature terahertz quantum cascade laser source based on intracavity difference-frequency generation // *Appl. Phys. Lett.* 2008. Vol. 92. P. 201101(1)–201101(3).
14. Dieleman P. Fundamental limitations of THz and Niobium nitride SIS mixers. PhD Thesis. Department of Applied Physics of the University of Groningen, 1997. 124 p.
15. Кошелец В.П., Шитов С.В., Филиппенко Л.В. и др. Сверхпроводниковые интегральные приемники субмм волн // *Изв. вузов. Радиофизика*. 2003. Т. XLVI. С. 687–701.
16. Гольцман Г.Н., Лудков Д.Н. Сверхпроводниковые смесители на горячих электронах терагерцового диапазона и их применение в радиоастрономии // *Изв. вузов. Радиофизика*. 2003. Т.46. № 8–9. С. 671–686.
17. Chen J., Kang L., Jin B.B., et al. Properties of Terahertz Superconducting Hot Electron Bolometer Mixers // *Terahertz Science and Technology*. 2008. Vol. 1. №1. P. 37–41.
18. Jiang L., Shiba S., Shimbo K. et al. Development of 0.8 THz and 1.5 THz Waveguide NbTiN HEB Mixers // *Proc.19-th Int. Symp. on Space Terahertz Technology*. Groningen, 2008. P. 54–57.
19. Khosropanah P., Gao J.R., Laauwen W.M., et al. Low noise NbN hot electron bolometer mixer at 4.3 THz // *Appl. Phys. Lett.* 2007. Vol.91. P. 221111(1)–221111(3).
20. Khosropanah P., Zhang W., Hovenier J. N., et al. 3.4 THz heterodyne receiver using a hot electron bolometer and a distributed feedback quantum cascade laser // *J. Appl. Phys.* 2008. Vol. 104. P. 113106(1)–113106(6).
21. Richter H., Semenov A.D., Pavlov S.G., et al. Terahertz heterodyne receiver with quantum cascade laser and hot electron bolometer mixer in a pulse tube cooler // *Appl. Phys. Lett.* 2008. Vol. 93. P. 141108(1)–141108(3).

#### HIGH-RESOLUTION SPECTROMETERS BASED ON QUANTUM-CASCADE LASERS. PROBLEMS AND POSSIBLE SOLUTIONS

*V.L. Vaks, E.G. Domracheva, S.I. Pripolzin, E.A. Sobakinskaya, M.B. Chernyaeva*

The possibility to create high-resolution THz spectrometers based on quantum cascade lasers is considered. Some problems have been revealed in using the quantum-cascade lasers as radiation sources of THz frequency range and possible solutions have been suggested. hot electron bolometer (HEB) mixers and detectors are proposed to be used as radiation receivers for the high-resolution THz spectrometer.

*Keywords:* quantum cascade laser, THz frequency range, HEB mixer, THz nonstationary gas spectroscopy method, method for frequency control of quantum cascade laser, radiation directivity, single-mode lasing, lasing linewidth, operating temperature.