

密级:_____



中国科学院大学
University of Chinese Academy of Sciences

博士学位论文

利用飞秒激光直写制备三维回音壁模式光学微腔及其应用

作者姓名: _____ 林 锦 添 _____

指导教师: _____ 程 亚 研究员 _____

_____ 中国科学 _____ 密机械研究所 _____

学位类别: _____ _____

学科专业: _____ 光 _____

培养单位: _____ 中国科学院上海光学精密机械研究所 _____

2014 年 05 月

Three-dimensional whispering-gallery-mode microcavities
fabricated on glass and crystal by femtosecond laser direct
writing and their applications

By

Jintian Lin

Directed by

Prof. Ya Cheng

A Dissertation Submitted to

University of Chinese Academy of Sciences

In partial fulfillment of the requirement

For the degree of

Doctor of Philosophy in Optics

Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics

Chinese Academy of Sciences

May, 2014

中国科学院上海光学精密机械研究所

博士学位论文

论文题目 利用飞秒激光直写制备三维回音壁模式

光学微腔及其应用

专 业 光学

研究生姓名 林锦添

导师姓名 程 亚 研究员

研究生入学时间 2009 年 9 月

2014 年 05 月 14 日

独创性声明

本人声明所呈的学位论文是本人在导师指导下进行的研究工作及取得的研究成果。据我所知，除了文中特别加以标注和致谢的地方外，论文中不包含其他人已经发表或撰写过的研究成果，也不包含为获得中国科学院上海光学精密机械研究所或其他教育机构的学位或证书而使用过的材料。与我一同工作的同志对本研究工作所做的任何贡献，均已在论文中做了明确的说明并表示谢意。

学位论文作者签名：林锦添

签字日期：2014 年 05 月 28 日

学位论文版权使用授权书

本学位论文作者完全了解中国科学院上海光学精密机械研究所有关保留、使用学位论文的规定，有权保留并向国家有关部门或机构送交论文的复印件和电子文件，允许论文被查阅和借阅。本人授权中国科学院上海光学精密机械研究所可以将学位论文的全部或部分内容编入有关数据库进行检索，可以采用影印、缩印或扫描等复制手段保存、汇编学位论文。（保密的学位论文在解密后适用本授权书）

学位论文作者签名：林锦添

签字日期：2014 年 05 月 28 日

指导教师签名：

签字日期： 年 月 日

学位论文作者毕业去向：_____

工作单位：_____ 电话：_____

通信地址：_____ 邮编：_____

电子邮件地址：_____

利用飞秒激光直写制备三维回音壁模式光学微腔及其应用

林锦添

指导老师：程亚 研究员

摘 要

回音壁模式光学微腔通过光在腔体材料与周围环境之间的光滑的圆形界面上的连续全反射，把光长时间地约束在微小的空间内，具有很高的品质因子(Q)与很小的模式体积。长的光子寿命、强的空间约束，可以极大地增强光与物质的相互作用，使得微腔在基础研究与工程应用上具有强烈的吸引力，具体的应用包括低阈值激光、非线性光学、量子物理、生物传感、光机械力学等等。当前芯片上的回音壁模式光学微腔，比如微盘、微芯环腔、变形微腔，主要借助传统的半导体平面制备方法，依赖于化学腐蚀选择性去除材料。尽管平面光刻等半导体工艺具有快速、低成本的优势，然而对于全三维微结构的制备，需要诸如层叠、键合等复杂步骤，让它难以（假如不是完全不可能），直接制备三维微腔。此外，也只有少数的材料能被用于光刻。这对相对于衬底倾斜进行光耦合或者提取、灵活地利用微腔腔体材料性质实现多样化的光子学目的等应用或研究，造成了障碍。因此需要开发新的方案来解决这些问题。

随着超快光学的发展，飞秒激光微加工以其突破衍射极限的加工精度和具有对透明材料内部进行三维加工的能力，已成为诸如微光学、微流体、微电子、基于聚合物的微腔等三维微结构不可或缺的制备技术。而透明的介质材料，比如玻璃、光学晶体等，一般具有宽的透射窗口和低的本征吸收损耗，成为构建高品质微腔的理想工作介质。尽管飞秒激光微加工技术已经在透明材料上制备三维微结构显示出很大的灵活性，但其受限的加工精度、大的表面粗糙度等不足，仍然亟待解决。本文致力于解决上述所提及的问题，利用飞秒激光微加工技术在玻璃与

晶体上制备了高品质的三维回音壁模式光学微腔，主要包括：

1. 利用飞秒激光微加工技术首次在玻璃衬底上制备了高品质的三维回音壁模式微腔，其制备步骤包括通过飞秒激光构图选择性去除材料而形成由细支柱所支撑的独立微盘、二氧化碳激光回流提高微腔表面的光滑度。石英玻璃微腔与钕玻璃微腔的品质因子在1550 nm波段皆超过 10^6 。在室温条件下通过自由空间光学激励，钕玻璃微腔在1060 nm中心波长实现了低阈值69 μW 的激励。这种形状可控的微腔可提供光场输出方向的自由度。该方法可以拓展到石英玻璃与具有特殊光学性质的非二氧化硅透明介质（比如稀土掺杂玻璃、非线性光功能玻璃）上制备高品质的三维微腔；
2. 利用水辅助的飞秒激光刻蚀技术制备了尺寸小于50 μm 的氟化钙晶体微盘结构，再用聚焦离子束研磨微腔的侧壁，形成超光滑的微腔侧壁，其品质因子超过 10^4 ；经水辅助的飞秒激光刻蚀、聚焦离子束研磨、化学腐蚀各向同性去除二氧化硅层、高温热退火，制备了700 nm厚的铌酸锂单晶微盘腔，测得其品质因子达到 1.6×10^5 ，是同类铌酸锂微盘腔报道的最高值，并用宽谱的飞秒激光通过光纤锥泵浦，在5.04 mW泵浦功率条件下，实现了转换效率为 1.04×10^{-5} 转换效率的倍频效应。晶体微腔可以作为紧凑的频率转换器、单光子源集成到光子回路上。

关键词：光学微腔；超快激光；激光微加工；微光学；透明介质

Three-dimensional whispering-gallery-mode microcavities fabricated on glass and crystal by femtosecond laser direct writing and their applications

Jintian Lin

Directed by: Prof. Ya Cheng

Abstract

Whispering-gallery-mode (WGM) microcavities, which confine light via continuous total internal reflection along a smooth equatorial boundary between the dielectric cavity and surrounding, exhibit very high quality (Q) factor and small mode volume. The long photon lifetime and strong spatial confinement make them excellent candidates for low threshold nonlinear optics, quantum physics, low threshold lasing, and biosensing, and so on. Today, the most microfabrication processes of on-chip WGM microcavities, such as microdisks, microtoroids, and deformed microcavities are based on planar lithographic approach, depending on the chemical selective material removal. Although the planar lithography is rapid and cost effective, it is difficult if not possible to form three-dimensional (3D) microcavities directly. Complicated processes consisted of multilayer stacking and bonding, are required when it comes to 3D multifunctional integration. Furthermore, this approach is limited to a few lithographically enable materials. These make obstacles for many applications that prefer out-of-plane light coupling or extraction respect with substrates and microcavity substrate material flexibility to offer diverse photonic purposes, respectively. Therefore, there is a need to develop new strategies to overcome these problems.

Recently, femtosecond laser micromachining has been proved as a promising

solution for fabrication of flexible 3D microstructures, such as microoptics, microfluidics, and polymer-based microcavities. Wide transparent window and low intrinsic absorption loss make dielectric material, such as crystal and amorphous glass, ideal substrate materials for high-Q microcavity applications. Although femtosecond laser micromachining has shown flexibility for fabrication of 3D microstructures in bulk dielectric material, major issues still exist, such as the limited fabrication resolution, high surface roughness, and so on.

In an effort to address these problems, we have developed a method to fabricate 3D microcavities in amorphous glass and crystalline material by femtosecond laser micromachining, followed by surface smooth process. Specifically, we demonstrate the fabrication of 3D high-Q microcavities on fused silica wafer that may have the light output from optical mode on an arbitrary plane respect to the substrate plane, microlaser with low threshold based on Nd:glass microcavity, and crystalline microcavities, as followed:

First, a method is proposed to fabricate 3D microcavities on glass chip. The main fabrication procedures include the formation of on-chip freestanding microdisk supported by thin pillar through selective material removal by femtosecond laser patterning, followed by surface CO₂ laser reflow for surface smoothing. Both the Q factors of fused silica microcavity and Nd:glass microcavity are measured to be higher than 10^6 at ~ 1550 nm. The microlaser based on Nd:glass microcavity is operating at the wavelength of 1060 nm via free space optical excitation at room temperature at the threshold as low as 69 μ W. These shape-controllable microcavities can provide the freedom of the output of the optical field. This technique offers potential for fabrication of high-Q microcavities on silica or non-silica dielectric substrates of various novel optical properties (e.g., rare earth ions doped glasses and nonlinear functional materials) with 3D geometries.

Second, on-chip calcium fluoride (CaF₂) microdisk resonators with size smaller than 50 μ m are created by water-assisted femtosecond laser micromachining, followed by FIB milling to create ultra-smooth sidewalls. The Q-factors of the

microresonators are measured to be higher than 10^4 at wavelengths near 1550 nm. Then, we report on fabrication of high Q lithium niobate (LN) WGM microresonators suspended on a silica pedestal by femtosecond laser microfabrication. The 55 μm -diameter microdisk resonator owns the Q factor of 1.6×10^5 . This value is the highest reported to date for the same kind of on-chip LN microdisk resonators. Moreover, the experimental observation of second-harmonic generation in the on-chip LN microdisk resonator is demonstrated. A fiber taper is employed to couple with the microresonator, resulting in conversion efficiency $\eta = 1.04 \times 10^{-5}$ when the pump power is 5.04 mW. Crystalline microcavities can be integrated in photonic circuits as compact frequency converters, sources of single photons.

Key words: Microcavities, Ultrafast laser, Laser micromachining, Microoptics, Transparent dielectrics

目 录

1 绪论	1
1.1 回音壁模式光学微腔.....	2
1.1.1 回音壁模式光学微腔的发展历程	3
1.1.2 回音壁模式介绍	4
1.1.2.1 球坐标下的电磁场分布	4
1.1.2.2 介质球中的模式分布	7
1.1.2.3 回音壁模式的特征方程	9
1.1.3 微腔性能的特征	10
1.1.3.1 品质因子	10
1.1.3.2 腔模式体积	11
1.1.4 回音壁模式的耦合	12
1.1.4.1 耦合的方式	12
1.1.4.2 光纤锥	13
1.1.4.3 光纤锥与微腔耦合	14
1.1.5 回音壁模式微腔的应用	16
1.1.5.1 低阈值微激光器	17
1.1.5.2 非线性效应	19
1.1.5.3 滤波器	20
1.1.5.4 高灵敏度传感	21
1.1.5.5 腔-光机械(Cavity Optomechanics).....	22
1.1.5.6 腔量子电动力学(Cavity-QED).....	24
1.2 飞秒激光微加工技术介绍.....	27
1.2.1 飞秒激光微加工的机制	27
1.2.1.1 光致电离	27
1.2.1.2 非热过程	29
1.2.1.3 抑制热影响区	29
1.2.1.4 空间分辨率	30
1.2.1.5 飞秒激光束在透明介质中的传输	30
1.2.2 飞秒激光材料处理	33
1.2.2.1 飞秒激光处理系统	33
1.2.2.2 飞秒激光材料处理	35
1.3 论文的研究意义与内容.....	35
2 飞秒激光直写在熔融石英衬底上制备高品质的三维微腔.....	37

2.1 引言	37
2.2 飞秒激光直写制备微腔	40
2.3 光纤锥的制备及微腔腔模的表征	44
2.4 讨论	47
2.5 小结	50
3 基于钕玻璃光学微腔的微激光器的制备	51
3.1 引言	51
3.2 水辅助的飞秒激光刻蚀制备钕玻璃微腔	52
3.3 微腔的激射	57
3.4 小结	62
4 飞秒激光直写在氟化钙芯片上制备的晶体微腔	63
4.1 引言	63
4.2 飞秒激光制备氟化钙微盘结构	66
4.3 FIB 研磨侧壁	67
4.4 微腔性能的表征	70
4.5 讨论	71
4.6 小结	73
5 飞秒激光微加工制备的铌酸锂晶体微腔及其倍频效应	75
5.1 引言	75
5.2 铌酸锂晶体的非线性光学性质	76
5.3 倍频效应	79
5.4 利用飞秒激光烧蚀制备铌酸锂单晶薄膜微腔	81
5.5 小结	88
6 总结与展望	89
参考文献	91
林锦添攻读博士学位期间发表的文章目录	103
致 谢	107
林锦添个人简介	108

1 绪论

本文主要围绕利用飞秒激光微加工技术在玻璃与晶体衬底上制备高品质的三维回音壁模式光学微腔这一主题展开。

在光子学领域,光学微腔是一种有重要应用的基本元素。光学微腔通过对特定波长的光进行谐振、循环、增强,从而对实现光子的存储与操纵。不同类型的光学微腔,比如 Fabry-Pérot 型微腔、回音壁模式微腔、光子晶体微腔,已经被开发出来,并用于强耦合腔量子电动力学、自发辐射增强、光机械力学、滤波,乃至低阈值的非线性光学研究,在量子信息研究、单光子源、信息传输、生物传感等大量的领域有重要的应用。

回音壁模式光学微腔,比如微球腔、微芯环腔、微盘腔、微环腔、瓶状(bottle)微腔等,通过光在腔体与周围环境之间的光滑圆形界面上全内反射,对光进行约束,具有很高的品质因子(Q)与很小的模式体积(V),可以极大地增强光与物质的相互作用,在上面所提及的应用领域已经大展身手;它对外界环境的变化也相当灵敏,可以用于高灵敏的生物-化学传感。微腔的小型化与芯片级的多功能集成,是一个很重要的优势与发展趋势之一,它意味着小的模式体积(强的空间约束)以及非常适合用作高度集成的光子学器件。

目前这种芯片上的回音壁模式光学微腔的制备方法是基于光刻、电子束刻蚀或者反应离子束刻蚀等半导体的平面制备工艺。受限于现有的平面工艺,绝大多数的高品质因子微腔,比如微盘腔、微芯环腔、变形腔等,仅能在平行于衬底的二维平面中形成对光场的有效约束,因此它在其所能够支持的光学模式及光场输出方向上均具有很大的局限性。构建真正的三维微腔系统,为控制微腔的几何结构提供了另一个维度上的自由度,将极大扩展微腔对光场的调控能力,并可支持更为丰富的光学模式。第二,在形成悬空的微腔结构时,一般的处理手段是依赖于化学腐蚀选择性去除材料,这会导致很多潜在的、具有优异性能的材料难以被用于构建微腔。

光学微腔在实际应用中,一般要求构成微腔的材料对外加的电场、所关心的环境等,要有强烈的响应特性,因此材料的选择显得尤为关键。比如高品质的晶体微腔,由于晶体具有大的非线性系数、极低的损耗、很宽的透射窗口,就非常适合于实现低阈值的非线性光学效应,构建中红外光学频率梳乃至波长可调谐的单光子源,但其主流的制备工艺是基于机械抛光。这样就很难构建小于 50 微米尺寸的晶体微腔,以及用于芯片上的多功能集成。因此需要探索一种能够在大多数材料衬底上构建三维光学微腔的技术方案,实现特定的光子学目标。

近年来飞秒激光微加工技术以其突破衍射极限的加工精度和具有对透明材料进行三维微加工的能力,已经在微光学、微流体、微电子、基于聚合物的微腔等三维微结构制备上显示出强大的生命力。尽管飞秒激光微加工技术已经在透明材料上制备三维微结构显示出很大的灵活性,比如它在原则上能制备任意的三维构型的微结构,对大多的透明材料适用,但与光刻技术等对比,它受限于加工精度、大的表面粗糙度等不足,这些问题亟待解决。玻璃、光学晶体等,以其宽的透射窗口和低的本征吸收损耗,以及重要的非线性光学等性质,是构建高品质微腔的理想工作介质。本文致力于在玻璃、光学晶体材料上解决上述所提及的问题。

本章首先介绍了回音壁模式光学微腔的发展历史,其次简述了回音壁模式的理论基础与耦合方法,然后综述了飞秒激光微加工的机制及应用,最后阐述了本论文的研究目的、意义和内容。

1.1 回音壁模式光学微腔

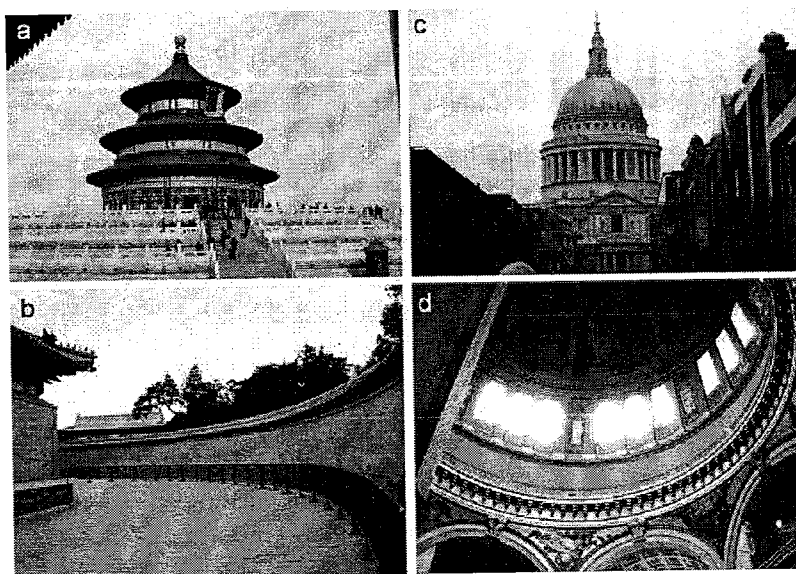


图1.1 (a)(b) 北京天坛回音壁(周长 193.2 米)的墙壁; (c)(d)伦敦圣保罗教堂的 34 米尺寸的圆顶耳语长廊[1]。

当光从光密介质进入光疏介质时,若入射角大于全反射的临界角,就会发生全反射。对具有旋转对称性的光滑曲面边界,在光密介质内传播的光,可以在曲面边界发生连续的全反射。其中,某些特定波长的光束,可以沿着边界传播一周以后,回到它的起始位置,形成谐振。这种具有一定空间几何曲面的具有一定的旋转对称性的结构就称为谐振腔,而腔内具有一定空间分布和特定波长的光场空

间分布称为“回音壁模式”。微腔的周期性边界条件使得波动方程的解，为波长分立的模式。简单而言，一个半径为 R 的回音壁，仅能支持波长 λ_{res} 为回音壁周长的正整数 l 分之一：

$$\lambda_{res} \cdot l = 2\pi \cdot R。$$

1.1.1 回音壁模式光学微腔的发展历程

事实上，“回音壁”起源于伦敦圣保罗教堂、北京天坛皇穹宇的围墙特有的声学现象。人们在北京天坛回音壁，两个人沿着侧壁说话，即使处在直径的两端，也能互相听清楚。1912 年 Lord Rayleigh 开始解释这种声波效应[2]，他认为声波经光滑的内壁连续全反射，损耗很低，因此可以沿着弯曲的墙面传播很远的距离。另一方面，1908 年 Mie 研究了球体腔内的光学谐振问题[3]，他运用麦克斯韦方程组研究平面电磁波被小粒子（被认为球体）的散射现象，观测到了散射谱中里面的尖线。1939 年 Richtmyer 把回音壁谐振腔的概念从声波拓展到电磁波领域[4]，并预言了高品质(Q)因子的性质。1961 年光学回音壁模式首次在 Sm:CaF_2 柱形晶体谐振腔（毫米量级尺寸）的激射中被观测到[5]，1977 年，Ashkin 等人首次观测到微球液滴中由回音壁模式导致的辐射压力增强效应[6]，Chang 小组则在 1980 年在掺杂染料的聚合物微球的荧光光谱中直接观测到高品质的回音壁模式谐振峰[7]。但由于液滴不稳定，限制了光学回音壁模式的应用。1989 年 Braginsky 等科学家通过把熔融石英光纤尖端(tip)熔化为微球腔[8]，该制备方法简单，而且固态微腔的品质品质高达 10^8 ，极大地促进了光学回音壁模式微腔的发展。1990 年，中科院上海光机所王育竹小组在钹玻璃微球腔中发现了腔内原子自发辐射概率增强[9]，并实现了 881 nm 波长的激射。1992 年，McCall 等人首次在半导芯片上制备了直径 3-10 μm 微盘腔[10]，把模场约束在二维平面，并在液氮冷却环境中光泵浦，得到单模的低阈值激射。该工作促发了回音壁模式微腔的光学芯片集成化。进入 21 世纪，各国科学家都在追求高品质因子、低模式体积、腔模可调谐、以及微腔的功能化等性能，目前最高的品质因子来自金刚石研磨制备的毫米级尺寸的晶体腔（氟化钙晶体腔[11]），其品质因子可以达到 10^{11} 。

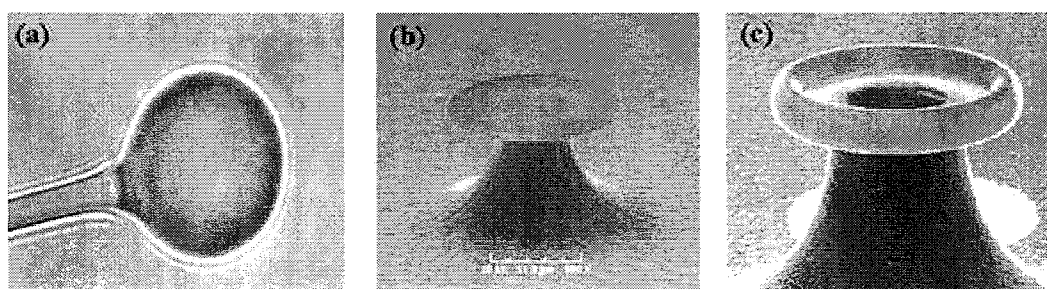


图1.2 微球腔、微盘腔与微芯环腔[12]。

一般而言,回音壁模式微腔通过介质与周围环境光滑界面的连续全内反射把光约束在腔内,具有很高的品质因子,很小的模式体积,可以极大地增强光与物质相互作用的强度。由于这些性质,它们在很多领域具有重要的应用价值,比如构建低阈值激光器,滤波器,低阈值非线性光学效应,无标记的生物传感,光学频率梳,腔量子电动力学,腔机械力学相互作用等等。

1.1.2 回音壁模式介绍

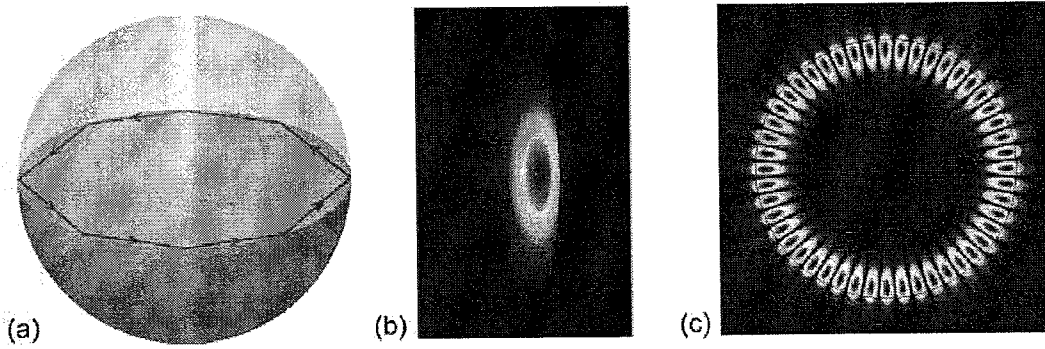


图1.3 (a)微球腔中的光传播的几何光学描述, (b)沿着径向、极角方向的基模分布的横截面, (c)微球赤道面内的模式分布[13]。

1.1.2.1 球坐标下的电磁场分布

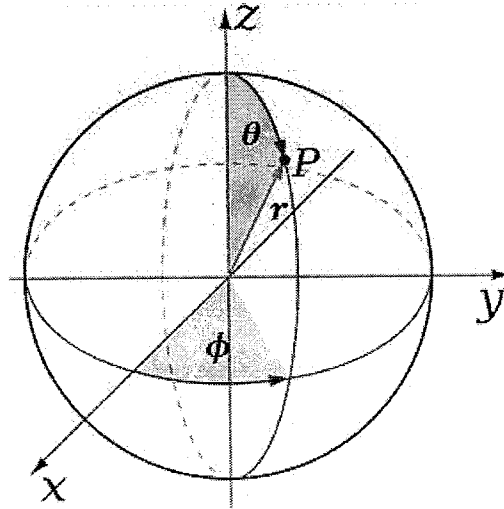


图1.4 球坐标系示意图。

当微球腔的尺寸远大于光波长时,可用经典的电磁场理论来分析腔内的模式

[14]。如果介质不导电，且内部没有静电荷，那么对一定频率 ω 的电场，麦克斯韦方程组可化为

$$\begin{aligned}\nabla^2 \vec{E} + k^2 \vec{E} &= 0, \\ \nabla \cdot \vec{E} &= 0, \\ \vec{H} &= -\frac{i}{\omega\mu} \nabla \times \vec{E},\end{aligned}\tag{1.1}$$

其中 $k = \omega\sqrt{\mu\varepsilon}$ 是波矢。在球坐标 (r, θ, ϕ) 下，考虑均匀线性的各向同性介质，矢量的方程组(1.1)可简化为

$$\nabla^2 \Psi(r, \theta, \phi; t) - \frac{1}{v^2} \frac{\partial^2 \Psi(r, \theta, \phi; t)}{\partial t^2} = 0,\tag{1.2}$$

其中 $\Psi(r, \theta, \phi; t)$ 表示为电场 $\vec{E}(r, \theta, \phi; t)$ 或者磁场 $\vec{H}(r, \theta, \phi; t)$ ， v 为介质中的光速。

考虑谐波时间依赖情形， $\Psi(r, \theta, \phi; t)$ 可以写为 $\psi(r, \theta, \phi)e^{-i\omega t}$ ，代入上式，得

$$\nabla^2 \psi(r, \theta, \phi) + n^2 k^2 \psi(r, \theta, \phi) = 0,\tag{1.3}$$

在这里 $k = \omega/c$ ， n 为折射率。在球坐标下，上式 Helmholtz 方程的表达形式为

$$\frac{1}{r^2} \frac{\partial^2}{\partial r^2} (r\psi) + \frac{1}{r \sin \theta} \frac{\partial}{\partial r} \left(\sin \theta \cdot \frac{\partial}{\partial \theta} \psi \right) + \frac{1}{r^2 \sin^2 \theta} \frac{\partial^2}{\partial \phi^2} \psi + n^2 k^2 \psi = 0.$$

分离变量，令 $\psi(r, \theta, \phi) = \psi_r(r)Y(\theta, \phi)$ ，得下式，并记为常数 η

$$\frac{1}{\psi_r(r)} \left[\frac{d}{dr} \left(r^2 \frac{d\psi_r(r)}{dr} \right) + k^2 n^2(r) r^2 \psi_r(r) \right] = -\frac{1}{Y} \left[\frac{1}{\sin \theta} \frac{\partial}{\partial \theta} \left(\sin \theta \frac{\partial Y}{\partial \theta} \right) + \frac{1}{\sin^2 \theta} \frac{\partial^2 Y}{\partial \phi^2} \right] \equiv \eta,$$

其中 η 为本征值，其径向方程为

$$\frac{d^2}{dr^2} \psi_r(r) + \frac{2}{r} \frac{d}{dr} \psi_r(r) + (k^2 n^2(r) - \eta) \psi_r(r) = 0,\tag{1.4}$$

角向方程为

$$\frac{1}{\sin \theta} \frac{\partial}{\partial \theta} \left(\sin \theta \frac{\partial Y}{\partial \theta} \right) + \frac{1}{\sin^2 \theta} \frac{\partial^2 Y}{\partial \phi^2} + \eta Y = 0,\tag{1.5}$$

进一步分量变量，令 $Y(\theta, \phi) = \psi_\theta(\theta)\psi_\phi(\phi)$ ，角向方程化为

$$\frac{1}{\psi_\theta} \left[\sin \theta \frac{d}{d\theta} \left(\sin \theta \frac{d\psi_\theta}{d\theta} \right) + \eta \sin^2 \theta \psi_\theta \right] = -\frac{d^2 \psi_\phi}{\psi_\phi d\phi^2} \equiv \varsigma,$$

ς 为常数，为本征值。上式即为

$$\frac{1}{\sin \theta} \frac{d}{d\theta} \left(\sin \theta \frac{d\psi_\theta}{d\theta} \right) + \left(\eta - \frac{\varsigma}{\sin^2 \theta} \right) \psi_\theta = 0\tag{1.6}$$

和

$$\frac{d^2 \psi_\phi}{d\phi^2} + \varsigma \psi_\phi = 0.\tag{1.7}$$

并考虑到 $(r, \theta, \phi + 2\pi)$ 与 (r, θ, ϕ) 表示同一几何点的周期性边界条件, 得到方位角分量 $\psi_\phi(\phi)$ 的本征值和本征函数

$$\varsigma = m^2, \psi_\phi(\phi) = \{e^{im\phi}, e^{-im\phi}\}, m = 0, 1, 2, \dots, \quad (1.8)$$

m 称为方位角模数。

将 $\varsigma = m^2$ 代回(1.6)式, 令 $x = \cos \theta, \psi_\theta = P(x)$, 可解得本征值问题

$$\frac{d}{dx} \left[(1-x^2) \frac{dP}{dx} \right] + \left(\eta - \frac{m^2}{1-x^2} \right) P = 0, \quad (1.9)$$

$$P(\pm 1) = 0 \quad (m = 0), \text{ 或 } |P(\pm 1)| < \infty \quad (m \neq 0). \quad (1.10)$$

(1.9)式称为连带勒让德方程 (associated Legendre equation)。其本征值 $\eta = l(l+1)$, 本征函数为 $\psi_\theta(\theta) = P_l^m(\cos \theta)$, 其中 l 是正整数, $P_l^m(\cos \theta)$ 是连带勒让德函数,

$P_l^m(\cos \theta) = (-1)^m \sin^m(\theta) P_l^{(m)}(\cos \theta)$, $P_l^{(m)}(x)$ 是勒让德多项式 $P_l(x) =$

$\frac{1}{2^l l!} \frac{d^l}{dx^l} (x^2 - 1)^l$ 的 m 阶微商。所以 $Y_l^m(\theta, \phi)$ 的本征函数为

$$P_l^m(\cos \theta) e^{im\phi}, m = 0, \pm 1, \pm 2, \dots, \pm l, \quad (1.11)$$

称为球谐函数。物理上更常用的是归一化的球谐函数

$$Y_l^m(\theta, \phi) = \sqrt{\frac{2l+1}{4\pi} \frac{(l-m)!}{(l+m)!}} P_l^m(\cos \theta) e^{im\phi},$$

$$l = 0, 1, 2, \dots; m = 0, \pm 1, \pm 2, \dots, \pm l,$$

将 $\eta = l(l+1)$ 代入径向方程, 令 $\psi_r(r) = \sqrt{\frac{1}{nkr}} v(r)$, 则 $v(r)$ 满足

$$r^2 \frac{d^2 v}{dr^2} + r \frac{dv}{dr} + \left[nkr^2 - \left(l + \frac{1}{2} \right)^2 \right] v = 0. \quad (1.12)$$

这是一个半奇数的 Bessel 方程, 其解为 $\sqrt{\frac{1}{nkr}} Z_{l+\frac{1}{2}}(nkr)$ 。

故 ψ 的解为

$$\psi = \frac{1}{\sqrt{nkr}} Z_{l+\frac{1}{2}}(nkr) Y_l^m(\theta, \phi) e^{-i\omega t} \equiv \Pi(r, \theta, \phi) e^{-i\omega t}. \quad (1.13)$$

球贝塞尔函数的定义为 $z_l(nkr) = \sqrt{\frac{\pi}{2nkr}} Z_{l+\frac{1}{2}}(nkr)$, 依据边界条件, 可将 $z_l(nkr)$ 分为 $j_l(nkr)$ 、 $n_l(nkr)$ 、 $h_l(nkr)$, 分别称为第一类球贝塞尔函数、第二类球贝塞尔函数(也称为球 Neuman 函数)、第三类球贝塞尔函数(也称为球 Hankel 函数)。

于是

$$\Pi_l^m(r, \theta, \phi) = z_l(nkr) Y_l^m(\theta, \phi).$$

分离球体波为 TM (电场有径向分量) 或者 TE 模 (磁场有径向分量),

TE:

$$\vec{E} = ink \nabla \times \vec{r} \Pi,$$

$$\vec{H} = \sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}} \nabla \times \nabla \times \vec{r} \Pi;$$

TM:

$$\vec{E} = \nabla \times \nabla \times \vec{r} \Pi,$$

$$\vec{H} = ink \sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}} \nabla \times \vec{r} \Pi.$$

其严格解分别为,

TE 模

$$\begin{aligned} E_r &= 0, & H_r &= \sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}} \frac{l(l+1)}{r} z_l(nkr) Y_l^m(\theta, \phi), \\ E_\theta &= -\frac{nk m}{\sin \theta} z_l(nkr) Y_l^m(\theta, \phi), & H_\theta &= \sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}} \frac{1}{r} \frac{d}{dr} [r z_l(nkr)] \frac{\partial}{\partial \theta} Y_l^m(\theta, \phi), \\ E_\phi &= -ink z_l(nkr) \frac{\partial}{\partial \theta} Y_l^m(\theta, \phi), & H_\phi &= \sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}} \frac{im}{r \sin \theta} \frac{d}{dr} [r z_l(nkr)] Y_l^m(\theta, \phi); \end{aligned}$$

TM 模

$$\begin{aligned} E_r &= \frac{l(l+1)}{r} z_l(nkr) Y_l^m(\theta, \phi), & H_r &= 0, \\ E_\theta &= \frac{1}{r} \frac{d}{dr} [r z_l(nkr)] \frac{\partial}{\partial \theta} Y_l^m(\theta, \phi), & H_\theta &= \sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}} \frac{nk m}{\sin \theta} z_l(nkr) Y_l^m(\theta, \phi), \\ E_\phi &= \frac{im}{r \sin \theta} \frac{d}{dr} [r z_l(nkr)] Y_l^m(\theta, \phi), & H_\phi &= ink \sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}} z_l(nkr) \frac{\partial}{\partial \theta} Y_l^m(\theta, \phi). \end{aligned}$$

1.1.2.2 介质球中的模式分布

下面考虑一个折射率为 n_s , 半径为 R , 球心为球坐标原点的介质球[15]。考虑到边界条件, 在球内, 精确的径向解为第一类球贝塞尔函数 $j_l(nkr)$; 在球外, 则表示为第二类球汉克尔函数 $h_l^{(2)}(nkr)$, 代表球外沿着径向向无限远传输的外向倏逝波。当 $R \gg \lambda$ 时, 电场分量可近似为径向和角向的偏振, 在球的边界内部 $r < R$, 场分布简化为

$$E_\theta \sim -\frac{n_s k m}{\sin \theta} j_l(n_s k r) Y_l^m(\theta, \phi), \text{ TE 模,}$$

$$E_r \sim \frac{l(l+1)}{r} j_l(n_s k r) Y_l^m(\theta, \phi), \text{ TM 模.}$$

在球外 $r > R$ (假设球外的折射率为 1),

$$E_\theta \sim -\frac{nk_m}{\sin \theta} \left[\frac{j_l(n_s k r)}{h_l^{(2)}(kR) h_l^{(2)}(kr)} \right] Y_l^m(\theta, \phi), \text{ TE 模,}$$

$$E_r \sim \frac{l(l+1)}{r} h_l^{(2)}(kr) Y_l^m(\theta, \phi), \text{ TM 模.}$$

以上就是回音壁模式的解析解。

可用四个指数(p, q, l, m)来表征回音壁模式。其中 p 表示偏振的模式 TE 或者 TM; q 是径向模式数, 描述球内球贝塞尔函数 $j_l(nkr)$ 的极大值的个数; l 是极角的模式数, 约等于沿着球的周长传播一周的波长数目 ($l = \frac{2\pi n_s R}{\lambda}$); m 为方位角模式数, 描述与对称轴的夹角 $\theta = 90^\circ$ 的赤道面内场强极大值的数目。 $l - |m| + 1$ 是 associated Legendre 函数 $P_l^m(\cos \theta)$ 在 $\phi = \text{const}$ 平面内的极大值的数目。

可从集成光学的角度形象化理解球内回音壁模式的传播。一个模式可以看成微球内沿着传播面(赤道面)内的 Z 字形的路径的轨迹。平行于表面, 在 Z 字形路径的方向, 模式的传播常数为 $\beta_l = \sqrt{l(l+1)}/R$, β_l 在赤道的投影 $\beta_m = m/R$ 通常被称为传播常数, 因为它是净传播方向上的波矢。对于每个固定的 l , m 的变化范围为 $|m| \leq l$ 。不同的 m 表示模式相对赤道以不同倾角 Z 字形路径传输。当 $m = l$, 特别是 $q = 1$ 时, 倾角最小, 它的弧度约等于 $1/\sqrt{l}$, 称为基模[15]。

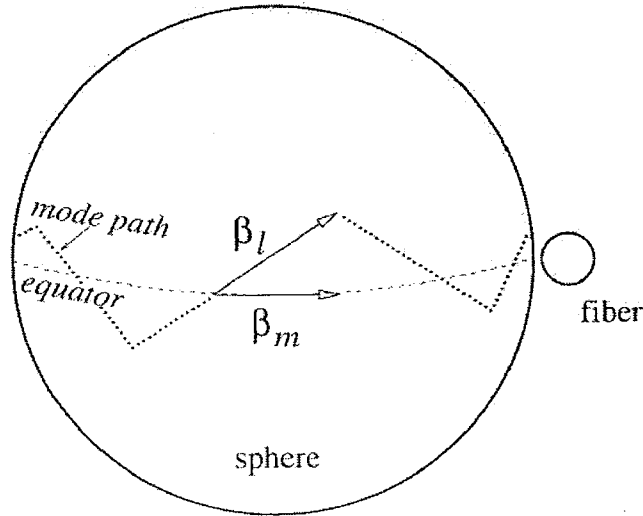


图1.5 由光纤激励的, 沿着赤道面传输的模式的传输常数示意图[16]。

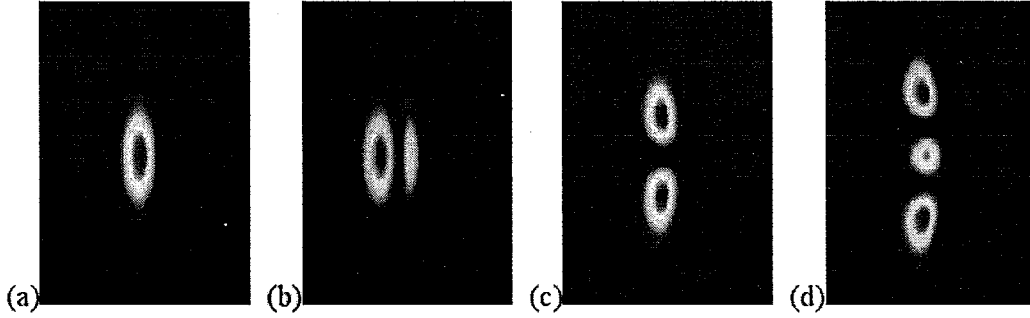


图1.6 直径为 $25\ \mu\text{m}$, $n_s = 1.45$ 的微球内的 TE 模式场强分布: (a)(b) $q = 1, 2$ 时对应的模式在径向的光强分布, q 对应极大值数目; (a)(c)(d)不同的方位角模式数 m 在 θ 方向不同的强度分布, 峰值数目分别为 $l - |m| + 1 = 1, 2, 3$ [17].

1.1.2.3 回音壁模式的特征方程

通过展开矢量球谐函数的场分布, 结合球界面上的电磁场切向分量的连续性, 其谐振位置可以由下面的特征方程求解[18]:

$$n_s^{1-2b} \frac{[n_s k R j_l(n_s k R)]'}{n_s k R j_l(n_s k R)} = \frac{[k R h_l^{(2)}(k R)]'}{k R h_l^{(2)}(k R)}, \quad (1.12)$$

其中 b 表示光学模式的偏振 (1 为 TM 模; 0 为 TE 模), $'$ 表示对自变量的微商。该方程的数值解为复数解, 对于每个 l , 上式直接给出了分立的波矢 $k_{q,l} = k_r + i k_i$, 实部与虚部分别决定了共振波长 ($\lambda = 2\pi/k_r$) 和辐射的品质因子 ($Q_{rad} = k_r/2k_i$)。当 l 很大时, 径向模式数约为 1, 大量基于特征方程的大渐进近似表达式已被用于计算球体腔的谐振位置[19]。

当 $R \gg \lambda$ 时, 比较精确、实用的谐振圆频率的表达式为

$$\omega_m^{(q)} = \frac{c}{n_a R} \left[\frac{\nu}{y} - \frac{\zeta_q}{y} \left(\frac{\nu}{2} \right)^{\frac{1}{3}} + \sum_{k=0}^{k_{max}} \frac{d_k(y, \zeta_q)}{\nu^{\frac{k}{3}} (y^2 - 1)^{(k+1)/2}} \right], \quad (1.13)$$

其中 $\nu = m + 1/2$, $y = n_s/n_a$, n_a 为腔外的折射率, ζ_q 为艾里函数 $\text{Ai}(-\zeta_q) = 0$ 的第 q 个根, ζ_q 的前五项为 2.338, 4.088, 5.521, 6.787, 7.944, 因子 d_k 取决于模式的偏振态[20]。上式其前 4 项为

$$\omega_m^{(q)} = \frac{c}{n_{aR}} \left[\frac{v}{y} - \frac{\zeta_q}{y} \left(\frac{v}{2} \right)^{\frac{1}{3}} + \frac{-p}{\sqrt{y^2-1}} + \left(\frac{v}{2} \right)^{-\frac{1}{3}} \frac{(\zeta_q)^2}{20y} + O \left(\frac{v}{2} \right)^{-\frac{2}{3}} \right], \quad (1.14)$$

其中 p 是一个与偏振有关的因子

$$p = \begin{cases} 1 & TE \\ \frac{1}{y^2} & TM \end{cases}.$$

实验测得的自由光谱范围(FSR: 定义为相邻两个方位角模式的间隔)可用式(1.14)计算,

$$\Delta\omega_{FSR} \equiv \left| \omega_m^{(q)} - \omega_{m+1}^{(q)} \right| \approx \frac{c}{n_{sR}} \left(1 - \zeta_q \frac{m^{-\frac{2}{3}}}{3} \right).$$

$$\Delta\lambda_{FSR} = \frac{\lambda^2}{2\pi c} \Delta\omega_{FSR}$$

1.1.3 微腔性能的特征

品质因子以及模式体积分别表征了微腔在时间、空间上对光的约束能力, 是两个重要的参数。

1.1.3.1 品质因子

品质因子的定义为

$$Q = \frac{2\pi \text{存储的能量}}{\text{每循环一周的损耗}}, \text{ 或 } Q = -\frac{\omega W}{dW/dt},$$

其中 W 是平均时间存储的能量, ω 是角频率。所以

$$W(t) = W_0 \exp\left(-\frac{\omega t}{Q}\right).$$

腔模中一个光子的寿命是 $\tau = Q/\omega$ 。腔内电场分布为

$$E(t) = E_0 \exp(i\omega t - \frac{\omega}{2Q} t).$$

在共振频率 ω_c 附近, 腔内的能量分布

$$|E(t)|^2 \propto \frac{1}{(\omega - \omega_c)^2 + (\frac{\omega_c}{2Q})^2},$$

是洛伦兹线型。因此可以简单地定义为共振腔模频率与腔模线宽的比率

$$Q = \frac{\omega_c}{\delta\omega_c}.$$

实际的 Q 值扣除由辐射损耗, 腔内材料的吸收、散射或者增益等造成的损耗。

$$\frac{1}{Q_{total}} = \frac{1}{Q_{mat}} + \frac{1}{Q_{rad}} + \frac{1}{Q_{ss}} + \frac{1}{Q_{contom}} + \frac{1}{Q_{coupling}} = \frac{1}{Q_{intrinsic}} + \frac{1}{Q_{coupling}}.$$

总的 Q 值由本征损耗、耦合损耗组成。其中本征损耗来自腔体材料的损耗、弯曲介质腔的辐射损耗、表面瑕疵造成的散射损耗、表面或者内部玷污损耗。耦合损耗来自输入/输出造成的能量损耗。腔体材料的均匀度、透明度会影响 Q 值，一般而言晶体材料的材料损耗比较低。当波长为 850 nm-1600 nm 时，二氧化硅本征吸收所限制的最大 Q 值[21]为 2.5×10^{10} 。对 10 微米以下，折射率为 1.45 的微腔，辐射损耗占主导地位；对中等尺寸的微腔，表面粗糙造成的损耗起主要作用，对石英玻璃微腔，可在表面涂覆聚合物、或者又表面热处理引起的表面张力来降低表面的粗糙度。而表面的玷污，对非晶态的玻璃，主要来自水分的吸收。

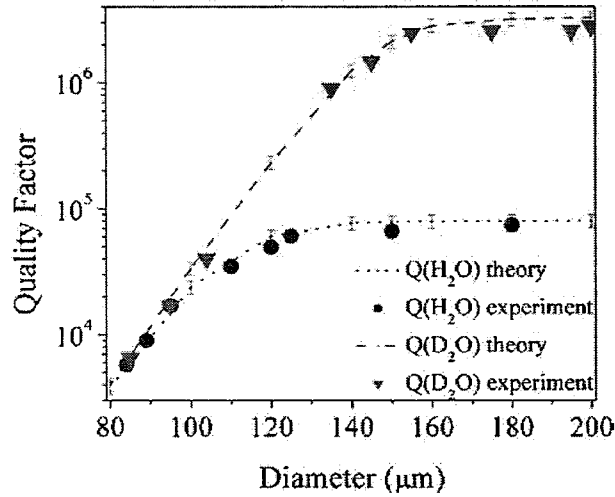


图1.7 1550 纳米波段，泡在水中、重水中的微腔的品质因子与尺寸的关系[22]。

微腔的锐度 F (finesse) 定义为自由光谱范围除以腔模的线宽。对方位角对称的、半径为 R ，有效折射率为 n_{eff} 的微腔，FSR 近似为

$$\Delta\lambda_{FSR} \approx \frac{\lambda^2}{2\pi n_{eff} R},$$

$$\Delta\nu_{FSR} \approx \frac{c}{2\pi n_{eff} R},$$

对波长量级的微腔，由于模式的频率间隔相似于腔模频率， Q 与 F 没有大的区别。

$$F = \frac{\Delta\lambda_{FSR}}{\Delta\lambda} = \frac{\lambda Q}{2\pi n_{eff} R}.$$

1.1.3.2 腔模式体积

每个腔模占有的体积取决于微腔的谐振场分布。小的模式体积意味着光场被紧局限于亚立方微米到几千立方微米的物理空间，可以产生很高的能量密度，在非线性光学，乃至量子光学领域有重要的价值。模式体积可定义为：

$$V_m = \frac{\int_V \epsilon(\vec{r}) |\vec{E}|^2 d^3\vec{r}}{\max(\epsilon |\vec{E}|^2)}, \quad (1.15)$$

其中 V 为积分体积, E_{max} 为场的最大值。腔内的循环功率 P_{circ} 与输入功率 P_{input} 的关系为[23]

$$P_{circ} = \frac{\lambda Q_{intrinsic}}{\pi^2 n_{eff} R} \frac{Q_{intrinsic}/Q_{coupling}}{(1 + \frac{Q_{intrinsic}}{Q_{coupling}})^2} P_{input}. \quad (1.16)$$

对于超高 Q 值(10^9), 在最佳耦合下, 腔内循环的功率可为输入功率的 10^5 - 10^6 倍。

1.1.4 回音壁模式的耦合

1.1.4.1 耦合的方式

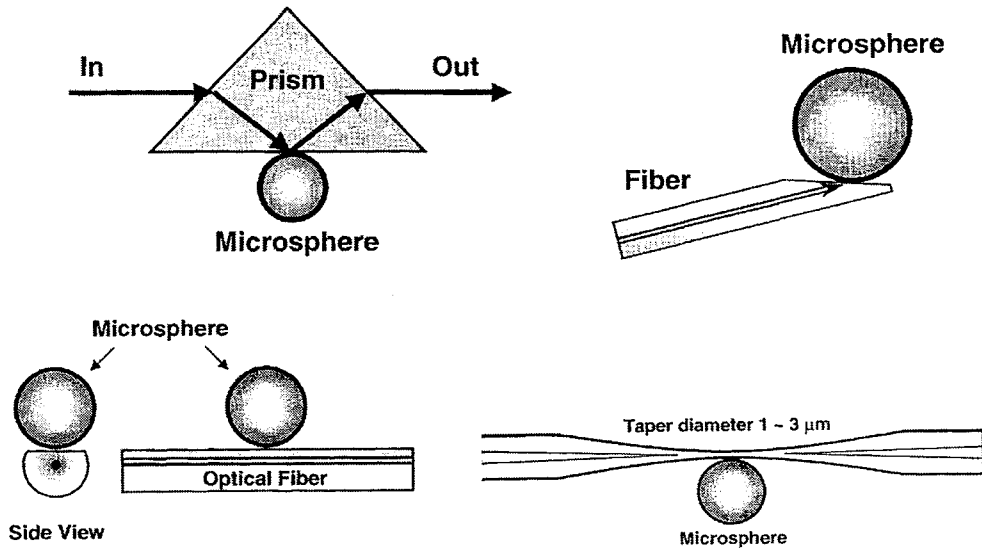


图1.8 相位匹配耦合方式: 左上为高折射率棱镜与微球耦合[8]、右上为角度抛光的光纤与微球耦合[25]、左下为D型光纤与微球耦合[26]、右下为光纤锥与微球耦合[27-28]。

研究光学微腔的光学性质, 一般需要对微腔进行光学激励和探测; 利用微腔来实现非线性光学效应、生物传感、腔机械效应等应用时, 也需要对腔模进行激励以及有效地提取腔中的能量。耦合的本质就是选择性地破坏回音壁模式的旋转对称性[17]。对微腔进行耦合, 有两类主要的技术: 相位匹配耦合与非相位匹配

耦合。对超高 Q 值的微腔，腔模具有可以忽略不计的辐射损耗，且其模式分布具有旋转对称性，通过自由空间的光照射等非相位匹配技术，很难对腔模进行有效地耦合；而对非对称微腔，回音壁模式的泄漏不是各向同性的，可以用自由空间传输的光对非对称微腔进行耦合，但它的耦合效率与微腔的定向发射性质密切相关。相位匹配技术可以分为直接耦合和近场倏逝波耦合两类。对直接耦合，比如在微腔的表面制备了光栅耦合器[24]，具有直接在自由空间照射或者发射的优势；不过其对微腔本征性质带来不确定的影响。利用外部的耦合器，比如高折射率棱镜[8]、角度抛光（angle-polished）的光纤[25]、D 型光纤波导[26]，光纤锥[27-28]，可对腔模进行有效的耦合，其中光纤锥的耦合效率可以达到 99.8%，光纤锥对非共振模的损耗低至 0.1 dB。对棱镜耦合，当光在棱镜发生全内反射时，光反射区的外部倏逝波有可能与腔模重叠，调节光束的入射角可实现相位匹配。通过在棱镜输出端观测与腔模相互作用的光谱，即可观察到腔模。该方法允许激励单个腔模。但它有缺点，比如它笨重，也很难集成。

1.1.4.2 光纤锥

光纤锥由平缓变细的锥部以及束腰部分组成。光从标准光纤传输到束腰部分会由于模式不匹配而引起光泄漏，而束腰部分就是光纤锥与微腔耦合的工作区。将束腰部分近似为由原来的包层光纤以及外围空气构成的阶跃型圆柱形波导，结合边界条件，求解麦克斯韦方程组可得到导波模式[29]。其传输常数 β 由下式决定：

$$\left(\frac{J_l'(ha)}{haJ_l(ha)} + \frac{K_l'(qa)}{qaK_l(qa)} \right) \left(\frac{n_1^2 J_l'(ha)}{haJ_l(ha)} + \frac{n_2^2 K_l'(qa)}{qaK_l(qa)} \right) = l^2 \left[\frac{1}{(qa)^2} + \frac{1}{(ha)^2} \right]^2 \left(\frac{\beta}{k} \right)^2, \quad (1.17)$$

其中 $q^2 = \beta^2 - n_2^2 k^2$, $h^2 = n_1^2 k^2 - \beta^2$, $k = \omega/c$, n_1, n_2 分别为纤芯和包层的折射率, J_l, K_l 分别为第一类、第二类贝塞尔函数, l 为非负的整数, a 为芯径的半径。由(1.17)式得到的传播常数的本征值表示为 β_{lm} , $l = 0, 1, 2, \dots, m = 1, 2, \dots$, 下标 m 表示超越方程(1.17)的第 m 个根, 最低阶的模 HE_{11} 的传播常数为 β_{01} , 对应的模记为 LP_{01} 。当 $l = 0$ 时, $U = \frac{2\pi a}{\lambda} \cdot \sqrt{n_1^2 - n_2^2} = \sqrt{(ha)^2 + (qa)^2}$, 决定了阶跃圆光纤能够传输的模式数目。将 $qa = \sqrt{U^2 - (ha)^2}$ 带入(1.17)式, 就可用数值图解法确定 LP 模的 ha 。

当 $U < 2.405$ 时, 光纤锥中只允许一个导波模式 LP_{01} , 该模式不管 U 的取何值, 总存在, 也即 HE_{11} 不存在截止频率。当 $U = 2.405$ 时 LP_{11} 开始出现。所以, 单模 HE_{11} 传输条件为 $\frac{2\pi a}{\lambda} \cdot \sqrt{n_1^2 - n_2^2} < 2.405$ 。当 $\lambda = 1550 \text{ nm}$, $n_1 = 1.45$, $n_2 = 1$ 时, $2a < 1.13 \text{ }\mu\text{m}$ 。

1.1.4.3 光纤锥与微腔耦合

把光耦合进微腔需要三个条件：(1)光纤锥的倏逝波和腔模在空间重叠；(2)激励的光波长与腔模共振；(3)光纤锥的传输常数在一定程度上与腔模的传输常数匹配。当光纤锥的基模传输常数与腔模的传输常数一致时，耦合效率才最佳。在实际操作中，通过改变光纤锥束腰的尺寸来实现光纤锥传输常数与腔模的传输常数的匹配，以此来实现相位匹配；通过改变光纤锥相对微腔的距离来控制空间重叠。使光纤锥保持微小的张力，可以抑制光纤锥的振动。下面讨论单模光纤锥与微腔耦合的动力学方程。

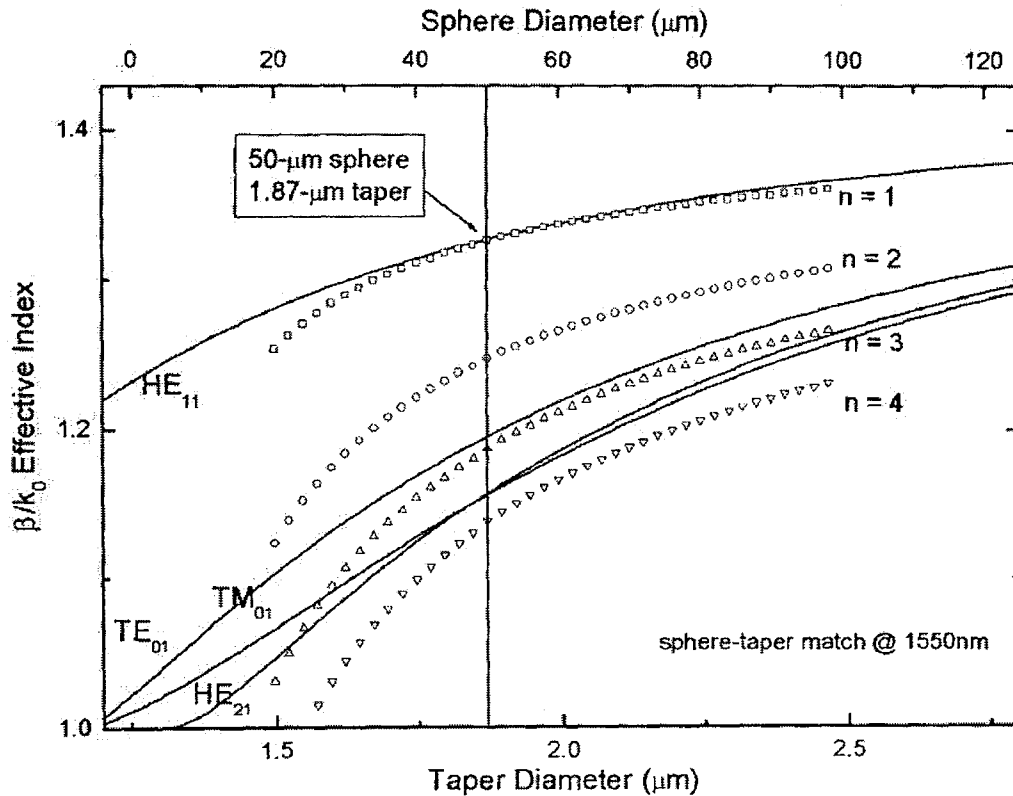


图1.9 光纤锥在 1550 nm 附近支持的模式与尺寸的关系(实线)；微球的不同径向模式 q 的有效传播常数与微球尺寸的关系[15]。

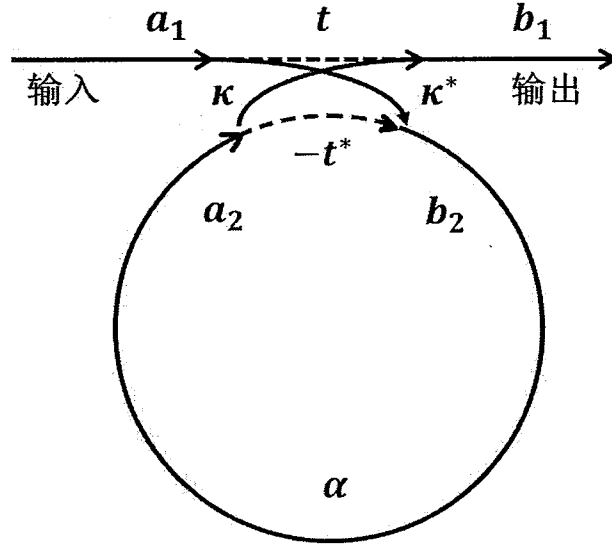


图1.10 光纤锥与微腔耦合的动力学示意图[30]。

首先假设在耦合区散射到辐射模的功率损耗可以忽略，光纤锥近似无损，简化理论模型。设光纤锥的归一化输入、输出场强分别表示为 a_1, a_2 ; $\kappa^*, \kappa, t, -t^*$ 分别表示从光纤锥单模耦合到微腔的耦合因子、从微腔耦合到光纤锥的耦合因子、光纤锥两端直接透射系数、微腔中的透射系数， α 为腔中循环一周的吸收系数。耦合区的模式动力学方程[30]可写为：

$$\begin{aligned} b_1 &= ta_1 + \kappa a_2, \\ b_2 &= -\kappa^* E_i(t) + t^* a_2, \end{aligned}$$

其中， $|t|^2 + |\kappa|^2 = 1$ 。取 $a_1 = 1$ ，而 $a_2 = \alpha e^{i\theta} b_2$ ，由此可得

$$b_1 = \frac{-\alpha + te^{-i\theta}}{-\alpha t^* + e^{-i\theta}}, \quad a_2 = \frac{-\alpha \kappa^*}{-\alpha t^* + e^{-i\theta}}.$$

光纤输出端的功率（此即透射率 T ）为

$$|b_1|^2 = \frac{\alpha^2 + |t|^2 - 2\alpha|t|\cos(\theta + \varphi)}{1 + \alpha^2|t|^2 - 2\alpha|t|\cos(\theta + \varphi)}, \quad (1.18)$$

其中 $t = |t|\exp(i\varphi)$ ，而腔内总的循环功率为

$$|a_2|^2 = \frac{\alpha^2(1 - |t|^2)}{1 - 2\alpha|t|\cos(\theta + \varphi) + \alpha^2|t|^2}, \quad (1.19)$$

最令人感兴趣的地方时，当 $(\theta + \varphi) = 2m\pi$ 时， m 为整数，微腔发生谐振。此时

$$|b_1|^2 = \frac{(\alpha - |t|)^2}{(1 - \alpha|t|)^2}, \quad (1.20)$$

$$|a_2|^2 = \frac{\alpha^2(1-|t|^2)}{(1-\alpha|t|)^2}, \quad (1.21)$$

当 $|t| = \alpha$ ，即耦合损耗等于腔内损耗时，透射率为零，耦合率为 100%，称为临界耦合，此时从微腔耦合出来的光与光纤锥中的光有 π 的相位差，形成相消干涉，透射率为 0；

当 $|t| < \alpha$ 时，这时光纤锥离微腔较远，对腔模的影响较小，称为欠耦合；

当 $|t| > \alpha$ 时，这时光纤锥离微腔较近，对腔模的影响较大，称为过耦合。

当腔中的功率降为谐振时功率的一半时，即

$$\frac{\alpha^2(1-|t|^2)}{1-2\alpha|t|\cos(\theta+\varphi)+\alpha^2|t|^2} = \frac{\alpha^2(1-|t|^2)}{2(1-\alpha|t|)^2}。$$

对 $\cos(\theta + \varphi)$ 做泰勒展开，保留到 $(\Delta\theta)^2$ ， $\cos(\theta + \varphi) \approx 1 - \frac{1}{2}(\Delta\theta)^2$ ，求得

$$\Delta\theta = \frac{1-\alpha|t|}{\sqrt{\alpha|t|}}。$$

而由 $\theta = \omega \cdot 2\pi nR/c$ ，即有 $\Delta\omega = \frac{c}{2\pi nR} \Delta\theta$ ，半高全宽 $\delta\omega = 2\Delta\omega$

$$\delta\omega = \frac{c}{\pi nR} \frac{1-\alpha|t|}{\sqrt{\alpha|t|}}。$$

求得品质因子

$$Q = \frac{\omega}{\delta\omega} = \frac{2\pi^2 nR}{\lambda} \frac{\sqrt{\alpha|t|}}{1-\alpha|t|}。$$

通常会在光路中加入一光纤偏振控制器，来调节耦合进微腔中的光的偏振，激发微腔内不同偏振态的共振模。对于多模光纤锥对微腔的耦合，通过优化光纤锥的尺寸、光纤锥与微腔的相对位置，也可以实现很高效率的单模耦合[31]

1.1.5 回音壁模式微腔的应用

回音壁模式微腔可把光长时间地紧束缚在很小的物理空间中，即使单个光子也能在腔内产生非常强的电场，在科学研究与实际应用有很多前景。为了满足不同的需要，不同构型的微腔，比如bottle微腔[32]、微球腔[33]、锯齿状微腔[34]、微芯环腔[35]等被提出，材料也从非晶态玻璃[8-9、33、35]、半导体[13、34]覆盖到了晶体材料[36-41]、正如文献[42-43]所概括的，回音壁模式光学微腔可用作高效的滤波器，高灵敏的生物、温度传感器，低阈值激光器，非线性效应，信号延时器，腔机械和腔量子电动力学等。利用相干的光子-原子，光子-声子相互作用，以及微腔内光与原子或者介质的强相互作用，可以将量子态在不同的物理体系中传递，有望应用于量子态的存储和操控；实现单光子尺度下的非线性光学效应，制备单光子源和纠缠光源，用作量子信息处理芯片。

1.1.5.1 低阈值微激光器

由于回音壁模式微腔具有很低的损耗和小模式体积,它可以极大地降低激光器的激射阈值(最低为纳瓦)。微腔通过稀土离子掺杂、在表面涂覆量子点或染料增益层,或者直接利用半导体有源微腔,就可以实现低阈值激射[13]。通过选用不同的增益材料,可得到不同的工作波长。对于规则的微腔,激光输出为各向同性的;为了改善出射的方向性,可以引入变形量,使得微腔的旋转对称性被破坏,通过有目的制备不同面型的微腔,比如跑道型、螺旋型、圆角等腰三角形等等,实现定向发射,甚至单向、低发散角的发射,也可以用于模拟量子混沌,如综述[44]所概括。但这些形变一般会降低微腔的品质因子。变形微腔的研究热点之一是在保持高品质因子的前提下,实现低发散角的单向定向发射;或者在腔量子电动力学里,受限于低温环境的小体积,很难在低温冷阱里面放置近场耦合器件,就需要用到定向发射。

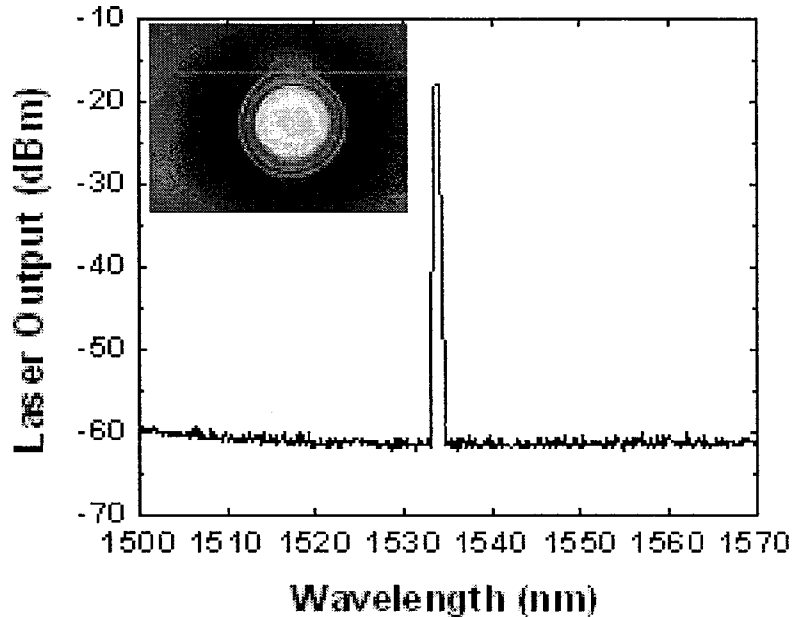


图1.11 低阈值 660 nW 溶胶凝胶掺铒微激光器[45]。

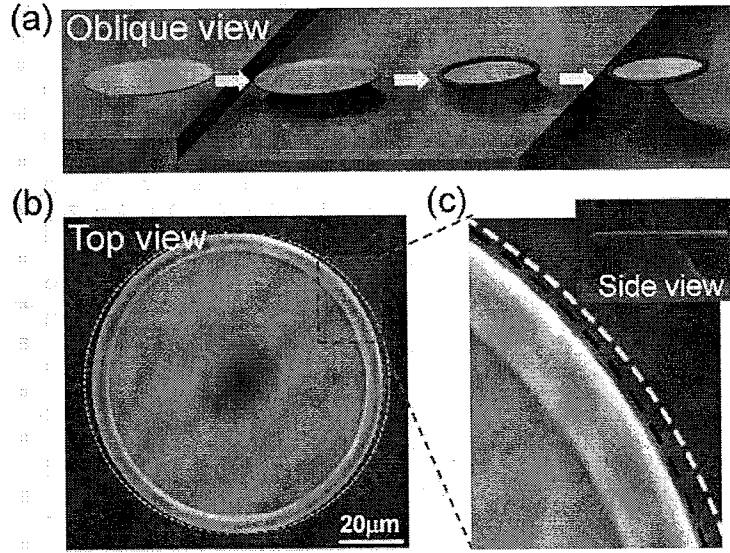


图1.12 非对称变形微腔[46]。

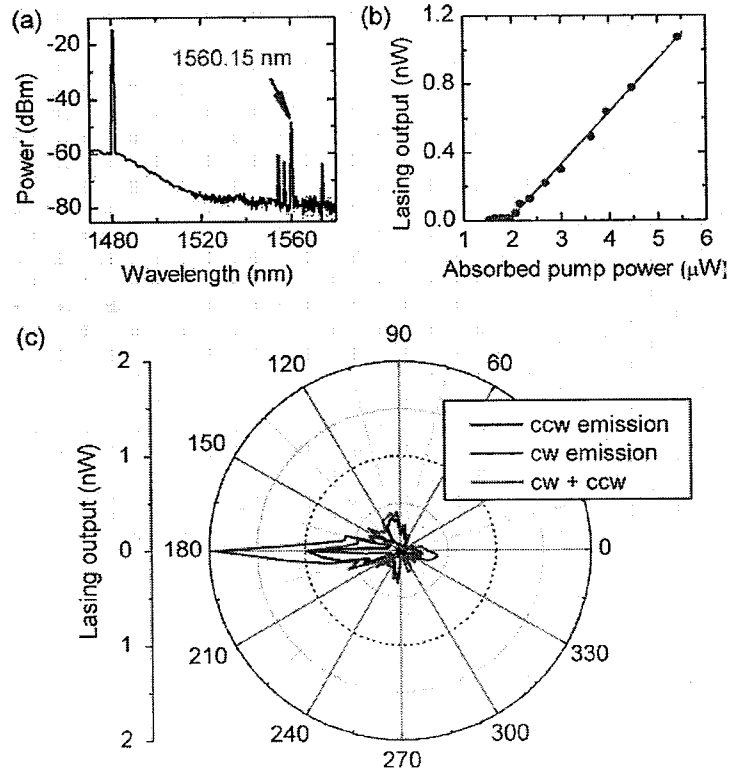


图1.13 非对称变形微腔的定向发射（发散角 15° ）[46]。

1.1.5.2 非线性效应

由于高的品质因子与小的模式体积,即使很弱的输入光,在微腔里面也很容易得到很高的能量密度。利用微腔的超高 Q 值的谐振增强效应,可将非线性光学效应的阈值将至微瓦量级。比如对 50 微米的高 $Q=10^8$ 二氧化硅微芯环腔, 300 μW 的输入功率,可在腔内产生 $1 \text{ GW}/\text{cm}^2$ 级别的场强,足以产生三阶非线性光学效应。科学家已经实现了包括受激拉曼[33]、受激布里渊[47、48]、参量振荡[49]、四波混频[50]、三倍频[51]等三阶非线性效应,利用超参量过程,结合四波混频,选择合适的尺寸、材料(二氧化硅、氟化镁等)控制群速色散,可产生带宽超过 300 nm 的光学频率梳[50、41],以及倍频[36]、频率下转换[52、53]等二阶非线性效应。

在腔中有效实现参量过程的非线性效应的关键在于满足相位匹配。微腔中所有参与参量非线性过程的频率要落在腔模上才能实现有效的谐振增强。所以要有一组腔模:频率满足能量守恒条件,模式数满足(角)动量守恒条件。适度增大微腔的尺寸,可以降低模式间隔,增大模式密度,比较容易实现相位匹配。比如,二氧化硅的拉曼带宽为 10 THz,所以比较容易实现拉曼激射[33];而相应的布里渊带宽只有 100 MHz,因此需要毫米量级的腔,来增大该带宽与腔模匹配的概率[47-48]。Vahala 小组通过在微芯环腔表面涂覆高折射率介质,在不同径向模式上实现了三倍频相位匹配[51],并且抑制与之竞争的拉曼和光学参量振荡过程,实现了三倍频。为了在铌酸锂晶体腔实现光学参量振荡,腔的直径一般都在 1.5 毫米以上,这样就可以保证泵浦光、信号光、闲置光都可以与某些特定的腔模共振,甚至采用温度调谐信号光的频率,也能实现这三重谐振[52],称为三重谐振腔。

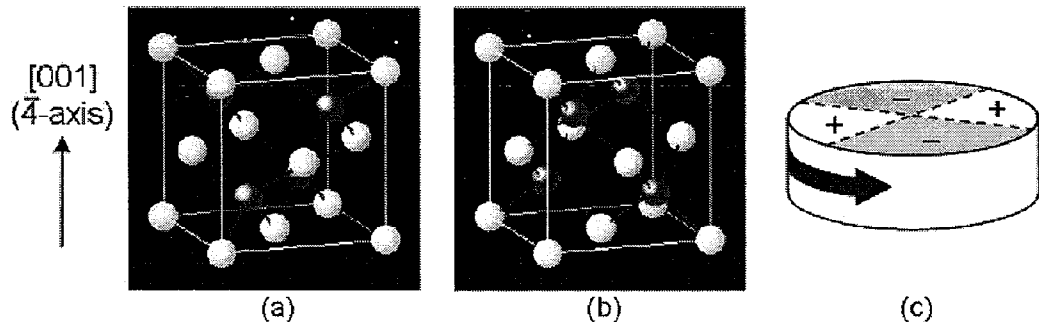


图1.14 (a)(b)闪锌矿晶体结构, (c)GaAs 晶体绕着 $\bar{4}$ 轴旋转 90° , 具有反演对称性[51]。

二阶非线性效应一般是在晶体腔或者半导体腔中实现。这是由于它们一般拥有大的二阶非线性系数。在自然相位匹配铌酸锂晶体腔中, 30 μW 的泵浦功率可获得 9%的倍频转换效率[55]。其中抑制倍频光与基频光的走离是关键。因此很

多转相位匹配技术被引入，比如通过开关调制[56]、调制二阶非线性系数的幅度[57]等产生极化翻转[58-59]。利用周期极化的铌酸锂晶体[36]，或者拥有 $\bar{4}$ 晶体对称性的 GaAs，比较容易产生大的转换效率[60]，后者的归一化转换效率可达 $5 \times 10^{-5} \text{ mW}^{-1}$ 。利用腔增强的频率下转换，还可以产生强的单光子源[61]，光子纠缠态。

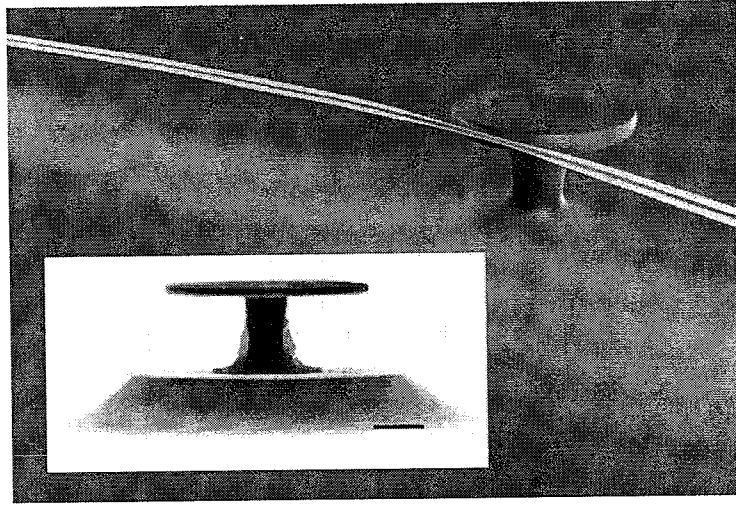


图1.15 光纤锥耦合的、直径 5 微米的 GaAs 微盘产生二倍频效应的示意图[60]。

1.1.5.3 滤波器

在光通讯领域中，更好隔离度、更窄线宽、适当的自由光谱范围的滤波器一直是人们梦寐以求的。90 年代末，Little 提出了基于微环腔与波导的耦合系统来实现滤波[62]的方案：将一个与微环耦合的波导作为输入端，另一个与微环耦合的波导作为输出端。输入端中，仅有频率与腔的谐振频率一致的信号光才可以耦合进微腔，并从输出端耦合出来，从而达到滤波的目的。

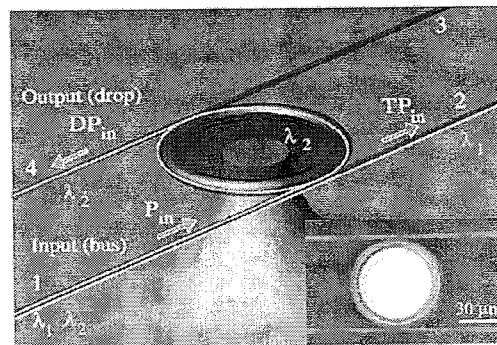


图1.16 四端耦合的光学滤波器示意图[63]。

为了获得更大的自由光谱区，更窄的线宽（隔离度），通常要在滤波系统中

加入多个尺寸有讲究的微腔，形成级联，通过级联微腔的尺寸来控制自由光谱范围[64]。

在实际应用，一般会要求有一定的波长滤波动态调谐范围，为了达到此目的，一般采取改变微腔腔体材料的折射率，比如热光调谐，电光调谐，载流子注入，来实现波长调谐。

1.1.5.4 高灵敏度传感

对回音壁模式微腔，能量主要被约束在腔内，还有少部分能量以倏逝波的形式泄漏在腔外几百纳米到一微米范围。当微腔外部所处的环境（体环境）或者微腔的表面被黏附纳米颗粒或生物分子时，就会引起腔模的频率漂移。由于腔的品质因子很高，谐振谱线的线宽很窄，即使微小的漂移，也很容易被观察到，因此可实现高灵敏的探测。传感除了利用频率漂移的机制以外，还可以采用纳米颗粒、分子黏附于微腔表面造成的模式劈裂，随着纳米颗粒、分子的增多，模式还会展宽。

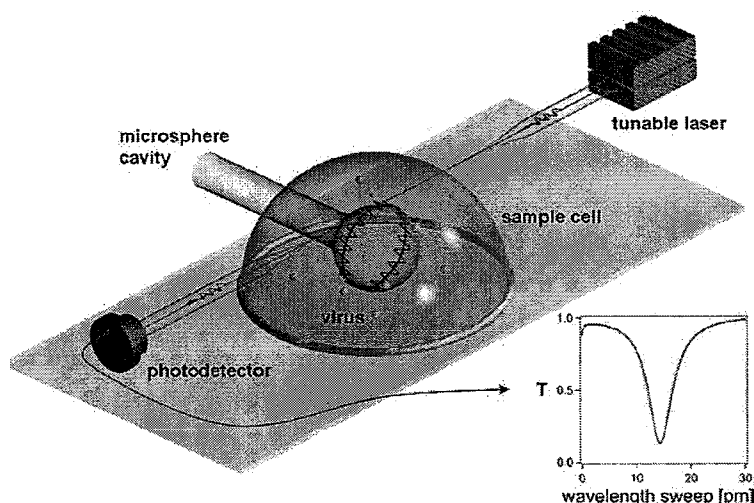


图1.17 单个病毒分子的探测[67]。

比如生物传感，经过表面敏化处理的微腔放置在特定的液体中，使生物分子被吸附到微腔表面。2002 年科学家就利用微球腔探测蛋白质分子[65]，并在理论上预言了该方法可探测单个蛋白质分子[66]；2008 年科学家利用微球腔探测到了单个病毒分子[67]，测量得到的病毒分子的半径约为 47 nm，质量为 5.2×10^{-16} g；利用模式体积更小的微芯环腔[68]，可把单个病毒分子的半径探测极限降为 12.5 nm。在此类精密测量中，一般需要极其稳定的窄带激光器，以避免激光器谱线漂移或者温度漂移带来的测量误差。后来研究人员利用微腔内的自参考的模式劈裂来进行传感探测[69]。当分子或者纳米颗粒黏附于微腔表面时，会形成传输谱线的劈裂，通过比较该谱线先后线宽以及劈裂的宽度信息就可得到所黏附颗粒

的尺寸（小至 30 nm）。为了进一步提高生物传感的灵敏度，需要将被动腔换为有源腔[70]，进一步把对纳米颗粒的尺寸探测极限推至 10 nm，这是因为有源激光的线宽更窄。

1.1.5.5 腔-光机械(Cavity Optomechanics)

光场对宏观的物体会产生力的作用，称为辐射光压，它在光镊、激光冷却原子等领域发挥了广泛的应用。图 2.18 为典型的 F-P 腔光机械系统，其中一面腔镜固定在弹簧上。当光在可移动的腔镜上反射时，动量会发生变化，产生了光压[71]。光压引起腔镜的移动，即改变腔长，也意味着谐振腔的谐振频率发生了变化，导致腔内的能量也发生变化。由于光子有一定的寿命，光学模式、力学模式的再稳定，需要一定的时间延迟，这就是动态反作用。这种作用，一般要求力学和光学的品质因子都要相当高，比如机械振动周期要大于或等于光子寿命。当泵浦光的频率大于固有的谐振频率时，称为蓝失谐，这将导致机械振动的放大；反之，则称为红失谐，这会引起机械振动的冷却。

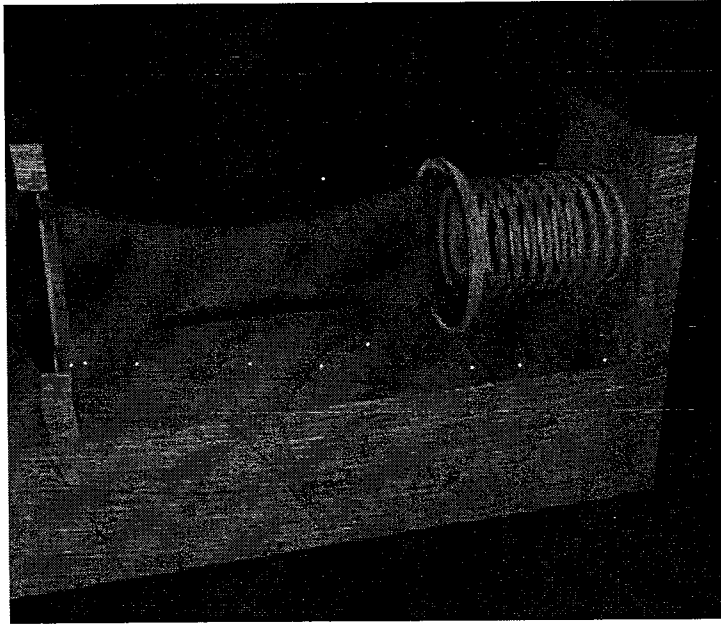


图1.18 光机械力学示意图[71]。

光机械力学系统的哈密顿量[71]为：

$$\hat{H} = \hat{H}_{mech} + \hat{H}_{opt} + \hat{H}_{int} + \hat{H}_{drive},$$

$$\hat{H}_{mech} = \frac{\hat{p}^2}{2m_{eff}} + \frac{1}{2}m_{eff}\omega_m^2\hat{x}^2,$$

$$\begin{aligned}\hat{H}_{opt} &= \hbar\omega_c \left(\hat{a}^\dagger \hat{a} + \frac{1}{2} \right), \\ \hat{H}_{int} &= \hbar g_0 \hat{x} \hat{a}^\dagger \hat{a}, \\ \hat{H}_{drive} &= i\hbar\sqrt{\eta_c\kappa}(\bar{s}_{in}\hat{a}^\dagger e^{-i\omega_1 t} - \bar{s}_{in}^* \hat{a} e^{i\omega_1 t}),\end{aligned}$$

其中 $\hat{x}$ 、 $\hat{p}$ 是力学位移是动量算符。 $\hat{a}^\dagger$ 、 $\hat{a}$ 是光学模式的产生、湮灭算符。 $n = \hat{a}^\dagger \hat{a}$ 是腔内的光子数算符， ω_1 为激光频率， ω_c 为谐振腔的固有频率， ω_m 为机械振子的振动频率。驱动振幅 $\bar{s}_{in}$ 是相对于腔输入端的归一化的光子流量， $|\bar{s}_{in}|^2 = P_{in}/\hbar\omega_1$ ， $g_0 = \frac{\partial\omega_c}{\partial x} = -\frac{\omega_c}{R}$ ，为谐振频率相对腔的尺寸的变化率，光子衰减率为光子寿命的倒数， $\kappa = 1/\tau$ ， $\eta_c = \tau_0/(\tau_0 + \tau_{ex})$ 。辐射压力：

$$F_{rp} = -\frac{\partial\hat{H}_{int}}{\partial\hat{x}} = -\hbar g_0 \hat{a}^\dagger \hat{a}.$$

在旋转坐标下，对腔场做线性近似 $\hat{a} = \langle\hat{a}\rangle + \hat{a}$ ，得[64]

$$\hat{H} = \hbar (G\hat{a}^\dagger e^{i\delta t} + G^* \hat{a} e^{-i\delta t})(\hat{b} e^{-i\omega_m t} + \hat{b}^\dagger e^{i\omega_m t}),$$

其中失谐量 $\delta = \omega_c - \omega_1$ ，有效耦合强度 $G = g_0 \langle\hat{a}\rangle$ ， $\hat{b}$ 为力学模式湮灭算符。当失谐量为蓝失谐 $\delta = -\omega_m$ 时，在旋转波近似下，

$$\hat{H} = \hbar(G\hat{a}^\dagger \hat{b}^\dagger + G^* \hat{a} \hat{b}).$$

通过这种作用，可以制备声子与光子的纠缠态，用于量子信息处理。而当红失谐 $\delta = \omega_m$ 时，

$$\hat{H} = \hbar(G\hat{a}^\dagger \hat{b} + G^* \hat{a} \hat{b}^\dagger).$$

通过这个过程，可以实现光子态与机械态的相干转换；可以将振子连接到光学热库中，把声子的有效温度降低，把声子冷却到基态[64]。

而回音壁微腔至少有 10^{15} 个原子，可视为宏观的物体，从而通过光力相互作用，把量子效应过渡到宏观经典效应。

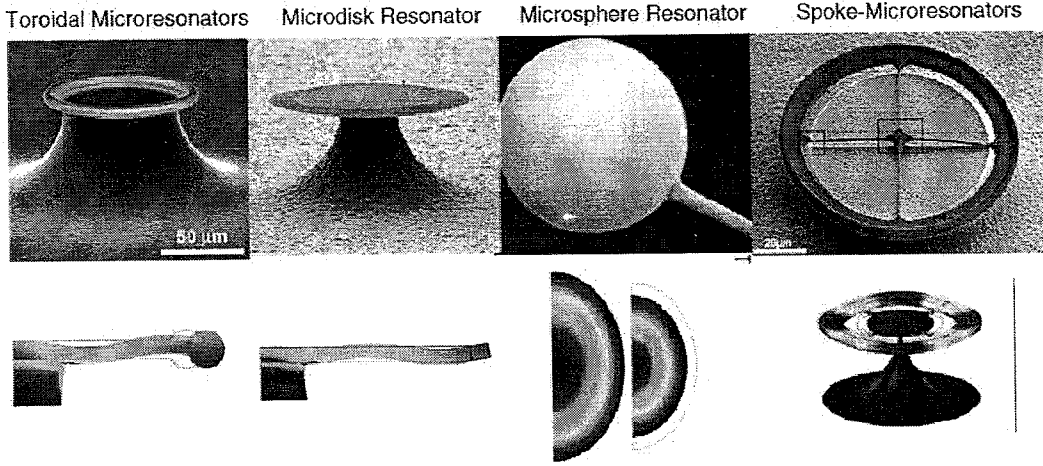


图1.19 基于回音壁模式微腔的光机械力学。上排图为扫描电镜，下排为与光学模式强烈耦合的力学模式的位移[71]。

1.1.5.6 腔量子电动力学(Cavity-QED)

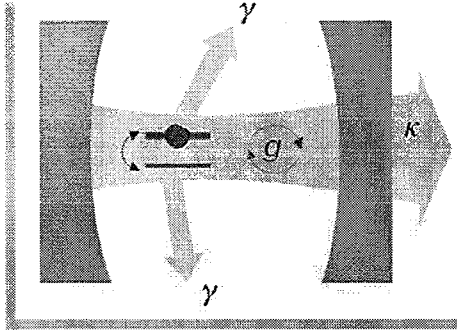
对于基于光与物质相互作用的量子信息处理，如何提高它们之间的相互作用是关键所在。腔量子电动力学研究的是量子化的腔场与原子的相互作用。腔量子电动力学表明，物质中的偶极子的自发辐射会受到特定边界条件下量子化的电磁场的调制，比如，至于微腔中的原子或者离子，其自发辐射速率在频率与腔模匹配时得到增强，与腔模失谐时受到抑制。这就是 Purcell 效应[156]。Jaynes-Cummings 模型描述了一个二能级系统与一个单模腔场相互作用的动力学过程。相互作用的哈密顿算符[72]为：

$$H_0 = \frac{1}{2} \hbar \omega_a \sigma_z + \hbar \omega_c a^\dagger a + \hbar (g a^\dagger \sigma_- + g^* a \sigma_+),$$

其中 ω_a, ω_c 对应于原子的跃迁频率和腔模的共振频率；算符 $a^\dagger, a$ 是腔模光场的产生、湮灭算符； σ_+, σ_- 是原子的上升、下降算符； g 腔模与原子的相干耦合强度。在共振情形，可以得到两个本征值

$$E_{n,\pm} = \hbar(n\omega_f \pm g\sqrt{n}).$$

在频谱上，相应的能级劈裂为两个新的能级。劈裂的大小为 $\Delta E = 2g\sqrt{n}$ ，对于第一激发态，劈裂大小为 $2g$ ，这就是真空 Rabi 劈裂。



量子 真空Rabi振荡、光场非
现象：经典效应、粒子/光场
的纠缠等；

量子 单光子源产生、纠缠态
应用：产生、量子信息的存储、
量子计算操作等。

图1.20 Cavity-QED 示意图[157]

在考虑腔模损耗（泄漏速率为 $\kappa \equiv \omega/(2Q)$ ）以及原子本身与泄漏的腔模以及局域真空场的耦合，设自发辐射耗散到非腔模电场（泄漏的腔模以及局域真空场）的速率为 γ ，在 Heisenberg 绘景下，原子的偶极动量与极化强度写为：

$$\frac{d\alpha(t)}{dt} = -\kappa\alpha - ig\rho,$$

$$\frac{d\rho(t)}{dt} = -ig\alpha - \gamma\rho.$$

令 $\alpha(t) = Ae^{\lambda t}$ ， $\rho(t) = Be^{\lambda t}$ ，可得到方程组的本征值：

$$\lambda_{\pm} = -(\kappa + \gamma)/2 \pm \sqrt{\frac{(\kappa - \gamma)^2}{4} - g^2}.$$

1. 当 $g \ll (\kappa, \gamma)$ ，此时原子与腔处于弱耦合条件，原子与腔的耦合强度远大于光子寿命，处于激发态的原子的能量耦合到腔模之后，光子会迅速逃逸出腔模。原子的衰减、腔模的衰减仍为指数衰减，但衰减速率受到调制。其自发辐射速率为

$$\gamma = |g|^2 \frac{2\kappa}{(\omega_c - \omega_a)^2 + \kappa^2},$$

与模式 ω_c 共振的发光 ω_a 会得到增强。

(1) 当 $\kappa \gg g^2/\kappa \gg \gamma$ ，称为坏腔极限，原子偶极子的衰减速率 $\lambda = -(\gamma + \frac{g^2}{\kappa})$ ，

除了原来的衰减速率 γ ，还多了一项由微腔引入的耗散 $\frac{g^2}{\kappa}$ ，可见偶极子的衰减

速率得到加强。这种增强效应[156]可用 Purcell 因子 $F_p = \frac{3Q}{4\pi} \frac{\lambda^3}{V_{eff}}$ ，其中 λ 是出

射光子的波长， V_{eff} 是腔模的有效体积。因此回音壁模式微腔可以极大地增强腔内的原子自发辐射，实现高效的单光子源。

- (2) 当 $\gamma \gg g^2/\gamma \gg \kappa$, 称为好腔极限。由于存在的原子吸收, 腔的耗散将增大, 腔的耗散强度为 $\kappa' = \kappa + Ng^2/\gamma$, 腔模的线宽将增加, 品质因子降低(N 为腔内的全同原子数目)。
2. 当 $g \gg \kappa, \gamma$, 此时原子与腔强耦合, 腔模与原子激发态的寿命足够长, 原子偶极子发出的光在泄漏出微腔之前, 可以被原子反复吸收, 能量在原子激发态与光子之间反复振荡, 实现相干转换。

$$\lambda_{\pm} = -(\kappa + \gamma)/2 \pm i\Omega_{Rabi},$$

其中 $\Omega_{Rabi} = [g^2 - (\kappa - \gamma)^2/4]^{1/2}$ 为真空 Rabi 频率, 反映了原子布居数和腔场能量随时间振荡。也即二能级原子和腔模的量子态组合在一起, 形成了两个新的缀饰态; 在频谱上, 该耦合的原子-微腔体系有两个新的共振峰, 间隔为 $2\Omega_{Rabi}$ 。关于强耦合体系的描述, 常见的还有反交叉现象。基于强耦合实现对相干的原子态与光子态的控制, 人们已经实现了基于强耦合的量子逻辑门、量子非破坏测量、量子纠缠[64]。

1.2 飞秒激光微加工技术介绍

飞秒激光脉冲在材料处理上具有加工精度高、热效应小，能对透明介质实现三维微细加工等优点，这些特性是传统的激光加工技术所无法取代的。而现在芯片上的微纳结构的主流制备技术是基于二维平面光刻技术。尽管光刻技术在制备的速度、成本上有优势，但它在没有堆叠（stacking）和键合（bonding）条件下，很难在透明介质上或者内部直接构建三维的微纳结构（比如微流体结构、波导等）。此外，也只有少数的材料能被用于光刻。随着超快光学的发展，飞秒激光微加工被视为解决上述难题的最有效方案之一。本部分主要讲述飞秒激光微加工技术。

1.2.1 飞秒激光微加工的机制

激光自从在 1960 年代的问世[73]后，已经对人类社会的生产、生活带来革命性的影响。为了提高激光的功率密度，需要缩短激光的脉宽与提高单脉冲能量，于是调 Q[74]、锁模技术[75]先后问世。特别是 80 年代中后期以来啁啾脉冲放大[76]和 Kerr 透镜自锁模[77]的诞生，极大地促进了超短激光脉冲朝着全固化的方向的发展，光学参量啁啾脉冲放大技术[78]、啁啾镜[79]、半导体可饱和吸收镜[80]则进一步提升了脉冲的峰值功率、使将脉宽压缩到周期量级成为了可能。在 1996 年，Hirao 研究组[81]与 Mazur 研究组[82]开始使用紧聚焦的近红外飞秒激光脉冲在透明材料内部对材料的折射率进行修饰。由于这些独特的优点，飞秒激光常用于对材料进行处理，无论是基础研究的需要，还是广泛的应用需求。

本节主要讨论飞秒激光与透明介质材料相互作用的情形，其物理机制目前并不完全清楚。一般认为非线性吸收过程在里面起主导作用。

1.2.1.1 光致电离

激光场直接将电子从价带激发到导带的过程，一般称为光致电离。由于非线性电离[83]，超快激光甚至可以在对激光频率透明的材料引起强烈的吸收。对于平常的单光子吸收过程，光子的能量必须等于或大于材料的带隙，电子才能从价带被激励到导带。当光子能量小于带隙时，光不能直接激发电子。但当极端高密度的光子入射到材料时，电子通过同时吸收多光子，可以被激发。此时，超快激光与透明材料的相互作用区域被局限于焦点附近，只有在此处峰值强度才足以启动多光子吸收。当飞秒激光束被聚焦到透明体材料内部，只有焦点处发生多光子电离[84]，因此可以实现高精度的三维直写。相反，连续激光或者长脉冲激光，通过单光子吸收，由于材料表面存在吸收，无法深入内部实现材料改性。对 800 nm 波长的超快激光，当激光强度在 10^{12} - 10^{16} W/cm² 时，多光子电离在非线性电离中起主要作用。

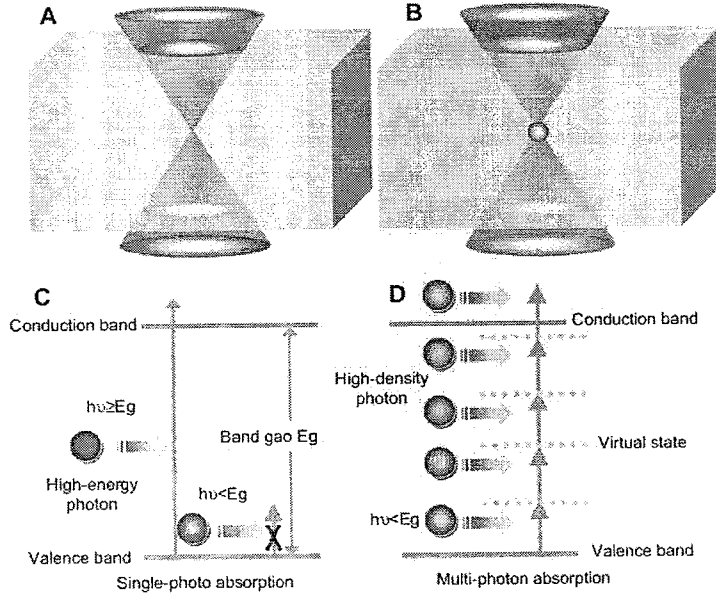


图1.21 单光子吸收、多光子吸收的物理机制[84]。

另外一种非线性电离称为隧穿电离。隧穿电离过程中激光电场抑制了将价电子束缚到其邻近原子的库仑势阱。若电场非常强，库仑势阱就可得到充分抑制，束缚电子可通过量子力学中的隧穿效应穿过短势垒，变为自由电子。当 Keldysh 参数 $\gamma < 1$ ，就会出现隧穿电离；当激光峰值场强大于原子场强时，隧穿电离起主导地位[85]，

$$\gamma = \frac{\omega}{e} \left[\frac{mc n_0 \epsilon_0 E_g}{I} \right]^{1/2},$$

其中 m 、 e 分别为电子的质量、电荷， E_g 、 n_0 分别为材料的带隙、折射率， I 为焦点处的激光强度， ω 为激光的圆频率， ϵ_0 为真空介电常数。当 $\gamma < 1.5$ ，隧穿电离在非线性电离中起主要作用，当 $\gamma > 1.5$ ，多光子电离在非线性电离中起主要作用，当 $\gamma \approx 1.5$ ，两种机制都要考虑。隧穿电离也只发生在焦点附近。

已被激发到导带的电子可连续吸收几个光子，跃迁到导带的更高能级；对足够高的激光强度，高能自由电子进一步被强激光场加速，与周围的原子碰撞，将原子外层电子从价带跃迁到导带底，形成二次电离。以上过程不断重复，形成所谓的雪崩电离[85]，将使导带电子数目急剧增加。导带中的电子受空穴库仑力的吸引形成激子（激子描述了电子-空穴对由静电库仑作用吸引而构成的束缚态）。某些自俘获的激子在几百皮秒时间内弛豫，导致永久性的缺陷。玻璃的加热过程，一般发生在激光辐照后几十皮秒内，辐照区在几十微秒后降至室温，这个过程引起了材料改性或者损伤。超过阈值强度的飞秒激光聚焦到玻璃内部，由于热效应，

焦点处被热软化，这可以用来制备波导[81-82]。

1.2.1.2 非热过程

与纳秒或者更长的脉冲相比，特别是当激光的峰值功率被控制在材料破坏阈值附近，而且激光重复频率足够低的条件下，飞秒激光烧蚀是一种非热的处理过程[85]，这由透明材料中的快速能量沉积（雪崩电离）所导致。在超快（脉宽小于几十皮秒）脉冲辐照后，脉冲通过非线性电离将能量传递给电子，电子的分布在几百飞秒至几皮秒时间内就达到热平衡；另外一方面，能量从电子转移到晶格（这将导致热化）的时间在1-100皮秒范围，该时间取决于材料的电子-声子耦合强度，远大于电子重新达到热平衡的时间，因此超快激光能有效引起电子被加热，产生“热电子气”，只有少数的能量转化成热量。在照射到材料中的能量热扩散之前，激光脉冲辐照已结束，不存在照射区域的热扩散问题，避免热扩散引起激光聚焦点的温度降低的问题，提高了激光微细加工的精确度和质量。因此它是一种非热的处理，允许高精度的微处理，在双光子聚合物中的特征分辨率为20 nm[84]。

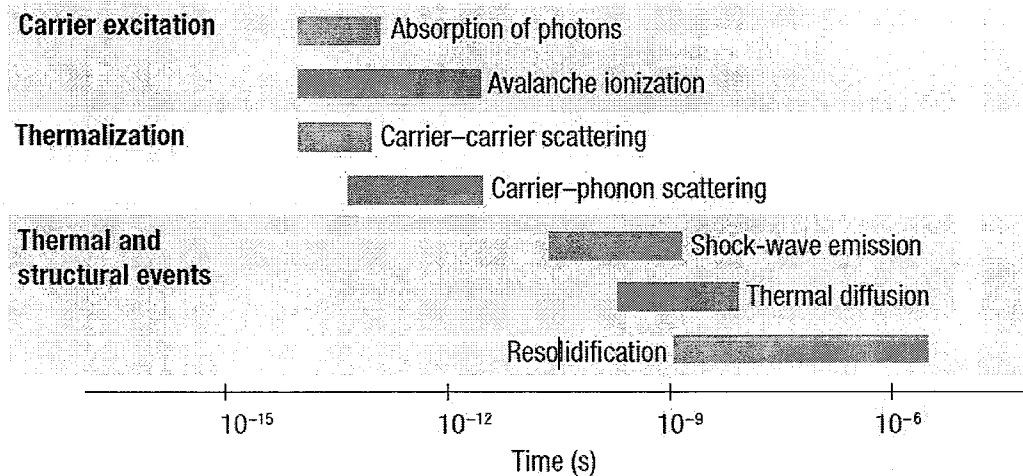


图1.22 飞秒激光与透明介质相互作用的物理现象的时间尺度，尽管飞秒激光吸收在飞秒时间尺度内，材料可以在微秒时间后连续变化[86]。

1.2.1.3 抑制热影响区

在超快激光与物质相互作用中，绝大多数的激光能量被电子吸收，并通过无能量损耗的热扩散，快速转移给声子。因此激光辐照区周围的热扩散几乎可以忽略不计。这种效应称为热影响区的抑制[84-85]。虽然超快激光主要诱导了非热过

程,但仍然会产生小部分的热量。热影响区受抑制情形只对单个脉冲辐照的条件成立。比如,当铜被超快激光加热到熔点 1356 K 时,热扩散长度仅为 329 nm 。

1.2.1.4 空间分辨率

飞秒激光处理拥有超越衍射极限的空间分辨率,这是由热影响区的抑制、多光子吸收所引起的。如图 1.23 所示,飞秒激光束拥有理想的高斯空间分布。对单光子吸收情形,被材料吸收的激光的能量空间分布,对应于光束的空间分布(焦点处光束的半高全宽 w_0);对多光子吸收,被材料吸收的激光的能量空间分布变窄。对 m 光子吸收,有效的吸收因子正比于激光强度的 m 次方[84-85],因此有效的光束尺寸为

$$w = \frac{w_0}{\sqrt{m}}$$

多光子吸收的空间分辨率将远小于激光波长。另外,由于吸收存在阈值强度,通过调节激光强度可以进一步改善空间分辨率。

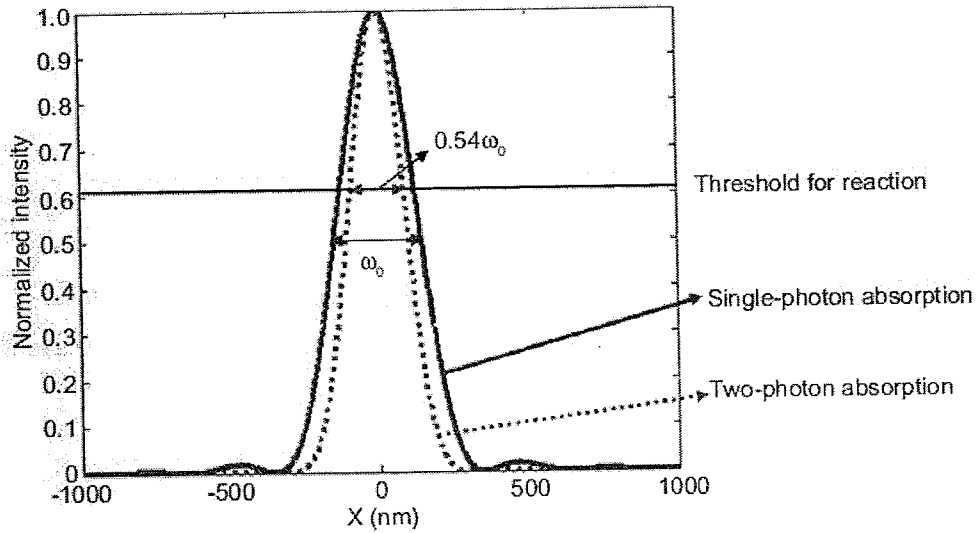


图1.23 通过双光子吸收(虚线)被透明材料吸收的激光能量的激光脉冲形状(实线)和空间分布[84]。

1.2.1.5 飞秒激光束在透明介质中的传输

在强场激光作用下,介质的电极化矢量不再随电场 E 呈线性变化,高阶电极化项不可忽略。对各向同性介质而言,其折射率

$$n = n_0 + n_2 I + \dots,$$

其中, n_0 是线性折射率, $n_2 = 3\chi^{(3)}/(4\epsilon_0 c n_0^2)$ 是三阶非线性折射率系数,

$I = \epsilon_0 c n_0 |E|^2/2$ 是入射光强度, $\chi^{(3)}$ 是三阶极化率。光强的高斯空间分布将导致介质中的折射率发生空间分布变化, 中间折射率高于周围, 光束在这种梯度折射率变化的介质中传输时会发生类似透镜聚焦的效应, 称为**自聚焦**。又由于高斯光束沿轴向传输时是发散的, 在一定的功率条件下会和聚焦效应相互平衡[87], 此时的功率为

$$P_{cr} = \frac{c\lambda^2}{32\pi^2 n_2}。$$

当激光功率超过此值时, 自聚焦占主要地位。

超短激光脉冲的超强峰值功率又会使介质电离, 产生的等离子体会造成折射率的减小, 中间部分折射率的减小会对光束产生发散作用, 类似于负透镜, 起散焦作用[88]。

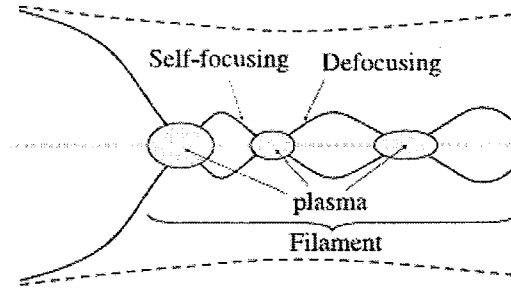


图1.24 自聚焦与等离子体散焦示意图[88]。

另外, 强激光在介质中传输时, 会发生自相位调制、群速度色散等现象。自相位调制是指光场在介质中传输时光场自身引起的相位移动。激光脉冲强度随时间演化

$$I(t) = I_0 e^{-2(\frac{t}{\tau})^2},$$

其中 τ 为激光脉宽的半高全宽, 传播常数

$$\beta = \frac{\omega_0}{c} n(t) = \frac{\omega_0}{c} (n_0 + n_2 I)。$$

传播一段距离 z 后, 频率 $\omega(t) = \frac{\partial}{\partial t} (\omega_0 t - \beta z) = \omega_0 - \frac{\omega_0 n_2}{c} z \frac{\partial I}{\partial t}。$

频率的变化量

$$\delta\omega = -\frac{\omega_0 n_2}{c} z \frac{\partial I}{\partial t}。$$

在激光脉冲前沿, 光强呈上升状态, 产生低频成分; 在后沿, 则产生高频成分,

因此激光脉冲的频谱被展宽。

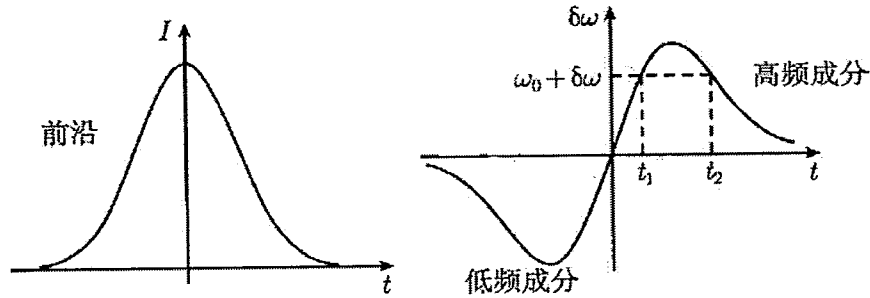


图1.25 自相位调制引起频谱展宽[89]。

激光脉冲在透明介质中传输时，由于折射率随着波长增加而减少，会产生群速度 ($v_g = d\omega/dk$) 色散 ($\frac{d}{d\omega} \left(\frac{1}{v_g} \right) = \frac{\lambda^3}{2\pi c^2} \frac{d^2 n}{d\lambda^2} > 0$)，使较长波长成分的传播速度大于短波成分，导致脉冲发生正的啁啾。群速度色散会使脉冲的不同频率成分在空间分开，从而引起脉宽展宽，降低脉冲的峰值功率[88]。

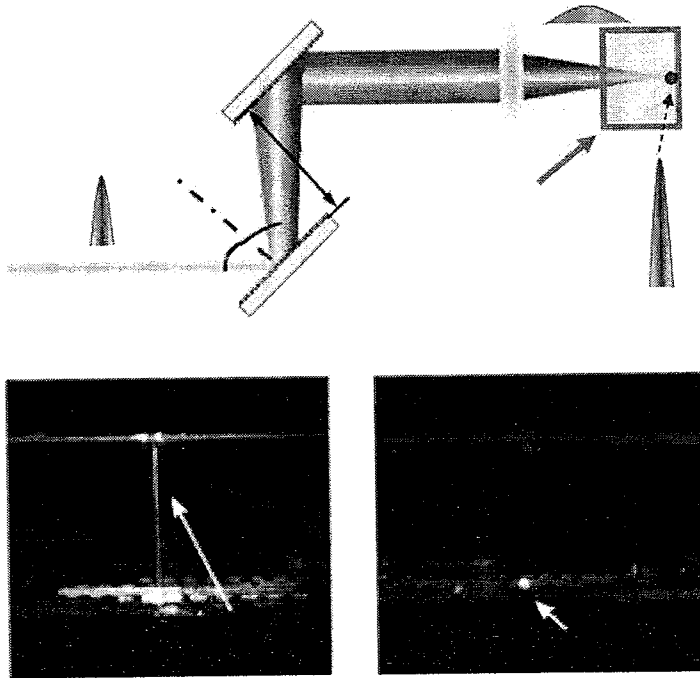


图1.26 上：时空聚焦光束整形系统示意图；使用低数值孔径聚焦透镜将普通的飞秒激光（左下）以及经过时空聚焦整形的飞秒激光（右下）入射到厚的玻璃内部的情形[84]。

特别是在具有大的非线性系数的晶体中传输时，脉宽展宽得很厉害，峰值功率急剧下降（尤其是对晶体进行背面烧蚀），会在晶体中出现超连续谱，从而降低了加工的轴向精度[84]。时间-空间聚焦技术 [90-92]已被用于解决此类问题。由于各频率分量同时达到焦点，且只有在焦点处空间重叠，发生了时间聚焦，导致焦点处的脉宽最短，峰值强度最高；这也抑制了传输过程中的非线性效应（成丝、自聚焦等）。

1.2.2 飞秒激光材料处理

1.2.2.1 飞秒激光处理系统

飞秒激光处理系统可以分为两大类[84]：飞秒激光直写系统与平行的飞秒激光处理系统。飞秒激光直写系统拥有灵活、高精度、高质量的优点，而且很适合于在透明材料中制备三维微结构。但它的产率比较低。而平行的飞秒激光处理系统（一般基于多光束干涉或者微透镜阵列），在产率方面占优势，但它的加工精度较低，有时候还缺乏加工任意三维结构的能力。后者经常用于制备周期性微结构。

图 1.27 就是一个经典的飞秒激光直写系统。它主要包括：光束的控制/整形系统（一般包含小孔光阑、可调节的衰减片、机械快门、狭缝等）、用于紧聚焦的显微物镜或者非球面透镜、用于控制样品三维移动的可编程的三维精密平移台、实时监测直写过程的 CCD 成像系统。商业化的显微物镜经常被用于高精度的飞秒激光直写，使得在聚焦宽谱的飞秒光束时球差、色差最小化。在横向方向，加工精度主要取决于物镜的数值孔径 NA，此时焦斑的尺寸为 $1.22 \lambda / \text{NA}$ 。高数值孔径的物镜，通常拥有短的工作距离，这限制了在衬底内部制备三维结构的深度。一般要在数值孔径与工作距离上作权衡。

平行的飞秒激光处理系统[84]一般包括下面的几种。(1)通过微透镜阵列将准直的飞秒激光束分束成焦平面上均匀分布的多焦斑阵列，然后利用中继透镜、高数值孔径的物镜，将微透镜焦平面上的焦斑阵列投影到物镜的焦平面上，实现高精度，甚至~250 nm 的亚衍射极限分辨率的加工；(2)多光束干涉，一般利用衍射式光学元件将光束分成发散的同步子光束，再用一个透镜准直，用另外一个透镜聚焦到样品上产生干涉图案，其中子光束的相位、振幅可由插入的相位延迟板、衰减片调节，该方案一般无法实现三维微结构的制备；(3)将(2)中的衍射光学元件替换成全息图，可制备非周期性的微结构，但光束通过全息图以后会有衍射，重新聚焦以后，会造成小的发散角，导致轴向分辨率变差，这个问题可由小心控制激光脉冲的峰值强度与全息图的焦长改善；(4)Gu 小组在 2014 年提出用矢量 Debye-based 的三维傅里叶变换方法产生了衍射受限的立体多焦点阵列[93]，椭圆焦点的横向分辨率：长轴方向 360 nm；短轴方向 275 nm。

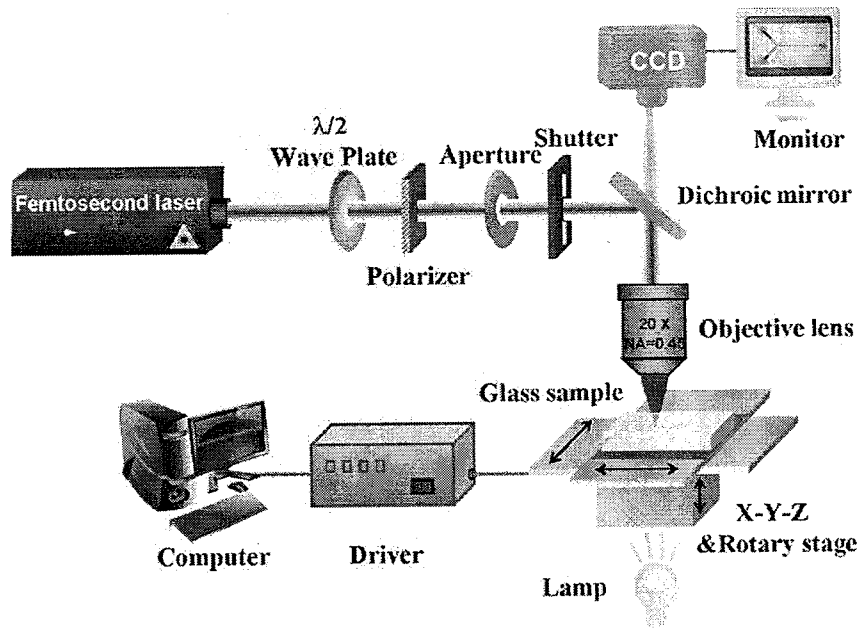


图1.27 飞秒激光直写平台[84]。

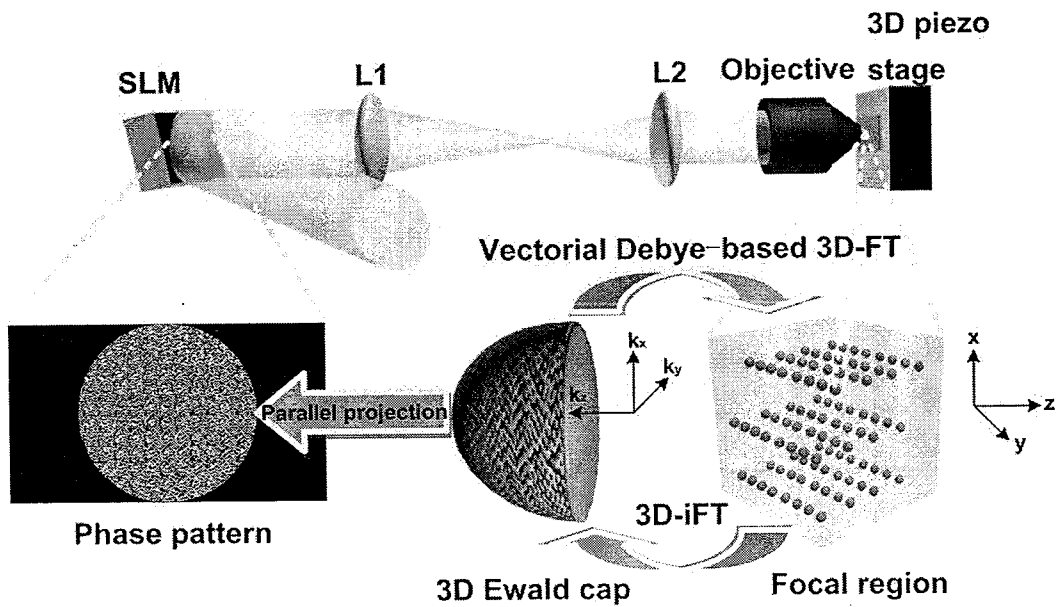


图1.28 使用空间光调制器产生立体多焦点阵列的示意图[93]。

1.2.2.2 飞秒激光材料处理

聚焦到透明介质内部,在极短时间内经多光子吸收等非线性光学过程吸收的能量无法通过晶格振动的形式扩散[85],从而在焦点附近产生了局域的等离子体,这个局域的高温高压环境一旦超过材料所能承受的应变强度,将从中间向外围挤压(库伦爆炸),形成微孔、微裂痕等结构。这就是光学击穿。

当这种现象发生在介质材料表面时,会导致激光烧蚀[85]。表面的电离过程将产生自由电子,这些自由电子立即从表面发射,在表面留下一个正的离子电荷区域,当这些电荷足够强,材料会产生非热爆炸,从而导致材料被烧蚀或者移除。

当激光强度低于材料损伤阈值时会产生一个非破坏性的、可逆的相变[88],比如局域色心的诱导、折射率的增加。局域的折射率可用于制备三维光波导回路。

另外,人们也在材料表面观察到激光诱导的表面周期结构[85],通常它是由入射光与材料表面等离子体波干涉造成的结果,并呈激光偏振依赖特性;利用高重复频率的激光在焦点区域产生热累积效应,形成局部的高温高压场,可以选择性地在特定掺杂的玻璃里面析出光功能微晶、纳米金属粒子。

除上述的实验现象外,利用飞秒激光辐照某些玻璃或者其他透明材料,辐照区被 HF 酸[94-97]或者 KOH[98]化学腐蚀的速率远大于非辐照区,可以形成微流控通道、微透镜等微结构,但其表面粗糙度一般在几十纳米,这阻碍飞秒激光微加工在微光学等需要超光滑的微结构的应用;利用飞秒激光在一些聚合物里诱导双(多)光子聚合[99-100],制备各种三维聚合物微结构,其表面粗糙度可以降至几十纳米。

1.3 论文的研究意义与内容

回音壁模式光学微腔能把光长时间地约束在极小的模式体积内,可以极大地增强光与物质的相互作用强度。其在低阈值激射、滤波、无标记生物传感、低阈值非线性光学效应、光机械力学、腔量子电动力学等领域已经显示出很重要的应用价值。但在芯片上制备的微腔所依赖的工艺主要还是基于光刻、电子束或离子束刻蚀等平面半导体技术。一方面,它需要将图形高精度地转移到芯片上,会用到光刻、蚀刻等步骤,而要进一步在芯片上集成其他的三维多功能组件(比如微流控)还需要用到堆叠、键合、封装等复杂工艺,这将是艰难的挑战。另外一方面,多数微腔是平行于衬底的平面二维结构,如微盘腔、微环腔、微芯环腔、变形微腔等,因此在其所能够支持的光学模式及光场输出方向上均具有很大的局限性。构建真正的三维微腔系统,为控制微腔的几何结构提供了另一个维度上的自由度,将极大扩展微腔对光场的调控能力,并可支持更为丰富的光学模式。最后,利用不同的微腔腔体材料的性质,对实现微腔的光子学研究目的是关键,而平面半导体制备工艺所导致的材料受限问题,将对微腔的应用造成障碍。因此,在不

同腔体材料上构建三维微腔, 将为研究光学模式间的量子干涉、光场与量子体系的非线性过程、微腔中光场的有效输出等提供更大的灵活性。为了在不同材料上以可控的方式实现具有三维结构的微腔系统, 如面外发射的变形微盘腔(即光发射方向与平行于衬底的平面非共面)、三维变形混沌腔等, 必须建立并发展具有三维微纳加工能力的新技术和手段。

作为一种直接的、无掩模的三维微制造技术, 飞秒激光能直接深入透明直接内部对材料进行高空间分辨率的改性、表面烧蚀, 这为构建不同工作介质、任意空间构型的光学微腔提供了可能。本文将以飞秒激光微加工技术为手段, 利用飞秒激光微纳制备技术固有的材料灵活性、三维集成优势, 力求解决上述的难题。

本文的主要内容如下:

第一章, 已经阐述了回音壁模式光学微腔的发展历史, 介绍了回音壁模式光学微腔的模式分布、耦合方法, 乃至微腔的应用; 介绍了飞秒激光微加工的机制以及其独特的优势, 并简要回顾飞秒激光脉冲对透明材料进行处理的加工平台、结果。

第二章, 利用飞秒激光微加工技术在石英玻璃芯片上制备高品质的三维回音壁模式光学微腔, 简要回顾了微芯环腔的光刻制备技术以及飞秒激光直写在微光学中的一些应用, 主要介绍了飞秒激光直写技术制备微腔的方案, 以及微腔的光学特性表征。

第三章, 利用水辅助的飞秒激光背面烧蚀技术, 把微腔的工作材料拓展到活性玻璃, 制备了基于高品质因子的钕玻璃微腔的低阈值微激光器, 主要阐述有源微腔的制备过程、微激光器的演示。

第四章, 利用水辅助的飞秒激光烧蚀技术在氟化钙晶体衬底上制备微盘, 再用聚焦离子束刻蚀侧壁, 制备了 $< 50\text{ }\mu\text{m}$ 尺寸的氟化钙微盘腔, 简述了晶体腔的优势与加工方法, 介绍了飞秒激光制备晶体微腔的过程, 表征了回音壁模式, 并讨论了提升品质因子的途径以及增加产率的方法。

第五章, 利用水辅助的飞秒激光烧蚀技术在铈酸锂晶片正面制备微柱体, 经过聚焦离子束刻蚀微柱体的边缘、化学腐蚀选择性去除将二氧化硅圆盘腐蚀成底座, 至此形成微盘腔, 再经过高温退火修复 FIB 辐射造成的损伤, 制备了 Q 值高达 1.6×10^5 的铈酸锂微盘腔, 并在中心波长为 800 nm 的宽谱飞秒激光泵浦下实现双谐振的倍频过程, 当输入的泵浦光功率为 5.04 mW 时, 转换效率为 1.04×10^{-5} 。

第六章为本文总结, 对本论文的工作的创新点和不足之处进行了总结, 并指出下一步的研究方向。

2 飞秒激光直写在熔融石英衬底上制备高品质的三维微腔

2.1 引言

自 1990 年代以来,伴随着半导体工艺的发展,芯片上的微腔已成为从非线性光学、生物传感到量子电动力学等科学研究、工程应用上的重要平台[42-43]。基于平面半导体工艺的微盘腔[10]、微芯环腔[35]、变形微腔[44、101]应运而生。其中二氧化硅微芯环腔特别引人注目,是由于它具有超高的品质因子,在非线性光学[33、51]、生物传感[68-70]、光机械力学[71]等领域有重要应用。微芯环腔的制备流程:(1)在硅(<001>)衬底上面的 2 微米厚的二氧化硅层表面旋涂光刻胶,然后平面光刻、显影定义光刻胶的圆盘;(2)化学腐蚀去除没被光刻胶保护的二氧化硅层;(3)用 XeF_2 对硅进行各向同性的刻蚀,形成底切的结构;(4)对形成的二氧化硅微盘进行二氧化碳激光辐照。对于二维平面微腔,由于回音壁模式的性质,从腔内发出的光,主要位于与腔模平行的平面内,即平行于衬底。因此在其所能够支持的光学模式及光场输出方向上均具有很大的局限性。

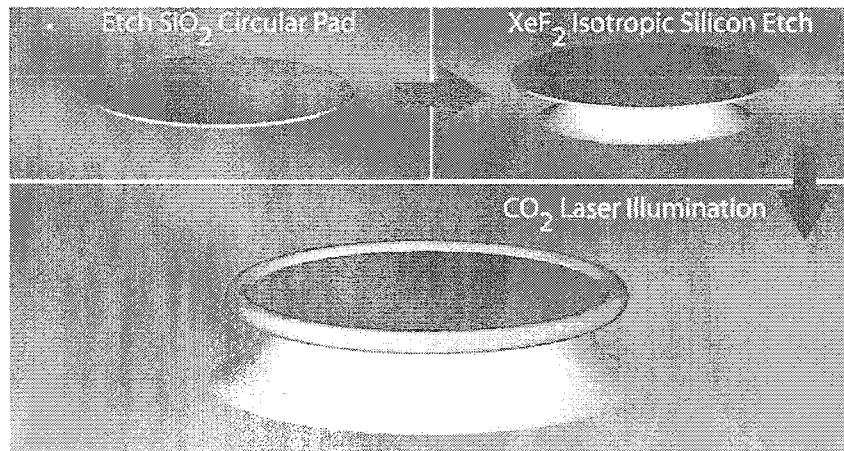


图2.1 二氧化硅微芯环腔加工过程示意图[35]。

最近, Yu 小组在微环腔的内壁增加了一些光栅结构, 实现了带光学角动量

的光学涡旋[102], 这说明了三维微腔可以提供更为丰富的模式。与二维微腔不同, 三维微腔通过空间光场的分布能够支持更为丰富的光学模式, 如空间局部重叠的多个光学简并模式等。

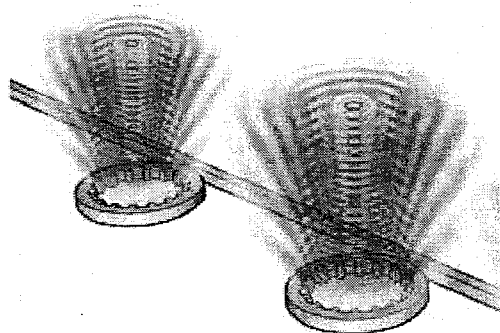


图2.2 内壁带光栅结构的微环腔的三维发射示意图[102]。

Levi 等人通过在微盘的侧壁增加光栅结构[103], 实现了光相对于衬底垂直的发射; 后来科学家证明了在微盘的上表面增加光栅结构[104]也可以实现垂直发射, 但还未能实现任意角度的倾斜发射。这限制了回音壁模式微腔在需要对光相对于衬底进行倾斜提取的情形中的应用。但相对于衬底以任意角度倾斜的发射, 对平面光刻工艺, 一直是个挑战, 几乎是不可能克服的难题。

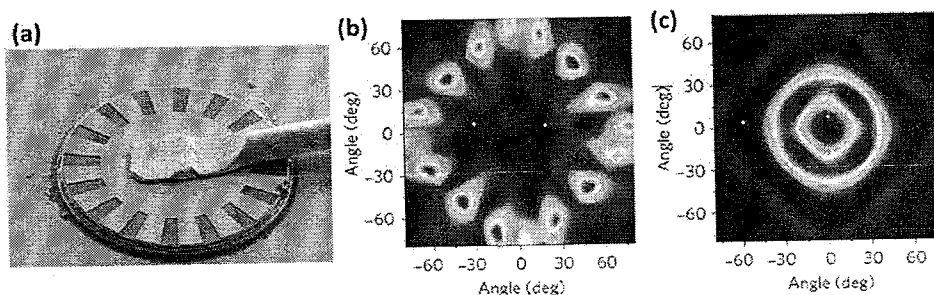


图2.3 垂直发射腔的(a)扫描电镜, (b)近场模式以及(c)远场模式[104]。

构建真正的三维微腔系统, 为控制微腔的几何结构提供了另一个维度上的自由度, 将极大扩展微腔对光场的调控能力, 并可支持更为丰富的光学模式。

近年来, 飞秒激光以其加工精度高、热效应小、损伤阈值低, 可以深入透明介质材料实现三维微加工的优点, 可以在玻璃、晶体、透明聚合物上灵活制备三维微纳结构, 比如微光学器件[105-106]、微流控芯片[94-97]、光学波导[81-82、107-108]、生物微芯片[109-112]、基于聚合物的光学微腔[113-115]等, 已在三维微纳制备领域独树一帜。对比于聚合物, 熔融石英玻璃具有大的透射窗口、极低

的本征损耗[116]、没有杂质荧光等优点，是一种理想的微腔衬底。在熔融石英上制备微光学器件、微流体通道等微纳结构，一般可通过(1)飞秒激光直写辅助的湿法化学腐蚀，或者(2)液体辅助的飞秒激光背面烧蚀技术的方法。对第一种方法，当紧聚焦的飞秒激光脉冲的功率超过石英玻璃的损伤阈值时，焦点区域的材料被改性，通过连续改变焦点与玻璃的相对位置，就可以扫描出微结构的形状。激光辐照区被氢氟酸[94、97]或者KOH溶液[98]腐蚀的速率是非辐照区的30~50倍或者~250倍，从而可以用化学腐蚀的方法选择性去除被改性的玻璃，形成任意的三维微结构。对第二种方法[117]，则在液体环境下直接利用飞秒激光在表面刻蚀、移除材料，从而直接制备三维的微纳结构。液体起到产生气泡排除碎屑或者增加碎屑流动性的作用，一般来说，后面的方法会造成比较大的表面粗糙度。

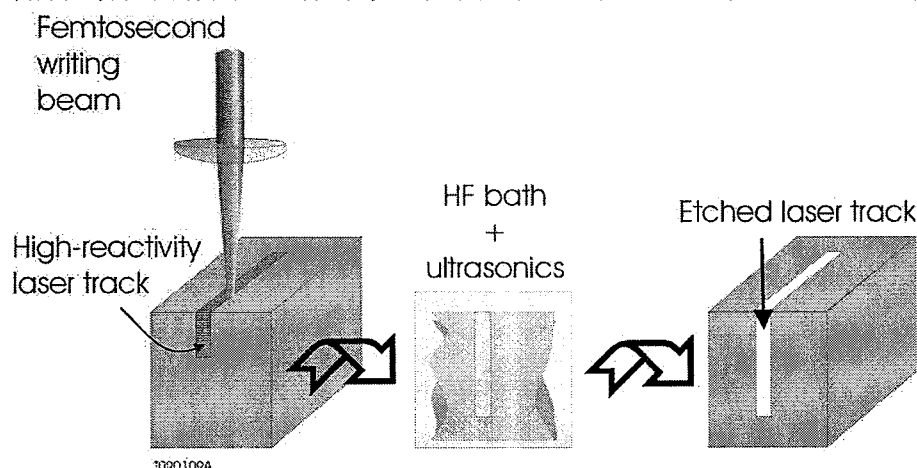


图2.4 飞秒激光直写辅助的选择性化学腐蚀示意图[118]。

但一般飞秒激光微加工技术在熔融石英上制备出来的微结构，其表面粗糙度较大（几十纳米以上），严重影响微结构的性能。2010年，何等人通过飞秒激光直写、HF酸化学腐蚀的方法，制备了微透镜，为了提高其表面光滑度，引入了氢氧焰加热的技术，成果制备了接近衍射极限的微透镜[119]。由于石英玻璃的熔融温度约为1700 °C，用略低于该温度的氢氧焰对准待微透镜处理表面并来回扫描，保证对微透镜表面进行均匀加热。经过30-50秒的火焰抛光，微透镜粗糙的表面发生微融并形成液相薄层，在液体表面张力的驱使下，微透镜表面变得极为平滑，表面粗糙度可低于1 nm。

2011年，何等人[108]通过飞秒激光直写、KOH化学腐蚀、高温退火的方案，在熔融石英内部制备了透射率达到~90%的空心波导。其中用高温电阻箱式炉对波导进行加热，在1200 °C保温5小时，可让平均表面粗糙度由原来的120.2 nm降至5.2 nm。这些热处理技术都是利用微结构表面熔融层的表面张力，降低表面粗糙度的。

因此，结合表面热处理，三维飞秒激光直写技术能够突破上述平面加工工艺

的局限性,原则上可以实现发射方向与衬底平面成任意角度的高性能微腔的制备,从而大大方便了在自由空间中完成对光学模式的高效耦合及对出射光场进行高效的收集。

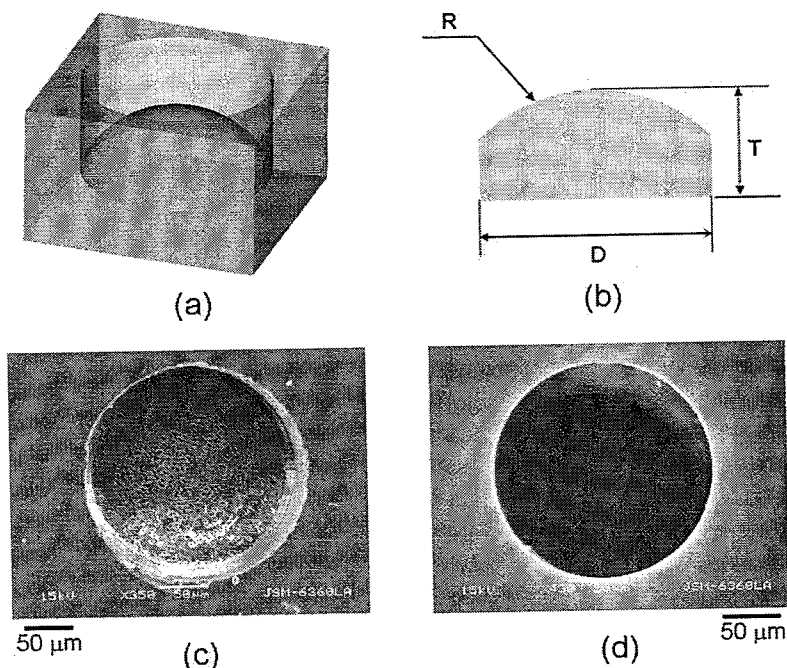


图2.5 飞秒激光直写制备的微透镜的(a)示意图、(b)剖面,氢氧焰处理(c)之前与(d)之后的微透镜表面的扫描电镜[119]。

2.2 飞秒激光直写制备微腔

为了克服现有的平面光刻技术在制备光学微腔所存在的问题,我们提出利用飞秒激光直写、化学腐蚀选择性去除辐照区的方法,在熔融石英芯片上制备了由小支柱支撑的微盘,再利用二氧化碳激光回流等热处理技术,提高品质因子。其主要步骤如下:

(1) 飞秒激光直写: 将熔融石英样品固定在可编程的三维位移平台上,通过显微物镜将飞秒激光聚焦到样品上,按编程(定义微腔的构型)驱动的三维位移平台运动的同时,启动所述的飞秒激光光束对样品进行辐照,为制备由小支柱支撑的微盘,围绕着小支柱与微盘的附近区域被激光辐照,其中小支柱、微盘相对于衬底的夹角可以自由设置,小支柱的尺寸要远小于微盘的尺寸,这样就在样品中写入需要的三维光学回音壁模式微盘的立体图案;

(2) 化学腐蚀: 将飞秒激光辐照后的透明材料样品放入 HF 溶液或 KOH 溶液中,对激光的辐照区进行选择性化学腐蚀,形成由小支柱支撑的、相对于衬底

以任意角度倾斜的微盘；

(3) 二氧化碳激光退火：将二氧化碳激光束经适当的透镜聚焦，对准微盘的中心，垂直入射到微盘的上表面进行加热，并用物镜、CCD 实时监控回流的过程；当微盘被加热到材料的软化温度以后就会引起边缘的热收缩，产生回流，表面张力将促使粗糙的边缘变成微环状的微腔边缘，同时促使微结构从原来的微盘收缩成微芯环腔。通过选择不同的退火时间或二氧化碳激光脉冲的参数（比如平均功率、占空比），就可以得到不同收缩程度的微腔。

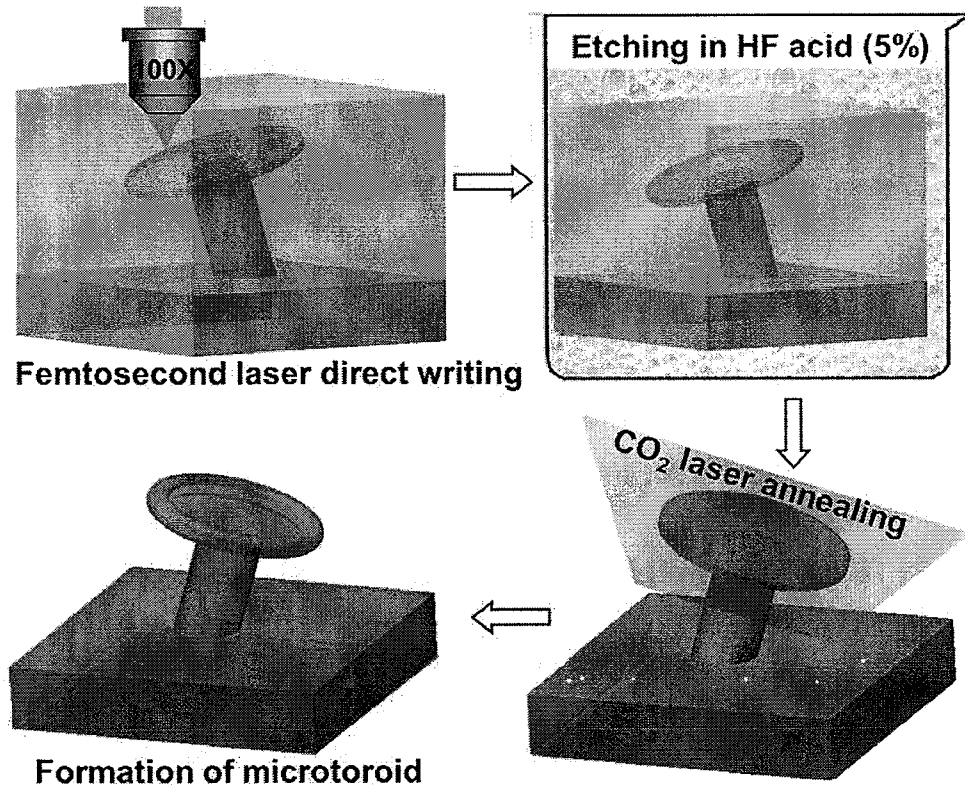


图2.6 飞秒激光直写制备微芯环腔流程图[120]。

实验中所用到的熔融石英玻璃样品（JGS1）的厚度是 1 mm，上下表面已经被抛光过。飞秒激光系统包括：相干公司的钛宝石振荡器、可再生放大器，它发出中心波长 800 nm、脉宽 58 飞秒、最高的单脉冲能量 5 μ J 的激光脉冲，脉冲重复频率为 250 kHz。初始尺寸为 8.8 mm 的光束经过小孔光阑后，减小到 5 mm，以保证良好的光束质量。通过可调节的中性滤波片控制激光的平均功率。玻璃样品固定在 1 μ m 精度的三维平移台上，而平移台的移动可由电脑上运行的程序控制。在飞秒激光直写过程中，一个 100 倍、数值孔径 0.9 的物镜用于把光束聚焦为 1 μ m 直径的焦斑，在物镜前的飞秒激光功率被调节为 0.05 W，约为材料损伤

阈值的 2 倍。为了在玻璃内部构建微盘图案（如图 2.6 所示意），从上表面内部几十微米深的位置到上表面逐层做圆周扫描，层间隔设置为 $1\text{ }\mu\text{m}$ ，飞秒激光焦点相对于样品的扫描速度约为 $600\text{ }\mu\text{m/s}$ ，扫描区域被设定为围绕着由小支柱支撑的微盘的外围区，而微盘、支柱的尺寸、高度、倾斜角等参数可以在程序里面任意设定。在这里，把微盘的半径设为 $29\text{ }\mu\text{m}$ ，厚度 $7\text{ }\mu\text{m}$ ，相对于衬底的倾斜角为 24° ，支柱的半径为 $12\text{ }\mu\text{m}$ ，支柱与微盘之间的倾角为 57° 。

在激光曝光结束以后，为了方便后续的光纤锥耦合，需要将辐照区的相邻两侧暴露在样品相邻的两侧边缘，这可通过激光扫描或者砂纸抛光的方法实现。然后将样品浸入 5 % 的 HF 水溶液或者 5 mol/mL 的 KOH 水溶液中，选择性去除被激光辐照过的区域，腐蚀时间控制为约 20 分钟，直到形成独立的微盘。

为了改善微盘表面的粗糙度，需要对微盘进行热处理。我们最开始尝试用氢氧焰[119]对微盘进行加热。氢氧焰的强度必须适中，若氢气流太强，则火焰丝太长、气流太大，容易把整个微盘烧熔、塌缩；若太弱，则无法让微盘表面熔融，因此，火焰加热的方法比较难控制。我们选择适当的气流，用大约 3 秒的时间对准微盘加热，制备如图 2.7 所示的光滑微腔。但其品质因子在 1550 nm 波段只有 6000 左右。如微盘悬空部分尺寸只有几微米，由于飞秒激光曝光时所用到的三维平移台的精度只有一微米，经过较短时间的火焰抛光后，会形成不太规则的微芯环腔结构，如图 2.8 所示，其边缘并不圆润。由于火焰的强度不太好定量控制、以及加热产生的气流可能对微盘造成冲击，因此火焰加热的方案暂时被舍弃。有必要采用非接触加热的方式对微腔进行热处理。

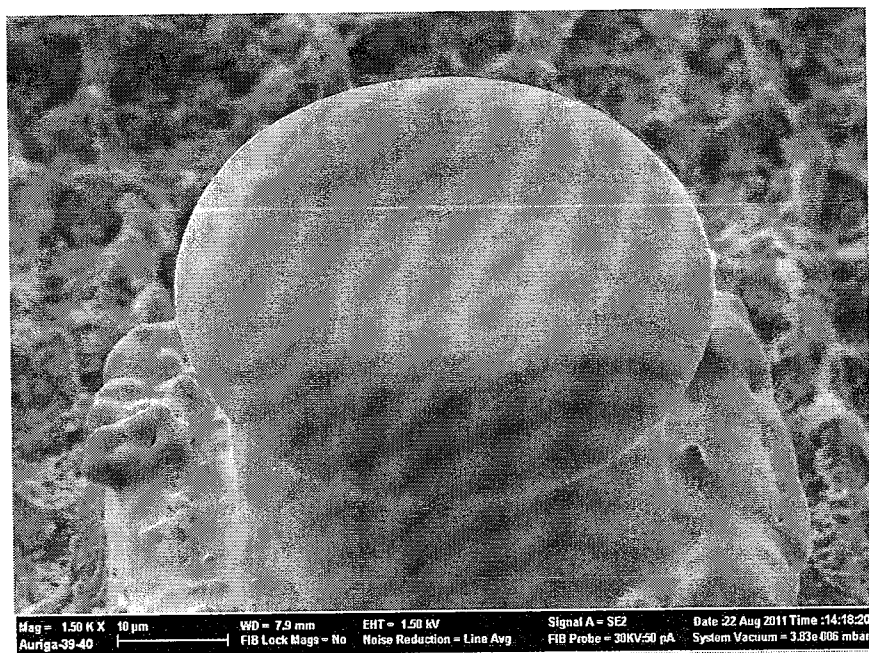


图2.7 飞秒激光直写、化学腐蚀、氢氧焰加热制备的微腔。

由于熔融石英对 $10.6\ \mu\text{m}$ 附近的中红外的光存在强烈吸收, 因此可用二氧化碳激光(Synrad Firestar V30)对微盘进行加热。Vahala 小组在制备微芯环腔[35]的时候, 已经采用了二氧化碳激光回流的技术提升原来微盘的品质因子。通过表面吸收经 ZnSe 透镜聚焦过的二氧化碳激光(光斑尺寸约为 100 微米), 微盘的表面被加热到熔融状态, 在表面张力作用下, 微腔的表面热收缩, 促使粗糙的边缘变成微环状的微腔边缘。二氧化碳激光脉冲的重复频率为 5 kHz, 通过调节脉冲的占空比, 就可以控制光束的平均功率。在回流过程中, 微盘的形状已经收缩成微芯环腔的结构。在回流过程, 我们通过 60 倍的物镜、CCD 对微盘的侧面形状进行监控。原来 58 微米直径的微盘被回流成直径 43 微米的微芯环腔; 微腔的高度、尺寸, 可以在飞秒激光直写的时候自由设定, 如图 2.8 所示。由于二氧化碳激光的光斑较小, 因此可以分别对各个微腔进行回流, 不同回流的程度可通过控制时间、占空比实现。

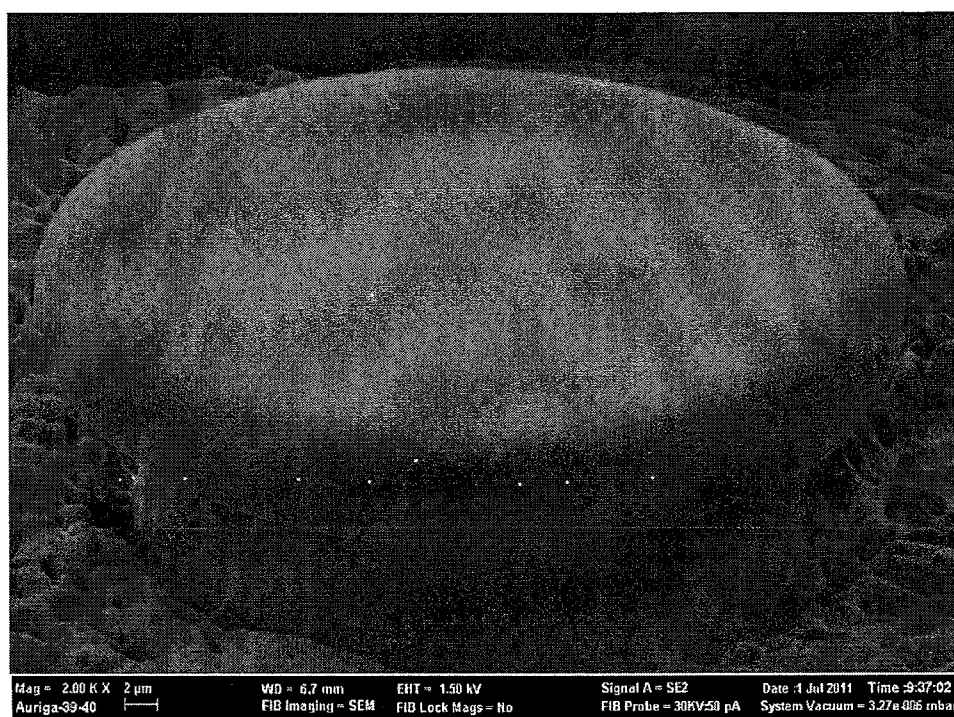


图2.8 飞秒激光直写、化学腐蚀、氢氧焰加热制备的微腔(微盘悬空尺寸较小)。

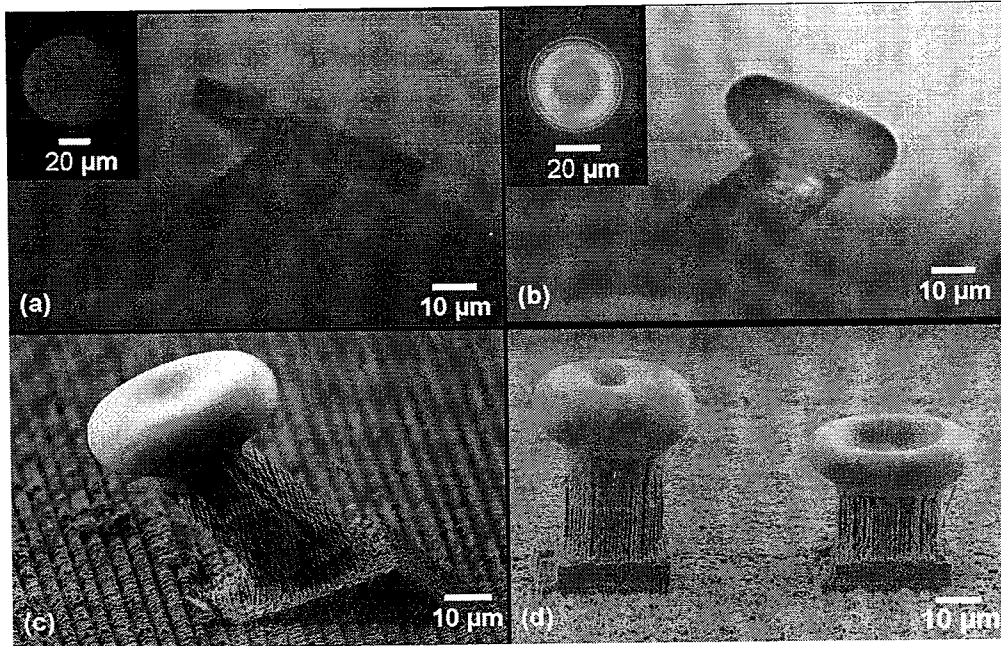


图2.9 (a)经过飞秒激光直写、化学腐蚀后制备的微盘的光学显微图,二氧化碳激光回流后的(b)光学显微图与(c)扫描电镜,回流后不同尺寸、高度的微腔的(d)扫描电镜[120]。

2.3 光纤锥的制备及微腔腔模的表征

为了表征腔模以及品质因子,我们通过光纤锥耦合的方法[27-28]来测量共振谱。光纤锥是由对一段商业化的光纤(康宁, SMF-28)进行加热、拉升得到。为了制备亚微米光纤锥,将光纤中间的约4厘米长的保护层用剥线钳剥去,然后用酒精棉擦干净,然后将裸光纤段的两端(有保护层)固定在光纤夹上,光纤夹分别固定在两个MFA-CC电动平移台(Newport)上,通过EPS300控制箱(Newport)分别控制两个电动平移台向外侧移动,裸光纤的下方由氢氧焰加热,平移台移动的速度约为80-100 $\mu\text{m/s}$,以保证拉光纤的绝热条件,拉伸的总长度一般为2.2 cm。氢氧焰所用到的氢气流由气体质量流量控制器,氢气由氢气发生器电解去离子水产生,最后通过火焰枪输出,用火焰球的顶部(外焰)对光纤进行加热。氢气流的强度要适中,若气流太大,光纤锥很容易被气流冲断;若气流太弱,则加热的温度不够使得石英玻璃光纤熔融。拉光纤锥的装置如图2.11所示。拉光纤的平台由挡风的有机玻璃板部分遮蔽,以防止空气的流动对火焰的影响,进而影响加热的均匀性。在拉光纤的过程,用780 nm或者1550 nm等波长的连续激光输进光纤,在另外一端用纳焦功率计(OP-2 VIS, COHERENT Inc)

实时测量透过率，在热拉的过程中，光纤由原来的单模光纤变为多模，透射谱会出现拍频，最后又变为单模光纤。据实时观测的透射谱就可以判断单模条件，典型的透射谱如图 2.10 所示。一般光纤锥对 1550 nm 波长的光的透射率可以达到 90% 以上。

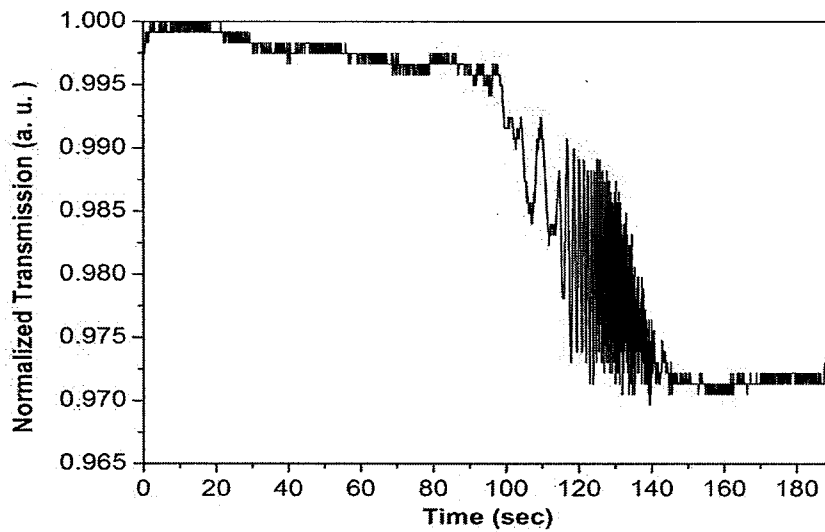


图2.10 热拉法制备光纤锥时的透射率谱（所用激光波段 1550 nm）

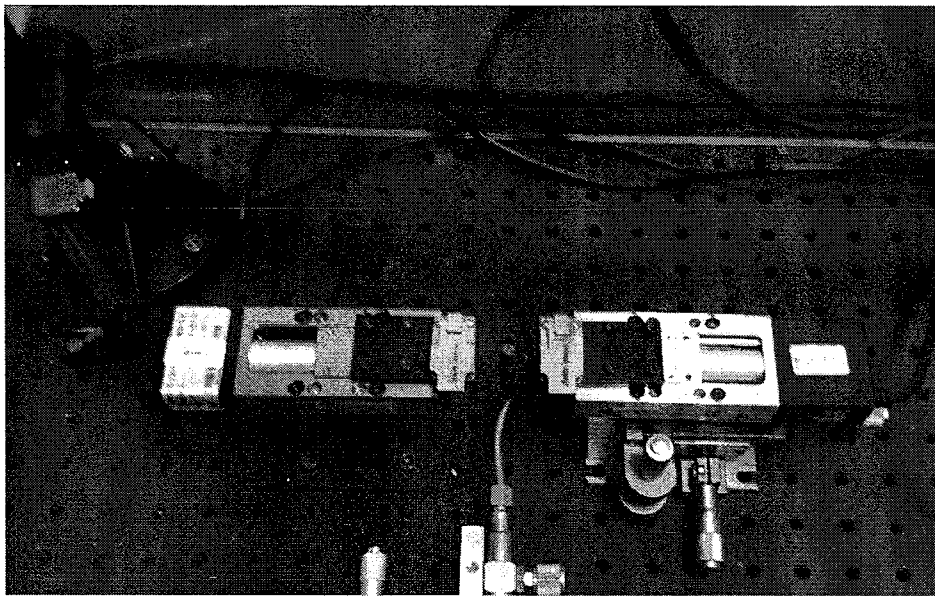


图2.11 热拉法制备光纤锥的装置

为了方便耦合，我们耦合的样品是直径 39 微米，厚度 9 微米的，平行于衬

底的微芯环腔，其扫描电镜图见图 2.13(a)。我们在第一章已经知道临界耦合的三个基本条件了。在这里可调谐激光是一款腔外的波长可调谐的连续激光二极管（New Focus，型号：6528-LN），其波长调谐范围为 1510 nm-1620 nm。测量透射谱所用到的扫频光谱仪（即与可调谐激光同步的瞬态功率计）来自 dBm 公司的，型号 4650，分辨率为 0.1 pm。根据实际的需要，波长调谐范围覆盖微腔的两个光谱自由范围即可（1530-1565 nm），所用的功率为 1 dBm；光纤锥的束腰直径约为 1 μm ，可提供倏逝波去激励腔模；微腔或者光纤锥固定在分辨率为 50 nm 的三维压电平移台上，以此来调节微腔与光纤锥的相对距离，使得倏逝波与腔模达到欠耦合。耦合装置如图 2.12 所示。光纤锥与微腔耦合的情形见图 2.13(b)。在实验中，我们同时用两个 CCD 从侧面方向以及正上方（所用成像物镜：50 倍物镜，NA=0.3）俯视来观测微腔与光纤锥的耦合。

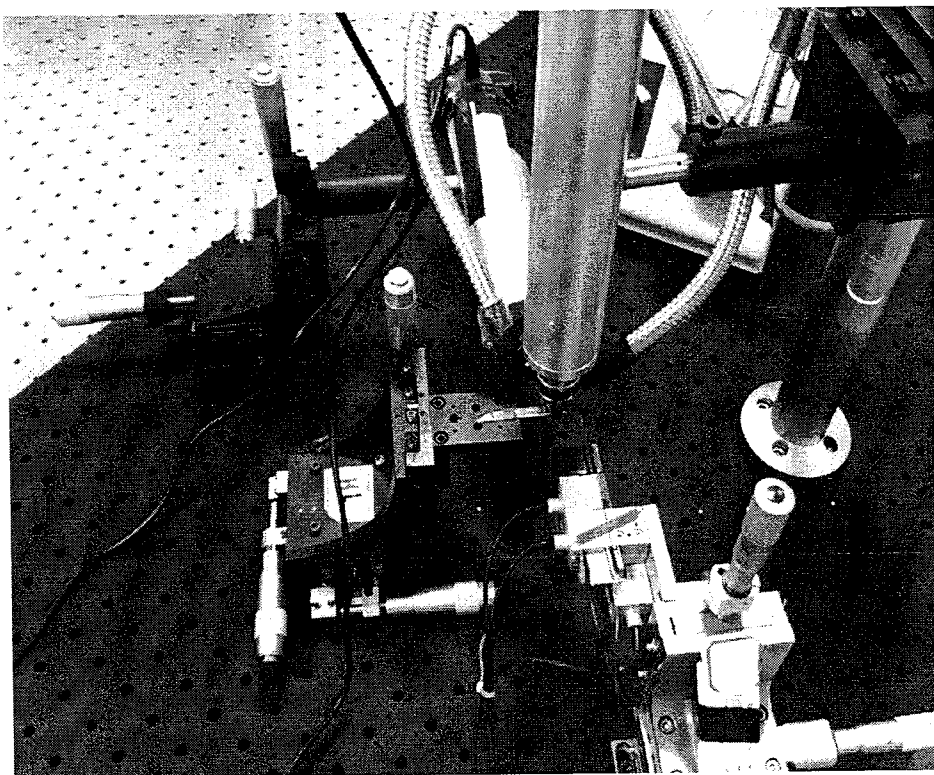


图2.12 光纤锥与微腔耦合的装置，其中光纤锥被弯曲成 U 字形，通过盖玻片固定在压电平移台上，它们整体装配了一个可以粗调的三维调整架上；微腔样品固定在三维调整架上，照明光为汞灯，耦合系统的侧面、正面均搭建了光学显微系统，实时监视光纤锥与微腔的相对位置。通过这些三维调整架、压电平移台就可以实现光纤锥倏逝波与腔模的有效空间重叠。

当光纤锥的传输模式与腔模谐振时，会在透射谱出现凹陷。光纤锥与耦合耦合以后的共振透射谱显示了较多的回音壁模式，如图 2.13(c)所示。实验测得的自由光谱范围约为

13.65 nm。根据微腔直径大小所做的近似计算得到的自由光谱范围

$$\Delta\lambda \approx \lambda_0^2 / 2\pi R n,$$

其中 λ_0 为真空中的波长, R 为微腔的半径, n 为微腔的折射率。在这里, $R = 19.5 \mu\text{m}$, $n = 1.445$, 当 $\lambda_0 = 1534.72 \text{ nm}$ 时, $\Delta\lambda \approx 13.30 \text{ nm}$ 。实际测量值与近似计算值一致。图 2.13(d) 显示为位于 1534.72 nm 处的、表现为洛伦兹线型凹陷的单个回音壁模式。通过洛伦兹线型拟合, 得知它的线宽为 1.44 pm, 对应的品质因子 $Q = 1.07 \times 10^6$ 。这证明了结合适当的热处理降低微腔的表面散射损耗, 飞秒激光直写技术能制备高品质因子的三维回音壁模式光学微腔。

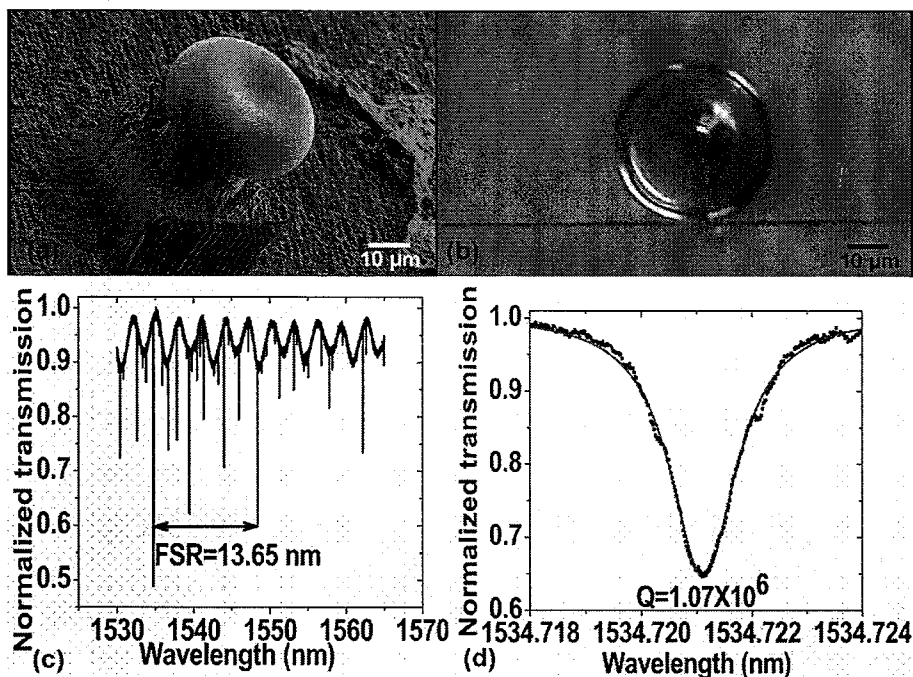


图2.13 (a)测试 Q 值所用的微腔的扫描电镜,(b)光纤锥与微腔耦合的光学显微图,(c)光纤锥与微腔耦合的透射谱,自由光谱范围为13.65 nm,(d)位于1534.72 nm处单个回音壁模式的洛伦兹线型凹陷(实际测量值为黑点线,洛伦兹线型拟合为红实线),线宽为1.44 pm,由此计算得到其品质因子为 1.07×10^6 ,这说明了飞秒激光微加工技术可用于制备高品质因子的光学微腔[120]。

2.4 讨论

Vahala 小组[35]制备的回音壁模式光学微腔的品质因子可达到 10^8 ,比我们的数据高了两个数量级。这里面的原因,第一,我们这里报道的品质因子是负载的品质因子(包括本征损耗与耦合损耗),而不是本征的品质因子;第二,由于

我们在飞秒激光直写构图的时候，采用了分辨率只有 $1\text{ }\mu\text{m}$ 的三维平移台，这造成了制备出来的微腔（二氧化碳激光回流之前）的边缘是个不规则的圆形，如图 2.14 所示，隐约可以看到微腔的边缘存在锯齿起伏；第三，虽然经过回流以后，小尺寸的表面粗糙已经被去除，但仍然可以观察到微腔的边缘偏离一个完美的圆（这也是由飞秒激光辐照使用的三维线性平移台引起），如图 2.15 所示。也就是说，这个微腔有点变形，不具备完美的旋转对称性；第四，我们的实验不是在超洁净实验室里面开展的，空气的水汽、灰尘，会降低非晶玻璃的品质因子。

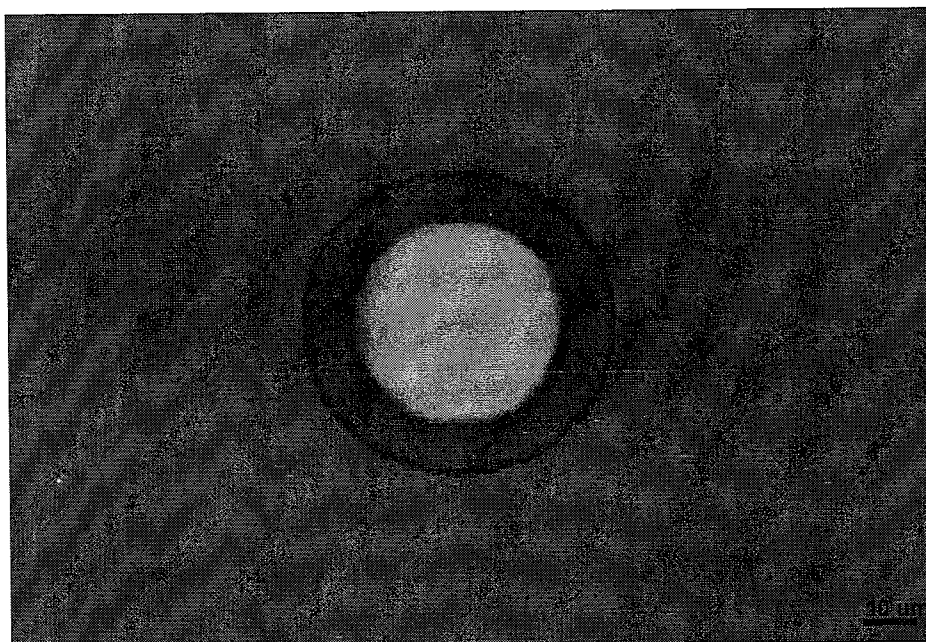


图2.14 飞秒激光直写、化学腐蚀以后的微盘结构，微盘的边缘是一个存在锯齿、不太规则的圆形。

在这里，我们改善了回流过程时，二氧化碳激光束与微盘的对焦问题，使得焦斑的中心与微盘的轴心对准，把微腔的品质因子提升到 2.1×10^6 。为了进一步提升品质因子，我们需要把我们的平移台换成更高精度的。不过对于很多应用，像生物传感、低阈值激射， 10^6 的品质因子，已经足够了。

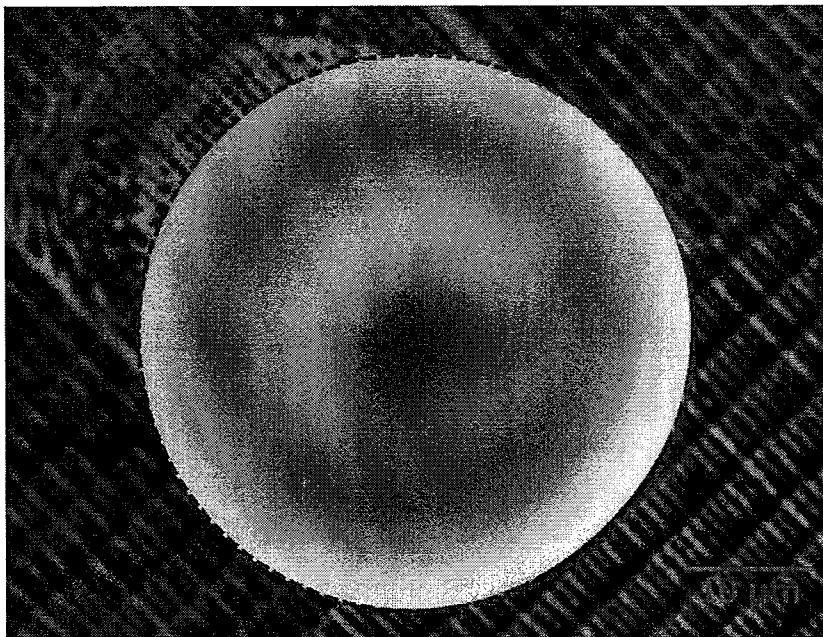


图2.15 不太规则的微腔圆形轮廓，红线为完美的圆形。

利用飞秒激光直写制备熔融石英微腔的时间，约为 6 小时，大部分的时间花在把微腔的边缘暴露出来，以方便光纤耦合。若要缩短时间，一方面可以通过优化平台的运动速度；另外，选择更小尺寸的样品，或者让微腔更靠近样品的边缘，就可以大面积减少激光辐照区。在这里，需要指出的是，利用平面的光刻、电子束刻蚀等工艺，很难，假如不是完全不可能，制备这种可以相对衬底以任意角度倾斜的三维微腔。

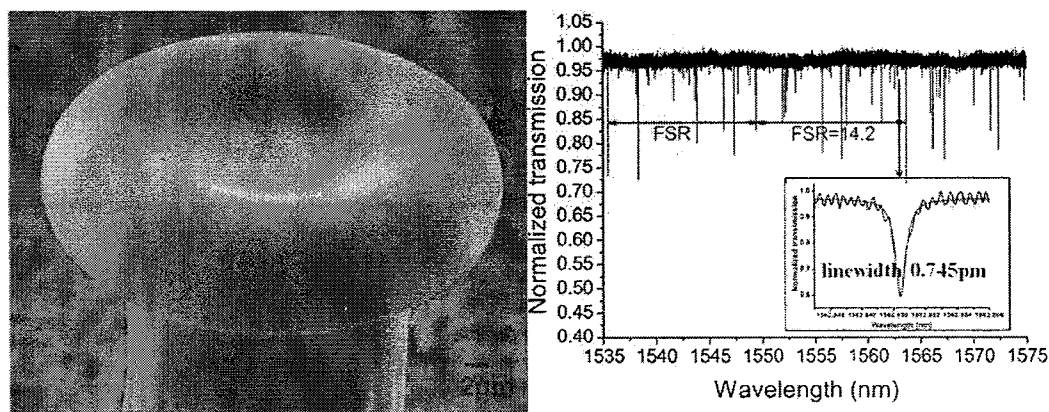


图2.16 品质因子超过 2.1×10^6 的微腔及其光纤锥耦合时的透射谱

2.5 小结

我们利用飞秒激光直写技术在熔融石英芯片上制备了三维的回音壁模式光学微腔，它的品质因子超过 10^6 。要进一步提高品质因子，可以把现有的、在飞秒激光直写用到的平移台换成更高精度的平移台或者旋转台。虽然我们这里只制备了被动微腔，假如在微腔表面涂覆半导体胶体量子点或者注入稀土离子，将很容易实现激射。我们的技术方案，开辟了制备非平面光学微腔的路径，它将在量子信息等基础研究、生物化学传感等领域有重要的应用价值。

所采用的熔融石英衬底具有良好的光学性能，本征吸收损耗小，透光范围 (190 nm~5 μ m) 宽，热膨胀系数小，软化温度高，兼容石英玻璃光纤波导，刚好对二氧化碳激光束强吸收，方便二氧化碳激光回流处理。

事实上，利用飞秒激光在熔融石英玻璃上制备微光学元件所存在的难题就是化学腐蚀出来的表面很粗糙，难以满足光学应用。即使采用了火焰抛光技术，其表面的光洁度仍然不是很高（从品质因子反推得知）。我们这里用到的是二氧化碳激光回流技术，而在工业界，电火弧经常用于熔接光纤，相信这种技术也可以用于对石英玻璃微腔进行表面热处理。进一步的，我们可以把飞秒激光直写辅助的化学腐蚀与这些热处理技术结合起来，用来制备其他的高性能微光学结构。

3 基于钕玻璃光学微腔的微激光器的制备

3.1 引言

回音壁模式光学微腔由于拥有高的品质因子、小的模式体积，可以极大地增强光与物质的相互作用，使得微腔可以构建优越的低阈值的、窄线宽的微激光器[13]。品质因子 Q 定义了光子在腔内的损耗，模式体积 V 决定了腔内光场的约束能力。在集成光学意义上，现有三类微腔比较引人注目。一类是基于聚合物的微盘腔[13、121]；一类是半导体微腔[10、13]；另一类是二氧化硅微芯环腔[35]，其品质因子可达 10^8 ，目前拥有最高的 Q/V 值[122]，无论在化学稳定性、耐用性、光学性能等方面的表现，都较聚合物腔更胜一筹。用于制备微芯环腔的半导体平面工艺技术，其制备机理在于化学腐蚀选择性去除材料，其材料的选择数量很少，这对利用不同材料的独特性质来提升微腔的应用水平，构成了障碍。

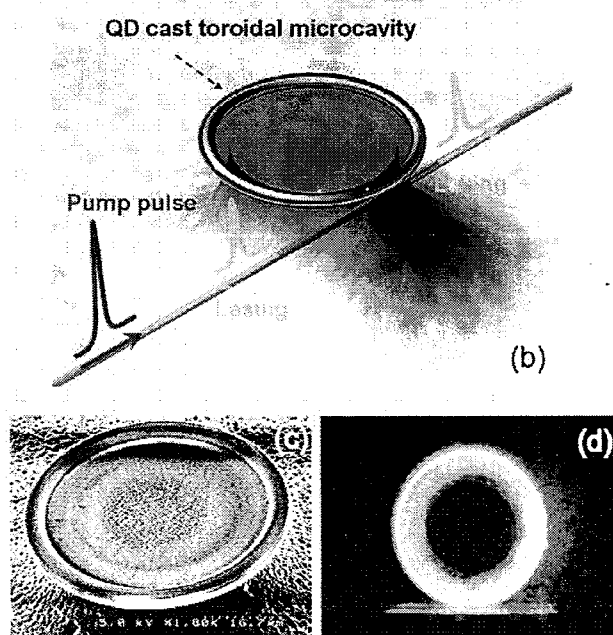


图3.1 在二氧化硅微芯环腔的表面旋涂 CdSe/ZnS(核/壳)量子点形成微激光[127]。

为了在石英玻璃基质微腔上实现激射,一般需要引入活性物质,比如通过溶胶凝胶方法在硅衬底制备掺入稀土离子的二氧化硅层[123-124],或者直接在石英玻璃微盘上涂覆掺杂稀土离子的二氧化硅层[125];或者直接在二氧化硅微腔上注入稀土离子[126]、涂覆胶体量子点[127]等。其工艺相当复杂、繁琐。

为了扩大微腔工作材料的选择范围,有必要发展新的制备工艺。近来,飞秒激光直写已被用于在聚合物、熔融石英上制备高品质微腔[113-115、120]。值得一提的是,我们在上章就用飞秒激光直写辅助的化学腐蚀方法在熔融石英上制备了具有三维构型的微腔[120]。在该方案上,紧聚焦的飞秒激光束首先被用于在熔融石英内部扫描微腔的轮廓以及其外围区域,使得该区域的材料被改性,而被改性的材料可以优先被湿法化学腐蚀去除。不幸的是,该方法由于依赖化学腐蚀选择性去除材料,能兼容的材料很少[97]。

另外一个基于飞秒激光直写的案例,是通过烧蚀光纤预制棒制备微腔的方法[128],也可以用于制备高品质的平面微腔。它在制备过程中,通过保留预制棒光滑的圆柱侧面轮廓作为微腔的侧壁,再从侧面通过激光烧蚀把旋转的预制棒掏空成微盘结构。由此可见,该方法要求用于构建微腔的材料形状为预制棒结构,不适合制备微腔阵列;第二,需要对飞秒光束进行整形,总体方案比较复杂。

为解决这些问题,我们提出用水辅助的飞秒激光烧蚀方法[117]制备了微腔。由于该方法使用飞秒激光烧蚀,只要激光的脉冲功率等参数适当,原则上任何透明的介质材料,比如非石英玻璃,非线性功能玻璃,都可以用于制备微腔。借助化学计量比的表面热处理技术,甚至可以把该项技术拓展到在晶体材料[129]上构建微腔。作为首个例子来证明飞秒激光微加工技术具有这样的能力,我们在钕玻璃芯片上制备了微腔激光器,并演示了在连续光激励下的低阈值 $69\ \mu\text{W}$ 的激射[130]。

基于回音壁模式微腔的激射[13],要么利用微腔材料本征的非线性光学性质(比如受激拉曼散射、受激布里渊散射、光学参量振荡、四波混频、倍频等),要么把活性材料引进到微腔里。把高品质因子的微腔与不同增益介质,比如有机染料、稀土离子、量子点等,结合起来,将导致覆盖从紫外到红外波段的激射。我们这里演示的是第二类激射,微腔大的 Q/V 保证了腔场与活性材料的强烈耦合,这样就有机会实现低阈值的激射。

3.2 水辅助的飞秒激光刻蚀制备钕玻璃微腔

钕玻璃是在光学玻璃基质中掺入适量的 Nd_2O_3 (活性离子为 Nd^{3+}) 制成的。钕玻璃的基质一般是硅酸盐玻璃、硼硅酸盐玻璃、磷酸盐玻璃和氟磷酸盐等。作为激光介质,钕玻璃在宏观上是光学各向同性的,光学质量好,损耗低,加工工艺成熟,而且能够在室温条件下获得高效率的激光输出,阈值较低,容易实现激光振荡。我们实验中所用的钕玻璃是硅酸盐基的,对 $1064\ \text{nm}$ 光的增益截面范围

在 $2.7 \times 10^{-20} \text{ cm}^2$, 荧光寿命大约 $300 \text{ } \mu\text{s}$, 长的荧光寿命意味着可存储的能量多。在室温下, 钕玻璃的荧光光谱通常由四条强弱不等的谱线组成, 分别对应于 $^4\text{F}_{3/2}$ 向 $^4\text{I}_{9/2}$ 、 $^4\text{I}_{11/2}$ 、 $^4\text{I}_{13/2}$ 和 $^2\text{A}_{9/2}$ 跃迁, 中心波长分别对应于 $0.88 \text{ } \mu\text{m}$ 、 $1.06 \text{ } \mu\text{m}$ 、 $1.35 \text{ } \mu\text{m}$ 、 $1.9 \text{ } \mu\text{m}$ 。其中 $1.06 \text{ } \mu\text{m}$ 的荧光最强。钕玻璃中 $1.06 \text{ } \mu\text{m}$ 辐射为四能级系统, 激光上能级位于 $^4\text{F}_{3/2}$ 多重态的下能级, 下能级位于 $^4\text{I}_{11/2}$ 多重态的下能级, $^4\text{I}_{11/2}$ 上的粒子通过向基态 $^4\text{I}_{9/2}$ 的自发辐射而排空。钕玻璃的荧光最显著的特点是荧光谱较宽, 约几十纳米的波长范围。它的吸收谱较宽, 特别是在 800 nm 附近具有较强的宽吸收谱。图 3.2 显示了钕离子的四能级图。

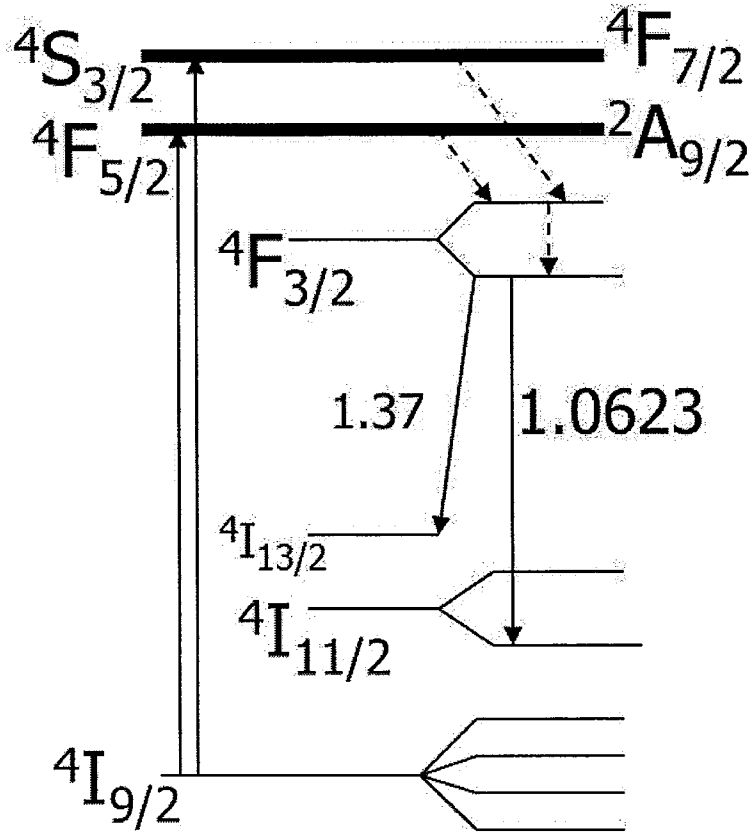


图3.2 钕玻璃中 Nd^{3+} 部分的能级。

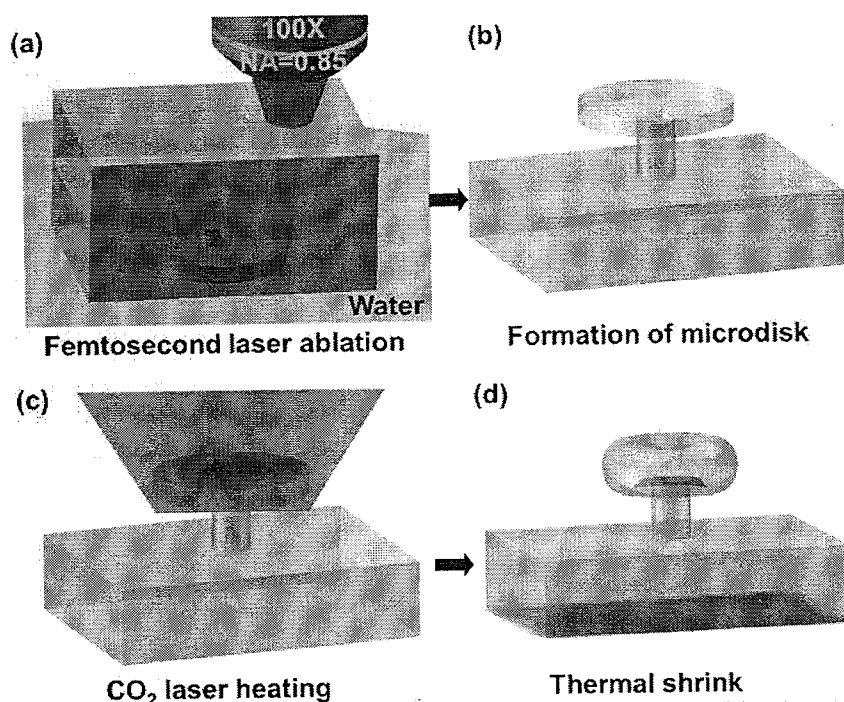


图3.3 钕玻璃光学微腔的制备流程：飞秒激光烧蚀、二氧化碳激光加热[130]。

实验所用的钕玻璃衬底的成分大致为 1.2 wt.% Nd_2O_3 , 50-60 mol. % SiO_2 。它的尺寸为 $8 \times 4 \times 1$ mm, 上下两面抛光。钕玻璃微腔的制备流程包括：(1) 飞秒激光对浸没在水中的玻璃背面进行烧蚀，制备微盘结构；(2) 二氧化碳激光器为微盘表面进行回流处理，降低表面粗糙度，如图 3.3 所示。在飞秒激光烧蚀过程中，焦斑附近的材料被选择性移除，因此通过连续改变焦斑与样品的位置，就可以制备任意的三维微结构，比如由更细支柱支撑的微盘结构。飞秒激光微加工系统包括：钛宝石飞秒激光器（相干公司，中心波长约 800 nm，脉宽~40 fs，重复频率 1 kHz），由计算机控制的精度为 1 微米的三维平移台，数值孔径~0.85 的聚焦物镜以及中性密度滤波片等。飞秒激光束经过小孔光阑改善光束质量后，通过可以调节功率的中性密度滤波片，再经物镜会聚到固定在平移台上的样品背面。选择合适的功率~2.8 mW，使激光能对样品表面进行烧蚀。激光烧蚀的前沿保持与水接触，方便去离子水移除烧蚀出来的材料碎屑。从背面往内部逐层作圆环形烧蚀，相邻两层的间隔为 $2.9 \mu\text{m}$ ，以保证足够的烧蚀层重叠。飞秒激光烧蚀完毕以后，直径为 $74 \mu\text{m}$ 、厚度 $12 \mu\text{m}$ 的微盘，由直径 $16.7 \mu\text{m}$ 、高度 $51.3 \mu\text{m}$ 的支柱支撑在衬底上。大概花 2 小时的时间制备这么一个微盘结构，可用振镜扫描系统或者旋转台代替基于现有三维平移台的逐点扫描方法，提升烧蚀速度，缩短时间。

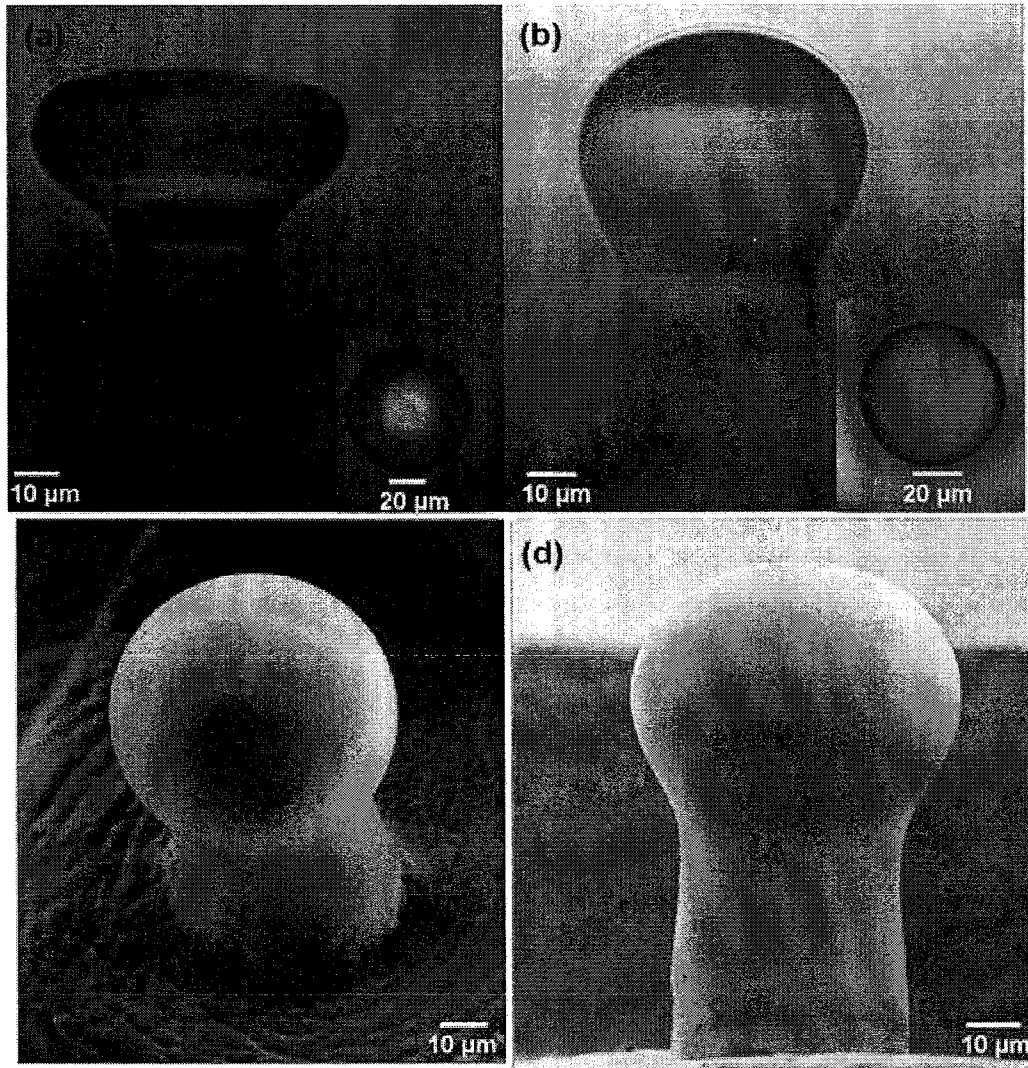


图3.4 (a)钕玻璃微芯环腔的光学显微图, (b)钕玻璃类球体微腔的光学微腔的光学显微图, (a)(b)的插图为微腔的俯视图; (c)(d)从不同角度观测类球体微腔的扫描电镜图[130]。

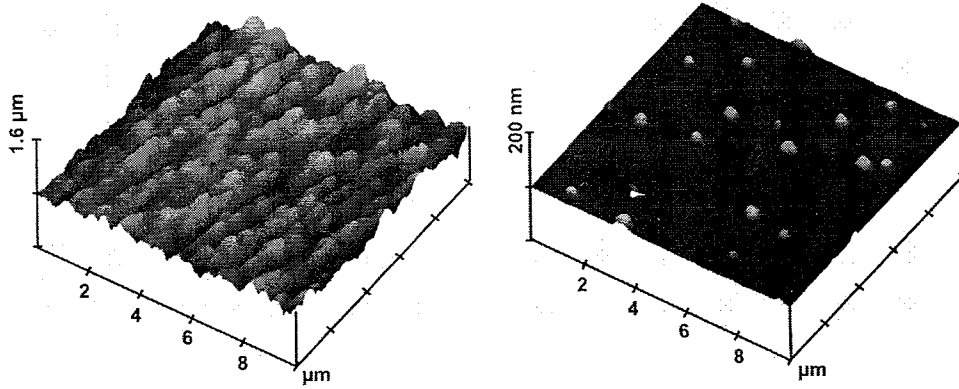


图3.5 二氧化碳激光回流前(a)后(b)的表面粗糙度对比(原子力显微图)。

一般飞秒激光在透明玻璃材料烧蚀出来的平均表面粗糙度在几十纳米的量级,这不利于高品质微腔的应用。提升表面光滑度,减少表面散射损耗,是提高品质因子的关键。二氧化碳激光回流技术仍然被用于通过熔融玻璃表面产生表面张力去产生光滑的表面。为了测量其表面粗糙度,我们用同样的飞秒激光烧蚀条件,在钕玻璃背面制备了一个平面结构,用原子力显微镜观察二氧化碳激光回流前后的表面粗糙度。其平均表面粗糙度可以从回流前的 59.79 nm 降低 0.88 nm,如原子力显微图 3.5 所示。值得注意的是,这种回流过程,并没有引起钕离子的析出。

经过回流以后,微腔的表面收缩成微芯环腔的结构,若进一步回流,则收缩为类球体微腔。它们的光学显微图、扫描电镜如图 3.4 所示,其中类球体微腔的尺寸约为 60 μm。为了避免增益介质的吸收,我们用 1550 nm 附近波长的可调谐激光、用光纤锥耦合的办法[27-28],去测量微腔的品质因子。在这里,所用的可调谐激光器为 Agilent 81600B 模块,绝对波长精度±10 pm,相对波长精度±5 pm,波长分辨率 0.1 pm,输入功率为-5 dBm,扫频速度 5 nm/s;瞬态功率测量计为 Agilent N7744A,计算机实时测量软件为 Agilent 8164B 光器件测试平台与 Agilent N7700A 光应用软件套件。品质因子的测量值为 1.065×10^6 ;自由光谱范围为 8.9 μm,在这里,微腔的折射率约为 $n=1.57$,周长为 $C=188.5 \mu\text{m}$,当波长取为 1546.81 nm 时,自由光谱范围的理论估算值

$$\Delta\lambda \approx \frac{\lambda^2}{n \times C} = 8.1 \mu\text{m}。$$

它们很接近。这结果,与飞秒激光直写辅助的化学腐蚀方法制备的熔融石英微腔的品质因子接近,也与其他小组用飞秒激光烧蚀技术在石英玻璃棒上制备的微腔的品质因子的数量级一致[128]。这表明来自微腔表面的散射损耗已经很小,主要的差别来自钕离子掺杂造成的锐利散射。

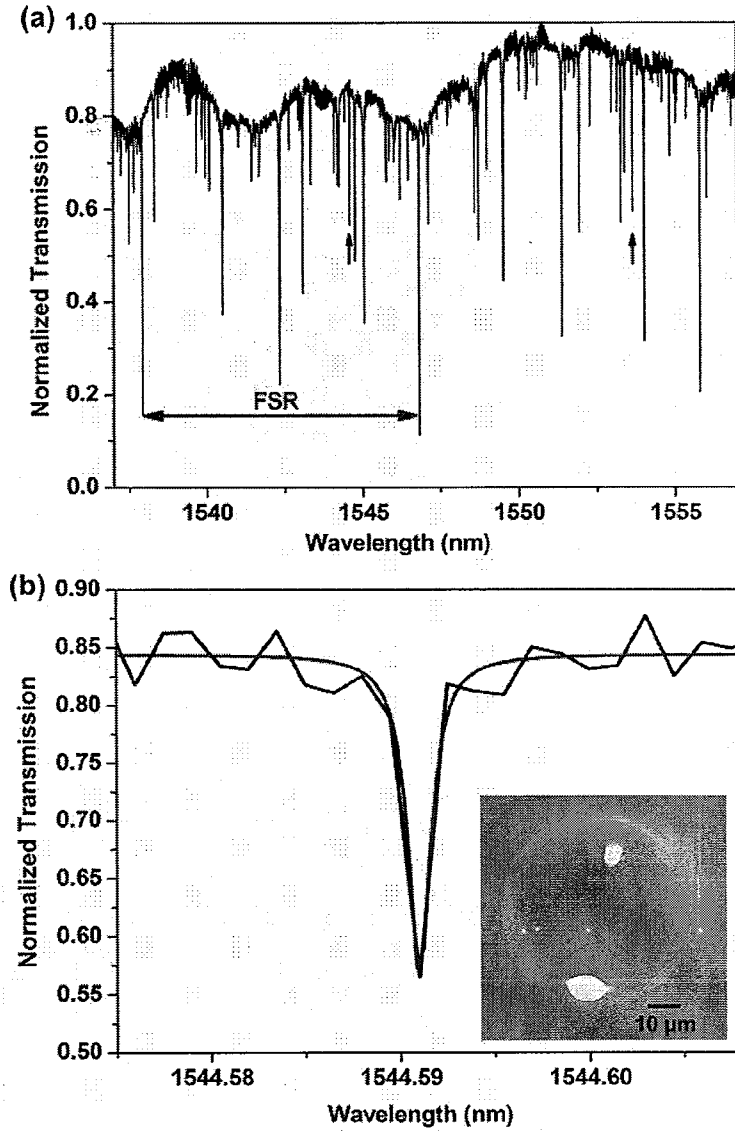


图3.6 (a)光纤锥与微腔耦合的归一化透射谱, (b)对 1544.59 nm 附近谐振透射谱 (黑实线)的洛伦兹线型拟合 (红实线), 拟合得到的品质因子为 1.065×10^6 , 插图是光纤锥与微腔耦合的光学显微图。

3.3 微腔的激励

为了降低阈值, 一般采用光纤锥与微腔耦合等相位匹配技术[27-28]来实现激

射。但由于我们没有钕离子吸收峰 808 nm 附近的可调谐光源，这样比较难实现泵浦光波长与微腔腔模的谐振。图 3.7 为 808 nm 的连续激光二极管经过光纤锥对钕玻璃微腔进行泵浦的激射实验。由于类球体微腔的模式比较丰富，即使窄带的泵浦光，也很容易与腔模取得谐振，不过其耦合效率不一定最佳（要求泵浦光波长与腔模一致）。从图中可见，泵浦光基本被约束在微腔的边缘，而中心部分几乎没有光场分布。

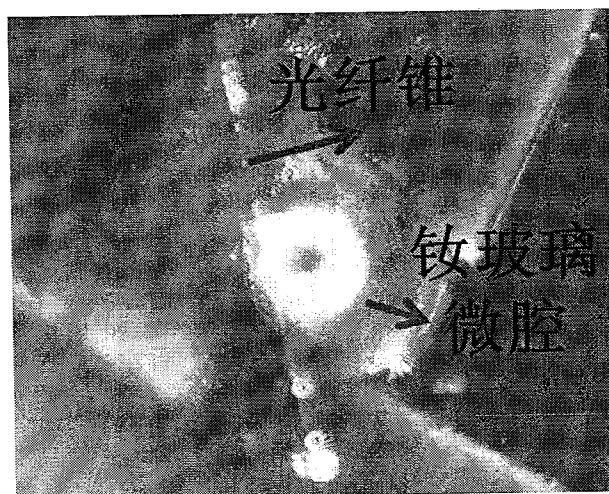


图3.7 用光纤锥在过耦合情况下用 808 nm 的激光二极管（泵浦功率 100 微瓦）泵浦微腔的光学显微图，测到激射谱（这里未提供）。

因此我们使用了 780 nm 波长、线宽~1 nm 的连续激光二极管对微腔进行自由空间激励。泵浦光首先耦合到一段光纤（康宁公司，SMF-28），光纤的另一端靠近微腔，当光从光纤输出，它在空气中传播了一段距离，因而存在发散。在微腔位置，泵浦光的尺寸因发散而增加到约 80 μm ，保证了激励光束与微腔的有效耦合。为了测量微腔的荧光发射谱，一个数值孔径 0.25 的、10 倍物镜被用于在微腔侧面收集光谱，并以 35 倍的放大率把微腔投影到光栅光谱仪（Andor，型号 Du920）的入口狭缝上。安装在光谱仪出口处的二维 CCD 阵列可用于拍摄微腔发射的二维空间-光谱成像。在光谱仪前面，一个光学滤波片被用于过滤泵浦光。当光栅被旋转到零级衍射的位置，狭缝开得很小的时候，可用 CCD 对激光发射时的情景进行成像。在微腔赤道面的两端，可以观察到两个亮点，这是由于回音壁模式的性质决定的，存储在微腔中的光，只能从边缘沿着切向方向逃逸出腔外。这情况，与用 808 nm 波长的激光通过光纤锥去泵浦微腔的情形一致，如图 3.7 所示。腔内循环的泵浦光处在微腔的边缘，信号光的空间分布也要符合回音壁模式的特征。

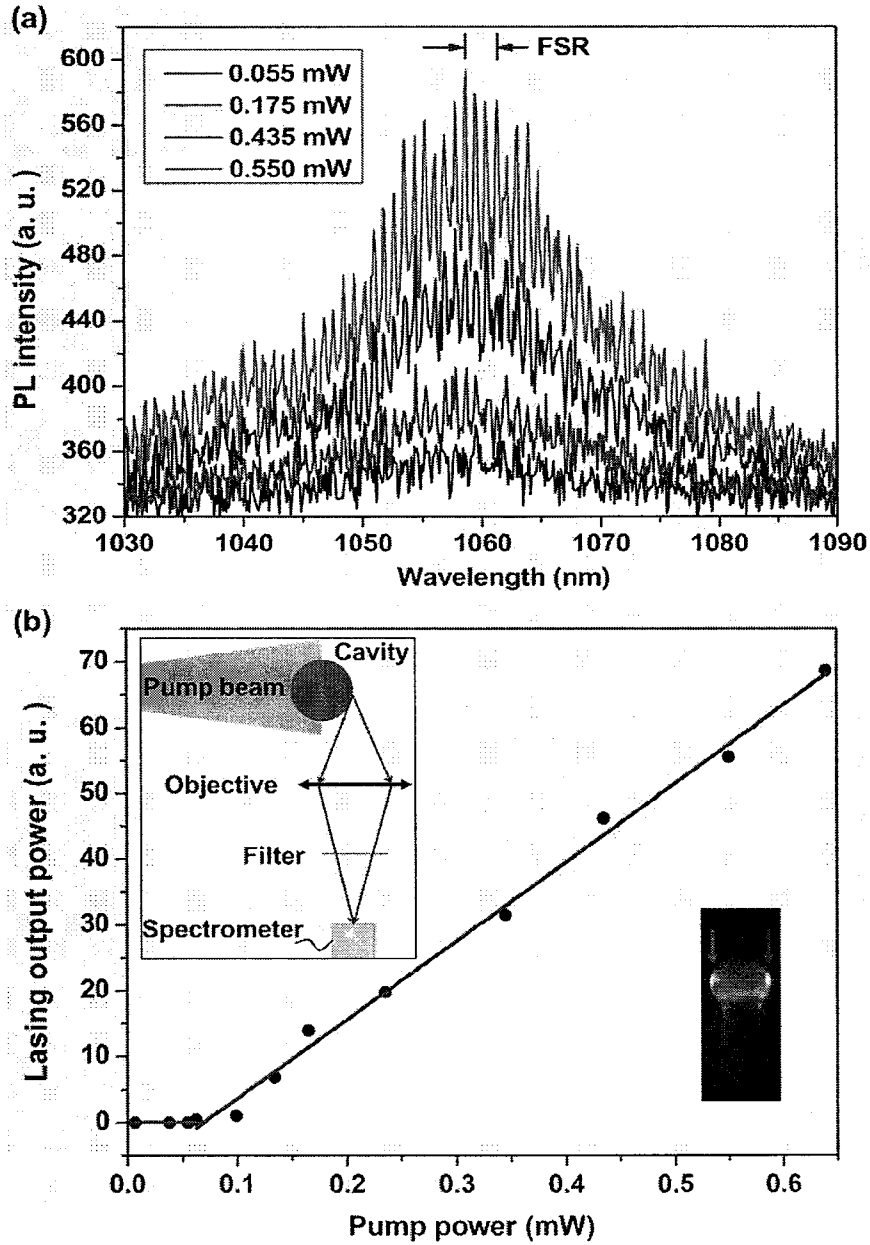


图3.8 (a)微腔荧光发射谱随泵浦光功率变化而演变;(b)微腔激光输出功率与泵浦光功率的关系, 线性拟合后得到激光的泵浦阈值为 69 微瓦, 上插图表示实验光路图, 下插图为光谱仪 CCD 拍摄到微腔边缘的激光点[130]。

为了观测激光谱, 我们将光栅旋转到一级衍射的位置。此时, 狭缝的宽度调

整到 $90\ \mu\text{m}$ ，通过调节样品的位置，使得只有微腔赤道面边缘左端或者右端的信号才能进入光谱仪，以抑制背景噪声。发射谱如图 3.8(a)所示，在低的激励功率下，只能探测到宽谱的荧光；随着激励功率的增加，分立的峰开始出现；当激励功率大于某个值以后，这些周期性的谐振峰迅速增强。激光谱显示为多模结构，自由光谱范围约为 $3.56\ \text{nm}$ ，接近估算值的 $3.78\ \text{nm}$ 。当激励功率为 $0.55\ \text{mW}$ 时， $1058.64\ \text{nm}$ 波长处的模式的半高全宽约为 $0.34\ \text{nm}$ 。其激光谱宽度覆盖 $1030\text{--}1090\ \text{nm}$ ，最强的激光峰位于 $1060\ \text{nm}$ 附近，这与铈离子的宽的荧光谱一致。微激光输出功率随泵浦光功率变化的曲线如图 3.8(b)所示，通过拟合得到的泵浦光阈值约为 $69\ \mu\text{W}$ 。考虑到泵浦波长与增益介质吸收峰的失谐，以及泵浦光直接辐照造成的低耦合效率，泵浦光的阈值可以进一步降低。

从激光谱，我们看出它呈现多模结构。下面我们再看看微腔激光端的二维空间-光谱成像(图 3.9)。可以看出，在微腔边缘的竖直方向，激光谱沿着空间有一定的分布，这说明模式并不只是局限在赤道面，而是在赤道面周围的带状区域内。而仔细观测横坐标方向，光谱受到微腔的周期性调制，这些极大值对应于图 3.8 (a)里的峰值。

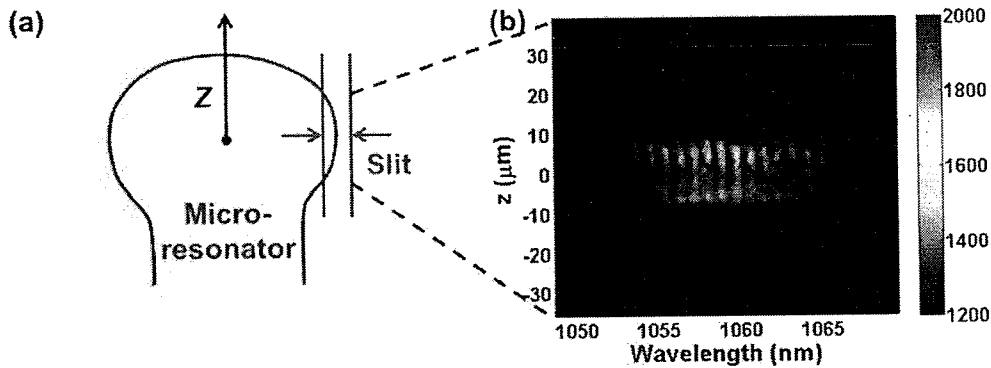


图3.9 微腔边缘的空间-光谱二维图像。

我们也制备了相对于衬底倾斜的三维铈玻璃微腔，其倾斜角也可以任意设定。经过二氧化碳激光器回流以后，微腔的表面变得很光滑。假如再引入定向发射设计，我们将可以实现相对于衬底朝面外的单向定向激射，这可以利用微腔的第三维度，方便微腔与量子系统的空间耦合操纵，以及提供在芯片上集成多功能器件的空间布局的自由度。

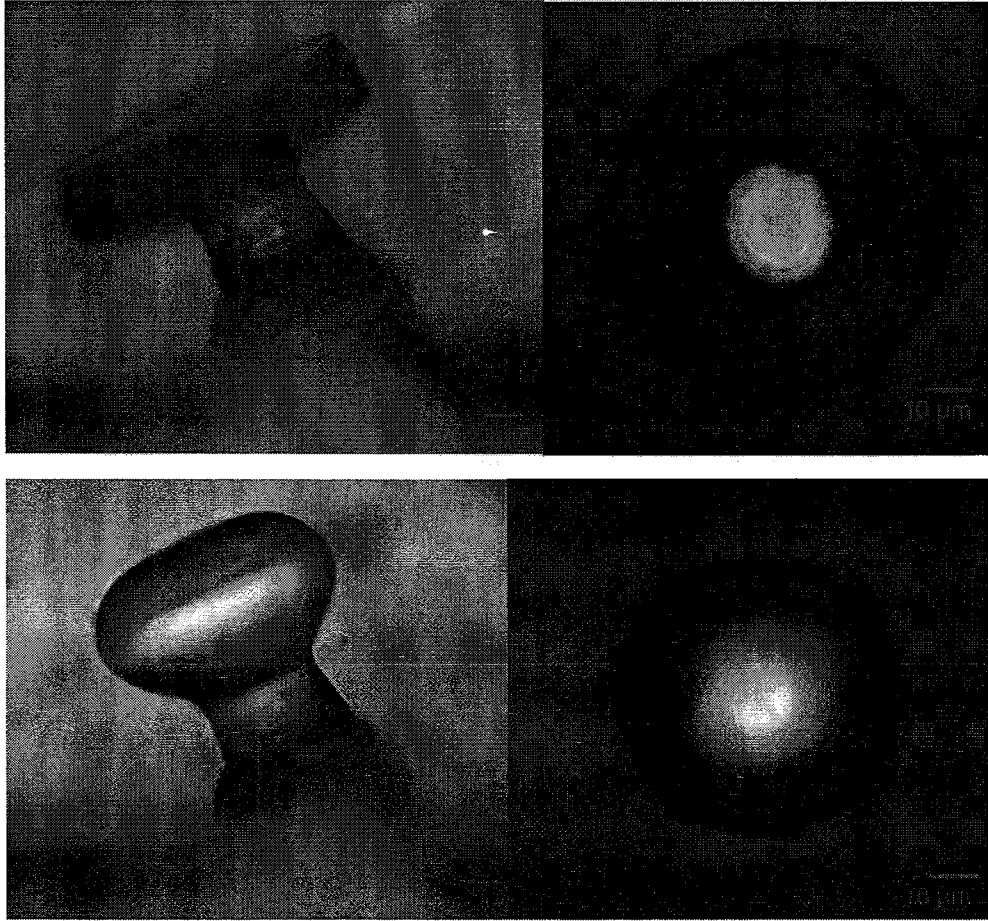


图3.10 相对于衬底倾斜的三维钼玻璃微腔，从左到右，上排分别为回流前微腔的侧面、正面成像的光学显微图，下排则是回流后对应的光学显微图。

为了进一步证明该制备方案的微腔材料选择适应性，我们在玻璃成分为 $33.3\text{BaO}-16.7\text{TiO}_2-50\text{SiO}_2$ (mol %) 的玻璃样品中，用水辅助的飞秒激光烧蚀方法制备一个微盘。这种功能玻璃可以用 800 nm 中心波长、重复频率 250 kHz 飞秒激光局域诱导 $\text{Ba}_2\text{TiSi}_2\text{O}_8$ 非线性光学晶体，该晶体可以产生倍频效应[131]。也就是说，我们可以先制备了这种微腔，再在腔内诱导倍频晶体，产生低阈值的倍频效应。对其他二阶非线性系数比较大的玻璃，为了抑制自聚焦，可能需要用到时间聚焦整形技术[84、90-92]，提升轴向分辨率。

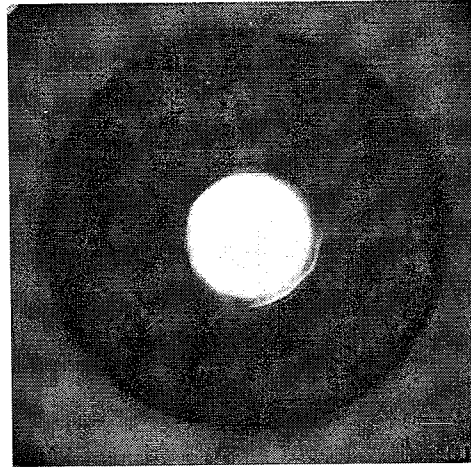


图3.11 我们在上面提到的光功能玻璃上制备的微腔。

3.4 小结

我们证明了飞秒激光三维微加工技术可用于在钕玻璃上制备基于高品质的回音壁微腔的激光器，激射的泵浦阈值为 $69 \mu\text{W}$ ，还可以在低温环境下，换用 808 nm 波长附近的可调谐的激光的倏逝波去泵浦微腔，进一步降低泵浦阈值。也初步演示了该技术可以拓展到其他的光学功能性玻璃，进而有望在这种功能性玻璃里面产生低阈值的非线性光学效应。由于我们的技术只依赖于飞秒激光非热烧蚀，只要功率等参数合适，它可以在大量的非石英玻璃材料上，用一个连续的制备过程，构建光学微腔。这将有利于提升微腔的应用，包括非线性光学、量子光学，乃至量子信息处理。

本章提出的水辅助飞秒激光烧蚀、二氧化碳激光热处理的方案，用于制备三维的活性光学微腔，其主要的优点如下：

- 1、可在多种透明玻璃上制备光学微腔：我们已经证明了该方案可以在钕玻璃、非线性功能玻璃上制备光学微腔，虽然只有两个例子，这并不妨碍把这项技术拓展到其他的透明玻璃材料，利用不同材料的性质实现不同的光子学目的研究。

- 2、微腔表面的粗糙度可以降至亚纳米量级：由飞秒激光烧蚀造成的表面起伏，会在二氧化碳激光加热引起的表面张力作用下消除。

- 3、微腔激光器可以用于生物传感：微激光器已被广泛应用于传感，比如纳米颗粒的探测[70]等。

下一步的工作，包括继续研究非线性功能微腔里面的非线性光学晶体的诱导，进而产生非线性光学效应；或者进一步优化钕玻璃的成分，降低钕离子的团聚，进一步降低激射的阈值。

4 飞秒激光直写在氟化钙芯片上制备的晶体微腔

4.1 引言

回音壁模式光学微腔已在大量的材料上构建,以满足不同的光子学应用目的。这些材料包括非晶玻璃、半导体、晶体、聚合物、液滴等等。尽管非晶玻璃材料上的微腔的品质已超过 10^9 , 已被用于非线性光学效应、单分子探测、腔量子电动力学、腔机械相互作用等领域。但由于它的反演对称性,不具备大的二阶非线性系数,很多非线性光学效应,像倍频、参量下转换、和频、差频等,只能有效的在晶体材料、半导体材料上实现(我们在第一章已经介绍过)。另外,非晶态回音壁模式微腔在实际应用中还有其他挑战[13、39]: (1)腔的最高品质因子由残留的表面粗糙度、腔体材料的不均匀引起的瑞利散射决定,甚至由表面张力形成的微腔,也拥有分子尺度的不均匀度(腔体最大的品质因子不能超过 $Q_{max} = 2\pi n/(\lambda\alpha)$, α 为材料的吸收因子); (2)非晶态微腔在环境中不稳定,比如熔融石英微腔的品质因子随着空气中的水汽往腔中扩散而下降; (3)很难同时拥有光学透明度和高的非线性系数。

目前,晶体腔拥有最高可达 10^{11} 的品质因子(毫米量级的铌酸锂晶体腔与 LiTaO_3 腔的 Q 值都超过 10^8 [36], 氟化钙腔的 Q 值 $>10^{11}$ [11], BBO 腔的 Q 值在 370 nm 紫外区为 1.5×10^8 [37], MgF_2 的 Q 值 $>10^9$ [38], Al_2O_3 的 Q 值 $>10^9$ [39], 以及很宽的透明窗口。它的尺寸一般由近百微米到几个毫米,厚度 0.5-1 mm。这种谐振腔,一般由机械抛光的技术制备[39、132]。抛光技术保留了起初的晶体结构和晶体成分。机械抛光,以及后续的退火处理[11、133-134],可使腔拥有超光滑的表面。比如,对机械抛光出来的 LiNbO_3 , LiTaO_3 腔,它的表面粗糙度是 1-2 nm,经过退火以后,表面拥有原子级的粗糙度(0.25 nm); 石英晶体腔有更好的光滑度(0.1-0.2 nm)。

其加工流程包括[135]: 1. 对晶体晶片进行钻孔,形成圆柱的毛坯,然后把毛坯固定,开始抛光或者金刚石车削(diamond turning)。手工抛光技术非常适合制备大尺寸的微腔。对亚百微米的腔,金刚石研磨技术更适合。后者允许精密地对微腔的几何形状,比如表面弯曲、轮廓,进行加工,表面粗糙度可降至 0.2 nm,

CaF_2 微腔的 Q 值可超过 10^8 。为了得到更高的品质因子,可对微腔进行多晶的金刚石研磨(polycrystalline diamond abrasive),即所谓的光学抛光。由于晶体腔具有更高的品质因子,宽的透明窗口,大的二阶非线性系数,它在滤波、中红外光学频率梳、产生非经典光源中有重要的应用[135]。

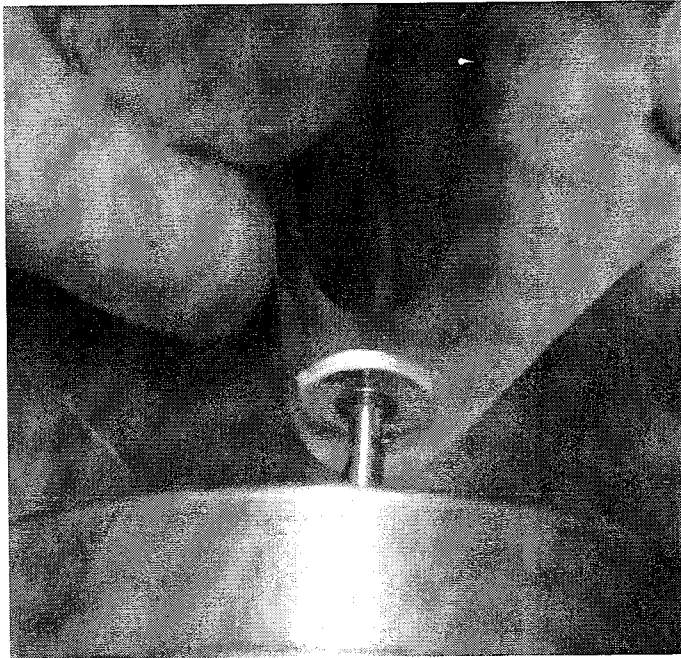


图4.1 在车床上对铌酸锂谐振腔的边缘进行手工抛光[136]。

机械抛光技术,由于晶体的脆弱性,韧性模式切割很难制备亚 $50\text{ }\mu\text{m}$ 直径的晶体微腔[132]。这种微小尺寸微腔的制备与芯片级的集成应用,将对机械抛光方法构成严峻挑战。另外,谐振腔的性能表征,除了品质因子意外,还有模式体积,这些毫米量级尺寸的谐振腔,对需要用到小模式体积、大的自由光谱范围性质的微腔应用场合不利。小尺寸微腔的优点,在于可以降低模式体积,拥有大的锐度 F ,也非常合适于光子学器件所要求的高度集成。

为了解决以上挑战,我们提出利用水辅助的飞秒激光烧蚀技术制备晶体微腔。前面我们已经利用飞秒激光微加工技术制备高品质的被动、活性的玻璃微腔,它们经过热回流以后拥有光滑的表面。但这种回流技术并不适用于晶体微腔。这是由于热回流这种快速加热、降温处理过程,容易导致在晶体表面产生随机排列的微晶,进而造成散射损耗。在这里,我们采用水辅助的飞秒激光烧蚀技术制备了氟化钙晶体微盘,接着用聚焦离子束研磨微盘侧壁,制备了品质因子 $Q=4.2\times 10^4$ 的微腔[138]。

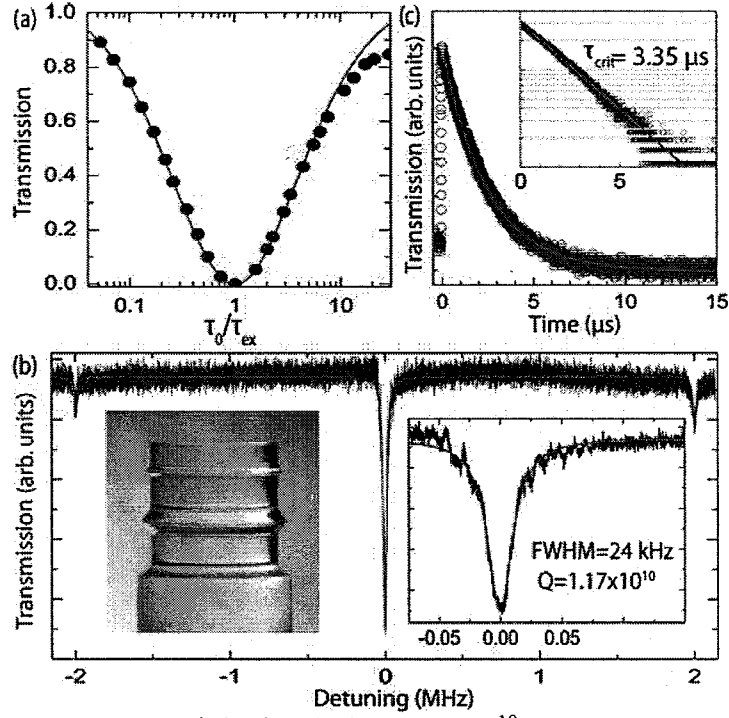


图4.2 用于腔-光机械的超高 Q 值 (10^{10}) CaF_2 腔[137]。

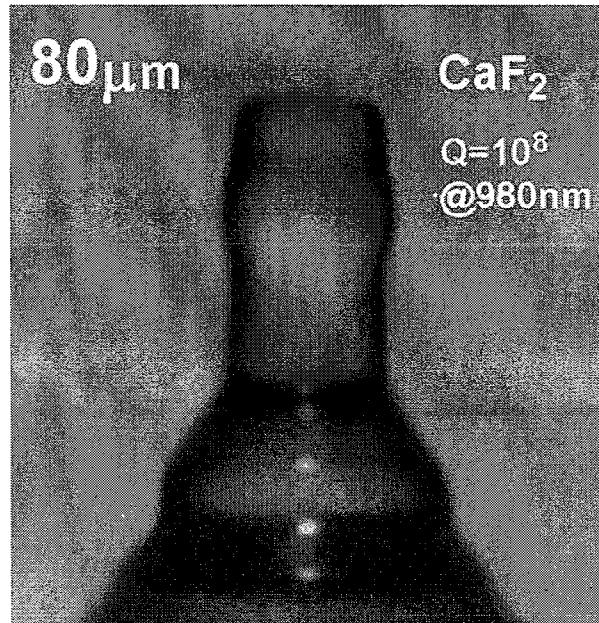


图4.3 尺寸 80 微米的、机械抛光制备的氟化钙微腔[132]。

4.2 飞秒激光制备氟化钙微盘结构

氟化钙晶体为无色立方系晶体， Ca^{2+} 与八个 F^- 以立方体型配位， F^- 与四个 Ca^{2+} 以四面体型配位。1960年，Sorokin 与 Stevenson 在柱状 CaF_2 晶体中掺入 U^{3+} 与 Sm^{2+} 获得了回音壁模式激光输出[5]。氟化钙晶体具有优良的性能，它的透光范围从 $0.125\sim 10\ \mu\text{m}$ ，它在真空紫外波段的高透射率、低的吸收系数、非常高的激光损伤阈值，是其他材料无法比拟的。除此之外，相比熔融石英，光学晶体还有更低的损耗，这是由于晶体理论上拥有完美的晶格，它不包含杂质或者不均匀性，对 OH^- 离子根的吸附造成的吸收损耗免疫。虽然氟化钙晶体的三阶非线性系数比熔融石英还低，但毫米量级的氟化钙腔具有更高的品质因子，对 $100\ \mu\text{m}$ 直径左右的微腔，其品质因子仍然高达 4×10^8 [132]。因此这种腔被广泛应用产生三阶非线性光学效应，比如低阈值的光学参量振荡[139]、低于 $1\ \mu\text{W}$ 阈值的受激拉曼散射[140]，基于四波混频的可调谐光学频率梳[141]、 $3\ \mu\text{W}$ 阈值的布里渊激光[47]以及腔-光机械力学[137]。可见这种氟化钙腔具有很重要的应用价值。下面我们将实现在单一芯片上制备多个尺寸小于 $50\ \mu\text{m}$ 的微腔等问题。

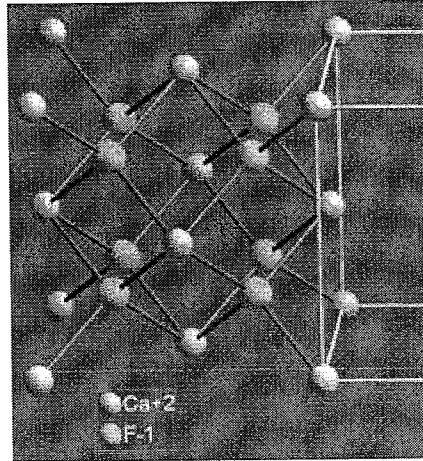


图4.4 氟化钙晶体结构。

在实验中所用的氟化钙晶体是商业化的 Z 切晶体，它的厚度为 $1\ \text{mm}$ ，上下表面经过抛光。氟化钙微腔的制备流程：(1) 飞秒激光对浸没在去离子水中的氟化钙衬底进行背面烧蚀，形成微盘结构；(2) 采用聚焦离子束 (FIB) 研磨技术对微盘结构的侧壁进行抛光，产生超光滑的微盘侧壁，其示意图见图 4.5。飞秒激光微加工系统主要包括一台钛宝石飞秒激光源 (相干公司，中心波长约 $800\ \text{nm}$ ，脉宽约 $40\ \text{fs}$ ，重复频率 $1\ \text{kHz}$)，数值孔径 0.8 的显微/聚焦系统。飞秒激光的平均功率通过中性密度滤波片调节为 $1\ \text{mW}$ ，氟化钙晶体样品固定在由电脑控制的三维平移台上 (空间分辨率 $1\ \mu\text{m}$)。在飞秒激光烧蚀过程中，烧蚀前沿一直与去离子水接触，以便移除碎屑。通过从背面往内部逐层圆环状扫描飞秒激光的焦

斑 ($\sim 1\ \mu\text{m}$), 选择性移除材料, 形成独立的微盘结构。扫描的层间隔为 $1.4\ \mu\text{m}$, 同样为了保证相邻烧蚀层的空间重叠。经过飞秒激光烧蚀以后, 直径 $88\ \mu\text{m}$ 、厚度 $15\ \mu\text{m}$ 的微盘结构由更细的支柱支撑。整个烧蚀过程大约历时 2 小时。

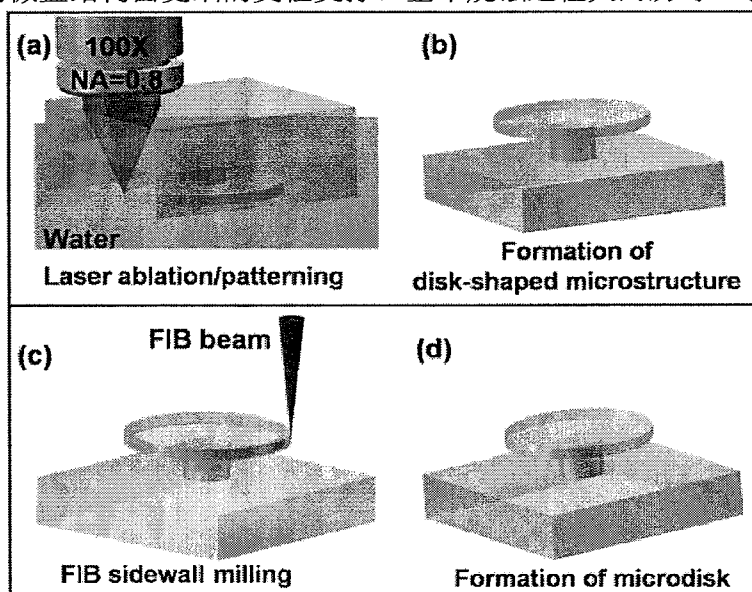


图4.5 氟化钙晶体微腔的制备流程: 水辅助的飞秒激光烧蚀, FIB 对微盘侧壁的研磨[138]。

4.3 FIB 研磨侧壁

尽管二氧化碳激光引起的表面回流, 经常被用于产生表面超光滑的石英玻璃微腔, 但这并不适用于大多数的晶体材料微腔的表面光滑处理[36]。在这里, 氟化钙晶体对二氧化碳激光是透明的, 并不能被加热; 对其他能吸收二氧化碳激光的晶体材料, 由于快速的升温、冷却, 表面的热回流将产生随机排列的微晶, 引起散射损耗。幸运的是 FIB 已被用于精密加工。C. F. Wang 等人通过电子束刻蚀在硅衬底制备了金刚石微腔, 再利用 FIB 去研磨微腔的侧壁, 降低表面散射[142]; L. A. Berea 等人通过聚焦离子束研磨、化学腐蚀的技术, 制备了 InAs/InGaAlAs/InP 半导体量子点微盘腔[143]; E. D. Haberer 等人采用聚焦离子束对 GaN/InGaN 微腔的侧壁进行研磨, 产生了超光滑的侧壁[144]; D. C. Aveline 等人在氟化钙圆盘的边缘用 FIB 刻了一个 $10\ \text{nm}$ 宽度的凹口, 并通过该凹口研究这种开放式谐振腔的模式分布[145]。

在我们的实验中, 由于微盘的侧壁是由飞秒激光烧蚀出来, 其粗糙度较高, 如图 4.8(a)所示。这里, 我们利用 FIB 对微盘的侧壁进行研磨, 产生了超光滑的侧壁。被研磨的样品首先被溅射了一层约 $20\ \text{nm}$ 后的纳米金层, 减少 FIB 研磨过

程中的电荷累积。然后该样品固定在铜基座上，并置于 SEM/FIB 双束系统（Carl Zeiss, 型号: AuRIGA）中，其结构如图 4.6 所示。微腔的上表面面向离子束。SEM 枪与 FIB 枪的夹角为 53° ，FIB 离子源为镓离子。

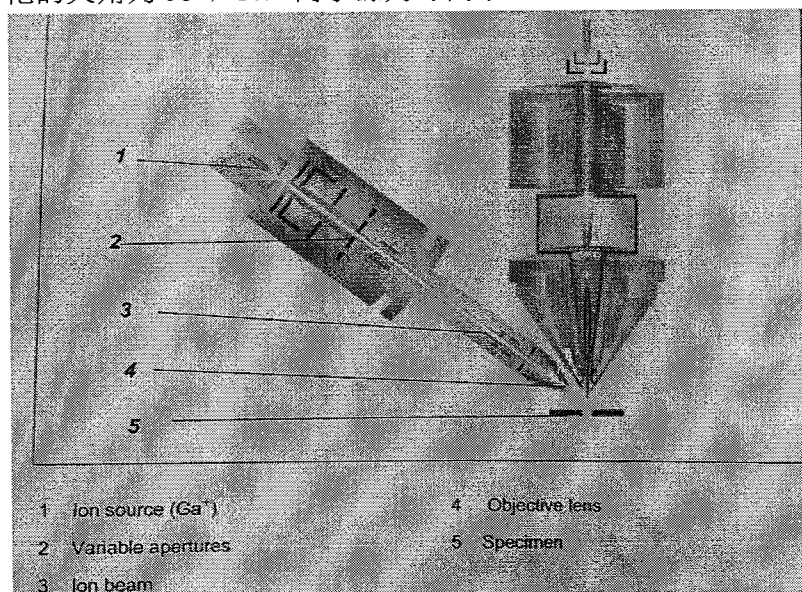


图4.6 SEM/FIB 双束系统结构图。

我们对微盘侧壁进行了两轮研磨，第一轮为粗磨，第二轮为精细研磨，在研磨过程保持微盘的位置不变。在粗磨时，我们用束流为 30 nA 的 30 keV 离子束扫描，扫描区域为覆盖微盘圆周的圆环，圆环的径向宽度为 4 微米，圆环的高度设置为 5 微米左右。

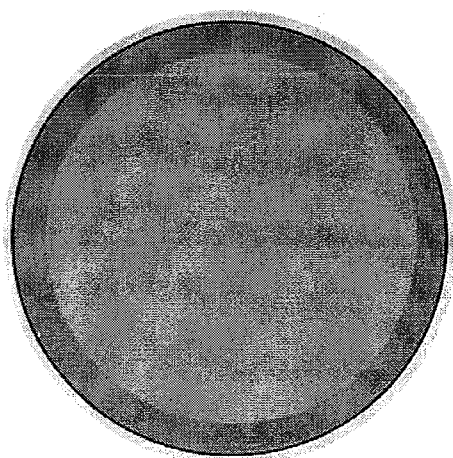


图4.7 FIB 研磨示意图，蓝色的圆盘表示微盘，其边缘用黑色实线表示，红色的圆环为 FIB 扫描构图 (patterning)。

经过粗磨以后，微盘的侧壁变光滑了，如图 4.8(b)所示。放大倍率更大的图(图 4.8(d))，显示了侧壁上还存在精细结构——在侧壁上有竖直取向的条纹，条纹的方向平行于离子束的方向。这些精细的条纹可在下一轮的精细研磨中消除。第二轮研磨的参数（以硅为参照物）如下，圆环再次沿着微盘轴心收缩，覆盖微盘新的边缘，径向宽度为 4 微米，圆环的高度为 5 微米，30 keV 离子束的束流减少到 16 nA。图 4.8(c)为经过精细研磨以后的微腔的扫描电镜图，微盘的直径已经降至 79 μm 。放大倍数更大的电镜图见图 4.8(e)，里面已经观测不到任何条纹了。由于我们的方案值用到飞秒激光烧蚀、聚焦离子束研磨，这些并不依赖于某些晶体材料特有的性质，因此具有广泛的晶体适应性。

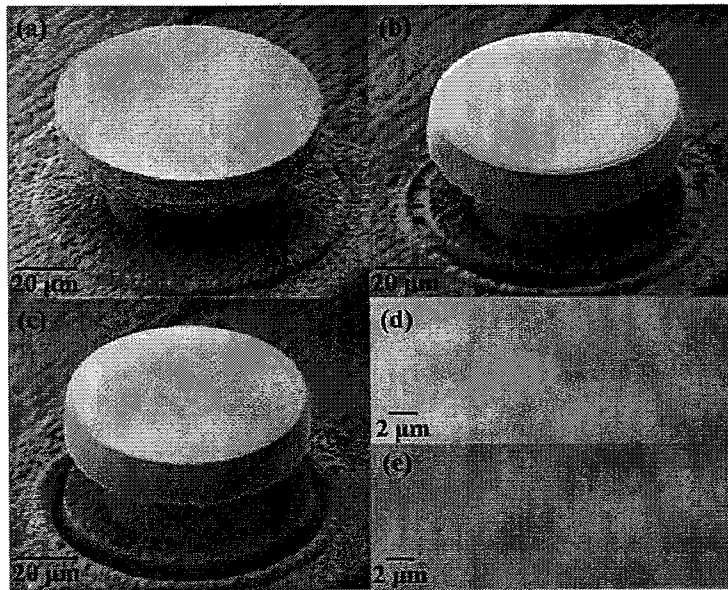


图4.8 飞秒激光微加工制备的氟化钙微盘在 FIB 粗略研磨之前(a)与之后(b)的扫描电镜，以及精细研磨后的形貌(c)，(d)与(e)分别为精细研磨前后的微盘侧壁的放大的扫描电镜图[138]。

飞秒激光微加工是一种灵活的三维加工技术，它允许在单一衬底上制备不同尺寸的光学晶体微腔。图 4.9 为两个不同尺寸在氟化钙晶体微腔被同时制备在同一片衬底上。左边微腔的直径为 30 μm ，厚度 10 μm ，右边微腔的尺寸为 36 μm ，厚度 15 μm 。理论上，利用这项技术可以制备尺寸更小的微腔，比如在飞秒激光烧蚀的时候，定义更小的微盘结构尺寸，该尺寸还可以通过后续的 FIB 研磨进一步缩小。

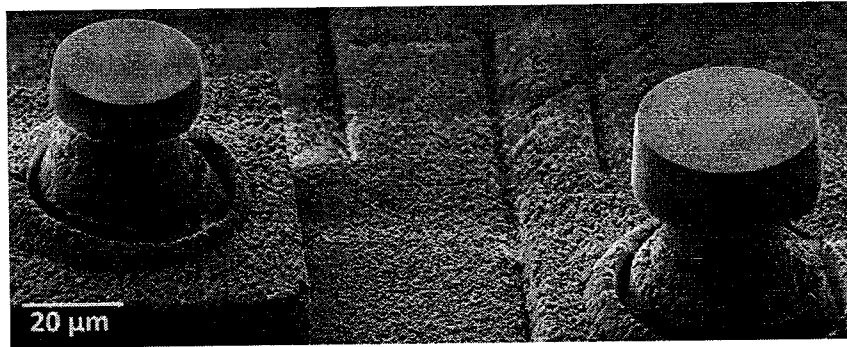


图4.9 在同一衬底上经 FIB 研磨后的不同尺寸的微腔，左边的尺寸为 30 微米，右边为 36 微米[138]。

4.4 微腔性能的特征

由于氟化钙晶体的折射率接近石英玻璃光纤的折射率，因而可以用光纤锥耦合的方法[27-28]去测量氟化钙晶体微腔的 Q 值、表征它的透射谱。从可调谐激光 (Agilent, 型号 81600B) 发出光, 扫频范围 1546-1560 nm, 先被耦合到光纤锥, 再通过倏逝波与微腔耦合, 然后再经过光纤锥入射到瞬态光功率计 (Agilent, 型号 N7744A), 由此得到透射谱。其中微腔被固定于 50 纳米空间分辨率的三维压电平台上 (PI, 型号 E-463); 光纤锥的束腰尺寸约 1 μm , 允许倏逝波与腔模的匹配。通过调节微腔与光纤锥束腰的距离, 就可以实现光纤锥倏逝波与腔模在空间上重叠。其透射谱如图 4.10(c)所示, 实测的自由光谱范围为 6.43 nm, 根据折射率 $n=1.43$, 周长 $C=276.46 \mu\text{m}$, $\Delta\lambda \approx \frac{\lambda^2}{n \times C}$, 计算出理论估算值为 6.10 nm。两个数据很接近。图 4.10(d)显示了在 1546.51 nm 附近回音壁模式。经过洛伦兹线型拟合以后得到线宽 $\delta\lambda = 36.74 \text{ pm}$, 品质因子 $Q = \frac{\lambda_c}{\delta\lambda} = 4.2 \times 10^4$ 。对图 4.9 左侧的微腔, 其品质因子的测量值为 1.8×10^4 , 透射谱如 4.11 所示。

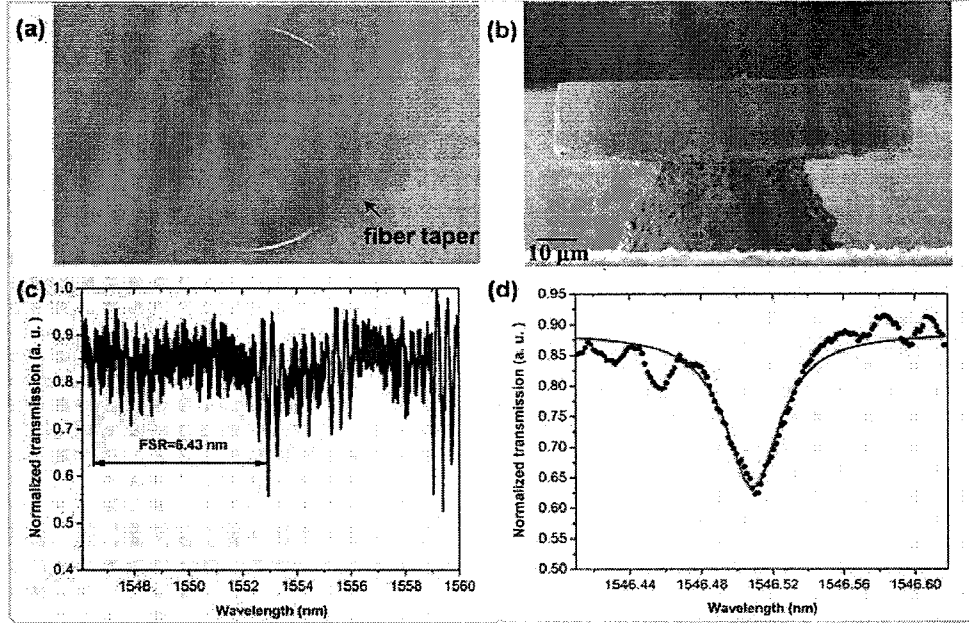


图4.10 (a)光纤锥与微盘耦合的光学显微图；(b)微盘侧面的扫描电镜，可见微盘侧面不是垂直于微盘上表面的，而是存在锥度；(c)光纤锥与微盘耦合的透射谱；(d)位于 1546.51 nm 的回音壁模式(蓝点线)的洛伦兹线型拟合(红实线)，测得 Q 值为 4.2×10^4 [138]。

4.5 讨论

由传统机械抛光得到的氟化钙晶体腔的品质因子[11、39、132]高达 $10^9 \sim 10^{11}$ ，即使该方法已经报道的最小尺寸 80 微米直径的微腔，其品质因子也超过 10^8 。但是该方法很难制备尺寸更小的微腔，并将多个微腔制备在单一芯片上。我们在这里已经利用飞秒激光三维微加工在同一芯片上制备了两个尺寸小于 40 μm 的微腔。

飞秒激光微加工制备的氟化钙晶体微腔，其品质因子受限的原因值得探讨。飞秒激光微加工制备的微腔，经过 FIB 研磨侧壁以后，其侧壁已经相当光滑，但其品质因子仍然低于 10^5 。如图 4.10(b)，微盘的侧壁相对于微盘轴心方向是存在很小的倾斜角 3.8° 的。这是由于 FIB 研磨的属性造成的。FIB 研磨是自上往下、垂直研磨的，聚焦离子束在焦点前是发散的，由于微盘具有一定的厚度，这会影响 FIB 离子束的质量，造成楔形边缘。虽然这种倾斜楔形边缘在二氧化硅微盘里面可以实现超高 Q 值[146]，因为二氧化硅微盘的底面比侧壁更光滑，楔形边缘可以驱使腔模远离粗糙的侧壁，降低散射损耗。但在这里，由飞秒激光烧蚀出来的微盘下表面很粗糙，严重影响了 Q 值。假如在 FIB 研磨过程中，离子束可以

相对于微盘斜入射,如图 4.12 所示,这个楔形边缘效应就可以避免,甚至形成倒楔形的边缘,让腔模接近光滑的微盘上表面。但我们现有的设备,并不允许我们旋转离子束。另外的方法,就是通过在微盘的下表面镀膜,或者对小表面进行化学腐蚀,降低下表面的散射损耗。另外我们没有对 FIB 研磨以后的微腔进行热退火,修复研磨时离子束抛光造成的缺陷[142-143],因此还存在很大的 Q 值提升空间。

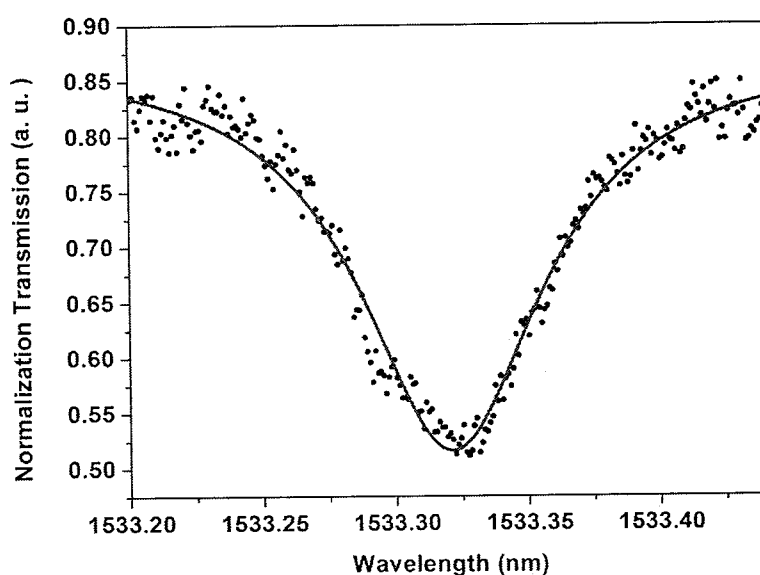


图4.11 30 微米尺寸的微腔的品质因子为 1.8×10^4 。

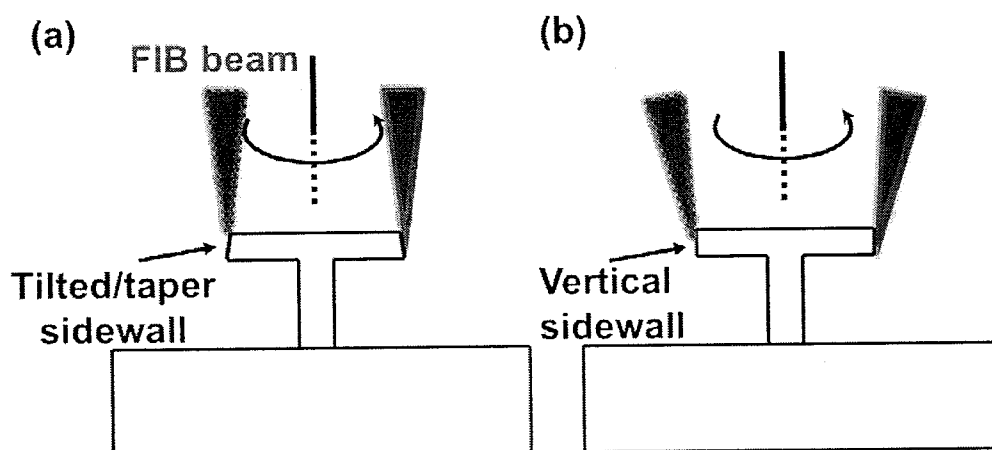


图4.12 消除锥角所需要的 FIB 研磨示意图

飞秒激光微加工制备单个微腔的时间约为 2 小时,此时飞秒激光直写的速度为 $600\text{ }\mu\text{m/s}$,激光脉冲的重复频率为 1 kHz 。假如我们采用更高重复频率的飞秒激光脉冲,那么飞秒激光扫描速度会得到提升,这样一来就可以缩短微腔制备的时间。或者,结合反应离子束刻蚀之类的平面微加工工艺与飞秒激光直写结合起来,首先用平面加工工艺在衬底上制备一系列的微柱体,再用飞秒激光将微柱体烧蚀成微盘结构,最后用 FIB 研磨微盘的侧壁。这方法可以极大地提升微腔的产率。

4.6 小结

我们利用水辅助的飞秒激光在氟化钙晶体衬底背面烧蚀了微盘结构,接着用聚焦离子束研磨侧壁,制备了尺寸几十微米的芯片上的氟化钙晶体微腔,其品质因子大于 10^4 。小的尺寸,意味着大的自由光谱范围,一般也意味着小的模式体积,这在生物传感等领域具有重要应用。并且预留了微腔品质因子提升的空间,比如旋转 FIB、在微盘下表面镀膜、退火修复晶格损伤等。

这里所采用的飞秒激光烧蚀、聚焦离子束研磨,均只是直接移除材料,并不依赖于材料的性质,只是激光参数、离子束等参数恰当,原则上任何光学晶体都可以用于制备光学微腔,因而具有普遍适用性。这对利用晶体微腔的低阈值非线性光学效应产生经典、量子光源,乃至量子信息处理,提供了技术手段。

我们在这里演示了氟化钙晶体微腔的制备,其尺寸可以进一步降低至几微米。可由飞秒激光直写直接制备更小尺寸的微腔,再经过 FIB 研磨进一步减少尺寸。具体到氟化钙晶体,它具有宽的透射谱,极低的吸收损耗,理想的材料均匀性,零声子线,并且对 OH 根吸收所造成的损耗免疫,是一种优良的微腔工作介质。而且氟化钙晶体也很容易掺杂,或者经过三阶非线性效应产生激射。

5 飞秒激光微加工制备的铌酸锂晶体微腔及其倍频效应

5.1 引言

在回音壁模式光学微腔中,沿着光滑的圆形侧壁连续全内反射将导致微腔在微腔材料的透明范围里具有高的品质因子与小的模式体积,显著地增强光场。因此回音壁模式光学微腔被广泛用于低阈值激光[13、44-46]、传感[68-70]、光机械力学[71]等。近来,回音壁模式微腔中的非线性光学现象特别引人注目[33、49]。基于复杂的半导体光刻工艺在芯片上制备的二氧化硅与半导体微腔,已经显示出显著的二阶和三阶非线性光学系数[50-51、54-55、60]。但是由于窄的带隙,半导体微腔通常具有相对大的吸收损耗;而二氧化硅微腔则没有二阶非线性吸收,三阶非线性吸收较低。

另外一方面,介质晶体回音壁模式谐振腔显示了构建下一代非线性光源的美好前景。由于相对比较大的非线性系数,低的本征吸收和宽的透明窗口,晶体谐振腔已经用于产生经典以及非经典光源[36-38、40、47、52-53、55、61]。具有二阶非线性系数的晶体谐振腔,能提供在经典领域、量子领域的新机遇。首先它们能通过相位匹配条件在宽的光谱范围内构建紧凑、稳定和高度可调谐的光源;第二,由于它们需要的泵浦功率很低,尺寸很小,有朝一日它们将可以为光谱应用提供手提式或者机载式的窄带可调谐光源;第三,它们是通用的非经典光源。作为一种重要的铁电非线性晶体材料,铌酸锂晶体特别令人感兴趣,因为通过电光效应可在铌酸锂晶体微腔上对模式进行快速、有效调谐[147]。但是由于晶体材料生长技术、缺少有效的微加工方法,制备高品质的铌酸锂谐振腔严重依赖于机械抛光方法[39、132]。在芯片上制备高品质的亚毫米尺寸的铌酸锂谐振腔仍然是一个严峻的挑战[147-148],它将阻碍很多应用。

在这章,我们将利用飞秒激光微加工技术、FIB 抛光、热退火方法,在芯片上制备高品质的亚毫米铌酸锂谐振腔,其品质因子在 1550 nm 附近达到 1.6×10^5 ;并且用中心波长 800 纳米的脉宽约 30 飞秒的飞秒激光,通过光纤锥过耦合的方法,实现了有效的倍频,在 5 mW 泵浦光功率下,其转换效率为 1.04×10^{-5} 。

5.2 铌酸锂晶体的非线性光学性质

铌酸锂晶体是氧八面体结构的铁电体, 具有优异的铁电、压电、电光 (电光系数 $r_{33} = 33 \text{ pm} \cdot \text{V}^{-1}$, $r_{13} = 8 \text{ pm} \cdot \text{V}^{-1}$)、非线性光学效应和光折变效应, 被称为光子学里的“硅”, 已被广泛用于制作各种声表面波器件、高频高温换能器、红外探测器、激光调制器、激光倍频器、Q 开关、光参量振荡器、无线电滤波器、延长线和光波导等光学及压电器件等等。再加上它具有大的透射窗口 ($0.4\text{--}5 \mu\text{m}$), 在近红外通信波段, 或者可见波段的频率转换, 具有很重要的应用。

铌酸锂晶体是一种负单轴 ($n_o > n_e$) 的晶体, 当工作波长为 $1.55 \mu\text{m}$ 时, $n_o = 2.21$, $n_e = 2.14$, 在室温下属于三方晶系, $3m$ 点群。铌酸锂是色散介质, 它的折射率取决于介质中的成分。在红外到紫外区域, 由塞尔迈耶尔 (Sellmerier) 方程给出的折射率 n_i , 与成分、温度等变量存在依赖关系[150]:

$$n_i^2 = \frac{50+c_{Li}}{100} \frac{A_{0,i}}{(\lambda_{0,i}+\mu_{0,i}F)^{-2}-\lambda^{-2}} + \frac{50-c_{Li}}{100} \frac{A_{1,i}}{(\lambda_{1,i}+\mu_{1,i}F)^{-2}-\lambda^{-2}} - A_{IR,i}\lambda^2 + A_{UV}, \quad (5.1)$$

其中 c_{Li} 是 Li_2O 的摩尔百分比 (mol%), λ 是 nm 单位的波长, $i=e, o$, 室温下 $\lambda_{0,i}, \lambda_{1,i}$,

$A_{0,i}, A_{1,i}$ 通过拟合测试到的折射率数据得到, 折射率与温度有关的因子 $\mu_{0,i}, \mu_{1,i}$

由拟合同成分、化学计量比的铌酸锂的折射率温度关联的文献数据得到。温度因子 $F = f(T) - f(T_0)$, $f(T)$ 由下式给定

$$f(T) = (T + 273)^2 + 4.0238 \times 10^5 \left[\coth \left(\frac{261.6}{T+273} \right) \right], \quad (5.2)$$

其中温度 T 的单位为 $^\circ\text{C}$, $T_0=24.5^\circ\text{C}$ 。上面的塞尔迈耶尔方程仅在远红外到紫外区成立, 在远紫外区 $> 5.3 \text{ eV}$, 纯的同成分铌酸锂存在厉害的吸收, 同时丧失双折射性质。

铌酸锂晶体, 由于不存在中心反演对称性, 可以利用奇数阶的非线性极化张量制备非线性光学器件。在一般情况下, 各向异性介质中的极化强度 $\mathbf{P}$ 与电场 $\mathbf{E}$ 的关系为

$$\mathbf{P} = \varepsilon_0 (\chi^{(1)} \cdot \mathbf{E} + \chi^{(2)} \cdot \mathbf{E}\mathbf{E} + \dots), \quad (5.3)$$

其中 $\chi^{(1)}$ 为线性极化率, 它是二阶张量; $\chi^{(2)}$ 为二阶极化率, 是三阶张量; 依次类推。将其写为分量形式:

$$P_i^{(1)} = \varepsilon_0 \sum_j \chi_{ij}^{(1)} \cdot E_j,$$

$$P_i^{(2)} = \varepsilon_0 \sum_{jk} \chi_{ijk}^{(2)} \cdot E_j \cdot E_k,$$

式中 i, j, k 可取空间分量 x, y, z ; E_i, E_j, E_k 分别为入射光电场的直角坐标分量。 $\chi_{ij}^{(1)}, \chi_{ijk}^{(2)}$ 分别为一阶、二阶极化张量元。在本章, 我们主要讨论倍频效应, 其极化强度的形式为

$$P_i^{(2)}(t) = \varepsilon_0 \chi_{ijk}^{(2)}(-2\omega; \omega, \omega) E_j(t) E_k(t).$$

上式右边的指数 j 和 k , 表示对所有分量 j 和 k 求和。极化强度的傅里叶振幅为

$$P_i^{(2)}(2\omega) = \frac{1}{2} \varepsilon_0 \chi_{ijk}^{(2)}(-2\omega; \omega, \omega) E_j(\omega) E_k(\omega). \quad (5.4)$$

二阶非线性极化张量元 $\chi_{ijk}^{(2)}$, 由于对各电场分量存在空间置换不变性, $\chi_{ijk}^{(2)} = \chi_{ikj}^{(2)}$, 只有 18 个独立的张量元。对于倍频, 习惯上使用倍频系数 $d_{ijk} = \chi_{ijk}^{(2)}$, 并用一个小标 l 代替 j, k , 作如下简化

$$d_{j1} = d_{jxx}, \quad d_{j2} = d_{jyy}, \quad d_{j3} = d_{jzz}, \quad d_{j4} = d_{jyz} = d_{jzy}, \quad d_{j5} = d_{jzx} = d_{jxz},$$

$$d_{j6} = d_{jxy} = d_{jyx}, \quad (j = 1, 2, 3).$$

对于铌酸锂晶体, 由于晶体对称性, d_{il} 的形式为

$$d_{il} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & d_{15} & -d_{22} \\ -d_{22} & d_{22} & 0 & d_{15} & 0 & 0 \\ d_{31} & d_{31} & d_{33} & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}.$$

它具有较大的非线性光学系数, 对化学计量比的铌酸锂晶体 (摩尔比 $\text{Li/Nb}=1.000$)

$$d_{22}(1.058 \mu\text{m}) = 2.46 \pm 0.23 \text{ pm/V},$$

$$d_{31}(1.058 \mu\text{m}) = -4.46 \pm 0.66 \text{ pm/V},$$

$$d_{33}(1.058 \mu\text{m}) = -41.7 \pm 7.8 \text{ pm/V}.$$

对同成分的铌酸锂晶体 (摩尔比 $\text{Li/Nb}=0.946$)

$$d_{22}(1.06 \mu\text{m}) = 2.10 \pm 0.21 \text{ pm/V},$$

$$d_{31}(1.06 \mu\text{m}) = -4.35 \pm 0.44 \text{ pm/V},$$

$$d_{33}(1.06 \mu\text{m}) = -27.2 \pm 2.7 \text{ pm/V}.$$

倍频实验, 一般要求非线性介质不具备中心反演对称性。基频光光强越大, 倍频效率越高, 所以可以采用腔内倍频的方法增大基频光光强。科学家已经在周期极化的毫米量级的同成分 z 切的铌酸锂谐振腔实现了转换效率接近 0.5 的倍频

[36], 当输入 25 mW 的 $1.55 \mu\text{m}$ 泵浦光 P_f 时, 倍频信号 P_{sh} 的输出约等于 12.3 mW, 泵浦光的饱和功率为 300 mW。而在自然相位匹配下[55], 通过控制温度在 5% 掺镁的同成分 Z 切 $R=1.9 \text{ mm}$ 铌酸锂谐振腔中, 在 $32 \mu\text{W}$ 的 1064 nm 连续光泵浦下, 实现转换效率 $\frac{P_{sh}}{P_f} = 9\%$ 的倍频, 泵浦光的饱和功率为 3.2 mW。G. Lin 等人在 xy -切的 1.88 mm 直径的双折射 BBO 晶体腔中, 实现宽谱的相位匹配, 实现了从红外 780 nm 到紫外 317 nm 的倍频转换, 而且转换效率高达 $4.6 \text{ \%/mW}$, 首次在回音壁模式腔中直接通过倍频效应实现了连续的紫外光产生[37]。

半导体材料由于具有大的二阶非线性光学系数, 兼容主流的半导体微加工工艺, 也是一类比较好的倍频晶体材料, 而在 AlGaAs 半导体微腔中[149], 品质因子 10^4 的微腔, 泵浦光在 1550 nm 波段, 归一化的转换效率为 $\frac{P_{sh}}{P_f^2} = 10^{-3} / \text{mW}$;

P. S. Kuo 等人[60]利用 GaAs 的晶体结构对称性 (沿着 $\bar{4}$ 对称轴旋转 90° , 晶体反演) 实现准相位匹配, 在过耦合泵浦下 (增加耦合时的共振线宽, 使得光谱更好重叠), 在 $5 \mu\text{m}$ 的 GaAs 微腔中对 1990 nm 波段的泵浦光实现了归一化转换效率为 $5 \times 10^{-5} \text{ mW}^{-1}$ 的倍频。但其透射窗口比介电晶体窄很多, 无法实现全光谱的频率转换; 以及严重的本征吸收损耗, 这些阻碍了半导体微腔的应用。

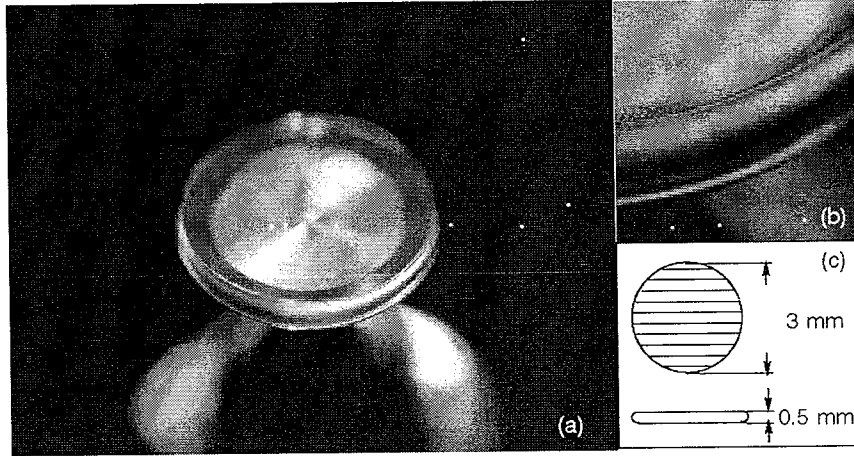


图5.1 毫米量级的周期极化的铌酸锂谐振腔[36]。

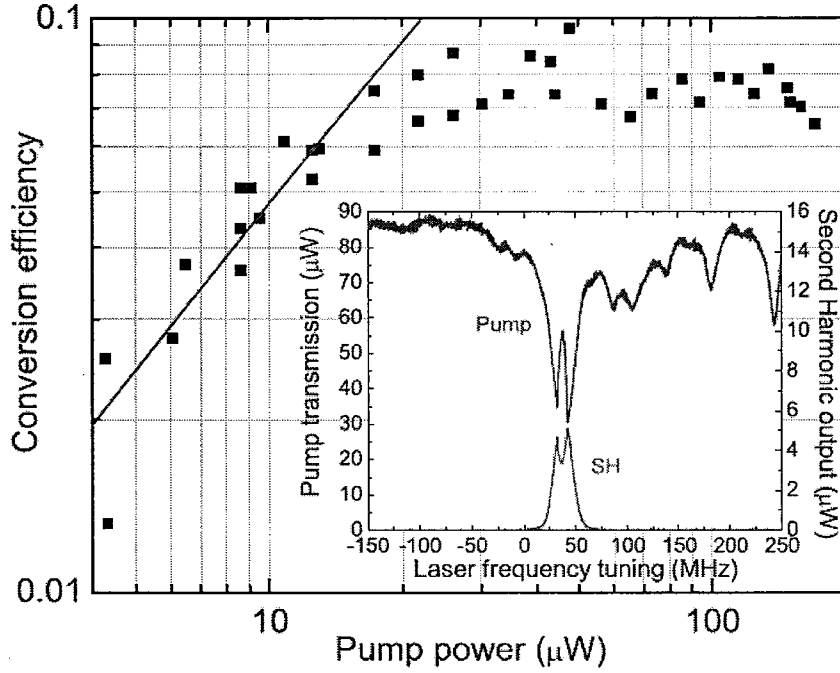


图5.2 转换效率随着泵浦光功率变化的关系，插图：透射的泵浦光功率与倍频光信号（过耦合）[55]。

5.3 倍频效应

为了有效提高相互作用，与微谐振腔谐振的两个相互作用波（双谐振）要实现相位匹配。在第一章，我们已经知道了回音壁模式的渐近公式，回音壁模式的相位匹配要求角动量守恒，而不是平面波情形的线性动量守恒。G. Kozyreff 在 2008 年就给出了微球内的耦合波方程[151-152]以及倍频的相位匹配条件。

在腔内产生二次谐波时，系统相互作用的哈密顿量[55]为

$$H_{int} = \int \chi^{(2)} E_s (E_p^+)^2 dV + H.c. , \quad (5.5)$$

其中 E_s 与 E_p 分别表示二次谐波与泵浦光正频率分量的电场算符。在笛卡尔坐标

系中，式(5.5)的积分将产生动量守恒方程： $2\vec{k}_p = \vec{k}_s$ 。而在回音壁模式谐振腔中，模式是用极角模式数、方位角模式数、径向模式数 $\{l, m, q\}$ 描述的。假设谐振腔的半径 R 远大于光波长 λ ，并且回音壁模式位于赤道面附近，就可以把不同偏振态的电场简化为标量形式，我们在第一章已经用过这种处理方式。标量场的形式为

$$E_{l,m,q}(r, \theta, \phi) = E_0 Y_l^m(\theta, \phi) z_l(k_{lq} r), \quad (5.6)$$

其中

$$k_{lq} = \omega \frac{n}{c} = \frac{l}{R} [1 + \alpha_q (2l^2)^{-1/3} + O(l^{-1})]. \quad (5.7)$$

α_q 为艾里函数等于零的第 q 个根。求解三波耦合方程，将(5.5)式带入(5.6)式的角度部分，将产生矢量耦合 C-G (Clebsch-Gordan) 系数[55]，

$$\langle l_p, l_p; m_p, m_p | l_s, m_s \rangle = \int (Y_{l_s}^{m_s}(\theta, \phi))^* (Y_{l_p}^{m_p}(\theta, \phi))^2 \times \sin \theta d\theta d\phi. \quad (5.8)$$

C-G 系数的选择定则为

$$m_s = 2m_p, \quad l_s \leq 2l_p. \quad (5.9)$$

(5.9)式第一个条件表示角动量的方位角分量守恒，第二个条件由两个泵浦光子的角动量的矢量和满足三角形条件引起。对于倍频 $\omega_s = 2\omega_p$ ，由于回音壁模式对 m 是简并的，与第一个选择定则是去耦合的，因此相位匹配条件比较容易满足[55]。

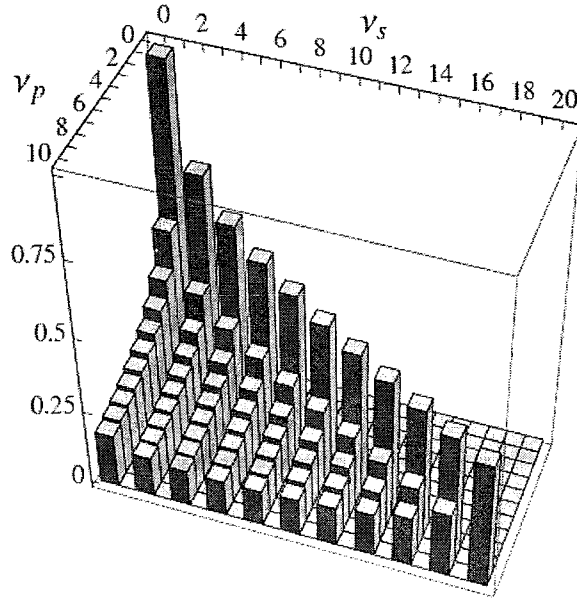


图5.3 归一化的 C-G 系数

$$\langle m + v_p, m + v_p; m, m | 2m + v_s, 2m \rangle / \langle m, m; m, m | 2m, 2m \rangle [55].$$

当 l, m 足够大, (5.7) 式保持很好的近似时, C-G 系数相对于 $\langle m, m; m, m | 2m, 2m \rangle$ 归一化实际上是与 m 无关的, 也就是说独立于 R 与 λ 。归一化的系数描述了两套赤道模式 ($l = m$) 的非线性耦合。赤道模式位于赤道上, 方便自由空间模式的耦合与输出, 赤道模式时间的重叠也是最佳的。对于非赤道模式, 引入 $v_p \equiv l_p - m_p \geq 0$, $v_s \equiv l_s - m_s \geq 0$, 归一化的 C-G 系数如图 5.3 所示。对于倍频, 赤道模式只可以与其他赤道模式耦合。

通过光纤锥把腔内的二次谐波导出来时, 它的功率一般与基频光的循环功率的平方成正比[60],

$$P_{SH}^{out} \left(\frac{\lambda_f}{2} \right) \propto [P_f^{circ}(\lambda_f)]^2 P_{SH}^{circ} \left(\frac{\lambda_f}{2} \right) |\tilde{K}(\lambda_f)|^2, \quad (5.10)$$

其中 $P_f^{circ}(\lambda_f)$ 、 $P_{SH}^{circ} \left(\frac{\lambda_f}{2} \right)$ 分别为微腔内基频光、倍频光的循环功率, $\tilde{K}(\lambda_f)$ 是倍频光的增益因子

通过光纤锥等波导形式在微腔内部产生二次谐波的理论处理, 一般都是利用 A. Yariv 提出的波导与微腔耦合的关系[30], 以及计算耦合波方程[54、153]。

5.4 利用飞秒激光烧蚀制备铌酸锂单晶薄膜微腔

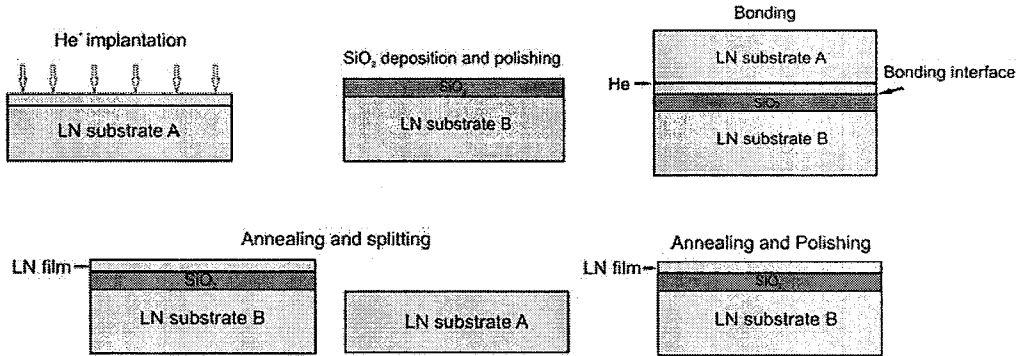


图5.4 绝缘体上的铌酸锂薄膜制备流程: 由晶体离子切片与键合结合生成的亚微米铌酸锂薄膜/二氧化硅/铌酸锂衬底样品[154]。

为了得到高的折射率比, 进而产生强的光学约束, 我们用商业化的绝缘体上的铌酸锂(Lithium niobate on insulator, LNOI)亚微米单晶薄膜来构建独立的微腔。该 LNOI 的制备流程[154]: (1) Z 切的铌酸锂晶片 A 被注入剂量为 4×10^{16} 离子/cm² 的 He 离子, 在晶片的某个深度形成非晶层; (2) 通过等离子体增强的化学气象沉积(PECVD)在另外一块 Z 切的铌酸锂样品 B 上镀上 2 微米厚的二氧化硅层, 然后再 450 °C 保温 8 小时, 去除氧化层中的气体, 再经过化学机械抛光处理, 表面的粗糙度从 6 nm 降至 0.35 nm, 以此满足直接键合的要求; (3) 将 A 与 B

叠在一起，在 165 °C 保温 16 小时，接着在 190 °C 保温 6 小时，改善键合强度；

(4) 在 228 °C 保温 2 小时，使得样品沿着 He 注入层分离，接着样品又经过化学机械抛光，粗糙度降至 0.5 nm，然后再经过 8 小时的 450 °C 退火。

在这种铌酸锂单晶薄膜上制备光学微腔的步骤包括：(1) 对浸没在水中的铌酸锂晶片从上表面自上而下进行多层的环形烧蚀，形成独立的微柱体；(2) 用聚焦离子束对微柱体的外缘进行构图 (patterning)，提高微腔侧壁的光滑度；(3) 用 5% 的 HF 水溶液对二氧化硅层进行各向同性的腐蚀，只保留中间的一小部分，形成更细的支柱；(4) 对样品进行 2 小时 500 °C 的烘烤，消除晶格损伤，也降低边缘毛糙，如图 5.5 所示。

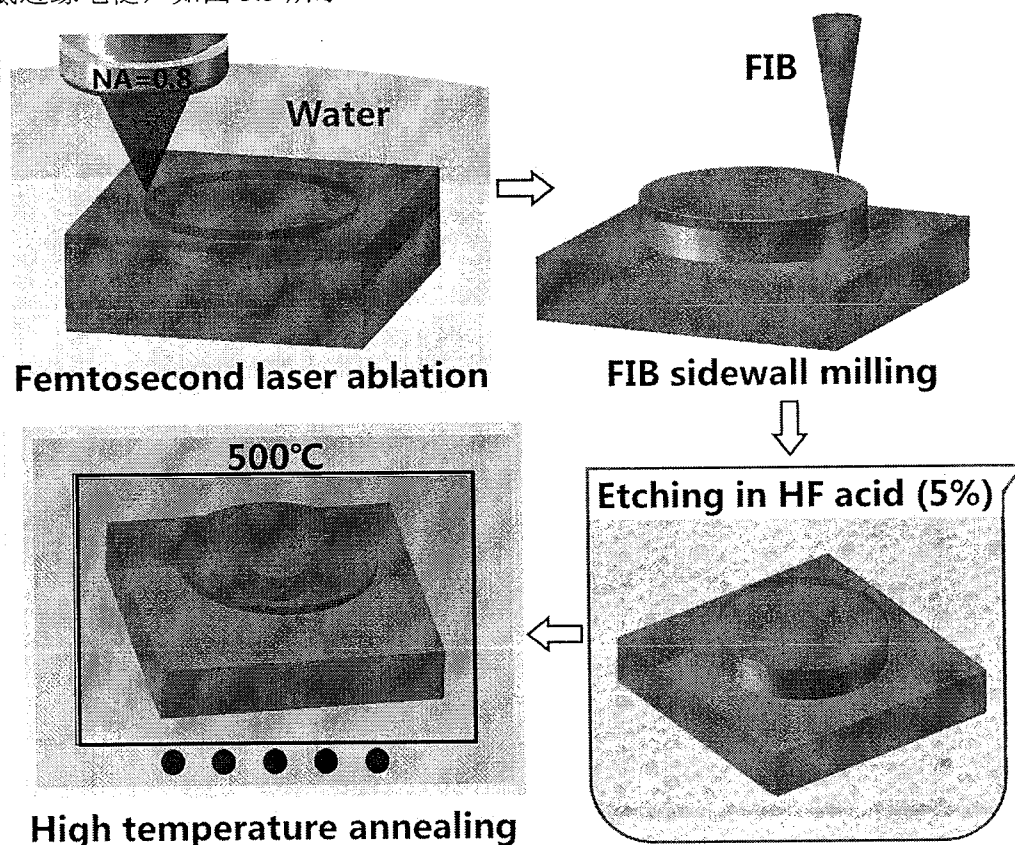


图5.5 由飞秒激光烧蚀、FIB 研磨、化学腐蚀二氧化硅、高温退火过程制备的铌酸锂晶体微腔流程图。

飞秒激光烧蚀与上一章不同，在这里采取了正面烧蚀。在背面烧蚀时，飞秒激光在铌酸锂晶体这种具有大的二阶非线性光学系数的材料传输时，由于相位调制、自聚焦的产生，将导致轴向分辨的降低，直接在背面烧蚀会很困难：由于内

部的吸收以及自相位调制，达到背面的功率很低，脉宽也被展宽，严重影响轴向分辨率。采用正面烧蚀，将避免这一问题。但这会引起飞秒激光烧蚀出来的部分碎屑覆盖在晶体的上方，影响飞秒激光的传输与光学显微的实时观测。不过飞秒激光在水中传输时，会对水有加热的效果，因此产生了微气泡，我们可以利用这些微气泡排开碎屑，排除它们对飞秒激光束的干扰。飞秒激光在烧蚀铌酸锂材料的功率调整为 0.35 mW 左右，在烧蚀二氧化硅层的功率约为 1.0 mW，这是因为它们的光学损伤阈值不同造成的。飞秒激光烧蚀的其他参数与第 4 章相同。经过飞秒激光烧蚀以后，表面可能会残留一点碎屑，利用频率较低的超声水浴，或者磁力搅拌器水浴，都可以清除这些碎屑。

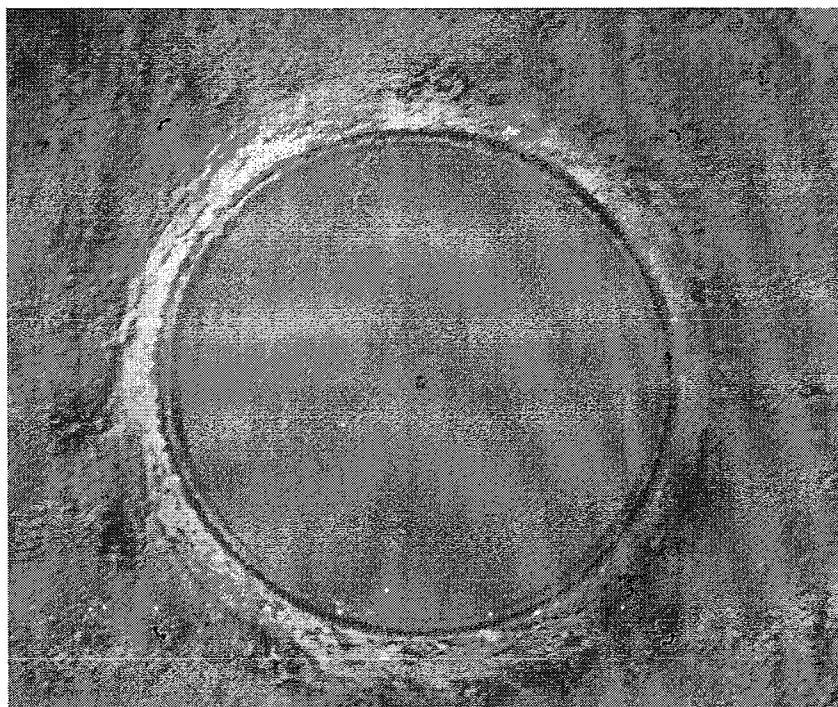


图5.6 FIB 图案曝光时的图案。

在 FIB 研磨前，我们先在铌酸锂薄膜上溅射一层约 20 nm 的金层，以降低 FIB 研磨时的电荷累积。FIB 研磨边缘时用到的图形抛光图案如图 5.6，淡黄色的圆环即为曝光区域。这里也采用两轮的研磨，在研磨过程始终保持微盘的位置不变。第一轮用 4 nA 束流的 30 keV 的离子进行粗略曝光；第二轮用 1 nA 束流的 30 keV 离子束进行精细研磨。大约用时 15 分钟。经过研磨以后，微柱体的侧壁变得很光滑，如图 5.7 所示，原来飞秒激光烧蚀造成的边缘的毛糙都被去除了。

经过 FIB 研磨以后，由于铌酸锂的折射率大于下方二氧化硅 ($n = 1.45$) 的折射率，仍然可以构成光学微腔，但为了进一步提升光学的空间约束能力，需要增加折射率差。在这里，利用低浓度氢氟酸对二氧化硅、铌酸锂截然不同的腐蚀

性质,材料的前者对低浓度的氢氟酸的活性很敏感,后者几乎不能被低浓度的氢氟酸所腐蚀。我们用 5% 的 HF 水溶液对样品腐蚀了约 8 分钟,形成独立的微盘结构。也就说微盘边缘的周围已经都是空气 ($n = 1.0$) 了。

经过化学腐蚀之后,我们在 1550 nm 附近波段用光纤锥耦合的方法,所用的可调谐激光器为 1550 nm 波段的连续可调谐的激光二极管(New Focus, 型号 6528-LN),测得其品质因子为 5.2×10^4 ,为了修复离子束在曝光过程中造成的晶格损伤[142-143],微盘经过了 2 小时 500 °C 的高温烘烤。这个烘烤过程也可以消除部分的边缘毛糙。虽然 1000 °C 以上的高温退火可以使得铌酸锂晶体衬底的表面光滑度降低到原子级别的平整度[133],但在我们这里,烘烤的温度不能过高,否则二氧化硅支柱与铌酸锂薄膜之间由于热膨胀系数不同产生应力而导致薄膜脱落,也要避免铌酸锂晶体在 550 °C 到 900 °C 的温度区间会析出 LiNb_3O_8 。最后,铌酸锂微盘的尺寸为 55 μm ,厚度为 0.7 μm 。通过光纤锥耦合的方式,在 1550 nm 波段测试光纤锥与微腔耦合的透射谱,其品质因子提升到 1.6×10^5 。因此,退火处理确实有助于提升品质因子。该品质因子是目前已经报道的同类铌酸锂晶体微腔的最高值。

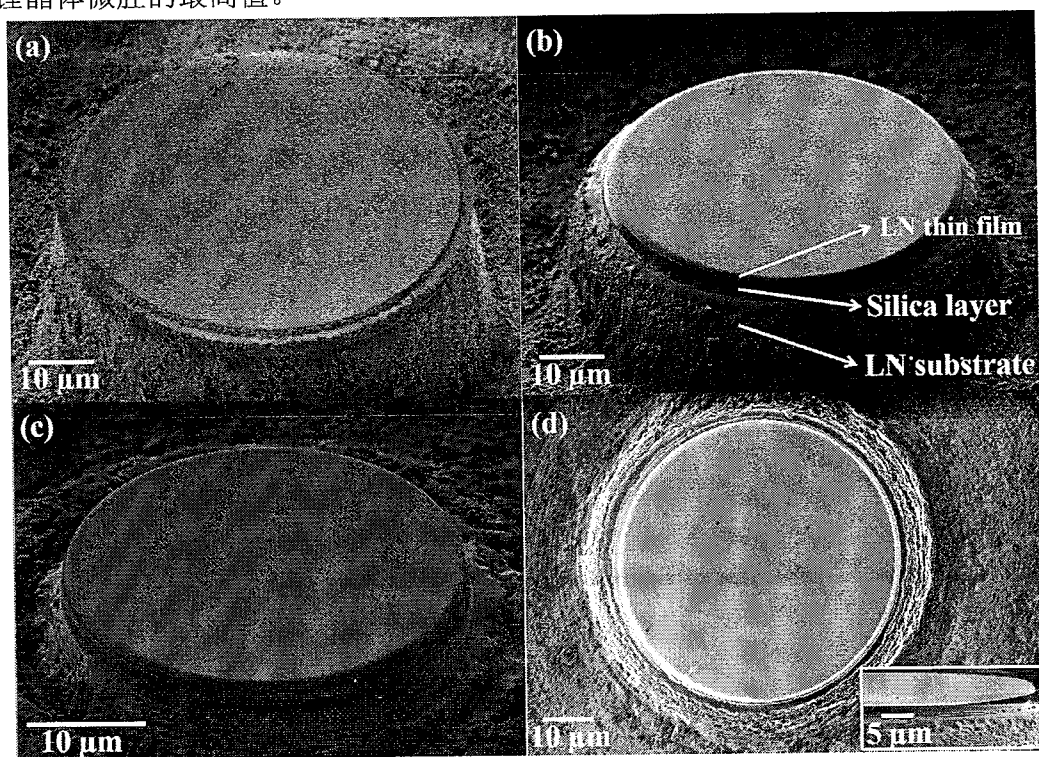


图5.7 FIB 研磨微腔侧壁之前(a)与之后(b)的扫描电镜,经过 FIB 研磨后,微盘的尺寸为 55 微米,(c)经 FIB 研磨后尺寸为 33 微米的微盘的扫描电镜,(d)经过化学腐蚀、退火处理的微盘的扫描电镜,插图微盘的侧面结构,在微盘的边缘(对应插图的右侧),铌酸锂薄膜与铌酸锂衬底之间是悬空的。

在第一章，我们已经讨论过光学微腔的非线性光学现象，知道了基频光、倍频光的频率要与一组腔模谐振，才能有效的倍频转换。越高品质因子，虽然可以通过增加谐振功率增加二次谐波，但同时也使得腔内循环的基频光与倍频光越难重叠。其倍频转换效率依赖于相比于它们线宽的谐振失谐 $|\lambda_f^{res} - 2\lambda_{SH}^{res}|$ 。它们的线宽一般取决于微腔的耦合品质因子与本征品质因子。一旦微腔已经制备完成，其本征的品质因子就固定了，然而耦合的品质因子可通过调节耦合来改变。因此可通过改变耦合条件来改变线宽。当 $|\lambda_f^{res} - 2\lambda_{SH}^{res}| = 0$ ，在临界耦合处可以实现最高的转换效率；当 $|\lambda_f^{res} - 2\lambda_{SH}^{res}| \neq 0$ ，更高的转换效率可以通过过耦合实现，因为增加谐振线宽的耦合展宽，可以产生更好的光谱重叠[60]。

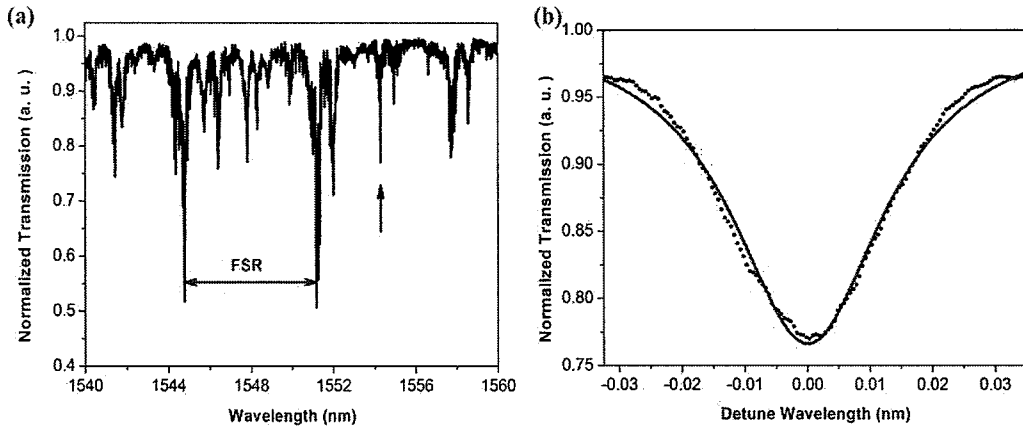


图5.8 用光纤锥耦合退火前的微盘测得的 1550 nm 附近的透射谱(a)以及 1554.28 nm 处的回音壁模式，红线为洛伦兹线型拟合，线宽为 30 pm。

我们使用了中心波长 800 nm 的宽谱的飞秒激光振荡器（相干公司，重复频率 88 MHz，半高全宽 40 nm，脉宽约 30 飞秒）输出的光作为泵浦光，它经过可调的中性密度滤波片、偏振控制器后，保持为水平偏振，进入光纤锥，与微腔耦合以后，产生倍频光，最后经过带通滤波片(400±40 nm)进入光栅光谱仪(Andor，型号 Du920)。光谱仪的采集条件为：积分时间 0.02 秒，使用的光栅线密度为 300 线。安装在光谱仪入口的狭缝的宽度保持为 50 μm。

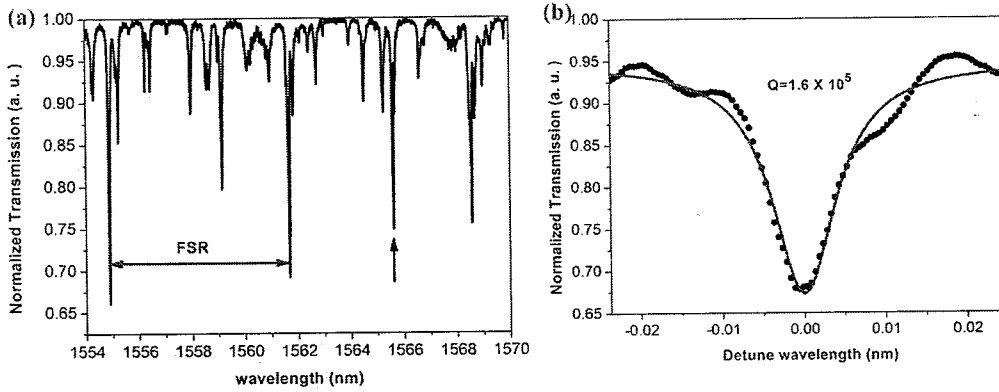


图5.9 用光纤锥耦合退火后的微盘测得的 1550 nm 附近的透射谱(a)以及 1565.53 nm 处的回音壁模式，红线为洛伦兹线型拟合，线宽为 9 pm。

我们用两个 CCD 对耦合系统进行侧面、正面成像，方便实时观测耦合的情况。我们在这里不是采用常用的欠耦合方式，而是过耦合，目的是增加测量的稳定性，以及通过增加谐振线宽改善泵浦光与倍频光的空间重叠。微腔在 800 nm 附近的自由光谱范围约为 1.7 nm，泵浦光的谱宽覆盖 780-820 nm。通过测试泵浦光与微腔在耦合、未耦合情况下的光谱（均未加带通滤波片），通过比较，就可以得知微盘在基频光波长处的腔模频率。其中有一个腔模的中心波长位于 794.28 nm。

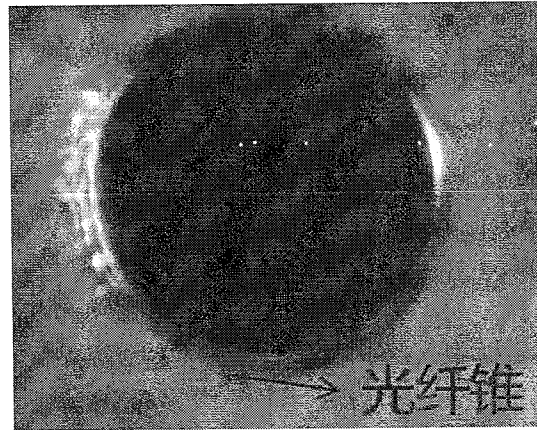


图5.10 用于产生倍频光的光纤锥与微腔过耦合的光学显微图。

在频率转换过程中，能量守恒条件必须满足，要求倍频信号 $\omega_s = 2\omega_p$ 。另外相位匹配条件也应该满足，以产生有效的转换。由于微腔所支持的高能量密度以及宽谱的泵浦光，在波长没有调谐下，我们便观测到强的二倍频信号产生。倍频光峰值的波长为 397.14 nm，刚好对应上述基频波长 794.28 nm。此即倍频信号

$\omega_s = 2\omega_p$ ，如图 5.11(a)(b)所示，是双谐振情况。

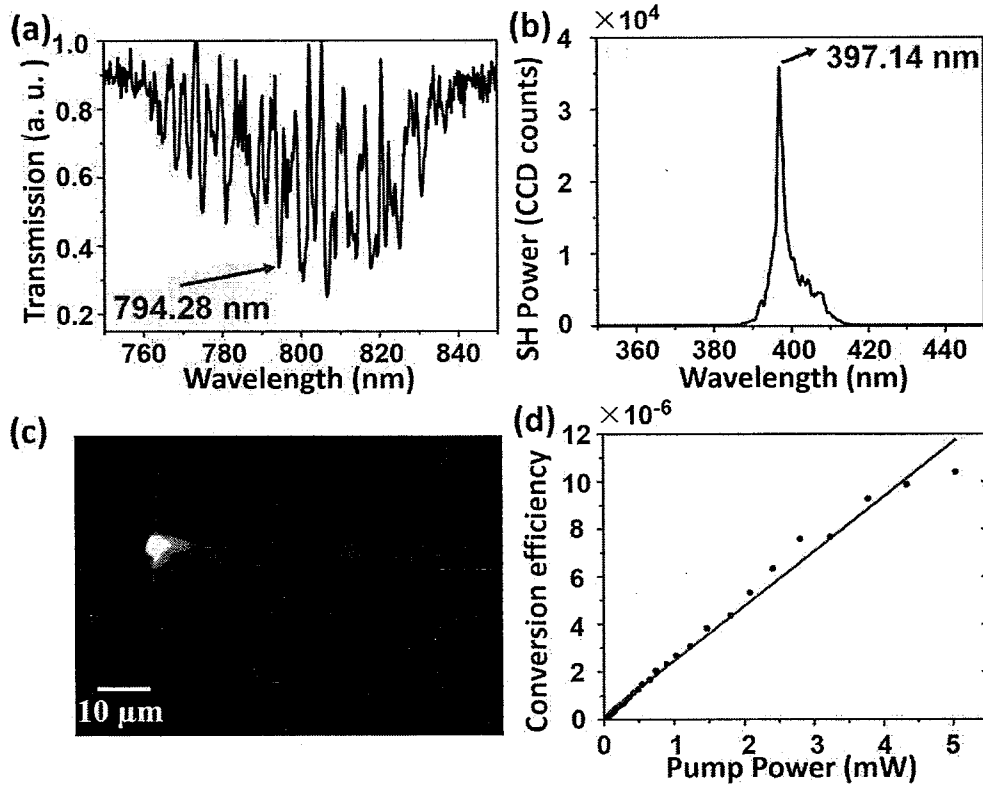


图5.11 (a)基频光通过光纤锥耦合到铌酸锂晶体的透射谱，其中有一个基频光的回音壁模式位于 794.28 nm；(b)倍频光的信号，其中心波长位于 397.14 nm。(c) 上方为汞灯照射下的微腔侧面光学显微图，下方为输出泵浦光以后，撤除汞灯，并在光学显微系统的 CCD 前放置 400nm $\pm$ 40 nm 带通滤波片的光学显微图；(d) 倍频转换效率与泵浦光功率的关系。

随着泵浦光功率的增加，微腔边缘的紫光从无到有，从弱到强。如图 5.11(c) 的光学显微插图所示，在微盘的横截面的一端，有很强的紫蓝光，这也是由于回音壁模式的性质决定的，因为倍频光在微腔内全内反射循环，光一般沿着边缘的切向方向逃逸出来。倍频信号的转换效率 η 与泵浦光功率 P_f 的依赖关系如图 5.11(d) 所示，在未饱和前，随着泵浦光功率的上升，倍频转换效率线性增加 $\eta = P_{TH}/P_f \propto P_f$ ，这符合(5.10)式的关系 $P_{TH} \propto P_f^2$ ，其中 P_{TH} 是倍频光的输出功率。当泵浦光为 5.04 mW 时，转换效率为 1.04×10^{-5} ，已经接近 $Q=10^3$ 的 GaAs

微盘腔在准相位匹配下的转换效率了[60]。由于我们这里利用的是宽谱的泵浦光，实际的转换效率应该更高。通过引进准相位匹配技术，利用周期性的极化铌酸锂晶体，将可以进一步把转换效率提高。

5.5 小结

我们利用水辅助的飞秒激光在铌酸锂单晶薄膜正面烧蚀了微柱体结构，接着用聚焦离子束研磨侧壁，通过化学腐蚀选择性地把二氧化硅微圆盘层腐蚀成更细的微支柱，然后在高温退火，成功地在铌酸锂衬底上制备了由二氧化硅底座支撑的品质因子高达 1.6×10^5 的铌酸锂晶体微腔。其中使用了高温退火处理提升微腔的品质因子。并且用中心波长 800 纳米的飞秒激光，通过光纤锥过耦合的方法，实现了双谐振的倍频，在 5 mW 泵浦光功率下，其转换效率为 1.04×10^{-5} 。要进一步提高转换效率，可采用(1)可调谐的窄带泵浦光，让泵浦光落在某个腔模内，同时倍频光也要与另外的腔模谐振，这可通过调谐泵浦光的波长实现这种双谐振；

(2) 在周期性极化铌酸锂薄膜上构建光学微腔，实现准相位匹配。

由于铌酸锂晶体优异的光电性质，特别是具有大的二阶非线性光学系数，可以实现光学参量下转换等参量过程。而光学参量下转换可以在远低于阈值下产生单个参量光束的强度压缩为 -1.2 dB 的可调谐的非经典光源[52]，或者基于自发的参量下转换产生可调谐的窄带、高效单光子源[61]。但传统的制备方法是基于机械抛光，制备了单片的毫米量级的铌酸锂谐振腔，即使产生了量子光源，也很难实现量子系统的可扩展性。使用我们的方法，这个问题就有望被克服。

6 总结与展望

回音壁模式光学微腔一直伴随着光学学科、微制备技术的发展而不断壮大,毫米量级的谐振腔可以用于产生高效的光学频率梳、受激布里渊散射等;而小的微腔则在生物传感、腔量子电动力学、腔机械、量子光学里发挥越来越重要的作用。除了尺寸的不同需求之外,其腔体工作基质也视目标而定,逐渐从液滴逐渐发展到固态的晶体、无源的非晶态材料、激活的介质等。其空间构型,也覆盖了微盘、微球、微芯环腔、微环、bottle 型等,从对称微腔到具有定向发射属性的非对称微腔。

随着微电子技术的迅猛发展,微光子集成也应运而生。目前在芯片上制备微腔的主流制备技术是基于半导体平面制备工艺,该技术存在难以制备任意三维构型的光学微腔的难题,这限制了微腔所能够支持的光学模式及光场输出方向;微腔工作基质的选择性也受限于这种平面半导体制备工艺,而这将阻碍光学微腔的实际应用;另外,要将多功能的微器件在单一芯片上有效集成,也是该领域亟待解决的问题。

飞秒激光微加工技术是近年来问世且快速发展的一个前沿研究领域与工程技术,它以其可突破衍射极限的加工精度以及能对透明材料进行三维加工的能力,使得它在现代微加工领域独树一帜,已被广泛应用于微光学、微流体、微电子、光存储、微机械等微结构的制备上,并在生命科学、材料处理、信息技术等民生领域发挥着越来越重要的作用。但相对于半导体制备工艺,尽管飞秒激光微加工技术已经在透明材料上制备三维微结构显示出很大的灵活性,但其存在加工分辨率、加工效率的劣势。本论文主要基于飞秒激光微加工技术制备高品质的三维回音壁模式光学微腔,针对上述芯片上微腔制备存在的问题、飞秒激光加工精度弥补的问题,做尝试性的探索。

针对透明非晶态材料上光学微腔的三维构型受制于平面制备工艺的问题,提出了飞秒激光微加工的制备方案,同时引入二氧化碳激光回流处理,从而使得制备出来的光学微腔具有优异的性能。例如首次利用飞秒激光直写辅助的化学腐蚀、二氧化碳激光回流的技术,在熔融石英上制备了三维高品质回音壁模式光学微腔,其品质因子超过 2.1×10^6 ,并且其光场输出方向可相对衬底以任意角度倾斜;为了解决腔体材料选择的灵活性,把水辅助的飞秒激光烧蚀技术首次应用于光学微腔的制备,把微腔表面的粗糙度降低原子级别的平整度,制备了高品质(10^6)的钽玻璃微腔,并在室温下通过自由空间连续光泵浦,实现了 $69 \mu\text{W}$ 泵浦阈值、中心波长在 1060 nm 的激射。这些通过克服飞秒激光脉冲制备三维微结构的精度劣

势，拓展了微腔的空间构型以及材料选择的范围。

针对大多数晶体微腔（亚 50 微米尺寸）难以制备的难题，首次利用水辅助的飞秒激光烧蚀技术在氟化钙晶体样品的背面制备了微盘结构，由于二氧化碳激光回流并不能用于提高晶体微腔的光滑度，采用聚焦离子束研磨微盘结构侧壁的替代方法，降低了表面粗糙度，制备了尺寸 30 μm 左右的微腔，并讨论了提升飞秒激光微加工制备晶体微腔的产率的可能路径；利用水辅助的飞秒激光烧蚀技术在绝缘体上的铌酸锂单晶薄膜制备了微柱体结构，利用化学腐蚀把薄膜下方的二氧化硅绝缘层腐蚀成更微细的底座，经过 500 $^{\circ}\text{C}$ 的高温退火修复被离子损伤的晶格结构，制备了品质因子 1.6×10^5 的铌酸锂回音壁模式微腔，并实现双谐振条件下的倍频效应，在 5.04 mW 泵浦光功率下，其转换效率为 1.04×10^{-5} 。由于该技术是基于飞秒激光烧蚀以及聚焦离子束刻蚀去除材料，只要飞秒参数恰当、离子束合适，原则上适用于在任意光学晶体材料上构建光学微腔。

总之利用飞秒激光微加工制备三维的光学回音壁模式微腔方兴未艾。但基于半导体制备工艺的光学微腔本身、耦合技术乃至飞秒激光微加工技术还需要解决一系列的问题：

（1）典型的非晶态微芯环腔，依赖于二氧化碳激光回流提升表面的光滑度，这会造成微腔的尺寸难以精确控制；对毫米量级谐振腔的表面精确热处理过程相当复杂。虽然可以直接用二氧化碳激光烧蚀二氧化硅预制棒制备毫米尺寸的谐振腔[155]，降低了微腔的制备成本，但这些由二氧化碳激光回流带来的尺寸不可精确控制问题并没有解决。

（2）目前主流的耦合技术是基于光纤锥，而光纤锥耦合方法需要用到压电平移台等精密仪器，无法实现便携化；虽然在实验中会让光纤锥保持一定的张力，以降低光纤锥的抖动，但无法完全消除抖动；另外，光纤锥暴露在空气 48 小时以后，其透射率严重退化。

（3）飞秒激光微加工技术目前还未走出实验室，其技术本身还存在很大不完善的地方，其加工的分辨率、加工效率仍然亟需提高；飞秒激光器价格高昂，高重复频率的激光器的平均功率仍有待提升，以此降低加工的成本，也许大功率的光纤飞秒激光器在未来是个替代方案；飞秒激光微加工的物理机制尚未形成普遍认可的认识，还需要不断探索强场激光物理与物质相互作用的新现象与新机制，不断深化推进对该技术的认识与发展。

可以肯定的是，随着技术的进步以及人们对世界认识的深化，飞秒激光微加工技术会越来越成熟，光学回音壁模式微腔的构型、耦合技术、材料选择会更灵活，应用价值进一步提升，以造福人类。