

多层复合回音壁微腔热振荡效应的理论研究

程 肯 王铁军

(北京邮电大学理学院, 北京 100876)

摘 要 多层复合材料微腔能够观察到单一材料无法实现的独特现象。本文在理论上分析了由丝状蛋白和聚二甲基硅烷(PDMS)涂覆的二氧化硅微球腔热振荡效应,并观察到该复合回音壁微腔独特的振荡波形。该波形由两个不同速度的振荡周期组成,在慢速的振荡周期中包含着若干快速的振荡周期,并且快速的振荡只出现在丝状蛋白和二氧化硅的温度上升区间。我们基于耦合模理论构建的热动力学方程解释了这一现象。这种双频振荡同时出现的现象在传感器领域有着潜在应用价值。

关键词 回音壁模式;微球腔;热振荡效应;复合材料

THEORETICAL STUDY ON OPTOTHERMAL OSCILLATION EFFECT OF MULTILAYER COMPOSITE WHISPERING GALLERY MICROCAVITY

CHENG Ken WANG Tiejun

(School of Science, Beijing University of Posts and Telecommunications, Beijing 100876)

Abstract Multilayer composite microcavity can achieve the unique phenomenon that can not be observed in single-material resonators. In this paper, the optothermal oscillation effect of silica microspheres coated with silk fibroin and polydimethylsiloxane (PDMS) is analyzed theoretically, and the unique oscillation waveform is observed. The waveform is composed of two oscillation with different periods, in which the slow oscillation contains several fast oscillation, and the fast oscillation only occurs in the temperature rise interval of silk fibroin and silica. We explain this phenomenon by constructing thermodynamics equations based on coupled-mode theory. The simultaneous phenomenon of oscillation may have potential applications value in sensitive detection.

Key words whispering gallery mode; microsphere; optothermal oscillation effect; composite material

基于回音壁模式的光学谐振器越来越得到人们的重视,因为其能通过连续的内反射将光囚禁在微腔中,从而达到增加内部场强的效果。回

音壁模式光学微腔从结构上来说可分为微球腔、微环腔和微泡腔等。基于这些特性,目前研究人员已经在分插滤波器^[1,2]、生物分子感测^[3]、微激

收稿日期: 2021-01-10

基金项目: 国家自然科学基金项目(62071064);北京邮电大学研究生专业课程建设教改项目(2022ZY119)。

通讯作者: 王铁军,女,教授,研究方向为量子信息和量子光学, wangtiejun@bupt.edu.cn。

引文格式: 程肯,王铁军. 多层复合回音壁微腔热振荡效应的理论研究[J]. 物理与工程, 2023, 33(5): 11-16.

Cite this article: CHENG K, WANG T J. Theoretical study on optothermal oscillation effect of multilayer composite whispering gallery microcavity[J]. Physics and Engineering, 2023, 33(5): 11-16. (in Chinese)

光器^[4]、腔量子电动力学^[5]等方面进行了深入研究。

回音壁光学微腔具有较高的品质因子和较低的模式体积,能极大增强微腔内的光场能量密度,产生丰富的非线性效应现象。在各种光场形成的非线性效应中,最为常见的便是热非线性效应^[6-8],包括热双稳态^[9]和热振荡。一方面,热光非线性效应会带来器件的不稳定;另一方面,基于热光效应的非线性特性具有某些重要的实际应用价值^[10]。值得注意的是,当谐振器中采用具有多种热光特性的材料时,将会出现更多有趣的现象。近十年来,对微腔内部通过两种或两种以上效应相互竞争而产生的周期性自激振荡的研究已相当深入。到目前为止,已经在未涂覆的单一材料观察到非线性热振荡现象,例如二氧化硅微球体^[11]、氟化钡微盘腔^[12]和近来新兴的铌酸锂微盘腔^[13]中。除此之外,在带有涂覆层的复合微腔中也观察到了类似的现象,例如涂有聚二甲基硅烷涂层的微环芯腔^[14]、涂有聚甲基丙烯酸甲酯涂层的微盘腔^[15]以及丝状蛋白涂覆的微球腔^[16]等。

为了填补双层以上复合回音壁微腔热振荡效应的研究空白,我们在理论上提出了一种复合三层回音壁微球腔(二氧化硅-丝状蛋白-PDMS)。我们基于耦合模理论和热光动力学方程构建了相应的模型,并使用龙格库塔法进行理论仿真。理论分析发现其透射谱波形不同于以往研究中所独特的现象,该输出谱振荡波形由快慢两个振荡周期组成,存在着慢速的振荡中包含快速振荡的“双频振荡”。这种特有现象是由于聚二甲基硅烷材料相对于丝状蛋白材料具有更高热敏性,因此在丝状蛋白完成一个振荡周期的时间内,泵浦光能推动聚二甲基硅烷层中完成多次振荡。该模型表明透射谱可以同时表征两种振荡频率,在传感器和光学调制中可能具有重要应用。

1 理论模型

本部分我们将根据耦合模理论和热动力学方程来表征系统的透射谱。图1为横截面示意图。我们所使用的多层复合谐振器由内部为二氧化硅微球腔(如图1横截面白色区域所表征,半径 $d_1 = 21\mu\text{m}$)的外面渡上一层(厚度 $d_2 = 30\text{nm}$)丝状蛋白

夹层组成,然后再在该双层复合微球腔的基础上渡上一层(厚度 $d_3 = 30\text{nm}$)聚二甲基硅烷(PDMS)的外层(如图1横截面深灰色区域所表征)。

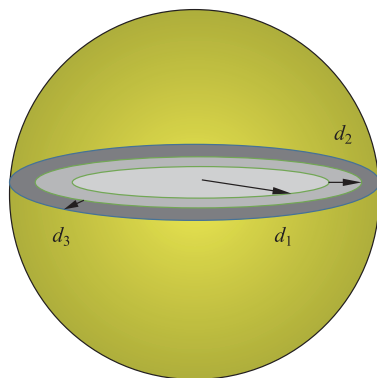


图1 三层回音壁微球腔理论模型

理论上,我们设计的实验原理图如图2所示。泵浦光从激光器射出后经过偏振控制器来使其进入偏振状态。我们通过光纤锥耦合的方式将光耦合进微腔中,当有泵浦光通入光纤后,在锥形区域会产生倏逝波,这样就能实现与微腔的耦合。随后,透射光被光电探测器探测,其透射谱成像于相连的示波器上。

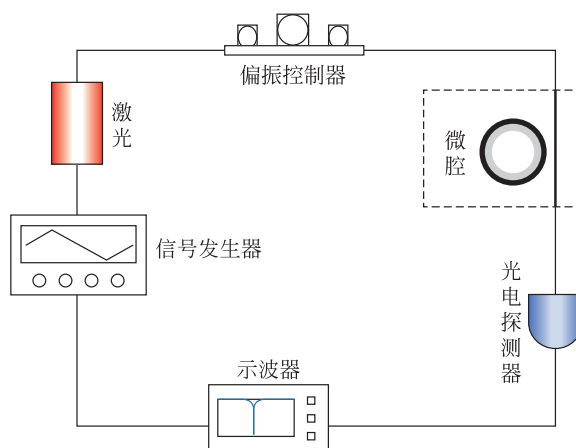


图2 测试实验图

聚二甲基硅烷和丝状蛋白具有很好的透光性,且其透射率和二氧化硅相近,因此三层回音壁微腔与锥形光纤形成的耦合系统与常见的微球腔与锥形光纤耦合系统原理相同,其原理如图3所示。

在这个基本光纤锥和微腔耦合的系统中, $a(t)$ 表示微球腔内回音壁模式的光强, a_{in} 、 a_o 分

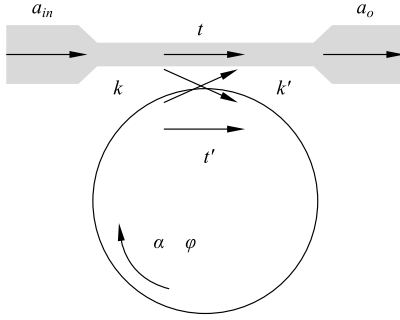


图3 微球腔和锥形光纤耦合系统光场传输过程

别光纤内输入和输出的光强, k 为微腔和光纤的耦合系数, t 表示光纤和微腔中光的透过系数, 我们得到微球腔内的模动力学方程为

$$a(t) = ik a_{in}(t) + t' a(t - \tau_0) \exp(i\varphi - \alpha L/2) \quad (1)$$

$$a_o(t) = t a_{in}(t) + ik' a(t) \quad (2)$$

其中, α 表示微球腔的衰减系数, L 表示光在微球内一周的路程, $\tau_0 = nL/c$ 是光在微球内运行一周的时间, $\varphi = 2\pi nL/\lambda$ 是光传播一周后相位的变化, 且 $t = t'$, $k = k'$, $t^2 + k^2 = 1$ 。我们把 $a(t - \tau_0)$ 按泰勒级数展开并忽略其高阶项, 可得 $a(t - \tau_0) = a(t) - \tau_0 da(t)/dt$, 代入式(1)(2)中可以得到腔内光场随时间的变化关系为

$$\lambda_r(t) = \lambda_0 \left(1 + \frac{\eta_1 \frac{dn_1}{dT} (\Delta T_1(t) + \Delta T_2(t)) + \eta_2 \frac{dn_2}{dT} \Delta T_3(t) + \eta_3 \frac{dn_3}{dT} \Delta T_4(t)}{n_{eff}} + \frac{d_1(t) \frac{dD}{DdT} (\Delta T_1(t) + \Delta T_2(t)) + d_2(t) \frac{dL}{LdT} \Delta T_3(t)}{d_1(t) + d_2(t)} \right) \quad (5)$$

其中, n_{eff} 表示回音壁微腔中的有效折射率, 可以计算为 $n_{eff} = \eta_1 n_1 + \eta_2 n_2 + \eta_3 n_3$, 从内到外各层的折射率依次表示为 n_1, n_2, n_3 , 光在各层中传播的效率分别表示为 η_1, η_2, η_3 。 $\frac{dn_1}{dT}, \frac{dn_2}{dT}, \frac{dn_3}{dT}$ 三项分别表示由内而外各层光热效应系数, $\frac{dD}{dT}, \frac{dL}{dT}$ 分别表示二氧化硅和丝状蛋白层的热膨胀效应系数。在公式(5)中, 括号中的第二项表示热光效应对谐振波长的影响, 第三项表示丝状蛋白和二氧化硅中的热膨胀效应对谐振波长的影响。严格地说, 微腔的谐振波长还受到克尔非线性效应的影响, 但是克尔非线性效应系数相较于热光效应系

$$\frac{da(t)}{dt} = [i\Delta\omega - (k_0 + k_{ex})/2] a(t) - \sqrt{k_{ex}} a_{in} \quad (3)$$

其中, $\Delta\omega = \omega_s(t) - \omega_r(t)$ 表示失谐量, $\omega_s(t)$ 表示扫描泵浦光的角频率, $\omega_r(t)$ 表示腔模谐振频率。 k_0 表示本征衰减速率 ($k_0 = c\alpha/n$), k_{ex} 表示耦合衰减速率 ($k_{ex} = \frac{2-2t}{t\tau_0} = \frac{2k^2}{t(t+1)\tau_0}$)。

根据输入输出关系 $a_o = a_{in} + \sqrt{k_{ex}} a$, 当系统处于稳态的时候透射谱表示为

$$T = \left| \frac{a_o}{a_{in}} \right|^2 = \frac{\Delta\omega^2 + (k_0 - k_{ex})^2/4}{\Delta\omega^2 + (k_0 + k_{ex})^2/4} \quad (4)$$

在三层回音壁微腔中, 当温度发生改变时, 系统的有效折射率和尺寸都会发生改变, 从而影响谐振频率 ω_r , 最终体现在透射谱的变化中来。在中科院王全龙老师的研究^[17]中, 对微腔的热力学模型进行了完善, 微腔的散热过程分为两个: (1) 从二氧化硅腔模到非腔模区域, (2) 从非腔模区域到周围环境中。假设二氧化硅腔模区域和非腔模区域的温度变化分别为 $\Delta T_1, \Delta T_2$; 由内而外丝状蛋白与 PDMS 各层的温度变化分别为 $\Delta T_3, \Delta T_4$, 那么对于复合微腔来说, 其谐振波长可以表示为

数低两个数量级以上, 因此在理论探究的过程中不考虑。另外, PDMS 的热膨胀系数远小于其热光效应系数, 因此我们仅考虑丝状蛋白中的热膨胀效应。在这个式子中, $\frac{\eta_1}{n_{eff}} \cdot \frac{dn_1}{dT} (\Delta T_1(t) + \Delta T_2(t))$, $\frac{\eta_2}{n_{eff}} \frac{dn_2}{dT} \Delta T_3(t)$, $\frac{\eta_3}{n_{eff}} \frac{dn_3}{dT} \Delta T_4(t)$ 分别表示二氧化硅、丝状蛋白、聚二甲基硅烷的热光效应对谐振波长的影响系数, $\frac{d_1(t)}{d_1(t) + d_2(t)} \cdot \frac{dD}{DdT} (\Delta T_1(t) + \Delta T_2(t))$, $\frac{d_2(t)}{d_1(t) + d_2(t)} \cdot \frac{dL}{LdT} \Delta T_3(t)$ 分别表示二氧化硅、丝状蛋白的热膨胀效应的影响系数。

根据等效模式体积的定义,可以得到近似的微球腔的模式体积的表达式

$$V_{\text{eff}} = bD^{11/6}(\lambda/n_i)^{7/6} \quad (6)$$

其中,参数 b 在 TE 模和 TM 模下分别约为 1.02 和 1.08, D 表示腔的半径。在计算各层等效模式体积时,先假设这个腔是实心的,计算出其等效模式体积,再减去补充的这一部分的等效模式体积,就可以得到该层的实际等效模式体积。然后,根据三层各自的等效模式体积便可以计算各层在整个折射过程中所占的效率。

微腔中各层的温度变化主要与吸收项和耗散项有关。其中,吸收项正比于腔内光场的能量,耗散项正比于腔内温度的变化,腔内温度随时间的变化关系可以表示为

$$\frac{d\Delta T_1(t)}{dt} = -k_1\Delta T_1(t) + \gamma_1 |a(t)|^2 \quad (7)$$

$$\frac{d\Delta T_2(t)}{dt} = -k_2\Delta T_2(t) + \gamma_2\Delta T_1(t) \quad (8)$$

$$\frac{d\Delta T_3(t)}{dt} = -k_3\Delta T_3(t) + \gamma_3 |a(t)|^2 \quad (9)$$

$$\frac{d\Delta T_4(t)}{dt} = -k_4\Delta T_4(t) + \gamma_4 |a(t)|^2 \quad (10)$$

由内而外三层结构腔模中与热松弛/产生相关的参数 γ_i, k_i 取决于材料特性,这通常是很难通过实验获得,在这里我们将其视为拟合参数。式(7)表示二氧化硅腔模到非腔模区域的温差变化,式(8)表示二氧化硅非腔模区域到环境的温差变化。由于丝状蛋白和聚二甲基硅烷涂层的热传导是远远小于式(9)(10)所表征的温度变化,因此这里将其忽略,认为中间夹层中的热量直接耗散到了环境中,同理也忽略二氧化硅与丝状蛋白夹层中的热传导。综合上述各式对式(7)~式(10)所联立只含有 $\Delta T_1(t), \Delta T_2(t), \Delta T_3(t), \Delta T_4(t)$ 的微分方程组进行数值求解。龙格库塔法常用于工程学上求解非线性常微分方程,该方法运用欧拉公式来抑制误差,所得到的结果精度高。在仿真时,设置初值为: $y' = f(t, y)$ $y(t_0) = y_0$, 那么四阶的龙格库塔法的表达式就为 $y_{n+1} = y_n + h/6(k_1 + 2k_2 + 2k_3 + k_4)$, 其中 h 为每一步的步长

$$\begin{aligned} k_1 &= f(t_n, y_n) \\ k_2 &= f(t_n + h/2, y_n + hk_1/2) \\ k_3 &= f(t_n + h/2, y_n + hk_2/2) \\ k_4 &= f(t_n + h, y_n + hk_3) \end{aligned} \quad (11)$$

根据以上公式,通过改变取样时间段内,所要计算的精度(步长),就能得到论文中式(7)~式(10)所组成的四元微分方程组的解,即温度随时间的变化关系。

2 数值模拟结果与分析

经过数值拟合得到的透射谱、温度变化和谐振波长的变化关系如图 4 所示。

我们可以看到三层回音壁微腔的振荡波形呈现出快速和慢速相结合的现象。慢速的振荡波形与仅包含丝状蛋白和二氧化硅的双层微腔的振荡波形相似,并且每一个快速的振荡波形也间断式出现,快速振荡周期数逐步增加,这个可以解释为热膨胀效应(二氧化硅的正效应与丝状蛋白的负效应相互竞争)和热光效应(二氧化硅的正效应和其他两个涂层的负效应相互竞争)以及考虑了二氧化硅的快慢两个散热过程,产生了不同时间跨度内不同的振荡效应。下面对谐振波长式(5)三层中各自的热振荡效应影响冷腔波长的系数进行分析。如图 4(d)(e),快速振荡周期主要和聚二甲基硅烷的热振荡效应有关,而对于仅考虑内部两层的热光效应和机械延展效应基本遵循的振荡波形时,最外层的涂覆层对其他两层的热振荡影响较小。同时,从图 4(d)表明,快速的热振荡效应间断性出现,且只出现在慢速振荡周期的一侧。下面我们截取两个周期进行系统分析。

从图 4(d)(e)图中可以知道,二氧化硅层的正热光效应推动谐振波长红移,丝状蛋白层中的热膨胀效应和丝状蛋白、PDMS 中的负热光效应推动谐振波长蓝移。若前者效应强于后者,则谐振波长整体增加,反之,则减小。由于聚二甲基硅烷对温度的敏感性要高于丝状蛋白,且热吸收系数高于后者两个量级以上,因此能够在内部两层完成一个慢速振荡周期中的温度上升阶段便完成多个快速振荡周期,类似聚二甲基硅烷与二氧化硅双层耦合模型中的整个振荡过程^[14]。当谐振波长增加得比扫描波长增加的速度快时,失谐量开始增加,透射谱回升,腔内的能量减少,直至腔内的能量不足以推动腔模的温度继续升高时,二氧化硅与丝状蛋白中的温度开始降低;PDMS 和丝状蛋白下降速度比二氧化硅快得多,没有了二氧化硅中的正热光效应的推动,腔内的振荡就在短时间内不能产生,这就是在慢速振荡周期的下降部分不能产生快速振荡的原因。由于之前腔模已经积累了较大的温升,支持谐振波长持续增长,这导致每个慢速振荡周期越长,也就为聚二甲基硅烷产生更多的快速振荡提供了条件。同时,随着反应的进行,在第五个慢速振荡周期中(见图 5(d))

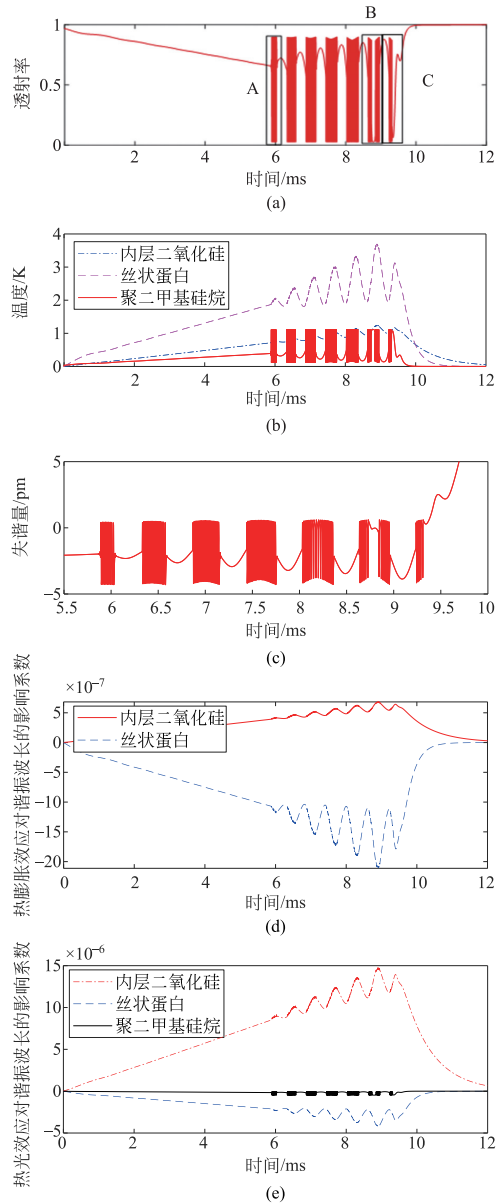


图4 三层回音壁微腔的热振荡效应的理论拟合结果，微腔处于欠耦合状态

(a) 计算的光传输频谱；(b) 二氧化硅和PDMS的模拟温度变化；(c)失谐量；(d) 热膨胀效应对谐振波长的影响；(e) 热光效应对谐振波长的影响

注：(a) 中的A、B、C分别表示第一、五、六个慢速振荡周期。理论参数：二氧化硅、丝状蛋白的折射率分别为1.45、1.55和1.41，光源波长为1460nm波段，本征品质因子为 5×10^6 ，输入泵浦光的功率为1.0mW，泵浦光的扫描速度为1nm/s，最内层的二氧化硅的直径为42 μ m，丝状蛋白夹层的厚度为30nm，聚二甲基硅烷涂层的厚度为30nm，二氧化硅腔模的热吸收速率和热传导系数分别为697.7K/J和 7.2×10^4 Hz，二氧化硅非腔模的热吸收速率和热传导系数分别为23918K/J和1258Hz，丝状蛋白层的热吸收速率和热传导系数分别为1800.3K/J和3868Hz，最外层聚二甲基硅烷涂层的热吸收速率和热传导系数分别为 4.77×10^5 K/J和 5.08×10^5 Hz，二氧化硅、丝状蛋白和聚二甲基硅烷的热光系数依次为 $1.2 \times 10^{-5} \text{K}^{-1}$ 、 $-2.4 \times 10^{-4} \text{K}^{-1}$ 、 $-1 \times 10^{-4} \text{K}^{-1}$ ，二氧化硅和丝状蛋白的热膨胀系数分别为 $1.1 \times 10^{-11} \text{m/K}$ 和 $-9.6 \times 10^{-11} \text{m/K}$ 。经式(6)计算此时光的传播效率之比为0.9910 : 0.0047 : 0.0043

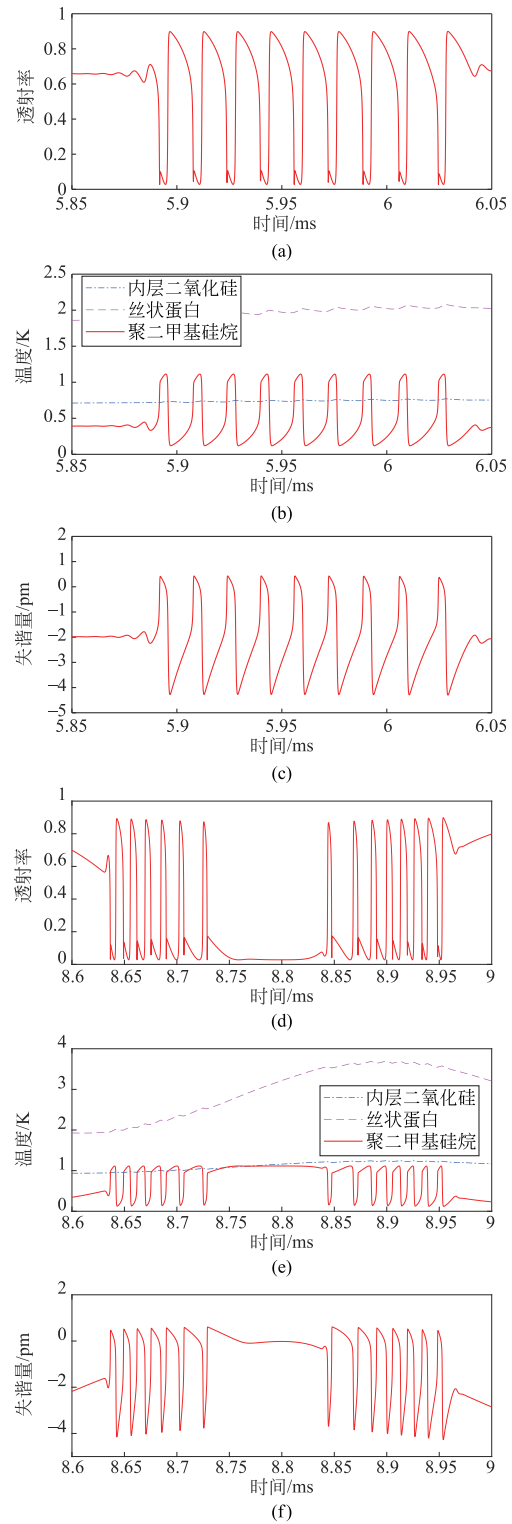


图5 截取第一个和第五个振荡周期的理论结果图

(a) 第一个慢速振荡周期传输透射谱；(b) 第一个慢速振荡周期温度变化；(c) 第一个慢速振荡周期失谐量；(d) 第五个慢速振荡周期透射谱；(e) 第五个慢速振荡周期温度变化；(f) 第五个慢速振荡周期失谐量

注：图5(a)(b)(c)对应图4(a)的A部分，图5(d)(e)(f)对应图4(a)的B部分

会出现一个无振荡的真空期,其原因是模式体积内积累足够的能量,温度越高,丝状蛋白模式体积内的温度上升速度也就越快。随着丝层的升温速度快到一定程度后其负效应导致谐振波长虽然稍有增加但失谐量无法增加很多反而开始减小。此时 PDMS 层的温度保持稳定,当腔内的能量不足以支持丝状蛋白的吸收速率时,丝状蛋白的温度升高速度开始趋缓,谐振波长也开始由于耦合进腔内的能量逐渐减少,失谐量逐步增加,直至下一个快速振荡周期开始。在第六个慢速振荡周期中,当吸收功率不再能满足二氧化硅的热耗散时,失谐量逐渐增大,此后丝状蛋白和 PDMS 的能量快速耗散掉,相对体积更大、积累更多能量的二氧化硅的温度会缓慢减小。图 5 为截取第一个和第五个振荡周期的理论结果图。

3 结语

本文研究了该复合回音壁微腔内的热振荡效应,发现由二氧化硅、丝状蛋白和聚二甲甲基硅烷所组成的复合微腔能够实现两种振荡周期并存的热振荡效应。我们构建了相应的热力学方程,并尝试解释了整个物理过程来探讨产生这种独特机制的原因,发现每个慢速的振荡周期都包含着逐渐增多的快速振荡周期,并且快速振荡周期只出现在慢速振荡周期的上升过程。下一步,我们将在实验上验证这一理论模型。该复合回音壁微腔模型理论上能同时表征两个振荡频率,在传感器、光学开关和光学调制方面有着潜在应用价值。

致谢: 感谢刘晓斐博士对本文提供的帮助; 本论文受到国家自然科学基金项目(62071064)和北京邮电大学研究生专业课程建设教改项目(2022ZY119)的资助。

参 考 文 献

- [1] MANOLATOU C, KHAN M J, FAN S, et al. Coupling of modes analysis of resonant channel add-drop filters[J]. IEEE Journal of Quantum Electronics, 1999, 35(9): 1322-1331.
- [2] CHU S T, LITTLE B E, PAN W, et al. An eight-channel add-drop filter using vertically coupled microring resonators over a cross grid[J]. IEEE Photonics Technology Letters, 2002, 11(6): 691-693.
- [3] ZHU J, OZDEMIR S K, XIAO Y F, et al. On-chip single nanoparticle detection and sizing by mode splitting in an ultrahigh-Q microresonator[J]. Nature Photonics, 2010, 4(122): 46-49.
- [4] VOLLMER F, ARNOLD S. Whispering-gallery-mode biosensing: label-free detection down to single molecules[J]. Nature Methods, 2008, 5(7): 591-596.
- [5] SPILLANE S M, KIPPENBERG T J, VAHALA K J, et al. Ultra-high-Q toroidal microresonators for cavity quantum electrodynamics[J]. Phys. Rev. A, 2005, 71(1): 013817.
- [6] KIPPENBERG T J, SPILLANE S M, VAHALA K J. Kerr-Nonlinearity Optical Parametric Oscillation in an Ultrahigh-Q Toroid Microcavity[J]. Physical Review Letters, 2004, 93(8): 083904.
- [7] CHAI C Z, HU X X, ZOU C L, et al. Thermal bistability of magnon in yttrium iron garnet microspheres[J]. Applied Physics Letters, 2019, 114(2): 021101.
- [8] PADMARAJU K, BERGMAN K. Resolving the thermal challenges for silicon microring resonator devices[J]. Nanophotonics, 2014, 3(4-5): 269-281.
- [9] CARMON T, YANG L, VAHALA K. Dynamical thermal behavior and thermal self-stability of microcavities[J]. Optics express, 2004, 12(20): 4742.
- [10] ANDRONICO A, FAVERO I, LEO G. Difference frequency generation in GaAs microdisks[J]. Optics Letters, 2008, 33(18): 2026-2028.
- [11] PARK Y S, WANG H. Regenerative pulsation in silica microspheres[J]. Optics Letters, 2007, 32(21): 3104-3106.
- [12] DIALLO S, LIN G, CHEMBO Y K. Giant thermo-optical relaxation oscillations in millimeter-size whispering gallery mode disk resonators[J]. Optics Letters, 2015, 40(16): 3834-3837.
- [13] WANG J, ZHU B, HAO Z, et al. Thermo-optic effects in on-chip lithium niobate microdisk resonators[J]. Optics Express, 2016, 24(19): 21869-21879.
- [14] HE L, XIAO Y F, ZHU J, et al. Oscillatory thermal dynamics in high-Q PDMS-coated silica toroidal microresonators[J]. Optics Express, 2009, 17(12): 9571-9581.
- [15] DENG Y, LIU F, LESEMAN Z C, et al. Thermo-optomechanical oscillator for sensing applications[J]. Optics Express, 2014, 21(4): 4653.
- [16] LIU Y, JIANG X, WANG C, et al. Optothermally induced mechanical oscillation in a silk fibroin coated high-Q microsphere[J]. Applied Physics Letters, 2020, 116(20): 201104.
- [17] 王全龙. 回音壁模式光学微腔热非线性效应及其折射率调制特性[D]. 长春: 中国科学院研究生院(长春光学精密机械与物理研究所), 2015.