

激光与光电子学进展

激光诱导石墨烯全光调谐超高 Q 值回音壁微腔

张雪杨, 杨火木, 邓国亮*, 周寿桓

四川大学电子信息学院, 四川 成都 610065

摘要 提出了一种基于激光诱导石墨烯(LIG)的二氧化硅回音壁微球腔全光调谐方法。利用二氧化碳激光器碳化聚酰亚胺(PI)薄膜生成LIG,使用980 nm激光对LIG表面进行光激励,研究了微腔的透射光谱和反射光谱。结果表明:回音壁微腔的品质因子 Q 值在调谐全过程中保持在 10^8 左右,调谐范围约为1.09 nm,灵敏度约为8.8 pm/mW,实现了基于LIG的二氧化硅回音壁微球腔无损 Q 值的全光调谐。该全光调谐方法具有无机械干扰、保持超高 Q 值、调谐范围宽等优点,扩展了全光调谐在腔量子动力学、非线性光学、低阈值激光等方面应用。

关键词 光学器件; 回音壁模式; 全光调谐; 激光诱导石墨烯; 超高 Q 值

中图分类号 O436 文献标志码 A

DOI: 10.3788/LOP222917

All-Optical Control of Ultrahigh- Q Whispering Gallery Microspheres with Laser-Induced Graphene

Zhang Xueyang, Yang Huomu, Deng Guoliang*, Zhou Shouhuan

College of Electronics and Information Engineering, Sichuan University, Chengdu 610065, Sichuan, China

Abstract We present a method for all-optical control of silica whispering-gallery-mode microspheres with laser-induced graphene (LIG). Polyimide (PI) films are carbonized to LIG under CO_2 laser irradiation. A 980 nm laser is used as a pump light to irradiate the LIG surface, and the transmission and reflection spectra of microcavities are studied. Experimental results show that the tuning scheme maintains a Q factor of approximately 10^8 throughout the tuning process, with a tuning range and sensitivity of approximately 1.09 nm and approximately 8.8 pm/mW, respectively. This scheme has the advantages of having no mechanical interference, an ultrahigh- Q factor, and a wide tuning range, thus extending all-optical tuning to applications in cavity quantum dynamics, nonlinear optics, and low-threshold lasers.

Key words optical device; whispering gallery mode; all-optical control; laser-induced graphene; ultrahigh- Q factor

1 引言

回音壁微腔基于光的全反射原理,将光波束缚在 μm 量级的谐振腔内,对局域在微腔中的光波起着频率选择的作用。回音壁微腔具有超高的品质因子 Q 值和极小的模式体积,在低阈值激光器^[1]、高精度传感^[2]、非线性光学^[3]、腔量子动力学^[4]等领域有巨大的应用潜能。

固态回音壁微腔制备完成后,结构参数已固定,但在实际应用中,通常希望能对谐振波长进行调谐。目前,调谐回音壁微腔谐振波长的方法主要包括机械拉伸与压缩^[5-8]、气压调谐^[9-11]等改变微腔尺寸形貌,或电热调谐^[12-14]、全光调谐^[15-17]改变微腔折射率和微腔体

积。2009年,Pöllinger等^[8]通过驱动器拉伸二氧化硅微瓶腔两端的光纤实现了400 GHz的大范围调谐, Q 值保持在 10^8 左右。热调谐作为一种无机械干扰的调谐方法被广泛研究。2016年,浙江大学研究团队通过在硅片上制备石墨烯纳米加热器,对 Q 值为 10^3 的微盘腔进行欧姆加热实现大于3 nm的调谐范围^[18]。2017年,重庆大学研究团队通过在微管腔中嵌入FeCrAl铁丝实现0.57 nm的调谐范围, Q 值在 10^4 左右^[19]。此外,利用聚二甲基硅氧烷(PDMS)^[20]、聚甲苯溶液(DOO-PPV)^[21]、环氧乙烷掺杂聚乙烯醇^[22]、四氧化三铁^[23-24]、磁性流体^[25]等对温度变化敏感的光热材料,也可以有效提高调谐范围。然而,机械调谐实现了宽调谐范围,但可能会因为微腔几何形变引入机械干

收稿日期: 2022-10-31; 修回日期: 2022-12-08; 录用日期: 2023-01-06; 网络首发日期: 2023-02-06

基金项目: 国家自然科学基金(61705149,61505129)

通信作者: *gdeng@scu.edu.cn

扰。此外,许多调谐方案在不同程度上劣化微腔 Q 值,不满足需要超高 Q 值的应用条件。因此,寻找一种能保持超高 Q 值又能实现宽调谐范围的方法非常重要。

柔性聚合物材料激光诱导石墨烯(LIG)具有光吸收率高、吸收波长范围广、光热转换效率高等优点^[26]。此外,其还具有鲁棒性好、工作温度范围宽、响应时间短等特点,且可通过计算机设计制造成任意形状^[27]。基于前期工作实现的LIG电热调谐回音壁微腔,本文提出了一种基于LIG的回音壁微腔全光调谐方法。将超高 Q 值回音壁微腔球固定于自制的LIG上,采用 980 nm 激光对LIG表面进行光激励,光能被LIG高效吸收后,LIG产生的热量被传导到回音壁微腔模场区域。在热光效应以及热膨胀效应的作用下,实现对微腔谐振波长的调谐。回音壁微腔的模场区域没有直接与LIG接触,因此微腔 Q 值仅受微弱影响。这种基于LIG的调谐方法可以实现约 1.09 nm 的调谐范

围,灵敏度 S 约为 8.8 pm/mW,微腔 Q 值保持在 10^8 左右。

2 结构装置与原理

2.1 制备方法

LIG 的制备方法^[27]和表征,如图 1 所示。图 1(a)为LIG的加工示意图。波长为 10.6 μm 的二氧化碳激光器以 2.2 W 的功率聚焦于聚酰亚胺(PI)胶带表面,并以 $25 \text{ mm}\cdot\text{s}^{-1}$ 的速度扫描。在激光束的照射下,PI膜被有效碳化,分解并释放大气态产物形成多孔状石墨烯结构。制备完成后的LIG实物如图 1(b)所示,尺寸为 10 mm \times 7 mm。图 1(c)为LIG的拉曼光谱表征图($\lambda=532 \text{ nm}$, DXR2XI, Thermo Fisher),揭示LIG具有显著的D峰($\sim 1351 \text{ cm}^{-1}$),G峰($\sim 1595 \text{ cm}^{-1}$)和2D峰($\sim 2692 \text{ cm}^{-1}$)。其中,D特征峰表征石墨烯的混乱度,2D特征峰表征存在多层石墨烯结构。图 1(d)为

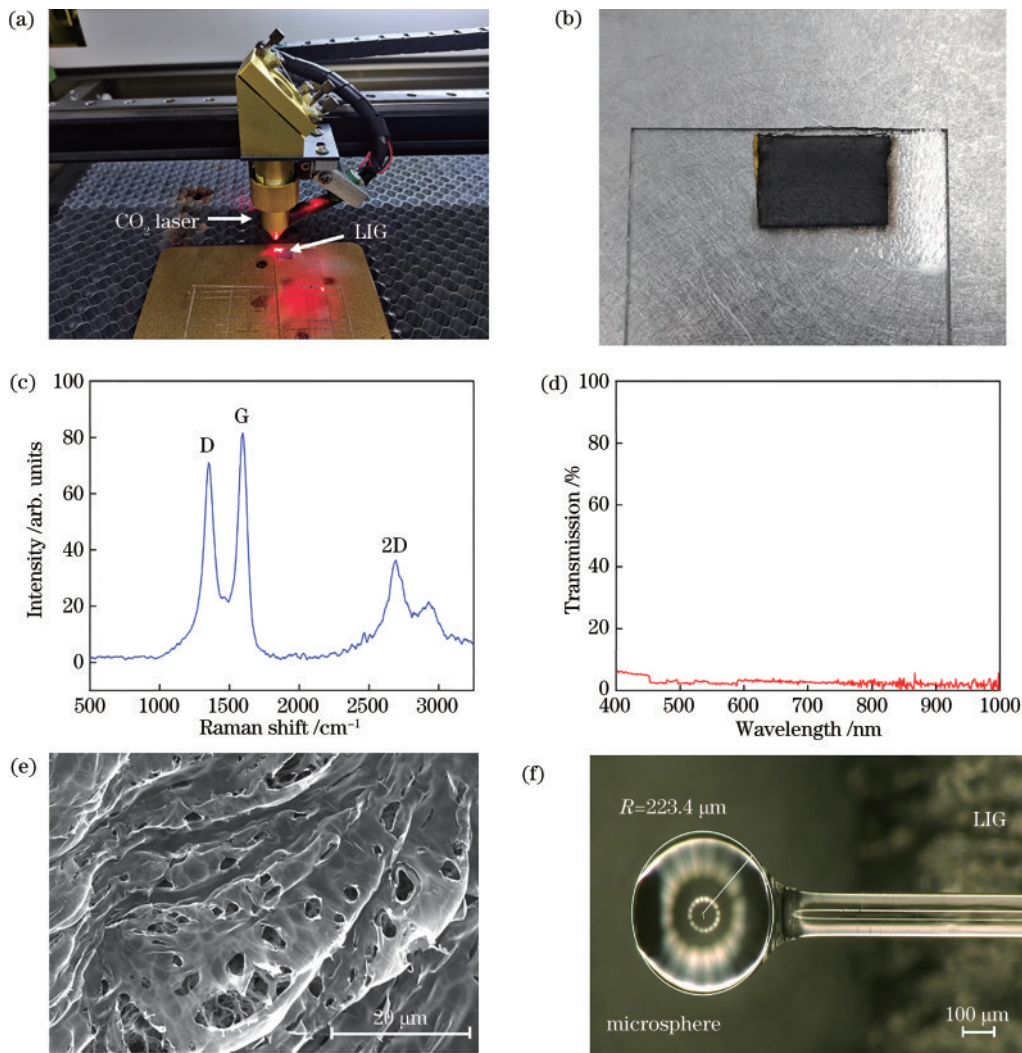


图 1 LIG 的制备方法和表征。(a) LIG 的加工示意图;(b) LIG 的实物图;(c) LIG 的拉曼光谱表征;(d) LIG 的透射光谱图;(e)扫描电镜图(刻度为 20 μm);(f)固定于LIG上微球腔的显微图(刻度为 100 μm)

Fig. 1 Manufacturing method and characteristics of LIG. (a) Schematic of manufacturing LIG; (b) image of LIG; (c) Raman spectrum of LIG; (d) transmission spectrum of LIG; (e) SEM image of LIG (scale is 20 μm); (f) micrograph of a microsphere fixed on LIG (scale is 100 μm)

利用紫外可见分光光度计 (Evolution 300, Thermo Fisher) 测试得到的 LIG 透射光谱。LIG 在波长为 400~1000 nm 内透射率均低于 10%，这为实验选择 980 nm 的激光器作为激励光提供依据。图 1(e) 为 LIG 表面放大 2000 倍的扫描电镜图 (SEM, SU8220, Hitachi)，其呈现多孔状结构。在完成 LIG 的制备后，利用熔接机对剥离涂覆层的普通单模光纤末端进行电弧放电，使二氧化硅在表面张力的作用下收缩为球状结构，经过多次电弧放电可制备得到半径为 223.4 μm 的回音壁微球。回音壁微球腔球杆部分被 PI 胶带固定于 LIG 上，使微球腔与 LIG 的间距保持 mm 量级。图 1(f) 为回音壁微球腔显微图。

2.2 实验装置

全光调谐实验装置如图 2 所示。可调谐半导体激光器 (Santec TSL-710) 输出信号光，功率为 0.8 mW，扫描速度为 1 nm/s。信号光经偏振控制器、环形器、锥形光纤后以倏逝波的形式耦合进入回音壁微腔中。光电探测器和数据采集卡对透射谱和反射谱进行采集。为实现全光调谐，980 nm 激光垂直激励在 LIG 上。通过改变 980 nm 激励光功率的大小，调控回音壁微腔的谐振波长。

2.3 基本原理

光波沿着微腔表面传输一周的光程为该光波波长的整数倍时，可以在微腔内相干相长并形成稳定传播的回音壁谐振模式。该波长为微腔的谐振波长 λ_0 [28]， λ_0 可表示为

$$\lambda_0 = \frac{2\pi R \cdot n_{\text{eff}}}{m} \quad (1)$$

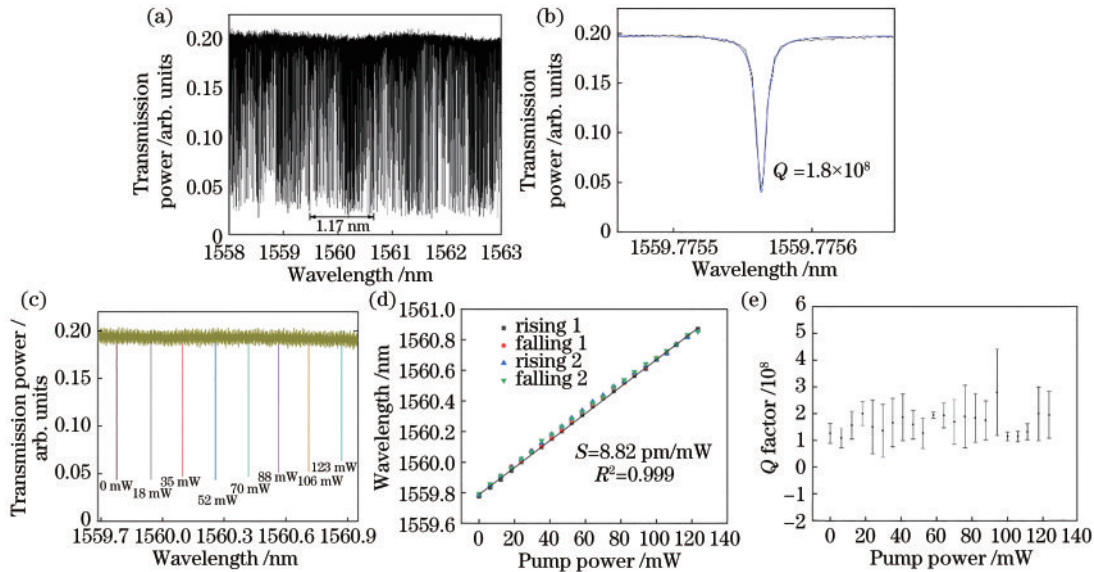


图 3 基于 LIG 的回音壁微球的光谱特性及调谐特性。(a) 1558~1563 nm 范围内的透射光谱；(b) 单一模式的透射光谱；(c) 模式红移随激励光功率的变化；(d) 波长漂移量随激励光功率的变化；(e) Q 值随激励光功率的变化
Fig. 3 Characteristics of microsphere with LIG and its tunability. (a) Transmission spectrum in the range of 1558 from 1563 nm; (b) transmission spectrum of a single resonance mode; (c) mode redshift with increasing pump power; (d) wavelength shift with pump power; (e) Q factor with pump power

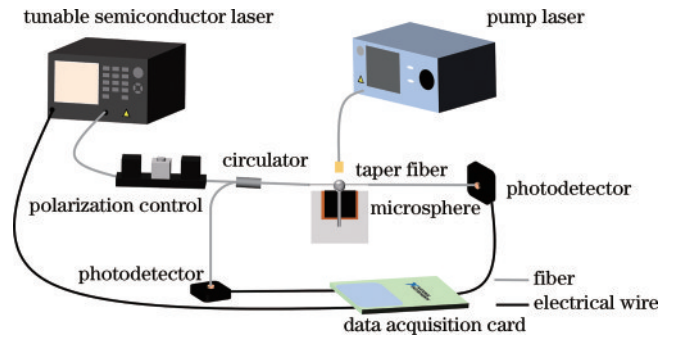


图 2 全光调谐实验装置图
Fig. 2 Schematic of the experiment setup for the all-optical control

式中： R 为微腔的半径； n_{eff} 为二氧化硅的有效折射率； m 为谐振模式的角向模式数。

LIG 吸收激励光能量后产生热量，热量被传输到回音壁微腔的模场区导致微腔温度升高，造成微腔体积和折射率改变，使谐振波长发生漂移。波长漂移量 $\Delta\lambda$ 和温度变化量 ΔT 的关系为 [29]

$$\Delta\lambda = \lambda_0 \left(\frac{1}{n} \frac{dn}{dT} + \frac{1}{R} \frac{dR}{dT} \right) \Delta T, \quad (2)$$

式中：二氧化硅的热光系数 $\frac{dn}{dT}$ 、热膨胀系数 $\frac{dR}{R \cdot dT}$ 分别约为 $1.2 \times 10^{-5} \text{ K}^{-1}$ 、 $5.5 \times 10^{-7} \text{ K}^{-1}$ 。

3 分析与讨论

基于 LIG 的回音壁微球腔的透射光谱特性与调谐特性，如图 3 所示。在无光激励下，1558~1563 nm 范围内的透射光谱，如图 3(a) 所示。微球腔拥有非常密

集的回音壁模式,主要来自于微球腔偏心形变导致的回音壁方位角模式退简并以及微腔与锥形光纤尺寸匹配引起的高阶模式的激发^[30]。实验所得自由光谱范围为 1.17 nm,与理论计算值 1.18 nm 基本一致。图 3(b)是放大图 3(a)中 1559.7755~1559.7756 nm 处单一模式的透射光谱,对光谱进行洛伦兹拟合,利用谐振中心波长除以谐振峰半峰全宽可得 Q 值为 1.8×10^8 ,这表明 Q 值没有因为引入 LIG 而降低。980 nm 激光器对 LIG 垂直激励,通过改变激励光功率实现回音壁微腔透射谱的全光调谐。在调谐过程中,模式数量没有明显变化。如图 3(c)所示,激励光功率分别为 0、18、35、52、70、88、106、123 mW 时,图 3(b)模式发生不同程度的红移。此外,通过两次升降激励光功率对图 3(b)模式的谐振波长进行调谐,验证了基于 LIG 回音壁微腔的全光调谐方法具有可逆性与一致性,如图 3(d)所示。当激励光功率为 123 mW 时,透射光谱波长漂移为 1.095 nm。谐振波长与激励光功率呈线性关系,线性度 R^2 为 0.999, S 为 8.82 pm/mW。对照信号光直接激

励纯二氧化硅微球的 S 为 0.107 pm/mW^[20],基于 LIG 的全光调谐的 S 提高约 82 倍。图 3(e)为两次升降激励光功率时,微腔 Q 值随着激励光功率的变化。在调谐全过程中,微腔的品质因子在 10^8 左右波动,表明基于 LIG 的全光调谐可以保持回音壁微球腔的超高 Q 值。

对反射光谱进行全光调谐,如图 4 所示。图 4(a)为无激励光时,波长为 1559.7~1560.1 nm 的反射光谱与透射光谱。只有部分受到较强散射的模式能够耦合到锥形光纤的输入端^[31],因此反射光谱有利于减小模式数目,在带通滤波上具有潜力。图 4(b)为图 4(a)虚线框中模式的透射与反射光谱。对光谱进行洛伦兹拟合,透射谱和反射谱的共振波长基本相同, Q 值分别为 1.8×10^8 和 2.8×10^8 。图 4(c)与图 4(d)为模式的反射光谱全光调谐结果,最大波长漂移达到 1.09 nm。谐振波长与激励光功率呈线性关系, R^2 为 0.999, S 为 8.8 pm/mW,略低于图 3(d)模式的灵敏度。这是因为热量从 LIG 传输到微球的模场区,离 LIG 越近的轴向量子阶数的模式调谐灵敏度越大^[23]。

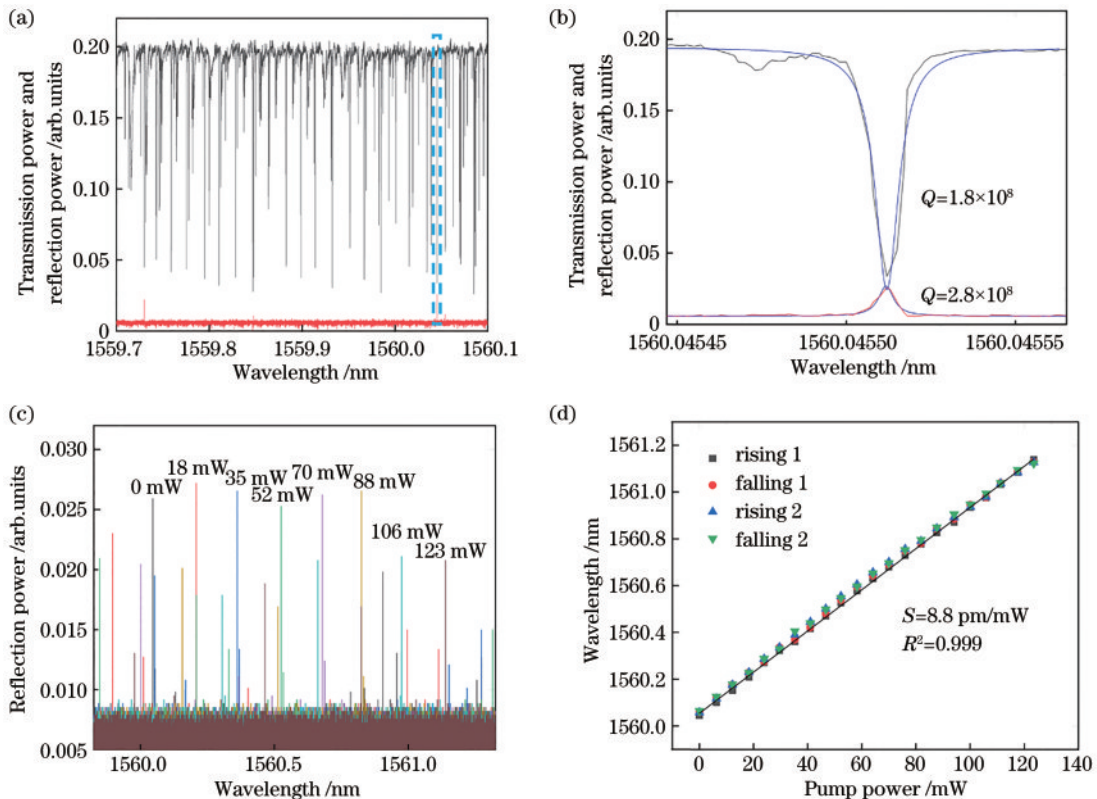


图 4 反射光谱的全光调谐。(a)1559.7~1560.1 nm 范围内的透射光谱与反射光谱;(b)透射光谱与反射光谱的放大图;(c)随着激励光功率增加反射光谱的红移;(d)反射光谱波长漂移随激励光功率的变化

Fig. 4 All-optical modulation of the reflection spectra. (a) Transmission and reflection spectra in the range of 1559.7 to 1560.1 nm; (b) enlarged transmission and reflection spectra; (c) redshift of the reflection spectra with increasing pump power; (d) wavelength shift of the reflection spectra with pump power

使用 980 nm 激光器周期性输出激励光,并测量经过回音壁微腔的透射率。当 980 nm 激光器输出激励光时,激光被 LIG 高效吸收后产生热量,导致谐振波长红移,透射率增加。当 980 nm 激光器无激励光信号输

出时,回音壁微腔散热,导致谐振波长蓝移,透射率减小。图 5 为 LIG 全光调谐回音壁微球腔光学响应的测量结果。图 5(a)为 980 nm 激励光的同步信号。根据图 5(b)全光调谐的响应信号,上升沿时间为 498 ms,下降

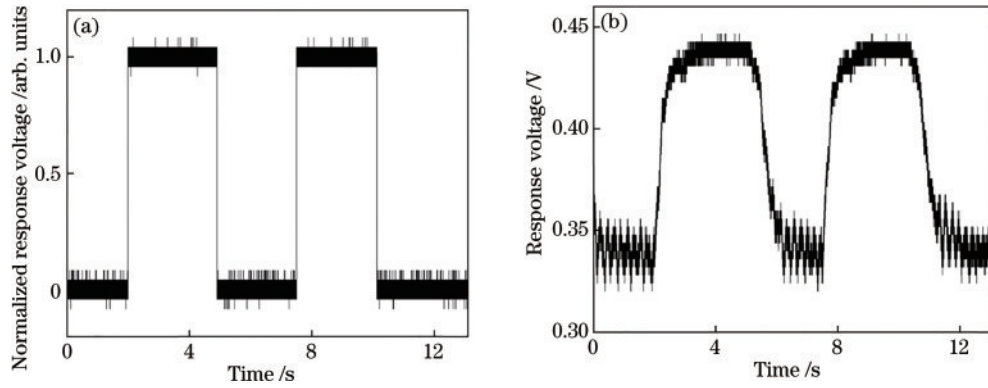


图 5 光学响应的测量。(a) 980 nm 激励光的同步信号;(b) 全光调谐的响应信号

Fig. 5 Measure optical response. (a) Synchronization signal of the 980 nm pump light; (b) all-optical tuning of the response signal

沿时间为 531 ms。减小微腔体积并利用 LIG 的柔性增大接触面积可以进一步缩短响应时间。

已发表的回音壁微腔全光调谐文献的性能,如表 1 所示。由表 1 可知,有一部分方法中光热材料与回

音壁微腔直接接触,造成微腔散射损耗显著增强与 Q 值降低。所提方法在实现 1.09 nm 较大调谐范围的同时,还能保持微腔 Q 值在 10^8 左右。

表 1 不同全光调谐方法性能

Table 1 Performance of different all-optical tuning schemes

Method	Shape	Q factor	Tuning range/nm	Reference
Iron oxide nanoparticles	Microsphere	10^3	13.00	Ref. [15]
	Microbottle	10^8	0.68	Ref. [23]
	Microbottle	10^8	2.25	Ref. [24]
	Microcapillary	10^4	3.30	Ref. [25]
Graphene	Microring	10^3	~ 0.30	Ref. [17]
PDMS	Microbottle	10^4	0.37	Ref. [20]
Ethyl-orange-doped polyvinyl alcohol	Microsphere	10^4	~ 0.40	Ref. [22]
Laser-induced graphene	Microsphere	10^8	1.09	This work

4 结 论

提出了一种基于 LIG 超高 Q 值回音壁微球腔的全光调谐方法,其具有成本低廉、无机械干扰、保持超高 Q 值、调谐范围宽等优点。将制备的二氧化硅微球腔球杆固定于 LIG 上,在光激励下,LIG 产生的热量将传导到微球腔的模场区域。微球腔的模场区域与 LIG 未直接接触,回音壁微腔 Q 值仅受微弱影响。对微球腔的透射光谱和反射光谱分别进行研究,在整个调谐过程中微腔 Q 值保持在 1.8×10^8 左右,实现 1.09 nm 以上的调谐范围,其灵敏度达到 8.8 pm/mW 以上。与全光调谐纯二氧化硅微球相比^[20],引入 LIG 后灵敏度提高约 82 倍。所提方法在全光调谐回音壁低阈值激光器、非线性光学、腔量子动力学等领域具有应用前景。

参 考 文 献

- [1] He L N, Özdemir Ş K, Yang L. Whispering gallery microcavity lasers[J]. *Laser & Photonics Reviews*, 2013, 7(1): 60-82.
- [2] Liao J, Yang L. Optical whispering-gallery mode barcodes for high-precision and wide-range temperature measurements[J]. *Light: Science & Applications*, 2021, 10: 32.
- [3] Zhang X Y, Cao Q T, Wang Z, et al. Symmetry-breaking-induced nonlinear optics at a microcavity surface[J]. *Nature Photonics*, 2019, 13(1): 21-24.
- [4] Ma R, Schliesser A, Del'Haye P, et al. Radiation-pressure-driven vibrational modes in ultrahigh- Q silica microspheres[J]. *Optics Letters*, 2007, 32(15): 2200-2202.
- [5] Xu X S, Zhang H, Wang M, et al. Arbitrary function resonance tuner of the optical microcavity with sub-MHz resolution[J]. *Optics Letters*, 2019, 44(13): 3250-3253.
- [6] Yacoby E, London Y. Mechanical tuning of WGM silica microspheres and WGM-based strain gauge-geometrical considerations[J]. *Journal of Lightwave Technology*, 2022, 40(8): 2556-2560.
- [7] Qin H Y, Yin Y H, Ding M. Strain-induced tunable dual-bottle-shaped optical microresonator[J]. *Optics Letters*, 2019, 44(24): 6017-6020.
- [8] Pöllinger M, O'Shea D, Warken F, et al. Ultrahigh- Q tunable whispering-gallery-mode microresonator[J]. *Physical Review Letters*, 2009, 103(5): 053901.
- [9] Henze R, Seifert T, Ward J, et al. Tuning whispering

- gallery modes using internal aerostatic pressure[J]. *Optics Letters*, 2011, 36(23): 4536-4538.
- [10] Yang Y, Lei F C, Kasumie S, et al. Tunable erbium-doped microbubble laser fabricated by Sol-gel coating[J]. *Optics Express*, 2017, 25(2): 1308-1313.
- [11] Madugani R, Yang Y, Le V H, et al. Linear laser tuning using a pressure-sensitive microbubble resonator[J]. *IEEE Photonics Technology Letters*, 2016, 28(10): 1134-1137.
- [12] Armani D, Min B, Martin A, et al. Electrical thermo-optic tuning of ultrahigh-Q microtoroid resonators[J]. *Applied Physics Letters*, 2004, 85(22): 5439-5441.
- [13] Li B B, Wang Q Y, Xiao Y F, et al. On chip, high-sensitivity thermal sensor based on high-Q polydimethylsiloxane-coated microresonator[J]. *Applied Physics Letters*, 2010, 96(25): 251109.
- [14] Ma Q L, Rossmann T, Guo Z X. Temperature sensitivity of silica micro-resonators[J]. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 2008, 41(24): 245111.
- [15] Zhao P, Shi L, Liu Y, et al. Iron-oxide nanoparticles embedded silica microsphere resonator exhibiting broadband all-optical wavelength tunability[J]. *Optics Letters*, 2014, 39(13): 3845-3848.
- [16] Bo F, Wang J, Cui J, et al. Lithium-niobate-silica hybrid whispering-gallery-mode resonators[J]. *Advanced Materials*, 2015, 27(48): 8075-8081.
- [17] Qiu C Y, Yang Y X, Li C, et al. All-optical control of light on a graphene-on-silicon nitride chip using thermo-optic effect[J]. *Scientific Reports*, 2017, 7: 17046.
- [18] Yu L H, Yin Y L, Shi Y C, et al. Thermally tunable silicon photonic microdisk resonator with transparent graphene nanoheaters[J]. *Optica*, 2016, 3(2): 159-166.
- [19] Huang D M, Huang W, Zeng J, et al. Electrical thermo-optic tuning of whispering gallery mode microtube resonator[J]. *IEEE Photonics Technology Letters*, 2017, 29(1): 169-172.
- [20] Wang H X, Liao M M, Xiao H F, et al. All-optical tunable whispering gallery modes in a polymer bottle micro-resonator[J]. *IEEE Photonics Technology Letters*, 2021, 33(2): 97-100.
- [21] Tapalian H C, Laine J P, Lane P A. Thermo-optical switches using coated microsphere resonators[J]. *IEEE Photonics Technology Letters*, 2002, 14(8): 1118-1120.
- [22] Li Y T, Zhang H, Liu B, et al. Laser-tuned whispering gallery modes in a silica-based microsphere resonator integrated with ethyl-orange-doped polyvinyl alcohol coating[J]. *Sensors and Actuators B: Chemical*, 2017, 238: 98-104.
- [23] Zhu S, Shi L, Yuan S X, et al. All-optical control of ultrahigh-Q silica microcavities with iron oxide nanoparticles[J]. *Optics Letters*, 2017, 42(24): 5133-5136.
- [24] Zhu S, Shi L, Yuan S X, et al. All-optical controllable electromagnetically induced transparency in coupled silica microbottle cavities[J]. *Nanophotonics*, 2018, 7(10): 1669-1677.
- [25] Liu Y, Shi L, Xu X B, et al. All-optical tuning of a magnetic-fluid-filled optofluidic ring resonator[J]. *Lab on a Chip*, 2014, 14(16): 3004-3010.
- [26] Peng Y Y, Zhao W W, Ni F, et al. Forest-like laser-induced graphene film with ultrahigh solar energy utilization efficiency[J]. *ACS Nano*, 2021, 15(12): 19490-19502.
- [27] Chen J Y, Wang Y A, Liu F, et al. Laser-induced graphene paper heaters with multimodally patternable electrothermal performance for low-energy manufacturing of composites[J]. *ACS Applied Materials & Interfaces*, 2020, 12(20): 23284-23297.
- [28] Murugan G S, Wilkinson J S, Zervas M N. Selective excitation of whispering gallery modes in a novel bottle microresonator[J]. *Optics Express*, 2009, 17(14): 11916-11925.
- [29] Brenci M, Calzolari R, Cosi F, et al. Microspherical resonators for biophotonic sensors[J]. *Proceedings of SPIE*, 2006, 6158: 61580S.
- [30] 董永超. 回音壁模式微腔的耦合特性与封装技术研究[D]. 合肥: 中国科学技术大学, 2016: 88-91.
Dong Y C. Research on coupling property and package technology of optical WGM microcavity[D]. Hefei: University of Science and Technology of China, 2016: 88-91.
- [31] Li A, van Vaerenbergh T, De Heyn P, et al. Backscattering in silicon microring resonators: a quantitative analysis[J]. *Laser & Photonics Reviews*, 2016, 10(3): 420-431.