水中亚飞克级分辨率的腔光力质量传感器

浅野元気*、山口浩司和冈本肇

[1]日本电信电话株式会社*NTT*基础研究实验室，神奈川县厚木市森之里若宫*3-1*，邮编*243-0198*，日本

电子邮箱：motoki.asano@ntt.com

基于双微瓶玻璃谐振器的液体中腔光力质量传感器实现了亚飞克级分辨率。通过光力学锁相环评估频率稳定性后发现，该腔光力学传感器在水中的质量分辨率最高，可达 $(7.0 \pm 2.0) \times 10^{-16}$ g，比我们第一代装置高出四个数量级 [《科学进展》8, eabq2502 (2022)]。这种高灵敏度质量传感器可在液体中提供自由接入式光力学探针，因此有望拓展至多种原位化学与生物计量学应用。

腔光机装置可通过光子压力和/或光热效应实现对机械运动的高精度光学检测[1), 2)]。测量小样本附着在装置上所引起的机械频移，可实现高灵敏度的质量检测，并可用于各种传感器[3)-6)]。其中一项性能指标是检测限，即最小可检测质量，它取决于机械共振的频率稳定性。众所周知，光学品质因数 (Q) 较高的装置性能更优，因为频率稳定性与信噪比 (SNR) 成正比[7), 8)]，而高Q光学腔能够增强信噪比。

对于生物和化学应用而言，能够在液体中运行此类光机传感器至关重要。然而，要将这一方案直接扩展到液体环境中并不容易，因为光学腔一旦置于液体中，液体较大的折射率和光学吸收率就会显著降低光学Q。在开创性研究中，研究人员通过采用由高折射率半导体材料制成的微盘光学腔[9)-11)]，或采用流体通道不与光学腔模直接耦合的空芯玻璃光学腔[12)-14)]，避免了Q值降低。这些方法采用的是设计固定的架构，因此适用于被动检测液滴中的小样本[9)-11)]，或通道内流动液体中的小样本[12)-14)]，但不适用于主动探测液体中特定位置的样本。

相比之下，近期已有研究利用玻璃制成的双微瓶谐振器（TMBR），实现了液体中的探针式腔光机传感器[15)]。TMBR 具有独特的结构：两个微瓶的机械共振彼此耦合，而它们的光学共振则相互解耦、彼此隔离 [图 1(a)]。在与锥形光纤接触的上部微瓶中，光激发的回音壁模式（WGMs）通过光子压力与机械径向呼吸模（RBMs）耦合[15), 16), 17)]。因此，将下部微瓶置于液体中，同时使上部微瓶保持在空气中，便可通过机械耦合，高灵敏度地光学检测浸于液体中的微瓶内的 RBM，同时避免 WGMs 的Q值下降。这种 TMBR 传感器能够像扫描探针显微镜一样主动探测液体中的任意位置[18), 19)]，从而为液体中的质量传感开拓了广泛的应用前景。然而，先前报道的 TMBR 质量分辨率仅达到数皮克克的水平[15)]，不足以

分辨较小的生物样本，例如质量约为飞克量级的单个细菌。因此，人们一直期望大幅提高质量分辨率。在这封信中，我们报道了水中 TMBR 光机械质量传感器实现了亚飞克分辨率，比先前报道的传感器高出四个数量级。这一成果通过降低传感器的有效质量、引入平衡零差干涉仪（BHI），以及优化用于锁相环（PLL）的锁相放大器的解调带宽而实现。

最小可检测质量，即质量分辨率 δm，由 $\delta m = 2m_{\mathrm{eff}}\sigma_A$ 给出，其中 m_{eff} 是机械模态的有效质量，σ_A 是机械共振频率的阿伦偏差[7]。因此，降低 m_{eff} 可直接提升质量分辨率。这里，我们制备了一种最大直径为68 μ米的 TMBR，其直径约为此前报道的 TMBR 的一半[图 1(b)]。为制备这种微型 TMBR，我们首先通过加热拉伸工艺[15), 16)] 将包层直径为 80 μ米（= D_c）的商用单模光纤拉锥至最小直径 62μ米 [（步骤 1，见图 1(c)）]。接下来，我们改变加热拉伸位置，使锥形光纤的一端与新制备的第二根锥形光纤的一端重叠（步骤 2）。这一步形成了最大直径（D_b）为 68 μ米的微瓶结构。我们再次执行这一步，制成两个微瓶，并由三个直径 D_n 为 62 μ米的颈段将它们连接起来（步骤 3）。其中一个制成的微瓶总长为400 μ米，约为此前报道的 TMBR 中微瓶长度的一半。由于 D_b 与 D_n 之差远大于 1.5 μ米的光波长，两个微瓶中的光学回音壁模彼此解耦、相互隔离，而其中的机械径向呼吸模则相互耦合。根据该 TMBR 的几何结构估算，径向呼吸模的 m_{eff} 为 4.0×10^{-6} 克，比此前报道的 TMBR 小约一个数量级[15)]。

提高频率稳定性，即降低频率（阿伦）偏差 σ_A，是改善 δm 的另一种方法。采用 BHI [图 2(a)] 对此有所帮助，因为它能提高光学读出的信噪比，从而有助于降低 σ_A[7), 8)]。我们首先比较了在空气中测得的 TMBR 热噪声谱的信噪比，分别采用和未采用 BHI 进行测量。使用外腔二极管激光器（ECDL）探测 TMBR 的机械模式。将光功率约为 1 mW 的探测光注入一根锥形光纤，其直径已缩小至接近光

波长。探测激光的频率设定在光学共振的斜坡上，其Q值为 3。6×10^6 [图 2(b)]。锥形光纤的输出光由雪崩光电二极管（APD）直接探测，或经 BHI 探测。在采用 BHI 的情况下，通过偏振分束器（PBS）调节偏振，使探测光中非共振的偏振分量充当本地振荡器，并与信号光混合[20)]。得益于高Q光学共振，无论是否采用 BHI，均观察到两个耦合机械模式在约 56.7 MHz 处的热涨落，但信噪比不同 [图 2(c)]。两个共振的振幅和线宽相近；耦合模模型的理论拟合[15)] 表明，两个微瓶之间的本征频率差（6.4 kHz）远小于线宽（~140 kHz），因此二者几乎调谐至共振，形成机械耦合强度为 $g_M/2\pi = 225$ kHz 的耦合机械谐振器。光机械耦合率定义为 $g_0 = \frac{\partial \omega_{\mathrm{opt}}}{\partial x} x_{\mathrm{zpf}}$，其中 ω_{opt} 为光学谐振频率，x_{zpf} 为机械零点涨落；利用相位调制器（PM）产生的校准音估算出该耦合率为 $g_0/2\pi = 0.4$ kHz[21)]。需要强调的是，采用 BHI 测量所得的信噪比比未采用 BHI 时高五倍，噪声底低至 5×10^{-20} m/√Hz [图 2(c)]。此后，我们使用这一高灵敏度 BHI，评估 TMBR 部分浸入水中时的频率稳定性。在讨论频率稳定性之前，我们先在图 3(a) 中展示耦合 RBMs 随浸入深度变化的特性；浸入深度的零点设在下部微瓶的底部瓶颈开始接触水面的位置。低频模式的频率和线宽变化~~大于~~高频模式 [图 3(b) 和 (c)]，这是由于下部微瓶在水中的本征频率红移和黏性阻尼所致[15)]。观测到的频率和线宽变化与不可压缩液体模型的流固耦合理论吻合良好 [见图 3(b) 和 (c) 中的虚线][9), 15)]。

—

通过将浸入深度保持在 300 μm，评估了水中的频率稳定性；此时，较低频率模式的频率和线宽相较于空气中分别变化了 -56 和 +53 kHz [图3(b)和图3(c)]。在这些测量中，向 TMBR 注入了功率为 10 mW 的额外光，以光学驱动机械模式。图 4(a)所示的光机械闭环也用于跟踪较低频率模式的机械共振频率，并驱动径向呼吸模

使其与锁相环谐振。使用电光强度调制器（IM）调制该驱动激光器的光强，同时通过光学滤波器由 BHI 检测探测光。BHI 检测到的探测光交流信号被发送至锁相放大器（UHFLI，Zurich Instruments），并使用锁相环选项进行解调以提取相位信息。锁相放大器输出的射频信号被反馈至 IM，使驱动频率与较低频率机械模式的共振频率相匹配。测量期间，通过伺服控制器根据直流信号将探测激光锁定在光学共振斜坡上。根据机械模式的平均中心频率 f_0 以及在时间段 $f(t+\tau)-f(t)$ 内测得的频率偏差 $\sigma_A(\tau) \equiv \sqrt{(f(t+\tau)-f(t))^2}/2f_0^2$，提取阿伦偏差，其中 τ 为数据积分时间[22]。测得 σ_A 后，可根据关系式 $\delta m = 2m_{\mathrm{eff}}\sigma_A$估算 δm。

在这里，我们展示了 σ_A 和 δm 取决于用于PLL[8]的锁相放大器的解调带宽 f_b [23]。由该带宽的倒数定义的特征时间$\tau_b = （\pi f_b）^{-1}$，给出了用于评估质量分辨率的有效积分时间（$\tau \geq \tau_\mathrm{b}$）的下限；该质量分辨率反映了机械模态的频率偏差，而 σ_A 在 $\tau < \tau_\mathrm{b}$ 处则仅显示测量装置的不稳定性[23]。图4(b)显示了测得的 σ_A 及其相对于 τ 的对应 δm，对应三种典型的 τ_b[64 ms（$f_\mathrm{b} = 5$ Hz）、0.64 ms（$f_\mathrm{b} = 500$ Hz）和 6.4 μs（$f_\mathrm{b} = 50$ kHz）]。测量时，送入强度调制器的射频信号电压设为1.5 V_{PP}。结果清楚地表明，较大的 τ_b （即较小的 f_b）会使 σ_A 和 δm更小。请注意，σ_A部分沿着图4(b)中虚线所示的 $\sigma_A \propto \tau^{-1/2}$ [变化]。这种对 $\tau^{-1/2}$的依赖表明系统受白噪声主导[8)23)]，因此随着 τ增加，σ_A 和δm 会减小，这是因为较长的数据积分时间提高了信噪比。然而，过长的数据积分时间会导致不可忽略的频率漂移，并使 σ_A增大；因此，σ_A 和 δm 会在高于 τ_b的某个 τ处达到局部最小值。对于 f_b = 5 Hz，在 τ = 0.4 s [时可获得最高质量分辨率 $\delta m = （7.0 \pm 2.0） \times 10^{-16}$ g]（图4(b)）。这比此前报道的TMBR[15]小约四个数量级，甚至小于单个细菌的质量。请注意，当前采用锁相放大器的PLL装置中，可用的最小f_b 为5 Hz（即最大 τ_b 为64 ms）；再低时，系统便无法锁定相位。

我们还表明，σ_A 和 δm 取决于驱动功率；驱动越强，它们的值就越小[（图4(c)）]。这是因为驱动增强会提高信噪比，这一点也得到了三种不同射频电压下频率响应的验证[（图4(d)）]。在当前采用锁相放大器的PLL装置中，最大射频驱动电压受限于1.5 V_{PP}。因此，如上所述，最高质量分辨率处于亚飞克级。不过可以预期，未来改进测量装置并调整信噪比，将带来更高的质量分辨率。若将该装置与尺寸进一步缩小的TMBR结合，采用这种探针式腔光力学架构，便有望在液体中实现前所未有、接近阿克级的质量分辨率。

总之，我们展示了基于玻璃双微瓶谐振器的液体中腔光力学传感器，其质量分辨率达到亚飞克级。通过在微型化谐振器中采用参数优化的锁相环，实现了（7.0 ± 2.0）$\times 10^{-16}$ g 的质量分辨率，比此前报道的结果低四个数量级[15)]。这种探针式腔光力质量传感器可广泛应用于液体中的化学与生物计量学。

致谢

作者感谢 Koji Sakai、Riku Takahashi 和 Aya Tanaka 提供富有成效的讨论。本研究部分得到了 JSPS KAKENHI（21H01023）的资助。

参考文献

1) M. Aspelmeyer, T. J. Kippenberg, F. Marquardt, 《现代物理评论》86, 1391 (2014). 2) I. Favero 和 K. Karrai, 《自然·光子学》3, 201 (2009). 3) F. Liu, S. Alaie, Z. C. Leseman, 和 M. Hossein-Zadeh, Opt. Express 21, 19555 (2013). 4) M. Sansa, M. Defoort, A. Brenac, M. Hermouet, L. Banniard, A. Fafin, M. Gely, C. Masselon, I. Favero, G. Jourdan, S. Hentz, 《自然·通讯》11, 3781 (2020). 5) D. Navarro-Urrios, E. Kang, P. Xiao, M. F. Colombano, G. Arregui, B. Graczykowski, N. E. Capuj, M. Sledzinska, C. M. Sotomayor-Torres, G. Fytas, 《科学报告》11, 7829 (2021). 6) W. Yu, W. C. Jiang, Q. Lin, T. Lu, 《自然·通讯》7, 12311 (2016). 7) M. Sansa, E. Sage, E. C. Bullard, M. Gély, T. Alava, E. Colinet, A. K. Naik, L. G. Villianueva, L. Duraffourg, M. L. Roukes, G. Jourdan, S. Hentz, 《自然·纳米技术》11, 552 (2016). 8) P. Sadeghi, A. Demir, L. G. Villanueva, H. Kähler, 和 S. Schmid, 《物理评论B辑》102, 214106 (2020). 9) E. Gil-Santos, C. Baker, D. T. Nguyen, W. Hease, C. Gomez, A. Lemaître, S. Ducci, G. Leo, I. Favero, 《自然·纳米技术》10, 810–816 (2015). 10) E. Gil-Santos, J. J. Ruz, O. Malvar, I. Favero, A. Lemaître, P. M. Kosaka, S. García- López, M. Calleja, J. Tamayo, 《自然·纳米技术》15, 469 (2020). 11) S. Sbarra, L. Waquier, S. Suffit, A. Lemaître, I. Favero, 《纳米快报》22, 710 (2022). 12) K. H. Kim, G. Bahl, W. Lee, J. Liu, M. Tomes, X. Fan, T. Carmon, 《光：科学与应用》2, e110 (2013). 13) K. Han, K. Zhu, G. Bahl, 《应用物理快报》105, 014103 (2014). 14) J. Suh, K. Han, G. Bahl, 《应用物理快报》112, 071106 (2018). 15) M. Asano, H. Yamaguchi, 和 H. Okamoto, 《科学进展》8, eabq2502 (2022). 16) M. Asano, Y. Takeuchi, W. Chen, Ş. K. Özdemir, R. Ikuta, N. Imoto, L. Yang, T. Yamamoto, 《激光与光子学评论》10, 603 (2016). 17) A. J. R. MacDonald, B. D. Hauer, X. Rojas, P. H. Kim, G. G. Popowich, J. P. Davis, Phys

.

《物理评论A》93, 013836 (2016). 18) P. K. Hansma, J. P. Cleveland, M. Radmacher, D. A. Walters, P. E. Hillner, M. Bezanilla, M. Fritz, D. Vie, H. G. Hansma, C. B. Prater, J. Massie, L. Fukunaga, J. Gurley, V. Elings

,

《应用物理快报》64, 1738 (1994). 19) J. K. H. Horber, M. J. Miles, 《科学》302, 1002 (2003). 20) A Schliesser, G. Anetsberger, R Rivière, O. Arcizet, and T J Kippenberg, 《新物理学杂志》10

,

095015（2008）。

21) M. L. Gorodetksy, A. Schliesser, G. Anetsberger, S. Deleglise, T. J. Kippenberg, Opt. Express 18, 23236（2010）。22) D. W. Allan, Proc. IEEE 54, 221（1966）。23) A. Demir and M. S. Hanay, IEEE Sens. J. 20, 1947（2020）。

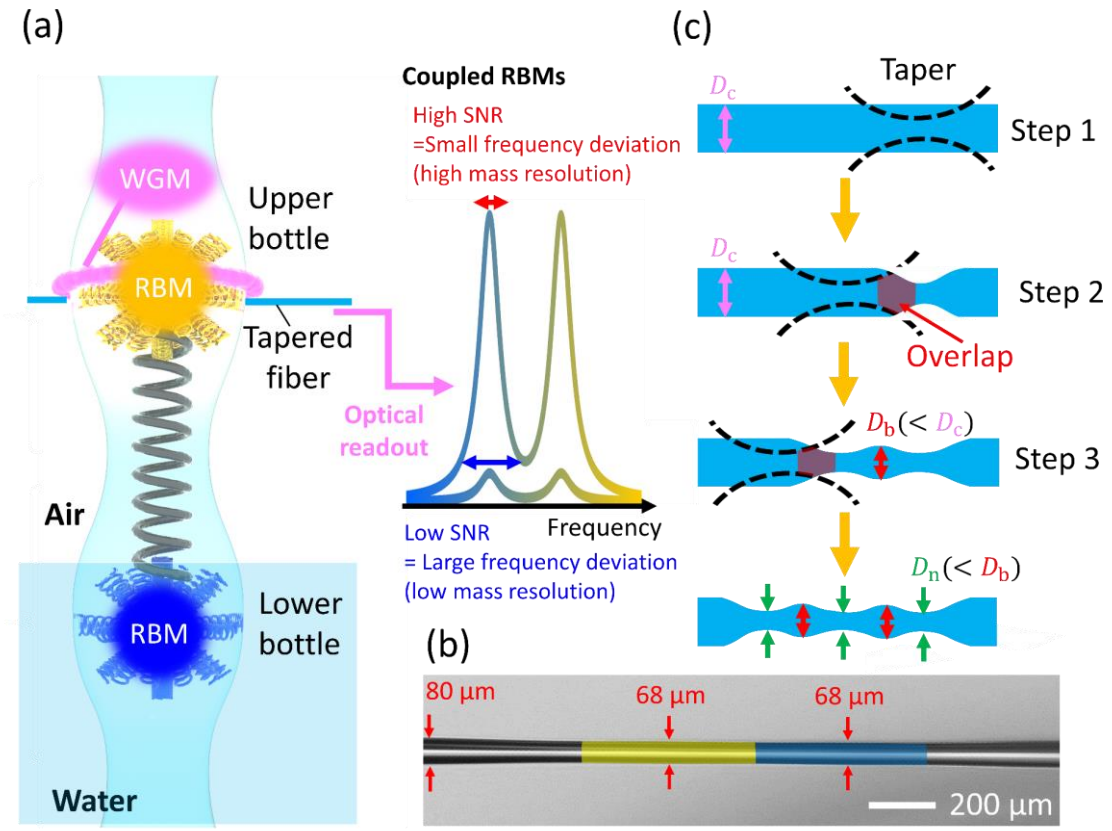


图 1。 (a) TMBR 部分浸入水中的概念示意图。机械径向呼吸模通过 TMBR 的中心颈部相互耦合。通过读取与 TMBR 接触的锥形光纤中的激光，利用上方微瓶上的辐射压力对耦合机械模式进行光学检测。(b) TMBR 的光学显微镜图像。蓝色和黄色阴影区域分别对应各个微瓶结构。(c) 使用加热拉伸法制作微型 TMBR 的流程。将两个锥形区域的末端重叠，可形成最大直径为 D_b、小于二氧化硅光纤初始直径 D_c 的微瓶结构。继续这一过程，即可形成两个通过中心颈部相连的微瓶，其直径 D_n 小于 D_b。

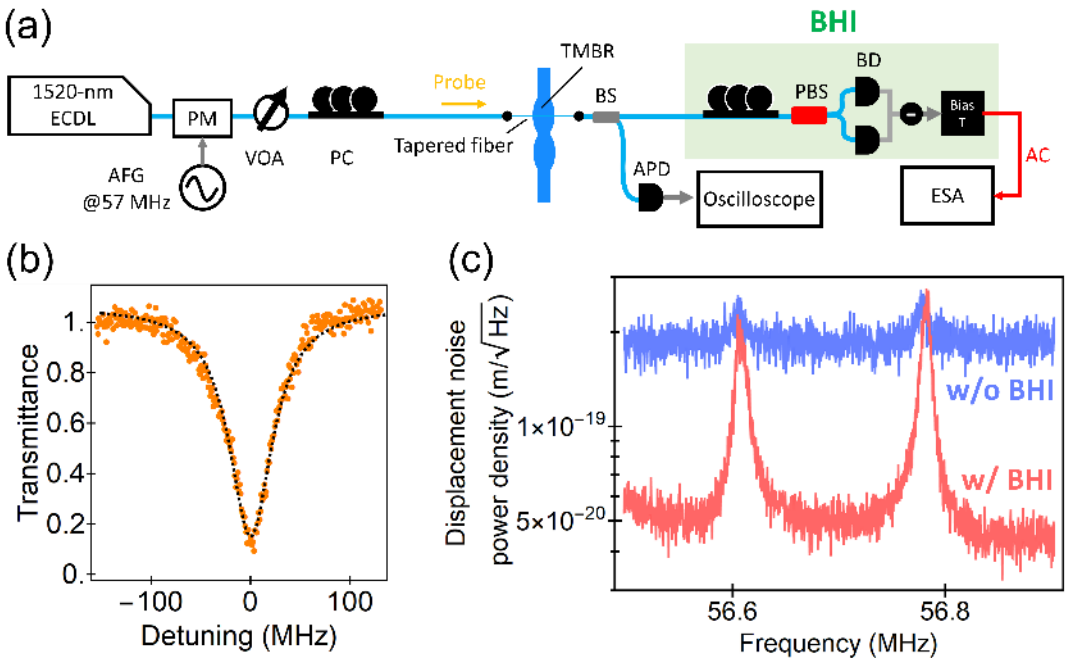


图 2 (a) 使用平衡零差干涉仪（BHI）测量空气中 TMBR 热位移噪声的装置示意图。ECDL：外腔二极管激光器。PM：相位调制器。AFG：任意函数发生器。VOA：可变光衰减器。PC：偏振控制器。BS：分束器。APD：雪崩光电二极管。PBS：偏振分束器。BD：平衡探测器。ESA：电频谱分析仪。(b) 光学回音壁模的透射谱。(c) 使用 BHI（红色）和不使用 BHI（蓝色）测得的耦合 RBW 热位移噪声功率谱。

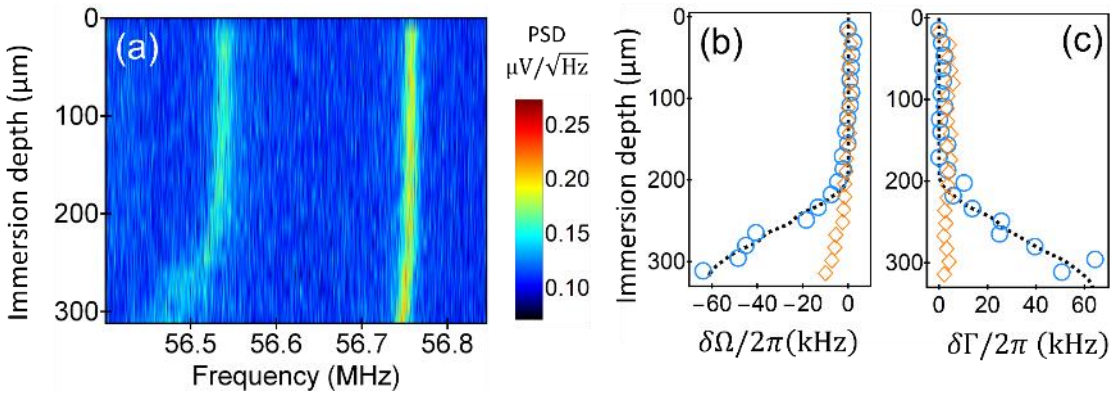


图 3 (a) 耦合RBW的热位移噪声功率谱随浸入深度的变化。(b)、(c) 频移和线宽展宽随浸入深度的变化。蓝色圆圈和橙色方块分别表示低频模式和高频模态的数值。黑色虚线为流固耦合模型的理论拟合曲线。

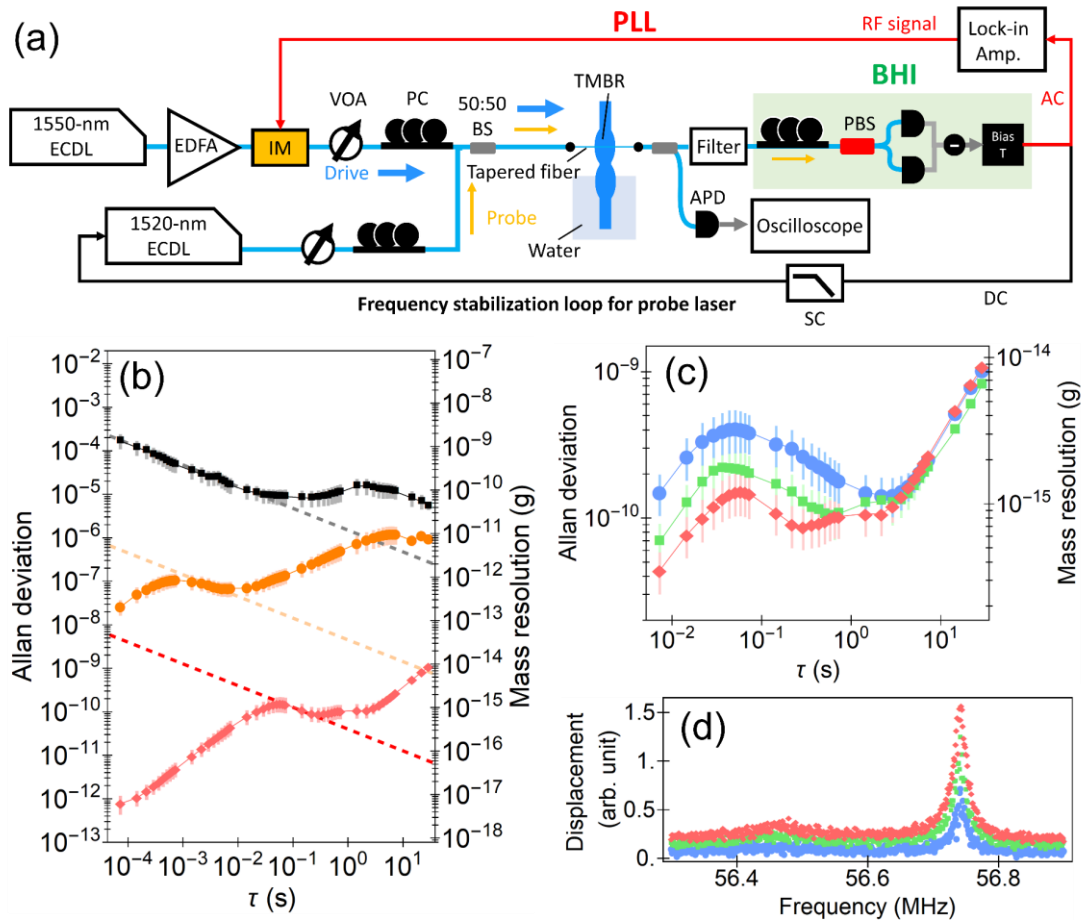


图4 (a) 使用光机械锁相环评估频率稳定性的装置示意图。EDFA：掺铒光纤放大器。IM：强度调制器。SC：伺服控制器。(b) 在驱动电压为 1.5 V_{PP}时，三个不同解调带宽（黑色方块，50 kHz；橙色圆圈，500 Hz；红色菱形，5 Hz）下，阿伦偏差及相应质量分辨率随数据积分时间 τ 的变化。误差条表示每个 τ 中阿伦偏差的标准差。虚线表示 $\tau^{-1/2}$ 依赖关系。(c) 在测量带宽为 5 Hz 时，三个不同驱动电压（蓝色圆圈，0.5 V_{PP}；绿色方块，1.0 V_{PP}；红色菱形，1.5 V_{PP}）下，阿伦偏差及相应质量分辨率随 τ 的变化。误差条表示每个 τ 中阿伦偏差的标准差。(d) 三个不同驱动电压（蓝色圆圈，0.5 V_{PP}；绿色方块，1.0 V_{PP}；红色菱形，1.5 V_{PP}）下耦合径向呼吸模的频率响应。