arXiv:2603.03255v1 [physics.optics] 3 Mar 2026

集成氮化硅微谐振器中的四次谐波紫外光产生

Alekhya Ghosh,[1,2,*] Arghadeep Pal,[1,2,*] Haochen Yan,[1,2] Toby Bi,[1,2] Luca O. Trinch˜ao,[1,3] Qixuan Zhou,[1,2] Gustavo S. Wiederhecker,[3] Shuangyou Zhang,[4] 和 Pascal Del'Haye[1,2,†]
[1] *Max Planck Institute for the Science of Light, D-91058 Erlangen, Germany*
[2] *Department of Physics, Friedrich Alexander University Erlangen-Nuremberg, D-91058 Erlangen, Germany*
[3] *Gleb Wataghin Institute of Physics, University of Campinas, Campinas, SP, Brazil*
[4] *Department of Electrical and Photonics Engineering Technical University of Denmark Kgs. Lyngby 2800, Denmark*
(日期: 2026年3月4日)

集成氮化硅（Si_3N_4）谐振器已成为非线性光子学的领先平台，但在单谐振器系统中产生紫外（UV）波长的光一直难以实现。本文首次报告了在集成 Si_3N_4 微环谐振器中观测到延伸至蓝色和紫外光谱区域的四次谐波产生。我们系统地研究了支持二次、三次和四次谐波产生的波长范围对输入功率的依赖关系，并考察了紫外区域内循环四次谐波信号随输入功率的变化。这些结果将集成 Si_3N_4 非线性光子平台的工作带宽扩展至材料透明窗口的低波长端，从而实现片上紫外频率转换。在约 400 nm 波长处产生近紫外光，将有助于在片上激发六方氮化硼中的缺陷型量子发射体，借助短波长下更大的散射截面增强拉曼光谱，并支持利用细胞内在荧光团的紧凑型荧光生物成像平台。

一、引言

在集成平台上产生可见光和紫外（UV）频段的光，对片上光钟 [1], 计量学、电信 [2, 3], 光谱学 [3], 量子信息处理 [4], 生物医学成像系统 [5], 激光显示 [6], 和量子传感 [7]至关重要。超低传播损耗、CMOS兼容制备以及宽透明窗口，使氮化硅（Si_3N_4）成为集成光子学的领先平台之一。制备技术的持续进步，造就了品质因数极高的Si_3N_4 环形谐振器 [9, 10]。这些改进使得在Si_3N_4 谐振器中产生时域腔孤子 [11], 和自发对称性破缺 [12, 13] 成为可能。这些突破共同推动了从激光雷达 [14] 和精密光谱学 [15]到大容量通信 [16]等应用的发展。

在 Si_3N_4 芯片上集成激光光源或有源介质，可实现紫外 [17], 、可见光 [18, 19]和红外 [20]光谱范围内的光产生，但这需要复杂的制造工艺。在集成式 Si_3N_4 平台中获取新频率的一种可能方法，是利用克尔非线性频率转换 [21–27]。再—

近期研究还通过克尔相互作用探索了可见波长的获取 [28], 二次谐波产生（SHG）和三次谐波产生（THG）[29–34]。此外，一种二维 10×10 微谐振器阵列已在高峰值功率脉冲泵浦条件下实现了四次谐波（FH）蓝光产生 [35]。

在本研究中，据我们所知，我们首次展示了在连续波泵浦下，利用高Q集成硅$_3$氮化硅$_4$ 谐振器通过四次谐波产生（FHG）生成紫外光。图1(a)展示了示意图：光通过适当的滤光片后，由相机观测到单个谐振器中二次谐波（SH）、三次谐波（TH）以及四次谐波信号的产生。一个正常色散谐振器在L波段接受泵浦，在不同失谐量下产生SH、TH和四次谐波信号。通过调节输入功率和泵浦频率，可以实现各种谐波产生组合，包括同时产生全部三种谐波。我们的工作将非线性光学波长转换推进至紫外波段，达到Si_3N_4 透明范围的边缘（图1(b)）。图1(c)、(d)和(e)展示了由相机捕获的散射四次谐波紫外光、三次谐波绿光和二次谐波红外光。相应SH光的光谱如图1(f)所示。我们的研究成果可用于无标记生物医学成像 [36], 光学原子钟 [37], 光学投影仪的光源、高分辨率成像

* 这些作者贡献相同
† 电子邮件：pascal.delhaye@mpl.mpg.de

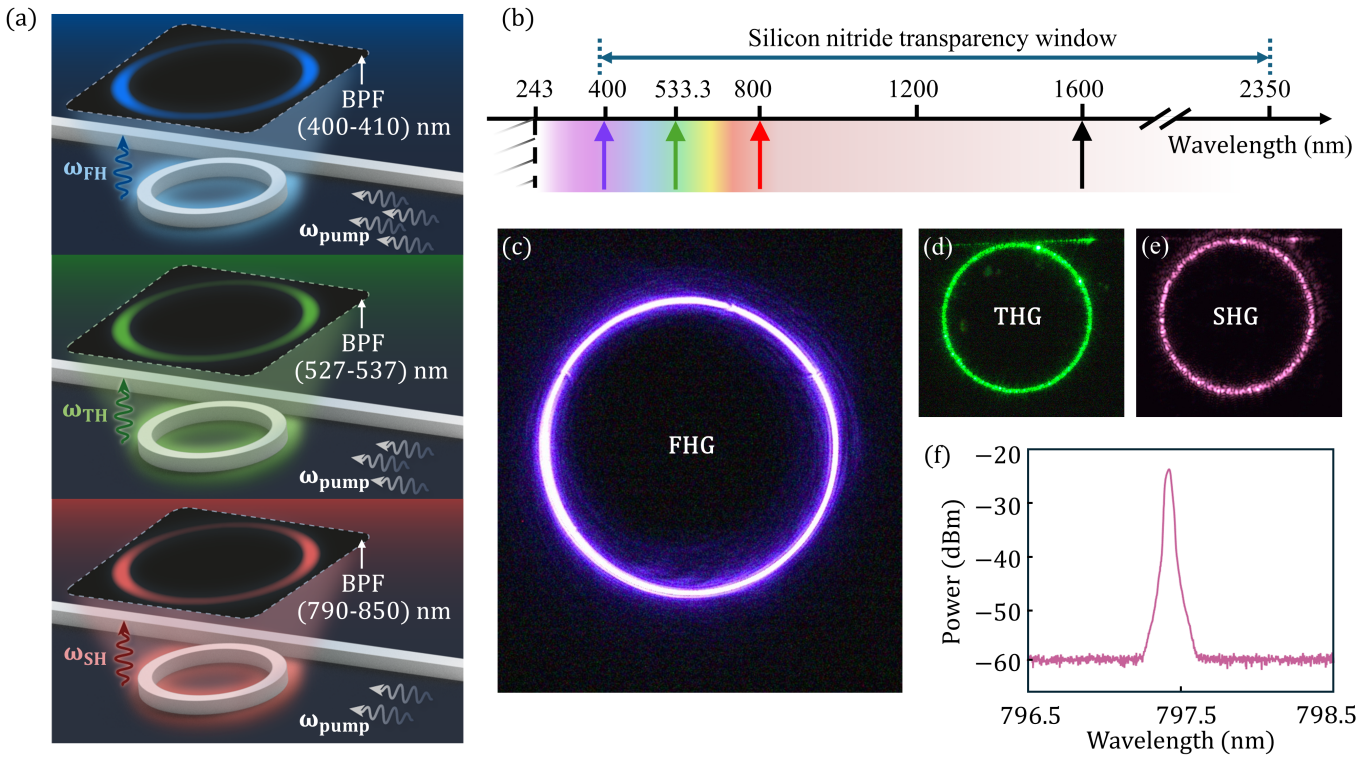


图 1. *Harmonic (second, third and fourth) generation in a single microresonator.* (a) 示意图展示了腔内产生的四次谐波（上）、三次谐波（中）和二次谐波（下）光。使用带通滤波器（BPF）后，由相机测量谐波光；滤波器的透射窗口如图所示。(b) 泵浦波长为 1595 nm 时，通过产生四次谐波信号，我们可以达到氮化硅（Si_3N_4）透明窗口的短波长边缘。尽管 Si_3N_4 的本征电子带隙对应的截止波长约为 243 nm（≈5 eV），但由带尾态和缺陷相关电子态引起的带隙以下吸收，会使沉积薄膜的实际光学透明边缘移至约 400 nm。(c) 使用带宽为 10 nm、中心波长为 405 nm 的带通滤波器，通过相机测得的四次谐波产生（FHG）图像。(d) 使用中心波长为 532 nm、带宽为 10 nm 的带通滤波器采集的三次谐波产生（THG）图像。(e) 使用通带范围为 790 nm 至 850 nm 的带通滤波器获得的二次谐波图像。(f) 二次谐波信号的光谱分析仪扫描曲线。

以及纠缠光子对 [38], 和便携式化学传感器 [39]。在集成光子学中，蓝色和紫外光还可进一步实现更紧凑的波导弯曲。

II. 结果

A. 实验装置

图2(a)展示了实验装置，其中一台可调谐连续波激光器（ECDL）经L波段掺铒光纤放大器（EDFA）放大后，通过透镜光纤耦合到集成有Si_3N_4 谐振器的芯片上。谐振器的输出光被重新耦合进入波导，再由另一根透镜光纤收集。一部分输出光被送入光谱分析仪（OSA）进行光谱分析，其余部分则送入光电探测器（PD）进行监测用示波器（OSC）。

芯片上，横截面尺寸为1 μ米（宽）××400纳米（高）的耦合波导将光耦合至半径为 100 μ米、芯层横截面尺寸为1.8 μ米（宽）××400 纳米（高）的环形谐振器中。波导和谐振器均嵌入二氧化硅中。波导与环之间的耦合间隙为500纳米。谐振器采用参考文献 [9]中详述的工艺制造。图2(b)展示了包层沉积前谐振器的扫描电子显微镜图像。谐振器的自由光谱范围为239 GHz；根据图2(c)所示、波长为1591纳米时谐振器基模TE_{00}模式的透射曲线，估算其本征品质因数为1.5百万。如图2(d)所示，谐振器对基模以及高阶TE_{10} 模式均呈正常色散。

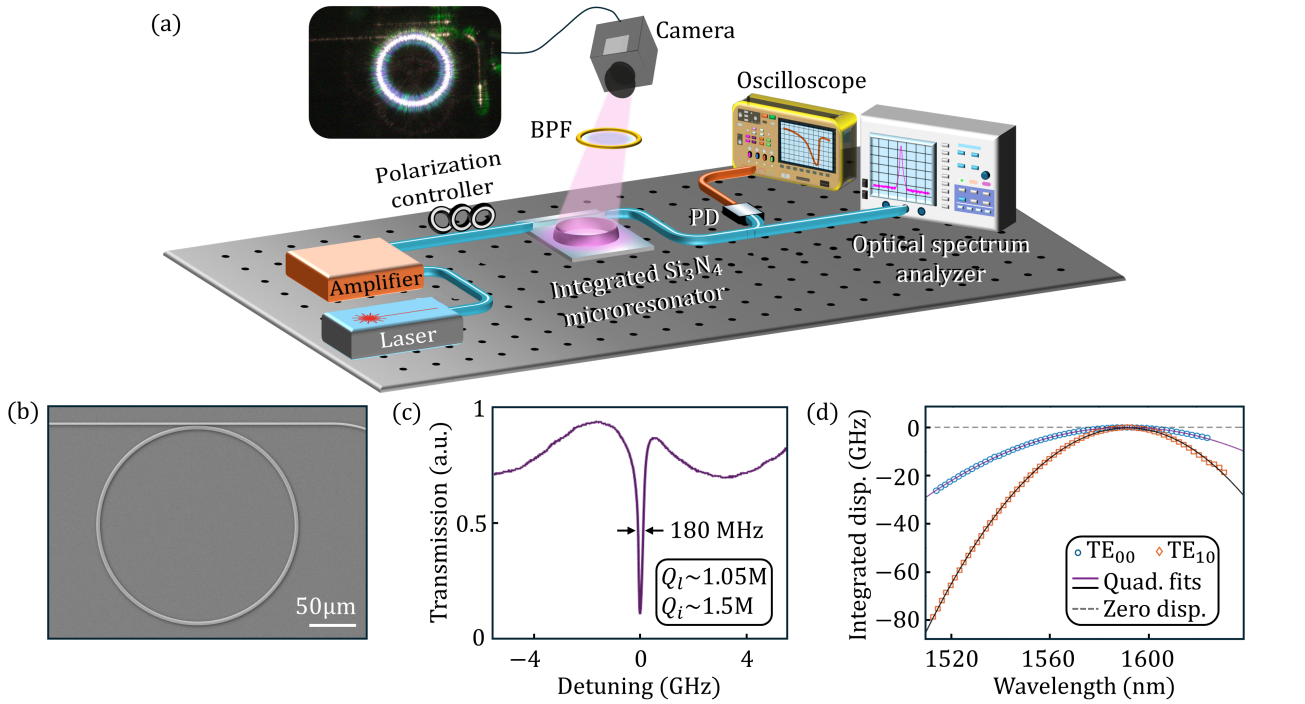


图 2. *Experimental setup and resonator characterization.* (a) 实验装置，插图为相机图像，显示了在单个 Si_3N_4 微环谐振器中同时产生全部三种谐波。PD：光电二极管，BPF：带通滤波器。(b) Si_3N_4 环形谐振器的扫描电子显微镜图像。(c) 1591 nm 处共振的透射曲线，显示其线宽和品质因数。(d) 基频和高阶空间模式的实测积分色散随波长的变化。实线表示各模式色散数据点的二次拟合，灰色虚线表示零色散线。

由于耦合波导的设计目标是在1550纳米附近实现高效耦合，随着波长减小，耦合效率逐渐降低，在二次谐波附近显著下降，在三次谐波和四次谐波信号附近则下降得更多。当谐振器以1595纳米泵浦时，仿真显示，相对于泵浦波长处的耦合，二次谐波、三次谐波和四次谐波信号从谐振器耦合至总线波导的输出耦合系数分别为4.74%（-13.24分贝）、0.0003%（-55.23分贝）和0.00005%（-63.01分贝）。因此，通过监测谐振器的向上散射光来观测三次谐波和四次谐波信号。相机垂直置于谐振器上方，配备的成像系统由放大镜筒（6.5 ×，系统数值孔径为0.006至0.142）和放大透镜（2.0 × 倍放大）组成，用于拍摄谐振器图像 [40, 41]。在谐振器与成像系统之间插入带通滤波器（BPF），以监测选定的波长范围（对应谐波信号）。监测二次谐波、三次谐波和四次谐波时，分别选用通带范围为790–850纳米、527-537纳米和400-410纳米的带通滤波器。

B. Si_3N_4谐振器中的四次谐波产生

在 1589 nm 至 1596 nm 的波长范围内，所研究的谐振器呈现出三个 TE_{00} 共振。在输入功率水平为 27.17 分贝时，我们将激光器调谐至每个共振，并记录能够通过二次谐波产生、三次谐波产生和四次谐波产生支持红光、绿光和蓝光产生的失谐量范围。我们在不同输入功率水平下记录失谐量范围。随后逐渐降低输入功率，直至观察不到明显的四次谐波产生。结果如图 3(a) 所示，不同颜色表示能够支持不同谐波产生的失谐量范围。

此阶段应注意三点。首先，尽管热三角形（由温度诱导的共振偏移形成的三角形透射曲线）的宽度会随着输入功率的增加而增大，但支持不同谐波产生的失谐量范围并不会简单地遵循这一趋势。输入功率的增加会通过热效应和交叉相位调制改变谐波附近共振的位置。这会改变促成谐波产生的相位匹配条件，如图 3 的(a-c)面板所示

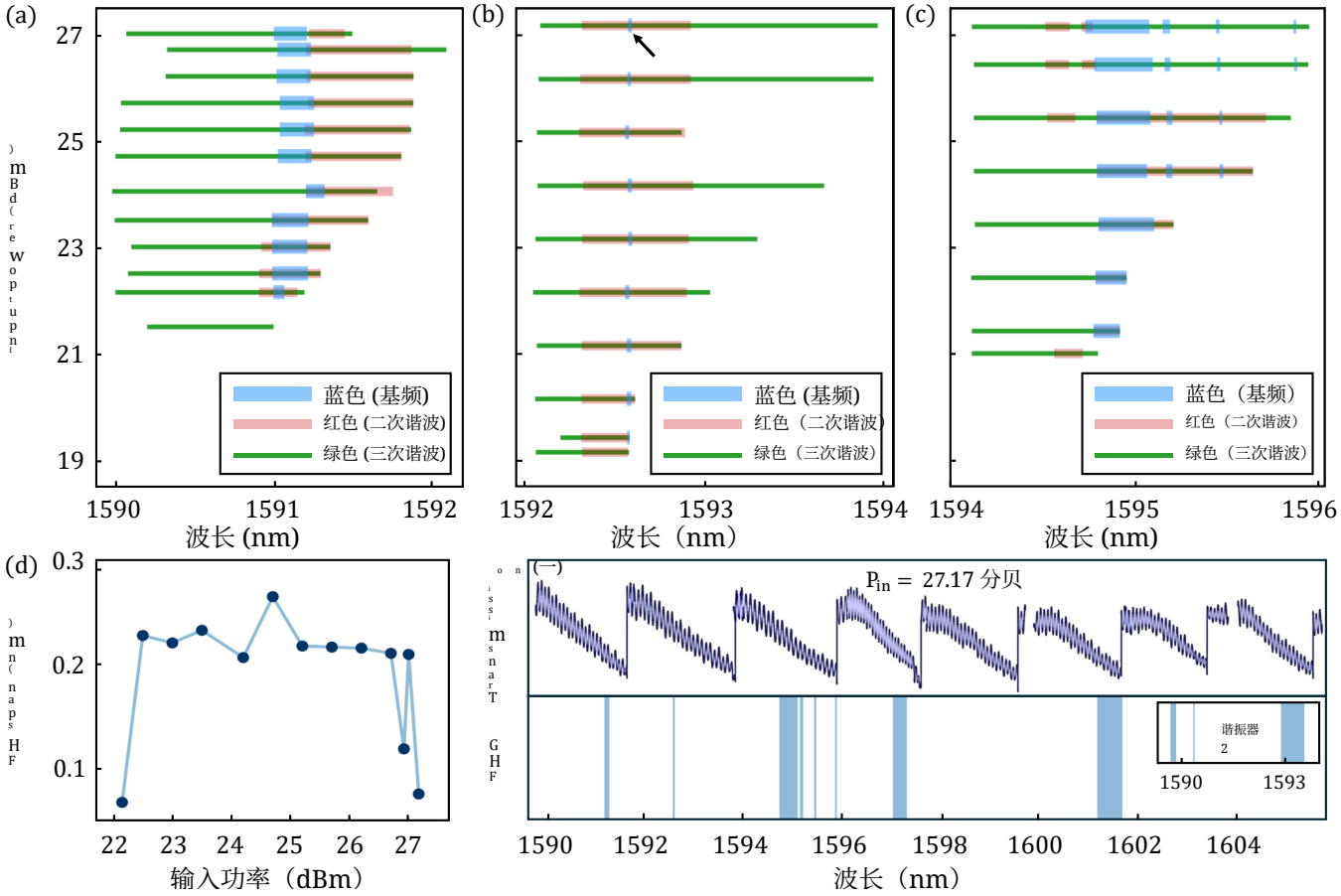


图 3. *Phase-matching regions for harmonic generation.* (a-c) 不同片上输入功率下支持二次、三次和四次谐波产生的波长范围。对应的冷腔共振分别位于 (a) 1590.05 nm、(b) 1592.07 nm 和 (c) 1594.09 nm。面板 (b) 中的黑色箭头指示了在最高输入功率下进行失谐扫描时支持四次谐波产生的区域；为清晰起见，特此标出。(d) 在接近 1590 nm 的共振处，不同输入功率下四次谐波光失谐跨度的变化。(e) 连续多个谐振腔模式的透射谱（上排）以及相应支持四次谐波产生的波长范围（下排）。下排插图显示，尽管存在制造引起的变化，另一尺寸相近的谐振器中仍可重复产生四次谐波。基频：四次谐波；三次谐波：三次谐波；二次谐波：二次谐波。

。其次，三种谐波可以同时产生、分别单独产生，或以任意两种成对产生。对于不同的输入参数组合，会满足不同的相位匹配条件；如果事先不了解谐振器在谐波频率附近的光谱特性，就很难对其进行预测或建模。在输入激光的某些不同波长区域内，可以产生 FHG，而未观察到 SH，这表明在这些区域中，FHG 并非通过级联二次谐波产生生成。第三，在单个共振中，可能存在多个彼此孤立的失谐量区段，分别支持不同的谐波产生。在某些输入功率（>24 dBm）下的波长扫描中可以看到这一点，如图 3(c)所示。

图 3(d) 显示了输入激光器的支持四次谐波产生的波长范围随输入功率的变化。可以看出，支持四次谐波产生的波长范围随输入功率呈非线性变化，这归因于不同的相位匹配条件。

图 3(e) 上图所示的 Si_3N_4 谐振器透射曲线，在片上输入功率为 27.17 分贝时，展示了对连续 8 个微谐振腔共振的扫描。下图展示了支持四次谐波产生的波长范围。插图展示了另一台设计尺寸相同的谐振器所对应的波长范围。支持四次谐波产生的频率范围之所以不同，是因为制造公差导致相位匹配条件有所差异。

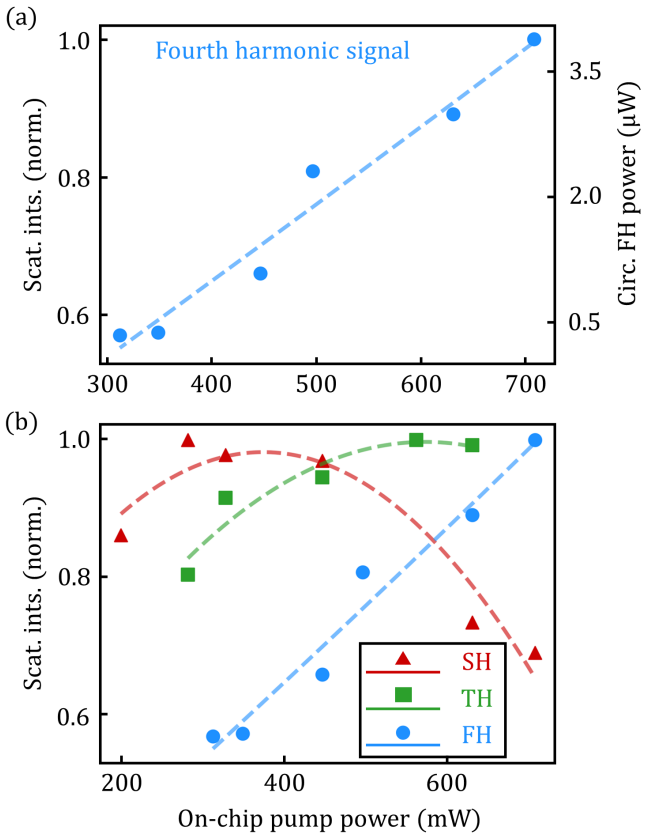


图 4. *Dependence of harmonic generation on input power.* (a) 四次谐波信号的归一化散射强度随输入功率的变化，呈现逐渐增加的趋势。谐振器内相应的腔内循环功率标示在右侧纵轴上。面板 (b) 显示了不同谐波的归一化散射光强随输入功率增加而发生的变化。

图 4(a) 显示，基频信号的归一化散射强度（以及相应的估算腔内循环功率）随输入泵浦功率的增加而增大。基频循环功率的估算方法见补充材料。图 4(b) 展示了所有产生的谐波的散射光强随片上输入功率的变化情况。输入功率增加时，二次谐波信号减弱，而基频信号增强。这可能表明能量从二次谐波信号转移至基频信号。我们以 1594.07 nm 的冷腔波长泵浦谐振器。泵浦功率增加时，共振会因热效应和克尔效应而发生偏移。因此，我们调整失谐量以使四次谐波产生过程达到最大，并在对应于四次谐波产生最大值的失谐量下记录所有谐波的数据。相比之下，三次谐波产生效率在较高功率水平下趋于饱和。这些

这些趋势表明，观测到的四次谐波产生可能源自多种非线性途径，包括高阶 $\chi^{(4)}$过程、级联 $\chi^{(2)}$ 相互作用，以及 $\chi^{(2)}$与 $\chi^{(3)}$ 非线性机制的协同作用。

C. 相位匹配与空间模式重叠

高效产生 n^{th} 谐波需要满足相位匹配，即泵浦波长和 n^{th} 谐波波长 [42, 43]处的有效折射率相匹配。在实验中，我们泵浦谐振器的 TE_{00}模式。图 5(a) 显示了基频泵浦模式（黑线所示）在 1590 nm 至 1605 nm 波长范围内的有效折射率，以及基频波长处的高阶模式。面板 (a-b) 中分别以红线和蓝线显示了二次谐波和基频波长范围内不同空间模式的有效折射率。可以看出，TE_{00}模式的有效折射率与不同谐波信号的各种空间模式的有效折射率相近。有效折射率最接近泵浦模式的模式有助于产生相应的谐波。不过需要注意的是，这些图对应冷腔条件。随着输入功率增加，热非线性和克尔非线性会引起有效折射率变化，从而显著改变相位匹配条件，并且通常会使其更容易满足 [31]。此外，改变输入激光的失谐量可以使谐波信号与不同的高阶空间模式依次实现相位匹配，如图 3(c) 中的波长扫描所示 >24dBm。图 5(b) 对比了二次谐波和基频波长范围内不同空间模式的有效折射率，表明在某些情况下，级联二次谐波产生可以实现蓝光产生。

图5(c)显示了泵浦 TE_{00}模式的模式分布，而图(d-e)则分别展示了有助于实现四次谐波产生和二次谐波产生相位匹配的模式分布。二次谐波产生和三次谐波产生的相位匹配条件及相应的模式分布见补充材料。波长越短，可用的高阶空间模式越多。因此，高阶谐波实现相位匹配的可能性也越大。然而，促成蓝光产生的另一个重要因素，是参与非线性相互作用的模式之间的空间模式重叠。泵浦模式与高次谐波模式之间的重叠会随着谐波阶数的增加而减小，

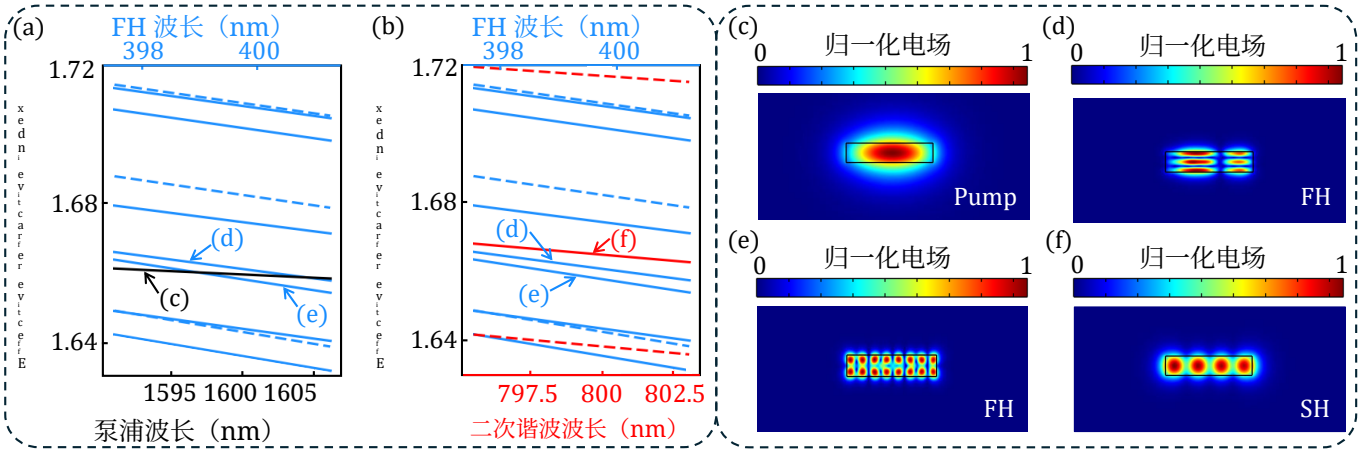


图5. *Phase-matching conditions for harmonic generation.* 面板(a)显示有效折射率随波长的变化，展示了1550纳米处可用TE模（黑色）与四次谐波（FH）处高阶模式之间的相位匹配。面板(b)展示了二次谐波与四次谐波模式之间的有效折射率匹配。实线和虚线分别表示TE模和TM模，颜色表示谐波阶数（蓝色：FH，红色：SH）。面板(c-e)展示了泵浦TE_{00} 模(c)以及相应的相位匹配模式（谐波的有效折射率接近泵浦模式）在(d-e)四次谐波和(f)二次谐波波长处的模式分布。

导致光转换效率降低 [43]。通过比较散射光图像，我们估计，在我们的谐振器中，产生的基频比二次谐波信号弱约 24 dBm。进一步进行色散工程 [44–46] 可改善空间重叠更大的模式之间的相位匹配。

三、讨论与展望

我们首次展示了在集成 Si_3N_4 平台上的单个环形谐振器中，由四次谐波诱导的蓝光产生。在对谐振器进行连续波泵浦时，可产生二次、三次和四次谐波光。通过研究所产生谐波的波长范围随泵浦功率的变化，我们识别出双重谐振（泵浦光与一个谐波）、三重谐振（泵浦光与两个谐波）和四重谐振（泵浦光与三个谐波）区域。这些观测结果表明，四次谐波产生可源于多种非线性过程的叠加，包括直接的 $\chi^{(4)}$ 相互作用、级联的 $\chi^{(2)}+\chi^{(3)}$ 过程，以及纯级联的 $\chi^{(2)}$ 相互作用。在两个尺寸相近的谐振器中均观察到可重复的四次谐波产生，尽管制造公差会导致相位匹配条件有所差异。四次谐波光的产生能够弥合电信波段与可见光波段之间的差距，将波长延伸至 Si_3N_4 透明窗口短波长边缘的紫外波段，从而为传感、光学时钟、光谱学和量子光学提供潜在应用。除本次演示外，我们未来的工作将研究在比 Si_3N_4，更短波长下透明的材料（例如氮化铝 [47] ），并通过色散工程实现更高阶谐波的产生。

数据可用性

本文所呈现结果的基础数据目前尚未公开，但在提出合理请求后可向作者获取。

致谢

AG 和 AP 对本工作作出了同等贡献。作者感谢Chekhova研究组借出带通滤波器。

本研究由 generation MQV 项目 TeQSiC、德国联邦研究、技术与航天部、量子系统项目（13N17314、13N17342）、马克斯·普朗克学会和马克斯·普朗克光子学学院资助。本研究还获得圣保罗研究基金会（FAPESP）的资助，资助项目编号为 18/15580-6、18/25339-4、21/10334-0、23/09412-1、24/15935-0、25/04049-1、25/10683-5，以及 Coordena.c˜ao

巴西高等教育人才培养协调局（CAPES）（经费代码001）。SZ和PD感谢并获得德国研究联合会项目 541267874 的支持。

[1] A. D. Ludlow、M. M. Boyd、J. Ye、E. Peik 和 P. O. Schmidt，“光学原子钟”，《现代物理评论》**87**，637–701（2015）。[2] P. H. Pathak、X. Feng、P. Hu 和 P. Mohapatra，“可见光通信、网络与传感：综述、潜力与挑战”，IEEE通信综述与教程**17**，2047–2077（2015）。[3]D. Tua、R. Liu、W. Yang、L. Zhou、H. Song、L. Ying 和 Q. Gan，“基于等离激元彩虹芯片的成像式智能光谱仪”，Nature Communications**14**，1902（2023）。[4] K. K. Mehta、C. Zhang、M. Malinowski、T.-L. Nguyen、M. Stadler 和 J. P. Home，“集成光学多离子量子逻辑”，《自然》**586**，533–537（2020）。[5] W. D. Sacher、F.-D. Chen、H. Moradi-Chameh、X. Luo、A. Fomenko、P. T. Shah、T. Lordello、X. Liu、I. F. Al-mog、J. N. Straguzzi、 *et al.*，“用于光片荧光脑成像的可植入光子神经探针”，Neurophotonics**8**，025003–025003（2021）。[6] J. Zhao、Y. Yan、Z. Gao、Y. Du、H. Dong、J. Yao 和 Y. S. Zhao，“基于有机印刷微型激光器阵列的全彩激光显示器”，Nature Communications**10**，870（2019）。[7] B. J. Lawrie、P. D. Lett、A. M. Marino 和 R. C. Pooser，“利用压缩光进行量子传感”，《ACS光子学》**6**，1307–1318（2019）。[8] C. Xiang、W. Jin 和 J. E. Bowers，“氮化硅无源与有源光子集成电路：趋势与展望”，《光子学研究》**10**，A82–A96（2022）。[9] S. Zhang、T. Bi、I. Harder、O. Ohletz、F. Gannott、A. Gu-mann、E. Butzen、Y. Zhang 和 P. Del’Haye，“用于混合集成光子的低温溅射超低损耗氮化硅”，《激光与光子学评论》**18**，2300642（2024）。[10] M. W. Puckett、K. Li u、N. Chauhan、Q. Zhao、N. Jin、H. Cheng、J. Wu、R. O. Behunin、P. T. Rakich、K. D. Nelson、 *et al.*，“具有亚MHz线宽的4.22亿本征品质因数平面集成全波导谐振器”，Nature Communications**12**，934（2021）。[11] X. Ji、X. Li、Z. Qiu、R. N. Wang、M. Divall、A. Gelash、G. Lihachev 和 T. J. Kippenberg，“无铜光子集成电路中的确定性孤子微梳”，《自然》**646**，843–849（2025）。[12] Y. Zhang、S. Zhang、A. Ghosh、A. Pal、G. N. Ghalanos、T. Bi、H. Yan、H. Zhang、Y. Zhuang、L. Hill、 *et al.*，“基于微谐振器中克尔对称性破缺的集成光开关”，《光子学研究》**13**，360–366（2025）。[13]L. O. Trinch˜ao、A. Ghosh、A. Pal、H. Yan、T. Bi、S. Zhang、N. B. Tomazio、F. K. Kunst、L. Hill、G. S. Wiederhecker、 *et al.*，“非线性光学微腔中的颜色对称性破缺”，arXiv 预印本 arXiv:2601.00792（2026）。[14]P. Trocha、M. Karpov、D. Ganin、M. H. Pfeiffer、A. Kordts、S. Wolf、J. Krockenberger、P. Marin-Palomo、C. Weimann、S. Randel、 *et al.*，“利用微谐振器孤子频率梳实现超快光学测距”，Science**359**，887–891（2018）。[15] A. Dutt、C. Joshi、X. Ji、J. Cardenas、Y. Okawachi、K. Luke、A. L. Gaeta 和 M. Lipson，“片上双梳光源用于光谱学”，Science Advances**4**，e1701858（2018）。[16] J. Pfeifle、V. Brasch、M. Lauermann、Y. Yu、D. Wegner、T. Herr、K. Hartinger、P. Schindler、J. Li、D. Hillerkuss、*et al.*，“利用微谐振器克尔频率梳实现相干太比特通信”，Nature Photonics**8**，375–380（2014）。[17]C. Franken、W. Hendriks、L. Winkler、M. Dijkstra、A. do Nascimento Jr、A. van Rees、M. Mardani、R. Dekker、J. van Kerkhof、P. van der Slot、 *et al.*，“采用深紫外 Al_2O_3 平台的混合集成近紫外激光器”，arXiv 预印本 arXiv:2302.11492（2023）。[18] M. Corato-Zanarella、A. Gil-Molina、X. Ji、M. C. Shin、A. Mohanty 和 M. Lipson，“从近紫外到近红外波长的宽调谐范围窄线宽芯片级激光器”，Nature Photonics**17**，157–164（2023）。[19] L. V. Winkler、K. Gerritsma、A. Van Rees、P. P. Schrinner、M. Hoekman、R. Dekker、A. R. do Nascimento Jr、P. J. Van der Slot、C. N¨olleke 和 K.-J. Boller，“637 纳米宽调谐范围窄线宽混合集成二极管激光器”，Optics Express**32**，29710–29720（2024）。[20]J. Yang、K. Van Gasse、D. M. Lukin、M. A. Guidry、G. H. Ahn、A. D. White 和 J. Vu˘ckovi´c，“钛宝石绝缘体上集成激光器和放大器”，《自然》**630**，853–859（2024）。[21] X. Lu、A. Chanana、F. Zhou、M. Davanco 和 K. Srini- vasan，“用于获取红外光的光子晶体微环克尔光学参量振荡”，Optics Letters**47**，3331–3334（2022）。[22] J. Stone、D. Westly、G. Moille 和 K. Srinivasan，“通过集成加热增强频率调谐与控制的片上克尔参量振荡”，Optics Letters**49**，3118–3121（2024）。[23] Q. Li、M. Davan˙co 和 K. Srinivasan，“利用硅纳米光子学实现高效、低噪声的单光子级频率转换接口”，Nature Photonics**10**，406–414（2016）。[24]Y. Sun、J. Stone、X. Lu、F. Zhou、J. Song、Z. Shi 和 K. Srinivasan，“推动片上克尔光学参量振荡迈向相干应用——

涵盖绿色缺口的相干应用”，Light: Science & Applications**13**，201（2024）。[25]E. F. Perez、G. Moille、X. Lu、J. Stone、F. Zhou 和 K. Srinivasan，“硅芯片上的高性能克尔微谐振器光学参量振荡器”，Nature Communications**14**，242（2023）。[26]S. Raghunathan、R. Oliver、Y. Zhao、K. J. McNulty、C. Joshi、M. Lipson 和 A. L. Gaeta，“ 氮化硅芯片上的电信波段至可见光量子频率转换器”，Optica Quantum**3**，329–334（2025）。[27] A. Pal、A. Ghosh、S. Zhang、T. Bi、M. Kheyri、H. Yan、Y. Zhang 和 P. Del’Haye，“光子集成电路中的混合非线性效应”，arXiv 预印本 arXiv:2505.01352（2025）。[28]M. Corato-Zanarella、X. Ji、A. L. Gaeta 和 M. Lip- son，“利用倍频程跨度红外频率梳同时在芯片上生成紫、蓝、青、绿、黄、橙和红光”，Optics Express**33**，14581–14590（2025）。[29] Z. Yuan、J. Ge、P. Liu、B. Li、M. Li、J.-Y. Liu、Y. Yu、H.-J. Chen、J. Bowers 和 K. Vahala，“面向绿色缺口的高效波长可调谐二次谐波产生”，Science Advances**11**，eadw2781（2025）。[30] J. S. Levy、M. A. Foster、A. L. Gaeta 和 M. Lipson，“氮化硅环形谐振器中的谐波产生”，Optics Express**19**，11415–11421（2011）。[31] X. Lu、G. Moille、A. Rao、D. A. Westly 和 K. Srini- vasan，“氮化硅光子学中的高效光诱导二次谐波产生”，Nature Photonics**15**，131–136（2021）。[32] B. Li、Z. Yuan、W. Jin、L. Wu、J. Guo、Q.-X. Ji、A. Fe- shali、M. Paniccia、J. E. Bowers 和 K. J. Vahala，“通过高Q值氮化硅谐振器中的自注入锁定二次谐波产生，实现高相干混合集成780纳米光源”，Optica**10**，1241–1244（2023）。[33] C. A. Franken、S. S. Ghosh、C. C. Rodrigues、J. Yang、C. J. Xin、S. Lu、D. Witt、G. Joe、G. Wiederhecker、K.-J. Boller， *et al.*，“利用侧壁极化铌酸锂实现毫瓦级紫外光生成”，arXiv 预印本 arXiv:2503.16785（2025）。[34]A. A. Sayem、Y. Wang、J. Lu、X. Liu、A. W. Bruch 和 H. X. Tang，“利用铌酸锂非线性光子学实现高效、可调谐蓝光生成”，Applied Physics Letters**119** （2021）。[35]M. J. Mehrabad、L. Xu、G. Moille、C. J. Flower、S. Sarkar、A. Padhye、S.-C. Ou、D. G. Su´arez-Forero、M. Ghafariasl、Y. Chembo， *et al.*，“面向高产率非线性光子学的多时间尺度频率相位匹配”，Science**390**，612–616（2025）。[36]H. Sparks、S. Warren、J. Guedes、N. Yoshida、T. C. Charn、N. Guerra、T. Tatla、C. Dunsby 和 P. French，“ 采用蓝色激发的灵活宽视场荧光寿命成像内窥镜组织无标记对比用的……光”，生物光子学杂志**8**, 168–178 (2015).[37]S. A. King, L. J. Spieß, P. Micke, A. Wilzewski, T. Leopold, E. Benkler, R. Lange, N. Huntemann, A. Surzhykov, V. A. Yerokhin, *et al.*, “基于高电荷离子的光学原子钟”，《自然》**611**, 43–47 (2022).[38] K. Edamatsu, G. Oohata, R. Shimizu, and T. Itoh, “半导体中紫外纠缠光子的产生”，《自然》**431**, 167–170 (2004).[39] X. Liu, A. W. Bruch, J. Lu, Z. Gong, J. B. Surya, L. Zhang, J. Wang, J. Yan, and H. X. Tang, “非中心对称晶体波导中跨越超过 100 THz 的紫外频率梳”，Nature communications**10**, 2971 (2019).[40] H. Yan, A. Ghosh, A. Pal, H. Zhang, T. Bi, G. Ghalanos, S. Zhang, L. Hill, Y. Zhang, Y. Zhuang, *et al.*, “微谐振器中驻波图样的实时成像”，美国国家科学院院刊**121**, e2313981121 (2024).[41] H. Zhang, H. Yan, A. Ghosh, S. Zhang, T. Bi, Y. Zhang, L. Hill, J. Xavier, A. Pal, Y. Zhuang, *et al.*, “微谐振器中非线性光学的可视化”，arXiv 预印本 arXiv:2507.05450 (2025).[42] J. H. Soares, L. Fujii dos Santos, F. G. Santos, M. Inga, Y. A. Espinel, G. S. Wiederhecker, and T. P. M. Alegre, “二氧化硅楔形谐振器中的三次谐波产生”，Journal of the Optical Society of America B**40**, 1407–1412 (2023).[43] M. Rehan, N. B. Tomazio, A. R. Cadore, D. F. Londono-Giraldo, D. A. Matos, G. S. Wiederhecker, and C. J. de Matos, “与 MoS_2 单层集成的氮化硅波导中的二次谐波产生：全矢量建模的重要性”，arXiv 预印本 arXiv:2501.10575 (2025).[44]A. Pal, A. Ghosh, S. Zhang, T. Bi, and P. Del’Haye, “机器学习辅助的微谐振器逆向设计”，Optics Express**31**, 8020–8028 (2023).[45] M. Kheyri, S. Zhang, T. Bi, A. Pal, H. Zhang, Y. Zhang, A. Alabbadi, H. Yan, A. Ghosh, L. Hill, *et al.*, “通过分段侧壁调制实现片上微谐振器色散工程”，《光子学研究》**13**, 367–372 (2025).[46] N. B. Tomazio, L. O. Trinch˜ao, E. S. Goncalves, L. F. dos Santos, F. G. Santos, P. F. Jarschel, T. P. M. Alegre, and G. S. Wiederhecker, “耦合微谐振器中的可调谐简并光学参量振荡”，《ACS光子学》**12**, 227–235 (2024).[47]H. Yan, S. Zhang, A. Pal, A. Gosh, A. Alabbadi, M. Kheyri, T. Bi, Y. Zhang, I. Harder, O. Lohse, *et al.*, “适用于低损耗集成光子学和非线性光学的简化氮化铝工艺”，arXiv 预印本 arXiv:2506.22595 (2025).

补充信息

附录 S1：基于测得的二次谐波数据估算四次谐波功率

首先使用光谱分析仪（OSA）测量产生的二次谐波（SH）信号。同时，使用带通滤光片（BPF）和相机监测上散射光。相机记录的总强度根据二次谐波波长处的相机增益进行归一化。通过模拟谐振器到总线波导的输出耦合效率，估算谐振器内的二次谐波腔内循环功率。图 S1 显示，二次谐波腔内循环功率与归一化散射强度呈线性关系。拟合直线的斜率 m_0 用作转换因子，据此可根据单位归一化散射强度估算腔内循环功率。

随后，使用 405 ± 5 nm 带通滤波器（BPF）和相机记录散射的四次谐波（FH）信号。与二次谐波（SH）情况相同，采集到的强度按相机增益进行归一化。假设散射光源自瑞利散射，其散射强度按 $(1/\lambda^4)$ 缩放，则认为谐振器内单位循环 FH 功率对应的归一化散射强度是二次谐波信号的 16 倍。二次谐波信号的散射强度采用相同的缩放因子 m_0转换为循环功率。

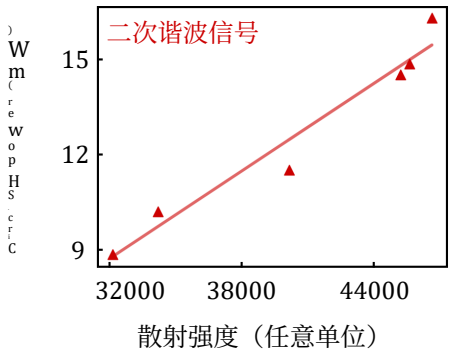


图 S1. 谐振器内二次谐波信号的腔内循环功率随散射强度的变化关系；测量时所用泵浦模式的冷腔共振波长为 1594.07 nm。

附录 S2：二次和三次谐波的相位匹配

图 S2(a) 和 (c) 分别展示了泵浦波长处基模的有效折射率与二次谐波和三次谐波波长处高阶模式有效折射率之间的重叠情况。黑色曲线表示波长范围为 1590–1605 nm 的基频泵浦模式的有效折射率。红色曲线表示二次谐波波长附近的有效折射率，绿色曲线则表示三次谐波波长附近的有效折射率。实线表示横向电模式，虚线表示横向磁模式。低功率下，泵浦模式的有效折射率与谐波波长处高阶模式的有效折射率较为接近。随着功率增大，热效应和克尔效应会导致共振发生偏移，从而提高实现相位匹配的可能性，并使谐波信号得以产生。SH 和 TH 模式的空间分布如图 S2(b) 和图 S2(d) 所示；这些模式在相应波长附近的有效折射率与泵浦波长处基模的有效折射率较为接近（分别如红色和绿色箭头所示）。

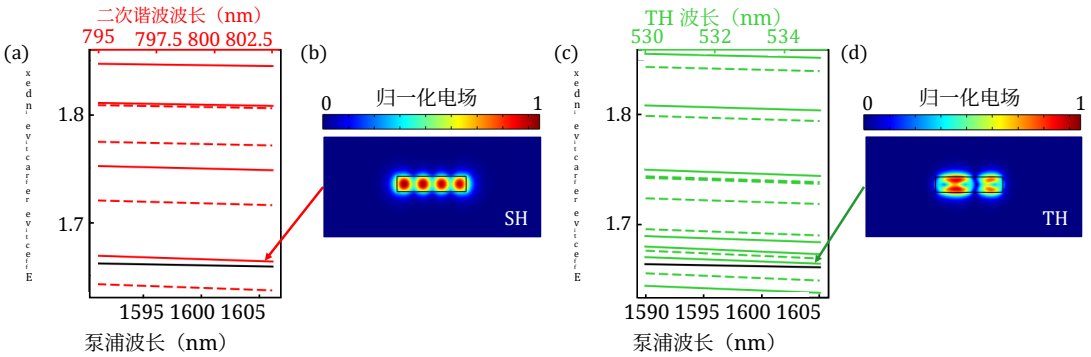


图 S2. 泵浦 TE_{00} 模式与高阶模式在 (a) 二次谐波（红色）波长和 (c) 三次谐波（绿色）波长处的相位匹配。实线表示横向电模式，虚线表示横向磁模式。(b) 和 (d) 展示了有助于实现相位匹配的二次谐波和三次谐波模式的相应空间模式分布。