热量降低：铒掺杂微腔谐振器

Nitzan Shani[1], Bar Favelukis[1], Menachem Guttman[1],
Pavel Sidorenko[2], Raz Gvishi[1], Tal Carmon[1]

[1] 以色列特拉维夫大学电气工程学院，特拉维夫 *6997801*，以色列
[2] 以色列理工学院安德鲁与厄娜·维特比电气与计算机工程学院，海法 *3200003*，以色列

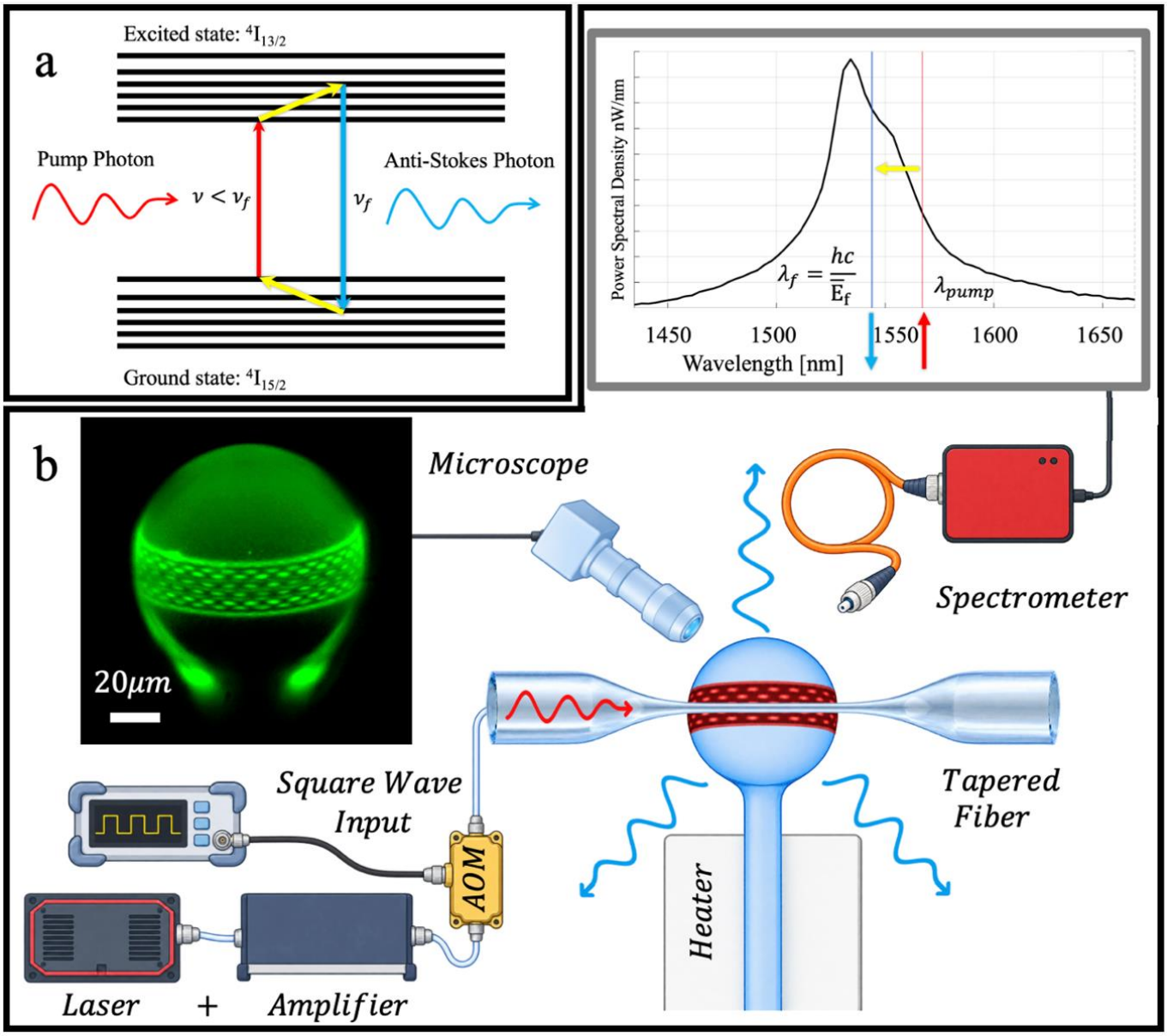


图1. 实验装置。**a**。基于 Bahae 和 epstein[1]，描述基态 $^4I_{15/2}$ 到激发态 $^4I_{13/2}$的跃迁。多条线表示能级内的斯塔克子能级。泵浦（红色）跃迁后产生能量更高的荧光光子（蓝色），跃迁过程以黄色表示。**b**。在实验装置中，声光调制器将放大的 1560nm 方波信号输入谐振器。信号经过 3 次光子上转换后发射出绿光光子（左侧）。浸入 Er^{+3} 溶胶-凝胶中的谐振器放置在热电制冷板上，其温度可从 25 调节至 62°C。光谱仪测量功率谱密度。黑色光谱是 3 次不同重复测量的平均值；每次测量均连续测得 1000 个光谱。在光谱中，显示了与 (a) 中相同的过程：泵浦（红色）、跃迁（黄色）和平均发射能量（蓝色）。

1. 引言

当平均荧光光子携带的能量高于所吸收泵浦光子的能量时，反斯托克斯荧光可以从光激发材料中移除热能。在 Epstein 等人首次展示固体中的净冷却之后[1], , Epstein 和 Sheik-Bahae 随后讨论了光学制冷的原理及其实现方式[2] 。此后，荧光制冷和热量减少在稀土掺杂光纤中得到讨论和展示，这些光纤还可用作辐射平衡放大器[3,4], 以及基于腔的系统[5,6] 。人们还研究了通过荧光实现的激光制冷，其对象是涂覆纳米颗粒的回音壁模式（WGM）微球[7] 。

在谐振腔中，泵浦光通过反复穿过制冷介质来增强泵浦吸收。早期实现方案包括将布儒斯特角切割的镱掺杂 ZBLAN 玻璃置于激光谐振腔内，以及将镀膜的 ZBLAN 样品置于双镜增强腔中 [1,6,8] 。它们的光学损耗包括镜面损耗、散射和残余界面反射，其中包括偏离理想布儒斯特角工作的影响。回音壁模式微谐振器提供了另一种方案，其中循环光通过介电边界处的全内反射得到限制。

受冷却的谐振器会通过微腔谐振器的表面从温度更高的周围环境中吸收热量。在讨论微型谐振器时，这里存在一个权衡。缩小谐振器会同时减小其表面积和体积，但由于表面积按 [m2] 缩放，而体积按 [m3] 缩放，体积的减小速度更快。一旦谐振器处于净冷却状态，尺寸更小的器件因此可能面临更大的单位体积环境热负荷。

本文评估了直径约为 100 μm、涂覆铒$^{+3}$掺杂溶胶–凝胶的二氧化硅回音壁模式微谐振器实现荧光制冷的潜力。我们研究了发射光谱及其对泵浦波长和外部控制温度的依赖性。我们引入高阶模式，这些模式由径向、方位角和极（轴向）模式数表征，可覆盖更大的体积，从而降低谐振器中的热量。研究范围超越狭窄的赤道环。特别是，较高的径向阶数和极阶数会产生不同的空间激发分布。必须通过评估这些分布与掺杂涂层的重叠程度及其光学损耗，来确定其潜在的冷却益处。

2. 实验装置与方法

我们研究了在约 1.55 μm 波长处进行光激发时，回音壁微谐振器上 $Er3^{+}$ 掺杂溶胶-凝胶涂层的荧光。图1(a)示出了相关的 $^{4}I_{15/2}$ 和 $^{4}I_{13/2}$ 能级组。由热占据的斯塔克子能级激发后，可能产生荧光，其平均光子能量高于泵浦光。图1(b)展示了光路、从谐振器发出的 3 光子上转换图像，以及测得的近红外荧光光谱。

2.1 铒掺杂微球制备

106 μm 直径的二氧化硅球上的掺铒溶胶-凝胶薄膜采用与 Yang 等人 [3], 所用方法类似的方式制备，但进行了部分修改。通过在乙醇中用水水解正硅酸四乙酯（TEOS）制备溶胶-凝胶溶液，TEOS：水：乙醇的摩尔比为 1：2：4。使用盐酸（HCl）作为溶胶-凝胶反应的酸催化剂。通过加入预先溶解在 HCl/水溶液中的乙酸铒（III）水合物，引入 $Er3^{+}$ 离子。对于本文所述的谐振器，乙酸铒（III）水合物：水：32%（w/w）HCl 的质量比为 8.27：7.0：4.7，使溶液中的 $Er3^{+}$ 离子浓度达到 1.0×10 21 ions $cm^{-}3$。TEOS 和乙醇混合 1 小时。随后逐滴加入 Er/HCl/水溶液，并继续搅拌 2 小时。将溶液置于密封小瓶中水解至少 24 小时后再进行涂覆。将光纤上的二氧化硅球浸入溶胶-凝胶溶液中数秒，然后迅速取出。涂覆后的球体在低湿度氮气容器中于室温下干燥约 2 天。最后使用两个 0.1 秒的电弧等离子体脉冲进行干燥，将溶胶-凝胶涂层烧结到二氧化硅上。考虑到干燥过程中约 1.5 的估计体积收缩因子，最终溶胶-凝胶薄膜中的 $Er3^{+}$ 浓度估计为 1.5×10 21 ions $cm^{-}3$。

2.2 光学装置与温度控制

在运行整个实验系统之前，测得谐振器的品质因数为 $Q \approx 2 \cdot 10^{5}$ 1550 ，对应波长为 nm。放大可调谐激光器发出的光经声光调制器（AOM）调制后，从一级出射端输出，并通过锥形光纤耦合至谐振器。在锥形光纤处测得的光功率约为 20 mW。声光调制器（AOM）以 20 Hz 运行，占空比为 64%，以该频率开启和关闭泵浦光。透过锥形光纤的光被送入光电探测器，同时显微镜对激发的谐振器模式进行成像。一根芯径为 600 μm 的多模光纤收集荧光并将其传送至光谱仪，光谱仪覆盖范围为 $850 - 1700\ nm$。光谱仪分辨率为 $5.46 \pm 0.86 nm$ $(mean \pm SD)$。谐振器安装在温控平台上。我们将平台设定点设在 25 至 62 °C 之间，并在分析中采用测得的谐振器温度。

2.3 光谱采集与背景扣除

对于每次测量，我们进行了三次独立运行，每次连续采集1000个光谱。泵浦的光谱单独测量，并在图1(b)中以红色竖线表示。在声光调制器信号完全关闭后，经过 200 μsec 延迟才采集荧光光谱，从而使谐振器内的泵浦衰减。由于Er^{+3} 激发态寿命为 10 $msec$，我们将测量积分时间设为 10 $msec$。此外，还预先采集了1000个光谱以测量暗电流。

此外，积分区间由信号降至其峰值的 1% 时所对应的波长界定。

2.4 平均荧光光子能量

根据最终光谱的形式，我们将平均发射光子能量定义为：

1) $\overline{E}_f = \frac{\int h\nu_f \cdot S_{emission}(\nu_f)}{\int S_{emission}(\nu_f)}$ ； $\nu_f = \frac{c}{\lambda_{meas}}$

图1(b)中的蓝色竖线标记了 λ_f。泵浦波长 λ_{pump} 是通过独立测量泵浦光谱获得的。

3. 结果

图1(b)显示了$Er3^+$-掺杂谐振器的荧光光谱以及独立测量得到的泵浦波长。所得发射光谱显示，在泵浦波长左侧的强度呈升高趋势。蓝线标记了式（1）定义的平均荧光波长，红线标记了泵浦波长。

3.1 模式相关荧光图样

图2显示了激发同一$Er3^+$-涂覆微球的不同谐振时获得的可见发射图样。空间发射图样会随被激发的谐振而变化。

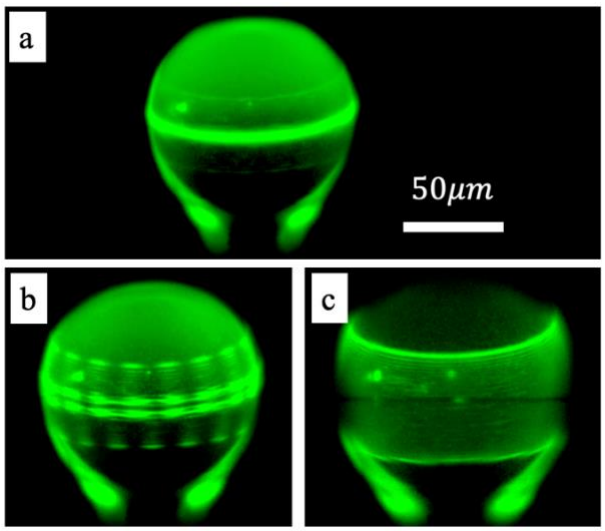


图 2. 实验结果，荧光模式映射：不同模式的空间图案。照片 (a)-(c) 是在 1565 至 1570nm 之间的不同波长下拍摄的。每张照片均由同一模式的 5-7 张照片取平均合成。

3.2 荧光光谱与能量分析

接下来，我们比较泵浦两侧的光谱贡献，针对 $\lambda_{pump} = 1568.05\,nm$。图 3(a) 显示荧光功率谱密度，并根据公式 2.1 和多模光纤的数值孔径，将其缩放 25.25 倍：

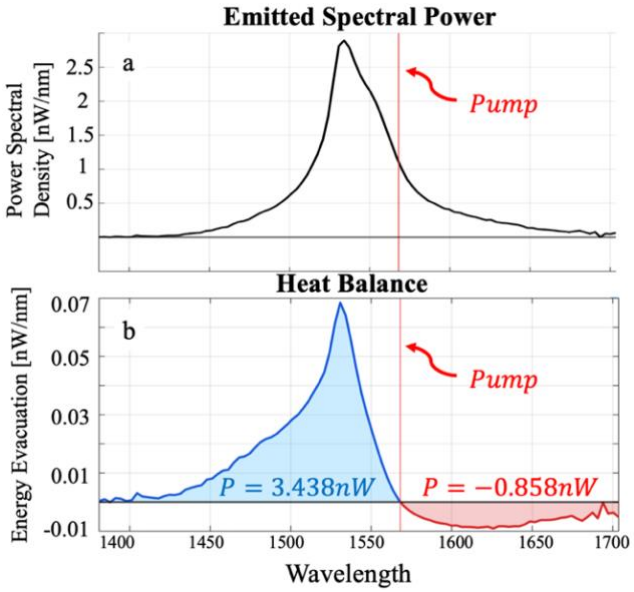


图 3. 实验结果：离开谐振器的总功率可视化。a。离开谐振器的总功率，红线表示 1568.05nm 处的泵浦。由于多模光纤的数值孔径只能覆盖谐振器发出的荧光的 3.96%，因此将原始测量光谱乘以 25.25。**b.** 将测量光谱中的每个频率与泵浦频率进行比较。高于泵浦频率时，离开谐振器的能量多于输入的能量（蓝色）；低于泵浦频率时，离开的能量少于输入的能量（红色）。在泵浦波长处，输入功率等于输出功率。测得离开谐振器的总功率为 $2.58nW$

2)

2.1) $$S_{\lambda,total} = \frac{4\pi r^2}{\int_{\theta=0}^{NA}\int_{\varphi=0}^{360} r^2 sin\theta\, d\varphi d\theta} \cdot S_{\lambda,detected}$$

$$= 25.25 \cdot S_{\lambda,detected}$$

图 3(b) 根据光谱各部分与泵浦之间归一化的 $\Delta\nu$ 差值对其加权：

2.2) $$25.25 \cdot \frac{\nu - \nu_p}{\nu_p}$$

对图 3(b) 进行积分即可得到功率。蓝色区域和红色区域分别给出 +3.438 nW 和 -0.858 nW，其总和为 +2.580 nW。蓝色贡献占主导表明，检测到的荧光包含额外光子能量分量。

3.3 荧光的温度依赖性

为考察荧光的温度依赖性，我们将泵浦固定在 1565 nm，并在 25 至 62 °C 之间选取五个温度控制器设定点改变温度。图4显示，荧光发射光子的平均能量随着基底温度的升高而增加。线性拟合得到斜率 8.23 $\mu eV\ °C^{-}1$，且 ($R^2 = 0.9589$)。误差棒表示每个温度下三次重复测量的标准差。该结果描述了荧光光谱对外部加热的响应。

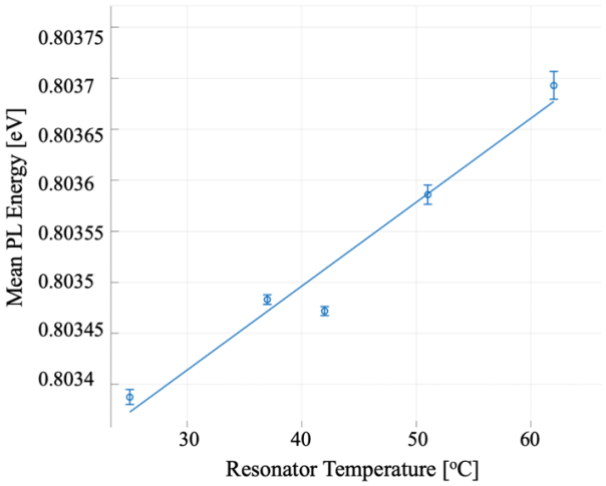


图4. 光致发光能量随谐振器温度的变化。在单一泵浦波长 1565 nm 下，测量了从 25 到 62°C 的 5 个不同温度。图1中提到的 3 次重复测量在每个温度下均显示了标准差。对测量结果拟合得到一条斜率为 8.23 μeV/°C、$R^2 = 0$ 为 0.9589 的线性图。

3.4 泵浦波长依赖性

最后，我们改变泵浦波长，以确定测得的光谱响应在哪些条件下更为理想。利用 [3]，中理论上的 $Er3^+$ 吸收光谱和发射光谱，我们首先计算发射光谱的平均能量及其对应波长。然后，根据公式 3 计算基于吸收加权的理论图：

3) $\left(\overline{E}_{emission} - E_{pump}\right) \cdot \sigma_{absorption}$

图5(b)显示了整个波长范围内计算得到的响应，其最大值出现在 1562.65 nm。图 5(a) 比较了理论模型与同一谐振器在 1550 − 范围 1570 nm 内的实验测量结果。蓝色理论曲线可能与实验测量结果吻合良好，其误差棒取自 3 次重复测量。因此，在这些实验条件下，针对所指定的光谱品质因数，预测的最优值为 1562.65 nm。

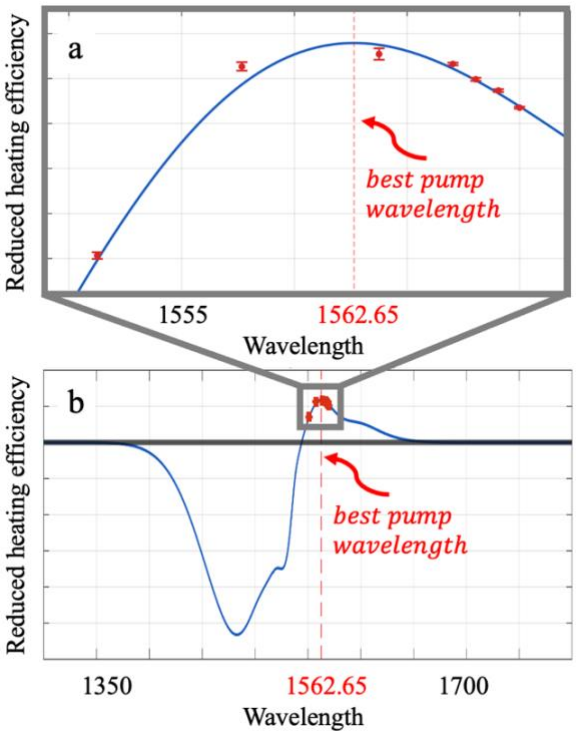


图5. 整个范围内加热最少的最佳泵浦波长。理论模型以蓝色曲线表示 $f(\lambda) = \sigma_{absorption}(\lambda) \cdot (\nu_{emission,\ avg} - \nu_{pump}(\lambda))$，该模型基于 Er^{+3}吸收光谱[2]，；红点表示实验结果及其标准差。根据理论模型的预测，我们认为最佳泵浦波长应为 1562.65 nm。**a**。感兴趣区域的放大图。红色所示的测量结果实际上与蓝色的理论计算结果非常吻合。**b**。整个 Er^{+3} 发射光谱范围的计算。

4. 讨论

4.1 解释与局限性

净冷却取决于多个因素，例如吸收与未吸收的泵浦功率、模式体积、激发能级发生辐射跃迁与非辐射跃迁的比例、二氧化硅中的吸收，以及退火后溶胶-凝胶中的 Er^{+3} 离子密度。

要确定使谐振器温度最低的波长，还需要测量吸收泵浦功率，并进行独立的热测量。

4.2 拟议的双频泵浦

图 2 中共振依赖的发射图样促使我们提出一种方案：通过时间平均，使泵浦场更均匀地分布在 $Er3^+$ 掺杂涂层上。我们提出同时以不同波长激发两个高阶回音壁模式。在图 6 的计算中，其中一个模式的极向瓣填补了另一个模式在赤道附近极向瓣之间的空隙，从而使该波段上的时间平均泵浦场分布更加均匀。

我们将谐振器建模为直径为 106 μm、折射率为 1.44 的均匀二氧化硅球。计算得到的两个 TE模式的指标分别为 $(l, m, q) = (272,252,4)$ 和 $(279,260,3)$，波长分别为 1564.91 和 1563.42

nm，分别。我们设定两种模式具有相等的峰值电场振幅。经过远长于其 5.49 ps 拍频周期的时间后，干涉项的平均值为零，电场平方等于两种模式贡献之和。

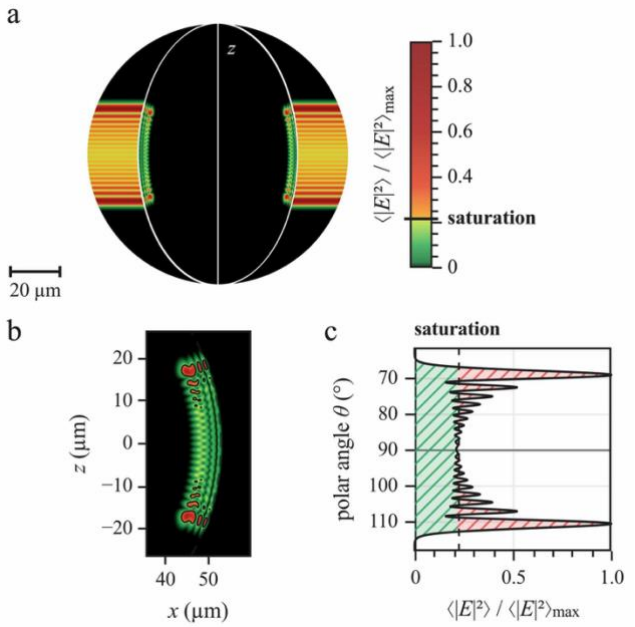


图 6。 对于 106 μm 熔融石英微球中的两个回音壁模式，时间平均归一化电场平方 | E| 2/| E| 2max：A，（l，m，p，q）=(272，252，21，4)；B，（l，m，p，q）=(279，260，20，3)。（a）去除 75° 楔形区域后的赤道视图；比例尺，20 μm。（b）子午面剖面（y = 0）；虚线曲线标示球面，黑色等值线标示所示饱和阈值（最大值的 0.22）。（c）φ = 0 ° 处的极向剖面；绿色和红色阴影分别表示低于和高于该阈值的贡献。水平线标示赤道（ θ = °）。仅显示合成电场。
90

为确定双频泵浦是否能够减少加热，可以开展后续实验：在总吸收泵浦功率相同的条件下，比较单频激发与双频激发时的谐振器温度。

5. 结论

总的来说，图1–5展示了平均光子能量高于泵浦能量的荧光、其对受控加热的响应，以及与吸收加权模型一致的泵浦波长依赖性。计算得到的剖面表明，同时激发两个高阶模式可能会使赤道附近的泵浦场分布更加均匀。若要声称谐振器实现了净冷却，就需要在光泵浦条件下测量其温度或尺寸。

参考文献

1. R. I. Epstein, M. I. Buchwald, B. C. Edwards, T. R. Gosnell, 和 C. E. Mungan, 《固体中激光诱导荧光冷却的观察》, Nature **377**, 500–503（1995）。2. R. Epstein 和 M. Sheik-Bahae 编, 《光学制冷：固体激光冷却的科学与应用》，第 1 版（Wiley，2009）。3. C.-W. Chen, E. Balliu, B. Meehan, T. W. Hawkins, J. Ballato, P. D. Dragic, T. Boilard, M. Bernier, 和 M. J. F. Digonnet, 《输出功率为 600 mW 的辐射平衡光纤放大器》, J. Light. Technol. **44**，4662–4668（2026）。4. J. M. Knall, M. Enghol m, T. Boilard, M. Bernier, 和 M. J. F. Digonnet, 《辐射平衡石英光纤放大器》, Phys. Rev. Lett. **127**，013903（2021）。5. B. Heeg, M. D. Stone, A. Khizhnyak, G. Rumbles, G. Mills, 和 P. A. DeBarber, 《腔内固态 Yb

3 + 4 − 2 : Zr F

− 3 − 3 − **70**, 021401

Ba F La F Al F Na F 玻璃激光冷却的实验演示》, Phys. Rev. A（2004）。6. D. V. Seletskiy, M. P. Hasselbeck, 和 M. Sheik-Bahae, 《用于光学制冷的谐振腔增强吸收》, Appl. Phys. Lett. **96**，181106（2010）。7. Y. Liu, A. Teitelboim, A. Fernandez-Bravo, K. Yao, M. V. P. Altoe, S. Aloni, C. Zhang, B. E. Cohen, P. J. Schuck, 和 E. M. Chan, 《用于低阈值微型激光器的上转换纳米颗粒可控组装及其在散射介质中的成像》, ACS Nano **14**，1508–1519（2020）。8. J. M. Knall, M. Esmaeelpour, 和 M. J. F. Digonnet, 《单模光纤中反斯托克斯荧光冷却模型》, J. Light. Technol. **36**，4752–4760（2018）。