

基于回音壁微腔拉曼激光的纳米粒子探测

王涛 杨旭 刘晓斐 雷府川 高铭 胡蕴琪 龙桂鲁

Nano-partical sensing based on Raman laser in the whispering gallery mode microresonators

Wang Tao Yang Xu Liu Xiao-Fei Lei Fu-Chuan Gao Ming Hu Yun-Qi Long Gui-Lu

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 64, 164212 (2015) DOI: 10.7498/aps.64.164212

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.164212>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2015/V64/I16>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

强耦合腔量子电动力学中单原子转移的实验及模拟

Single-atom transfer in a strongly coupled cavity quantum electrodynamics: experiment and Monte Carlo simulation

物理学报.2014, 63(24): 244205 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.244205>

激光二极管抽运的Nd:YVO₄连续自拉曼1175nm激光器

Laser diode end-pumped continuous-wave Nd:YVO₄ self-Raman laser at 1175 nm

物理学报.2014, 63(15): 154208 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.154208>

激光回馈引起的微片Nd:YAG激光器频差调制

Frequency difference modulation of microchip Nd:YAG laser induced by laser feedback

物理学报.2014, 63(10): 104208 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.104208>

超高精细度微光学腔共振频率及有效腔长的精密测量

Precision measurement of resonate frequency and the effective cavity length of the high finesse optical micro-cavity

物理学报.2013, 62(19): 194203 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.194203>

专题: 量子精密计量与操控

基于回音壁微腔拉曼激光的纳米粒子探测*

王涛¹⁾# 杨旭¹⁾# 刘晓斐¹⁾ 雷府川¹⁾ 高铭¹⁾
胡蕴琪¹⁾ 龙桂鲁^{1)2)3)†}

1)(清华大学物理系, 低维量子物理国家重点实验室, 北京 100084)

2)(清华信息科学技术国家实验室(筹), 北京 100084)

3)(量子物质科学协同创新中心, 北京 100084)

(2015年5月19日收到; 2015年8月17日收到修改稿)

回音壁模式光学微腔由于其品质因子高、模式体积小等优点, 近年来在非标记性的纳米粒子探测方面得到了广泛的重视, 开展了大量的研究, 取得了重要的进展. 利用回音壁微腔的拉曼激光, 通过测量纳米粒子造成的模式劈裂的拍频, 可以实现不同环境下纳米粒子的实时探测. 与传统的稀土离子掺杂法不同, 这种方法采用腔的内禀增益, 不仅提高了应用回音壁模式微腔进行纳米粒子探测的极限, 而且避免了传统方法中稀土离子能级对泵浦光的限制, 拓展了应用范围. 这种方法还可以应用于其他材料的回音壁微腔, 如硅基微环腔等, 以及光子晶体结构、超材料等受损耗限制的系统中. 本文简单介绍了回音壁模式光学微腔进行纳米粒子探测的基本原理以及最新研究进展.

关键词: 回音壁模式微腔, 纳米粒子探测, 拉曼激光, 光学传感器**PACS:** 42.55.Sa, 42.55.Ye, 42.81.Pa**DOI:** 10.7498/aps.64.164212

1 引言

随着生物医学、国土安全和疾病控制等的需求, 纳米粒子的探测需求越来越迫切^[1-12]. 纳米粒子是指尺寸在1—100 nm之间的微观颗粒, 包括人造纳米粒子、生物大分子(蛋白质大分子, 病毒分子等)、纳米尺度的微生物(支原体等)和大气中的纳米污染物等天然纳米粒子^[13-21]. 大气中的纳米颗粒被吸入或吸收后在人体中具有高度的可移动性, 可以直接引起细胞病变. 在医疗实践中, 纳米粒子能够被导入细胞改变细胞功能, 也能够作为载体为靶细胞输运药物. 纳米粒子的探测既可以用于环境(包括空气和水)中病原体的检测, 也可以用于人体潜在疾病的早期诊断. 人造的纳米粒子可以人为改变粒子的物理属性而直接做成产品应用, 也可以作

为中间产物掺杂到产品中. 人造纳米粒子正广泛地应用于医学、制药、生物、电子、光电子、太阳能和陶瓷等产业. 工程上对纳米粒子特性的控制、监控和品质保证要求越来越严格, 因此, 纳米粒子的监控和测量越来越重要, 要求能够对纳米粒子进行准确、实时和快速的探测、计数和特征分析, 包括大小、形状和折射率等.

目前探测纳米粒子主要是利用光学成像等手段, 辅以放射性或染料等化学物质的标记进行显微镜观察, 如扫描电子显微镜(SEM)、透射电子显微镜(TEM)及原子力显微镜(AFM)等^[22-26]. 这种方法的测量范围在5 nm—500 μm , 可测量的范围大, 适合观察粒子的形态和表面细节特征. 激光衍射法和光散射法等^[1,27-30]可以探测纳米粒子数目、大小和分布等宏观特性及统计信息^[7,11,31-34].

两位作者对本文贡献相等.

* 国家自然科学基金(批准号: 11175094, 11474181, 91221205)和国家重大基础研究计划(批准号: 2011CB9216002)资助的课题.

† 通信作者. E-mail: gllong@mail.tsinghua.edu.cn

然而蛋白质等生物分子在光照、放射性物质和化学物质的刺激下,会发生变性等影响,从而改变性质和功能.同时这些方法存在着设备价格昂贵、测量依赖于取样观察和处理时间较长等因素的限制.

生产、生活和科研要求人们研究免标记的、在极低浓度下有效的、达到实时探测的新型探测手段.光学微腔在众多新型探测手段中越来越受到人们的重视,而且最近在量子信息处理中也有潜在应用^[35-42],尤其是回音壁模式光学微腔越来越受到人们关注.人们利用回音壁微腔的线宽展宽、共振频率移动和模式劈裂等探测信号,已经成功地实现了蛋白质分子、病毒、DNA等纳米粒子在低浓度下的实时探测^[4,5,9,43-65].回音壁模式光学微腔品质因子高、模式体积小,而且对蛋白质等生物分子具有良好的亲和性.此外光学微腔结构微小,便于在芯片上集成,不需要真空、低温等特殊条件,在空气和水中都能进行有效探测,具有重大的应用价值和发展潜力.

回音壁模式光学微腔的探测极限主要受到品质因子 Q 和模式体积 V 的影响, Q/V 越大,理论探测极限就越高.回音壁模式微腔不能通过无限减小微腔体积的方法来缩减模式体积,因此增大品质因子,即减小模式线宽,是提高探测极限最有效的手段.腔的品质因子受到微腔形状结构、材料吸收和辐射等固有因素的限制.虽然可以通过优化设计,减少材料散射和辐射的损耗等方式提升,但是材料的固有损耗是无法消除的,这构成了微腔品质因子的极限.为克服这一障碍,人们在传统的被动腔基础上,发展了能产生增益和激光的主动腔^[9,66-76],采用在微腔制作过程中掺杂稀土离子的方式,在恰当的泵浦作用下,产生稀土离子激光,进行纳米粒子探测^[9,10,77].稀土离子掺杂的微腔制作过程复杂,泵浦光受到稀土离子能级的约束,同时这种掺杂可能影响器件的生物兼容性.为此,人们采用了微腔本征的拉曼激光^[78-87],在空气中实现了半径低至10 nm的纳米颗粒的实时探测.北京大学研究组^[87]还采用微腔拉曼激光创造性地实现了在水环境中的纳米粒子探测.本文介绍回音壁微腔的一些基本性质、制备过程以及如何利用回音壁微腔拉曼激光通过测量粒子散射造成的模式劈裂的拍频变化进行纳米粒子的实时探测的原理,并介绍近期的实验发展情况.

2 回音壁模式光学微腔

2.1 回音壁微腔结构和制作过程

光学微腔的共振能把光场束缚在很小的区域内.通常微腔具有很高的品质因子,腔内能够产生一个强度高、寿命长的光场,被广泛应用于腔量子电动力学、光通信器件、传感器、低阈值激光器等领域.微腔的几何形状多种多样,根据光场的束缚机制不同,光学微腔主要有法布里-珀罗(Fabry-Perot, FP)型微腔、回音壁(whispering gallery modes, WGM)光学微腔和光子晶体微腔等.实际应用中,光学微腔有两个重要的参数,一个是微腔品质因子 Q 值(quality factor),其定义如下:

$$Q = \frac{W(t)}{-\frac{dW(t)}{dt}/\omega_0}, \quad (1)$$

其中, ω_0 是微腔共振频率, $W(t)$ 是束缚在微腔内光场能量,而 $(dW(t)/dt)/\omega_0$ 正比于微腔内光场能量损耗,因此品质因子表征了在时域上光学微腔对光场的束缚能力, Q 值越高,存留于微腔内的时间就越长(光场不被材料吸收、辐射等损耗掉).

另一个重要参数是模式体积(mode volume),表征的是在空间上光学微腔对光场的束缚情况,模式体积越小,同样能量的光场在局部表现的光场强度就越大,光与物质相互作用就越强,其定义为

$$V = \frac{\int \varepsilon(\mathbf{r})|E(\mathbf{r})|^2 d^3\mathbf{r}}{\max(\varepsilon(\mathbf{r}))|E(\mathbf{r})|^2}, \quad (2)$$

其中, $\varepsilon(\mathbf{r})$ 是微腔材质的介电常数, $E(\mathbf{r})$ 是微腔内光场场强.

随着纳米结构加工制备工艺的提高,回音壁模式的光学微腔的结构多种多样,图1显示了六种常用的光学微腔结构.微腔的制备原料有液滴、硅片、有机聚合物以及二氧化硅等^[21,88-92].微环腔(microring)和微盘腔(microdisk)的品质因子 Q 值比较高,通常为 10^4-10^6 .微芯圆环腔(microtoroid)和微球腔(microsphere)具有超高的品质因子, Q 值可以达到 10^8 .本文介绍的探测方法采用了微球腔和微芯圆环腔^[88].

下面说明二氧化硅微芯圆环腔的制作过程,如图2所示.由于制作光学微腔所用硅片经过了热氧化,在硅表面有2 μm 厚的氧化硅层.将硅片表面

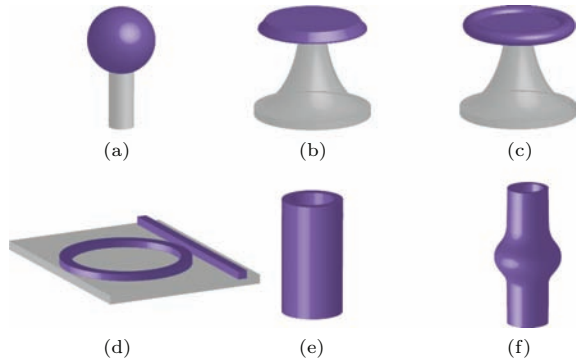


图1 常见的几种回音壁微腔 (a) 微球腔; (b) 微盘腔; (c) 微芯圆环腔; (d) 微环腔; (e) 微管腔; (f) 微泡腔

Fig. 1. Illustrations of various optical microcavities: (a) microsphere; (b) microdisk; (c) microtoroid; (d) microring; (e) microdisk; (f) microtoroid.

的二氧化硅层制成微芯圆环腔主要经过下面六个步骤. 1) 旋涂: 用旋涂法将光刻胶均匀覆盖在二氧化硅表面. 2) 曝光: 盖上掩模板, 然后紫外曝光. 3) 显影. 4) 湿腐蚀: 将样品放入氢氟酸缓冲

液中, 腐蚀二氧化硅层. 光刻胶曝光显影后形成的圆盘作为阻挡层可以保护二氧化硅层不与氢氟酸反应. 腐蚀一段时间后, 未被保护的二氧化硅被腐蚀移去, 从而形成了二氧化硅圆盘. 5) 干腐蚀: 用二氟化氙气体腐蚀硅, 最后成为有支柱支撑的圆盘腔, 从而使二氧化硅圆盘与硅衬底剥离开, 便于实验中与光纤耦合. 到这一步, 已经成功制成回音壁模式微盘腔. 6) 激光回流 (laser reflow): 用高功率的二氧化碳激光从顶部照射微盘腔. 二氧化硅对这个波长的激光吸收很强, 并且硅的导热性是二氧化硅的 100 多倍^[93], 当聚焦的激光圆斑 (典型值为 $100 \text{ MW}\cdot\text{m}^{-2}$) 照射到微型圆盘表面时, 二氧化硅圆盘外围受热向内卷曲收缩, 而底部的硅不受影响, 几乎保持不变. 由于表面张力, 重新凝固中形成的微腔边缘将十分光滑, 这一步会有效地提高微腔的品质因子, 减小腔体由于粗糙引起的损耗. 这就形成了微芯圆环腔.

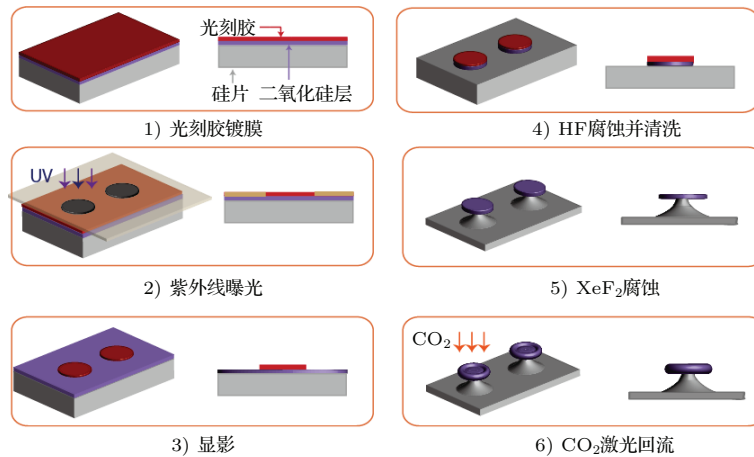


图2 硅衬底上制作二氧化硅微芯圆环腔流程

Fig. 2. Fabrication flow for silica microtoroid on a silicon substrate.

2.2 光纤锥近场耦合

微芯圆环腔等回音壁模式微腔具有旋转对称性, 有极高的品质因子, 人们一般用外部的近场耦合器件将光耦合进出微腔, 如光纤锥、光学波导和棱镜等^[94-96]. 目前实验中多采用光纤锥耦合. 图3(a), (b) 分别是我们实验室制备的微芯圆环腔和光纤锥系统的俯视图和侧视图. 光纤锥的制备有多种方法, 一般用氢氧焰来制备所需的光纤锥, 中间最细部分通常为几百纳米.

光纤锥-微腔耦合系统的腔动力学方程^[69,97,98] 可以表示为:

$$\frac{da}{dt} = - \left(i\omega_0 + \frac{\kappa_0 + \kappa_{\text{ex}}}{2} \right) a - \sqrt{\kappa_{\text{ex}}} a_{\text{in}}, \quad (3)$$

其中 a 表示微腔内的光场, a_{in} 表示输入光场, ω_0 是腔共振频率, $\kappa_0 = \omega_0/Q_0$ 是模式本身内部损耗, 来自于二氧化硅本身对光场的吸收以及腔体表面粗糙造成散射、腔往外辐射等因素造成的损耗. $\kappa_{\text{ex}} = \omega_0/Q_{\text{ex}}$ 表示光纤锥耦合引入的损耗, 代表着光纤锥与回音壁模式的耦合强度. 结合输入输出关系

$$a_{\text{out}} = a_{\text{in}} + \sqrt{\kappa_{\text{ex}}} a, \quad (4)$$

可得到光纤锥透射谱,



图3 微芯圆环腔与光纤锥耦合 (a) 俯视图; (b) 侧视图

Fig. 3. Coupling between microtoroid and fiber taper: (a) top view; (b) side view.

$$T(\Delta\omega) = \frac{\Delta\omega^2 + \left(\frac{\kappa_0 - \kappa_{\text{ex}}}{2}\right)^2}{\Delta\omega^2 + \left(\frac{\kappa_0 + \kappa_{\text{ex}}}{2}\right)^2}, \quad (5)$$

其中 $\Delta\omega = \omega_0 - \omega$ 表示频率失谐量, ω 是输入光纤锥的光场频率. 由此式可知透射谱是洛伦兹线型的, 当失谐量为零, 即 $\Delta\omega = 0$ 共振时,

$$T(0) = \left(\frac{\kappa_0 - \kappa_{\text{ex}}}{\kappa_0 + \kappa_{\text{ex}}}\right)^2, \quad (6)$$

透射率 T 有最小值, 即输出光场最小. 如图4显示了我们的实验室制备的一个光学微芯圆环腔的透射谱及其洛伦兹型的拟合结果, 其对应的微腔 Q 值约为 10^7 .

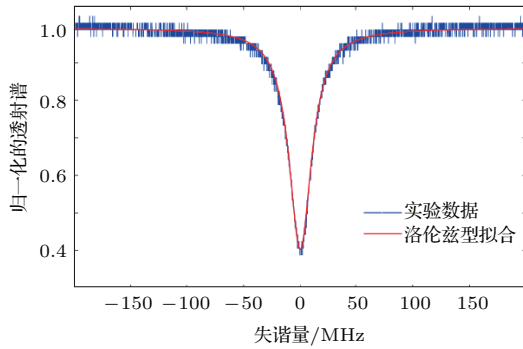


图4 光学微芯圆环腔的透射谱

Fig. 4. Transmission spectrum of the microtoroid.

2.3 瑞利散射导致的模式劈裂

对于微芯圆环腔等旋转对称结构的光学微腔, 可以同时存在多组两个频率简并的、沿着相反方向传输的回音壁光学模式: 顺时针 (CW: clockwise) 和逆时针 (CCW: counter-clockwise) 模式. 这两个简并模式有相同的共振频率和线宽. 当有纳米粒子吸附在微腔表面时, WGM 模式光场发生瑞利散射, 一部分光被散射到周围环境中损耗掉, 一部分光继

续在原来的方向传输, 还有一部分光被散射为相反的传输方向, 即 CW 模式的光被散射到了 CCW 模式, 反之亦然. 结果是 CW 和 CCW 模式耦合在一起, 两个模式耦合后, 形成了两个新的正交模, 它们的共振频率不再相同. 因而在透射谱上可以观察到两个共振吸收谷, 这个现象就是模式劈裂 (mode splitting) [4,99-102]. 事实上, 在高 Q 值的回音壁模式微腔中, 很多因素都可以导致模式劈裂, 比如微腔表面缺陷、黏附纳米粒子等.

纳米粒子尺寸属于亚波长范围, 因此它与光场的相互作用可以近似为偶极相互作用, 纳米粒子可以被近似看作偶极子. 假设纳米粒子对光场发生瑞利散射, 耦合系数为 g ,

$$g = -\frac{\alpha f^2(\mathbf{r})\omega_0}{2V_C}. \quad (7)$$

为了简单起见, 考虑空气中的情况, 假设所研究的纳米粒子是半径为 R 的球形颗粒, 球形粒子的极化率是

$$\alpha = 4\pi R^3 (n_p^2 - 1) / (n_p^2 + 2), \quad (8)$$

其中 n_p 表示纳米粒子的折射率. 由于瑞利散射引入的损耗项为

$$\Gamma_R = \alpha^2 f^2(\mathbf{r})\omega_0^4 / (6\pi v^3 V_C), \quad (9)$$

顺时针和逆时针传播方向光场的动力学方程 [8,69,100]:

$$\begin{aligned} \frac{da_{\text{CW}}}{dt} = & - \left(i\omega_0 + ig + \frac{\Gamma_R + \kappa_{\text{eff}} + \kappa_{\text{ex}}}{2} \right) a_{\text{CW}} \\ & - \left(ig + \frac{\Gamma_R}{2} \right) a_{\text{CCW}} - \sqrt{\kappa_{\text{ex}}} a_{\text{CW}}^{\text{in}}, \end{aligned} \quad (10)$$

$$\begin{aligned} \frac{da_{\text{CCW}}}{dt} = & - \left(i\omega_0 + ig + \frac{\Gamma_R + \kappa_{\text{eff}} + \kappa_{\text{ex}}}{2} \right) a_{\text{CCW}} \\ & - \left(ig + \frac{\Gamma_R}{2} \right) a_{\text{CW}}, \end{aligned} \quad (11)$$

其中, a_{CW} 和 a_{CCW} 分别表示顺时针传播和逆时针传播模式光场, ω_0 是微芯圆环腔共振频率, $v = c/\sqrt{\epsilon_m}$, a_{CW}^{in} 和 a_{CCW}^{in} 分别表示顺时针传播和逆时针传播模式的光场输入. 定义 $a_{\pm} = (a_{CW} \pm a_{CCW})/\sqrt{2}$ 和 $a_{\pm}^{in} = (a_{CW}^{in} \pm a_{CCW}^{in})/\sqrt{2}$, 在频率域中求解 (10), (11) 式的稳态解有:

$$- \left[i(\Delta - 2g) + \frac{2\Gamma_R + \kappa_0 + \kappa_{ex}}{2} \right] a_+ + \sqrt{\kappa_{ex}} a_+^{in} = 0, \quad (12)$$

$$- \left[i\Delta + \frac{\kappa_0 + \kappa_{ex}}{2} \right] a_- + \sqrt{\kappa_{ex}} a_-^{in} = 0, \quad (13)$$

其中, $\Delta = \omega_0 - \omega$ 是输入光与微腔共振频率的失谐量. 对称模式 (a_+) 相对于原来简并模式发生 $2g$ 大小的频移, 并且谱线增宽 $2\Gamma_R$, 而反对称模式 (a_-) 不发生任何变化, 因此 $2g$ 的频率移动就对应 WGM 的模式劈裂效应.

将 (7) 和 (9) 式二者相除, 得到

$$\alpha = \frac{3\lambda^3}{8\pi^2} \cdot \frac{\Gamma_R}{g}. \quad (14)$$

(14) 式的结果与 (8) 式对比, 得到

$$R = \left(\frac{3\lambda^3/(8\pi^2)}{4\pi(n_p^2 - 1)/(n_p^2 + 2)} \cdot \frac{\Gamma_R}{g} \right)^{1/3}, \quad (15)$$

由 (15) 式可以估算导致模式劈裂的纳米粒子的半径大小. 本质上说, 这种探测方法探测的是粒子进入微腔模式体积后微腔极化率的变化, 在已知粒子折射率的情况下这一变化可以转化为尺寸.

3 微腔拉曼激光纳米粒子探测

采用回音壁模式微腔进行纳米粒子探测, 可以通过观察模式线宽展宽、共振频率移动、模式劈裂变化等机制来实现. 这些探测机制的探测极限都取决于两个模式 (展宽前和展宽后、频移前和频移后、劈裂形成的对称模式和反对称模式) 的洛伦兹型谱线的分辨极限, 因此压窄线宽是提高探测精度的有效手段. 稀土离子掺杂的主动腔突破了微腔品质因子由设计和材料等固有损耗决定的极限, 在纳米粒子探测中取得了良好的效果, 但这种掺杂带来的复杂性促使人们寻找非掺杂的主动腔. 在非掺杂的增益效应中, 拉曼激光受到关注. 人们在硅、二氧化硅和 CaF_2 等回音壁模式微腔中已经成功得到了拉曼激光 [66,71,79-84,103-110]. 受激拉曼散射在生物、材

料科学、环境监测、光通信等领域有广泛的应用, 它是一种非线性、非弹性散射过程, 当入射光子与物质的分子 (或原子) 相互作用时, 观察到散射出来的光子频率发生变化. 光子被散射粒子吸收, 同时发射出一个频率 $\omega_S = \omega_0 - \omega_R$ 的频率减小的斯托克斯 (Stokes) 光子, 伴随着产生一个声子; 相应的, 如果光子被散射粒子吸收, 同时吸收一个声子, 那么发射出一个频率为 $\omega_{AS} = \omega_0 + \omega_R$ 的反斯托克斯 (anti-Stokes) 光子 [80,110]. 受激拉曼散射或拉曼增益过程中, 由于分子振动能级寿命, 介质对于辐射场的响应时间是一个有限值, 因此增益谱线有一定的线宽, 这直接关系到拉曼激光器的阈值、转换效率等参数. 图 5 (a) 为二氧化硅材料的拉曼频移和对应增益 [80], 图 5 (b) 为我们研究组在实验中测得的拉曼激光光谱. 可以看出, 二氧化硅材料拉曼增益有不同的频移和对应增益量.

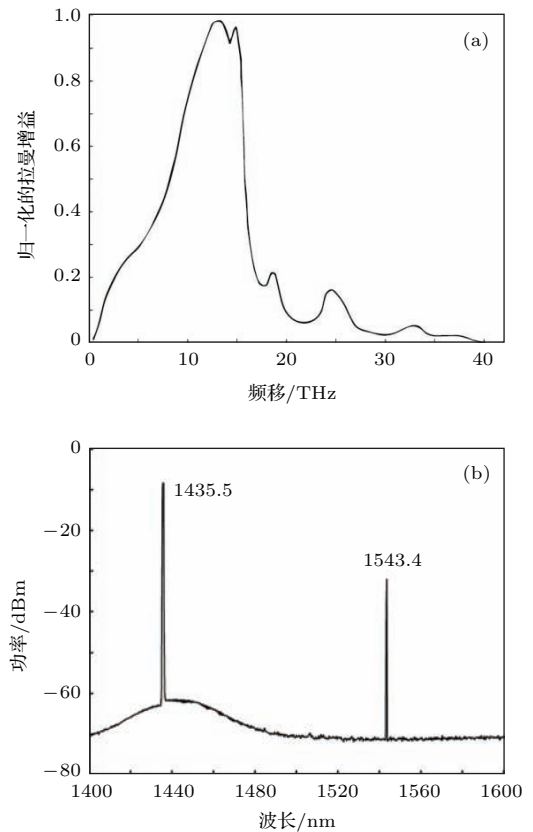


图 5 拉曼增益带 [80] (a) 和我们在实验中测得的拉曼激光光谱 (b)
 Fig. 5. Raman gain spectrum [80] (a) and Raman laser spectrum measured in our experiment (b).

具有拉曼增益和拉曼激光的主动腔中, 有两种方式可以提高探测极限. 一是在泵浦 (pump) 功率低于产生激光阈值时, 用 pump-probe 方法, 探

测光 (probe) 得到增益而补偿其损耗, 使得探测光的 Q 值增大, 线宽变窄. 二是如果泵浦功率超过拉曼激光阈值时, 由于激光的线宽通常比共振腔的线宽小得多. 因此利用主动腔泵浦产生的激光来探测纳米粒子可以大大提高探测灵敏度. 激光的基本线宽 $\Delta\nu_{\text{laser}}$ 由 Schawlow-Townes 公式^[80] 给出: $\Delta\nu_{\text{laser}} = \pi h\nu(\Delta\nu)^2/P_{\text{out}}$, 其中 ν 是光子能量, $\Delta\nu = \nu/Q$ 是被动腔线宽, P_{out} 为激光输出功率. 例如, 微腔 Q 为 10^6 — 10^7 , 激光波长为 1550 nm, 激光输出功率 P_{out} 为 10 μW 时, 输出激光线宽在 1.5 Hz—1.5 kHz 范围.

北京大学研究组、华盛顿大学与清华大学联合研究组^[78,87] 在实验上实现了微腔拉曼激光的单纳米粒子探测, 其装置示意图如图 6 所示. 实验采用微芯圆环腔, 可调激光器能够输出一个波长范围连续可调的激光, 作为产生拉曼激光的泵浦光. 偏振控制器能够调节输入到微腔的激光偏振方向. 图 6 中上方的指向微腔的喷嘴连接的是纳米粒子发生装置, 能够喷出含有一定浓度的纳米粒子的气流. 由于设定的纳米粒子浓度比较低, 因此吸附到微腔表面的纳米粒子可以认为是一个个地分别吸附上去的, 平均每隔几秒有一个纳米粒子吸附到微腔表面, 纳米粒子吸附到微腔表面不会脱落. 光电探测器探测输出光强, 并把信号接到示波器. 光纤锥的输出信号由波分复用器 (wavelength division multiplexing, WDM) 将泵浦波长和产生的激光波长分开, 把激光输入到光电探测器中转换为电信号.

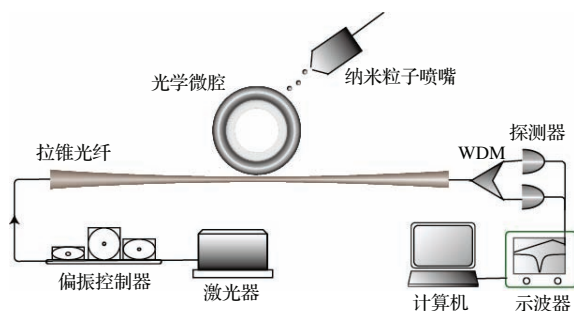


图 6 探测单纳米粒子实验装置^[78,87]

Fig. 6. Schematic of the experimental set-up for detecting single nanoparticle^[78,87].

实验中直径为几十纳米的纳米粒子落在微腔表面时, 会造成拉曼激光的模式产生模式劈裂. 原本单一的激光模式, 劈裂为频率差为 $2g$ 的两个激

光模式. 在实验中, 可以锁定泵浦光^[78], 调节耦合等条件使得频率差为 $2g$ 的两个激光模式同时被激发, 产生频率十分接近的两个激光. 它们在示波器上会形成拍频信号, 如图 7 所示. 对拍频信号做傅里叶变换, 可以看到频率值的跳跃. 监测拍频信号频率值一步一步的变化, 就可以实时探测一个一个落在光腔表面的纳米粒子. 拍频信号变化的统计规律可以用来判断纳米粒子的尺寸大小. 测量时也可以在泵浦模式附近扫描泵浦光^[87], 扫描的泵浦光会造成两个阈值有微小差异的劈裂模式的拉曼激光产生强烈的模式竞争, 在时域上形成周期性的快速震荡的波包. 这些波包内部的震荡频率是单调上升或者单调下降的, 可以截取波包振幅最大的时刻, 即波包的中心区的拍频频率, 来测量此时纳米粒子引入的模式劈裂的大小.

Özdemir 等^[78] 证明了在拉曼阈值以下, 微腔中的拉曼增益可以用来弥补损耗, 提高品质因子, 进而通过检测模式劈裂的方式提高纳米粒子检测的分辨率. 而当增益达到激光阈值时, 通过拍频的跃变监测纳米粒子与微腔的接触. 测量时温度等因素会造成微腔的共振频率移动, 传统的通过测量频移的方法, 将受到这些外部因素的干扰. 而测量模式劈裂和拍频的方法, 由于劈裂后的两个模式受到外部影响是同步的, 劈裂的两个模式提供了内部的参照, 这种自参照的方式将大大提高测量的稳定性. Özdemir 等^[78] 在空气对 Au, polystyrene (PS) 和 NaCl 纳米粒子进行了有效探测, 在没有额外的稳定设施的条件下, 实现了半径低至 10 nm 纳米粒子的逐个探测 (极化率为 $3.82 \times 10^{-6} \mu\text{m}^3$). 这一极化率数值是之前的 Pound-Drever-Hall 法^[59] 的 1%. 北京大学研究组^[87] 用模式劈裂造成的拉曼激光拍频完成了纳米粒子探测. 他们在空气中实验后, 将腔和光纤锥组成的测量系统放入固定纳米平移台上的槽室中, 完成了液体环境中的测量. 纳米粒子可以通过注入含有纳米粒子的溶液的方式加入水中. 考虑到水的吸收光谱, 实验采用的泵浦波长是 680 nm 的红光. 此外由于硅片表面的污染物容易聚集到微芯圆环腔的探测区域, 实验采用了微球腔而不是微芯圆环腔. 实验通过优化参数等方式压缩探测的噪声, 在没有采用电浆等改善方法的条件下, 他们实时测量了半径为 40 和 20 nm 的 PS 粒子, 粒子在液体中的浓度约为 5 pM.

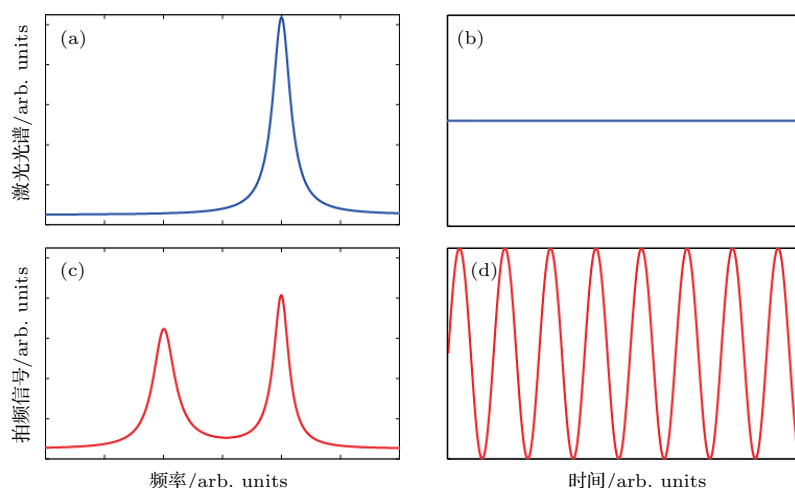


图7 拉曼激光光谱和拍频信号示意图 (a) 探测前的拉曼激光光谱; (b) 探测前没有拍频; (c) 纳米粒子造成的激光模式劈裂; (d) 纳米粒子造成的拍频.

Fig. 7. Raman laser spectrum and beat note signal: (a) Raman laser spectrum before detection; (b) no beat note before detection; (c) Raman laser mode splitting caused by nano-particle; (d) beat note signal caused by nano-particle.

采用回音壁微腔拉曼激光进行纳米粒子探测, 是纳米粒子探测工作的重要进展. 采用拉曼增益相比稀土离子掺杂具有多方面的优势. 拉曼增益是微腔的内禀增益, 不需要像稀土离子增益一样经历掺杂等复杂制备过程, 降低了应用条件, 而且因为没有掺杂, 在同等条件下其品质因子比掺杂的微腔的品质因子更高. 二氧化硅等材料具有良好的生物亲和性, 使用非掺杂的方法, 避免了掺杂造成的生物亲和性降低, 对蛋白质等生物分子的探测具有重要意义. 更重要的是, 相对于稀土离子激光, 拉曼激光不受泵浦激光波长的限制. 在从可见光到通讯波段的常用激光范围里, 拉曼激光都能有效的工作. 这避免了稀土离子激光对泵浦光源的苛刻要求, 拓展了设备的通用性和可移植性, 可以根据环境和目标粒子的需要和实验条件, 自由选择工作波长. 如在水中可以选用对水穿透能力强的红光, 对生物分子等可以选择相应的特殊波长. 还可以同时用多个泵浦光激发不同的拉曼激光进行探测, 落在一个激光模式体积外没有引起拍频变化的粒子, 可能落在另一个激光的模式体积中而引起拍频变化, 这样几个拍频的变化相互参照, 提高探测的准确性.

4 总结

回音壁模式光学微腔进行纳米粒子探测具有许多优点, 本文介绍了其基本原理和最新进展. 北京大学研究组、华盛顿大学与清华大学联合研究

组利用回音壁微腔的拉曼激光中的模式劈裂实现了对纳米粒子的探测, 实验上通过测量劈裂引起的拍频, 可非常精确和快速探测黏附纳米粒子. 这一方法可以在不同环境下进行纳米粒子的实时探测. 为了提高测量精度, 需要提高微腔的品质因子. 与传统采用稀土离子掺杂法不同, 本文所介绍的方法采用微腔的内禀增益, 不仅进一步提高了回音壁模式微腔的纳米粒子探测的极限, 而且避免了稀土离子中能级对泵浦光的许多限制, 拓展了这种方法的应用范围. 这种实验方法如果配合等离子体效应、噪声压缩、激光频率稳定等措施^[48,50,53,54,59,61], 可以进一步推进探测极限. 同时根据 Wiersig 等^[111]的理论, 这种通过测量模式劈裂进行探测的传感器, 如果将起始状态设为所谓的 EP 点 (exceptional points), 将高品质因子的微腔的拉曼激光拍频和 EP 点的方式相结合, 探测灵敏度的极限还将获得很大提升. 这种无需掺杂、采用拉曼增益弥补损耗的方法, 不但可以应用于二氧化硅材料的微芯圆环腔, 而且对于其他材料的回音壁微腔 (如硅基微环腔) 以及光子晶体结构、超材料等受损耗限制的系统, 也有良好的应用前景. 由于回音壁微腔的独特优势, 其作为纳米粒子探测传感器的应用不断发展, 正向着产品化方向推进. 同时回音壁微腔, 尤其是微环腔和微芯圆环腔, 本身是基于芯片的结构, 芯片化和集成化是其未来的重要发展方向. 可以将多个回音壁微腔组成阵列, 扩大探测范围, 甚

至做成空间阵列, 逐层吸附^[112]. 也可以将其作为传感器的微腔与其他器件, 如微纳激光源、微纳滤波器器件^[95,113–118]集成在一起, 制成系统行的探测芯片. 可以预见, 随着微腔产品化的发展, 应用拉曼激光的微腔传感器在纳米粒子探测上将取得重要实际应用.

参考文献

- [1] Szymanski W W, Nagy A, Czitrovsky A, Jani P 2002 *Meas. Sci. Technol.* **13** 303
- [2] Van D M, Tchegotareva A, Orrit M, Lippitz M, Berciaud S, Lasne D, Cognet L, Lounis B 2006 *PCCP* **8** 3486
- [3] Burg T P, Godin M, Knudsen S M, Shen W, Carlson G, Foster J S, Babcock K, Manalis S R 2007 *Nature* **446** 1066
- [4] Vollmer F, Arnold S 2008 *Nat. Methods* **5** 591
- [5] Vollmer F, Arnold S, Keng D 2008 *Proc. Natl. Acad. Sci.* **105** 20701
- [6] Fan X, White I M, Shopova S I, Zhu H, Suter J D, Sun Y 2008 *Anal. Chim. Acta* **620** 8
- [7] Naik A, Hanay M, Hiebert W, Feng X, Roukes M 2009 *Nat. Nanotechnology* **4** 445
- [8] Zhu J, Özdemir S K, Xiao Y F, Li L, He L, Chen D R, Yang L 2010 *Nat. Photonics* **4** 46
- [9] He L, Özdemir S K, Zhu J, Kim W, Yang L 2011 *Nat. Nanotechnology* **6** 428
- [10] Vollmer F, Yang L 2012 *Nanophotonics* **1** 267
- [11] Yurt A, Daaboul G G, Connor J H, Goldberg B B, Unlü M S 2012 *Nanoscale* **4** 715
- [12] Wang W, Tao N 2013 *Anal. Chem.* **86** 2
- [13] Colvin V L 2003 *Nat. Biotechnology* **21** 1166
- [14] Hoet P H, Brüske-Hohlfeld I, Salata O V 2004 *J. Nanobiotechnology* **2** 12
- [15] Alivisatos P 2004 *Nat. Biotechnology* **22** 47
- [16] Storhoff J J, Lucas A D, Garimella V, Bao Y P, Müller U R 2004 *Nat. Biotechnology* **22** 883
- [17] Cheng M M C, Cuda G, Bunimovich Y L, Gaspari M, Heath J R, Hill H D, Mirkin C A, Nijdam A J, Terraciano R, Thundat T, Ferrari M 2006 *Curr. Opin. Chem. Biol.* **10** 11
- [18] Sinha R, Kim G J, Nie S, Shin D M 2006 *Mol. Cancer. Ther.* **5** 1909
- [19] De M, Ghosh P S, Rotello V M 2008 *Adv. Mater.* **20** 4225
- [20] Smith A M, Nie S 2009 *Accounts Chem. Res.* **43** 190
- [21] Dai S X, Lu L W, Tao G M, Xu Y S, Yin D M, Niu X K, Zhang W 2012 *Laser & Optoelectronics Progress.* **49** 080001 (in Chinese) [戴世勋, 路来伟, 陶光明, 许银生, 尹冬梅, 牛雪珂, 张巍 2012 激光与光电子学进展 **49** 080001]
- [22] Betzig E, Trautman J, Harris T, Weiner J, Kostelak R 1991 *Science* **251** 1468
- [23] Zhang J, Dong L, Yu S H 2015 *Sci. Bull.* **60** 785
- [24] Seydack M 2005 *Biosens. Bioelectron.* **20** 245
- [25] Liu T G, Zhang F, Meng Z 2005 *Opt. Tech.* **31** 96 (in Chinese) [刘铁根, 张凡, 孟卓 2005 光学技术 **31** 96]
- [26] Wei Q, Qi H, Luo W, Tseng D, Ki S J, Wan Z, Göröcs Z, Bentolila L A, Wu T T, Sun R, Ozcan A 2013 *ACS Nano* **7** 9147
- [27] Plakhotnik T, Palm V 2001 *Phys. Rev. Lett.* **87** 183602
- [28] Knollenber R G 1989 *J. Aerosol Sci.* **20** 331
- [29] Boyer D, Tamarat P, Maali A, Lounis B, Orrit M 2002 *Science* **297** 1160
- [30] Lindfors K, Kalkbrenner T, Stoller P, Sandoghdar V 2004 *Phys. Rev. Lett.* **93** 037401
- [31] Patolsky F, Zheng G, Hayden O, Lakadamyali M, Zhuang X, Lieber C M 2004 *Proc. Natl. Acad. Sci.* **101** 14017
- [32] Choi Y, Moody I S, Sims P C, Hunt S R, Corso B L, Perez I, Weiss G A, Collins P G 2012 *Science* **335** 319
- [33] Arlett J L, Myers E B, Roukes M L 2011 *Nat. Nanotechnology* **6** 203
- [34] Yue X J, Hong T S, Yang Z, Huang S P 2013 *Chin. Sci. Bull.* **58** 821
- [35] Zhang L, Song Z D 2014 *Sci. China-Phys. Mech. Astron.* **57** 880
- [36] Lu X K, Guo M T, Su J P, Gong Q X, Wu J K, Liu J L, Chen M, Ma F Y 2013 *Acta Phys. Sin.* **62** 084208 (in Chinese) [卢小可, 郭茂田, 苏建坡, 弓巧侠, 武进科, 刘建立, 陈明, 马凤英 2013 物理学报 **62** 084208]
- [37] Nie W J, Lan Y H, Li Y, Zhu S Y 2014 *Sci. China-Phys. Mech. Astron.* **57** 2276
- [38] Svedendahl M, Verre R, Käll M 2014 *Light: Science & Applications* **3** e220
- [39] Li W F, Du J J, Wen R J, Yang P F, Li G, Zhang T C 2014 *Acta. Phys. Sin.* **63** 244205 (in Chinese) [李文芳, 杜金锦, 文瑞娟, 杨鹏飞, 李刚, 张天才 2014 物理学报 **63** 244205]
- [40] Sheng Y B, Liu J, Zhao S Y, Zhou L 2013 *Chin. Sci. Bull.* **58** 3507
- [41] Du J J, Li W F, Wen R J, Li G, Zhang T C 2013 *Acta Phys. Sin.* **62** 194203 (in Chinese) [杜金锦, 李文芳, 文瑞娟, 李刚, 张天才 2013 物理学报 **62** 194203]
- [42] Wang C, He L Y, Zhang Y, Ma H Q, Zhang R 2013 *Sci. China-Phys. Mech. Astron.* **56** 2054
- [43] Arnold S, Khoshshima M, Teraoka I, Holler S, Vollmer F 2003 *Opt. Lett.* **28** 272
- [44] Hunt H K, Armani A M 2010 *Nanoscale* **2** 1544
- [45] Vollmer F, Braun D, Libchaber A, Khoshshima M, Teraoka I, Arnold S 2002 *Appl. Phys. Lett.* **80** 4057
- [46] Sun Y, Fan X 2011 *Anal. Bioanal. Chem.* **399** 205
- [47] Armani A M, Kulkarni R P, Fraser S E, Flagan R C, Vahala K J 2007 *Science* **317** 783
- [48] Washburn A L, Luchansky M S, Bowman A L, Bailey R C 2009 *Anal. Chem.* **82** 69
- [49] Shopova S, Rajmangal R, Nishida Y, Arnold S 2010 *Rev. Sci. Instrum.* **81** 103110

- [50] Lu T, Lee H, Chen T, Herchak S, Kim J H, Fraser S E, Flagan R C, Vahala K 2011 *Proc. Natl. Acad. Sci.* **108** 5976
- [51] Santiago-Cordoba M A, Boriskina S V, Vollmer F, Demirel M C 2011 *Appl. Phys. Lett.* **99** 073701
- [52] Zhu J, Özdemir S K, He L, Chen D R, Yang L 2011 *Opt. Express* **19** 16195
- [53] Dantham V R, Holler S, Kolchenko V, Wan Z, Arnold S 2012 *Appl. Phys. Lett.* **101** 043704
- [54] Santiago-Cordoba M A, Cetinkaya M, Boriskina S V, Vollmer F, Demirel M C 2012 *J. Biophotonics* **5** 629
- [55] Kim W, Özdemir S K, Zhu J, Monifi F, Coban C, Yang L 2012 *Opt. Express* **20** 29426
- [56] Yi X, Xiao Y F, Feng Y, Qiu D Y, Fan J Y, Li Y, Gong Q 2012 *J. Appl. Phys.* **111** 114702
- [57] Lin S, Crozier K B 2013 *ACS Nano* **7** 1725
- [58] Dantham V R, Holler S, Barbre C, Keng D, Kolchenko V, Arnold S 2013 *Nano Lett.* **13** 3347
- [59] Swaim J D, Knittel J, Bowen W P 2013 *Appl. Phys. Lett.* **102** 183106
- [60] Shao L, Jiang X F, Yu X C, Li B B, Clements W R, Vollmer F, Wang W, Xiao Y F, Gong Q 2013 *Adv. Mater.* **25** 5616
- [61] Knittel J, Swaim J D, McAuslan D L, Brawley G A, Bowen W P 2013 *Sci. Rep.* **3** 2947
- [62] Wang T, Cao C, Wang C 2013 *Sci. China Inform. Sci.* **56** 1
- [63] Shopova S, Rajmangal R, Holler S, Arnold S 2011 *Appl. Phys. Lett.* **98** 243104
- [64] Baaske M D, Foreman M R, Vollmer F 2014 *Nat. Nanotechnology* **9** 933
- [65] Wu Y Q, Vollmer F 2014 *Cavity-Enhanced Spectroscopy and Sensing* (New York: Springer) **179** pp323–349
- [66] Yang L, Carmon T, Min B, Spillane S M, Vahala K J 2005 *Appl. Phys. Lett.* **86** 091114
- [67] Yang J, Guo L J 2006 *IEEE J. Sel. Top. Quant.* **12** 143
- [68] He L, Özdemir S K, Zhu J, Yang L 2010 *Phys. Rev. A* **82** 053810
- [69] He L, Özdemir S K, Xiao Y F, Yang L 2010 *IEEE J. Quantum Electron* **46** 1626
- [70] He L, Özdemir S K, Zhu J, Yang L 2010 *Opt. Lett.* **35** 256
- [71] He L, Özdemir S K, Yang L 2013 *Laser. Photon. Rev.* **7** 60
- [72] Salzenstein P, Mortier M, Sérrier-Brault H, Henriët R, Coillet A, Chembo Y K, Rasoloniaina A, Dumeige Y, Féron P 2013 *Phys. Scripta.* **157** 014024
- [73] He L, Özdemir S K, Zhu J, Monifi F, Yilmaz H, Yang L 2013 *New J. Phys.* **15** 073030
- [74] Lei F, Peng B, Özdemir S K, Long G L, Yang L 2014 *Appl. Phys. Lett.* **105** 101112
- [75] Bradley J D, Hosseini E S, Purnawirman P, Su Z, Adam T N, Leake G, Coolbaugh D, Watts M R 2014 *Opt. Express* **22** 12226
- [76] Rasoloniaina A, Huet V, Nguyen T K N, Le Cren E, Mortier M, Michely L, Dumeige Y, Féron P 2014 *Sci. Rep.* **4** 4023
- [77] Özdemir S K, He L, Zhu J, Monifi F, Kim W, Kenechukwu O, Yilmaz H, Huang S, Yang L 2013 *SPIE OPTO* 86270N
- [78] Özdemir S K, Zhu J, Yang X, Peng B, Yilmaz H, He L, Monifi F, Huang S H, Long G L, Yang L 2014 *Proc. Natl. Acad. Sci.* **111** E3836
- [79] Spillane S M, Kippenberg T J, Vahala K J 2002 *Nature* **415** 621
- [80] Boyd R W 2003 *Nonlinear Optics* (2nd ed.) (London: Academic Press)
- [81] Kippenberg T J, Spillane S M, Armani D K, Vahala K J 2004 *Opt. Lett.* **29** 1224
- [82] Rong H, Jones R, Liu A, Cohen O, Hak D, Fang A, Paniccia M 2005 *Nature* **433** 725
- [83] Troccoli M, Belyanin A, Capasso F, Cubukcu E, Sivco D L, Cho A Y 2005 *Nature* **433** 845
- [84] Sennaroglu A, Kiraz A, DüNDAR M, Kurt A, Demirel A 2007 *Opt. Lett.* **32** 2197
- [85] Jiang X F, Xiao Y F, Yang Q F, Shao L, Clements W R, Gong Q 2013 *Appl. Phys. Lett.* **103** 101102
- [86] Li B B, Xiao Y F, Yan M Y, Clements W R, Gong Q 2013 *Opt. Lett.* **38** 1802
- [87] Li B B, Clements W R, Yu X C, Shi K, Gong Q, Xiao Y F 2014 *Proc. Natl. Acad. Sci.* **111** 14657
- [88] Vahala K J 2003 *Nature* **424** 839
- [89] Gorodetsky M L, Ilchenko V S 1999 *J. Opt. Soc. Am. B* **16** 147
- [90] Bogaerts W, De Heyn P, van Vaerenbergh T, De Vos K, Kumar Selvaraja S, Claes T, Dumon P, Bienstman P, van Thourhout D, Baets R 2012 *Laser. Photon. Rev.* **6** 47
- [91] Zou C L, Dong C H, Cui J M, Sun F W, Yang Y, Wu X W, Han Z F, Guo G C 2012 *Sci. China-Phys. Mech. Astron.* **42** 1155 (in Chinese) [邹长铃, 董春华, 崔金明, 孙方稳, 杨勇, 吴晓伟, 韩正甫, 郭光灿 2012 中国科学: 物理学 力学 天文学 **42** 1155]
- [92] Xiao Y F, Zou C L, Li Y, Dong C H, Han Z F, Gong Q 2010 *Frontiers of Optoelectronics in China* **3** 109
- [93] McLachlan A D, Meyer F P 1987 *Appl. Opt.* **26** 1728
- [94] Cai M, Painter O, Vahala K J 2000 *Phys. Rev. Lett.* **85** 74
- [95] Little B E, Chu S T, Haus H A, Foresi J, Laine J P 1997 *J. Lightwave Technol.* **15** 998
- [96] Gorodetsky M, Ilchenko V 1994 *Opt. Commun.* **113** 133
- [97] Yariv A 2000 *Electron. Lett.* **36** 321
- [98] Dumeige Y, Trebaol S, Ghisa L, Nguyễn T K N, Tavernier H, Féron P 2008 *J. Opt. Soc. Am. B* **25** 2073
- [99] Weiss D, Sandoghdar V, Hare J, Lefevre-Seguin V, Raymond J M, Haroche S 1995 *Opt. Lett.* **20** 1835
- [100] Mazzei A, Götzinger S, Menezes L d S, Zumofen G, Benson O, Sandoghdar V 2007 *Phys. Rev. Lett.* **99** 173603

- [101] He L, Özdemir S K, Zhu J, Yang L 2010 *Appl. Phys. Lett.* **96** 221101
- [102] Yi X, Xiao Y F, Liu Y C, Li B B, Chen Y L, Li Y, Gong Q 2011 *Phys. Rev. A* **83** 023803
- [103] Rong H, Xu S, Cohen O, Raday O, Lee M, Sih V, Paniccia M 2008 *Nat. Photonics* **2** 170
- [104] Stiles P L, Dieringer J A, Shah N C, Van Duyne R P 2008 *Annu. Rev. Anal. Chem.* **1** 601
- [105] Grudinin I S, Maleki L 2008 *J. Opt. Soc. Am. B* **25** 594
- [106] Liang D, Fiorentino M, Okumura T, Chang H H, Spencer D T, Kuo Y H, Fang A W, Dai D, Beausoleil R G, Bowers J E 2009 *Opt. Express* **17** 20355
- [107] Lu T, Yang L, Carmon T, Min B 2011 *IEEE J. Quantum. Electron.* **47** 320
- [108] Chistiakova M V, Armani A M 2012 *Opt. Lett.* **37** 4068
- [109] Monifi F, Özdemir S, Friedlein J, Yang L 2013 *Photonic. Tech. L.* **25** 1458
- [110] Agrawal G P 2007 *Nonlinear Fiber Optics* (4th ed.) (London: Academic Press)
- [111] Wiersig J 2014 *Phys. Rev. Lett.* **112** 203901
- [112] Yu X C, Li B B, Wang P, Tong L, Jiang X F, Li Y, Gong Q, Xiao Y F 2014 *Adv. Mater.* **26** 7462
- [113] Xu Q, Lipson M 2007 *Opt. Express* **15** 924
- [114] Monifi F, Özdemir S K, Yang L 2013 *Appl. Phys. Lett.* **103** 181103
- [115] Peng Y C, Zhao X W, Fu G S, Wang Y L 2004 *Chin. J. Quan. Elec.* **21** 273 (in Chinese) [彭英才, Zhao X W, 傅广生, 王英龙 2004 量子电子学报 **21** 273]
- [116] Zhang C Y, Liu X Y, Ma F Y, Zhu W B, Wang L J 2006 *Acta Opt. Sin.* **26** 111 (in Chinese) [张春玉, 刘星元, 马凤英, 朱万彬, 王立军 2006 光学学报 **26** 111]
- [117] Huang Y, Yang Y, Wang S, Xiao J, Che K, Du Y 2009 *Sci. China. E* **52** 3447
- [118] Dong C H, Shen Z, Zou C L, Guo G C 2015 *Sci. China. Phys. Mech. Astron.* **58** 050308

SPECIAL ISSUE — Quantum metrology and control

Nano-partical sensing based on Raman laser in the whispering gallery mode microresonators*

Wang Tao¹⁾# Yang Xu¹⁾# Liu Xiao-Fei¹⁾ Lei Fu-Chuan¹⁾
Gao Ming¹⁾ Hu Yun-Qi¹⁾ Long Gui-Lu^{1)2)3)†}

1) (State Key Laboratory for Low-dimensional Quantum Physics, Department of Physics,
Tsinghua University, Beijing 100084, China)

2) (Tsinghua National Laboratory for Information Science and Technology, Beijing 100084, China)

3) (Collaborative Innovation Center of Quantum Matter, Beijing 100084, China)

(Received 19 May 2015; revised manuscript received 17 August 2015)

Abstract

In this review, the recent development of nano-particle detection using Raman lasers in the whispering gallery mode microcavities is presented. The fabrication of the microcavity, the working principles are given and the recent experimental progress is reviewed. Recent years, the demand for nano-particle sensing techniques was increased, since more and more nano-particles of sizes between 1 nm and 100 nm are employed in areas such as biomedical science and homeland security. In these applications, label-free, rapid and real-time sensing requirements are necessary. Whispering gallery mode (WGM) micro-resonators have high-quality factors and small mode volumes, and have achieved significant progress in the nano-particle sensing field. There are various measurement mechanisms for nano-particle sensing using WGM cavities, including resonance mode broadening, resonance frequency shift, and mode splitting changes. The key point to improve sensing limit is to narrow the resonance mode linewidth, which means reducing the optical cavity losses, or equivalently to enhance quality factor. An important approach to narrowing the mode linewidth is to fabricate active resonators that provide gain and produce laser by doping rare earth ions. According to Schawlow-Townes formula, the linewidth of corresponding laser will be narrower than that of the original optical cavity mode. Active resonators have outstanding performances in particle detection. However, doping process requires complex fabrication steps, and rare earth ions laser demands a certain pumping wavelength band. A new approach is to use low threshold Raman laser in an optical micro-resonator. The binding of nano-particles on WGM micro-resonator induces resonance mode splitting. Raman lasers of the two splitting modes irradiate the same photon detector and generate a beat note signal. By monitoring the jumps of the two split mode differential signals, one can easily recognize the nano-particle binding events, thus achieving real time nanoparticle detection. Using Raman laser in WGM cavities in nano-particle sensing is no longer limited by the stringent requirement of a suitable pump light source, which greatly expands the applicability of this method in different environments. It does not need additional fabrication process as compared with the rare earth doping method. It has also better biological compatibility, which makes it a promising technique in biomedical applications. Recently, two groups, i.e., Li *et al.* (*Proc. Natl. Acad. Sci.* **111** 14657) from Peking University, and

These authors contributed equally to this work.

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11175094, 11474181, 91221205) and the National Basic Research Program of China (Grant No. 2011CB9216002).

† Corresponding author. E-mail: gllong@mail.tsinghua.edu.cn

Özdemir *et al.* from University of Washington and Tsinghua University, have successfully completed the demonstration experiments. Özdemir *et al.* (*Proc. Natl. Acad. Sci.* **111** E3836) have achieved a nano-particle sensing limit down to 10 nm without labelling, and Li *et al.* (*Proc. Natl. Acad. Sci.* **111** 14657) realized real-time detection of single nano-particles with WGM cavity Raman laser in an aqueous environment. Both experiments have shown the great potential of the new approach. The new technique can also be used in other photonic systems, such as the photonic crystal or metal materials.

Keywords: whispering gallery mode microcavity, nanoparticle sensing, Raman laser, optical sensor

PACS: 42.55.Sa, 42.55.Ye, 42.81.Pa

DOI: [10.7498/aps.64.164212](https://doi.org/10.7498/aps.64.164212)