18

Фотонные кристаллы с произвольным числом фотонных запрещенных зон на основе пористого оксида кремния с плавным изменением показателя преломления

© С.Е. Свяховский, Н.И. Пышков

МГУ им. М.В. Ломоносова, Физический факультет, 119991 Москва, Россия e-mail: sse@shg.ru

Поступила в редакцию 24.04.2023 г. В окончательной редакции 02.06.2023 г. Принята к публикации 02.06.2023 г.

> Экспериментально продемонстрированы одномерные фотонные кристаллы с произвольным числом и спектральным положением фотонных запрещенных зон в оптическом спектральном диапазоне. Показано отсутствие взаимного влияния фотонных запрещенных зон. В спектральном отклике созданных многочастотных фотонных кристаллов не обнаружено каких-либо особенностей, соответствующих кратным или комбинационным частотам.

> Ключевые слова: фотонные кристаллы, пористый кремний, пористый оксид кремния, фотонные запрещенные зоны.

DOI: 10.61011/OS.2023.08.56306.4779-23

1. Введение

Фотонные кристаллы (ФК) — оптические среды, имеющие пространственную периодическую модуляцию показателя преломления в одном или нескольких измерениях [1]. Периодичность ФК приводит к появлению в их оптическом спектре фотонной запрещенной зоны (ФЗЗ) — области частот, в которой распространение света невозможно [2]. Благодаря ФЗЗ фотонные кристаллы используются для эффективного управления светом, концентрации и усиления поля световой волны, усиления линейных и нелинейных оптических эффектов.

Во многих задачах требуется одновременное усиление оптического отклика на нескольких частотах, например генерация второй [3] и третьей [4] оптических гармоник, каскадная генерация гармоник [5]. В таких прикладных областях, как лазерная техника [6], изготовление фоточувствительных матриц [7], спектральная фильтрация [8], защита от мощного лазерного излучения, требуются ФК одновременно с несколькими ФЗЗ, причем их требуемое спектральное положение может быть практически любым в зависимости от решаемой задачи.

Было предложено несколько различных методик создания ФК с множественными ФЗЗ. Комбинирование нескольких фотоннокристаллических решеток в одну [9,10] по разнообразным логическим правилам позволяет получить несколько ФЗЗ, но вместе с ними в спектре присутствуют паразитные явления: кратные частоты, имеющие место в любой фотонной решетке, профиль которой отличается от идеально гармонической функции [11], комбинационные частоты, возникающие при сложении двух пространственных решеток [12]. Другой подход состоит в создании квазикристаллов [13] и детерминированных апериодических структур [14,15], которые нашли успешное применение в задачах усиления сигнала фотолюминесценции [16], оптической фильтрации [17] и многих других.

Ранее в работе [10] авторы экспериментально продемонстрировали квазипериодические двухчастотные фотонные кристаллы на основе пористого оксида кремния. Использовалась двухуровневая модуляция показателя преломления, по причине чего в спектре коэффициента отражения присутствовали артефакты в виде кратных и комбинационных частот, которые удалось уменьшить благодаря правильному аналитическому подбору функции модуляции показателя преломления. Однако для реализации трех и более ФЗЗ на одном кристалле метод двухуровневой модуляции оказался непригоден.

В этой работе мы демонстрируем квазипериодические многочастотные фотонные кристаллы, спектральный отклик которых имеет три и более независимые ФЗЗ. Кристаллы изготовлены при помощи электрохимического травления кремния с непрерывной модуляцией тока травления, благодаря чему была получена непрерывная пространственная модуляция показателя преломления. В результате пространственный профиль показателя преломления аппроксимирует гармоническую функцию или сумму нескольких таковых с точностью достаточной для изготовления качественных фотонных структур.

2. Методы

Теоретическое вычисление спектров коэффициента отражения фотонных кристаллов выполнялось при по-

мощи метода матриц распространения, описанного, например, в [18]. Непрерывное изменение показателя преломления приближалось ступенчатой функцией, таким образом, структура фотонного кристалла аппроксимировалась одномерной многослойной последовательностью. Известно [19], что этот метод является корректным. При расчете была выбрана толщина единичного слоя 20 nm. Шаг моделирования по спектру составлял 1 nm, если не указано иное.

Экспериментальные образцы фотонных кристаллов изготовлялись по методу электрохимического травления кремния, процедура электрохимического травления детально описана в [20]. В этой работе использованы следующие параметры: используется непрерывная модуляция плотности тока травления, минимальная и максимальная плотности токов $j_{\rm min} = 40 \,\mathrm{mA/cm^2}$ и $j_{\rm max} = 180 \,\mathrm{mA/cm^2}$, концентрация плавиковой кислоты в растворе электролита 28%. Фотонные кристаллы формировались благодаря периодической пространственной модуляции показателя преломления.

При электрохимическом травлении происходит формирование пор внутри кремния. Для использованного в работе кремния с кристаллографической ориентацией (001) рост пор происходит вертикально вниз. Диаметр пор монотонно зависит от плотности тока травления, поэтому им можно управлять в процессе травления, создавая пространственную модуляцию толщины пор и, следовательно, плотности тока травления.

Размер пор в изготовленном пористом кремнии в рассматриваемом диапазоне плотностей токов составлял от 20 до 50 nm, что было измерено при помощи сканирующего электронного микроскопа [21]. Этот размер пор много меньше длины волны излучения видимого диапазона, что позволяет рассматривать пористую среду как оптически однородную.

После изготовления образцы фотонных кристаллов (ΦK) подвергались термическому окислению, в результате которого кремний окислялся до оксида кремния. Пористая структура образцов при этом сохранялась. Так как показатель преломления сплошного слоя оксида кремния меньше, чем показатель преломления кремния, то при окислении показатель преломления пористого вещества уменьшается.

Значения показателей преломления итогового пористого оксида кремния были измерены по интерференционным спектрам однородных слоев толщиной $10\,\mu$ m без модуляции показателя преломления. Для плотностей тока j_{\min} , j_{\max} показатели преломления составили 1.22 и 1.14, середина этого диапазона $n_0 = 1.18$ принималась как среднее значение показателя преломления, на фоне которой применялась модуляция.

Спектры коэффициента отражения фотонных структур измерялись по методике, описанной в [20] и [10]. Кратко: все спектры измерялись при нормальном падении света на образец, источником света служила галогеновая лампа со спектром 400–1200 nm, детектром спектрометр OceanInsight QEPro.

Рис. 1. Измеренный спектр коэффициента отражения ФК с синусоидальной пространственной модуляцией показателя преломления в сравнении с вычисленным. На вставке — пространственный профиль показателя преломления.

3. Спектр синусоидальной решетки

Представим прозрачную среду со средним показателем преломления $n_0 = 1.18$ и оптической толщиной $n_0L = 50 \,\mu$ m. Пусть координатная ось *x* отложена в глубину этой среды и измеряется в единицах оптического пути. Введем в этой среде пространственную модуляцию показателя преломления по гармоническому закону вида

$$n(x) = n_0 + \delta n \sin\left(\frac{4\pi}{\lambda_0}\right),$$
 (1)

где δn — амплитуда модуляции, λ_0 — некоторая длина волны. Модуль вектора обратной решетки такой структуры $k = 4\pi/\lambda_0$. Известно [22], что когда на структуру по нормали падает световая волна с волновым вектором, модуль которого вдвое меньше k, а именно $2\pi/\lambda_0$, эта волна будет испытывать дифракционное отражение в обратном направлении. Поэтому на длине волны λ_0 в спектре коэффициента отражения будет существовать ФЗЗ.

Для проверки используемых теоретических и экспериментальных методов был изготвлен ФК с модуляцией *n* согласно (1) с параметрами $\lambda_0 = 850$ nm, $\delta n = 0.02$, измерен и вычислен его спектр отражения (рис. 1).

Полученный в эксперименте образец имеет центр запрещенной зоны на длине волны 853.5 nm. Теоретический спектр был построен также для этой длины волны. На вставке показан профиль показателя преломления, имеющий вид синусоиды, аппроксимированный ступенчатой функцией, по которой был вычислен спектр отражения многослойной структуры.

За исключением сдвига на 3.5 nm относительно запланированного, изготовленный ФК полностью соответствует ожиданиям, что видно из сопоставления экспери-



ментального и теоретического спектров. Форма ФЗЗ по ширине и амплитуде соответствует расчетной, период боковых осцилляций совпадает с теоретическим.

Отметим, что как в теоретическом, так и в экспериментальном спектрах полностью отсутствуют паразитные зоны высоких порядков. Несимметричность синусоиды проявилась бы в наличии зоны второго порядка, которая если и присутствует в реальном образце, то имеет амплитуду меньше экспериментальных шумов.

В теоретическом спектре зоны высоких порядков отсутствуют, что говорит о том, что аппроксимация синусоиды ступенчатой функцией не влияет на результаты расчетов.

4. Комбинационные частоты и высшие гармоники

Рассмотрим квазипериодическую двухчастотную решетку показателя преломления вида

$$n(x) = n_0 + \delta n \sum_{j=1}^{N} \sin\left(\frac{4\pi}{\lambda_j}\right), \qquad (2)$$

где N = 2, и проверим есть ли в ее спектре высшие гармоники и комбинационные частоты. В рамках этой работы было выполнено численное моделирование двухчастотных решеток в диапазоне толщин кристалла L от 100 до 500 µm, частоты решеток варьировались в пределах оптического диапазона: λ_1 оставалась постоянной и была равна 700 nm, λ_2 менялась от 710 до 1400 nm, при этом спектральные диапазоны, соответствующие комбинационным частотам и высшим гармоникам, моделировались с повышенным спектральным разрешением 0.01 nm.

Проявление комбинационных частот в спектре ожидается на длинах волн

$$\frac{1}{\lambda_{\pm}} = \frac{1}{\lambda_1} \pm \frac{1}{\lambda_2}.$$
 (3)

По результатам моделирования комбинационные частоты и высшие гармоники в спектре практически отсутствовали. Эти эффекты слишком тонкие и могут наблюдаться только в высокодобротных кристаллах, что означает большую оптическую толщину кристалла и строгое соблюдение периодичности. Удалось их наблюдать в расчетном спектре только при значительном повышении оптической толшины и модуляции показателя преломления (рис. 2).

Параметры моделирования при этом были $\lambda_2 = 990 \,\mathrm{nm},$ $\lambda_1 = 700$ nm, $\delta n = 0.05L = 500 \,\mu \text{m}.$ Отметим, что последние два параметра являются для предельными технологически допустимыми рассматриваемой технологии изготовления образцов.

Ожидаемые спектральные положения комбинационных частот, согласно (3), находятся на длинах волн

1.0 0.2 0 1 0.8 0 Reflectance 409 410 411 0.6 0.03 0.02 0.4 0.01 0.2 2390 2400 2380 0 0 500 1000 1500 2000 2500 Wavelength, nm

Рис. 2. Вычисленный спектр коэффициента отражения квазипериодического двухчастотного ФК с заданными длинами волн $\lambda_1 = 700 \,\text{nm}, \ \lambda_2 = 990 \,\text{nm}.$ На вставке — увеличенные диапазоны 409-411 nm, 2375-2405 nm.

 $\lambda_{+} = 410$ nm, $\lambda_{-} = 2390$ nm. На вставках рис. 2 показаны соответствующие фрагменты спектра.

Итак, при максимально технологически допустимых контрасте показателя преломления и толщине кристалла получено, что суммарная частота имеет вид пика шириной 0.1 nm, а разностная частота — вид провала глубиной 0.015. Помимо этого, были обнаружены два максимума на длинах волн 350 и 495 nm, которые соответствуют вторым гармоникам основных частот. Их амплитуда меньше, чем амплитуда максимума λ_+ . Было принято решение, что обнаруживать в эксперименте такие тонкие эффекты очень сложно и особого смысла не имеет, поскольку эффекты паразитные.

Отметим также, что найденные значения длин волн, при которых комбинационные максимумы имеют максимальную амплитуду, находятся в приблизительном соотношении $\lambda_2/\lambda_1 \approx \sqrt{2}$. Такое отношение частот в музыкальной теории считается диссонирующим из-за сильных комбинационных гармоник.

5. Реализация структур с произвольными запрешенными зонами

Для реализации многозонных ФК была смоделирована и экспериментально создана серия трехчастотных ФК с модуляцией вида (2)) при N = 3. Были выбраны фиксированные значения $\lambda_1 = 475$ nm, $\lambda_3 = 950$ nm, величина λ_2 принимала 7 значений из промежутка [λ_1 , λ_3], выбранных эквидистантно.

Теоретические спектры коэффициентов отражения серии 7 образцов показаны на рис. 3, спектр каждого образца проявляет 3 запрещенные зоны без каких-либо





Рис. 3. Вычисленные спектры коэффициента отражения серии ФК с тремя ФЗЗ. Графики смещены на единицу друг относительно друга.



Рис. 4. Участок пространственного профиля показателей преломления ΦK с тремя $\Phi 33$ в диапазоне $50-54 \mu m$, образцы N_{2} 2 и N_{2} 6.

дополнительных спектральных особенностей. На рис. 4 показана для примера структура образцов 2 и 6, а именно профиль показателя преломления, рассчитанный согласно (2). Профиль имеет вид квазипериодической многочастотной гармонической функции, аппроксимированной ступенчатой функцией.

Данная серия из 7 образцов была реализована экспериментально. На рис. 5 показаны соответствующие спектры коэффициентов отражения.

Экспериментальная реализация серии 7 образцов оправдывает теоретические ожидания: в спектре имеются три запрещенные зоны, крайние из них находятся в одинаковых спектральных диапазонах 470–480 nm и 940–960 nm соответственно, средняя зона смещается от образца к образцу, положение средней зоны примерно эквидистантно. В спектрах отсутствуют другие спектральные особенности, имеются незначительные боковые осцилляции.

По итогам вышеизложенного был создан экспериментальный образец с пятью запрещенными зонами (рис. 6), крайние из них находятся на длинах волн $\lambda_1 = 475$ nm, $\lambda_5 = 950$ nm, средние расположены в этом диапазоне эквидистантно.

Вначале была задана последовательность показателя преломления (2) с N = 5. Эта последовательность в виде одной и той же таблицы показателей преломления и толщин слоев использовалась как для теоретического расчета, так и для числового управления программой установки электрохимического травления. На рис. 6 по-казано сравнение теоретического и экспериментального спектров. Из графика следует, что спектральное поло-



Рис. 5. Измеренные спектры коэффициента отражения ФК с тремя ФЗЗ. Графики смещены на единицу друг относительно друга.



Рис. 6. Экспериментально измеренный спектр коэффициента отражения фотонного кристалла с пятью запрещенными зонами в сравнении с теоретически вычисленным.

жение пяти экспериментальных максимумов отличается от расчетных на 2.3, 2.9, 2.9, 1.9, 2.4 nm соответственно. Считаем такое соответствие теоретических и экспериментальным результатов очень хорошим.

В данном случае мы могли выбрать произвольное расположение длин волн центров ФЗЗ, поэтому отметим, что эквидистантное расположение зон по длинам волн является более сложным в реализации и требовательным к качеству образца, чем например эквидистантное расположение по частотам, поскольку в последнем случае кратные и комбинационные частоты могут быть замаскированы другими зонами.

6. Заключение

В работе продемонстрирован метод изготовления многозонных ΦK с произвольным числом запрещенных зон. Метод отличается полным отсутствием интерференции между зонами, при разумных экспериментальных параметрах в спектре коэффициента отражения не обнаруживается кратных и комбинационных частот. Экспериментально получены образцы ΦK высокого качества, имеющие 3 и 5 зон в произвольных участках спектра.

Финансирование работы

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского научного фонда, проект 21-72-10103, https://rscf.ru/project/21-72-10103/.

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] E. Yablonovitch. J. Modern Optics, 41 (2), 173 (1994).
- [2] J.D. Joannopoulos, P.R. Villeneuve, S. Fan. Solid State Commun., **102** (2–3), 165 (1997).
- [3] A. Fedyanin, O. Aktsipetrov, D. Kurdyukov, V. Golubev, M. Inoue. App. Phys. Lett., 87 (15), 151111 (2005).
- [4] P.P. Markowicz, H. Tiryaki, H. Pudavar, P.N. Prasad, N.N. Lepeshkin, R.W. Boyd. Phys. Rev. Lett., 92 (8), 083903 (2004).
- [5] Y. Sheng, S.M. Saltiel, K. Koynov. Opt. Lett., 34 (5), 656 (2009).
- [6] S. Noda, K. Kitamura, T. Okino, D. Yasuda, Y. Tanaka. IEEE J. Selected Topics in Quantum Electronics, 23 (6), 1 (2017).
- [7] Z. Wang, S. Yi, A. Chen, M. Zhou, T.S. Luk, A. James, J. Nogan, W. Ross, G. Joe, A. Shahsafi et al. Nature Commun., 10 (1), 1020 (2019).
- [8] F. Aguayo-Ríos, F. Villa-Villa, J. Gaspar-Armenta. Opt. Commun., 244 (1-6), 259 (2005).
- [9] G. Alagappan, C. Png. Nanoscale, 7 (4), 1333 (2015).
- [10] A.M. Vyunishev, P.S. Pankin, S.E. Svyakhovskiy, I.V. Timofeev, S.Y. Vetrov. Opt. Lett., 42 (18), 3602 (2017).
- [11] K.S. Napolskii, A.A. Noyan, S.E. Kushnir. Opt. Mater., 109, 110317 (2020).

- [12] G. Alagappan, C. Png. Sci. Rep., 6 (1), 1 (2016).
- [13] D. Lusk, I. Abdulhalim, F. Placido. Opt. Commun., 198 (4–6), 273 (2001).
- [14] L. Dal Negro. *Optics of aperiodic structures. fundamentals and device applications* (CRC press, 2013).
- [15] A. Poddubny, E. Ivchenko. Physica E. Low-dimensional Systems and Nanostructures, 42 (7), 1871 (2010).
- [16] K. Zhang, Y. Xu, T.-Y. Chen, H. Jing, W.-B.Shi, B. Xiong, R.-W. Peng, M. Wang. Opt. Lett., 41 (24), 5740 (2016).
- [17] M.S.d. Vasconcelos, P. Mauriz, E.L. Albuquerque. Microelectron. J., 40 (4–5), 851 (2009).
- [18] A. Luce, A. Mahdavi, F. Marquardt, H. Wankerl. JOSA A, 39 (6), 1007 (2022).
- [19] P. Baumeister. Appl. Opt., 25 (16), 2644 (1986).
- [20] S.E. Svyakhovskiy, A.I. Maydykovsky, T.V. Murzina. J. App. Phys., **112** (1), 013106 (2012).
- [21] A.Y. Bobrovsky, S. Svyakhovskiy, I.V. Roslyakov, A.A. Piryazev, D.A. Ivanov, V.P. Shibaev, M. Cigl, V. Hamplova, A. Bubnov. ACS App. Polymer Mater., 4 (10), 7387 (2022).
- [22] A. Yariv, P. Yeh. Optical waves in crystals (Wiley, New York, 1984), ch. 6, vol. 5.