10

Пространственно-периодические гибридные структуры на основе пленок опала, покрытых слоем a-Si:C:H: синтез и излучающие свойства

© С.А. Грудинкин, Н.А. Феоктистов, В.Г. Голубев, С.И. Павлов, А.А. Дукин, А.Б. Певцов

ФТИ им. А.Ф. Иоффе,
Санкт-Петербург, Россия

e-mail: grudink@gvg.ioffe.ru

Поступила в редакцию 23.05.2025 г.
В окончательной редакции 19.06.2025 г.
Принята к публикации 24.10.2025 г.

Исследован люминесцентный отклик двумерного фотонного кристалла на основе гибридной структуры, сформированной из пленки синтетического опала, покрытой излучающим слоем гидрогенизированного аморфного сплава кремний-углерод. Спектрально-угловые зависимости интенсивности фотолюминесценции синтезированной структуры зарегистрированы методом спектральной фурье-микроскопии. В спектрально–угловых зависимостях интенсивности фотолюминесценции в видимом диапазоне длин волн наблюдались характерные пики, появление которых связано с взаимодействием излучения нанокластеров a-Si:C:H с излучательными модами двумерного фотонного кристалла, характеризующимися малой групповой скоростью.

Ключевые слова: фотонный кристалл, спектральная фурье-микроскопия, фотолюминесценция, гидрогенизированный аморфный сплав кремний-углерод.

DOI: 10.61011/OS.2025.10.61945.8015-25

Введение

В течение последних лет активно ведутся работы по созданию новых фотонных структур, в которых реализуется эффективное резонансное взаимодействие излучения с активной средой [1]. Двумерные ($2D$) фотонные кристаллы (ФК) считаются одними из наиболее перспективных диэлектрических сред для достижения усиления светового излучения за счет увеличения вероятности излучательной рекомбинации, описываемой фактором Парселла [2]. Среди различных подходов, предлагаемых для увеличения интенсивности сигнала люминесценции, один из наиболее перспективных основан на взаимодействии излучательных мод ФК, имеющих малую групповую скорость, с люминесцентными центрами, излучение которых находится по энергии внутри светового конуса выше фотонной запрещенной зоны $2D$ ФК [3]. Для реализации такого взаимодействия не требуется формирования микрорезонатора, что существенно упрощает изготовление подобных структур. Так, например, в работе [2] приводятся данные об увеличении интенсивности ФЛ в спектральной области $800-1100$ nm в кремниевом $2D$ ФК с треугольной решеткой из воздушных отверстий. В публикациях [4,5] продемонстрирован рост интенсивности ФЛ в $2D$ ФК, сформированных на основе кремниевых структур с самоформирующимися нановстровками Ge(Si).

В настоящей работе исследованы спектрально-угловые зависимости интенсивности фотолюминесцентного отклика гибридных структур, сформированных из пленок синтетического опала, покрытых люминесцентным слоем гидрогенизированного аморфного сплава кремний-углерод (a-Si:C:H). Слой a-Si:C:H и лежащий под ним верхний монослой плотноупакованных в гексагональную решетку сферических частиц аморфного кремнезема (a-SiO_2) образуют $2D$ фотонно-кристаллическую структуру. В данной структуре роль излучателя играет слой a-Si:C:H, демонстрирующий интенсивную ФЛ в видимом диапазоне длин волн. Спектральное положение контура ФЛ можно легко варьировать, изменяя содержание углерода в пленке a-Si:C:H. Полная ширина на полувысоте (FWHM) контура ФЛ a-Si:C:H достигает значения $0.6-0.7$ eV. Высокое значение FWHM можно объяснить тем, что обогащенные углеродом пленки представляют собой гетерогенную мелкозернистую систему, в которой отдельные наногранулы изолированы друг от друга высокими потенциальными барьерами [6].

Методика эксперимента

Пленки опала из плотноупакованных монослоев сферических частиц a-SiO_2 диаметром ~ 520 nm выращены методом жидкофазной коллоидной эпитаксии на подложке плавленого кварца [7]. Дисперсия частиц по размерам диаметров $\sim 5\,\%$. Ростовым слоям, параллельным поверхности подложки, соответствовала кристаллическая плоскость (111). Затем пленки опала покрывались слоем a-$Si_{1-x}C_x$:H методом плазмохимического газофазного осаждения с использованием силан-метан-аргоновой газовой смеси. Соотношение газовых потоков углерод- и кремнийсодержащих компонентов в газовой

смеси соответствовало составу пленки с $x = 0.58$ [8]. Слои a-Si:C:H осаждались одновременно на пленку опала и расположенную рядом кварцевую подложку (референсный образец) в едином технологическом цикле и имели практически одинаковую толщину ~ 240 nm. Максимум полосы ФЛ a-Si:C:H находился на длине волны ~ 700 nm, а FWHM ФЛ составляла ~ 200 nm. Показатель преломления пленки a-Si:C:H определялся с помощью метода спектральной эллипсометрии [8].

Спектрально-угловые интенсивности ФЛ синтезированных $2D$ ФК исследованы методом спектральной фурье-микроскопии [9]. Для возбуждения ФЛ применялся лазерный диод с длиной волны 405 nm, излучение которого фокусировалось на образец со стороны подложки с помощью объектива Olympus 20× с числовой апертурой $N_A = 0.4$. Регистрация сигнала ФЛ осуществлялась с помощью объектива Olympus Plan FL 100× с числовой апертурой $N_A = 0.95$. Измерялся неполяризованный сигнал ФЛ в диапазоне длин волн 400–1100 nm и диапазоне углов выхода излучения относительно нормали к поверхности структуры 0–50° с помощью спектрометра Acton SP2500i с дифракционной решеткой 300 mm^{-1} и ПЗС матрицей (Princeton Instruments PIXIS 256) в качестве детектора. Количество пикселей в ПЗС матрице 256 × 1024. Спектральное разрешение установки составляло 0.2 nm, а угловое разрешение $\sim 0.2°$.

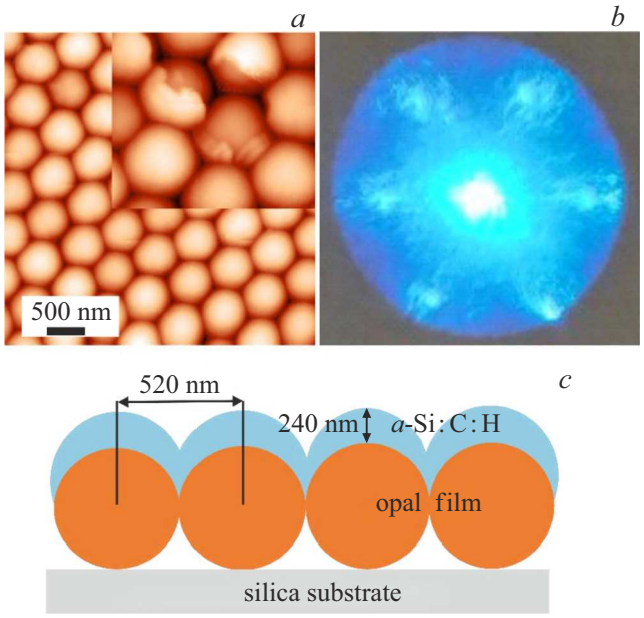


Рис. 1. АСМ-изображение $2D$ ФК a-Si:C:H/опал (a). На вставке фрагмент структуры, где пленка a-Si:C:H частично отсутствует и видны сферы a-SiO_2. Картина дифракции монохроматического света (405 nm) на гибридной структуре a-Si:C:H/опал (b). Схематический вид гибридной структуры, использованной в расчетах. Для простоты показан только один монослой сфер a-SiO_2 (c).

Методика расчета

Спектры оптического отклика пространственно-периодических гибридных структур и зонная диаграмма ФК рассчитывались с помощью модального метода Фурье в форме матрицы рассеяния (rigorous coupled wave analysis — RCWA) [10]. В этом методе решения уравнений Максвелла для каждого слоя находятся путем разложения электрического и магнитного полей на моды Флоке-Фурье (плоские волны). Точное решение может быть представлено в виде бесконечного ряда по этим модам. При расчете особое внимание было уделено выбору адекватной формы покровного слоя a-Si:C:H. Установлено, что модель „полумесяца“ (рис. 1, c) наилучшим образом описывает влияние покровного слоя на оптические свойства исследованных структур [11]. Показатель преломления опаловых сфер определялся из анализа спектров брэгговского отражения исходной опаловой пленки и принимался равным 1.92.

Для расчета спектров излучательной способности слоя a-Si:C:H применялся метод, основанный на электродинамическом принципе взаимности, согласно которому задача сводится к расчету электрического ближнего поля плоской волны в излучающем слое. При таком подходе задача расчета излучения случайно распределенных и случайно поляризованных колеблющихся диполей заменяется задачей, в которой структура освещается поляризованной плоской волной $E_{\text{in}}(x, y, z) = E_x(y) \exp(ik_0 z - i\omega t)$. Тогда результирующее распределение электрического поля в слое a-Si:C:H, $I_j = \iint dxdy(|E_{jx}|^2|E_{jy}|^2)$ дает соответствующую поляризованную составляющую интенсивности излучения [12].

Результаты и обсуждение

На рис. 1, a представлено изображение поверхности гибридной структуры a-Si:C:H/опал, полученное методом атомно-силовой микроскопии (АСМ). Пленка a-Si:C:H равномерно покрывает сферические частицы a-SiO_2, образующие плотноупакованный слой, перпендикулярный направлению оси роста пленки опала [111]. На вставке к рис. 1, a показана дефектная область гибридной структуры, где частично отсутствует пленка a-Si:C:H и видна поверхность сфер a-SiO_2. Измерение рельефа в дефектной области методом АСМ позволило определить толщину пленки a-Si:C:H, составляющую ~ 240 nm.

Картина дифракции монохроматического света (405 nm) при нормальном падении пучка лазера на образец со стороны подложки представлена на рис. 1, b. Вследствие двумерной пространственной периодичности структуры дифракционная картина в такой геометрии наблюдения состоит из шести рефлексов, характеризующихся симметрией C_6 относительно падающего пучка. В эксперименте структура

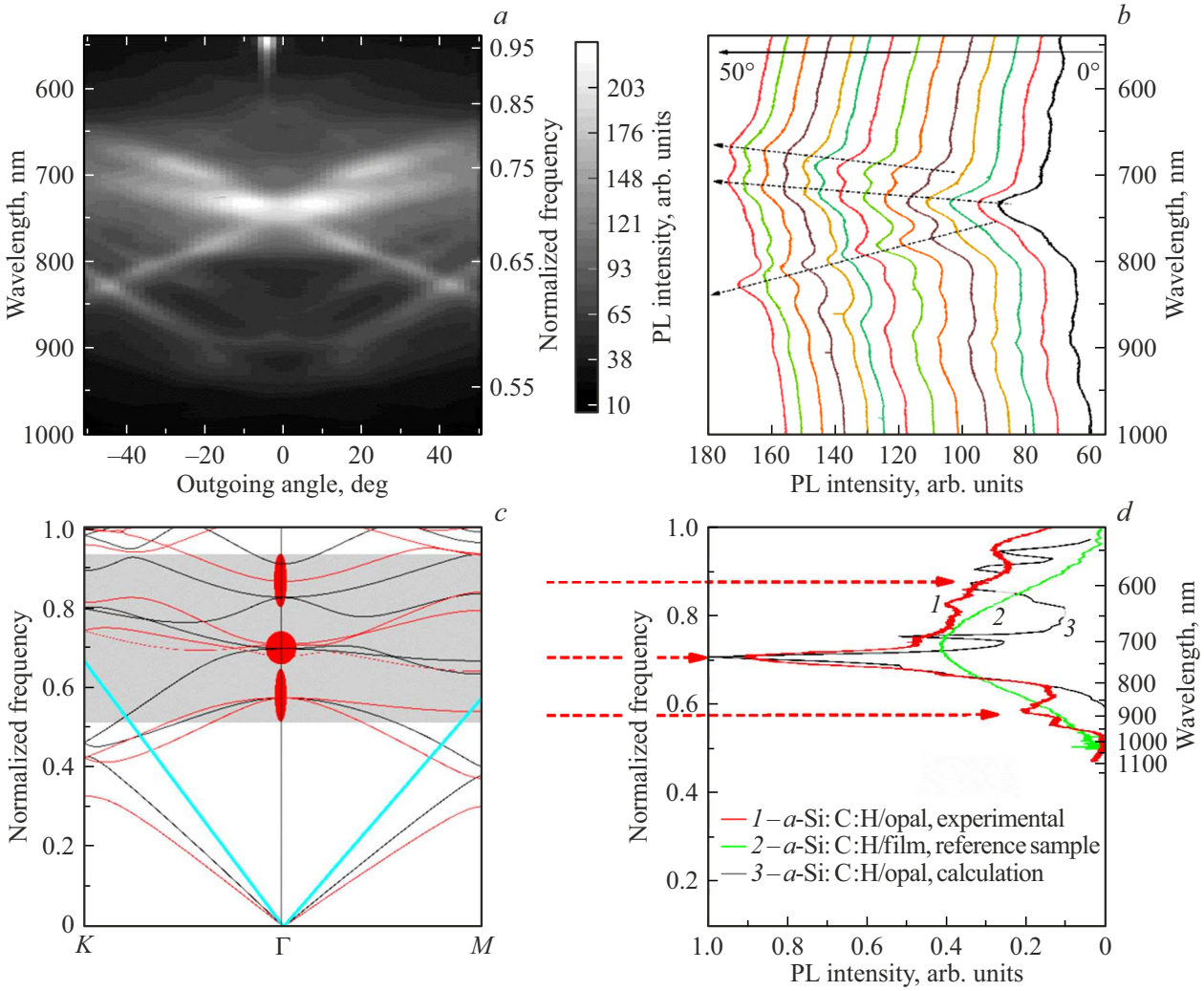


Рис. 2. Спектры фотолюминесценции (ФЛ) и зонная диаграмма гибридной структуры *a*-Si:C:H/опал–двумерного фотонного кристалла: экспериментальные спектрально-угловые зависимости интенсивности ФЛ, измеренные методом спектральной фурье-микроскопии (*a*); спектры ФЛ, перестроенные в координатах (длина волны/интенсивность) для углов регистрации в диапазоне 0–50°, графики сдвинуты по оси ординат для удобства сравнения (*b*); зонная диаграмма 2*D* ФК *a*-Si:C:H: изображены собственные моды ФК (красные линии — TM-моды, черные — TE-моды) и световой конус (наклонные прямые голубые линии), серый прямоугольник соответствует спектральной области ФЛ для образца *a*-Si:C:H, красными эллипсами и штриховыми стрелками отмечены области с близкой к нулю групповой скоростью в окрестности Г-точки зоны Бриллюэна и соответствующие им пики в спектрах ФЛ (*c*); экспериментальные спектры ФЛ при нулевом угле выхода излучения 2*D* ФК *a*-Si:C:H/опал (*1*), спектр ФЛ референсной пленки *a*-Si:C:H (*2*), спектр ФЛ, рассчитанный с помощью модального метода Фурье в форме матрицы рассеяния (*3*) (*d*).

ориентировалась таким образом, чтобы два из шести рефлексов располагались в горизонтальной плоскости. Плоскость детектирования сигнала ФЛ проходила через одну из трех эквивалентных пар узлов гексагональной обратной решетки: (-11) (1-1); (01) (0-1); (-10) (10). При моделировании мы полагали, что вертикальное сечение слоя *a*-Si:C:H имеет форму полумесяца. Схематическое изображение сечения структуры приведено на рис. 1, *c*.

На рис. 2, *a* и *b* представлены экспериментальные спектрально-угловые зависимости интенсивности ФЛ синтезированной гибридной структуры. Благодаря широкому контуру ФЛ *a*-Si:C:H в экспериментальных спектрах ФЛ в диапазоне длин волн 550–900 nm можно одновременно наблюдать большое количество пиков, спектральное положение которых зависит от угла выхода излучения. При угле, близком к нулю, в спектре ФЛ выделяется самый интенсивный пик в области 735 nm, имеющий широкое коротковолновое крыло (рис. 2, *b*). С увеличением угла выхода положение самого интенсивного пика испытывает длинноволновый сдвиг, а при 8° этот пик приобретает дублетную структуру за счет появления коротковолнового пика в области 700 nm. При дальнейшем увеличении угла дублет сдвигается в коротковолновую сторону. Отметим, что, согласно

спектрам брэгговского отражения, 3*D* фотонная стоп-зона для исследуемых в работе образцов пленок опала, сформированных из сфер a-SiO_2 диаметром ~ 520 nm, расположена в ближней ИК спектральной области (1100–1200 nm) и не влияет на спектры, измеряемые в видимом спектральном диапазоне.

На рис. 2, *c* представлен расчет зонной диаграммы 2*D* ФК. Видно, что в спектральной области, соответствующей контуру ФЛ a-Si:C:H (полоса серого цвета), имеется большое количество дисперсионных кривых со сложной зависимостью $\omega(\kappa)$. При этом излучение нанокластеров a-Si:C:H перекрывается с несколькими излучательными модами, локализованными в окрестности Г-точки в зоне Бриллюэна 2*D* ФК, которые расположены внутри светового конуса и, как показывает расчет, характеризуются малой групповой скоростью, $d\omega/d\kappa \approx 0$. Взаимодействие излучения нанокластеров a-Si:C:H с модами ФК обусловливает сильную трансформацию спектра ФЛ, наблюдаемую экспериментально. Детальный анализ связи наблюдаемых спектрально-угловых зависимостей ФЛ с рассчитанной зонной диаграммой будет представлен в отдельной публикации.

Здесь мы рассмотрим более подробно только спектры ФЛ при нулевом угле выхода излучения. На рис. 2, *d* приведены экспериментальные зависимости сигнала ФЛ для 2*D* ФК a-Si:C:H/опал и референсной пленки a-Si:C:H, нанесенной на подложку из плавленого кварца, измеренные при угле выхода излучения, близком к 0 (т. е. вблизи Г-точки зоны Бриллюэна). Видно, что взаимодействие с излучательными модами ФК, имеющими близкую к нулю групповую скорость (отмечены красными эллипсами на зонной диаграмме, рис. 2, *c*), приводит к существенному сужению спектра и увеличению в ~ 2.5 пиковой интенсивности ФЛ по сравнению с референсным образцом. Также на рисунке представлен рассчитанный фурье-модальным методом в форме матрицы рассеяния спектр ФЛ для исследуемой гибридной структуры. Сравнение спектров показывает хорошее согласие теории и эксперимента (см. стрелки на рис. 2, *d*). Расхождение может быть связано с упрощенным характером расчета, не учитывающим влияние нижних слоев 10-слойной пленки опала.

Заключение

В работе представлены результаты исследования методом спектральной фурье-микроскопии люминесцентного отклика 2*D* ФК на основе пространственно-периодической гибридной структуры: пленки опала, покрытой излучающим слоем α-Si:C:H. В диапазоне длин 500–1000 nm в спектрах ФЛ 2*D* ФК обнаружены характерные пики с различными угловыми зависимостями. Сопоставление экспериментальных спектров ФЛ с рассчитанной зонной диаграммой 2*D* ФК позволяет сделать вывод о том, что наблюдаемые в эксперименте пики в спектрально-угловой зависимости ФЛ гибридной структуры возникают вследствие взаимодействия излучения нанокластеров a-Si:C:H с излучательными модами ФК, расположенными внутри светового конуса и характеризующимися малой групповой скоростью. Полученные в работе гибридные структуры представляют интерес как в части фундаментальных исследований взаимодействия излучения с активной средой, так и для практического применения для селективного усиления люминесцентного отклика.

Финансирование работы

Работа выполнена в рамках государственного задания № FFUG-2024-0017.

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

[1] Z. Qian, L. Shan, X. Zhang, Q. Liu, Y. Ma, Q. Gong, Y. Gu. Photonics, **2**, 1 (2021). DOI: 10.1186/s43074-021-00043-z

[2] A. Mahdavi, G. Sarau, J. Xavier, T.K. Paraïso, S. Christiansen, F. Vollmer. Scientific Reports, **6** (1), 25135 (2016). DOI: 10.1038/srep25135

[3] A.I. Kuznetsov, M.L. Brongersma, J. Yao, M. K. Chen, U. Levy, D.P. Tsai, N.I. Zheludev, A. Faraon, A. Arbabi, N. Yu, D. Chanda, K.B. Crozier, A.V. Kildishev, H. Wang, J.K.W. Yang, J.G. Valentine, P. Genevet, J.A. Fan, O.D. Miller, A. Majumdar, J.E. Fröch, D. Brady, F. Heide, A. Veeraraghavan, N. Engheta, A. Alu, A. Polman, H.A. Atwater, P. Thureja, R. Paniagua-Dominguez, S.T. Ha, A.I. Barreda, J.A. Schuller, I. Staude, G. Grinblat, Y. Kivshar, S. Peana, S.F. Yelin, A. Senichev, V.M. Shalaev, S. Saha, A. Boltasseva, J. Rho, D.K. Oh, J. Kim, J. Park, R. Devlin, R.A. Pala. ACS Photonics, **11** (3), 816 (2024). DOI: 10.1021/acsphotonics.3c00457

[4] Д.В. Юрасов, А.В. Новиков, С.А. Дьяков, М.В. Степихова, А.Н. Яблонский, С.М. Сергеев, Д.Е. Уткин, З.Ф. Красильник. ФТП, **54** (8), 822 (2020). DOI: 10.21883/FTP.2020.08.49633.10

[5] A.V. Peretokin, D.V. Yurasov, M.V. Stepikhova, M.V. Shaleev, A.N. Yablonskiy, D.V. Shengurov, S.A. Dyakov, E.E. Rodyakina, Z.V. Smagina, A.V. Novikov. Nanomaterials, **13** (1), 1678 (2023). DOI: 0.3390/nano13101678

[6] В.А. Васильев, А.С. Волков, Е. Мусабеков, Е.И. Теруков, В.Е. Челноков, С.В. Чернышев, Ю.М. Шерняков. ФТП, **24** (4), 710 (1990).

[7] P. Jiang, J. Bertone, K.S. Hwang, V. Colvin. Chem. Mater., **11** (8), 2132 (1999). DOI: 10.1021/cm990080+

[8] M.V. Rybin, A.V. Zherzdev, N.A. Feoktistov, A.B. Pevtsov. Phys. Rev. B, **95** (16), 165118 (2017). DOI: 10.1103/PhysRevB.95.165118

[9] R. Wagner, L. Heerklotz, N. Kortenbruck, F. Cichos. Appl. Phys. Lett., **101** (8), (2012). DOI: 10.1063/1.4746251

[10] S.G. Tikhodeev, A. Yablonskii, E. Muljarov, N.A. Gippius, T. Ishihara. Phys. Rev. B, **66** (4), 045102 (2002). DOI: 10.1103/PhysRevB.66.045102

[11] S. Dyakov, N. Gippius, M. Voronov, S. Yakovlev, A. Pevtsov, I. Akimov, S. Tikhodeev. Phys. Rev. B, **96**, 045426 (2017). DOI: 10.1103/PhysRevB.96.045426
[12] S.A. Dyakov, D.M. Zhigunov, A. Marinins, M.R. Shcherbakov, A.A. Fedyanin, A.S. Vorontsov, P.K. Kashkarov, S. Popov, M. Qiu, M. Zacharias, S.G. Tikhodeev, N.A. Gippius. Phys. Rev. B, **93** (20), 205413 (2016). DOI: 10.1103/PhysRevB.93.205413