硫系玻璃基质的微纳光子器件研究进展

李超然 戴世勋 吴越豪 张培晴 吕社钦 沈 祥 王训四 宁波大学高等技术研究院红外材料及器件实验室,浙江宁波 315211

摘要 硫系玻璃与石英材料相比,具有高折射率(2.0~3.5)、低声子能量(小于350 cm⁻¹)、宽中远红外透过范围、高非 线性折射率和独特的光敏性。近年来硫系玻璃基质的微纳光子器件广受关注。从制备方法、光学特性和实际应用前 景等方面回顾了硫系玻璃基质微纳光子器件的研究历程,综述了硫系玻璃基质的微纳光子器件的研究状况,并对其 进一步的发展前景进行展望。

关键词 光学器件;硫系玻璃;微纳光波导;微纳光纤;回音壁模式微腔 中图分类号 O482.31; O431 文献标识码 A doi: 10.3788/LOP52.020004

Research Progress of Chalcogenide Glass Based Micro-Nano Photonic Devices

Li Chaoran Dai Shixun Wu Yuehao Zhang Peiqing Lü Sheqin

Shen Xiang Wang Xunsi

Laboratory of Infrared Material and Devices, The Advanced Technology Research Institute, Ningbo University, Ningbo, Zhejiang 315211, China

Abstract Compared with silica glass,chalcogenide glasses possess high refractive indices (2.0~3.5), low photon energies (lower than 350 cm⁻¹), wide infrared transmission window, larger nonliner refractive indices and particular photoinduced properties. Chalcognide glass based micro-nano photonic devices have attracted so much attention. The research progress of chalcognide glass based micro-nano photonic devices are reviewed in terms of fabrication, property and application of devices. The current situation of the study from several research institutions is summarized and stated. Their further development prospect is also discussed.

Key words optical devices; chalcogenide glass; micro-nano fiber; micro-nano waveguide; whispering-gallery mode microcavity

OCIS codes 230.3990; 160.2750; 130.3120

1 引 言

微纳光子器件是指至少在一个方向上器件的尺寸相比拟于或小于光波波长的光子器件。微纳光子器件研究的是在微米、纳米尺度上光学器件的设计、制造以及此类器件在光波的产生、传输、变换、探测和传感等方面的应用,是目前国际上光电子领域研究的前沿和热点之一。随着20世纪70年代室温运转半导体激光器、商用低损耗石英光纤和其他集成光子器件的研制成功,光子器件进入到了微米尺寸时代。与此同时,随着制备技术的进步,光子器件开始由微米尺寸向亚微米,纳米尺寸发展,2003年,Koonath等^[1-2]分别制备出硅纳米线波导和石英纳米光纤。在20余年的发展过程中,对微纳光子器件的研究也从讨论其模式的理论分析转为器件应用和理论分析并重的阶段,尤其是在低阈值激光器,非线性光学,极高灵敏度传感器等方面

收稿日期: 2014-08-12; 收到修改稿日期: 2014-09-09; 网络出版日期: 2014-12-23

基金项目:国家自然科学基金(61177087)、教育部新世纪优秀人才计划项目(NCET-10-0976)、浙江省杰出青年基金(R1101263)、宁波市新型光电功能材料及器件创新团队(2009B21007)、宁波大学王宽诚幸福基金、宁波市自然科学基金(2014A610125)、发光材料与器件国家重点实验室开放基金

作者简介:李超然(1988—),男,硕士研究生,主要从事硫系玻璃微纳光子器件方面的研究。

E-mail: lichaoran-121@qq.com

导师简介:戴世勋(1974—),男,研究员,博士生导师,主要从事光功能玻璃及器件方面的研究。

E-mail: daishixun@nbu.edu.cn

微纳光子器件得到了广泛应用。目前硅基和石英基材料广泛用于制备微纳光子器件,这两类材料的微纳光 子器件能与标准单模光纤很好地实现模式匹配,并且耦合损耗较低。但是石英材料红外截止波长较短(最 长透过波长约3.5 μm),在极为重要的大气透明第二窗口(3~5 μm 波段,该波段包含了许多重要的分子特征 谱线)和第三窗口(8~12 μm 波段),石英材料无法导光,而且硅基和石英基受到本身低非线性特性的限制^[3], 在非线性应用上也受到了限制。

硫系玻璃是以S,Se,Te中的一种或几种元素与其他电负性较弱的元素(As,Sb,Ge和Si等)相结合形成 共价键的无机玻璃ⁱⁱⁱ,而且S,Se,Te可与其他元素形成化学计量或非化学计量组成的玻璃,使玻璃的组分可调, 性能更具有优势。与硅材料和石英材料相比较,硫系玻璃具有优良的中远红外透过性能(依据组成不同,其透 过范围可从0.5~1 μm到12~25 μm),极高的折射率(2~3.5),极高的非线性折射率 n₂ (n₂=2~20×10⁻¹⁸ m²/W,是 石英材料的100~1000倍¹⁶⁻⁶¹),较小的双光子吸收系数 α₂ (0.01~1×10⁻¹² m/W^[3])和超快的非线性响应(响应时 间小于200 fs,其中光克尔效应小于50 fs,拉曼散射小于100 fs^[7])。优良的中远红外透过性能可以使硫系玻 璃用于制成近中红外低阈值激光器和放大器、中红外生物与化学传感器等微纳器件;极高的非线性折射率 和微纳器件极小的体积,使得硫系玻璃微纳光子器件更容易产生超连续谱和受激拉曼激光^[8-11]。优良的非线 性特性也使硫系玻璃可用于波导光栅,全光再生器和波长转换器等微纳器件,进一步提高这些器件的性 能。以上诸多的硫系玻璃微纳光子器件可广泛用于生物传感,新光源产生和全光网络等前沿研究领域。因 此硫系微纳光子器件近年来受到国际上众多知名光电子研究机构的关注,英国南安普顿大学、美国麻省理 工学院、澳大利亚国立大学、悉尼大学等科研机构均已经展开对此种器件的研究工作。本文将以硫系微纳 光纤、光波导和回音壁微腔这三类器件为重点,从研究历程、研究重点和应用三个方面总结硫系微纳光子器 件的研究现状,并对其未来的发展进行展望。

2 研究历程

在多种硫系微纳光子器件中,波导器件的研究开展较早。20世纪70年代研究人员就成功在铌酸锂晶体 衬底^[12]和氟化钡晶体衬底^[13]上沉积出了厚度为微米和亚微米级别的硫系波导,随着20世纪末光纤通信的迅 速发展,硫系波导才得到重视。1999年,加拿大拉瓦尔大学的Viens等^[14]首次报道利用光刻和湿刻对热蒸发 制备的As₂₄S₃₆Se₃₆/As₂S₃多层膜进行刻蚀,得到了厚度约1.5 μm,宽度在1~10 μm的波导,并测得在1330 nm 处损耗为1 dB/cm。随后几年,硫系波导器件的几何尺寸都在微米量级,直到2006年,澳大利亚悉尼大学的 Grillet等^[15]报道了晶格周期为550 nm的W1型二维光子晶体波导,该波导厚300 nm,用于导光的线缺陷的 宽度约为950 nm,该波导的尺寸已经到达了纳米量级。2007年,美国麻省理工学院的Hu等^[16]报道了利用剥 离方法制备出的亚微米、纳米尺寸的条形波导[如图1(a)所示],波导宽度分别为0.75、1.2、1.6 μm。2010~ 2012年,澳大利亚国立大学的Gai等^[17-19]就Ge_{11.5}As₂₄Se_{64.5}纳米线波导的特性发表了多篇报道,波导的宽度多



(f) hybrid microtoriod (g) micro-race
图1 几种微纳光子器件

Fig.1 Several micro-nano photonic devices

在 650~850 nm,高度为 500~600 nm,如图 1(b)所示。Gai 对该种波导的色散特性、非线性系数、四波混频等 光学特性进行了深入研究。

由于硫系玻璃柔韧性较低,制备工艺难度大,所以对硫系玻璃微纳光纤的研究比微纳波导要晚。2007 年澳大利亚悉尼大学的 Mägi 等^[20]报道利用两次拉锥法,制得了锥腰直径为 1.2 µm 的 As₂Se₃光纤锥,并推算 出约为 68 W⁻¹m⁻¹的非线性系数。2008年澳大利亚悉尼大学的 Yeom 等^[10]制备出了锥腰直径为 950 nm 的 As₂Se₃纳米光纤锥[如图 1(c)所示],推算出该光纤锥的非线性系数约为 93.4 W⁻¹m⁻¹,并在此纳米光纤锥中利 用峰值功率为 7.8 W的脉冲激光产生了展宽超过 500 nm 的超连续谱。2010年复旦大学的 Zhang 等^[21]报道 利用直接拉锥法制成了直径最细为 200 nm 的 As₂S₃纳米光纤[如图 1(d)所示],并且首次把纳米光纤用 SU8 胶粘附于硅晶片上以方便操作,并把拉制的亚微米、纳米光纤用于微结型谐振腔和产生超连续谱。同年加 拿大麦吉尔大学的 Baker等^[22]首次报道了带有聚甲基丙烯酸甲酯(PMMA)保护层的 AsSe 微纳光纤锥,AsSe 芯径最小为 800 nm,PMMA保护层的引入增强了微纳光纤的机械强度,使得操作更为方便。2013年墨西哥 国立自治大学的 Amado等^[20]报道了 As₂Se₃纳米线全光宽带可调光衰减器,这种衰减器由带有 PMMA保护层 的 As₂Se₃纳米线构成,As₂Se₃纳米线直径为 600 nm。该衰减器利用硫系玻璃的光致暗化效应,可实现 1550~ 1850 nm 范围上的调整,而且衰减程度可由辐射功率实现灵活控制。这种器件的实现,可用于光开关等光网 络中的逻辑器件。

2003年美国加州理工学院的Kerry Vahala^[24]根据微腔限制光方式的不同,将腔大致分为三类:回音壁模 式微腔,法布里-珀罗(F-P)微腔和光子晶体微腔,本文将介绍硫系回音壁模式微腔。虽然其他介质回音壁 模式微腔的研究已经开展了很长时间,但是由于硫系玻璃制备工艺较为复杂,硫系微纳器件的制造技术起 步较晚,所以硫系微球谐振腔的研究要远晚于其他介质微腔。2007年英国南安普顿大学的 Elliott 等^[25]首次 报道了硫系玻璃微球腔的制备,其利用粉料漂浮高温熔融法制备了直径从小于1μm 到450μm 的Ga₂S₃-La₂S₃玻璃微球腔[如图1(e)所示],并利用近场波导耦合的方法测得直径100 μm 的微球在1550 nm 处 Q 值为 8×10⁴。2008年澳大利亚悉尼大学的Grillet等^[26]报道利用As₂Se₃光纤,采用光导入亚微米光纤锥熔融法,制备 了直径从小于3 µm 到 15 µm 的微球腔,并利用直径为 800 nm 的石英光纤锥与微球腔耦合,测得在 1619.9 nm 处Q值为2×104。在同一年,土耳其毕尔肯大学的Akbulut等^[27]报道了以SiO₂微芯圆环为基底,以As₂S₃为沉 积层的混合微芯圆环[如图1(f)所示],并模拟计算出1520 nm脉冲激光激发下在300 nm范围内产生了新的 光波;与此同时Hu等^[28-29]首次利用As₂S₃薄膜波导成功制备了跑马场环形微腔和微盘腔[如图1(g),(h)所 示],并测得其Q值分别为1×10⁴和2×10⁵,并指出这两种腔具有很高的折射率变化灵敏度。2009年,美国德 州工农大学的 Solmaz 等^[80]首次报道了以 LiNbO₃为基底的 As₂S₃波导跑马场环形微腔,并将该微腔与 Ti: LiNbO₃掩埋波导进行垂直耦合,测得耦合效率为10.6%,自由光谱范围为25.4 GHz。2010年,Elliott等^[31]制备了 掺杂 Nd³⁺的 Ga₂S₃-La₂S₃微球,利用 808nm 激光器对该球进行自由空间耦合抽运,观察到了 1075~1086 nm 范 围内的激光输出。2011年美国德州工农大学的Zhou等^[32]在LiNbO3基底上制备出了Q值高达3.5×10⁶的跑 马场环形微腔,该Q值为硫系微环形腔中已报道的最高值。同年新加坡南洋理工大学的Luan等^[33]首次利用 硫系玻璃的光敏特性,使用 523 nm 连续激光照射 As₂S₃微光纤,在微光纤的局部形成微圆柱腔,其微腔Q值 也达到了2×10°。2012年加拿大蒙特利尔综合理工大学的Vanier等¹³⁴报道了利用CO2激光器加热熔融As2S。 光纤,制得了Q值为3.65×107的As₂S₃微球,该Q值已经非常接近As₂S₃微球本征Q值8.6×107,为目前硫系回 音壁模式微腔中最高。随后其又在2013年利用上述方式制备的微球首次成功制成了硫系玻璃微球拉曼激 光器,由于所制得的微球品质因数极高,故该激光器的抽运阈值也小至12.9μW,激光器的内转换效率也达 到了10.7%。根据前人研究的启发并结合本实验室的条件,本课题组^[35-37]也以微球腔为研究对象,以自行制 备的75GeS2-15Ga2S3-10CsI(摩尔分数)作为基质,通过自行设计并搭建相关实验平台,对稀土离子掺杂硫 系玻璃微球腔的荧光模式进行了研究。

3 研究热点

3.1 制备方法

硫系微纳器件的样式不同,制备方法也差别较大。对应硫系微纳光波导而言,其制备方法主要有光刻

与湿刻结合法、光刻与干刻结合法、剥离法、热压法和激光直写法。早期研究人员利用光刻与湿刻的方法对 热蒸发制备的多层硫系玻璃薄膜进行刻蚀得到了多层波导,但是大多数的硫系玻璃组分会溶于碱性光刻胶 NH,OH从而会导致波导结构被破坏,这就使得湿刻法的工艺难以控制,限制了波导制备的精度。近些年来, 研究人员利用等离子干刻(溅射刻蚀、离子束刻蚀、反应离子刻蚀)与光刻相结合的方法来制备硫系微纳光 波导。2004年,澳大利亚国立大学的 Ruan等^[88]采用离子刻蚀法(电感耦合等离子体和电子回旋共振等离子 体)制备出了 As₂S₃ 脊型波导,且脊宽为4 μm 和5 μm 的波导在 1550 nm 处损耗仅为 0.25 dB/cm。等离子刻 蚀法在刻蚀前需要对所薄膜进行热退火处理,并且所选等离子气体要合适,否则刻蚀效果会受到很大影响, 所以该方法的工艺也较为复杂。在 2007年,Hu等^[16,30]利用可与互补金属氧化物半导体(CMOS)工艺相兼容 的剥离法先后制备出了无包层和有包层的硫系微纳波导,其波导的侧壁粗糙度为10~13 nm,该粗糙度要远 小于光刻和等离子体刻蚀制备的波导粗糙度,而且波导损耗在波导宽度(1.2 μm)较前者小了较多的情况下 也只有 3 dB/cm 左右。除以上方法外,研究人员还尝试利用了激光直写法和热压法来制备硫系微纳波导,并 且取得了一定成果,在此不再详述。相比于传统光波导,具有更细微结构的硫系二维光子晶体波导的制备 设备或工艺更为复杂。其常用方法为聚焦离子束(FIB)刻蚀法,该方法工艺流程简单精度高,2006年,Grillet等^[16]报道的硫系二维光子晶体波导中,其空洞的侧壁粗糙度小于 3 nm,但所制备的样品尺寸较小且耗时 较长。

硫系光纤的成功制备,使研究人员开始关注具有更加微小结构的微纳光纤。石英微纳光纤制备方法多 样且较为成熟^[40],硫系微纳光纤的制备方法也是从中借鉴并对其进行改进。目前硫系微纳光纤的主要制备 方法有:两步拉制法、带保护层的两步拉制法和直接拉制法。2007年,Mägi等^[20]借鉴石英光纤锥的拉制方 法,并对其进行改良(用电热丝加热替代火焰加热),通过两步拉锥法,即先把直径为165 μm的As₂Se₃光纤拉 制成直径75 μm的单模光纤,进一步进行拉锥制得锥腰直径为1.2 μm(其锥腰直径变化小于0.1 μm),锥腰 区长18 mm,全长164 mm的微光纤锥,测得整个光纤锥的损耗为3 dB。2010年Baker等^[22]在Mägi拉锥方 法上进行了改进,把第一步拉制出的单模光纤套上内/外直径为230 μm/1000 μm的PMMA套管,然后先以稍 低于拉制时的温度加热套管使其粘附于光纤表面,再恢复到拉制温度对光纤继续拉制,最后可制备出芯径 最小为0.8 μm,锥腰区长9.7 cm的微纳光纤,并且测得整个光纤锥的损耗为12 dB。采用PMMA保护层不 仅增加了在拉制时的粘度从而保护光纤不易被拉断,而且增强了微纳光纤的强度以方便后续的实验操作。 同年 Zhang等^[21]采用直接拉制法来制备硫系微纳光纤,将As₂S₃光纤的一端粘附于加热器上,待光纤软化后 手工快速外拉,可制得最细为200 nm的微纳光纤,利用扫描电镜可以观察到光纤表面很光滑,并且利用法布 里-珀罗法测得了直径为1 μm和0.6 μm光纤的损耗系数分别为(1.1±0.1) dB/cm和(2.5±0.3) dB/cm。虽然直 接拉制法简单易行,但需要尝试多次以拉制出合适的长度和光纤直径,制备工艺重复性差。

硫系微纳波导和微纳光纤的成功制备为硫系微环腔、微盘腔和微结腔的制备提供了良好的工艺支持,因此这三类微腔的制备只需在原有制备工艺上稍加改进即可^[28-30,41],在此不再详述。除以上三类微腔外,还有硫系微球腔,微芯圆环腔和光致折射率变化微圆柱腔。研究人员对其他介质的微球腔研究已经开展多年,其制备方法也已经较为成熟^[42],硫系玻璃微球的制备也借鉴了其中的方法。目前硫系玻璃微球制备的主要方法是玻璃粉料漂浮高温熔融法和光纤端加热熔融法。玻璃粉料漂浮高温熔融法的一般过程为:把制备的好的玻璃研磨成粉末并用一定孔径的筛子进行筛取,把筛取后的玻璃粉末从进料口引入到放在加热炉中的加热管内,细小的粉末经过高温加热区时会迅速融化并在表面张力作用下成为球形,最后在加热管的另一端收集制成的微球。2007年,Elliott等^[20]利用玻璃粉料漂浮高温熔融法首次成功制备出了硫系玻璃微球,并在2010年制备出掺杂 Nd^{3*}的微球并获得激光输出。由于硫系玻璃在高温熔融状态下容易氧化,所以在实验中加热管内是隔绝空气的惰性气体氛围。此外,硫系微球的制备还可采用光纤端加热熔融法,其过程一般为:利用加热源对硫系玻璃光纤一端进行加热,使其融化并在表面张力作用下成球。2008年,Grillet等^[20]首次利用光纤端加热熔融法制备硫系微球,其先将As₂Se₃光纤拉成直径为1μm的细锥,再撤走热源导入25 mW的1550 nm 连续波长激光来加热细锥使其融化掉落并在下落过程中形成微球,所成微球的直径从小于3μm到15μm。随后几年研究人员利用电热丝、高温陶瓷和CO₂激光器作为加热源制备出了Q值较高的微球^[31,43-41]。粉料漂浮高温熔融和加热光纤端熔融这两种方法各有利弊,前者不需要先制备光纤前驱体而且可以一次性制备数量较多的微球,但

微球尺寸并不完全受控并且由于粉末也并不完全成球,所以后续需要进行筛选。后者容易制得高质量微球, 但一次只能制备一个微球且只能利用已有光纤来制备从而使得所能利用的材料种类有限。此外,利用已有的 微腔和硫系玻璃的光敏特性,研究人员分别制备出了SiO₂-As₂S₃混合微芯圆环腔和光致折射率变化微圆柱腔。 2008年,Akbulut等^[27]在Armani等^[46]制备的SiO₂微芯圆环腔的基础上,再沉积一层As₂S₃形成混合微芯圆环腔, 这为硫系微腔的制备提供了一种新的思路。2011年,Luan等^[38]巧妙地利用了硫系玻璃极高的光敏特性,把As₂S₃ 微光纤置于523 nm 连续激光下照射,使得微光纤的局部折射率高于两边折射率,这样照射后光纤处回音壁模 式谐振波长比两边更长从而将谐振波限制在照射后的局部微圆柱内。经测量该微腔的Q值达到了2×10⁵,该 方法充分利用了硫系玻璃材料的性能,工艺简单操作方便,但也需光纤作为前驱体,使得应用范围受到了限制。 3.2 传输特性

目前对微纳光子器件传输模式的研究主要有两种方式:数值计算法和解析近似法。随着计算机技术的 飞速发展,数值计算法不仅能求解精确结果也能够给出形象的分析结果,所以在实际研究中主要采用数值 计算法。微纳光子器件中的损耗主要有材料本征吸收,表面散射损耗(表面不平整、裂隙和折射率分布不均 匀)和光漏泄。

由于制备技术的限制,波导的侧壁并不会垂直于水平面而是有一定倾斜角度,波导的截面几何形状并 不是完全理想的矩形,这种情况下数值计算可以给出特定条件下模式分析。2007年,Hu等¹⁰⁹利用全矢量有 限差分法对侧壁夹角为65°的Ge₂₃Sb₇S₇₀条形波导进行了数值模拟,模拟结果表明波导中的模式已不是严格 的横电(TE)和横磁(TM)模式,这两种模之间的耦合由于侧壁的倾斜而增强从而使得这两种模成为了准TE 和准TM模式(如图2所示)。光波导的几何尺寸为光波长量级,在这种尺寸下器件表面倏逝波进一步增强, 这也使得表面结构对光波导中电磁场的影响加大,从而使由侧壁和上表面的粗糙度所造成的散射损耗成为 微纳光子器件损耗的主要因素。根据体电流理论波导侧壁散射损耗正比于表面极化电流密度:

$$\boldsymbol{J}_{\text{rough}}(\boldsymbol{r}) = -j\omega\epsilon_0 \delta n^2(\mathbf{r}) \boldsymbol{E}_g(\boldsymbol{r}), \qquad (1)$$

式中 δn² 与粗糙度和波导中芯层和包层的折射率差有直接关系, E_g为波导中导波模振幅。从(1)式可以看出,可以通过减小表面粗糙度、界面处导波模振幅和折射率差来减小波导损耗。





微纳光纤的直径一般在1μm左右,此时原光纤的纤芯远小于光波长从而可对其忽略不计,理论分析时 就把微纳光纤看作为一段由空气和原光纤包层构成的圆柱型波导。对于微纳光纤,其模场半径ω与光纤半 径φ之间的关系可通过归一化截止参数 V 得到^[40]。模场半径ω与V_{corr}和V_{clad}的关系曲线如图3^[40]所示。

图中所示曲线为在1550 nm 波长处,标准单模光纤在变为光纤锥过程中模场半径 ω 的变化过程。图中 B点为光纤向光纤锥转变的转折点,A点附近,模场半径 ω 要远大于光纤的几何半径 φ。从 Mägi等^[20]模拟的 相同直径下 As₂Se₃和石英微纳光纤的模场形貌(如图4所示)可以看出,As₂S₃光纤对光场的限制要强于石英 光纤。Chaudhari等^[46]模拟的结果表明当 As₂S₃光纤直径为516 nm 时,83%的模场能量存在于光纤内,而在 石英微纳光纤中约有80%模场能量在光纤中传播时光纤直径达到了700 nm^[40]。以上例子表明,硫系微纳光 纤可以更有效地限制光的传播,提高微纳光纤中光能量密度,这有利于在较低的激发能量下产生非线性效



Fig.3 Relationship between ω , V_{alad} and V_{area}

应。当微纳光纤的半径 φ 与波长 λ 可比拟时光被很好地限制在光纤内,而当 φ 小于光波长 λ 时,光模场会 受到径向变化的影响,其传输损耗可表示为

$$\alpha = \frac{1}{4\gamma} \sqrt{\frac{k}{L}} \exp\left(-\frac{\pi L \gamma^2}{k}\right),\tag{2}$$

上式中 k 为自由空间传播常数, γ 为传播常数横向分量绝对值, L 为径向变化的特征长度。通常在制备微 纳光纤的同时来监测微纳光纤的损耗情况,利用加热拉伸法制备的硫系微纳光纤能够保证光纤表面较小的 粗糙度,较高的均匀性和完整性。研究人员测量了直径 1 μm 的 As₂S₃和直径 1.3 μm 的 As₂Se₃微纳光纤的损 耗系数分别为 1.1 dB/cm 和 0.7 dB/cm^[21,47]。由于硫系微纳光纤较石英光纤更为脆弱,目前对硫系微纳光纤 的利用主要形式为微纳光纤锥,这种形式方便对微纳光纤进行操作,但限制了对其损耗系数的测量,这种形 式下只能对整个光纤锥进行损耗测量^[10,20,22]。





3.3 色散特性

色散是微纳光子器件的一个重要参数,其对众多非线性效应如超连续谱产生,孤子传播和谐波获得等 具有显著影响。器件中的色散可以看作有两部分构成:

$$D \approx D_{\rm w} + D_{\rm m},\tag{3}$$

其中 D_w 为波导色散, D_m 为材料色散。图5为As₂S₃玻璃折射率和材料色散对波长变化的关系曲线^[48]。从该曲 线中可以看出在1~2 μm 波长范围内As₂S₃玻璃的材料色散高达-2000~-200 ps/(nm·km),零色散位于4 μm 以 后。通过调整微纳光波导和光纤的几何结构参数(如宽度、厚度和直径)可以产生反常波导色散,反常波导色散 可以抵消掉材料色散从而使器件在特定波长处的总色散减小甚至达到零色散。图6为 Chaudhari等^[46]计算出 的不同直径的As₂S₃微纳光纤色散随波长变化的曲线。从该曲线可以看出,在多个波长处存在零色散和低色散 点,所以通过调整硫系微纳光纤的直径,硫系微纳光纤的零色散点在 较大波长范围内可调。图7为Gai等^[17]模 拟的宽为 630 nm 的条形 Ge_{11.5}As₂₄Se_{64.5}波导的色散随波导厚度和波长变化的关系图(图中曲线表示零色)。





wavelength for As₂S₃







图 7 宽 630 nm 的 Ge_{11.5}As₂₄Se_{64.5}纳米波导中(a) TM 模和(b) TE 模的色散常数与波导厚度和波长的关系 Fig.7 Dispersion parameter of the fundamental (a) TM mode and (b) TE mode as function of film thickness and wavelength in 630 nm wide Ge_{11.5}As₂₄Se_{64.5} nanowires

3.4 高非线性特性

光纤和波导的非线性系数γ定义为

$$\gamma = \frac{2\pi}{\lambda} \frac{n_2}{A_{\rm eff}},\tag{4}$$

式中 n_2 是材料的非线性折射率系数, A_{eff} 为光纤的有效模场面积, λ 为工作的波长。硫系玻璃具有极高的折射率(2.0~3.5),其非线性折射率 $n_2(n_2 = 2 \sim 20 \times 10^{-18} \text{ m}^2/\text{W})$ 是石英材料的100~1000倍^[5-6]。利用硫系玻璃材料本身具有的极高非线性,再结合硫系微纳光波导和光纤较小的模场面积,使得硫系微纳光波导和光纤具有极高的非线性系数 γ 。

对于回音壁微腔来说,模式体积V,即光的限制空间大小是微腔具有极高非线性特性的重要因素,通常 可以表示为

$$V = \frac{\int \rho \, dx \, dy \, dz}{\max(\rho)},\tag{5}$$

其中 $\rho = \varepsilon E^2$ 为光场能量密度。模式体积越小,相同能量的光引起的局部电磁场强度越大,从而光与物质的相互作用就越强,因此也就更容易引起非线性效应。

2007年, Mägi 等^[20]制备了直径为 0.6 µm 的 As₂Se₃微纳光纤, 其模场面积 A_{eff} 为 0.26 µm², 非线性系数 γ 高达 164 W⁻¹m⁻¹, 该值是标准单模光纤的 149000倍, 也是石英光纤锥的 2440倍, 并且在中心波长 1545 nm, 功率 55 mW 的激光作用下观察到了自相位调制现象。2010年, Gai 等^[17]制备的宽 630 nm, 厚 500 nm 的条形 波导中, 其非线性系数 γ 高达 136 W⁻¹m⁻¹, 并且在中心波长 1550.8 nm, 功率 12 W 激光(TM 模)激发下实现了 超连续谱产生。2012年 Ahmad 和 Rochette 在直径为 550 nm, 长度为 12 cm 的 As₂Se₃微纳光纤中利用法布 里-珀罗腔进一步改进从而获得了激发阈值在毫瓦量级以下(470 µW)的拉曼激光^[11]。

4 应 用

由于硫系微纳光子器件在中红外传输和非线性上具有独特的优势,因此,它在中红外超连续谱产生,中 红外生物传感,低阈值激光产生,光网络器件等方面有着广泛的应用前景。

4.1 超连续谱产生

超连续谱产生是指超短脉冲在介质中传输时由于介质的非线性效应而导致脉冲的光谱被极大加宽的现象。通过调整微纳光波导和光纤的几何尺寸来设计不同的色散曲线从而获得中红外区域超连续谱是硫系微纳光子器件应用研究的热点。2010年,Gai等¹⁰⁷优化波导结构,利用中心波长1550 nm,脉宽1 ps脉冲激光,峰值 功率25 W时激发630 nm×500 nm的Ge_{11.5}As₂₄Se_{64.5}纳米线波导,获得了1200~2400 nm的超连续谱。2008年,Yeom 等¹⁰⁹首次在色散优化设计的纳米光纤锥中实现了低阈值超连续谱产生,其利用中心波长1550 nm,脉宽1.2 ps,重 复频率9 MHz的脉冲激光,峰值功率7.8 W(脉冲能量2.2 pJ)时激发锥腰直径为950 nm的As₂Se₃纳米光纤锥获得 展宽大于500 nm的超连续谱。2013年加拿大麦吉尔大学的Al-kadry等^[49]在锥腰直径1.28 μm的As₂Se₃光纤 锥中,利用脉宽为260 fs,重复频率20 MHz的脉冲激光,峰值功率18.8 W时激发下获得了20 dB带宽为1260~ 2200 nm的超连续谱。

4.2 低阈值激光产生

微纳光子器件作为谐振腔时具有较高的腔品质因数和较小的几何体积,可实现低阈值激光输出。由于 硫系玻璃具有优良的中红外传输特性,使得硫系微纳光子器件在未来中红外低阈值激光光源方面具有很广 的应用前景。2010年,Elliott等^[31]制备了掺杂 Nd³⁺的 Ga₂S₃-La₂S₃微球,利用 808 nm 激光器对该球进行自由 空间耦合抽运,观察到了 1075~1086 波段内的激光输出。2012年,Ahmad 等^[11]利用 As₂Se₃材料高拉曼增益 特性,并结合微纳光纤较小的有效模面积进一步增强材料的非线性,在有法布里-珀罗腔的微纳光纤中实现 了阈值为 470 μ W,发光区在 1605~1613 nm 的激光。2011年,Tal等^[50]数值模拟证实了利用 800 nm 光源抽运 直径 80 μ m 的 Er⁺³掺杂 Ga₂S₃-La₂S₃微盘腔获得了 4.5 μ m 激光输出,其抽运阈值为 0.5 mW,抽运效率为 1.26 × 10⁻⁴。2012年 Mescia 等^[8]模拟设计了 Er⁺³掺杂的硫系玻璃微球放大器,在波长 2.7 μ m 附近当抽运功率 为 80 mW 时,小信号的最大增益为 7 dB。

4.3 布拉格光栅

当前随着全光网络的发展,对新型光信号处理器件的需求变得更为急迫。硫系玻璃微纳光子器件以其 优良的光敏特性和非线性特性可应用于新型光信号处理器件。其中布拉格光栅是光网络中一种重要的滤 波器,早在1995年Tanaka等^[51]就提出利用硫系玻璃光诱导效应制备波导光栅。早期的双光束全息曝光法 中马赫-曾德尔干涉仪对环境干扰极为敏感,使得制备的光栅均匀性和透射率较低。2006年,Baker等^[52]利 用振幅掩膜和双光束全息相干写人技术对As₂S₃脊型波导进行刻写,使得光照部分波导折射率变化率达到了 3%,形成了布拉格光栅。所形成光栅3dB带宽为40nm,光谱中心11个损耗峰半峰全宽为0.966nm,最大损 耗峰透射率为-20dB。2011年,Ahmad等^[53]首次报道在As₂Se₃亚微米光纤锥中利用双光束全息曝光法写入 了布拉格光栅,其折射率变化为1%,最大损耗峰透射率为-40dB。

5 总结与展望

硫系微纳光子器件结合了材料与器件结构两方面的优势,在未来具有极大的应用潜力。虽然目前对硫 系微纳光子器件的研究取得了一些成果,但还存有以下问题:1)目前所研究器件主要集中于As₂S₃和As₂Se₃ 材料,未能发挥出硫系玻璃组分可调的优势;2)硫系微纳光子器件的制备工艺不够成熟,器件制备的重复性 差,质量不可控。

现在硫系微纳光子器件的研究还处于试验探索阶段,在未来的发展中,首先器件所用基质材料必将进一步拓展,特别是对不含砷的材料将在器件中得到广泛应用,这也是环保无害趋势的要求;其次器件结构设计更加完善,对相关结构光学特性认识更加充分,众多目前在硫系微纳光子器件中还不常用的结构将普遍得到研究。最后器件的制备工艺将稳定成熟,适合大规模工厂化生产的工艺将出现,硫系微纳光子器件将真正用于实用性产品中;随着理论研究,制备技术以及性能优化等方面的进步,相信硫系玻璃微纳光子器件在未来必有更大的发展。

参考文献

- 1 Koonath P, Kishima K, Indukuri T, *et al.*. Sculpting of three-dimensional nano-optical structures in silicon [J]. Appl Phys Lett, 2003, 83(24): 4909-4911.
- 2 Tong L, Gattass R R, Ashcom J B, *et al.*. Subwavelength-diameter silica wires for low-loss optical wave guiding [J]. Nature, 2003, 426(6968): 816-819.
- 3 Zakery A, Elliott S R. Optical properties and applications of chalcogenide glasses: a review [J]. Journal of Non-Crystalline Solids, 2003, 330(1-3): 1-12.
- 4 Seddon A B. Chalcogenide glasses: a review of their preparation, properties and applications [J]. Journal of Non-Crystalline Solids, 1995, 184(0): 44-50.
- 5 Smektala F, Brilland L, Chartier T, *et al.*. Recent advances in the development of holey optical fibers based on sulphide glasses [C]. SPIE, 2006, 5128: 61280M.
- 6 Fan Xinye, Xu Diefeng, Shen Xiang, *et al.*. Third order nonlinear optical properties of GeS₂-Ga₂S₃-Sb₂S₃-AgCl glass [J]. Acat Photonica Sinica, 2010, 39(2): 210–213.

范鑫烨,徐铁峰,沈 祥,等.GeS₂-Ga₂S₃-Sb₂S₃-AgCl玻璃的三阶非线性光学特性[J].光子学报,2010,39(2):210-213.

- 7 Slusher R E, Lenz G, Hodelin J, *et al.*. Large Raman gain and nonlinear phase shifts in high-purity As₂Se₃ chalcogenide fibers [J]. J Opt Soc Am B, 2004, 21(6): 1146–1155.
- 8 Mescia L, Bia P, De Sario M, *et al.*. Design of mid-infrared amplifiers based on fiber taper coupling to erbium-doped microspherical resonator [J]. Opt Express, 2012, 20(7): 7616-7629.
- 9 Carlie N, Musgraves J D, Zdyrko B, *et al.*. Integrated chalcogenide waveguide resonators for mid–IR sensing: leveraging material properties to meet fabrication challenges [J]. Opt Express, 2010, 18(25): 26728–26743.
- 10 Yeom D I, Mägi E C, Lamont M R E, *et al.*. Low-threshold supercontinuum generation in highly nonlinear chalcogenide nanowires [J]. Opt Lett, 2008, 33(7): 660–662.
- 11 Ahmad R, Rochette M. Raman lasing in a chalcogenide microwire-based Fabry-Perot cavity [J]. Opt Lett, 2012, 37(21): 4549-4551.
- 12 Klein R M. Chalcogenide glasses as passive thin film structures for integrated optics [J]. Journal of Electronic Materials, 1974, 3(1): 79-99.
- 13 Bessonov A F, Gudzenko A I, Deryugin L N, et al.. Thin-film chalcogenide glass waveguide for medium infrared range [J]. Soviet Journal of Quantum Electronics, 1976, 6(10): 1248–1249.
- 14 Viens J F, Meneghini C, Villeneuve A, *et al.*. Fabrication and characterization of integrated optical waveguides in sulfide chalcogenide glasses [J]. J Lightwave Technol, 1999, 17(7): 1184–1191.
- 15 Grillet C, Smith C L C, Freeman D, *et al.*. Efficient coupling to chalcogenide glass photonic crystal waveguides via silica optical fiber nanowires [J]. Opt Express, 2006, 14(3): 1070–1078.
- 16 Hu J, Tarasov V, Carlie N, et al. Si-CMOS-compatible lift-off fabrication of low-loss planar chalcogenide waveguides [J]. Opt Express, 2007, 15(19): 11798–11807.
- 17 Gai X, Madden S, Choi D Y, *et al.*. Dispersion engineered Ge_{11.5}As₂₄Se_{64.5} nanowires with a nonlinear parameter of 136 W– 1m–1 at 1550 nm [J]. Opt Express, 2010, 18(18): 18866–18874.
- 18 Gai X, Wang R P, Xiong C, *et al.*. Near-zero anomalous dispersion Ge_{11.5}As₂₄Se_{64.5} glass nanowires for correlated photon pair generation: design and analysis [J]. Opt Express,2012, 20(2): 776–786.
- 19 Gai X, Choi D Y, Madden S, *et al.*. Polarization-independent chalcogenide glass nanowires with anomalous dispersion for all-optical processing [J]. Opt Express, 2012, 20(12): 13513–13521.
- 20 Mägi E C, Fu L B, Nguyen H C, *et al.*. Enhanced Kerr nonlinearity in sub-wavelength diameter As₂Se₃ chalcogenide fiber tapers [J]. Opt Express, 2007, 15(16): 10324–10329.
- 21 Zhang Q, Li M, Hao Q, et al.. Fabrication and characterization of on-chip optical nonlinear chalcogenide nanofiber devices [J]. Opt Lett, 2010, 35(22): 3829–3831.
- 22 Baker C, Rochette M. Highly nonlinear hybrid AsSe-PMMA microtapers [J]. Opt Express, 2010, 18(12): 12391-12398.
- 23 Velazquez-Benitez A, Ahmad R, North T, *et al.*. All-optical broadband variable optical attenuator based on an As₂Se₃ microwire [J]. IEEE Photon Technol Lett, 2013, 25(7): 697–700.
- 24 Vahala K J. Optical microcavities [J]. Nature, 2003, 424(6950): 839-846.

- 25 Elliott G R, Hewak D W, Murugan G S, *et al.*. Chalcogenide glass microspheres; their production, characterization and potential [J]. Opt Express, 2007, 15(26): 17542–17553.
- 26 Grillet C, Bian S N, Magi E C, *et al.*. Fiber taper coupling to chalcogenide microsphere modes [J]. Appl Phys Lett, 2008, 92(17): 171109.
- 27 Akbulut D, Tulek A, Bayindir M. Generation of new frequencies in toroid microcavities [C]. ICTON 2008, 260-263.
- 28 Hu J, Carlie N, Feng N N, *et al.*. Planar waveguide-coupled, high-index-contrast, high-Q resonators in chalcogenide glass for sensing [J]. Opt Lett, 2008, 33(21): 2500–2502.
- 29 Hu J, Carlie N, Petit L, *et al.*. Demonstration of chalcogenide glass racetrack microresonators [J]. Opt Lett, 2008, 33(8): 761–763.
- 30 Solmaz M E, Adams D B, Tan W C, *et al.*. Vertically integrated As₂S₃ ring resonator on LiNbO₃ [J]. Opt Lett, 2009, 34(11): 1735–1737.
- 31 Elliott G R, Murugan G S, Wilkinson J S, *et al.*. Chalcogenide glass microsphere laser [J]. Opt Express, 2010, 18(25): 26720-26727.
- 32 Zhou Y, Xin X, Snider W T, *et al.*. Two-stage taper enhanced ultra-high *Q* As₂S₃ ring resonator on LiNbO₃ [J]. Photon Technol Lett, 2011, 23(17): 1195–1197.
- 33 Luan F, Magi E, Gong T, et al.. Photoinduced whispering gallery mode microcavity resonator in a chalcogenide microfiber [J]. Opt Lett, 2011, 36(24): 4761-4763.
- 34 Vanier F, Bianucci P, Godbout N, *et al.*. As₂S₃ microspheres with near absorption-limited quality factor [C]. ICOMN, 2012, 45-46.
- 35 Li Chaoran, Wu Yuehao, Dai Shixun, et al.. Cavity quantum electrodynamic fluorescence enhancement effect of Nd³⁺doped chalcogenide glass microspheres [J]. Acta Optica Sinica, 2014, 34(2): 0223001.

李超然,吴越豪,戴世勋,等.Nd^{3*}掺杂硫系玻璃微球荧光腔量子电动力学增强效应[J].光学学报,2014,34(2):0223001.

36 Lu Laiwei, Wu Yuehao, Li Chaoran, *et al.*. Excitation of fluorescence whispering gallery modes in a taper-chalcogenide microsphere coupling system with a large refractive index difference pumped by an 808 nm laser diode [J]. Acta Photonica Sinica, 2014, 43(7): 0730002.

路来伟,吴越豪,李超然,等. 808 nm LD 激发下高折射率差光纤锥硫卤微球耦合系统的荧光回廊模[J]. 光子学报, 2014, 43 (7): 0730002.

37 Lü Sheqin, Wu Yuehao, Lu Laiwei, *et al.*. Fluorescent characteristics of Er³⁺ doped chalcogenide glass microsphere under 980 nm LD pumping [J]. Chinese Journal of Luminescence, 2014, 35(4): 454–459.

吕社钦, 吴越豪, 路来伟, 等. Er³⁺掺杂硫系玻璃微球在 980 nm 激光泵浦下的荧光特性[J]. 发光学报, 2014, 35(4): 454-459.

- 38 Ruan Y, Li W, Jarvis R, *et al.*. Fabrication and characterization of low loss rib chalcogenide waveguides made by dry etching [J]. Opt Express, 2004, 12(21): 5140-5145.
- 39 Hu J, Feng N N, Carlie N, et al.. Low-loss high-index-contrast planar waveguides with graded-index cladding layers [J]. Opt Express, 2007, 15(22): 14566-14572.
- 40 Brambilla G, Xu F, Horak P, *et al.*. Optical fiber nanowires and microwires: fabrication and applications [J]. Advances in Optics and Photonics, 2009, 1(1): 107–161.
- 41 Vienne G, Coillet A, Grelu P, *et al.*. Demonstration of a reef knot microfiber resonator [J]. Opt Express, 2009, 17(8): 6224-6229.
- 42 Dai Shixun, Lu Laiwei, T Guangming, *et al.*. Research progress of glass micosphere for optical microcavity [J]. Laser & Optoelectronics Progress, 2012, 49(8): 080001.

戴世勋, 路来伟, 陶光明, 等. 用于光学微腔的玻璃微球研究进展[J]. 激光与光电子学进展, 2012, 49(8): 080001.

- 43 Broaddus D H, Foster M A, Agha I H, et al.. Silicon-waveguide-coupled high-Q chalcogenide microspheres [J]. Opt Express, 2009, 17(8): 5998-6003.
- 44 Pengfei W, Senthil Murugan G, Brambilla G, *et al.*. Chalcogenide microsphere fabricated from fiber tapers using contact with a high-temperature ceramic surface [J]. Photon Technol Lett, 2012, 24(13): 1103–1105.
- 45 Armani D K, Kippenberg T J, Spillane S M, *et al.*. Ultra-high-Q toroid microcavity on a chip [J]. Nature, 2003, 421 (6926): 925-928.
- 46 Chaudhari C, Suzuki T, Ohishi Y. Design of zero chromatic dispersion chalcogenide As₂S₃ glass nanofibers [J]. J Lightwave Technol, 2009, 27(12): 2095–2099.

- 47 Hudson D D, Mägi E C, Judge A C, *et al.*. Highly nonlinear chalcogenide glass micro/nanofiber devices: design, theory, and octave-spanning spectral generation [J]. Opt Commun, 2012, 285(23): 4660-4669.
- 48 Ta' eed V, Baker N J, Fu L, et al.. Ultrafast all-optical chalcogenide glass photonic circuits [J]. Opt Express, 2007, 15 (15): 9205-9221.
- 49 Al-kadry A, Baker C, El Amraoui M, *et al.*. Broadband supercontinuum generation in As₂Se₃ chalcogenide wires by avoiding the two-photon absorption effects [J]. Opt Lett, 2013, 38(7): 1185-1187.
- 50 Al Tal F, Dimas C, Hu J, *et al.*. Simulation of an erbium-doped chalcogenide micro-disk mid-infrared laser source [J]. Opt Express, 2011, 19(13): 11951-11962.
- 51 Tanaka K, Toyosawa N, Hisakuni H. Photoinduced Bragg gratings in As₂S₃ optical fibers [J]. Opt Lett, 1995, 20(19): 1976–1978.
- 52 Baker N J, Lee H W, Littler I C, *et al.*. Sampled Bragg gratings in chalcogenide As₂S₃ rib-waveguides [J]. Opt Express, 2006, 14(20): 9451-9459.
- 53 Ahmad R, Rochette M, Baker C. Fabrication of Bragg gratings in subwavelength diameter As₂Se₃ chalcogenide wires [J]. Opt Letters, 2011, 36(15): 2886–2888.

栏目编辑: 韩 峰