具有5位操作的非易失性电可编程集成光子学

Rui Chen[1,*], Zhuoran Fang[1], Christopher Perez[3], Forrest Miller[1], Khushboo Kumari[1], Abhi Saxena[1], Jiajiu Zheng[1], Sarah J. Geiger[4], Kenneth E. Goodson[3], Arka Majumdar[1,2,*1]电气与计算机工程系， 华盛顿大学，西雅图，WA 98195，美国[2]物理系， 华盛顿大学，西雅图，WA 98195，美国[3]机械工程系，斯坦福大学，斯坦福，CA 94305，美国[4]查尔斯·斯塔克·德雷珀实验室，剑桥，MA 02139，美国 *电子邮箱：charey@uw.edu 和 arka@uw.edu

关键词：相变材料、非易失性、可编程集成光子学、电控制、多级操作

摘要

可扩展的可编程光子集成电路（PICs）有望改变当前经典与量子光信息处理的发展现状。然而，传统的编程方式，包括热光效应、自由载流子色散和普克尔斯效应，都会导致器件占用面积过大或静态能耗过高，严重限制了其可扩展性。硫族化物基非易失性相变材料（PCMs）凭借强折射率调制能力和零静态功耗，有望缓解这些问题，但往往存在吸收损耗大、循环稳定性低以及缺乏多级操作等缺点。在此，我们报道了一种采用宽带隙相变材料硫化锑（Sb_2S_3）包覆的硅光子平台，同时实现了低损耗、高循环稳定性和5位操作。我们通过片上硅PIN二极管加热器切换Sb_2S_3 ，并展示了具有低插入损耗（<1.0 dB）、高消光比（>10 dB）和高耐久性（>1,600次切换）的器件。值得注意的是，我们发现，通过施加幅度相同且热隔离的脉冲，可以将Sb_2S_3 编程为精细的中间态，为可控多级操作提供了一种独特方法。通过动态脉冲控制，我们实现了按需且精确的5位（32级）操作，每级对比度为0.50 ± 0.16 dB。利用这种多级行为，我们进一步校准了平衡马赫-曾德尔

干涉仪中的随机相位误差。我们的工作为实现低损耗、按需多比特操作的非易失性大规模可编程光子集成电路开辟了一条颇具前景的途径。

Main

可编程光子集成电路（PIC）通常由可调分束器和移相器阵列组成，能够按需改变功能。这种灵活性近期拓展了其传统应用领域，使其从光互连扩展到光计算[1],光可编程门阵列[2], 和量子信息处理[3]。要进一步扩展可编程光子集成电路的规模，其组成器件需要占用更小的面积并降低功耗。然而，目前的可编程光子集成电路主要基于较弱的易失性调谐机制，例如热光效应[4,5], 自由载流子效应[6], 和泡克耳斯效应[7], ，这些机制只能使折射率产生微小变化（$\Delta n < 0.01$）。因此，由此制成的器件通常占用较大面积（> 100 μm），且需要持续供电（~10 mW[1]）。此外，热光效应会导致严重的热串扰，因此需要额外的加热器和控制电路来补偿串扰。这些要求严重限制了当前光子集成电路的集成密度和能效。

硫族化物基非易失性相变材料（相变材料）有望缓解这些问题[8–10]。相变材料具有两种稳定且可逆切换的微观结构相（非晶态和晶态，本文分别称为 a 相和 c 相），其光学折射率差异显著（$\Delta n \sim 1$）。得益于非易失性相变，切换相变材料的相后，无需静态功率即可保持其状态。显著的折射率变化 Δn 和非易失性，使其能够实现静态能耗为零的紧凑型可重构器件（~10 μm[10,11]）[12–17]。此外，相变材料兼容大规模集成，因为它们可以通过溅射[12,15,17–19] 或热蒸发[11] 轻松沉积在几乎所有光子集成电路材料上，包括硅和氮化硅。尽管具有这些优点，$Ge_2Sb_2Te_5$ （GST）和 GeTe 等典型相变材料在相关光通信波长下的两种相中都具有强吸收。这限制了它们在移相器中的应用，而移相器是可编程光子集成电路的重要构建模块。新兴的宽带隙相变材料，例如 GeSbSeTe（GSST）[20],硒化锑（Sb_2Se_3）[21], 和硫化锑（Sb_2S_3）[22] ，能够规避这一损耗，近来在业界引起了广泛关注[11,16,23–25]。特别是，Sb_2S_3 在这些相变材料中带隙最宽，使其在非晶相下的透明波长可低至 ~ 600 纳米[22]。此外，Sb_2S_3 不含硒，因此毒性较低[26] ，且在溅射或蒸发过程中不易造成腔室污染。因此，Sb_2S_3 是

更适合在商业代工厂中应用。尽管前景广阔，Sb_2S_3 的高耐久性电控制仍未得到解决。

在此，我们展示了电控 Sb_2S_3 包层硅光子器件，其插入损耗低（<1 dB）、消光比高（>10 dB），且耐久性高（>1，可切换 600 次）。相变由硅 PIN（二极管的 p 型掺杂区—本征区—n 型掺杂区）加热器驱动。我们通过三种不同的集成光子器件，验证了这一混合平台的多功能性，包括微环谐振器、马赫-曾德尔干涉仪（MZI）和非对称定向耦合器。我们还观察到多级（32 级）操作，其级数高于所有已报道的电控 PCM-硅平台，分辨率为每步 0.50 ±0.16 dB。通过发送多个热间隔（~1 秒）、几乎相同的电脉冲，实现了非晶化和结晶过程中的多级操作。我们利用这种多级特性，对平衡马赫-曾德尔干涉仪进行微调，以校正制造缺陷导致的随机相位误差。多级操作对于避免微调时校正不足或过度至关重要。我们的工作为实现低损耗、可按需进行多级操作的非易失性电控可编程光子集成电路开辟了新途径。

结果

我们对溅射沉积的 Sb_2S_3 薄膜进行了表征，以获取其折射率并验证沉积态 a-Sb_2S_3的结晶能力（在 325° 下退火 10 分钟）（补充材料第 S1 节）。硅光子器件（图 1–图 3）设计为在通信 O 波段（1260–1360 nm）工作，并在标准绝缘体上硅（SOI）晶圆上制造，该晶圆包含 220 nm 厚的硅层和 2 μm 厚的埋氧层。宽度为 500 nm 的波导通过部分刻蚀 120 nm 厚的硅层制成。随后，我们通过溅射在 SOI 芯片上沉积了宽度为 450 nm 的 Sb_2S_3 。其宽度略小于波导，是为了补偿电子束光刻（E-beam）的套刻容差。仿真结果显示，a-Sb_2S_3 与 c-Sb_2S_3 之间的有效折射率变化为 $\Delta n_{eff} \approx 0.018$（补充材料第 S2 节）。$Sb_2S_3$ 薄膜通过片上硅 PIN 微加热器[15,17]进行电控制。p^{++} 和 n^{++} 掺杂区的设计位置距波导 200 nm，以避免自由载流子吸收损耗[17]，；图 1c、图 2c 和图 3c 的假彩色扫描电子显微镜（SEM）图像中标出了这些区域。Sb_2S_3 条带采用在 150°C 下通过原子层沉积（ALD）生长的 40 nm 厚 Al_2O_3 进行封装。这种共形封装对于防止 Sb_2S_3 氧化和发生热回流至关重要，因此也是实现

高耐久性的关键。为展示我们采用 Sb_2S_3包覆的硅光子平台具有多功能性，且兼容大多数光子集成电路组件，我们展示了三种广泛使用的光子集成电路组件：（1）微环谐振器，用于展示谐振腔的低损耗调谐；（2）平衡马赫-曾德尔干涉仪，用于展示完整的 π 相移和宽带工作；（3）非对称定向耦合器，用于构建紧凑型可编程单元（仿真结果见补充材料第 S2 节）。

集成 Sb_2S_3 移相器的非易失性微环开关

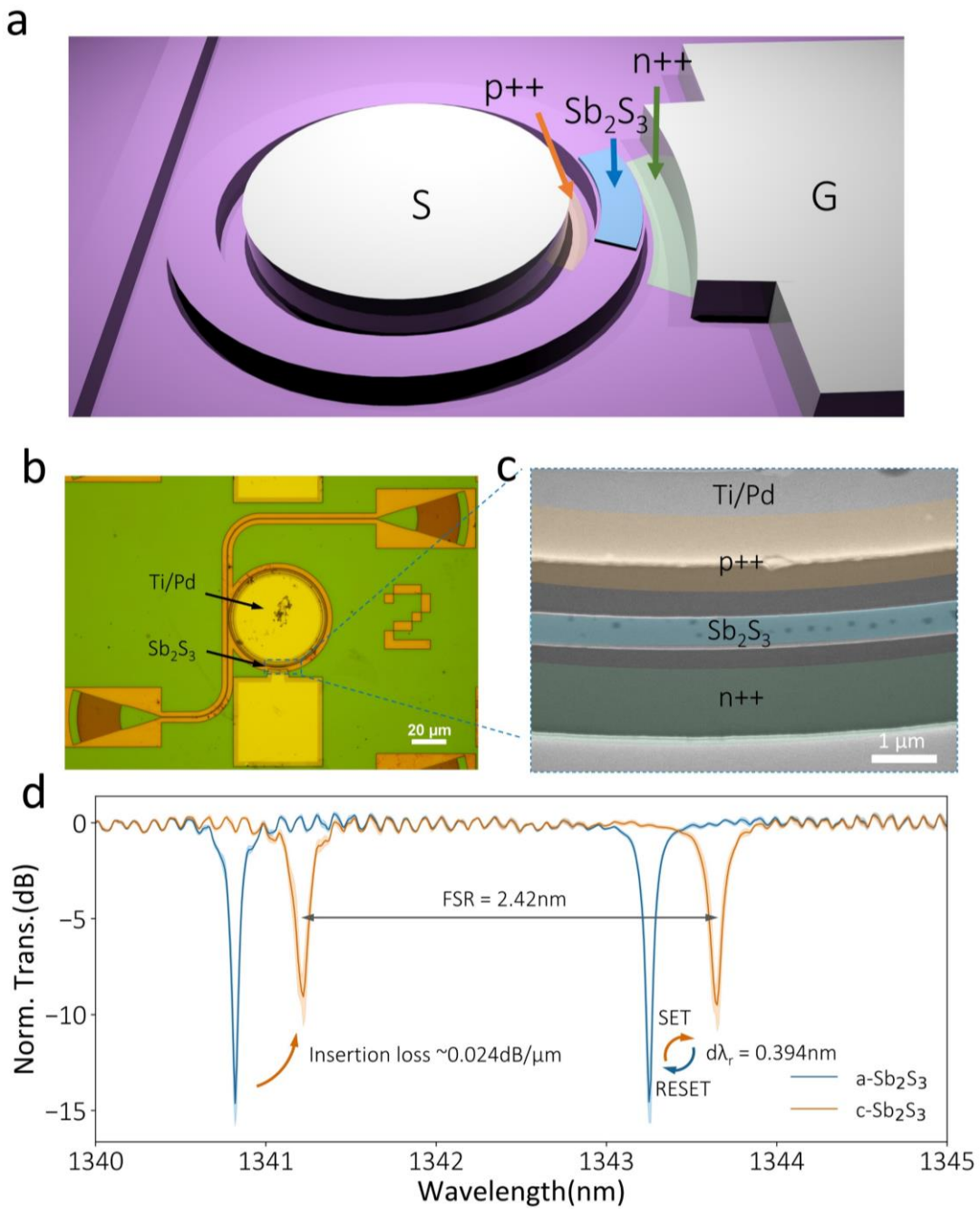

图 1：加载有 **10 μ** 微米、厚度为 20 纳米的 Sb_2S_3 薄膜的高 **Q 环形谐振器**。(a) 器件示意图（未显示封装用原子层沉积 Al_2O_3 层），(b) 微环谐振器的光学图像，以及 (c) 扫描电子显微镜（SEM）图像。Sb_2S_3 薄膜、n^{++} 掺杂硅区域和 p^{++} 掺杂硅区域分别以蓝色、橙色和绿色的假色表示。(d) 微环在两个相态下测得的光谱（置位：施加三个 1.6 V、持续 200 ms 的脉冲，使 Sb_2S_3 转变为晶态；复位：施加三个 7.5 V、持续 150 ns 的短脉冲，使 Sb_2S_3 转变为非晶态）。光谱为十次可逆电切换循环的平均值，阴影区域表示标准差。Norm. Trans. 表示归一化透射率，以同一芯片上的参考波导为基准进行归一化。

我们在半径为 30 μm 的微环谐振器上沉积了长 10-μm、厚 20 nm 的 Sb_2S_3（图 1a-c）。自由光谱范围（FSR）为 ~2.42 nm（图 1d），总线波导与环形谐振器间隙为 280 nm，以实现近临界耦合器件。我们施加三个幅值为 1.6 V 、持续 200 ms 、间隔 1 秒的脉冲（即置位脉冲），将微环谐振器上沉积态的 a-Sb_2S_3 转变为 c-Sb_2S_3；随后施加三个幅值为 7.5 V、持续 150 ns、同样间隔 1 秒的短脉冲（即复位脉冲），使材料重新非晶化。值得注意的是，200 ms 的置位脉冲确实比其他已报道的相变材料（PCMs）所需脉冲长得多，例如 GST（50 μs[17] 或 100 μs[16]）和 Sb_2Se_3（5 μs[11] 或 100 μs[16]）。不过，我们发现，经过最初几次循环后，置位脉冲的持续时间可进一步缩短至约 100 μs（见方法和补充材料第 S12 节）。此外，缓慢的结晶过程使大量 Sb_2S_3 能够非晶化（补充材料第 S13 节）。我们使用三个脉冲而非单个脉冲，以确保完全非晶化和结晶（见方法）。图 1d 显示，a 相（蓝色）转变为 c 相（橙色）时，10 μm Sb_2S_3 的谐振偏移为 ~0.394 nm，对应的相移长度 L_π 为 ~30.7 μm，显著短于铁电非易失性移相器的 1 毫米 L_π [27]。置位和复位过程重复了 10 个循环。谐振偏移具有很高的重复性，这一点可由其标准差很小看出（图 1d）。a-Sb_2S_3 带来的额外损耗可忽略不计[19]，；在 c-Sb_2S_3 混合波导中，损耗估计为 0.024 dB/μm（0.72 dB/π），是仿真结果（0.26 dB/π）的三倍（补充材料第 S2 节）。我们认为，这一额外损耗源于 Sb_2S_3 薄膜因沉积/剥离不均匀，以及 c-Sb_2S_3中的局部晶粒而产生的散射（补充材料第 S3 节）。我们证实，裸硅波导与 Sb_2S_3负载波导交界处的模式失配损耗很小（~0.013 dB/端面），这与薄 Sb_2S_3 膜不应显著改变模式形状的事实一致（补充材料第 S2 节）。

集成 Sb_2S_3 相移器的非易失性马赫-曾德尔开关 **r**

图 2a-c 展示了一个工作波长范围为 1,320 nm 至 1,360 nm 的平衡马赫-曾德尔干涉仪，两臂均覆盖长 30-μm、厚 20 nm 的 Sb_2S_3。我们设计并制造了一个分光比为 50:50 的多模干涉仪，如图 2d 所示（仿真结果见补充材料第 S2 节）。初始时，光主要从直通端口输出，消光比为 ~13 dB（图 2e）。在该平衡马赫-曾德尔干涉仪中，光从直通端口而非交叉端口输出，可由制造缺陷（尤其是 S形弯曲处的缺陷）导致两臂产生随机相位误差来解释。可采用更宽的波导来提高制造鲁棒性，从而克服此类缺陷[28]。另外，也可利用 Sb_2S_3 进行制造后修调，以校正这种随机相位误差，本文后文将对此进行展示。一臂上的 Sb_2S_3 经两个幅值为 1.7 V、持续 200 ms 的 SET电脉冲切换，实现了完整的 π 相移。随后施加一个幅值为 8.1 V、持续 150 ns 的短 RESET电脉冲，将器件切换回初始状态。图 2e 和 2f 分别显示了 Sb_2S_3 薄膜处于非晶相和晶相时，相对于参考波导归一化后的透射光谱。c-Sb_2S_3 呈现出完整的光谱翻转，表现为消光比为 15 dB 的直通态。随后，我们记录了 1,330 nm 处的直通端口透射率；在 100 次切换过程中，器件未发生退化（补充材料第 S4 节）。

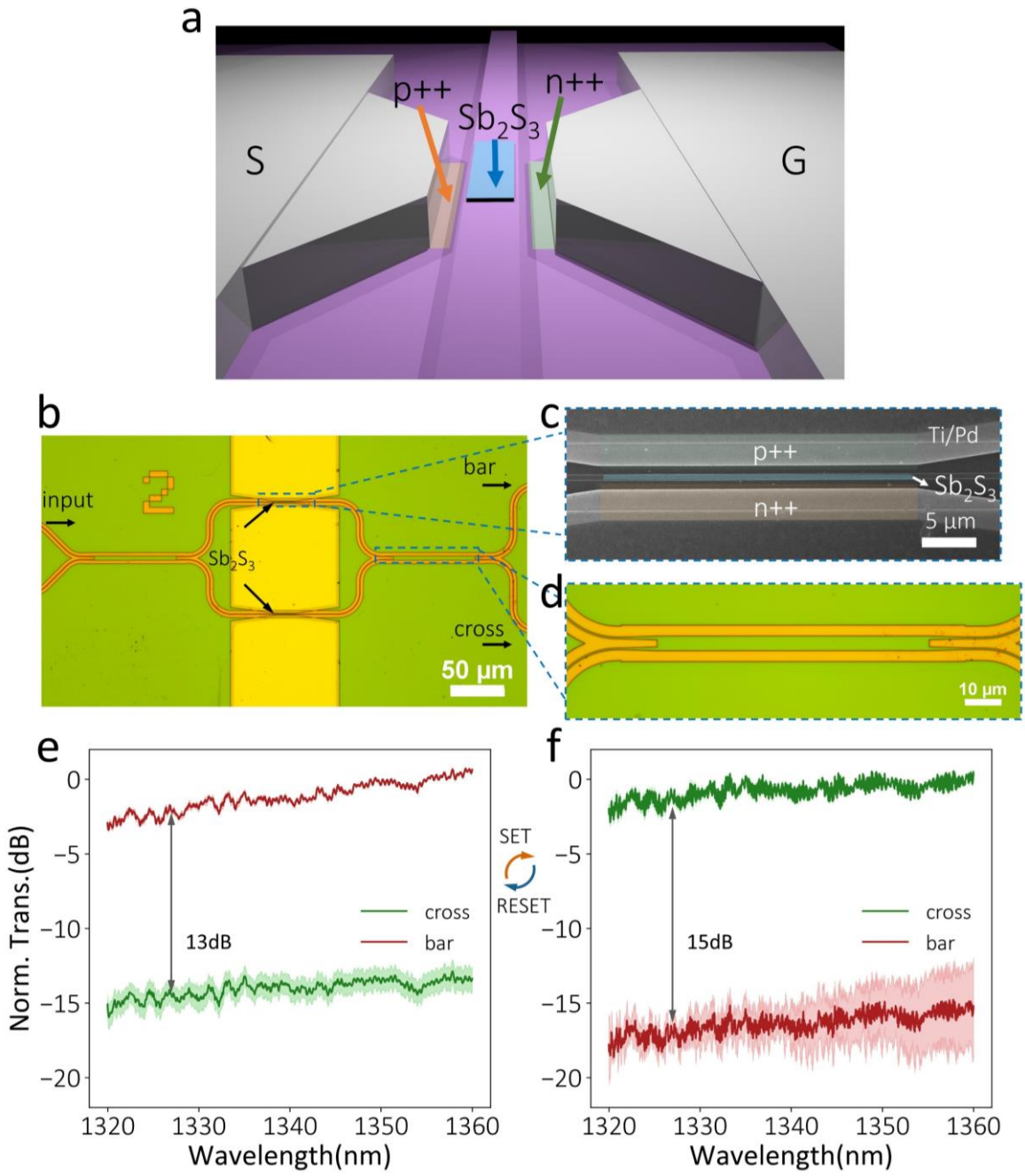

图 2：两条臂均覆盖有 20 纳米厚 Sb_2S_3的马赫-曾德尔干涉仪。(a) Sb_2S_3 移相器示意图（未显示原子层沉积 Al_2O_3 层封装）。(b) Sb_2S_3 移相器的光学显微图和 (c) 扫描电子显微镜图像。(d) 分光比为 50:50 的多模干涉仪光学显微图。(e, f) (e) a-Sb_2S_3 （复位：8.1 V、150 ns 脉冲）和 (f) c-Sb_2S_3 （置位：两个 1.7 V、200 ms 脉冲）在直通端口和交叉端口的透射光谱。绿线和红线分别表示在交叉端口和直通端口测得的透射率。阴影区域表示 5 次测量循环的透射率标准差。

紧凑型非对称定向耦合器开关

我们还设计并制造了一种紧凑型非对称定向耦合器（耦合长度 $L_c \approx 79\ \mu m$）（仿真见补充材料第 S2 节），如图 3a–c 所示。该耦合器由两条宽度不同的波导组成。较窄的 409 纳米宽波导（混合波导）上覆盖了 20 纳米厚的 Sb_2S_3，其设计目的是使其与较宽的 450 纳米宽波导（裸波导）在 c-Sb_2S_3[29]状态下实现相位匹配。因此，输入光可在一个耦合长度内完全耦合至交叉端口。Sb_2S_3 切换至非晶态后，混合波导的有效折射率发生变化，而裸波导保持不变。由此产生的相位失配会改变耦合强度和耦合长度。随后，通过协同优化间隙和波导长度，可实现完全的直通传输。与采用 a-Sb_2S_3[13,15,29,30]，不同，这种独特的 c-Sb_2S_3 相位匹配方法无论输入端口如何，都能实现更对称的性能（补充材料第 S2 节），这对 a2 × 2 器件至关重要。如果 c-Sb_2S_3 状态下出现相位失配，那么其中一条波导上的 c-Sb_2S_3 轻微损耗，会导致光从不同输入端口入射时直通态的插入损耗不同。值得注意的是，通过沉积更厚（50 nm）的 Sb_2S_3 以实现更强的折射率调制，79-μm 的耦合长度有望进一步缩短至 (~ 34μm)。

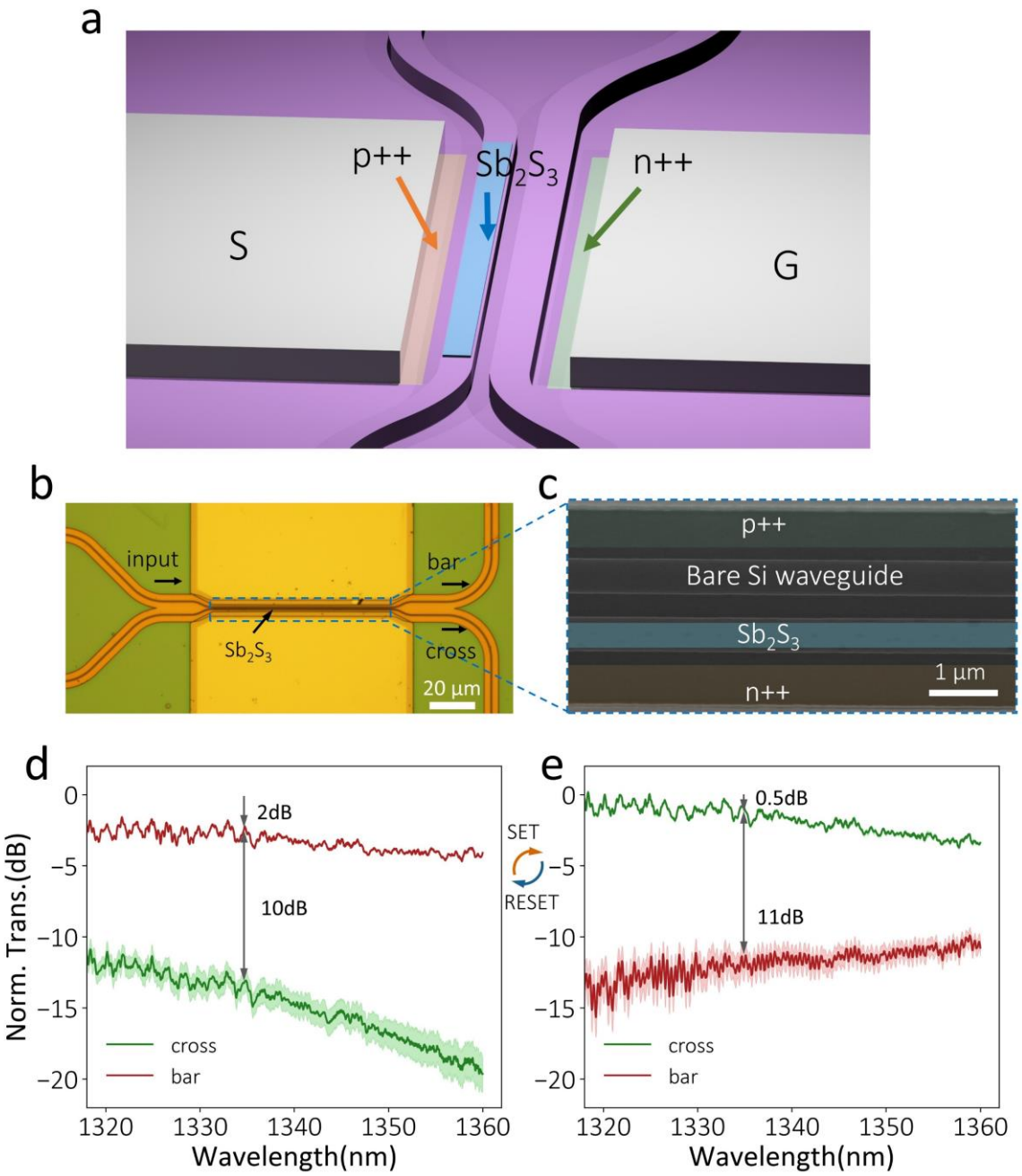

图 3：采用 Sb_2S_3-Si 混合波导的非对称定向耦合器。(a) 示意图（未显示原子层沉积 Al_2O_3 封装层），(b) 光学图像，以及 (c) 非对称定向耦合器的扫描电子显微镜图像。(d, e) 直通端和交叉端口的透射光谱：(d) a-Sb_2S_3（复位：施加三个 9.6 V、500 ns 脉冲），以及 (e) c-Sb_2S_3（置位：施加三个 2.7 V、200 ms 脉冲）。结果取五次测量的平均值，阴影区域表示标准差。

图 3d 和 3e 分别显示了 a-Sb_2S_3, 和 c-Sb_2S_3, 在施加三个 9.6 V、500 ns 的复位脉冲和 2.7 V、200 ms 的置位脉冲后得到的透射光谱。a-Sb_2S_3和 c-Sb_2S_3的插入损耗分别为 2 dB（0.5 dB），消光比分别约为 10 dB（11 dB）。Sb_2S_3 处于非晶态时出现意外的高插入损耗，这可能归因于多种因素，

包括间隙偏差、Sb_2S_3 覆层偏差或交叉端口光栅耦合器的制造缺陷。为估算器件的实际损耗，我们将从环形谐振器中提取的c-Sb_2S_3 损耗应用于仿真，并计算得到该器件的插入损耗为~0.1 dB（0.9 dB），对应于a(c)-Sb_2S_3 （补充材料第 S2 节）。

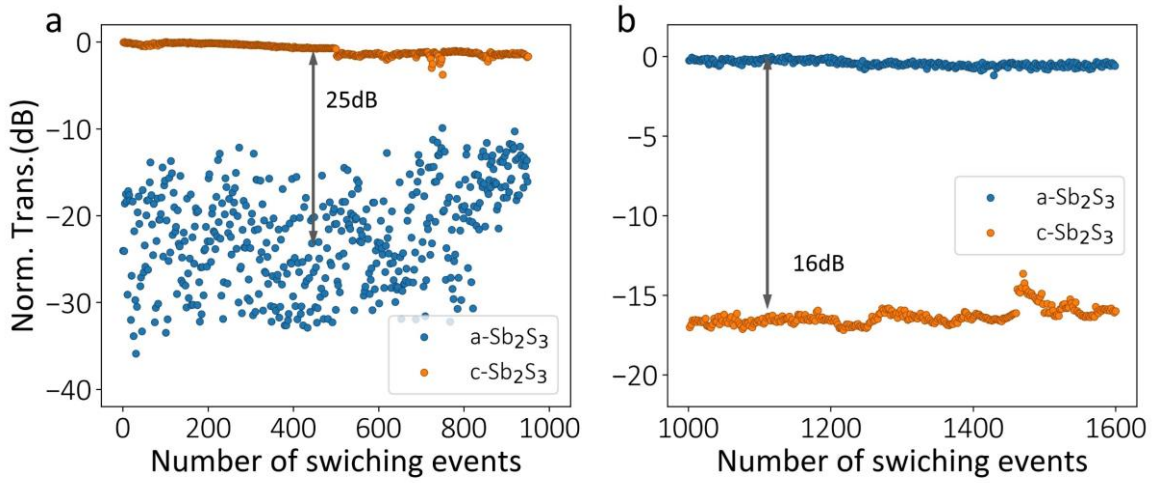

图4：基于a-Sb_2S_3的非对称定向耦合器的循环耐久性测试。在（a）交叉端口和（b）直通端口测量的透射率。蓝色和橙色散点分别表示Sb_2S_3 处于非晶态和晶态时的归一化透射率。相变条件与图3相同。该器件经历了超过1,600次切换，且未出现明显的插入损耗和性能退化。

图4展示了非对称定向耦合器经历1,600次切换的结果。受测量装置限制，我们分别测量了交叉端口（图4a）和直通端口（图4b）。大约在第500次切换时出现的较高插入损耗（~1 dB）是由光纤错位造成的。我们注意到，在测试结束时几乎没有发生性能退化（补充材料S5节）；因此，1,600次切换并不是该器件的极限。对于a-Sb_2S_3 ，交叉端口透射率表现出相对较大的变化（图4a中的蓝色散点，~~从~ -15 dB到~ -35 dB~~），这是由Sb_2S_3 薄膜的非晶化不完全或热回流引起的。由于图中采用对数刻度，a-Sb_2S_3 中这种较大的变化（源于较高的透射率）在图4b中并不明显。

动态电控下的多级5位操作

我们的 Sb_2S_3-Si 集成结构进一步展示了采用动态脉冲控制实现的逐步多级操作，最多可达 32 个级别。图 5a 展示了非对称定向耦合器交叉端口和直通端口的多级透射率；我们每隔一秒施加一个 RESET 10 V、550 ns 脉冲，使 Sb_2S_3非晶化。我们从“粗略”调谐开始进行实验，

在此过程中，向 c-Sb_2S_3 器件施加未经优化且完全相同的脉冲，使其部分非晶化，以展示多个级别。非对称定向耦合器最初处于“交叉态”（红色区域）。施加一个部分非晶化脉冲后，器件被重新配置为中间态（橙色区域），此时光从交叉端口和直通端口同时输出。经过六个脉冲后，器件达到完整的“直通态”（绿色区域）。我们对每个端口重复进行了五次实验，并绘制了平均透射电平和标准差。该变化归因于采用电控制时的随机相变过程[31]。我们还通过实验测试了器件的部分结晶和多级操作（补充材料S5节），其依据是 Sb_2S_3结晶过程[29]的生长主导特性。在接下来的实验中，我们主要关注部分非晶化，因为其能耗较低，且操作级别更多、分辨率更精细。

通过施加相同脉冲实现这种逐步多级操作，与此前报道的 GST[15,17] 和 Sb_2Se_3[11,16]，多级操作截然不同；此前的操作通过使用不同的电压幅值或脉冲持续时间，在非晶化过程中实现多个级别。这种脉冲数依赖行为相当违反直觉：人们会认为，施加第一个非晶化脉冲后，薄 Sb_2S_3 薄膜就已达到新的平衡相。此外，由于热过程会在 10 μ秒内弛豫（补充材料第 S6 节），而脉冲之间的间隔相对较长，为一秒，因此每个脉冲都是独立的。因此，后续施加的相同且彼此分隔的脉冲不应进一步改变材料相态。为了解多级操作的成因，我们用显微镜仔细检查了四个部分~~非晶化的 Sb_2S_3器件。~~我们观察到若干彼此分离的区域（补充材料第 S7 节），以及一个会随着电压脉冲增多而扩大的区域。正如一些文献所报道的，一种可能的解释是，非晶态和晶态 Sb_2S_3 的热导率和比热容存在显著差异。但我们测得二者的热导率相近（非晶态 Sb_2S_3：0.2 W/m/K；晶态 Sb_2S_3：0.4 W/m/K，见方法部分），因此排除了这种可能的解释。我们推测，这种独特行为源于 Sb_2S_3具有多种晶相。Sb_2S_3 至少有两种不同的晶相[32]，，它们的非晶化条件可能有所不同。部分非晶化脉冲可以使温度最高的区域发生非晶化，但在温度较低的区域，则可能引发向另一晶相的相变。这些区域会在后续脉冲中发生非晶化，从而实现多级操作。

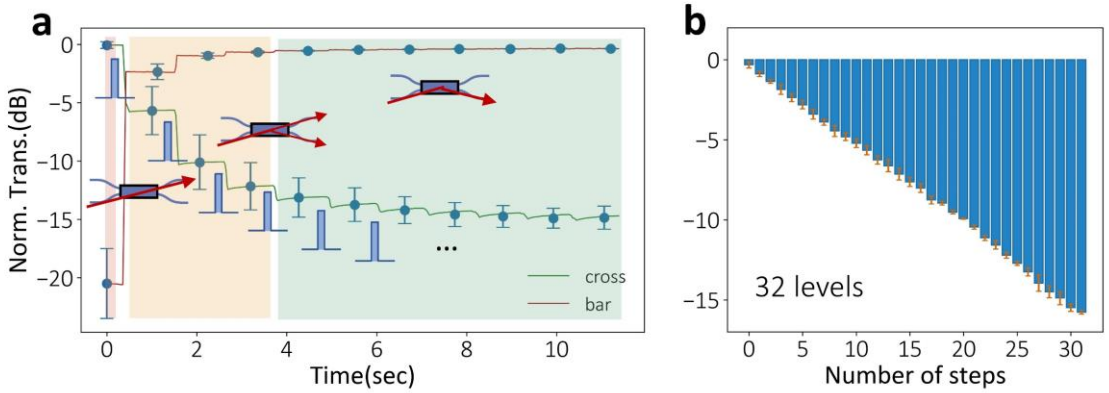

图 5：基于多级 Sb_2S_3 的准连续可调定向耦合器。(a)（施加相同电脉冲进行粗调）每秒输入一个非晶化脉冲（10V，550ns）时定向耦合器的时间轨迹测量结果。绿色（红色）曲线表示交叉（直通端）透射率。每个端口的结果均取五次实验的平均值，误差棒表示标准差。根据所施加的脉冲，可实现“直通端”、“中间”和“交叉”状态，如红色、橙色和绿色区域所示。(b)（使用动态控制的近乎相同电脉冲进行精细调节）直通端口处 1,340 纳米的归一化透射率显示出 5位操作（32 个不同级别）；这是通过动态控制输入脉冲的数量、幅度和持续时间实现的（近乎相同，9.65 V ~ 9.85 V，550 ns）。同时实现了每步 0.50 ± 0.16 dB 的精确透射率级别以及 32 个级别。目标透射率与实际达到的透射率仅存在细微差异，表明该操作可按需进行。误差棒表示五次实验的标准差。

通过监测透射率并动态微调脉冲条件，实现了更精细的多级操作。这里，我们展示了如图 5b 所示，在准连续可调定向耦合器中实现按需 5位操作。我们动态调节部分非晶化脉冲，使其电压略低且彼此近似相同（范围为 9.65 V 至 9.85 V），从而获得多达 32 个级别。图 5b 展示了 5位操作（32 个不同级别），在 1,340 纳米处每级步进的目标分辨率为 0.5 dB（详细脉冲条件见补充材料第 S8 节）。我们强调，动态控制对于减轻电控制相变材料[31], 的随机性是必要的，因此对于实现可靠的多级操作至关重要。图 5b 中的线性拟合显示，每级步进的斜率为 -0.50 dB，五次实验的标准差为 0.16 dB，表明操作具有可重复性。虽然已有研究使用激光脉冲[33], 展示了 GST 的 5位操作，但迄今为止，我们的演示是在基于相变材料的光子学中通过电控制实现的最高操作级别数。此外，我们的多级操作无需复杂的加热器

几何结构设计，例如分段掺杂硅加热器设计[11]，，且完全依赖 Sb_2S_3 独特的相变动力学。

利用多级操作校正平衡马赫-曾德尔干涉仪中的随机相位误差

最后，我们利用多级操作校正了平衡 MZI 中的随机相位误差。理想的平衡 MZI 初始时应处于全交叉态。然而，由制造缺陷导致的随机相位误差很容易累积至 π，使初始状态难以预测。因此，平衡马赫-曾德尔干涉仪通常需要额外校准[28]。例如，图 6a 展示了受相位误差影响的平衡 MZI 的透射光谱，表明其直通传输较高。MZI 的两臂均加载了长 40 微米的 Sb_2S_3 薄膜，以确保相位调谐范围超过 ±π。图 6b 展示了通过 Sb_2S_3 多级调谐校正后的 MZI 光谱，可见其呈现纯粹的“交叉态”，消光比高达 24 dB。微调过程如图 6c 所示。我们每隔一秒输入一个部分非晶化脉冲（8.8 V，150 ns），逐渐增加非晶态 Sb_2S_3，的比例，使直通（蓝色）和交叉（橙色）透射率（在 1,340 nm 处）近乎连续地变化。直通传输达到最小值时，校正即告完成，如图 6c 中的红色箭头所示；随后测得图 6b 所示的光谱。由于相位过补偿，继续施加脉冲会使直通传输增加。我们进行了三次相同的实验，在图 6c 中以不同颜色的区域标示。三次实验均实现了完整的相位误差校正，表明我们的微调过程具有出色的重复性。请注意，由于初始相位误差具有随机性，二进制调谐无法完成这项任务。即使采用离散级分辨率有限的多级操作，也可能导致相位误差校正过度或不足，最终决定微调分辨率。值得强调的是，相位误差校正后，该方法无需静态能量供给，因为 Sb_2S_3 中的相变具有非易失性（> 77 天，补充材料第 S9 节）。由于操作级别相对精细，轻微的过度调谐不会显著影响性能。如前一节所示，采用动态变化、几乎相同的电脉冲可进一步提高微调分辨率。此外，如果相位误差校正过度，可通过部分结晶脉冲将器件调回（补充材料S5节）。未来，我们有望根据测得的透射率实时调整脉冲数量，从而实现微调过程的全自动化。

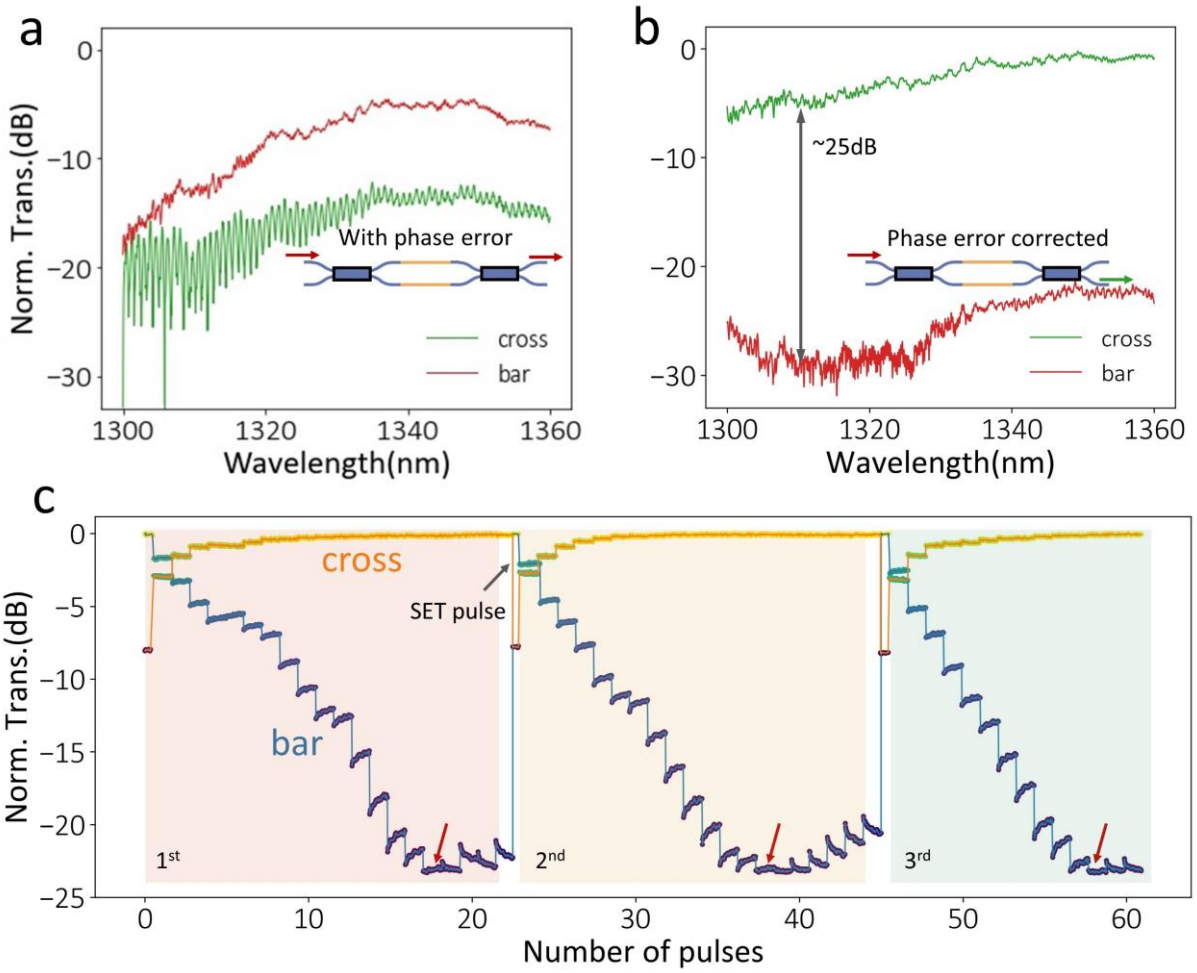

图 6：基于多级操作的平衡马赫-曾德尔干涉仪中的随机相位误差校正。(a) 存在由制造缺陷引起的相位误差的平衡 MZI 的透射光谱。红线（绿线）表示直通传输（交叉传输）。光主要从直通端口而非理想的交叉端口透射。(b) 使用 8.8 V、150 ns 脉冲校正后的透射光谱。器件处于“交叉态”，消光比高达 ~24 dB，表明器件不存在相位误差。(c) 三次实验的时间轨迹测量显示了相位误差校正步骤。复位脉冲以一秒间隔发送。随着发送的脉冲越来越多，直通传输持续降低，直到达到 ~-24 dB 的最小值（红色箭头），随后回升。在所有实验中，均获得了最佳误差校正效果。每个非晶化脉冲之后出现的轻微易失性升高（仅当透射率低于 -12 dB 时可见）可能归因于相对较长的热弛豫时间，但透射率会在下一个脉冲到来前稳定下来。蓝色（橙色）表示直通传输（交叉传输）。

讨论

我们利用宽带隙 PCM Sb_2S_3 和掺杂硅 PIN 加热器，展示了一个多比特集成电光平台。该平台工作于通信 O 波段，Sb_2S_3-硅混合环形谐振器、MZI 和定向耦合器具有较低的插入损耗（< 1.0 dB）和较高的消光比（> 10 dB）。我们报道了 Sb_2S_3 创纪录的电循环耐久性（>1,600 次切换）。值得注意的是，通过连续施加相同且彼此热隔离的部分非晶化脉冲，基于 Sb_2S_3 的光子器件能够以逐步方式调谐至不同的中间态。与采用不同电压或脉冲宽度相比，这种脉冲数依赖的多级调谐可实现分辨率更高的操作级别。我们展示了可调谐分束器中的精确按需 5位操作，每级步进为 0.50 ± 0.16 dB。我们还利用这一特性，在平衡马赫-曾德尔干涉仪中展示了随机相位误差校正，具有实际应用前景。我们的工作为多种集成光子学应用开辟了新途径，例如制造后修调、光信息处理和光量子模拟；在这些应用中，非易失性按需多比特操作至关重要。

方法

SOI 器件制造

硅光子器件是在商用 SOI 晶圆上制备的，该晶圆包含 220 纳米厚的硅层和 2 微米厚的 SiO_2 (WaferPro)。所有器件均采用正性电子束抗蚀剂（ZEP-520A），通过电子束光刻（EBL，JEOL JBX-6300FS）进行定义，并在氟基电感耦合等离子体刻蚀机（ICP，Oxford PlasmaLab 100 ICP-18）中使用 SF_6/C_4F_8混合气体进行部分刻蚀，刻蚀深度为 ~120 纳米。刻蚀速率约为 2.8 纳米/秒。通过另外两轮电子束光刻，使用 600 纳米厚的聚甲基丙烯酸甲酯（PMMA）抗蚀剂定义掺杂区，并分别注入硼（磷）离子，形成 p^{++} (n^{++})掺杂区；剂量为 2×10^{15} 离子/平方厘米，离子能量为 14 keV（40 keV）。芯片在 950 °C 下退火 10 分钟（Expertech CRT200 退火炉），以激活掺杂剂。将芯片浸入 10:1 缓冲氧化物刻蚀液（BOE）中 10 秒，去除表面天然氧化层后，形成理想的欧姆接触。随后立即通过第四轮使用 PMMA 的电子束光刻图案化金属触点。采用电子束蒸发（CHA SEC-600）进行金属化，并通过剥离工艺形成 Ti/Pd（5 纳米/180 纳米）。第五轮电子束光刻定义 Sb_2S_3 窗口后，使用 GST 靶材（AJA

International）在磁控溅射系统（Lesker Lab 18）中沉积 40 纳米厚的 Sb_2S_3 薄膜，随后进行剥离工艺。需要指出的是，由于 PMMA 沟槽较窄，波导上的 Sb_2S_3 实际厚度减小至约 20 纳米（补充材料第S10节）。随后，通过热原子层沉积（Oxford Plasmalab 80PLUS OpAL ALD）在 150 °C 下沉积 40 纳米厚的 Al_2O_3，对 Sb_2S_3 进行封装。为确保施加电脉冲时电探针与金属焊盘之间接触良好，通过第六轮电子束光刻和 600 纳米厚的 PMMA 定义窗口，随后在氯基电感耦合等离子体刻蚀机（ICP-RIE，Oxford PlasmaLab 100 ICP-18）中刻蚀，去除金属触点上的 Al_2O_3。

光学仿真

Sb_2S_3 的折射率数据由椭偏仪（Woollam M-2000）[34]测得。移相器和非对称定向耦合器由商用光子仿真软件包 Lumerical MODE（时域有限差分）设计（验证）。

热传递仿真

使用商用多物理场仿真软件 COMSOL Multiphysics[35,36] 对掺杂硅PIN加热器进行了仿真。仿真中，将固体传热模型与半导体模型耦合，以模拟瞬态性能。

光学透射测量装置

使用具有 25°倾角的垂直光纤耦合装置对可编程单元进行了测量。通过热电控制器（TEC，TE Technology TC-720）将载物台温度控制在 26°C。可调谐连续波激光器（Santec TSL-510）输入光信号，并通过手动光纤偏振控制器（Thorlabs FPC526）控制其偏振，以获得最大的光纤到芯片耦合效率。低噪声功率计（Keysight 81634B）测量静态光学透射率。所有 Sb_2S_3 器件的透射光谱均以最近的参考波导光谱为基准进行归一化。对于片上电切换，通过安装在两个探针定位器（Cascade Microtech DPP105-M-AI-S）上的一对电探针，将电脉冲施加到片上金属触点。结晶和非晶化脉冲由脉冲函数任意波形发生器（Keysight 81160A）产生。可调谐激光器、功率计、热控制器、源表和脉冲函数任意波形发生器均由 LabView 程序[35]控制。

对 Sb_2S_3, 进行电切换时，我们发现，单个非晶化或结晶电压脉冲会使器件切换至透射电平，但状态间变化较大（补充材料第 S11 节）。这可能归因于 Sb_2S_3 转变为随机

中间结构相，因为它具有两种（或更多种）晶相[32]。为解决这一问题，我们使用三个相同的脉冲，使 Sb_2S_3 相完全切换。

我们还注意到，亚毫秒脉冲起初未能触发结晶。我们将 500-μs 脉冲的电压提高至材料消融电压级别，但仍未观察到结晶。这表明，热诱导的 Sb_2S_3结晶过程相对缓慢，不同于激光诱导结晶[22],，后者已实现数十纳秒的结晶速度。我们将这一现象归因于初始成核困难。首次结晶过程之后，连续的结晶过程可在数百个 μs 的时间尺度内发生（速度仍足够慢，可避免在非晶化过程中发生再结晶，补充材料第 S12 节）。我们推测，首次长时间热过程形成初始晶核后，结晶会变得更容易。需要指出的是，报告的实验中使用了 200 毫秒脉冲，因为我们后来发现，首次结晶之后所需的脉冲时间更短。因此，本研究中的脉冲条件仍可进一步优化。

然而，对于许多光子集成电路应用而言，这种有限的结晶速度通常是可以接受的，例如非易失性交换网络、光可编程门阵列和光学神经网络；在这些应用中，高速度并非必不可少，零静态功耗则更为重要[37,38]。此外，缓慢的结晶速度可防止长脉冲非晶化期间发生意外再结晶，并使较厚的 Sb_2S_3 层能够完全切换。我们验证了，持续时间为 10 微秒的脉冲能够引发高度非晶化（补充材料第 S13 节）。这种驱动较厚薄膜发生相变的能力对光子学很有用，因为与电子应用相比，它能使体积大得多的相变材料发生切换。

热参数测量

我们采用时域热反射（TDTR）[39,40]测量薄膜的热导率。TDTR 利用超快调制激光加热，通过吸收薄金属换能层（70 纳米铂）实现加热。随后，非调制探测激光通过换能层反射率的比例变化测量表面温度。测量时采用 10 MHz 的泵浦光束调制频率，以确保热穿透深度大于薄膜厚度。刀口法测量得到泵浦光束和探测光束的 $1/e^2$ 光束半径分别为 5.5 和 3.1 ± 0.05 μm。随后，将所得热反射数据拟合至材料多层堆叠结构（铂层-薄膜-衬底）的三维热扩散模型解，并确定有效热阻随薄膜

厚度的变化关系。对上述数据进行线性回归，得到材料堆叠结构的热边界电阻，并据此确定薄膜的本征热导率。铂层、薄膜和硅衬底的性质通过独立测量确定，或取自文献[41,42]。

致谢

作者感谢 Asir Intisar Khan、Kathryn M. Neilson、斯坦福大学的 Eric Pop 教授以及麻省理工学院的 Juejun Hu 教授所进行的富有启发性的讨论。

资助： 本研究由美国国家科学基金会（NSF-1640986、NSF-2003509）、ONR青年研究员计划奖、DARPA青年教师奖、NASA小企业技术转移奖 80NSSC22PA980 以及英特尔资助。F.M. 获德雷珀学者计划资助。本研究的部分工作在华盛顿纳米加工设施/分子分析设施完成。该设施是华盛顿大学的国家纳米技术协调基础设施（NNCI）站点，并获得美国国家科学基金会通过 NNCI-1542101 和 NNCI-2025489 项目提供的部分资助。本研究的部分工作在斯坦福纳米共享设施（SNSF）完成，该设施由美国国家科学基金会通过项目 ECCS-1542152 资助。

作者贡献：R.C. 和 A.M. 构思了该项目。R.C. 对 Sb_2S_3 硅光子器件进行了仿真和制备，并完成光学表征和数据分析。Z.F. 和 J.Z. 协助完成器件仿真、制备、表征和数据分析。F.M.、S.G.、K.K. 和 A.S. 协助进行了光学测量。C.P. 和 K.E.G. 测量了 Sb_2S_3 薄膜的热导率。A.M. 负责指导并规划该项目。R.C. 在全体作者的意见基础上撰写了论文。

利益冲突：作者声明不存在任何利益冲突。

数据可用性：支持本研究结论的数据可在提出合理请求后向通讯作者获取。

补充信息

参考文献

1. Shen, Y. 等. 基于相干纳米光子电路的深度学习。《自然·光子学》11, 441–446（2017年）。

2. Capmany, J., Gasulla, I. & Pérez, D. 微波光子学：可编程处理器。《自然·光子学》10, 6–8（2016年）。 3. Harris, N. C. 等. 可编程纳米光子处理器中的量子输运模拟。《自然·光子学》11, 447–452（2017年）。 4. Pérez, D. 等. 多用途硅光子信号处理器核心。《自然·通讯》8, 1–9（2017年）。 5. Zhang, W. & Yao, J. 光子集成现场可编程磁盘阵列信号处理器。《自然·通讯》11, 1–9（2020年）。 6. Reed, G. T., Mashanovich, G., Gardes, F. Y. & Thomson, D. J. 硅光调制器。《自然·光子学》4, 518–526（2010年）。 7. Wang, C. 等. 工作电压与 CMOS 兼容的集成铌酸锂电光调制器。《自然》562, 101–104（2018年）。 8. Wuttig, M., Bhaskaran, H. & Taubner, T. 用于非易失性光子应用的相变材料。《自然·光子学》11, 465–476（2017年）。 9. Abdollahramezani, S. 等. 硫属化物相变材料赋能的可调谐纳米光子学。Nanophotonics 9, 1189–1241（2020年）。 10. Fang, Z., Chen, R., Zheng, J. & Majumdar, A. 基于相变材料的非易失性可重构硅光子学。《IEEE量子电子学精选主题期刊》28, 1–17（2022年）。 11. Ríos, C. 等. 基于电可重编程透明相变材料的超紧凑非易失性移相器。PhotoniX 3, 26（2022年）。 12. Zheng, J. 等. GST-on-silicon混合纳米光子集成电路：一种非易失性准连续可重编程平台。Optical Materials Express 8, 1551（2018年）。 13. Xu, P., Zheng, J., Doylend, J. K. & Majumdar, A. 低损耗宽带非易失性相变定向耦合器开关。ACS Photonics 6, 553–557（2019年）。

14. Fang, Z. 等. 宽带低损耗相变材料赋能的非易失性可重构集成光子学. 《先进光学材料》9, (2021年). 15. Chen, R. 等. 硅光子学中的宽带非易失性电控可编程单元. ACS Photonics (2022年) doi:10.1021/acsphotonics.2c00452. 16. Fang, Z. 等. 基于相变材料和石墨烯加热器的超低能耗可编程非易失性硅光子学. 《自然·纳米技术》842–848 (2022年) doi:10.1038/s41565-022-01153-w. 17. Zheng, J. 等. 硅PIN二极管加热器赋能的非易失性电控可重构集成光子开关. 《先进材料》32, 2001218 (2020年).

18. Rios, C. 等. 集成全光非易失性多级存储器. 《自然·光子学》9, 725–732 (2015年).

19. Fang, Z. 等. 基于宽带

低损耗相变材料的非易失性可重构集成光子学。《先进光学材料》9, 2002049（2021年）。

20. Zhang, Y. 等. 用于高

性能非易失性光子学的宽带透明光学相变材料。Nature Communications 10, 1–9（2019年）。

21. Delaney, M., Zeimpekis, I., Lawson, D., Hewak, D. W. & Muskens, O. L. 一类用于光子集成电路的新型超低损耗可逆相变材料：Sb2S3 和 Sb2Se3。《先进功能材料》30, 2002447（2020年）。

22. Dong, W. 等. 宽带隙相变材料调控的可见光子学。《先进功能材料》29, 1806181（2019年）。23. Shalaginov, M. Y. 等. 具有衍射极限性能的可重构全介质超透镜。Nature Communications 12, 1–8（2021年）。24. Lu, L. 等. 可见光谱中米氏共振的可逆调谐。《ACS纳米》15, 19722–19732（2021年）。

25. Moitra, P. 等. 利用低损耗硫属化物相变超表面实现可见光谱中的可编程波前控制。《先进材料》n/a, 2205367。26. Spallholz, J. E. 关于硒毒性与抑癌活性本质的探讨。《自由基生物学与医学》17, 45–64（1994）。27. Geler-Kremer, J. 等. 铁电多级非易失性光子移相器。《自然·光子学》16, 491–497（2022年）。28. Song, L., Li, H., Dai, D. & Dai, D. 低随机相位误差的马赫–曾德尔硅光开关。《光学快报》, OL 46, 78–81（2021年）。29. Teo, T. Y. 等. 基于相变材料的可重构硅光定向耦合器的比较与分析。《光学材料快报》, OME 12, 606–621（2022年）。30. Zhang, Q. 等. 基于光学相变材料的宽带非易失性光子开关：超越经典品质因数。《光学快报》43, 94（2018年）。31. Tuma, T., Pantazi, A., Le Gallo, M., Sebastian, A. & Eleftheriou, E. 随机相变神经元。Nature Nanotechnology 11, 693–699（2016）。32. Gutierrez, Y. 等. 关于 Sb2S3 结构、介电函数与非晶态到晶态相变之间相互作用的光子学实验室间研究。iScience 104377（2022年）， doi:10.1016/j.isci.2022.104377。33. Li, X. 等. 使用 5 位非易失性光子存储单元实现快速可靠的存储。《光学》6, 1（2019年）。34. Xu, P., Zheng, J., Doylend, J. K. & Majumdar, A. 低损耗宽带非易失性相变定向耦合器开关。ACS Photonics 6, 553–557（2019年）。35. Zheng, J. 等. 非易失性电控可重构集成光子开关

由硅PIN二极管加热器实现。《先进材料》32, 2001218（2020年）。

36. Zheng, J., Zhu, S., Xu, P., Dunham, S. & Majumdar, A. 利用石墨烯加热器对非易失性相变集成纳米光子结构的电切换进行建模。《ACS应用材料与界面》12, 21827–21836（2020年）。

37. Chen, R. 等. 大规模相变材料

集成电光子学。《ACS Photonics》（2022年）doi:10.1021/acsphotonics.2c00976.

38. Zhang, Y. 等. 关于光学相变材料的误区与真相：一种观点。Applied Physics Letters 118, 210501（2021年）。

39. Kwon, H., Perez, C., Park, W., Asheghi, M. & Goodson, K. E. 使用纳米光栅换能器，通过时域热反射对金属–氧化物界面进行热表征。ACS Appl. Mater. Interfaces 13, 58059–58065（2021年）。

40. Perez, C. 等. 外延铱薄膜中的主导能量载流子转变与热各向异性。《先进功能材料》n/a, 2207781.

41. Černošková, E., Todorov, R., Černošek, Z., Holubová, J. & Beneš, L. 非晶态 Sb2Se3 薄膜的热学性质与结构。J Therm Anal Calorim 118, 105–110（2014）。

42. Ben Nasr, T., Maghraoui-Meherzi, H. & Kamoun-Turki, N. Sb2S3电子、热电及热学性质的第一性原理研究。《合金与化合物杂志》663, 123–127 (2016)。

补充信息

非易失性电可编程集成

采用5位操作的光子学

Rui Chen[1,*]、Zhuoran Fang[1], Christopher Perez[3], Forrest Miller[1], Khushboo Kumari[1], Abhi Saxena[1], Jiajiu Zheng[1], Sarah J. Geiger[4], Kenneth E. Goodson[3], Arka Majumdar[1,2,*1]电气与计算机工程系， 华盛顿大学，美国华盛顿州西雅图，邮编 98195[2] 物理系， 华盛顿大学，美国华盛顿州西雅图，邮编 98195[3] 机械与航空航天工程系，斯坦福大学，美国加利福尼亚州斯坦福，邮编 94305[4]查尔斯·斯塔克·德雷珀实验室，美国马萨诸塞州剑桥，邮编 02139 *电子邮箱：charey@uw.edu 和 arka@uw.edu

本补充信息包括：

S1. Sb_2S_3 薄膜表征 S2. Sb_2S_3-绝缘体上硅混合集成移相器和定向耦合器的 Lumerical仿真 S3. 局部晶粒——显微图像 S4. 额外的测量循环性测试结果 S5. 基于 Sb_2S_3 部分结晶的多级性能 S6. 热传递仿真 S7. 不同中间态的显微图像 S8. 表中列出了5位操作的脉冲条件 S9. 77天后的性能保持 S10. Sb_2S_3 条带剥离后的厚度取决于图案宽度 S11. 单脉冲与多脉冲切换 S12. 受成核速度限制的初始结晶及后续加速结晶 S13. 长脉冲非晶化——大体积非晶化的证据

S1节：Sb_2S_3 薄膜表征

我们首先通过椭偏测量、X射线衍射和拉曼光谱对Sb_2S_3 薄膜进行表征（图S1）。将一层60纳米厚的Sb_2S_3 溅射沉积在硅片上。首先对沉积态的a-Sb_2S_3 进行表征，随后在氮气流下于325°C退火10分钟，使其转变为晶相。

通过椭偏测量对Sb_2S_3 进行了表征，并使用Cody-Lorentz模型对数据进行拟合，均方误差较低（~5）。图S1(a)中的拟合复折射率显示，实部n发生了显著变化（1310 纳米处为~0.7），而在整个电信O波段和C波段范围内，κ 几乎为零（1310 纳米处，非晶态为0.0003，晶相为0.03）。因此，切换Sb_2S_3 可实现纯相位调制。退火后的微观结构相变及化学计量比通过X射线衍射（XRD）和拉曼光谱[1], 进行了验证，如图S1(b)和图S1(c)所示，验证依据为XRD中的特征晶格常数和拉曼光谱中的波数位移。这些特征与现有文献[2]高度吻合。

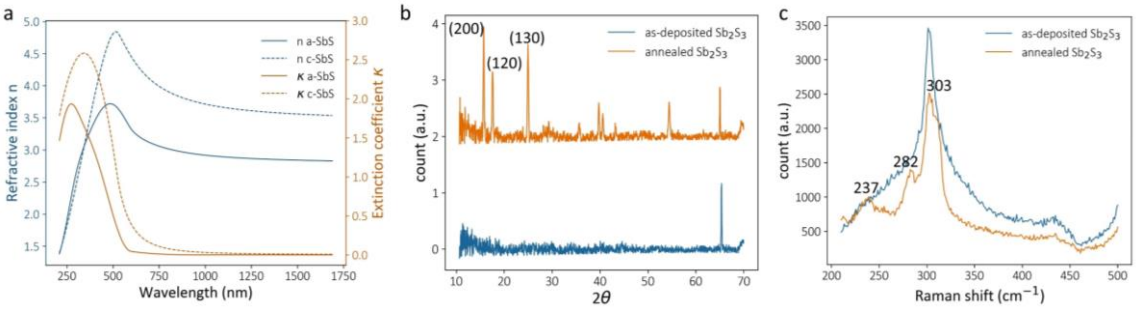

图 S1：Sb_2S_3 材料表征。(a) 通过椭偏测量拟合得到的宽带复折射率。(b) X射线衍射和 (c) 拉曼光谱测量结果，分别对应沉积态（蓝色）和退火态（橙色）的 Sb_2S_3 样品。沉积态 Sb_2S_3 在 $2\theta = 65^\circ$ 处的峰来自硅衬底。标出了特征晶格常数和拉曼位移。

S2. Sb_2S_3-SOI 混合移相器和定向耦合器的 Lumerical 仿真

S2.1. 基于 Sb_2S_3 的硅移相器

图S2展示了基于Sb_2S_3的移相器的模拟π 相移长度L_π 和插入损耗。此处使用的Sb_2S_3 折射率取自上一节的实验结果。对于常规的宽500纳米、高220纳米的绝缘体上硅波导，其顶部覆盖厚20纳米、宽450纳米的Sb_2S_3 薄膜，在1310 纳米处得到0.018的有效折射率差，如图S2(a、b)所示，表明π 相移长度为$L_\pi \approx 38\ \mu m$。图S2(c、d)显示，加宽和增厚Sb_2S_3 薄膜可缩短L_π，且对插入损耗影响不大（~0.23 dB/π）。我们采用常规的500纳米波导宽度，以避免增加额外的锥形结构，从而使$L_\pi \approx 38\ \mu m$。裸硅波导模式与c-Sb_2S_3-Si混合波导模式之间的计算模式耦合率为99.7%（即-0.013 dB），可以忽略不计。

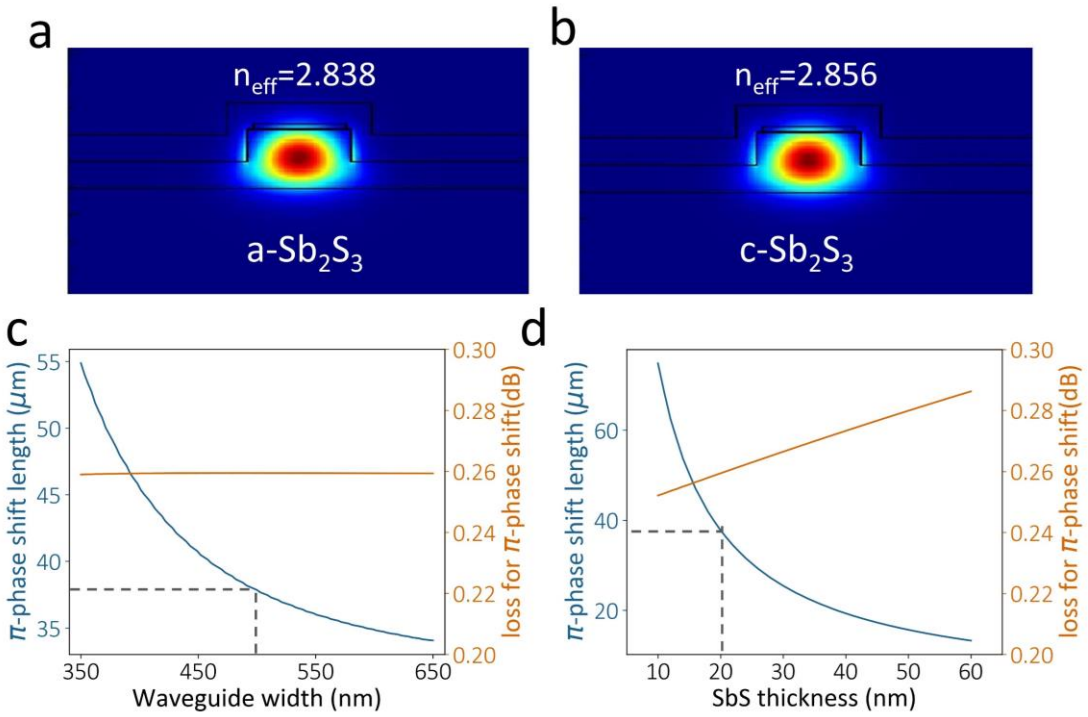

图 S2：Sb_2S_3-on-SOI 移相器的仿真。(a, b) 非晶态 (a) 和晶态 (b) Sb_2S_3 的模式仿真。在 1310 纳米处获得了 0.018 的有效折射率差，表明 π 相移长度为 $L_\pi \approx 38\ \mu m$。(c, d) L_π （蓝色）和 π 相移的额外损耗（橙色）随 (c) 混合波导宽度和 (d) Sb_2S_3 厚度的变化。随着波导宽度和 Sb_2S_3 厚度的增加，L_π 减小，而额外损耗几乎保持不变。灰色虚线表示我们在实验中采用了 500 纳米的波导宽度和 20 纳米的 Sb_2S_3 厚度。

我们注意到，利用更宽或更厚的 Sb_2S_3，可以进一步减小 L_π。虽然较厚的 Sb_2S_3 能使器件占用面积更紧凑，但要实现完全相变则更加困难。

较厚 Sb_2S_3 薄膜中的垂直温度梯度可能导致底部的 Sb_2S_3 发生烧蚀，而顶部温度又不足以使其非晶化。较厚的 Sb_2S_3 层也可能发生非预期的再非晶化。此外，由于结晶动力学和有限的热扩散时间[3]，还可能发生再结晶。为兼顾这些因素，我们选择 20 纳米作为实验厚度，既能实现完整且可重复的 Sb_2S_3 相变，又能使 L_π 相对紧凑，为 38μm。由于这是首次对 Sb_2S_3 进行电切换的实验，我们选择了较为保守的 20 纳米厚度。鉴于实验中观察到良好的切换行为，未来实验可采用更厚的 Sb_2S_3 ，以获得更加紧凑的器件。能够实现完全切换的 Sb_2S_3 薄膜最大厚度仍需通过更多实验加以探索。

S2.2. 基于 Sb_2S_3 的可调谐非对称定向耦合器

该非对称定向耦合器采用 Lumerical MODE 仿真器和耦合模理论进行设计。其设计思路已在正文和文献[4–6]中阐述。图 S3 (a, b) 展示了两个主要的优化步骤：(i) 在 Sb_2S_3 厚度固定的情况下，确定 Sb_2S_3 负载波导的宽度，使其与裸 SOI 波导达到相位匹配；(ii) 通过优化两条波导之间的间隙，使直通态下的耦合长度为交叉态下耦合长度的偶数倍，从而在切换 Sb_2S_3 时，在直通端口获得较高的透射率[4]。与文献[4], 中的1 × 2 耦合器不同，我们在此考虑一种2 × 2 定向耦合器，光从两个输入端口同时入射。为了实现与输入端口无关的性能，当 Sb_2S_3 处于晶相时，Sb_2S_3-SOI 混合波导与裸 SOI 波导达到相位匹配。直观而言，在这种配置下，无论光从哪个输入端口入射，都会与 L_c 的 Sb_2S_3 波导半段中的微弱损耗相互作用。

在 Lumerical MODE 仿真器中完成优化后，我们运行了时域有限差分法（时域有限差分）仿真以验证设计，结果见图 S3（c-f）。图 S3（c、e）中的透射光谱表明，通过控制 Sb_2S_3 的相位使其转变为非晶态（晶态），即可实现直通端（交叉态）。在 1310 纳米处，直通端和交叉态的插入损耗分别约为 0.1 dB 和 0.3 dB，且两种状态下的消光比均大于 15 dB。交叉态下较高的插入损耗主要是由 c-Sb_2S_3的轻微材料吸收造成的。图 S3（e）的插图表明，我们的器件性能具有对称性，且与输入端口无关。图 S3（d、f）展示了分别对应图 S3（c、e）的场传播分布。再次验证了器件性能与输入端口无关。

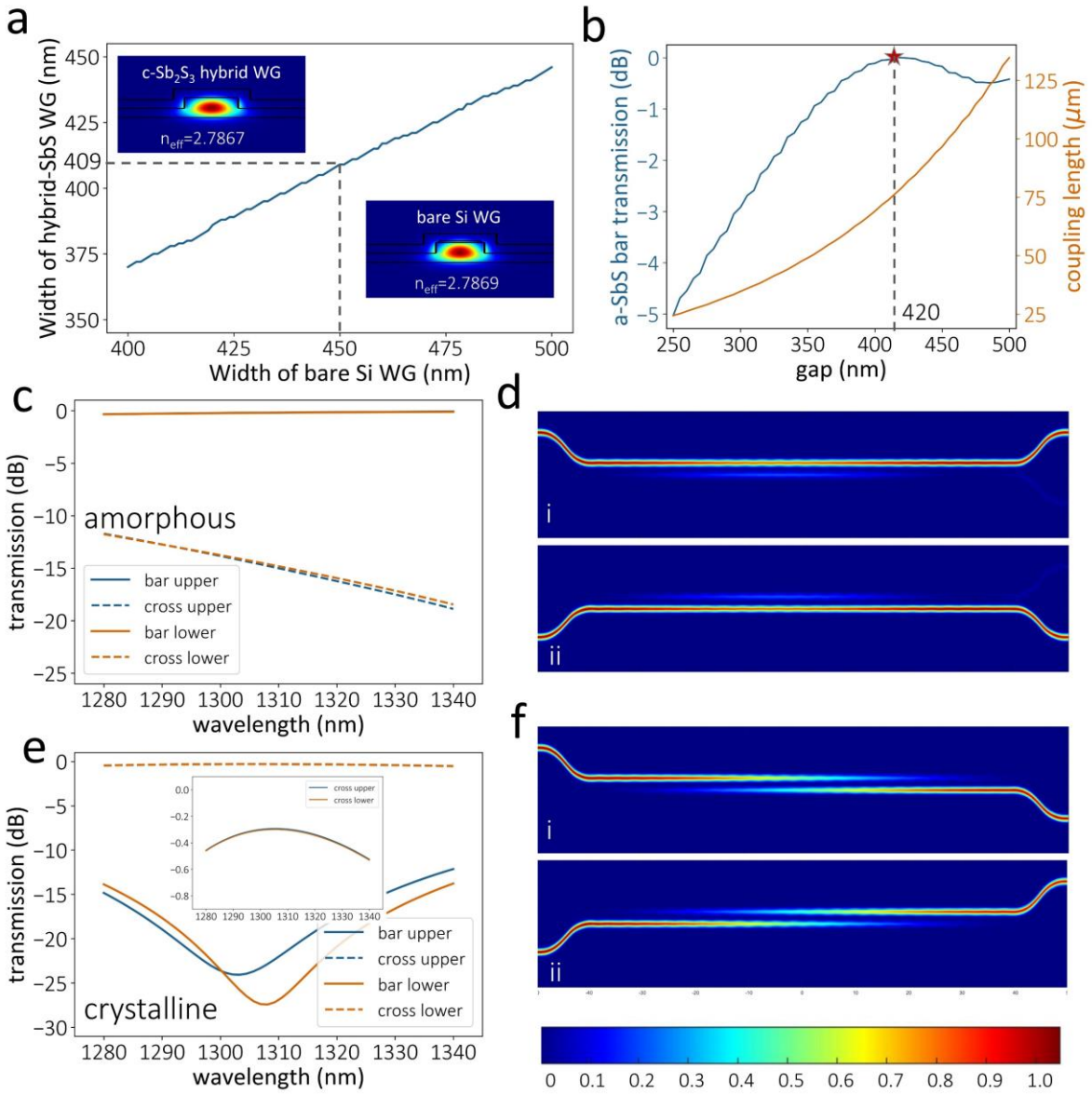

图 S3：具有低插入损耗和大消光比的 Sb_2S_3-on-SOI 2 × 2 可调定向耦合器的仿真。（a）c-Sb_2S_3-SOI 与裸 SOI 波导的相位匹配宽度。灰色虚线表示，450 纳米宽的裸 SOI 波导与 409 纳米宽的 c-Sb_2S_3-SOI 波导实现了相位匹配。两者的模式分布显示在插图中，具有相近的有效折射率，表明相位匹配良好。（b）优化间隙（蓝色），以在 Sb_2S_3切换至非晶相时最大化直通端口透射率。还基于 MODE 仿真和耦合模理论获得了交叉态（橙色）的耦合长度 L_c。选取 420 纳米的最佳间隙，对应于 $L_c \approx 79\mu m$。（c - f）时域有限差分仿真结果。（c、e）透射光谱，以及（d、f）场分布，分别对应（c、d）非晶态和（e、f）晶态 Sb_2S_3。（i）和（ii）分别显示从上方和下方端口输入光时的场分布。（e）中的插图显示了交叉态的输入端口无关性能。

相反，如果波导针对 a-Sb_2S_3, 实现相位匹配，那么当光从 Sb_2S_3 波导输入时，损耗会高得多。图 S4 展示了所仿真的光谱

一种优化设计，其中 20 纳米厚的 a-Sb_2S_3 与裸 SOI 波导实现相位匹配。如放大的直通端透射图图 S4 (b) 所示，当 Sb_2S_3 处于晶相时，两个输入端口之间的透射率差为 0.3 dB。这种看似微小的不对称性可能会导致大规模光子集成电路系统中的光路出现意外的不平衡。

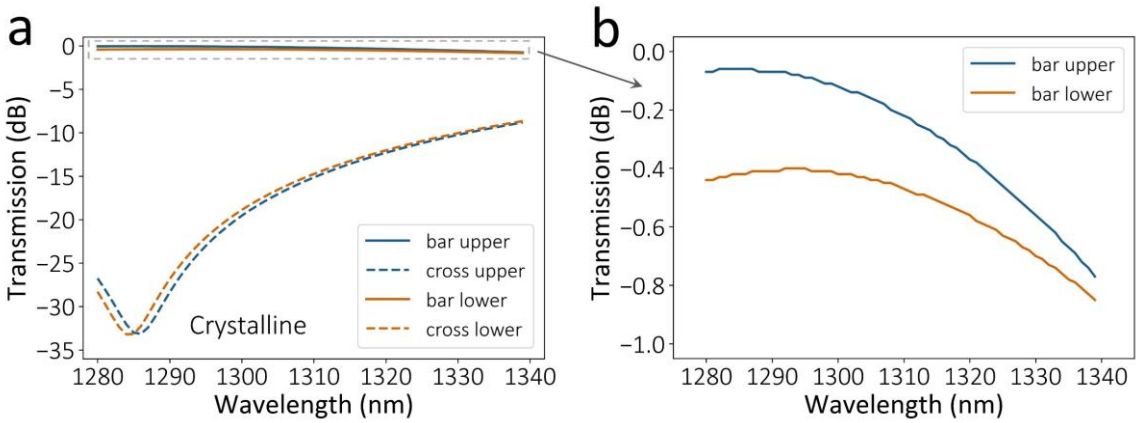

图 S4：使 a-Sb_2S_3-SOI 波导与裸 SOI 波导实现相位匹配，会导致 Sb_2S_3 切换至晶相时出现不对称（取决于输入端口）的直通态。(a) c-Sb_2S_3的透射光谱。(b) 放大的直通端透射光谱显示，两个输入端口之间的透射率差为 0.3 dB。

我们采用厚度为 20 纳米的相对较薄的 Sb_2S_3，以确保完全发生相变。然而，如此薄的相变材料层可调谐范围有限，导致器件占用面积较大。幸运的是，我们注意到 Sb_2S_3 结晶速度较慢，这有望使厚得多的相变材料层也能结晶（见第 S2.1 节），从而缩小器件尺寸。采用相同的设计方法，我们数值设计了 Sb_2S_3 厚度在 30 纳米至 50 纳米之间的非对称定向耦合器，如表 S1 所示。值得注意的是，所设计的厚度为 50 纳米的 Sb_2S_3 定向耦合器的耦合长度显著缩短（~34μm）。

表 S1：采用不同 Sb_2S_3 厚度的 Sb_2S_3 定向耦合器的性能

t_{sbs}（纳米）	W_b（纳米）	W_h（纳米）	间隙（纳米）	L_c（μm）
20	450	409	420	79
30	450	395	370	55
40	450	383	330	41
50	450	373	305	34

注：t_{SbS}、W_b和W_h 分别表示Sb_2S_3 的厚度，以及裸SOI和混合Sb_2S_3-SOI波导的宽度。

S2.3. 使用实验提取的 Sb_2S_3 loss 估算非对称定向耦合器的损耗

我们通过将高 Q 环形谐振腔中测得的损耗（0.76 dB/μm）与 MODE 仿真结果进行匹配，提取 c-Sb_2S_3, 的实际损耗，其中包括晶粒散射损耗。我们得到的消光系数为 $\kappa' \approx 0.015$，而在 1310 纳米波长下，椭偏测量结果为 κ =0.005。随后，我们使用新的复折射率估算非对称定向耦合器的实际损耗。图 S5 展示了仿真结果，插入损耗约为 0.85 dB，消光比为 25 dB。我们注意到，实验中非晶态 Sb_2S_3 的损耗非常小，因此初始仿真结果仍然成立（插入损耗为 0.1 dB，消光比为 15 dB）。

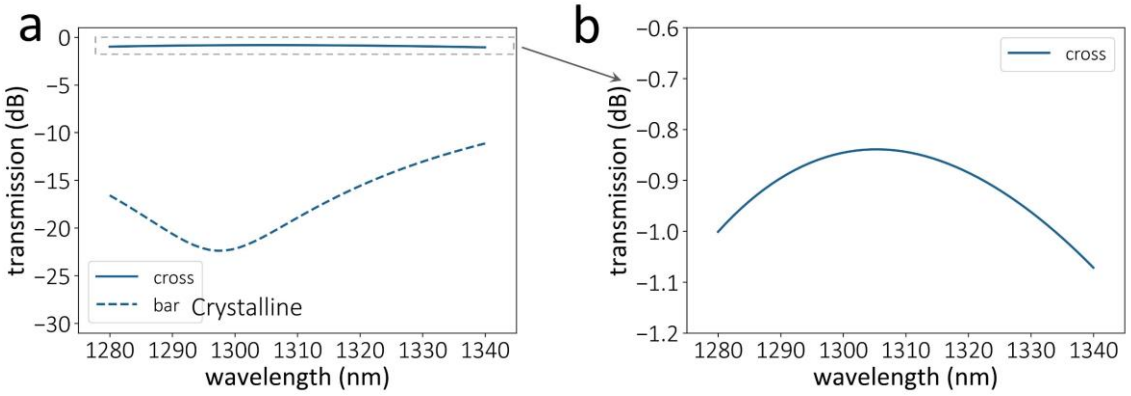

图 S5：使用环形谐振器测得的非对称定向耦合器透射光谱，c-Sb_2S_3 loss。插入损耗从 0.3 dB 增加至 0.85 dB，消光比没有显著变化。

S2.4. 多模干涉仪（MMI）

采用 Lumerical 本征模展开（EME）方法设计了一个 120 纳米部分刻蚀多模干涉仪。随后进一步调整设计，并通过三维时域有限差分仿真进行验证。优化后的多模器件参数以橙色标注于图 S6 (a) 中。图 S6 (a、b) 展示了仿真的电场传播分布，以及两个输出端口的透射光谱。优化后的 MMI 在 1310 纳米处的插入损耗为 < 0.1 dB，1 dB 带宽为 > 60 纳米，如图 S6 (b) 所示。测得的透射光谱见图 S6 (c)。轻微的光谱波动（~0.1 dB）归因于单模锥形波导与多模区域界面处的反射光发生干涉。

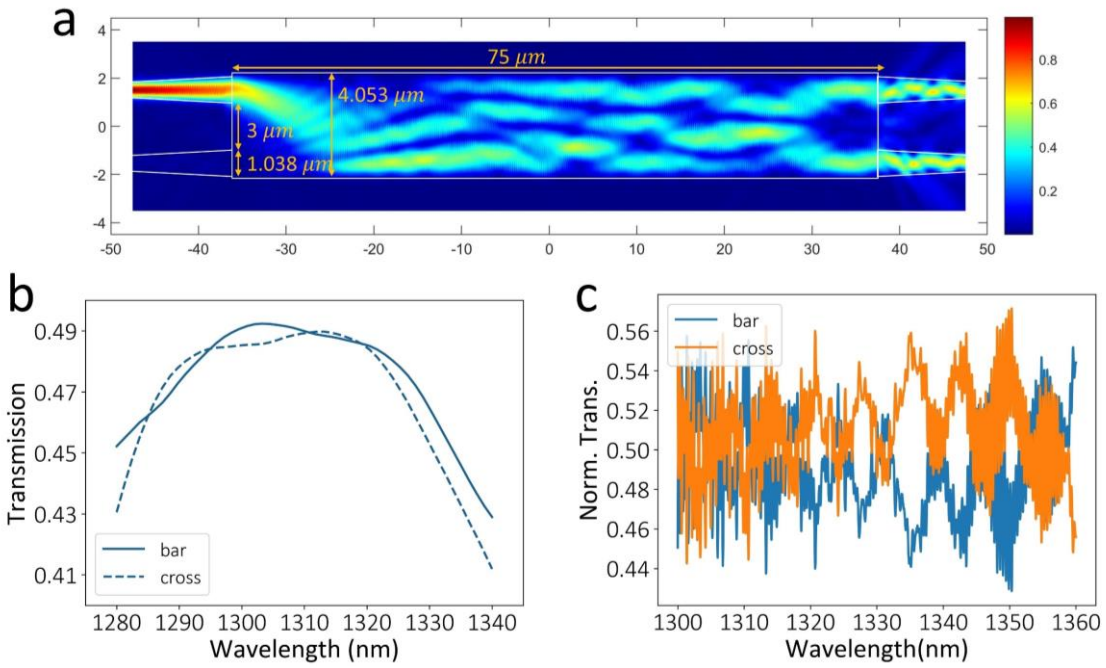

图 S6：1310 纳米下的低损耗 50:50 多模干涉仪（MMI）。(a) 使用 FDTD 仿真得到的场分布和 (b) 透射光谱。白色虚线勾勒出器件形状。(c) 制备的器件的实测透射光谱。

S3 节. 局部晶粒 – 显微图像

在图 S7 中，我们拍摄了整片硅芯片上 60 纳米厚 Sb_2S_3 薄膜的显微图像，其中 Sb_2S_3 薄膜在 325°C 下退火，且处于晶态。显微图像显示，表面并不均匀，存在许多局部晶粒，甚至还有花状图案（红圈标出），这可能导致面内光传播时产生意外的散射损耗。我们推测，晶粒的形成是因为与非晶态相比，晶态 Sb_2S_3 的密度降低了约 24%[7]。因此，相变过程中会产生显著应变，导致表面不均匀。我们还推测，花状图案出现在晶核附近。

由于这些宽 450 纳米、厚 20 纳米的 Sb_2S_3 薄膜尺寸太小，无法进行光学成像，因此尚不清楚我们器件上 c-Sb_2S_3 表面的形貌。厚达 40 纳米的封装氧化铝进一步妨碍了扫描电子显微镜的准确使用。要定量了解形成的晶体图案，还需要进一步开展材料研究。

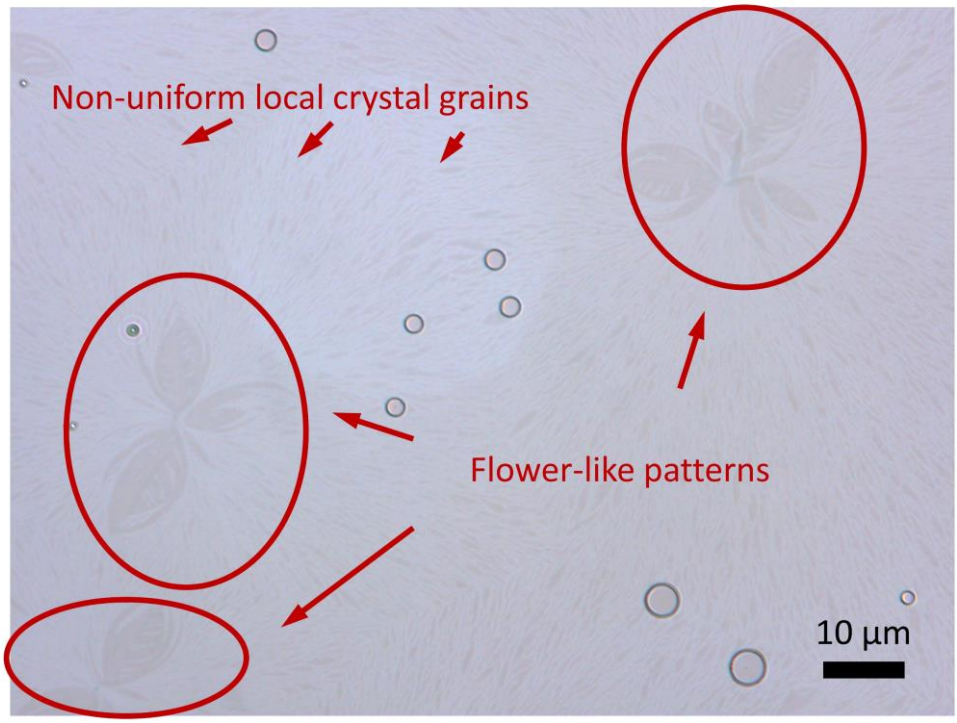

图 S7：由于非晶态与晶态 Sb_2S_3之间存在密度差，退火后形成了不均匀表面。观察到一些花状图案。我们推测，不均匀表面是由非晶态 Sb_2S_3, 与晶态 Sb_2S_3, 之间较大的密度差造成的，而花状图案出现在晶核附近。

第 S4 节。额外的循环耐久性测试结果

MZI 循环耐久性结果 – 100 次循环

通过交替施加置位和复位脉冲，MZI 中的 Sb_2S_3 移相器实现了可逆切换。需要指出的是，这项循环耐久性测试采用了单脉冲方案，因此与正文图4相比观察到显著差异；正文图4中，每次非晶化或结晶均使用了三个脉冲。不过，我们观察到连续 100 次切换（图 S8），器件的消光比高达 ~15 dB。

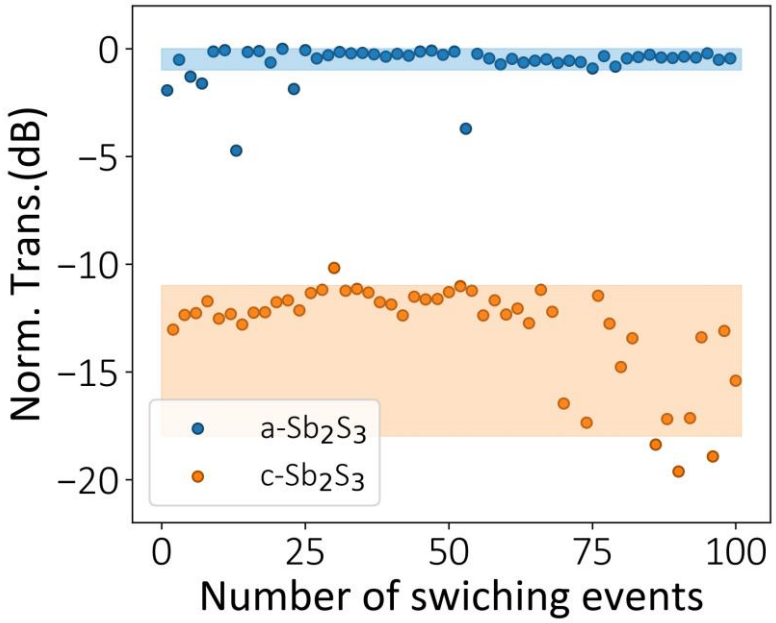

图 S8：在 MZI 中，基于 Sb_2S_3 的移相器经过实验测试，在非晶态（蓝色）与晶态（橙色）之间切换 100 次。每次切换均由单个脉冲触发。

非对称定向耦合器在 2,300 次切换前后的透射率

我们对非对称定向耦合器进行了 2,300 次切换。然而，光学测量装置发生了一些漂移，因此正文中仅报告了 1,600 次切换的数据。本节比较了 2,300 次切换前后的扫描电子显微镜图像和透射光谱，并解释性能退化或透射漂移的原因。

图 S9（a、b）展示了 Sb_2S_3 定向耦合器在循环耐久性测试前后的扫描电子束显微图。我们注意到，下方波导上的黑点（图 S9（a））很可能是在快速热退火过程中形成的晶态 Sb_2S_3 晶核。图 S9（b）中粗糙的 Sb_2S_3 边缘表明，多次切换体积相对较大的 Sb_2S_3 条带会导致 Sb_2S_3变形。这是因为薄膜在熔融淬火过程中总是倾向于

使表面能最小化，因此会形成正弦形边缘。这种现象被称为流体运动的瑞利不稳定性[8]。这种由表面能诱发的不稳定性可能会形成离散圆形图案，并已用于先进的纳米制造[9]。因此，为了进一步提高我们器件的耐久性，一种可行的方法是将较长的 Sb_2S_3 条带图案化为亚波长光栅，以确保较低的初始表面能和较低的额外损耗。我们注意到，其他研究已使用 GST[10–12]通过实验验证了这一亚波长光栅设想，因此这可能是改进本研究成果的一个未来方向。

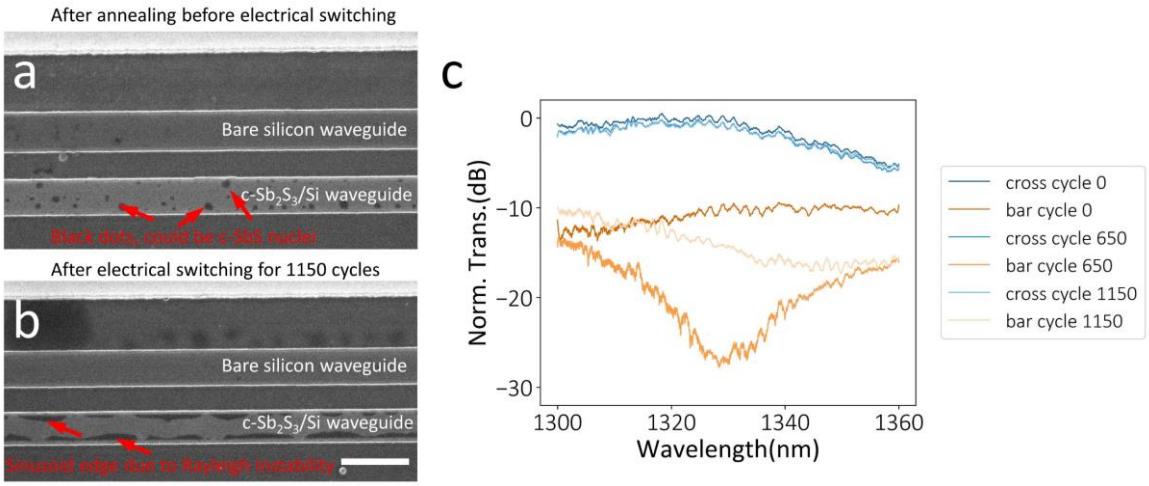

图 S9：经过 1,150 次循环（2,300 次切换）后，器件仅出现轻微退化，扫描电子显微镜图像表明这可能是由热回流造成的。(a, b) 器件在 (a) 单次快速热退火后和 (b) 1,150 次循环后的扫描电子显微镜图像。比例尺：1 μm。(c) 循环耐久性测试开始时、中间阶段和结束时的透射光谱。非对称定向耦合器经过 1,150 次以上切换后，交叉端口（蓝色）未观察到明显的性能退化。直通端口的变化可能是由热回流或瑞利不稳定性导致的 Sb_2S_3 分布变化所致。

循环耐久性测试前后的透射光谱如图 S9 (c) 所示。光谱的轻微漂移可能是由热回流引起的，热回流会改变 Sb_2S_3 的形状，从而破坏相位匹配条件。尽管如此，该器件仍表现出较低的插入损耗（劣化 < 1dB）和较高的消光比（~ 15 dB）。

第　S5. 基于 Sb_2S_3 部分结晶的多级性能

通过输入相对较低电压的结晶脉冲（电压 3.1 V，持续时间 200 ms，前沿 10 ms，后沿 100 ms），我们获得了图 S10 所示的部分结晶效果。这种行为可用 Sb_2S_3[4] 的生长主导特性来解释。生长速率可通过温度（脉冲电压）控制；结晶体积则可通过结晶脉冲的持续时间控制。进一步优化脉冲参数有望实现更多操作级别。

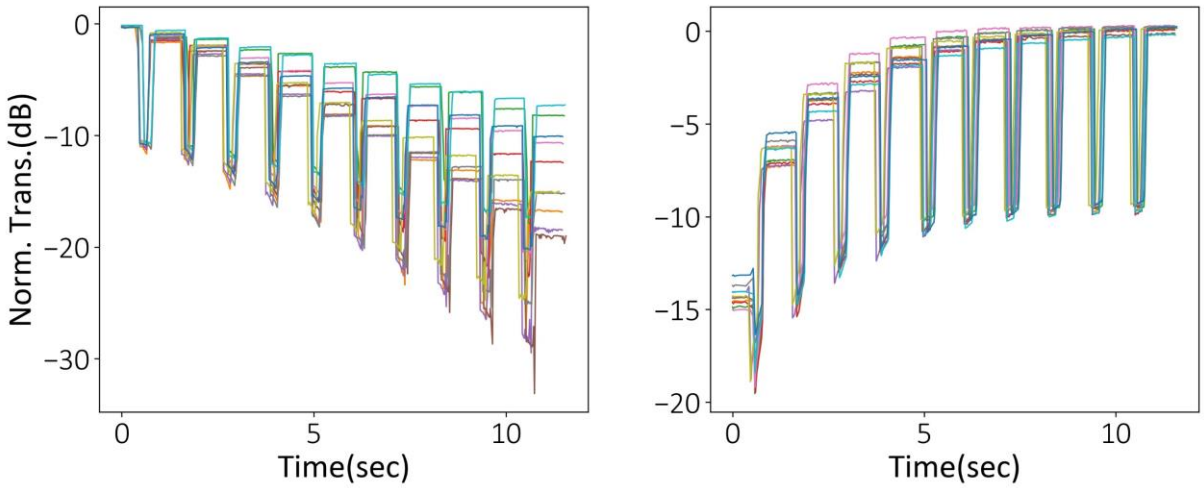

图 S10：使用相同的低幅度、长持续时间脉冲，并以一秒间隔逐步实现部分结晶。在非对称定向耦合器的 (a) 直通端和 (b) 交叉端口进行连续时间轨迹测量。每个输出端口均重复实验 10 次，并以不同颜色表示；所有实验中均出现多级特性。

S6 节 热传递仿真结果

本节展示了使用 COMSOL Multiphysics 进行的热传递仿真[6, 13–16]。Sb_2S_3 与周围环境之间较大的热梯度会导致快速冷却。要实现完全非晶化，必须具备如此快的冷却速率（$> 10^9\ K/s$ [17]）。仿真表明，温度会在几μs 内恢复到接近室温（图 S11）。μs级的热弛豫时间排除了残余热量的影响，因此我们在进行逐步多级非晶化时，施加了间隔一秒的电脉冲。

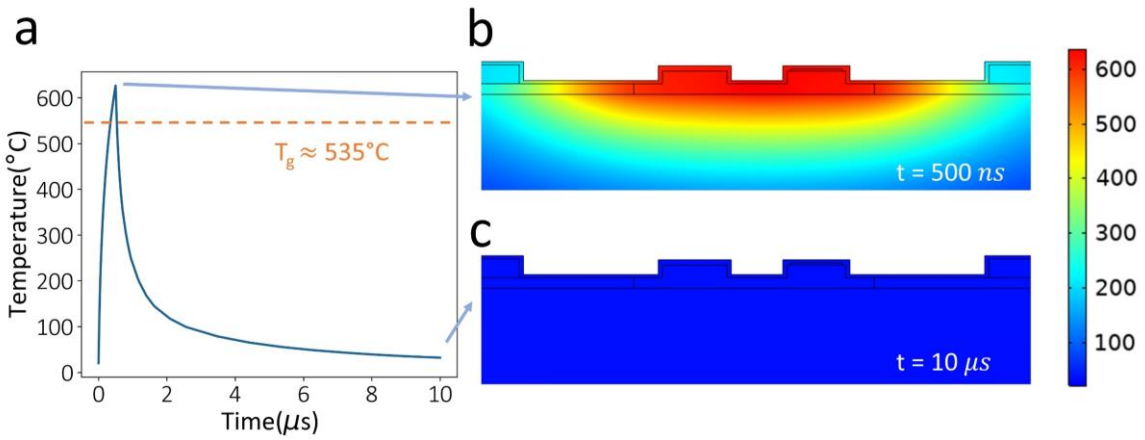

图 S11：500 ns 非晶化脉冲的热弛豫时间约为数个 μs。(a) Sb_2S_3 薄膜的时变热传递仿真结果。(b、c) 在 (b) t = 500ns 和 (c) t = 10μs 时的热分布。

S7 节：不同中间态的显微图像

我们在显微镜下检查了图 S12 中处于不同中间态的器件。可以看到，随着非晶化程度增加，非晶态 Sb_2S_3 逐渐增多。非晶态 Sb_2S_3 并不恰好位于长条的中心，也就是温度最高的位置。我们认为，这可能是由于掺杂分布不均匀，以及中心附近 Sb_2S_3 发生了再结晶。

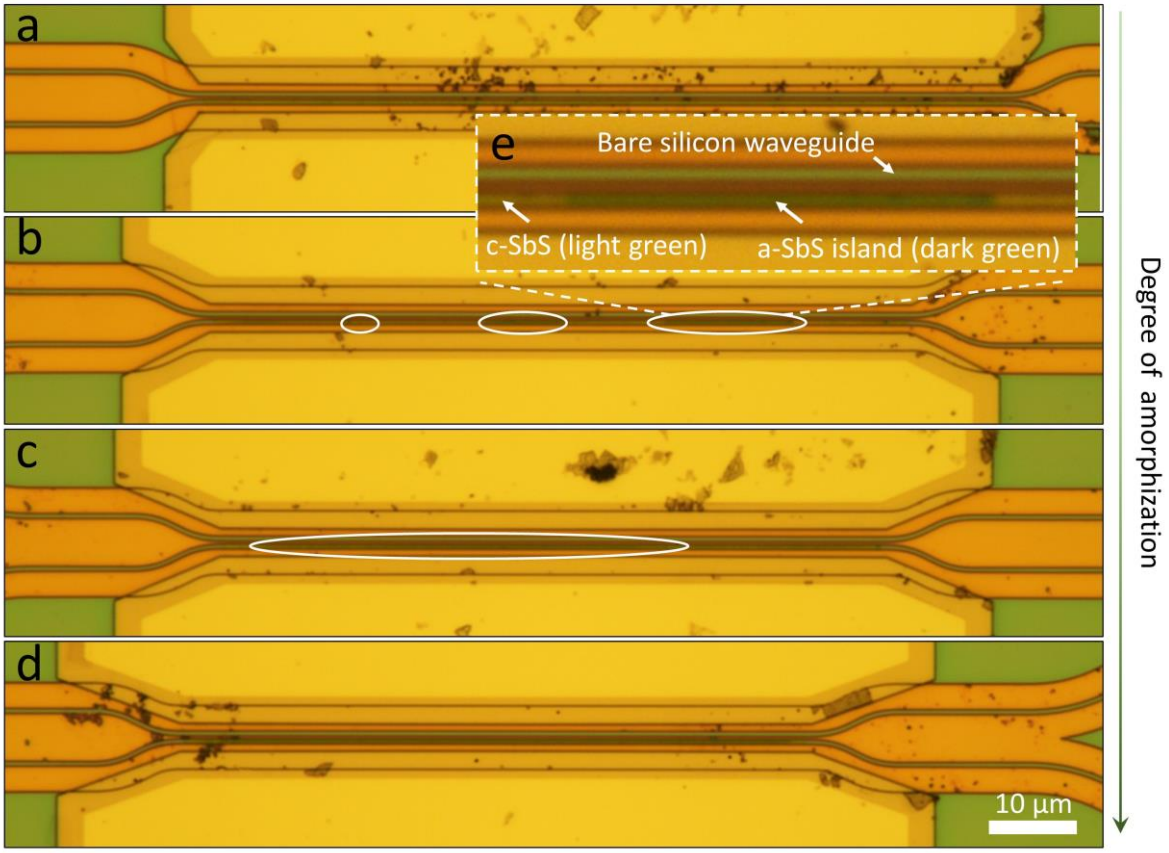

图 S12：不同中间态下定向耦合器的显微图像。各级别通过施加相同的脉冲、间隔一秒进行设置。非晶化程度从 (a) 到 (d) 逐渐增加。下方波导上的深（浅）绿色区域为 a(c)-Sb_2S_3。(b) 和 (c) 中可见被红圈标出的 a-Sb_2S_3 岛状结构，且其持续生长。(e) 为 (b) 中最右侧圆圈区域的放大图。在 Sb_2S_3/Si 混合波导（下方波导）中，可以观察到 a-Sb_2S_3 与 c-Sb_2S_3 之间清晰的界面。

S8节。表格展示了5位操作的脉冲条件

我们动态调整脉冲条件，以实现高达0.5 dB的精度。我们从低电压（9.65 V）开始，此电压刚好足以触发非晶化，然后逐渐增加幅度。同时，每发送一个脉冲后，我们都会监测透射率。如果透射率没有变化，我们就稍微提高电压（0.05 V）。如果透射率发生变化，但变化幅度小于 (0.5 ± 0.1) V（这是我们的目标值），我们就继续发送脉冲，直到达到目标透射率。如果透射率变化超过 (0.5 + 0.1) V，我们就对器件进行部分结晶，并重复前述步骤。我们指出，监测透射率并动态调整脉冲条件，对于减轻相变材料[18]的随机性是必要的。下表展示了5位操作实验中的脉冲条件。

表 S2：五次实验中 5位操作的脉冲条件（单位：伏特）。所有脉冲的持续时间均为 550 ns，但幅度逐渐增加。每个级别均施加了单个或多个脉冲。

级别	实验 1	实验 2	实验 3	实验 4	实验 5
1	9.7	9.65	9.75	9.6	9.6
2	9.7，9.8	9.8	9.75 × 3	9.6	9.62，9.63，9.64
3	9.8	9.8	9.8	9.6 × 2	9.65
4	9.75	9.75	9.8	9.65	9.65，9.62
5	9.75	9.75	9.8	9.65	9.62
6	9.75 × 2	9.75	9.8	9.65	9.65
7	9.7, 9.75	9.75 × 2	9.8	9.65, 9.6	9.65
8	9.75, 9.72	9.75	9.8	9.7	9.65
9	9.72 × 4	9.75	9.75	9.7	9.65, 9.63
10	9.72 × 3	9.75	9.75 × 2	9.67	9.67 × 2
11	9.75, 9.73 × 2	9.75	9.75	9.67	9.69
12	9.73× 3	9.75	9.75 × 2	9.67	9.7, 9.67
13	9.73 × 3	9.75 × 2	9.8	9.67	9.72
14	9.73 × 3	9.75	9.75	9.68, 9.66	9.72 × 2
15	9.73 × 3	9.75 × 2	9.8	9.68, 9.67	9.72
16	9.74 × 3	9.75 × 2	9.75	9.69	9.72
17	9.76, 9.8	9.75 × 2	9.8	9.69,9.7	9.72
18	9.8 × 2	9.8	9.8, 9.75	9.7,9.67 × 2	9.72, 9.7
19	9.8 × 2	9.8	9.75	9.7	9.7
20	9.8 × 3	9.8	9.8	9.7	9.72
21	9.8 × 2	9.8	9.8, 9.75	9.7	9.73
22	9.8 × 2	9.8 × 2	9.8	9.7 × 3	9.75 ×2

23	9.8 × 2	9.8	9.8	9.73	9.75 × 2
24	9.85	9.8 × 2	9.8	9.73	9.78
25	9.85	9.85	9.85	9.75	9.8 × 2
26	9.85	9.85	9.8	9.75	9.8
27	9.85	9.85	9.85	9.75	9.82
28	9.85	9.85	9.85	9.75 × 2	9.85
29	9.85	9.85	9.85	9.77	9.8
30	9.85	9.85	9.8	9.77 × 3	9.85
31	9.85	9.85	9.85	9.77 × 3	9.85
32	9.85	9.85	9.85 × 2	9.77 × 3	9.85

S9 节：77天后的性能保持

我们的器件在环境中具有非易失性。我们测量了器件在环境（暴露于空气中）中放置77天后的性能，并在图 S13 中进行了比较。器件的性能保持得非常出色，仅有轻微变化，这可能是由光栅耦合器耦合条件（耦合角）的微小差异造成的。

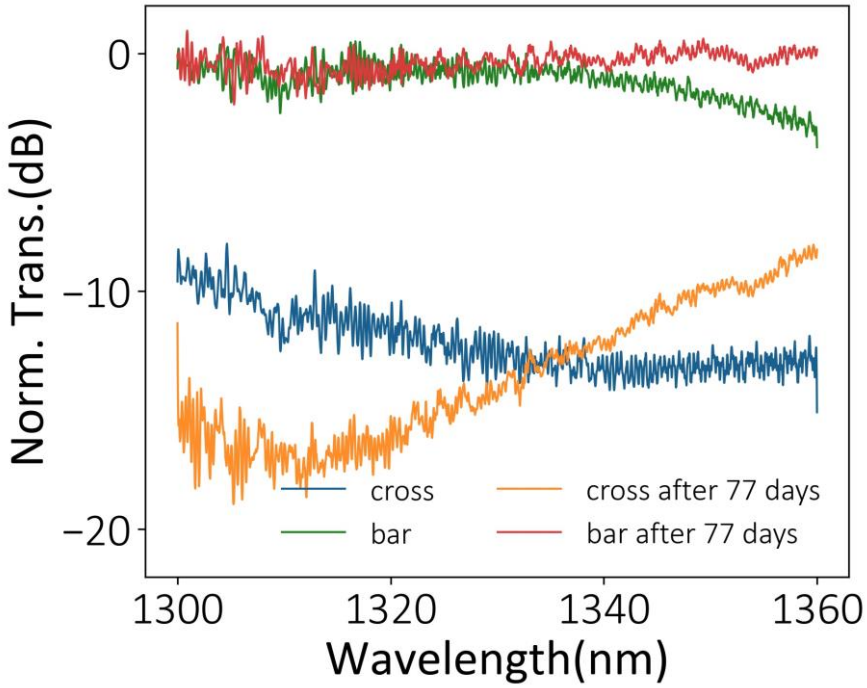

图 S13：非对称定向耦合器的特性在 77天内得以保持。

章节　S10. 剥离后 Sb_2S_3 条纹的厚度取决于图案宽度　**h**

用于 Sb_2S_3 沉积和剥离的狭窄光刻胶沟槽会导致 Sb_2S_3的厚度低于整片 Sb_2S_3 沉积。这可能是因为沟槽较深，部分 Sb_2S_3 被光刻胶遮挡。我们制作了一块具有不同图案宽度（300、400、500 纳米）的芯片，并测量了 Sb_2S_3 剥离后的厚度。测量结果（表 S3）显示，与整片沉积相比，厚度约减少至原来的 0.5 倍。我们还测量了 Sb_2S_3 条带的宽度，结果与电子束定义的宽度基本一致。由于这并非本次测量的主要关注点，我们仅测量了部分 Sb_2S_3 条带，未测量的条带以“-”表示。

表 3：通过原子力显微镜测得，Sb_2S_3 的厚度在剥离后减小（单位：纳米）

沉积 宽度	宽度（之后） 剥离	沉积 厚度	厚度 剥离后
300	373	30	13.8
300	354	30	14
400	471	30	16.9
400	471	30	17
300	-	40	16.4
400	413	40	19.5
300	-	50	21
400	-	50	26
400	471	50	25.9

S11 节：单脉冲与多脉冲切换

在我们的实验中，单个脉冲无法触发可靠且完整的相变。我们施加单个脉冲进行置位/复位。最终状态呈现出显著差异（图 S14 (a)）。这可能归因于多种晶相，以及较厚的Sb_2S_3导致热过程不完全。为解决这一问题，我们施加两个或三个脉冲来触发完整的相变。另一种环形谐振器的透射光谱如图 S14 (b) 所示。这种多脉冲切换方案在十个循环次数中实现了更稳定一致的性能。我们强调，这种表现与 GST 或 Sb_2Se_3, 截然不同；在非常类似的光子集成电路中，我们能够通过单次脉冲触发相变。尽管我们为这种表现提出了一种假设，但仍需开展更多材料研究来解释这一现象。

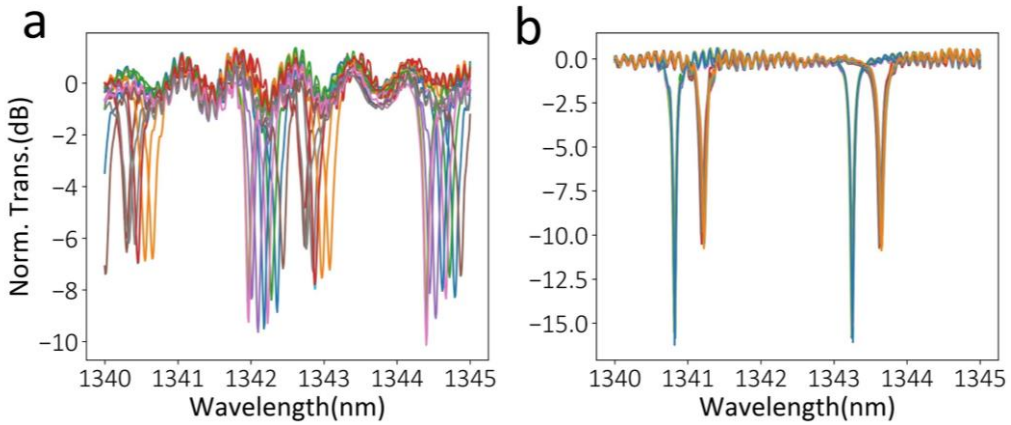

图 S14：单个置位（复位）脉冲无法可靠地触发完全结晶或非晶化。(a, b) 环形谐振器在以下条件下切换时的透射光谱：(a) 单个置位（复位）脉冲；(b) 三个相同的置位（复位）脉冲，间隔一秒。不同颜色代表不同的实验。

S12. 受成核速度限制的初始结晶与后续加速结晶

我们首次在实验中观察到 Sb_2S_3 的结晶过程非常缓慢，即使施加 500 μs 脉冲也无法触发结晶。随后，通过直流电压或持续时间极长的脉冲（例如 200 ms）使器件结晶。这可能是由于 Sb_2S_3 的熔化焓较小（~40.64 kJ/mol[19]，，相比之下 GST 的熔化焓为 625 J/cm^{3}或 $\frac{625}{\rho}M = \frac{625\,J}{87\,g/5}\frac{cm^3}{./cm^3} \cdot 1026.8\,g/mol = 109.3\,kJ/mol$，其中 ρ 为 GST 的密度，[21] 和 M 为 GST 的摩尔质量），因此需要较大的临界晶核尺寸才能克服结晶能垒。

然而，首次结晶后，后续的晶体生长过程无需克服能垒即可发生。如图 S15 所示，我们使用短得多的 100 微秒脉冲，观察到了部分结晶。我们注意到，这种缓慢的结晶可确保更大体积的 Sb_2S_3 再次非晶化且不发生再结晶，因此可能有利于光子学应用。在下一节中，我们将通过实验展示，确实可以通过非常长的脉冲触发非晶化。

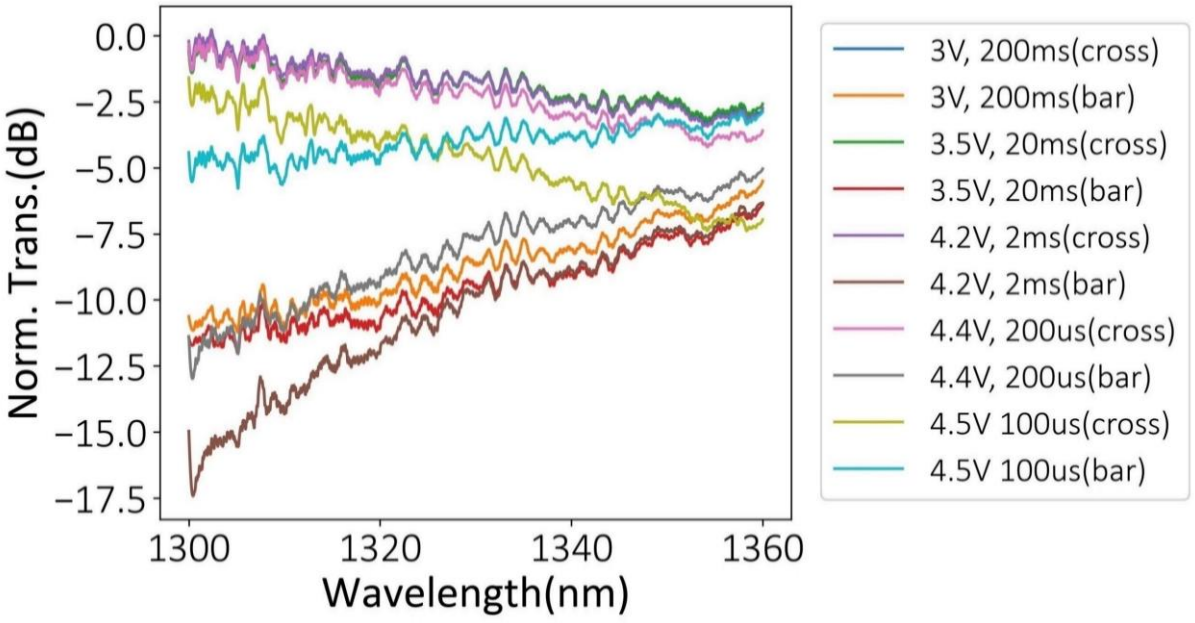

图 S15：Sb_2S_3 结晶速度缓慢，因此脉冲持续时间必须长于 100 μs。持续时间为 100-μs 的脉冲即使在首次施加时，也无法触发完全结晶。我们再次注意到，在结晶开始的最初几个循环次数中，只有持续时间更长（例如 200 ms）的脉冲才能触发结晶。这表明初始 Sb_2S_3 晶核的形成较为困难，而晶体生长速率明显快于成核速率。

第 S13 节。长脉冲非晶化 – 大体积非晶化的证据

使用“缓慢”相变材料（例如 Sb_2S_3, ）的一个显著优点是，缓慢的结晶过程能够避免熔融淬火过程中发生意外再结晶，从而确保大体积相变材料实现非晶化。在光子学中，完全切换大体积相变材料的能力至关重要，因为其体积（通常为 μm^3 数量级）远大于电子应用中的体积（通常为 $(10\ nm)^3$ 数量级），而且相变速度[22]并非首要考量。

在此，我们通过将非对称定向耦合器的最长非晶化时间与其他已报道的相变材料器件进行比较，验证 Sb_2S_3 对非预期再结晶的抗性。图 S16 显示，定向耦合器上的 Sb_2S_3 可在不同脉冲持续时间下实现非晶化，范围从 500 纳秒到 10 μ秒。即使将脉冲持续时间增加至 10 μ秒，我们仍观察到了较大程度的非晶化。这一 10-μ秒的脉冲持续时间远长于已报道的 GST[6,14,23] （< 200 纳秒）或 SbSe[24] （< 1 微秒，但厚度为 30 纳米）切换实验中的脉冲持续时间。采用长脉冲仍能成功实现非晶化，这表明 Sb_2S_3 天然更适合大体积非晶化，因为其再结晶受到抑制。

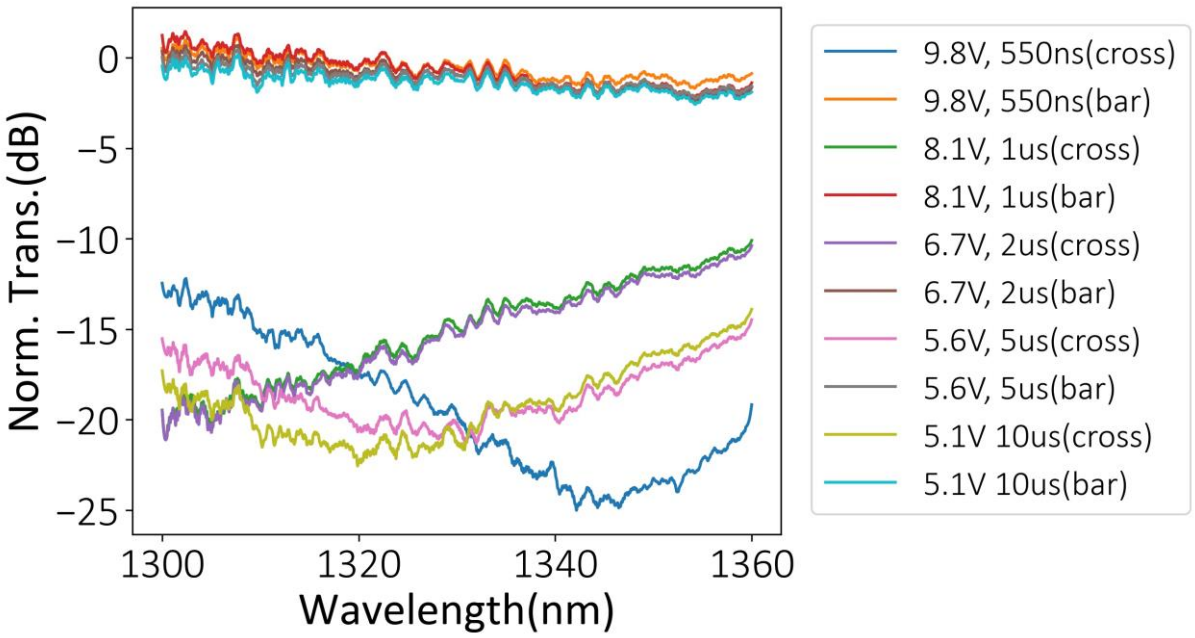

图 S16：由于 Sb_2S_3结晶过程缓慢，采用相对较长的 10-μs 脉冲触发了完全非晶化。在所有脉冲条件下，高级别端口（直通端口）的透射率均保持一致。低级别端口（交叉端口）的透射率变化可能归因于少量 Sb_2S_3 未完全切换，这一问题有望通过优化加热器设计加以克服。

参考文献

1. Fang, Z. 等。非易失性可重构集成光子学：由宽带低损耗相变材料实现。《先进光学材料》9, 2002049（2021年）。2. Parize, R. 等。通过拉曼散射和 X射线衍射对Sb2S3薄膜结晶过程的原位分析。《材料与设计》121, 1–10（2017年）。3. Constantin-Popescu, C. 等。有源光子学的新型相变材料。载于《有源光子平台2022》第 12196 卷，26–37（国际光学工程学会，2022年）。4. Teo, T. Y. 等。基于相变材料的可重构硅光定向耦合器的比较与分析。《光学材料快报》, OME 12, 606–621（2022年）。5. Xu, P., Zheng, J., Doylend, J. K. 和 Majumdar, A. 低损耗宽带非易失性相变定向耦合器开关。ACS Photonics 6, 553–557（2019年）。6. Chen, R. 等。硅光子学中的宽带非易失性电控可编程单元。ACS Photonics（2022年）, doi:10.1021/acsphotonics.2c00452。7. Dong, W. 等。宽带隙相变材料调控可见光子学。《先进功能材料》29, 1806181（2019年）。8. Rayleigh, Lord。论某些流体运动的稳定性或不稳定性。《伦敦数学会会刊》s1-11, 57–72（1879年）。9. Lian, J., Wang, L., Sun, X., Yu, Q. 和 Ewing, R. C. 通过离子束诱导去润湿和瑞利不稳定性对金属纳米结构进行图案化。《纳米快报》6, 1047–1052（2006年）。10. Wu, C. 等。使用亚波长图案化相变材料的低损耗集成光子开关。ACS Photonics 6, 87–92（2019年）。11. Wu, C. 等。波导上的可编程相变超表面：用于多模光子卷积神经网络。Nature Communications 12, 96（2021年）。12. Wu, C. 等。在光子生成网络中利用光电子噪声。《科学进展》8, eabm2956（2022年）。

13. Zheng, J., Zhu, S., Xu, P., Dunham, S. & Majumdar, A. 利用石墨烯加热器对非易失性相变集成纳米光子结构的电切换进行建模。《ACS应用材料与界面》12, 21827–21836（2020年）。

14. Zheng, J. 等. 非易失性电控可重构集成光子开关

由硅PIN二极管加热器驱动。《先进材料》32, 2001218（2020年）。

15. Erickson, J. R., Shah, V., Wan, Q., Youngblood, N. & Xiong, F. 利用兼容代工厂的波导集成微加热器设计快速、高效的电驱动相变光子器件。《Optics Express》30, 13673（2022年）。

16. Zhang, Y. 等. 关于光学相变材料的误解与真相：一篇观点文章。

《Applied Physics Letters》118, 210501（2021年）。

17. Gao, K. 等. 通过飞秒多脉冲激光辐照获得具有更佳循环耐久性的 Sb 2 S 3 中间相变状态。《先进功能材料》2103327（2021年），doi:10.1002/adfm.202103327。

18. Tuma, T.、Pantazi, A.、Le Gallo, M.、Sebastian, A. 和 Eleftheriou, E. 随机相变

神经元。Nature Nanotechnology 11，693–699（2016年）。

19. Johnson, G. K.、Papatheodorou, G. N. 和 Johnson, C. E. SbF5(l) 和 Sb2S3(c) 的生成焓，以及 Sb2S3(c) 和 Sb2S3(l) 的高温热力学函数。《The Journal of Chemical Thermodynamics》13，745–754（1981年）。

20. Senkader, S. 和 Wright, C. D. 光学和

电存储器件。《Journal of Applied Physics》95，504–511（2004）。

21. Njoroge, W. K., Wöltgens, H.-W. 和 Wuttig, M. Ge2Sb2.04Te4.74薄膜结晶时的密度变化。《Journal of Vacuum Science & Technology A》20，230–233（2002）。

22. Chen, R. 等. 大规模相变材料集成电光子学的机遇与挑战. ACS Photonics（2022年）doi:10.1021/acsphotonics.2c00976.

23. Fang, Z. 等. 基于相变材料与石墨烯加热器的超低能耗可编程非易失性硅光子学. 《自然·纳米技术》842–848（2022年）doi:10.1038/s41565-022-01153-w.

24. Ríos, C. 等. 基于电可重编程透明相变材料的超紧凑非易失性移相器. PhotoniX 3, 26（2022年）。