

铌酸钡钠光波导薄膜的脉冲激光淀积 制备和研究

张 苹 张 锋 刘俊明 刘治国

(南京大学固体微结构物理国家重点实验室, 南京 210093)

提要 报道了用脉冲激光淀积(PLD)方法在磷酸氧钛钾(KTP)晶体(100)面上生长沿[110]取向的铌酸钡钠(BNN)光波导薄膜。X射线衍射,扫描电子显微镜,X射线光电子能谱测量表明生长的BNN膜是外延单晶膜。膜表面粗糙度很小。光波导模式和光损耗测量表明膜具有较低的损耗。

关键词 光波导,脉冲激光淀积,铌酸钡钠,磷酸氧钛钾

1 引言

近年来,光波导材料被广泛应用于非线性光学的各个领域,人们对光波导材料,尤其是薄膜光波导材料给予了极大的关注。光波导薄膜制备有多种方法,如质子交换技术、射频反应溅射、磁控溅射、分子束外延、液相外延、化学气相沉积、有机化学气相沉积等。新近发展的脉冲激光淀积(PLD)技术具有独特的优点:热源和淀积腔完全隔离,易于生长与靶成分一致的外延膜;而且所制备的薄膜材料的选择范围较宽。

BNN比 LiNbO_3 , LiTaO_3 具有较优良的非线性光学性能^[1,2]。我们选取 KTiOPO_4 (KTP)作为衬底材料,在它上面制备BNN光波导薄膜。BNN材料属于四方结构($a_1 = b_1 = 1.7609 \text{ nm}$, $c_1 = 0.7987 \text{ nm}$),KTP属于正交结构($a_2 = 1.0588 \text{ nm}$, $b_2 = 1.2815 \text{ nm}$, $c_2 = 0.6404 \text{ nm}$),然而BNN[110]方向的晶格参量差不多是KTP[010]方向的两倍,可以实现晶格匹配。KTP的折射率($n_x = 1.7$),比BNN的折射率($n_b = 2.19$)小得多,光在BNN薄膜中传导满足全反射条件。理论计算表明KTP上生长BNN膜容易实现倍频输出所满足的位相匹配条件^[1]。

2 实验方法

采用PLD方法制备BNN光波导薄膜的基本过程如下:高能脉冲激光轰击靶表面,使靶原子离开靶后形成一长轴垂直于靶面的羽毛状等离子体光团,并沉积在相应衬底上形成薄膜。图1是实验装置示意图。激光器为LPX205i型KrF准分子激光器,输出脉冲激光波长为248 nm,脉冲宽度为30 ns。脉冲能量及其频率由监视器控制。长膜时设置出射激光能量密度为 180 mJ/cm^2 (光斑尺寸约为 $20 \text{ mm} \times 7 \text{ mm}$),经透镜聚焦并计及镜面和石英窗口反射等损失,到达靶面的能量密度提高至 $1 \sim 3 \text{ J/cm}^2$ (光斑尺寸约为 $4.5 \text{ mm} \times 1.5 \text{ mm}$)。设置脉冲频率为

5 Hz。BNN 单晶靶固定在靶台上,并可以绕自身对称轴旋转以防止激光定点轰击而击穿靶材。靶台与衬底台约成 45° 角,中心点相距约 3.5 cm,以使等离子体光团覆盖衬底,加之衬底台可以旋转,能够长成厚度均匀的膜。[100]取向的 KTP 晶体抛光后置于衬底台上,完全处于等离子体光团中。真空室压强维持在小于 10 Pa,通入氧气并保持流出的氧分压在 10~20 Pa 之间。衬底加热并保持在 700°C 。

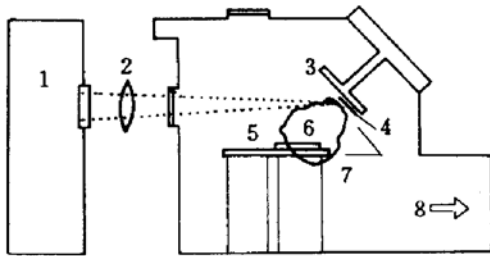


Fig. 1 Schematic diagram of the experimental arrangement for preparation of optical-waveguide films by PLD

- 1: excimer laser; 2: focal lens; 3: target mount; 4: target;
5: rotatable substrate holder; 6: substrate; 7: plume of plasma;
8: to pump, $\theta = 45^\circ$

影响成膜质量的因素为激光能量密度、衬底温度和氧气分压。激光能量密度越高,成膜速度越快,但较难获得外延单晶膜;反之能量密度低,生长膜的质量较好,但成膜时间过长。衬底温度过低,薄膜表面扩散速度太慢,不易形成单晶;衬底温度过高,加快了原子在膜表面的迁移速率,有利于单晶膜的形成,然而容易使靶材料中某些元素例如 Na 升华,改变膜的组分比例。通氧可使等离子光团较大,有利于形成等厚膜,但是氧分压过大也会使等离子体光团缩小^[3]。制膜过程中充分考虑了上述因素的相互制约,选取了最佳条件,经 2 h 淀积长成了优良的 BNN 膜。

长成的 BNN 膜仍置于淀积室内,持续通入 53.2 kPa 氧气,并在 700°C 下保温 30 min 后慢慢降至室温。通氧目的是继续衬充氧的成分,缓慢降温是为了使膜在高温状态下集聚的应力能够慢慢释放,不致因突然降温造成应力集中而使膜破裂。

3 结果和讨论

图 2 是 X 射线衍射曲线。图中除了 KTP (400), KTP (600), KTP (800)[均平行于(100)]以及 BNN(440), BNN(660)[均平行于(110)]的几个尖峰之外,没有其他峰存在,表明制得的 BNN 膜为 [110]取向。

图 3 是 X 射线极图。其中 (a) 显示衬底 KTP (100) 仅在相隔 180° 位置上出现 (240), $(\bar{2}40)$ 两个尖峰[(240), $(\bar{2}40)$ 相对于 (100) 是对称的,与 (100) 夹角为 $\theta_2 = \arctg(2a_2/b_2) = 58.82^\circ$]; (b) 显示膜 BNN(110) 仅在相隔 180° 位置上出现 (820), $(\bar{2}80)$ 两个尖峰[(820), $(\bar{2}80)$ 相对于 (110) 呈对称分布,与 (110) 夹角为 $\theta_1 = \arctg 4 - 45^\circ = 30.96^\circ$], 表明 BNN 不仅在 [110] 方向取向一致,在 [820], [280] 方向取向也是一致的。这说明所长成的膜确实为单晶膜。此外,还看到 $\theta_1 + \theta_2 = 89.78^\circ$, 非常接近 90° , 且从图 3(a), (b) 中看出, (240) 峰与 (820) 峰, $(\bar{2}40)$ 峰与 $(\bar{2}80)$ 峰所对应的方位角分别一致,说明 BNN 膜的面对角线 $[1\bar{1}0]$ 与衬底 KTP 的一边 $[010]$ 重合 (与 $\sqrt{2}a_1 \approx 2b_2$ 是一致的), BNN 正是按照这一关系在 KTP 上外延生长的。

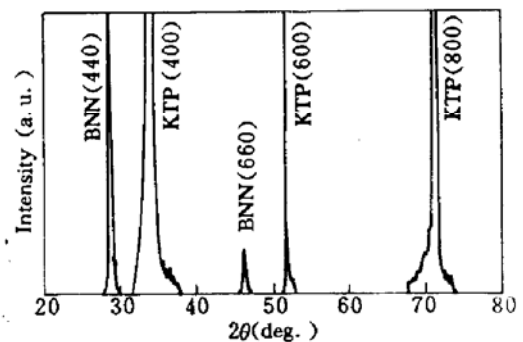


Fig. 2 The X-ray intensity vs 2θ of the as-grown BNN films on (100) KTP

图 4 是 BNN 膜表面形态的扫描电子显微镜 (SEM) 测量照片。从 200 倍放大 (a) 和 20000

倍放大(b)的照片可以看出膜表面没有明显的起伏,说明膜表面粗糙度很小,能够满足光学平滑和低损耗要求。

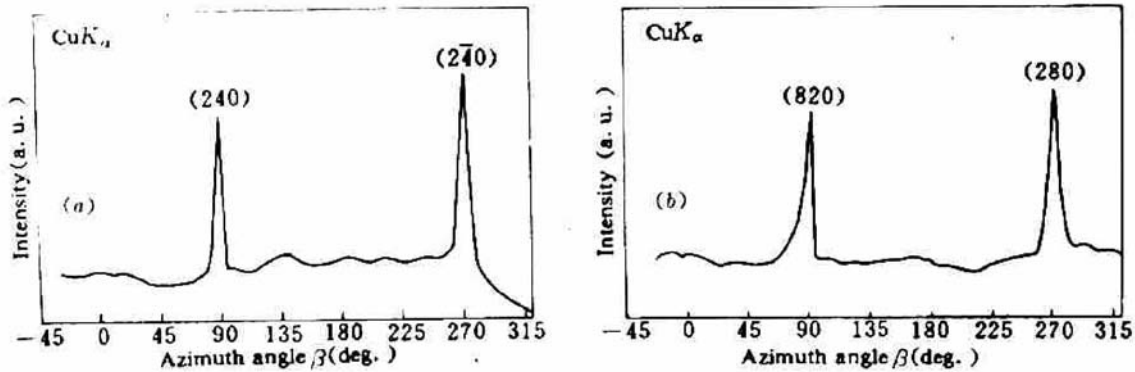


Fig. 3 X-ray intensities as a function of the azimuth angle β

(a) [100] oriented; (b) [110] oriented

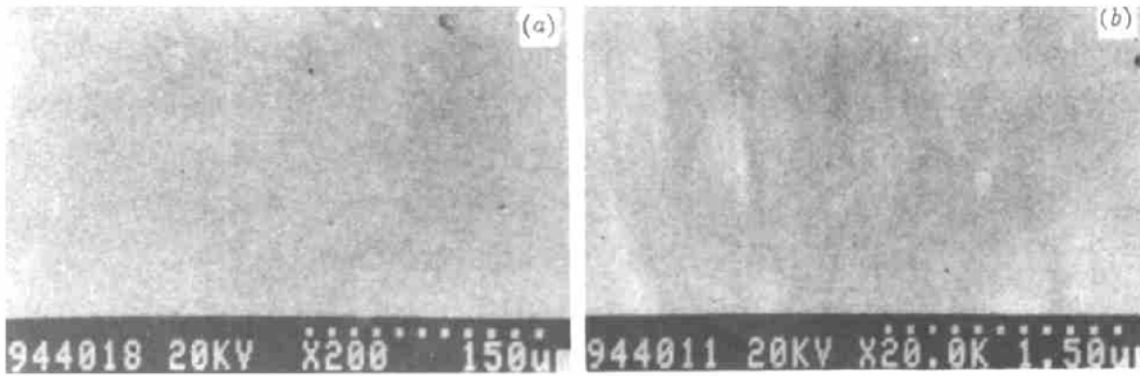


Fig. 4 SEM photographs of the BNN films with magnifications of

(a) 200 \times ; (b) 20000 \times

图5显示了BNN膜的X射线光电子能谱(XPS)曲线。采用光电子能量计算方法^[4],得到膜中各组分比例分别为Ba : Na : Nb = 2.00 : 0.82 : 5.14。与BNN的化学结构式Ba₂NaNb₅O₁₅相比,长成的膜组分比例与单晶BNN的基本一致,然而Na含量偏少。其原因有两方面,一是如前所述,衬底温度较高,引起Na的局部升华而减少;二是大块BNN单晶的非化学计量比生长。事实上我们用扫描电子显微镜进行成分分析表明该膜中的Na的成分确实略偏小。

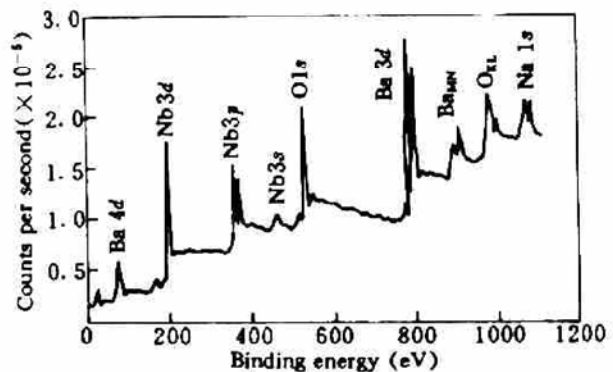


Fig. 5 XPS spectrum of the BNN films showing binding energy dependence of the counts per second

光波导模式及光损耗测量是在分光计上通过棱镜耦合法进行的。He-Ne激光被透镜组聚焦到等腰直角三棱镜的侧面并由棱镜耦合到膜层,光被限制在膜层内传播,沿膜面可以观察到光传输线。旋转偏振片以改变入射光线的偏振态,并转动分光计,在接收屏上分别观察到TE模、TM模的m线。图6显示了m线照片。m线非常清晰而明锐,说明制成的膜具有很好的光波导性能。TE模的三根m线不等间距,说明覆盖层、波导层(即膜层)、衬底层的折射率不是连续变化而是阶跃式变化的^[5]。这表明制备的BNN膜中原子没有与衬底发生相互作用。

光损耗的测量是这样完成的:一小块光电池固定在可以沿传输线平行移动的支架上,接收

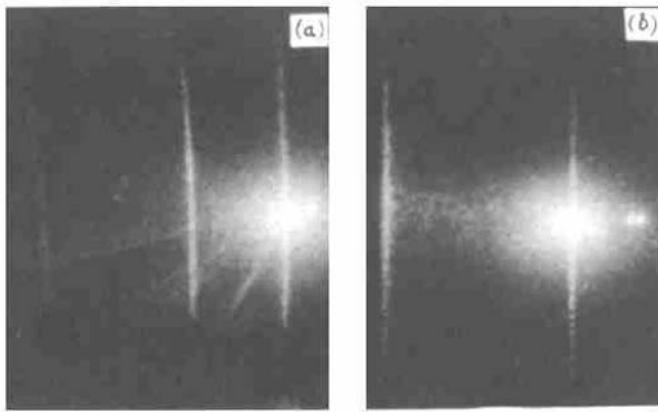


Fig. 6 Optical-waveguide modes of the BNN films
(a) TE modes, (b) TM modes

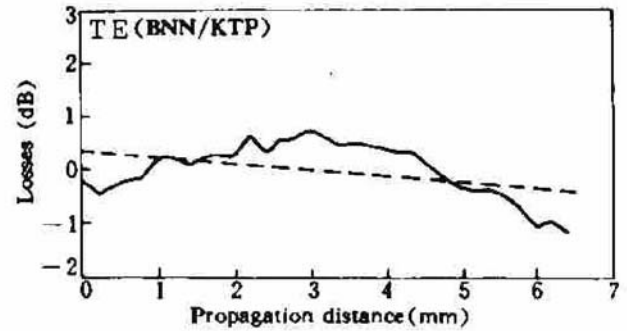


Fig. 7 Propagation loss as a function of the distance in the BNN optical-waveguide film. The dashed line shows the best linear-fitting

传输线上各点的散射光强。测量不同移动距离处光电池两端的电压,由于该电压正比于散射光强,我们可以研究散射光强与移动距离之间的依赖关系。对于某一根 m 线,我们作 $10 \lg(I_x/I_0)$ 和移动距离 x 的关系曲线,其中 I_x 是距离 x 处的散射光强, I_0 是没有移动时的散射光强。根据光损耗定义: $I_x = I_0 \exp \alpha x$,其中 α 为光损耗系数,且 $\alpha = \ln(I_x/I_0)$,即为光损耗曲线平均斜率^[2] (图 7 中以虚线表示) 约为 -1.18 dB/cm 。这说明光损耗很小,符合光波导的低损耗要求。

参 考 文 献

- 1 J. D. Bierlein, H. Vanherzeele. Potassium titanyl phosphate; properties and new applications. *J. Opt. Soc. Am.*, 1989, **B6**: 622
- 2 J. A. Agostinelli, G. H. Braunstein, T. N. Blanton. Epitaxial LiTaO_3 thin films by pulsed laser deposition. *Appl. Phys. Lett.*, 1993, **63**: 123
- 3 R. K. Singh, J. Narayan. Pulsed-laser evaporation technique for deposition of thin films: physics and theoretical model. *Phys. Rev.*, 1990, **B41**: 8843
- 4 薛增泉,吴全德. 电子发射与电子能谱. 北京: 北京大学出版社, 1993. 180~185
- 5 蔡伯荣. 集成光学. 北京: 电子科技大学出版社, 1990. 10~11, 252~257

Investigation on Barium Sodium Niobate Optical-Waveguide Films by Pulsed Laser Deposition Technique

Zhang Ping Zhang Feng Liu Junming Liu Zhiguo

(National Laboratory of Solid State Microstructures, Nanjing University, Nanjing 210093)

Abstract This paper reports that the barium sodium niobate (BNN) optical-waveguide film with orientation $[110]$ has been epitaxially grown on the (100) plane of substrate KTiOPO_4 (KTP) by pulsed laser deposition (PLD). The measurements of XRD, SEM and XPS show that the as-grown BNN film is epitaxial single crystal with smooth surface. The measurements of optical-waveguide mode and propagation loss indicate that the film is of good optical waveguide properties with low loss.

Key words optical-waveguide, pulsed laser deposition, barium sodium niobate, potassium titanyl phosphate