

x 切割铌酸锂质子交换平板波导的退火过程研究

陈险峰 谢绳武 夏宇兴 陈玉萍 钟晓霞 陈英礼

(上海交通大学应用物理系, 局域光纤通信网与新型光通信系统国家重点实验室 上海 200030)

提要 研究了退火质子交换 LiNbO_3 平板波导的制作和表征, 应用“选择零元法”研究了退火后折射率分布, 建立了波导参数和制作条件的联系, 获得了导波层的色散关系, 所得到的表征结果对退火质子交换波导在光子器件中的应用提供了有用信息。

关键词 铌酸锂, 退火质子交换波导, 选择零元法

1 引言

质子交换(PE)技术是制作 LiNbO_3 光波导和器件的一个非常简单和方便的方法^[1], 例如在质子交换 LiNbO_3 光波导中利用准位相匹配技术产生二次谐波是获得小型相干蓝绿光源的一个重要技术路线^[2,3]。与已成熟并广泛使用的钛扩散波导相比, 质子交换波导除易于制作外, 还具有高折射率差、高抗损伤阈值和偏振控制等特点。但是, PE 波导也存在一些严重的问题, 尤其是导波层的非线性系数下降、高散射和插入损耗等^[4]。利用稀释质子源或退火方法可以避免这些问题。尤其后者, 通过改变折射率分布可以人为地设计波导传播常数和导模分布, 所以很需要对退火质子交换 LiNbO_3 波导进行精确地表征。以前已有一些关于退火质子交换波导的表征的报道, 退火后的折射率分布一般是使用反 WKB(IWKB)方法(对多模波导较为准确)^[5], 也有使用简单解析函数的方法^[6]。

x 切割 LiNbO_3 波导的导波层是各向异性波导(只有 TM 模能被激发), 本文中采用复余误差函数作为退火后的折射率分布函数, 利用“选择零元法”^[7]获得了各向异性的 x 切割退火 LiNbO_3 波导传播常数和导模分布, 从而建立了表征退火质子交换(APE)波导的模型。此外, 对导波层的色散关系进行了研究。这些信息对退火质子交换光波导器件的分析、设计和优化具有重要意义。

2 波导制作和测量

采用 x 切割 LiNbO_3 晶体作为基质材料, 质子交换所使用的质子源是掺杂 1 wt-% 苯甲酸锂的苯甲酸溶液。为了方便, 质子交换的温度保持在 $T = 190^\circ\text{C}$ 。交换时间从 2~16 h。随后的退火过程中, 输入氧气来防止波导表面的氧化物分解, 退火温度 $T = 350^\circ\text{C}$, 退火时间从 0.5~

4 h。实验时,退火过程中没有发现波导表面出现任何损伤。

关于平板波导的测量,采用了标准的双棱镜耦合技术,测量输出 TM 导模的每个模的有效折射率。所用的激光光源为氩离子激光器(多波长输出)和半导体激光器(波长为 1.321 μm),采用较低的功率输出从而避免可能发生的光损伤效应。通过功率计监控输出的 m 线光强,所测量出的导模角度精度为 0.001° ,得到的有效折射率的精度达到 10^{-4} 。

3 APE 波导 TM 模式方程的理论模型

退火之前,质子交换波导的折射率和导波层氢离子被认为是近似阶梯型分布,其氢离子层宽度 d_e 由质子交换条件决定^[8]。退火过程可认为是导波层中宽度为 d_e 的氢离子层的内扩散。假设在退火过程中,氢离子的总浓度保持不变,则氢离子浓度分布为^[8]

$$C_H(y, t_a) = \frac{Ax_e}{2\text{erf}(d_e/d_a)} \left[\text{erf} \left[\frac{d_e + y}{d_a} \right] + \text{erf} \left[\frac{d_e - y}{d_a} \right] \right] \quad (1)$$

式中, y 为深度, A 为 LiNbO_3 的原子密度, x_e 为交换区域的氢离子比例, d_a 为退火扩散深度,它与退火时间 t_a 和退火扩散系数 D_a 有关, $d_a = 2(D_a t_a)^{1/2}$, 需要指出的是, d_a 是从质子交换深度 d_e 处测量的。 D_a 随温度 T 增加而增加,随着退火时间 t_a 的增加,退火扩散深度 d_a 增加,同时表面折射率减少。我们感兴趣的是 PE 波导的完全退火,即导波层 $\text{LiNbO}_3\text{-HNbO}_3$ 系统到达 α 相。此时,氢离子浓度和折射率变化呈线性关系。所以把退火后的折射率变化分布写为

$$\Delta n_e(y) = \frac{\Delta n_e}{2\text{erf}(d_e/d_a)} \left[\text{erf} \left[\frac{d_e + y}{d_a} \right] + \text{erf} \left[\frac{d_e - y}{d_a} \right] \right] \quad (2)$$

式中 Δn_e 为退火后导波层的表面折射率。

对于上述折射率分布的波导,采用“选择零元”法^[7]可以较精确地求解各向异性 TM 导模波导的传输常数和模场分布。与通常使用的 IWKB 方法相比,这种方法求解的结果更准确,适用于少模波导,而且计算时间较短。其基本思想是:把折射率分布进行分层,考虑每一层的透射波和反射波,在表面以上没有前向波,而在波导内的转折点处不存在后向波。

$$\begin{bmatrix} A_n \\ 0 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \alpha_1 & \alpha_2 \\ \alpha_3 & \alpha_4 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 0 \\ B_1 \end{bmatrix} \quad (3)$$

式中 A_n, B_1 分别为包覆层的后向波的振幅和转折点外的前向波的振幅。 $\alpha_1, \alpha_2, \alpha_3, \alpha_4$ 分别为多层波导的传输矩阵元。很容易看出,只有当 α_4 等于 0 时, (3) 式才可能成立。而 α_4 是波导传输常数的函数。所以,给定(2)式折射率分布,通过对波导进行分层,并求出传输矩阵元 α_4 令其为 0,即可获得波导的传输常数,从而也可得到导模场的分布。导波层的退火扩散深度 d_a , 表面非常折射率改变 Δn_e 由使下面表达式值 δ 达到最小而获得

$$\delta = \sum_{n=1}^m (\beta_n^m - \beta_n^c)^2 \quad (4)$$

式中, m 为波导中能被激发的导模数, β_n^c 和 β_n^m 分别为计算和测量出的导模传播常数。为了获得可信的结果,要求质子交换波导中超过 2 个导模模式。

4 实验结果和表征

质子交换波导经过退火后,波导折射率趋向平缓,且表面折射率改变 Δn_e 减少。实验中使

用的质子交换波导制备条件为: 190 °C 温度下, 在掺杂 1 wt-% 苯甲酸锂的苯甲酸溶液中交换 2 h, 形成的波导深度 $d_e = 0.43 \mu\text{m}$ 。与退火前波导相比, 退火后波导所能容纳的导模数增加, 如 0.488 μm 激光波长激发下, 退火 1 h 的波导的导模数从 1 个增加到 3 个, 且不同阶的导模的 m 线靠得很近。这说明了退火过程使波导折射率分布趋向平缓。假设退火过程中总的质子浓度保持不变, 则退火深度 d_a 与退火时间 t_a 的关系可表示为

$$d_a = 2 \sqrt{D(T) \times t_a} \quad (5)$$

式中, $D(T)$ 为与退火温度有关的退火扩散系数。为了研究并表征退火过程, 我们研究了不同退火时间下, 波导折射率的分布。图 1 是退火深度 d_a 与退火时间 t_a 的平方根的关系。图中的直线是对实验数据的线性拟合结果, 由此获得了退火扩散系数 $D(T) = 1.2 \mu\text{m}^2/\text{h}$, 与有关报道基本吻合^[10]。

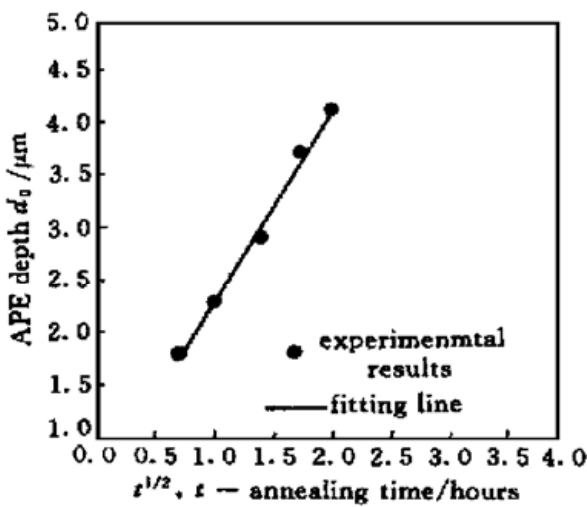


图 1 退火质子交换波导退火深度和退火时间关系
温度为 350 °C, 波长为 488 nm, 退火前深度 $d_e = 0.43 \mu\text{m}$

Fig. 1 Plot of annealing depth vs time for annealed
proton exchange
waveguides at 350 °C, $\lambda = 488\text{nm}$, $d_e = 0.43 \mu\text{m}$

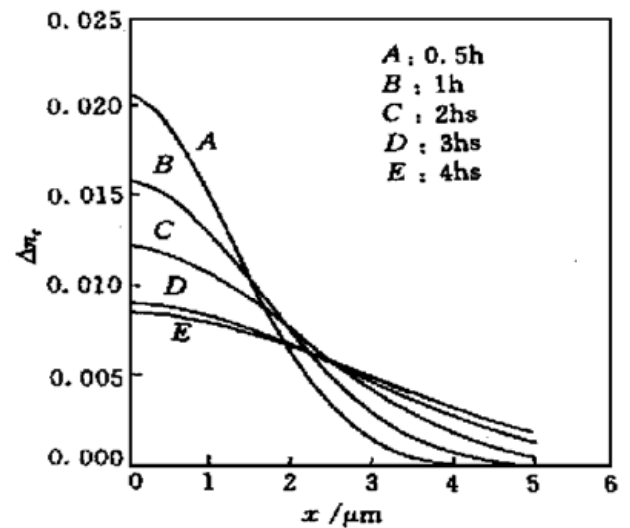


图 2 不同退火时间下波导折射率变化分布
退火温度为 350 °C, $\lambda = 488 \text{nm}$, $d_e = 0.43 \mu\text{m}$

Fig. 2 Distribution of index change profile in different
annealing time
Annealing temperature 350 °C, $\lambda = 488 \text{nm}$, $d_e = 0.43 \mu\text{m}$

退火后的折射率分布随退火时间变化如图 2 所示。可以看到随着退火时间的增加, 折射率分布逐渐趋于平缓, 这时由于退火过程中质子渐渐从表面朝基板内部扩散的结果。

为了证明退火扩散系数 $D(T)$ 仅为退火时间 t_a 的函数, 而与质子交换波导的深度 d_e 无关, 制备了不同质子交换扩散深度的波导, 并退火 2 h, 进行测量和计算, 结果表明, 退火之后, 退火深度 $d_a \approx 2.1 \mu\text{m}$ 。图 3 显示了不同质子交换波导深度 d_e 退火 2 h 后的折射率分布曲线。

已有许多关于折射率变化与氢离子浓度呈非线性关系的报道^[9], 即折射率分布曲线下的面积随退火时间变化而不是保持不变。为了研究这种非线性关系, 计算了折射率分布面积积分, 图 4 显示了面积随退火时间的变化关系。

$$\text{Area}(T_a, D_e, t_a) = \int_0^{\infty} \Delta n(y) dy \quad (6)$$

从图看出随着退火时间的增加, 积分面积不断降低并趋于常数。文献报道^[9], 对于 z 切割的退火铌酸锂波导, 当 $\Delta n_e \leq 0.02$, 波导层处于 α 相, α 相时折射率改变与氢离子浓度成正比。图 4 中, 当退火时间超过 1 h, 折射率下的面积保持基本不变。导波层 $\text{LiNbO}_3\text{-HNbO}_3$ 系统处于 α 相。退火 0.5 h 时, 折射率下的面积较 α 相下稍大, 从图 2 中退火 0.5 h 的折射率变化分布曲

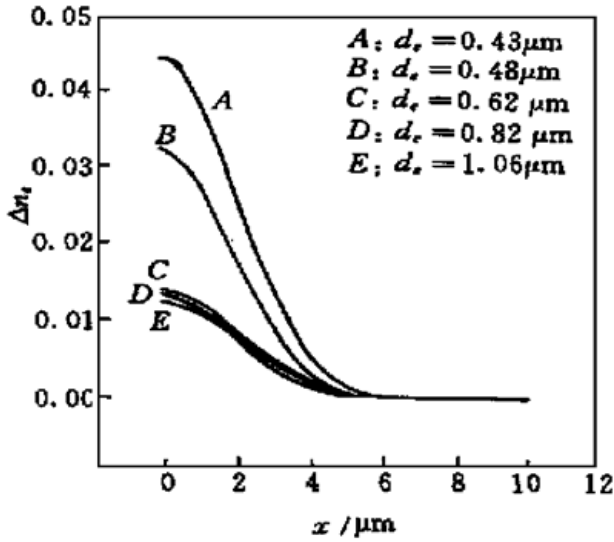


图3 不同质子交换深度在相同退火时间下的折射率变化轮廓

Fig. 3 Index change profile with different initial proton exchange depth under the same annealing time

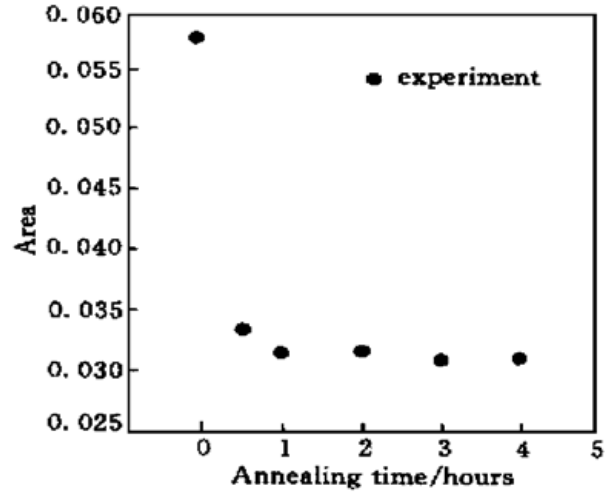


图4 折射率分布下的面积与退火时间的关系
退火温度为 350 °C, λ = 488 nm, d_e = 0.43 μm

Fig. 4 Area under the index change profile versus annealing time

Annealing temperature 350 °C, λ = 488 nm, d_e = 0.43 μm

线可看到, 在靠近波导表面处, $\Delta n_e \geq 0.02$, 即在这一薄层中, 系统处于混合 $\alpha + \beta$ 相。而未退火的导波层则处于 β 相。利用传统的传输线成像法测量了波导的损耗, α 相下, 导波层的损耗很小, 在我们的测量系统精度下, 无法测量出波导的准确损耗数值, 即波导损耗小于 0.5 dB/cm。

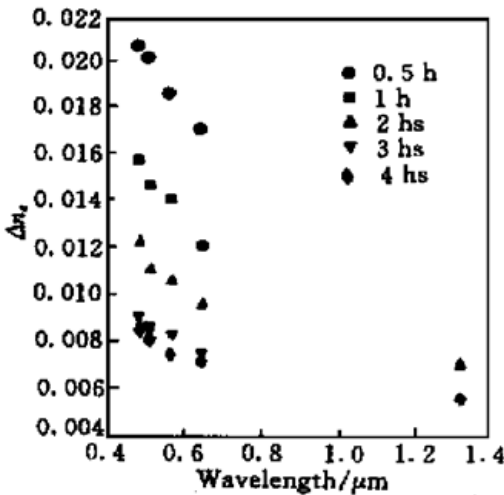


图5 不同退火时间下退火质子交换波导和基板中的非常折射率的色散关系

Fig. 5 Plots of dispersion of extraordinary index in APE waveguide and substrate with different annealing time

利用(5)式和图4, 可以较准确地表征 α 相下退火质子交换波导。退火深度 d_a 与退火时间 t_a 的关系可以由(5)式描述, 表面折射率变化 Δn_e 可以由波导层处于 α 相, 折射率改变与氢离子浓度成正比, 即折射率下的面积保持基本不变。从(6)式, 由于积分面积保持不变, 代入退火深度 d_a 就可以计算出 Δn_e 。从而获得退火后折射率分布曲线, 进而得到波导的参数。

实验中, 我们测量并计算了质子交换波导导波层在不同波长处的折射率变化, 可以用 Sellmeier 方程去拟合导波层的色散曲线如图5。

作为例子, 我们设计了用于倍频输出的准位相匹配光栅周期。制备的波导条件如下: 质子交换波导: 温度 190 °C, 质子源掺杂 1 wt-% 苯甲酸锂的苯甲酸溶液交换时间 2 h; 退火条件: 温度 350 °C, 退火时间 2 h, 用 1.321 μm 的半导体激光器抽运。波导制备好后, 在该波长下是单模波导, 测量的有效折射率 N_{eff}^{ω} 为 2.14640。在短波长下, 波导可以激发出多模输出, 由此可确定退火后的退火深度 d_a 为 3.34 μm, 对于不同波长下波传播常数的测量, 可计算出不同波长下的表面折射率改变 Δn_e 。图5中三角点表示了不同波长下的色散关系, 对此进行 Sellmeier 方程拟合, 可计算出倍频光 ($\lambda = 0.6605 \mu\text{m}$) 下的表面折射率改变 $\Delta n_e = 0.0094$ 。从而获得了该波长下波导的折射率分布, 用“选择零元”法计算出有两个导模可以激发, 有效折射率 $N_{\text{eff}}^{2\omega}$ 分别为

退火后的退火深度 d_a 为 3.34 μm, 对于不同波长下波传播常数的测量, 可计算出不同波长下的表面折射率改变 Δn_e 。图5中三角点表示了不同波长下的色散关系, 对此进行 Sellmeier 方程拟合, 可计算出倍频光 ($\lambda = 0.6605 \mu\text{m}$) 下的表面折射率改变 $\Delta n_e = 0.0094$ 。从而获得了该波长下波导的折射率分布, 用“选择零元”法计算出有两个导模可以激发, 有效折射率 $N_{\text{eff}}^{2\omega}$ 分别为

2. 20213 和 2. 19829。一阶准位相匹配光栅周期为

$$\Lambda_1 = \frac{\lambda_0}{2(N_{\text{eff}}^{2\omega} - N_{\text{eff}}^{\omega})} \quad (7)$$

计算结果为 $\Lambda_1 = 11.85 \mu\text{m}$ 。利用此原理设计制作了铌酸锂退火质子交换波导准位相匹配倍频器。用 7.7 mJ 的能量的基波抽运, 产生了 1.7 mJ 的倍频光输出, 并同时观测到三倍频的蓝光输出。

参 考 文 献

- 1 J. L. Jackel. Proton exchange: past, present, and future. *SPIE*, 1991, **1583**: 54~ 63
- 2 G. D. Miller, R. G. Batchko, W. M. Tulloch *et al.*. 42%- efficient single pass cw second harmonic generation in periodically poled lithium niobate. *Opt. Lett.*, 1997, **22**(24): 1834~ 1836
- 3 K. Kintaka, M. Fujimura, T. Suhara *et al.*. High efficiency LiNbO₃ waveguide second harmonic generation devices with ferroelectric domain inverted gratings fabricated by applying voltage. *J. Lightwave Tech.*, 1996, **14**(3): 462~ 468
- 4 M. L. Bortz, L. A. Eyres, M. M. Fejer. Depth profiling of the d_{33} nonlinear coefficient in annealed proton exchanged LiNbO₃ waveguides. *Appl. Phys. Lett.*, 1993, **62**(17): 2012~ 2014
- 5 K. S. Chiang. Construction of refractive index profiles of planar dielectric waveguides from the distribution of effective indexes. *J. Lightwave Tech.*, 1985, **LT-3**(2): 385~ 391
- 6 J. Nikolopoulos, G. L. Yip. Accurate modeling of the index profile in annealed proton exchanged LiNbO₃ waveguides. *SPIE*, 1991, **1583**: 71~ 82
- 7 L. M. Walpita. Solutions for planar optical waveguide equations by selecting zero elements in a characteristic matrix. *J. Opt. Soc. Am. A*, 1985, **2**(4): 595~ 602
- 8 D. F. Clark, A. C. G. Nutt, K. K. Wong *et al.*. Characterization of proton exchange slab optical waveguides in z cut LiNbO₃. *J. Appl. Phys.*, 1983, **54**(11): 6218~ 6221
- 9 Y. N. Korkishko, V. A. Fedorov, V. V. Nosikov. The phase diagram of H_xLi_{1-x}NbO₃ optical waveguides. *SPIE*, 1997, **2997**: 188~ 200
- 10 S. T. Vohra, A. R. Mickelson, S. E. Asher. Diffusion characteristics and waveguiding properties of proton exchanged and annealed LiNbO₃ channel waveguides. *J. Appl. Phys.*, 1989, **66**(11): 5161~ 5174

Theoretical Modeling and Characterization of Annealed Proton-exchanged Planar Waveguides in z -cut LiNbO₃

Chen Xianfeng Xie Shengwu Xia Yuxing
Chen Yuping Zhong Xiaoxia Chen Yingli

(Department of Applied Physics, National Laboratory on Local Fiber-Optical Communication Networks and Advanced Optical Communication Systems, Shanghai Jiao Tong University, Shanghai 200030)

Abstract An annealed proton exchange LiNbO₃ waveguides are fabricated and characterized in this paper. The refractive index profile after annealing is obtained by “selecting zero element” method. The empirical relations between waveguides parameter and fabrication conditions are established. The dispersion equation is also studied in guided-layer. The results are useful for applications of annealed proton exchanged waveguides in photonics devices.

Key words lithium niobate, annealed proton-exchanged waveguides, selecting zero method