

Z 切 LiNbO₃ 晶体中退火质子交换 光波导特性的研究

曹 霞 夏宇兴 杨 艺 汪平河 范建国
(上海交通大学应用物理系, 上海 200030)

摘 要 系统地研究 Z 切 LiNbO₃ 晶体中质子交换波导和退火质子交换波导的特性, 得到了质子交换过程中的扩散常数和激活能, 发现了质子交换波导的折射率呈线性阶跃型的折射率分布。通过连续退火, 波导的折射率分布由线性阶跃型向高斯型过渡。退火可分为两个阶段, 波导深度的增加在第一阶段随退火时间成指数关系, 第二阶段与退火时间的平方根成线性关系。

关键词 LiNbO₃ 质子交换光波导, 退火, 折射率分布。

1 引 言

LiNbO₃ 光波导在集成光学、光纤通信及光子学器件领域有广泛而重要的应用。LiNbO₃ 制作光波导有两种常用的方法: Ti 扩散法^[1]及退火的质子交换法^[2]。为了对质子交换的扩散规律及其退火工艺进行完整而系统的实验研究, 本文采用三个交换温度在 Z 切 LiNbO₃ 上制作了平面光波导, 并在不同温度、不同时间条件下进行退火实验, 通过常规的 m 线法测得光波导模的有效折射率^[3], 并由 White 等人的逆 WKB 法^[4]模拟折射率分布和计算波导深度, 从而得到质子交换的扩散方程, 对退火规律进行了系统研究。质子交换光波导及退火规律的系统研究, 对波导器件的设计和制作具有重要的指导意义。

2 质子交换实验

将清洗干净的 LiNbO₃ 晶片置入一具有特制形状的玻璃管中, 放到保温性能好的交换炉里, 加热升温到指定的温度, 经过一定的恒温时间让晶片充分预热后开始交换。采用的质子源为苯甲酸, 需将管口封住以抑制质子源的挥发, 同时也利于实验的重复性。

达到预定交换时间后, 通过一定的转动装置转动玻璃管, 使晶片从质子源中脱离出来, 关闭电源使炉温降低, 以减小晶片表面残余苯甲酸的继续交换对扩散规律的影响。降到接近室温时, 将晶片取出, 用无水乙醇或丙酮去除表面的残余苯甲酸。

采用 60°底角的金红石棱镜, 利用常规的棱镜耦合法测量导波模的激励角度, 计算得到相应导波模的有效折射率值。实验中, 发现对 Z 切 LiNbO₃ 晶体质子交换光波导只能激励 TM 模, 证明质子交换只引起非寻常光 n_e 的增加。

3 退火工艺

质子交换后的 LiNbO_3 光波导具有折射率分布不稳定、传输损耗较大、电光性能退化及非线性系数降低等缺点^[5]。实验研究发现,退火是改善质子交换光波导光学性能的一个重要途径^[6,7],且经退火后波导折射率分布有明显变化。为全面掌握质子交换波导的退火规律,实验采用三个退火温度 300°C 、 350°C 、 400°C 和不同时间的累积退火。每次退火后测量波导的有效折射率以研究折射率分布随退火不同阶段的变化趋势和规律,将退火时间累积以掌握退火对波导深度的影响。退火时将已交换好的波导片放入退火炉,封闭炉口,打开电源使炉温由室温开始上升。达到设定的退火温度并持续该温度到设定时间,退火完毕后断电,使炉温逐渐降低到室温后拿出晶片。退火工艺的关键之处在于升温速度的快慢及温度的恒定情况。实验中应在 LiNbO_3 晶体的承受能力范围内尽可能保持较快的升温速度,退火温度尽可能保持恒定,这都有

利于退火后波导特性的可重复性。在本实验中,温度控制在 $\pm 1^\circ\text{C}$ 的范围内。退火实验中注意到 Z 切 LiNbO_3 容易受温度骤升、骤降的影响而无法观测到波导模,其原因可能是温度的骤变形成晶体内部较大应力,引起微观晶格结构的损伤性变化,从而导致光耦合到波导时产生大的散射,并很快衰减而无法形成光传输,实验只观察到棱镜耦合点处随角度变化的闪耀光斑,表明有导波光的耦合。

4 计算结果与讨论

4.1 质子交换波导的折射率分布

测量波导的有效折射率后,由逆 WKB 方法模拟得到的 LiNbO_3 质子交换波导的折射率分布如图 1 所示,可近似为阶跃型分布,但不是完全的阶跃,而是一种线性阶跃,即在波导深度范围内,折射率不是恒定值,而是缓慢地线性降低。由阶跃分布的色散方程得到的有效折射率的精确值与实验测得的有效折射率进行比较,结果如图 2 所示(符号 \blacktriangle 为实验测量值,符号 \circ 为理论模拟值),可以看到前两个模(0 模与 1 模)的实验测量值与理论值有一定的差别,这是由于波导折射率分布是线性阶跃的缘故。

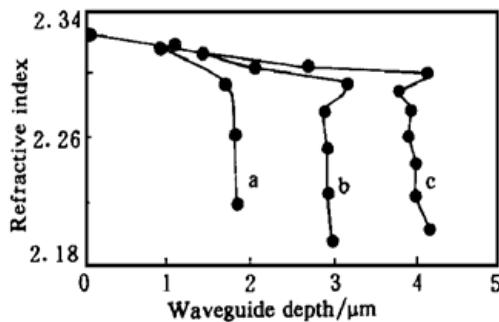


Fig. 1 The index profile of as-proton-exchanged waveguides on Z -cut LiNbO_3 for samples fabricated at a: 200°C for 9 h, b: 220°C for 11 h, c: 240°C for 9 h

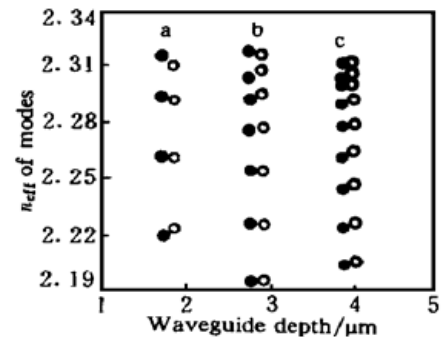


Fig. 2 The comparison of effective indices from experiment measurement and theoretical calculation for samples a, b, c in Fig. 1

4.2 质子交换的扩散方程

设质子交换的时间为 t_e , 得到的波导深度为 d_e 。实验选择不同交换温度和时间制作了 9

个波导样品, 波导深度 d_e 与交换时间 t_e 的关系如图 3 所示, 可以看到 d_e 与 $t_e^{1/2}$ 成正比关系。设 T 为交换温度, 有

$$d_e = 2 \sqrt{t_e \times D(T)}. \quad (1)$$

注意到 $d_e \propto t_e^{1/2}$ 曲线并未经过原点, 分析原因有: 1) 交换过程中, 温度控制不稳定; 2) 交换过程中质子源浓度在变化 (封闭玻璃管只是减少了挥发导致的浓度变化); 3) 经预定交换温度之后, 晶片上残余的酸溶液在温度下降过程中仍有交换; 4) 衬底和酸没有得到充分预热, 即交换时, 实际上没有达到指定的温度^[8]。

由图 3 的斜率得到三个交换温度下的有效扩散系数 $D(T)$ 如表 1 所示。

Table 1. Table of diffusion coefficients with respect to temperatures

$T / ^\circ\text{C}$	200	220	240
$D(T) / (\mu\text{m}^2/\text{h})$	0.1005	0.2002	0.3596

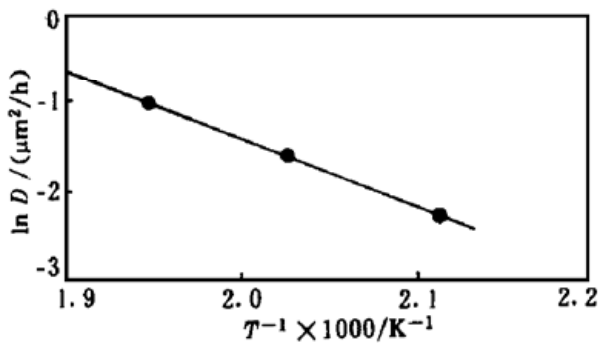


Fig. 4 Plot of $\ln D(T)$ vs $1/T$ for proton-exchanged waveguides on Z-cut LiNbO₃

由图 4 可得到任一温度 T 下的有效扩散系数 $D(T)$, 由(4) 式可得到在苯甲酸质子交换温度范围内的温度为 T 和交换时间为 t_e 时, 所得到波导深度为 d_e 。

4.3 退火后的折射率分布

图 5 为波导样品在退火温度为 350°C 时, 是在 240°C 温度下交换 6 h, 得到的波导深度为 3.030 μm 。由图 5 看到在整个的退火过程中, 表面折射率逐渐降低, 波导深度也逐渐增加, 且伴随有波导模式的增加。退火前波导折射率为线性阶跃分布, 退火 0.5 h 时接近标准的阶跃分布, 退火 2.5 h 后出现明显的折射率拖尾现象, 但仍保持阶跃分布的特征, 退火较长时间达 7 h 时为接近高斯型的渐变分布, 延长退火时间达到超过 22 h, 高斯渐变特征更为明显。

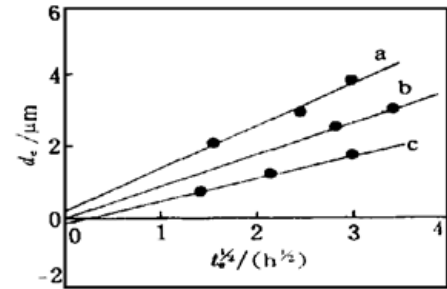


Fig. 3 Plot of d_e vs $t_e^{1/2}$ for proton-exchanged waveguides fabricated at a: $T_e = 240^\circ\text{C}$, b: $T_e = 220^\circ\text{C}$, c: $T_e = 200^\circ\text{C}$

$D(T)$ 与 T 的关系如图 4 所示, 可以看到 $\ln D$ 与 $1/T$ 成正比关系, 从而由

$$D(T) = D_0 \exp(-Q/RT) \quad (2)$$

得到质子交换的扩散常数 D_0 为 $1.29 \times 10^6 \mu\text{m}^2/\text{h}$, 质子交换的激活能 Q 为 64.3 kJ/mol, R 为普适气体常数。因此有

$$D(T) = 1.29 \times 10^6 \times \exp(-7.74 \times 10^3/T) \mu\text{m}^2/\text{h}, \quad (3)$$

$$d_e = 2.27 \times 10^3 (t_e)^{1/2} \times \exp(-3.87 \times 10^3/T) \mu\text{m}. \quad (4)$$

折射率分布随退火时间的变化情况。波导样品

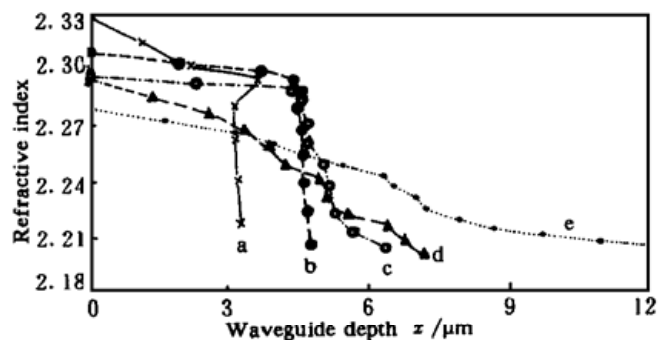


Fig. 5 Typical evolution of index profiles annealed at 350°C with annealing time t_a a: 0 h, b: 0.5 h, c: 2.5 h, d: 7 h, e: 22.7 h

因此退火可分为两个阶段, 第一个阶段的特征是退火后折射率分布仍可近似为阶跃形式(如 7 h 之前), 只是多了折射率的尾巴; 第二个阶段是累积退火到一定时间(7 h 以后), 折射率成为完全渐变分布。

实验也发现, 退火温度越高, 出现渐变特征越早, 且渐变特征也越明显。

4.4 波导深度的退火规律

图 5 中波导样品的退火深度 d_a 随退火时间 t_a 的变化情况如图 6 所示, 波导退火深度 d_a 定义为经过退火后波导实际深度的增加, 即 $d_a = d - d_e$, d 为退火后波导的实际深度, d_e 为退火前由质子交换得到的波导深度。由图 6 知, 退火对波导深度的影响较大, 350℃退火 30 min 时, 波导深度增加了 1.68 μm ; 退火 2.5 h 后, 波导深度增加了近 2 μm ; 退火超过 22 h 时, 波导深度增加了近 4 μm 。

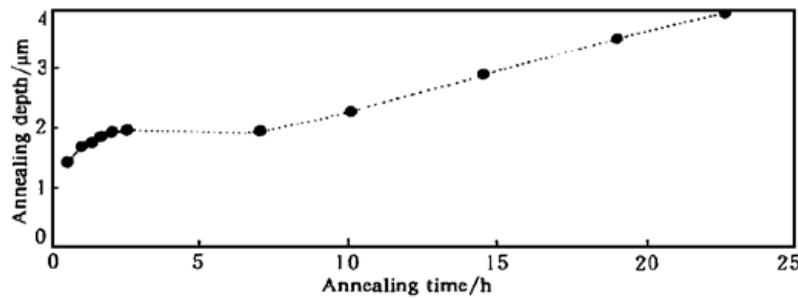


Fig. 6 Plot of d_a vs t_a for z -cut LiNbO_3 waveguides annealed at 350℃

对退火第一阶段, 用指数规律模拟的结果如图 7 所示。由图 6、图 7 可知, 在退火第一阶段, 波导的退火深度随退火时间呈指数规律增加, 即开始退火时, 波导深度增加快, 之后趋于相对稳定值; 退火到第二阶段, 波导的折射率分布近似为高斯型, 其退火深度与退火时间平方根的关系如图 8 所示呈线性关系。

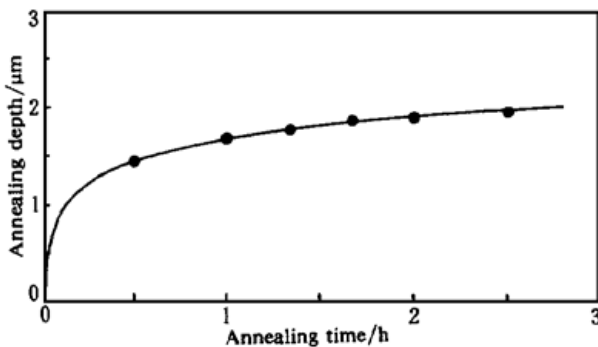


Fig. 7 Plot of d_a vs t_a for Z -cut LiNbO_3 waveguides annealed at 350℃

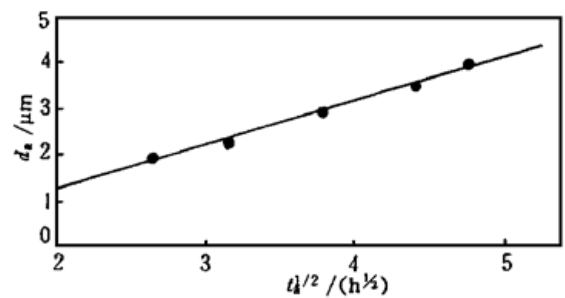


Fig. 8 Plot of d_a vs $t_a^{1/2}$ for z -cut LiNbO_3 waveguides annealed at 350℃ for more than 5 hours

结束语 LiNbO_3 质子交换光波导器件的实用基于质子交换规律及退火规律的实现, 本文对 LiNbO_3 质子交换光波导及退火规律进行了系统的实验研究, 得到了质子交换的扩散方程, 对退火前后波导的折射率分布进行了模拟, 发现折射率分布随退火时间的变化可分为两个阶段, 即阶跃型近似阶段和高斯型近似阶段, 波导深度的增加在第一阶段随退火时间呈指数关系, 第二阶段与退火时间的平方根成线性关系。

参 考 文 献

- [1] Schmidt R V, Kaminow I P. LiNbO₃ waveguides fabricated by Ti indiffusion. *Appl. Phys. Lett.*, 1974, **25** (8) : 458~ 460
- [2] Jackel J L. Annealed proton waveguides in LiNbO₃. *Ferroelectrics*, 1983, **50** (1) : 152~ 155
- [3] Tien P K, Ulrich R, Martin R J. Modes of propagating light waves in thin deposited semiconductor films. *Appl. Phys. Lett.*, 1969, **14** (9) : 291~ 294
- [4] White J M, Heidrich P F. Optical waveguide refractive index profiles determined from measurement of mode indices: A simple analysis. *Appl. Opt.*, 1976, **15** (1) : 151~ 155
- [5] Becker R A. Comparison of guided-wave interferometric modulators fabricated on LiNbO₃ via Ti indiffusion and proton exchange. *Appl. Phys. Lett.*, 1983, **43** (2) : 131~ 133
- [6] Cao X, Srivastava R, Ramaswamy R V *et al.*. Annealing to improve optical properties in LiNbO₃ proton exchanged waveguides. *IEEE Photonics Tech. Lett.*, 1991, **3** (1) : 25~ 29
- [7] Paz-Pujalt G R, Tuschel D D, Braunstein G *et al.*. Characterization of proton exchange lithium niobate waveguides. *J. Appl. Phys.*, 1994, **76** (7) : 3981~ 3987
- [8] Nikolopoulos J, Yip G L. Characterization of proton-exchanged optical waveguides in z-cut LiNbO₃ using pyrophosphoric acid. *Proc. SPIE, Integrated Optics and Optoelectronics*, 1989, **1177** : 24~ 30

Characterization of Annealed Proton Exchanged Optical Waveguides in Z-Cut LiNbO₃

Cao Xia Xia Yuxing Yang Yi Wang Pinghe Fan Jianguo
(Department of Applied Physics, Shanghai Jiao Tong University, Shanghai 200030)
(Received 14 April 1999; revised 12 July 1999)

Abstract The result of a systematic study on planar waveguides fabricated in z-cut LiNbO₃ by proton exchange and the post-annealing is reported. The diffusion constant and the activation energy can be deduced from the proton exchange process. It was found that index profile of the as-exchanged waveguides is a linear step profile. The index profile changes from step-like to Gaussian profile with successive annealing. The annealing depth increases exponentially with annealing time at the first stage and then increases linearly with the square root of annealing time at the second stage of annealing.

Key words LiNbO₃ proton exchange waveguide, annealing, refractive index profile.