

# 光学学报

## 铌酸锂薄膜上的非线性频率变换

刘时杰<sup>1</sup>, 郑远林<sup>1,2</sup>, 陈险峰<sup>1,2,3,4\*</sup>

<sup>1</sup>区域光纤通信网与新型光通信系统国家重点实验室, 上海交通大学物理与天文学院, 上海 200240;

<sup>2</sup>上海量子科学研究中心, 上海 201315;

<sup>3</sup>济南量子技术研究院, 山东 济南 250101;

<sup>4</sup>山东师范大学光场调控及应用中心, 山东 济南 250358

**摘要** 铌酸锂晶体是一种综合性质优异的多功能光学材料。在过去几十年里,对铌酸锂晶体的研究一直是光学研究的热点之一。近年来发展起来的绝缘体上铌酸锂(LNOI),亦称为铌酸锂薄膜(LNTF),在光学领域被公认为是一项变革性技术。基于LNOI的集成光子器件让铌酸锂晶体又焕发了新生命,再次成为集成光子学的研究焦点。作为最优秀的非线性晶体之一,铌酸锂薄膜在频率转换方面是其他薄膜材料无法替代的。总结了基于铌酸锂薄膜的非线性频率转换最新研究进展,包括二阶非线性、三阶非线性、级联非线性和光学频率梳等,最后对LNOI平台上光子集成回路(PIC)的前景进行了展望。

**关键词** 光学器件; 铌酸锂薄膜; 非线性; 频率变换; 光子集成回路

中图分类号 O437

文献标志码 A

doi: 10.3788/AOS202141.0823013

## Nonlinear Frequency Conversion in Lithium Niobate Thin Films

Liu Shijie<sup>1</sup>, Zheng Yuanlin<sup>1,2</sup>, Chen Xianfeng<sup>1,2,3,4\*</sup>

<sup>1</sup>State Key Laboratory of Advanced Optical Communication Systems and Networks,

School of Physics and Astronomy, Shanghai Jiao Tong University, Shanghai 200240, China;

<sup>2</sup>Shanghai Research Center for Quantum Sciences, Shanghai 201315, China;

<sup>3</sup>Jinan Institute of Quantum Technology, Jinan, Shandong 250101, China;

<sup>4</sup>Collaborative Innovation Center of Light Manipulation and Applications, Shandong Normal University, Jinan, Shandong 250358, China

**Abstract** The lithium niobate crystal is a multifunctional optical material with excellent comprehensive properties. For the past decades, lithium niobate crystal has attracted significant attention in optics researches. Recently, lithium niobate on insulator (LNOI), also known as lithium niobate thin film (LNTF), has been considered as a revolutionary technology in optics that rejuvenates lithium niobate for LNOI-based integrated photonics. A LNTF is irreplaceable in frequency conversion since it is one of the best nonlinear crystals. In this study, we summarize the most recent progress of LNTF in nonlinear frequency conversions, such as second-order nonlinearities, third-order nonlinearities, cascaded nonlinearities, and optical frequency comb. Finally, we present the prospect for photonic integrated circuits (PIC) on the LNOI platform.

**Key words** optical devices; lithium niobate thin film; nonlinear; frequency conversion; photonic integrated circuit

**OCIS codes** 230.2090; 190.0190; 190.2620; 190.4390; 130.7405

收稿日期: 2020-11-27; 修回日期: 2020-12-26; 录用日期: 2020-12-30

基金项目: 国家自然科学基金(12074252, 12074155, 62005159, 62022058)、国家重点研发计划(2017YFA0303701, 2018YFA0306301)、上海市市级科技重大专项(2019SHZDZX01-ZX06)、上海市启明星计划(20QA1405400)、山东省泉城学者(00242019024)

\* E-mail: xfchen@sjtu.edu.cn

# 1 引言

铌酸锂 ( $\text{LiNbO}_3$ , LN) 是一种重要的铁电晶体, 具有出色的光学性能, 包括宽透明窗口 ( $0.4 \sim 4.5 \mu\text{m}$ )、较高折射率(通信频带中约  $2.1 \sim 2.2$ )、大光电系数( $630 \text{ nm}$  处  $\gamma_{33} = 30.8 \text{ pm/V}$ )、强二阶非线性(在  $1.15 \mu\text{m}$  处  $d_{33} = -33.4 \text{ pm/V}$ )、优秀的声光效应及压电特性, 因而常被称为“光学硅”。此外, 利用铁电特性, 铌酸锂可以被周期性极化并实现准相位匹配(QPM)。这项技术已经被广泛应用于非线性频率转换、光量子技术等多个领域。包含铌酸锂材料的主要器件应用包括铌酸锂电光调制器、变频器、单光子源及表面声波滤波器等。几十年来, 铌酸锂材料一直是光学研究及应用的重要平台之一, 但同时铌酸锂器件的高密度集成也是困扰光学研究的重要难题。

最近, 绝缘体上铌酸锂(LNOI)或铌酸锂薄膜(LNTF)技术为这一传统材料带来了新的生命<sup>[1-3]</sup>。

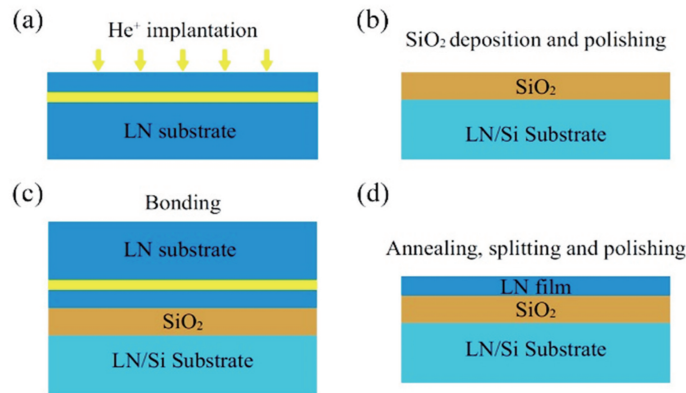


图 1 铌酸锂薄膜制备过程。(a)氦离子注入;(b)二氧化硅层沉积抛光;(c)晶体键合;(d)退火、剥离和抛光

Fig. 1 Procedure of LNTF fabrication. (a)  $\text{He}^+$  implantation; (b)  $\text{SiO}_2$  deposition and polishing; (c) crystal bonding; (d) annealing, splitting, and polishing

光学上所用铌酸锂薄膜的结构一般为铌酸锂薄膜-二氧化硅-衬底(硅/铌酸锂), 其中二氧化硅层厚度一般为  $2 \mu\text{m}$  或  $5 \mu\text{m}$ 。与传统的质子交换铌酸锂(折射率差  $\Delta n \approx 0.01$ )相比, 二氧化硅和铌酸锂的折射率差( $\Delta n \approx 0.7$ )大大增强了铌酸锂薄膜对光的束缚性, 波导的尺寸可以缩小 1 个数量级, 如图 2(a)、(b)所示。脊型波导的弯曲半径可缩小至几个微米, 因此可以将各种光学元器件制备到亚毫米甚至微米量级, 使得在同一光学芯片上密集集成更多的光学元器件。凭借铌酸锂出色的非线性, 波导中光与物质相互作用的强度也有数量级的提升, 这也为集成非线性光子学开辟了新领域。短短数年来, 随着 LNOI 技术发展成熟和 LNOI 光子结构制备优化, 该领域的研究取得了诸多重大进展。铌酸锂薄

膜脊型波导的传播损耗最近已降至极低水平(在纳米光子波导中损耗小于  $0.03 \text{ dB/cm}$ , 微谐振器的品质因数高于  $10^7$ <sup>[2,6-7]</sup>), 并继续逼近材料吸收极限, 因此可以在芯片上实现大规模光子集成回路。图 2(c)是 Luke 等<sup>[8]</sup>采用深紫外光刻和反应离子束刻蚀技术在  $6 \text{ inch}$  和  $4 \text{ inch}$  LNOI 晶圆上制备得到的大面积规模化光子集成芯片。

铌酸锂薄膜为铌酸锂基集成光子学注入了极大的活力, 并引起了人们的极大关注。LNOI 技术使人们得以成功实现铌酸锂片上高密度集成。目前, 高品质铌酸锂薄膜的制备工艺, 也就是离子切片和晶圆键合的技术(smart cut)<sup>[4-5]</sup>, 可以将具有不同晶体取向的几百纳米厚(通常为  $300 \sim 900 \text{ nm}$ )的单晶铌酸锂薄膜切片并键合到晶圆基板上的二氧化硅缓冲层(衬底可以是铌酸锂、硅、石英等), 制造流程大致如图 1 所示。已有不少文献总结了这些技术的细节, 具体可以参考 Poberaj 等的综述<sup>[5]</sup>。如今  $6 \text{ inch}$  ( $1 \text{ inch} = 2.54 \text{ cm}$ )的 LNOI 晶圆已经实现商业化销售, 未来更大的 LNOI 晶圆将得以实现。同时芯片化制备工艺, 包括电子束曝光、紫外光刻、飞秒激光直写技术、半导体刻蚀或化学机械抛光等技术, 已经演示了 LNOI 平台上光子集成回路(PIC)规模化生产能力, 这也意味着基于铌酸锂薄膜的产业化将开始起步。

膜脊型波导的传播损耗最近已降至极低水平(在纳米光子波导中损耗小于  $0.03 \text{ dB/cm}$ , 微谐振器的品质因数高于  $10^7$ <sup>[2,6-7]</sup>), 并继续逼近材料吸收极限, 因此可以在芯片上实现大规模光子集成回路。图 2(c)是 Luke 等<sup>[8]</sup>采用深紫外光刻和反应离子束刻蚀技术在  $6 \text{ inch}$  和  $4 \text{ inch}$  LNOI 晶圆上制备得到的大面积规模化光子集成芯片。

LNOI 平台上线性光学研究的相关综述和回顾已经比较全面了<sup>[1,3,9,10]</sup>。这里主要总结 LNOI 或 LNTF 平台在非线性光学方面的研究进展, 特别是激光频率变换应用, 包括二次谐波产生(SHG)、和/差频产生(SFG/DFG)、级联非线性、光学参量放大(OPO)等二阶非线性效应。同时对 LNOI 片上集成非线性的未来发展进行展望。

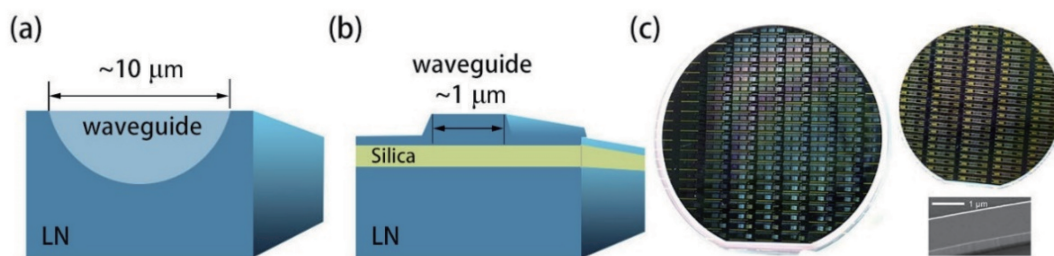


图 2 铌酸锂波导和集成光子芯片。(a) 铌酸锂质子交换波导; (b) LNOI 脊型波导; (c) 深紫外光刻及刻蚀制备得到的铌酸锂薄膜 PIC 器件<sup>[8]</sup>

Fig. 2 LN waveguides and integrated photonic chips. (a) Proton exchanged LN waveguide; (b) LNOI ridge waveguides; (c) scalar production of PIC on LNOI using ultraviolet lithography and dry etching<sup>[8]</sup>

## 2 铌酸锂薄膜中二阶非线性效应

基于铌酸锂体材料器件的二阶非线性研究已经很丰富了, 例如 SHG<sup>[11-13]</sup>、SFG<sup>[14]</sup>、级联非线性<sup>[15-17]</sup>。铌酸锂薄膜为这些二阶非线性过程的研究和应用提供了新的平台。在铌酸锂薄膜光子器件中, 光波导、回音壁模式(WGM)微腔、光子晶体(PhC)微/纳米腔同样是集成非线性光学的基本单元。利用这些结构, 可以增强光与物质的相互作用, 从而实现高效的非线性频率转换过程。高效的非线性频率转换过程需要材料强二阶非线性( $\chi^{(2)}$ )、强光场局域和相位匹配。而对于前两点, 铌酸锂薄膜具有很大的优势。不过铌酸锂薄膜微纳结构中的色散很大, 因此有效色散管理或者小周期 QPM 光栅结构是实现高效非线性过程的关键。

### 2.1 高效倍频过程

首先讨论最经典的二阶过程, 即 SHG。作为 LNOI 光子器件最基本的结构单元, 铌酸锂脊型波导本身由于强大的光约束能力, 在非线性频率转换

SHG 中有着极大的优势, 但由于色散较强, 对实现相位匹配有一定的困难。

通过周期性调制振幅强度, 同样可以实现等效的 QPM 过程。在实现 LNTF 周期性极化之前, 人们通过具有周期性刻槽的结构在纳米波导中实现了等效的 QPM。图 3(a)为 Wang 等通过具有周期性开槽的波导结构演示了铌酸锂脊型波导中基于 QPM 的倍频过程, 但结构上的不均匀性导致了高散射损耗<sup>[18]</sup>。同样地, Wang 等<sup>[19]</sup>还提出了另一种超构表面(metasurface)辅助的相位匹配新方案。与传统超构表面不同的是, 梯度超构表面可以提供单向倒格矢, 从而实现从基频波到倍频波的单向能量转移, 如图 3(b)所示。虽然原理非常新颖, 但是超构表面的制造要求很高, 长度也受到限制(数十微米), 因此还无法产生整体高效的频率变换。另外 2018 年, Chen 等<sup>[20]</sup>通过调控几何色散, 实现片上铌酸锂脊形波导的模式双折射相位匹配, 在 400 nm 厚波导中, 实现了归一化转换效率为 26 %/(W · cm<sup>2</sup>)的二次谐波产生。2019 年, Luo 等<sup>[21]</sup>提出了一种新型的波导结构, 通过打破

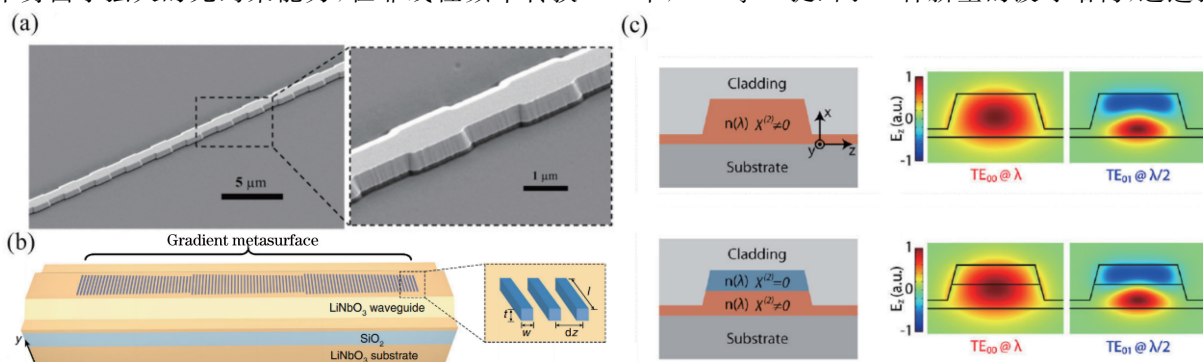


图 3 特殊相位匹配机制。(a) 周期性开槽的铌酸锂脊型波导<sup>[18]</sup>; (b) 超表面辅助相位匹配<sup>[19]</sup>; (c) 半非线性波导中的相位匹配<sup>[21]</sup>

Fig. 3 Special phase matching mechanism. (a) Periodically grooved LN ridge waveguide<sup>[18]</sup>; (b) metasurface assisted phase matching<sup>[19]</sup>; (c) phase matching in semi-nonlinear waveguides<sup>[21]</sup>

波导在空间上的对称性,实现极高的非线性转换效率。如图 3(c)所示,理论上基于这种结构的二次谐波归一化转换效率可高达  $2900 \%/(\text{W} \cdot \text{cm}^2)$ ,实验中实际测得的二次谐波转换效率为  $650 \%/(\text{W} \cdot \text{cm}^2)$ ,不过这也已经远远超出了传统模式相位匹配方法得到的转换效率。

在铌酸锂脊型波导上,通过周期性极化弥补基频光和倍频光模式之间的波矢失配,即 QPM,这是实现高效二次谐波最有效的方法。2018 年, Wang 等<sup>[22]</sup> 首先报道了归一化效率高达

$2200 \%/(\text{W} \cdot \text{cm}^2) \sim 2600 \%/(\text{W} \cdot \text{cm}^2)$  的周期极化铌酸锂脊型波导,效率为传统质子交换波导的 20 倍,如图 4(a)所示。Niu 等<sup>[23]</sup> 优化了周期畴占空比结构,制备了目前转换效率最高的周期性极化铌酸锂脊型波导,并将其用于通讯 S 波段( $1469.6 \text{ nm}$ )倍频,归一化倍频效率达到  $3061 \%/(\text{W} \cdot \text{cm}^2)$ ,实测效率达到理论效率的 83%,如图 4(b)所示。这些实验中利用连续光泵浦得到的效率也已经达到了很高的水平,这为片上非线性频率变换,特别是弱光高效非线性提供了实验性验证。

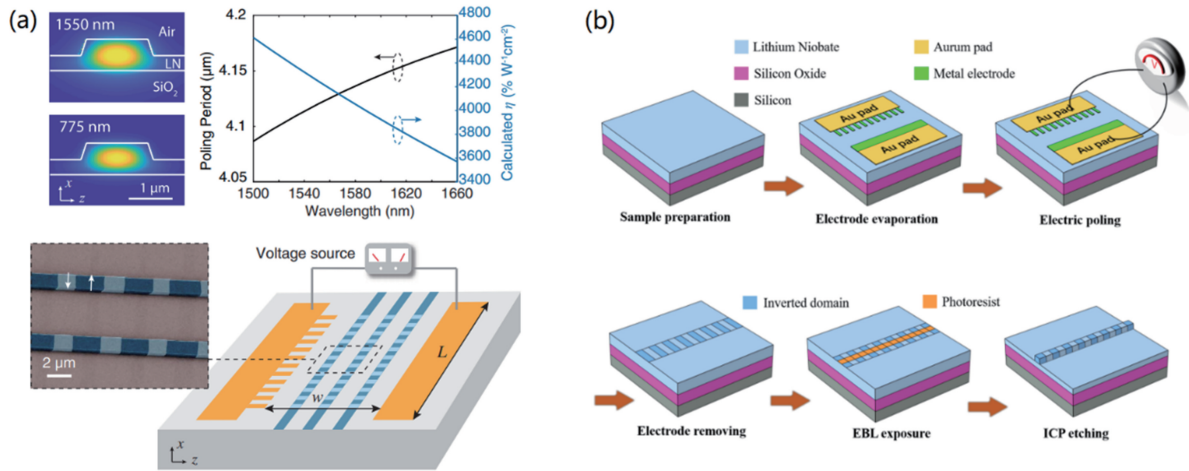


图 4 周期性极化铌酸锂薄膜(PPLNOI)脊型波导二次谐波产生及制备流程<sup>[22-23]</sup>

Fig. 4 SHG in PPLNOI ridge waveguides and their fabrication procedures<sup>[22-23]</sup>

除了光波导,高品质光学谐振腔在基础物理学研究和应用上都有着重要的作用。例如回音壁模式光学微腔由于模式体积小、品质因子高、腔内损耗小,可将腔内光子寿命增加到纳秒甚至微秒范围,是研究非线性光学的重要平台。结合铌酸锂非线性大的特点,研究学者们在铌酸锂回音壁模式微腔中实现了丰富的非线性现象。

早期人们对铌酸锂微盘腔研究较多,首先是微

盘腔制备难度相对较低,而且微盘腔中模式类别多,较为容易实现模式相位匹配。例如可以利用基频低阶模式(通常是基模)和谐波高阶模式的有效折射率相等,也就是倍频方位角模式数是基频的两倍( $m_{2\omega} = 2m_{\omega}$ ),来实现模式间相位匹配。通过合理的色散设计,本课题组<sup>[24]</sup>于 2017 年率先在同一个微盘腔上实现了二次谐波的同时观测到了级联三次谐波(cTHG)的输出,如图 5 所示。由于模式重叠面

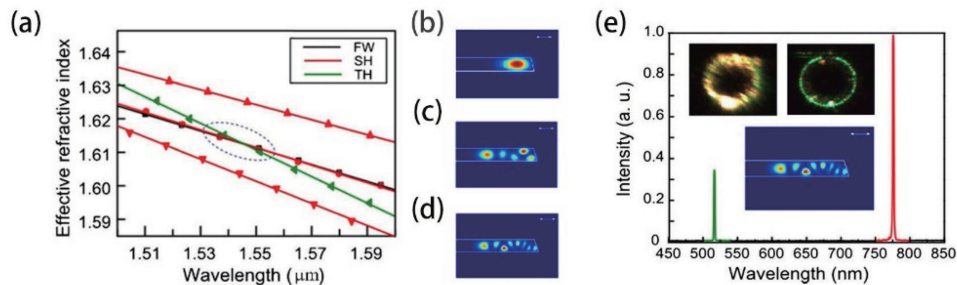


图 5 铌酸锂薄膜微盘腔中的 cTHG<sup>[24]</sup>。(a)模式有效折射率模拟结果;(b)~(d)不同阶模式分布;

(e)实验上观测到的 LNOI 微盘腔中倍频和级联三倍频

Fig. 5 cTHG in a LNTF microdisk<sup>[24]</sup>. (a) Simulated results of mode effective index; (b)~(d) distribution of different order modes; (e) experimentally observed SHG and cTHG in the LNOI microdisk

积积分较小,二次谐波转换效率相对较低,约  $10^{-6} \text{ mW}^{-1}$ 。但即使回音壁模式微腔只具有适中的品质因子( $\sim 10^5$ ),也实现了有效的三倍频产生。

实现真正有效的相位匹配需要特殊设计微腔尺寸或结构。2019 年, Lin 等<sup>[25]</sup>在  $x$  切 LNOI 微盘中揭示了一种独特的宽带准相位匹配机制。在经过  $x$  切割的 LNOI 微盘中,随着光波绕圆周传播,TE 偏振模式经历旋转的晶体取向,即有效非线性系数  $d_{\text{eff}}$  周期性变化,类似于周期性极化铌酸锂(PPLN)晶体中周期性畴反转的效应,如图 6(a)所示。此方法演示了无需周期极化即可在 LNOI 微腔中高效倍频的另一种途径。借助 TE 模泵浦,可以利用铌酸锂最大的二阶非线性系数  $d_{33}$ 。他们在 LNOI 微盘

中实现的 SHG 和 cTHG 归一化转换效率分别高达  $9.9 \text{ \%}/\text{mW}$  和  $1.05 \text{ \%}/\text{mW}^2$ <sup>[25]</sup>。为了提高效率,在 LNOI 微谐振器中直接实现准相位匹配始终是最理想的目标,而这对制造的要求很高。最近,美国两个研究小组<sup>[26-27]</sup>分别在  $x$  切和  $z$  切的 LNTF 微环形腔中通过精确和均匀地周期性极化实现了腔内的超高效倍频。两种方法都需要结合波导结构,从而实现小周期准相位匹配光栅结构制备,在制备工艺上存在一定难度。令人惊喜的是,两种方法最终实现的非线性频率转换效率都超过  $2 \times 10^5 \text{ \%}/\text{W}$ 。通过进一步的改进,可以设想在少光子甚至单光子水平上演示非线性的可行性,这在量子光学应用中是非常重要的。

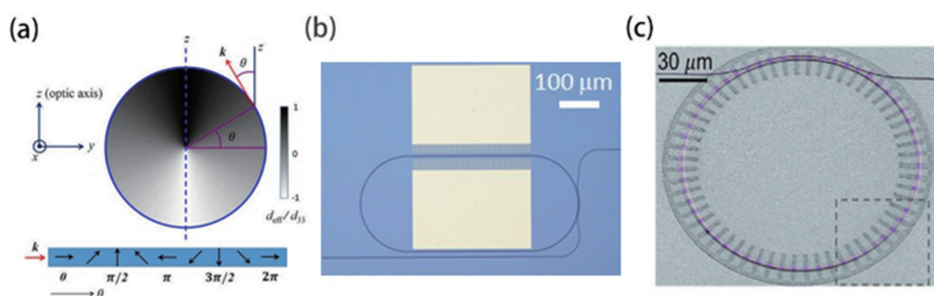


图 6 LNOI WGM 微腔中的 QPM 方案。(a) TE 偏振模式的  $d_{\text{eff}}$  周期性变化<sup>[25]</sup>;  
(b)(c)在环形跑道和微环中直接使用 QPM<sup>[26-27]</sup>

Fig. 6 QPM schemes in LNOI WGM microresonators. (a) Cyclic variation of  $d_{\text{eff}}$  of a TE-polarized mode<sup>[25]</sup>; (b)(c) direct use of QPM in racetrack and circular microrings<sup>[26-27]</sup>

随着工艺水平发展,铌酸锂光子晶体谐振腔的品质因子已超过  $10^5$ 。在铌酸锂光子晶体中,低功耗条件下的二次谐波也已经被报道<sup>[28]</sup>,如图 7 所示,转换效率达到  $4 \times 10^{-9} \text{ mW}^{-1}$ 。在后续的实验

中,光子晶体平板谐振腔结构将转换效率提高了 4 个数量级,达到了  $0.078 \text{ \%}/\text{W}$ <sup>[29]</sup>。LNOI 平台上的光子晶体微腔具有最小的模式体积,因此铌酸锂光子晶体微腔最有望实现单光子非线性这一最终目标。

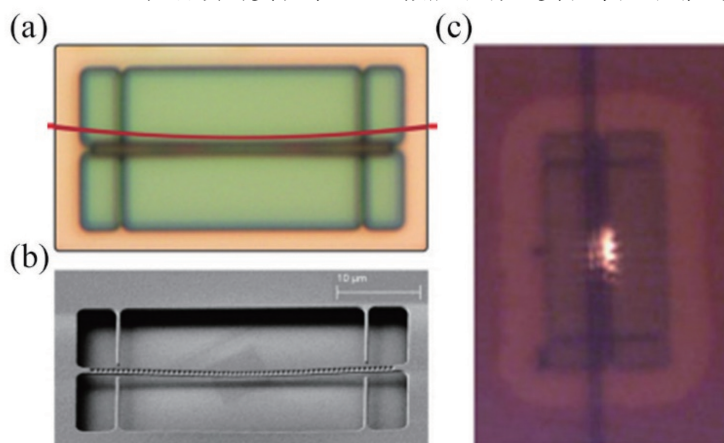


图 7 铌酸锂 PhC 微腔图及二次谐波产生<sup>[28]</sup>。(a)光学显微镜拍摄的 PhC 微腔;(b)扫描电子显微镜(SEM)拍摄的 PhC 微腔;(c) PhC 微腔中的二次谐波产生

Fig. 7 PhC cavity and SHG on the LNOI platform<sup>[28]</sup>. (a) PhC cavity obtained by microscope; (b) PhC cavity obtained by SEM; (c) SHG in PhC cavity

### 2.2 其他二阶非线性过程

由于铌酸锂的强二阶非线性特性和铌酸锂薄膜高品质微腔制备工艺的成熟,在铌酸锂微腔中甚至可以同时实现几种不同的非线性过程,包括 SFG, DFG, 三次谐波产生 (THG) 和四波混频 (FWM)<sup>[24,30-31]</sup>。例如 Ye 等<sup>[32]</sup>通过模式相位匹配实现了微盘腔中的 SFG 过程,转换效率达到  $2.22 \times 10^{-6} \text{ mW}^{-1}$ 。和频可以有效地将低频弱光信号转换为高频光信号,从而降低红外光的探测成本,例如上转换单光子探测。此外,由于和频过程不会干扰量子态,可以有效地控制单个光子信号的频率和脉冲形状,将光学飞行量子比特(单光子)与窄带原子量子存储器相连接。相反地,Luo 等<sup>[33]</sup>通过模式相位匹配实现了微腔中的 DFG 过程,转换效率高达  $1500 \text{ \%}/\text{W}$ 。如果可以进一步提升泵浦功率,那么就可以在 LNOI 中构建一个片上 OPO。这项工作对实现集成量子非线性极为重要。

在 LNTF 中也已经证明了更复杂的波混合过

程,一个典型的例子是级联过程。LN 具有的三阶非线性系数( $\chi^{(3)}$ )并不大,但是二阶非线性的级联过程( $\chi^{(2)};\chi^{(2)}$ )可以等效于一个三阶非线性过程。由于二阶非线性系数比三阶非线性系数大几个数量级,因此等效的三阶非线性系数比材料的固有三阶非线性系数大得多。各种相位匹配方案还为级联光学非线性效应提供了灵活的实现方法,如图 8(c)所示,例如通过级联 SHG 和 SFG,生成三次谐波(TH)<sup>[24]</sup>,这可以在具有多模式相位匹配的 WGM 微腔中观察到。由于级联过程的波长跨度较大且色散不同,因此实现级联的匹配条件更严格。本课题组<sup>[30]</sup>在 LNOI 微盘腔中通过二阶级联过程实现了等效的四波混频过程,如图 9 所示,即级联的 SHG 和 DFG(cSHG/DFG)过程。其优点是波矢量和失配量很接近,可以同时补偿或在较宽的带宽内实现匹配。类似地,Wang 等<sup>[31]</sup>通过双铌酸锂微盘的耦合,在双铌酸锂微盘腔中实现更为复杂的级联非线性过程,如四波混频和受激拉曼等。

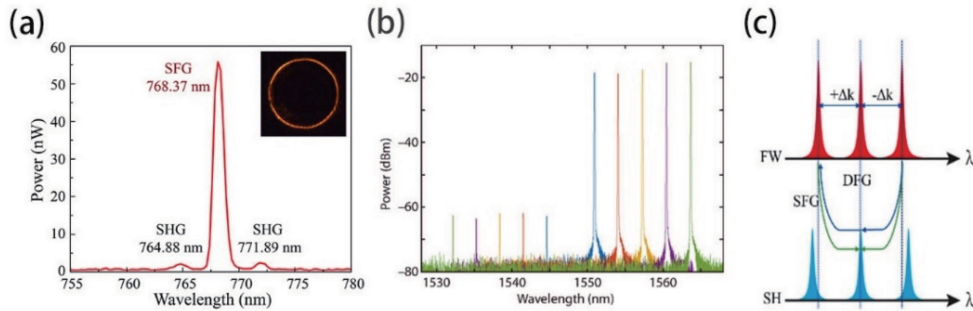


图 8 LNOI 微盘腔中的二阶非线性过程。(a)模式和频光谱图<sup>[31]</sup>;(b)模式差频光谱图<sup>[32]</sup>;  
(c)模式相位匹配(PM)和频与差频原理图

Fig. 8 The  $\chi^{(2)}$  nonlinear processes in the LNOI microdisk. (a) SFG spectrum diagram<sup>[31]</sup>;  
(b) DFG spectrum diagram<sup>[32]</sup>; (c) schematic of modal-PM SFG/DFG

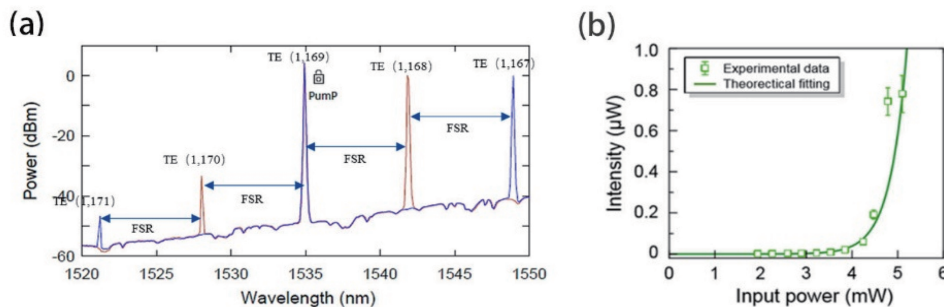


图 9 LNOI 微盘腔中的级联四波混频效应<sup>[30]</sup>。(a)级联四波混频的光谱;(b)输出功率与泵浦能量关系

Fig. 9 Cascade four-wave mixing (FWM) effect in the LNOI microdisk<sup>[30]</sup>. (a) Spectrum of cascaded FWM;  
(b) relationship between output power and pump energy

除了  $\chi^{(2)};\chi^{(2)}$  级联之外,电光效应和非线性波混频也很吸引人。电光效应本质上也是二阶非线性

效应现象。电光效应和非线性混频的级联为电控制非线性过程提供了一种新途径,并且通过片上集成,

这种级联电调方式调制速度可以非常快。本课题组<sup>[34-35]</sup>在基于微米级 PPLN 薄膜(PPLNOI)脊型波导的结构上演示了电光偏振耦合和非线性频率转换过程的级联,实现了通过外加电场调控非线性光学的过程,其原理示意图如图 10 所示。利用级联倍频

和电光偏振耦合,可实现通过对基频光进行电光调制进而调控二次谐波的产生和效率,调制速度可达百兆。结合铌酸锂薄膜上高性能的电光调制以及非线性频率转换过程,在纳米级 LNTF 上实现电光和非线性的级联过程可得到更高的效率和更快的速度。

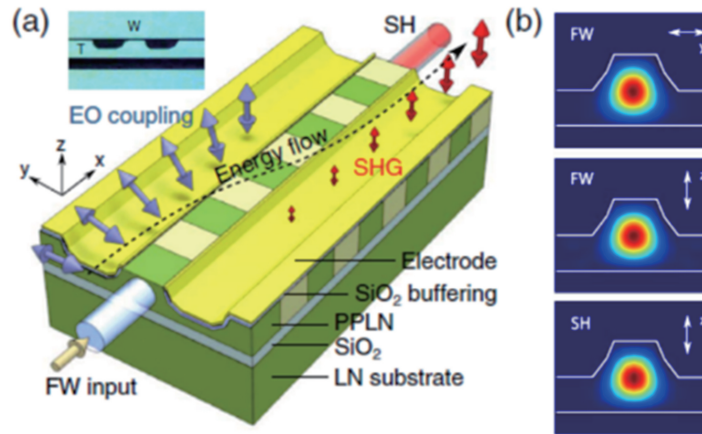


图 10 PPLNOI 脊型波导中的电光耦合<sup>[34-35]</sup>。(a)在 PPLNOI 脊型波导中倍频(SH)和电光偏振耦合的级联过程;(b)基频(FW)光和倍频光的光场分布

Fig. 10 Electro-optical coupling in PPLNOI ridge waveguide<sup>[34-35]</sup>. (a) Cascade process of SH and electro-optic polarization coupling in PPLNOI ridge waveguide; (b) optical field distribution of FW light and SH light

除了上转换频率变换,参量下转换过程的一个重要非线性应用就是作为可调谐激光输出或者量子光源。例如自发参数下转换(SPDC)过程将一个光子分裂成两个(遵循能量和动量守恒),从而生成纠缠的光子对,这是非线性方法产生量子光源的重要手段。利用  $x$  切的铌酸锂微盘腔中宽带相位匹配机制,人们已经实现了通讯波段附近带宽超过 400 nm 的 SPDC 光子对输出<sup>[36]</sup>,这一结果显著优于多数传统的相位匹配方式所能达到的约数十纳米带宽的纠缠光子对输出限制<sup>[37-40]</sup>,仅有 PPLN 可以提供与此相当的宽带输出<sup>[41]</sup>。这项工作为铌酸锂片上集成宽带光子纠缠源提供了新思路。

### 3 铌酸锂薄膜中三阶非线性效应

铌酸锂本身的三阶非线性并不强,但是由于 LNTF 的光场强局域特性,仍可以产生高效的三阶非线性过程,包括克尔(Kerr)频率梳和受激拉曼散射(SRS),这具有许多重要的应用,包括光学通信、量子光学、微波光子学和光谱学等。

高效三阶非线性过程要求 LNOI 微腔具有高品质因子(达到  $10^6$ )。基于 LN 的  $\chi^{(3)}$  非线性, Yu 等<sup>[42]</sup>在 LNOI 微盘中实现了 SRS 激光,并探索了拉曼散射对 Kerr 光学频率梳的影响,通过腔几何控

制充分抑制了拉曼效应,从而在  $x$  切 LNOI 芯片中实现了孤子锁模状态。2019 年, He 等<sup>[43]</sup>在铌酸锂微环腔中首次实现了 Kerr 孤子光频梳。所有材料都具有三阶非线性,但是在二阶非线性腔(如铌酸锂微腔)中的倍频程频率梳可直接实现基频至倍频的自参考,这一点格外令人瞩目。迄今为止,铌酸锂薄膜微腔中的光频梳产生利用的仍然是材料的三阶非线性效应,但在 LNOI 微腔中已经实现了谱宽大于 700 nm 的 Kerr 孤子光频梳。图 11 为在 LNOI 微腔中实现自动锁模 Kerr 孤子光频梳生成的实验结果,在实验上可实现频率梳从两个方向失谐切换到孤子状态,同时还伴随 SHG,因此向直接片上自参考光频梳产生方向更近了一步。

另外,利用铌酸锂薄膜调制器的高速调制性能和微腔增强作用, Zhang 等<sup>[44]</sup>通过微波信号对光信号的相位进行电光调制,从而在 LNOI 上生成新型的电光光频梳。这种电光光频梳的输入通常是连续波光,经过相位调制后,它变成由许多等间隔的边带组成的光谱,其边距等于微波信号的频率。图 12 为跑道型谐振腔光频梳的光谱图,带宽大于 80 nm,谱线大于 900 条,其中泵浦光波长为 1550 nm,重复频率约为 10 GHz。即使在失谐 30 MHz 的调制频率下,该频率梳频谱仍能大于 20 nm。此外,这种梳

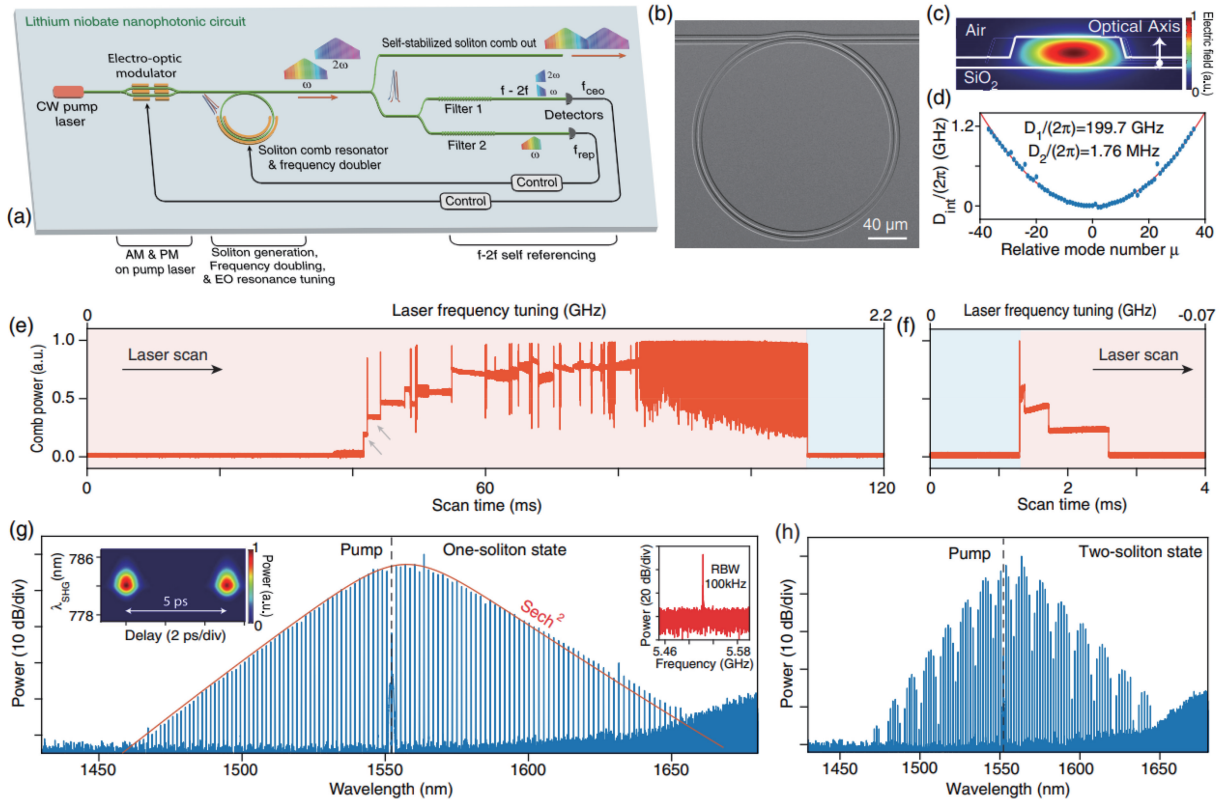


图 11 铌酸锂微环谐振器与锁模克尔孤子<sup>[43]</sup>。(a)实验原理图；(b) LNOI 微环的 SEM 图；(c)波导模式截面图；(d)~(h)实验结果

Fig. 11 LN microring resonator and mode-locked Kerr solitons<sup>[43]</sup>. (a) Experimental schematic diagram; (b) SEM of LNOI microring; (c) cross-section diagram of waveguide mode; (d)–(h) experimental results

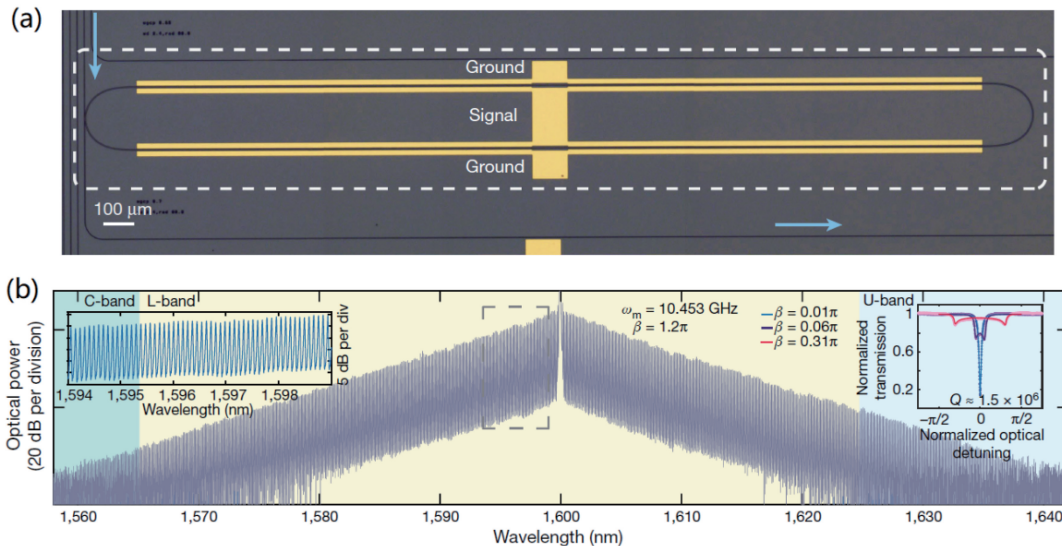


图 12 LNTF 微腔中电光调制直接产生光频梳<sup>[44]</sup>。(a) LNOI 微腔及电极示意图；(b) LNOI 微腔中的电光调制光频梳光谱

Fig. 12 Frequency comb generation in LNTF microresonators from electro-optic modulation<sup>[44]</sup>. (a) Schematic of LNOI microcavity and electrodes; (b) spectrum of electro-optic modulation optical frequency comb in LNOI microcavity

状结构还可以通过在电极上加入两个锁相微波信号来产生任意重复频率的拍频。他们还展示了同时具

有大电光调制能力和 Kerr 非线性的纳米光子铌酸锂平台,并在单片上集成了滤波和电光调制的频



率梳<sup>[45]</sup>。

总之,基于铌酸锂薄膜的集成光电子结构在非线性和频率转换领域不仅打破了传统铌酸锂器件的各项性能与指标,更是开创性地实现了各种重要的非线性过程研究,比如谐波产生、电光偏振耦合、光子晶体微腔、克尔光频梳、电光频梳等。当然,LNOI 的优异表现不仅如此,在通信、声学、微波光子学、量子光学、腔光学等领域同样有着非凡的作用。未来,通过进一步成熟的大规模铌酸锂制造工艺及结合铌酸锂的强二阶非线性和纳米结构特性,相信 LNOI 可以实现更为丰富和高效的非线性系统,比如通过 SPDC 产生超高亮度纠缠光子对,并进一步用来演示单光子源和量子存储器等<sup>[46]</sup>;凭借高效和灵活的频率转换能力实现片上集成 OPO,有望超越掺铒光纤和半导体光放大器成为新型光载微波放大器;利用灵活的模式匹配机制实现非线性滤波器等。

## 4 结 论

铌酸锂薄膜已经成为新型集成光学最理想的平台之一,其优秀的电光效应和非线性效应是其他材料所无法取代的。本文介绍了基于铌酸锂薄膜的各类非线性频率转换的部分最新进展,如二阶非线性、三阶非线性、级联非线性和光学频率梳等,最后对铌酸锂薄膜平台上非线性光学器件进行了展望。我们相信,集成铌酸锂光子学的发展会在未来非线性光学、光通信和量子技术的发展中起到不可估量的价值。

### 参 考 文 献

- [1] Boes A, Corcoran B, Chang L, et al. Status and potential of lithium niobate on insulator (LNOI) for photonic integrated circuits [J]. *Laser & Photonics Reviews*, 2018, 12(4): 1700256.
- [2] Zhang M, Wang C, Cheng R, et al. Monolithic ultrahigh-Q lithium niobate microring resonator [J]. *Optica*, 2017, 4(12): 1536-1537.
- [3] Honardoost A, Abdelsalam K, Fathpour S, et al. Rejuvenating a versatile photonic material: thin-film lithium niobate [J]. *Laser & Photonics Reviews*, 2020, 14(9): 2000088.
- [4] Levy M, Osgood R M, Liu R, et al. Fabrication of single-crystal lithium niobate films by crystal ion slicing [J]. *Applied Physics Letters*, 1998, 73(16): 2293-2295.
- [5] Poberaj G, Hu H, Sohler W, et al. Lithium niobate on insulator (LNOI) for micro-photonics devices [J]. *Laser & Photonics Reviews*, 2012, 6(4): 488-503.
- [6] Fang Z W, Haque S, Lin J T, et al. Real-time electrical tuning of an optical spring on a monolithically integrated ultrahigh Q lithium niobate microresonator [J]. *Optics Letters*, 2019, 44(5): 1214-1217.
- [7] Wang M, Wu R B, Lin J T, et al. Chemo-mechanical polish lithography: a pathway to low loss large-scale photonic integration on lithium niobate on insulator [J]. *Quantum Engineering*, 2019, 1(1): e9.
- [8] Luke K, Kharel P, Reimer C, et al. Wafer-scale low-loss lithium niobate photonic integrated circuits [J]. *Optics Express*, 2020, 28(17): 24452-24458.
- [9] Bazzan M, Sada C. Optical waveguides in lithium niobate: recent developments and applications [J]. *Applied Physics Reviews*, 2015, 2(4): 040603.
- [10] Qi Y F, Li Y. Integrated lithium niobate photonics [J]. *Nanophotonics*, 2020, 9(6): 1287-1320.
- [11] Ilchenko V S, Savchenkov A A, Matsko A B, et al. Nonlinear optics and crystalline whispering gallery mode cavities [J]. *Physical Review Letters*, 2004, 92(4): 043903.
- [12] Fürst J U, Strekalov D V, Elser D, et al. Naturally phase-matched second-harmonic generation in a whispering-gallery-mode resonator [J]. *Physical Review Letters*, 2010, 104(15): 153901.
- [13] Sedlmeir F, Hauer M, Fürst J U, et al. Experimental characterization of an uniaxial angle cut whispering gallery mode resonator [J]. *Optics Express*, 2013, 21(20): 23942-23949.
- [14] Strekalov D V, Kowligy A S, Huang Y P, et al. Optical sum-frequency generation in a whispering-gallery-mode resonator [J]. *New Journal of Physics*, 2014, 16(5): 053025.
- [15] Moore J, Tomes M, Carmon T, et al. Continuous-wave ultraviolet emission through fourth-harmonic generation in a whispering-gallery resonator [J]. *Optics Express*, 2011, 19(24): 24139-24146.
- [16] Moore J, Tomes M, Carmon T, et al. Continuous-wave cascaded-harmonic generation and multi-photon Raman lasing in lithium niobate whispering-gallery resonators [J]. *Applied Physics Letters*, 2011, 99(22): 221111.
- [17] Sasagawa K, Tsuchiya M. Highly efficient third harmonic generation in a periodically poled MgO:LiNbO<sub>3</sub> disk resonator [J]. *Applied Physics Express*, 2009, 2(12): 122401.
- [18] Wang C, Xiong X, Andrade N, et al. Second harmonic generation in nano-structured thin-film

- lithium niobate waveguides [J]. *Optics Express*, 2017, 25(6): 6963-6973.
- [19] Wang C, Li Z Y, Kim M H, et al. Metasurface-assisted phase-matching-free second harmonic generation in lithium niobate waveguides[J]. *Nature Communications*, 2017, 8(1): 2098.
- [20] Chen J Y, Sua Y M, Fan H, et al. Modal phase matched lithium niobate nanocircuits for integrated nonlinear photonics [J]. *OSA Continuum*, 2018, 1(1): 229-242.
- [21] Luo R, He Y, Liang H X, et al. Semi-nonlinear nanophotonic waveguides for highly efficient second-harmonic generation [J]. *Laser & Photonics Reviews*, 2019, 13(3): 1800288.
- [22] Wang C, Langrock C, Marandi A, et al. Ultrahigh-efficiency wavelength conversion in nanophotonic periodically poled lithium niobate waveguides [J]. *Optica*, 2018, 5(11): 1438-1441.
- [23] Niu Y F, Lin C, Liu X Y, et al. Optimizing the efficiency of a periodically poled LNOI waveguide using *in situ* monitoring of the ferroelectric domains [J]. *Applied Physics Letters*, 2020, 116(10): 101104.
- [24] Liu S J, Zheng Y L, Chen X F. Cascading second-order nonlinear processes in a lithium niobate-on-insulator microdisk [J]. *Optics Letters*, 2017, 42(18): 3626-3629.
- [25] Lin J T, Yao N, Hao Z Z, et al. Broadband quasi-phase-matched harmonic generation in an on-chip monocrystalline lithium niobate microdisk resonator [J]. *Physical Review Letters*, 2019, 122(17): 173903.
- [26] Chen J Y, Ma Z H, Sua Y M, et al. Ultra-efficient frequency conversion in quasi-phase-matched lithium niobate microrings [J]. *Optica*, 2019, 6(9): 1244-1245.
- [27] Lu J J, Surya J B, Liu X W, et al. Periodically poled thin-film lithium niobate microring resonators with a second-harmonic generation efficiency of 250,000%/W [J]. *Optica*, 2019, 6(12): 1455-1460.
- [28] Jiang H W, Liang H X, Luo R, et al. Nonlinear frequency conversion in one dimensional lithium niobate photonic crystal nanocavities [J]. *Applied Physics Letters*, 2018, 113(2): 021104.
- [29] Li M X, Liang H X, Luo R, et al. High-Q 2D lithium niobate photonic crystal slab nanoresonators [J]. *Laser & Photonics Reviews*, 2019, 13(5): 1800228.
- [30] Liu S J, Zheng Y L, Fang Z W, et al. Effective four-wave mixing in the lithium niobate on insulator microdisk by cascading quadratic processes [J]. *Optics Letters*, 2019, 44(6): 1456-1459.
- [31] Wang M, Yao N, Wu R B, et al. Strong nonlinear optics in on-chip coupled lithium niobate microdisk photonic molecules [J]. *New Journal of Physics*, 2020, 22(7): 073030.
- [32] Ye X N, Liu S J, Chen Y P, et al. Sum-frequency generation in lithium-niobate-on-insulator microdisk via modal phase matching [J]. *Optics Letters*, 2020, 45(2): 523-526.
- [33] Luo R, He Y, Liang H X, et al. Optical parametric generation in a lithium niobate microring with modal phase matching [J]. *Physical Review Applied*, 2019, 11(3): 034026.
- [34] Ding T T, Zheng Y L, Chen X F. Integration of cascaded electro-optic and nonlinear processes on a lithium niobate on insulator chip [J]. *Optics Letters*, 2019, 44(6): 1524-1527.
- [35] Wang D, Ding T T, Zheng Y L, et al. Cascaded sum-frequency generation and electro-optic polarization coupling in the PPLNOI ridge waveguide [J]. *Optics Express*, 2019, 27(11): 15283-15288.
- [36] Luo R, Jiang H W, Rogers S, et al. On-chip second-harmonic generation and broadband parametric down-conversion in a lithium niobate microresonator [J]. *Optics Express*, 2017, 25(20): 24531-24539.
- [37] Jin H, Liu F M, Xu P, et al. On-chip generation and manipulation of entangled photons based on reconfigurable lithium-niobate waveguide circuits [J]. *Physical Review Letters*, 2014, 113(10): 103601.
- [38] Frank I W, Moore J, Douglas J K, et al. Entangled photon generation in lithium niobate microdisk resonators through spontaneous parametric down conversion [C] // 2016 Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO), June 5-10, 2016, San Jose, CA, USA. New York: IEEE Press, 2016.
- [39] Guo X, Zou C L, Schuck C, et al. Parametric down-conversion photon-pair source on a nanophotonic chip [J]. *Light: Science & Applications*, 2017, 6(5): e16249.
- [40] Tanzilli S, Tittel W, de Riedmatten H, et al. PPLN waveguide for quantum communication [J]. *The European Physical Journal D - Atomic, Molecular and Optical Physics*, 2002, 18(2): 155-160.
- [41] Fujii G, Namekata N, Motoya M, et al. Bright narrowband source of photon pairs at optical telecommunication wavelengths using a type-II periodically poled lithium niobate waveguide [J]. *Optics Express*, 2007, 15(20): 12769-12776.
- [42] Yu M J, Okawachi Y, Cheng R, et al. Raman lasing and soliton mode-locking in lithium niobate

- microresonators[J]. *Light: Science & Applications*, 2020, 9: 9.
- [43] He Y, Yang Q F, Ling J W, et al. Self-starting bi-chromatic LiNbO<sub>3</sub> soliton microcomb [J]. *Optica*, 2019, 6(9): 1138-1144.
- [44] Zhang M, Buscaino B, Wang C, et al. Broadband electro-optic frequency comb generation in a lithium niobate microring resonator [J]. *Nature*, 2019, 568 (7752): 373-377.
- [45] Wang C, Zhang M, Yu M, et al. Monolithic lithium niobate photonic circuits for Kerr frequency comb generation and modulation [J]. *Nature Communications*, 2019, 10(1): 978.
- [46] Sinclair N, Saglamyurek E, George M, et al. Spectroscopic investigations of a Ti:Tm waveguide for photon-echo quantum memory [J]. *Journal of Luminescence*, 2010, 130(9): 1586-1593.