

# 非線性光學晶體:PPLN 之成長與應用

林宜慶 彭隆瀚  
台大光電所

## 一、前言

自從 1960 年代紅寶石雷射問世<sup>1</sup>以後，有關雷射應用的科技便日進千里。利用高功率雷射及其同調特性，Franken et al.<sup>2</sup>首先在 1961 年觀察到在石英中倍頻產生的非線性現象。隨著雷射應用與需求的增加，其光源在紅外光與短波長波段缺乏的事實便愈益彰顯，因此藉由非線性頻率轉換以產生新興光源的研究就成為非線性光學領域的一個新興顯學。

非線性頻率轉換的概念是於 1962 年由 Bloembergen<sup>3</sup> 提出，而完整的理論基礎到 1970 年左右才被完成。所謂頻率轉換，簡單來說，是利用雷射光場，在非線性晶體中之動量與能量的交換，以產生和頻、差頻或倍頻等異於原光場頻率輸出的現象。而如何增加非線性頻率轉換產生之輸出光場強度及可調之頻段範圍，便成為此一研究領域中之重要課題。

準相位匹配技術由於應用了晶體中最大的二階非線性係數  $d_{33}$ ，並避免了諧波與基頻波在晶體中傳播的空間離散效應，因此一直被認為是進行非線性頻率轉換的最佳機制。

就非線性頻率轉換用之材料選擇而言，雖然新

式材料如 LBO、BBO、DAST 等已被廣泛應用在商品化倍頻雷射之產生，但由於  $\text{LiNbO}_3$  具有較高的非線性係數以及寬頻 0.3 ~ 5 $\mu\text{m}$  響應，加上其成熟的長晶技術，故其在非線性頻率轉換領域中的地位，就像 Si 在半導體界的地位一般，仍舊是準相位匹配元件製作上較佳的材料選擇。

就週期性結構的製作方式而言，從 1989 年 Lim<sup>4</sup> 以化學擴散式的方法成功地製作波導式 PPLN 結構開始，就陸續有不同的方法被報導出來，如鋰離子的外擴散法、質子交換法、鈦的內擴散法、電子束掃描法、層狀結構長晶控制法等。但這些方法都只能用於製作較淺的反轉區域或生長小面積的結構，因此應用以波導結構為佳<sup>5</sup>。而高電壓式區域反轉的製作方式，則適用於大面積與較深反轉區域的製作。目前商品化的週期性區域反轉非線性晶體，如 Deltronic 所售之 PPLN (Periodic Poled Lithium Niobate)，即是以後者為製程技術。但由於製程技術未臻成熟，所以此類 PPLN 結構僅適用於中遠紅外光波段光參放大器之應用。

## 二、基本原理

一般而言，光在介質中的傳播方程式，可由(1)

及(2)式描述：

$$\nabla^2 E = \mu_0 \varepsilon_0 \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} + \mu_0 \frac{\partial^2 P}{\partial t^2} \quad (1)$$

$$P = \varepsilon_0 \chi E \quad (2)$$

其中電極化率可表為光場之函數

$$\chi = \chi^{(1)} + \chi^{(2)} E + \chi^{(3)} E E + \dots \quad (3)$$

若 $\chi = \chi^{(1)}$ ，則屬於線性光學的範疇，此情形下，輸出光頻率和入射光頻率相同，只會產生折射、色散及傳播損失等現象。而考慮 $\chi^{(2)} E$ 或其他高階項的作用時，便進入非線性光學的領域。頻率轉換的發生主要是由於 $\chi^{(2)}$ 項的作用，通常光學晶體的 $\chi^{(2)}$ 的數量級在 $10^{-12}$  m/V，所以必須在強光場作用下，非線性現象才會顯著。

準相位匹配的概念，就是利用週期性調變材料本身的二階非線性係數 $\chi^{(2)}$ ，以達到補償因色散所造成的相位不匹配。下面筆者將以倍頻轉換為例，簡單描述非線性頻率轉換過程的物理機制，並利用數值模擬的方法，評估此種方式的實用性。

對於倍頻轉換，考慮光束沿 x 方向傳播，其光場 E 可表示成

$$E = \frac{1}{2} \{ E_{\omega} e^{i(\omega t - kx)} + E_{2\omega} e^{i(2\omega t - kx)} + c.c. \} \quad (4)$$

將(4)式代入(1)·(2)式中，且只考慮 $\chi = \chi^{(1)} + \chi^{(2)} E$ ，則在緩慢振幅增益 $\partial^2 E / \partial x^2 \ll k \partial E / \partial x$ 及

無損耗的前提下，可得

$$\frac{\partial E_{\omega}}{\partial x} = \frac{-i}{2k_{\omega}} \left( \frac{\partial^2 E_{\omega}}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 E_{\omega}}{\partial z^2} \right) - \frac{ik_{\omega} d_{eff}(x)}{n_{\omega}^2} E_{2\omega} E_{\omega}^* e^{-i\Delta k x} \quad (5)$$

$$\frac{\partial E_{2\omega}}{\partial x} = \frac{-i}{2k_{2\omega}} \left( \frac{\partial^2 E_{2\omega}}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 E_{2\omega}}{\partial z^2} \right) - \frac{ik_{2\omega} d_{eff}(x)}{n_{2\omega}^2} E_{\omega}^2 e^{i\Delta k x} \quad (6)$$

其中 $d_{eff} = \chi^{(2)}/2$

$$\Delta k = k_{2\omega} - 2k_{\omega} = \frac{2\pi}{\lambda_{2\omega}} (n_{2\omega} - n_{\omega})$$

定義每單位面積的功率為

$$P = \frac{1}{2} \sqrt{\frac{\varepsilon}{\mu_0}} \int \int |E|^2 dy dz \quad (7)$$

在雷射光以高斯波束共焦入射的情況下，可得轉換效率 $\eta$ 為

$$\eta = \frac{P_{2\omega}}{P_{\omega}} = 16\pi^2 \frac{d_{eff}^2 \mu_0 c}{n_{\omega} n_{2\omega} \lambda^3} L P_{\omega} \text{sinc}^2[\Delta k L / 2] \quad (8)$$

由(8)式可知，轉換效率和非線性係數平方、激發光源強度及晶體長度成正比，為了對光束在晶體中的作用過程，有較清楚的了解，筆者採用疊代式有限差分法對此過程進行數值模擬。模擬的過程中，為在簡易及精確中取得平衡點，故採二維的模

擬，假設光場在  $y$  方向上是均勻的，對邊界的計算則採透明邊界法則。而晶體長度的給定，則以本實驗室目前所能製作的最長結構為考量。以入射光波長  $1.064\ \mu\text{m}$ ，強度為  $800\ \text{mW}$ ，晶體長度  $16\text{mm}$  之情況為例，入射光形式如圖 1 所示，模擬所得的二倍頻結果則示於圖 2。

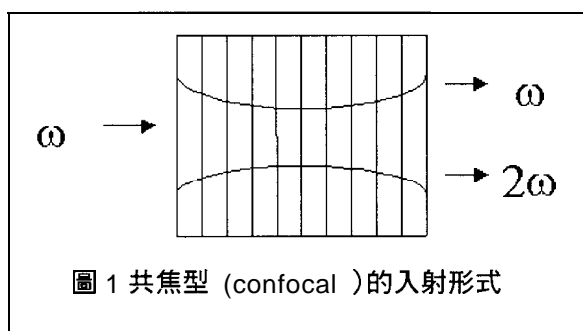


圖 1 共焦型 (confocal) 的入射形式

由模擬結果得知，經晶體作用後所得的二倍頻之強度為  $2.57\ \text{mW}$ 。如此倍頻之光源強度，已具備工業上應用的實用性；而且此 PPLN 屬塊狀結構，在光學量測與分析上，具有操作便利之特性。

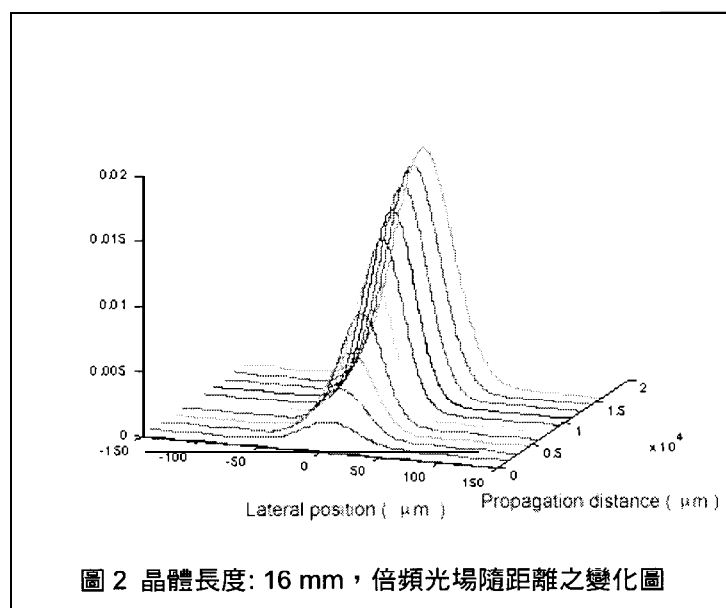


圖 2 晶體長度:  $16\ \text{mm}$ ，倍頻光場隨距離之變化圖

### 三、PPLN 之長晶動力學分析

對於以外加電壓方式造成鐵電性材料區域反轉機制的研究，早在 1954 年 Merz<sup>6</sup> 便由鈦酸鉬 ( $\text{BaTiO}_3$ ) 開始著手進行；而對於鉕酸鋰<sup>7</sup>及鉕酸鋰<sup>8</sup>等具有較佳非線性特性的材料，則直到最近才有初步成果。其主要原因，便是在於後者需要藉助於很高的電場，才能達到區域反轉的目的。這也就是我們為什麼要在製作特殊光柵結構之前，先要了解材料特性及其在高電壓作用下的反應機制。

在鉕酸鋰的晶格結構中，雖然  $\text{Li}^+$  及  $\text{Nb}^{5+}$  之離子半徑大小相近，但由於  $\text{Nb}^{5+} - \text{O}^{2-}$  的鍵結強度大於  $\text{Li}^+ - \text{O}^{2-}$ ，造成在生長上易形成晶格裡的有效原子數  $[\text{Li}]/[\text{Nb}]$  的比例小於 1 的 non-stoichiometry 的結構。因此這種晶體的本質缺陷也比較多，因而造成鉕酸鋰有較大的內建電場。在 1998 年，Gopalan et al.<sup>9</sup> 利用改良式的柴式長晶

法，成功的成長了  $[\text{Li}_2\text{O}] / [\text{Li}_2\text{O}] + [\text{Nb}_2\text{O}_5]$  比例為 0.498 的 stoichiometry 鉕酸鋰晶體，並且發現其幾乎沒有內建電場，更進一步證實了上面的分析。

另外，對於反轉區域形成的機制，一般皆採成核後之擴散模型來描述，藉由在晶片表面形成 nucleation sites，再以這些成核點當作根據地，開始向外擴張。一般而言，平行於晶面方向的傳播速度會遠大於垂直方向（約 1000 倍），因此  $+z$ 、 $-z$  面的圖形會幾乎沒有差異。附帶一提的

是，由於在垂直於晶面方向的各方向擴散速率不盡相同，因此在沒有外界束縛的情況下，易形成滿足晶體之空間點群對稱的特定形狀，如鈦酸鋇的正方形、鉍酸鋰的六角形等。當許多小區域各自形成之後，使進行小區域的合併，最後完成整個區域的反轉。由於進行側擴散所需的能量小於產生成核所需的能量，故一但由起初的成核點所造成之小規模區域反轉區域形成後，側擴散效應便成為反轉的主要機制。

綜合以上對內建電場及反轉機制的分析，我們提出了一套漂移模型<sup>10</sup> (mobility model)，將在高電場作用下，反轉區域之側擴散速度  $v_s$  和外加電場  $E$  的關係描述為

$$v_s = \mu_s [E - (E_{co} \pm E_{int})] \quad \begin{matrix} + : \text{順向} \\ - : \text{反向} \end{matrix} \quad (9)$$

其中  $\mu_s$  為漂移率，在我們的量測範圍中可視為常數，藉此我們可以精確的估算材料內建電場  $E_{int}$  和漂移率  $\mu_s$  之值。

我們之實驗架構圖示於圖 3，此架構可以用來量測材料的內建電場及製作 PPLN 的結構。配合不同大小的區域反轉面積，我們設有不同的電阻分壓裝置，如此可避免晶片在長時間高壓作用下產生介電崩潰的現象。

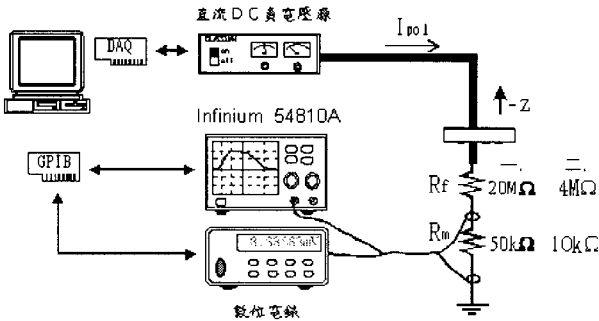


圖3 脈衝式電壓區域反轉架構

圖四為我們對鉍酸鋰進行的量測結果，由於  $v_s$  和反轉時間  $t_s$  成反比，因此我們可以利用實驗上量測之外加順向電場  $E_{cx(f)}$  及反向電場  $E_{cx(r)}$  對反轉時間倒數  $1/t_s$  的關係圖，去推求材料的內建電場以及漂移率。

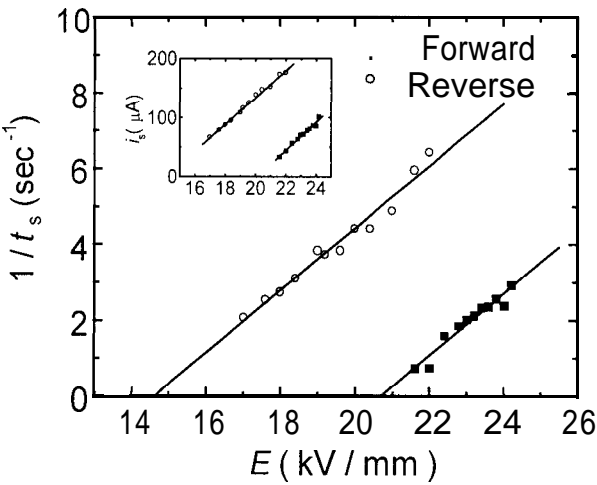


圖 4 高電場作用下，外加電場  $E$  和反轉時間倒數  $1/t_s$  及 poling 峰值電流  $i_p$  的關係圖。

由圖 4 可知，順向及反向 Poling 的兩條直線，在高電場作用區域幾乎平行，利用在相同的順向及反向反轉時間所得對應的電場值  $E_{cx(f)}$  和  $E_{cx(r)}$ ，代入  $E_{int} = (E_{cx(f)} - E_{cx(r)}) / 2$ ，可得內建電場  $E_{int} = 3.04$  kV/mm。另外，利用圖中兩條直線的斜率，可推得

漂移率  $\mu_s$ 。令 O-ring 下反轉區域之半徑為  $R$ ，由  $v_s / R = 1 / t_s$  可知圖形斜率代表  $\mu_s / R$ ，由量得的  $R$  值，可進而推求  $\mu_s = 1.56 \pm 0.05 \text{ mm}^2/\text{kV}\cdot\text{sec}$ 。這裡吾人對  $v_s / R = 1 / t_s$  這個式子加以說明，雖然區域反轉是由 O-ring 下面開始發生的，但採用 Miller 及 Savage 對側擴散速度的量測方式<sup>11</sup>，我們依然可以定義出反轉區域的大小，如下所述

$$v_s = \frac{\text{最大反轉區域的半徑}}{\text{反轉所需時間}} \quad (9)$$

因為我們使用的是直流電壓源，因此改採反轉時間當成分母，而  $R$  的大小，則在蝕刻後，由表面深度測厚儀來量測。

再者，由量測之峰值電流  $i_p$  和外加電場  $E$  的關係圖 (4)，可明顯看出不論順向或反向 Poling，在高電場作用下，兩者皆呈現線性關係。理論上，反轉電荷  $Q$  和  $t_s$  及  $i_p$  之關係，有如 (10) 式的形式<sup>12</sup>：

$$Q = 2P_s \cdot A = t_s \cdot i_p \cdot f \quad f = 0.5-1 \quad (10)$$

式中  $f$  的大小，由電流形狀來決定。(三角形  $f = 0.5$ ，矩形  $f = 1$ ) 在比較多次 Poling 電流的結果後，我們發現順向 Poling 電流的形式大致相同，不會隨外加電場  $E$  之改變而有所變化，反向 Poling 亦然。又在本實驗量測過程中， $Q$  始終保持定值，

因此可推知  $i_p \propto 1 / t_s$ 。綜合前述漂移模型所得  $1 / t_s$  和  $E$  呈線性關係的結果，便可得知  $i_p$  應和  $E$  呈線性關係。由上面相互呼應之論述與實驗的結果，吾人可知，漂移理論適足以提供一個清晰而又簡明之區域反轉的動力學模型。

在了解鐵電性材料的反轉動力學之後，對於製作週期性的光柵結構，仍有許多製程上的研究需要進行，如電極材料的選擇、電極的週期設計等，這也就是適用於可見光波段倍頻轉換之小週期結構，直到最近才被史丹福大學成功報導的主要原因<sup>13</sup>。圖 5 所示為本實驗室所研製之週期為  $10 \mu\text{m}$  的 PPLN 呈像照片。

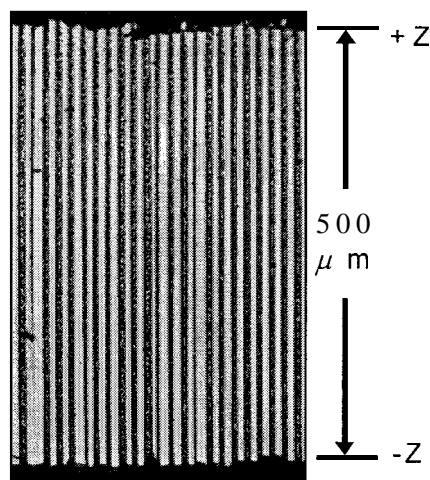


圖 5 週期  $10 \mu\text{m}$  之 PPLN 蝕刻後的 +y 面呈像圖

#### 四、PPLN 之應用

PPLN 可應用於製作高功率的藍綠光源以及中遠紅外光波段的寬頻可調雷射光源，其中藍綠光源的產生是非線性頻率轉換中的和頻原理，而中遠紅外光寬頻光源的產生則是利用差頻原理。隨著雷射

工業的蓬勃發展，對各個波段的雷射光源的需求量也與日俱增，不論在醫療、環保、遙測、監控或資料存取方面，都需要適當雷射光源的支援。藉助於 PPLN 結構，不但可以彌補現有雷射光源頻譜的斷續不足，對於雷射的輸出功率也可得到大幅提升，因此，截至目前為止，國外已有許多知名的學術機構，投入這個領域的研究，較具成果的有南京大學的閻乃本教授研究群、史丹福大學 Prof. R. L. Byer & M. M. Fejer 之研究群、University of Southampton、日本的 Sony 及 Osaka University。至於利用 PPLN 製作連續可調光參振器 (OPO) 則早在 1997 年就有商品問世，但只局限於適用於中遠紅外光波段的大週期結構 ( $2l_c > 15 \mu\text{m}$ )。1998 年 11 月號的 Laser Focus World 上更報導當今數家公司以連續波半導體雷射激發 PPLN 晶體，產生 3~5 $\mu\text{m}$  寬頻可調雷射光源的光參振盪器。

筆者認為，雖然 PPLN 的製程技術至今已有長足的進步，但隨其應用日廣，本土化 PPLN 的研發技術必須要建立起來，如此方能在競爭激烈之科學研究與技術應用層面上，保有我國學界與業界的一席之地。

## 五、誌謝

本文感謝台大電機系/光電所王維新教授及台大積體光學實驗室與固態電子實驗室在製程設備上之協助。

## 參考文獻

1. T. H. Maiman, **Nature** **187**, p. 493 (1960)
2. P. A. Franken, A. E. Hill, C. W. Peters, and G. Weinreich, **Phys. Rev. Lett.** **7**, p. 118 (1961)
3. J. A. Armstrong, N. Blombergen, J. Ducuing, and P. S. Pershan, **Phys. Rev.** **127**, p. 1918 (1962)
4. E. J. Lim, M. M. Fejer, R. L. Byer, and W. J. Kozlovsky, **Electron. Lett.** **25**, p. 731-732 (1989)
5. Yu-Pin Liao, Der-Jung Chen, Ruei-Chang Lu, and Way-Seen Wang, **IEEE Photonics Tech. Lett.** **8**, p. 548 (1996)
6. W. J. Merz, **Phys. Rev.** **95**, p. 690 (1954)
7. V. Gopalan and M. C. Gupta, **Ferroelectrics** **198**, p. 49 (1997)
8. V. Gopalan and T. E. Mitchell, **J. Appl. Phys.** **83**, p. 941 (1998)
9. V. Gopalan and T. E. Mitchell, **Appl. Phys. Lett.** **72**, p. 1981 (1998)
10. L.-H. Peng, Y.-C. Fang, and Y.-C. Lin, **Appl. Phys. Lett.** **74**, p. 2070 (1999)
11. R. C. Miller and A. Savage, **Phys. Rev.** **115**, p. 1176 (1959)
12. E. Fatuzzo and W. J. Merz, **Phys. Rev.** **116**, p. 61 (1959)
13. G. D. Miller, R. G. Batchko, W. M. Tulloch et al., **Optical Lett.** **22**, p. 1834 (1997)