

铌酸锂薄膜波导上二次谐波产生中的色散分析

董海阳^{1*}, 赵志超^{1,2}, 孙楠楠¹, 赵翠莲¹

(1. 河北水利电力学院 物理教研室, 河北 沧州 061001;

2. 河北省数据中心相变热管理技术创新中心, 河北 沧州 061001)

摘要: 基于绝缘体上铌酸锂平台, 设计了周期极化的铌酸锂薄膜波导结构, 利用铌酸锂良好的非线性性质并结合灵活的相位匹配方案, 分析了结构色散对极化周期的影响。此外, 借助波导模式有效折射率随温度变化的不同, 通过改变材料温度, 有效扩展了频率转换的带宽, 实现了 1.5 ~ 1.6 μm 范围内的倍频, 最终获得 562% 的归一化转换效率, 为芯片光子学参量转换的进一步研究提供了理论基础。

关键词: 铌酸锂薄膜; 频率转换; 色散; 相位匹配; 温度

中图分类号: O437.1

文献标识码: A

Dispersion analysis of second harmonic generation in lithium niobate thin film waveguide

DONG Hai-Yang^{1*}, ZHAO Zhi-Chao^{1,2}, SUN Nan-Nan¹, ZHAO Cui-Lian¹

(1. Department of physics, Hebei University of Water Resources and Electric Engineering, Cangzhou 061001, China;

2. Hebei Technology Innovation Center of Phase Change Thermal Management of Data Center, Cangzhou 061001, China)

Abstract: Based on the platform of lithium niobate on insulator, a periodically poled lithium niobate thin film waveguide structure was designed. By utilizing the excellent nonlinear properties of lithium niobate combined with flexible phase matching schemes, the influences of structural dispersion on the poling period were analyzed. In addition, the difference in effective refractive index of waveguide mode varied with temperature was employed. The bandwidth of frequency conversion is expanded effectively by changing the material temperature, achieving the double-frequency in the range of 1.5 μm to 1.6 μm . Finally a normalized conversion efficiency of 562% is obtained, which provides a theoretical basis for further research on parametric conversion of chip photonics.

Key words: lithium niobate thin film, frequency conversion, dispersion, phase matching, temperature

引言

20 世纪 60 年代, 激光器的问世^[1]引发了光学领域的革命, 开启了非线性光学的新纪元, 之后和频^[2]、倍频^[3]、四波混频^[4]等频率转换研究层出不穷。铌酸锂 (Lithium Niobate, LN) 晶体因其较宽的光学窗口, 良好的声光、电光及非线性性质, 被称为“光学硅”^[5], 广泛应用于激光光学的研究中。对于传统

的谐波产生方法——铌酸锂块状晶体或质子交换波导来说, 过大的几何尺寸或较低的转换效率都严重阻碍了集成光学的发展。近年来, 绝缘体上铌酸锂 (Lithium Niobate On Insulator, LNOI) 薄膜以其亚波长量级的截面尺寸, 较强的模式束缚及较高的光子密度而得到科研人员的青睐。借助铌酸锂材料的优良性质, 诸多光学过程得以高效实现, 小型化、

收稿日期: 2022-10-09, 修回日期: 2023-02-14

Received date: 2022-10-09, Revised date: 2023-02-14

基金项目: 河北水利电力学院基本科研业务费专项资金 (SYKY2127)、沧州市自然科学基金面上项目 (204001001)

Foundation items: Supported by the Fundamental Research Funds for the Hebei University of Water Resources and Electric Engineering (SYKY2127), Natural Science Foundation of Cangzhou City (204001001)

作者简介 (Biography): 董海阳 (1994-), 女, 河北邢台人, 讲师, 硕士, 主要从事集成非线性光学方面研究。

* 通讯作者 (Corresponding author): E-mail: hydong2021@163.com

集成化光学器件如光学微腔^[6]、电光调制器^[7]、声光调制器^[8]、光栅耦合器^[9]等获得迅猛发展,非线性过程研究如光参量振荡^[10]、光频梳^[11]、超连续谱产生^[12]等也呈井喷状态。

2017年,Wang等人^[13]率先利用波导的色散性质,通过调节波导结构实现了芯片上的二次谐波产生。不过,模式匹配过程中存在的非线性系数小、模式交叠面积小等问题降低了转换效率。之后,Chen等人^[14]采用准相位匹配的方法对LN薄膜进行周期极化进而实现频率转换,但五阶的相位匹配过程也严重降低了转换效率。与此同时,Luo等人^[15]为提高倍频波长的可调节性,采用I类相位匹配实现了宽带倍频,但此过程较小的非线性系数也降低了倍频的效率。借助非线性光栅结构,Nitiss等人^[16]在全光极化的Si₃N₄波导上实现了宽带的倍频产生,而材料自身较小的非线性系数阻碍了高效转换的进程。

为充分利用LN材料的非线性性质,同时提高参量转换效率,本文采用三阶准相位匹配的方法,从多角度分析影响通讯波段光倍频过程的因素,为后续的实验研究提供理论依据。

1 波导设计

本文采用如图1(a)所示的LNOI结构,为充分利用材料的最大非线性系数 d_{33} ,同时获得较大的模式交叠面积,选用Z-cut LNOI薄膜,上方宽度 w 为1 μm ,厚度 h 为800 nm,刻蚀角 θ 为60°。考虑到 e 光在信息光学、量子光学等方面的应用更为广泛,重点关注 e 光(波导的quasi-TM模式)的生成。

首先分析基频波及倍频波的基模在波导横截面的分布情况,如图1(b)、(c)所示,图中箭头表示光的偏振方向。可以看到,所有模式都很好地限制在波导中,说明该结构有良好的束缚性。相比之下,图1(c)所示的775 nm处TM₀模式有效折射率(Effective Refractive Index, n_{eff})较大,主要是由LN材料的正常色散引起,频率越高折射率越大;其模式面积比1550 nm要小,说明波导对高频波的限制性更好。另外二者的 n_{eff} 不相等,而这会严重影响频率转换的效率,故本文采用准相位匹配方法以实现高效的频率转换。

根据准相位匹配理论,对于 m 阶相位匹配,其波矢失配量可表示为:

$$\Delta k = k_2 - 2k_1 - k_m = k_2 - 2k_1 - \frac{m2\pi}{\Lambda}, \quad (1)$$

式中 $k_i = \frac{2\pi n_{\text{eff}_i}}{\lambda_j}$ ($i = 1, 2; j = \omega, 2\omega$), k_i, λ_j 分别为基频波与倍频波的波矢与波长, n_{eff_i} 为相应波的有效折射率; m 为倒格矢阶数,且 m 为奇数; Λ 为极化周期。当 $\Delta k = 0$ 时,即满足相位匹配条件时,可得极化周期为:

$$\Lambda = \frac{m\lambda_\omega}{2(n_{\text{eff}_{2\omega}} - n_{\text{eff}_\omega})}, \quad (2)$$

一般来说,当 $m = 1$ 时有最高转换效率。

根据文献[17],归一化转换效率可表示为:

$$\eta_{\text{nor}} = \frac{2\omega^2(\chi^{(2)})^2}{\varepsilon_0 c^3 n_{\text{eff}_{2\omega}} n_{\text{eff}_\omega}^2 S_{\text{eff}}} \sin^2\left(\frac{\Delta k L}{2}\right), \quad (3)$$

式中 ω 是基频波频率, $\chi^{(2)}$ 是二阶极化率, ε_0 是真空中介电常数, c 是真空中光速, L 为波导长度;

$$S_{\text{eff}} = \frac{\left[\iint E_\omega^2(x, y) dx dy \right]^2 \iint E_{2\omega}^2(x, y) dx dy}{\left[\iint d(x, y) E_\omega^2(x, y) E_{2\omega} dx dy \right]^2}$$

是基频波

与倍频波在波导中的交叠面积, $E_j(x, y)$ 是相应频率模式的电场在波导横截面的分布, $d(x, y)$ 是归一化的非线性系数。由于波导的横截面积一般很小,其归一化效率通常较高。

不同于体块材料,波导的 n_{eff} 不仅与材料有关,还与自身结构及模式相关。因此,极化周期会随结构参数的变化而改变。下面可以看到,我们的模拟结果与理论分析具有非常好的一致性。

2 结果分析与讨论

2.1 结构色散对极化周期的影响

如图2(a)所示,把不同匹配方案下的参数代入方程(2)即得对应的极化周期。对于LN材料(负单轴晶体)来说, $n_{o_{2\omega}} > n_{e_{2\omega}} > n_{o_\omega} > n_{e_\omega}$,因此在波导中采用 $o + o \rightarrow e$ 型匹配时, n_{eff} 之差较小,可得到较大的极化周期,一阶极化即可;而对于 $e + e \rightarrow e$ 匹配来说,较大的 n_{eff} 差值得到了4 μm 左右较小的极化周期,这样的小周期对实际加工仍存在挑战,故本文采用3阶极化,即 $m = 3$ 。最终周期随薄膜高度变化如图2(b)所示。经周期扩展后,实际加工问题便迎刃而解。

进一步分析图2(b)可以发现,极化周期随波导厚度的增加呈线性增加。两种匹配类型下周期的变化速率大致相等,以 $e + e \rightarrow e$ 为例进行分析。如图2(c)所示,其图像斜率为15.1,即波导高度每改变1 nm会引起极化周期变化15.1 nm,而每

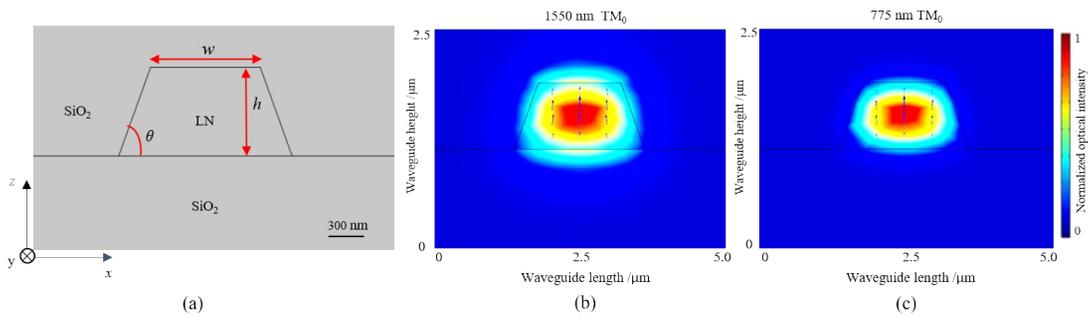


图1 (a) LNOI薄膜波导横截面示意图, (b) & (c)分别为基频波和倍频波光场的归一化分布

Fig. 1 (a) Cross-section schematic of the LNOI thin film waveguide, (b) & (c) the normalized distribution of optical fields at the fundamental frequency and the second harmonic frequency, respectively

单位宽度变化引起的偏差为 3.3 nm, 由此知极化周期对波导高度有较强的依赖性。从理论的角度来说, 当薄膜厚度增加时, 限制在波导中的光面积将会增加, 波导的结构色散使得其 n_{eff} 随之增加; 而同时 LNOI 薄膜具有材料色散, 基频波与倍频波的 n_{eff} 随波导厚度增加速率不同, 最终导致极化周期改变。同样, $o + o \rightarrow e$ 匹配的极化周期也会相应变化。

上述极化周期的变化主要来源于 LNOI 薄膜的材料色散和波导的结构色散, 而在该结构中, 还存在温度变化所引起的色散。以下重点分析 TE_0 和 TM_0 模式的热光效应。

2.2 波导的热光效应

众所周知, 波导中不同模式的 n_{eff} 一般不同, 其随温度变化情况也不尽相同。如图 3 所示, 随着温度的升高, 基频波 TE_0 和 TM_0 模式的 n_{eff} 均呈线性增加, 这与基于温度的 Sellmeier 方程^[18] 符合得很好。图中的 n_{eff} 随温度变化较慢——在 10^{-4} 量级, 不过两

个模式的变化率有所不同, 图 3(a) 表示的 TM_0 模式为图 3(b) 中 TE_0 模式的 2.2 倍, 倍频波 TM_0 模式也呈类似变化。根据方程 (2), n_{eff} 的非同步变化会导致极化周期的改变, 对特定波长来说会引起相位失配, 这将严重降低非线性参量过程的转换效率。而另一方面, 对于已确定的极化周期, n_{eff} 的变化则对应相位匹配波长的移动, 因此可通过波导的温度调节, 改变相应的匹配波长, 实现宽频范围的二次谐波产生。

图 4(a) 展示了 $e + e \rightarrow e$ 匹配下, 不同温度时极化周期与波长之间的关系。可以看到, 随着波长的增加, 极化周期先增大后减小, 这主要是 LNOI 薄膜的材料色散和模式色散所引起。根据 Sellmeier 方程^[18], LNOI 薄膜的 n_{eff} 随波长的增加而减小, 而同时随温度的升高而增加。此处二者并非单调性变化, 从而引起极化周期的不规则改变。而对于 $o + o \rightarrow e$ 匹配如图 4(b), 尽管还存在着上述两种色散, 但由于 TE_0 与 TM_0 模式随温度变化的差异, 其极化周

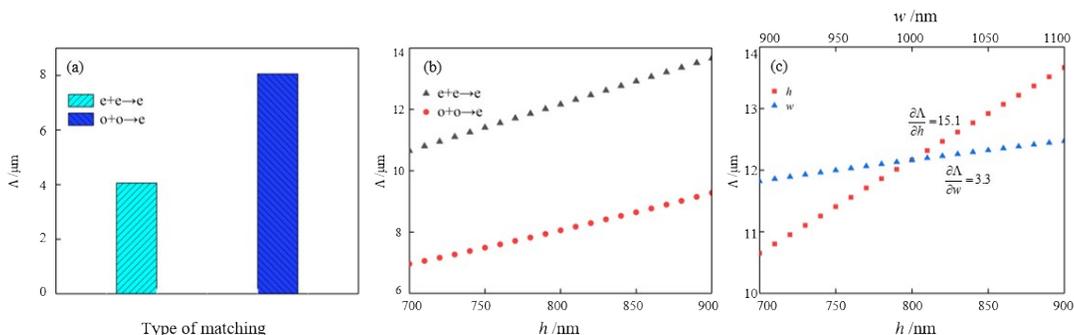


图2 (a)不同相位匹配类型的极化周期, (b) $e + e \rightarrow e$ 匹配的三阶极化周期与 $o + o \rightarrow e$ 匹配的一阶极化周期随波导高度的变化, (c) LNOI 薄膜宽度和高度与极化周期关系

Fig. 2 (a) The poling period of different types of phase matching, (b) the vibration of the third-order poling period of $e + e \rightarrow e$ matching and the first-order poling period of $o + o \rightarrow e$ matching with the height of waveguide, (c) the relationship between the width and height of LNOI thin film and the poling period.

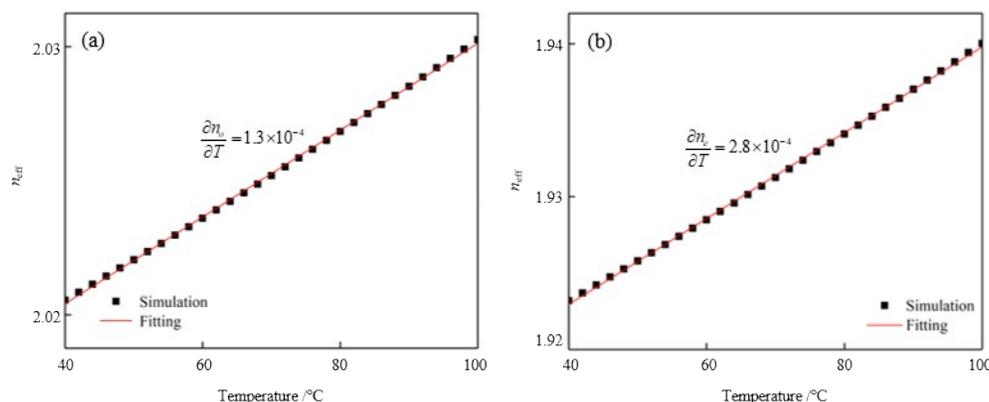


图3 LNOI波导模式在1550 nm波长时 n_{eff} 随温度的变化, (a) TE_0 , (b) TM_0

Fig. 3 The n_{eff} of LNOI waveguide modes changed with temperature at 1550 nm wavelength, (a) TE_0 , (b) TM_0

期的变化也与上述不同,随波长呈线性减少。

对于确定的极化周期,可以提取不同温度下的匹配波长,在扩展频率转换范围的同时也提高了样品使用率。考虑到室温下样品温度受环境影响较大,本文分析70 °C附近的热光变化。如图4(c)所示, $e + e \rightarrow e$ 下的匹配波长与温度呈非线性关系,温度的微小差异会引起匹配波长的快速漂移。相比之下,图4(d)中所示的 $o + o \rightarrow e$ 匹配波长则是线性变化,温度每升高1 °C,匹配波长蓝移5.7 nm,利用这种线性关系,在实验中可根据所需匹配波长进行精准的温度调节。Luo等人^[15]利用模式相位匹配的方法,通过温度调节,已在实验中实现18 °C到90 °C(对应1 559 ~1 620 nm波段)内的二次谐波产生,相位匹配波长随温度的变化为0.8 nm/K,该结果充分说明温度调节可以有效实现倍频波段的展宽。本文的相位匹配波长偏移量是上述结果的7倍,因此频率调节范围更为广泛。

值得一提的是,两种匹配方式下匹配波长随温度的变化趋势是相反的,根据Nitiss等人^[16]的分析,这种不同来自于各自群速度失配的差异。对于同一波导来说,其几何色散是一致的,因此,此处群速度失配的差异来自于 n_{eff} 随模式变化的不同,即模式色散引起。对于 $o + o \rightarrow e$ 匹配, $\partial\lambda/\partial T = -5.7 < 0$,说明波导中 $\frac{\partial n_{o\omega}}{\partial\omega} < \frac{\partial n_{e2\omega}}{\partial\omega}$,即基频波 TE_0 模式小于倍频波 TM_0 模式的色散,这与理论符合得很好。可见,相对于体块材料,在波导倍频过程中可调节结构、模式、温度等更丰富的自由度,实现更为灵活的倍频过程。

最后来看不同匹配方式的频率转换效率。经过上述热光变化分析, $o + o \rightarrow e$ 匹配方式下实验精

度更高,不过此方法的非线性系数 d_{31} 较小,根据方程(3)其最终转换效率并不是很高,如图5(b)所示约为155%。相较而言, $e + e \rightarrow e$ 的倍频过程利用了LN的最大非线性系数 d_{33} ,其转换效率较高约为562%。图5同时展示了不同温度下的归一化转换效率,尤其是图5(b)的 $o + o \rightarrow e$ 匹配,在1.5 μm 到1.6 μm 的超宽波长范围内效率曲线都保持了很好的 sinc^2 轮廓。随着温度的升高, $e + e \rightarrow e$ 匹配曲线出现了匹配波长的红移,而 $o + o \rightarrow e$ 匹配为波长的蓝移,这与上述热光效应得到的结论一致。

值得注意的是,相较于70 °C的效率曲线,其他曲线的效率均出现近一倍的下降,这主要是在温度改变后,对应匹配波长的模式面积较大,导致了转换效率的降低。下面作具体分析。对于图5(a)来说,温度降低导致模式的 n_{eff} 减小,对光的束缚能力下降,因此,模式面积变大,图5(b)的低温部分也是同样的原因。而对于高温部分,温度升高使 n_{eff} 变大,但同时匹配波长的蓝移降低了 n_{eff} 。由图(3)的结果可知,温度对折射率的影响较小,当温度和频率同时改变时,频率对 n_{eff} 的影响占主导地位,故而在高温部分 n_{eff} 依然较小,导致较大的模式面积,并最终引起转换效率的降低。

总体来说,两种匹配方案的转换效率都远高于体块材料,本文所设计的波导结构可以有效实现二次谐波的产生。目前,Z-cut LN薄膜波导结构的加工技术已经比较成熟,不仅可以直接在薄膜上进行周期极化^[19],也可以在体块材料周期极化后通过 He^+ 注入获取薄膜^[14],两种加工方法都已被广泛应用。随着波导传输损耗的日益降低^[14-15,19],频率转换效率将进一步提高,我们也将尽快通过实验对本文的理论分析进行验证。

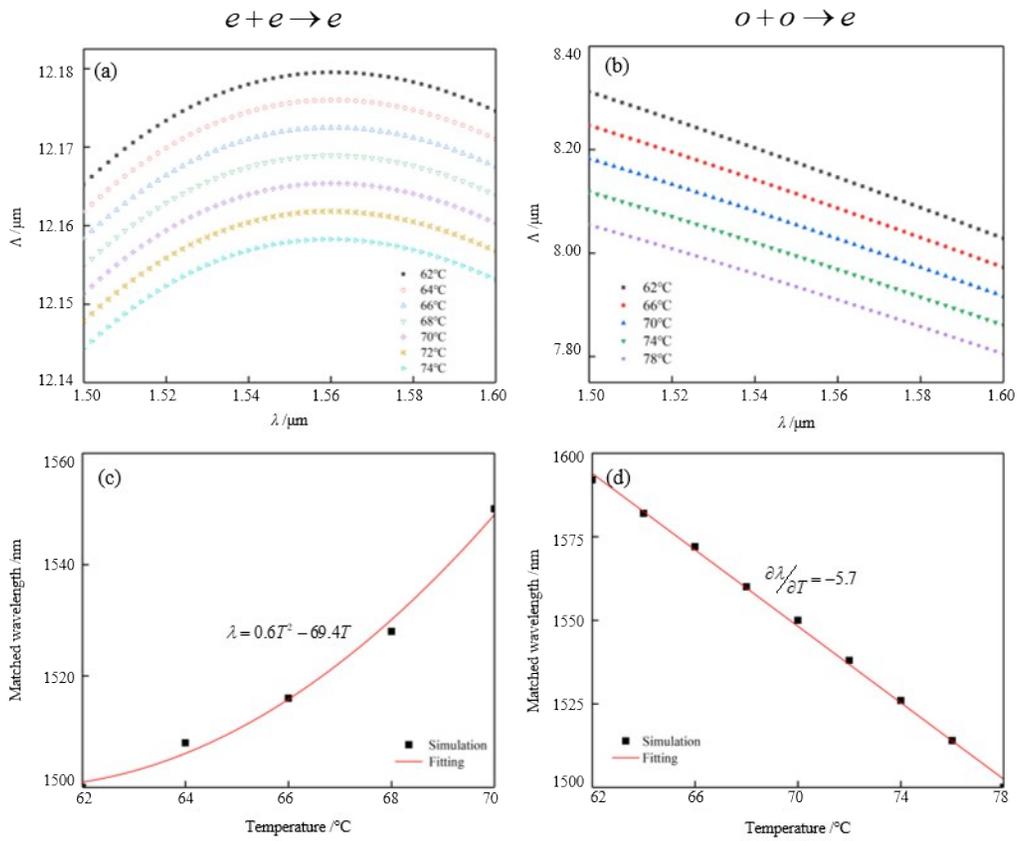


图4 不同相位匹配类型的仿真结果,(a)(b)为不同温度下的极化周期与波长的关系,(c)(d)为特定极化周期时温度随匹配波长的变化

Fig. 4 Simulation results of different types of phase matching, (a) & (b) the relationship between the poling period and wavelength at different temperatures, (c) & (d) the temperature changed with the matched wavelength under the specific poling period

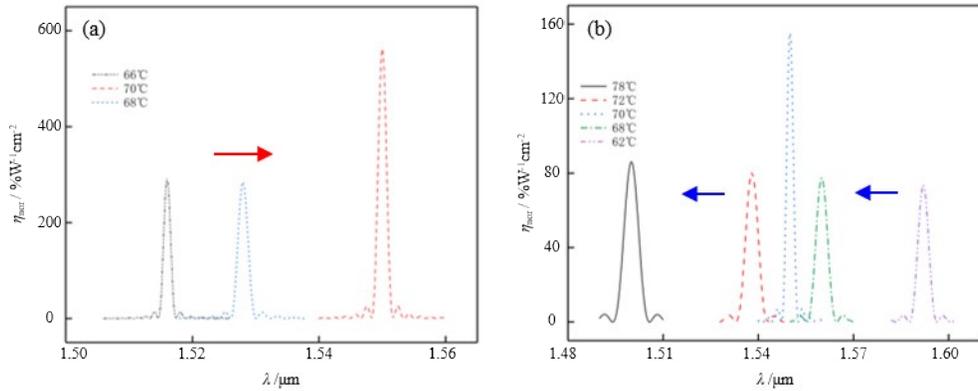


图5 不同温度的归一化转换效率,(a) $e + e \rightarrow e$ 匹配,(b) $o + o \rightarrow e$ 匹配

Fig. 5 The normalized converting efficiency at different temperatures, (a) $e + e \rightarrow e$ matching, (b) $o + o \rightarrow e$ matching

3 结论

本文基于LNOI平台,主要对通讯波段1 550 nm处的倍频过程进行了研究。设计了可以充分限制基频波与倍频波模式的波导结构,倍频波因其较大的 n_{eff} 获得更好的限制;讨论了 $e + e \rightarrow e$ 及 $o + o \rightarrow e$ 匹配方案下的极化周期,三阶周期极化为 $e +$

$e \rightarrow e$ 匹配的实际应用拓展了空间;分析了波导结构色散对极化周期的影响,结果表明薄膜厚度对周期的影响较大。进一步地,利用LNOI波导中模式色散及热光效应,获得不同温度下的匹配波长,相位匹配点随温度的变化为 $-5.7 \text{ nm}/^\circ\text{C}$,据此实现了1.5~1.6 μm 超宽波段内的频率转换,并得到562%

的归一化转换效率。这对 LNOI 薄膜波导研究的进一步深入、LNOI 微腔优质单光子源的获得, 都具有重要意义。

References

- [1] Maiman T H. Stimulated Optical Radiation in Ruby [J]. *Nature*, 1960, **187**(4736): 493–494.
- [2] Ye X, Liu S, Chen Y, *et al.* Sum-frequency generation in lithium-niobate-on-insulator microdisk via modal phase matching[J]. *Optics Letters*, 2020, **45**(2): 523–526.
- [3] Jankowski M, Langrock C, Desiatov B, *et al.* Ultrabroadband nonlinear optics in nanophotonic periodically poled lithium niobate waveguides [J]. *Optica*, 2020, **7** (1) : 40–46.
- [4] Liu S, Zheng Y, Fang Z, *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.
- [5] Kösters M, Sturman B, Werheit P, *et al.* Optical cleaning of congruent lithium niobate crystals[J]. *Nature Photonics*, 2009, **3**(9): 510–513.
- [6] Sun X, Liang H, Luo R, *et al.* Nonlinear optical oscillation dynamics in high-Q lithium niobate microresonators [J]. *Optics express*, 2017, **25**(12): 13504–13516.
- [7] Wang C, Zhang M, Stern B, *et al.* Nanophotonic lithium niobate electro-optic modulators[J]. *Optics express*, 2018, **26** (2): 1547–1555.
- [8] Cai L, Mahmoud A, Piazza G. Low-loss waveguides on Y-cut thin film lithium niobate: towards acousto-optic applications[J]. *Optics express*, 2019, **27**(7): 9794–9802.
- [9] Chen Z, Wang Y, Jiang Y, *et al.* Grating coupler on single-crystal lithium niobate thin film [J]. *Optical Materials*, 2017, **72**: 136–139.
- [10] Lu J, Al Sayem A, Gong Z, *et al.* Ultralow-threshold thin-film lithium niobate optical parametric oscillator [J]. *Optica*, 2021, **8**(4): 539–544.
- [11] Xu M, He M, Cai X. Generation of flat optical frequency comb using integrated cascaded lithium niobate modulators [C]//2020 Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO). IEEE, 2020: 1–2.
- [12] Lu J, Surya J B, Liu X, *et al.* Octave-spanning supercontinuum generation in nanoscale lithium niobate waveguides [J]. *Optics letters*, 2019, **44**(6): 1492–1495.
- [13] 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.
- [14] GE L C, CHEN Y P, JIANG H W, *et al.* Broadband quasi-phase matching in a MgO:PPLN thin film [J]. *Photonics Research*, 2018, **6**(10): 954–958.
- [15] Luo R, He Y, Liang H, *et al.* Highly-tunable efficient second-harmonic generation in a lithium niobate nanophotonic waveguide [J]. *Optica*, 2018, **5**(8): 1006–1011.
- [16] Nitiss E, Zabelich B, Yakar O, *et al.* Broadband quasi-phase-matching in dispersion-engineered all-optically poled silicon nitride waveguides [J]. *Photonics Research*, 2020, **8**(9): 1475–1483.
- [17] Chang L, Li Y, Volet N, *et al.* Thin film wavelength converters for photonic integrated circuits [J]. *Optica*, 2016, **3**(5): 531–535.
- [18] Gayer O, Sacks Z, Galun E, *et al.* Temperature and wavelength dependent refractive index equations for MgO-doped congruent and stoichiometric LiNbO₃ [J]. *Applied Physics B*, 2008, **91**: 343–348.
- [19] Chen J Y, Tang C, Ma Z H, *et al.* Efficient and highly tunable second-harmonic generation in Z-cut periodically poled lithium niobate nanowaveguides [J]. *Optics Letters*, 2020, **45**(13): 3789–3792.