



Università degli studi di Palermo

FACOLTÀ DI INGEGNERIA

Dipartimento di Ingegneria Elettrica, Elettronica e delle Telecomunicazioni
di tecnologie Chimiche, Automatica e modelli Matematici

Dottorato in Ingegneria Elettronica e delle Telecomunicazioni
-XXIII Ciclo-

Settore disciplinare ING-INF/01 Elettronica

TESI DI DOTTORATO

Elaborazione parametrica di segnali ottici

Candidato

Ing. Luciano Curcio

Tutor

Ch.mo Prof. Alessandro C. Busacca

Coordinatore

Ch.mo Prof. Giovanni Garbo

Triennio 2009-2011

Università degli Studi di Palermo

XXIII Ciclo del Dottorato in Ingegneria Elettronica e delle
Telecomunicazioni

Elaborazione parametrica di segnali ottici
Tesi di dottorato dell' Ing. Luciano Curcio

Tutor	<i>Ch.mo Prof. Alessandro C. Busacca</i>
--------------	--

SOMMARIO

Questa tesi presenta una panoramica dell'attività di ricerca da me svolta in questo triennio di dottorato, avente come oggetto la progettazione, la fabbricazione e la caratterizzazione di dispositivi non lineari in ottica integrata per l'elaborazione parametrica dei segnali. Gli aspetti funzionali di questi dispositivi, le proprietà non lineari del secondo ordine dei materiali di cui sono composti così come i risultati dei processi di fabbricazione necessitano di un'analisi teorica approfondita che ne consenta l'effettiva applicazione alle comunicazioni ottiche.

Il **primo capitolo** è un'attenta disamina del metodo del *Quasi-Phase-Matching* mediante il quale si ha l'implementazione del fenomeno di generazione efficiente e il mantenimento della radiazione elettromagnetica di seconda armonica all'interno di un mezzo non lineare.

Il **secondo capitolo** tratta della teoria e della tecnica dei complessi processi fisici che governano il *bulk* e *surface poling* nei cristalli di Niobato e di Tantalato Litio.

Nel **terzo capitolo** si descrivono le caratteristiche peculiari del *Surface Periodic Poling* e si riportano i risultati conseguiti nell'indagine, effettuata mediante **diffrazione di raggi X**, di strutture periodiche fabbricate con questa tecnica. L'analisi strumentale è focalizzata sulla periodicità e sull'uniformità dei reticoli sub-micrometrici implementati.

Il **quarto capitolo** descrive le fasi di progettazione, fabbricazione e caratterizzazione di un dispositivo costruito per la **generazione di seconda armonica in configurazione retro-propagante**. Trattandosi di un fenomeno estremamente difficile da esaminare, lo studio ed il lavoro di ricerca si sono concentrati principalmente sugli aspetti di

fabbricazione e di caratterizzazione del componente, portando a risultati originali, ed interessanti soprattutto da un punto di vista fisico.

Nel **quinto capitolo** si descrivono i passi tecnologici che hanno portato alla costruzione di un dispositivo per il *random Quasi-Phase-Matching* e si discute delle misure realizzate durante le osservazioni sperimentali in *bulk* ed in guida d'onda planare, cercando di darne una spiegazione chiara e, per quanto possibile, dettagliata alla luce della caratterizzazione del dispositivo stesso. L'approccio seguito, oltre ad essere estremamente utile per svariate applicazioni, permette, al contempo, di evidenziare interessanti proprietà fisiche proprie di questo processo.

Nel **sesto ed ultimo capitolo**, infine, viene presentato, per la prima volta, un *frequency shifter* in guida d'onda a canale per scambio protonico in fase α , su substrato di Tantalato di Litio con *poling* periodico, in grado di confinare la radiazione elettromagnetica e permettere la conversione parametrica a due stadi in cascata (Generazione di Seconda Armonica-Generazione di Frequenza Differenza) operante nel *range* della banda C delle telecomunicazioni ottiche.

INDICE

SOMMARIO.....	II
INDICE.....	IV
ELENCO DELLE PUBBLICAZIONI DEL TRIENNIO 2009-2011	VII
RINGRAZIAMENTI	XI
INTRODUZIONE	1
CAPITOLO 1.....	4
IL <i>QUASI-PHASE-MATCHING</i>	4
1.1 INTRODUZIONE.....	4
1.2 L'ACCORDO DI FASE.....	5
1.3 TEORIA DEL <i>QPM</i>	9
1.4 L'EFFICIENZA DI CONVERSIONE.....	13
1.5 PARAMETRI CHE INFLUISCONO SULLA CONDIZIONE DI SINCRONISMO.....	16
1.6 CONFIGURAZIONI DI <i>QPM</i>	19
1.7 LA CONFIGURAZIONE RETRO-PROPAGANTE (<i>BQPM</i>)	21
1.8 CONFRONTO TRA <i>FQPM</i> E <i>BQPM</i>	24
1.9 MATERIALI E TECNOLOGIE PER IL <i>QPM</i>	26
1.10 CONCLUSIONI.....	28
1.11 RIFERIMENTI BIBLIOGRAFICI	29
CAPITOLO 2.....	33
IL <i>POLING</i> DEL NIOBATO E DEL TANTALATO DI LITIO	33
2.1 INTRODUZIONE.....	33
2.2 LA POLARIZZAZIONE E L'ISTERESI FERROELETTRICA.....	33
2.2.1 LA POLARIZZAZIONE E L'ISTERESI FERROELETTRICA NEL <i>CLT</i> E NEL <i>SLT</i>	34
2.2.2 LA POLARIZZAZIONE E L'ISTERESI FERROELETTRICA NEL <i>CLT</i> E NEL <i>CLN</i>	36
2.3 IL <i>BULK POLING</i> INDOTTO DA CAMPO ELETTRICO	38
2.4 IL MODELLO DEL <i>BULK POLING</i>	40
2.5 CINETICA DEI DOMINI FERROELETTRICI: STUDI DETTAGLIATI SUL NIOBATO ED IL TANTALATO DI LITIO	49
2.5.1 MECCANISMI DI EVOLUZIONE DELLA STRUTTURA DEI DOMINI	49
2.5.2 MOVIMENTO LATERALE DELLE PARETI DEI DOMINI	54
2.6 CRESCITA DEI DOMINI ISOLATI.....	59
2.6.1 DOMINI A FORMA ESAGONALE.....	59
2.6.2 DOMINI A FORMA TRIANGOLARE.....	60

2.6.3 DOMINI A FORMA DI RAGNATELA	61
2.7 CONCLUSIONI.....	62
2.8 RIFERIMENTI BIBLIOGRAFICI	63
CAPITOLO 3.....	68
TECNICA DEL <i>SURFACE PERIODIC POLING</i> E CARATTERIZZAZIONE MEDIANTE DIFFRAZIONE DI RAGGI X DI STRUTTURE	
PERIODICHE SUB-MICROMETRICHE REALIZZATE CON TALE TECNOLOGIA.....	
3.1 INTRODUZIONE.....	68
3.2 IL <i>SURFACE PERIODIC POLING</i>	70
3.3 VANTAGGI DEL <i>SURFACE PERIODIC POLING</i>	75
3.4 INDAGINE DI CRISTALLI DI TANTALATO DI LITIO CON <i>POLING</i> PERIODICO MEDIANTE DIFFRAZIONE DI RAGGI X.....	77
3.5 L'ESPERIMENTO.....	79
3.6 ANALISI DEI RISULTATI.....	83
3.7 CONCLUSIONI.....	85
3.8 RIFERIMENTI BIBLIOGRAFICI	87
CAPITOLO 4.....	90
PROGETTAZIONE, FABBRICAZIONE E CARATTERIZZAZIONE DI UN DISPOSITIVO PER LA GENERAZIONE DI SECONDA ARMONICA	
RETRO-PROPAGANTE IN NIOBATO DI LITIO CON <i>POLING</i> PERIODICO	
4.1 INTRODUZIONE.....	90
4.2 CRITERI DI PROGETTAZIONE.....	91
4.3 FABBRICAZIONE DEL DISPOSITIVO	93
4.4 CONFIGURAZIONE E DESCRIZIONE DEL BANCO OTTICO DI MISURA	102
4.4.1 IL BANCO OTTICO	103
4.4.2 SISTEMA DI FOCALIZZAZIONE DEL FASCIO.....	105
4.4.3 SISTEMA DI MISURA PER IL SEGNALE A SECONDA ARMONICA	109
4.4.4 CONFIGURAZIONE BACKWARD.....	112
4.5 MISURE DI GENERAZIONE DI SECONDA ARMONICA RETRO-PROPAGANTE	113
4.5.1 CARATTERIZZAZIONE IN AVANTI DEL PRIMO ORDINE DI RISONANZA.....	114
4.5.2 CARATTERIZZAZIONE DELLA BACKWARD SECOND HARMONIC GENERATION	119
4.6 CARATTERIZZAZIONE DEL DISPOSITIVO CON UNA SORGENTE PULSATA AL PICOSECONDO.....	126
4.7 CONCLUSIONI.....	131
4.8 RIFERIMENTI BIBLIOGRAFICI	133
CAPITOLO 5.....	135
COSTRUZIONE E CARATTERIZZAZIONE DI UN DISPOSITIVO IN TANTALATO DI LITIO PER GENERAZIONE DI SECONDA ARMONICA	
MEDIANTE <i>RANDOM QUASI-PHASE-MATCHING</i>	
5.1 INTRODUZIONE.....	135

5.2	INTRODUZIONE AL <i>RANDOM QUASI-PHASE-MATCHING</i>	135
5.3	IL <i>RANDOM QUASI-PHASE-MATCHING</i> NEI MATERIALI FERROELETTRICI CON <i>POLING</i> PERIODICO.....	138
5.4	FABBRICAZIONE DEL DISPOSITIVO	139
5.5	CARATTERIZZAZIONE NON LINEARE DEL DISPOSITIVO	142
5.5.1	<i>SET-UP</i> DEL BANCO OTTICO	142
5.5.2	OSSERVAZIONE DEL FENOMENO.....	145
5.5.3	MISURE DI CAMPO VICINO	145
5.5.4	MISURE DI CAMPO LONTANO	149
5.5.5	MISURE DI POTENZA.....	151
5.6	ANALISI DEI DATI E LORO INTERPRETAZIONE.....	153
5.7	CONCLUSIONI.....	157
5.8	RIFERIMENTI BIBLIOGRAFICI	159
CAPITOLO 6.....		162
PROGETTO, COSTRUZIONE E REALIZZAZIONE DI UN <i>FREQUENCY SHIFTER</i> IN GUIDA D'ONDA SU SUBSTRATO DI TANTALATO DI LITIO CON <i>POLING</i> PERIODICO		162
6.1	INTRODUZIONE.....	162
6.2	CRITERI PROGETTUALI	164
6.3	COSTRUZIONE E CARATTERIZZAZIONE LINEARE DEL DISPOSITIVO.....	166
6.4	CARATTERIZZAZIONE NON LINEARE DEL DISPOSITIVO	169
6.5	TEST DEL DISPOSITIVO	172
6.6	CONCLUSIONI.....	173
6.7	RIFERIMENTI BIBLIOGRAFICI	175
CONCLUSIONI		179
PRINCIPALI PUBBLICAZIONI SU RIVISTE ISI.....		181

ELENCO DELLE PUBBLICAZIONI DEL TRIENNIO 2009-2011

Articoli su riviste ISI

1. A. C. Busacca, S. Stivala, **L. Curcio**, and G. Assanto, "Parametric conversion in micrometer and sub-micrometer structured ferroelectric crystals by surface poling," **International Journal of Optics**, *in press*.
2. S. Stivala, F. Buccheri, **L. Curcio**, R. L. Oliveri, A. C. Busacca, and G. Assanto, "Features of randomized electric-field assisted domain inversion in lithium tantalate," **Optics Express**, Vol. 19, no. 25, pp. 25780–25785, 2011, DOI:10.1364/OE.19.025780.
3. G. Nava, P. Minzioni, I. Cristiani, A. C. Busacca, **L. Curcio**, S. Stivala, and G. Assanto, "Integrated frequency shifter in periodically poled lithium tantalate waveguide," **Electronics Letters**, Volume 46, Issue 25, pp. 1686–1688, 2010, ISSN: 0013-5194, DOI: 10.1049/el.2010.2561.
4. A. C. Busacca, S. Stivala, **L. Curcio**, P. Minzioni, G. Nava, I. Cristiani, and G. Assanto, "Soft proton exchanged channel waveguides in congruent lithium tantalate for frequency doubling," **Optics express**, Volume 18, Issue 25, pp. 25967-25972, 2010, DOI:10.1364/OE.18.025967.
5. S. Stivala, A. C. Busacca, **L. Curcio**, R. L. Oliveri, S. Riva Sanseverino, and G. Assanto, "Continuous-wave backward frequency doubling in periodically poled lithium niobate," **Applied Physics Letters**, Volume 96, Issue 11, pp. 111110-1-111110-3, 2010, ISSN: 0003-6951 (print), 1077-3118 (online), DOI:10.1063/1.3364934.
6. M. Bazzan, C. Sada, N. Argiolas, A. C. Busacca, R. L. Oliveri, S. Stivala, **L. Curcio**, and S. Riva Sanseverino, "High resolution x-ray investigation of periodically poled lithium tantalate crystals with short periodicity," **Journal of Applied Physics**, Vol. 106, Issue 10, pp. 104121-104121-4 2009, ISSN: 0021-8979 (print) 1089-7550 (online), DOI: 10.1063/1.3264620.
7. B. Spagnolo, S. Spezia, **L. Curcio**, N. Pizzolato, A. Fiasconaro, D. Valenti, P. Lo Bue, E. Peri, and S. Colazza, "Noise effects in two different biological systems," **The European Physical Journal B (EPJ B)**, Condensed matter physics, vol. 69, Issue 1, pp. 133-146, 2009, ISSN: 1434-6028, DOI: 10.1140/epjb/e2009-00162-y.

Capitoli di Volumi di ricerca originale (con ISBN) editi da case editrici accreditate che pubblicano anche riviste ISI

1. B. Spagnolo, D. Valenti, S. Spezia, **L. Curcio**, N. Pizzolato, A. A. Dubkov, A. Fiasconaro, D. Persano Adorno, P. Lo Bue, E. Peri, and S. Colazza, "Environmental Noise and Nonlinear Relaxation in Biological Systems," Book of Ecological Modeling, Nova Science Publishers, New York, ISBN: 978-1-61324-567-5, *in press*.

Articoli originali per esteso su volumi o Atti di Congressi Internazionali

1. **L. Curcio**, A. Parisi, A. C. Busacca, S. Riva Sanseverino, C. Misiano, "Interference-Based Chromatic Coatings by Ion Plating Plasma Assisted Deposition Technology," 9th Symposium of European Vacuum Coaters, Anzio (Rome), Italy, Oct. 4th – 6th 2010.
2. S. Stivala, A. C. Busacca, **L. Curcio**, R. L. Oliveri, and G. Assanto, "Continuous-Wave Backward Frequency Doubling in Periodically Poled Lithium Niobate" NME3, Nonlinear Photonics (NP), Karlsruhe, Germany, 21-24 Giugno 2010.

Articoli originali per esteso su volumi o Atti di Congressi Nazionali

1. A. C. Busacca, S. Stivala, **L. Curcio**, S. Riva-Sanseverino, and G. Assanto, "Backward Frequency Doubling in Periodically Poled Lithium Niobate in the Pulsed Regime," GE 2011 - 43^a Riunione Annuale del Gruppo Elettronica, Trani, Italia, 6-8 Luglio 2011, ISBN: 978-88-95612-85-0.
2. **L. Curcio**, S. Stivala, A. C. Busacca, A. Andò, G. Adamo, and S. Riva-Sanseverino, "Second Harmonic Generation via Random Quasi-Phase Matching in a Periodically Poled Lithium Tantalate Waveguide," GE 2011 - 43^a Riunione Annuale del Gruppo Elettronica, Trani, Italia, 6-8 Luglio 2011, ISBN: 978-88-95612-85-0.
3. A. Andò, E. Bonanno, **L. Curcio**, S. Stivala, G. Adamo, S. Riva-Sanseverino, and A. C. Busacca, "Correlated Channel Model for Terrestrial Free Space Optics and Project Specifications Evaluation of LT Code in OOK Modulation," GE 2011 - 43^a Riunione Annuale del Gruppo Elettronica, Trani, Italia, 6-8 Luglio 2011, ISBN: 978-88-95612-85-0.
4. A.C. Busacca, **L. Curcio**, S. Stivala, E. D'Asaro, and G. Assanto, "Near Infrared Picosecond Pulsed Backward Second-Harmonic-Generatio in Periodically-Poled Lithium Niobate," Fotonica 2011 - 13^o Convegno Nazionale delle Tecnologie Fotoniche, Genova, Italia, 9-11 maggio 2011, ISBN: 9788887237122.
5. A. C. Busacca, S. Stivala, **L. Curcio**, A. Andò, and G. Adamo, "Random Quasi-Phase-Matching in Tantalatio di Litio: origine del fenomeno, confronto tra propagazione bulk e guidata," Fotonica 2011 - 13^o Convegno Nazionale delle Tecnologie Fotoniche, Genova, Italia, 9-11 maggio 2011, ISBN: 9788887237122.
6. A.C. Busacca, **L. Curcio**, S. Stivala, A. Andò, G. Nava, P. Minzioni, I. Cristiani, and G. Assanto, " All-Optical frequency Shifter in a Periodically Poled Lithium Tantalate Waveguide," Fotonica 2011 - 13^o Convegno Nazionale delle Tecnologie Fotoniche, Genova, Italia, 9-11 maggio 2011, ISBN: 9788887237122.
7. G. Nava, P. Minzioni, I. Cristiani, A. C. Busacca, S. Stivala, **L. Curcio**, and R. L. Oliveri, "Generazione di Seconda Armonica in Guida d'Onda in Tantalato di Litio Congruente con Poling Periodico e Conversione di Lunghezza d'Onda in Banda C+L," Fotonica 2010, Pisa, Italia, 25-27 Maggio 2010.
8. A. C. Busacca, S. Stivala, **L. Curcio**, R. L. Oliveri, S. Riva Sanseverino, and G. Assanto, "Generazione di Seconda Armonica Retro-Propagante in Niobato di

-
- Litio con Poling Periodico,” Fotonica 2010, Pisa, Italia, 25-27 Maggio 2010.
9. A. Pasquazi, R. Morandotti, S. Stivala, A. C. Busacca, **L. Curcio**, and G. Assanto, “Mappatura del Disordine Non Lineare Mediante Interazione Parametrica a Tre Onde,” Fotonica 2010, Pisa, Italia, 25-27 Maggio 2010.
 10. A. C. Busacca, S. Stivala, **L. Curcio**, and S. Riva Sanseverino, “Continuous-Wave Backward Frequency Doubling in Periodically Poled Lithium Niobate,” GE 2010 – 42^a Riunione Annuale Gruppo Elettronica, Villa Mondragone, Monte Porzio Catone (RM), Italia, 9-11 Giugno 2010.
 11. A. C. Busacca, **L. Curcio**, S. Riva Sanseverino, P. Minzioni, G. Nava, I. Cristiani, “Characterization of PP-cLT Waveguides for Phase Conjugation in the C + L band of Optical Communications,” GE 2010 – 42^a Riunione Annuale Gruppo Elettronica, Villa Mondragone, Monte Porzio Catone (RM), Italia, 9-11 Giugno 2010.
 12. N. Pizzolato, **L. Curcio**, D. Valenti, S. Spezia, A. Fiasconaro, B. Spagnolo, A. Bonanno, G. Basilone, S. Mazzola, “Two-species model for spatial distributions of sardine and anchovy: A comparison with real data,” In Proceedings of “Geogrid Open Day at the University of Palermo”, pp. 38-40, Palermo, Italy, 2011, ISBN: 978-88-95892-00-2.
 13. G. Denaro, A. La Cognata, S. Spezia, **L. Curcio**, D. Valenti, N. Pizzolato, B. Spagnolo, “Analysis of the vertical distribution in a model of phytoplankton dynamics,” In Proceedings of “Geogrid Open Day at the University of Palermo”, pp. 57-59, Palermo, Italy, 2011, ISBN: 978-88-95892-00-2.
 14. **L. Curcio**, B. Spagnolo, A. Bonanno, G. Basilone, S. Mazzola, D. Valenti, S. Spezia, G. Denaro, A. Fiasconaro, N. Pizzolato, A. La Cognata, “Preliminary Analysis on Correlations between Spatial Distribution of Chlorophyll-a and Experimental Data of Biomass in the Strait of Sicily,” In Proceedings of “Geogrid Open Day at the University of Palermo”, pp. 35-37, Palermo, Italy, 2011, ISBN: 978-88-95892-00-2.

Prodotti Multimediali a contenuto scientifico

1. **L. Curcio**, M. Spallino, “Telerilevamento e Dinamica Stocastica di Popolazioni Ittiche nel Canale di Sicilia,” QUADERNI DI RICERCA IN DIDATTICA / Science (QRDS), Quaderno 2, Supplemento n.2, pp. 140-152, PALERMO 2011, ISSN on-line: 1592-4424.

Abstracts di Comunicazioni o Posters di Congressi Internazionali

1. S. Stivala, A. C. Busacca, **L. Curcio**, R. L. Oliveri, P. Minzioni, G. Nava, and I. Cristiani, “Characterization of PP-cLT Waveguides for Second-Harmonic-Generation and Wavelength-Conversion in the C + L Band of Optical Communications” NTuC1, Nonlinear Photonics (NP), Karlsruhe, Germania, 21-24 Giugno 2010.
2. B. Spagnolo, A. A. Dubkov, S. Spezia, **L. Curcio**, N. Pizzolato, A. Fiasconaro, D. Valenti, A. La Cognata, P. Caldara, P. Lo Bue, E. Peri, S. Colazza, “Environmental noise and nonlinear relaxation in biological systems,” in Proceeding 22nd Marian Smoluchowski Symposium on Statistical Physics, Zakopane, Poland, September 12–17, 2009, in Invited talks.

Abstracts di Comunicazioni o Posters di Congressi Nazionali

1. B. Spagnolo, D. Valenti, A. Fiasconaro, N. Pizzolato, S. Spezia, **L. Curcio**, P. Lo Bue, E. G. Peri, S. Colazza, “Risonanza stocastica non dinamica in una popolazione di *Nezara Viridula* (L.),” XCV Congresso Nazionale della Società Italiana di Fisica, Bari, Italia, 28 settembre - 3 ottobre, 2009.
2. M. Cherchi, A. C. Busacca, **L. Curcio**, R. L. Oliveri, A. C. Cino, S. and Riva Sanseverino, “Studio della Nonlinearità Quadratica di Zincoblende per la Generazione di TeraHertz in Guida d'Onda: un Confronto di Cristalli Differenti,” Gruppo Elettronico Italiano (GE2009), Trento, Italia, Giugno 17-19, 2009, pp. CD-GE2009.
3. A. C. Busacca, S. Stivala, R. L. Oliveri, **L. Curcio**, S. Riva Sanseverino, A. Pasquazi, R. Morandotti, and G. Assanto, “Generazione di Seconda Armonica per Quasi-Phase-Matching Random in Tantalato di Litio con Poling Periodico,” Gruppo Elettronico Italiano (GE2009), Trento, Italia, Giugno 17-19, 2009, pp. CD-GE2009.

Ringraziamenti

Con queste mie righe desidero ringraziare tutte le persone che hanno lavorato con me durante il Dottorato. Sebbene la presente tesi sia scritta con un uso frequente della prima persona singolare (“Io”), ci tengo a sottolineare che gran parte dell’intera attività di Ricerca è stata condotta come lavoro di squadra.

In primo luogo, ringrazio infinitamente l’Amico, Prof. Alessandro Busacca, relatore della seguente tesi, per avermi “iniziato” al mondo della Ricerca, per essermi stato vicino, per aver creduto in me sostenendomi sempre, per avermi aiutato fattivamente, per avermi spronato ed incoraggiato come e meglio di un fratello, “Maestro”, Scienziato e collaboratore di tante giornate e nottate: Grazie di Cuore.

In particolar modo, ringrazio sentitamente il Prof. Stefano Riva Sanseverino per avermi dato la possibilità di continuare a fare Ricerca su argomenti di così rilevante interesse scientifico quali quelli trattati in questo lavoro di tesi e soprattutto per avermi dato la possibilità di lavorare presso il Laboratorio di Optoelettronica e Microlitografia del CRES di Monreale, dove ho avuto modo di sperimentare “sul campo” il valore della Ricerca Tecnologica.

Ringrazio vivamente l’Amico Ing. Salvatore Stivala, Ricercatore del nostro Gruppo Scientifico, per essere stato guida valida, costante e competente, nonché punto di riferimento concreto durante tutta l’attività sperimentale e per la stesura finale di questa esperienza.

Un grande contributo alla mia Ricerca di materiale scientifico e fonte inesauribile d’esperienza è stato l’Ing. Antonino Parisi, a lui porgo un grazie di cuore per gli importanti scambi di idee che mi ha regalato.

Un ringraziamento va all’Ing. Alfonso Cino, Responsabile del

Laboratorio di Optoelettronica e Microlitografia del Centro per la Ricerca Elettronica in Sicilia, aiuto prezioso nel lavoro di Ricerca, per gli utili consigli derivanti dalla sua vasta esperienza e per avermi stimolato intellettualmente.

Ringrazio, inoltre, il Prof. Gaetano Assanto per i suoi preziosi suggerimenti che mi hanno aiutato nella comprensione dei fenomeni fisici discussi.

Un ringraziamento va a tutte le persone appartenenti ai vari Gruppi di Ricerca con cui ho collaborato per avermi permesso di ampliare le mie conoscenze attraverso un proficuo scambio di idee ed esperienze.

Un affettuoso ringraziamento ai compagni di studi e di Ricerca, gli Ingegneri Gabriele Adamo, Andrea Andò, Diego Agrò e Riccardo Pernice per essermi stati vicini sia nei momenti difficili, sia nei momenti felici, per avermi dato dei buoni consigli e per la compagnia giornaliera che è stata piacevole e mi ha fatto sentire a mio agio in ogni circostanza.

Ultimi, ma non meno importanti, ringrazio i componenti della mia famiglia che mi sono stati sempre accanto dandomi quella tranquillità necessaria a compiere un percorso di studi così impegnativo.

Introduzione

La mia attività di ricerca ha inizio, col mio lavoro di tesi di Laurea, al Centro per la Ricerca Elettronica in Sicilia (CRES) di Monreale quando iniziai a costruire in *cleanroom*, partendo da un substrato di Niobato di Litio, il primo duplicatore di frequenza in guida d'onda che impiegava la tecnologia del *Surface Periodic Poling*.

Oggi, il presente lavoro di tesi rappresenta, di fatto, la naturale prosecuzione degli studi sui cristalli ferroelettrici, in particolar modo, sul Niobato ed il Tantalato di Litio e sul *poling* periodico assistito da campo elettrico. In questo contesto, la mia attività si è rivolta non solo a continuare l'approfondimento delle tematiche d'avanguardia di cui già mi ero occupato, ma anche a comprendere i fenomeni fisici che sono alla base dei dispositivi fotonici innovativi che il mio Gruppo di Ricerca studia.

La scienza dell' "ingegnerizzazione dei domini", la modulazione della non linearità del secondo ordine dei cristalli ferroelettrici impiegati, le loro proprietà, la progettazione di dispositivi che implementino il *Quasi-Phase-Matching* e, quindi, la loro fabbricazione, caratterizzazione per l'elaborazione parametrica dei segnali ottici sono le principali tematiche affrontate durante il mio percorso di ricerca nell'ambito del Dottorato.

L'elemento comune che unisce tutte le attività svolte è la comprensione qualitativa dei fenomeni fisici che possono intervenire nei dispositivi implementati, la possibilità di prevederli attraverso modelli teorici quantitativi e il tentativo di individuarne gli eventuali risvolti applicativi.

Attraverso il confronto con i dottorandi, i ricercatori ed i professori del DIEETCAM dell'Università di Palermo, del CRES di Monreale, dell'Università di Roma Tre, dell'Ultrafast Optical Processing Research Group (UOP) dell'Università del Québec, del QE Lab del Dipartimento di Elettronica dell'Università di Pavia e del Dipartimento di Fisica "G. Galilei" dell'Università di Padova sono venute a contatto con tematiche a me nuove, ho imparato ad analizzarle nei modi più opportuni ed approfondirle attraverso lo studio della letteratura specifica.

Basandomi sulle mie conoscenze pregresse, ho collaborato alla progettazione di dispositivi per lo studio della *Backward Second Harmonic Generation* (BSHG) e del *random Quasi-Phase-Matching* (rQPM), ho portato avanti lo studio di dispositivi per

applicazioni nel campo delle telecomunicazioni: si pensi alla realizzazione del *frequency shifter* in ottica guidata.

Tutti i dispositivi sono stati progettati e costruiti nei laboratori del CRES che per circa la metà della durata del mio dottorato è stata la mia principale sede di lavoro. In questi laboratori disponevamo delle più avanzate tecnologie di ottica in guida d'onda su substrati di Niobato e Tantalato di Litio che venivano sviluppate per esplorare le non linearità ottiche di tale materiali in configurazioni senza precedenti. In particolar modo, il rQPM su campioni di Tantalato di Litio con *poling* periodico è stato per la prima volta osservato e descritto dal Prof. A. Busacca e dal nostro Gruppo di Ricerca in collaborazione con l'UOP dell'Università del Québec. Si tratta, infatti, di un fenomeno molto interessante sia da un punto di vista teorico che per le sue potenzialità applicative.

Il dispositivo per il *frequency shifting* messo a punto con l'Università di Pavia, è la dimostrazione della prima guida d'onda a canale per scambio protonico in fase α , su substrato di Tantalato di Litio con *poling* periodico, in grado di confinare la radiazione elettromagnetica e permettere la conversione parametrica a due stadi in cascata (Generazione di Seconda Armonica-Generazione di Frequenza Differenza) operante nel *range* della banda C delle telecomunicazioni ottiche. La collaborazione con l'*équipe* del Prof. Mazzoldi dell'Università di Padova ci ha permesso di investigare, mediante la diffrazione di raggi X (HR-XRD), la struttura dei reticoli realizzati. E' molto importante, infatti, che i reticoli abbiano una periodicità regolare e presentino il minor numero di difetti possibili. Dalla bontà dei reticoli ingegnerizzati dipende l'efficienza di conversione, soprattutto quando si realizzano strutture con *pattern* sub-micrometrici.

Tutti gli studi di cui mi sono occupato intendono dare un contributo allo sforzo che la ricerca internazionale sta compiendo da decenni per la realizzazione di *chip* ottici con funzionalità simili a quelle elettroniche. Il raggiungimento di tale obiettivo permetterebbe infatti l'elaborazione dei segnali delle telecomunicazioni a livello tutto ottico, evitando le restrizioni dovute al passaggio attraverso interfacce elettroniche: tutti su una stessa piattaforma tecnologica, basata su guide d'onda il più possibile miniaturizzate. Il quadro è talmente ricco e promettente che, alle volte, persino le fabbricazioni preliminari ci hanno permesso di ottenere risultati sperimentali inaspettati ed assolutamente nuovi, soprattutto da un punto di vista più squisitamente fisico che funzionale, come nel caso della BSHG. Nel contribuire a tale attività mi sono avvalso di

tutta l'esperienza teorica e pratica accumulata in precedenza, sia per quanto riguarda l'elaborazione di codici MATLAB per l'analisi dei risultati sperimentali che per quanto riguarda l'esperienza di lavoro in *cleanroom* .

Una buona parte dei risultati ottenuti nasce collaborazione con il gruppo del Prof. G. Assanto dell'Università Roma Tre, che ha curato parte delle caratterizzazioni ottiche dei campioni, e che ci è stato di grande aiuto nell'interpretazione teorica delle evidenze sperimentali.

Questo lavoro di tesi si inquadra all'interno di un progetto PRIN 2007 coordinato dal Prof. Stefano Riva Sanseverino, riguardante la sperimentazione di dispositivi in ottica integrata su cristalli ferroelettrici: progetto prot. 2007CT355C_001, dal titolo "*Ingegnerizzazione in 1D e 2D su scala sub-micrometrica e nanometrica della non linearità di componenti ottici in Niobato e Tantalato di Litio*".

I risultati di tutte queste attività sono stati oggetto di pubblicazioni su riviste di rilevanza internazionale e di contributi a conferenze nazionali ed internazionali, a riprova dell'originalità e del valore degli studi effettuati.

Il *Quasi-Phase-Matching*

1.1 Introduzione

Come ben noto dalla fisica, il sincronismo di fase o *Phase Matching* (PM) è una condizione che permette di mantenere la relazione di fase tra le onde che prendono parte all'interazione non lineare e viene impiegato per ottenere un'efficiente conversione nella generazione della seconda armonica (SHG dall'inglese *Second Harmonic Generation*).

Per esempio, il disaccordo delle velocità di fase, causato dalla dispersione degli indici di rifrazione, può essere compensato facendo uso di un cristallo birifrangente che permette l'accordo tra le velocità (di fase) di onde polarizzate ortogonalmente, dal momento che queste ultime “vedono” indici di rifrazione differenti.

Quantunque questo *Birefringent Phase Matching* (BPM) sia stato utilizzato essenzialmente in tutti i dispositivi pratici non lineari, esso, tuttavia, ha limitato la scelta a quei cristalli non lineari i quali avessero un opportuno rapporto tra dispersione e birifrangenza, imponendo il solo utilizzo di quelli i cui elementi del tensore della suscettività realizzassero l'accordo di fase delle onde polarizzate ortogonalmente.

Approcci alternativi al *Phase Matching*, come la dispersione modale o l'effetto *Cerenkov* nelle guide d'onda, sono nella maggior parte dei casi associati ad una ridotta efficienza di conversione [1].

Va ricordato che già agli albori dell'ottica non lineare venne concepito il *Quasi-Phase-Matching*. Ideato indipendentemente da *Bloembergen et al.* [2] nel 1962, e da *Franken e Ward* [3] nel 1963, non è stato implementato se non di recente. Col termine *Quasi-Phase-Matching* (QPM) ci si riferisce ad un metodo riguardante una modulazione periodica della suscettività non lineare di secondo ordine del materiale. Il

QPM è il più versatile metodo per ottenere l'accordo di fase. Nel *QPM*, le onde che interagiscono fra loro viaggiano con differenti velocità di fase, ma si elimina l'accumulo del desincronismo mediante un'opportuna modulazione spaziale del segno o dell'ampiezza della suscettività non lineare. In pratica si corregge la fase relativa ad intervalli regolari per mezzo di una struttura periodica ricavata all'interno del mezzo non lineare [4].

In questa trattazione, la teoria del *QPM* per la generazione di seconda armonica viene affrontata nel dominio dello spazio e nel dominio del vettore d'onda di sfasamento.

1.2 L'accordo di fase

Nella generazione di seconda armonica, un'onda fondamentale con pulsazione ω_1 e lunghezza d'onda λ interagisce con la suscettività non lineare di secondo ordine $\chi^{(2)}$ del materiale producendo un'onda di polarizzazione alla pulsazione $\omega_2 = 2\omega_1$. Dato che l'onda di polarizzazione è generata dall'onda fondamentale, essa viaggia con la stessa velocità, determinata da n_1 , indice di rifrazione riferito alla lunghezza d'onda fondamentale. L'onda di polarizzazione unitamente agli effetti non lineari genera un'onda a pulsazione doppia che viaggia ad una velocità determinata da n_2 , indice di rifrazione visto da quest'ultima. Generalmente $n_2 > n_1$, in un materiale con dispersione normale, cosicché l'onda fondamentale e l'onda di seconda armonica viaggiano con differenti velocità di fase.

Poiché il segno del flusso di potenza da un'onda all'altra è determinato dalla fase relativa tra le due onde, il continuo slittamento di fase fra queste onde, causata dalle loro differenti velocità di fase, determina un'alternanza della direzione del flusso di potenza. Questa situazione è illustrata dalla pendenza della curva C nella Fig. 1.1(a).

Si può vedere come l'alternanza del segno nel flusso di potenza induca un ripetitivo aumento e decremento dell'intensità della seconda armonica lungo il tratto di interazione.

La distanza per la quale la differenza di fase tra le due onde varia di π è la "lunghezza di coerenza" : $l_c = \frac{\lambda}{4 \cdot (n_2 - n_1)}$ che è anche mezzo periodo del ciclo di aumento e decremento della seconda armonica. Se gli indici di rifrazione possono

essere accordati in qualche modo, per esempio usando la birifrangenza di un materiale anisotropo, il campo della seconda armonica cresce linearmente con la distanza nel mezzo e, pertanto, l'intensità cresce col quadrato come mostrato dalla curva A della Fig. 1.1. Questa condizione prende il nome di *Phase Matching*.

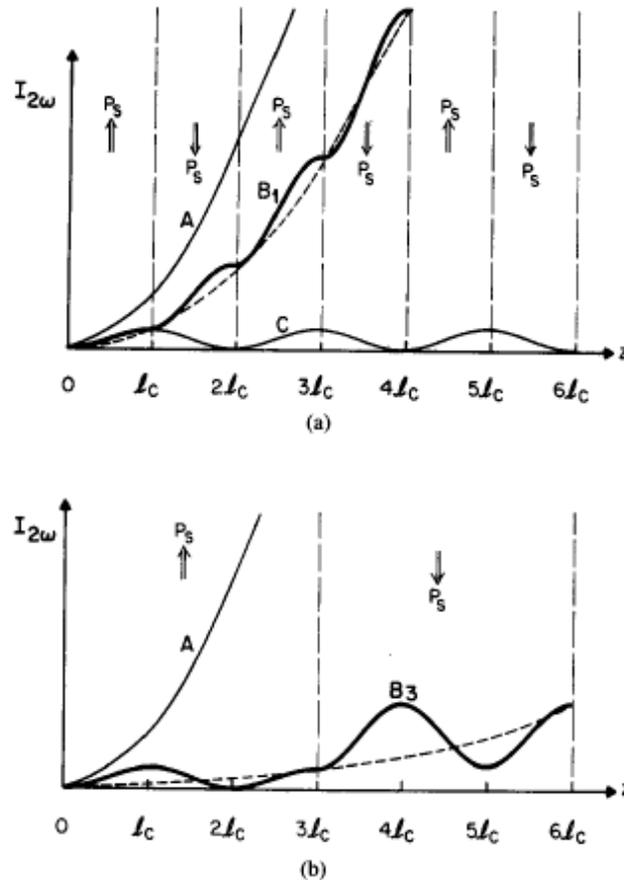


Fig. 1.1 Effetto del *phase matching* sulla crescita dell'intensità della seconda armonica con la distanza in un cristallo non lineare. (a) A: perfetto *phase matching* in un cristallo a singolo dominio; B₁: primo ordine di *QPM* dato dall'alternanza del segno della polarizzazione spontanea ad ogni lunghezza di coerenza; C: interazione in assenza di *phase matching*; (b) A: perfetto *phase matching*; B₃: terzo ordine di *QPM* dato dall'alternanza di P_s ogni tre lunghezze di coerenza. (dal Rif. [4])

Un altro metodo che permette una crescita continua dell'intensità di seconda armonica lungo il dispositivo, chiamato *QPM*, riguarda la ripetuta inversione della fase relativa esistente tra l'onda forzante e l'onda libera dopo un numero dispari di lunghezze di coerenza. La fase è, dunque, azzerata periodicamente cosicché la relazione di fase in media è tale da far aumentare l'intensità.

La periodica inversione di fase può essere ottenuta in diversi modi [5-9]:

- sfruttando la riflessione interna totale (TIR) grazie alla quale si genera uno sfasamento di π ad ogni riflessione del fascio;

- sovrapponendo strati dello stesso materiale non lineare ruotati alternativamente di 180° in modo da cambiare il segno del coefficiente non lineare periodicamente (CdTe, GaAs, quarzo, LiNbO₃);
- modulando periodicamente il segno del coefficiente non lineare durante la crescita del cristallo;
- modulando la suscettività lineare (quantunque tale tecnica non consente un'elevata efficienza);
- bombardando la superficie del cristallo con un fascio elettronico (si genera un'inversione uniforme attraverso l'intero spessore ma si ottiene un caratteristico andamento segmentato);
- sfruttando processi di diffusione o di impiantazione ionica se si desidera ottenere domini invertiti poco profondi (tecnica di difficile implementazione in quanto richiede una profondità di modulazione paragonabile alla dispersione). Un esempio di tale tecnica consiste nella diffusione di titanio in cristalli ferroelettrici in modo da realizzare regioni a polarità periodicamente invertite;
- applicando un campo elettrico periodicamente invertito ad un liquido (come fecero Levine *et al.* con il nitrobenzene) o, anche, ad un materiale polimerico; in generale a materiali in cui la non linearità del secondo ordine è indotta dall'applicazione di un campo elettrico;
- applicando selettivamente ad un cristallo ferroelettrico (LiNbO₃, LiTaO₃) un campo elettrico superiore al suo campo coercitivo, in modo da ottenere una periodica inversione della polarizzazione spontanea P_s , e, così, una modulazione periodica del segno del coefficiente non lineare (*Periodic Poling - PP*).

Quest'ultima tecnica, realizzata per la prima volta da Yamada *et al.* nel 1993 sul LiNbO₃ [10], è stata quella adottata presso i laboratori del CRES e discussa nel presente lavoro di tesi, utilizzando come materiali il Niobato ed il Tantalato di Litio (LiNbO₃, LiTaO₃). Nei materiali nei quali la non linearità di secondo ordine è indotta da un campo elettrico applicato dall'esterno, il campo può essere invertito periodicamente lungo la distanza di interazione.

Un più rapido accrescimento della seconda armonica e, dunque, una maggiore efficienza di conversione è ottenuta cambiando il segno di P_s ad ogni lunghezza di coerenza. Questo caso che chiameremo primo ordine di *QPM*, è illustrato dalla curva

B_1 della Fig. 1.1(a). Il terzo ordine di *QPM*, nel quale P_s si inverte periodicamente con periodo $3l_c$, è data dalla curva B_3 in Fig. 1.1(b). Si nota che anche gli ordini pari di *QPM* si possono ottenere quando il *mark-to-space ratio* è diverso da 50:50. Per esempio, il secondo ordine di *QPM* può essere ottenuto usando alternativamente domini di lunghezza l_c e $3l_c$ come mostrato in Fig. 1.2. In generale, l'ordine *m-esimo* di *QPM* comporta la modulazione con periodo $2ml_c$, dove m è un intero.

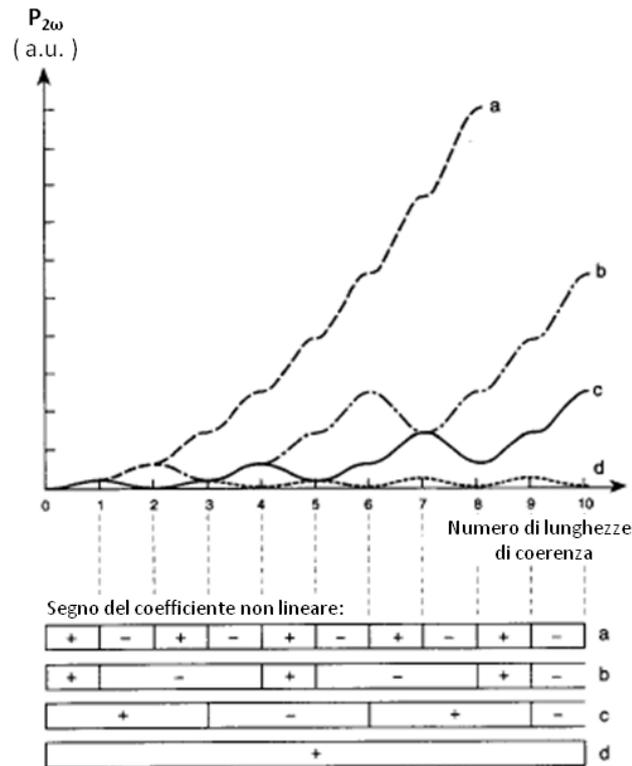


Fig. 1.2 Andamento della potenza della seconda armonica nei casi (a) $D = 50\%$ nel primo ordine di *QPM*; (b) $D = 25\%$ nel secondo ordine di *QPM*; (c) $D = 50\%$ nel terzo ordine di *QPM*; (d) $D = 0$, assenza di *QPM*. Con D indichiamo il rapporto in percentuale tra i domini positivi e quelli negativi all'interno di un periodo. (dal Rif. [11])

La precedente spiegazione è una descrizione puramente nel “dominio dello spazio”. Un alternativo punto di vista del fenomeno è quello che si ottiene mediante la trasformata di *Fourier*, con la quale si esamina soltanto la somma dei vettori d’onda associati alle onde viaggianti e alla struttura dei domini (reticolo del coefficiente non lineare).

Questo punto di vista è matematicamente definito e risulta facilmente intuibile. Il *Phase Matching* si ha quando la somma del vettore d’onda della fondamentale e del reticolo non lineare uguaglia il vettore d’onda della seconda armonica. Ci si può facilmente rendere conto di questo dall’analisi della trasformata di *Fourier*, dalla quale

si ricava che ogni struttura periodica del coefficiente non lineare che possiede una armonica spaziale con il relativo vettore d'onda può dare *QPM*. Pertanto, non è necessaria una completa inversione del segno del coefficiente non lineare, ma semplicemente una modulazione dell'ampiezza, essendo quello dell'inversione di segno un caso particolare (sicuramente il più efficiente).

Come possiamo vedere dalla Fig. 1.1(a), la potenza della seconda armonica generalmente cresce più lentamente nel *QPM* che nel *BPM*, anche nel caso del primo ordine. Il grande vantaggio del *QPM* sta nella capacità di realizzare il *Phase Matching* laddove risulterebbe impossibile: nei materiali isotropi o in quei materiali che generalmente hanno una birifrangenza o troppo piccola o troppo grande alla lunghezza d'onda di interesse; oppure usando i coefficienti non lineari che accoppiano le onde aventi la stessa polarizzazione. Un'altra importante caratteristica è la possibilità di progettare un dispositivo che lavori alla desiderata lunghezza d'onda e temperatura.

Come già detto è possibile ottenere accordo di fase dalla modulazione della suscettività lineare [12-16]. Questa tecnica è molto difficile da implementare giacché l'ampiezza della modulazione dell'indice non lineare deve essere confrontabile con la dispersione, al fine di ottenere una conversione efficiente.

In questa trattazione, ci si occuperà di strutture attraverso le quali si modulano le proprietà non lineari del materiale.

1.3 Teoria del *QPM*

La teoria che sta alla base del *QPM* è stata discussa da molti autori i quali hanno ampiamente trattato delle sue applicazioni nell'ottica non lineare [17-21] e nei modulatori elettronici ad onda viaggiante [22]. La difficoltà pratica nell'ottenere il quasi accordo di fase è dato dalle tolleranze fortemente limitate della struttura periodica, sicché è importante un'analisi degli effetti che si originano dallo scostamento dalle condizioni di *QPM* ideale.

Si analizzerà la generazione di seconda armonica (SHG) come tipica interazione non lineare del secondo ordine, supponendo di lavorare con bassa efficienza di conversione, onda continua (*CW*), focalizzazione lasca ("*loose focusing*") e assenza di perdite per la fondamentale e la seconda armonica.

Sotto queste condizioni, i risultati ottenuti per la generazione di somma di frequenza (*SFG – Sum Frequency Generation*) e per la generazione di differenza di frequenza (*DFG - Difference Frequency Generation*) sono essenzialmente gli stessi di quelli per la generazione di seconda armonica qualora venga utilizzata l'adeguata definizione di accordo di fase.

Date queste ipotesi, l'equazione che descrive la crescita del campo elettrico della seconda armonica (la cui ampiezza varia lentamente), risulta:

$$\frac{dE_2}{dz} = \Gamma \cdot d(z) \cdot e^{-i\Delta k' \cdot z} \quad (1.1)$$

dove con E_2 indichiamo l'ampiezza del campo della seconda armonica, z è la distanza lungo la direzione di propagazione, $d(z)$ esprime la variazione spaziale del coefficiente non lineare per la *SHG*, $\Gamma \equiv \frac{i \cdot \omega \cdot E_1^2}{n_2 \cdot c}$, i pedici 1 e 2 si riferiscono a grandezze dipendenti dalla pulsazione ω e 2ω rispettivamente.

$\Delta k'$, il vettore di desincronismo, dato dalla dispersione del materiale è definito dalla relazione:

$$\Delta k' = k_2 - 2 \cdot k_1 = \frac{\pi}{l_c} \quad (1.2)$$

dove con k_1 e k_2 si indicano i vettori d'onda della fondamentale e della seconda armonica rispettivamente e $l_c = \frac{\lambda}{4 \cdot (n_2 - n_1)}$ è la lunghezza di coerenza.

Integrando l'equazione 1.1, troviamo che il campo elettrico della seconda armonica, alla fine del reticolo con *poling* periodico di lunghezza L , vale:

$$E_2(L) = \Gamma \cdot \int_0^L d(z) \cdot e^{-i\Delta k' \cdot z} \cdot dz \quad (1.3)$$

Per avere un *Phase Matching* ideale, ovvero per $d(z) = d_{eff}$ e $\Delta k' = 0$, l'integrale (1.3) diventa banale e si trova che:

$$E_2(L) = \Gamma \cdot d_{eff} \cdot L \quad (1.4)$$

dove d_{eff} è il coefficiente non lineare efficace relativo all'interazione in oggetto.

Analizziamo l'equazione 1.3 in termini della trasformata di *Fourier* della funzione $d(z)$. Si ponga in primo luogo $d(z)$ in forma normalizzata:

$$g(z) \equiv \frac{d(z)}{d_{eff}} \quad (1.5)$$

Si generalizzi quindi il precedente calcolo assumendo che $g(z)$ assuma ogni valore dell'intervallo $[-1,1]$ per $z \in]0, L[$.

L'equazione 1.3 diventa allora:

$$E_2 = \Gamma \cdot d_{eff} \cdot L \cdot G(\Delta k') \quad (1.6)$$

dove $G(\Delta k')$, la trasformata di *Fourier*, è:

$$G(\Delta k') = \frac{1}{L} \cdot \int_0^L g(z) \cdot e^{-i \cdot \Delta k' \cdot z} \cdot dz \quad (1.7)$$

Tenuto conto del fatto che G è una funzione di $\Delta k'$ si dirà che il dominio della trasformata è il “dominio di disaccordo” e che $G(\Delta k')$ è la “funzione di disaccordo” [23]. Confrontando le equazioni 1.4 e 1.6 si ha che l'ampiezza della funzione di disaccordo che è minore o uguale ad 1, rappresenta la riduzione dell'effettiva non linearità rispetto al valore che essa assume nel caso di accordo di fase ideale. Inoltre, il quadrato della funzione di disaccordo è proporzionale all'efficienza di conversione.

Se $g(z)$ è una funzione periodica in z , di periodo Λ :

$$g(z) = \sum_{m=-\infty}^{\infty} G_m \cdot e^{i \cdot K_m \cdot z} \quad (1.8)$$

$$G(\Delta k') = \frac{1}{L} \cdot \int_0^L \left(\sum_{m=-\infty}^{\infty} G_m \cdot e^{i \cdot K_m \cdot z} \right) \cdot e^{-i \cdot \Delta k' \cdot z} \cdot dz \quad (1.9)$$

e se il vettore d'onda di reticolo relativo all' m -esima armonica:

$$K_m = \frac{2 \cdot \pi \cdot m}{\Lambda} \quad (1.10)$$

è circa uguale a $\Delta k'$, nell'integrale (1.9) risultano trascurabili tutti i termini della sommatoria tranne l' m -esimo che risulta prevalente, pertanto è possibile scrivere:

$$E_2 \approx i \cdot e^{\frac{-\Delta k_Q^m \cdot L}{2}} \cdot \Gamma \cdot d_Q \cdot L \cdot \text{sinc}\left(\frac{\Delta k_Q^m \cdot L}{2}\right) \quad (1.11)$$

dove $d_Q = d_{\text{eff}} \cdot G_m$ è l'ampiezza del coefficiente non lineare $d(z)$ relativo all' m -esima armonica di *QPM*, mentre:

$$\Delta k_Q^m = k_2 - 2 \cdot k_1 - K_m = \Delta k' - K_m \quad (1.12)$$

è il vettore d'onda totale del disaccordo di fase e $\text{sinc}(x) = \frac{\sin(x)}{x}$.

L'interazione nel quasi accordo di fase è analoga a quella del *Phase Matching* ideale, ma con un desincronismo Δk_Q^m shiftato di una quantità K_m rispetto a $\Delta k'$ e un effettivo coefficiente non lineare d_Q in luogo di d_{eff} .

Si analizzi adesso l'influenza del *duty cycle* sull'efficienza di conversione. Si supponga che $g(z)$ sia un'onda rettangolare di periodo Λ che assume i valori ± 1 , avente la sezione positiva di lunghezza l (Fig. 1.3).

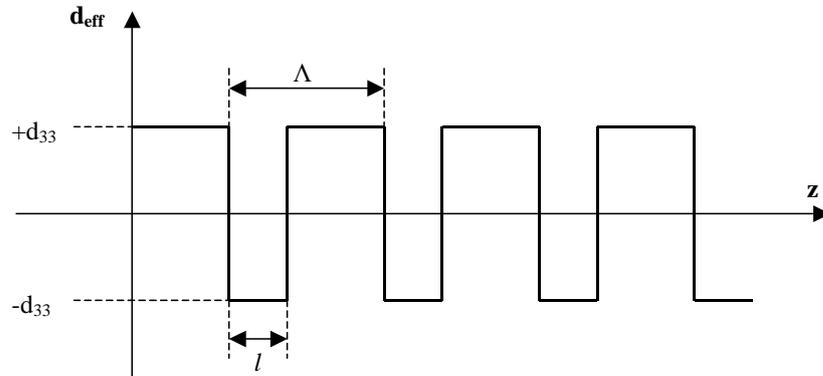


Fig. 1.3 Modulazione ideale “square-shaped” del coefficiente non lineare d_{33} , lungo la direzione di interazione. (dal Rif. [24])

Il *duty cycle* è definito come:

$$D = \frac{l}{\Lambda} \quad (1.13)$$

Supponendo che l' m -esimo termine positivo della serie di *Fourier* che compare nell'equazione 1.8 è quello per il quale si ha il *Phase Matching*, ovvero che si abbia

$K_m = \Delta k'$, il corrispondente coefficiente è trovato usando una trasformazione, e si ottiene:

$$G_m = \frac{2}{m \cdot \pi} \cdot \sin(\pi \cdot m \cdot D) \quad (1.14)$$

Poiché $d_Q = d_{eff} \cdot G_m$, per quell'opportuno valore di D che rende unitario il fattore seno, si trova che:

$$d_Q = \frac{2 \cdot d_{eff}}{\pi \cdot m} \quad (1.15)$$

L'efficienza di conversione, proporzionale a d_Q^2 , è ridotta dal fattore $\left(\frac{2}{\pi \cdot m}\right)^2$, fattore che non compare nell'interazione nel caso di perfetto accordo di fase. L'equazione 1.14 mostra che il miglior *duty cycle* per m dispari è $\frac{1}{2}$.

1.4 L'efficienza di conversione

Dalla conoscenza del campo elettrico, relativo alla seconda armonica, in uscita dal dispositivo (equazione 1.11), è possibile ricavare l'espressione dell'efficienza di conversione attraverso dei semplici passaggi algebrici.

Dalle relazioni:

$$I_\omega = \frac{c \cdot n_\omega \cdot \varepsilon_0 \cdot |E_1|^2}{2} \quad (1.16)$$

$$I_{2\omega} = \frac{c \cdot n_\omega \cdot \varepsilon_0 \cdot |E_2|^2}{2} \quad (1.17)$$

$$P_\omega = I_\omega \cdot A_{eff} \quad (1.18)$$

$$P_{2\omega} = I_{2\omega} \cdot A_{eff} \quad (1.19)$$

dove I_ω e $I_{2\omega}$ sono le espressioni dell'intensità della radiazione fondamentale e di seconda armonica rispettivamente [25], P_ω e $P_{2\omega}$ sono le potenze trasportate da queste ultime e A_{eff} è l'area di interazione efficace fra le due onde all'interno della struttura

periodica [26], e dall'espressione (1.11) banalmente si ottiene:

$$P_{2\omega} = \left(\frac{2}{\pi \cdot m} \right)^2 \cdot \frac{8 \cdot \pi^2 \cdot d_{\text{eff}}^2}{n_{\omega}^2 \cdot n_{2\omega} \cdot c \cdot \varepsilon_0 \cdot \lambda_{\omega}^2 \cdot A_{\text{eff}}} \cdot P_{\omega}^2 \cdot L^2 \cdot \text{sinc}^2 \left(\frac{\Delta k_Q^m \cdot L}{2} \right) \cdot \sin^2(\pi \cdot m \cdot D) \quad (1.20)$$

e ricordando che $d_Q = d_{\text{eff}} \cdot \frac{2}{\pi \cdot m} \cdot \sin(\pi \cdot m \cdot D)$:

$$P_{2\omega} = \frac{8 \cdot \pi^2 \cdot d_Q^2}{n_{\omega}^2 \cdot n_{2\omega} \cdot c \cdot \varepsilon_0 \cdot \lambda_{\omega}^2 \cdot A_{\text{eff}}} \cdot P_{\omega}^2 \cdot L^2 \cdot \text{sinc}^2 \left(\frac{\Delta k_Q^m \cdot L}{2} \right) \quad (1.21)$$

Quest'ultima rappresenta la potenza della seconda armonica in uscita dal dispositivo per la conversione di frequenza.

L'espressione dell'efficienza di conversione non lineare nel *QPM* è data dunque da :

$$\eta = \frac{P_{2\omega}}{P_{\omega}} = \frac{8 \cdot \pi^2 \cdot d_Q^2}{n_{\omega}^2 \cdot n_{2\omega} \cdot c \cdot \varepsilon_0 \cdot \lambda_{\omega}^2 \cdot A_{\text{eff}}} \cdot P_{\omega} \cdot L^2 \cdot \text{sinc}^2 \left(\frac{\Delta k_Q^m \cdot L}{2} \right) \quad (1.22)$$

Per quantificare l'efficienza della generazione di seconda armonica si definiscono spesso delle opportune cifre di merito (*FOM*) :

$$\eta_{\text{nor}} = \frac{\eta}{P_{\omega} \cdot L^2} = \frac{P_{2\omega}}{(P_{\omega} \cdot L)^2} \quad [\% / (W \cdot \text{cm}^2)] \quad (1.23)$$

$$\eta' = \frac{P_{2\omega}}{P_{\omega}^2} \quad [\% / W] \quad (1.24)$$

la prima cifra di merito (η) normalizza la conversione per un dispositivo con lunghezza unitaria, mentre la seconda (η') fornisce l'efficienza ottenuta in un dato dispositivo. Sono entrambe importanti, visto che la prima misura il potenziale di una data struttura, e la seconda rispecchia la realizzazione tecnologica migliore per quel dato materiale [27]. E' importante, inoltre, ricordare che l'efficienza di conversione e, dunque, di interazione, in una guida d'onda, è influenzata notevolmente dall'integrale di sovrapposizione ("overlap") nella sezione trasversale fra i modi della guida, il coefficiente di *Fourier* relativo al reticolo dei domini ferroelettrici usato per il *Quasi-Phase-Matching* ed il coefficiente non lineare della guida d'onda. In Fig. 1.4 si mostra un esempio di integrale di *overlap* nel caso di *QPM* in una guida di 5 μm di larghezza:

l'integrale di sovrapposizione è dato dall'area tratteggiata, esso è il prodotto tra l'area che rappresenta i modi in guida, l'area che rappresenta il coefficiente di *Fourier* del reticolo dei domini e l'area del coefficiente non lineare della guida.

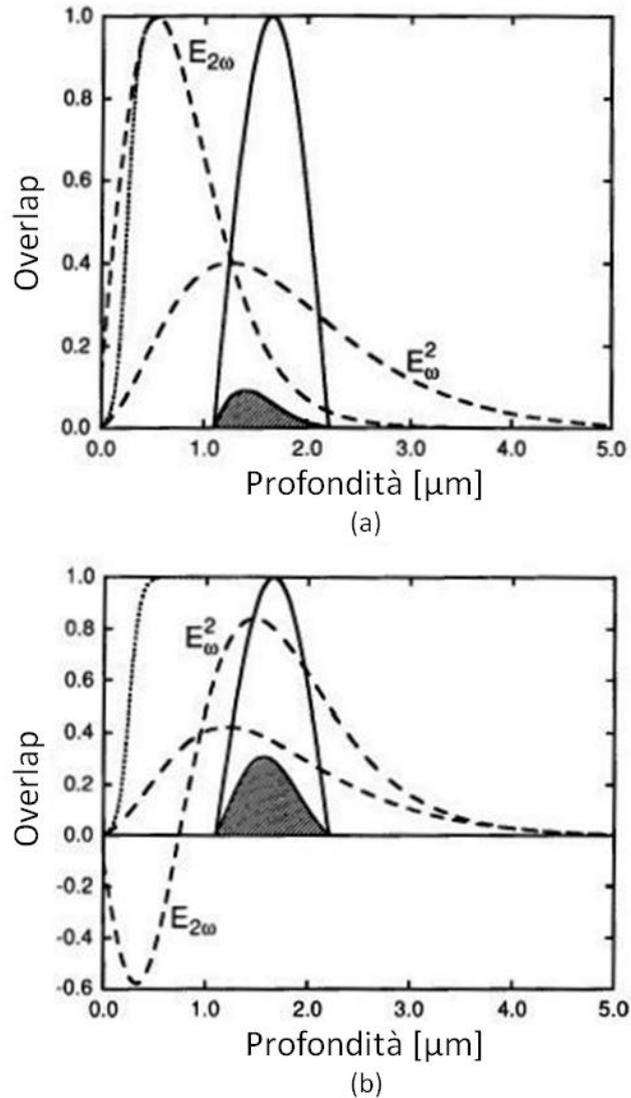


Fig. 1.4 Illustrazione di un integrale di *overlap* per una guida di $5.00 \mu\text{m}$ di larghezza. In (a) e (b), le curve tratteggiate rappresentano E_{ω}^2 e $E_{2\omega}$, la curva a tratto continuo è la funzione $G(z)$, la curva punteggiata è il coefficiente d_{33} normalizzato della guida d'onda e l'area evidenziata è l'integrale di *overlap* per la seconda armonica del modo TM_{00} (a) e del modo TM_{01} (b). (dal Rif. [28])

La valutazione degli integrali di *overlap* è utile nella progettazione di dispositivi con efficienza ottimizzata e la conoscenza degli indici efficaci dei modi è vantaggiosa per un'accurata determinazione della lunghezza d'onda del *Phase Matching* [29].

Nei prossimi capitoli esamineremo attentamente i parametri fisici, i materiali (cristalli ottici non lineari) ed i processi tecnologici impiegati nella progettazione di dispositivi

per la generazione della seconda armonica che operi nel campo del vicino infrarosso.

1.5 Parametri che influiscono sulla condizione di sincronismo

Come precedentemente ricavato, l'intensità di seconda armonica aumenta, sia in condizioni di perfetto *Phase Matching* che in quelle di *Quasi-Phase-Matching*, con l'intensità della fondamentale e con la lunghezza del cristallo entro cui si propaga la radiazione [30]. In particolare risulta:

$$I_{2\omega} \propto L^2 I_{\omega}^2 \quad (1.25)$$

Si potrebbe dunque pensare di aumentare l'intensità di seconda armonica agendo sulla lunghezza del cristallo e/o sull'intensità della fondamentale. Purtroppo, non appena si aumenta la lunghezza del cristallo, al fine di incrementare l'efficienza di conversione, il processo non lineare diviene più sensibile a fattori quali l'incertezza sul periodo del reticolo (dovuta al processo costruttivo utilizzato per la fabbricazione), la temperatura alla quale è svolto il processo ottico, i cambiamenti nel valore degli indici efficaci della guida indotti dalla presenza del reticolo, le fluttuazioni nella lunghezza d'onda delle onde inviate sul materiale, ed altri ancora.

D'altra parte aumentare l'intensità del fascio immesso, significherebbe ridurre l'area della faccia di ingresso del cristallo, essendo $I = P/A$ e, dunque, aumentare la focalizzazione del fascio laser sulla stessa, con un conseguente aumento della divergenza di questo. Nel tentativo di mantenere confinato il fascio all'interno del dispositivo si dovrebbe comunque ridurre la lunghezza d'interazione per cui l'efficienza di conversione ne risulterebbe inalterata. Ciò si può comprendere meglio osservando la Fig. 1.5.

La distanza fino alla quale il fascio può considerarsi focalizzato è espressa dalla:

$$b = \frac{\pi w_0^2}{\lambda} \quad (1.26)$$

che indica la distanza tra la vita del fascio e il punto in cui l'area del fascio raddoppia rispetto al suo valore minimo. Affinché il fascio sia focalizzato lungo tutta l'estensione del cristallo occorre che la lunghezza di questo non superi il valore di b . Inoltre l'aumento della focalizzazione del fascio rende, nel caso di BPM, l'interazione più sensibile al fenomeno del *walk-off* riducendo la lunghezza di apertura.

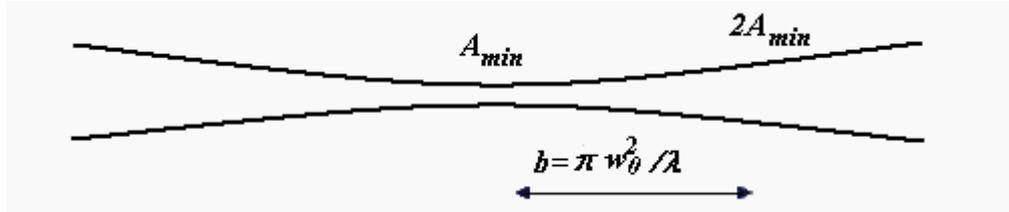


Fig. 1.5 Distanza entro cui il fascio si considera focalizzato. (dal Rif. [30])

Nell'ottica di definire il grado di tolleranza che è ammissibile in ciascuna causa di possibile *mismatch* in fase, si è adottato un criterio nella valutazione delle variazioni possibili di questi parametri durante l'interazione ottica definito *Full Width at Half Maximum* (FWHM) [4], nel quale si considera ammissibile una variazione dei parametri se questa porta ad una riduzione massima dell'efficienza di processo del 50%. Ciò, osservando che tale efficienza sia in caso di QPM che nel caso di *Phase Matching* tradizionale, dipende dalla funzione $\text{sinc}^2(\Delta k \cdot L/2)$, equivale a imporre la condizione che tale funzione sia pari ad 1/2 (il suo valore massimo è, infatti, 1), ovvero che il suo argomento sia pari a 0.4429π .

Utilizzando detto criterio sono stati ottenuti i seguenti risultati:

- Massimo scostamento nel periodo Λ

Supponendo il reticolo perfettamente periodico ma con periodo non esattamente coincidente con quello determinato teoricamente, si ha:

$$\delta\Lambda = \frac{1.77\Lambda}{Nm} = \frac{3.55ml_c^2}{L} \quad (1.27)$$

Il vincolo risulta dunque più stringente quanto più piccola è la lunghezza di coerenza e quanto maggiore è il numero dei domini N ovvero anche la lunghezza del dispositivo.

- Massimo scostamento nella lunghezza d'onda (ampiezza di banda)

Risulta pari a:

$$\delta\lambda = \frac{0.4429\lambda}{L} \left| \frac{n_{2\omega} - n_\omega}{\lambda} + \frac{\delta n_\omega}{\delta\lambda} - \frac{1}{2} \frac{\delta n_{2\omega}}{\delta\lambda} \right|^{-1} \quad (1.28)$$

Dunque cristalli più lunghi danno una minore tolleranza alle variazioni di frequenza. Inoltre l'ampiezza di banda, che sembrerebbe crescere con la lunghezza d'onda, è in realtà maggiore a lunghezze d'onda più piccole perché, in corrispondenza di queste, si riduce la dispersione.

Il QPM presenta un'ampiezza di banda minore rispetto al BPM a causa della

presenza del primo termine in parentesi, assente nel caso di perfetto *Phase Matching* in quanto risulta $n_{2\omega} = n_{\omega}^1$.

- Massimi scostamenti di temperatura

Se α è il coefficiente di dilatazione termica si ha:

$$\delta T = \frac{0.4429\lambda}{L} \left| \frac{\delta \Delta n}{\delta T} + \alpha \Delta n \right|^{-1} \quad (1.29)$$

Nel QPM, diversamente dal BPM, grazie alla possibilità di utilizzare la stessa polarizzazione per le onde interagenti, si ha una banda di temperatura più grande nei materiali nei quali la dispersione è poco sensibile a variazioni termiche.

- Massimi scostamenti angolari

Nel caso di interazione non collineare, ovvero nel caso in cui il vettore reticolare introduce una correzione non solo sul modulo dell'errore di sincronismo, ma anche sulla sua fase (Fig. 1.6), si verifica un fenomeno analogo al *walk-off*, per quanto indipendente dalla birifrangenza e dovuto alle diverse direzioni dei vettori d'onda delle radiazioni interagenti, invece che dei vettori di *Poynting*.

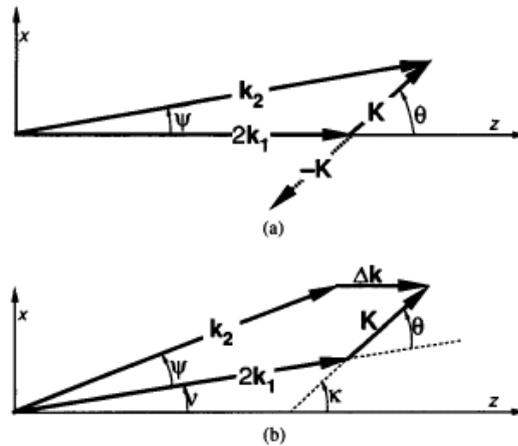


Fig. 1.6 Diagramma vettoriale per l'analisi della banda angolare FWHM: a) phase matching; b) assenza di phase matching. (dal Rif. [4])

Per esso si ricava l'espressione:

$$\delta \nu \approx 0.886 \frac{\cos(\nu)}{\sin(\kappa - \nu)} \frac{\Lambda}{L} \quad (1.30)$$

Quindi, per valori di $\theta = \kappa - \nu$ prossimi a zero, vale a dire in condizioni di *Phase Matching* non critico, la banda angolare tende ad infinito.

¹La banda è più ampia nel caso dei *chirped gratings*, aventi periodo $\Lambda = \Lambda_0 / (1 + rz)$.

In questo caso la banda angolare è data dal secondo termine dello sviluppo in serie di Taylor dell'errore di sincronismo in funzione dell'angolo ν e risulta:

$$\delta\nu = 2 \cdot \sqrt{1.772 \frac{n_{2\omega}}{n_\omega} \frac{l_c}{L} \cos(\nu)} \quad (1.31)$$

La banda risulta allora inversamente proporzionale alla radice della lunghezza del dispositivo e cresce notevolmente rispetto al caso di *Phase Matching* critico.

1.6 Configurazioni di QPM

Come mostrato in Fig. 1.7, esistono diverse configurazioni per ottenere generazione di seconda armonica, mediante la tecnica del *Quasi-Phase-Matching* [31].

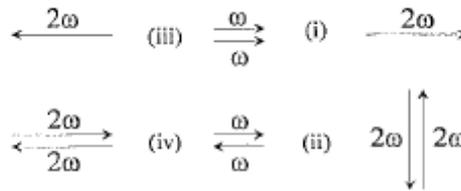


Fig. 1.7 Quattro configurazioni di SHG, basate sul QPM: (i) co-propagante; (iii) retro-propagante; (ii) e (iv) contro-propagante. (dal Rif. [31])

Nella configurazione co-propagante (*forward-QPM* o *FQPM*) l'onda fondamentale e quella di seconda armonica si propagano lungo la stessa direzione (Fig. 1.7(i)). La dispersione tra le due onde è compensata dalla modulazione periodica del coefficiente non lineare del materiale. Come si è visto precedentemente, tale periodicità interviene nell'equazione di conservazione del momento attraverso il vettore d'onda K_m , che è inversamente proporzionale al periodo di inversione dei domini Λ : $K_m = 2m\pi/\Lambda$. La conservazione del momento, per questa configurazione, è espressa dalla seguente equazione:

$$k_2 - 2k_1 = K_m \quad (1.32)$$

dalla quale è possibile ricavare il periodo Λ , affinché sia realizzata la condizione di QPM:

$$\Lambda = m \frac{\lambda}{2(n_2 - n_1)} \quad (1.33)$$

I risultati ottenuti precedentemente sono relativi a questo tipo di configurazione.

Nella configurazione retro-propagante (*backward-QPM* o *BQPM*), adottando un approccio tipico della fisica quantistica, due fotoni alla frequenza fondamentale

interagiscono con il mezzo non lineare del secondo ordine generando un fotone alla frequenza di seconda armonica, che si propaga in una direzione opposta rispetto a quella dei due fotoni (Fig. 1.7(iii)). Quindi, poiché in questa configurazione l'onda fondamentale e quella di seconda armonica si propagano in direzioni opposte, la conservazione del momento è espressa dall'equazione:

$$k_2 + 2k_1 = K_m \quad (1.34)$$

e quindi il periodo Λ vale:

$$\Lambda = m \frac{\lambda}{2(n_2 + n_1)} \quad (1.35)$$

che è più piccolo (a parità delle altre grandezze) rispetto a quello richiesto per FQPM.

Nella configurazione contro-propagante (*counterpropagating-QPM* o *CQPM*) sono presenti due onde contro-propaganti (viaggianti cioè in direzioni opposte) alla frequenza fondamentale, che, interagendo con il mezzo non lineare, possono generare due onde contro-propaganti alla frequenza della seconda armonica. In questo caso, le onde di seconda armonica possono avere la stessa direzione di propagazione di quelle fondamentali (Fig. 1.7(iv)) oppure possono propagarsi normalmente alla superficie delle guide d'onda (*surface-emitting geometry*, Fig. 1.7.(ii)) [27,31]. In questo tipo di configurazione ci sono ben sei diverse interazioni di *Phase Matching*, che possono anche verificarsi contemporaneamente, mentre nel FQPM e nel BQPM se ne possono avere al più due [32]. Poiché i momenti relativi alle onde fondamentali sono uguali in modulo e opposti in verso, l'equazione di conservazione fornisce:

$$K_m = k_2 \quad (1.36)$$

e pertanto il periodo di inversione dei domini è uguale a:

$$\Lambda = m \frac{\lambda}{2n_2} \quad (1.37)$$

che, nel caso di QPM del primo ordine, coincide con la lunghezza d'onda della seconda armonica nel materiale. Da un confronto delle equazioni 1.33, 1.35 e 1.37, risulta evidente che il periodo richiesto per il CQPM è compreso tra quello richiesto per il BQPM e quello per il FQPM.

1.7 La configurazione retro-propagante (BQPM)

Visto che parte del presente lavoro di tesi è finalizzato alla progettazione e alla realizzazione di un dispositivo per la generazione di seconda armonica in configurazione retro-propagante (BSHG – *Backward Second Harmonic Generation*), in questo paragrafo si parlerà in maniera più diffusa di tale configurazione.

In base alla teoria della BSHG, se è possibile realizzare un'inversione dei domini con una periodicità sufficientemente piccola $\Lambda = m \frac{\lambda}{2(n_2 + n_1)}$, allora può realizzarsi *Quasi-*

Phase-Matching tra un'onda incidente alla frequenza fondamentale e un'onda di seconda armonica viaggianti in direzioni opposte. La seconda armonica è generata in riflessione [4,33]. L'accordo in fase tra tali onde è garantito proprio dalla scelta del periodo Λ .

Si è già osservato che tale periodo è molto piccolo rispetto a quello necessario per il FQPM ed in particolare, per il QPM del primo ordine, il valore richiesto per Λ andrebbe oltre i limiti consentiti dall'attuale tecnologia adottata per la realizzazione del *poling* periodico. Numericamente nel LiNbO₃, per realizzare il QPM del primo ordine ad una lunghezza d'onda della fondamentale di 1.55 μm occorrerebbe un'inversione dei domini con periodo $\Lambda = 0.178 \mu\text{m}$ circa, valore attualmente non disponibile per i suddetti limiti tecnologici [34]. Pertanto, non riuscendo a realizzare periodi inferiori al micron, non si può far altro che ottenere l'accordo in fase con un ordine m superiore. Tuttavia, poiché per un processo di QPM di ordine m con un *duty-cycle* del 50%, l'efficienza di conversione varia come $1/m^2$ l'uso di QPM avente ordine superiore costituisce un serio problema in termini di potenza di seconda armonica ottenibile [4,32].

Nel 1997 Kang *et al.* hanno dimostrato per la prima volta una generazione di seconda armonica in configurazione retro-propagante in campioni di Niobato di Litio con *Poling* Periodico (PPLN - *Periodic Poling Lithium Niobate*) *bulk* con una efficienza di conversione massima di circa 0.02% [34]. È stato realizzato un campione avente lunghezza di 6 mm su LiNbO₃ *z-cut*, avente spessore di 230 μm sul quale è stata realizzata una modulazione periodica del coefficiente non lineare, con periodo di 3.3 μm , mediante la tecnica del *poling*.

Le facce di ingresso e di uscita del campione sono state tagliate secondo un angolo tale da eliminare le riflessioni del fascio incidente. Sono stati usati un amplificatore

parametrico ottico *tunable* pompato da un laser a Ti:zaffiro ed un opportuno sistema di lenti al fine di collimare il fascio. Prima della faccia di ingresso del campione è stato posto un *beam splitter* 50/50 allo scopo di riflettere l'onda di seconda armonica retro-propagante e di farla incidere su un rivelatore, che ne misura la potenza media minimizzando il contributo della potenza di seconda armonica co-propagante riflessa.

L'andamento della potenza della seconda armonica retro-propagante al variare della lunghezza d'onda λ della fondamentale, ha evidenziato dei picchi in corrispondenza ai valori di λ di 1490, 1600 e 1700 nm circa, per i quali si ha rispettivamente l'ordine 19°, 18° e 17° di QPM. Inoltre, si è osservata chiaramente una diminuzione dell'efficienza di seconda armonica all'aumentare dell'ordine di QPM.

Kang *et al.* hanno anche ricavato un'espressione per l'efficienza di conversione per la configurazione retro-propagante (nel caso *bulk*), nell'ipotesi di sorgente laser ad impulsi molto stretti. Poiché la fondamentale e la seconda armonica si propagano in direzioni opposte, la lunghezza di interazione efficace per il processo è determinata dalla durata dell'impulso della pompa. E' stata ricavata, per l'efficienza di conversione in termini di densità di energia per impulso, la seguente espressione:

$$\eta = \frac{Lc\eta_0 I_\omega \tau [\chi_0^{(2)}]^2}{2n_1^2 n_2 (n_1 + n_2)^3 \Lambda^2} \quad (1.38)$$

dove $\chi_0^{(2)}$ è la suscettività del secondo ordine di ogni dominio, I_ω è l'intensità di picco del fascio fondamentale, τ è l'ampiezza dell'impulso del laser, L è la lunghezza del reticolo e η_0 è l'impedenza del vuoto, essendo già noti gli altri simboli. Si osservi la proporzionalità tra l'efficienza di conversione e la lunghezza L , mentre esiste una dipendenza quadratica nel caso *forward*. Comunque nel caso di regime quasi-CW (CW - *Continuous Wave*), in cui il laser emette impulsi lunghi, si dimostra che l'efficienza è proporzionale al quadrato della lunghezza del reticolo [34,35].

Una trattazione matematica rigorosa dell'interazione non lineare tra l'onda fondamentale e quella di seconda armonica retro-propagante è fornita in [33] in cui a partire dalle equazioni (*coupled-wave equations*) [25,36] per la fondamentale e la seconda armonica, si ricavano espressioni dell'efficienza di conversione riassunti nelle seguenti Figg. 1.8(a) e 1.8(b).

Ding *et al.* in [31] hanno analizzato il processo di generazione di seconda armonica

in configurazione retro-propagante, usando una sorgente laser (alla frequenza della fondamentale) avente impulsi con profilo a *sinc* o gaussiano.

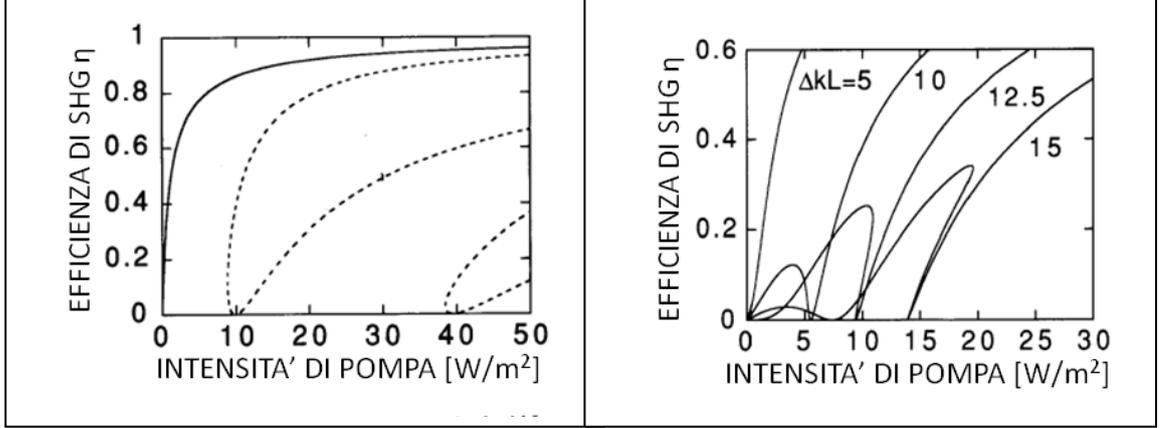


Fig. 1.8 Efficienza di SHG ottenuta mediante interazione retro-propagante in funzione della potenza di pompa: (a) caso in cui $\Delta k_Q^m L = 0$; (b) caso in cui $\Delta k_Q^m L \neq 0$. (dal Rif. [33])

Tali forme di impulsi possono essere usate per approssimare i profili degli impulsi della maggior parte dei laser funzionanti in *Q-switching* e *mode-locking*.

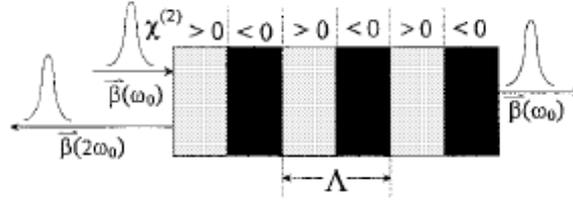


Fig. 1.9 Configurazione di *backward* SHG, in cui sono evidenziati gli impulsi relativi all'onda fondamentale e alla seconda armonica [31].

In particolare, nel caso di impulsi a forma di *sinc*, è stata ricavata la seguente espressione per l'intensità della seconda armonica retro-propagante (anche qui è *bulk*):

$$I_{2\omega} = \frac{c^2 \eta_0 \tau^2 [\chi_0^{(2)}]^2 I_\omega^2}{2n_1^2 n_2 (n_1 + n_2)^4 \Lambda^2} \xi^2 \quad (1.39)$$

dove il significato dei simboli è uguale a quello dato precedentemente e

$$\xi = \frac{1}{\pi \int_{-\pi T}^{\pi(M_b - T)} \frac{\sin^2 u}{u^2} du} \quad (1.40)$$

$$\text{con } M_b = L \frac{n_1 + n_2}{\tau c} = \frac{\lambda_0 L}{2\tau c \Lambda} m \text{ e } T = \frac{t}{\tau}.$$

Nel caso di impulsi gaussiani, l'intensità di uscita della seconda armonica è:

$$I_{2\omega} = \frac{\eta_0 [\chi_0^{(2)}]^2 I_\omega^2 \tau^2 c^2}{2n_1^2 n_2 (n_1 + n_2)^4 \Lambda^2} H(t) \quad (1.41)$$

dove $H(t)$ è il profilo temporale dell'intensità di seconda armonica:

$$H(t) = \left[P(\sqrt{2}M_b - \sqrt{2}T) + P(\sqrt{2}T) - 1 \right]^2 \quad (1.42)$$

essendo $P(x)$ l'integrazione della funzione di probabilità gaussiana normalizzata.

1.8 Confronto tra FQPM e BQPM

E' già stato osservato che uno svantaggio della configurazione retro-propagante rispetto a quella co-propagante, consiste nella grande difficoltà di ottenere QPM di ordine basso e pertanto di avere alta efficienza di conversione. Il comportamento temporale del fascio di seconda armonica retro-propagante è determinato dalle stesse funzioni di quelle presenti nella configurazione co-propagante. In particolare, in entrambe le configurazioni è presente la funzione $\text{sinc}\left(\frac{\Delta k_Q^m L}{2}\right)$, che "filtra" lo spettro

in ingresso, definito dalla trasformata di *Fourier* del quadrato dell'impulso emesso dal laser. Tuttavia, se $\tau \ll L(n_2 + n_1)/c$, l'ampiezza dell'impulso dell'onda di seconda armonica si allarga molto di più rispetto al caso di SHG co-propagante [31]. Inoltre, le ampiezze di banda sono piuttosto diverse per le due configurazioni [4]. In particolare ci si riferisce a $\delta\lambda$, ampiezza di banda di accettazione della lunghezza d'onda λ , definita come quell'insieme di valori di λ (centrati attorno alla lunghezza d'onda di QPM) per cui l'efficienza di conversione non scende al di sotto della metà del valore massimo. L'ampiezza di banda FWHM è data da [4]:

$$\delta\lambda = \frac{0.4429\lambda}{L} \left| \frac{n_2 \pm n_1}{\lambda} + \frac{\partial n_1}{\partial \lambda} \pm \frac{1}{2} \frac{\partial n_2}{\partial \lambda} \right|^{-1} \quad (1.43)$$

dove, nel caso di doppio segno, il $-$ è sempre riferito alla configurazione *forward*, mentre il $+$ è sempre riferito alla configurazione *backward*.

Poiché i termini di dispersione sono sommati invece di essere sottratti, l'ampiezza di banda per l'interazione retro-propagante è molto più piccola di quella per l'interazione co-propagante, quando l'intensità dell'ingresso è piccola.

Tuttavia in [33] è dimostrato che in una interazione retro-propagante, il desincronismo di fase diminuisce all'aumentare della potenza in ingresso, mentre nel caso co-

propagante si ha un suo aumento con la potenza. Pertanto, per il caso retro-propagante, all'aumentare dell'intensità si ha una riduzione del desincronismo di fase e quindi la banda di accettazione della lunghezza d'onda risulta maggiore rispetto al caso co-propagante. Il risultato appena commentato è mostrato in Fig. 1.10.

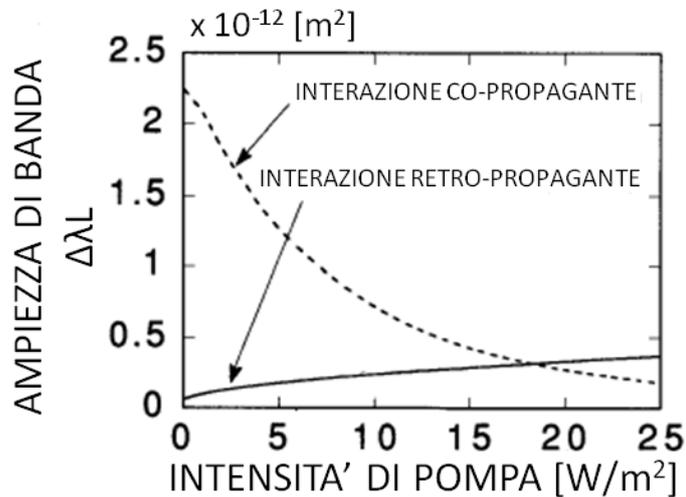


Fig. 1.10 Confronto tra le ampiezze di banda per *backward* e *forward* SHG, in funzione della intensità di pompa. (dal Rif. [33])

Riassumendo quest'ultimo aspetto, si può quindi affermare che l'ampiezza di banda FWHM per ottenere SHG efficiente in configurazione retro-propagante aumenta all'aumentare della intensità di pompa, contrariamente a quanto avviene nella configurazione classica co-propagante. Ne risulta un indubbio vantaggio della prima configurazione nelle operazioni in cui sono coinvolte elevate potenze.

Altri vantaggi della configurazione retro-propagante rispetto a quella co-propagante sono [31]:

- Se le facce di ingresso e di uscita del dispositivo sono rese tali da non riflettere la lunghezza d'onda fondamentale, è molto più semplice separare il fascio di seconda armonica da quello fondamentale.
- Per periodi corti si può avere QPM per la configurazione retro-propagante, mentre quella co-propagante non sarebbe accordabile all'interno del *range* di trasparenza del cristallo non lineare. Questa osservazione permette di capire come il processo di generazione di seconda armonica in configurazione retro-propagante può essere usato per determinare il periodo dei domini.
- Inoltre, come mostrato in [34], l'efficienza di conversione per BQPM può essere ugualmente grande sia per ordini pari che per ordini dispari di QPM,

contrariamente al caso di FQPM, in cui, se il *duty cycle* è del 50%, l'efficienza per ordini dispari è molto più elevata rispetto a quella per ordini pari.

Poiché nel BQPM è intrinsecamente presente un'azione di *feedback*, è semplice intuire come questo tipo di configurazione si presti naturalmente alla realizzazione di dispositivi totalmente ottici che presentano fenomeni di bistabilità, di *switching* [33] e di auto-oscillazione [32]. La presenza del *feedback* è dovuta alla natura spazialmente reversibile del processo. Per un'onda fondamentale che si propaga verso destra, viene generata un'onda di seconda armonica (*upconversion*) che si propaga verso sinistra. Tale onda, dopo aver percorso un certo tratto ed avere accumulato un certo sfasamento, può riconvertirsi nella fondamentale (*downconversion*). L'alternanza dei processi di *upconversion* e *downconversion* determina un anello di reazione non lineare [32]. Le proprietà di bistabilità ottenibili mediante l'interazione retro-propagante, non possono essere realizzate nel caso della configurazione co-propagante, a meno che non si introduca un *feedback* esterno [33].

1.9 Materiali e tecnologie per il QPM

Tra i vari materiali non lineari, quelli maggiormente utilizzati sono il Niobato di Litio, il Tantalato di Litio, la famiglia del Titanil Fosfato di Potassio (KTiOPO_4 o KTP) e i suoi isomorfi [37].

I processi tecnologici che portano alla realizzazione di un dispositivo ottico non lineare basato sulla teoria del QPM sono numerosi, ma quelli che restringono maggiormente la lista dei potenziali cristalli non lineari adatti per tale applicazione sono la fabbricazione delle guide d'onda e l'inversione dei domini, che, come già accennato, sono porzioni di volume all'interno del cristallo con un'unica orientazione della polarizzazione spontanea. Per quanto riguarda la fabbricazione delle guide d'onda, il metodo utilizzato con migliori risultati nei cristalli non lineari è quello basato sullo scambio ionico. In questo processo, la geometria della guida d'onda è definita mediante una maschera sulla superficie del cristallo. Quest'ultimo successivamente viene immerso in un bagno fuso (*melt*) contenente gli ioni da scambiare. Gli ioni del cristallo diffondono fuori verso la soluzione di scambio, mentre da essa diffondono ioni dentro il cristallo, occupando le posizioni lasciate libere. Ne risulta un incremento dell'indice di rifrazione. Per esempio, nel KTP ioni Rb sostituiscono ioni K, mentre nel LiNbO_3 e nel LiTaO_3 ioni idrogeno

(protoni) sostituiscono ioni Li (per questo motivo, negli ultimi due cristalli, il processo prende il nome di scambio protonico).

Per quanto riguarda l'inversione dei domini, i materiali da adoperare devono essere ferroelettrici, cioè devono presentare una polarizzazione elettrica permanente. Tale polarizzazione può essere modificata, assumendo almeno due diverse direzioni. La rotazione di 180° della direzione di polarizzazione comporta, come già detto precedentemente, la variazione del segno del tensore non lineare di suscettività $\chi^{(2)}$ e, quindi, anche del tensore d . Il processo di inversione periodica dei domini ferroelettrici prende il nome di “*poling* periodico” ed il Niobato e Tantalato di Litio con *poling* periodico sono spesso indicati con PPLN e PPLT, rispettivamente (*Periodically Poled Lithium Niobate* e *Periodically Poled Lithium Tantalate*).

Si ricorda che esistono diverse tecniche per la sua realizzazione: una prima tecnica sfrutta la diffusione ad alta temperatura di metalli [38,39]. In questo modo si ottengono strutture periodiche di alta qualità, ma si osserva una scarsa profondità di penetrazione nel substrato e, inoltre, i domini ferroelettrici così ottenuti, hanno profilo triangolare o semicircolare, da cui consegue una scarsa efficienza di conversione.

Sono state utilizzate anche altre tecniche, come la modulazione della polarità del cristallo in fase di crescita [40] e il bombardamento con fasci elettronici pilotati [41-44]; ma la difficile riproducibilità e l'elevato costo, soprattutto nel caso di *poling* con fascio elettronico, ne impediscono l'utilizzo per scopi commerciali.

I risultati migliori si sono ottenuti con l'applicazione lungo l'asse ottico, tramite elettrodi periodici ottenuti litograficamente, di elevati campi elettrici su materiali ferroelettrici non lineari. Tale metodo permette la realizzazione di domini molto ben definiti su tutto lo spessore (fino ad 1mm) e con una notevole lunghezza di interazione (fino a qualche cm); inoltre, risulta poco costoso, facilmente applicabile e presenta, rispetto a tutti gli altri, un'elevata riproducibilità. Questa tecnica prende il nome di *poling* tramite campo elettrico. I primi ad utilizzare un campo elettrico per la realizzazione di strutture periodiche sul LiNbO_3 furono, come già detto, Yamada *et al.* [10], che, nel 1993, sfruttarono la configurazione *QPM* per la generazione di seconda armonica in guida d'onda.

1.10 Conclusioni

In questo capitolo si è fornito al lettore un attento studio del *Quasi-Phase-Matching*, cercando di descrivere, inizialmente, il fenomeno considerato da un punto di vista strettamente teorico per, poi, trattare in dettaglio le diverse configurazioni e descriverne le caratteristiche. Si sono, quindi, esaminati i materiali e le tecniche di implementazione di questo metodo. Il QPM rappresenta una tecnica assai efficiente per la generazione ed il mantenimento della generazione di seconda armonica nei materiali non lineari e ricopre un ruolo importante nell'elaborazione dei segnali ottici.

Questa trattazione ha lo scopo di analizzare il fenomeno fisico sul quale si basano tutti i dispositivi realizzati in questo lavoro di tesi.

1.11 Riferimenti bibliografici

- [1] M. M. Fejer, G. A. Magel, and E. J. Lim, "Quasi-phase-matched interactions in lithium niobate," *Proc. SPIE*, vol. 1148, *Nonlinear Optical Properties of Materials*, pp. 213-224, 1989.
- [2] J. A. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing, and P. S. Pershan, "Interactions between light waves in a nonlinear dielectric," *Physical Review*, vol. 127, no. 6, pp. 1918-1939, 1962.
- [3] P. A. Franken and J. F. Ward, "Optical harmonics and nonlinear phenomena," *Reviews of Modern Physics*, vol. 35, no. 1, pp. 23-39, 1963.
- [4] M. M. Fejer, G. A. Magel, D.H. Jundt, and R. L. Byer, "Quasi-phase-matched second harmonic generation: tuning and tolerance," *IEEE Journal of Quantum Electronics*, vol.28, no. 1, 2631-2654.
- [5] V. Pruneri, P.G. Kazansky, J. Webjorn, P. St. J. Russell, D. C. Hanna, "Self-organized light-induced scattering in periodically poled lithium niobate," *Applied Physics Letters*, vol. 67, no. 14, pp.1957-1959, 1995.
- [6] M. Houé, P. D. Townsend, "An introduction to methods of Periodic Poling for second harmonic generation," *School of Mathematical and Physical Sciences*, University of Sussex, Brighton, UK, pp. 1747-1763,1995.
- [7] E. Rosencher, M. Baudrier, R. Haidar, A. Godard, M. Lefebvre, E. Ph. Kupecek, "Innovative optical parametric sources using isotropic semiconductors," Onera, University PCM.
- [8] C. C. Davis, "Lasers and Electro-optics," Cambridge University Press.
- [9] D. Hanna, "Nonlinear frequency conversion in quasi-phase-matched materials," Optoelectronics Research Centre, University of Southampton, *slides*.
- [10] M. Yamada, N. Nada, M. Saitoh, and K. Watanabe, "First order quasi phase matched LiNbO₃ waveguide periodically poled by applying an external field for efficient blue second harmonic generation," *Applied Physics Letters*, vol. 62, pp. 435-437, 1993.
- [11] D. Delacourt, F. Armani, and M. Papuchon, "Second-harmonic generation efficiency in periodically poled LiNbO₃ waveguides," *IEEE Journal of Quantum Electronics*, vol. 30, pp. 1090-1099, 1994.
- [12] S. Somekh and A. Yariv, "Phase-matchable nonlinear optical interactions in periodic thin films," *Applied Physics Letters*, vol. 21, pp. 140-141, 1972.
- [13] C.L. Tang and P.B. Bey, "Phase matching in second-harmonic generation using artificial periodic structures," *IEEE Journal of Quantum Electronics*, vol. QE-9, pp. 9-17, 1973.
- [14] B. Jaskorzynska, G. Arvidsson, and F. Laurell, "Periodic structure for phase-matching in second harmonic generation in titanium lithium niobate waveguides," *Proc. SPIE*, vol. 651, pp. 221-228, 1986.

-
- [15] J.D. Bierlein, D. B. Laubacher, J.B. Brown, and C.J. van der Poel, "Balanced phase matching in segmented KTiOPO₄ waveguides," *Applied Physics Letters*, vol. 56, pp. 1725-1727, 1990.
 - [16] J. Khurgin, S. Colak, R. Stoltzenbergen, and R.N. Bhargava, "Mechanism for efficient blue efficient blue second-harmonic generation in periodically segmented waveguides," *Applied Physics Letters*, vol. 57, pp. 2540-2542, 1990.
 - [17] A. Szilagy, A. Hordvik, and H Schlossberg, "A quasi-phase-matching technique for efficient optical mixing and frequency doubling," *Journal of Applied Physics*, vol. 47, pp. 2025-2032, 1976.
 - [18] S. Somkeh and A. Yariv, "Phase matching by periodic modulation of the non linear optical properties," *Optics Communications*, vol. 6, pp. 301-304, 1972.
 - [19] Y. Yacoby, R. L. Aggarwal, and B. Lox, "Phase matching by periodic variation of nonlinear coefficients," *Journal of Applied Physics.*, vol.44, pp. 3180-3181, 1973.
 - [20] J. D. McMullen, "Optical parametric interactions in isotropic materials using a phase-corrected stack of nonlinear dielectric plates," *Journal of Applied Physics*, vol. 46, pp. 3076-3081, 1975.
 - [21] A. Yariv and P.Yeh, "Electromagnetic propagation in periodic stratified media. II. Birefringence, phase matching, and x-ray lasers," *Journal of the Optical Society of America*, vol. 67, no. 4, pp. 438-448, 1977.
 - [22] R.C. Alferness, S. K. Korotky, and E.A. J. Marcatili, "Velocity-matching techniques for integrated optic traveling wave switch/modulators," *IEEE Journal of Quantum Electronics*, vol. QE-20, pp. 301-309, 1984.
 - [23] M. Nazarathy, D. W. Dolphi, and R.J. Jungerman, "Spread spectrum frequency response of coded phase reversal traveling wave modulators," *Journal of Lightwave Technology*, vol. LT-5, pp. 1433-1443, 1987.
 - [24] S. Stivala, "Dispositivi Ottici Non-Lineari basati sulla tecnologia del Poling Periodico Superficiale del Niobato di Litio," *Tesi di Laurea*, Università degli studi di Palermo, DIEETCAM, A.A. 2003/04.
 - [25] V. Pruneri, "Electric field periodically inverted LiNbO₃ for optical frequency conversion", Thesis submitted for the degree of Doctor of Philosophy, p. 17, May 1996.
 - [26] J. Webjörn, S. Siala, D. W. Nam, R.G. Waarts, and R. J. Lang, "Visible laser sources based on frequency doubling in nonlinear waveguides," *IEEE Journal of Quantum Electronics*, vol. 33, pp. 1673-1686, 1997.
 - [27] G. I. Stegeman and G. Assanto, "Nonlinear integrated optical devices", in *E.J. Murphy (ed.)*, *Integrated Optical Circuits and Components*, pp. 381-418, Marcel Dekker, New York, 1999.
 - [28] M. L. Bortz, S. J. Field, M. M. Fejer, D.W. Nam, R.G. Waarts, and D.F. Welch, "Noncritical quasi-phase-matched second harmonic generation in an annealed proton-exchanged LiNbO₃ waveguide," *IEEE Journal of Quantum Electronics*,

- vol. 30, pp. 2953-2960, 1994.
- [29] M. L. Bortz, "Quasi-phase-matched optical frequency conversion in LiNbO_3 waveguides", *Conference on Lasers and Electro-Optics*, paper MC1, 1994.
- [30] "Nonlinear Optics", slides presenti nel sito <http://phys.strath.ac.uk>.
- [31] Y. J. Ding, J. U. Kang, J. B. Khurgin, "Theory of backward second-harmonic and third-harmonic generation using laser pulses in quasi-phase-matched second-order nonlinear medium," *IEEE Journal of Quantum Electronics*, vol. 34, no. 6, pp. 966-974, 1998.
- [32] G. D. Landry, T. A. Maldonado, "Second-harmonic generation and cascaded second-order processes in a counterpropagating quasi-phase-matched device," *Applied Optics*, vol. 37, no. 33, pp. 7809-7820, 1998.
- [33] M. Matsumoto, K. Tanaka, "Quasi-Phase-Matched Second-Harmonic Generation by Backward Propagating Interaction," *IEEE Journal of Quantum Electronics*, vol. 31, no. 4, pp. 700-705, 1995.
- [34] J. U. Kang, Y. J. Ding, W. K. Burns, and J. S. Melinger, "Backward second-harmonic generation in periodically-poled bulk LiNbO_3 ," *Optics Letters*, vol. 22, no. 12, pp. 862-864, 1997.
- [35] Y. J. Ding, J. B. Khurgin, "Second-harmonic generation based on quasi-phase matching: a novel configuration," *Optics Letters*, vol 21, no. 18, pp. 1445-1447, 1996.
- [36] J. Hellström, Tesi di Dottorato: "Nanosecond optical parametric oscillators and amplifiers based on periodically poled KTiOPO_4 ," Stoccolma 2001.
- [37] J. Webjörn, S. Siala, D. W. Nam, R. G. Waarts, R. J. Lang, "Visible Laser Sources Based on Frequency Doubling in Nonlinear Waveguides," *IEEE Journal of Quantum Electronics*, vol. 33, no. 10, pp. 1673-1686, 1997.
- [38] Yamamoto and Mizuuchi, "Blue-light generation by frequency doubling of a laser diode in a periodically domain-inverted LiTaO_3 waveguide," *IEEE Photonics Technology Letters*, vol. 4, no. 5, pp. 435-437, 1992.
- [39] S. Miyazawa, "Ferroelectric domain inversion in Ti-diffused LiNbO_3 optical waveguide," *Journal of Applied Physics*, vol. 50, no. 7, pp. 4599-4603, 1979.
- [40] D. Feng, N. B. Ming, J. F. Hong et al., "Enhancement of second-harmonic generation in LiNbO_3 crystals with periodic laminar ferroelectric domains," *Applied Physics Letters*, vol. 37, no. 7, pp. 607-609, 1980.
- [41] C. Restoin, C. Darraud-Taupiac, J. L. Decossas, J. C. Vareille, and J. Hauden, "Ferroelectric-domain-inverted gratings by electron beam on LiNbO_3 ," *Materials Science in Semiconductor Processing*, vol. 3, no. 5-6, pp. 405-407, 2000.
- [42] H. Ito, C. Takyu, and H. Inaba, "Fabrication of periodic domain grating in LiNbO_3 by electron beam writing for application of nonlinear optical processes," *Electronics Letters*, vol. 27, no. 14, pp. 1221-1222, 1991.

- [43] M. Fujimura, K. Kintaka, T. Suhara, and H. Nishihara, “Blue light generation in LiNbO₃ waveguide SHG device with first order domain-inverted grating formed by EB scanning,” *Electronics Letters*, vol. 28, no. 20, pp. 1868–1869, 1992.
- [44] P. W. Haycock and P. D. Townsend, “A method of poling LiNbO₃ and LiTaO₃ below T_c,” *Applied Physics Letters*, vol. 48, no. 11, pp. 698–700, 1986.

Capitolo 2

Il *Poling* del Niobato e del Tantalato di Litio

2.1 Introduzione

Il seguente capitolo vuole essere una disamina approfondita della complessa fenomenologia che governa il *bulk poling* (*poling* di volume) ed il *surface poling* (*poling* superficiale) nei cristalli di Niobato di Litio (LN) e del Tantalato di Litio (LT). I dispositivi, costruiti durante il presente lavoro di tesi nel Laboratorio di Optoelettronica e Microlitografia del Centro per la Ricerca Elettronica in Sicilia-C.R.E.S. di Monreale, sono stati tutti realizzati con la tecnologia del *poling* indotto da campo elettrico.

In questa sezione si tratterà della teoria e della tecnica impiegati per ottenere l'inversione periodica dei domini nei materiali ferroelettrici; queste nozioni, che occorrono al lettore, non esperto dell'argomento, saranno considerate per affrontare e meglio comprendere la complessità dell' "ingegnerizzazione dei domini", una vera e propria scienza, da me implementata nella progettazione, fabbricazione e caratterizzazione delle strutture periodiche per la conversione delle frequenze ottiche.

2.2 La polarizzazione e l'isteresi ferroelettrica

Come ogni materiale ferroelettrico, il Tantalato e il Niobato di Litio presentano una relazione non lineare tra polarizzazione e campo elettrico, individuata da un ciclo di isteresi. Per meglio comprendere il complesso processo del *poling*, si confronteranno dettagliatamente i cicli d'isteresi del Tantalato di Litio congruente (CLT) e del Tantalato di Litio stechiometrico (SLT) prima e, successivamente, di quelli del CLT e del Niobato di Litio congruente (CLN).

2.2.1 La polarizzazione e l'isteresi ferroelettrica nel CLT e nel SLT

In base al materiale, ed, in particolare, al fatto che si tratti di composizione stechiometrica o congruente, sia il Tantalato di Litio che il Niobato di Litio presentano valori diversi del campo coercitivo e, in generale, delle grandezze coinvolte nella loro isteresi ferroelettrica.

Recentemente Gopalan *et al.* [1] hanno confrontato il campo elettrico richiesto per l'inversione dei domini ferroelettrici nel Niobato di Litio in composizione stechiometrica (SLN) e congruente (CLN) trovando che questo nel SLN è ridotto di circa 1/5 rispetto al CLN (4 kV/mm nel SLN contro i 22 kV/mm nel CLN).

Il Tantalato di Litio ha caratteristiche simili al Niobato di Litio sotto molti aspetti, avendo la stessa struttura cristallina e un'analogia tendenza alla non-stechiometria. D'altra parte, per quanto la correlazione tra le caratteristiche di inversione dei domini e la non-stechiometria nel Tantalato di Litio sia qualitativamente uguale a quella nel Niobato di Litio, si è osservato che la grandezza relativa dei cambiamenti nel valore del campo coercitivo è maggiore nel primo piuttosto che nel secondo. Al fine di valutare le differenze nell'isteresi ferroelettrica tra un cristallo congruente e uno stechiometrico di Tantalato di Litio, Kitamura *et al.* [2] hanno sottoposto ad un processo di inversione dei domini ferroelettrici due cristalli, uno di SLT e l'altro di CLT, applicando, lungo il loro spessore, un campo elettrico continuo. In Fig. 2.1 sono mostrati i cicli di isteresi ferroelettrica del CLT e del SLT così ricavati, nonché l'orientazione relativa del campo elettrico e della polarizzazione spontanea nei due stati possibili.

Dalla Fig. 2.1 si osserva che:

- esiste tra i due campi di *poling* E_f ed E_r^2 nel ciclo di isteresi del CLT una asimmetria presente anche nell'isteresi ferroelettrica del CLN (paragrafo 2.2.2), indice della presenza di un campo elettrico interno che può calcolarsi come:

$$E_{\text{int}} = \frac{E_f - E_r}{2} \quad (2.1)$$

Tale campo si annulla nel cristallo stechiometrico (sia esso Tantalato di Litio o

² La prima inversione dei domini effettuata sui cristalli ancora vergini è definita *forward poling* (*poling* in avanti), mentre la successiva inversione, necessaria per tornare allo stato di partenza, è definita *reverse poling* (*poling* indietro). I campi di inversione relativi a questi due processi sono denotati con E_f ed E_r , rispettivamente. Si chiameranno stato I lo stato vergine (*forward poling*) e stato II lo stato dei domini invertiti (*reverse poling*). Un valore positivo del campo coercitivo indica che il campo applicato si oppone alla direzione della polarizzazione spontanea. Al contrario un valore negativo indica che la direzione del campo applicato provoca un'inversione dei domini nella stessa direzione della polarizzazione spontanea.

Niobato di Litio, Fig. 2.1) mentre nel CLT assume un valore compreso tra 4 e 5 kV/mm.

- Quando la polarizzazione del cristallo nel suo "stato vergine" è invertita dall'applicazione di un campo elettrico a temperatura ambiente (*forward poling*), il campo interno diventa antiparallelo alla nuova direzione di polarizzazione (stato II). Tuttavia il campo interno in questo "stato di dominio invertito" tende a riallinearsi parallelamente alla nuova direzione di polarizzazione con il passare del tempo o, anche più rapidamente, con l'aumento della temperatura³.

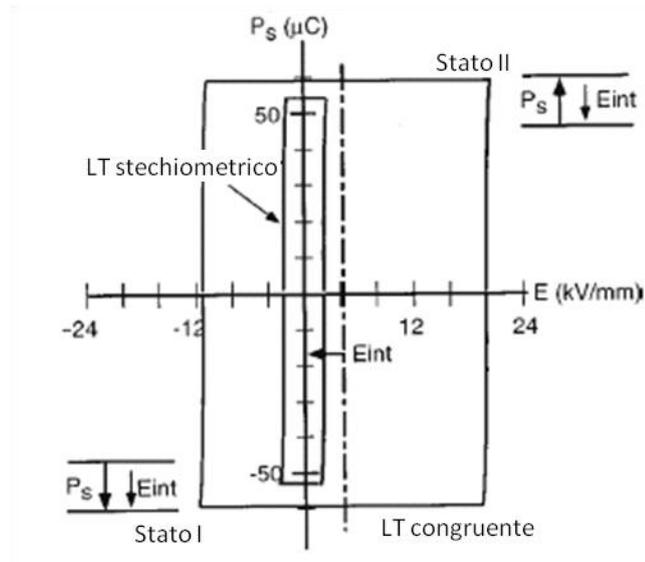


Fig. 2.1 Ciclo di isteresi ferroelettrica calcolato sperimentalmente da Kitamura *et al.* (dal Rif. [2])

- Sia E_f che E_r diminuiscono notevolmente con l'aumento della temperatura di *Curie*, ovvero diminuendo la densità dei difetti del cristallo e aumentandone il grado di stechiometria.
- E_f vale 1.7 kV/mm nel caso di SLT, ovvero circa un tredicesimo di quello del Tantalato di Litio congruente. Tale riduzione è maggiore di quella che si osserva nel SLN dove E_f si riduce da 22 a 4÷5 kV/mm.
- Il valore della polarizzazione spontanea risulta sostanzialmente insensibile alla non-stechiometria del cristallo.

I risultati degli esperimenti sono riportati in Tabella 2.1.

³ Si è infatti osservato un riallineamento completo del campo interno per il 95% dopo un *annealing* a temperatura di 200 °C per meno di 30 s mentre resta incompleto se si lascia il cristallo a temperatura ambiente anche per più di un mese.

	LT Congruente	LT Stechiometrico
Temperatura di Curie (°C)	601±2	685±1
Composizione della miscela (Li ₂ O mol %)	48.5	60.0
E_f (kV/mm)	20	1.7
E_r (kV/mm)	12	1.5
E_{int} (kV/mm)	4	0.1
Ps ($\mu\text{C}/\text{cm}^2$)	60±3	55±3

Tabella 2.1 Confronto tra CLT e SLT in termini di temperatura di Curie, composizione della miscela e proprietà di inversione dei domini. (dal Rif. [2])

E' stato dimostrato che il comportamento nel processo di inversione dei domini è direttamente legato al grado di stechiometria e alla densità di difetti nel materiale.

I difetti nel LT, che hanno una struttura simile a quelli presenti nel LN, probabilmente giocano il ruolo di “*pinning sites*” ovvero contribuiscono all'unione dei domini durante il movimento delle pareti di questi. In passato è stato ipotizzato che l'origine del campo elettrico interno potesse ricercarsi in una combinazione dei difetti puntiformi del cristallo e della presenza di gruppi ossidrili in esso incamerati, che danno luogo a bande di assorbimento IR. Tuttavia, poiché variando la concentrazione di idrogeno in campioni di Tantalato di Litio non è stato riscontrato alcun cambiamento di comportamento nel processo di inversione dei domini, mentre si sono avuti notevoli cambiamenti variando la stechiometria del cristallo, si è ormai convinti che l'origine del campo elettrico interno sia fortemente legata solo al rapporto [Li]/[Li+Ta].

2.2.2 La polarizzazione e l'isteresi ferroelettrica nel CLT e nel CLN

Al fine di confrontare l'isteresi ferroelettrica nel CLT e nel CLN Gopalan *et al.* [3] hanno applicato un campo elettrico costante attraverso lo spessore di cristalli di Niobato e Tantalato di Litio in composizione congruente, potendo così tracciare i cicli d'isteresi dai risultati sperimentali ricavati (Fig. 2.2).

Si è così osservato che:

- l'asimmetria del ciclo d'isteresi è maggiore nel Tantalato di Litio che nel Niobato di Litio; in particolare, il campo elettrico interno che è la causa e la misura di tale asimmetria vale dai 2.7 ai 3.5 kV/mm nel Niobato di Litio e dai 4.1 ai 5.0 kV/mm nel Tantalato di Litio (i valori dei campi elettrici interni variano infatti da un *wafers* all'altro).

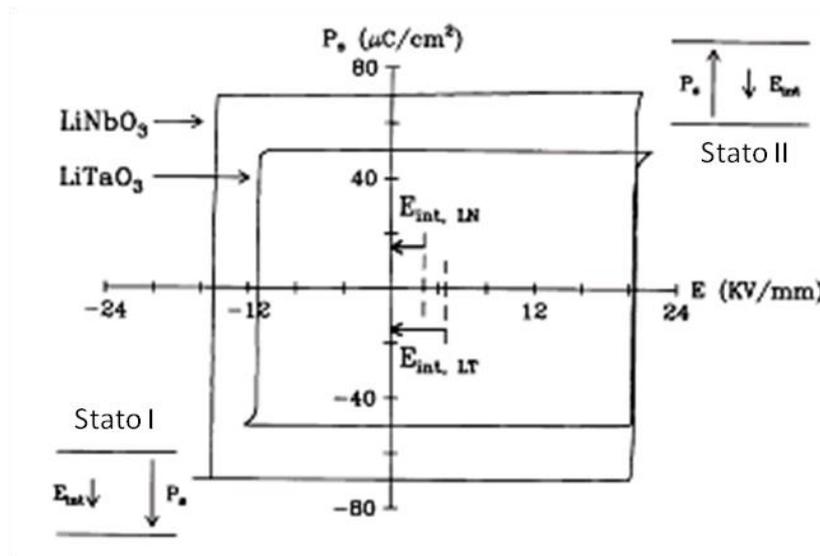


Fig. 2.2 Isteresi ferroelettrica nel Niobato di Litio e nel Tantalato di Litio congruenti. (dal Rif. [3])

- Il campo E_f è lo stesso per i due materiali mentre differisce il campo E_r che, essendo minore nel Tantalato di Litio che nel Niobato di Litio, è causa dell'aumento dell'asimmetria nel CLT, ovvero dell'aumento del suo campo elettrico interno [4].
- Il campo interno è, come già osservato confrontando CLT e SLT, parallelo alla polarizzazione spontanea nel cristallo vergine (stato I) e antiparalelo a questa nello stato invertito (stato II). Il tempo necessario affinché il campo elettrico interno nello stato invertito torni parallelo alla polarizzazione spontanea è maggiore se si mantiene a temperatura ambiente il cristallo piuttosto che se lo si riscalda.
- Il valore della polarizzazione spontanea è minore nel CLT ($50 \mu\text{C}/\text{cm}^2$) che nel CLN ($\approx 72 \mu\text{C}/\text{cm}^2$).

Tornando al problema del campo elettrico interno, esso, come detto in precedenza, è probabilmente dovuto, sia nel Niobato che nel Tantalato di Litio, entrambi in composizione congruente, a difetti legati alla non stechiometria del cristallo. D'altra parte la variazione del campo elettrico interno, come del campo coercitivo, da un *wafer* all'altro, si spiegherebbe proprio con la variazione della densità di difetti e della loro distribuzione nel cristallo.

Da uno studio del gruppo di ricerca di Battle, Kim, Gopalan *et al.*[5] si è inoltre verificato che un aumento di temperatura consente di ridurre fino a un quinto il valore

del campo elettrico coercitivo sia nel CLT che nel CLN, nonché di ridurre, fino ad azzerare, il campo elettrico interno, come ulteriore conferma del legame tra questo ed i difetti del cristallo. Ciò, insieme ad una cinetica dominata dalla nucleazione più che dalla propagazione dei domini, grazie proprio a tale aumento di temperatura, rappresenterebbe un vantaggio al fine delle mie applicazioni. Purtroppo però, aumentare e controllare la temperatura, mantenendola costante, risulta tecnologicamente difficile, dunque, nel seguente lavoro, il processo di *poling* è stato effettuato a temperatura ambiente.

Altri esperimenti analoghi hanno inoltre portato alla conclusione che, sottoponendo campioni di LiNbO_3 (Myers *et al.*) e di LiTaO_3 (Chao *et al.*) all'azione del campo elettrico di inversione per un tempo comunque inferiore alle 24 ore, il valore del campo coercitivo tende a diminuire. Affinché questo torni al suo valore originario si può portare il cristallo ad elevata temperatura per un certo tempo, da definire sperimentalmente o anche, nel caso del LiTaO_3 , illuminarlo uniformemente [6].

2.3 Il *bulk poling* indotto da campo elettrico

L'inversione dei domini assistita da campo elettrico è ormai ampiamente impiegata nella fabbricazione di reticoli periodici per dispositivi ottici non lineari [7-9].

Il processo per la polarizzazione periodica nel volume di un cristallo ferroelettrico consiste essenzialmente di due passi:

- la definizione, in genere per via fotolitografica, della periodicità degli elettrodi, sulla superficie del cristallo;
- l'applicazione di un campo elettrico che, superando il campo coercitivo del materiale, inverte l'orientazione dei domini di questo.

Dunque, in questo processo, occorre fare in modo che:

- venga applicato un adeguato valore di tensione, tale che il campo elettrico superi quello coercitivo del materiale;
- l'alta tensione resti applicata ai capi del cristallo per un tempo sufficiente a garantire la stabilizzazione dei domini invertiti e ad impedire una nuova inversione della polarizzazione, anche solo parziale, nel suo verso originario (*backswitching*);
- l'impulso di tensione applicato dia la quantità di carica sufficiente a far invertire

la polarizzazione in tutto il volume sottostante l'area contattata con gli elettrodi ma senza eccedere, affinché non si verifichi un indesiderato allargamento dei domini invertiti anche sotto le zone isolate elettricamente; ciò significa che si deve garantire la continuità della corrente nel circuito di *poling* durante tutto il processo [6].

I materiali ferroelettrici sono caratterizzati da una polarizzazione spontanea \vec{P}_s con orientazione antiparallela. Quando è presente un campo elettrico esterno \vec{E} il materiale presenta una polarizzazione lineare $\vec{P} = \epsilon_0 \chi^{(1)} \vec{E}$, dove $\chi^{(1)}$ è la suscettività lineare (che è un tensore di secondo ordine). Indicando la permittività del mezzo con $\epsilon = \epsilon_0(1 + \chi^{(1)})$ e con ρ la densità di carica libera, dalle equazioni di Maxwell si ha:

$$\nabla \vec{E} = \frac{1}{\epsilon} (\rho - \nabla \vec{P}_s) \quad (2.2)$$

Se non c'è carica spaziale \vec{E} dovrà bilanciare \vec{P}_s all'interno del cristallo. In realtà, la carica superficiale presente ai confini assicura che $\vec{E} = 0$, ma, ovviamente, ciò è valido solo in superficie (infatti \vec{P}_s risulta essere discontinua). Un'altra grandezza da tenere in considerazione, durante il processo di *poling*, è la densità di corrente:

$$\vec{j} = \sigma \vec{E} + \frac{\delta \vec{P}}{\delta t} + \frac{\delta \vec{P}_s}{\delta t} = \sigma \vec{E} + \epsilon_0 \chi \frac{\delta \vec{E}}{\delta t} + \frac{\delta \vec{P}_s}{\delta t} \quad (2.3)$$

Il primo termine rappresenta il termine di corrente ohmica, al secondo termine è associata la corrente di spostamento di polarizzazione, mentre l'ultimo addendo rappresenta la corrente associata all'inversione dei domini. La principale differenza tra i due termini di polarizzazione è che il primo termine è diverso da zero solo in presenza di campi elettrici esterni applicati dipendenti dal tempo, mentre il secondo è presente solo per campi di ampiezza maggiore del campo coercitivo quando gli ioni di Litio sono forzati ad oltrepassare i piani di ossigeno. Ovviamente, è preferibile che per la polarizzazione inversa la σ sia uguale a zero in maniera tale che tutta la corrente misurata sia solo quella dovuta all'inversione. Quando σ è diversa da zero e si ha passaggio di carica si possono avere problemi come l'allargamento incontrollato dei domini e il *breakdown* con rottura meccanica del cristallo. Affinché si possa avere polarizzazione inversa si devono soddisfare due condizioni [10]:

1. Il campo elettrico deve essere maggiore di del campo coercitivo E_C .
2. Deve essere garantita la continuità della corrente.

La seconda condizione, nel volume, corrisponde a $\nabla \cdot j = 0$ ($\rho = \text{costante}$) e, sulla faccia del campione, richiede che la corrente ohmica del circuito esterno venga compensata localmente dall'inversione. La carica totale che scorre da un elettrodo all'altro e che attraversa il cristallo durante la fase di inversione dei domini (assumendo che $\sigma = 0$) è :

$$Q_{TOT} = 2 \cdot P_S \cdot A_{INV} \quad (2.4)$$

essendo A_{INV} l'area da invertire in cui gli elettrodi sono a diretto contatto con la superficie del cristallo e P_S la polarizzazione spontanea del materiale. La continuità della corrente locale e di quella totale costituisce un metodo importante per il controllo del processo: il calcolo dell'integrale della corrente globale sarà proprio la carica totale Q_{TOT} . Per avere *bulk poling*, tale carica deve essere perfettamente calcolata, quindi, è necessario riuscire a controllarla il meglio possibile per ottenere una buona qualità dell'inversione. In genere si considera nel calcolo della carica coinvolta nel processo un fattore empirico esterno (EF), che tiene conto delle possibili variazioni nella stechiometria del cristallo dipendenti dal fornitore, delle variazioni dello spessore del campione e delle caratteristiche elettriche specifiche del processo di *poling* in questione. Tale fattore consente, dunque, il controllo della propagazione dei domini invertiti attraverso il volume del cristallo e determina lo stato del campione dopo il processo di *poling*. Considerando il fattore EF l'equazione 2.4 diventa:

$$Q_{TOT} = 2 \cdot P_S \cdot A_{INV} \cdot EF \quad (2.5)$$

Il campo elettrico deve essere applicato per il tempo necessario affinché la quantità totale di carica rivelata sia pari a quella calcolata mediante l'equazione 2.5. Da ciò si evince che la durata dell'impulso di *poling* sarà funzione dell'area della zona da invertire, del fattore empirico EF e, ancora, del valore della polarizzazione spontanea del materiale.

2.4 Il modello del *bulk poling*

In questo paragrafo, descriverò il *poling* di volume analizzandone le fasi peculiari che lo caratterizzano. La mia trattazione, sicuramente non esaustiva dell'argomento, vuole offrire al lettore un approfondimento per meglio comprendere gli altri capitoli di

questa tesi. Il processo del *bulk poling*, può essere modellizzato facendo alcune ipotesi semplificative sul fenomeno fisico considerato [8]:

- le pareti dei domini siano perfettamente piane e perpendicolari all’asse x del cristallo;
- il movimento di tali pareti è dipendente dalla componente del campo elettrico diretta lungo l’asse z;
- la relazione tra la velocità delle pareti dei domini e la componente z del campo si consideri valida, ovunque, nel cristallo;
- il fenomeno della formazione dei nuclei dei domini avvenga solo in corrispondenza degli elettrodi;
- i tempi di rilassamento dielettrico del ferroelettrico e dell’isolante si assumano molto più grandi del tempo di *poling*.

Sotto tali ipotesi si possono considerare sei passi principali che descrivono il *bulk poling* (Fig. 2.3⁴): la nucleazione, la propagazione delle punte, la *tip termination*, l’unione rapida dei domini, l’espansione laterale e la stabilizzazione.

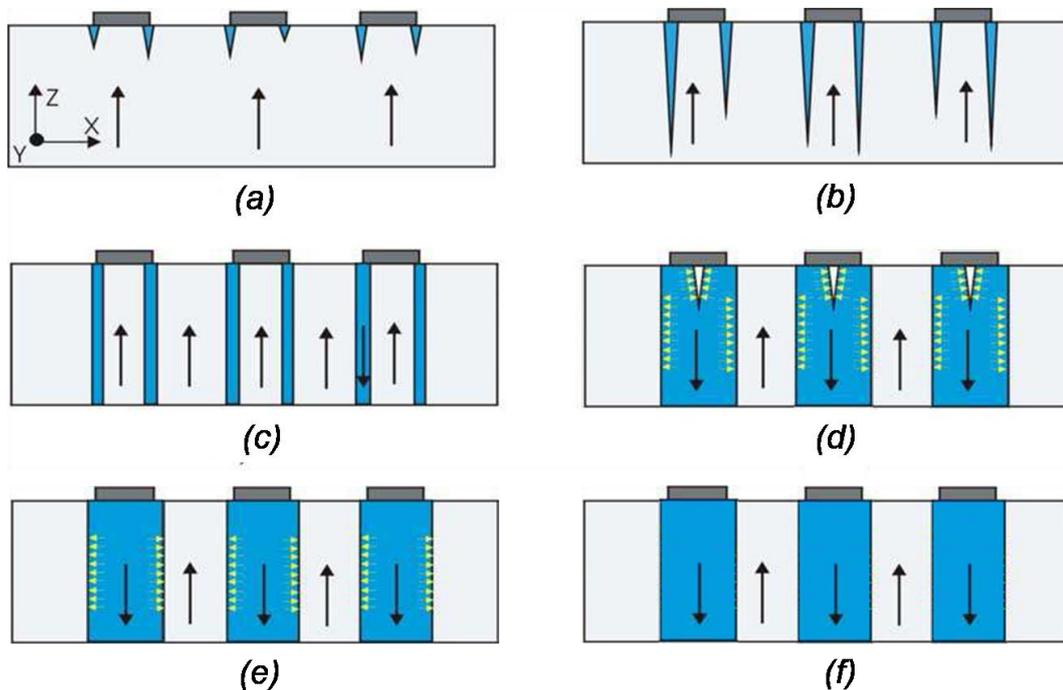


Fig. 2.3 Riepilogo delle fasi di *poling*: nucleazione (a), propagazione delle punte (b), *tip termination* (c), unione rapida dei domini (d), espansione laterale (e), stabilizzazione (f). (dal Rif. [11])

⁴ Occorre evidenziare una differenza sostanziale tra il processo di *bulk poling* rappresentato in figura e quello realizzato presso i laboratori del CRES: il *pattern* periodico viene realizzato sulla faccia -z e non è metallico (cioè non costituisce propriamente gli elettrodi periodici) ma isolante (*resist* o Biossido di Silicio), mentre le zone scoperte e non isolate vengono ricoperte con un gel conduttivo.

La nucleazione

La prima fase nella formazione dei domini è la nucleazione. Quando viene applicato al cristallo ferroelettrico un campo elettrico, cominciano a formarsi i primi *nuclei* di domini invertiti (fase detta di nucleazione-*nucleation*, Fig. 2.3(a)). Questo rappresenta il primo passo verso la formazione dei domini stessi.

Sembra che ogni singolo dominio abbia un unico punto di partenza, denominato sito di nucleazione. I siti di nucleazione sono tipicamente situati su entrambe le facce del campione. I siti di nucleazione sembrano non seguire la distribuzione di *Poisson*; tendono, piuttosto, ad essere raggruppati in grappoli ("*cluster*"), a distribuzione curvilinea o lineare, o in prossimità dei domini con le pareti già in fase avanzata di propagazione. La densità dei siti di nucleazione (*nucleation site density* – abbreviato in NSD) è dipendente dal campo elettrico applicato e dal tempo, per campi elettrici inferiori ai 21 kV/mm [8]. Tali nuclei nascono con maggiore probabilità in corrispondenza degli spigoli degli elettrodi dove, a causa dell'effetto punta, il campo risulta più intenso. Infatti, la densità di nucleazione è una funzione che cresce esponenzialmente con il campo elettrico, mentre i tempi di inversione della polarizzazione sono funzioni esponenziali decrescenti del campo applicato: con l'aumentare di questo il processo diventa più rapido.

I siti di nucleazione sono principalmente difetti della superficie dovuti alle imperfezioni reticolari, danneggiamenti o presenza di corpi estranei e sono in genere accentuati dalle fasi di lavorazione del cristallo (taglio della fetta, lucidatura). Anche la loro distribuzione dipende principalmente da tutti i processi superficiali cui è sottoposto il cristallo, i quali possono anche far variare il valore del campo coercitivo (deposizione di strati superficiali, attacco in plasma) [12,13]. Anche domini preesistenti possono giocare un ruolo fondamentale durante il *poling*; se essi sono già stabilizzati può essere molto difficile invertirli oppure, al contrario, possono facilitare la nucleazione.

Per campi al di sotto di quello coercitivo la densità di nucleazione è, inoltre, dipendente dal tempo: maggiore è la durata dell'impulso, maggiore sarà il numero di siti di nucleazione. Essa è dipendente dal materiale usato per realizzare gli elettrodi (elettrodi liquidi, elettrodi realizzati con vari tipi di metalli). Ogni metallo mostra un notevole effetto sulla densità dei siti di nucleazione, per alcuni metalli non si ha nucleazione, e per altri si ha una migioria. In particolare, il cromo ed il nichel deposti

per *sputtering* aumentano notevolmente la densità dei siti di nucleazione se applicati alla faccia +z. I domini tipicamente nucleano lungo i bordi degli elettrodi con una densità lineare di 0.1-2 nuclei/ μm [14]. La nucleazione è variabile con l'intensità del campo applicato: è maggiore nel caso di elettrodi periodici piuttosto che nel caso di elettrodi uniformi. In particolare, se l'intensità è prossima a quella della tensione coercitiva, i nuclei si creano con bassa densità, mentre aumentando la differenza di potenziale applicata si ottiene una nucleazione che tende ad uniformarsi sotto gli elettrodi. Tuttavia, è stato osservato che c'è un numero massimo di siti di nucleazione disponibili nel cristallo, per cui oltre un certo valore del campo esterno non si ottiene più un aumento della densità dei nuclei [8].

La propagazione delle punte

Il nucleo iniziale di un dominio nel Niobato di Litio può essere rappresentato da una piramide a base esagonale, la cui base giace sulla superficie del cristallo e l'apice (o punta) è appena al di sotto di questa, rivolta all'interno del cristallo. La punta si propaga parallelamente all'asse polare verso la faccia opposta del cristallo (*domain tip propagation*, Fig. 2.3(b)), dominando la crescita del dominio in questa fase. Quando la punta si propaga, il diametro della base aumenta. Il rapporto tra velocità della punta e la velocità di accrescimento della base è compresa tra i rapporti 100:1 e 1000:1.

Il rapporto tra le velocità è stato calcolato dividendo lo spessore del cristallo per una volta e mezza il diametro di base del dominio. Tuttavia, per meglio comprendere le forme assunte dai domini durante questo frangente della loro formazione, sarà necessario studiare la relazione che lega la velocità della punta della piramide ed il campo elettrico applicato dall'esterno [8].

Durante la propagazione delle punte, le punte dei domini di elettrodi adiacenti possono fondersi, portando alla formazione di un unico dominio di grandi dimensioni invece di due separati. La fusione dei domini riduce la non linearità efficace del Niobato di Litio con *poling* periodico e si verifica principalmente durante la fase di propagazione delle punte, questo fenomeno si osserva sottoponendo il cristallo a brevi impulsi di *poling*. L'origine della fusione dei domini è la disomogeneità del substrato che causa una deviazione della direzione di propagazione delle punte dalla direzione polare z. Ciononostante, la natura di questa disomogeneità non è stata ancora investigata in maniera esauriente.

Dato che la distribuzione dei nuclei non appare Poissoniana, questo fa pensare a variazioni spaziali di alcune proprietà del cristallo ferroelettrico. L'esame microscopico di questi grappoli rivela spesso più domini distinti su una faccia del cristallo, ed un singolo, più grande dominio direttamente sulla faccia opposta dello stesso, indicando che le punte dei singoli domini si sono fuse durante la propagazione delle punte. Inoltre, la geometria a "cluster" dei domini su una faccia del cristallo spesso appare distorta (asimmetrica) se confrontata con la sua complementare sul lato opposto, suggerendo che le punte deviano da un percorso strettamente lineare diretto lungo la direzione z . Per ulteriori informazioni sugli effetti di disomogeneità sulla formazione dei domini nei ferroelettrici, suggerisco al lettore il riferimento [15].

Questo, ovviamente, altererà la periodicità dell'inversione, riducendo, quindi, l'efficienza del QPM; ciò si verifica, ovviamente, tanto più quanto è minore il periodo dell'inversione e diventa critico soprattutto per periodi minori di 10 μm , mentre per periodi oltre 15 μm la fusione di domini adiacenti è trascurabile.

Un'altra causa della fusione delle punte dei domini è l'interazione punta a punta (*tip-to-tip*). Quando due punte si trovano molto vicine la carica non schermata presente sulle pareti dei domini provoca un aumento del campo elettrico nella regione coinvolta. Ciò causa un aumento della velocità di crescita delle pareti dei domini vicini facilitando così la fusione delle punte. Nel caso di *poling* periodico tale fusione accade prevalentemente tra punte vicine generate dallo stesso elettrodo. Quando tale fenomeno si manifesta tra punte di domini generati in corrispondenza di elettrodi diversi ma vicini la conseguenza è la fusione dei domini ed una peggiore efficienza di conversione.

In generale tale fenomeno riduce l'effettiva non linearità del cristallo con *poling* periodico, ma non è facilmente evitabile dato che le cause sono tuttora in fase di studio.

La terminazione delle punte

Quando le punte raggiungono la faccia opposta del cristallo (*tip termination on the opposite face* - Fig. 2.3(c)), i muri del dominio si raddrizzano, in un tempo dell'ordine del microsecondo dall'inizio del fenomeno di propagazione, divenendo paralleli all'asse z , si riduce l'interazione elettrostatica tra domini adiacenti. Inoltre, in breve tempo, il diametro del dominio sulle due facce opposte si uniforma.

Se, durante il processo, fondono punte di domini diversi, nella faccia opposta del cristallo si vedrà un dominio unico più grande. Se, invece, fondono punte di domini

formatesi sotto lo stesso elettrodo la fase di “terminazione delle punte” contribuisce alla completa inversione del dominio sotto l’elettrodo stesso.

La coalescenza rapida

Appena le punte raggiungono la faccia opposta del cristallo, sotto gli elettrodi avviene una veloce unione dei domini (*rapid coalescence* o *domain merging under the gel electrode* - Fig. 2.3(d)). I domini adiacenti si fondono rapidamente per formare un dominio più grande quando le loro pareti si toccano. La velocità del muro del dominio nella regione in cui i due domini entrano in contatto è molte volte più grande della velocità del muro del dominio rispetto ad altri casi. Diversi ricercatori hanno notato la somiglianza tra questo comportamento e quello che spesso è possibile osservare durante la crescita di un cristallo sfaccettato [16-18], e la sua origine merita ulteriori indagini. I campioni con elettrodi periodici beneficiano della coalescenza rapida, quest’ultima è un metodo efficace in seguito alla quale si formano domini unici con polarizzazione invertita, sotto le zone del cristallo contattate elettricamente. L’uniformità e la simultaneità dei processi sono caratteristiche implicite nelle ipotesi formulate inizialmente. Dalla bassa densità dei siti di nucleazione e dalla loro distribuzione non uniforme ci si può aspettare una scarsa qualità della geometria del dominio.

La propagazione delle pareti dei domini

Quando la punta di un dominio isolato termina sulla faccia opposta del un campione, il diametro del dominio in entrambe le facce diventa lo stesso in brevissimo tempo. Il dominio presenta una sezione esagonale sul piano normale all'asse polare e le sue facce si propagano in direzione dell’asse *a* del cristallo con velocità uguali. I domini si espandono in direzione laterale al di sotto delle zone isolate (*domain wall motion under the insulator* - Fig. 2.3(e)).

Nei materiali ferroelettrici con solo due stati di polarizzazione a 180°, quando le pareti dei domini sono molto vicine, a causa della repulsione la velocità diminuisce, quindi si forma per un breve intervallo di tempo una sottile zona metastabile spessa circa 1 μm , e non appena questa scompare si registra un impulso sulla corrente di spostamento. Questo effetto è stato studiato inviando una sequenza di quattro impulsi di ampiezza via via più elevata e durata più breve ed osservando di volta in volta tramite brevi attacchi chimici in acido fluoridrico le dimensioni dei domini e la loro posizione relativa. Si nota che al terzo impulso nucleano ulteriori domini e durante il quarto tali

domini si uniscono rapidamente.

Si tenga presente che la velocità di propagazione laterale di due domini adiacenti risulta essere maggiore della velocità di espansione del singolo dominio.

Tale fenomeno fornisce un mezzo per l'uniformità del reticolo ma pone anche un limite quando il dominio si espande verso zone esterne. Conoscendo la relazione tra la velocità delle pareti dei domini ed il campo elettrico applicato si può determinare la cinetica del dominio durante la fase di propagazione dei muri durante il *poling* periodico assistito da campo elettrico. Inoltre, la relazione può essere studiata per calcolare il campo per il quale la velocità della parete di dominio è più sensibile ai cambiamenti di quest'ultimo. La velocità delle pareti dei domini può essere calcolata usando il metodo di Miller e Savage [14], per il quale si applica un impulso di *poling* ad un campione per un tempo T e, dopo aver effettuato un *etching* sul campione, in modo da visualizzare i domini formati, si misura il raggio R del dominio più largo in modo da calcolare la velocità desiderata come R/T . La ragione per cui viene misurato il raggio del dominio più grande che si è formato, consiste nel fatto che esso è quello nucleato prima di tutti, immediatamente dopo l'inizio dell'impulso di *poling*. Il raggio di piccoli domini viene anche rilevato per stimare la nucleazione in funzione del tempo per diversi valori di campi elettrici applicati.

Nei primi modelli ricavati per un cristallo sottoposto ad impulsi di *poling* la velocità di nucleazione era considerata proporzionale a $\exp(-\Delta W/kT)$ dove ΔW è l'energia associata alla nucleazione dei domini, k è la costante di Boltzmann e T la temperatura assoluta. Da un'analisi più accurata dei dati sperimentali si è in seguito ricavata una legge che fornisce l'andamento della velocità di espansione delle pareti laterali dei domini (nel caso di *forward* e *reverse poling*) come una funzione esponenziale crescente del campo elettrico E applicato dall'esterno (come funzione della densità di nucleazione e della velocità di crescita dei domini nella direzione della polarizzazione) [3,19]:

$$v_{s,f} = v_{s,f_0} e^{-\frac{\alpha_{s,f}}{E - E_{\text{int}}}} \quad (2.6)$$

$$v_{s,r} = v_{s,r_0} e^{-\frac{\alpha_{s,r}}{E + E_{\text{int}}}}$$

dove $\alpha_{s,f}, \alpha_{s,r}, v_{s,r_0}, v_{s,f_0}$ sono coefficienti costanti e il pedice “s” sta per “sideways”.

Le equazioni 2.6 possono essere utilizzate per determinare il campo per il quale la velocità delle pareti dei domini è più sensibile alle sue variazioni. Appena esse si allargano aldilà della zona coperta dagli elettrodi la carica non schermata della polarizzazione spontanea confinata riduce il campo elettrico visto dai domini, rallentandone la crescita. Dunque, se si effettua il *poling* periodico applicando il valore di campo elettrico, al di sopra di quello coercitivo, al quale la velocità di espansione delle pareti risulta più sensibile alle variazioni del campo, si genera un forte meccanismo di *feedback* negativo che evita che i domini si espandano eccessivamente aldilà della zona schermata.

La stabilizzazione

Durante il processo di formazione dei domini, si viene a creare un campo interno che si oppone a quello fornito per il *poling* e tende a riportare i domini nella loro configurazione originale (fenomeno del *flip-back*) [20]: ciò verrebbe evidenziato dalla presenza di impulsi negativi di corrente. Questo effetto si verifica durante un tempo di stabilizzazione di circa 50-60 ms. Se la tensione esterna viene portata bruscamente a zero, i domini che si sono invertiti negli ultimi 50-60 ms riacquistano la polarizzazione iniziale. Pertanto, per ridurre tale effetto (a cui abbiamo già accennato e conosciuto come *backswitching* [21]), si può impostare un impulso con un tempo di discesa lento, in modo che durante il periodo di stabilizzazione il campo esterno annulli quello interno responsabile del fenomeno (*stabilization*, Fig. 2.3(f)).

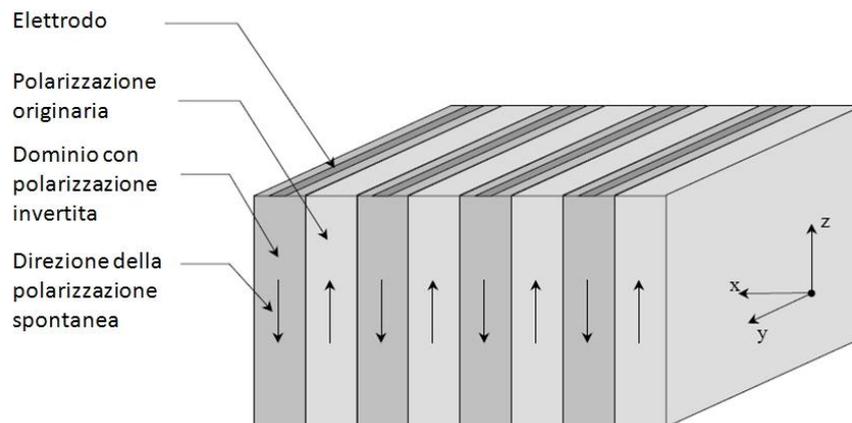


Fig. 2.4 Schema di un tipico cristallo sottoposto a *Poling* Periodico che ha dato come risultato un *duty cycle* del 50%. (dal Rif. [8])

Al termine del *poling* periodico, una volta stabilizzati i domini invertiti, il cristallo sottoposto al processo si presenterà come in Fig. 2.4, in cui il *duty cycle* ottenuto è quello ottimo, pari al 50% (modulazione *squared shaped*).

I principali problemi presentati dalla tecnica del *poling* elettrico consistono nel già citato allargamento dei domini oltre la dimensione degli elettrodi e nel rischio che si verifichi il danneggiamento permanente della struttura cristallina (*breakdown*). Il *breakdown* è causato da un effetto a valanga che coinvolge gli elettroni attraverso il substrato quando vi si applicano tensioni elevate: questo fenomeno è tanto più accentuato quanto più spesso è il campione, dal momento che, in tal caso, la valanga si propaga per una lunghezza maggiore.

Per ovviare a questo inconveniente conviene scegliere elettrodi liquidi, che consentono di ottenere l'inversione dei domini applicando campi minori rispetto a quelli necessari nel caso di elettrodi metallici [22]: ciò perché in un materiale come il LiNbO_3 il flusso di carica è dovuto allo spostamento degli ioni Li^+ e quindi la conducibilità è di natura ionica: l'uso di un elettrodo liquido contenente a sua volta ioni del tipo Li^+ (come, ad esempio, il cloruro di litio LiCl) favorisce il flusso di queste cariche attraverso il cristallo; invece un elettrodo metallico, la cui conducibilità è prevalentemente di tipo elettronico, ostacola il passaggio della corrente ionica [23].

Un ulteriore accorgimento che riduce il rischio di *breakdown* consiste nel ridurre la durata degli impulsi forniti. L'eccessivo allargamento dei domini formati, come detto in precedenza, modifica il *duty cycle* del QPM, con conseguente riduzione dell'efficienza dell'interazione tra i campi coinvolti nel processo non lineare. In pratica, durante il processo di fabbricazione si otterrà un *duty cycle* medio D diverso da quello ideale 50:50 e si avranno oscillazioni casuali intorno a questo valor medio: i valori di D e le oscillazioni intorno ad esso tipicamente ottenuti in processi di *poling* elettrico sono tali da garantire comunque un'efficienza superiore all'80% di quella massima ottenibile [24]. Un accorgimento spesso usato per ottenere il *duty cycle* 50:50 ottimale per il QPM consiste nel riprodurre sulla superficie del substrato una successione elettrodo-isolante per cui la dimensione dell'elettrodo sia inferiore rispetto a quella dell'isolante.

Il rapporto tra le due larghezze dipende dal periodo che si vuole implementare: ad esempio, in letteratura si trova che per periodi corti dell'ordine di 4-5 μm (necessari per ottenere radiazione blu tramite generazione di seconda armonica) si è usato un rapporto

17:83 [25], mentre per periodi maggiori, dell'ordine di 30 μm , è stato sufficiente un rapporto di circa 39:61 [26].

2.5 Cinetica dei domini ferroelettrici: studi dettagliati sul Niobato ed il Tantalato di litio

Riesaminiamo gli aspetti teorici e sperimentali della cinetica della struttura dei domini ferroelettrici passandone in rassegna gli aspetti più interessanti per "l'ingegnerizzazione dei domini" e discutendone all'interno di un approccio di nucleazione unificato.

L'evoluzione della struttura del dominio durante il processo di inversione è un esempio di transizione di fase del primo ordine. Secondo questo approccio, i domini con diverso orientamento di polarizzazione spontanea sono considerati come le regioni di diverse fasi divise da pareti di domini che rappresentano i confini della fase. La teoria di un primo ordine di transizione di fase basata sulla cinetica della nucleazione nella sua versione classica risale agli anni trenta [27,28]. Tuttavia fino ad oggi è ancora un campo attivo di ricerca [29].

Questa teoria è stata utilizzata per la descrizione della crescita della frazione solida durante la cristallizzazione dei metalli nella famosa teoria di Kolmogorov-Mehl-Johnson-Avrami (KMJA) [30,31]. Ishibashi e Takagi hanno applicato la teoria KMJA per spiegare la dipendenza dal tempo del comportamento della corrente di inversione nei cristalli ferroelettrici [32].

Mostrerò come l'applicazione coerente dei concetti della teoria della transizione di fase del primo ordine possa essere utilizzata per descrivere le caratteristiche principali della cinetica di dominio durante l'inversione della polarizzazione. Tutte le fasi della cinetica di dominio sono regolate dall'evoluzione dei nuclei attivati termicamente [33].

2.5.1 Meccanismi di evoluzione della struttura dei domini

I processi di nucleazione

La cinetica della transizione di fase del primo ordine si realizza attraverso la nucleazione. Qualsiasi scenario che consideri l'evoluzione della struttura di un dominio può essere attribuita ai processi elementari di nascita dei nuclei attivati termicamente.

Il processo di inversione (in modo simile a qualsiasi transizione di fase del primo

ordine) si ottiene attraverso la formazione di nuclei di diverse dimensioni. La comparsa di nuovi domini è dovuto alla nascita di nuclei tridimensionali (3D). La nascita dei domini e/o il movimento dei muri è il risultato della comparsa di nuclei mono- e bi-dimensionali (1D e 2D) alle pareti di domini già esistenti. La probabilità di nucleazione durante la transizione di fase, in ogni mezzo, dipende essenzialmente dal suo grado di perfezione; la nucleazione, pertanto, avviene di preferenza sulla superficie del campione e nelle vicinanze di difetti. E' chiaro che la probabilità di nucleazione in un dato luogo e, di conseguenza, il tasso di crescita del dominio dipende dalla forza locale del campo interno a sua volta dipendente dalle dimensioni dei nuclei. In altre parole, il campo elettrico locale è la forza motrice del processo di inversione.

Il valore locale del campo elettrico

Il campo elettrico interno $E_{loc}(r, t)$, al momento di nucleazione t ed al punto r , che rappresenta una sovrapposizione di campi elettrici generati da diverse fonti, è sostanzialmente disomogeneo.

In un condensatore ferroelettrico $E_{loc}(r, t)$ è determinato principalmente dalla somma (1) del campo esterno $E_{ex}(r)$, prodotto dalla tensione applicata agli elettrodi; (2) dal campo di depolarizzazione $E_{dep}(r, t)$ prodotto da cariche legate, conseguenza di disomogeneità spaziali della polarizzazione spontanea; (3) dal campo esterno schermante $E_{scr}(r, t)$ che ha origine dalla redistribuzione delle cariche agli elettrodi, e (4) dal campo schermante del *bulk* $E_b(r, t)$ regolato dai processi di schermatura nel *bulk* [33-35]:

$$E_{loc}(r, t) = E_{ex}(r) + E_{dep}(r, t) + E_{scr}(r, t) + E_b(r, t) \quad (2.7)$$

Il campo esterno

Il campo esterno $E_{ex}(r)$ dipende fortemente dalla forma dell'elettrodo. Questo è dimostrato dalle singolarità presenti nello strato superficiale lungo i bordi dell' elettrodo e causate dall'effetto di bordo; tale effetto è più pronunciato nelle vicinanze delle estremità e degli angoli.

Le singolarità del campo portano alla dominanza della nucleazione primaria al confine dell'elettrodo. Così, l'inizio del processo di inversione per campi elettrici applicati aventi un valore pari a quello di soglia è determinato dalle singolarità di campo nascenti ai bordi degli elettrodi. E' chiaro che il "valore reale" del campo soglia è

sostanzialmente superiore a quello comunemente ottenuto ipotizzando il campo di inversione come risultante dalla differenza di potenziale applicata ai capi del campione divisa per il suo spessore.

Il campo di depolarizzazione

Il campo di depolarizzazione $E_{dep}(r, t)$ è prodotto dalle cariche legate esistenti alle superfici polari del campione e alle pareti cariche del dominio (disposizioni "testa a testa"-*head-to-head* o "coda a coda" - *tail-to-tail*). Per i materiali ferroelettrici, i valori di E_{dep} nel singolo dominio possono raggiungere i 10^8 - 10^9 V/m. Questi valori sono sostanzialmente ridotti per domini stretti e soprattutto per quelli aghiformi. Pertanto, le forme triangolari e a fuso sono quelle più frequenti per i nuclei. Il campo E_{dep} decelera il movimento laterale del muro e limita lo spostamento di quest'ultimo fin dallo stato iniziale. I processi di schermatura diminuiscono l'impatto di E_{dep} . Così, per un basso tasso di inversione, E_{dep} può essere compensata quasi totalmente e può essere osservata una commutazione completa. Per un elevato tasso di inversione, l'effetto di schermo ha un ritardo ed il campo applicato porta solo ad un piccolo spostamento della parete. In questo caso lo stato del dominio iniziale viene ripristinato subito dopo lo spegnimento del campo esterno e si ha il fenomeno del *backswitching*. I processi di schermatura (*screening processes*) possono essere divisi in processi di schermatura esterna e processi di schermatura di *bulk* (massa del cristallo).

La schermatura esterna (*external screening*)

L'effetto di schermatura esterna in un condensatore ferroelettrico è causato dalla corrente circolante nel circuito esterno e la sua entità è definita dal tempo caratteristico dello stesso circuito: τ_{ex} . Tale costante di tempo è determinata dal prodotto tra la resistenza e la capacità del circuito, e, di solito, va dai nano ai microsecondi. Il tempo di inversione t_s , osservato sperimentalmente, non può superare τ_{ex} .

Una delle caratteristiche essenziali che disciplinano i fenomeni di *screening* è l'esistenza di strati superficiali/*gap* dielettrici ("*dead layer*") in cui la polarizzazione spontanea è assente. A causa di questi strati si ha un campo di depolarizzazione residua all'interno del condensatore ferroelettrico. Per un condensatore ferroelettrico, tale campo E_{rd} di depolarizzazione residua all'interno della massa volumica del cristallo (*bulk*) rimane come intercapedine tra i singoli domini appena invertiti anche dopo la conclusione del processo di schermatura esterna:

$$E_{rd} = E_{dep} - E_{scr} = \frac{2L}{d} \cdot \frac{P_s}{\varepsilon_L \cdot \varepsilon_0} \quad (2.8)$$

dove P_s è la polarizzazione spontanea, L e d sono lo spessore dello strato superficiale e lo spessore del campione, ε_L è la costante dielettrica dello strato superficiale. Una schermatura esterna “veloce” non riesce a compensare completamente il campo E_{dep} per via degli strati superficiali dielettrici presenti. L’esistenza del campo di depolarizzazione residuo può essere compensato soltanto da un processo di schermatura di *bulk* “lento”.

La schermatura di *bulk*

L’effetto di schermatura dovuto alla massa volumica del cristallo è il solo modo per compensare il campo di depolarizzazione residuo E_{rd} . Tre meccanismi di schermatura di *bulk* vengono considerati di solito: (1) la redistribuzione delle cariche di *bulk* [35,36], (2) il riorientamento dei difetti dei dipoli [37], e (3) l’iniezione dei portatori di carica dall’elettrodo attraverso il *gap* dielettrico [38]. Le costanti di tempo di tutti i meccanismi considerati τ_b variano dai millisecondi fino ai mesi. Mentre E_{rd} è, teoricamente, di diversi ordini di grandezza inferiore a E_{dep} , tuttavia, in pratica, è dello stesso ordine del campo soglia come sperimentalmente osservato. Per brevi impulsi di campo elettrico applicato esternamente, il processo di schermatura del *bulk* ritarda il proprio effetto. E pertanto, l’inversione che ne segue è inefficace per un’inversione irreversibile della struttura di dominio. L’azione cooperativa di E_{rd} e di E_b porta all’inversione dopo lo spegnimento del campo esterno. Questo effetto si osserva nelle zone in cui $E_{loc}(r, t)$ supera il campo soglia E_{th} , cioè:

$$E_{loc}(r, t) = -[E_{dep}(r, t) - E_{scr}(r, t) + E_b(r, t)] = -[E_{rd}(r, t) + E_b(r, t)] > E_{th} \quad (2.9)$$

I valori ai limiti dell’efficacia della schermatura portano a diverse varianti nella cinetica dei domini dopo lo spegnimento del campo elettrico esterno: (1) per una schermatura di *bulk* inefficace lo stato iniziale del dominio può essere ricostruito completamente, (2) per un’efficace schermatura di *bulk* quasi tutte le geometrie di dominio indotte da campo elettrico possono essere stabilizzate. E’ stato dimostrato sperimentalmente che ogni fase della cinetica di dominio può svilupparsi secondo diversi scenari che sono fortemente dipendenti dall’efficacia della schermatura di *bulk*. I valori critici dei campi applicati ed i tassi di inversione, corrispondenti al passaggio da

uno scenario ad un altro nella cinetica dei domini, sono funzioni del materiale e delle condizioni sperimentali. Il parametro fondamentale per determinare la scelta del particolare scenario della cinetica di dominio è il rapporto R tra tasso di inversione ($1/t_s$) ed il tasso di schermatura di *bulk* ($1/\tau_{scr}$). Qui t_s è il tempo di inversione e τ_{scr} è la costante tempo di schermatura [39].

Si considerano tre diversi intervalli di efficacia della schermatura di *bulk*:

1. $R \ll 1$ - "schermatura completa";
2. $R > 1$ - "schermatura incompleta";
3. $R \gg 1$ - "schermatura inefficace".

Nelle sezioni seguenti discuto gli scenari della cinetica dei domini che descrivono il movimento laterale dei muri del dominio e la crescita del singolo dominio, cruciali per la produzione di strutture con domini periodici mono e bidimensionali.

Va sottolineato che la configurazione statica della struttura di dominio ferroelettrico, ottenuta applicando l'approccio proposto, è diversa da quella contemplata nella teoria classica che prevede l'equilibrio fra le strutture di dominio implementate [40].

L'equilibrio dello stato "multi-dominio" è determinata in questa teoria dal minimo dell'energia libera totale. Solo due tipi di equilibrio limite delle strutture di dominio possono esistere secondo questo approccio. In primo luogo, si ha la struttura di dominio periodico laminare o a labirinto (primo tipo) con le pareti dei domini neutre quando gli effetti di schermatura sono trascurabili. Il periodo del dominio è determinato dai valori di polarizzazione spontanea, dalla permittività dielettrica, dalla densità dell'energia del muro del dominio, e dallo spessore del campione [21,40].

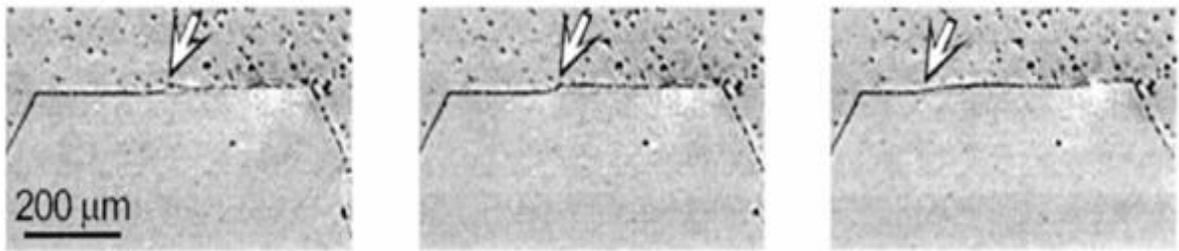
Il secondo tipo dimostra l'assenza di qualsiasi struttura di dominio (stato di dominio singolo senza pareti) a causa della completa schermatura del campo di depolarizzazione. E' noto che entrambe le previsioni classiche contraddicono le geometrie di dominio osservate sperimentalmente. Al contrario, l'approccio da noi considerato, prevede che qualsiasi modello di dominio possa essere prodotto e stabilizzato.

Queste strutture di dominio metastabili hanno lunga durata nel tempo (per mesi ed anni) e possono essere impiegate per qualsiasi applicazione. E' chiaro che la cinetica del dominio dipende anche dalle proprietà meccaniche del materiale per via dell'accoppiamento elettromeccanico a cui viene sottoposto.

2.5.2 Movimento laterale delle pareti dei domini

Crescita lenta dei domini

La "crescita lenta del dominio" si ottiene attraverso una completa schermatura di *bulk* ($R \ll 1$). In questo caso il processo di inversione nel Tantalato di Litio stechiometrico, nel Niobato di Litio congruente e nel Niobato di litio stechiometrico si ottiene attraverso il movimento laterale delle pareti, movimento rigorosamente orientato lungo la direzione Y. L'osservazione della cinetica di dominio, *in situ*, mostra chiaramente come l'inversione inizi sempre o con la nucleazione ai bordi dell'elettrodo o nei difetti presenti alla superficie [41,42]. Il movimento del muro del dominio procede di solito tramite la propagazione lungo la parete di un insieme di passi elementari di dominio otticamente distinti su scala (Fig. 2.5) [41-43], confermando così l'analisi teorica prima considerata. Durante lo spostamento dalla posizione iniziale, il muro decelera e il *backswitching* parziale si osserva dopo lo spegnimento del campo.



(a)

(b)

(c)

Fig. 2.5 Visualizzazione *in situ* della crescita di un dominio strato per strato nella fase di propagazione lungo il muro nel CLN. Gli intervalli di tempo dall'accensione del campo: (a) 1.20 s, (b) 1.28 s, e (c) 1.36 s. Elettrodi liquidi. $E_{ex}=220$ kV/cm. (dai Riff. [41,44])

Volendo descrivere l'effetto di decelerazione, in maniera più analitica, prendiamo in considerazione lo spostamento del piano della parete del singolo dominio dallo stato iniziale, con la schermatura di *bulk* completa (si assume E_{rd} completamente compensato dalla schermatura di *bulk*).

Per una schermatura lenta di *bulk* la distribuzione spaziale di E_b resta fissa durante l'intero spostamento del muro indotto dal campo e diventa asimmetrica relativamente al muro spostato. In questo caso, E_b ha la stessa direzione di E_{rd} nell'area invertita.

Il campo totale alla parete ΔE_{loc} , mediato sullo spessore del campione, coincide con il campo prodotto da un condensatore piano avente larghezza pari allo spostamento del muro Δx e carica superficiale determinata dal doppio della densità di carica dovuta al campo schermante di *bulk* $2\sigma_b$ [44-46]:

$$\Delta E_{loc}(\Delta x) = \frac{2\sigma_b}{\varepsilon \cdot \varepsilon_0} \cdot F\left(\frac{\Delta x}{d}\right) \quad (2.10)$$

dove $F\left(\frac{\Delta x}{d}\right) = \frac{1}{\pi} \cdot [2 \cdot \arctg\left(\frac{\Delta x}{d}\right) + \left(\frac{\Delta x}{d}\right) \cdot \ln\left(1 + \frac{d^2}{\Delta x^2}\right)]$, e $\sigma_b = \frac{2L}{d} \cdot \frac{P_S}{\varepsilon_L \cdot \varepsilon_0}$.

Il campo di decelerazione al muro aumenta di Δx sopprimendo così la fase di generazione (nucleazione 2D). In seguito la velocità di movimento del muro diminuisce e il muro si arresta ad una certa distanza dalla posizione iniziale. Dopo lo spegnimento del campo esterno, l'azione di $E_{rd} + E_b$ porta al ritorno della parete del dominio allo stato iniziale ("backswitching completo"). La dipendenza dello spostamento della parete dal campo, ottenuta sperimentalmente e misurata durante il graduale incremento dell'ampiezza E_{ex} , è descritta dall'equazione 2.10 [46]. Quando la generazione dei singoli passi è soppressa a causa della schermatura incompleta ($R > 1$), due scenari insoliti di movimento laterale della parete si possono avere: (1) perdita della stabilità del muro di dominio attraverso la formazione di una struttura a forma di "dito", e (2) l'accelerazione del movimento del muro a causa della fusione dei domini.

Perdita della forma della parete del dominio

La perturbazione della forma planare del muro porta ad una perdita della stabilità della forma complessiva della parete del dominio attraverso la formazione di strutture sub-micrometriche di dominio auto-assemblate a forma di "dita" (Fig. 2.6).

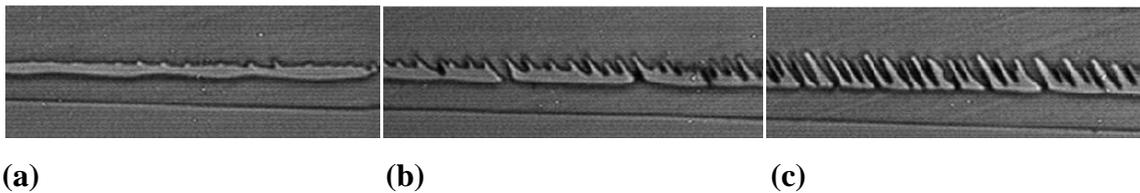


Fig. 2.6 Perdita della stabilità della forma del muro durante l'inversione nell'area coperta dallo strato di dielettrico artificiale. Fasi dell'evoluzione della struttura. Osservazione ottica dei domini rivelata dall'attacco chimico. (dal Rif. [44])

L'irregolare forma della parete del dominio può essere provocata da: (1) disomogeneità del campo E_{loc} a causa di irregolarità nella forma degli elettrodi e (2) diminuzione locale del campo soglia. La variazione della forma del muro del dominio si evolve formando una sporgenza ("dito") rigorosamente orientato lungo la direzione Y (Fig. 2.6(a)). La nucleazione correlata dà luogo a particolarità nella distribuzione spaziale di E_{loc} che determinano la comparsa di dita vicine e la propagazione di strutture a "dito" lungo il

muro (Fig. 2.6(b)). L'effetto di decelerazione, dovuto allo spostamento della parete e caratterizzato dalla variazione $E_{loc}(\Delta x)$, si annulla in prossimità della punta della struttura a “dito” a causa della diminuzione (relativamente al piano del muro) dell'area limitrofa invertita; area che genera ΔE_{loc} (vedi equazione 2.9). Infine, la struttura a “dito” si estende lungo tutta la parete (Fig. 2.6(c)). Durante il *poling* periodico, questo meccanismo produce l'anormale "allargamento di dominio" (ampio spostamento del muro del dominio dal bordo dell'elettrodo), che è estremamente indesiderato. Questo fenomeno degenerativo della parete che prende il nome di "*fingering*" porta alla fusione dei domini, distruggendo la regolare periodicità nella geometria dei domini [47-49].

Accelerazione del movimento della parete del dominio

Nonostante sia improbabile che si abbia una fase di generazione per schermature incomplete ($R > 1$), il campo applicato è abbastanza forte per la fase di crescita. Questa è la ragione per la quale la propagazione del muro di dominio può essere accelerato dalla fusione dei domini (Fig. 2.7), che porta ad una generazione efficace di un gran numero di siti di crescita lungo il muro. Questi ultimi rapidamente si propagano lungo le pareti esistenti [41-43]. Come risultato si ha la scomparsa della deviazione locale dell'orientamento del muro dalla direzione cristallografica permessa (Fig. 2.7(b)).

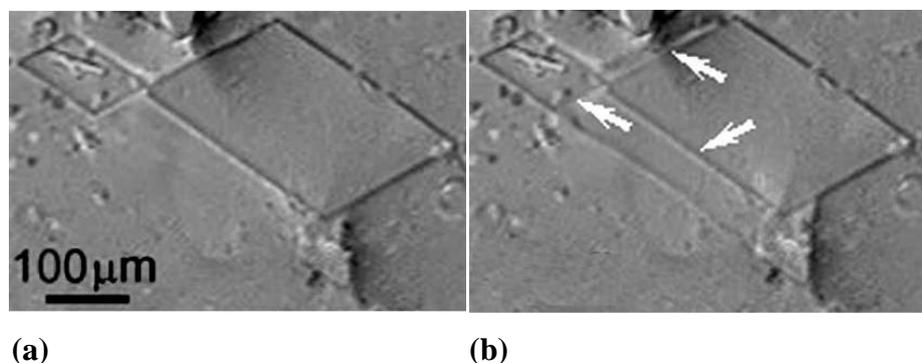


Fig. 2.7 Visualizzazione *in situ* del “*domain gulping*” durante l’inversione di *poling* in un campo uniforme nel CLN. Le frecce indicano le impronte del muro di dominio. L’intervallo di tempo tra i fotogrammi è di 0.04 s. Elettrodi liquidi. $E_{ex}=153$ kV/cm (dal Rif. [44])

La crescita del dominio ottenuta in maniera eccessivamente veloce ("*domain gulping*") è seguita da un effetto di memoria facilmente visualizzabile causato da un ritardo dello schermo di *bulk*. "Le impronte dei muri del dominio" si hanno nei luoghi laddove le pareti rimangono per un tempo relativamente lungo prima di passare ad una nuova posizione indotta dalla fusione (Fig. 2.7(b)).

Tale effetto può essere compreso se si prende in considerazione la natura elettro-ottica

del contrasto osservato nei muri del dominio. La distribuzione di E_{loc} nel condensatore ferroelettrico dimostra l'aumento del campo in prossimità della parete del dominio statico [48]. La variazione dell'indice di rifrazione, indotta dal campo, porta ad osservare il contrasto ottico del muro del dominio. E' chiaro che E_b dimostra un'anomalia spaziale in prossimità del muro (vedi equazione 2.7). Dopo lo spostamento, le impronte del muro del dominio svaniscono a poco a poco a causa del processo relativamente lento di *screening* di *bulk*. Il tempo di vita dell'impronta è definito dalla costante di tempo della schermatura di *bulk*. Questo effetto è stato osservato sperimentalmente nel Tantalato di Litio congruente da Gopalan e Mitchell [50]. L'effetto di accelerazione sopra discusso prevale per il passaggio da uno stato iniziale multi-dominio ad un'alta concentrazione di piccoli domini isolati. Il tasso di inversione per il "passo di generazione dovuto al meccanismo della sola fusione" è determinato da un solo parametro: la concentrazione dei singoli domini nello stato iniziale. La completa commutazione può essere raggiunta se la concentrazione relativa supera il valore critico. Lo scenario di inversione discusso prevale per la prima inversione nel CLT [51,52], che inizia con una formazione di domini aventi diametro sub-micrometrico con una densità di 1000 mm^{-2} .

Movimento "super veloce" del fronte di inversione

In presenza di campi sufficientemente forti il processo di inversione può continuare anche con un effetto schermante di *bulk* assolutamente inefficace ($R \gg 1$). In questo caso il movimento continuo del muro è assolutamente impossibile e la crescita del dominio si ottiene attraverso la propagazione del confine dell'insieme dei domini isolati a forma di ago. Questo tipo di inversione che prende il nome di "*discrete switching*" ("inversione discreta") risulta nel movimento "super veloce" del fronte di inversione dimostrando uno spiccato comportamento auto-assemblante. Questo effetto è stato osservato durante il "*backswitching*" spontaneo dopo l'improvvisa rimozione del campo esterno di inversione nei cristalli di Niobato di Litio e Tantalato di Litio [53-55]. Diverse strutture di dominio auto-organizzate su scala nanometrica hanno origine: (1) *array* strettamente orientati lungo le direzioni cristallografiche (Fig. 2.8(a)) e (2) strisce (Fig. 2.8(b)). Un effetto simile è stato osservato durante l' "inversione super veloce" nel PGO [56,57].

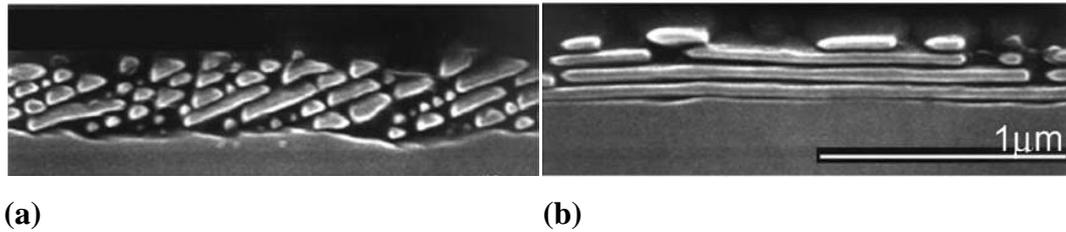


Fig. 2.8 Strutture nanometriche quasi periodiche: (a) array e (b) strisce. *Backswitching* in prossimità del bordo dell'elettrodo nel CLN. Immagini SEM. Domini rivelati dall'attacco in acido fluoridrico. (dal Rif. [44])

La formazione di tutte le strutture auto-assemblate ottenute può essere considerata come manifestazione dell'effetto della nucleazione correlata in prossimità dello spostamento della parete di dominio che viene fermato da un incompleto effetto schermante. La nucleazione correlata è causata da un massimo del campo E_{loc} , presente, in questo caso, di fronte al muro ad una distanza quasi uguale allo spessore dello strato dielettrico superficiale L [48]. Questo massimo del campo aumenta sostanzialmente la probabilità di nucleazione 3D di fronte al muro, portando così alla comparsa di isolati domini alla distanza L lungo il confine. Qualsiasi dominio isolato nascente non può diffondersi a causa dell'annullamento della nucleazione 2D alla sua parete a causa del campo E_{dep} non compensato. I domini nascenti respingono gli altri a causa dell'interazione elettrostatica ed elettromeccanica. Come risultato di questo processo si ha che una catena quasi regolare di domini aghiformi aventi dimensioni sub-nanometriche e nanometriche allineata lungo la parete (Fig. 2.9).

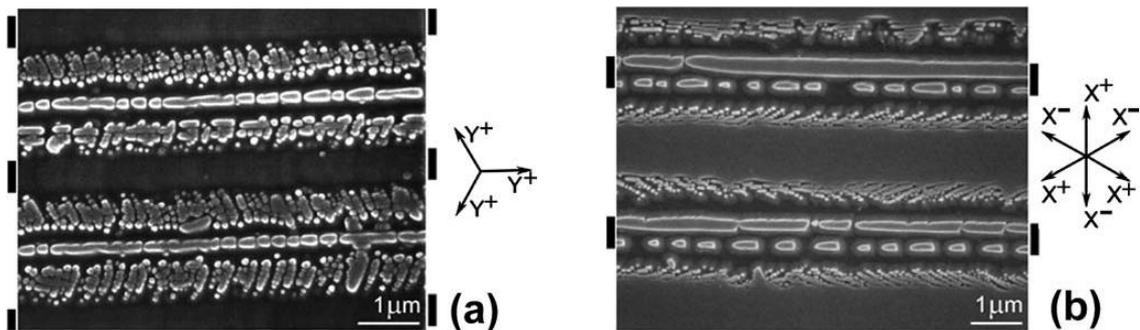


Fig. 2.9 Array di nano-domini orientati lungo le direzioni: (a) Y^+ e (b) X . *Backswitching* vicino al bordo nel CLN. Immagini SEM. Domini rivelati dall'attacco chimico. I rettangoli neri mostrano la posizione degli elettrodi. (dai Riff. [42,44])

La struttura autogestita e quasi regolare dei domini allargandosi può coprire aree dei millimetri quadrati. Il ruolo della nucleazione correlata può essere intensificata: (1) dall'aumento di R attraverso l'aumento del campo di inversione oppure ostacolando i processi di schermatura, (2) dalla deposizione di uno strato dielettrico artificiale

superficiale, aumentando così E_{rd} . Quest'ultimo ci permette di controllare il periodo della struttura quasi regolare, importante per l'ingegnerizzazione dei domini. È stato rivelato sperimentalmente che la velocità di tale processo supera di diversi ordini di grandezza l'usuale velocità di movimento. Questa è la ragione per cui il processo può essere chiamato come "crescita super veloce del dominio." La nucleazione correlata gioca il ruolo più importante durante il *backswitching* nel CLN dopo la brusca rimozione del campo esterno. Nel Niobato di Litio il valore di P_s porta ad un valore eccessivamente alto di E_{rd} che induce il *backswitching*. Il movimento all'indietro del muro del dominio si ottiene attraverso la propagazione della struttura quasi periodica altamente organizzata dell'*array* dei domini strettamente orientato lungo le direzioni cristallografiche (Fig. 2.9) [48,53-55,58]. Ogni *array* quasi regolare è composto da nano domini aventi un diametro di 30-100 nm e una densità media lineare superiore a 10^4 mm^{-1} . Due varianti dell'orientamento dell'*array* si ottengono: (1) lungo la direzione Y^+ a 60° rispetto ai bordi degli elettrodi (Fig. 2.9(a)) e (2) lungo le direzioni X (Fig. 2.9(b)). Nell'ultimo caso la rapida crescita dei nano-domini lungo gli elettrodi può portare alla formazione di una serie periodica di nanodomini a striscia con periodo di circa 100 nm (Fig. 2.8(b)).

2.6 Crescita dei domini isolati

È stato dimostrato sperimentalmente per diversi materiali ferroelettrici che le forme dei domini isolati che si accrescono in un campo elettrico uniforme dipendono essenzialmente dal valore del campo [51,59-62].

2.6.1 Domini a forma esagonale

I domini perfettamente esagonali con i lati strettamente orientati lungo le direzioni Y sono formati per inversione sotto totale schermatura ($R < 1$) in tutti i cristalli LN (Fig. 2.10(a)) e SLT (Fig. 2.10(b)).

Per la schermatura incompleta ($R > 1$), il campo E_{rd} impedisce la fase di propagazione lungo le pareti e non si hanno forme esagonali. Durante l'inversione "molto veloce" nel LN non si formano esagoni regolari. Effetti simili sono stati osservati anche nei campioni coperti da uno strato di dielettrico artificiale (Fig. 2.11).

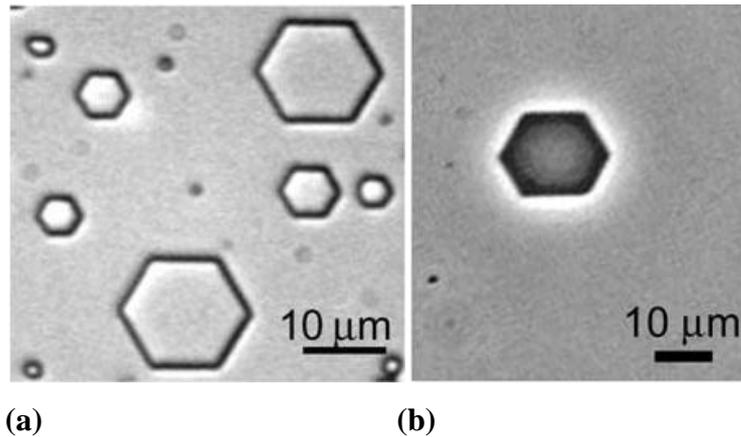


Fig. 2.10 Domini esagonali: (a) CLN, (b) SLT. Immagini: (a) domini rivelati per attacco chimico, (b) microscopia a contrasto di fase. (dai Riff. [37,44])

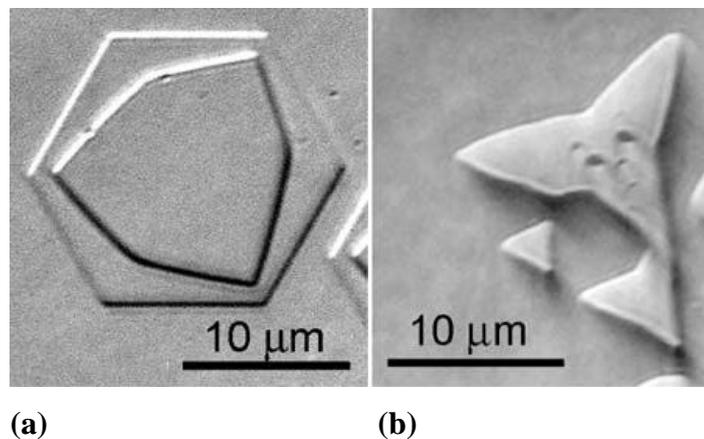


Fig. 2.11 Domini poligonali esotici formati durante l'inversione nel CLN sotto uno strato dielettrico artificiale: (a) esagoni convessi, (b) esagoni con angoli concavi ("stella Mercedes") e triangoli regolari. Domini rivelati dall'attacco chimico. (a) Inversione data da due impulsi (attacco della superficie -z dopo ogni impulso). (dai Riff. [37,44])

2.6.2 Domini a forma triangolare

Singoli domini di forma triangolare con i lati rigorosamente orientati lungo la direzione X sono stati osservati nel CLN e CLT (Fig. 2.12). Nel CLT, i domini triangolari regolari si sono sempre ottenuti per tutte le condizioni di inversione (Fig. 2.12(a)), mentre in domini CLN tali forme di inversione sono state realizzate con uno strato dielettrico artificiale o come risultato di un veloce *backswitching* spontaneo (Fig. 2.12(b)).

La differenza quantitativa osservata tra le forme dei domini nel CLT (triangoli), nel SLT o nel LN (esagoni) ai fini dell'inversione in condizioni normali può essere attribuito alla grande differenza dei tempi di schermatura. E' stato dimostrato sperimentalmente che il processo di schermatura nel CLT è sostanzialmente più lento ($\tau_{scr} \sim 1s$) rispetto al LN e al SLT ($\tau_{scr} \sim 50-100 ms$).

La trasformazione continua da esagoni a triangoli nel CLN indotta dalla incompleta schermatura è una chiara dimostrazione che la forma del dominio è regolato dalla concorrenza tra la fase di generazione e la fase cinetica di crescita di dominio.

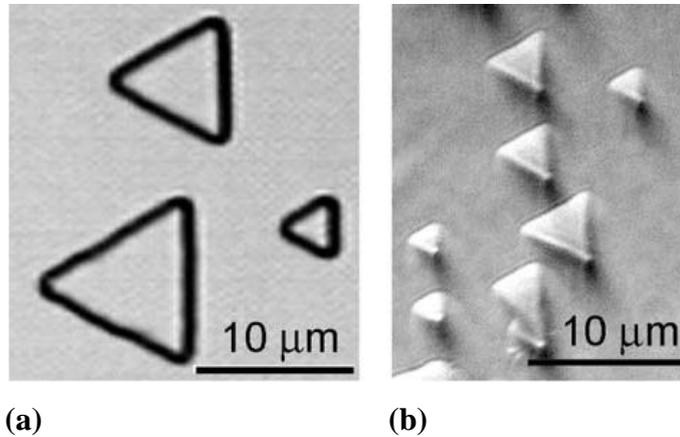


Fig. 2.12 Domini triangolari: (a) CLT, (b) CLN (formati durante l'inversione dello strato dielettrico artificiale). Domini rivelati per attacco chimico. (dai Riff. [37,44])

2.6.3 Domini a forma di ragnatela

E' interessante notare che leggi di crescita di domini possono essere osservate anche in "inversioni discrete" per schermature del tutto inefficaci ($R \gg 1$).

L'effetto è stato studiato durante l'inversione nel SLT completamente coperto da uno strato dielettrico artificiale (*photoresist*). L'inversione inizia con la formazione di un convenzionale dominio esagonale attorno ad un forellino (*pin-hole*) nello strato dielettrico. La successiva crescita si realizza attraverso la diffusione di un insieme quasi regolare di domini micrometrici isolati che seguono gli stessi meccanismi di crescita continua del dominio isolato. La forma dell'area invertita è lo stesso poligono regolare di quello presente nella crescita dei domini isolati.

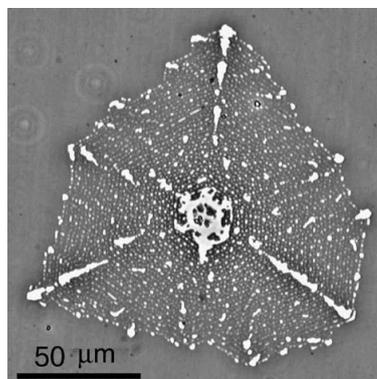


Fig. 2.13 Struttura di dominio a "ragnatela" ottenuta per inversione con uno strato dielettrico artificiale nel SLT. Domini rivelati per attacco chimico. (dai Riff. [44,63])

Gli “*steps*” si formano e si propagano lungo il confine dell’insieme, giocando il ruolo di muro del dominio (Fig. 2.13). La distanza media tra i nuclei è molto vicina allo spessore dello strato dielettrico artificiale.

2.7 Conclusioni

Questa sezione della tesi intende essere un’introduzione al *poling* del Niobato e del Tantalato di Litio. L’argomento trattato è particolarmente complesso: la comprensione, infatti, delle dinamiche che governano e regolano i meccanismi di inversione dei domini dei materiali ferroelettrici ha affascinato ed impegnato gli studiosi per decenni. La regolare inversione della polarizzazione spontanea di questi materiali consente la modulazione del coefficiente non lineare che se opportunamente controllata è un potente e versatile strumento per l’implementazione del QPM e, quindi, per l’implementazione di dispositivi che permettano l’elaborazione parametrica dei segnali ottici. E’ necessaria, però, una buona conoscenza dei cristalli impiegati, le cui caratteristiche variano al variare delle stechiometrie della loro composizione chimica, per fabbricare reticoli non lineari che consentano la generazione efficiente di seconda armonica. Il *poling* indotto da campo elettrico è stata la tecnica impiegata nella creazione delle strutture reticolari dei dispositivi prodotti durante la mia attività di ricerca. Ho voluto, quindi, illustrare al lettore la tecnologia del *poling* assistito da campo elettrico. Ho descritto la cinetica dei domini ferroelettrici dato che il *poling* è fortemente dipendente da quest’ultima. Ho fissato l’attenzione sui modelli fisici maggiormente considerati in letteratura, cercando di interpretarli per poter costruire dei dispositivi efficienti, stabili, compatti ed economici per applicazioni nelle comunicazioni ottiche.

2.8 Riferimenti bibliografici

- [1] V. Gopalan, T. E. Mitchell, Y. Furukawa, K. Kitamura, "The role of nonstoichiometry in 180° domain switching of LiNbO₃ crystals," *Applied Physics Letters*, Vol. 72, no. 16, pp. 1981-1983, 1998.
- [2] K. Kitamura, Y. Furukawa, K. Niwa, V. Gopalan, T. E. Mitchell, "Crystal growth and low coercive field 180° domain switching characteristics of stoichiometric LiTaO₃," *Applied Physics Letters*, Vol. 73, no. 21, pp. 3073-3075, 1998.
- [3] V. Gopalan, T. E. Mitchell, K. E. Sicakfus, "Switching kinetics of 180° domains in congruent LiNbO₃ and LiTaO₃ crystals," *Solid State Communications*, Vol. 109, pp. 111-117, 1999.
- [4] S. Kim, V. Gopalan, A. Gruverman, "Coercive fields in ferroelectrics: a case study in Lithium Niobate and Lithium Tantalate," *Applied Physics Letters*, Vol. 80, no. 15, pp. 2740-2742, 2002.
- [5] C. C. Battle, S. Kim, V. Gopalan, K. Barkocy, M. C. Gupta, Q. X. Jia, T. E. Mitchell, "Ferroelectric domain reversal in congruent LiTaO₃ crystals at elevated temperatures," *Applied Physics Letters*, Vol. 76, no. 17, pp. 2436 – 2438, 2000.
- [6] C. Santini, "Sperimentazione del Poling Periodico Superficiale nel Tantalato di Litio," Tesi di Laurea, Dipartimento di Ingegneria Elettrica, Elettronica e delle Telecomunicazioni, Università degli Studi di Palermo, A.A. 2004-05.
- [7] M. Yamada, M. Yamada, N. Nada, M. Saitoh, and K. Watanabe, "First-order quasi-phase matched LiNbO₃ waveguide periodically poled by applying an external field for efficient blue second-harmonic generation," *Applied Physics Letters*, Vol. 62, no. 5, pp. 435-436, 1993.
- [8] G. D. Miller, "Periodically poled Lithium Niobate: modeling, fabrication and non-linear optical performance," Tesi PhD, Department of Applied Physics, Stanford University, 1998.
- [9] R. G. Batchko, V. Y. Shur, M. M. Fejer, R. L. Byer, "Backswitch Poling in Lithium Niobate for High-fidelity Domain Patterning and Efficient Blue Light Generation," *Applied Physics Letters*, Vol. 75, no. 12, pp. 1673-1675, 1999.
- [10] V. Pruneri, PhD thesis, "Electric field periodically inverted LiNbO₃ for optical frequency conversion", *University of Southampton*, 1996.
- [11] L. Ming, "Fabrication and applications of zinc indiffused channel waveguides in periodically poled lithium niobate," PhD Thesis, *University of Southampton*, Faculty of engineering, science, and mathematics, OPTOELECTRONICS RESEARCH CENTRE, 2005.
- [12] R. C. Miller, "Some experiments on the motion of 180° domain walls in BaTiO₃," *Physical Review*, Vol. 111, no. 3, pp. 736-739, 1958.

- [13] R. C. Miller and A. Savage, "Direct Observation of Antiparallel Domains During Polarization Reversal in Single-Crystal Barium Titanate," *Physical Review Letters*, Vol. 2, no.7, pp. 294–296, 1959.
- [14] R. G. Batchko, G. D. Miller, R. L. Byer, M. M. Fejer, "Backswitch poling method for domain patterning of ferroelectric materials," *United States Patent no. US 6,542,285 B1*, 2003.
- [15] L. E. Myers, "Quasi-phasematched optical parametric oscillators in bulk periodically poled lithium niobate," *Stanford University Doctoral Dissertation*, pp. 43-44, 1995.
- [16] V. Y. Shur, "Ferroelectric thin films: synthesis and basic properties", edited by Carlos Paz de Araujo, James F. Scott and George W. Taylor, *Gordon and Breach Publishers*, Amsterdam, p. 153 ff., 1996.
- [17] R. C. Miller and A. Savage, "Further Experiments on the Sidewise Motion of 180° Domain Walls in BaTiO₃," *Physical Review*, Vol. 115, no. 5, pp. 1176-1180, 1959.
- [18] M. Hayashi, "Kinetics of domain wall motion in ferroelectric switching. I. General formulation," *Journal of the Physical Society of Japan*, Vol. 33, no. 3, pp. 616-628, 1972.
- [19] E. Fatuzzo, "Theoretical Considerations on the Switching Transient in Ferroelectrics," *Physical Review*, Vol. 127, no. 6, pp. 1999-2005, 1962.
- [20] I. Camlibel, "Spontaneous polarization measurements in several ferroelectric oxides using a pulsed-field method," *Journal of Applied Physics*, vol.40, pp.1690-1693, 1969.
- [21] E. Fatuzzo and W. J. Merz, *Ferroelectricity*, North-Holland Publishing Company, p. 193, Amsterdam, 1967.
- [22] L. E. Myers, R. C. Eckardt, M. M. Fejer, R. L. Byer, W. R. Bosenberg, and J. W. Pierce Myers, "Quasi-phase-matched optical parametric oscillators in bulk periodically poled LiNbO₃," *Journal of the Optical Society of America B*, Vol.12, no. 11, pp. 2102-2116, 1995.
- [23] A. C. Busacca, A. Chimenti, A. C. Cino, P. Lo Torto, S. Riva Sanseverino, "Ion plating plasma assisted deposition of a silica film for electric field surface periodic poling in lithium niobate crystal," *Design and technology of coatings. Proceedings Bonassola*, 24-26 Settembre 2003.
- [24] C. L. Sones, S. Mailis, V. Apostolopoulos, I. E. Barry, C. B. E. Gawith, P. G. R. Smith and R. W. Eason, "Fabrication of piezoelectric micro-cantilevers in domain engineered LiNbO₃ single crystals," *Journal of Micromechanics and Microengineering*, vol.12, no. 1, pp. 53-57, 2002.
- [25] A. C. Busacca, C. L. S., R. W. Eason, and S. Mailis, "First-order quasi-phase-matched blue light generation in surface poled Ti:Indiffused Lithium Niobate waveguide," *Applied Physics Letters*, Vol. 84, no. 22, pp. 4430-4432, 2004.

- [26] J. P. Meyn, C. Laue, R. Knappe, R. Wallenstein, and M.M. Fejer, "Fabrication of periodically poled lithium tantalate for UV generation with diode lasers," *Applied Physics B Lasers and Optics*, Volume 73, no. 2, pp. 111-114, 2001.
- [27] M. Volmer, "Kinetik der Phasenbildung," *Steinkopff*, Dresden-Leipzig, 1939.
- [28] Y. B. Zeldovich, "Theory of new-phase formation: cavitation," *Journal of Experimental and Theoretical Physics*, Vol. 12, pp. 525-538, 1942.
- [29] J. W. P. Schmelzer (ed.), "Nucleation Theory and Applications," *Wiley-VCH*, Weinheim, 2005.
- [30] A. N. Kolmogorov, *Izv. Acad. Nauk USSR., Ser. Math.*, Vol. 3, p. 355, 1937.
- [31] M. Avrami, "Kinetics of Phase Change. I General Theory," *Journal of Chemical Physics*, Vol. 7, no. 12, pp. 1103-1112, 1939.
- [32] Y. Ishibashi and Y. Takagi, "Note on Ferroelectric Domain Switching," *Journal of the Physical Society of Japan*, Vol. 31, pp. 506-510, 1971.
- [33] V. Y. Shur and E. L. Rumyantsev, "Kinetics of ferroelectric domain structure: retardation effects," *Ferroelectrics*, Vol. 191, pp. 319-333, 1997.
- [34] V. Y. Shur, "Kinetics of polarization reversal in normal and relaxor ferroelectrics: relaxation effects," *Phase Transitions*, Vol. 65, pp. 49-72, 1998.
- [35] V. Y. Shur, "Ferroelectric Thin Films: Synthesis and Basic Properties," edited by C. A. Paz de Araujo, J. F. Scott and G. W. Taylor *Gordon and Breach*, New York, p. 153, 1996.
- [36] V. M. Fridkin, "Ferroelectrics Semiconductors," *Consulting Bureau*, New York and London, 1980.
- [37] P. V. Lamberck and G. H. Jonker, "The nature of domain wall stabilization in ferroelectric perovskites," *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, Vol. 47, no. 5, pp. 453-461, 1986.
- [38] A. K. Tagantsev, I. Stolinchnov, E. L. Colla and N. Setter, "Polarization fatigue in ferroelectric films: Basic experimental findings, phenomenological scenarios, and microscopic features," *Journal of Applied Physics*, Vol. 90, no. 3, pp. 1387-1402, 2001.
- [39] V. Y. Shur, "Nucleation Theory and Applications," edited by J. W. P. Schmelzer *Wiley-VCH*, Weinheim, p. 178, 2005.
- [40] M. E. Lines and A. M. Glass, "Principles and Application of Ferroelectrics and Related Materials," *Clarendon Press*, Oxford, 1977.
- [41] V. Y. Shur, E. L. Rumyantsev, E. V. Nikolaeva, E. I. Shishkin, R. G. Batchko, M. M. Fejer, R. L. Byer, and I. Mnushkina, "Domain kinetics in congruent and stoichiometric lithium niobate," *Ferroelectrics*, Vol. 269, pp. 189-194, 2002.
- [42] V.Y. Shur, E.L. Rumyantsev, E.V. Nikolaeva, E.I. Shishkin, R.G. Batchko, M.M. Fejer, R.L. Byer, "Recent achievements in domain engineering in lithium niobate and lithium tantalate," *Ferroelectrics*, Vol. 257, pp. 191-202, 2001.

-
- [43] M. E. Drougard and R. Landauer, "On the Dependence of the Switching Time of Barium Titanate Crystals on Their Thickness," *Journal of Applied Physics*, Vol. 30, no. 11, pp. 1663-1668, 1959.
- [44] V. Y. Shur, "Kinetics of ferroelectric domains: Application of general approach to LiNbO_3 and LiTaO_3 ," *Journal of Materials Science*, Vol. 41, pp. 199-210, 2006.
- [45] V. Y. Shur, A. L. Gruverman, V. V. Letuchev, E. L. Rumyantsev and A. L. Subbotin, "Domain Structure of Lead Germanate," *Ferroelectrics*, Vol. 98, pp. 29-49, 1989.
- [46] V. Y. Shur, E. L. Rumyantsev, V. P. Kuminov, A. L. Subbotin and E.V. Nikolaeva, "Motion of a planar domain wall in the ferroelectric-ferroelastic gadolinium molybdate," Vol. 41, no. 1, pp. 112-115, 1999.
- [47] G. Rosenman, A. Skliar and A. Arie, "Ferroelectric domain engineering for quasi-phase-matched nonlinear optical devices," *Ferroelectrics Review*, Vol. 1, pp. 263- 326, 1999.
- [48] V. Y. Shur, E. L. Rumyantsev, E. V. Nikolaeva, E. I. Shishkin, R. G. Batchko, G. D. Miller, M. M. Fejer and R. L. Byer, "Micro- and nano-scale domain engineering of lithium niobate and lithium tantalate," *SPIE Proceedings on Smart Structures and Materials*, Vol. 3992, pp. 143-154, 2000.
- [49] V. Y. Shur, E. Rumyantsev, R. Batchko, G. Miller, M. Fejer, and R. Byer, "Physical Basis of the Domain Engineering in the Bulk Ferroelectrics," *Ferroelectrics*, Vol. 221, pp. 157-159, 1999.
- [50] V. Gopalan, T. E. Mitchell, "In situ video observation of 180° domain switching in LiTaO_3 by electro-optic imaging microscopy," *Journal of Applied Physics*, Vol. 85, no. 4, pp. 2304-2311, 1999.
- [51] V. Y. Shur, E. V. Nikolaeva, E. I. Shishkin, A. P. Chernykh, K. Terabe, K. Kitamura, H. Ito and K. Nakamura, "Domain Shape in Congruent and Stoichiometric Lithium Tantalate," *Ferroelectrics*, Vol. 269, pp. 195-200, 2002.
- [52] V. Y. Shur, E. V. Nikolaeva, E. I. Shishkin, V. L. Kozhevnikov, A. P. Chernykh, K. Terabe and K. Kitamura, "Polarization reversal in congruent and stoichiometric lithium tantalate," *Applied Physics Letters*, Vol. 79, no. 19, pp. 3146-3148, 2001.
- [53] V. Y. Shur, E. L. Rumyantsev, E. V. Nikolaeva, E. I. Shishkin, D. V. Fursov, R. G. Batchko, L. A. Eyres, M. M. Fejer and R. L. Byer, "Nanoscale backswitched domain patterning in lithium niobate," *Applied Physics Letters*, Vol. 76, no. 2, pp. 143-145, 2000.
- [54] R. G. Batchko, V. Y. Shur, M. M. Fejer and R. L. Byer, "Backswitch poling in lithium niobate for high-fidelity domain patterning and efficient blue light generation," *Applied Physics Letters*, Vol. 75, no. 12, pp. 1673- 1675, 1999.
- [55] V. Y. Shur, E. L. Rumyantsev, E. V. Nikolaeva, E. I. Shishkin, D. V. Fursov, R. G. Batchko, L. A. Eyres, M. M. Fejer, R. L. Byer and J. Sindel, "Formation of

- Self-Organized Nanoscale Domain Patterns during Spontaneous Backswitching in Lithium Niobate,” Vol. 253, pp. 105-114, 2001.
- [56] V. Y. Shur, A. L. Gruverman, N. Y. Ponomarev, and N. A. Tonkachyova, “Change of Domain Structure of Lead Germanate in Strong Electric Field,” *Ferroelectrics*, Vo.126, pp. 371-376, 1992.
- [57] V. Y. Shur, A. L. Gruverman, N. Y. Ponomarev, E. L. Romyantsev and N. A. Tonkachyova, *Integrated Ferroelectrics*, Vol. 2, pp. 51-61, 1992.
- [58] V. Y. Shur, E. V. Nikolaeva and E. I. Shishkin, “Ferroelectric nanodomain structures in LiNbO₃ and LiTaO₃: Investigation by scanning probe microscopy,” *Physics of Low-Dimensional Structures*, Vol. 3-4, pp. 139-147, 2003.
- [59] R. C. Miller and A. Savage, “Further Experiments on the Sidewise Motion of 180° Domain Walls in BaTiO₃,” *Physical Review*, Vol. 115, no. 5, pp. 1176-1180, 1959.
- [60] J. Hatano, F. Suda and H. Futama, “Domain Structures and Domain Wall Energies in Ferroelectric Guanidinium Aluminum Sulfate Hexahydrate,” *Journal of the Physical Society of Japan*, Vol. 45, pp. 916-922, 1978.
- [61] V. Y. Shur, V. V. Letuchev and E. L. Romyantsev, “Field Dependence of the Polarization Switching Parameters and Shape of Domains in Lead Germanate,” Vol. 26, no. 8, pp. 1521-1522, 1984.
- [62] V. Y. Shur, V. V. Letuchev, E. L. Romyantsev and I. V. Ovechkina, “Triangular Domains in Lead Germanate,” *Physics of Solid State*, Vol. 27, no. 5, pp. 959-960, 1985.
- [63] A. Gruverman, O. Kolosov, J. Hatano, K. Takahashi and H. Tokumoto, “Domain structure and polarization reversal in ferroelectrics studied by atomic force microscopy,” *Journal of Vacuum Science and Technology B*, Vol. 13, no. 3, pp. 1095-1099, 1995.

Capitolo 3

Tecnica del *Surface Periodic Poling* e caratterizzazione mediante diffrazione di raggi X di strutture periodiche sub-micrometriche realizzate con tale tecnologia

3.1 Introduzione

Come ben noto, i primi ad utilizzare un campo elettrico per la realizzazione di strutture periodiche sul LiNbO_3 furono Yamada *et al.* [1], che, nel 1993, sfruttarono la configurazione *QPM* per la generazione di seconda armonica in guide d'onda. Il processo per la polarizzazione periodica del LiNbO_3 e del LiTaO_3 , come già detto nel capitolo precedente, consiste essenzialmente in due passi: nella definizione, per via litografica, dell'elettrodo periodico sulla superficie del campione e nell'applicazione di un forte campo elettrico che inverta l'orientazione dei domini. L'elettrodo, costituito da materiale conduttore, contatta la superficie là dove si vogliono invertire i domini e nelle regioni non coperte dall'elettrodo, spesso, si pone del materiale isolante che ne impedisce l'inversione. Il campo coercitivo E_c , necessario all'inversione dei domini del cristallo, viene applicato a temperatura ambiente ed il ritorno della tensione al valore di massa avviene in un tempo opportuno. Diversamente, la polarizzazione potrebbe, almeno parzialmente, tornare nel verso di partenza (*backswitching*). Per ottenere l'inversione dei domini attraverso tutto lo spessore del *wafer* (*bulk poling*) si deve applicare un impulso che dia la quantità esatta di carica, per evitare l'allargamento e, quindi, l'unione dei domini sotto le zone isolate elettricamente. L'ingegnerizzazione di tale processo è generalmente difficoltosa, ed in particolare il processo critico quando si vogliono raggiungere periodi corti delle strutture con una buona qualità dell'inversione.

Tuttavia, quando le applicazioni in ottica non lineare riguardano le guide, sia quelle a

canale che quelle planari, non è più importante che i domini invertiti riguardino l'intero spessore del materiale ferroelettrico, ma è sufficiente che tali domini si sovrappongano alle guide, tipicamente progettate nei primi micrometri sotto la superficie del cristallo. Un primo modo di ottenere l'inversione dei domini superficialmente fu sperimentato da J. Webjorn *et al.* [2] nel 1989, i quali hanno invertito l'orientazione dei domini in superficie tramite l'*out*-diffusione del LiO₂; tale tecnica non consente, però, di raggiungere una profondità dei domini bastanta a garantire una perfetta sovrapposizione con le guide, inoltre, necessita di un *annealing* ad alte temperature.

Un'ulteriore tecnica di inversione superficiale che elimina i problemi del controllo di carica che si hanno nel *bulk poling*, ma che comunque garantisce la sovrapposizione con le guide d'onda, è stata messa a punto da A. Busacca *et al.* [3-5] che nel 2002 sono riusciti ad ottenere generazione di luce blu, a 412.6 nm, con QPM del primo ordine in guide a diffusione di Titanio. Questa tecnica, brevettata dallo stesso autore, consiste nell'ottenere, per mezzo dell'applicazione di un forte campo elettrico, la polarizzazione periodica superficiale fornendo un eccesso di carica (*overpoling*) che fa invertire l'intero volume del cristallo eccetto che le zone superficiali sotto lo strato di isolante [6]. La formazione dei domini può essere visualizzata in tempo reale, monitorando tramite un oscilloscopio le cariche che si trasferiscono attraverso il circuito per compensare la polarità dei nuovi domini [7]. La polarizzazione è, in ogni caso, un processo permanente: si è visto che i domini non si degradano neanche dopo svariati anni e sono stabili anche ad alte temperature (>850 °C) [8].

In questo capitolo illustrerò la teoria fisica che sta alla base della tecnologia del *Poling Periodico Superficiale (Surface Periodic Poling - abbreviato in SPP)*, evidenziando i vantaggi di tale tecnologia nella progettazione dei dispositivi dell'ottica integrata. Nella seconda parte di questa sezione riporterò i risultati raggiunti dal nostro Gruppo di Ricerca nell'implementazione di tale metodologia nell'ingegnerizzazione dei domini ferroelettrici. Uno studio in collaborazione con il Dipartimento di Fisica dell'Università di Padova ci ha permesso di indagare le strutture periodiche, realizzate nei laboratori del CRES, con la diffrazione di raggi X (*X-Ray Diffraction*) per stabilire il livello di perfezione raggiunto nell'inversione dei domini su scala sub-micrometrica e per rilevare con precisione ed in dettaglio l'esatto *duty cycle* ottenuto. I campioni con SPP sono stati inviati e studiati nei laboratori di Padova che ne hanno stilato un attento

report. La sinergia tra i due dipartimenti ha dato luogo anche ad una pubblicazione [9]. L'indagine effettuata è sicuramente un ottimo *feedback* e lo sarà anche in futuro per l'affinamento e la messa a punto di tecniche sempre più efficienti per la fabbricazione di dispositivi che utilizzano il QPM per l'elaborazione parametrica dei segnali.

3.2 Il Surface Periodic Poling

La tecnica del *bulk poling* descritta nel capitolo precedente risulta, sotto vari punti di vista, tecnologicamente complessa. In essa, infatti, assume fondamentale importanza il controllo della carica che deve essere più preciso possibile. L'elevato campo coercitivo (21 kV/mm a temperatura ambiente per CLN e CLT), le non uniformità, l'elevata densità dei difetti dei cristalli in commercio, inoltre, sono fattori che influenzano notevolmente tale tecnica e ne restringono l'applicabilità a campioni di spessori non superiori a 500 μm . Anche il controllo della periodicità dei domini è di fondamentale importanza. Da una periodicità molto uniforme, infatti, dipende la buona riuscita del dispositivo da realizzare in quanto contribuisce all'efficienza di conversione che si realizza mediante il QPM. È necessario, dunque, che il controllo della periodicità dei domini, sia semplice da implementare e il più accurato possibile. Come già detto, al fine di caratterizzare ed effettuare indagini approfondite sulle strutture periodiche da noi realizzate, abbiamo spedito i nostri dispositivi nei laboratori del Dipartimento di Fisica dell'Università di Padova per sottoporli ad un'attenta analisi sulle microstrutture implementate attraverso la diffrazione a raggi X. Le informazioni ottenute con questa tecnica non invasiva e non distruttiva con altissima risoluzione spaziale sono imprescindibili per lo sviluppo della tecnologia del SPP. Inoltre, i risultati raccolti hanno permesso di trarre interessanti e preziosi spunti per il nostro futuro lavoro.

La periodicità risulta particolarmente critica nei casi in cui si vogliono realizzare strutture per la generazione di seconda armonica richieste quando le frequenze coinvolte nel processo QPM-SHG sono elevate: per SHG nell'UV, ottenibile tramite processi di QPM del primo ordine, il periodo richiesto nel LN è inferiore a 2 μm , tecnologicamente molto difficile da ottenere con *bulk poling*, dato l'alto *aspect ratio* richiesto in cristalli aventi spessore di 500 μm .

Inoltre, se l'applicazione di questa tecnica riguarda le guide planari o a canale, che sono profonde solo pochi micrometri, si ha subito contezza del fatto che non sia necessaria

l'inversione dei domini in tutto lo spessore del cristallo. D'altra parte si intuisce come sia più difficile mantenere un *aspect ratio* elevato, ottenere periodi corti, garantire una buona uniformità del reticolo in strutture più profonde piuttosto che entro profondità relativamente limitate. Per questi motivi, negli ultimi anni, si è cercato, da un lato di sviluppare nuove tecniche per l'inversione dei domini in modo da ottenere migliori risultati, dall'altro sono stati studiati dei materiali che presentano migliori caratteristiche per l'impiego della tecnica del *bulk poling*. Una tecnica che consente l'inversione periodica superficiale dei domini e che garantisce una buona sovrapposizione con strutture guidanti è il SPP. Questa tecnica si basa fondamentalmente sul *poling* di volume convenzionale ma rispetto a quest'ultimo, comporta un passo aggiuntivo di "overlapping" che realizza l'inversione della polarizzazione in tutto il materiale fuorché in una sottile regione superficiale subito sotto il *pattern* degli elettrodi.

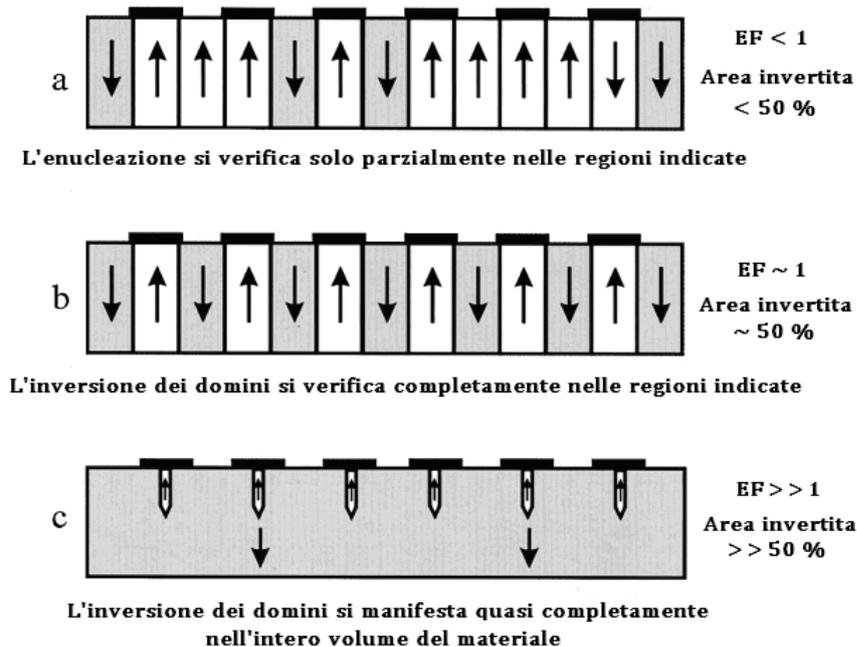


Fig. 3.1 Schema rappresentativo delle fasi del processo di *poling* in funzione del fattore empirico E_F . (a) *underpoling* ($E_F > 1$), (b) *normal poling* ($E_F \sim 1$) e (c) *overpoling* ($E_F \gg 1$) utilizzati per la fabbricazione di strutture con poling periodico superficiale. (dal Rif. [10])

In pratica, si tratta di fornire, tramite un singolo impulso di corrente, una quantità di carica maggiore di quella normalmente richiesta nel *bulk poling*. Prendendo in considerazione l'equazione 2.5 ed osservando la Fig. 3.1, possiamo considerare i

possibili scenari ottenibili dai processi di *poling* al variare del valore del fattore empirico EF.

Un valore di $EF < 1$ genera un *underpoling*, per il quale i domini riescono ad invertirsi solo nelle aree in cui la nucleazione avviene più facilmente, ad esempio in corrispondenza dei bordi del *pattern* di *fotoresist* isolante o nelle aree che presentano una maggiore rugosità superficiale. Se $EF \approx 1$ si realizza un processo normale di *poling* che può presentare un buon *mark-to-space ratio* di 50/50 ed una buona uniformità nel caso di strutture con periodo corto. Infine, se $EF \gg 1$ si verifica la condizione di *overpoling* in cui i domini invertiti, una volta nucleati, si allargano lateralmente estendendosi anche al di sotto delle zone ricoperte dall'isolante. In questo caso piccole regioni subito sotto l'area ricoperta dal *resist* possono mantenere il loro originario stato di polarizzazione senza invertirlo [10].

Pertanto, sfruttando l'*overpoling* che apparentemente produce un effetto indesiderato di allargamento e fusione dei domini invertiti al di sotto del *pattern* isolante, si riescono a creare strutture di domini periodicamente invertiti in superficie, compatibili con le strutture guidanti e aventi una buona uniformità. Tale tecnica consente di ottenere periodi corti di *poling* ed, in particolari condizioni, di realizzare un *mark-to-space ratio* di 50:50 in maniera diversa dalla convenzionale tecnica del *bulk poling*.

Facendo ricorso all'analisi agli elementi finiti dell'equazione di *Poisson*, la stabilità elettrostatica delle strutture periodiche superficiali può essere spiegata se si considera una compensazione ottenuta mediante la carica intrappolata all'interfaccia tra il cristallo e l'isolante, o anche dovuta alla presenza di difetti ed imperfezioni nel cristallo [11].

In letteratura si è per lungo tempo creduto che fornire un eccesso di carica, nella realizzazione delle strutture periodiche, avrebbe portato ad un'inversione dell'intero cristallo, senza, quindi, lasciare alcun *pattern* periodico sul campione. Nei fatti è stato osservato che ciò non è esattamente vero, nel senso che delle piccole regioni restano superficialmente non invertite. Tali regioni si riscontrano proprio sotto la maschera isolante, cioè nelle zone del cristallo isolate dal campo elettrico durante il *poling*, e riproducono perfettamente la periodicità strutturale imposta per via litografica. Questo è stato provato studiando l'andamento del campo elettrico all'interno del cristallo di Niobato di Litio, su cui la tecnica del SPP è stata sperimentata per la prima volta. Considerando i parametri fisici di questo materiale, la maschera periodica realizzata sul

crystallo e supponendo un intrappolamento di cariche tra la superficie del ferroelettrico e l'isolante, è stata tracciata una mappa del campo elettrico e del potenziale all'interno di un periodo della struttura così realizzata (Fig. 3.2).

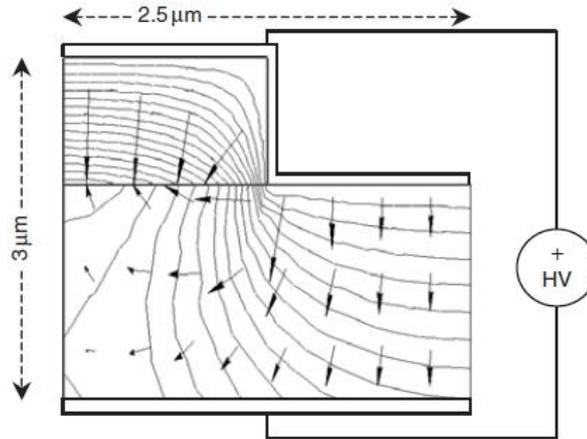


Fig. 3.2 Distribuzione del campo elettrico (simulazione al computer) di uno strato superficiale di Niobato di Litio (3 μm) durante il *poling*. Il grafico mostra il campo elettrico (freccette) e le linee equipotenziali (linee continue) in un periodo di maschera dielettrica alla superficie del campione. Nella simulazione il campione è di tipo *z-cut*, ha uno spessore totale di 0.5 mm ed il voltaggio applicato è di 11.3 kV. (dal Rif. [11])

La distribuzione ottenuta mostra l'inversione del campo elettrico sotto il film di *resist* (spesso un micrometro), motivo per il quale esso si oppone, in queste regioni, alla variazione dell'orientazione dei domini ferroelettrici.

Inizialmente, al fine di definire le potenzialità e i fattori coinvolti nella tecnica del SPP, si è fatto uno studio del *poling* superficiale al variare del valore del fattore empirico e per fissato periodo del *pattern* di *fotoresist*. Da ciò si è dedotto che tale tecnica non è applicabile servendosi di elettrodi metallici direttamente depositati sulla superficie del crystallo perché questi ultimi non consentono un accumulo di carica. Le forme di tipici impulsi di tensione e corrente per il processo di *poling* sono mostrate in Fig. 3.3. Il campo elettrico applicato è dell'ordine di 22 kV/m che è quello che serve per ottenere l'inversione dei domini nel Niobato di Litio (come nel Tantalato di Litio). Dalla figura sono chiaramente evidenziabili:

- l'abbassamento della tensione (rispetto al valore imposto) e la conseguente caduta di tensione ai capi del crystallo, nella fase iniziale del processo, a causa del passaggio di corrente;
- l'impulso di corrente iniziale corrispondente al processo di inversione dei domini.

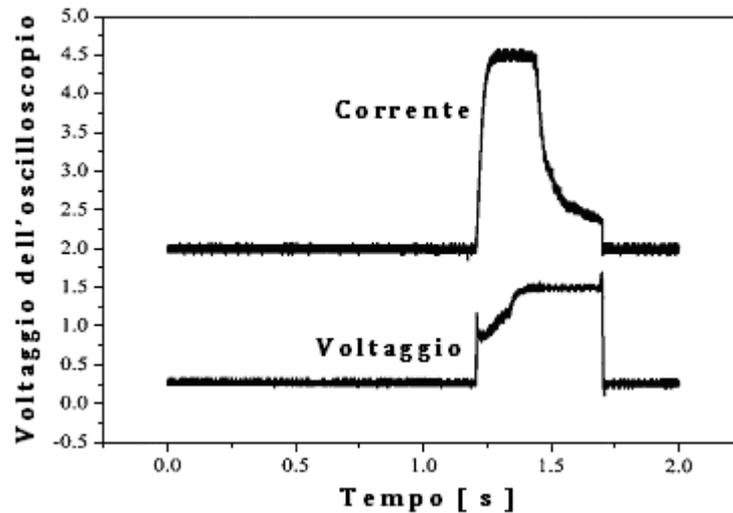


Fig. 3.3 Tipiche forme d'onda di corrente e di tensione applicate ai capi di un cristallo non lineare di Niobato di Litio o di Tantalato di Litio per realizzare *Poling* Periodico Superficiale. (dal Rif. [10])

La durata dell'impulso di alta tensione applicato è proporzionale al valore di carica calcolato e dipende, come già detto, dal fattore empirico EF e dall'area da invertire. La profondità dei domini ottenuti è funzione del periodo della struttura ed è in genere sufficiente a garantire un'efficiente sovrapposizione con strutture guidanti che hanno tipicamente profondità di pochi micrometri. Essa è, inoltre, inversamente proporzionale al parametro EF .

In Fig. 3.4 è data la relazione, in forma grafica, tra la profondità dei domini superficiali e il periodo del *pattern* fotolitografico, per $EF=8$. La relazione ottenuta è approssimativamente lineare e la profondità dei domini presenta un minimo, dato dalla ovvia esigenza di rendere compatibile questa tecnica con la realizzazione di guide d'onda.

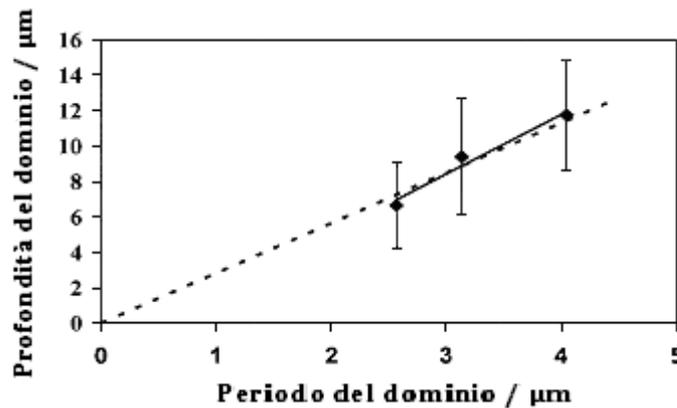


Fig. 3.4 Misure sperimentali della profondità del dominio in funzione del periodo, determinate con microscopia ottica, utilizzando un valore di EF pari a 8. (dal Rif. [10])

3.3 Vantaggi del *Surface Periodic Poling*

La tecnica del *Surface Periodic Poling* offre innumerevoli vantaggi rispetto al *bulk poling*:

- consente di ottenere una buona uniformità dei domini anche nel caso in cui si decida di realizzare periodi corti al di sotto del micrometro in campioni spessi più di 500 μ m. Tali caratteristiche sono di fondamentale importanza per la realizzazione di dispositivi ottici per le telecomunicazioni;
- l'*overpoling* è semplice da realizzare poiché consente di realizzare la struttura periodica con un singolo impulso di tensione. Il controllo della carica, quindi, non è più così critico e complesso come nella tecnica del *bulk poling*;
- l'inversione superficiale arriva fino a qualche micrometro di profondità sotto la superficie, rendendo la tecnica perfettamente compatibile con l'utilizzo delle guide d'onda;
- il SPP consente un controllo accurato del *mark-to-space ratio* (che può essere pari al 50:50), il quale consente la realizzazione di dispositivi ad alta efficienza di conversione nelle applicazioni che riguardano la generazione di seconda armonica mediante QPM. La limitazione della massima lunghezza della struttura periodica realizzabile, in un unico esperimento, è imposta esclusivamente dalle dimensioni della fetta del cristallo posseduta;
- è possibile evitare fenomeni di *breakdown* del campione se si realizza un buon isolamento elettrico. In questo caso non si ha alcuna limitazione riguardo al valore massimo di corrente che può attraversarlo;
- mediante *Poling Periodico Superficiale* è possibile definire strutture bidimensionali sulla superficie di un cristallo ferroelettrico: fu, infatti, Berger [12] che lo propose nel 1998 estendendo il concetto di *quasi-phase-matching* a geometrie 2D. Il risultato è ovviamente una generalizzazione di quanto visto in strutture QPM unidimensionali, col vantaggio dato dalla possibilità di ottenere il contemporaneo annullamento del desincronismo di fase di processi differenti in differenti direzioni.

Recenti esempi di applicazione di cristalli fotonici non lineari (*Non Linear Photonic Crystals* – abbreviato in NLPC) 2D includono interscambio simultaneo di lunghezza d'onda (*simultaneous wavelength interchange*) [13], generazione di terza e quarta

armonica [14, 15]. Sono state inoltre proposte realizzazioni di effetti tutto ottici (*all optical*), come, ad esempio, deflessione *all-optical* e *splitting* [16]. L'analisi dei cristalli fotonici non lineari, sia 1D che 2D, può essere modellizzata come la convoluzione tra un reticolo (*lattice*) periodico e un motivo (*motif*) non lineare, come illustrato in Fig 3.5.

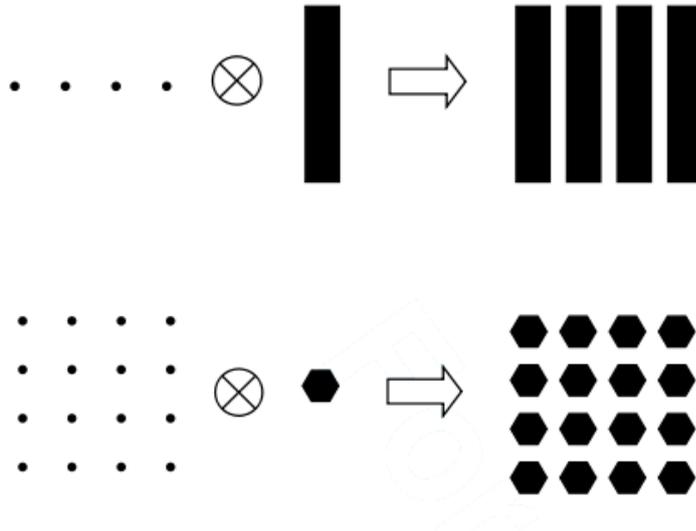


Fig. 3.5 Esempi di convoluzione per un NLPC: (in alto) reticolo 1D, (in basso) reticolo quadrato con motivo esagonale.

Nel caso di una struttura unidimensionale, il reticolo è dato da un *set* di punti equispaziati (con periodo L) disposti linearmente, mentre il motivo consiste in una striscia avente coefficiente non lineare di segno opposto rispetto al "background".

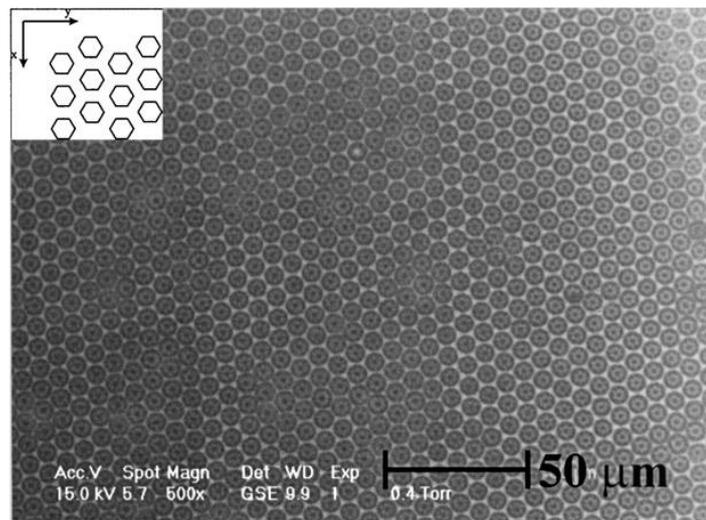


Fig. 3.6 Struttura periodica bidimensionale realizzata mediante *Surface Periodic Poling* su campioni di Niobato di Litio. (dal Rif. [19])

Similmente, è possibile ottenere un NLPC 2D dalla convoluzione di un reticolo 2D con un motivo geometrico non lineare. Come è noto dalla fisica dello stato solido [17], le strutture periodiche bidimensionali possono essere classificate in 5 reticoli di *Bravais*: esagonale, quadrato, rettangolare, rettangolare centrato e obliquo (*Hexagonal, Square, Rectangular, Centered-Rectangular, Oblique*). La prima realizzazione sperimentale di un cristallo fotonico non lineare bidimensionale è stata eseguita da Broderick *et. al* [18] su LiNbO_3 con reticolo esagonale e motivo anch'esso esagonale.

In definitiva, da quanto esposto nei precedenti paragrafi, si comprende che il *Surface Periodic Poling* rappresenta una tecnica molto importante per ottenere la massima efficienza di conversione nelle interazioni volte al raggiungimento del quasi accordo di fase per la generazione di seconda armonica. La necessità di un controllo meno rigido della carica e la compatibilità con le strutture guidanti rendono questa tecnica l'ideale per la realizzazione di dispositivi ottici integrati per la conversione di frequenza. Inoltre, la possibilità di ottenere con tale tecnica periodi corti di *poling*, unitamente all'applicazione di questa stessa su un materiale, come il Tantalato di Litio, dall'ampio *range* di trasparenza, offre la possibilità di realizzare sorgenti ottiche nell'UV.

3.4 Indagine di cristalli di Tantalato di Litio con *poling* periodico mediante diffrazione di raggi X

L'attuale sfida tecnologica consiste nell'ingegnerizzazione di strutture, in cristalli ferroelectrici, aventi domini con periodi inferiori ai 2 μm e, al tempo stesso, nella possibilità di conservarne uniformità e ripetibilità.

Il *poling* periodico superficiale è uno strumento conveniente per l'ingegnerizzazione delle strutture ferroelectriche con un periodo minore di 400 nm [10,11]. La possibilità di realizzare, in *bulk*, geometrie di domini al di sotto del micron di periodo è di sicuro interesse scientifico ed industriale per diverse applicazioni, si pensi agli specchi di cavità accordabili, alla generazione di seconda armonica retro-propagante del primo ordine e al *pulse shaping* mediante raddoppiamento di frequenza retro-propagante nei laser al femtosecondo [20-22].

In questo lavoro, si studia la qualità delle strutture periodiche realizzate, al fine di valutare l'effettiva bontà del dispositivo che vogliamo implementare, dimostrando che l'impiego della diffrazione di raggi X ad alta risoluzione (*High Resolution X-Ray*

Diffraction – abbreviato in HR-XRD) è una metodologia conveniente per la caratterizzazione di alcune strutture periodiche. Quest'ultima ci consente di ottenere un insieme di informazioni dettagliate sul periodo medio dei domini, sull'inclinazione delle loro pareti nonché sulla qualità complessiva del periodo implementato senza distruggerlo e senza rendere inutilizzabile il dispositivo [9].

Un punto chiave dei processi di *poling* periodico è la caratterizzazione delle strutture basata su metodi non distruttivi; i metodi *standard* per l'analisi del dispositivo impiegano l'attacco in acido fluoridrico (*Hydrofluoric acid* – abbreviato in HF) e, pertanto, provocano il danneggiamento irreversibile del campione da analizzare. In tal senso, diversi metodi sono stati proposti, e, per un esame più approfondito, i lettori possono riferirsi alla letteratura specifica [23]. Fra gli altri, ricordo qui, come gli approcci più diffusi, siano le tecniche ottiche, le tecniche di microscopia a scansione di sonda (*scanning probe microscopy*) e le tecniche strutturali. Le tecniche ottiche sono basate sull'osservazione diretta del dominio delle strutture mediante i diversi tipi di microscopia ottica. Queste tecniche sono difficili da utilizzare per la caratterizzazione delle geometrie sub-micrometriche poiché la loro risoluzione spaziale non è sufficiente per dimensioni così ridotte. Inoltre, queste tecniche non rivelano l'effettiva inversione dei coefficienti non lineari, rivelano piuttosto le caratteristiche ottiche che sono indirettamente legate all'inversione della polarizzazione, come il cambiamento dell'indice di rifrazione in prossimità delle pareti dei domini indotto dall'inversione stessa. Questo fatto ostacola l'interpretazione dei dati sperimentali.

Una possibile alternativa è costituita dalla microscopia a scansione di sonda che fornisce una caratterizzazione a nano-scala delle proprietà elettriche, meccaniche e ottiche dei materiali ferroelettrici con l'inconveniente di disporre soltanto di un'indagine locale dei domini ferroelettrici, mentre, per le applicazioni del QPM, sarebbe auspicabile una caratterizzazione delle proprietà medie delle strutture periodiche. Le caratterizzazioni strutturali sono generalmente effettuate studiando la diffrazione dei raggi X e approfittando del fatto che l'inversione della polarizzazione spontanea è direttamente correlata ad un cambiamento del fattore di struttura della matrice cristallina [24]. Questo fatto è generalmente utilizzato per eseguire un'immagine (*imaging*) topografica della struttura con *poling* periodico, ma ancora una volta, la limitata risoluzione spaziale del sistema di *imaging* vieta l'applicazione di

questa tecnica a strutture sub-micrometriche. Se le strutture dei domini di piccole dimensioni, sono difficili da sondare, è preferibile usare l'approccio dello spazio reciproco, perché in questo caso è più facile l'individuazione dei piccoli dettagli così come la misura delle strutture periodiche, dato il carattere di reciprocità della relazione che lega lo spazio diretto allo spazio reciproco [25]. In altre parole, un periodo molto corto dà origine a caratteristiche ben differenziate nello spazio reciproco.

Si sfrutta l'alta risoluzione della tecnica XRD per caratterizzare i reticoli attraverso l'analisi dello spazio reciproco dei cristalli di LT con *poling* periodico assistito da campo elettrico. La periodicità dei picchi satelliti permette di determinare semplicemente il periodo del *poling* periodico (PP). L'intensità e la forma dei satelliti è influenzata dalla forma d'onda del profilo di polarizzazione (*duty cycle*), dalla perfezione della struttura, dalla presenza di imperfezioni, dall'inclinazione delle pareti dei domini, e così via. Nel nostro esperimento, si è testato il metodo in una situazione critica, ovvero, con strutture con *poling* con periodo di 1.5 μm che danno luogo a mappe in uno spazio reciproco i cui dettagli sono vicini al limite di risoluzione spaziale dell'apparato sperimentale. Grazie all'analisi della mappa del reticolo reciproco, la tecnica permette, anche in questo caso, di estrarre importanti informazioni strutturali. Per le strutture aventi una periodicità più piccola, la tecnica è ancora più opportuna e ricca di informazioni.

3.5 L'esperimento

Costruzione del dispositivo

I campioni di PPLT sono stati presi da un *wafer* di LT congruente aventi uno spessore di 500 μm e taglio z-cut. Al fine di ottenere *poling* superficiale con domini di 40 μm di profondità [26] si sono usati impulsi ad alta tensione applicati attraverso tutto lo spessore del campione di LT. Uno strato di 1.3 μm di *photoresist* (*Shipley S1813*) è stato depositato sulla faccia -z del cristallo, su quest'ultimo è stata trasferita, mediante litografia UV, servendosi di una maschera di ampiezza, un reticolo avente periodo di 1.5 μm . Il *pattern* periodico era lungo 7 mm e largo 100 μm . Una volta trasferita la geometria, dopo lo sviluppo, la durezza e l'adesione del *photoresist* è stata migliorata con la cottura del campione per una notte a 90 °C e poi con un *hard baking* in forno a 130 °C per 3 ore. In questa fase della fabbricazione, considerando che i campioni di LT

hanno un forte effetto piroelettrico, i processi di temperatura devono essere effettuati gradualmente per evitare la formazione di punti di *poling*, stress meccanici, e l'intrappolamento di cariche sulle superfici in cristallo. Durante il *poling* che avviene mediante un impulso ad alta tensione, la maschera fotolitografia funge da strato isolante necessario per produrre e controllare periodicamente l'inversione dei domini. La realizzazione del campo elettrico per effettuare il *poling* del campione è avvenuta servendosi di un generatore di forme d'onda (Agilent 3220A) e un amplificatore di alta tensione (Trek 662). Il contatto elettrico tra gli elettrodi ed il substrato è stata assicurata da un gel conduttore a miscela salina. Per realizzare l'inversione dei domini, il campo coercitivo del LT (22 kV / mm) è stato superato applicando un impulso, di durata opportuna, dell'ampiezza di 1.3 kV su un *bias* di 10 kV. La durata dell'impulso è stata calcolata per soddisfare la condizione di *poling* $Q < 1.5 \cdot A \cdot P_s$, avendo indicato con Q la carica totale che attraversa il campione, con A l'area sottoposta a *poling* e con P_s la polarizzazione spontanea del cristallo ferroelettrico. Per la fabbricazione del dispositivo oggetto del mio studio si è applicato un impulso della durata di 300 μ s. Il flusso di carica è stato opportunamente controllato da un integratore analogico di corrente progettato e realizzato nel nostro laboratorio del CRES.

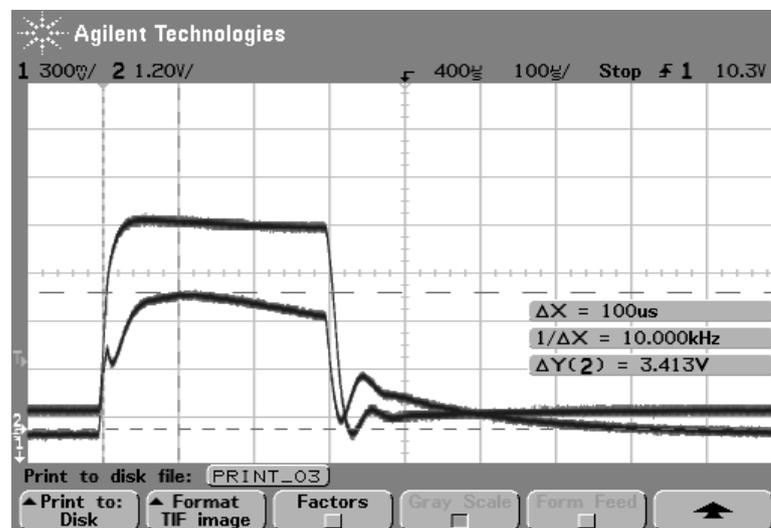


Fig. 3.7 Forme d'onda di tensione e di corrente registrate dall'oscilloscopio digitale durante il processo di *poling* del dispositivo.

Le forme d'onda di tensione e di corrente del processo di *poling* sono state registrate da un oscilloscopio digitale (Fig. 3.7). Utilizzando questa metodologia, i domini nucleati dalla faccetta $-z$, nella zona sotto gli elettrodi, si sono estesi attraverso il

campione fino alla faccetta +z dando luogo all'inversione della polarizzazione. L'immagine in basso, rappresentata dalla Fig. 3.8, è una fotografia ottenuta con la microscopia elettronica a scansione che riporta una regione di PPLT di un tipico campione dopo l'attacco chimico selettivo in HF a 70 °C per 15 minuti.

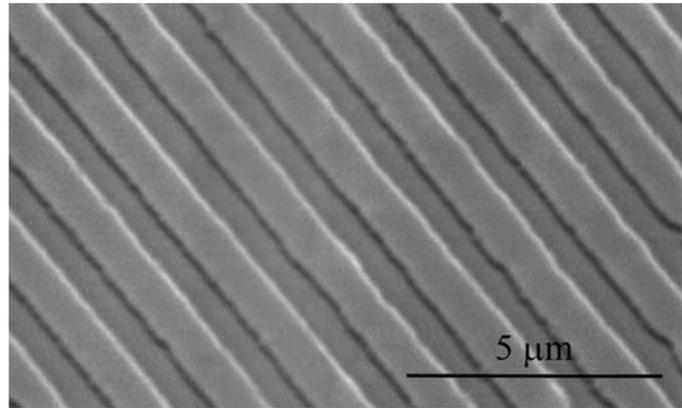


Fig. 3.8 Fotografia ottenuta con microscopia a scansione elettronica di una struttura periodica di 1.5 μm realizzata in un campione di LT dopo essere stata attaccata con acido fluoridrico. (dal Rif. [9])

L'apparato sperimentale

Le indagini a raggi X sono state eseguite utilizzando un diffrattometro *Philips MRD* con sorgente a tubo sigillato con anodo di Cu, dotato di uno specchio parabolico multistrato per aumentare l'intensità del fascio; in Fig. 3.9 mostriamo un schema descrittivo dell'intero apparato.

Il fascio di raggi X è collimato e reso monocromatico mediante un monocromatore a quattro rimbalzi di tipo *Bartels*. Il monocromatore è ottenuto usando quattro cristalli di germanio tagliati parallelamente ai piani (2 2 0) producendo un fascio primario, con una lunghezza d'onda $\lambda = 0.154\ 056\ \text{nm}$, avente purezza spettrale $\Delta\lambda / \lambda = 2 \cdot 10^{-5}$ ed una divergenza angolare di 0.0032° . Il rivelatore utilizzato è un contatore proporzionale dotato di analizzatore a tre rimbalzi. L'analizzatore si compone di tre cristalli di germanio tagliati parallelamente ai piani (2 2 0) la cui accettazione è uguale alla divergenza del fascio primario. A causa della grande accettazione del rivelatore lungo la direzione assiale, le misure che riporterò qui di seguito dovranno essere considerate come la proiezione dell'intensità diffratta (scatterata) sul piano interessato dai movimenti goniometrici (il cosiddetto piano di *scattering*). Operando in tale modo, si è ridotto lo spazio reciproco da tridimensionale a bidimensionale. Per evitare artefatti, durante le misurazioni, dovuti principalmente a derive termiche, la temperatura della camera di misura è stata stabilizzata a $25,0 \pm 0,1\ ^\circ\text{C}$.

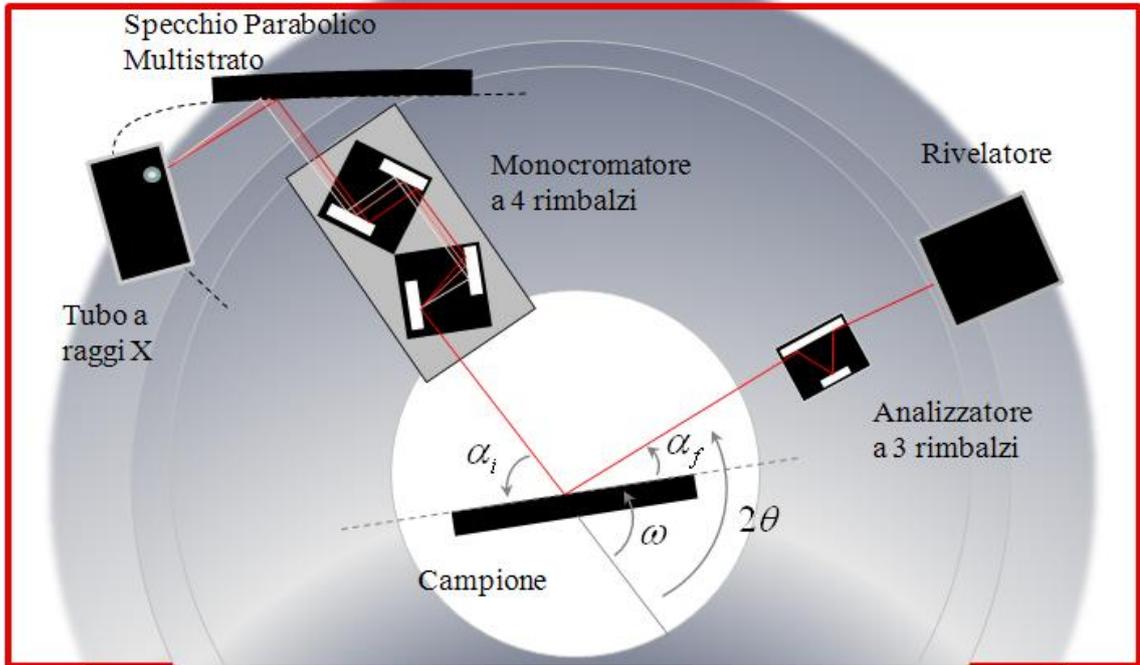


Fig. 3.8 Schema dell'apparato sperimentale HR-XRD.

Utilizzando un sistema di fessure a croce, l'impronta del fascio primario è confinata in un'area di circa $0,1 \times 5 \text{ mm}^2$ e fatto incidere su un'area del campione dove era presente la struttura con *poling* periodico. La riflessione simmetrica (0 0 12) del reticolo osservato è stata rilevata nella mappa dello spazio reciproco (Fig. 3.9) [27]. In particolare, riferendosi alla Fig. 3.8, ricordo che con α_i ho definito l'angolo tra il fascio incidente e la superficie del campione da analizzare, con α_f ho indicato l'angolo formato tra la superficie del campione ed il fascio diffratto, essendo ω l'angolo tra lo stadio goniometrico in cui si trova il campione ed il fascio primario e 2θ l'angolo tra il rivelatore ed il fascio primario.

Stanti le notazioni prima considerate, sussistono le seguenti relazioni:

$$\omega = \alpha_i \quad (3.1)$$

$$2\theta = \alpha_i + \alpha_f \quad (3.2)$$

$$Q_x = K(\cos\alpha_i - \cos\alpha_f) \quad (3.3)$$

$$Q_z = K(\sin\alpha_i + \sin\alpha_f) \quad (3.4)$$

con $K = \frac{2\pi}{\lambda}$ ho indicato il numero d'onda della radiazione incidente, Q_x e Q_y sono le

coordinate, nel piano di *scattering*, del punto dello spazio reciproco sondato (investigato) dallo strumento.

Programmando i movimenti dei goniometri, può essere esplorata una determinata regione dello spazio reciproco associando ad ogni coppia (Q_x, Q_y) l'intensità $J(\mathbf{Q})$ della radiazione accettata dal rivelatore, in modo che venga prodotta (e quindi registrata) una mappa della distribuzione dell'intensità dello spazio reciproco.

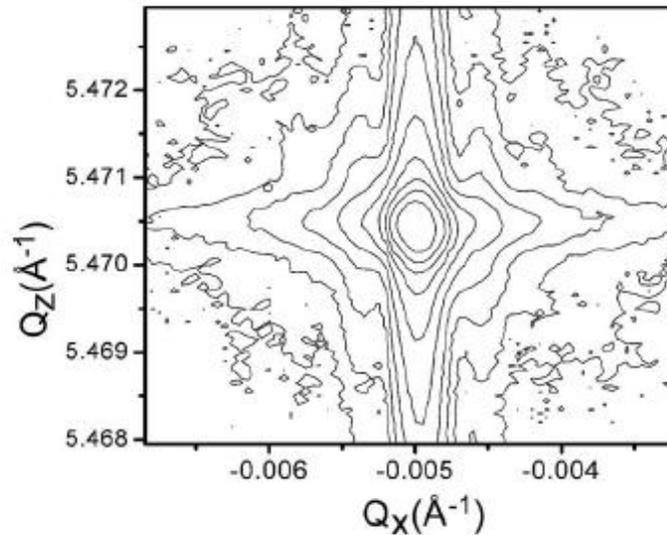


Fig. 3.9 Mappa della riflessione (0 0 12) nello spazio reciproco. Le linee ad isointensità sono tracciate su una scala logaritmica con intensità massima normalizzata ad uno. Ogni contorno ha un'intensità quattro volte maggiore di quello adiacente, muovendosi dall'esterno all'interno. (dal Rif. [9])

3.6 Analisi dei risultati

La mappa risultante è mostrata in Fig. 3.9. La mappa è composta da un picco centrale e da una serie di picchi satelliti ravvicinati e paralleli alla direzione Q_z ; inoltre, è chiaramente visibile una striscia orizzontale che li incrocia. Considerato che l'area illuminata dal fascio di raggi X è molto più grande della zona contenente le strutture con il *poling* periodico, il segnale registrato contiene i contributi provenienti sia dal reticolo periodico superficiale che dal substrato senza la struttura di *poling*. Il contributo proveniente dai domini superficiali periodicamente invertiti ha un'intensità ben minore rispetto al picco del substrato. Ad ogni modo, questo contributo può essere evidenziato proiettando la mappa sull'asse Q_x , così facendo è chiaramente osservabile la presenza di una modulazione di intensità sovrapposta ai “fianchi” dei picchi del substrato (Fig. 3.10).

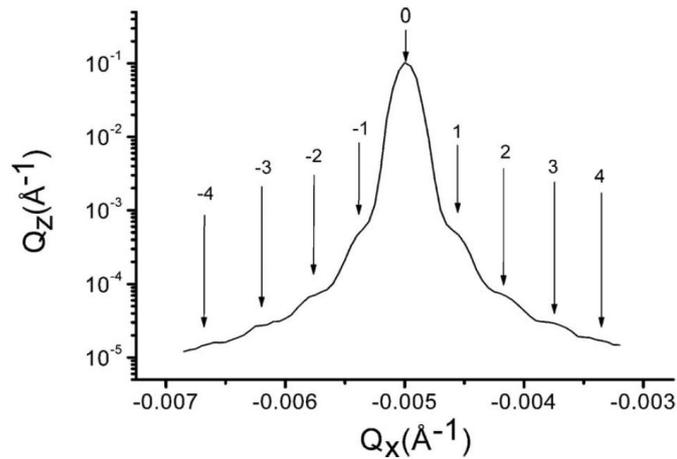


Fig. 3.10 Proiezione della mappatura dello spazio reciproco della Fig. 3.8 sull'asse Q_x . La struttura del satellite è evidenziata dalle frecce che ne indicano l'ordine (ordine del satellite). (dal Rif. [9])

Un'attenta disamina dei dati collezionati durante la campagna di misure diffrattometriche, permette di stabilire la buona qualità complessiva della struttura di *polig* periodico, confermata dalla presenza di diversi picchi satelliti che possono essere osservati fino al quarto ordine. La striscia d'ordine zero corrisponde al reticolo "medio" della superstruttura e non mostra alcuno sdoppiamento di picco entro la risoluzione sperimentale della mappa dello spazio reciproco. Pertanto, il valor medio del parametro perpendicolare del reticolo (definito parametro c) della struttura del *poling* periodico è praticamente indistinguibile rispetto alla regione senza *poling*, cioè non è presente alcun disallineamento indotto da *stress* residui dovuti al processo di *poling*. La striscia orizzontale visibile nella mappa è lo *scattering* diffuso (incoerente) proveniente dal muro del dominio [28]. Questo picco ha una forma ellittica con l'asse maggiore parallelo all'asse Q_x e, quindi, parallelo alla superficie del campione: tale forma permette di concludere che le pareti dei domini sono perpendicolari alla superficie del campione all'interno del *range* consentito dall'incertezza sperimentale (circa 0.1°). Poiché il periodo delle strutture del PP è delle dimensioni del micrometro, nello spazio reciproco si hanno strutture vicine tra loro e, pertanto, la risoluzione sperimentale del nostro apparato di misura non ci ha permesso di risolvere i massimi dei satelliti. Tuttavia, la striscia dello *scattering* diffuso indica che il reticolo dei vettori d'onda non contiene componenti Q_z , se così non fosse le pareti del dominio non potrebbero essere allineate perpendicolarmente alla superficie del campione. Di conseguenza, i massimi dei satelliti devono essere allineati parallelamente alla direzione Q_x , su una linea

orizzontale che incrocia il massimo centrale della mappa. Prendendo in considerazione questo fatto, le posizioni laterali dei picchi massimi dei satelliti possono essere stimate controllando l'intersezione dell'asse orizzontale dell'ellisse dello *scattering* diffuso con i picchi satelliti verticali: le posizioni risultanti sono indicate dalle frecce in Fig. 3.10. Tracciando le loro posizioni in funzione dell'ordine dei satelliti (Fig. 3.11), si ottiene una linea retta la cui pendenza è data dal modulo di $q = \frac{2\pi}{\lambda}$ del vettore d'onda fondamentale del reticolo di PP, dove λ è il periodo del PP.

Partendo da questo risultato, si ottiene che $\lambda = 1.547 \pm 0.023 \mu\text{m}$, in buon accordo con il periodo della maschera d'ampiezza utilizzata per fabbricare le strutture e con il periodo dei domini rivelato dopo l'attacco in HF.

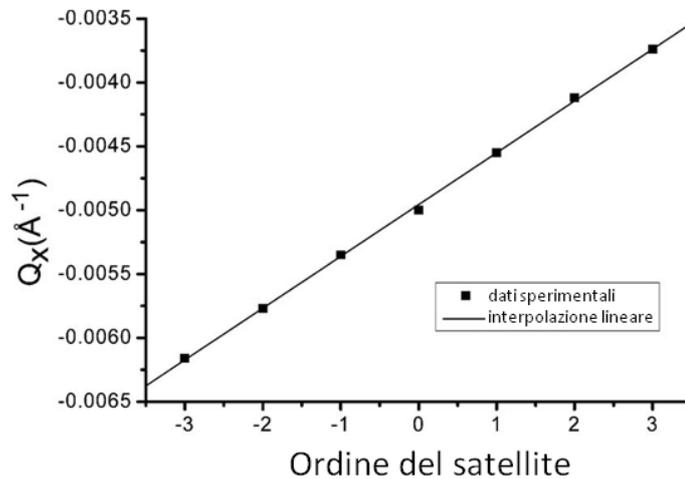


Fig. 3.11 Diagramma della posizione dei massimi lungo Q_x in funzione degli ordini dei satelliti. La linea retta è un'interpolazione lineare dei dati sperimentali. Le barre di errore, calcolate *a posteriori*, sono più piccole dei simboli che rappresentano i punti sperimentali. (dal Rif. [9])

3.7 Conclusioni

Si è dimostrato con soddisfacenti risultati come la tecnica HR-XRD in modalità di mappatura dello spazio reciproco possa essere impiegata con successo per la caratterizzazione non distruttiva di strutture in LT con *poling* periodico. Essendo questa analisi basata sull'indagine dello spazio reciproco, questo tipo di approccio è particolarmente adatto per strutture di PP aventi periodo di piccole dimensioni. In questo lavoro, ho studiato un campione con un periodo di circa $1.5 \mu\text{m}$, che è vicino al limite di risoluzione della tecnica impiegata. Anche in questo caso estremo, possono essere ottenute informazioni come la qualità generale della struttura, l'inclinazione della

parete del dominio, ed il periodo della struttura. Nei campioni a periodicità più piccola o con domini meno profondi, la tecnica potrebbe funzionare ancora meglio, se la struttura dei satelliti fosse completamente determinata. In linea di principio, la determinazione dello stato di deformazione del superlattice, le fluttuazioni nei periodi di quest'ultimo, la profondità del dominio, e così via, possono essere ricavati utilizzando metodologie analoghe a quelle solitamente impiegate per la caratterizzazione a raggi X di altre strutture superreticolari come i *quantum well* o i reticoli superficiali [27,29].

3.8 Riferimenti bibliografici

- [1] M. Yamada, M. Yamada, N. Nada, M. Saitoh, and K. Watanabe, “First-order quasi-phase matched LiNbO₃ waveguide periodically poled by applying an external field for efficient blue second-harmonic generation,” *Applied Physics Letters*, Vol. 62, no. 5, pp. 435-436, 1993.
- [2] J. Webjörn, F. Laurell, and G. Arvidsson, “Fabrication of periodically domain-inverted channel waveguides in lithium niobate for second harmonic generation,” *IEEE Journal of Lightwave Technology*, Vol. 7, pp. 1597-1600, 1989.
- [3] S. Mailis, A. C. Busacca, C. L. Sones, and R. W. Eason, “First order quasi-phase matched blue light generation in surface poled Ti-indiffused lithium niobate waveguide,” *Nonlinear Guided Waves and Their Applications (NLGW) 2002*, Stresa- Italy September 2, 2002, Postdeadline Papers PD5 OSA Trends in Optics and Photonics.
- [4] A. C. Busacca, C. L. Sones, R. W. Eason, and S. Mailis, “Surface Domain Inversion in Ferroelectric Lithium Niobate,” *Ferroelectrics*, Vol. 296, pp. 91-97, 2003.
- [5] A. C. Busacca, C. L. Sones, R. W. Eason, and S. Mailis, “First-Order Quasi-Phase-Matched Blue Light Generation in Surface-Poled Ti:Indiffused waveguide,” *Applied Physics Letters*, Vol. 84, Issue 22, pp. 4430-4432, 2004.
- [6] A. C. Busacca, V. Apostolopoulos, R. W. Eason., and S. Mailis, "Method for fabrication of surface poled - domain structures in ferroelectric materials", Patent number: WO 03/003111 A1, 09-01-2003.
- [7] A. Chimenti, “Polarizzazione Periodica Superficiale del Niobato di Litio,” Tesi di Laurea, *Dipartimento di Ingegneria Elettrica, Eletttronica e delle Telecomunicazioni*, Università degli Studi di Palermo, 2003.
- [8] G. D. Miller, “Periodically poled Lithium Niobate: modeling, fabrication and non-linear optical performance,” Tesi PhD, *Department of Applied Physics*, Stanford University, 1998.
- [9] M. Bazzan, C. Sada, N. Argiolas , A. C. Busacca, R. L. Oliveri, S. Stivala, L. Curcio, and S. Riva Sanseverino, “High resolution x-ray investigation of periodically poled lithium tantalite crystals with short periodicity,” *Journal of Applied Physics*, Vol. 106, no. 10, Article ID 104121, 2009.
- [10] A. C. Busacca, C. L. Sones, V. Apostolopoulos, R. W. Eason, and S. Mailis, “Surface domain engineering in congruent lithium niobate single crystals: A route to submicron periodic poling”, *Applied Physics Letters*, Vol. 81, no. 26, pp. 4946-4948, 2002.
- [11] A. C. Busacca, A. C. Cino, S. Riva-Sanseverino, M. Ravaro, and G. Assanto, “Silica masks for improved surface poling of Lithium Niobate,” *Electronics Letters*, Vol. 41, no.2, pp. 92-94, 2005.

-
- [12] V. Berger, "Nonlinear photonic crystals," *Physical Review Letters*, Vol. 81, no. 19, pp. 4136-4139, 1998.
- [13] A. Chowdhury, C. Staus, B. F. Boland, T. F. Kuech, and L. McCaughan, "Experimental demonstration of 1535-1555-nm simultaneous optical wavelength interchange with a nonlinear photonic crystal," *Optics Letters*, Vol. 26, no. 17, pp.1353-1355, 2001.
- [14] N. G. R. Broderick, R. T. Bratfalean, T. M. Monro, and D. J. Richardson, "Temperature and wavelength tuning of second-, third-, and fourth-harmonic generation in a two-dimensional hexagonally poled nonlinear crystal," *Journal of the Optical Society of America B*, Vol. 19, no. 9, pp. 2263-2272, 2002.
- [15] S. M. Saltiel and Y. S. Kivshar, "Phase Matching in $\chi^{(2)}$ Nonlinear Photonics Crystals," *Optics Letters*, Vol. 25, no. 16, pp. 1204-1206, 2002.
- [16] S. M. Saltiel and Y. S. Kivshar, "All-optical deflection and slitting by second-order cascading," *Optics Letters*, Vol. 27, no. 11, pp. 921-923, 2002.
- [17] C. Kittel, "Introduction to solid state physics", 7th edition, Wiley, New York, 1995.
- [18] N. G. R. Broderick, G. W. Ross, H. L. Offerhaus, D. J. Richardson, and D. C. Hanna, "Hexagonally Poled Lithium Niobate: A Two-Dimensional nonlinear Photonic Crystal," *Physical Review Letters*, Vol. 84, no. 19, pp. 4345-4348, 2000.
- [19] A. C. Busacca, C. L. Sones, R. W. Eason, S. Mailis, K. Gallo, R. T. Bratfalean, and N. G. Broderick, "Surface Hexagonally Poled Lithium Niobate Waveguides," *Ferroelectrics*, Vol. 296, no. 1, pp. 3-8, 2003.
- [20] V. Y. Shur, E. Shishkin, E. Romyantsev, E. Nikolaeva, A. Shur, R. Batchko, M. Fejer, K. Gallo, S. Kurimura, K. Terabe, and K. Kitamura, "Self-Organization in LiNbO₃ and LiTaO₃: Formation of Micro- and Nano-Scale Domain Patterns," *Ferroelectrics*, Vol. 304, pp. 111-116, 2004.
- [21] Y. J. Ding, J. U. Kang, and J. B. Khurgin, "Theory of backward second-harmonic and third-harmonic generation using laser pulses in quasi-phase-matched second-order nonlinear medium," *IEEE Journal of Quantum Electronics*, Vol. 34, no. 6, pp. 966-974, 1998.
- [22] M. Conforti, C. De Angelis, U. K. Sapaev, and G. Assanto, "Pulse shaping via Backward Second Harmonic Generation," *Optics Express*, Vol. 16, no. 3, pp. 2115-2121, 2008.
- [23] T. Volk and M. Wöhlecke, "Lithium Niobate: Defects, Photorefraction and Ferroelectric Switching," *Springer Series in Materials Science*, Vol. 115, Springer, Berlin, 2008.
- [24] Z. W. Hu, P. A. Thomas, and J. Webjorn, "Observation of Periodic Domain Inversion in Periodically Poled LiNbO₃ by High-Resolution Topography," *Journal Of Applied Crystallography*, Vol. 29, no. 3, pp. 279-284, 1996.

- [25] M. Bazzan, N. Argiolas, C. Sada, P. Mazzoldi, S. Grilli, P. Ferraro, P. De Natale, and L. Sansone, “High Resolution X-Ray Characterization of Sub-Micron Periodic Domain Structures in Lithium Niobate Crystals,” *Ferroelectrics*, Vol. 352, pp. 25-34, 2007.
- [26] A. C. Busacca, C. A. Santini, S. Riva-Sanseverino, A. Parisi, A. C. Cino, R. L. Oliveri, and G. Assanto, “Surface periodic poling in congruent lithium tantalate,” *Electronics Letters*, Vol. 42, no. 9, pp. 546-547, 2006.
- [27] P. F. Fewster, “X-rays Scattering from Semiconductors,” *Imperial College Press*, London, 2000.
- [28] M. Bazzan, N. Argiolas, C. Sada, and E. Cattaruzza, “Experimental evidence of domain wall tilting in periodically poled lithium niobate crystals grown by the Czochralski off-center technique,” *Applied Physics Letters*, Vol. 89, no. 6, pp. 062901-062903, 2006.
- [29] U. Pietsch, V. Holý, and T. Baumbach, “High-Resolution X-ray Scattering from Thin Films to Lateral Nanostructures,” *Springer*, Berlin, 2004.

Progettazione, fabbricazione e caratterizzazione di un dispositivo per la generazione di seconda armonica retro-propagante in niobato di litio con *poling* periodico

4.1 Introduzione

La *Backward Second Harmonic Generation* (BSHG) è quel processo fisico di conversione parametrica attraverso il quale è possibile osservare il propagarsi dell'onda a frequenza fondamentale (FF) e della seconda armonica generata, in versi opposti: mentre la FF si propaga in avanti, la SH, avente medesima direzione, procede in verso contrario. Questo fenomeno venne per la prima volta descritto da Harris [1] e, nel corso degli anni, studiato e analizzato dettagliatamente [2,3].

Come noto, l'inversione periodica dei domini, mediante *poling* assistito da campo elettrico in cristalli ferroelettrici, è una tecnica ampiamente consolidata per ottenere una modulazione del coefficiente non lineare e la conseguente realizzazione del QPM fra le onde interagenti nel cristallo [4,5]. Le prime osservazioni sperimentali della BSHG ottenute grazie al QPM sono state realizzate in eterostrutture di semiconduttori multistrato [6] e nel Niobato di Litio congruente con *poling* periodico [7,8]. Le strutture implementate sfruttavano gli elevati ordini di risonanza di reticoli non lineari aventi periodo compreso tra i 3 ed i 4 μm . Inoltre, recenti sviluppi nelle micro e nano tecnologie hanno permesso la fabbricazione di reticoli di inversione del coefficiente non lineare con periodi sub-micrometrici in guide d'onda consentendo di osservare il fenomeno della BSHG per ordini sempre più bassi [9-13].

In questo capitolo verrà descritta la fabbricazione e la caratterizzazione non lineare ad onda continua (cw) [14] ed impulsata di un campione di Niobato di Litio *bulk* avente

un periodo di *poling* pari a 3.2 μm , opportunamente progettato per dar luogo al fenomeno della BSHG. Fino ad ora, l'unico studio condotto su BSHG da sorgente cw in dispositivi PPLN è quello riportato in [15]. Si vuole sottolineare come questo tipo di forzante sia l'eccitazione più appropriata per un buon accordo della lunghezza d'onda di FF a risonanze molto strette, caratteristiche di questo tipo di processo parametrico.

Questo capitolo si articolerà in due parti. Nella prima si discuterà della SHG in continua per il primo ordine di QPM e riporterò i risultati ottenuti per la BSHG relativi a due diversi ordini di risonanza eccitati mediante un laser Ti:Zaffiro in cw accordabile in lunghezza d'onda. Nella seconda parte si caratterizzerà il dispositivo con una sorgente impulsata al Neodimio:YAG. In entrambi i casi, le risonanze sono state risolte anche mediante un accordo in temperatura. I risultati sperimentali sono stati successivamente confrontati con i modelli teorici *standard*. Il buon accordo ottenuto tra i dati sperimentali e le previsioni teoriche hanno inoltre permesso una valutazione delle imperfezioni tecnologiche delle microstrutture implementate e fornito interessanti spunti per la ricerca futura.

4.2 Criteri di progettazione

La progettazione del dispositivo si è basata sulla determinazione di alcuni parametri fondamentali che, consentendo il quasi accordo di fase, hanno permesso la realizzazione della BSHG. L'ordine m del *Quasi-Phase-Matching*, il *duty cycle* della struttura periodica, la lunghezza d'onda della sorgente laser (λ_ω), il periodo A del reticolo, la lunghezza di tale reticolo, la temperatura T di funzionamento e gli indici di rifrazione straordinari n_ω e $n_{2\omega}$ del substrato (alla lunghezza d'onda fondamentale e a seconda armonica, rispettivamente) sono stati oggetto di studio per l'implementazione del componente. Si sono considerati gli indici di rifrazione straordinari n_e poiché la polarizzazione dell'onda di pompa del laser che si è impiegato era parallelo all'asse z .

Le scelte operative ed i criteri di progettazione seguiti sono il compromesso tra le specifiche fisiche del fenomeno ed i limiti imposti dalle nostre capacità tecnologiche. Come si è già detto nel paragrafo 1.6, per la configurazione retro-propagante, la conservazione del momento è espressa dall'equazione:

$$k_2 + 2k_1 = K_m \quad (4.1)$$

dove $K_m = m \frac{2\pi}{\Lambda}$ ed il periodo Λ richiesto per il *backward*-QPM vale:

$$\Lambda = m \frac{\lambda_\omega}{2(n_{2\omega} + n_\omega)} \quad (4.2)$$

La lunghezza d'onda λ_ω di emissione della sorgente impiegata, proveniente da un laser cw Ti:Zaffiro, era finemente accordabile nel *range* compreso tra 840÷1000 nm. Si voleva, pertanto, progettare un dispositivo che generasse la BSH per le lunghezze d'onda di fondamentale di cui si disponeva e, contemporaneamente, che verificasse il QPM con l'ordine m più piccolo possibile.

Facendo un primo calcolo di massima e supponendo di voler generare seconda armonica retro-propagante per il primo ordine di QPM ($m=1$) si otteneva un valore per il periodo del reticolo Λ di circa 100 nm e precisamente $\Lambda=94$ nm per $\lambda_\omega=840$ nm e $\Lambda=113$ nm per $\lambda_\omega=1000$ nm. Nell'intervallo di lunghezze d'onda fruibili, a causa dei limiti tecnologici, era impossibile riuscire a costruire dei *pattern* periodici per la modulazione del coefficiente non lineare in quanto erano troppo piccoli da implementare. In particolare, il primo limite era già nella fase microlitografica del processo: la maschera adoperata per realizzare il reticolo per il *poling* periodico e tutto il sistema fotolitografico in dotazione permettevano di scendere fino ad un periodo di 1.5 μm e non oltre. Era chiaro che non si potesse creare un dispositivo che realizzasse QPM del primo ordine in questa configurazione.

Era necessario che la struttura dovesse essere uniforme su tutta la sua lunghezza. Si doveva, però, considerare, da una parte, il fatto che un periodo piccolo avrebbe permesso un quasi accordo di fase per un ordine m molto piccolo, ma, che, dall'altra parte, un periodo troppo piccolo avrebbe sicuramente favorito l'insorgenza di irregolarità sul *mark-to-space ratio* (MTSR) del periodo e, quindi, la comparsa del rQPM che avrebbe inficiato la BSHG e, contestualmente, la sua misura.

Dopo un'attenta valutazione, si è scelto di costruire un reticolo avente periodo $\Lambda=3.2$ μm . Questo valore di periodo rappresentava, infatti, il più piccolo *grating* implementabile che potesse garantire una buona uniformità del MTSR sull'intera lunghezza di interazione. Il *duty cycle* in corrispondenza a $\Lambda=3.2$ μm , nella maschera a mia disposizione era del 50%. Inoltre, tenendo conto del fatto che il materiale impiegato fosse il LiNbO_3 , per evitare il fenomeno della fotorifrattività, si era scelto di lavorare

alla temperatura di 195 °C.

La temperatura T gioca un ruolo fondamentale in fase di progetto: il QPM, di fatto, è molto influenzato da questo parametro [5]. Il progetto in discussione, dunque, doveva prevedere il funzionamento del dispositivo alla temperatura di 195 °C. In particolare, si è tenuto conto di questo parametro attraverso l'influenza che quest'ultimo ha sugli indici di rifrazione $n_{2\omega}(T)$ e $n_{\omega}(T)$. Le funzioni $n_{2\omega}(T)$ e $n_{\omega}(T)$ sono in generale espresse da un'equazione di Sellmeier che non soltanto tiene conto della lunghezza d'onda ma anche della temperatura [16,17]:

$$n_e^2(\lambda, T) = a_1 + b_1 f + \frac{a_2 + b_2 f}{\lambda^2 - (a_3 + b_3 f)^2} + \frac{a_4 + b_4 f}{\lambda^2 - a_5^2} - a_6 \lambda^2 \quad (4.3)$$

dove $f = (T - 24.5)(T + 570.82)$, T è espressa in gradi *Celsius* (°C) e λ in nanometri (nm). I parametri $a_1, a_2, a_3, a_4, a_5, a_6, b_1, b_2, b_3, b_4$, dipendono dal materiale utilizzato: nel caso in oggetto, i coefficienti utilizzati sono stati quelli forniti dalla *Crystal Technology Inc.*, fabbricante dei campioni [18].

Riassumendo, dato il periodo $A=3.2 \mu\text{m}$, il *duty cycle* al 50%, la temperatura di lavoro pari a 195 °C, utilizzando l'equazione di Sellmeier (4.3) per la determinazione degli indici di rifrazione e servendosi dell'equazione 4.2, si è calcolato che la lunghezza d'onda di risonanza per la fondamentale fosse pari a $\lambda_{\omega}=979.25$ (perfettamente rientrante nell'intervallo generabile dalla sorgente) e che l'ordine di QPM fosse $m=29$.

Si vuole, adesso, ad ogni modo, sottolineare l'importanza di due parametri: il periodo A e la somma $n_{\omega}+n_{2\omega}$. Entrambi i parametri erano basilari per il raggiungimento dell'obiettivo che ci si prefiggeva ma, al tempo stesso, era critico il loro controllo durante l'implementazione dei processi. Pertanto, si doveva tenere in considerazione che il reale valore dell'ordine m del QPM per la BSHG così come i valori effettivi λ_{ω} e $\lambda_{2\omega}$ potevano essere differenti rispetto a quelli che si teorizzano in questo paragrafo, in quanto un numero molto grande di fattori, alcuni dei quali neanche considerati in questa trattazione, avrebbero potuto, con la loro comparsa, interferire, danneggiando quel precario equilibrio che scrupolosamente si tentava di porre in opera.

4.3 Fabbricazione del dispositivo

L'intera attività sperimentale che ha portato alla realizzazione del dispositivo si è svolta presso il Centro per la Ricerca Elettronica in Sicilia (C.R.E.S.) di Monreale (PA),

nel Laboratorio di Optoelettronica e Microlitografia.

I campioni di LiNbO_3 che sono stati utilizzati per la sperimentazione provenivano da *wafer z-cut* dello spessore di 500 micron e del diametro di 76.2 millimetri (3 pollici). Tali fette sono state prodotte dalla *Crystal Technology Inc.* (USA). La geometria per il taglio del *wafer* è stata progettata al CRES dal nostro Gruppo di Ricerca, in maniera da poter ottenere un'inversione superficiale dei domini ferroelettrici di elevata qualità.

La scelta dell'asse cristallografico z per i substrati di Niobato di Litio usati trova giustificazione nel fatto che il processo di *poling* può essere realizzato soltanto lungo questa direzione [19,20].

La scelta del *wafer* di tipo *z-cut* su quello *x-cut*, invece, si giustifica osservando che le guide realizzate con il primo tipo di taglio permettono la propagazione dei modi TM. In più, il processo della SHG è dovuto al coefficiente non lineare ottico d_{33} che è il più grande tra i coefficienti del tensore non lineare del LiNbO_3 .

Prima della realizzazione del dispositivo si è avuta la fase di pulizia e decontaminazione dei campioni. Essa è molto importante e richiede particolare attenzione dal momento che anche da essa dipende la qualità dei dispositivi ottici integrati realizzati. Inoltre, l'adesione dei film sottili al substrato dipende fortemente dalle condizioni in cui si trova la superficie al momento della deposizione.

La presenza di particelle contaminanti deve, quindi, essere ridotta il più possibile, per cui si procede ad una scrupolosa opera di pulizia che si compone dei seguenti passi:

- Lavaggio del campione con acetone ($\text{C}_3\text{H}_6\text{O}$) per rimuovere le particelle di polvere e contaminanti;
- Risciacquo con etanolo per eliminare le tracce di acetone.

Queste fasi, che necessitano di luoghi ad atmosfera filtrata, sono state eseguite nella *cleanroom* di classe 100 del C.R.E.S. Lo stesso grado di pulizia ha caratterizzato le fasi di lavorazione successive.

I singoli passi tecnologici che sono stati eseguiti per la realizzazione del dispositivo sono qui elencati:

- *Soft baking*, consistente nel porre i campioni in forno per 30 minuti alla temperatura di $90\text{ }^\circ\text{C}$, allo scopo di indurire il *resist*;
- *Spinning* del *photoresist*;

- Trasferimento del *pattern* con le geometrie delle guide sullo strato di *photoresist* mediante fotolitografia. Il *mask aligner* usato è stato l'*MJB 3* della *Karl Suss*;
- Sviluppo del *photoresist* impressionato;
- Ispezione e misura della lunghezza del periodo e del *duty cycle*;
- *Poling* del campione;
- Rimozione dell'intera pellicola di *photoresist*.

Il processo microlitografico permette il trasferimento di particolari geometrie, il cosiddetto *pattern*, su un film sottile di *photoresist* che è un materiale organico sensibile alla radiazione luminosa e viene precedentemente depositato sul campione.

Esistono numerose tecniche microlitografiche per la definizione del *pattern* sulla pellicola di *photoresist*, la maggior parte di queste utilizza delle maschere in cui sono definite le geometrie e una sorgente luminosa nella banda UV. Le zone del *photoresist* esposte rimangono impressionate, il composto fotosensibile assorbe radiazioni nelle aree non mascherate, cambia la sua struttura chimica, diventa solubile e tali aree vengono rimosse nella soluzione di sviluppo.

Il polimero usato è stato il *Microposit S1813* della *Shipley*. Prima della deposizione e del successivo *spinning* il campione deve essere pulito nuovamente con acetone ed etanolo, al fine di evitare la comparsa di disuniformità nello spessore del *photoresist*.

La deposizione del *photoresist* è stata eseguita sulla faccia -z del substrato ed è stata effettuata attraverso uno *spinner* della *SCS* modello *G3-8*. Questa apparecchiatura consente, attraverso la regolazione della velocità di rotazione di regime e dell'intervallo di tempo nel quale si sottopone il campione a tale azione, di poter stabilire, con buona approssimazione, lo spessore di *photoresist* trattenuto sul campione. Il campione è stato montato su di un supporto rotante e mantenuto da una depressione. Al centro del substrato è stato deposto, con una speciale siringa dotata di filtro, circa 1 ml di *photoresist*. Il campione è stato posto, quindi, in rotazione intorno al suo centro e rapidamente accelerato fino al raggiungimento di una velocità di rotazione costante. La velocità è stata fissata a 5.000 giri/minuto per una durata di un minuto, la velocità di regime è stata raggiunta in 1 secondo; questo *setup* garantisce uno spessore di *photoresist* di circa 1.2 μm [21]. La deposizione è terminata mettendo in forno il campione ad una temperatura di circa 90 °C per una durata di circa 30 minuti (*soft*

baking), ciò allo scopo di far indurire il *photoresist*, garantire una maggiore adesione al substrato ed ottenere una risoluzione maggiore in fase di scrittura.

In questo lavoro sperimentale si è utilizzata una maschera della *Photronics* costituita da un substrato di quarzo spesso circa 3 mm su cui è deposta una struttura in nichel-cromo. Tale struttura è composta da reticoli di periodo che vanno da 1.5 μm fino 22 μm con un passo di 0.4 μm , ogni struttura ha una larghezza di 700 μm , è separata dalle altre con una spaziatura totale di 300 μm al centro della quale si trova un canale largo 100 μm indispensabile per l'allineamento del campione con la maschera. Si deve tenere presente che i *duty cycle* di tali strutture non sono perfettamente 50:50 (60:40 per tutte le strutture tranne che per il periodo da 1.5 μm), in maniera tale da compensare l'allargamento dei domini durante la fase di *poling*. Per la realizzazione del dispositivo si è fatto uso del reticolo con periodo di 3.2 μm e di una lampada ai vapori di mercurio che emette luce UV a 365 nm.

I passi litografici devono svolgersi in una camera depolverizzata (*cleanroom*), la necessità di tale ambiente deriva dal fatto che le particelle di polvere possono posarsi sul campione e sulle maschere litografiche, causando dei difetti tali da provocare il mancato funzionamento o una perdita considerevole di efficienza del dispositivo stesso. Quando le particelle di polvere aderiscono alla superficie di una maschera fotolitografia, esse si comportano come sagome opache sulla maschera stessa che vengono poi trasferite sugli strati sottostanti assieme al tracciato.

L'esposizione è stata eseguita attraverso il *mask aligner MJB 3* della *Karl Suss* mediante stampa per trasparenza (*shadow printing*): la maschera entra in contatto diretto con il campione (stampa per contatto), l'intimo contatto esistente fra il *photoresist* e la maschera consente una risoluzione molto alta, tuttavia tale metodo soffre di un grave inconveniente provocato dalla possibile presenza di particelle di polvere che potrebbero graffiare la maschera. Si deve anche considerare che il *photoresist* presente sul campione tende a sporcare la maschera [22].

La maschera è montata, sul *mask aligner*, in un apposito sostegno (*holder*) che la trattiene tramite un sistema a vuoto. La parte metallizzata deve essere posizionata in modo tale che poi risulti a contatto con il campione, altrimenti andremmo incontro a fenomeni di diffrazione al momento dell'esposizione. L'allineamento fra maschera e campione è gestita tramite tre viti che permettono di muovere il campione finemente o

lungo x o lungo y o altrimenti di ruotarlo, sempre nel piano x-y. Gli spostamenti del campione devono essere compiuti quando il LiNbO_3 non è a contatto con la maschera, altrimenti si potrebbe danneggiare la maschera stessa; per distanziare i due è prevista una leva spaziatrice che li separa di circa 100 μm . L'allineamento è stato effettuato con l'ausilio di un microscopio binoculare che permette di vedere il campione sotto la maschera. Quando si ritiene di avere raggiunto un buon allineamento, avendo preventivamente impostato il cronometro apposito al valore deciso, si avvia l'esposizione. Per il mio lavoro i tempi di esposizione alla lampada al mercurio sono stati di 39 secondi.

Ad esposizione avvenuta, si è proceduto allo sviluppo del polimero fotosensibile. Questa è una fase delicatissima in quanto uno sviluppo di breve durata non garantirebbe una sufficiente definizione del reticolo, di contro un'esposizione troppo lunga aprirebbe eccessivamente i canali non rispettando le condizioni di *duty cycle* definite.

A questo punto le geometrie sono state trasferite sulla pellicola fotosensibile e deve essere rimosso il *photoresist* superfluo dalla superficie del campione; quest'ultima operazione è denominata "sviluppo" e comprende la semplice azione di immersione del campione in una soluzione di una parte di *developer* (quello utilizzato da noi: *Shipley Microposit Developer MF-319*) e tre di acqua bidistillata che rimuove le parti maggiormente esposte: il tempo di "sviluppo" e, dunque, di immersione, è stato definito nel corso di diverse prove ed è stato fissato in circa 20 secondi. Questa operazione viene eseguita a mano e pertanto la durata del processo non è definita con esattezza. Infatti, dopo lo sviluppo, il campione viene osservato con un microscopio d'alta precisione che consente all'operatore, mediante un sistema di motori passo passo e di una telecamera, di ispezionare attentamente tutta la superficie del campione e di stabilire se le geometrie siano state ricopiate fedelmente. Inoltre, è possibile compiere delle misurazioni micrometriche di precisione al fine di accertare l'effettiva lunghezza dei periodi realizzati e definirne il *duty cycle*.

Viene infine eseguita un' ulteriore fase di essiccazione (*soft baking*) a 90 °C per la durata di una notte e, quindi, una fase di *hard baking* in cui il campione viene portato alla temperatura di circa 130 °C per 3 ore. L'innalzamento della temperatura di polimerizzazione avviene gradualmente al fine di evitare problemi derivanti dall'effetto piroelettrico; la temperatura viene innalzata allo scopo di asciugare il *photoresist* dal

lavaggio dello sviluppo, ridurre gli effetti di interferenza e di onda stazionaria causati dall'esposizione, rendere più stabile l'adesione al substrato [22] e garantire l'isolamento elettrico nella successiva fase di *poling*.

Attraverso un forte campo elettrico è possibile invertire i domini ferroelettrici del LiNbO_3 . Nel mio caso, la zona che si voleva invertire era una piccola frazione di superficie dell'intero campione e per il campione considerato è stata presa in considerazione una zona avente area di 2.8 mm^2 ($0.7 \times 4 \text{ mm}^2$) comprendente il reticolo da $3.2 \mu\text{m}$. La struttura in *photoresist* risulta indispensabile per l'individuazione del periodo da polarizzare. Poi, è stato coperto tutto il campione, a parte la zona interessata, con diversi strati isolanti di *Scotch* della 3M.

Per raggiungere elettricamente la parte del LiNbO_3 non coperta dal *photoresist* è stato applicato un gel elettrolitico sulla parte non coperta dall'isolante e sugli elettrodi del generatore di alta tensione (Fig. 4.1). Le numerose prove di *poling* hanno mostrato che i fenomeni di *breakdown* interno non risultano influenzati dalla geometria degli elettrodi. Nel distribuire il gel conduttivo sulla superficie del cristallo si è posta particolare attenzione nell'evitare la formazione di microbolle d'aria, motivo di discontinuità sia all'interno del gel elettrolita che sulla superficie del campione: infatti, tali irregolarità avrebbero potuto causare disuniformità del campo elettrico applicato corrompendo, quindi, l'uniformità della zona polarizzata.

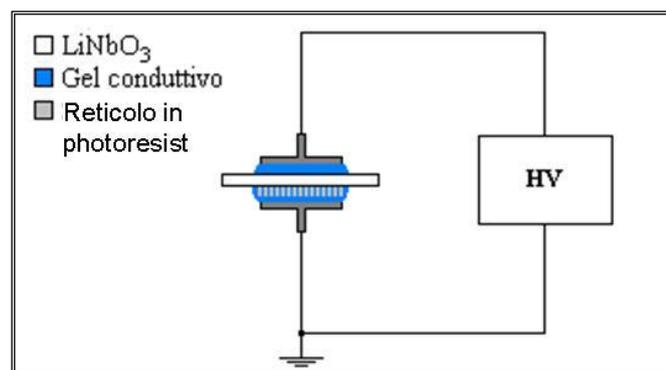


Fig. 4.1 Disposizione del campione durante l'applicazione dell'impulso di tensione.

In queste condizioni il campione era pronto a ricevere l'impulso di inversione. Il substrato è stato posto all'interno di una camera di materiale isolante (*Plexiglass*), trattenuto tra i due stessi elettrodi attraverso i quali sarebbe passato l'impulso di tensione. Questa tensione è stata fornita da un amplificatore e da un alimentatore di alta tensione che insieme formano il sistema 664 prodotto dalla *Trek*, il quale è capace di

sostenere un livello continuo in tensione fino a 10 kV. Infatti, la tensione sul campione viene portata fino a 10 kV manualmente attraverso gli opportuni comandi del sistema *Trek* e viene dato un impulso rettangolare di durata opportuna sovrapposto a questo livello continuo da un generatore di forme d'onda (*Agilent 3220A*).

La tensione massima applicata al campione è stata di 11.3 kV (10 kV+1.3 kV), essendo i campioni spessi 500 μm si arriva, quindi, ad un campo elettrico pari a 22.6 kV/mm, maggiore del campo coercitivo da superare per ottenere l'inversione. La rampa di salita è molto lenta per evitare *stress* dovuti all'effetto piezoelettrico che causerebbero *breakdown* interno, mentre molto veloce è quella di discesa per non far permanere, più del dovuto, il cristallo sotto l'azione di un forte campo elettrico. La durata dell'impulso Δt (Fig. 4.2) è stata di circa 415.25 ms.

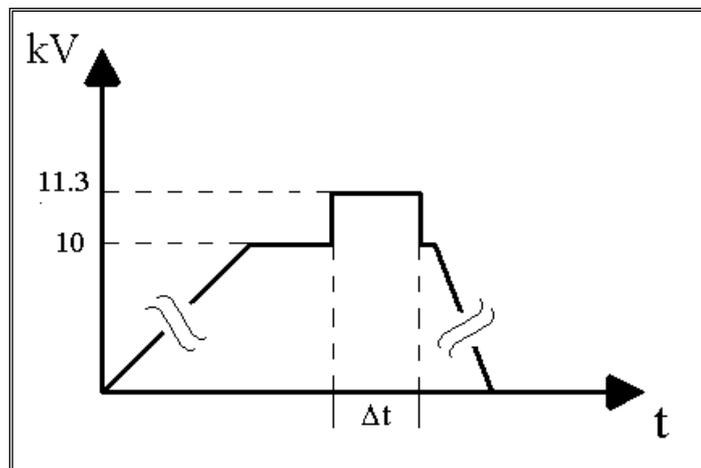


Fig. 4.2: Andamento della tensione fornita al campione

La durata Δt e la quantità di carica che attraversa il campione è molto importante, infatti, è da questa che dipende l'esatta riproduzione del *pattern* in *photoresist* sullo strato ferroelettrico sottostante. La modulazione del coefficiente non lineare d_{33} è data dalla periodicità del reticolo e dal suo *duty cycle*. L'efficienza del dispositivo è strettamente legata alla qualità dei domini implementata. La quantità di carica che ha attraversato il nostro dispositivo è stata misurata in 500 nC.

Per misurare l'efficienza del dispositivo è necessario che questo venga accoppiato con la sorgente luminosa dalla quale si vuol ricavare l'onda a frequenza doppia. Visto che il fascio luminoso deve essere inviato direttamente sulla superficie d'ingresso della guida è necessario che la relativa estremità sia otticamente lucida, ovvero caratterizzata da un grado di rugosità media dell'ordine dei decimi della lunghezza d'onda impiegata.

Dopo il taglio, gli spigoli presentano generalmente un'elevata rugosità superficiale. La lucidatura deve essere eseguita in più fasi successive: una prima di smerigliatura (*gridding*), seguita da una di lappatura (*lapping*), completata dalla lucidatura finale (*polishing*). Per evitare l'arrotondamento degli spigoli, causato dall'azione abrasiva che diminuirebbe l'efficienza di accoppiamento, sono stati incollati due "testimoni" (*holder*) di LiNbO_3 . Le due parti sono state incollate tra loro mediante un sottilissimo strato di cera al quarzo che garantisca un'ottima aderenza e uno spazio di intercapedine ristrettissimo tra le parti. È evidente che quanto più è piccola l'intercapedine tra il testimone e il campione, tanto migliore sarà l'efficacia del metodo; pertanto, per evitare che eventuali particelle possano interpersi tra le due parti da incollare, è necessaria un'accurata pulizia così del dispositivo che dei testimoni; questa operazione deve essere portata a termine in un ambiente con atmosfera filtrata. Per il processo di lappatura del dispositivo, quest'ultimo, con i testimoni, viene inserito all'interno di un cilindro di rame che, poi, viene interamente riempito di cera in maniera da fissarli saldamente, e farli diventare un corpo unico col supporto metallico. Dal cilindro, nel quale vengono immobilizzati i pezzi, fuoriescono soltanto le estremità da lucidare. La smerigliatura (*polishing*) è stata effettuata con tre successive lavorazioni, utilizzando delle carte abrasive contenenti grani di carburo di silicio (*grit*) di dimensioni via via più piccole (*paper-600 grit, -2500 grit, -4000 grit*) e acqua bidistillata per garantire la necessaria lubrificazione.

La carta *600 grit* (600 grani di carburo di silicio per pollice lineare) servirà ad una molatura grossolana del campione rendendo planare la superficie dei substrati e dei testimoni. Osservando i campioni con un microscopio è possibile rendersi conto se si sia raggiunto il risultato sperato; in questo caso si può procedere con la successiva fase di lavorazione. Occorre preventivamente pulire sia il piatto della lappatrice, sia il porta campioni da ogni traccia del *grit* usato in precedenza. In generale, il passaggio da una lavorazione all'altra, avviene quando, osservando al microscopio le superfici dei campioni da lucidare, si nota una rugosità uniforme su di essa, ed una linea di separazione tra ciascun substrato ed il proprio testimone quanto più diritta, regolare e sottile possibile, relativamente all'abrasivo adoperato.

Al termine della smerigliatura con *grit 4000*, le superfici dei campioni risultano planari ma non ancora otticamente lucide, mentre una ben definita linea di separazione

indica la formazione di uno spigolo vivo netto. Per la lucidatura delle superfici a grado ottico si è adoperata la macchina lappatrice della *Logitech PM5*, con piatto di lappatura a grana porosa, e, come lucidante, una soluzione di acqua bidistillata e polvere di allumina da 1 μm di diametro. E' chiaro che in questa fase il problema della contaminazione del piatto della lappatrice diventa sensibile, motivo per il quale occorre eseguire attente procedure di decontaminazione prima di ogni lavorazione. Sempre su questa macchina è stata eseguita l'ultima fase di lucidatura con un preparato, il *Syton*, che esercita un'azione meccanico-chimica sulle superfici da lappare. Dopo circa un'ora di trattamento con il *Syton* si è controllato con il microscopio che le superfici fossero perfettamente lucide, con assoluta mancanza di graffi e con spigoli all'interfaccia tra il dispositivo ed i relativi testimoni ben vivi e squadrati.

Naturalmente, per avere un buon accoppiamento ottico in uscita dalle guide, oltre che in ingresso, l'intera procedura di lappatura va ripetuta ugualmente per la faccia opposta, invertendo l'orientazione del campione dopo aver sciolto la cera contenuta all'interno del cilindro porta-campioni di rame. La faccia di uscita del dispositivo è stata "lappata" con un profilo opportunamente inclinato di $5,7^\circ$ (Fig. 4.3) per minimizzare il rumore introdotto, nella misura della seconda armonica retro-propagante, dalla riflessione su tale faccia della radiazione di pompa.

Il campione utilizzato era in Niobato di Litio congruente di spessore 500 μm , *z-cut*, con periodo di *poling* di 3.2 μm . Le dimensioni del campione erano inizialmente di 15780 $\mu\text{m} \times 9760 \mu\text{m}$ mentre dopo la lappatura si sono ridotte a 11000 $\mu\text{m} \times 9760 \mu\text{m}$. Le dimensioni della zona polata erano 3830 $\mu\text{m} \times 700 \mu\text{m}$. Come si può notare dalla Fig. 4.3 sono presenti due regioni con *poling* periodico: una con *poling* di volume larga tra i 22 ed i 30 μm (regione grigio scuro) che presenta una periodicità uniforme per circa 2906 μm (dimensione *d* dello schema), l'altra con *poling* superficiale con larghezza variabile da 30 a 70 μm (regione grigio chiaro). Si è visto sperimentalmente che la regione con *bulk poling* era migliore di quella con *poling* superficiale nella caratterizzazione del dispositivo per la generazione di seconda armonica retro-propagante. Come già detto, la faccia di uscita del campione presentava un profilo inclinato di 5.7° per limitare l'aliquota di radiazione a frequenza fondamentale che, riflessa da tale faccetta, si sommasse alla seconda armonica retro-propagante, disturbando la misura con rumore indesiderato.

Per poter evidenziare i domini nelle zone con *poling* periodico, il campione non è stato attaccato con acido fluoridrico poiché questa operazione, se da un lato avrebbe sicuramente evidenziato la struttura reticolare in maniera più leggibile, dall'altro avrebbe compromesso irrimediabilmente la funzionalità del dispositivo.

Per verificare la qualità del *grating* implementato il dispositivo è stato ricoperto, dopo un'attenta pulitura col *Remover*, da uno strato di *photoresist* dello spessore di circa $1.3 \mu\text{m}$. E' stato, poi, osservato mediante microscopio con gli ingrandimenti di 100X e 200X (ingrandimenti maggiori non avrebbero permesso di vedere distintamente i domini) e correggendo opportunamente il contrasto e la luminosità. Questa operazione molto delicata è avvenuta in *cleanroom* con l'ausilio della movimentazione semiautomatica del microscopio.

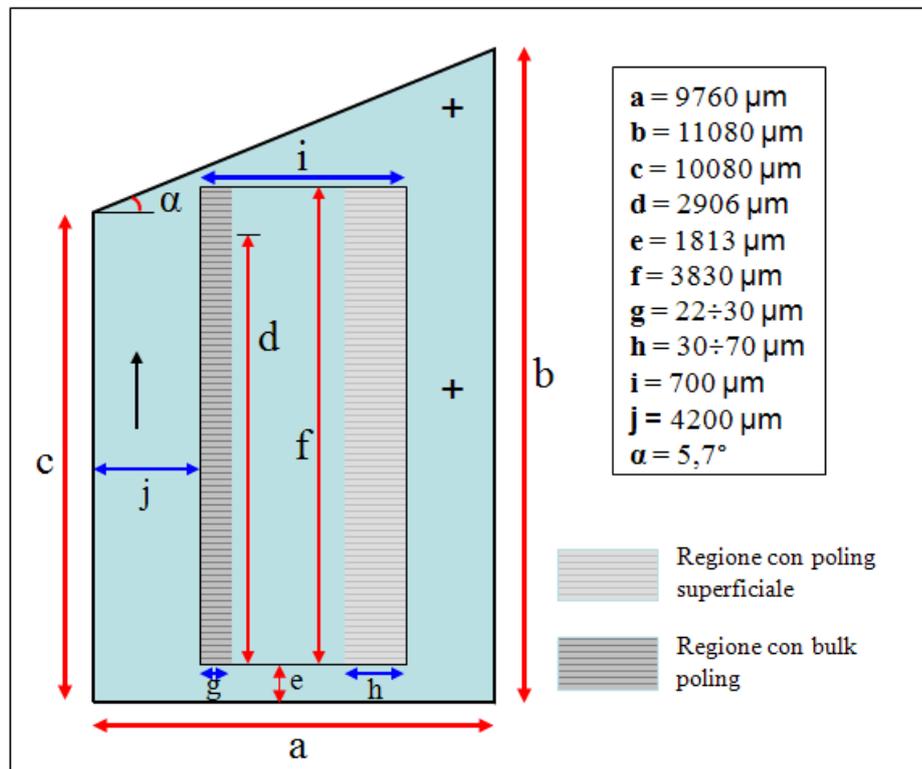


Fig. 4.3: Schema del dispositivo realizzato (disegno non in scala).

4.4 Configurazione e descrizione del banco ottico di misura

In questa sezione tratterò della preparazione del banco ottico per la misura della generazione di seconda armonica. Verrà illustrato il banco ottico, descrivendo le caratteristiche della strumentazione e dei componenti utilizzati per il suo allestimento. Verranno esaminati il sistema per la generazione della radiazione di pompa e l'ottica ad

essa associata, verrà illustrato il sistema per la focalizzazione del fascio generato ed il sistema per la misura della seconda armonica.

4.4.1 Il banco ottico

Il *setup* del banco ottico che è stato utilizzato per le misure di generazione di seconda armonica, presso il Laboratorio di Optoelettronica del CRES è riportato nella schema sottostante. In alto a destra è rappresentato il primo blocco funzionale: il sistema utilizzato per la generazione ed il controllo della radiazione di pompa. Esso è costituito da un laser al *Ti:Zaffiro* (*Spectra Physics*, CW 3900S), pompato da un laser ad *Argon-ion* (*Spectra Physics*, BeamLok 164), ad emissione d'onda continua, con lunghezza d'onda variabile da 840 a 1000 nm e larghezza di riga pari a 40 GHz [23].

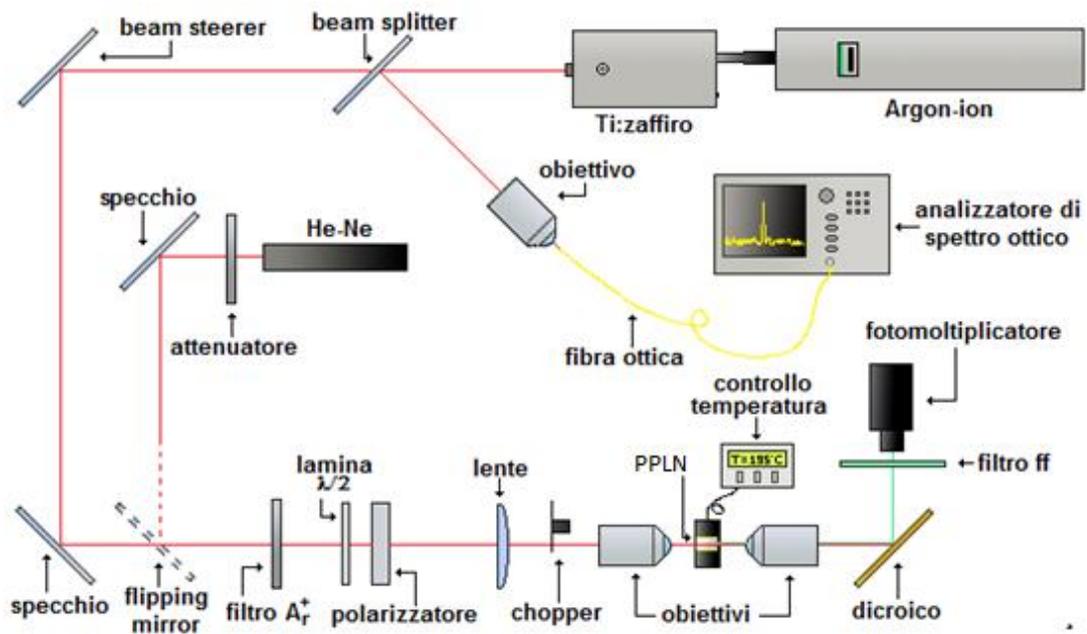


Fig. 4.4 *Set-up* del banco ottico utilizzato per le misure di SHG.

La lunghezza d'onda di emissione è finemente regolabile attraverso un opportuno micrometro mentre la potenza viene regolata agendo prima sull' *Argon-ion*, attraverso la variazione di un diaframma, e, successivamente, su *Ti:Zaffiro*, agendo iterativamente sulle movimentazioni meccaniche degli specchi della cavità interna.

All'uscita del laser *Ti:Zaffiro* si è posto uno specchio *beam splitter*, attraverso il quale parte del segnale generato viene prelevato ed inviato, grazie ad un obiettivo, ad una fibra ottica collegata ad un analizzatore di spettro ottico: in tal modo si permette la misurazione immediata della lunghezza d'onda, la visualizzazione della riga di

emissione della radiazione luminosa e della sua ampiezza. A seguire si ha un *beam steerer*, il quale trasla verso l'alto il fascio laser generato, in modo da rendere l'altezza compatibile con quella dell'ottica utilizzata e ne ruota la polarizzazione da orizzontale a verticale, quindi lungo l'asse z del campione (ovvero il suo asse ottico), in modo da sfruttare il coefficiente non lineare del secondo ordine d_{33} . Il successivo specchio metallico deflette il fascio di 90° inviandolo ad un filtro che è stato inserito per eliminare il residuo di pompa (presente nel segnale a frequenza fondamentale) dovuto al laser ad Argon. Dopodiché è presente un sistema di attenuazione variabile della potenza del fascio: esso è costituito da una lamina e da un rotatore di polarizzazione ($\lambda/2$), utilizzato per abbassare un eventuale eccessivo livello di potenza, possibile causa di danneggiamento del campione. La lamina ruota la polarizzazione del fascio di un certo angolo, mentre il polarizzatore lascia passare solo la componente lungo z: l'azione combinata dei due dispositivi si traduce in un'attenuazione della potenza del fascio.

Il fascio laser è successivamente inviato ad una lente e ad un obiettivo utilizzati per la focalizzazione. Il campione in Niobato di Litio impiegato negli esperimenti, si trova all'interno di un riscaldatore, controllato via software tramite un computer, il quale permette di innalzare la temperatura del campione fino ad un massimo di 200°C , con andamenti temporali configurabili. Il riscaldatore è montato, così come l'obiettivo d'ingresso, su un supporto dotato di movimentazione micrometrica e su un ulteriore supporto a movimentazione piezoelettrica: entrambi permettono un allineamento preciso del campione rispetto al fascio laser, e, quindi, il perfetto accoppiamento di quest'ultimo con la regione con *poling* periodico. Il segnale d'uscita viene raccolto mediante un obiettivo (anch'esso montato su un supporto con movimentazione micrometrica) ed inviato ad uno specchio dicroico che rifletterà la componente a seconda armonica verso un fotomoltiplicatore collegato ad un amplificatore *lock-in*, tra il fotomoltiplicatore e lo specchio dicroico è posto un filtro. Durante le operazioni di misura, si è notato che l'aggiunta di un'iride, costituita da un porta fibra del diametro compatibile con la vita del fascio, posta prima dell'obiettivo di ingresso, minimizzava il rumore dovuto alle riflessioni sulla faccia di ingresso del campione, con conseguente miglioramento dell'efficienza misurata. L'allineamento dell'ottica del banco è avvenuta con l'ausilio di un laser ad *Elio-Neon* (He-Ne), che presentava un'emissione nel visibile (rosso). Il fascio generato da tale laser, passa attraverso un attenuatore e mediante due

specchi disposti come in Fig. 4.4 (di cui uno ribaltabile, *flipping mirror*) viene indirizzato verso il campione. Una volta realizzato l'allineamento, con procedura iterativa, l'He-Ne viene opportunamente schermato e lo specchio *flipping* ribaltato.

4.4.2 Sistema di focalizzazione del fascio

La focalizzazione del fascio ottico sulla faccetta d'ingresso del campione, è stata realizzata con l'utilizzo di una lente piano-convessa convergente con focale $f=40\text{cm}$ e di un obiettivo da microscopio con focale $f_{ob}=1\text{mm}$ (Fig. 4.5).

Si è scelta una lente a focale lunga, per ottenere una minore divergenza del fascio, e quindi un miglior accoppiamento tra il fascio e la regione con *poling* periodico. Infatti, anche se il campione non è posizionato esattamente alla distanza teorica calcolata, il *waist* ottenuto sarà molto prossimo a quello desiderato. Di contro, l'utilizzo di una lente a focale lunga, presenta un inconveniente riguardante le dimensioni minime della vita del fascio, in quanto esso risulta maggiore della dimensione massima della regione con *bulk poling*.

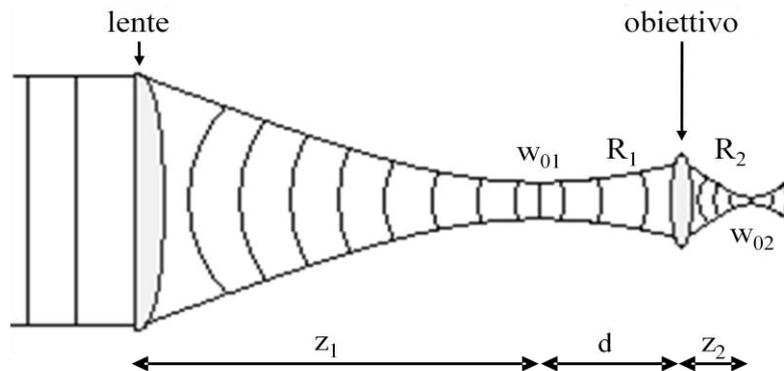


Fig. 4.5 Focalizzazione del fascio di pompa

Per risolvere il problema si è reso necessario l'inserimento di un obiettivo da microscopio a focale molto corta. Variando la distanza d tra obiettivo e fuoco della lente, è possibile modificare le dimensioni del *waist* per adattarlo alla dimensione della regione con *poling* periodico. Il calcolo non è immediato in quanto non è possibile ricavare con precisione la distanza z_2 dall'obiettivo in cui il fascio va a fuoco e, di conseguenza, non si può risalire a d . Infatti, in accordo con la teoria dei fasci gaussiani, un fascio che incide su una lente viene da questa focalizzato solo quando proviene da distanza infinita, quando cioè incide con un fronte d'onda piano. Nel caso in esame la propagazione avviene con fronti d'onda sferici. Si è scelto quindi di applicare un

metodo empirico iterativo, sfruttando l'ausilio della telecamera *DataRay WinCamD*: essa è stata posta su un supporto mobile per consentire la cattura dell'immagine dello *spot* del fascio e la conseguente valutazione del *waist* a diverse distanze, mantenendo l'allineamento verticale. La rilevazione del *waist* è stata compiuta per più punti, con *step* di 10 mm, ottenendo così determinati valori di tale parametro, che hanno consentito, mediante un' interpolazione al calcolatore, la caratterizzazione del fascio (Fig. 4.6), nota la lunghezza d'onda di emissione del laser fissata a 930 nm.

Si è, pertanto, constatato che il *waist*, a distanza dalla lente pari a $z_1=119$ mm, è di circa $61\mu\text{m}$, quindi molto maggiore, come previsto, della larghezza massima della regione con *bulk poling* ($22 \div 30 \mu\text{m}$).

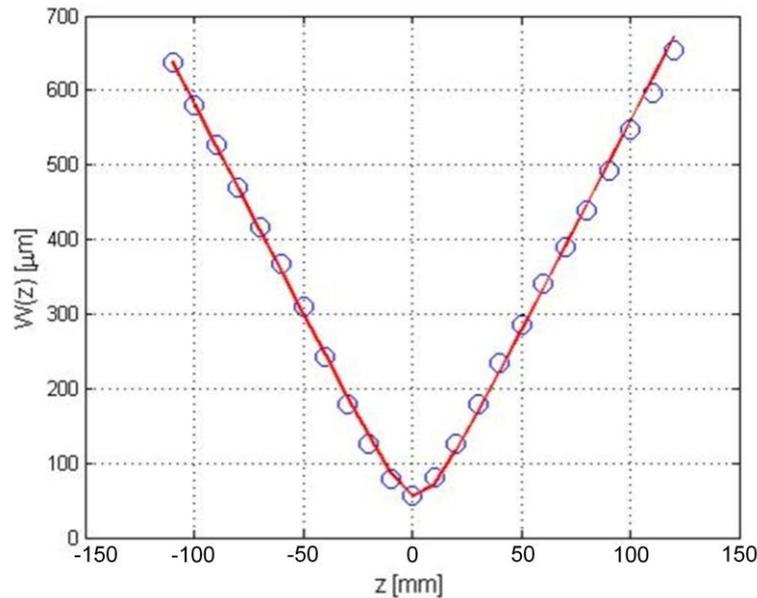


Fig. 4.6 Valori del *waist* misurati in funzione della distanza e curva interpolante.

Per determinare la distanza d , una volta noto w_{01} , si è proceduto in maniera iterativa: imposta una distanza d sufficientemente vicina a quella attesa, si è calcolato il *waist* dopo l'obiettivo. Nota la vita del fascio dopo la lente ($w_{01} = 61\mu\text{m}$) e la lunghezza d'onda di emissione del *Ti:Zaffiro* ($\lambda=930\text{nm}$) si è determinata la distanza z_0 attraverso la:

$$z_0 = \frac{\pi w_{01}^2}{\lambda} \quad (4.4)$$

Una volta ricavata la z_0 , servendosi delle equazioni 4.5 e 4.6 si calcola la dimensione del fascio w_l e il raggio di curvatura alla distanza d dal fuoco in cui posizionare

l'obiettivo:

$$w_1^2(d) = w_{01}^2 \left[1 + \left(\frac{d}{z_0} \right)^2 \right] \quad (4.5)$$

$$R_1(d) = d \left[1 + \left(\frac{z_0}{d} \right)^2 \right] \quad (4.6)$$

Dato che, supponendo lo spessore della lente dell'obiettivo sufficientemente sottile, il raggio complesso $w(z)$ non cambia nell'attraversarla e, pertanto, si può scrivere:

$$w_1(d) = w_2(d) \quad (4.7)$$

Per la legge di Gauss sulle trasformazioni dei fronti d'onda sferici si ricava il raggio di curvatura del fascio:

$$\frac{1}{R_1(d)} - \frac{1}{R_2(d)} = \frac{1}{f_2} \Rightarrow R_2(d) = \frac{f_2 \cdot R_1(d)}{f_2 - R_1(d)} \quad (4.8)$$

dove con f_2 si intende la lunghezza focale dell'obiettivo. Noti a questo punto sia w_1 sia $R_2(d)$, si è ricavato il *waist* e la sua posizione mediante le equazioni 4.9:

$$w_{02}^2 = \frac{w_2^2(d)}{1 + \left(\frac{\pi w_2^2(d)}{\lambda R_2(d)} \right)^2}; \quad z_2 = \frac{R_2(d)}{1 + \left(\frac{\lambda R_2(d)}{\pi w_2^2(d)} \right)^2} \quad (4.9)$$

Dopo la prima iterazione il valore trovato per w_{02} non coincideva con quello prefissato ($w_{02} = 25\mu\text{m}$, contro un valore misurato di circa $30\mu\text{m}$ ad una distanza $d=30$ mm), si è cambiata d e si è ripetuta la procedura, ottenendo i risultati riportati in Tabella 1.

d (cm)	w₀₂ (μm)
3	30
3,5	25
4	21

Tab. 1 Valori del *waist* del fascio dopo l'obiettivo in funzione della distanza d .

Completata la procedura, si è arrivati ad una distanza $d \approx 35$ mm per ottenere una vita del fascio pari a quella prefissata $w_{02}=25 \mu\text{m}$. La misura è stata confermata da un'ulteriore visualizzazione tramite la telecamera. Una volta determinato il valore cercato per d e sommatolo con la distanza z_1 , si ricava il valore della distanza totale lente-obiettivo pari

a circa 154 mm: l'obiettivo, tuttavia, non viene posto esattamente in corrispondenza del punto per il quale w_{02} coinciderebbe con il centro della regione con *poling* periodico (focalizzazione stretta, *tight focusing*), ma leggermente spostato in avanti (*loose focusing*) (Fig. 4.7(a)). Questo perché quando ci si trova a ridosso del *waist*, dove cioè è minimo il raggio $w(z)$, si è anche in presenza della massima divergenza del fascio, con l'inconveniente di non sovrapporre uniformemente la radiazione sulla struttura polata (Fig. 4.7(b)): allontanandosi, quindi, leggermente dalla vita, si è trovato un $w(z)$ maggiore, $w = 30 \mu\text{m}$, compatibile con la dimensione trasversale della regione polata, con una divergenza del fascio minore, e quindi un accoppiamento più uniforme tra luce e zona polata (Fig. 4.7(a)).

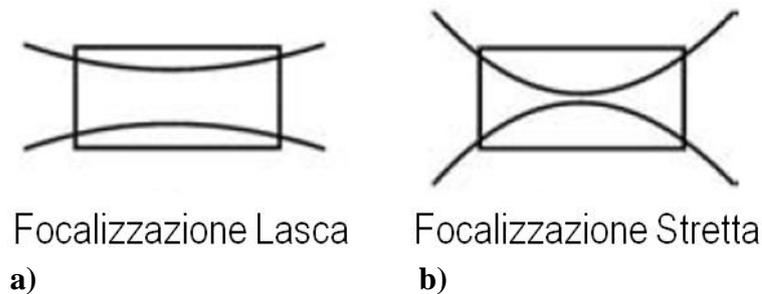


Fig. 4.7 Confronto tra focalizzazione lasca (a) e stretta (b).

Si è verificato il risultato ottenuto per mezzo della visualizzazione al calcolatore del fascio con una telecamera *DataRay BeamMap*: essa consente, grazie ad una misura *knife-edge*, lungo diverse sezioni, la visualizzazione dell'andamento del fascio ottico.

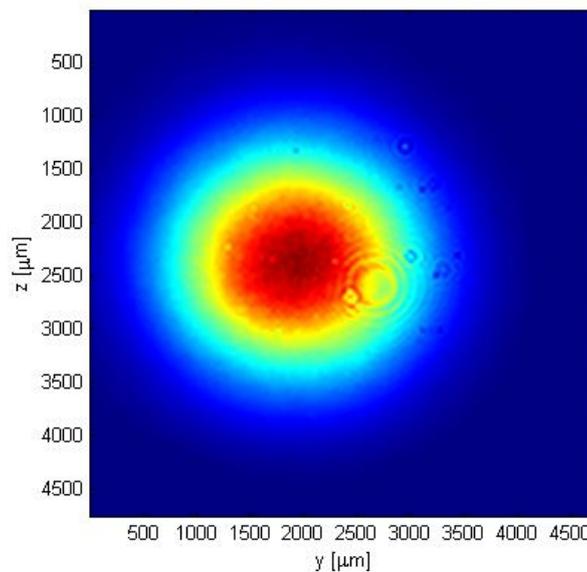


Fig. 4.8 Istantanea dello *spot* del fascio ottenuto nel punto selezionato.

La telecamera posizionata nel punto ricavato precedentemente ha verificato la bontà del calcolo.

4.4.3 Sistema di misura per il segnale a seconda armonica

Dopo aver considerato il sistema di emissione della radiazione di pompa, costituito dai laser *Ti:Zaffiro* e *Argon-ion*, e il blocco di focalizzazione del fascio, descrivo l'ultimo sottoinsieme del banco ottico: il sistema per la misura della seconda armonica. Esso consta di tre elementi: uno specchio dicroico, un fotomoltiplicatore ed un amplificatore *lock-in*. Lo specchio dicroico utilizzato (Fig. 4.9(a)) permette la separazione del segnale a seconda armonica da quello a frequenza fondamentale grazie allo strato *coated* che ne riveste una faccia. Tale strato, infatti, è progettato per riflettere totalmente il segnale a seconda armonica mentre è completamente trasparente per la FF (funzionamento ideale). La curva di trasmissione del dicroico (Fig. 4.9(b)) mostra il comportamento reale della riflettività dello strato *coated* in funzione della lunghezza d'onda: è possibile, pertanto, distinguere una zona ad alta trasmissione (bassa riflettività) ed una zona a bassa trasmissione (alta riflettività).

Nonostante l'ottima qualità di tale specchio, una parte del segnale di pompa viene comunque riflessa ed inviata verso il fotomoltiplicatore. Dal grafico della curva di trasmissione infatti si nota come, nel *range* di emissione del *Ti:Zaffiro*, si abbia un valore di trasmissività $T \approx 98\%$.

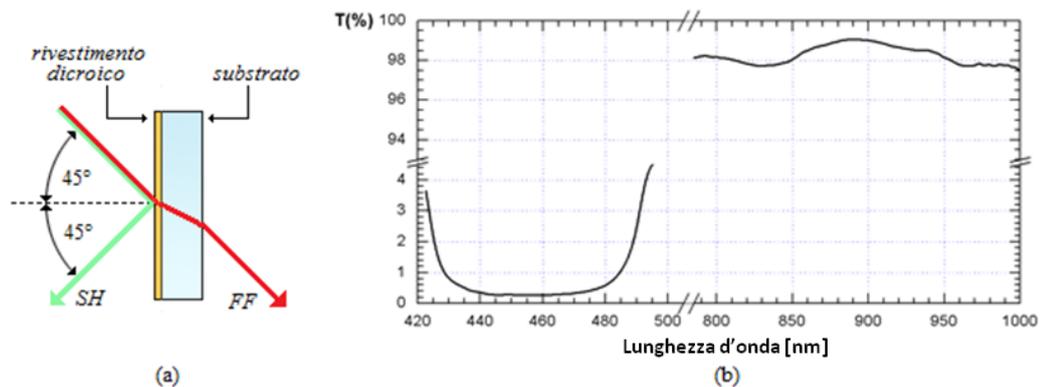


Fig. 4.9 Specchio dicroico (a); curva di trasmissione (b).

Tale contributo, residuo indesiderato, del segnale a FF viene eliminato con l'ausilio di un opportuno filtro passa banda BG-18 (EDMUND OPTICS), la cui caratteristica di trasmissione è riportata in Fig. 4.10 (curva azzurra).

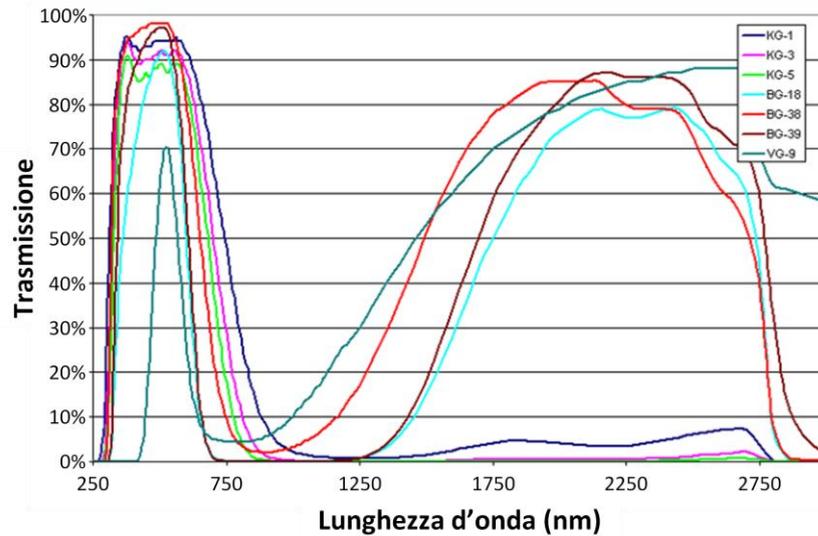


Fig 4.10 Curva di trasmissione del filtro BG-18. (dal Rif. [24])

Come si può notare esaminando la curva d'interesse, il filtro presenta nel *range* di emissione del *Ti:Zaffiro* una trasmissione praticamente nulla, mentre lascia passare con una trasmissività $T \approx 80\%$ il segnale a seconda armonica.

Pertanto, l'utilizzo combinato di dicroico e filtro, garantisce l'assenza quasi totale di residui di FF all'ingresso del fotomoltiplicatore. Il fotomoltiplicatore utilizzato nel banco ottico è un PMM01 della *Thorlabs*: presenta una banda di funzionamento che si estende dalla frequenza continua fino ad un massimo di 20kHz. Esso presenta, inoltre, un guadagno regolabile mediante un sistema di variazione fine della tensione di accelerazione dei dinodi; tale guadagno ha permesso la rivelazione di radiazioni luminose anche con potenze nell'ordine del pW.

Il PMM01 fornisce in uscita una tensione proporzionale alla potenza del segnale incidente, calcolabile mediante la seguente relazione fornita nel manuale a corredo [25]:

$$out\left(\frac{V}{W}\right) = G_t\left(\frac{V}{A}\right) * S\left(\frac{A}{W}\right) * G_{tube} \quad (4.10)$$

In cui con G_t è indicato il guadagno di transimpedenza (valore tipico $5 \cdot 10^5$ con uscita terminata su un'impedenza di carico di 50Ω), con S la sensibilità e con G_{tube} il guadagno di tubo, dipendente dalla tensione di accelerazione dei dinodi selezionata (0-1,5V). Le caratteristiche del guadagno di transimpedenza e della sensibilità sono riportate in Fig. 4.11.

Il fotomoltiplicatore è collegato ad un amplificatore *lock-in*. Questo dispositivo tramite la tecnica della *Phase-Sensitive Detection* elimina gran parte del rumore ambientale presente.

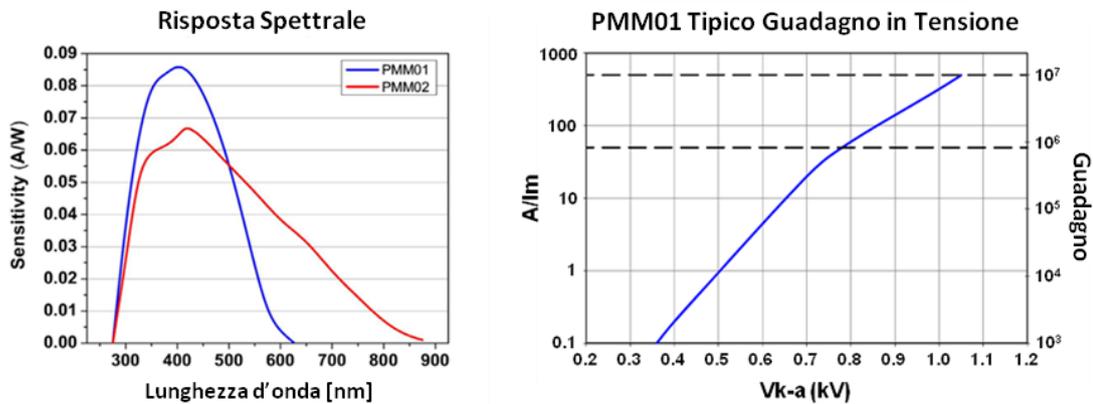


Fig. 4.11 Curve di sensibilità e di guadagno del fotomoltiplicatore. (dal Rif. [26])

Tale dispositivo misura, però, soltanto segnali variabili nel tempo, per cui, per poterlo utilizzare opportunamente all'interno del banco ottico di misura si è inserito un *chopper*. Questo dispositivo consiste in un motorino elettrico a velocità costante regolabile su cui viene alloggiato un disco metallico (*blade*) che presenta dei fori, ordinatamente disposti in senso radiale, i quali consentono di “affettare” l'onda continua in un'onda quadra con il voluto *duty cycle*.

Il fascio viene cioè interrotto ad intervalli di tempo regolari facendo in modo che all'ingresso del *lock-in* ci sia un segnale variabile nel tempo con andamento ad onda quadra. La *blade* utilizzata durante le misure, unitamente ad una frequenza di rotazione della stessa impostata a 133 Hz, trasforma l'onda continua della radiazione del *Ti:Zaffiro* in un'onda quadra con *duty cycle* del 50%, dimezzandone la potenza media. Infine, per evitare che nel campione si manifestasse l'effetto fotorifrattivo, lo si è disposto in un riscaldatore alla temperatura controllata di 195 °C: la fase di riscaldamento del campione consiste nel sottoporlo ad un aumento di temperatura con andamento a rampa lineare e durata di 60 minuti.

Questa scelta si spiega con l'esigenza di evitare di sottoporre il dispositivo in Niobato di Litio ad un gradiente eccessivo di temperatura che potrebbe causare effetti piroelettrici. Ultimato il riscaldamento si attende in genere un intervallo di tempo di circa un'ora, per avere la sicurezza che tutto il volume del campione sia alla stessa temperatura, evitando possibili gradienti indesiderati tra zone non uniformemente

riscaldate. Dopo le misure il campione viene riportato a temperatura ambiente (fissata a $T=25^{\circ}\text{C}$) con un raffreddamento a rampa lineare avente una durata di 45 minuti.

4.4.4 Configurazione Backward

La disposizione del banco ottico è del tutto analoga a quella in configurazione *Forward* sin qui descritta e riassunta in Fig. 4.4. Quello che cambia è la posizione del sistema di rivelazione della seconda armonica (Fig. 4.12).

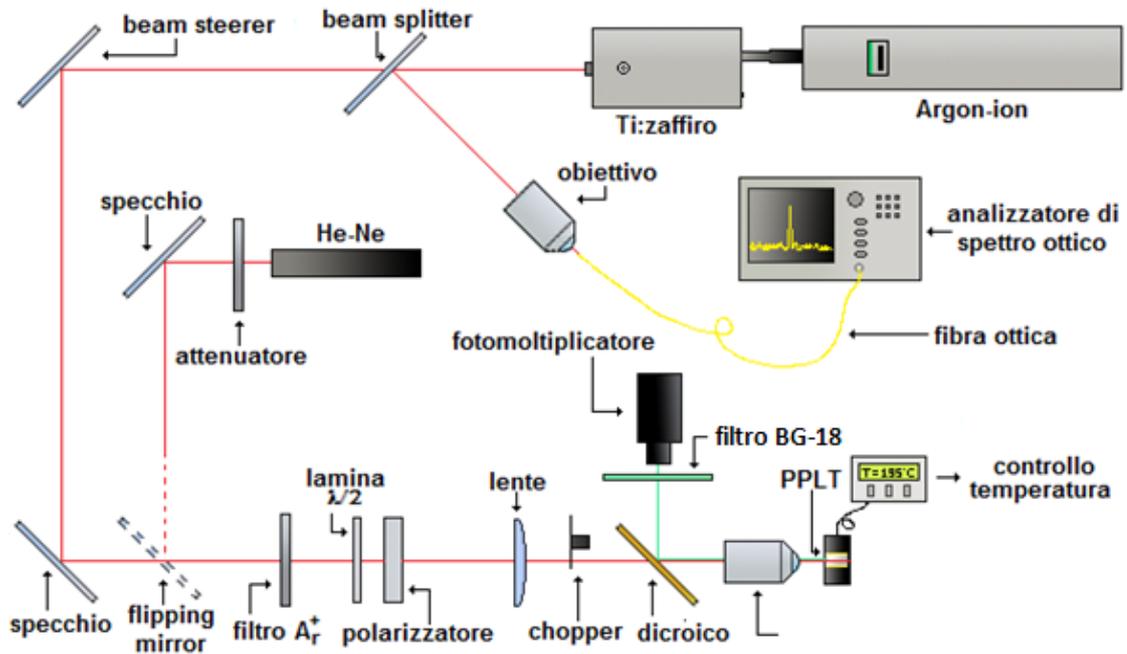


Fig. 4.12 Set up del banco ottico in configurazione *backward*.

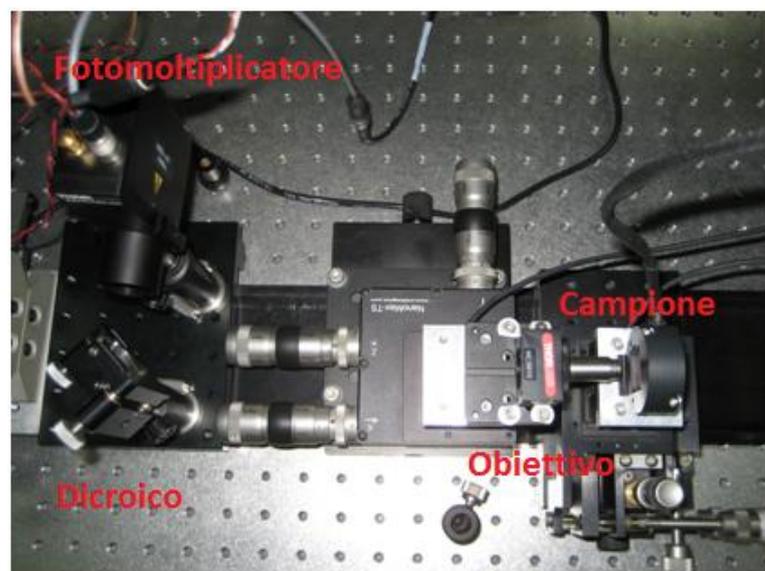


Fig. 4.13 Particolare del blocco di rivelazione di seconda armonica per la configurazione *backward*.

Dovendo misurare la seconda armonica retro-propagante, il diicroico viene posto prima dell'obiettivo d'ingresso, con conseguente spostamento anche del filtro BG-18 e del fotomoltiplicatore. Viene rimosso l'obiettivo di uscita, in quanto non più necessario. La presenza di un filtro spaziale realizzato, come già accennato in precedenza, con l'inserimento di un porta-fibra, ha evidenziato anche in questa configurazione un abbassamento del livello del rumore, dovuto principalmente alle riflessioni sulle faccette di ingresso e di uscita del campione della radiazione di pompa.

4.5 Misure di generazione di seconda armonica retro-propagante

Questa sezione è dedicata alla caratterizzazione non lineare del campione in Niobato di Litio *bulk*. Verranno, pertanto, descritte le misure effettuate per generazione di seconda armonica retro-propagante, mettendo in evidenza sia le modalità di misura utilizzate sia i risultati sperimentali ottenuti. La generazione di seconda armonica retro-propagante in un cristallo di Niobato di Litio con *poling* periodico è stata ottenuta, come già accennato in precedenza, adoperando come pompa un laser *Ti:Zaffiro* ad emissione continua. La radiazione a frequenza fondamentale si propaga quindi in una struttura con domini ferroelettrici invertiti periodicamente: la suscettibilità del secondo ordine presenta una variazione di segno nel passaggio da un dominio a quello adiacente con modulo $\chi^{(2)}$ e periodo Λ (Fig. 4.14). La Fig. 4.14 mostra, inoltre, le direzioni di propagazione dell'onda di pompa e di seconda armonica. La polarizzazione delle onde è lungo l'asse z , ovvero l'asse ottico del cristallo LiNbO_3 . La scelta della direzione di polarizzazione lungo z è motivata dall'esigenza di utilizzare l'elemento diagonale della suscettibilità del secondo ordine, d_{33} , nella configurazione *backward*, ottenendo pertanto una maggiore efficienza di conversione.

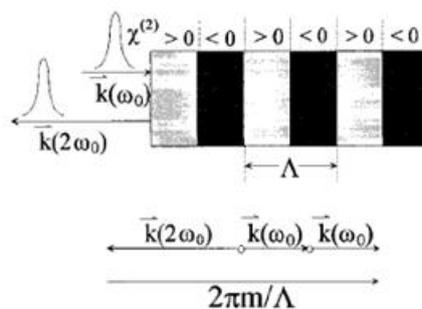


Fig. 4.14 Propagazione di SHG in configurazione *backward* nel LiNbO_3 con *poling* periodico. (dal Rif. [9])

Il fascio viene focalizzato al centro del campione in maniera “lasca”, con un *waist* misurato $w_0 = 30 \mu\text{m}$ e calcolato in modo da garantire la maggior sovrapposizione possibile tra radiazione di pompa e regione con *poling* periodico.

In base allo spettro di emissione del laser a *Ti:Zaffiro* utilizzato (tra gli 840 nm e i 1000 nm) sono stati determinati gli ordini m di BSHG osservabili in tale *range* e le loro rispettive lunghezze d’onda di risonanza teoriche (vedi Tab. 2).

Ordine m	λ di risonanza teorica (nm)
29	979.25
30	949.07
31	920.93

Tab. 2 Ordini di risonanza *backward* e rispettive lunghezze d’onda nel *range* di emissione del *Ti:Zaffiro*, calcolati a $T = 195^\circ\text{C}$ e con $\Lambda = 3.2 \mu\text{m}$.

Prima della misura di BSHG, si è settato il banco in configurazione *forward* (cfr. Fig. 4.4) ed è stata misurato il primo ordine ($m=1$) di generazione di seconda armonica co-propagante. Questa operazione viene effettuata per verificare l’esistenza di tale risonanza, a riprova che il reticolo non lineare sia presente ed efficiente. Dalla misura della SH è possibile valutare la qualità e l’eventuale presenza di errori nel periodo: una più alta l’efficienza di conversione permette una stima più precisa dei parametri che caratterizzano la regione con *poling* periodico.

La generazione di seconda armonica che si propaga in avanti (Forward Second Harmonic Generation – FSHG) è stata valutata anche effettuando un’ulteriore misura di *detuning* in temperatura, ovvero valutando come varia l’efficienza di conversione alla risonanza con il variare della temperatura del campione. Durante la caratterizzazione in avanti sono state verificate le efficienze di conversione in seconda armonica di entrambe le regioni con *poling*: come anticipato in precedenza, la regione con *poling* di volume ha dimostrato una maggiore efficienza rispetto a quella in cui è presente il *poling* periodico superficiale.

4.5.1 Caratterizzazione in avanti del primo ordine di risonanza

Ricordando che in configurazione *forward* $\Delta k = k_2 - 2k_1 - k_m$, si può scrivere:

$$\Delta k = k_2 - 2k_1 - K_m = \frac{2\pi \cdot n(\lambda/2)}{\lambda/2} - 2 \frac{2\pi \cdot n(\lambda)}{\lambda} - \frac{2m\pi}{\Lambda} \quad (4.11)$$

Riordinando tale equazione si ottiene:

$$\Delta k = \frac{4\pi}{\lambda} [n(\lambda/2) - n(\lambda)] - \frac{2m\pi}{\Lambda} \quad (4.12)$$

Affinché si verifichi il *phase matching*, il Δk deve essere pari a zero, quindi:

$$\frac{4\pi}{\lambda} [n(\lambda/2) - n(\lambda)] - \frac{2m\pi}{\Lambda} = 0 \quad (4.13)$$

Utilizzando l'equazione 4.12 si è ricavata la lunghezza d'onda di risonanza *forward* teorica, dove gli indici di rifrazione sono quelli ricavati dalle formule di Sellmeier sostituendo ai coefficienti teorici i valori numerici forniti dalla *Crystal Technology Inc.* Così procedendo, si è ottenuto $\lambda_{\text{res}} \approx 859.18$ nm.

Inizialmente, per caratterizzare la condizione di risonanza, è stato effettuato un *detuning* dell'efficienza di conversione con λ in un *range* che varia da 862.15 nm a 862.71 nm, selezionando una tensione di guadagno pari a 700 mV per il fotomoltiplicatore e con il campione tenuto ad una temperatura costante $T = 195$ °C. La misura si è articolata in una rilevazione della potenza di pompa P_{FF} prima della lente, tramite un *Power Meter* alla lunghezza d'onda di interesse, ed in una valutazione della potenza di uscita a seconda armonica, tramite lettura del valore di tensione di uscita V_{mis} sullo schermo dell'amplificatore *lock-in*.

Per il calcolo dell'efficienza normalizzata, in questa configurazione, si è tenuto conto del fatto che l'ottica utilizzata nel banco di misura introduce necessariamente delle perdite dovute alla non idealità dei singoli componenti (Fig. 4.15). Anche il campione stesso introduce delle perdite dovute alle discontinuità aria - LN sulle faccette di ingresso ed uscita. Tali perdite, note come perdite di *Fresnel*, dipendono dalla lunghezza d'onda della radiazione che si propaga nel campione, attraverso gli indici di rifrazione; esse valgono:

$$T_{fr} = \frac{4n_1n_2}{(n_1 + n_2)^2} \quad (4.14)$$

In configurazione *forward* il fascio a frequenza fondamentale subisce, dunque, delle perdite dovute alla trasmissione non ideale dell'obiettivo di ingresso (perdite di cui si tiene conto mediante il termine $T_{\text{ob-in}}$) e alla trasmissione non ideale delle lente focalizzante (T_{lens}). Si deve, inoltre, tenere conto delle perdite di *Fresnel* sulla faccetta d'ingresso del campione (T_{fFF}), per cui la potenza d'ingresso sarà:

$$P_{in} = T_{ffFF} T_{ob-in} T_{lens} P_{FF} \quad (4.15)$$

Il segnale a seconda armonica, anch'esso propagantesi in avanti, subirà delle perdite dovute all'obiettivo di uscita (T_{ob-out}), alla riflessione sullo specchio diecrico (valore R_D ottenuto dall'interpolazione della curva di riflessione alle lunghezze d'onda di interesse), alla presenza del filtro BG-18 (T_{BG-18} , valore ottenuto dall'interpolazione della curva di risposta del filtro alle lunghezze d'onda di interesse) e alle perdite di *Fresnel*, stavolta sulla faccetta d'uscita (T_{ffSH}) del campione.

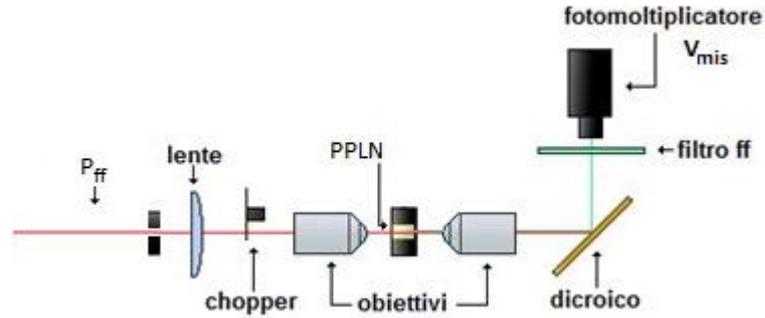


Fig. 4.15 Schema della sezione di misura in configurazione *forward*: (—) onda FF, (—) onda SH.

Inoltre, bisogna tenere conto che la SH, a differenza della FF, attraversa anche il fotomoltiplicatore e subisce l'azione del *chopper* sulla radiazione di pompa.

Per tenere conto dell'effetto introdotto dal fotomoltiplicatore è stato realizzato un opportuno *fit*, mediante interpolazione polinomiale, alle lunghezze d'onda di interesse, delle caratteristiche di guadagno (fit_g) e di sensibilità del fotomoltiplicatore (fit_s), illustrate in Fig. 4.11, tenendo conto del guadagno di trans-impedenza (G_t): $Fit_{pm} = G_t \cdot fit_g \cdot fit_s$. Infine, la presenza del *chopper* è stata considerata introducendo il coefficiente correttivo 2.2214, corrispondente alla conversione della FF da onda continua ad onda quadra con *duty-cycle* del 50%. Quindi, riassumendo, la potenza della seconda armonica varrà:

$$P_{out} = \frac{2.2214 \cdot V_{mis}}{T_{ffSH} T_{ob-out} R_D T_{BG-18} Fit_{pm}} \quad (4.16)$$

L'efficienza di conversione normalizzata è definita come il rapporto tra potenza d'uscita e potenza d'ingresso al quadrato, quindi dalla (4.15) e dalla (4.16) si ottiene:

$$\eta = \frac{P_{out}}{P_{in}^2} = \frac{2.2214 \cdot V_{mis}}{(T_{ffFF} T_{ob-in} P_{FF} T_{lens})^2 \cdot T_{ffSH} T_{ob-out} R_D T_{BG-18} P_{SH} Fit_{pm}} \quad (4.17)$$

Partendo dai modelli sopra riportati, è stata tracciata, a partire dai dati posseduti, la

curva dell'efficienza normalizzata in funzione di λ : nella rappresentazione in Fig. 4.16 è stata inserita anche la curva che esprime l'andamento teorico (curva continua) dell'efficienza normalizzata alla risonanza che interpola al meglio i dati rilevati (cerchi). Tale curva, con andamento proporzionale a $\text{sinc}^2\left(\frac{\Delta K \cdot L_{\text{eff}}}{2}\right)$, è ottenuta dall'equazione:

$$\eta = \left(\frac{2}{m\pi}\right)^2 \cdot \frac{8\pi^2 d_{\text{eff}}^2}{n_{\omega}^2 n_{2\omega} c \varepsilon_0 \lambda_{\omega}^2 A_{\text{eff}}} \cdot P_{\omega} L^2 \text{sinc}^2\left(\frac{\Delta k L}{2}\right) \quad (4.18)$$

facendo variare la lunghezza efficace L_{eff} che è la lunghezza della regione di *poling* in cui avviene l'effettivo accoppiamento tra radiazione a FF e domini ferroelettrici. Il valore della lunghezza efficace che consente un'interpolazione precisa dei dati misurati è $L_{\text{eff}} = 3\text{mm}$, coincidente con la lunghezza fisica della regione di *poling*.

Come riportato nel grafico di Fig. 4.16, il picco di risonanza di seconda armonica si trova in corrispondenza della lunghezza d'onda per la fondamentale $\lambda_{\text{res}} = 862.33\text{ nm}$, valore molto prossimo a quello previsto dai risultati teorici. Il *Full Width at Half Maximum*, ricavato dalle misure, è pari a $\text{FWHM} \approx 0.24\text{ nm}$. Per risolvere meglio l'andamento dell'efficienza normalizzata intorno alla condizione di risonanza, è stato eseguito successivamente un *detuning* in temperatura (T espressa in °C) selezionando $\lambda = 861.723\text{ nm}$ come lunghezza d'onda ed una tensione di guadagno pari a 700mV.

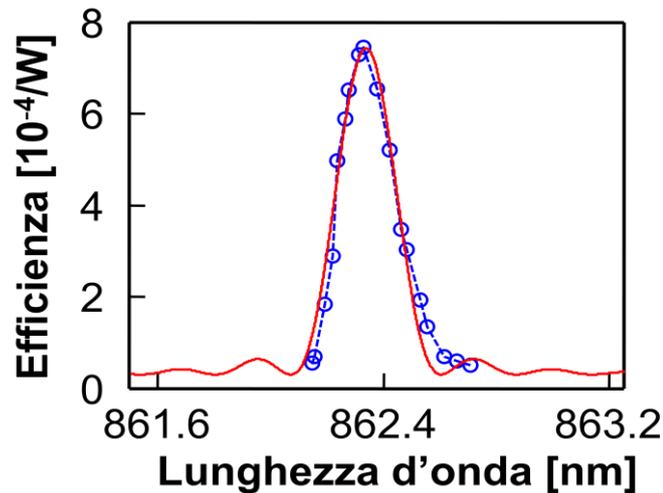


Fig. 4.16 Andamento dell'efficienza η al variare di λ : la linea continua è l'andamento teorico di η che interpola i valori misurati (cerchi).

Il valore di λ utilizzato non coincide con la lunghezza d'onda di risonanza trovata, in quanto la misura viene effettuata a temperature più basse rispetto a quella a cui il campione è stato mantenuto durante la risoluzione in lunghezza d'onda (T=195 °C):

questa scelta è giustificata dal fatto che, in tal modo, si compensa lo scostamento dovuto

$$\text{alla variazione di } T \text{ dalla } \lambda_{\text{res}}: \delta T = \frac{0,4429\lambda}{L} \left| \frac{\partial \Delta n}{\partial T} + \alpha \Delta n \right|^{-1}.$$

L'andamento dell'efficienza in funzione della temperatura è mostrato in Fig. 4.17. Anche in questo caso il valore di picco ottenuto è in accordo con i risultati teorici stimati. Dal valore dell'efficienza di conversione alla risonanza, è stato possibile stimare il coefficiente diagonale non lineare del secondo ordine d_{33} , il quale è risultato essere $d_{33} \approx 25.2$ pm/V, in perfetto accordo con i risultati presenti in letteratura per il Niobato di Litio congruente [27]. Dalla stima del d_{33} e dal valore misurato di η si è compiuta una prima valutazione del *duty cycle*, che è risultato essere del 75:25.

I risultati ottenuti su d_{33} ed L_{eff} dimostrano che la sovrapposizione tra l'onda a frequenza fondamentale e la regione di *poling*, che permette la generazione di seconda armonica, è molto buono. La differenza tra la lunghezza d'onda di risonanza teorica e quella sperimentale è dovuta alla presenza di errori nel periodo del reticolo ed all'impossibilità di valutare la dispersione degli indici di rifrazione (le equazioni di Sellmeier sono meno accurate per frequenze vicine all'UV). Si è stimato, tramite operazione di *fitting*, un valore del periodo di $\Lambda_{\text{th}} \approx 3.2$ μm , prossimo al valore reale di questo parametro: la precisione ottenuta riguarda solo la prima cifra decimale ed è tale da non poter consentire una valutazione precisa di eventuali errori.

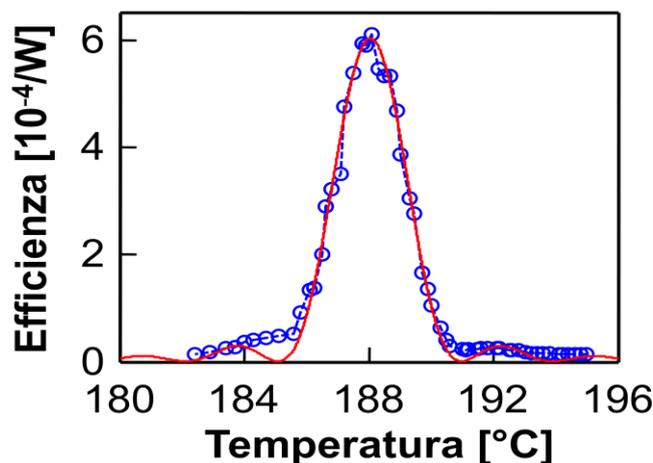


Fig. 4.17 Andamento dell'efficienza η in funzione della temperatura: la linea continua è la curva interpolante i valori misurati (cerchi).

Infine, si è determinata la curva dell'andamento della potenza a seconda armonica generata in funzione della potenza di ingresso nel *range* di lunghezze d'onda analizzato

(Fig. 4.18). Si è ottenuto un andamento quadratico del grafico in totale accordo con la teoria.

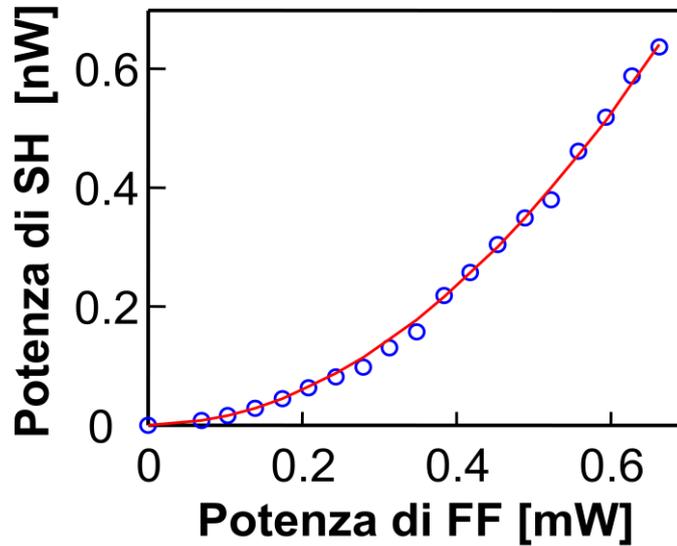


Fig. 4.18 Andamento teorico della potenza a seconda armonica generata in funzione della potenza di ingresso (FF) alla lunghezza d'onda di risonanza (curva continua) e dati sperimentali misurati (cerchi).

4.5.2 Caratterizzazione della Backward Second Harmonic Generation

Ricordiamo che la condizione necessaria perché si abbia SHG retro-propagante è:

$$\Delta k = k_2 + 2k_1 - K_m = 0 \quad (4.19)$$

Dalla quale, si ottiene:

$$\frac{4\pi}{\lambda} [n(\lambda/2) + n(\lambda)] - \frac{2m\pi}{\Lambda} = 0 \quad (4.20)$$

In conseguenza a quanto detto nel paragrafo 4.5, si è vincolati dallo spettro di emissione del laser *Ti:Zaffiro* ad osservare gli ordini di QPM: $m=29$, $m=30$ ed $m=31$ (vedi Tab. 2). Per risolvere le risonanze trovate, sono state effettuate per ognuno dei valori trovati misure di *detuning* in lunghezza d'onda ed in temperatura. Per questa configurazione il campione è stato tenuto a temperatura costante di 195 °C ed è stata impostata una tensione di accelerazione del fotomoltiplicatore di 750 mV. Dato che le potenze in gioco sono inferiori rispetto a quelle del caso della misura *forward*, si è resa necessaria l'ottimizzazione iterativa della posizione del campione: si è tarato il laser per emettere alla lunghezza d'onda di risonanza teorica attesa per l'ordine misurato e si è agito sulle micro-movimentazioni del supporto su cui si trova il campione. Osservando il valore della tensione di uscita sullo schermo del *lock-in*, si è determinata quella posizione che lo rendeva massimo. Le misure del trentunesimo ordine di risonanza non hanno

prodotto risultati interessanti in termini di efficienza di generazione di seconda armonica per cui non sono state prese in considerazione. L'attenzione è stata rivolta allo studio dei due restanti ordini. Le misure di potenza di SH ed efficienza normalizzata sono state determinate con l'ausilio del calcolatore, tenendo conto degli effetti di perdita presenti, in modo del tutto analogo al caso di configurazione *forward* (Fig. 4.15): il fascio a FF passa attraverso lo specchio diecrico (Fig. 4.19), per cui nel calcolo della potenza si deve tenere conto del coefficiente di trasmissione non unitario T_D di tale componente:

$$P_{in} = T_D T_{frFF} T_{ob-in} T_{lens} P_{FF} \quad (4.21)$$

Per quanto riguarda la SH, essa attraversa gli stessi componenti del banco ottico del caso di configurazione in avanti, ad esclusione dell'obiettivo d'uscita, che è stato rimosso. Si ricava quindi il valore dell'efficienza normalizzata nel caso *backward*:

$$\eta = \frac{P_{out}}{P_{in}^2} = \frac{2.2214 \cdot V_{mis}}{(T_{frFF} T_{ob} P_{FF} T_D T_{lens})^2 \cdot T_{frSH} R_D T_{BG-18} P_{SH}} \quad (4.22)$$

Per $m=29$ si è trovata una lunghezza d'onda di risonanza $\lambda_{res} = 977.288$ nm, in corrispondenza della quale la potenza di seconda armonica misurata valeva $P_{out-max} = 8.8$ pW, a fronte di una potenza di pompa pari a $P_{in-max} = 51.8$ mW. Si è ottenuta pertanto un valore di $\eta_{norm} = 2.63 \cdot 10^{-9}$ 1/W.

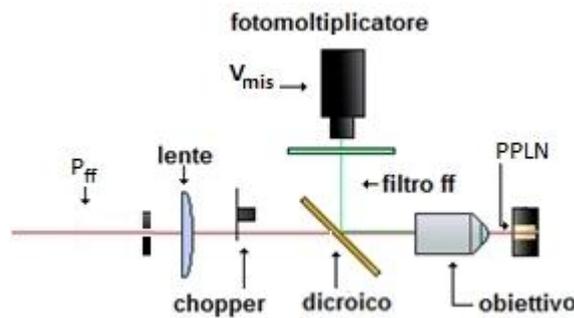


Fig. 4.19 Schema della sezione di misura in configurazione *backward*.

L'andamento dell'efficienza normalizzata al variare della lunghezza d'onda è mostrato in Fig. 4.20. Anche in questo caso si nota una differenza tra la lunghezza d'onda di risonanza teorica e quella sperimentale; questa differenza è dovuta ad un errore sulla stima del periodo e all'imprecisione sul calcolo degli indici di rifrazione. Il valore teorico del periodo che compensa tale errore è $\lambda_{th} \approx 3194$ nm, questo risultato viene estrapolato dal valore di massima efficienza.

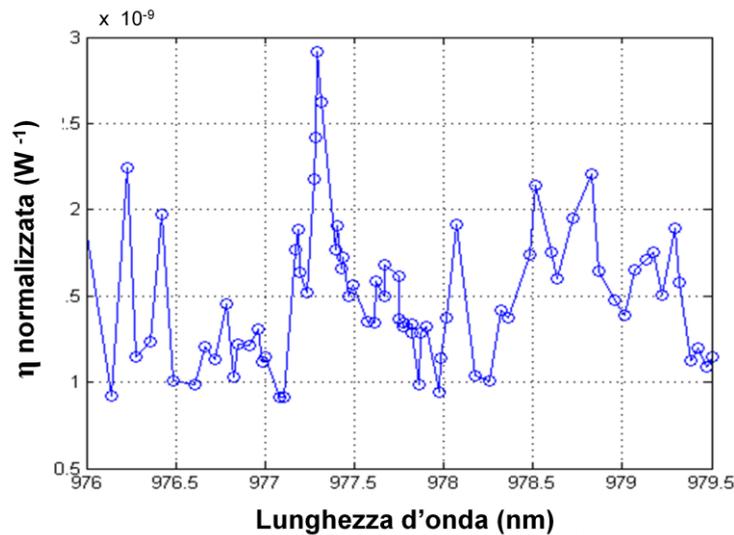


Fig. 4.20 Andamento dell'efficienza di conversione normalizzata in funzione della lunghezza d'onda per $m=29$.

Per provare che la condizione di risonanza trovata fosse effettivamente dovuta al fenomeno del *QPM backward* e non ad una riflessione della generazione *forward*, è stata effettuata nello stesso *range* di lunghezze d'onda una caratterizzazione in configurazione *forward*: come illustrato in Fig. 4.21, il confronto ha confermato che il fenomeno osservato è dovuto effettivamente alla sola risonanza *backward*.

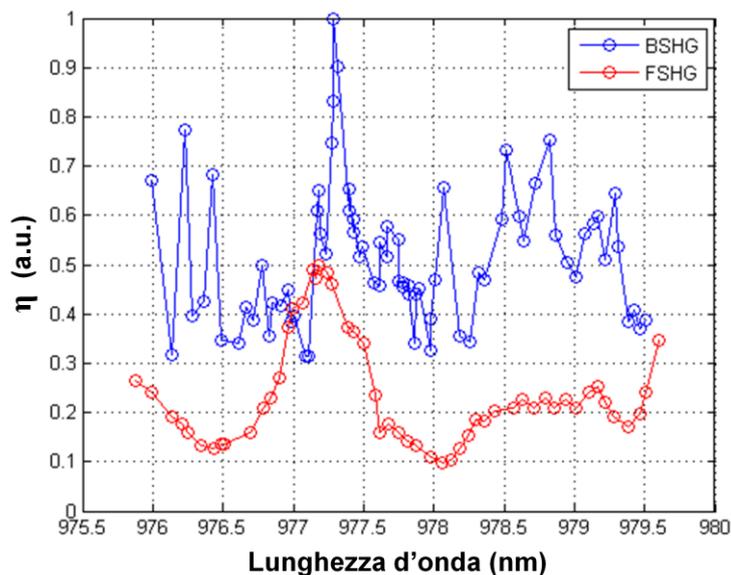


Fig. 4.21 Confronto dell'andamento delle efficienze normalizzate (a.u.) tra seconda armonica retro-propagante e co-propagante, per $m=29$.

Verificata la correttezza dell'ipotesi, si è definito l'andamento della lunghezza d'onda di risonanza: la retta mostrata in Fig. 4.22 denota come i dati rilevati sperimentalmente siano molto vicini ai risultati teorici attesi.

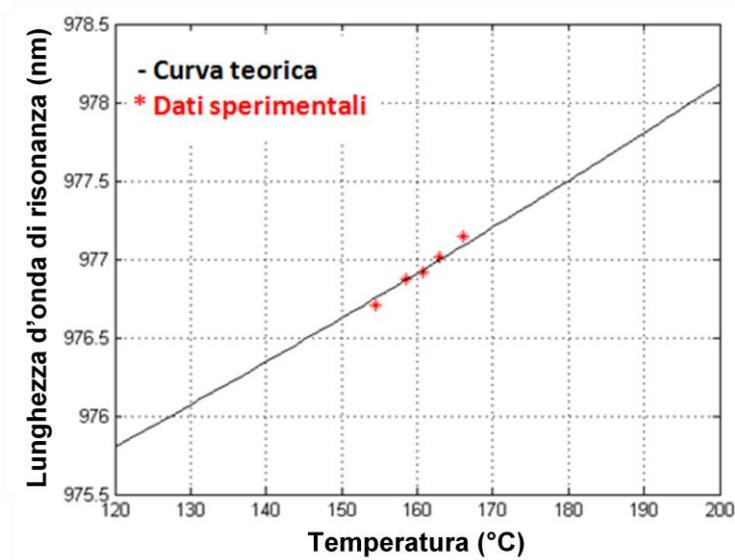


Fig. 4.22 Detuning della lunghezza d'onda di risonanza in temperatura per $m=29$: confronto misure-curva teorica.

Per l'ordine $m=30$ si è trovata una lunghezza d'onda di risonanza $\lambda_{res} = 947.55$ nm, in corrispondenza della quale la potenza di seconda armonica misurata valeva $P_{out-max} = 15$ pW, a fronte di una potenza di pompa pari a $P_{in-max} = 61$ mW, con $\eta_{norm} = 3.99 \cdot 10^{-9}$ 1/W. L'andamento dell'efficienza normalizzata in funzione della lunghezza d'onda è mostrato in Fig. 4.23. Il valore teorico di Λ stimato, per compensare l'errore nel periodo, è $\Lambda_{th} \approx 3194$ nm.

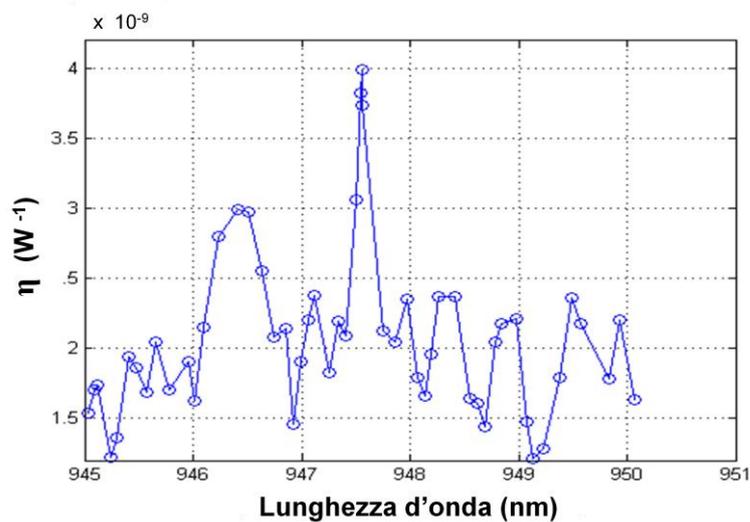


Fig. 4.23 Andamento dell'efficienza normalizzata in funzione della lunghezza d'onda per $m=30$.

Nel caso di BSHG si sono ottenute delle misure del periodo più precise rispetto a quelle effettuate al caso *forward* per entrambi gli ordini di risonanza studiati. La precisione raggiunta è dell'ordine del nanometro (due ordini di grandezza migliore rispetto a quanto visto con la caratterizzazione in avanti).

Anche per il trentesimo ordine si è settato il banco in configurazione *forward* ed è stata effettuata la misura di risonanza in avanti per confermare l'effettiva generazione di seconda armonica *backward* (Fig. 4.24). Il confronto tra le efficienze normalizzate (in a.u.) conferma anche per il trentesimo ordine la corretta interpretazione della risonanza misurata. I dati rilevati evidenziano come il trentesimo ordine di risonanza presenti un'efficienza di conversione normalizzata più alta rispetto agli altri due ordini osservati: al fine di risolvere al meglio tale ordine si è valutato, quindi, l'andamento in temperatura dell'efficienza (Fig. 4.25(a)).

Tale misura consiste nell'osservare la variazione dell'efficienza di conversione normalizzata all'interno di un intervallo di circa 12 gradi centigradi. La lunghezza d'onda è stata tenuta fissa al valore di $\lambda = 947.053$ nm. Così come nel caso *forward*, la lunghezza d'onda utilizzata non coincide con la lunghezza d'onda di risonanza in quanto la misura viene effettuata a temperature più basse rispetto a quella della misura di efficienza in λ ($T=195$ °C), compensando così lo scostamento dovuto alla variazione di T dalla λ_{res} .

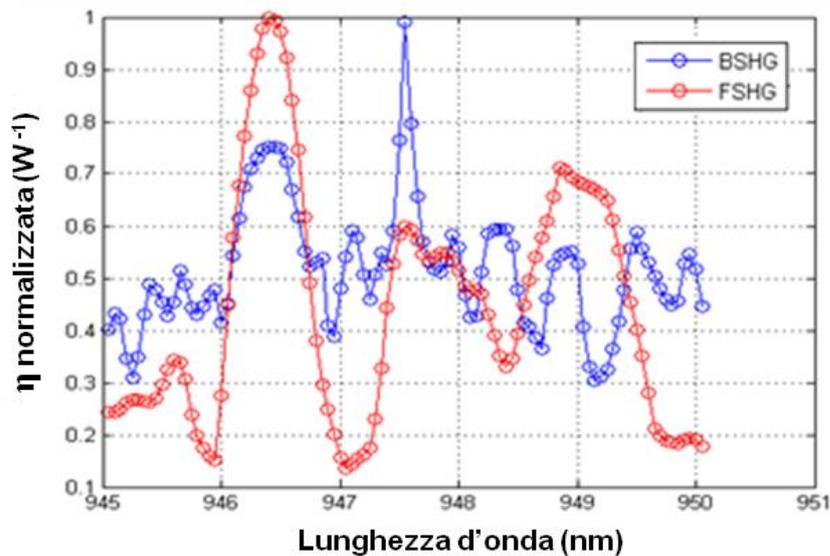


Fig. 4.24 Confronto dell'andamento delle efficienze normalizzate (a.u.) tra seconda armonica retro-propagante e co-propagante, per $m=30$.

Anche il *detuning* in temperatura della lunghezza d'onda di risonanza ha dimostrato una stretta correlazione tra risultati teorici attesi (linea retta in Fig. 4.25(b)) e dati sperimentali misurati (punti in Fig. 4.25(b)).

In Fig. 4.26 si mostra l'andamento della potenza di BSHG in funzione della potenza di pompa FF: l'andamento quasi quadratico è in pieno accordo col modello teorico.

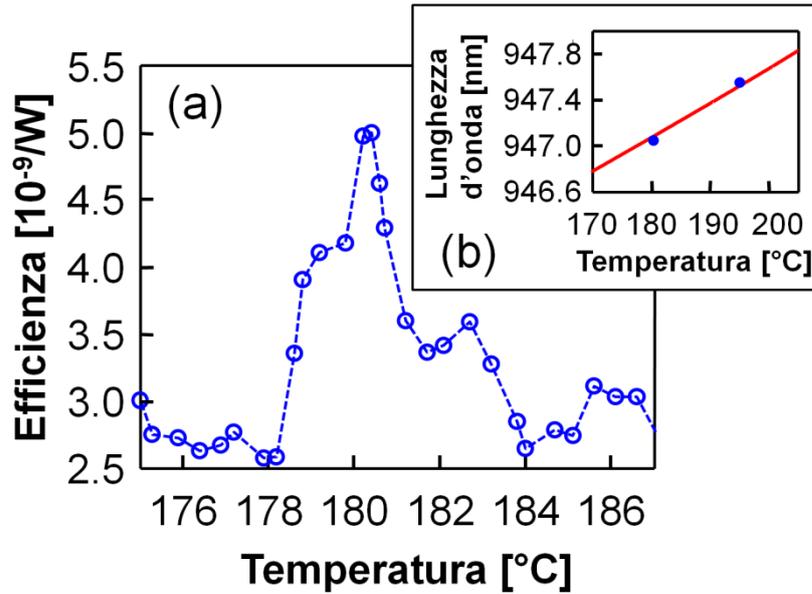


Fig. 4.25: (a) Andamento dell'efficienza di conversione normalizzata con la temperatura; (b) variazione della lunghezza d'onda di risonanza con la temperatura (retta) e dati misurati (punti) per $m=30$.

Per la stima del *Full Width at Half Maximum*, non si è potuto applicare lo stesso metodo utilizzato nel caso co-propagante, in quanto la larghezza di riga del laser è tale da non permettere di risolverne il valore.

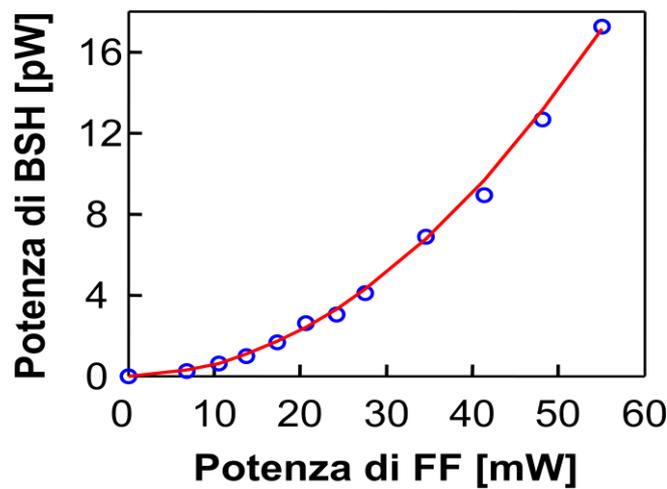


Fig. 4.26 Stima della non linearità: confronto tra andamento della P_{SH} al variare della P_{FF} in condizioni di risonanza (curva), dati sperimentali misurati (cerchi).

Infatti, la tolleranza ad un errore nel periodo, in caso di generazione *backward*, è minore rispetto al caso *forward*: si è osservato come una variazione del valore di Λ di appena 0.23 nm si traduce in uno slittamento della lunghezza d'onda di risonanza di 0.065 nm, quasi uguale alla larghezza di riga di emissione del *Ti:Zaffiro* (0.075 nm).

Per ottenere la stessa variazione della λ nel caso di generazione di seconda armonica in

avanti, si deve verificare una variazione del periodo di circa 0.85 nm. L'eccessiva larghezza di riga della curva di efficienza in prossimità del picco non ha permesso di stimare il FWHM. Per la determinazione della lunghezza efficace L_{eff} nel caso *backward* sono state calcolate le curve teoriche dell'efficienza normalizzata in funzione di diversi valori di questa grandezza.

Considerando prima lo stesso valore trovato per la SH *forward*, ovvero $L_{eff} = 3$ mm, si è ottenuta la curva indicata in Fig. 4.27 (curva tratteggiata). Sostituendo a L_{eff} valori via via più piccoli, si è infine ottenuta la curva di η , rappresentata in Fig. 4.27 con tratto continuo, corrispondente al valore $L_{eff} = 0.5$ mm.

Si può notare come per valori di lunghezza d'onda sufficientemente vicini al picco di risonanza di entrambi gli ordini misurati, i dati sperimentali (rappresentati dai cerchi in Fig. 4.27) si trovino esattamente o risultino prossimi alla curva teorica dell'efficienza normalizzata precedentemente determinata e che li interpola al meglio.

Per il trentesimo ordine di BSHG si è assunta una lunghezza efficace $L_{eff} = 0,5$ mm nonostante rappresenti solo il 16.7% della lunghezza fisica effettiva della zona con *poling*.

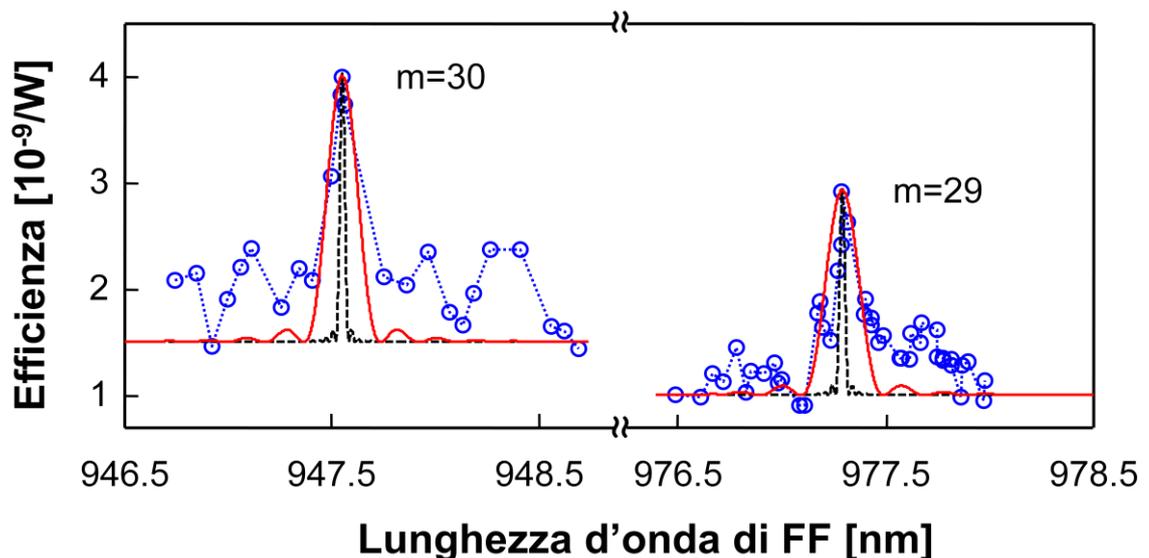


Fig. 4.27 Efficienze normalizzate per $m=30$ e $m=29$: i dati sperimentali (cerchi) sono confrontati con le curve di efficienza calcolate per $L_{eff}=3$ mm (curva tratteggiata) ed $L_{eff}=0,5$ mm (curva continua).

L'efficienza della seconda armonica dipende fortemente dalle variazioni del *duty cycle* del periodo (Fig. 4.28) in particolar modo quando si studiano modi di risonanza così elevati. Il valore del *duty cycle* è stato stimato prossimo al rapporto 74.8 : 25.2.

Analogamente a quanto avvenuto per la stima del periodo, la stima del *duty cycle* ha una precisione maggiore di un ordine di grandezza rispetto a quella ottenuta con la caratterizzazione in avanti.

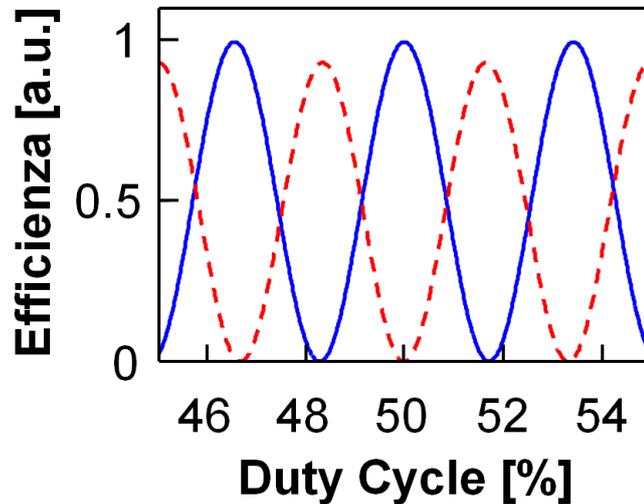


Fig. 4.28 Variazione delle efficienze normalizzate in funzione del *duty cycle* per $m=29$ (linea continua) ed $m=30$ (linea tratteggiata), valutate in corrispondenza delle rispettive lunghezze d'onda di risonanza.

Questo è dovuto al fatto che, in condizioni di risonanza, si ha una banda più stretta. Infine, dal valore del coefficiente d_{33} , trovato tramite la caratterizzazione *forward*, e dall'efficienza, ricavata con le misure *backward*, si è estrapolata la sezione trasversale efficace di accoppiamento fascio-regione con reticolo di *poling* che è risultata pari a circa il 7.5% della sezione A del fascio di pompa (con $A = \pi w_0$).

4.6 Caratterizzazione del dispositivo con una sorgente pulsata al picosecondo

Il dispositivo è stato anche caratterizzato con una sorgente pulsata al picosecondo. Nel seguente paragrafo riporto i risultati teorici e sperimentali di questo lavoro. Per effettuare le misure sperimentali sono stati allestiti due differenti *set-up*: uno per la caratterizzazione *forward* (Fig. 4.29) ed uno per la caratterizzazione *backward* (Fig. 4.30). Negli schemi riportati in basso descrivo le due differenti disposizioni utilizzate per le misure: per la caratterizzazione *backward* è possibile notare come non sia necessario alcun obiettivo d'uscita per la misura. Uno specchio diecrico è stato impiegato per separare il fascio di pompa dalla seconda armonica retro-propagante. La faccetta d'uscita del campione è stata opportunamente tagliata in diagonale al fine di

separare la seconda armonica che si propaga in avanti, dovuta al *random Quasi-Phase-Matching* (abbreviato in rQPM, di cui parlerò diffusamente nel capitolo 5), dalla BSHG.

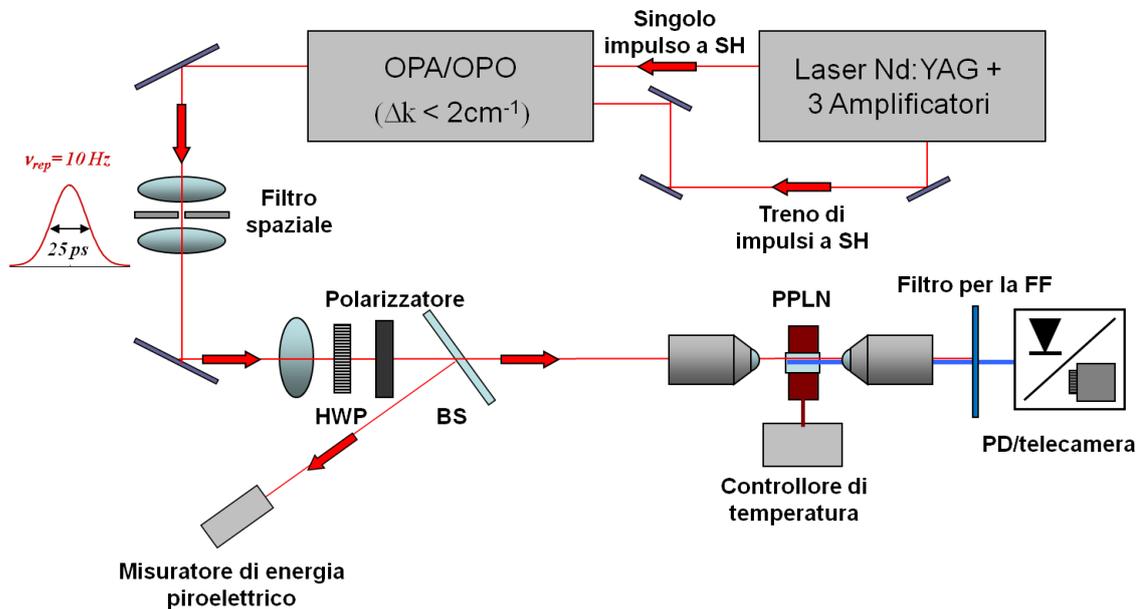


Fig. 4.29 Set-up per la caratterizzazione del dispositivo in configurazione *forward*.

Si è impiegata una sorgente che operava con una frequenza di ripetizione di 10 Hz e che produceva impulsi nel vicino infrarosso della durata di 25 picosecondi.

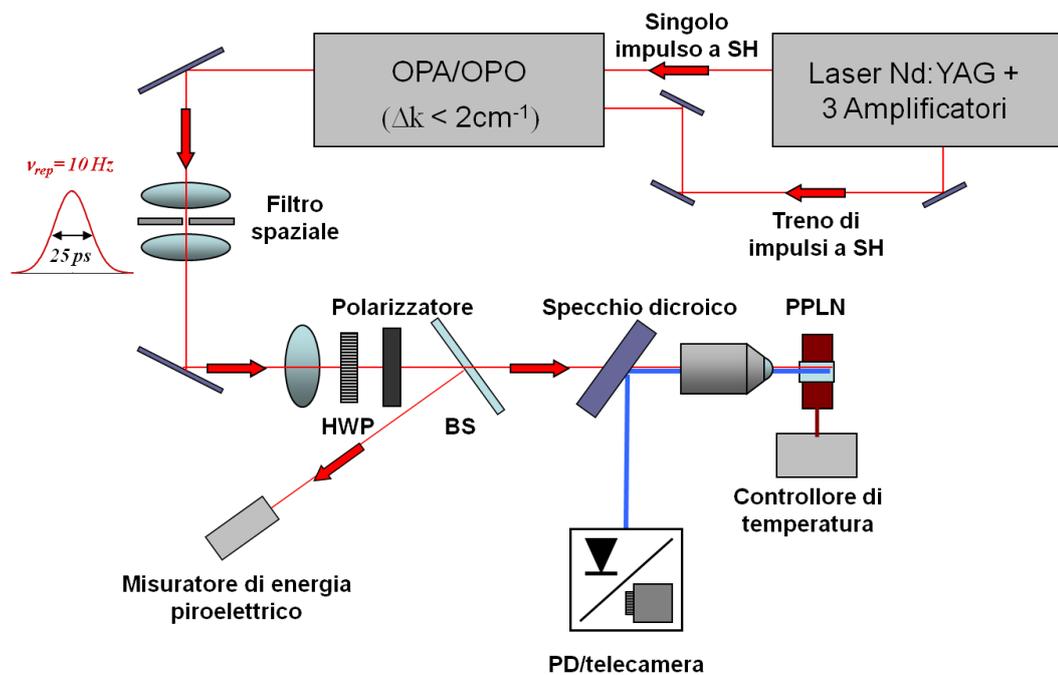


Fig. 4.30 Set-up per la caratterizzazione del dispositivo in configurazione *backward*.

La sorgente data era costituita da un generatore ottico parametrico alimentato da un oscillatore accordabile e da una pompa al Neodimio:YAG alla lunghezza d'onda di 1064 nm amplificato e duplicato in frequenza. Un elemento dispersivo (reticolo) introdotto all'interno di una cavità permette di ridurre efficacemente lo spettro dell'impulso a meno di 2 cm^{-1} nell'intervallo di accordabilità delle lunghezze d'onda comprese nel *range* tra 1.1 e 1.8 μm . Il fascio è stato filtrato spazialmente e collimato. In particolare, il modo TEM_{00} viene focalizzato al centro del reticolo di *poling* del campione: il fascio ha una vita di 28-29 μm . I profili d'intensità della frequenza fondamentale e della seconda armonica in uscita sono stati ripresi rispettivamente da una telecamera con tubo *Vidicon* e da una telecamera con sensore CCD al Silicio. L'energia e la potenza di picco sono stati rilevati e misurati con fotodiodi al Germanio e al Silicio e da un integratore *box* a doppio ingresso. La vita della FF in uscita era di 68 μm come è possibile stimare dalla Fig. 4.31(a), la SH che si è generata in avanti all'interno del campione via *random Quasi-Phase-Matching* è stata raccolta alla faccetta d'uscita ed il profilo viene mostrato in Fig. 4.31(b).

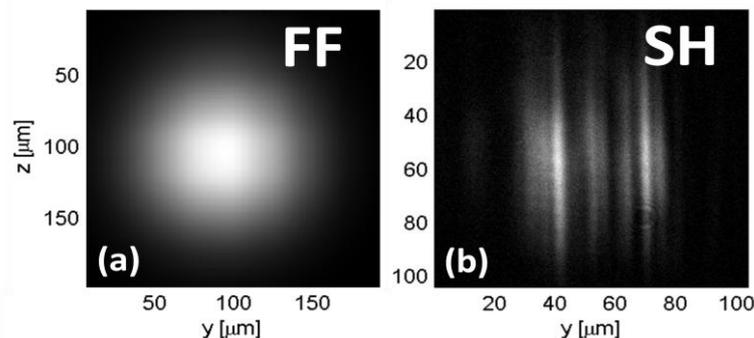


Fig. 4.31 Profili di intensità della (a) FF e (b) SH alla faccetta d'uscita del campione.

Si sono risolte spettralmente le risonanze della BSHG dovute al QPM per il 16° , 17° e 18° ordine variando la lunghezza d'onda della fondamentale nell'intervallo di valori compresi tra i 1500 ed i 1750 nm: le lunghezze d'onda di risonanza riscontrate si trovavano in corrispondenza dei valori $\lambda = 1722 \text{ nm}$ per $m=16$, $\lambda = 1623.9 \text{ nm}$ per $m=17$ e $\lambda = 1535.1 \text{ nm}$ per $m=18$. Il campione esaminato è stato mantenuto a temperatura costante per mezzo di una cella *Peltier*.

I dati sperimentali vengono riportati nei grafici di Fig. 4.32: i cerchi blu rappresentano i punti rilevati sperimentalmente mentre le linee continue rosse sono i risultati ottenuti mediante le simulazioni teoriche. Nei grafici riporto, per completezza,

anche la temperatura di lavoro del dispositivo e la potenza di picco della fondamentale in ingresso al dispositivo. Come è possibile dedurre dalla lettura dei diagrammi, i dati sperimentali e quelli teorici sono in buon accordo tra di loro. L'analisi dei risultati raccolti e rappresentati nelle figure offre interessanti considerazioni di carattere scientifico. La presenza di frequenze di risonanza dovute a QPM sia per ordini pari che per ordini dispari è una chiara prova, anche in questo caso, che il *duty cycle* del reticolo di poling non è 50:50 (in questo caso, infatti, avremmo soltanto la presenza di ordini dispari); la massima efficienza di conversione rilevata è quella in corrispondenza al 16° ordine il cui valore normalizzato è $\eta=3.8 \cdot 10^{-7} \text{ W}^{-1}$. Questo risultato, ottenuto durante la caratterizzazione del dispositivo presso il laboratorio del NooEL diretto dal Prof. Assanto dell'Università di Roma Tre, con il quale manteniamo un'intensa collaborazione, è finora il più alto riscontrato in letteratura [8,28]. Riportiamo l'andamento dell'energia della BSH per il 16° ordine in funzione dell'energia della FF nel diagramma di Fig. 4.33; come è possibile notare il suo andamento è quadratico: i punti sperimentali sono chiaramente interpolati dalla parabola tracciata in rosso.

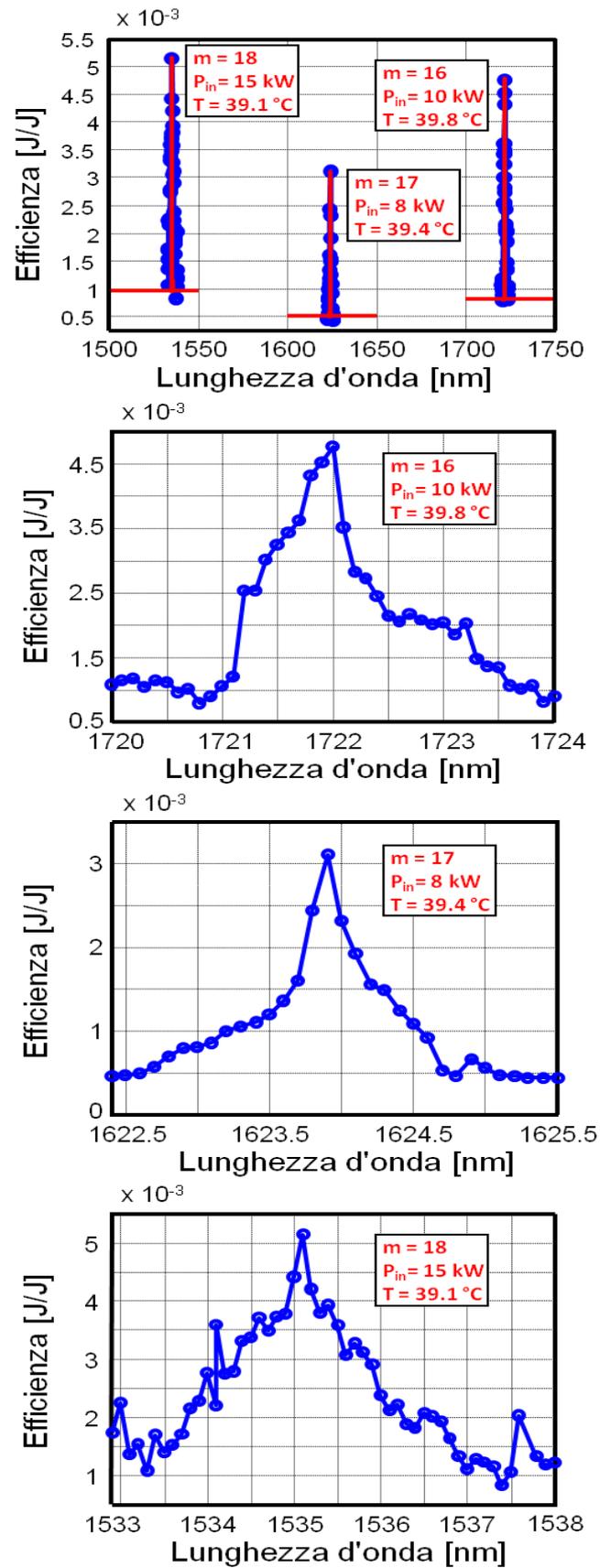


Fig. 4.32 Misure di BSHG pulsata per differenti ordini di risonanza.

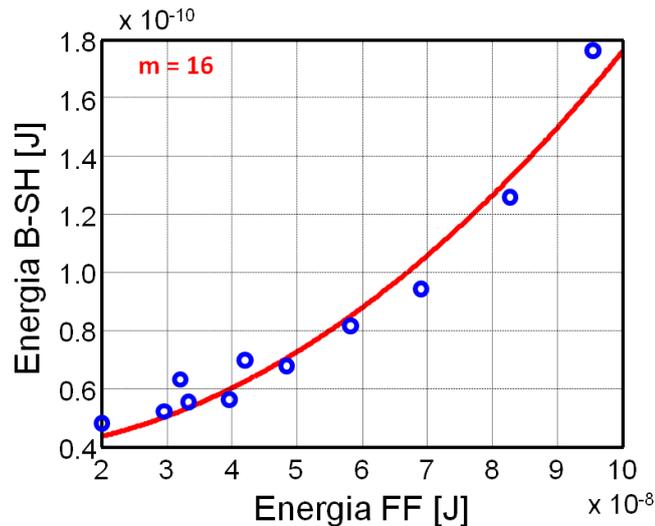


Fig. 4.33 Grafico dell'energia di SH retro-propagante in funzione dell'energia di FF per il 16° ordine.

4.7 Conclusioni

L'attività sperimentale finora condotta ha permesso la caratterizzazione della seconda armonica in configurazione *backward* di un campione in Niobato di Litio, realizzato mediante tecnica del *Periodically Poled of Lithium Niobate* con un periodo $A=3.2 \mu\text{m}$. Gli aspetti tecnologici sono stati sviluppati interamente nel Laboratorio di Optoelettronica e di Microlitografia del Centro per la Ricerca Elettronica in Sicilia di Monreale (Pa).

L'attività di misura ha messo in luce come i risultati ottenuti fossero in accordo con la teoria della BSHG e con gli esperimenti già compiuti in passato sullo stesso fenomeno. Utilizzando il laser Ti:Zaffiro ad onda continua (cw), accordabile in lunghezza d'onda, sono stati eccitati ed analizzati il 29° ed il 30° ordine. Le lunghezze d'onda di risonanza trovate erano rispettivamente $\lambda = 977.288 \text{ nm}$ per $m=29$ e $\lambda = 947.554 \text{ nm}$ per $m=30$.

Le misure risultavano ancor più avvalorate dal confronto con i dati raccolti nella caratterizzazione in configurazione *forward* del campione e dai dati ottenuti nelle misure di *detuning* in temperatura.

Le misure condotte impiegando una sorgente impulsata al Neodimio:YAG hanno permesso l'eccitazione di ordini di risonanza inferiori: il 16°, il 17° ed il 18° ordine.

Le risonanze sono state registrate in corrispondenza di $\lambda = 1722 \text{ nm}$, $\lambda = 1623.9 \text{ nm}$ e , $\lambda = 1535.1$, rispettivamente.

La presenza contemporanea di ordini di risonanza pari e dispari, riscontrate sia durante la caratterizzazione in cw sia durante la caratterizzazione impulsata, con lunghezze

d'onda d'eccitazione ricadenti in intervalli diversi, è causata da un valore del *duty cycle* del periodo non coincidente con quello ideale avente rapporto 50 : 50 che si era progettato di implementare. Inoltre, la tolleranza su tale parametro è risultata molto piccola, in quanto si è stimato che una piccola variazione percentuale di esso ($\approx 1,7\%$) dal valore ideale avrebbe potuto causare la scomparsa della risonanza al 29-esimo ordine, esaltando quella al 30-esimo. In termini di dimensioni del dominio questa variazione percentuale corrisponde ad uno spostamento della parete del dominio di circa 54 nm a fronte di una lunghezza di coerenza nominale di quest'ultimo di 1600 nm.

L'incertezza sulla variazione degli indici di rifrazione con la lunghezza d'onda (perdita di accuratezza delle formule di *Sellmeier* alle alte frequenze) e l'errore nel periodo si sono tradotti, pertanto, in una leggera differenza tra le lunghezze d'onda di risonanza *backward* teoriche e quelle misurate sperimentalmente.

Il rumore fuori risonanza riscontrato nelle misure è dovuto principalmente a componenti di *random Quasi-Phase-Matching* e si traduce in un dislivello tra le due curve come in quelle riprodotte in Fig. 4.27.

Nel caso di forzante ad onda continua, la potenza di pompa limitata, responsabile di una bassa efficienza di conversione, ha inficiato la ricerca di una risonanza *backward* per il 31-esimo ordine, le cui misure sono state affette da un elevato rumore di *rQPM* che ha impedito la corretta osservazione del fenomeno.

Nel caso della caratterizzazione con laser al Neodimio:YAG la massima efficienza di conversione rilevata è stata quella in corrispondenza al 16° ordine il cui valore normalizzato era $\eta=3.8 \cdot 10^{-7} \text{ W}^{-1}$. Questo risultato rimane a tutt'oggi il più alto riscontrato in letteratura [8,28].

La minore tolleranza del periodo dei domini nella BSHG, unita alla ristretta larghezza di riga alla risonanza, permettono di utilizzare tale fenomeno anche come tecnica altamente precisa e non invasiva per la determinazione delle fluttuazioni del periodo Λ del reticolo, intorno al valore previsto in fase di progettazione: è possibile determinare lo scostamento del *duty cycle* dal valore ideale (50%) e, dunque, la lunghezza effettiva di interazione tra radiazione di pompa e regione polata. E', inoltre, possibile ricavare una stima accurata dei parametri costruttivi e della qualità complessiva del dispositivo analizzato.

4.8 Riferimenti bibliografici

- [1] S. E. Harris, “Proposed backward wave oscillation in the infrared,” *Applied Physics Letters*, Vol. 9, no. 3, pp. 114-116, 1966.
- [2] M. Matsumoto and K. Tanaka, “Quasi-phase-matched second-harmonic generation by backward propagating interaction,” *IEEE Journal of Quantum Electronics*, Vol. 31, no. 4, pp. 700–705, 1995.
- [3] Y. J. Ding, J. U. Kang, and J. B. Khurgin, “Theory of backward second-harmonic and third-harmonic generation using laser pulses in quasi-phase-matched second-order nonlinear medium,” *IEEE Journal of Quantum Electronics*, Vol. 34, no. 6, pp. 966-974, 1998.
- [4] J. A. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing, and P. S. Pershan, “Interactions between Light Waves in a Nonlinear Dielectric,” *Physical Review*, Vol. 127, no. 6, pp. 1918–1939, 1962.
- [5] M. M. Fejer, G. A. Magel, D. H. Jundt, and R. L. Byer, “Quasi-phase-matched second harmonic generation: tuning and tolerances,” *IEEE Journal of Quantum Electronics*, Vol. 28, no. 11, pp. 2631–2654, 1992.
- [6] S. Janz, C. Fernando, H. Dai, F. Chatenoud, M. Dion, and R. Normandin, “Quasi-phase-matched second-harmonic generation in reflection from $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ heterostructures,” *Optics Letters*, Vol. 18, no. 8, pp. 589-591, 1993.
- [7] J. U. Kang, Y. J. Ding, W. K. Burns, and J. S. Melinger, “Backward second-harmonic generation in periodically poled bulk LiNbO_3 ,” *Optics Letters*, Vol. 22, no. 12, pp. 862-864, 1997.
- [8] X. Gu, R. Y. Korotkov, Y. J. Ding, J. U. Kang, and J. B. Khurgin, “Backward second-harmonic generation in periodically poled lithium niobate,” *Journal of the Optical Society of America B*, Vol. 15, no. 5, pp. 1561-1566, 1998.
- [9] X. Gu, M. Makarov, Y. J. Ding, J. B. Khurgin, and W. P. Risk, “Backward second-harmonic and third-harmonic generation in a periodically poled potassium titanyl phosphate waveguide,” *Optics Letters*, Vol. 24, no. 3, pp. 127-129, 1999.
- [10] X. Mu, I. B. Zotova, Y. J. Ding, and W. P. Risk, “Backward second-harmonic generation in submicron-period ion-exchanged KTiOPO_4 waveguide,” *Optics Communications*, Vol. 181, no. 1-3, pp. 153-159, 2000.
- [11] C. Conti, G. Assanto, and S. Trillo, “Cavityless oscillation through backward quasi-phase-matched second-harmonic generation,” *Optics Letters*, Vol. 24, no. 16, pp. 1139-1141, 1999.
- [12] C. Conti, S. Trillo, and G. Assanto, “Energy Localization in Photonic Crystals of a Purely Nonlinear Origin,” *Physical Review Letters*, Vol. 85, no. 12, pp. 2502–2505, 2000.
- [13] C. Canalias, V. Pasiskevicius, M. Fokine, and F. Laurell, “Backward quasi-phase-matched second-harmonic generation in submicrometer periodically poled flux-

- grown KTiOPO_4 ,” *Applied Physics Letters*, Vol. 86, no. 18, Article ID 181105, 2005.
- [14] S. Stivala, A. C. Busacca, L. Curcio, R. L. Oliveri, S. Riva-Sanseverino, and G. Assanto, “Continuous-wave backward frequency doubling in periodically poled lithium niobate,” *Applied Physics Letters*, Vol. 96, Article ID 111110, 2010.
- [15] C. Canalias and V. Pasiskevicius, “Mirrorless optical parametric oscillator,” *Nature Photonics*, Vol. 1, pp. 459-462, 2007.
- [16] D. H. Jundt, M. M. Fejer, and R.L. Byer, “Optical properties of lithium-rich lithium niobate fabricated by vapor transport equilibration,” *IEEE Journal of Quantum Electronics*, vol. 26, no. 1, pp. 135-138, 1990.
- [17] D. H. Jundt, “Temperature-dependent Sellmeier equation for the index of refraction, n_e , in congruent lithium niobate,” *Optics Letters*, vol. 22, no. 20, pp. 1553-1555, 1997.
- [18] Crystal Technology Inc., “Periodically Poled Lithium Niobate Crystals,” http://www.crystaltechnology.com/docs/PPLN_DS.pdf
- [19] J. L. Jackel, C. E. Rice, and J. J. Veselka, “Proton exchange for high-index waveguides in LiNbO_3 ,” *Applied Physics Letters*, Vol. 41, no. 7, pp. 607-608, 1982.
- [20] C. Canali, A. Carnera, G. Della Mea, P. Mazzoldi, S. M. Al Shukri, A. C. G. Nutt, and R. M. De La Rue, “Structural characterization of proton exchanged LiNbO_3 optical waveguides,” *Journal of Applied Physics*, Vol. 59, no. 8, pp. 2643-2469, 1986.
- [21] MICROPOSIT S1800 PHOTO RESIST UNDYED SERIES, “Figure 1. Spin Speed Curves”, *Shipley Datasheet*, p. 2.
- [22] S. M. Sze, “Dispositivi a semiconduttore: comportamento fisico e tecnologia,” Hoepli, 1995.
- [23] 3900S CW Tunable Ti:sapphire Laser Datasheet, *Spectra Physics*.
- [24] <http://digitalcatalog.edmundoptics.com/guide/EdmundOpticsCatalog/119.asp#>, Edmund Optics Online Catalog, p.119.
- [25] PMM01 Amplified Photomultiplier, Operating Manual, *Thorlabs*.
- [26] <http://www.thorlabs.de/thorProduct.cfm?partNumber=PMM01>, Operating Manual *Thorlabs*, PMM01 Amplified Photomultiplier.
- [27] I. Shoji, T. Kondo and R. Ito, “Second-order nonlinear susceptibilities of various dielectric and semiconductor materials,” *Optical and Quantum Electronics*, Vol. 34, pp. 797-833, 2002.
- [28] J. U. Kang, Y. J. Ding, W. K. Burns and J. S. Melinger, “Backward second-harmonic generation in periodically poled bulk LiNbO_3 ,” *Optics Letters*, Vol. 22, no. 12, pp. 862-864, 1997.

Costruzione e caratterizzazione di un dispositivo in Tantalato di Litio per generazione di seconda armonica mediante *random Quasi-Phase-Matching*

5.1 Introduzione

In questo capitolo riporterò i risultati conseguiti nello studio di un nuovo fenomeno fisico: il *random Quasi-Phase-Matching*. Discuterò delle osservazioni sperimentali ottenute in *bulk* ed in guida d'onda planare [1], misure realizzate grazie alla fabbricazione di un campione di Tantalato di Litio opportunamente progettato per mettere in risalto le caratteristiche peculiari di questo interessantissimo fenomeno le cui ricadute tecnologiche ed economiche sono di sicura rilevanza. Il Gruppo di Ricerca coordinato dal Prof. Busacca, di cui anch'io faccio parte, aveva già scoperto questo fenomeno, presso i laboratori del CRES, durante la caratterizzazione di un campione di Tantalato di Litio con *poling* periodico di 2 μm .

I risultati dello studio condotto su questo primo dispositivo, così come un'attenta analisi del fenomeno ed un sua modellizzazione teorica, sono stati pubblicati dagli autori nei riferimenti [2,3]. In questa parte della tesi, si descriverà il fenomeno, cercando di darne una spiegazione chiara e, per quanto possibile, dettagliata alla luce della caratterizzazione del nuovo dispositivo costruito. Riporterò le misure più significative realizzate e fornirò un dettagliato commento all'analisi di queste ultime.

5.2 Introduzione al *random Quasi-Phase-Matching*

Fino ad oggi, si è sempre creduto che, per avere dei dispositivi ottici non lineari efficienti, fossero indispensabili dei cristalli puri e perfettamente regolari. Ora,

sorprendentemente, si è dimostrato che i materiali aventi una matrice reticolare “disordinata” e non perfettamente cristallina, possono effettivamente funzionare meglio. Questo risultato rappresenta un passo significativo non soltanto verso l’ingegnerizzazione delle applicazioni ottiche non lineari su larga scala, ma anche una forte spinta verso l’introduzione e la diffusione dell’ottica integrata nella vita di tutti i giorni [4]. E’ risaputo che i convertitori ottici di frequenza sono ampiamente utilizzati per la generazione di luce coerente a quelle frequenze attualmente non disponibili mediante i laser in commercio. I dispositivi *standard* possono avere alta efficienza ma impiegano singoli cristalli non lineari, puri, di considerevoli dimensioni e, quindi, costosi. Baudrier-Raybaut *et al.* [5] hanno mostrato che conversione ottica efficiente di frequenza può essere ottenuta attraverso l’impiego di materiali policristallini dal reticolo disordinato, fabbricabili, contrariamente ai precedenti, più semplicemente ed affrontando costi minori, ad esempio, utilizzando cristalli multidominio di SBN [6,7] o di ZnSe policristallino [5].

In verità, la possibilità che strutture randomiche potessero essere utilizzate per fabbricare convertitori di frequenza efficienti era, già, stata considerata in passato [8,9], ma, ora, il *random QPM* introdotto da Baudrier-Raybaut *et al.* (e studiato teoricamente come variante ‘stocastica’ del QPM da Morozov e Chirkin [10]) sembra essere un’alternativa competitiva e concreta rispetto agli approcci tradizionali. Questi autori hanno utilizzato un campione policristallino disordinato, costituito da un gran numero di domini a singolo cristallo con orientamenti, forme e dimensioni casuali.

Le onde a frequenza doppia, generate dai singoli domini, sono caratterizzate da fasi casuali e non interferiscono fra loro né in maniera distruttiva, né in maniera costruttiva. L’intensità complessiva dell’onda generata è data dalla somma dei singoli contributi provenienti dai singoli domini e cresce linearmente al crescere del numero dei domini o della lunghezza del campione (Fig. 5.1(c)). Comunque, è importante sottolineare che il coefficiente non lineare di tutte queste strutture non è totalmente casuale: vi sono, infatti, parti più piccole del mezzo (come, ad esempio, la dimensione del dominio del SBN, o la dimensione del grano del ZnSe policristallino) all’interno delle quali il valore del coefficiente non lineare è omogeneo. Mentre, se si considera un porzione più estesa, i valori diventano disomogenei.

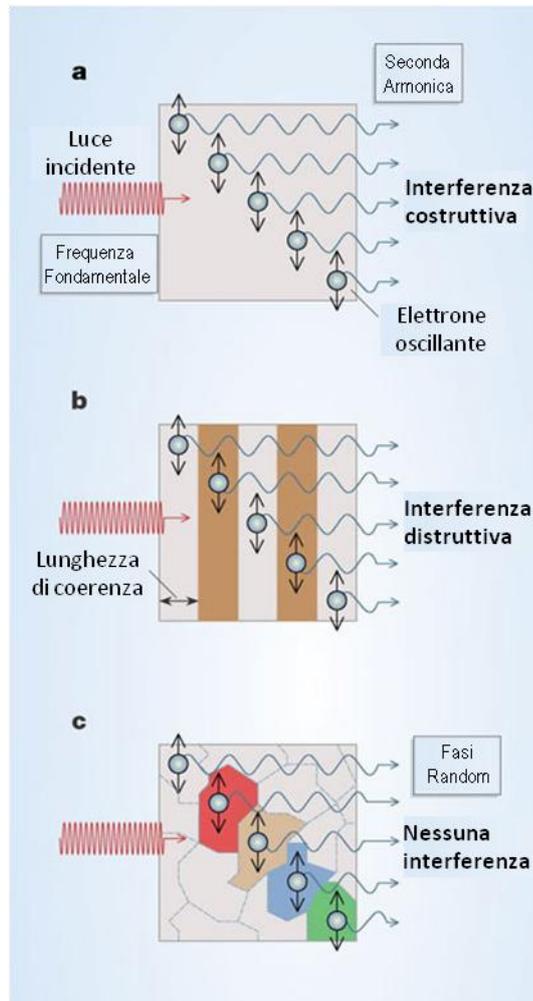


Fig. 5.1 (a) Si ha generazione di Seconda Armonica (SH), in un materiale, quando la Fondamentale e la SH viaggiano alla stessa velocità; (b) nella maggior parte dei materiali, tuttavia, le due onde non viaggiano alla stessa velocità e l'accordo di fase è assente; (c) Baudrier-Raybaut *et al.* [5] mostrano che il *phase matching* casuale può essere raggiunto in un materiale policristallino con una matrice reticolare disordinata. Singoli domini del cristallo (evidenziati con colori diversi) generano onde con fasi casuali, precludendo qualsiasi effetto di interferenza. L'intensità risultante è la somma di intensità dovuta ai singoli domini e, di conseguenza, cresce linearmente con il numero di domini e quindi con la lunghezza del campione. (dal Rif. [4])

L'intensità luminosa totale generata non linearmente include principalmente il contributo separato di ognuna di queste sezioni ordinate [11]. Pertanto, i parametri della parte ordinata nel cristallo "disordinato" determinano l'efficienza e la banda del dispositivo. Per esempio, è stato dimostrato che nel caso in cui la sezione ordinata è omogenea, la dimensione ottimale è esattamente la lunghezza di coerenza del processo non lineare [5], che è, in genere, di soli pochi micrometri. Poiché questa sezione è molto breve, l'onda generata in ogni sezione ordinata è piuttosto debole e l'efficienza complessiva del dispositivo a matrice reticolare casuale è bassa. Inoltre, l'accettanza

spettrale di questa struttura è determinata dalla lunghezza delle sezioni ordinate e non può essere ottimizzata in modo indipendente.

Si può, in conclusione, dire che il *random QPM* non impiega singoli cristalli di grandi dimensioni, non richiede un attento allineamento della configurazione ottica, né quell'alta precisione che compete all'ingegnerizzazione dei campioni micro-strutturati. Questa nuova tecnica ben si attaglia ai semiconduttori isotropi (come ZnSe, GaAs e GaP), che sono tecnologicamente materiali importanti ed industrialmente maturi. Quindi, un convertitore di frequenza ottica che si avvale di questa tecnica dovrebbe essere sostanzialmente più economico e più facile da usare rispetto ai dispositivi precedentemente disponibili. Ciò potrebbe rendere la tecnologia dell'ottica non lineare accessibile ad un numero grande di utenti. I campioni "disordinati" utilizzati da Baudrier-Raybaut *et al.* [5] hanno perdite molto basse per *scattering* (dunque quasi trasparenti). La generazione di seconda armonica è stata riportata anche in semiconduttori porosi (GaP), con forte *scattering* (e quindi opachi) dimostrando, anche in questo caso, che il disordine aumenta l'efficienza di conversione [12]. Inoltre, negli ultimi anni è stato dimostrato che i cristalli non lineari disordinati [5,6] hanno alcuni vantaggi rispetto ai cristalli ordinati e, in particolare, presentano una tolleranza molto maggiore del disaccordo di fase rispetto alla variazione della lunghezza d'onda della sorgente, all'angolo di propagazione del fascio e alla temperatura del cristallo.

5.3 Il *random Quasi-Phase-Matching* nei materiali ferroelettrici con *poling* periodico

Il *random Quasi Phase Matching* è ottenibile anche nei materiali ferroelettrici la cui suscettività del secondo ordine $\chi^{(2)}$ sia stata modulata mediante *poling* periodico [2,3], tecnica largamente utilizzata per l'ingegnerizzazione di reticoli non lineari e la realizzazione di strutture in guida ed in *bulk* per l'elaborazione di segnali basata sulla conversione di frequenza [13,14]. Recentemente, infatti, i cristalli ferroelettrici con *poling* assistito da campo elettrico sono stati utilizzati per questo scopo, sia impiegando reticoli con periodo molto piccolo [3], sia utilizzando maschere monodimensionali o bidimensionali con randomicità opportunamente progettata [15,16].

Come si è già detto, durante il processo di *poling*, la nucleazione dei domini è dovuta alla presenza sulla superficie del cristallo, di difetti strutturali, danneggiamenti o di

corpi estranei denominati siti di nucleazione.

Tali siti sono disposti su tutte e due le superfici del cristallo e sono principalmente difetti della superficie dovuti alle imperfezioni reticolari che si vengono a creare, e sono connaturati al processo di inversione dei domini dovuto al campo elettrico applicato. Essi sono accentuati dalle fasi di lavorazione del cristallo (taglio della fetta e lucidatura), e la loro distribuzione dipende principalmente da tutti i processi superficiali, cui è sottoposto il cristallo. Questi difetti possono anche far variare il valore del campo coercitivo, così come i domini preesistenti possono giocare un ruolo fondamentale durante il *poling*. Tuttavia, durante la fase di nucleazione, è possibile che si evidenzino caratteristiche *random* (dovute proprio alla presenza di tali difetti) che portano alla realizzazione di una struttura ancora periodica, ma che presenta un *mark-to-space ratio* (MTSR) variabile. La stocasticità del processo e, dunque, l'irregolarità della geometria finale è dovuta alla dinamica dell'inversione dei domini. L'inversione di questi ultimi non avviene per tutti nel medesimo istante: alcuni, invertendosi per primi, occupano un'area maggiore rispetto a quelli che lo faranno successivamente. Il *pattern* ottenuto, quindi, è prevalentemente periodico, ma presenta nel piano -z una struttura secondaria non uniforme sovrapposta. Il reticolo, di fatto, attua una modulazione del coefficiente non lineare del secondo ordine. Si constata che minore è il periodo implementato maggiore è l'influenza della componente casuale nella modulazione periodica del $\chi^{(2)}$ e, pertanto, maggiore sarà la sua influenza sulla generazione di SH. In particolar modo, Stivala *et al.* [3], osservano che, in un campione *bulk* di Tantalato di Litio con *poling* periodico, mentre il processo di SHG per QPM alla frequenza di risonanza non è influenzato dalla presenza dei domini distribuiti *randomicamente*, lontano dalla frequenza di risonanza, la loro influenza diviene manifesta, e si ha generazione di seconda armonica per *rQPM* che risulta fortemente dipendente dalla lunghezza d'onda della fondamentale in ingresso e dalla posizione del fascio d'ingresso.

5.4 Fabbricazione del dispositivo

Anche questo dispositivo è stato interamente realizzato presso il Centro per la Ricerca Elettronica in Sicilia di Monreale (PA), nel Laboratorio di Optoelettronica e Microlitografia. I campioni di Tantalato di Litio congruente impiegati per la fabbricazione provenivano da *wafers z-cut* dello spessore di 500 micron e del diametro di

76.2 millimetri (3 pollici) prodotti dalla *Crystal Technology Inc.* (USA). Si è scelto il LiTaO_3 poiché, fra i cristalli ferroelettrici, presenta una soglia molto alta al danneggiamento fotorifrattivo, una trasparenza estesa nel *range* dell'ultravioletto fino a 280 nm [17] e coefficienti elettro-ottici e quadratici elevati [18]. Inoltre, il LiTaO_3 permette di realizzare guide d'onda dielettriche di buona qualità ottenute per mezzo dello scambio protonico (PE) [19]. Questa tecnica è pienamente compatibile con il *poling* periodico e ha dimostrato di essere un eccellente metodo fabbricativo per i dispositivi ottici integrati non lineari [20, 21]. Per il PP del campione abbiamo applicato impulsi ad alta tensione attraverso tutto lo spessore del LT utilizzando un gel elettrolitico ed una maschera isolante. Dopo lo *spin coating* di uno strato di 1.5 μm di spessore di *photoresist* (Shipley 1813) sulla faccia $-z$ del campione, si è definito con fotolitografia *standard* un reticolo con un periodo di $\Lambda = 1.5 \mu\text{m}$, parallelo all'asse delle y . Successivamente, i campioni sono stati sottoposti a *soft baking* per 30 minuti alla temperatura di 90 °C e, dopo lo sviluppo, i campioni sono rimasti in forno per una notte a 90 °C (*post baking*), quindi altre 3 ore a 120 °C. Inoltre, al fine di superare il campo coercitivo del LT si è utilizzato il gel elettrolita sopra menzionato applicato sulla maschera di *photoresist* isolante, già realizzata, ed è stato applicato un singolo impulso di 1.3 kV, su un *bias* di 10 kV, della durata di 300 μs , intervallo di tempo sufficiente per ottenere l'inversione periodica dei domini ferroelettrici. Si è così realizzato un reticolo periodico delle dimensioni di circa $0.06 \times 5.0 \text{ mm}^2$. La Fig. 5.2 mostra uno schema del dispositivo finale costruito.

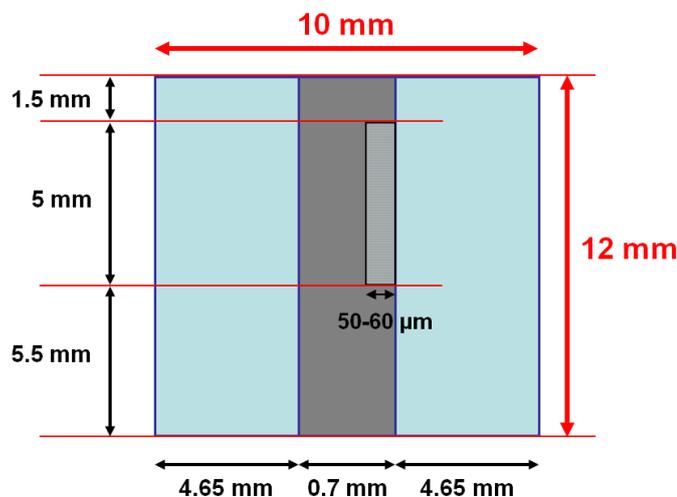


Fig. 5.2 Schema, non in scala, del dispositivo realizzato per l'analisi del fenomeno del *rQPM*. Visione dalla faccia $-z$.

Per una dettagliata descrizione dei processi, delle tecniche di fabbricazione messe in atto e delle spiegazioni inerenti i diversi processi, rimando il lettore al capitolo 4 di questa tesi.

Dopo il *poling*, alcuni campioni sono stati attaccati in una soluzione di acido fluoridrico (HF 40%) e acqua distillata (HF: H₂O = 1:10) per rivelare la struttura del *pattern* periodico realizzato sulla superficie -z [22].

La Fig. 5.3(a,b,c,d) ritrae immagini di diverse parti del campione ottenute con un microscopio a scansione elettronica: mentre nella maggior parte della superficie interessata la periodicità degli elettrodi è stata perfettamente trasferita (Fig. 5.3(a)), in alcune zone è ben visibile il MTSR casuale nel reticolo di QPM (Fig. 5.3(d)).

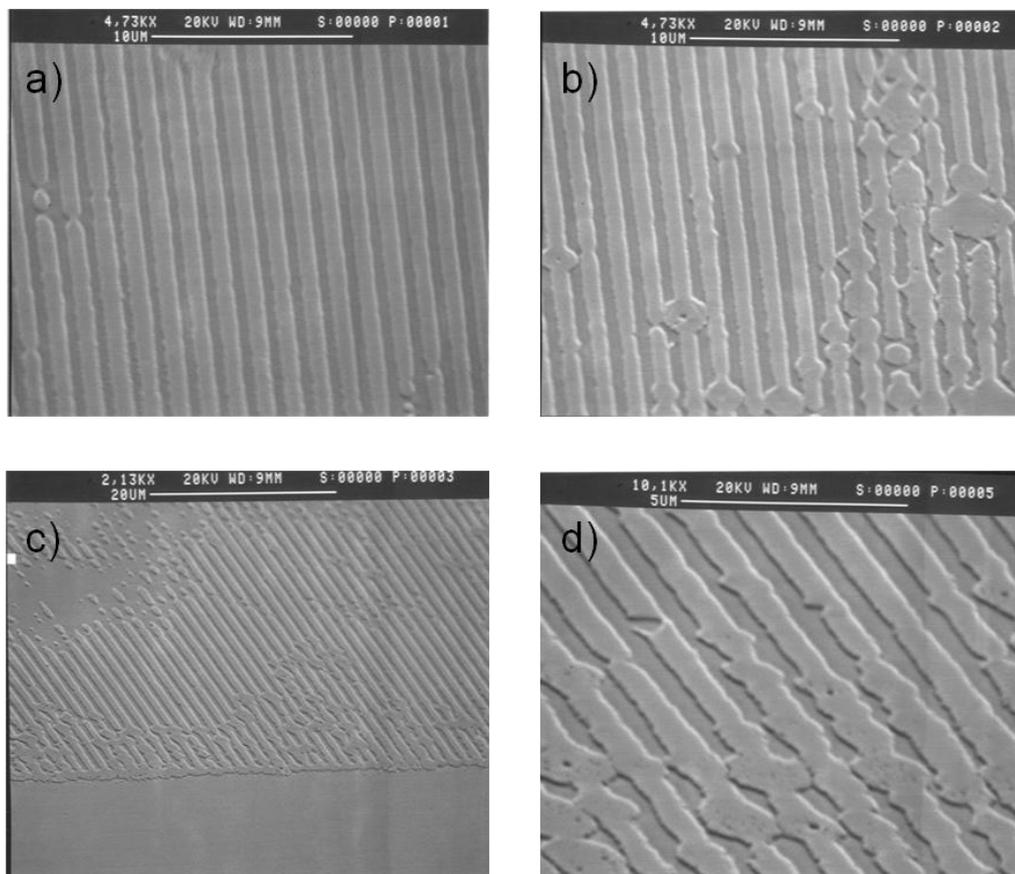


Fig. 5.3 Immagini ottenute con la microscopia a scansione elettronica (SEM) di un campione di LiTaO₃ di 1.5 μ m di periodo dopo attacco chimico in acido fluoridrico. Il campione è stato ripreso da angolazioni diverse, con differenti ingrandimenti, per meglio documentare la randomicità del MTSR. (dal Rif. [23])

La dinamica del *poling* è tale che i primi domini enucleati (invertiti) si allarghino nel piano xy del cristallo e diventino più ampi di quelli che si generano in seguito. Nonostante il ruolo dominante degli elettrodi periodici nel definire il reticolo dei domini

ferroelettrici (come dimostrato dalla SHG al primo ordine di QPM su substrati simili [24]), il MTSR finale ha caratteristiche stocastiche non uniformi sovrapposte alla geometria regolare. Anche se questo effetto si verifica sempre durante i processi di *poling* indotto da campo elettrico, diventa particolarmente importante quando le dimensioni del periodo (e dunque dei domini) sono piccole, come nei nostri campioni.

Le guide d'onda planari (*slab*) sono state fabbricate, dopo aver effettuato il *poling* sulla faccia $-z$, mediante scambio protonico (PE) in "fiala sigillata" [19], contenente una miscela di acido benzoico e benzoato di litio al 3.6% in peso.

Tale miscela di sali fusi consente, come già dimostrato ed ampiamente documentato in letteratura, di conservare le proprietà ottiche lineari e l'orientamento dei domini del cristallo [20] durante il processo di PE. Così facendo, si sono realizzate delle guide d'onda per "soft PE" in fase α . Lo scambio protonico è durato 144 ore ad una temperatura di 300 °C. Si sono realizzate delle guide d'onda monomodali (TM₀) per la frequenza fondamentale (FF) utilizzata nei miei esperimenti e supportanti i modi TM₀ e TM₁ per le corrispondenti lunghezze d'onda di seconda armonica. Infine, le faccette d'ingresso e d'uscita del dispositivo sono state lucidate al grado ottico per permettere un accoppiamento e disaccoppiamento efficiente dei modi di radiazione.

5.5 Caratterizzazione non lineare del dispositivo

In questo paragrafo tratterò della caratterizzazione non lineare del dispositivo, fornendo al lettore una descrizione di tutte le apparecchiature che sono state impiegate nel banco ottico, delle ottiche utilizzate e dei differenti *set-up* allestiti per la realizzazione delle misure di campo vicino e di campo lontano in *bulk* ed in guida d'onda.

5.5.1 Set-up del banco ottico

La sorgente utilizzata per eccitare la radiazione d'onda fondamentale era un laser al *Ti:Zaffiro* della potenza massima di circa 1 W (*Spectra Physics*, CW 3900S), pompato da un laser ad *Argon-ion* (*Spectra Physics*, BeamLok 164) della potenza massima di quasi 10 W, ad emissione d'onda continua, con lunghezza d'onda variabile da 700 a 1000 nm e larghezza di riga pari a 40 GHz [25].

Si è fatto in modo che il fascio generato incontrasse inizialmente un *beam splitter*, il

quale prelevava parte del segnale e lo inviava, attraverso un obiettivo, ad una fibra ottica collegata ad un analizzatore di spettro ottico.

Quest'ultimo consentiva la visualizzazione sia della lunghezza d'onda, sia della riga di emissione. Subito dopo il *beam splitter* è stato posto un *beam steerer* il quale aveva la duplice funzione di traslare verso l'alto il fascio laser generato, per rendere l'altezza compatibile con quella dell'ottica utilizzata, e di ruotare la polarizzazione del fascio da orizzontale a verticale. In questa parte del suo cammino, il fascio incontrava un primo specchio metallico, il quale lo defletteva di 90° e lo inviava ad un filtro inserito allo scopo di eliminare il residuo di pompa, dovuto al laser ad *Argon-ion*, presente nel segnale a frequenza fondamentale.

Dopo erano presenti una lamina a $\lambda/2$ ed un polarizzatore la cui azione combinata fungeva da attenuatore per regolare la potenza del fascio a frequenza fondamentale inviato al campione.

Le misure in *bulk* sono state condotte utilizzando un obiettivo da microscopio con focale $f=11$ mm per focalizzare il fascio d'ingresso TEM_{00} al centro del reticolo del dispositivo con un *waist* pari a circa 27 μm .

Per le misure in guida d'onda si è fatto uso di una lente cilindrica addizionale avente focale $f=50$ mm, posta prima dell'obiettivo da microscopio, al fine di ottenere un fascio ellittico con asse orizzontale di circa 27 μm e con asse verticale di circa 4 μm che consentisse un migliore accoppiamento della radiazione in ingresso con la struttura guidante del dispositivo.

Il campione in Tantalato di Litio impiegato negli esperimenti, si trovava all'interno di un riscaldatore stabilizzato in temperatura, controllato via software tramite un computer, il quale permetteva di mantenere la temperatura prescelta costante e di poterla innalzare fino ad un massimo di 200 °C con un errore di ± 0.1 °C. A sua volta il fornellino era montato, così come l'obiettivo d'ingresso, su un supporto dotato di movimentazione micrometrica che permetteva il giusto allineamento del campione rispetto al fascio laser. Sia per gli esperimenti effettuati in *bulk* che per quelli condotti in guida d'onda il campione è stato mantenuto alla temperatura costante di 195 ± 0.1 °C per evitarne il danneggiamento a causa dell'effetto fotorifrattivo.

Il segnale in uscita dal campione veniva, poi, raccolto mediante un altro obiettivo da microscopio, anch'esso montato su un supporto con movimentazione micrometrica ed

inviato, direttamente ad un filtro, montato sulla telecamera di acquisizione delle immagini. E' necessario fare una precisazione: nel caso di misure di campo vicino l'obiettivo da microscopio 10X viene posto dopo la faccetta d'uscita del dispositivo alla distanza focale del microscopio, mentre nel caso di misure di campo lontano l'obiettivo viene posto 1.5 mm dopo la *working distance* (distanza alla quale si forma l'immagine ideale dell'oggetto) per trovarsi nelle condizioni di campo lontano. Le misure in potenza, invece, sono state effettuate per mezzo di un fotomoltiplicatore, collegato ad un amplificatore *lock-in*, che si sostituisce alla telecamera.

Si rimanda il lettore al paragrafo successivo per maggiori dettagli sul *set-up* nel caso delle due differenti configurazioni per la registrazione dei profili di intensità di SH e FF nel caso di campo vicino e campo lontano in *bulk* ed in guida d'onda.

Come accennato, per eliminare totalmente il segnale di pompa e schermare la telecamera ed il fotomoltiplicatore dal rumore ambientale è stato inserito un filtro BG-18 della EDMUND OPTICS. L'utilizzazione di quest'ultimo è di fondamentale importanza, in quanto presenta nel *range* di emissione del *Ti:Zaffiro* una trasmissione pressoché nulla, mentre lascia passare quasi inalterato il segnale a seconda armonica.

Il fotomoltiplicatore impiegato nelle misure di potenza (PMM01 della THORLABS), era in grado di rivelare segnali luminosi dalla frequenza continua fino ad una frequenza massima di 20 kHz.

Come già accennato, il fotomoltiplicatore era collegato ad un amplificatore *lock-in*. Quest'ultimo (conosciuto anche come *phase-sensitive detector*) sfrutta una tecnica conosciuta come *Phase-Sensitive Detection* attraverso la quale è possibile eliminare gran parte del rumore sovrapposto al segnale d'ingresso. Per ottenere ciò, esso sfrutta un filtro passa basso a banda molto stretta che elimina il rumore indesiderato e lascia passare il segnale da misurare.

Considerando il fatto che l'amplificatore *lock-in* misura soltanto segnali variabili (AC) e dato che il *laser* utilizzato genera solo un segnale in continua, bisognava modificare il fascio laser utilizzato in modo da renderlo compatibile con il *lock-in*. Per fare questo, è stato inserito un *chopper*. La tensione di riferimento necessaria per il funzionamento dell'amplificatore *lock-in* è fornita direttamente dal *chopper*.

Si è, inoltre, fatto uso di un laser ad *Elio-Neon* (He-Ne) la cui principale funzione è stata quella di semplificare ed ottimizzare l'allineamento dei componenti ottici attraverso

l'emissione di un fascio nel visibile (rosso) e collineare a quello emesso dal *Ti:Sapphire*. Il fascio generato da questo laser, passava attraverso un attenuatore e, mediante due specchi, veniva indirizzato verso il campione.

5.5.2 Osservazione del fenomeno

L'analisi del fenomeno fisico che si vuole spiegare avviene attraverso lo studio delle immagini raccolte mediante una camera CCD ad alta risoluzione. E' di fondamentale importanza che le immagini registrate vengano riprodotte fedelmente al fine di procedere ad un'attenta disamina del fenomeno del rQPM. Pertanto, è bene fare alcune considerazioni sui riferimenti adottati per la rappresentazione delle immagini dei fasci a frequenza fondamentale ed a seconda armonica. In generale, quando si catturano delle immagini per mezzo di un obiettivo di uscita, questa operazione introduce un ingrandimento del fascio, e, quindi, a seconda della posizione della telecamera, non si ha un confronto diretto tra le dimensioni osservate a video e quelle reali. Per risolvere questo inconveniente è stata realizzata una procedura di calibrazione che fa uso di un reticolo, ottenuto mediante metallizzazione su vetro, delle dimensioni di un 1 mm diviso in 100 parti (ognuna delle quali è, pertanto, di 10 μm). Così facendo, è stato possibile stabilire l'esatta corrispondenza tra il *pixel* rappresentato a video e la sua dimensione reale nei diversi *set-up* utilizzati.

5.5.3 Misure di campo vicino

In bulk

Per la registrazione delle immagini in *bulk* per il campo vicino si è fatto uso del *set-up* che riportiamo nello schema di Fig. 5.4.

Le immagini sono state realizzate impiegando una telecamera CCD *DataRay WinCamD* e mettendo a fuoco la faccetta d'uscita del campione attraverso l'obiettivo 10X, tra l'obiettivo d'uscita e l'obiettivo della camera veniva posto un filtro per eliminare la fondamentale. L'obiettivo d'uscita e la telecamera distavano 23 cm. La fotografia in basso ritrae la reale disposizione delle ottiche e degli apparati di rivelazione.

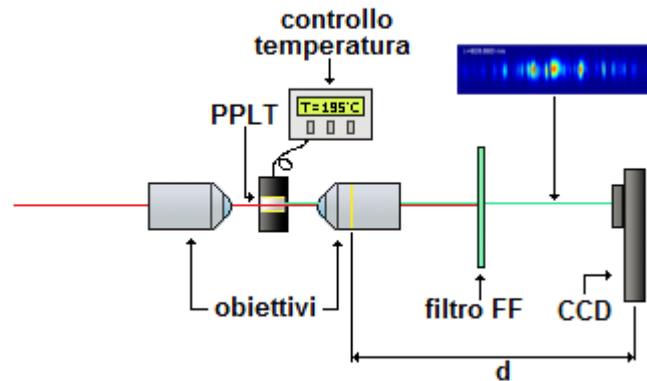


Fig. 5.4 Set-up per la misura in configurazione di campo vicino del rQPM in *bulk*. (dal Rif. [23])

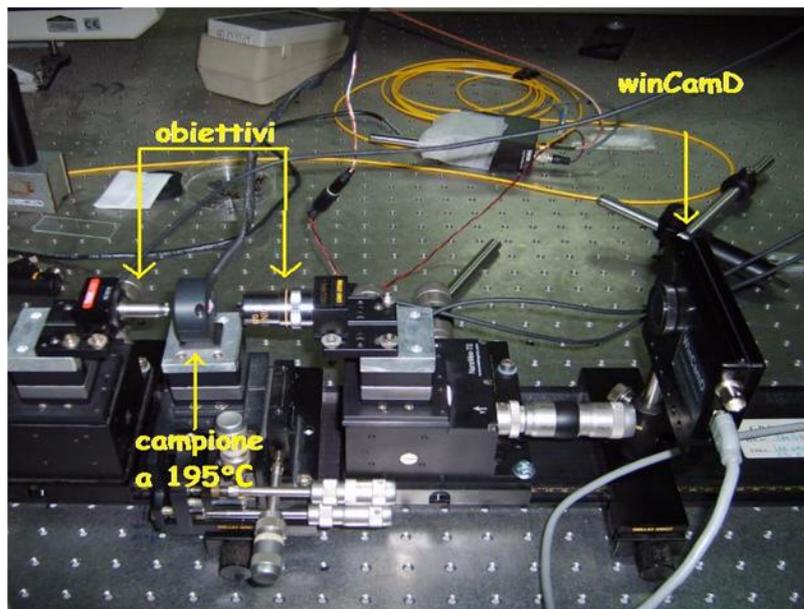


Fig. 5.5 Set-up reale per la misura in configurazione di campo vicino del rQPM in *bulk*. (dal Rif. [26])

In guida

Le misure di campo vicino realizzate in guida d'onda sono state registrate facendo uso del *set-up* di Fig. 5.6.

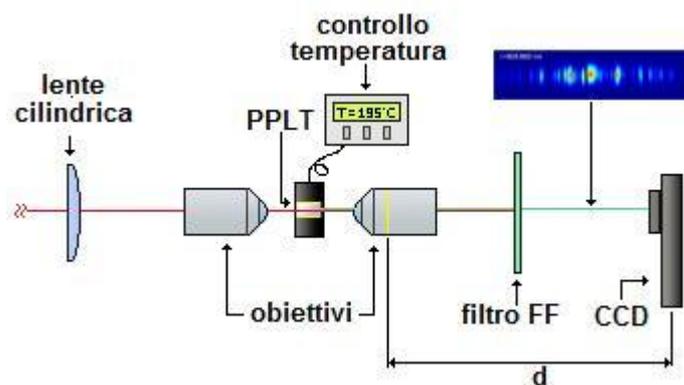


Fig. 5.6 Set-up per la misura in configurazione di campo vicino del rQPM in guida d'onda. (dal Rif. [23])

Come già osservato in precedenza, a differenza del caso *bulk*, è necessario che il fascio in ingresso, non abbia uno *spot* circolare, ma ellittico per meglio accoppiarsi alla geometria della guida *slab* che deve guidarlo. La lente cilindrica con distanza focale di 5 cm è stata posizionata a sinistra del primo obiettivo da microscopio in ingresso al campione. Dopo aver ottimizzato la posizione del campione, per mezzo di un fotomoltiplicatore e di una telecamera di tipo *Beam Map* (particolare telecamera che permette la visualizzazione a schermo del fascio d'interesse, riportandone le dimensioni reali), è stata posizionata la *WinCamD* a 27.4 cm dall'obiettivo d'uscita.

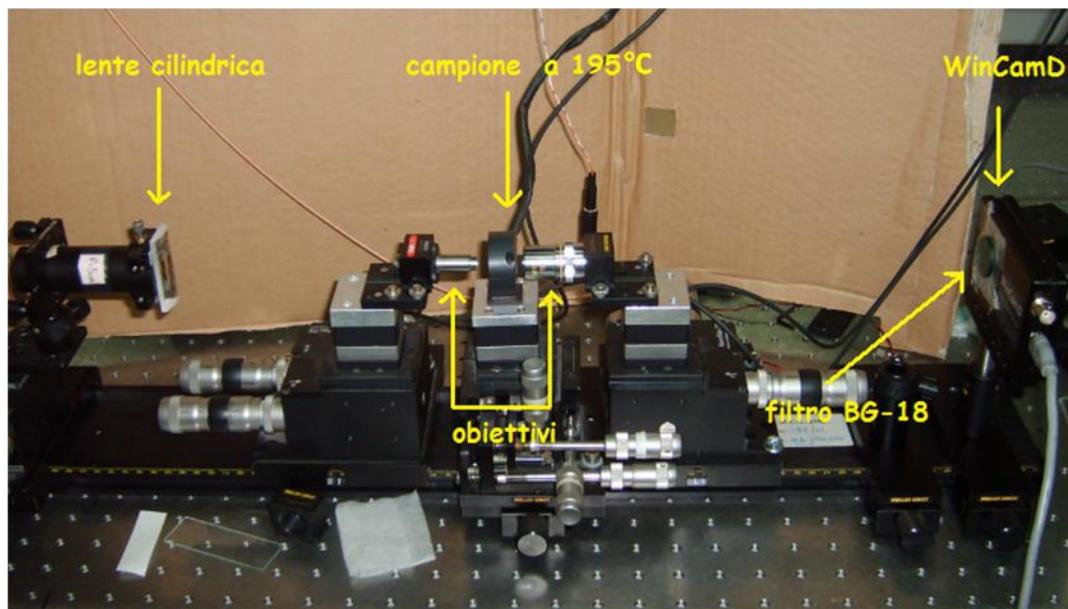


Fig. 5.7 Set-up reale per la misura in configurazione di campo vicino del rQPM in guida d'onda. (dal Rif. [26])

Si è così realizzato un *set* di misure, per la configurazione di campo vicino in *bulk* ed in guida, al variare della lunghezza d'onda della fondamentale, lontano dalla condizione di risonanza (nel nostro caso sarebbe stata alla lunghezza d'onda di 672 nm, per il primo ordine di QPM, dato il reticolo di periodo $\Lambda = 1.5\mu\text{m}$ e la temperatura di lavoro di 195 °C). Riportiamo alcuni profili di intensità di campo vicino per il caso *bulk* ed in guida d'onda. Nella figura mostriamo i profili di intensità di campo vicino raccolti mediante un obiettivo da microscopio ed una telecamera CCD ad alta risoluzione. Le immagini digitalizzate sono state poi acquisite tramite un *frame grabber*. Le Fig. 5.8(a) e 5.8(d) sono i profili d'uscita di FF nel caso *bulk* e di guida d'onda rispettivamente. Notiamo come in entrambe le configurazioni considerate, la FF mantiene il proprio profilo gaussiano anche dopo la propagazione attraverso la zona con *poling* periodico, è chiaro

che nel caso di guida d'onda planare il fascio è gaussiano ellittico. Le immagini 5.8(b) e 5.8(c) sono i profili d'intensità di SH in uscita dal campione in configurazione *bulk*. Il fascio SH, lontano dalla frequenza di risonanza, è caratterizzato da tipiche striature lungo l'asse z , con una distribuzione spaziale fortemente dipendente dalla lunghezza d'onda d'ingresso [3].

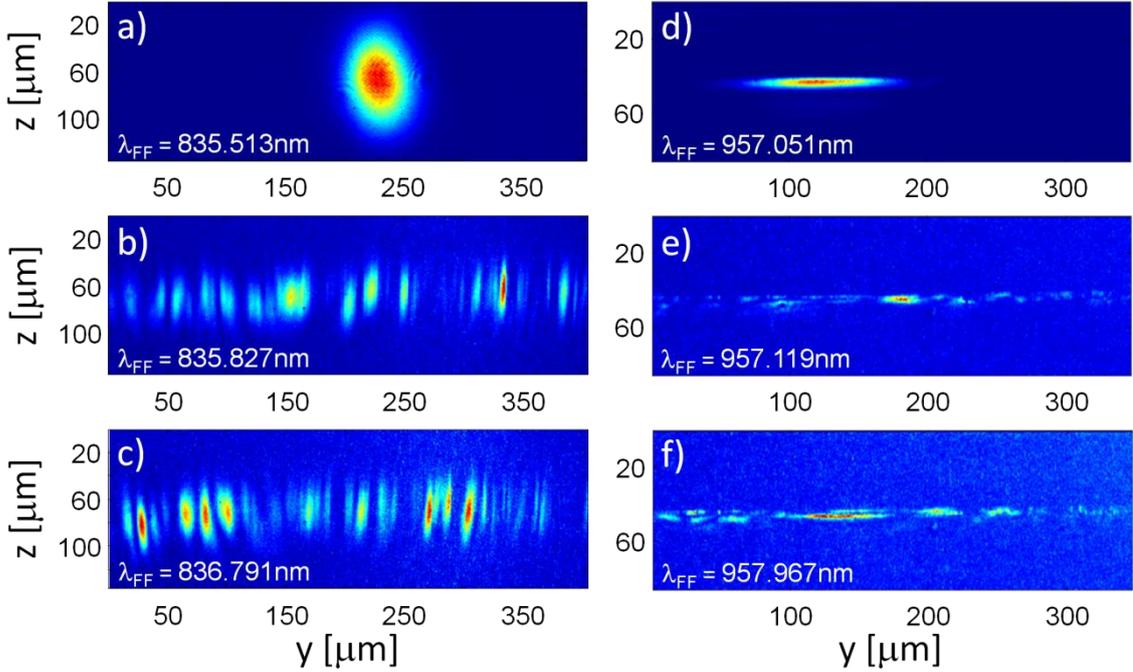


Fig. 5.8 Profili di intensità di campo vicino, all'uscita del campione, raccolti mediante un obiettivo da microscopio ed una telecamera CCD ad alta risoluzione. Le immagini (a) e (d) si riferiscono alla FF in *bulk* e in guida, rispettivamente; mentre le immagini (b) e (c) sono relative alla SHG via rQPM in *bulk*, (e) ed (f) SHG via rQPM in guida. (dal Rif. [23])

Il profilo di SH, nel caso di campo vicino in guida d'onda, presenta una distribuzione randomica che è fortemente condizionata dall'interazione tra i due modi TM di SH guidati e contemporaneamente pompati dal modo TM_0^{FF} di FF in ingresso, ovvero: $TM_0^{FF} \rightarrow TM_0^{SH}$ e $TM_0^{FF} \rightarrow TM_1^{SH}$. I due modi TM a SH sono mutuamente ortogonali nella guida d'onda planare ed i processi per rQPM possono essere entrambi soddisfatti simultaneamente, con una interferenza risultante che, a causa del processo di *cascading* quadratico lontano dalla condizione di *quasi-phase-matching* nominale [27,28] ed in presenza di caratteristiche *random*, marcatamente condiziona il profilo di intensità d'uscita di SH nel caso di campo vicino. Pertanto, a causa della randomicità di $\chi^{(2)}$, i vettori del reticolo dello spazio reciproco di *Fourier* soddisfano una quantità doppia di condizioni di *phase matching* rispetto al caso *bulk*. Il duplicatore di frequenza in guida d'onda nel caso di rQPM mostra una più ampia larghezza di banda e una maggiore

efficienza di conversione se confrontato con uno in *bulk*, non soltanto per via della natura confinata delle onde interagenti, ma anche perché le condizioni di *phase matching* spettrale sono doppie rispetto al caso *bulk*, data la presenza di due modi di risonanza di SH. Questo aspetto sarà evidenziato maggiormente quando parlerò delle misure di potenza (paragrafo 5.5.5). Questa maggiore efficienza di conversione rende i duplicatori in guida d'onda via *rQPM* molto interessanti per le applicazioni dell'ottica integrata.

5.5.4 Misure di campo lontano

In bulk

Per realizzare le misure in condizioni di campo lontano si è proceduto, essenzialmente, disponendo le ottiche nello stesso ordine di quello riportato in Fig. 5.4, facendo attenzione, in questo caso, di soddisfare le condizioni di campo lontano. Pertanto, come precedentemente osservato, l'obiettivo da microscopio che raccoglie il fascio in uscita è stato posto ad una distanza di 1.5 mm oltre la distanza focale (valutata dalla faccetta d'uscita del campione).

In guida

Il *set-up* impiegato è quello di Fig. 5.6, anche in questo caso si è posto l'obiettivo d'uscita 10X a 1.5 mm dal fuoco, riproducendo le condizioni di campo lontano, e raccogliendo le immagini con la telecamera piazzata a 9.4 cm dall'obiettivo di uscita. La Fig. 5.9 mostra l'immagine reale della disposizione degli strumenti in laboratorio.

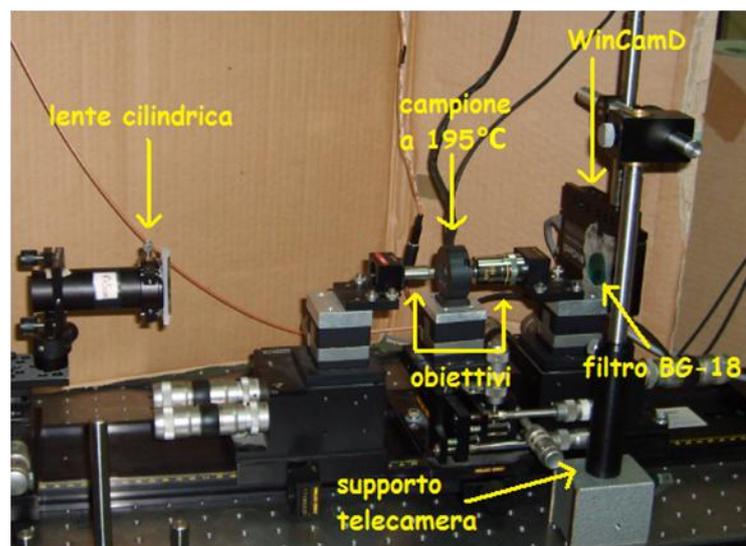


Fig. 5.9 *Set-up* reale per la misura in configurazione di campo lontano del rQPM in guida d'onda. (dal Rif. [26])

Di seguito riportiamo alcune delle immagini catturate per la configurazione di campo lontano nel caso *bulk* ed in guida d'onda per FF lontana dalla frequenza di risonanza nominale di QPM. Così come già evidenziato nel caso di campo vicino, anche per le misurazioni in campo lontano, nelle misure in *bulk*, il fascio FF mantiene la sua forma gaussiana durante e dopo la propagazione, mentre le SH generate presentano un insieme di *spot*, paralleli fra di loro e all'asse z del cristallo, con intensità e distribuzioni fortemente dipendenti dalla posizione e dalla lunghezza d'onda della FF di ingresso (Fig. 5.10 (a,b,c)).

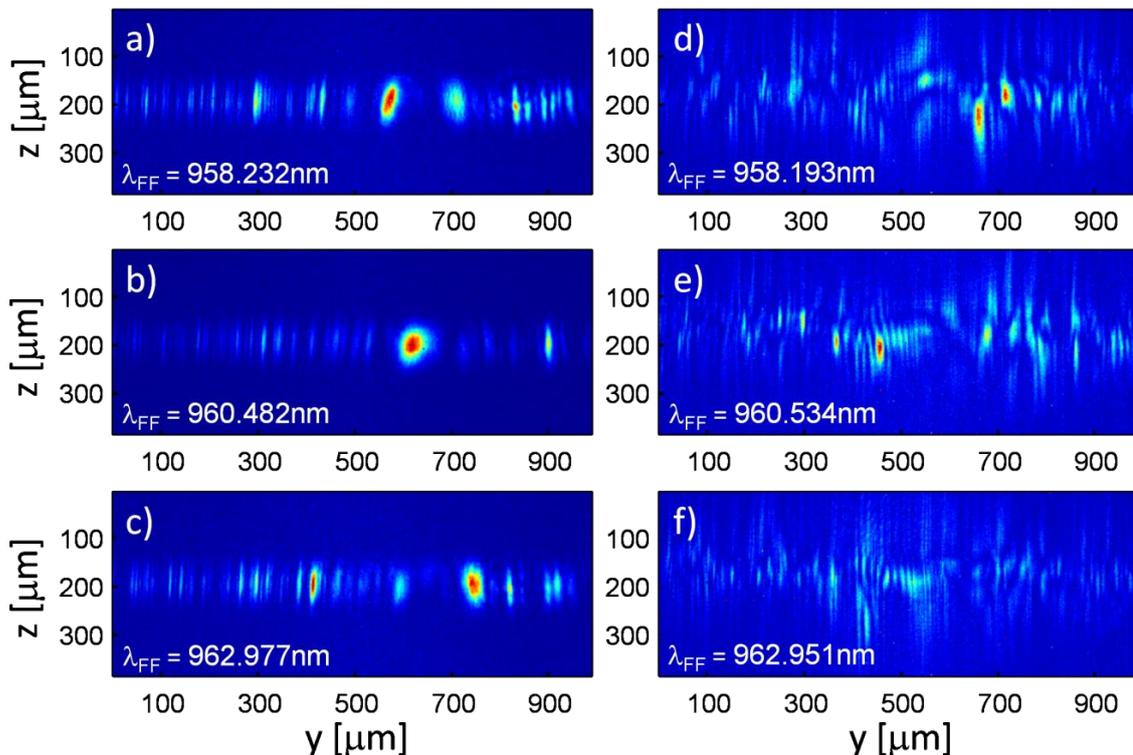


Fig. 5.10 Pattern d'intensità di SH in campo lontano via rQPM, le immagini (a,b,c) si riferiscono al *bulk* mentre le immagini (d, e, f) si riferiscono alla guida d'onda planare. La lunghezza d'onda della FF, misurata mediante un analizzatore di spettro ottico, è indicata nella legenda. (dal Rif. [1])

Durante la SHG via rQPM nelle guide d'onda planari, la simmetria descritta precedentemente in *bulk* è rotta dalla presenza simultanea di due modi di SH. In particolare, le caratteristiche random che si riscontrano lungo l'asse y testimoniano la casualità del MTSR nella regione con *poling* periodico (come nel *bulk*), mentre le discontinuità nell'intensità lungo l'asse z sono date dall'interferenza tra i modi TM_0 e TM_1 ; poiché questi ultimi esibiscono differenti indici di rifrazione e differenti distribuzioni trasversali, la loro sovrapposizione nel campo lontano dà luogo a

distribuzioni modulate lungo l'asse z per ogni lunghezza d'onda FF in ingresso. La combinazione delle caratteristiche *random* lungo l'asse y e l'interferenza dei modi lungo l'asse z producono, in campo lontano, dei *pattern* complessi come riportato nelle Fig. 5.10 (d,e,f).

5.5.5 Misure di potenza

Il segnale della fondamentale raccolto da un obiettivo da microscopio 10X è stato, poi, misurato servendosi di un *power meter* calibrato Lasermate-Q IR della *Coherent*. Per misurare, invece, la potenza della seconda armonica mi sono servito di un fotomoltiplicatore PMM01 della *THORLABS*, collegato ad un amplificatore *lock-in*, e di un *chopper*. Il fotomoltiplicatore è molto sensibile nel *range* di lunghezze d'onda comprese tra 280 e 630 nm. Per migliorare la misura si è posto davanti al fotomoltiplicatore un filtro per assorbire la FF nel vicino infrarosso (filtro BG 18 della *Schott*) ed un ulteriore filtro per eliminare il residuo del laser ad Argon-ion nel visibile. Riporto nelle Fig. 5.11 e 5.12 il *set-up* per la misura di potenza della SH.

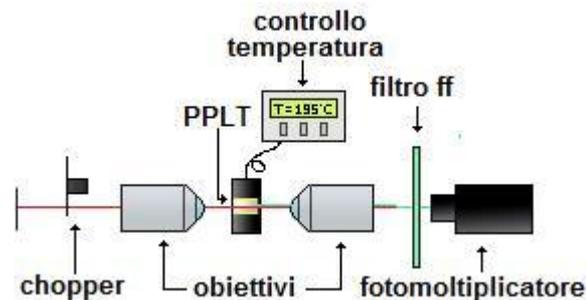


Fig. 5.11 *Set-up* per la misura della potenza. (dal Rif. [23])

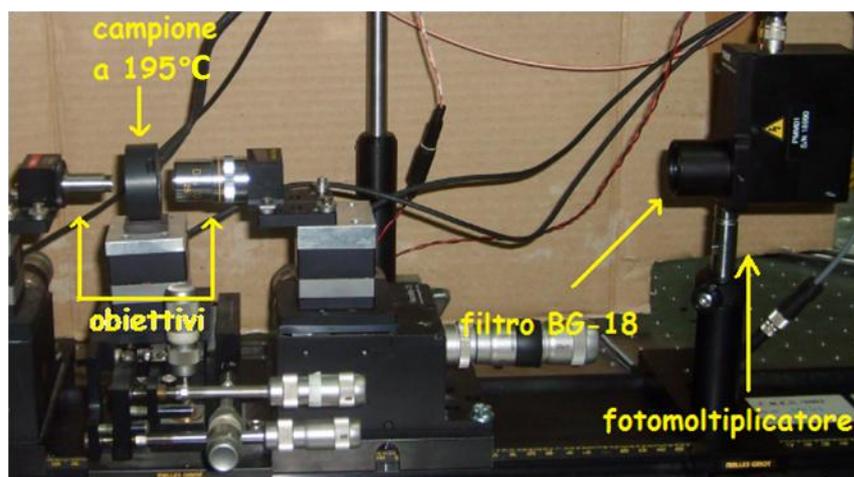


Fig. 5.12 *Set-up* reale per la misura della potenza. (dal Rif. 26)

Le Figg. 5.13(a) e 5.13(b) mostrano l'andamento quadratico della SH generata in funzione dell'eccitazione della FF per le configurazioni *bulk* e guida d'onda, rispettivamente, quando la lunghezza d'onda d'ingresso era di 960 nm (lunghezza d'onda lontana da quella di risonanza del periodo nominale del reticolo di QPM).

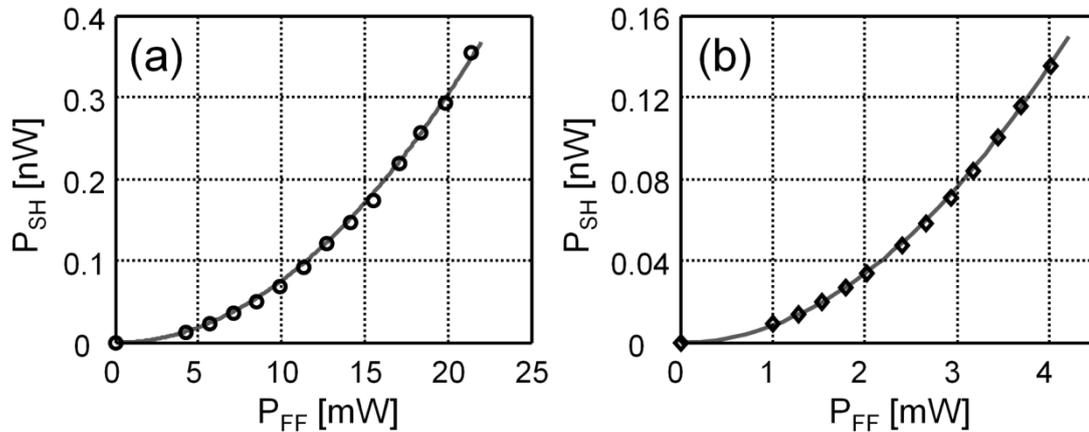


Fig. 5.13 (a) Potenza di SH in funzione dell'eccitazione di FF in configurazione *bulk* e (b) in guida d'onda. Le linee continue sono delle parabole che bene interpolano i dati sperimentali rappresentati dai simboli geometrici.

Ai dati sono state sottratte le perdite dovute alla riflessione e, in riferimento alla configurazione in guida d'onda, si registra una perdita dell'80% tra ingresso ed uscita del dispositivo (*insertion loss*) per la FF. L'efficienza di conversione normalizzata, di circa $8.41 \cdot 10^{-6} \text{ W}^{-1}$, in guida d'onda è più di un ordine di grandezza maggiore di quella in *bulk* ($7.27 \cdot 10^{-7} \text{ W}^{-1}$). L'andamento della potenza è parabolico in entrambe le configurazioni considerate. Infine, poiché si hanno il doppio delle risonanze per *phase matching* in guida d'onda, ho misurato la potenza di SH generata all'uscita per diversi valori di lunghezza d'onda di FF in ingresso.

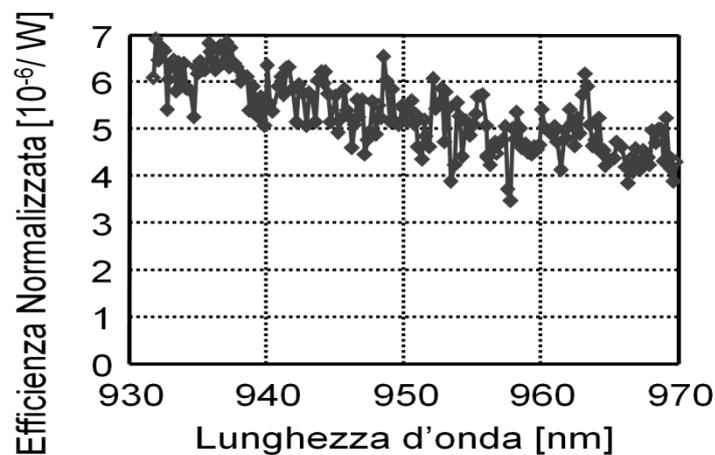


Fig. 5.14 Efficienza di conversione normalizzata in funzione della lunghezza d'onda della FF per il caso di guida d'onda planare nel caso di duplicazione di frequenza via rQPM.

La Fig. 5.14 rappresenta il grafico dell'efficienza di conversione normalizzata risultante nella banda compresa tra i 930 ed i 970 nm: è evidente una notevole uniformità spettrale nella conversione.

5.6 Analisi dei dati e loro interpretazione

Il rQPM (ovvero il QPM in presenza di randomicità nel MTSR) dà origine a diversi vettori di reticolo (\mathbf{k}_G) nello spazio reciproco di *Fourier*; quindi, SH e FF sono non collineari o nella configurazione *bulk* o nella configurazione di guida planare. Utilizzando le immagini di campo lontano, ho associato ad ogni picco di SH il rispettivo angolo φ , angolo formato dal vettore d'onda \mathbf{k}_ω e $\mathbf{k}_{2\omega}$ a FF e SH, rispettivamente. Il QPM si ha al primo ordine di risonanza grazie al vettore di reticolo \mathbf{k}_G , con $|k_G| = \frac{2\pi}{\Lambda_G}$ e

Λ_G periodo medio del coefficiente non lineare *random* considerato lungo una specifica direzione di propagazione di SH (si veda la Fig. 5.15). Pertanto, la conservazione del momento nella composizione delle tre onde (ovvero il *phase matching*) $\mathbf{k}_{2\omega} - 2\mathbf{k}_\omega - \mathbf{k}_G = \mathbf{0}$ permette di utilizzare i dati sperimentali (ovvero la posizione dei picchi e, quindi, gli angoli φ) nella stima del periodo medio attraverso l'equazione:

$$k_{2\omega} \cos\varphi - 2k_\omega - k_G \sqrt{1 - \left(\frac{k_{2\omega} \sin\varphi}{k_G}\right)^2} = \frac{4\pi}{\lambda_{FF}} n_2 \cos\varphi - \frac{4\pi}{\lambda_{FF}} n_1 - \frac{2\pi}{\Lambda_G} \sqrt{\left(2 \frac{\Lambda_G}{\lambda_{FF}} n_2 \sin\varphi\right)^2} = 0 \quad (5.1)$$

dove λ_{FF} è la lunghezza d'onda della FF, n_1 e n_2 rappresentano gli indici di rifrazione del LiTaO₃ nel caso di propagazione in *bulk*, ma sono anche gli indici efficaci nel caso di propagazione in guida d'onda per la polarizzazione straordinaria (TM) con il campo elettrico diretto lungo l'asse z visti dalla FF e dalla SH, rispettivamente.

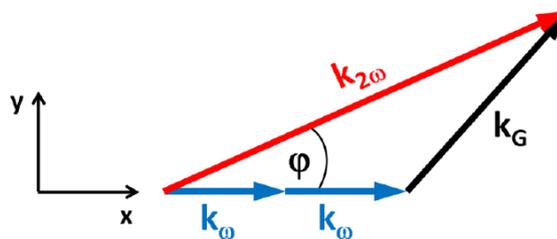


Fig. 5.15 Schema della conservazione del momento per SHG via rQPM.(dal Rif. [1])

Nel caso di guida d'onda, in particolare, mentre n_1 è l'indice efficace del modo TM_0^{FF} alla FF, n_2 può essere riferito o al modo TM_0^{SH} o al modo TM_1^{SH} per la SH. Gli indici di

rifrazione *bulk* alla FF e alla SH sono stati calcolati mediante le equazioni di Sellmeier per il LiTaO_3 [29], mentre gli indici efficaci alle due lunghezze d'onda sono stati determinati con un *mode solver*, considerando un opportuno profilo d'indice graduale per le guide d'onda ottenute per scambio protonico. Ho risolto numericamente l'equazione 5.1 per il periodo medio Λ_G , utilizzando tutti i dati disponibili sugli angoli φ per circa 60 differenti lunghezze d'onda FF in ingresso comprese tra 957 e 963 nm sia in bulk che in guida d'onda. Il diagramma risultante (non pesato) fornisce informazioni sulla frequenza con la quale ogni periodo si ripete; la stessa informazione può essere convenientemente pesata mediante l'efficienza di conversione della SH lungo le direzioni corrispondenti ai periodi considerati.

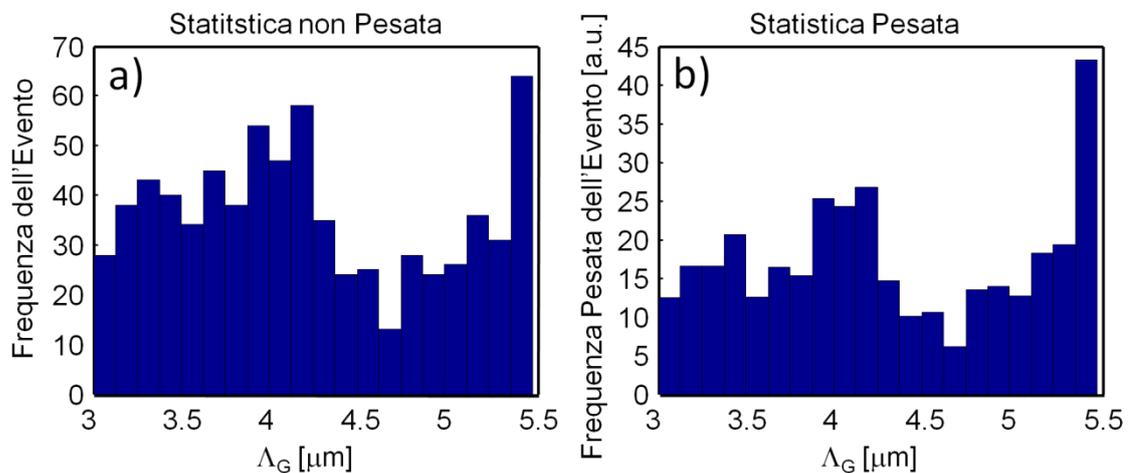


Fig. 5.16 (a) Istogramma con la frequenza dei valori di Λ_G riscontrata tra 3.0 e 5.5 μm quando la FF in ingresso si propaga nel bulk. (b) Stesso istogramma del caso (a) ma con una frequenza pesata dall'efficienza di conversione della SH lungo la direzione del periodo considerato. (dal Rif. [1])

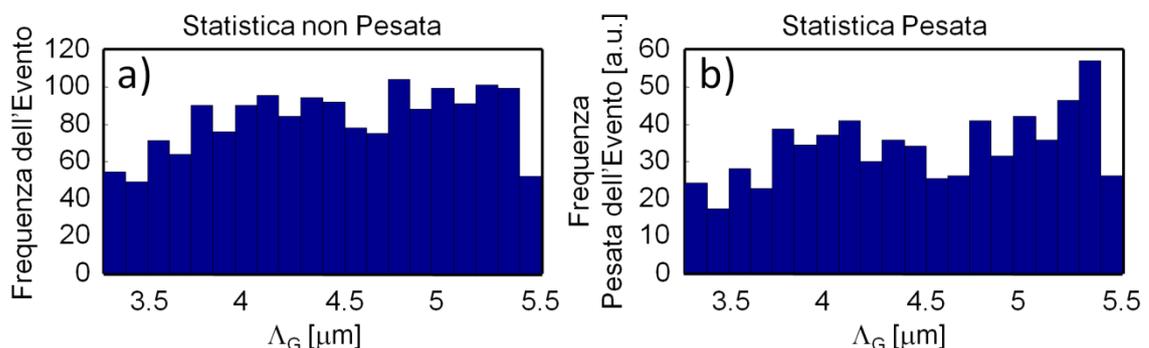


Fig. 5.17 (a) Istogramma con la frequenza dei valori di Λ_G riscontrata tra 3.0 e 5.5 μm quando la FF in ingresso si propaga in guida d'onda planare. (b) Stesso istogramma del caso (a) ma con una frequenza pesata dall'efficienza di conversione della SH lungo la direzione del periodo considerato. (dal Rif. [1])

La presenza di due modi TM guidati a SH è stata sfruttata per migliorare l'analisi statistica, dato che possono essere esaminate due differenti distribuzioni di intensità per ogni lunghezza d'onda, raddoppiando così il numero delle stime.

Le Figg. 5.16 e 5.17 rappresentano i dati non pesati e pesati ottenuti per i campioni *bulk* ed in superficie, rispettivamente. Poiché l'intervallo delle lunghezze d'onda FF utilizzate nella nostra campagna sperimentale è limitato, sono riuscito a studiare soltanto il *range* di periodicità compreso tra 3.3 e 5.5 μm . Questo è dovuto al legame tra l'intervallo dei periodi nello spazio e l'intervallo delle lunghezze d'onda laser a FF accordabili utilizzate per la generazione della SH in avanti, come già discusso nel riferimento [2]. Un periodo di 5.4 μm è compatibile con la generazione di SH via QPM per $\lambda_{\text{FF}}=960\text{nm}$. Il periodo trovato nel caso di propagazione in *bulk* è in accordo con quanto precedentemente stimato in un campione di LiTaO_3 con caratteristiche simili, già caratterizzato e studiato approfonditamente [2].

Per poter meglio studiare il fenomeno fisico ed avere una visione d'insieme della distribuzione d'intensità dei profili di seconda armonica, al variare della lunghezza d'onda, nella sezione d'uscita del dispositivo si è proceduto ad una elaborazione delle immagini in modo tale da affiancare i profili in uscita più significativi al variare della lunghezza d'onda all'interno di un *range* che spaziava tra i 957 ed i 963 nm circa (Fig. 5.18). E' possibile, pertanto, effettuare un confronto diretto tra le diverse sezioni in uscita, in configurazione di campo lontano, in termini di intensità di SH espressa in funzione della lunghezza d'onda di FF in ingresso che ricordo essere ben lontana da quella di risonanza. La Fig. 5.18(a) mostra l'andamento della SH per il campo lontano nel caso di propagazione del fascio in *bulk* mentre la Fig. 5.18(b) riporta l'andamento complessivo, somma dei due modi TM_0 e TM_1 , nel caso di generazione di SH per rQPM in guida d'onda. Per completezza riporto anche l'andamento della SH in guida riferito al solo modo TM_0 (modo fondamentale) e quello relativo al solo modo d'ordine superiore TM_1 (Figg. 5.18(c) e 5.18(d), rispettivamente). Lo studio della SH è molto interessante in quanto quest'ultima possiede intrinsecamente le proprietà spettrali della non linearità quadratica del mezzo all'interno cui si propaga, anche quando la non linearità sia, come nel caso in esame, randomicamente distribuita: il *phase matching*, infatti, mappa i momenti della non linearità spaziale del *Three Wave Mixing* (abbreviato in TWM) degenerare sui vettori d'onda della seconda armonica.

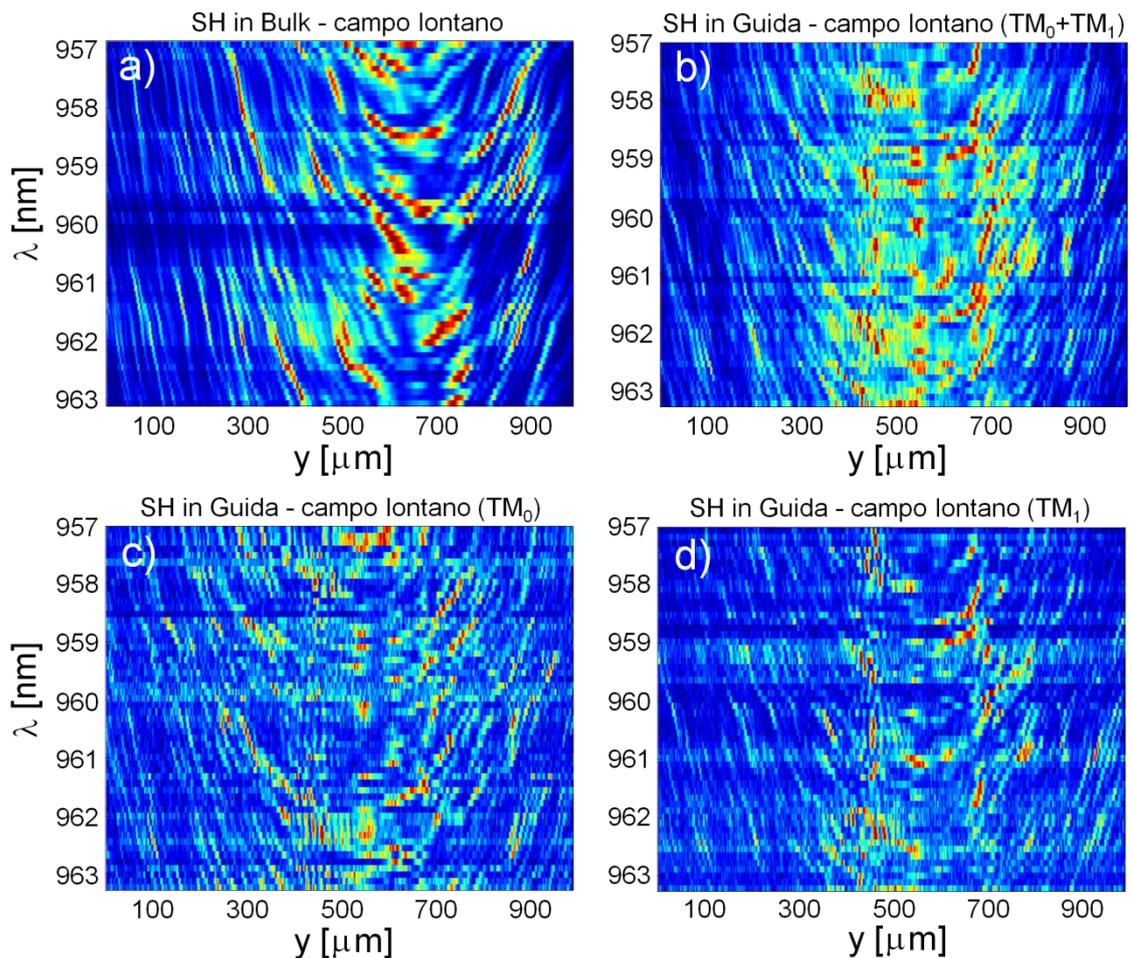


Fig. 5.18 Profili d’uscita in configurazione di campo lontano della SH via rQPM al variare della lunghezza d’onda della pompa a FF d’ingresso. (a) SH in bulk, (b) SH in guida data dalla sovrapposizione dei modi TM_0 e TM_1 in guida, (c) SH in guida per il solo modo TM_0 e (d) per il solo modo TM_1 . (dal Rif. [23])

E’ possibile, quindi, sfruttando l’equivalenza formale della SH in campo lontano con la distribuzione spaziale della non linearità quadratica, studiare la distribuzione randomica dei domini nei cristalli ferroelettrici. Questo approccio completamente ottico è già stato utilizzato per ricostruire lo spettro di *Fourier* di una distribuzione arbitraria di domini ferroelettrici in un campione di $LiTaO_3$ progettato e realizzato per SHG via QPM [2].

La Fig. 5.19 chiarisce il fenomeno di generazione di SH all’interno di un campione in cui è presente un reticolo con *poling* periodico con *MTSR random*. Il fascio laser della FF, polarizzato lungo l’asse z , attraversa il cristallo in direzione x e la sua propagazione avviene attraverso un reticolo di domini con distribuzione casuale. La SH generata mediante questo *pattern* ed avente un *MTSR* casuale di domini con polarizzazione a segni alterni, dà luogo, al di fuori della risonanza, alle immagini di campo lontano che ho raccolto e che presentano la forma tipica di linee parallele fra loro e all’asse delle z .

Le immagini di campo lontano della SH, data l'equivalenza formale con la distribuzione spaziale della trasformata di *Fourier*, offre interessanti informazioni circa la distribuzione spaziale dei domini del reticolo e, quindi, della modulazione del coefficiente non lineare all'interno del cristallo ferroelettrico, offrendo la possibilità di studiare in maniera non invasiva e non distruttiva il dispositivo ingegnerizzato nel materiale ferroelettrico, soprattutto quando nel cristallo sia presente una distribuzione non omogenea della non linearità.

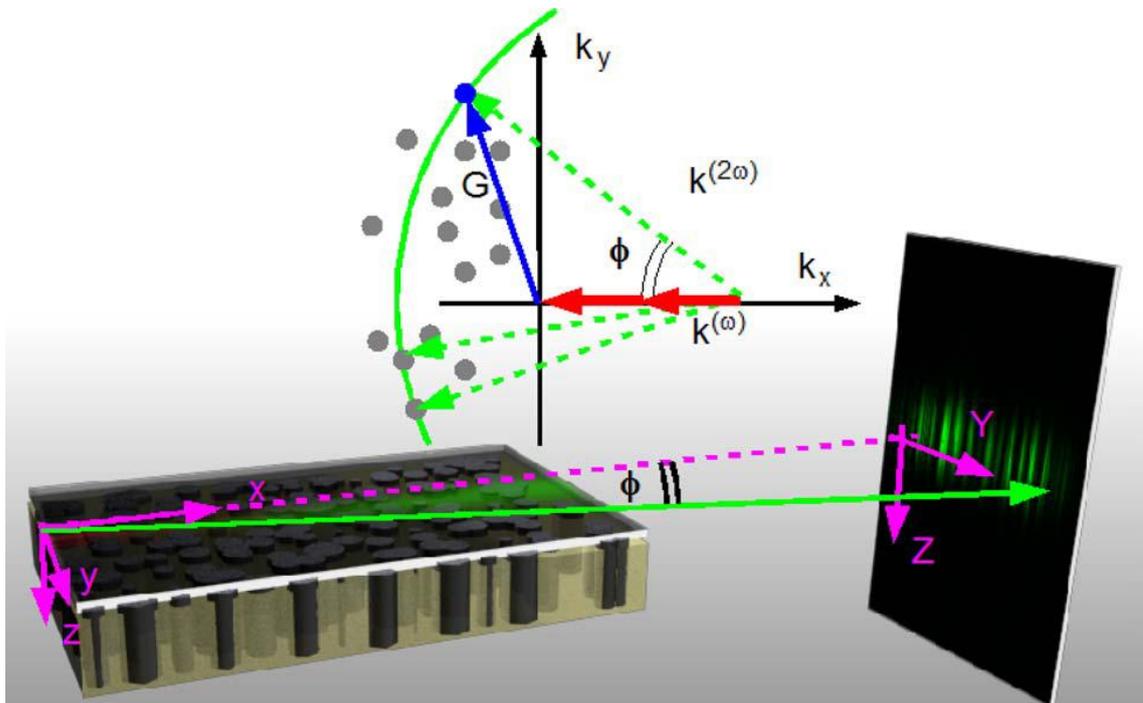


Fig. 5.19 Ricostruzione tridimensionale del percorso del fascio laser che si propaga, lungo l'asse x , all'interno di una struttura ferroelettrica con reticolo avente MTSR randomico. Si mostra su uno schermo, che rappresenta le dimensioni yz , il tipico profilo d'intensità di SH ottenuto mediante rQPM. L'inserto sopra l'immagine principale descrive la conservazione del momento ad opera dei vettori del reticolo nello spazio di *Fourier* generati per via della distribuzione randomica dei domini. (dal Rif. [2])

5.7 Conclusioni

In questa sezione della tesi, ho riportato i risultati del lavoro di fabbricazione e di caratterizzazione di un dispositivo in LiTaO_3 di $1.5 \mu\text{m}$ di periodo per la generazione di SH via rQPM sia in *bulk* che in guida d'onda planare ottenuta mediante PE. Si è potuto osservare come l'introduzione della casualità, in una struttura il cui coefficiente non lineare del secondo ordine $\chi^{(2)}$ sia stato modulato periodicamente, permetta il processo di generazione di SH anche al di fuori della frequenza di risonanza del periodo nominale di QPM implementato nella struttura dei domini ferroelettrici. Il rQPM

permette, dunque, il *phase matching* a larga banda per un dato processo non lineare, senza la necessità di conoscere le esatte condizioni di *phase matching* o le dinamiche spazio-temporali che lo caratterizzano.

L'introduzione della casualità in una struttura modulata, corrisponde, infatti, all'aggiunta di una serie semi-continua di vettori reciproci all'interno del reticolo, in grado di compensare processi non lineari con valori di *mismatch* di fase diversi da quello per cui il reticolo era stato inizialmente progettato.

Si nota un andamento non risonante della SHG caratteristico della rQPM. Mentre nella SHG mediante QPM *standard*, l'interazione avviene tramite un vettore del reticolo reciproco, in mezzi disordinati non lineari, come il PPLT con un MTSR non uniforme, il disaccordo di fase può essere compensato da diversi vettori [30], sostenendo una generazione a banda larga. I profili d'intensità di SH misurati e registrati in uscita dal dispositivo evidenziano delle frange simili alle dita di una mano, parallele fra di loro e all'asse z del cristallo, con intensità e distribuzioni fortemente dipendenti dalla posizione e dalla lunghezza d'onda della FF di ingresso. Lo studio di queste immagini acquisite, sia per la configurazione in *bulk* che per la configurazione in guida d'onda planare, è un approccio efficace e non invasivo per la caratterizzazione morfologica dei campioni aventi una distribuzione dei domini non uniforme data l'equivalenza tra la SH in campo lontano e la distribuzione spaziale della non linearità quadratica [2].

Inoltre, è stato possibile stimare il periodo medio di QPM del reticolo implementato attraverso un metodo statistico che utilizzava le informazioni provenienti dalla caratterizzazione sia in *bulk* che in guida d'onda. Questo è un potente e semplice mezzo per valutare la distribuzione dei domini in un cristallo ferroelettrico per la generazione parametrica via QPM.

Il rQPM, dunque, è un fenomeno molto interessante per le applicazioni nel campo delle telecomunicazioni vista la possibilità di allargamento di banda operato dalle strutture "disordinate" e facilmente ottenibili con le moderne tecnologie. Inoltre, la possibilità di indagare le strutture dei domini ferroelettrici senza alcuna compromissione del dispositivo implementato è un ottimo modo per l'investigazione della bontà dei reticoli ingegnerizzati.

5.8 Riferimenti bibliografici

- [1] S. Stivala, F. Buccheri, L. Curcio, R. L. Oliveri, A. C. Busacca, and G. Assanto, “Features of randomized electric-field assisted domain inversion in lithium tantalate,” *Optics Express*, Vol. 19, no. 25, pp. 25780–25785, 2011.
- [2] A. Pasquazi, A. C. Busacca, S. Stivala, R. Morandotti, and G. Assanto, “Nonlinear Disorder Mapping Through Three-Wave Mixing,” *IEEE Photonics Journal*, Vol. 2, no. 1, pp. 18–28, 2010.
- [3] S. Stivala, A. C. Busacca, A. Pasquazi, R. L. Oliveri, R. Morandotti, and G. Assanto, “Random quasi-phase-matched second-harmonic generation in periodically poled lithium tantalate,” *Optics Letters*, Vol. 35, no. 3, pp. 363–365, 2010.
- [4] S. E. Skipetrov, “Disorder is the new order,” *Nature*, Vol. 432, pp. 285–286, 2004.
- [5] M. Baudrier-Raybaut, R. Haïdar, P. Kupecek, P. Lemasson, and E. Rosencher, “Random quasi-phase-matching in bulk polycrystalline isotropic nonlinear materials,” *Nature*, Vol. 432, pp. 374–376, 2004.
- [6] A. R. Tunyagi, M. Ulex, and K. Betzler, “Noncollinear Optical Frequency Doubling in Strontium Barium Niobate,” *Physical Review Letters*, Vol. 90, pp. 243901-1–243901-4, 2003.
- [7] R. Fischer, D. N. Neshev, S. M. Saltiel, A. A. Sukhorukov, W. Krolikowski, and Y. S. Kivshar, “Monitoring ultrashort pulses by transverse frequency doubling of counterpropagating pulses in random media,” *Applied Physics Letters*, Vol. 91, pp. 031104-1–031104-3, 2007.
- [8] R. C. Miller, “Optical harmonic generation in single crystal BaTiO₃,” *Physical Review*, Vol. 134, pp. A1313–A1319, 1964.
- [9] C. F. Dewey, and L. O. Hocker, “Enhanced nonlinear optical effects in rotationally twinned crystals,” *Applied Physics Letters*, Vol. 26, no. 8, pp. 442–444, 1975.
- [10] E. Y. Morozov, and A. S. Chirkin, “Stochastic quasi-phase matching in nonlinear-optical crystals with an irregular domain structure,” *Quantum Electronics*, Vol. 34, no. 3, pp. 227–232, 2004.
- [11] A. Arie, and N. Voloch, “Periodic, quasi-periodic and random quadratic nonlinear photonic crystals,” *Laser and Photonics Reviews*, Vol. 4, pp. 355–373, 2010.
- [12] V. A. Mel’nikov, L. A. Golovan, S. O. Konorov, D. A. Muzychenko, A. B. Fedotov, A. M. Zheltikov, V. Y. Timoshenko, and P. K. Kashkarov, “Second-harmonic generation in strongly scattering porous gallium phosphide,” *Applied Physics B*, Vol. 79, pp. 225–228, 2004.
- [13] M. M. Fejer, G. A. Magel, D. H. Jundt, and R. L. Byer, “Quasi-phase-matched second harmonic generation: tuning and tolerances,” *Journal of Quantum Electronics*, Vol. 28, pp. 2631–2654, 1992.

-
- [14] W. Sohler, H. Hu, R. Ricken, V. Quiring, C. Vannahme, H. Herrmann, D. Büchter, S. Reza, W. Grundkötter, S. Orlov, H. Suche, R. Nouroozi, and Y. Min, “Integrated Optical Devices in Lithium Niobate,” *Optics & Photonics News*, Vol. 19, pp. 24-31, 2008.
- [15] Y. Sheng, J. Dou, B. Ma, B. Cheng, and D. Zhang, “Broadband efficient second harmonic generation in media with a short-range order,” *Applied Physics Letters*, Vol. 91, no. 1, pp. 011101-1 011101-3, 2007.
- [16] Y. Sheng, D. Ma, M. Ren, W. Chai, Z. Li, K. Koynov, and W. Krolikowski, “Broadband second harmonic generation in one-dimensional randomized nonlinear photonic crystal,” *Applied Physics Letters*, Vol. 99, no. 3, pp. 031108-1 031108-3, 2011.
- [17] S. Kase and K. Ohi, “Optical absorption and interband Faraday rotation in LiTaO_3 and LiNbO_3 ,” *Ferroelectrics*, Vol. 8, no. 1, pp. 419–420, 1974.
- [18] I. Shoji, T. Kondo, A. Kitamoto, M. Shirane, and R. Ito, “Absolute scale of second- order nonlinear-optical coefficients,” *Journal of the Optical Society of America B*, Vol. 14, no. 9, pp. 2268–2294, 1997.
- [19] M. De Micheli, D. B. Ostrowsky, J. P. Baretty, C. Canali, A. Carnera, G. Mazzi, and M. Papuchon, “Crystalline and optical quality of proton exchanged waveguides,” *Journal of Lightwave Technology*, Vol. 4, no. 7, pp. 743–745, 1986.
- [20] A. C. Busacca, S. Stivala, L. Curcio, P. Minzioni, G. Nava, I. Cristiani, and G. Assanto, “Soft proton exchanged channel waveguides in congruent lithium tantalite for frequency doubling,” *Optics Express*, Vol. 18, no. 25, pp. 25967–25972, 2010.
- [21] G. Nava, P. Minzioni, I. Cristiani, A. C. Busacca, L. Curcio, S. Stivala, and G. Assanto, “Integrated frequency shifter in periodically poled lithium tantalate waveguide,” *Electronics Letters*, Vol. 46, no. 25, pp. 1686–1687, 2010.
- [22] I. E. Barry, G. W. Ross, P. G. R. Smith, R. W. Eason, and G. Cook, “Microstructuring of lithium niobate using differential etch-rate between inverted and non-inverted ferroelectric domains,” *Materials Letters*, Vol. 37, no. 4-5, pp. 246–254, 1998.
- [23] A. C. Busacca, S. Stivala, L. Curcio, A. Andò, and G. Adamo, “Random Quasi-Phase-Matching in Tantalato di Litio: origine del fenomeno, confronto tra propagazione bulk e guidata,” in *Atti del Congresso di Fotonica 2011 - 13° Convegno Nazionale delle Tecnologie Fotoniche*, Genova, Italia, 9-11 maggio 2011.
- [24] A. C. Busacca, E. D’Asaro, A. Pasquazi, S. Stivala, and G. Assanto, “Ultraviolet generation in periodically poled lithium tantalate waveguides,” *Applied Physics Letters*, Vol. 93, no. 12, pp. 121117-1 121117-3, 2008.
- [25] 3900S CW Tunable Ti:sapphire Laser Datasheet, Spectra Physics.
- [26] A. Scarpulla, “Misure di quasi accordo di fase random in guida planare ottica,”

Tesi di Laurea, Università degli studi di Palermo, DIEETCAM, A.A. 2008/09.

- [27] G. Assanto, I. Torelli, and Stefano Trillo, “All-optical processing by means of vectorial interactions in second-order cascading: novel approaches,” *Optics Letters*, Vol. 19, no. 21, pp. 1720-1722, 1994.
- [28] Y. Baek, R. Schiek, G. Stegeman, G. Assanto, and W. Sohler, “All-optical mode mixer spatial switch based on cascading in lithium niobate,” *Applied Physics Letters*, Vol. 72, no. 26, pp. 3405-3407, 1998.
- [29] J. P. Meyn and M. M. Fejer, “Tunable ultraviolet radiation by second-harmonic generation in periodically poled lithium tantalate,” *Optics Letters*, Vol. 22, no. 16, pp. 1214–1216, 1997.
- [30] S. Kawai, T. Ogawa, H. S. Lee, R. C. DeMattei, and R. S. Feigelson, “Second-harmonic generation from needlelike ferroelectric domains in $\text{Sr}_{0.6}\text{Ba}_{0.4}\text{Nd}_2\text{O}_6$ single crystals,” *Applied Physics Letters*, Vol. 73, no. 6, pp. 768-770, 1998.

Progetto, costruzione e realizzazione di un *frequency shifter* in guida d'onda su substrato di Tantalato di Litio con *poling* periodico

6.1 Introduzione

La conversione di frequenza ottica in cristalli che sfruttano la non linearità del secondo ordine è uno dei più interessanti e promettenti mezzi tecnologici per la generazione e l'elaborazione di segnali con alto *bit-rate*.

Oltre alle innumerevoli applicazioni ottenibili col *cascading* parametrico [1-5], gli effetti parametrici vengono impiegati per la compensazione della dispersione e per l'eliminazione della distorsione attraverso le interazioni non lineari che hanno luogo all'interno dei canali ottici di comunicazione [6-11].

L'interazione sinergica tra le ormai ben consolidate tecniche per l'implementazione del *Quasi-Phase-Matching* [12] e la realizzazione di guide d'onda a basse perdite è tale da aver aumentato considerevolmente l'efficienza delle interazioni quadratiche di alcuni ordini di grandezza, tanto da permettere ai dispositivi integrati basati sulla suscettività non lineare del secondo ordine $\chi^{(2)}$ di poter competere, perfino, con quelli che possiedono un valore particolarmente elevato di non linearità del terzo ordine $\chi^{(3)}$. Si pensi ai recenti sviluppi tecnologici realizzati dalla microstrutturazione delle fibre ottiche e dall'ingegneria del vetro per applicazioni ottiche [13].

Reticoli di alta qualità per QPM sono, spesso, implementati in guide d'onda realizzate in cristalli ferroelettrici come Niobato ed il Tantalato di Litio poiché il confinamento dielettrico della radiazione aumenta gli effetti non lineari più di quanto non si abbia nella propagazione libera in *bulk* [14].

E’ possibile, inoltre, costruire dispositivi in LiNbO_3 con *poling* periodico per QPM che abbiano una lunghezza di propagazione di diversi centimetri, di modo che, ottimizzando la conversione parametrica e gli effetti del *wave mixing*, si favorisca la condizione di *phase matching* che, di solito, si realizza, anche attraverso il controllo della temperatura di funzionamento [15]. Però, rimane da dire che un inconveniente della conversione di lunghezza d’onda in guida in campioni di PPLN è la presenza dell’effetto fotorefrattivo (PRE): i cristalli di LN sono vulnerabili alle alte potenze di irradiazione [16]. Per eliminare o ridurre drasticamente il PRE, nei dispositivi in LN, ad alta efficienza, impiegati per l’elaborazione di segnali in banda C, è necessario operare a temperature relativamente alte, generalmente oltre i 100 °C. Questo rende difficile la loro utilizzazione pratica nei collegamenti reali.

Al contrario, le guide d’onda ottiche realizzate all’interno di campioni di Tantalato di Litio con PP, offrono una resistenza superiore al PRE [17] e forniscono un’opportuna efficienza di conversione, come già dimostrato nei substrati di LT stechiometrico [18]. Tra i processi di fabbricazione disponibili per la realizzazione di guide d’onda in LT, le più efficienti sono quelle basate sullo scambio protonico (PE), la cui compatibilità con il *poling* del LT è stata dimostrata [19-21]. In aggiunta, dato che la bassa concentrazione dei protoni, coinvolti nello scambio, influenza solo leggermente la stechiometria del cristallo, possono essere realizzate mediante PE guide d’onda a canale in fase α stabili su campioni di PPLT congruenti (cPPLT) [22]. Le guide d’onda in fase α preservano le proprietà non lineari del LT e mostrano una maggiore stabilità nel tempo se paragonate a quelle realizzate con altre tecniche di fabbricazione, o prodotte con una differente stechiometria di scambio protonico [22].

Finora non sono mai stati fabbricati e caratterizzati dispositivi in guida d’onda che funzionino a lunghezze d’onda per telecomunicazioni su substrati di LT congruente con *poling* periodico. In questo capitolo descriverò, inizialmente, le fasi di realizzazione di questo componente, unico nel suo genere ed, in seguito, parlerò della sua caratterizzazione. Il dispositivo costruito è un duplicatore di frequenza integrato in cPPLT, operante nella banda C (1525-1565 nm) dei sistemi di comunicazione in fibra ottica. E’ stato progettato e realizzato presso i laboratori del CRES di Monreale (Pa), mentre la sua caratterizzazione è avvenuta presso il laboratorio QE Lab dell’Università degli Studi di Pavia [23].

6.2 Criteri progettuali

In questo paragrafo si descrivono i criteri progettuali che hanno consentito la determinazione dei parametri coinvolti nello studio di fabbricazione del *frequency shifter* in guida d'onda.

Si è scelto di impiegare substrati in Tantalato di Litio vista la minore sensibilità di questo materiale all'effetto fotorifrattivo. La temperatura di funzionamento del dispositivo è stata fissata intorno ai 20 °C. Infatti, si voleva progettare un dispositivo che operasse nella banda C delle comunicazioni ottiche, in un intervallo di lunghezze d'onda comprese tra i 1525 e 1565 nm, e che funzionasse a temperatura ambiente per motivi di praticità e per minimizzare i costi di implementazione. Inoltre, per garantire un maggiore confinamento della radiazione, il componente doveva essere in guida d'onda.

Per il calcolo della periodicità del reticolo ci si è riferiti alla configurazione *forward-QPM* già descritta nel paragrafo 1.6. La conservazione del momento, per questa configurazione, è espressa dalla seguente equazione:

$$k_2 - 2k_1 = K_m \quad (6.1)$$

dove con $K_m = m \frac{2\pi}{\Lambda}$ si indica il vettore d'onda introdotto dal reticolo di modulazione del coefficiente non lineare d_{33} . Da quest'ultima formula è possibile ricavare il periodo Λ , affinché sia realizzata la condizione di QPM:

$$\Lambda = m \frac{\lambda_\omega}{2(n_{2\omega} - n_\omega)} \quad (6.2)$$

Trattandosi di FSHG era possibile ottenere facilmente il primo ordine di quasi accordo di fase e, pertanto, si è considerato $m=1$. Per la fabbricazione della guida si è pensato di utilizzare il *soft-Proton-Exchange* con il metodo della “fiala sigillata” [24], impiegando una miscela di acido benzoico e benzoato di litio al 3.6% in peso. Questa composizione di scambio mantiene pressoché inalterata la non linearità del cristallo e permette la fabbricazione di guide ottiche di buona qualità [23].

Per il calcolo degli indici efficaci n_ω e $n_{2\omega}$ ci si sarebbe dovuti riferire agli indici straordinari $n_e(\lambda, T)$ del substrato ed al profilo della guida d'onda. Tuttavia, questi due parametri sono stati, sostituiti, in fase progettuale, con quelli ottenuti mediante l'applicazione dell'equazione di *Sellmeier* [25]:

$$n_e^2(\lambda, T) = A + \frac{B + b(T)}{\lambda^2 - [C + c(T)]^2} + \frac{E}{\lambda^2 - F^2} + D\lambda^2 \quad (6.3)$$

dove $b(T) = 2.6794 \cdot 10^{-8} (T + 273.15)^2$, $c(T) = 1.6234 \cdot 10^{-8} (T + 273.15)^2$, T è espressa in gradi Celsius ($^{\circ}C$) e λ è espressa in micrometri (μm). I parametri A, B, C, D, E, F dipendono dal materiale utilizzato.

Infatti, per semplificare la ricerca di questi valori ed, al contempo, mantenere una buona approssimazione di questi parametri, per n_{ω} si è sostituito il valore di *bulk* visto che la guida era a basso incremento d'indice. La stessa approssimazione è stata fatta per $n_{2\omega}$. E' necessario, però, fare un'opportuna precisazione: nel caso dell'indice di rifrazione visto dalla seconda armonica che si propaga in guida, dato che per essa la guida non è monomodale, ma supporta, come visto sperimentalmente, più modi TM e non solo il TM_{00} fondamentale, teoricamente si sarebbero dovuti considerare tutti gli indici relativi ai diversi modi guidati. Fortunatamente, però, gli indici dei modi supportati dalla guida per la SH variano pochissimo tra di loro ed il loro valore è molto prossimo a quello del *bulk*. Per questi motivi, è stato possibile approssimare il loro valore a quello del *bulk* e stabilirne le variazioni in funzione della temperatura con la formula di Sellmeier, i cui coefficienti sono forniti nel riferimento [25]. Fatte queste considerazioni, fissati i valori secondo i criteri analizzati e considerando per λ_{ω} un valore di 1552 nm (all'interno del *range* della banda C), l'applicazione dell'equazione (6.2) ha permesso di determinare il valore del periodo del reticolo: $\Lambda \approx 20.73 \mu m$ che per motivi tecnologici si è dovuto porre pari a $\Lambda = 20.8 \mu m$. Inoltre, tenendo conto dell'equazione della conservazione dell'energia per il processo di DFG in cascata a quello di SHG:

$$\frac{1}{\lambda_p} = \frac{1}{\lambda_s} + \frac{1}{\lambda_c} \quad (6.4)$$

e utilizzando l'equazione di bilancio dei momenti per tale processo:

$$\frac{n_p}{\lambda_p} - \frac{n_s}{\lambda_s} - \frac{n_c}{\lambda_c} = \frac{1}{\Lambda} \quad (6.5)$$

dove n_p, n_s e n_c sono gli indici di rifrazione visti dalle rispettive lunghezze d'onda. Considerando $\lambda_p = \lambda_{\omega}/2 = 1552/2 = 776$ nm, $\Lambda = 20.8 \mu m$ e fissato $\lambda_s = 1547$ nm si è calcolato $\lambda_c \approx 1557$ nm. Anche quest'ultimo ricadente all'interno della banda prescelta. In questa maniera si è progettato un dispositivo per il *frequency shifter* che, trasla il segnale da $\lambda_{\omega} = 1552$ nm a $\lambda_c = 1557$ nm.

6.3 Costruzione e caratterizzazione lineare del dispositivo

I campioni, impiegati per la realizzazione del dispositivo, sono stati preparati seguendo due *step* tecnologici principali:

1. Produzione di reticoli per QPM su substrati di cLT con *poling* periodico assistito da campo elettrico;
2. Fabbricazione di guide d'onda a canale ottenute mediante *soft* PE.

I substrati provenivano tutti da *wafer* commerciali di Tantalato di Litio congruente della *Yamaju Ceramics Co.*, con taglio *z-cut* e dello spessore di 500 μm . I *wafer* sono stati tagliati in campioni di forma rettangolare delle dimensioni di 16 mm \times 30 mm.

I campioni così ottenuti hanno subito una prima lavorazione consistente nella stesura di un sottile strato di *photoresist* (*Shipley S1813*) dello spessore di 2 micrometri mediante *spin-coating* sulla faccia -z del substrato.

Attraverso litografia standard è stato, poi, realizzato un reticolo lungo 2.247 cm circa, avente periodo $\Lambda=20.8 \mu\text{m}$ lungo la direzione dell'asse x del cristallo. Una notte di *soft-baking* (90 °C) e una cottura lunga 3 ore alla temperatura di 130 °C sono servite a garantire sia una buona adesione del *photoresist* al substrato che un adeguato isolamento elettrico: una temperatura più alta avrebbe portato alla liquefazione del *photoresist* e/o alla sua carbonizzazione. Durante la fase di riscaldamento in forno, la temperatura è stata progressivamente aumentata al fine di evitare l'effetto piroelettrico, la formazione di *poling dots* e l'insorgenza di *stress* meccanici nella struttura reticolare del cristallo.

Per il *poling* del dispositivo, è stato posto su entrambe le superfici del campione uno strato di *gel* elettrolita, così da fornire una bassa resistenza di contatto elettrico alla superficie a contatto diretto con gli elettrodi. Per superare il campo coercitivo del LT e ottenere un'inversione controllata dei domini ferroelettrici che garantisca un omogeneo trasferimento del *pattern* periodico, ho utilizzato un generatore di forme d'onda di tensione amplificato, grazie al quale ho applicato impulsi di 1.3 kV, su un *bias* di 10 kV, aventi un'opportuna durata temporale.

Con questo approccio costruttivo, si ha che i domini invertiti enucleino partendo dalla faccia -z del campione, nella regione sotto gli elettrodi, e si estendono attraverso il substrato, in direzione opposta, verso la faccia +z.

Le guide d'onda a canale, ottenute in campioni di LT, sono state fabbricate sulla faccia -z del cristallo utilizzando una maschera di SiO₂ di 70 nm di spessore, la cui geometria è stata definita mediante fotolitografia [26]. Si sono preparate una serie di guide d'onda a canale di 2.4 centimetri di lunghezza e di larghezza variabile compresa tra gli 8 ed i 13 μm.

Lo scambio protonico è avvenuto, come già detto, utilizzando la tecnica della “fiala sigillata” [24] ed una miscela fusa di acido benzoico e benzoato di litio al 3.6% in peso. Questa stechiometria della composizione di scambio conserva le proprietà ottiche non lineari del cristallo, non muta l'orientamento dei domini del cristallo ed, inoltre, permette di produrre delle guide d'onda in fase α per “soft PE”.

L'intero processo di scambio protonico, avvenuto all'interno della provetta sigillata, ha avuto una durata di 144 ore, la temperatura è stata mantenuta costante all'incirca sui 300 °C ed ha prodotto delle guide d'onda monomodali per lunghezze d'onda ricadenti nel range della banda C delle comunicazioni ottiche.

L'indice efficace corrispondente al modo TM₀ è stato misurato alla lunghezza d'onda di 1.55 μm nella guida d'onda planare, sulla faccetta +z dello stesso campione, usando la spettroscopia *dark m-line* e la tecnica di accoppiamento a prisma. L'incremento complessivo dell'indice efficace rispetto all'indice di rifrazione straordinario del substrato per il modo fondamentale trasverso-magnetico (TM) è stato stimato attorno a 2×10^{-3} . Infine, le faccette d'ingresso e d'uscita del *chip* sono state lucidate a livello ottico per consentire ai modi di radiazione un efficiente accoppiamento all'ingresso ed all'uscita del dispositivo.

La caratterizzazione è stata effettuata a temperatura ambiente con un laser accordabile (in lunghezza d'onda) a cavità esterna (ECL) polarizzato linearmente e accoppiato alla guida mediante l'avvicinamento in ingresso di una fibra ottica (“*butt-coupling*”). Sono stati eccitati dei modi TM. Sono stati usati dei microposizionatori e delle fibre *single-mode standard* aventi un'area efficace $A_{\text{eff}} = 80 \mu\text{m}^2$ e con una perdita di propagazione pari a $\alpha = 0.2 \text{ dB km}^{-1}$ per una lunghezza d'onda di 1550 nm.

La luce in uscita è stata raccolta attraverso un obiettivo da microscopio o mediante accoppiamento *end-fire* con fibra ottica, a seconda della grandezza misurata. La perdita complessiva (da fibra a fibra) per inserzione in guida d'onda è stata calcolata essere pari a 7 dB.

Le perdite di accoppiamento misurate in corrispondenza di ogni faccetta della guida d'onda sono risultate pari a 1.2 dB, e, pertanto, si sono stimate le perdite di propagazione in circa 2 dB cm^{-1} .

Per valutare l'area modale della guida d'onda nel *range* di lunghezze d'onda comprese tra 1525 e 1565 nm, si è analizzata l'immagine ingrandita del modo in uscita, creata utilizzando un obiettivo da microscopio, ed una telecamera *Vidicon* calibrata. La Fig. 6.1(a) mostra una tipica immagine del modo ottico TM_{00} che si propaga in una guida a canale di $13 \mu\text{m}$ di larghezza nominale, mentre le Figg. 6.1(b) e 6.1(c) mostrano, rispettivamente, i profili d'intensità orizzontale e verticale.

L'area efficace del modo TM_{00} era di circa $455 \mu\text{m}^2$ considerando come valore minimo di intensità quello pari a $1/e^2$ del valore di massimo rilevato per la distribuzione di intensità (se si considera, invece, il valore minimo pari a $1/2$, il valore dell'area efficace diventava pari a $110 \mu\text{m}^2$).

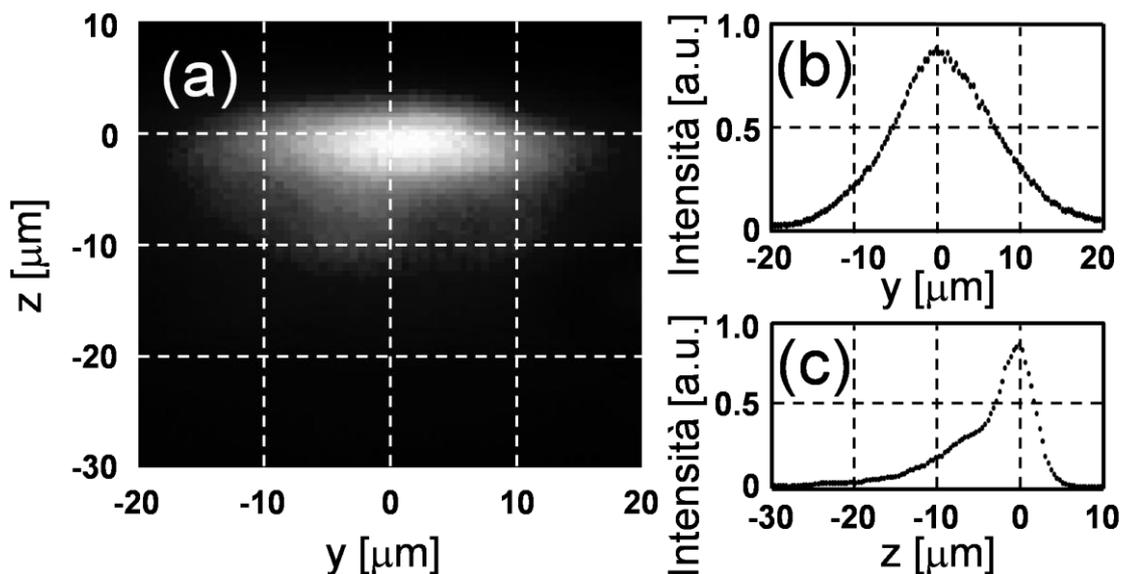


Fig. 6.1 (a) Modo nell'infrarosso misurato all'uscita della guida d'onda di $13 \mu\text{m}$ di larghezza a 1550 nm ; (b) e (c) profili d'intensità orizzontale e verticale, rispettivamente. Nelle immagini (a) e (b) la superficie di separazione LT-aria corrisponde alla coordinata zero dell'asse z . (dal Rif. [23])

Come si evince dalla Fig. 6.2 e come previsto, il modo fondamentale TM era meglio confinato nelle guide d'onda più ampie e, visto il modesto incremento dell'indice, in guide d'onda più strette una parte significativa della potenza ottica si propagava nel substrato.

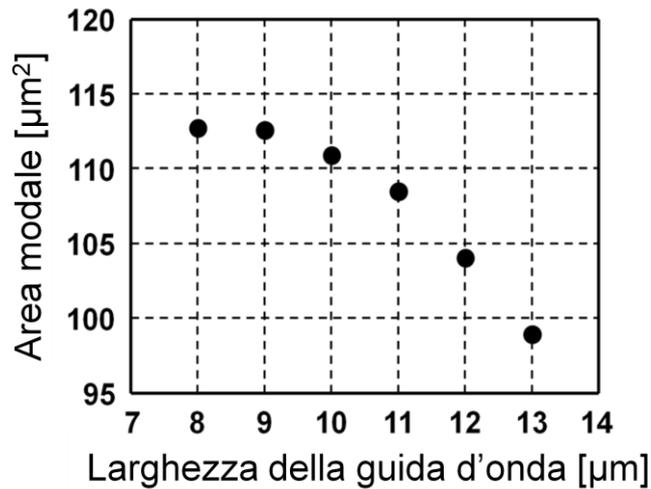


Fig. 6.2 Area del modo TM (definita in corrispondenza di un valore minimo pari ad 1/2 del valore di picco della distribuzione di intensità) misurata alla lunghezza d'onda di 1550 nm in funzione della larghezza nominale della guida. (dal Rif. [23])

6.4 Caratterizzazione non lineare del dispositivo

Le proprietà non lineari dei campioni sono stati valutati considerando la generazione di seconda armonica (SHG). Le guide fabbricate sono, come detto precedentemente, monomodali alle lunghezze d'onda della FF (all'interno delle bande C ed L delle comunicazioni ottiche) mentre supportano diversi modi TM a SH. Grazie all'accordo in lunghezza d'onda della radiazione di pompa permesso dal laser a cavità esterna, si è ottenuto *phase matching* per tre distinte risonanze: il *phase matching* a 1566.90 nm corrispondente all'interazione tra il modo TM_{00} della FF della pompa ed il modo TM_{00} della SH, il *phase matching* a 1552.29 nm derivante dall'interazione tra il modo TM_{00} della FF ed il modo TM_{01} della SH e quello a 1555.43 nm è dovuto all'interazione tra il modo TM_{00} della FF ed il modo TM_{20} della SH (Fig. 6.3). Come previsto, nessuna risonanza per SHG è stata osservata in corrispondenza del *phase matching* con il modo TM_{10} della SH [27]. In accordo con le simulazioni numeriche dei profili modali della FF e dei modi TM di SH, la più alta efficienza di conversione è stata ottenuta dal *phase matching* originato dall'interazione fra il modo TM_{00} della FF della pompa il modo TM_{01} della SH. A causa del diverso grado di confinamento e degli *offset* verticali (lungo la direzione z) della FF e dei modi di SH (si veda la Fig. 6.4), il modo TM_{01} di SH ha prodotto un integrale di sovrapposizione più grande in corrispondenza della frequenza fondamentale di pompa di TM_{00} [29,30], il risultato ottenuto è stato di $0.0408 \mu\text{m}^{-1}$.

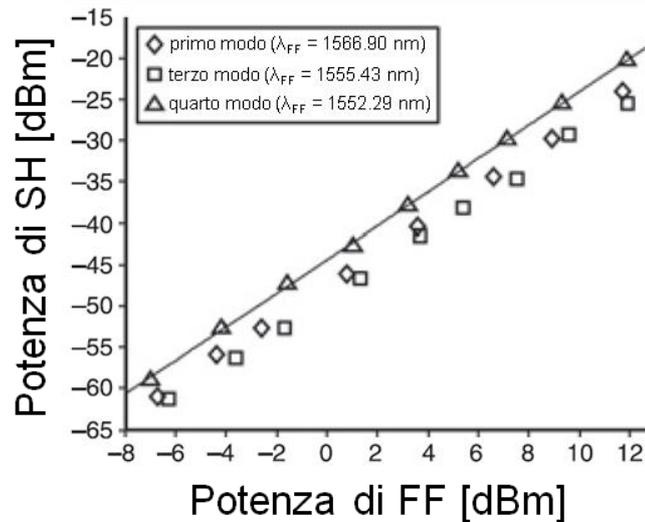


Fig. 6.3 Potenza di SH in funzione della potenza di FF, in scala logaritmica, per tre diversi valori di risonanza di QPM (simboli geometrici); la linea continua è l'interpolazione della più efficiente interazione di SH. (dal Rif. [28])

Dalla misura della efficienza di conversione di SHG in funzione della lunghezza d'onda di FF, rappresentata dal grafico di Fig. 6.5(a), ho valutato la lunghezza effettiva delle interazioni non lineari in circa 2.25 cm [12], tale valore è molto vicino alla lunghezza del reticolo di QPM implementato.

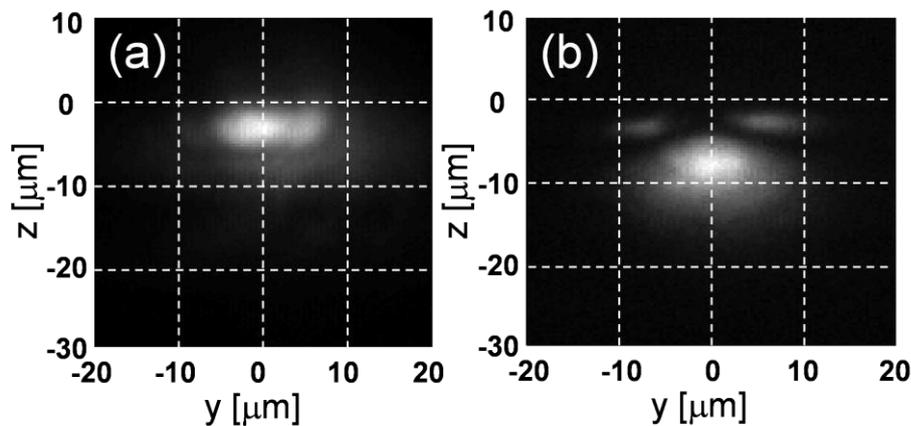


Fig. 6.4 Profili modali misurati alle rispettive frequenze di risonanza e raccolte all'uscita della guida ottica a canale di 13 μm di larghezza: (a) modo TM fondamentale; (b) modo TM. (dal Rif. [23])

Questo risultato può essere attribuito al debole confinamento del modo di pompa, dato che la luce vede un indice efficace molto vicino a quello del substrato. Tuttavia, fornisce anche un'indicazione della buona uniformità del reticolo periodico e del profilo d'indice della guida d'onda. Quest'ultimo parametro può essere molto critico tanto quanto il mantenere costante la sezione trasversale della guida d'onda: entrambi i parametri concorrono al mantenimento del *phase matching* sull'intera lunghezza di

propagazione [27]. Dai dati sperimentali mediati (Fig. 6.5(b)) e raccolti per la interazione di QPM più efficiente, ovvero l'interazione del modo TM_{01} di SH con il modo TM_{00} della FF, si è valutato un'efficienza di conversione per SHG in guida d'onda di $0,07\% \text{ W}^{-1}\text{cm}^{-2}$.

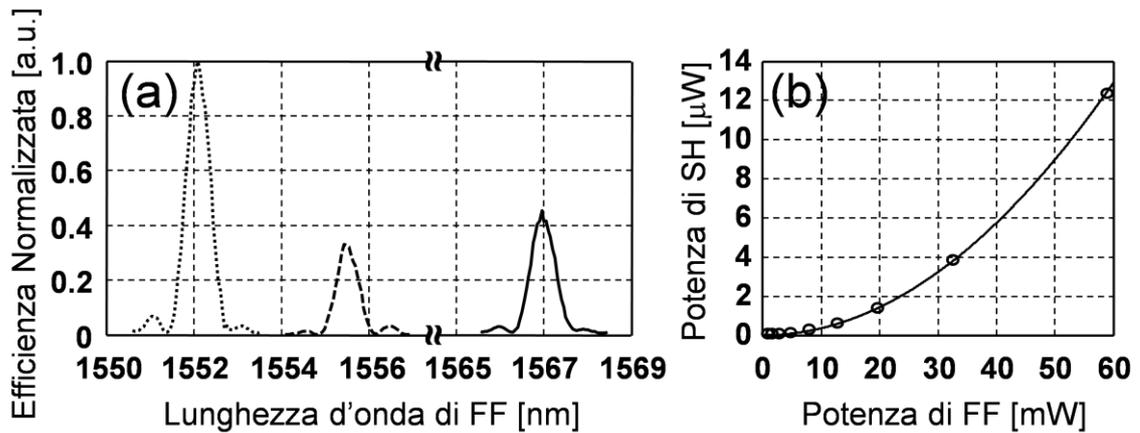


Fig. 6.5 (a) Efficienza di conversione normalizzata misurata di SHG in funzione della lunghezza d'onda di FF. I tre picchi corrispondono alle tre risonanze riscontrate. (b) Potenza del modo TM di SH in funzione della potenza di FF: i dati sperimentali sono indicati dai cerchietti, la linea continua è la parabola interpolante. (dal Rif. [23])

Voglio sottolineare che le misurazioni effettuate indicano come la condizione di *phase matching* per il modo TM_{01} di SH non fosse critica, cioè che la lunghezza d'onda di PM fosse debolmente dipendente dalle dimensioni della guida d'onda.

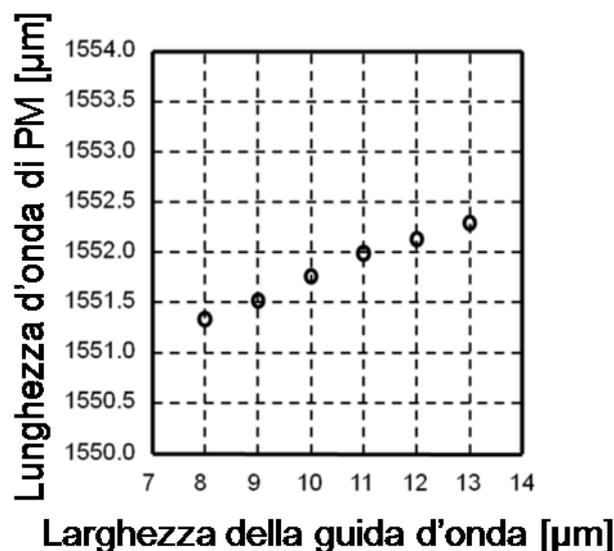


Fig. 6.6 Spostamento della lunghezza d'onda di *phase matching* in funzione della larghezza della guida d'onda [23].

Questo ha reso meno stringenti i requisiti di uniformità e ha aiutato ad ottenere un'efficiente conversione non lineare nelle regioni laddove era stato fabbricato il reticolo di *quasi-phase-matching* (Fig. 6.6).

6.5 Test del dispositivo

Si è testato il dispositivo come convertitore di lunghezze d'onda interamente operante a livello ottico (*All-Optical Wavelength Converter – AOWC*), accoppiando in ingresso due fasci ad onda continua co-propaganti ed aventi due lunghezze d'onda distinte e ricadenti nel *range* della banda C delle telecomunicazioni (Fig. 6.7).

Entrambi gli ingressi sono stati amplificati attraverso amplificatori in fibra drogata con erbio, filtrati (per eliminare il rumore di *out-of-band*) e, quindi, accoppiati al dispositivo mediante un accoppiatore a fibra ottica avente rapporto di accoppiamento pari a 90:10. La polarizzazione lineare dei fasci è stata opportunamente scelta in modo da coincidere con l'asse z del campione PPLT. Il fascio di pompa è stato accordato ad una lunghezza d'onda corrispondente al *phase matching* di SHG ($\lambda_p \approx 1552.29$ nm) ed il fascio di *probe* è stato disaccordato di circa 5 nm ($\lambda_s \approx 1547$ nm). Le potenze ottiche accoppiate, corrispondenti ai fasci interagenti, sono state di circa 100 e 15 mW per la pompa ed il *probe*, rispettivamente.

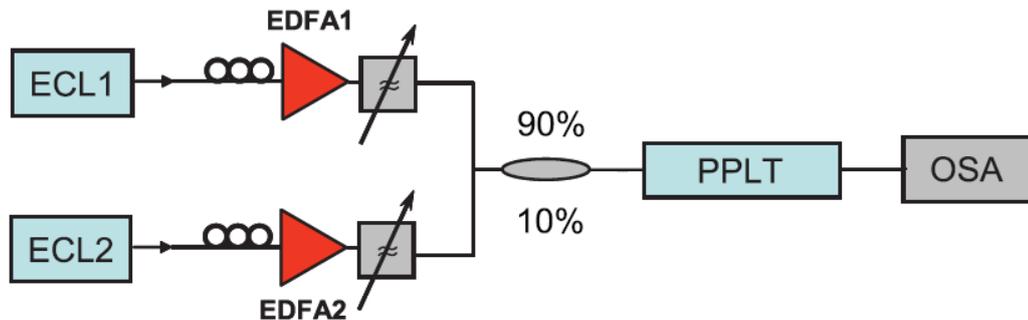


Fig. 6.7 *Set-up* dell'esperimento. I segnali in ingresso prodotti dai laser a cavità esterna (ECL) vengono amplificati mediante amplificatori a fibra ottica drogata con erbio (EDFA). L'efficienza di conversione viene valutata da un analizzatore di spettro ottico (OSA). (dal Rif. [28])

Mediante il “*cascading*” dei processi parametrici SHG e DFG (DFG sta per *Difference Frequency Generation*) il dispositivo ha generato un segnale con lunghezza d'onda pari a $\lambda_c \approx 1557$ nm ed avente una potenza pari a 0,100 nW (Fig. 6.8). Si è, così, dimostrato, per la prima volta, sia confinamento d'onda che conversione parametrica a due stadi in

una guida d'onda a canale realizzata in substrati di Tantalato di Litio per segnali ricadenti nella terza finestra di trasmissione.

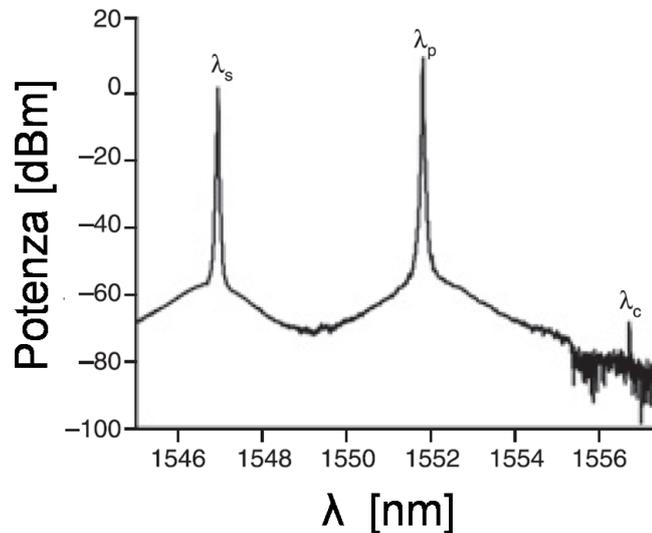


Fig. 6.8 Conversione spettrale realizzata dal dispositivo implementato. Il fascio di pompa λ_p raddoppiato in frequenza tramite SHG interagisce con il fascio λ_s e per DFG si genera il segnale convertito λ_c . (dal Rif. [28])

Quantunque questi primi dispositivi abbiano presentato una efficienza di conversione complessiva piuttosto bassa, la conversione di lunghezza d'onda interamente ottica (AOWC) può essere notevolmente migliorata ed ottimizzata servendosi di guide d'onda con superficie modale ridotta e maggiore lunghezza di propagazione. Sebbene la presenza di radiazioni di SH possano indurre PRE, causa di eventuali forti danneggiamenti al dispositivo, si sottolinea che la AOWC, sperimentata in guide d'onda fabbricate su campioni di LT congruenti, rimane soluzione migliore rispetto a quella che prevede l'impiego del LN, considerata la minore sensibilità del LT all'effetto fotorifrattivo.

6.6 Conclusioni

La conversione di lunghezza d'onda completamente ottica è attualmente una delle tecnologie emergenti nel ramo delle telecomunicazioni per l'elaborazione di segnali ad alta velocità e nelle reti ottiche di grandi capacità [31-35]. Tra le possibili soluzioni tecniche adatte alla realizzazione di tali funzioni, significativa attenzione è stata dedicata al *cascading* parametrico, ovvero al risultato originato dalla successione in cascata dei processi SHG-DFG [36-39]. Il vantaggio principale di questo approccio è la

possibilità di impiegare materiali che abbiano un'alta non linearità del secondo ordine come i cristalli ferroelettrici, nei quali è possibile progettare e realizzare guide d'onda. In questo lavoro, si è realizzato e testato il primo dispositivo *frequency shifter* integrato in guida d'onda, ottenuta per scambio protonico, su substrato di Tantalato di Litio congruente. La scelta del materiale è caduta sul LiTaO_3 in quanto rispetto al LiNbO_3 , possiede una soglia al danneggiamento fotorifrattivo significativamente più alta, pur mantenendo ottime proprietà lineari e non lineari [17,18]. Il Tantalato di Litio, pertanto, era e rimane, a nostro avviso, la soluzione migliore per la conversione di frequenza nelle reti di telecomunicazioni ottiche, a patto che si riescano a mantenere basse le perdite in guida d'onda alle lunghezze d'onda di lavoro nel *range* dell'infrarosso. Studi recentemente condotti su guide ottenute per scambio protonico su cristalli di LiTaO_3 dimostrano la perfetta compatibilità con l'inversione periodica e la microstrutturazione dei domini di questo materiale ferroelettrico [19], nonché la loro stabilità a lungo termine [22]. Le guide d'onda per scambio protonico che operano nella terza finestra (per lunghezze d'onda attorno a $1.5 \mu\text{m}$), tuttavia, non sono state impiegate, fino ad ora, a causa del limitato incremento dell'indice di rifrazione indotta dallo PE in questo intervallo di frequenze.

Si è, quindi, dimostrata la prima guida d'onda a canale per scambio protonico in fase α , su substrato di LiTaO_3 con *poling* periodico, in grado di confinare la radiazione elettromagnetica e permettere la conversione parametrica a due stadi in cascata SHG-DFG operante nel *range* della banda C delle telecomunicazioni. I risultati ottenuti, di sicuro interesse, incoraggiano la prosecuzione della ricerca in tale settore che promette l'implementazione di dispositivi di alte prestazioni, stabili nel tempo, con alte efficienze, semplici da progettare e dai costi limitati.

6.7 Riferimenti bibliografici

- [1] R. DeSalvo, D. J. Hagan, M. Sheik-Bahae, G. Stegeman, E. W. Van Stryland, and H. Vanherzeele, “Self-focusing and self-defocusing by cascaded second-order effects in KTP,” *Optics Letters*, vol. 17, no. 1, pp. 28–30, 1992.
- [2] G. Assanto, G. I. Stegeman, M. Sheik-Bahae, and E. VanStryland, “All Optical Switching Devices Based on Large Nonlinear Phase Shifts from Second Harmonic Generation,” *Applied Physics Letters*, vol. 62, no. 12, pp. 1323–1325, 1993.
- [3] G. Assanto, Z. Wang, D. J. Hagan, and E. VanStryland, “All Optical Modulation via Nonlinear Cascading in Type II Second Harmonic Generation,” *Applied Physics Letters*, vol. 67, no. 15, pp. 2120–2122, 1995.
- [4] G. Assanto, G. I. Stegeman, and R. Schiek, “Thin film devices for all-optical switching and processing via quadratic nonlinearities,” *Thin Solid Films*, vol. 331, no. 1-2, pp. 291–297, 1998.
- [5] A. Buryak, P. Di Trapani, D. Skryabin, and S. Trillo, “Optical solitons due to quadratic nonlinearities: from basic physics to futuristic applications,” *Physics Reports*, vol. 370, no. 2, pp. 63–235, 2002.
- [6] K. Gallo, G. Assanto, and G. I. Stegeman, “Efficient Wavelength Shifting Over the Erbium Amplifier Bandwidth Via Cascaded Second Order Processes in Lithium Niobate Waveguides,” *Applied Physics Letters*, vol. 71, no. 8, pp. 1020–1022, 1997.
- [7] I. Cristiani, M. Rini, A. Rampulla, G. P. Banfí, and V. Degiorgio, “Wavelength conversion of an infrared signal through cascaded second-order nonlinearity in a lithium-niobate channel waveguide,” *Journal of Nonlinear Optical Physics and Materials*, vol. 9, pp. 11–20, 2000.
- [8] M. H. Chou, K. R. Parameswaran, M. M. Fejer, and I. Brener, “Multiple-channel wavelength conversion using engineered quasi-phase-matching structures in LiNbO₃ waveguides,” *Optics Letters*, vol. 24, no. 16, pp. 1157–1159, 1999.
- [9] Y. L. Lee, H. Suche, Y. H. Min, J. H. Lee, W. Grundkotter, V. Quiring, and W. Sohler, “Wavelength- and time-selective all-optical channel dropping in periodically poled Ti:LiNbO₃ channel waveguides,” *IEEE Photonics Technology Letters*, vol. 15, no. 7, pp. 978–980, 2003.
- [10] A. Mecozzi, C. B. Clausen, and M. Shtaif, “System impact of intra-channel nonlinear effects in highly dispersed optical pulse transmission,” *IEEE Photonics Technology Letters*, vol. 12, no. 12, pp. 1633–1635, 2000.
- [11] P. V. Mamyshev, and N. A. Mamysheva, “Pulse-overlapped dispersion-managed data transmission and intrachannel four-wave mixing,” *Optics Letters*, vol. 24, no. 21, pp. 1454–1456, 1999.
- [12] M. M. Fejer, G. A. Magel, D. H. Jundt, and R. L. Byer, “Quasi-phase-matched second harmonic generation: tuning and tolerances,” *IEEE Journal of Quantum Electronics*, vol. 28, no. 11, pp. 2631–2654, 1992.

-
- [13] D. A. Akimov, M. Schmitt, R. Maksimenka, K. V. Dukel'skii, Y. N. Kondrat'ev, A. V. Khokhlov, V. S. Shevandin, W. Kiefer, and A. M. Zheltikov, "Supercontinuum generation in a multiple-submicron-core microstructure fiber: toward limiting waveguide enhancement of nonlinear-optical processes," *Applied Physics B*, vol. 77, no. 2-3, pp. 299–305, 2003.
 - [14] G. I. Stegeman, and G. Assanto, "Nonlinear Integrated Optical Devices," Chap. 11, pp. 381–418 in *Integrated Optical Circuits and Components: Design and Application*, ed. E. J. Murphy, (M. Dekker, New York, 1999).
 - [15] W. Sohler, H. Hu, R. Ricken, V. Quiring, C. Vannahme, H. Herrmann, D. Büchter, S. Reza, W. Grundkötter, S. Orlov, H. Suche, R. Nouroozi, and Y. Min, "Integrated Optical Devices in Lithium Niobate," *Optics and Photonics News*, vol. 19, no. 1, pp. 24–31, 2008.
 - [16] Y. Furukawa, K. Kitamura, S. Takekawa, K. Niwa, and H. Hatano, "Stoichiometric Mg:LiNbO₃ as an effective material for nonlinear optics," *Optics Letters*, vol. 23, no. 24, pp. 1892–1894, 1998.
 - [17] Y. Kondo, and Y. Fujii, "Temperature Dependence of the Photorefractive Effect in Proton-Exchanged Optical Waveguides Formed on Lithium Tantalate Crystals," *Japanese Journal of Applied Physics*, vol. 34, Part 2, no. 3B, pp. 365–367, 1995.
 - [18] M. Marangoni, M. Lobino, R. Ramponi, E. Cianci, and V. Foglietti, "High quality buried waveguides in stoichiometric LiTaO₃ for nonlinear frequency conversion," *Optics Express*, vol. 14, no.1, pp. 248–253, 2006.
 - [19] V. Rastogi, P. Baldi, I. Aboud, P. Aschieri, M. P. De Micheli, D. B. Ostrowsky, and J. P. Meyn, "Effect of proton exchange on periodically poled ferroelectric domains in lithium tantalate," *Optical Materials*, vol. 15, no. 1, pp. 27–32, 2000.
 - [20] P. Baldi, S. Nouh, K. E. Hadi, M. Micheli, D. B. Ostrowsky, D. Delacourt, and M. Papuchon, "Quasi-phase-matched parametric fluorescence in room-temperature lithium tantalate waveguides," *Optics Letters*, vol. 20, no. 13, pp. 1471–1473, 1995.
 - [21] K. El Hadi, P. Baldi, S. Nouh, M. P. De Micheli, A. Leycuras, V. A. Fedorov, and Y. N. Korkishko, "Control of proton exchange for LiTaO₃ waveguides and the crystal structure of H_xLi_{1-x}TaO₃," *Optics Letters*, vol. 20, no. 16, pp. 1698–1700, 1995.
 - [22] A. C. Busacca, E. D'Asaro, S. Riva Sanseverino, and G. Assanto, "Stable Proton Exchanged Waveguides in Lithium Tantalate," *IEEE Photonics Technology Letters*, vol. 20, no. 24, pp. 2126–2128, 2008.
 - [23] A. C. Busacca, S. Stivala, L. Curcio, P. Minzioni, G. Nava, I. Cristiani, and G. Assanto, "Soft proton exchanged channel waveguides in congruent lithium tantalate for frequency doubling," *Optics Express*, vol. 18, no. 25, pp. 25967–25972, 2010.

-
- [24] M. de Micheli, D. B. Ostrowsky, J. P. Baretty, C. Canali, A. Carnera, G. Mazzi, and M. Papuchon, “Crystalline and optical quality of proton exchanged waveguides,” *Journal of Lightwave Technology*, vol. 4, no. 7, pp. 743–745, 1986.
- [25] J. P. Meyn and M. M. Fejer, “Tunable ultraviolet radiation by second-harmonic generation in periodically poled lithium tantalite,” *Optics Letters*, vol. 22, no. 16, pp. 1214-1216, 1997.
- [26] A. Parisi, A. C. Cino, A. C. Busacca, and S. Riva-Sanseverino, “Nonstoichiometric silica mask for fabricating reverse proton-exchanged waveguides in lithium niobate crystals,” *Applied Optics*, vol. 43, no. 4, pp. 940-943, 2004.
- [27] I. Cristiani, C. Liberale, V. Degiorgio, G. Tartarini, and P. Bassi, “Nonlinear characterization and modeling of periodically poled lithium niobate waveguides for 1.5- μ m-band cascaded wavelength conversion,” *Optics Communication*, vol. 187, no. 1-3, pp. 263–270, 2001.
- [28] G. Nava, P. Minzioni, I. Cristiani, A.C. Busacca, L. Curcio, S. Stivala, and G. Assanto, “Integrated frequency shifter in periodically poled lithium tantalate waveguide,” *Electronics Letters*, vol. 46, no. 25, pp. 1686 -1688, 2010.
- [29] S. Stivala, A. Pasquazi, L. Colace, G. Assanto, A. C. Busacca, M. Cherchi, S. Riva-Sanseverino, A. C. Cino, and A. Parisi, “Guided-wave frequency doubling in surface periodically poled lithium niobate: competing effects,” *Journal of the Optical Society of America B*, vol. 24, no. 7, pp. 1564–1570, 2007.
- [30] A. C. Busacca, E. D'Asaro, A. Pasquazi, S. Stivala, and G. Assanto, “Ultraviolet generation in periodically poled lithium tantalate waveguides,” *Applied Physics Letters*, vol. 93, no. 12, Article ID 121117, 2008.
- [31] Y. Fukuchi, and M. Akaike, “Characteristics of all-optical ultrafast gate switches using cascade of second-harmonic generation and difference frequency mixing in quasi-phase-matched lithium niobate waveguides,” *IEEE Journal of Quantum Electronics*, vol. 41, no. 5, pp. 729–734, 2005.
- [32] C. Langrock, S. Kumar, J.E McGeehan, A.E. Willner, and M.M. Fejer, “All-optical signal processing using $\chi^{(2)}$ nonlinearities in guided-wave devices,” *Journal of Lightwave Technology*, vol. 24, no. 7, pp. 2579–2592, 2006.
- [33] P. Minzioni, I. Cristiani, V. Degiorgio, L. Marazzi, M. Martinelli, C. Langrock, and M.M. Fejer, “Experimental demonstration of nonlinearity and dispersion compensation in an embedded link by optical phase conjugation,” *IEEE Photonics Technology Letters*, vol. 18, pp. 995–997, 2006.
- [34] P. Minzioni, “Nonlinearity compensation in a fiber optic link by optical phase conjugation,” *Fiber and Integrated Optics*, vol. 28, pp. 179–209, 2009.
- [35] J. Wang, J. Sun, X. Zhang, D. Huang, and M.M. Fejer, “All-optical format conversions using periodically poled lithium niobate waveguides,” *IEEE Journal of Quantum Electronics*, vol. 45, pp. 195–205, 2009.

- [36] K. Gallo, G. Assanto, and G.I. Stegeman, “Efficient wavelength shifting over the erbium amplifier bandwidth via cascaded second order processes in lithium niobate waveguides,” *Applied Physics Letters*, vol. 71, pp. 1020–1022, 1997.
- [37] I. Cristiani, M. Rini, A. Rampulla, G.P. Banfi, and V. Degiorgio, “Wavelength conversion of an infrared signal through cascaded second-order nonlinearity in a lithium-niobate channel waveguide,” *Journal of Nonlinear Optical Physics and Materials*, vol. 9, pp. 11–20, 2000.
- [38] T. Umeki, M. Asobe, T. Yanagawa, O. Tadanaga, Y. Nishida, K. Magari, and H. Suzuki, “Broadband wavelength conversion based on apodized $\chi^{(2)}$ grating,” *Journal of the Optical Society of America B*, vol. 26, no. 12, pp. 2315–2322, 2009.
- [39] A. Tehranchi, and R. Kashyap, “Improved cascaded sum and difference frequency generation-based wavelength converters in low loss quasi-phase-matched lithium niobate waveguides,” *Applied Optics*, vol. 48, pp. G143–G147, 2009.

Conclusioni

Durante l'attività sperimentale del presente lavoro di tesi, sono stati progettati, realizzati e caratterizzati dispositivi ottici non lineari ad onda confinata, basati sulla tecnologia del *poling* periodico superficiale e *bulk* e sullo scambio protonico del Niobato di Litio e del Tantalato di Litio.

La prima fase del lavoro ha richiesto un lavoro di ricerca e studio, soprattutto per la comprensione dei fenomeni fisici che costituiscono il fondamento teorico del *quasi-phase-matching*, del *poling* periodico dei cristalli ferroelectrici e della generazione di seconda armonica per mezzo della modulazione periodica della suscettività non lineare del secondo ordine. La fabbricazione dei dispositivi ha richiesto l'impiego di sofisticate apparecchiature: sistemi fotolitografici per la definizione delle geometrie guidanti, sistemi di amplificazione e generazione di forme d'onda di alta tensione per i processi di *poling*, sistemi di caratterizzazione lineare di guide ottiche mediante accoppiatore a prisma e lancio *end-fire*, laser accordabili nel visibile e nel vicino IR, microscopio elettronico a scansione (SEM) per l'analisi di superficie ed opportuni apparati per il monitoraggio in tempo reale dei processi implementati.

Le strutture sub-micrometriche realizzate sono state investigate mediante diffrazione di raggi X. Questa collaborazione mi ha permesso di studiare i reticoli realizzati ottenendo informazioni importanti come la qualità generale delle strutture, l'inclinazione delle pareti dei domini ed il periodo dei reticoli. Tutti questi elementi hanno contribuito a migliorare le tecnologie in uso presso il nostro laboratorio al fine di costruire dispositivi sempre più efficienti, compatti e stabili nel tempo.

Ampio spazio è stato dedicato nella descrizione della progettazione, fabbricazione e caratterizzazione di un dispositivo costruito per la generazione di seconda armonica in configurazione retro-propagante. Trattandosi di un fenomeno estremamente difficile da esaminare, lo studio ed il lavoro di ricerca si sono concentrati principalmente sugli aspetti di fabbricazione e di caratterizzazione del componente, portando a risultati originali, ed interessanti soprattutto da un punto di vista fisico: dalla caratterizzazione in regime pulsato si è ottenuta un'efficienza di conversione per il 16° ordine di QPM il cui valore è a tutt'oggi il più alto riscontrato in letteratura.

Si è fabbricato un dispositivo per il *random Quasi-Phase-Matching* e se ne sono discusse le misure realizzate durante le osservazioni sperimentali in *bulk* ed in guida d'onda planare. Si è cercato di dare una spiegazione chiara e, per quanto possibile, dettagliata del fenomeno osservato, alla luce dei risultati conseguiti durante la caratterizzazione del dispositivo implementato. Il fenomeno risulta interessante nelle applicazioni nel campo delle comunicazioni ottiche vista la possibilità di allargamento di banda operata dalle strutture "disordinate". Inoltre, tale fenomeno può essere utilizzato come tecnica altamente precisa e non invasiva per la determinazione delle fluttuazioni del periodo dei reticoli. L'approccio seguito nello studio del fenomeno, oltre ad essere estremamente utile per svariate applicazioni, permette, al contempo, di evidenziare interessanti proprietà fisiche caratteristiche di questo processo, oggetto di ricerca da parte della comunità scientifica.

Infine, si è dimostrato, per la prima volta, un *frequency shifter* in guida d'onda a canale per scambio protonico in fase α , su substrato di Tantalato di Litio con *poling* periodico, in grado di confinare la radiazione elettromagnetica e permettere la conversione parametrica a due stadi in cascata (Generazione di Seconda Armonica-Generazione di Frequenza Differenza) operante nel range della banda C delle telecomunicazioni. Il risultato raggiunto e la sua realizzazione fisica testimoniano senza tema di smentita che dispositivo è perfettamente realizzabile mediante tecnologie di fabbricazione di guide d'onda e di reticoli di *poling* ben consolidate.

Tutti i risultati ottenuti, di sicuro interesse nella speculazione fisica dei processi considerati e dalle svariate applicazioni in campo industriale, incoraggiano e muovono la ricerca verso la realizzazione di componenti ottici integrati per l'elaborazione dei segnali delle telecomunicazioni a livello tutto ottico. Con questo lavoro di tesi si è cercato di dare un contributo, seppur modesto, allo sforzo che la ricerca internazionale sta compiendo da decenni in tale direzione.

Principali pubblicazioni su riviste ISI

Features of randomized electric-field assisted domain inversion in lithium tantalate

Salvatore Stivala,^{1*} Fabrizio Buccheri,¹ Luciano Curcio,¹ Roberto L. Oliveri,¹
Alessandro C. Busacca,¹ and Gaetano Assanto²

¹DIEET, University of Palermo, Viale delle Scienze, Bldg. no. 9, 90128 Palermo, Italy

²Nonlinear Optics and OptoElectronics Lab, University "Roma Tre", Via della Vasca Navale 84, 00146 Rome, Italy

*salvatore.stivala@unipa.it

Abstract: We report on bulk and guided-wave second-harmonic generation via random Quasi-Phase-Matching in Lithium Tantalate. By acquiring the far-field profiles at several wavelengths, we extract statistical information on the distribution of the quadratic nonlinearity as well as its average period, both at the surface and in the bulk of the sample. By investigating the distribution in the two regions we demonstrate a non-invasive approach to the study of poling dynamics.

©2011 Optical Society of America

OCIS codes: (190.0190) Nonlinear optics; (190.2620) Harmonic generation and mixing.

References and links

1. M. M. Fejer, G. A. Magel, D. H. Jundt, and R. L. Byer, "Quasi-phase-matched second harmonic generation: tuning and tolerances," *IEEE J. Quantum Electron.* **28**(11), 2631–2654 (1992).
2. M. Yamada, N. Nada, M. Saitoh, and K. Watanabe, "First order quasi-phase matched LiNbO₃ waveguide periodically poled by applying an external field for efficient blue second harmonic generation," *Appl. Phys. Lett.* **62**(5), 435–436 (1993).
3. A. C. Busacca, C. L. Sones, R. W. Eason, and S. Mailis, "First order quasi-phase matched blue light generation in surface poled Ti-indiffused lithium niobate waveguide," *Appl. Phys. Lett.* **84**(22), 4430–4432 (2004).
4. K. Gallo, C. Codemard, C. B. E. Gawith, J. Nilsson, P. G. R. Smith, N. G. R. Broderick, and D. J. Richardson, "Guided-wave second-harmonic generation in a LiNbO₃ nonlinear photonic crystal," *Opt. Lett.* **31**(9), 1232–1234 (2006).
5. R. DeSalvo, D. J. Hagan, M. Sheik-Bahae, G. Stegeman, E. W. Van Stryland, and H. Vanherzeele, "Self-focusing and self-defocusing by cascaded second-order effects in KTP," *Opt. Lett.* **17**(1), 28–30 (1992).
6. G. I. Stegeman, M. Sheik-Bahae, E. Van Stryland, and G. Assanto, "Large nonlinear phase shifts in second-order nonlinear-optical processes," *Opt. Lett.* **18**(1), 13–15 (1993).
7. G. Assanto, I. Torelli, and S. Trillo, "All-optical processing by means of vectorial interactions in second-order cascading: novel approaches," *Opt. Lett.* **19**(21), 1720–1722 (1994).
8. D. J. Hagan, Z. Wang, G. Stegeman, E. W. Van Stryland, M. Sheik-Bahae, and G. Assanto, "Phase-controlled transistor action by cascading of second-order nonlinearities in KTP," *Opt. Lett.* **19**(17), 1305–1307 (1994).
9. G. Assanto, "Transistor action through nonlinear cascading in Type II interactions," *Opt. Lett.* **20**(15), 1595–1597 (1995).
10. G. Assanto, Z. Wang, D. J. Hagan, and E. W. Van Stryland, "All-optical Modulation via Nonlinear Cascading in Type II Second Harmonic Generation," *Appl. Phys. Lett.* **67**(15), 2120–2122 (1995).
11. G. Assanto, G. I. Stegeman, M. Sheik-Bahae, and E. W. Van Stryland, "Coherent interactions for all-optical signal processing via quadratic nonlinearities," *IEEE J. Quantum Electron.* **31**(4), 673–681 (1995).
12. C. Conti, S. Trillo, and G. Assanto, "Doubly resonant Bragg solitons via second-harmonic generation," *Phys. Rev. Lett.* **78**(12), 2341–2344 (1997).
13. Y. Baek, R. Schiek, G. Stegeman, G. Assanto, and W. Sohler, "All-optical Mode Mixer Spatial Switch Based on Cascading in Lithium Niobate," *Appl. Phys. Lett.* **72**(26), 3405–3407 (1998).
14. K. Gallo, P. Baldi, M. De Micheli, D. B. Ostrowsky, and G. Assanto, "Cascading phase shift and multivalued response in counterpropagating frequency-nondegenerate parametric amplifiers," *Opt. Lett.* **25**(13), 966–968 (2000).
15. G. Assanto and G. I. Stegeman, "Simple physics of quadratic spatial solitons," *Opt. Express* **10**(9), 388–396 (2002).
16. G. Leo, A. Amoroso, L. Colace, G. Assanto, R. V. Roussev, and M. M. Fejer, "Low-threshold spatial solitons in reverse-proton-exchanged periodically poled lithium niobate waveguides," *Opt. Lett.* **29**(15), 1778–1780 (2004).
17. K. Gallo and G. Assanto, "Spatial solitons in $\chi^{(2)}$ planar photonic crystals," *Opt. Lett.* **32**(21), 3149–3151 (2007).
18. K. Gallo, A. Pasquazi, S. Stivala, and G. Assanto, "Parametric solitons in two-dimensional lattices of purely nonlinear origin," *Phys. Rev. Lett.* **100**(5), 053901 (2008).

19. K. Gallo, G. Assanto, and G. I. Stegeman, "Efficient Wavelength Shifting Over the Erbium Amplifier Bandwidth Via Cascaded Second Order Processes in Lithium Niobate Waveguides," *Appl. Phys. Lett.* **71**(8), 1020–1022 (1997).
20. M. H. Chou, I. Brener, M. M. Fejer, E. E. Chaban, and S. B. Christman, "1.5- μm -band wavelength conversion based on cascaded second-order nonlinearity in LiNbO_3 waveguides," *Photon. Technol. Lett.* **11**(6), 653–655 (1999).
21. K. Gallo and G. Assanto, "Analysis of Lithium Niobate all-optical wavelength shifters for the third spectral window," *J. Opt. Soc. Am. B* **16**(5), 741–753 (1999).
22. K. Gallo and G. Assanto, "All-optical diode based on second-harmonic generation in an asymmetric waveguide," *J. Opt. Soc. Am. B* **16**(2), 267–269 (1999).
23. K. Gallo, G. Assanto, K. R. Parameswaran, and M. M. Fejer, "All-optical diode in a periodically-poled Lithium Niobate waveguide," *Appl. Phys. Lett.* **79**(3), 314–316 (2001).
24. X. Gu, M. Makarov, Y. J. Ding, J. B. Khurgin, and W. P. Risk, "Backward second-harmonic and third-harmonic generation in a periodically poled potassium titanyl phosphate waveguide," *Opt. Lett.* **24**(3), 127–129 (1999).
25. X. Mu, I. B. Zotova, Y. J. Ding, and W. P. Risk, "Backward second-harmonic generation in submicron-period ion-exchanged KTP waveguide," *Opt. Commun.* **181**(1-3), 153–159 (2000).
26. C. Canalias and V. Pasiskevicius, "Mirrorless optical parametric oscillator," *Nat. Photonics* **1**(8), 459–462 (2007).
27. A. C. Busacca, E. D'Asaro, A. Pasquazi, S. Stivala, and G. Assanto, "Ultraviolet generation in periodically poled lithium tantalate waveguides," *Appl. Phys. Lett.* **93**(12), 121117 (2008).
28. S. Stivala, A. C. Busacca, A. Pasquazi, R. L. Oliveri, R. Morandotti, and G. Assanto, "Random quasi-phase-matched second-harmonic generation in periodically poled lithium tantalate," *Opt. Lett.* **35**(3), 363–365 (2010).
29. A. Pasquazi, A. C. Busacca, S. Stivala, R. Morandotti, and G. Assanto, "Nonlinear Disorder Mapping Through Three-Wave Mixing," *IEEE Photon. J.* **2**(1), 18–28 (2010).
30. J. S. Pelc, C. R. Phillips, D. Chang, C. Langrock, and M. M. Fejer, "Efficiency pedestal in quasi-phase-matching devices with random duty-cycle errors," *Opt. Lett.* **36**(6), 864–866 (2011).
31. F. Kalkum, H. A. Eggert, T. Jungk, and K. Buse, "A stochastic model for periodic domain structuring in ferroelectric crystals," *J. Appl. Phys.* **102**(1), 014104 (2007).
32. Y. F. Chen, K. W. Su, T. H. Lu, and K. F. Huang, "Manifestation of weak localization and long-range correlation in disordered wave functions from conical second harmonic generation," *Phys. Rev. Lett.* **96**(3), 033905 (2006).
33. R. Fischer, S. M. Saltiel, D. N. Neshev, W. Krolikowski, and Yu. S. Kivshar, "Broadband femtosecond frequency doubling in random media," *Appl. Phys. Lett.* **89**(19), 191105 (2006).
34. M. Horowitz, A. Bekker, and B. Fischer, "Broadband second-harmonic generation in $\text{Sr}_x\text{Ba}_{1-x}\text{Nb}_2\text{O}_6$ by spread spectrum phase matching with controllable domain gratings," *Appl. Phys. Lett.* **62**(21), 2619–2621 (1993).
35. S. Kase and K. Ohi, "Optical absorption and interband Faraday rotation in LiTaO_3 and LiNbO_3 ," *Ferroelectrics* **8**(1), 419–420 (1974).
36. I. Shoji, T. Kondo, A. Kitamoto, M. Shirane, and R. Ito, "Absolute scale of second-order nonlinear-optical coefficients," *J. Opt. Soc. Am. B* **14**(9), 2268–2294 (1997).
37. M. de Micheli, D. B. Ostrowsky, J. P. Baret, C. Canali, A. Carnera, G. Mazzi, and M. Papuchon, "Crystalline and optical quality of proton exchanged waveguides," *J. Lightwave Technol.* **4**(7), 743–745 (1986).
38. A. C. Busacca, S. Stivala, L. Curcio, P. Minzioni, G. Nava, I. Cristiani, and G. Assanto, "Soft proton exchanged channel waveguides in congruent lithium tantalate for frequency doubling," *Opt. Express* **18**(25), 25967–25972 (2010).
39. G. Nava, P. Minzioni, I. Cristiani, A. C. Busacca, L. Curcio, S. Stivala, and G. Assanto, "Integrated frequency shifter in periodically poled lithium tantalate waveguide," *Electron. Lett.* **46**(25), 1686–1687 (2010).
40. I. E. Barry, G. W. Ross, P. G. R. Smith, R. W. Eason, and G. Cook, "Microstructuring of lithium niobate using differential etch-rate between inverted and non-inverted ferroelectric domains," *Mater. Lett.* **37**(4-5), 246–254 (1998).
41. J.-P. Meyn and M. M. Fejer, "Tunable ultraviolet radiation by second-harmonic generation in periodically poled lithium tantalate," *Opt. Lett.* **22**(16), 1214–1216 (1997).

1. Introduction

Electric field assisted periodic poling (PP) is a powerful and versatile technique to achieve Quasi-Phase-Matching (QPM) and efficient frequency conversion with ferroelectric crystals in both 1D and 2D configurations [1–4]. PP-QPM is also crucial towards signal processing via quadratic cascading [5–14], including transverse light localization [15–18], wavelength shifting [19–21], unidirectional optical transmission [22,23]. A few parametric applications, such as backward second-harmonic generation (SHG), counterpropagating optical parametric oscillations and ultraviolet generation, require short periodicities of the nonlinear coefficient distribution, often below $1\mu\text{m}$ [24–27]. Thus, great attention has been recently paid to small irregularities in the periodic

pattern and how they can affect the performance of fabricated devices [28–30]. In fact, the presence of a 2D modulation of the mark-to-space ratio (MTSR) superimposed to a pattern of nominal period Λ (defined by PP electrodes) is inherent to electric field PP and due to the stochastic nature of the nucleation process triggering ferroelectric domain inversion [31].

Randomness in the periodic distribution of the nonlinearity gives rise to several non-collinear grating vectors in Fourier space, thus satisfying momentum conservation in a wide range of wavelengths and yielding broadband SHG [28–30, 32–34]. Such phenomenon, known as random quasi-phase matching (rQPM), is more relevant the shorter the grating period Λ . A non-invasive analysis of the nonlinear susceptibility distribution with its average periodicity along various directions can be crucial in designing and testing parametric components.

Among ferroelectric crystals, Lithium Tantalate (LT) has emerged as one of the most attractive because of its high threshold to photorefractive damage, extended transparency in the UV down to 280 nm [35], large electro-optic and quadratic coefficients [36]. Moreover, LT allows realizing good quality dielectric waveguides by means of proton exchange (PE) [37]; the latter is also compatible with PP and has proven to be an excellent fabrication approach for devices in nonlinear integrated optics [38, 39].

In this paper we discuss bulk and guided-wave SHG via rQPM in Lithium Tantalate, demonstrating how the far-field images of the second harmonic generated at various wavelengths can provide statistical information on the bulk/surface distribution of the quadratic nonlinearity as well as its average period.

2. Samples fabrication and nonlinear characterization

We prepared rQPM samples from optical grade wafers of 500 μm thick z-cut congruent LT. For the periodic poling we applied high voltage pulses across the LT thickness using an electrolyte gel and an insulating mask. After spin coating the $-z$ facet with a 1.5 μm thick photoresist (Shipley 1813), we defined by standard photolithography a $\Lambda = 1.5\mu\text{m}$ period grating with grooves parallel to the y-axis. Subsequently, the samples were soft-baked for 30 minutes at 90°C and, after development, post-baked overnight at 90°C and for 3 hours at 120°C. In order to exceed the LT coercive field we used an electrolyte gel over the photoresist insulating mask and applied a single 1.3 kV pulse on a 10 kV bias for 300 μs , a time interval long enough to achieve periodic ferroelectric domain inversion in the patterned area of 0.06 x 5.0 mm². After poling, some of the samples were etched in a solution of Hydrofluoric Acid (HF 40%) and water (HF: H₂O = 1:10) to reveal the domain patterns on the $-z$ surface [40]. Fig. 1 shows two typical scanning electron micrographs of different portions of the sample: while in most of the area the periodicity of the electrodes is faithfully transferred on the sample (Fig. 1(a)), in some portions a random MTSR is clearly visible in the QPM grating (Fig. 1(b)). The poling dynamics is such that the first enucleated (inverted) domains spread in the x-y crystal plane and become wider than those generated later. Despite the dominant role of the periodic electrodes in defining the ferroelectric grating (as demonstrated by first-order QPM SHG on similar substrates [27]), the final MTSR has non-uniform stochastic features superimposed to the regular pattern. While this effect is known to always occur during electric-field poling, it becomes particularly relevant when the domain size (i.e., period) is small, as in our samples.

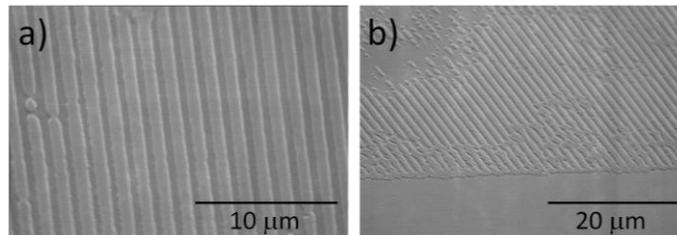


Fig. 1. Scanning electron microphotographs of an etched LT sample after periodic poling: (a) general view and (b) detail of the area by the edge of the poled region.

Slab waveguides were fabricated after poling on the $-z$ facet by “sealed ampoule” proton exchange (PE) [37], using a melt of Benzoic Acid and 3.6% Lithium Benzoate that was proven to preserve the nonlinear optical properties and domain orientation of the crystal [38], realizing “soft PE” waveguides in the α -phase. PE for 144 hours at $\approx 300^\circ\text{C}$ yielded single mode (TM_0) waveguides at the fundamental frequency (FF) wavelengths used in our experiments, with two modes (TM_0 and TM_1) supported at the corresponding second harmonic (SH) wavelengths. Finally, the chip end-facets were polished to optical grade to allow efficient in and out coupling from/to radiation modes.

For the nonlinear characterization, the FF excitation was provided by a cw Ti:Sapphire laser tunable from $\lambda_{\text{FF}} = 700$ to 980nm , with a 40 GHz linewidth and a maximum operating power of 1W. Bulk measurements were performed by employing an $f = 11\text{mm}$ lens to focus the TEM_{00} input beam to a waist of about $27\mu\text{m}$ at the center of the sample; for the measurements in waveguide an additional cylindrical lens ($f = 50\text{mm}$) was used to obtain an elongated beam of about $27 \times 4 \mu\text{m}^2$ and so ensure a good input coupling into the guiding structure. The measurements were performed with an input power of about 40mW and at the constant temperature of 195°C in order to prevent photorefractive effects. In either cases, during propagation in the 5mm-long poled region of the sample, the FF beam generated a frequency doubled signal via rQPM [28].

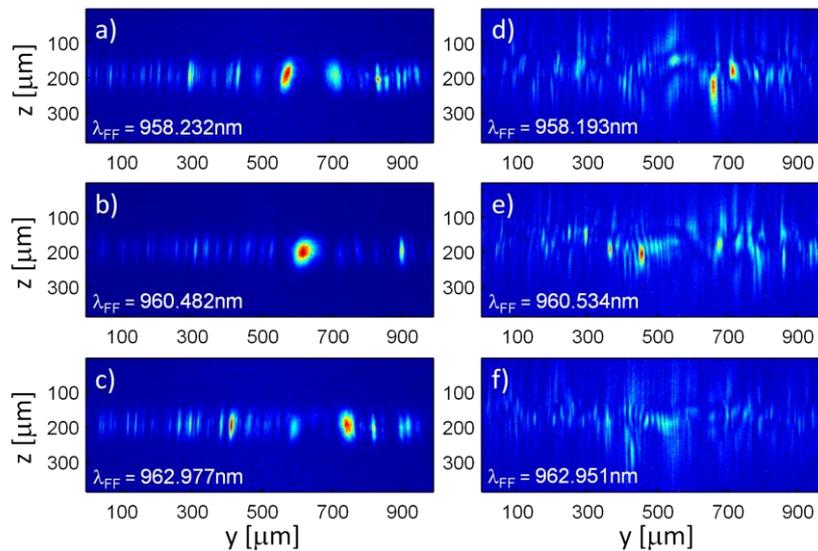


Fig. 2. Acquired far-field SH intensity patterns via rQPM in (a, b, c) bulk and (d, e, f) waveguide samples (the FF wavelength, measured by an optical spectrum analyzer, is indicated in the legends).

In order to acquire FF and SH far-field intensity profiles we positioned a 10x microscope objective by the sample output facet, with the latter 1.5mm away from the ideal object distance; we collected the image with a high resolution CCD camera. A distance $> 1.5\text{mm}$ between lens and field profiles at the sample exit is large enough for the far-field condition to hold. In bulk measurements, as previously reported in Ref [28], the FF beam preserved its Gaussian shape during and after propagation, while the generated SH exhibited a set of finger-like spots, parallel to one another and to the z axis of the crystal, with intensities and distribution strongly depending on location and wavelength of the FF input (Fig. 2(a,b,c,)). During SHG via rQPM in slab waveguides, the symmetry described above for the bulk is broken because of the simultaneous presence of two modes at the SH. In particular, random features in the y -coordinate witness the random MTSR of the poled region (as in bulk), while intensity discontinuities along z are due to the interference between the generated TM_0 and TM_1 modes; since the latter exhibit different effective indices and transverse distributions, their overlap in the far field gives rise to z -modulated distributions for each input (FF) wavelength. The

combination of random features along y and far-field modal interference along z results in the complex patterns displayed in Fig. 2(d, e, f).

3. Data analysis

rQPM (i.e. QPM with randomness in MTSR) contributes several reciprocal lattice vectors in the Fourier spatial domain; hence, SH and FF are non-collinear either in bulk or in planar waveguide configurations. Using the far-field images we linked each SH peak with the angle φ between the wavevectors \mathbf{k}_ω and $\mathbf{k}_{2\omega}$ at FF and SH, respectively. QPM occurs at first-order via the grating vector \mathbf{k}_G , with $|\mathbf{k}_G| = 2\pi/\Lambda_G$ and Λ_G the average period of the random nonlinear coefficient along a specific direction of propagating SH (see Fig. 3).

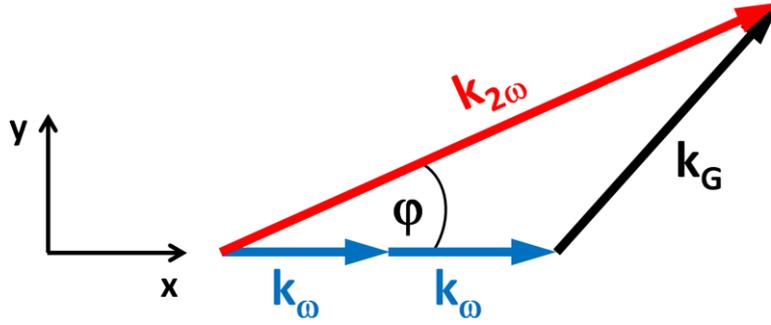


Fig. 3. Sketch of the momentum conservation for SHG via rQPM.

Therefore, three-wave mixing momentum conservation (i.e. phase matching) $\mathbf{k}_{2\omega} - 2\mathbf{k}_\omega - \mathbf{k}_G = \mathbf{0}$ allows using the experimental data (peak positions, i.e., angles φ) to estimate the average period through the equation:

$$k_{2\omega} \cos \varphi - 2k_\omega - k_G \sqrt{1 - \left(\frac{k_{2\omega}}{k_G} \sin \varphi\right)^2} = \frac{4\pi}{\lambda_{FF}} n_2 \cos \varphi - \frac{4\pi}{\lambda_{FF}} n_1 - \frac{2\pi}{\Lambda_G} \sqrt{1 - \left(2 \frac{\Lambda_G}{\lambda_{FF}} n_2 \sin \varphi\right)^2} = 0 \quad (1)$$

where λ_{FF} is the FF wavelength, n_1 and n_2 are the bulk (waveguide) LT refractive (effective) indices for the extraordinary (TM) polarization with electric field along z at FF and SH, respectively. In the guided-wave case, in particular, while n_1 is the effective index of the TM_0^{FF} mode at FF, n_2 may refer to either TM_0^{SH} or TM_1^{SH} modes at SH. Bulk refractive indices at FF and SH were calculated from the Sellmeier equations for LT [41], while the effective indices at the two wavelengths were evaluated with a modal solver and the appropriate graded-index profile of the PE waveguide.

We numerically solved Eq. (1) for the average period Λ_G , using all data on angles φ for about 60 distinct input FF wavelengths between 957 and 963 nm in either bulk or waveguide samples. The resulting (unweighted) histogram provides information on the frequency of occurrence of each periodicity; the same information can be conveniently weighted by the SH conversion efficiency along the directions corresponding to the given periods. The presence of two TM guided modes at SH was exploited to improve the statistical analysis, because two different intensity distributions can be examined at each wavelength, thus roughly doubling the number of estimates.

Figures 4 and 5 display raw and weighted results obtained for bulk and surface samples, respectively. Because of the narrow interval of FF wavelengths used in our experimental campaign we were able to access only the range of periodicities between 3.3 and 5.5 μm . This is due to the connection between the addressable range of spatial periodicities and the tuning range of the FF laser used for the generation of the forward-propagating SH, as previously discussed in Ref [29]. A period of 5.4 μm corresponds to collinear QPM SHG for $\lambda_{FF} = 960\text{nm}$. The found bulk periodicity is consistent with what previously estimated in a similar LT sample [29].

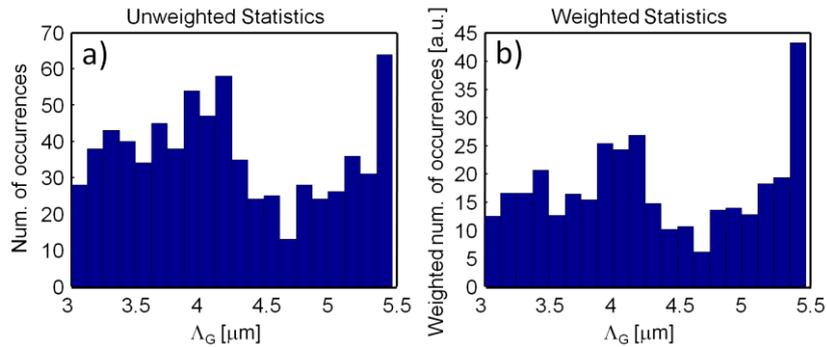


Fig. 4. (a) Histogram with the number of occurrences of values of Λ_G between 3.0 and 5.5 μm when the input FF propagates in the bulk. (b) Same as in (a) but with number of occurrences weighted by SH conversion efficiency along the direction corresponding to a given period.

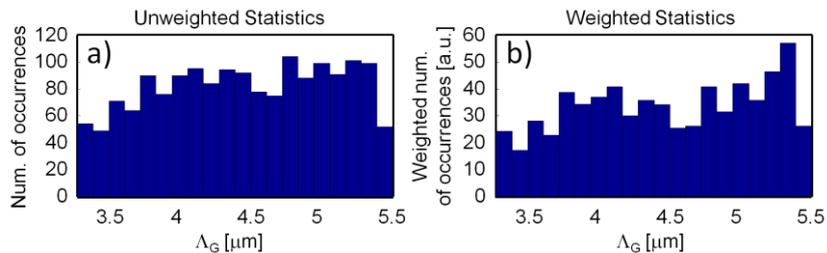


Fig. 5. (a) Histograms with the number of occurrences of Λ_G between 3.0 and 5.5 μm in the slab waveguide. (b) Same as in (a) but with the number of occurrences is weighted with SH conversion efficiency along the direction corresponding to a given period.

4. Conclusions

In conclusion we investigated SHG via rQPM both in bulk LT and in PE waveguides. Measurements of SH intensity profiles in both cases were acquired and employed as a non-invasive tool for estimating the average QPM periodicity in the x-y distribution of the nonlinear coefficient. The presence of a surface guiding structure allowed us to obtain this information both from the bulk and the PE surface region. This statistical approach is a simple and non-invasive means for evaluating the distribution of inverted ferroelectric domains in poled ferroelectric crystals for QPM parametric mixing.

Acknowledgments

This work was supported by the Italian MIUR through PRIN 2007 no. 2007CT355.

Integrated frequency shifter in periodically poled lithium tantalate waveguide

G. Nava, P. Minzioni, I. Cristiani, A.C. Busacca, L. Curcio, S. Stivala and G. Assanto

A frequency shifting device is fabricated and tested in a ferroelectric waveguide in a low-photorefractivity crystal. Periodic poling for quasi-phase-matching and channels for operation in the near-infrared C-band were obtained in congruent lithium tantalate, demonstrating for the first time both wave confinement and two-stage parametric conversion in such waveguides.

Introduction: All-optical wavelength conversion (AOWC) is one of the key technologies for signal processing in high bit-rate and large-capacity optical networks [1–5]. The implementation of AOWC could indeed enable dynamic wavelength-reusage and fault-protection strategies. Among the techniques suitable to realise such functions, significant attention has been devoted to parametric ‘cascading’, i.e. the cascade of second-harmonic generation (SHG) and difference-frequency generation (DFG) [6–9]. The main advantage of this approach is the possibility of exploiting materials with high second-order nonlinearity such as ferroelectric crystals, where waveguide-fabrication and micro-structuring can be engineered. In particular, periodic poling (PP), i.e. the periodic inversion of the crystal nonlinear susceptibility along the direction of wave propagation [10], is very important as it allows the implementation of quasi-phase-matching (QPM) for the efficient parametric generation of the desired wavelength(s), thus overcoming the inherent material dispersion.

Among ferroelectrics, lithium niobate (LN) has reached a high technological maturity thanks to the commercial development of electro-optical modulators for communication systems. A main drawback of PP LN guided-wave devices for AOWC, however, is their sensitivity to the photorefractive effect (PRE): irradiation with high-intensity visible light can alter the phase-matching conditions and severely distort the propagating mode(s), thus becoming a major obstacle to reliability and long-term stability. As compared to LN, lithium tantalate (LT) benefits from a significantly higher threshold to photorefractive damage, while maintaining excellent linear and non-linear properties [11, 12]; therefore LT is ideally suited for nonlinear frequency conversion in communication networks, provided low-loss waveguides can be obtained in the desired wavelength range. To this extent, the use of proton exchange (PE) in LT has been recently proven to be compatible with periodic domain inversion [13] and to exhibit long-term stability [14]. Conversion from near-infrared to ultraviolet at 365 nm has been recently reported in LT channels with conversion efficiencies as high as $7.5\% \text{ W}^{-1} \text{ cm}^{-2}$ [15]. PE waveguides operating in the third-window around $1.5 \mu\text{m}$, however, have not been reported to date owing to the limited index increase via PE at those wavelengths.

In this Letter we report on the first time fabrication of PE channel waveguides in periodically poled congruent LT (PPLT) and their non-linear characterisation as cascaded wavelength shifters in bands C and L of optical communications.

Experiment: Samples of z-cut congruent LT ($16 \times 30 \text{ mm}^2$) were diced from a commercial $500 \mu\text{m}$ -thick wafer. The chips were spin-coated on the $-z$ face, and then patterned by standard lithography to realise a mask with period $20.8 \mu\text{m}$ over a length of 2.25 cm . A $500 \mu\text{s}$ high-voltage pulse (11.3 kV) was applied between the two z-facets in order to exceed the LT coercive field and control the ferroelectric domain inversion; adequate electric contacts were ensured by gel electrolyte. Channels were defined with a lithographically patterned 70 nm -thick SiO_2 mask deposited by plasma-assisted ion-plating [16, 17]. 2.4 cm^{-2} long and $13 \mu\text{m}$ -wide channels were obtained by etching the SiO_2 in a hydro-fluoric solution (in H_2O with a 1:11 molar ratio) and ‘soft’ PE in a mixture of benzoic acid and lithium benzoate (3.6% in weight). To achieve singlemode guiding in the telecom bands C and L while preserving both nonlinear properties and domain orientation, we reached the α -phase and kept the sample at 300°C for six days.

Results: The measured waveguide throughput was -7 dB , including fibre-to-waveguide coupling losses (about 1.2 dB each), i.e. propagation losses $\approx 2 \text{ dB cm}^{-1}$. Using a fundamental frequency (FF) beam in the

TM polarisation from an external cavity laser (ECL), we first characterised QPM-SHG at the resonances of the FF TM_{00} mode with the various TM modes supported at the SH. By tuning the FF we achieved quasi phase-matching at three wavelengths (Fig. 1): the resonance at 1566.90 nm corresponds to the interaction between FF TM_{00} and SH TM_{00} ; those at 1555.43 nm and 1552.29 nm are due to QPM between the FF TM_{00} and SH higher-order modes. Because of modal profiles in the graded-index channel, the highest conversion efficiency was achieved between FF TM_{00} and the fourth SH mode (Fig. 1).

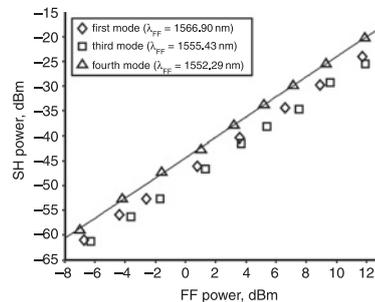


Fig. 1 SH power against FF power at three QPM resonances in log scale (symbols); solid line is best fit for most efficient SH interaction

We then tested the device as an AOWC, input coupling two co-propagating continuous-wave beams at distinct wavelengths in the C-band (Fig. 2). Both inputs were amplified in erbium-doped fibre amplifiers, filtered (to rid of the out-of-band noise) and butt-coupled with a 90/10 fibre coupler. Their linear polarisation was adjusted to match the z-axis of the PPLT. The pump beam was set at the phase-matching for SHG ($\lambda_p \approx 1552.29 \text{ nm}$) and the probe was detuned by $\approx 5 \text{ nm}$ ($\lambda_s \approx 1547 \text{ nm}$). The coupled optical powers were about 100 and 15 mW for pump and probe, respectively.

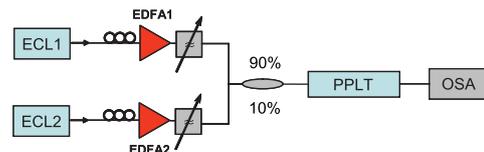


Fig. 2 Experimental setup

Pump and signal produced by ECLs and amplified by erbium-doped fibre amplifiers (EDFAs). Conversion efficiency evaluated with optical spectrum analyser (OSA)

By cascading SHG and DFG the device generated a down-shifted converted signal ($\lambda_c \approx 1557 \text{ nm}$) with power $>100 \text{ nW}$ (Fig. 3), demonstrating for the first time both wave confinement and two-stage parametric conversion in LT channels at wavelengths around $1.5 \mu\text{m}$. Although such first-batch devices exhibit a rather low overall conversion efficiency, the AOWC can be largely improved and optimised in waveguides with reduced modal area and longer propagation length. Since the presence of SH radiation can induce PRE which can strongly deteriorate the device, we stress that the demonstrated AOWC in congruent LT is a better solution than in LN owing to its reduced photorefractive sensitivity.

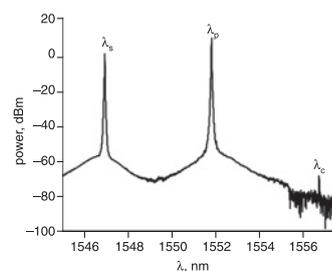


Fig. 3 Spectral conversion in single-pass configuration

Energy transfers from pump beam at λ_p by means of frequency doubled beam at λ_s to idler (output) beam at λ_c

Conclusions: We report the first realisation of α -phase low-loss channel waveguides in low-photorefractivity congruent lithium tantalate for

parametric wavelength generation/conversion in the telecom spectrum. We have demonstrated the first cascaded PPLT wavelength shifter operating in the C and L bands.

© The Institution of Engineering and Technology 2010
10 September 2010

doi: 10.1049/el.2010.2561

One or more of the Figures in this Letter are available in colour online.

G. Nava, P. Minzioni and I. Cristiani (CNISM & Electronics Dept, University of Pavia, Via Ferrata 1, Pavia 27100, Italy)

A.C. Busacca, L. Curcio and S. Stivala (DIEET, University of Palermo, Viale delle Scienze, Bldg no. 9, Palermo 90128, Italy)

E-mail: busacca@unipa.it

G. Assanto (Nonlinear Optics and OptoElectronics Lab, University 'Roma Tre', Via della Vasca Navale 84, Rome 00146, Italy)

References

- 1 Fukuchi, Y., and Akaike, M.: 'Characteristics of all-optical ultrafast gate switches using cascade of second-harmonic generation and difference frequency mixing in quasi-phase-matched lithium niobate waveguides', *IEEE J. Quantum Electron.*, 2005, **41**, (5), pp. 729–734
- 2 Langrock, C., Kumar, S., McGeehan, J.E., Willner, A.E., and Fejer, M.M.: 'All-optical signal processing using $\chi^{(2)}$ nonlinearities in guided-wave devices', *J. Lightwave Technol.*, 2006, **24**, (7), pp. 2579–2592
- 3 Minzioni, P., Cristiani, I., Degiorgio, V., Marazzi, L., Martinelli, M., Langrock, C., and Fejer, M.M.: 'Experimental demonstration of nonlinearity and dispersion compensation in an embedded link by optical phase conjugation', *IEEE Photonics Technol. Lett.*, 2006, **18**, pp. 995–997
- 4 Minzioni, P.: 'Nonlinearity compensation in a fiber optic link by optical phase conjugation', *Fiber Integr. Opt.*, 2009, **28**, pp. 179–209
- 5 Wang, J., Sun, J., Zhang, X., Huang, D., and Fejer, M.M.: 'All-optical format conversions using periodically poled lithium niobate waveguides', *IEEE J. Quantum Electron.*, 2009, **45**, pp. 195–205
- 6 Gallo, K., Assanto, G., and Stegeman, G.I.: 'Efficient wavelength shifting over the erbium amplifier bandwidth via cascaded second order processes in lithium niobate waveguides', *Appl. Phys. Lett.*, 1997, **71**, pp. 1020–1022
- 7 Cristiani, I., Rini, M., Rampulla, A., Banfi, G.P., and Degiorgio, V.: 'Wavelength conversion of an infrared signal through cascaded second-order nonlinearity in a lithium-niobate channel waveguide', *J. Nonlinear Opt. Phys. Mater.*, 2000, **9**, pp. 11–20
- 8 Umeki, T., Asobe, M., Yanagawa, T., Tadanaga, O., Nishida, Y., Magari, K., and Suzuki, H.: 'Broadband wavelength conversion based on apodized $\chi^{(2)}$ grating', *J. Opt. Soc. Am. B*, 2009, **26**, pp. 2315–2322
- 9 Tehranchi, A., and Kashyap, R.: 'Improved cascaded sum and difference frequency generation-based wavelength converters in low-loss quasi-phase-matched lithium niobate waveguides', *Appl. Opt.*, 2009, **48**, pp. G143–147
- 10 Fejer, M.M., Magel, G.A., Jundt, D.H., and Byer, R.L.: 'Quasi-phase-matched second harmonic generation: tuning and tolerances', *IEEE J. Quantum Electron.*, 1992, **28**, pp. 2631–2654
- 11 Kondo, Y., and Fujii, Y.: 'Temperature dependence of the photorefractive effect in proton-exchanged optical waveguides formed on lithium tantalate crystals', *Jpn. J. Appl. Phys.*, 1995, **34**, pp. 365–367
- 12 Marangoni, M., Lobino, M., Ramponi, R., Cianci, E., and Foglietti, V.: 'High quality buried waveguides in stoichiometric LiTaO₃ for nonlinear frequency conversion', *Opt. Express*, 2006, **14**, pp. 248–253
- 13 Rastogi, V., Baldi, P., Aboud, I., Aschieri, P., De Micheli, M.P., Ostrowsky, D.B., and Meyn, J.P.: 'Effect of proton exchange on periodically poled ferroelectric domains in lithium tantalate', *Opt. Mater.*, 2000, **15**, pp. 27–32
- 14 Busacca, A.C., D'Asaro, E., Riva Sanseverino, S., and Assanto, G.: 'Stable proton exchanged waveguides in lithium tantalate', *IEEE Photonics Technol. Lett.*, 2008, **20**, pp. 2126–2128
- 15 Busacca, A.C., D'Asaro, E., Pasquazi, A., Stivala, S., and Assanto, G.: 'Ultraviolet generation in periodically poled lithium tantalate waveguides', *Appl. Phys. Lett.*, 2008, **93**, p. 121117
- 16 Parisi, A., Cino, A.C., Busacca, A.C., and Riva-Sanseverino, S.: 'Nonstoichiometric silica mask for fabricating reverse proton-exchanged waveguides in lithium niobate crystals', *Appl. Opt.*, 2004, **43**, pp. 940–943
- 17 Busacca, A.C., Cino, A.C., Riva Sanseverino, S., Ravaro, M., and Assanto, G.: 'Silica masks for improved surface poling of lithium niobate', *Electron. Lett.*, 2005, **41**, pp. 92–94

Soft proton exchanged channel waveguides in congruent lithium tantalate for frequency doubling

Alessandro C. Busacca,^{1*} Salvatore Stivala,¹ Luciano Curcio,¹ Paolo Minzioni,² Giovanni Nava,² Ilaria Cristiani,² and Gaetano Assanto³

¹*DIET, University of Palermo, Viale delle Scienze, Bldg. no. 9, 90128 Palermo, Italy*

²*CNISM & Electronics Dept., University of Pavia, Via Ferrata 1, 27100 Pavia, Italy*

³*Nonlinear Optics and OptoElectronics Lab, University "Roma Tre", Via della Vasca Navale 84, 00146 Rome, Italy*

*busacca@unipa.it

Abstract: We report on stable optical waveguides fabricated by soft-proton exchange in periodically-poled congruent lithium tantalate in the α -phase. The channel waveguides are characterized in the telecom wavelength range in terms of both linear properties and frequency doubling. The measurements yield a nonlinear coefficient of about 9.5pm/V, demonstrating that the nonlinear optical properties of lithium tantalate are left nearly unaltered by the process.

©2010 Optical Society of America

OCIS codes: (190.4390) Nonlinear optics, integrated optics; (130.3130) Integrated optics materials; (230.7370) Waveguides; (230.4320) Nonlinear optical devices.

References and links

1. R. DeSalvo, D. J. Hagan, M. Sheik-Bahae, G. Stegeman, E. W. Van Stryland, and H. Vanherzeele, "Self-focusing and self-defocusing by cascaded second-order effects in KTP," *Opt. Lett.* **17**(1), 28–30 (1992).
2. G. Assanto, G. I. Stegeman, M. Sheik-Bahae, and E. VanStryland, "All Optical Switching Devices Based on Large Nonlinear Phase Shifts from Second Harmonic Generation," *Appl. Phys. Lett.* **62**(12), 1323–1325 (1993).
3. G. Assanto, Z. Wang, D. J. Hagan, and E. VanStryland, "All Optical Modulation via Nonlinear Cascading in Type II Second Harmonic Generation," *Appl. Phys. Lett.* **67** (15), 2120–2122 (1995).
4. G. Assanto, G. I. Stegeman, and R. Schiek, "Thin film devices for all-optical switching and processing via quadratic nonlinearities," *Thin Solid Films* **331**(1-2), 291–297 (1998).
5. A. Buryak, P. Di Trapani, D. Skryabin, and S. Trillo, "Optical solitons due to quadratic nonlinearities: from basic physics to futuristic applications," *Phys. Rep.* **370**(2), 63–235 (2002).
6. K. Gallo, G. Assanto, and G. I. Stegeman, "Efficient Wavelength Shifting Over the Erbium Amplifier Bandwidth Via Cascaded Second Order Processes in Lithium Niobate Waveguides," *Appl. Phys. Lett.* **71**(8), 1020–1022 (1997).
7. I. Cristiani, M. Rini, A. Rampulla, G. P. Banfi, and V. Degiorgio, "Wavelength conversion of an infrared signal through cascaded second-order nonlinearity in a lithium-niobate channel waveguide," *J. Nonlinear Opt. Phys. Mater.* **9**, 11–20 (2000).
8. M. H. Chou, K. R. Parameswaran, M. M. Fejer, and I. Brener, "Multiple-channel wavelength conversion by use of engineered quasi-phase-matching structures in LiNbO/sub 3/ waveguides," *Opt. Lett.* **24**(16), 1157–1159 (1999).
9. Y. L. Lee, H. Suche, Y. H. Min, J. H. Lee, W. Grundkotter, V. Quiring, and W. Sohler, "Wavelength- and time-selective all-optical channel dropping in periodically poled Ti : LiNbO/sub 3/ channel waveguides," *IEEE Photon. Technol. Lett.* **15**(7), 978–980 (2003).
10. A. Mecozzi, C. B. Clausen, and M. Shtaif, "System impact of intra-channel nonlinear effects in highly dispersed optical pulse transmission," *IEEE Photon. Technol. Lett.* **12**(12), 1633–1635 (2000).
11. P. V. Mamyshev, and N. A. Mamysheva, "Pulse-overlapped dispersion-managed data transmission and intrachannel four-wave mixing," *Opt. Lett.* **24**(21), 1454–1456 (1999).
12. M. M. Fejer, G. A. Magel, D. H. Jundt, and R. L. Byer, "Quasi-phase-matched second harmonic generation: tuning and tolerances," *IEEE J. Quantum Electron.* **28**(11), 2631–2654 (1992).
13. D. A. Akimov, M. Schmitt, R. Maksimenka, K. V. Dukel'skii, Y. N. Kondrat'ev, A. V. Khokhlov, V. S. Shevandin, W. Kiefer, and A. M. Zheltikov, "Supercontinuum generation in a multiple-submicron-core microstructure fiber: toward limiting waveguide enhancement of nonlinear-optical processes," *Appl. Phys. B* **77**(2-3), 299–305 (2003).
14. G. I. Stegeman, and G. Assanto, "Nonlinear Integrated Optical Devices," Chap. 11, pp. 381–418 in *Integrated Optical Circuits and Components: Design and Application*, ed. E. J. Murphy, (M. Dekker, New York, 1999).

15. W. Sohler, H. Hu, R. Ricken, V. Quiring, C. Vannahme, H. Herrmann, D. Büchter, S. Reza, W. Grundkötter, S. Orlov, H. Suche, R. Nouroozi, and Y. Min, "Integrated Optical Devices in Lithium Niobate," *Opt. Photon. News* **19**(1), 24–31 (2008).
16. Y. Furukawa, K. Kitamura, S. Takekawa, K. Niwa, and H. Hatano, "Stoichiometric Mg:LiNbO/sub 3/ as an effective material for nonlinear optics," *Opt. Lett.* **23**(24), 1892–1894 (1998).
17. Y. Kondo, and Y. Fujii, "Temperature Dependence of the Photorefractive Effect in Proton-Exchanged Optical Waveguides Formed on Lithium Tantalate Crystals," *Jpn. J. Appl. Phys.* **34**(Part 2, No. 3B), 365–367 (1995).
18. M. Marangoni, M. Lobino, R. Ramponi, E. Cianci, and V. Foglietti, "High quality buried waveguides in stoichiometric LiTaO/sub 3/ for nonlinear frequency conversion," *Opt. Express* **14**(1), 248–253 (2006), <http://www.opticsinfobase.org/oe/abstract.cfm?uri=oe-14-1-248>.
19. V. Rastogi, P. Baldi, I. Aboud, P. Aschieri, M. P. De Micheli, D. B. Ostrowsky, and J. P. Meyn, "Effect of proton exchange on periodically poled ferroelectric domains in lithium tantalate," *Opt. Mater.* **15**(1), 27–32 (2000).
20. P. Baldi, S. Nouh, K. E. Hadi, M. Micheli, D. B. Ostrowsky, D. Delacourt, and M. Papuchon, "Quasi-phase-matched parametric fluorescence in room-temperature lithium tantalate waveguides," *Opt. Lett.* **20**(13), 1471–1473 (1995).
21. K. El Hadi, P. Baldi, S. Nouh, M. P. De Micheli, A. Leycuras, V. A. Fedorov, and Y. N. Korkishko, "Control of proton exchange for LiTaO₃ waveguides and the crystal structure of H/sub x/Li/sub (1-x)/TaO/sub 3/," *Opt. Lett.* **20**(16), 1698–1700 (1995).
22. A. C. Busacca, E. D'Asaro, S. Riva Sanseverino, and G. Assanto, "Stable Proton Exchanged Waveguides in Lithium Tantalate," *IEEE Photon. Technol. Lett.* **20**(24), 2126–2128 (2008).
23. A. Parisi, A. C. Cino, A. C. Busacca, and S. Riva-Sanseverino, "Nonstoichiometric silica mask for fabricating reverse proton-exchanged waveguides in lithium niobate crystals," *Appl. Opt.* **43**(4), 940–943 (2004).
24. M. de Micheli, D. B. Ostrowsky, J. P. Baretty, C. Canali, A. Carnera, G. Mazzi, and M. Papuchon, "Crystalline and optical quality of proton exchanged waveguides," *J. Lightwave Technol.* **4**(7), 743–745 (1986).
25. I. Cristiani, C. Liberale, V. Degiorgio, G. Tartarini, and P. Bassi, "Nonlinear characterization and modeling of periodically poled lithium niobate waveguides for 1.5- μ m-band cascaded wavelength conversion," *Opt. Commun.* **187**(1-3), 263–270 (2001).
26. S. Stivala, A. Pasquazi, L. Colace, G. Assanto, A. C. Busacca, M. Cherchi, S. Riva-Sanseverino, A. C. Cino, and A. Parisi, "Guided-wave frequency doubling in surface periodically poled lithium niobate: competing effects," *J. Opt. Soc. Am. B* **24**(7), 1564–1570 (2007).
27. A. C. Busacca, E. D'Asaro, A. Pasquazi, S. Stivala, and G. Assanto, "Ultraviolet generation in periodically poled lithium tantalate waveguides," *Appl. Phys. Lett.* **93**(12), 121117 (2008).

1. Introduction

Optical frequency conversion via parametric mixing in second-order nonlinear crystals is a key technology for wavelength generation and signal processing at high bit-rates. Besides the various applications via quadratic cascading [1–5], parametric effects have been proposed and implemented towards channel dropping/shifting, dispersion compensation and the suppression of nonlinear interactions experienced by optical pulses [6–11].

Nowadays, mature Quasi-Phase-Matching (QPM) techniques [12] in conjunction with low-loss waveguides have increased by orders of magnitude the efficiency of quadratic interactions, allowing $\chi^{(2)}$ -based integrated devices to compete even with record high $\chi^{(3)}$ nonlinearities achieved e. g. through fiber microstructuring and glass engineering [13]. High quality QPM gratings are often implemented in waveguides realized in ferroelectric crystals such as Lithium Niobate (LN) and Lithium Tantalate (LT), as dielectric confinement can enhance nonlinear effects as compared to free propagation in bulk [14]. Nowadays, QPM periodically poled lithium niobate (PPLN) can be prepared with propagation lengths up to several inches, thereby optimizing parametric conversion and wave mixing effects with precise tuning of the phase matching condition usually achieved by controlling the operating temperature [15]. A concern about wavelength conversion in PPLN waveguides is the photorefractive effect (PRE), since LN crystals are vulnerable to high-power light irradiation [16]. To suppress or drastically reduce the PRE, high-efficiency devices based on LN for signal processing in the C band need be operated at relatively high temperature, generally above 100°C, thus making difficult their practical utilization in actual links.

At variance with PPLN, optical waveguides in PP Lithium Tantalate (PPLT) offer superior resistance to the PRE [17] and provide reasonable conversion efficiency, as demonstrated with stoichiometric LT substrates [18]. Among the available processes for waveguide fabrication in LT, the most successful are those based on proton exchange (PE), whose compatibility with LT poling was demonstrated in Ref [19–21]. Since low proton concentration affects only slightly the crystal stoichiometry, stable α -phase channel waveguides in congruent PPLT

(cPPLT) can be realized by PE [22]. Noteworthy, α -phase waveguides preserve LT nonlinear properties and show a better long-term stability when compared to samples prepared with other fabrication techniques, or different proton-exchange conditions [22]. To date, however, guided-wave devices operating at telecom wavelengths were never demonstrated in electric field PP congruent LT. In this paper we report the first fabrication and characterization of integrated frequency doublers in cPPLT, operating in the C-band (1525-1565nm) of fiber communication systems.

2. Waveguide fabrication and linear characterization

The samples were prepared following two main technological steps: (i) realization of QPM gratings by electric-field assisted periodic poling of LT z-cut substrates, (ii) fabrication of channel waveguides by soft proton exchange. A commercial (Yamaju Ceramics) congruent LT wafer (z-cut, 500 μ m thick) was diced into rectangular samples (16 mm \times 30 mm) prior to spin-coating with a 2 μ m thick photoresist (Shipley S1813) film on the $-z$ facet. Standard lithography was employed to realize a 2.25 cm long grating with period $\Lambda = 20.8\mu$ m along x. An overnight soft-baking (90°C) and a 3h long 130°C baking were necessary to ensure both a good adhesion of the photoresist to the substrate and an adequate electric insulation. Higher temperature would eventually result in photoresist melting and/or carbonization. The temperature was gradually raised in order to avoid the pyroelectric effect, the formation of poling dots and the insurgence of mechanical stress in the crystal. The sample was placed between gel electrolyte layers to provide low-resistance electric contact. In order to exceed the LT coercive field and obtain a controlled periodic inversion of the ferroelectric domains, we used a voltage amplified waveform generator to apply 1.3 kV pulses over a 10 kV bias for appropriate time intervals. With this approach, the inverted domains enucleated from the $-z$ facet in the region under the electrodes and extended towards the $+z$ facet.

LT channel waveguides were fabricated on the $-z$ facet of the crystal using a lithographically patterned 70nm-thick SiO₂ mask [23]. We prepared a set of 2.4cm-long channel waveguides of widths ranging from 8 to 13 μ m using the “sealed ampoule” PE technique [24]. A melted mixture of Benzoic Acid and 3.6% Lithium Benzoate preserved the nonlinear optical properties and domain orientation of the crystal, realizing “soft PE” waveguides in the α -phase. Proton exchange for 144 hours at $\approx 300^\circ\text{C}$ yielded single mode waveguides at telecom wavelengths. The TM₀ corresponding effective index was measured at 1.55 μ m in the planar waveguide on the $+z$ face of the same sample using dark m-line spectroscopy and the prism coupling technique. The overall effective index increase with respect to the extraordinary refractive index of the substrate for the fundamental transverse-magnetic (TM) mode was estimated around 2×10^{-3} . Finally, the chip end-facets were polished to optical grade to allow efficient in and out coupling to radiation modes.

The characterization was carried out at room-temperature with a wavelength tunable external-cavity laser (ECL) linearly polarized and butt-coupled to the waveguides in order to excite TM modes; we used micro-positioners and standard single-mode fibers with an effective area $A_{\text{eff}} = 80\mu\text{m}^2$ and propagation losses $\alpha = 0.2 \text{ dB km}^{-1}$ at 1550nm. The output light was collected via either a microscope objective or fiber end-fire coupling, depending on the measured quantity. The overall (fiber to fiber) insertion losses in the waveguide amounted to 7dB. From our measurements the coupling loss at each waveguide facet resulted equal to 1.2dB, and hence we estimated the propagation losses in about 2 dB cm^{-1} .

To evaluate the waveguide modal area in the range 1525-1565nm, we analyzed the magnified image of the output mode, created by using microscope objective, with a calibrated Vidicon camera. Figure 1(a) displays a typical image of the optical TM₀₀ mode in a channel of nominal width 13 μ m, with Fig. 1(b) and Fig. 1(c) showing horizontal and vertical transverse profiles, respectively.

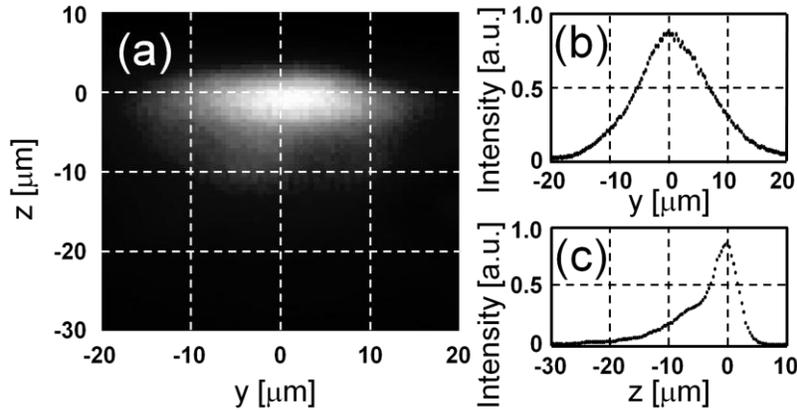


Fig. 1. (a) Near infrared mode measured at the output of the 13 μm -wide channel waveguide at 1550nm; (b) and (c) graph horizontal and vertical profiles, respectively. Here the LT-air surface corresponds to the zero of the coordinate z in (a) and (c).

The TM_{00} effective area was $\approx 455 \mu\text{m}^2$ at $1/e^2$ ($\approx 110 \mu\text{m}^2$ at $1/2$) with respect to the peak intensity distribution. As visible in Fig. 2 and expected, the fundamental TM mode was better confined in wider waveguides because, due to the low index increase, in narrow waveguides a significant part of the optical power propagated into the substrate.

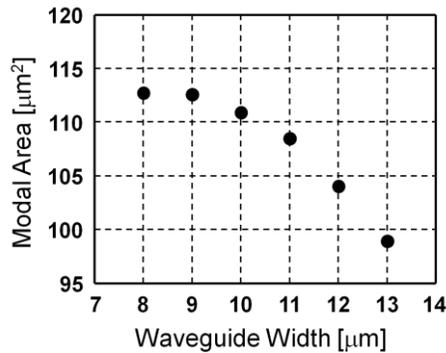


Fig. 2. TM_{00} modal area (at $1/2$ peak) measured at 1550nm versus nominal waveguide width.

3. Nonlinear characterization

The nonlinear properties of the samples were evaluated in terms of Second Harmonic Generation (SH-G). Owing to the higher equivalent frequency (or thickness) of the waveguide at SH, several TM modes of SH were supported by each channel. By tuning the fundamental frequency (FF) wavelength of the ECL we were able to achieve phase-matching on three distinct resonances: phase matching at $\approx 1567\text{nm}$ corresponded to the interaction between the FF TM_{00} pump and the TM_{00} mode of the SH; phase matching at $\approx 1555\text{nm}$ and $\approx 1552\text{nm}$ stemmed from the interactions between the FF TM_{00} and SH TM_{20} and TM_{01} modes, respectively. As expected, no SHG resonance was observed corresponding to phase matching with the SH TM_{10} mode [25].

In line with numerical simulation of the corresponding modal profiles for FF and SH TM modes, the highest conversion efficiency was obtained by phase-matching the FF TM_{00} pump and the SH TM_{01} mode. Owing to the different degrees of confinement and vertical (i.e. along z) offsets of FF and SH modes (see Fig. 3), the TM_{01} mode at SH yielded the largest overlap integral with the fundamental frequency pump TM_{00} [26,27], resulting in $\approx 0.0408\mu\text{m}^{-1}$.

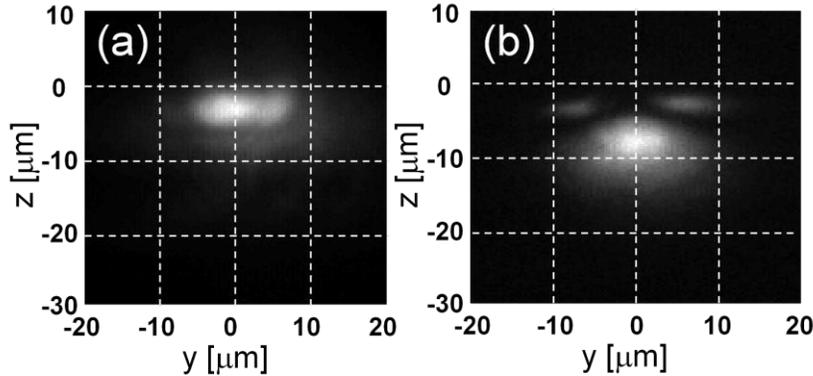


Fig. 3. SH Modal profiles measured at the respective resonances and taken at the output of a 13 μm -wide channel: (a) fundamental mode TM_{00} ; (b) TM_{01} mode.

From the measurement of SHG conversion efficiency versus FF wavelength, presented in Fig. 4(a), we evaluated the effective length of the nonlinear interaction to be ≈ 2.25 cm [12], such a value being very close to the actual extension of the QPM grating. This result can be ascribed to the weak confinement of the pump mode, with light experiencing an effective refractive index very close to that of the substrate. Nevertheless, it gives also an indication of the good uniformity of the periodically poled grating and of the waveguide profile. The latter parameter can be very critical as a constant waveguide cross section is crucial to maintain phase-matching over the whole propagation length [25]. From the averaged experimental data shown in Fig. 4(b) and collected in the case of the most efficient QPM interaction, i.e. the SH TM_{01} with the FF TM_{00} , we evaluated a waveguide SHG efficiency of $0.07\% \text{W}^{-1} \text{cm}^{-2}$.

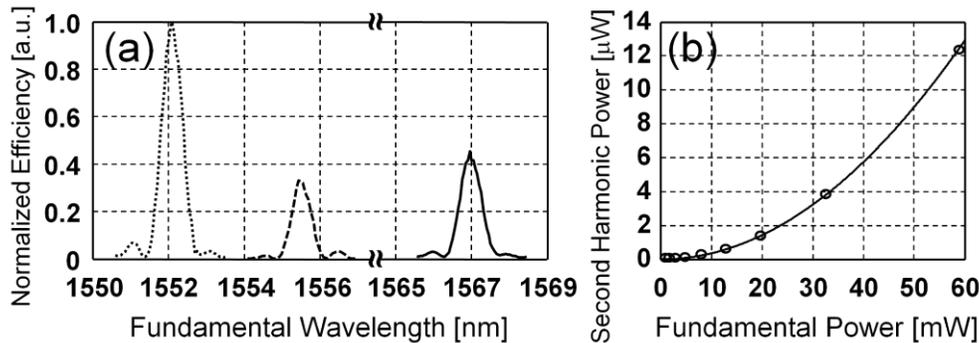


Fig. 4. (a) Measured normalized SHG conversion efficiency versus FF wavelength. The three peaks correspond to the FF interaction with the TM_{00} (solid line), TM_{20} (dashed line) and TM_{01} (dotted line) SH modes. (b) SH power versus FF excitation with a TM_{00} mode: data (symbols) and parabolic fit (solid line).

Noteworthy, our measurements indicate that the PM condition for the SH TM_{01} mode is not critical, i.e. the PM wavelength is weakly dependent on the waveguide size. This eases the requirements on uniformity and helps obtaining efficient nonlinear conversion in the regions with the quasi-phase-matching grating was fabricated (Fig. 5).

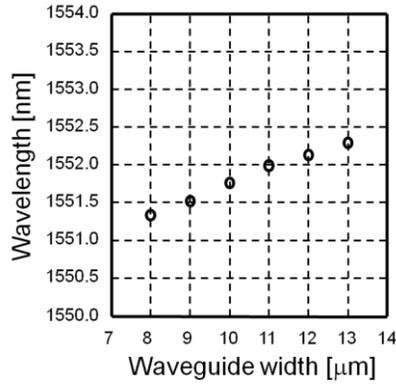


Fig. 5. PM wavelength shift versus waveguide width.

4. Conclusions

In conclusion, we reported on the first realization of α -phase low-loss channel waveguides in electric field periodically poled LT for signal transmission and quasi phase matched second harmonic generation from telecom wavelengths. The soft proton exchanged waveguides confine light better in wider channels and provide quasi phase matching of the TM_{00} mode at the fundamental frequency with higher-order second-harmonic TM modes.

Acknowledgements

This work was funded by the Italian MIUR through PRIN 2007 no. 2007CT355. The authors wish to thank Prof. V. Degiorgio and Prof. S. Riva Sanseverino for their advice and encouragement.

Continuous-wave backward frequency doubling in periodically poled lithium niobate

S. Stivala,¹ A. C. Busacca,¹ L. Curcio,¹ R. L. Oliveri,¹ S. Riva-Sanseverino,¹ and Gaetano Assanto^{2,a)}

¹DIEET, University of Palermo, Viale delle Scienze, Bldg. no. 9, 90128 Palermo, Italy

²Nonlinear Optics and OptoElectronics Laboratory (NooEL), University "Roma Tre", Via della Vasca Navale 84, 00146 Rome, Italy

(Received 11 February 2010; accepted 24 February 2010; published online 17 March 2010)

We report on backward second-harmonic-generation in bulk periodically poled congruent lithium niobate with a 3.2 μm period. A tunable continuous-wave Ti:sapphire laser allowed us exciting two resonant quasi-phase-matching orders in the backward configuration. The resonances were also resolved by temperature tuning and interpolated with standard theory to extract relevant information on the sample. © 2010 American Institute of Physics. [doi:10.1063/1.3364934]

Periodic domain inversion by electric field poling of nonlinear ferroelectric crystals is a well known technique to achieve efficient three-wave interactions via quasi-phase matching (QPM).^{1,2} Backward-second-harmonic-generation (BSHG), an up-conversion process with the fundamental frequency (FF) and its second harmonic propagating in opposite directions, was introduced by Harris in Ref. 3 and studied in detail in Refs. 4 and 5. Its first experimental observations via QPM⁶ and in periodically poled (PP) congruent lithium niobate (LN),^{7,8} exploiting high orders of resonance in gratings of periods of 3–4 μm . Recent technological improvements allowed fabricating submicron-period gratings in potassium titanyl phosphate (KTP) waveguides and bulk, observing BSHG at lower QPM orders.^{9,10}

Among the configurations to be implemented in counter-propagating configurations, Conti *et al.*^{11,12} proposed purely nonlinear gap-solitons and cavityless oscillators, Canalias *et al.*¹³ demonstrated a mirrorless optical parametric oscillator in bulk KTP. BSHG by a continuous wave (cw) input in PPLN was previously reported only in Ref. 14, even though this type of excitation seems to be more appropriate for fine tuning the FF wavelength to the very sharp resonance(s) characteristic of this parametric process.

Herein we describe fabrication and cw nonlinear characterization of a 3.2 μm -period PPLN bulk sample. After discussing first-order QPM for *forward* SHG, we report our results on *backward* SHG with two different resonant orders, using thermo-optic adjustments as well as FF wavelength tuning. The experimental results are in good agreement with the predictions and, through standard modeling, permit a diagnostic assessment of the technologic shortcomings.

The sample was prepared in a polished optical-grade wafer of congruent lithium niobate 500 μm thick. By standard photolithography a one-dimensional grating (15 mm long and 10 mm wide) of period 3.2 μm was defined over a length of 3 mm on a 2- μm -thick film of positive photoresist (Shipley S1813) spin-coated on the $-Z$ facet. After development, the pattern was soft-baked overnight at 90 °C and hard-baked for 3 h at 130 °C. The curing temperature was

raised gradually in order to avoid problems deriving from the pyroelectric effect. This treatment provided a better adhesion between the photoresist and the substrate while improving insulation. For the poling, the sample was contacted with gel-electrolyte layers and subjected to high voltage pulses supplied by an amplified (Trek) waveform generator (Agilent). In order to exceed the LN coercive field and obtain a charge-controlled domain inversion, we applied single 1.3 kV pulses over a 10 kV offset for appropriate time intervals. With this approach, the inverted domains enucleated from the $-Z$ facet in the region under the electrodes and extended toward the $+Z$ facet before coalescence occurred.^{15,16} Finally, the end-facets of the chip were polished before proceeding with the characterization.

We used a cw 40 GHz line-width Ti:sapphire laser tunable in wavelength between 860 and 1000 nm; with an $f=11$ mm lens the TEM₀₀ beam was gently focused to a waist of 30 μm in the middle of the poled area, keeping the crystal at a constant temperature of 195.0 °C to reduce or avoid the risk of photorefractive damage. The FF beam was mechanically chopped at 133 Hz and the generated SH was collected by a photomultiplier tube for synchronous detection; the residual pump was eliminated with the aid of a dichroic mirror and selective filters. First we studied the SH generated forward via first-order QPM by light at $\lambda_{\text{FF}}=862.33$ nm. We spectrally resolved the QPM-SHG resonance by varying either the wavelength [Fig. 1(a)] or the temperature [Fig. 1(b)] while keeping the other parameters constant. We verified the quadratic growth of the SH versus FF input power [Fig. 1(c)] and interpolated the experimental data with the standard expression of the SHG efficiency conversion.^{2,17} Assuming a good overlap between the FF

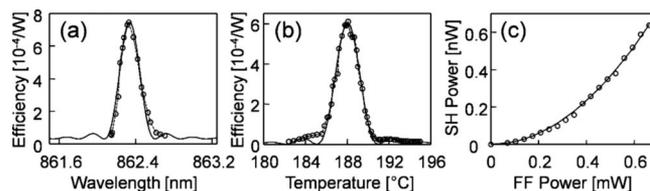


FIG. 1. Normalized SHG efficiency (a) vs FF wavelength and (b) temperature for an input power of 0.7 mW; (c) parabolic trend of the generated SH vs FF input power at the QPM resonant wavelength. The solid lines are from the model; the dashed lines connecting data points are guides to the eye.

^{a)}Electronic mail: assanto@uniroma3.it.

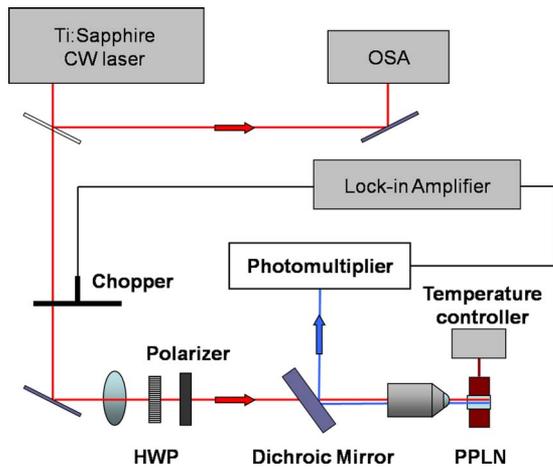


FIG. 2. (Color online) Set-up for BSHG measurements. HWP stands for half wave plate and OSA for optical spectrum analyzer. Additional filters are not shown.

beam and the poled domains, using the value of 25.2 pm/V for the quadratic element d_{33} nonlinearly coupling FF and SH electric field components along the optic axis,¹⁸ we estimated a QPM duty-cycle around 75:25 and a period of 3.2 μm . The measured full-width at half-maximum of 0.24 nm corresponded to a QPM interaction over 3 mm, i.e., the total length of the grating with a uniform period of nominal value.

The set-up for backward-SH measurements is sketched in Fig. 2. The output facet of the sample was slanted in order to decouple the forward-generated SH-back-reflected at the LN-air interface-from the sought BSHG. Nonetheless, owing to wave vector spreading, a small amount of forward-propagating SH light was generated by out-of-resonance random components of the QPM grating¹⁹ and collected through the input lens.

Figure 3(a) shows the normalized BSHG conversion efficiency versus input FF wavelength for the 29th and 30th orders of QPM-BSHG. The different background levels at SH are ascribed to the random QPM contributions, due to domain nucleation and corresponding to spread-out periods with unequal SHG efficiencies.²⁰ The presence of frequency-doubled signal in both odd and even resonant orders is attributed to the unbalanced duty-cycle. Noteworthy, a duty-cycle variation of only 1.7% with respect to the ideal 50:50 can cancel out BSHG at the 29th order, letting a resonance peak emerge at the 30th [see Fig. 3(b)]. Translated in domain

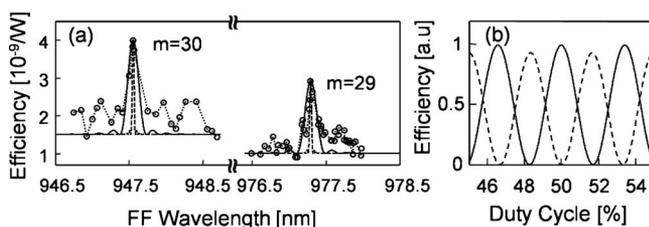


FIG. 3. (a) Normalized BSHG conversion efficiency vs FF wavelength for 29th and 30th QPM orders: data (circles) are compared with the predicted tuning for effective QPM lengths of 0.5 mm (solid lines) and 3 mm (dashed lines). (b) Calculated normalized conversion efficiency vs duty-cycle for 29th (solid line) and 30th (dashed line) at their respective resonant wavelengths.

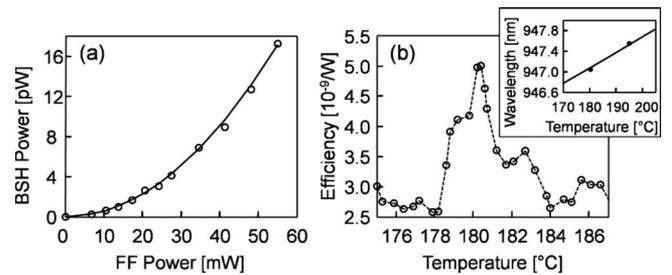


FIG. 4. (a) Measured (circles) and calculated (solid line) BSHG output power vs FF excitation for the 30th resonant order. (b) Normalized conversion efficiency for the 30th BSHG order vs temperature: the input FF wavelength is 947.053 nm; the inset details a comparison between experimental data (circles) and the calculated resonant FF wavelength shift vs temperature (solid line).

size, such a variation corresponds to a wall motion of ≈ 54 nm over the nominal coherence length of 1600 nm. The BSHG power at resonance grew quadratically with FF excitation, as graphed in Fig. 4(a).

From the BSHG data we evaluated the QPM grating in terms of period, effective length, duty-cycle, and spatial overlap between FF beam and poled domains (i.e., effective cross-section). The periodicity as extrapolated from backward SH resonance(s) is less affected by an inaccurate knowledge of the refractive index dispersion as compared to forward SHG. Moreover, when using a cw excitation the tolerances are more stringent in BSHG than in forward SHG. Therefore, BSHG measurements can be exploited as sensitive diagnostics of QPM gratings.^{2,10} The spectral location of the resonances in Fig. 3(a) allowed us calculating a period of about 3.194 μm ; the ratio between the two peaks yielded a duty-cycle close to 74.8:25.2. These values are consistent with those obtained from forward SHG and provide extra details in the diagnostics. From the resonant bandwidths in Fig. 3(a) we calculated an effective length of 0.5 mm (16.7% of the grating length) and, from the data in Fig. 4(a), an effective cross-section $< 8\%$ of the FF beam profile. The estimates, however, are affected by (undesired) irregularities of domain walls, because the presence of random QPM lowers the overall coherence of the process, widening the resonance(s) and reducing the effective length and the conversion efficiency; hence, the values above should be considered conservative estimates as randomness was not accounted for.

Finally, Fig. 4(b) shows the normalized BSHG conversion efficiency (30th order) versus temperature, the latter permitting us a finer tuning of the resonance. The inset graphs a detail of the resonant FF wavelength shift versus temperature, the solid line being calculated from the temperature dependent Sellmeier equations for LN (as provided by the crystal supplier).

In conclusion, we reported blue-light generation in bulk PPLN via counter-propagating frequency doubling. An unbalanced duty-cycle resulted in both odd and even resonances of the quasi-phase-matching grating. A numerical assessment of the experimental data against standard SHG-BSHG model allowed us to estimate relevant parameters of the sample.

This work was supported by the Italian MIUR through PRIN 2007 Grant No. 2007CT355. GA thanks Prof. Y. J. Ding for enlightening discussions.

- ¹J. A. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing, and P. S. Pershan, *Phys. Rev.* **127**, 1918 (1962).
- ²M. M. Fejer, G. A. Magel, D. H. Jundt, and R. L. Byer, *IEEE J. Quantum Electron.* **28**, 2631 (1992).
- ³S. E. Harris, *Appl. Phys. Lett.* **9**, 114 (1966).
- ⁴M. Matsumoto and K. Tanaka, *IEEE J. Quantum Electron.* **31**, 700 (1995).
- ⁵Y. J. Ding, J. U. Kang, and J. B. Khurgin, *IEEE J. Quantum Electron.* **34**, 966 (1998).
- ⁶S. Janz, C. Fernando, H. Dai, F. Chatenoud, M. Dion, and R. Normandin, *Opt. Lett.* **18**, 589 (1993).
- ⁷J. U. Kang, Y. J. Ding, W. K. Burns, and J. S. Melinger, *Opt. Lett.* **22**, 862 (1997).
- ⁸X. Gu, R. Y. Korotkov, Y. J. Ding, J. U. Kang, and J. B. Khurgin, *J. Opt. Soc. Am. B* **15**, 1561 (1998).
- ⁹X. Gu, M. Makarov, Y. J. Ding, J. B. Khurgin, and W. P. Risk, *Opt. Lett.* **24**, 127 (1999).
- ¹⁰X. Mu, I. B. Zotova, Y. J. Ding, and W. P. Risk, *Opt. Commun.* **181**, 153 (2000).
- ¹¹C. Conti, G. Assanto, and S. Trillo, *Opt. Lett.* **24**, 1139 (1999).
- ¹²C. Conti, S. Trillo, and G. Assanto, *Phys. Rev. Lett.* **85**, 2502 (2000).
- ¹³C. Canalias, V. Pasiskevicius, M. Fokine, and F. Laurell, *Appl. Phys. Lett.* **86**, 181105 (2005).
- ¹⁴C. Canalias and V. Pasiskevicius, *Nat. Photonics* **1**, 459 (2007).
- ¹⁵L. E. Myers, Stanford University, Doctoral Dissertation (1998).
- ¹⁶A. C. Busacca, C. L. Sones, V. Apoltolopoulos, R. W. Eason, and S. Mailis, *Appl. Phys. Lett.* **81**, 4946 (2002).
- ¹⁷G. D. Boyd and D. A. Kleinman, *J. Appl. Phys.* **39**, 3597 (1968).
- ¹⁸I. Shoji, T. Kondo, and R. Ito, *Opt. Quantum Electron.* **34**, 797 (2002).
- ¹⁹S. Stivala, A. C. Busacca, A. Pasquazi, R. L. Oliveri, R. Morandotti, and G. Assanto, *Opt. Lett.* **35**, 363 (2010).
- ²⁰A. Pasquazi, A. C. Busacca, S. Stivala, R. Morandotti, and G. Assanto, *IEEE Photonics J.* **2**, 18 (2010).

High resolution x-ray investigation of periodically poled lithium tantalate crystals with short periodicity

M. Bazzan,¹ C. Sada,^{1,a)} N. Argiolas,¹ A. C. Busacca,² R. L. Oliveri,² S. Stivala,²
L. Curcio,² and S. Riva Sanseverino²

¹*Dipartimento di Fisica "G. Galilei," Università di Padova and CNISM, Via Marzolo 8 35131 Padova, Italy*

²*Department of Electrical, Electronic and Telecommunication Engineering, DIEET, University of Palermo, Viale delle Scienze Bldg. 9, 90128 Palermo, Italy*

(Received 13 August 2009; accepted 10 October 2009; published online 30 November 2009)

Domain engineering technology in lithium tantalate is a well studied approach for nonlinear optical applications. However, for several cases of interest, the realization of short period structures ($<2 \mu\text{m}$) is required, which make their characterization difficult with standard techniques. In this work, we show that high resolution x-ray diffraction is a convenient approach for the characterization of such structures, allowing us to obtain in a nondestructive fashion information such as the average domain period, the domain wall inclination, and the overall structure quality.

© 2009 American Institute of Physics. [doi:10.1063/1.3264620]

I. INTRODUCTION

Ferroelectric crystals have been used in a number of electronic and optoelectronic applications since their electro-optical, photorefractive, and piezoelectric properties, as well as their quadratic nonlinear response, are quite large and can also be tailored with a simple inversion of ferroelectric domains which can be engineered in both 1D^{1,2} and 2D.³ A challenge in ferroelectric domain poling is the realization of short periods ($<2 \mu\text{m}$) while preserving good uniformity and repeatability. Surface periodic poling (PP) is a convenient approach to the engineering of ferroelectric structures with periods as short as 400 nm.^{4,5} Breaking the micron-period barrier for periodical bulk domain patterning is also very desirable for several applications such as tunable cavity mirrors, first order backward second harmonic generation, and pulse shaping by backward frequency doubling of femtosecond laser.⁶⁻⁸

Among the others, lithium tantalate (LT) (congruent type composition) is one of the most promising ferroelectric crystals in the field of nonlinear integrated optics since it exhibits excellent nonlinear optical properties, with high threshold to photorefractive damage, extended transparency in the UV down to 280 nm,⁹ and large electro-optic and quadratic responses $d_{33}=15.1 \text{ pm/V}$ at 852 nm.¹⁰⁻¹² As a consequence, the possibility of realizing periodical inversion of the ferroelectric spontaneous polarization in LT crystals (PPLT) is of great interest, as already demonstrated for designing coherent optical sources in the ultraviolet UV.¹²

One of the key point in the PP process is the characterization of the periodically poled structures based on nondestructive methods opposed to the standard commonly used destructive fluoridric acid (HF) attack. Several methods have been proposed, and, for an extensive review, the readers are referred to a specific literature (e.g., Ref. 13). Among the

others, we shall mention here, as the most widespread approaches, optical techniques, scanning probe techniques, and structural techniques. Optical techniques are based on the direct observation of domain structures by some kind of optical microscopy. These techniques are difficult to be used for characterization of submicrometric domain patterns since their spatial resolution is not sufficient at this length scale. Moreover, these techniques do not probe the effective reversal of the nonlinear optical coefficients, but optical features which are indirectly connected to change of polarization, such as the refractive index changes induced at the domain walls, and this fact hinders somehow the interpretation of the experimental data. A possible alternative is constituted by scanning probe microscopy, which provides a nanoscale characterization of electrical, mechanical, and optical properties of ferroelectric materials but has the drawback that it allows only a local investigation of the ferroelectric domains, while for Quasi Phase Matching (QPM) applications, a characterization of the "average" properties of the periodic structures would be more desirable. Structural characterizations are generally performed by studying the scattering of x-ray and taking advantage that a reversal of the spontaneous polarization is directly related to a change of the structure factor of the crystalline matrix.¹⁴ This fact is generally used to perform a topographic imaging of the periodically poled structure, but again, the limited spatial resolution of the imaging system forbids the application of this approach to submicrometric structures. If small sized domain structures are to be probed, it is preferable to use a reciprocal space approach, because in this case the smaller the details to be probed, the easier the detection and the measure of periodic structures, owing to the reciprocal character of the relation linking the direct space to the reciprocal space.¹⁵ In other words, a short period gives rise to well separated features in reciprocal space.

In this work, we exploit the high resolution x-ray diffraction (HR-XRD) technique to perform a reciprocal space analysis of periodically poled LT crystals prepared by elec-

^{a)}Author to whom correspondence should be addressed. Electronic mail: cinzia.sada@unipd.it. Tel.: +39-049-8277037. FAX: +39-049-8277003.

tric field poling. While the periodicity of the satellites allows to determine straightforwardly the period of the PP, the intensity and the shape of the satellites are affected by the waveform of the polarization profile (duty cycle, etc.), perfection of the structure, presence of strain, domain walls inclination, and so on, and can therefore be interpreted only if a model of the structure is provided. In this work, we test the method in a critical situation, i.e., with PP structures with a period as large as $1.5 \mu\text{m}$, giving rise to reciprocal space maps whose details are close to the resolution limit in reciprocal space of our apparatus. Thanks to reciprocal space map analysis, the technique also allows in this case to extract important structural information. For structures with smaller periodicities, the technique is even more appropriate and informative.

II. EXPERIMENTAL

The PPLT samples were diced from $500 \mu\text{m}$ thick, Z-cut, congruent LT wafers. We used high voltage pulses applied across the LT thickness in order to achieve surface poling with domains as deep as $40 \mu\text{m}$.¹⁶ A $1.3 \mu\text{m}$ -thick photoresist (Shipley S1813) was spin coated on the $-Z$ face of the crystal and a $1.5 \mu\text{m}$ period was defined using an amplitude mask to transfer the pattern by UV lithography. The periodic pattern was 7 mm long and $100 \mu\text{m}$ wide. After development, the hardness and the adhesion of the photoresist was improved by baking the sample overnight at 90°C and then hard baking it at 130°C for 3 h. In this phase, considering that LT has a strong pyroelectric effect, temperature processes need to be performed gradually, in order to avoid the formation of poling dots, mechanical stress, and trapping of charges on the crystal surfaces. During high voltage poling, the photolithographic mask acts as the insulating layer necessary to produce and periodically control the domain inversion. A waveform generator (Agilent 3220A) and a high voltage amplifier (Trek 662) produce the electric field to pole the sample. Electric contact between electrodes and the substrate was ensured by a conductive saline gel mixture. To exceed the LT coercive field (22 kV/mm), we applied single 1.3 kV pulses over a 10 kV bias for appropriate time intervals, the latter adjusted to fulfill the poling condition $Q < 1.5AP_s$, with Q as the total flowing charge, A as the poled area, and P_s as the spontaneous polarization of the ferroelectric crystal. The flow of charge was opportunely controlled by a home-designed analog current integrator. The waveforms of both the poling voltage and the flowing current were registered with a digital oscilloscope. Using this approach, the inverted domains nucleated from the $-Z$ facet in the region under the electrodes and extended toward the $+Z$ facet. The scanning electron microscopy picture of Fig. 1 shows the PPLT region of a typical sample after selective chemical etching in HF at 70°C for 15 min.

The x-ray investigations were performed using a Philips MRD diffractometer with a sealed Cu anode source, equipped with a parabolic multilayer mirror for enhanced beam intensity (see Fig. 2). The beam is collimated and monochromatized using a four-bounce $2\ 2\ 0$ channel-cut Ge monochromator giving a primary beam with a wavelength

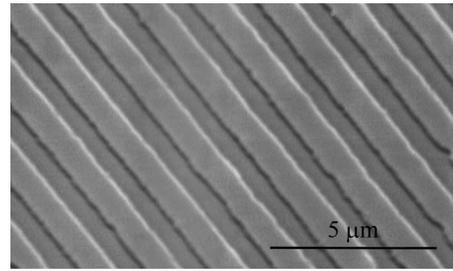


FIG. 1. Scanning electron microscope image of a $1.5 \mu\text{m}$ periodic structure on LT as revealed after HF acid attack.

$\lambda = 0.154\ 056 \text{ nm}$, a spectral purity $\Delta\lambda/\lambda = 2 \times 10^{-5}$ and an angular divergence of 0.0032° . The detector was a proportional counter equipped with a three bounce Ge $2\ 2\ 0$ analyzer whose acceptance is equal to the divergence of the primary beam. Due to the very large acceptance of the detector on the axial direction, the measurements reported hereafter have to be considered as the projection of the scattered intensity on the plane defined by the goniometers movements (the so-called scattering plane), reducing in this way the three-dimensional reciprocal space to a single plane. In order to avoid artifacts during the measurements due to thermal drifts, the temperature of the measure chamber was stabilized at $25.0 \pm 0.1^\circ\text{C}$. Using a crossed slit arrangement, the primary beam footprint was confined to an area of about $0.1 \times 5 \text{ mm}^2$ and made to impinge upon the area of the sample where the periodically poled structure was present. The symmetrical $0\ 0\ 12$ reflection of LT was measured in reciprocal space mapping mode.¹⁷ In particular, with reference to Fig. 2, we remind that by defining α_i and α_f as the angles between the incident beam and the diffracted beam, respectively, with the sample surface, ω as the angle of the goniometer in the sample stage with respect to the primary beam and 2θ as the angle of the detector goniometer with respect to the primary beam, the following relations hold:

$$\omega = \alpha_i, \quad (1)$$

$$2\theta = \alpha_i + \alpha_f, \quad (2)$$

$$Q_x = K(\cos \alpha_i - \cos \alpha_f), \quad (3)$$

$$Q_z = K(\sin \alpha_i + \sin \alpha_f), \quad (4)$$

where $K = 2\pi/\lambda$ is the wavenumber of the incident radiation and Q_x and Q_z are the coordinates in the scattering plane of the reciprocal space point probed by the instrument. By pro-

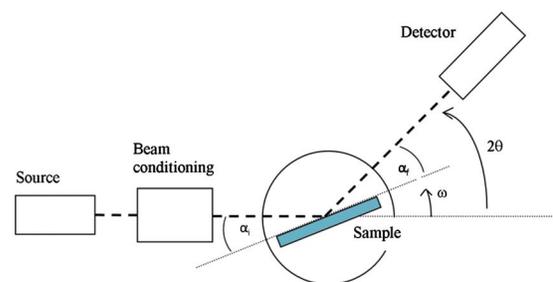


FIG. 2. (Color online) Sketch of the experimental HR-XRD apparatus.

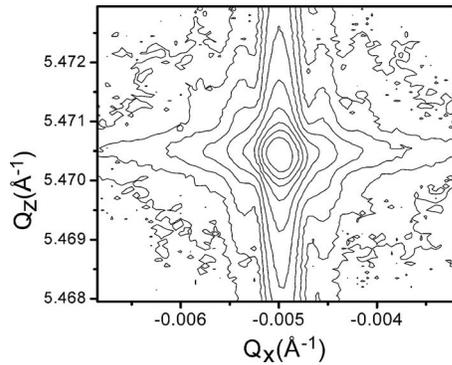


FIG. 3. Reciprocal space map of the 0 0 12 reflection. The iso-intensity contours are plotted on a logarithmic scale with the maximum intensity normalized to one. Each contour represents a four-time increase of the intensity.

gramming the movements of the goniometers, a given region of the reciprocal space can be investigated by associating to each couple (Q_x, Q_z) the intensity $J(Q)$ of the radiation accepted by the detector, so that a map of the reciprocal space intensity distribution is recorded.

III. RESULTS AND DISCUSSION

The resulting map is shown in Fig. 3. The map is composed of a central rod and a series of closely spaced satellite rods parallel to the Q_z direction. Moreover, a horizontal streak crossing the rods is clearly visible. Since the area illuminated by the x-ray beam is much larger than the area containing the PP structures, the recorded signal contains contributions coming from both the periodic structure and the unpoled substrate, and the former contribution has a considerably lower intensity with respect to the substrate peak. Anyway, it can be evidenced by projecting the map on the Q_x axis that an intensity modulation superimposed to the flanks of the substrate peaks is clearly observable (see Fig. 4). The overall quality of the PP structure is confirmed by the presence of several satellite peaks, which can be observed up to the fourth order. The 0-th order streak corresponds to the “average” lattice of the superstructure and does not show any peak splitting within the experimental resolution of the reciprocal space map, indicating that the average “perpendicular” lattice parameter (namely, the c parameter) of the PP

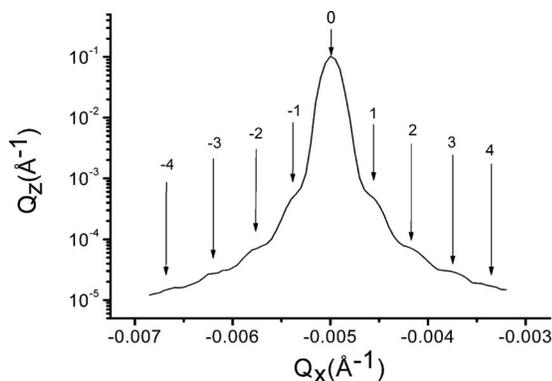


FIG. 4. Projection of reciprocal space map of Fig. 1 onto the Q_x axis. The satellite structure is evidenced by arrows indicating the satellite order.

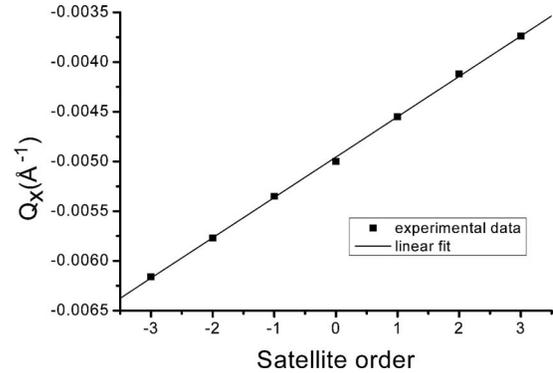


FIG. 5. Plot of the Q_x position of the satellite maxima as a function of the satellite order. The straight line is a linear fit to the experimental data. The error bars, calculated *a posteriori*, are smaller than the experimental point symbols.

structure is practically indistinguishable with respect to that of the unpoled region, i.e., no mismatch induced by residual stress due to poling treatment is present.

The horizontal streak visible in the map is the diffuse (incoherent) scattering originating from the domain wall regions.¹⁸ This peak has an elliptical shape with the major axis parallel to Q_x axis and then to the sample surface, which allows us to conclude that the domain walls are perpendicular to the sample surface within experimental uncertainty ($\sim 0.1^\circ$).

As the micron-sized period of the PP structures gives rise to closely spaced structures in reciprocal space, the experimental resolution of our instrument did not allow us to resolve the satellite maxima. However, the diffuse scattering streak indicates that the grating wavevectors must contain no Q_z components, otherwise the domain walls could not be aligned perpendicular to the sample surface. As a consequence, the satellite maxima must be aligned parallel to the Q_x direction, on a horizontal line crossing the central maximum of the map.

Taking this fact into account, the lateral positions of the satellite maxima can be estimated by checking the intersection of the horizontal axis of the diffuse scattering ellipse with the vertical satellite rods; the resulting positions are shown as arrows in Fig. 4. By plotting their position as a function of the satellite order (Fig. 5), we get a straight line whose slope is given by the modulus $q = 2\pi/\Lambda$ of the fundamental wavevector of the PP grating, where Λ is the period of the PP. From this, we get $\Lambda = 1.547 \pm 0.023 \mu\text{m}$, in good agreement with the period of the amplitude mask used to fabricate the domain structures and the period of domains structures as revealed after etching in HF.

IV. CONCLUSIONS

We have shown here that the HR-XRD technique in reciprocal space mapping mode can be successfully employed for the nondestructive characterization of periodically poled structures in LT. Owing to the reciprocal character of this analysis, this kind of approach is particularly suited for PP structures with small period. In this work, we studied a sample with a period of about $1.5 \mu\text{m}$, which is close to the resolution limit of the technique. Even in this extreme case,

informations such as the overall quality of the structure, the domain wall inclination, and the structure period can be obtained. In samples with smaller periodicities or shallower domains, the technique would work even better, as the satellite structure in that case can be completely resolved. In principle, determination of the strain state of the superlattice, the domain depth, fluctuations in superlattice periods, and so on can be extracted using methodologies analogous to those routinely employed for the x-ray characterization of other superlattice structures such as multiquantum wells or surface gratings.^{17,19}

ACKNOWLEDGMENTS

The work was partially funded by the Italian Ministry for Scientific Research (MiUR) through Grant No. 2007CT355. We are grateful to Dott. A. C. Cino for his support.

¹L. E. Myers, R. C. Eckardt, M. M. Fejer, R. L. Byer, W. R. Bosenberg, and J. W. Pierce, *J. Opt. Soc. Am. B* **12**, 2102 (1995).

²G. W. Ross, M. Pollnau, P. G. R. Smith, W. A. Clarkson, P. E. Britton, and D. C. Hanna, *Opt. Lett.* **23**, 171 (1998).

³N. G. R. Broderick, G. W. Ross, H. L. Offerhaus, D. J. Richardson, and D. C. Hanna, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 4345 (2000).

⁴A. C. Busacca, C. L. Sones, V. Apostopoulos, R. W. Eason, and S. Mailis, *Appl. Phys. Lett.* **81**, 4946 (2002).

⁵A. C. Busacca, A. C. Cino, S. Riva Sanseverino, M. Ravaro, and G. Assanto, *Electron. Lett.* **41**, 92 (2005).

⁶V. Ya. Shur, E. Shishkin, E. Rumyantsev, E. Nikolaeva, A. Shur, R. Batchko, M. Fejer, K. Gallo, S. Kurimura, K. Terabe, and K. Kitamura, *Ferroelectrics* **304**, 111 (2004).

⁷Y. J. Ding, J. U. Kang, and J. B. Khurgin, *IEEE J. Quantum Electron.* **34**, 966 (1998).

⁸M. Conforti, C. De Angelis, U. K. Sapaev, and G. Assanto, *Opt. Express* **16**, 2115 (2008).

⁹S. Kase and K. Ohi, *Ferroelectrics* **8**, 419 (1974).

¹⁰I. Shoji, T. Kondo, A. Kitamoto, M. Shirane, and R. Ito, *J. Opt. Soc. Am. B* **14**, 2268 (1997).

¹¹R. L. Byer, *J. Nonlinear Opt. Phys. Mater.* **6**, 549 (1997).

¹²A. C. Busacca, E. D'Asaro, A. Pasquazi, S. Stivala, and G. Assanto, *Appl. Phys. Lett.* **93**, 121117 (2008).

¹³T. Volk and M. Wöhlecke, *Lithium Niobate: Defects, Photorefraction and Ferroelectric Switching*, Springer Series in Materials Science Vol. 115 (Springer, Berlin, 2008).

¹⁴Z. W. Hu, P. A. Thomas, and J. Webjorn, *J. Appl. Crystallogr.* **29**, 279 (1996).

¹⁵M. Bazzan, N. Argiolas, C. Sada, P. Mazzoldi, S. Grilli, P. Ferraro, P. De Natale, and L. Sansone, *Ferroelectrics* **352**, 25 (2007).

¹⁶A. C. Busacca, C. A. Santini, S. Riva-Sanseverino, A. Parisi, A. C. Cino, R. L. Oliveri, and G. Assanto, *Electron. Lett.* **42**, 546 (2006).

¹⁷P. F. Fewster, *X-rays Scattering from Semiconductors* (Imperial College Press, London, 2000).

¹⁸M. Bazzan, N. Argiolas, C. Sada, and E. Cattaruzza, *Appl. Phys. Lett.* **89**, 062901 (2006).

¹⁹U. Pietsch, V. Holý, and T. Baumbach, *High-Resolution X-ray Scattering from Thin Films to Lateral Nanostructures* (Springer, Berlin, 2004).