

Fabricación de niobato de litio periódicamente polarizado para óptica no lineal

R. S. Cudney, L. A. Ríos, M. J. Orozco Arellanes, F. Alonso, J. Fonseca*

*División de Física Aplicada, Centro de Investigación Científica y de Educación Superior de Ensenada,
Apdo. Post. 2732, Ensenada, B.C., C.P. 22860, México,
e-mail: rcudney@cicese.mx*

Recibido el 20 de junio de 2002; aceptado el 6 de septiembre de 2002

En este trabajo describimos el proceso de fabricación de niobato de litio periódicamente polarizado (PPLN), el cual es un material ferroeléctrico en donde la dirección de la polarización espontánea es invertida periódicamente; este material se usa primordialmente para la generación de radiación electromagnética de frecuencia sintonizable mediante la técnica del cuasiempatamiento de fases. Se describen brevemente los principios básicos de cuasiempatamiento de fases y de los cristales ferroeléctricos y posteriormente se describe en detalle el proceso de fabricación de PPLN. Con esta técnica elaboramos muestras de PPLN de más de 5 cm de largo con la calidad necesaria para obtener generación óptica paramétrica mediante cuasiempatamiento de fases.

Descriptores: Cuasiempatamiento de fases; generación óptica paramétrica; generación del segundo armónico; óptica no lineal.

We describe how to produce periodically-poled lithium niobate (PPLN), which can be used to generate electromagnetic radiation of different frequencies through quasi-phase-matching. First we describe the basic principles of quasi-phase-matching and of ferroelectric crystals (which are used to obtain quasi-phase-matching), and then we give a detailed description of the fabrication process of PPLN. Using this technique we obtained PPLN samples over 5 cm long of high enough quality to obtain optical parametric generation through quasi-phase-matching.

Keywords: Quasi-phase-matching; optical parametric generation; second harmonic generation.

PACS: 42.65.ky; 42.65.Yj; 42.70.Hp

1. Introducción

Cuando una onda electromagnética se propaga a través de un medio no lineal, esto es, un medio en donde la polarización del medio depende no linealmente del campo eléctrico, se generan ondas de frecuencias diferentes a la de la onda incidente. El caso más conocido es el de la generación del segundo armónico, en donde una onda incidente de frecuencia ω genera otra de frecuencia 2ω . Otro caso notorio es el de la generación paramétrica de ondas, en donde una onda de frecuencia ω_p , llamada haz de bombeo, genera otras dos ondas, una de frecuencia ω_s , llamada señal, y otra de frecuencia ω_i , llamada onda acompañante, en donde

$$\omega_p = \omega_s + \omega_i. \quad (1)$$

¿Cuándo se da la generación de segundo armónico y cuándo se da la generación óptica paramétrica y, de darse este último caso, de todos los valores que puedan tomar ω_s y ω_i , qué parámetros determinan sus valores individuales? Aunque en principio tanto la generación del segundo armónico como la generación óptica paramétrica se dan simultáneamente, solamente bajo condiciones muy especiales se da una conversión eficiente de la onda de bombeo a las otras ondas generadas. Desde el punto de vista ondulatorio, lo que determina cuál de los procesos se da es la suma coherente de todas las ondas generadas a través del medio no lineal. Al propagarse el haz de bombeo, se generan una multitud de ondas secundarias de frecuencias diferentes a lo largo del medio no lineal. Debido a la dispersión del índice de refracción del medio, cada onda tiene una velocidad de propagación que depende, entre otras cosas, de su frecuencia. Para una frecuencia dada, la fase relativa entre las diferentes ondas generadas a lo

largo del medio no lineal dependerá de la velocidad de propagación de estas ondas y de la fase de la onda de bombeo en el lugar en donde son generadas, que a su vez depende de la velocidad de propagación de la onda de bombeo. Por sencillez veamos primero el caso de la generación del segundo armónico. Se puede demostrar fácilmente que para que todas las ondas del segundo armónico generadas a lo largo de un medio homogéneo estén en fase se debe cumplir adicionalmente que [1]

$$\mathbf{k}_{2\omega} = 2\mathbf{k}_\omega, \quad (2)$$

donde \mathbf{k}_ω y $\mathbf{k}_{2\omega}$ son los vectores de onda de los haces de bombeo y del segundo armónico, respectivamente. Cuando se cumple esta ecuación se dice que se tiene la condición de empatamiento de fases (*phase-matching*). Si los haces son colineales, utilizando el hecho de que $|\mathbf{k}| = \omega n(\omega)/c$, donde $n(\omega)$ es el índice de refracción a la frecuencia ω y c es la velocidad de la luz en el vacío, la Ec. (2) se reduce a

$$n(2\omega) = n(\omega). \quad (3)$$

De no cumplirse la ecuación anterior, las ondas generadas en diferentes partes del medio no estarán en fase entre sí, por lo que la interferencia no será en general constructiva. Debido a la dispersión cromática del índice de refracción, es imposible que se cumpla la Ec. (3) en un medio isótropo. Sin embargo, el empatamiento de fases sí se puede obtener en medios no lineales anisótropos, tales como los cristales uniaxiales, que tienen dos índices de refracción distintos, uno ordinario y otro extraordinario, cuyos valores dependen de la dirección de propagación de los haces con respecto a los ejes cristalinos

del medio. Escogiendo adecuadamente la dirección de propagación de los haces es posible tener, por ejemplo, un índice ordinario a la frecuencia ω igual al índice extraordinario a la frecuencia 2ω , logrando de esta manera el empatamiento de fases. Aun utilizando materiales anisotrópicos, para un material dado el intervalo de frecuencias en donde se puede dar el empatamiento de fases por lo general no es muy grande, por lo que es necesario recurrir a diferentes materiales para obtener diferentes longitudes de onda.

Existe otra técnica para obtener una alta eficiencia de conversión, llamada cuasiempatamiento de fases (*quasi-phase-matching*), que consiste en alternar periódicamente la fase de las ondas generadas a lo largo del medio no lineal [2]. Supongamos que una onda incide sobre un medio no lineal en donde no se da el empatamiento de fases. Sea l_c la distancia entre dos regiones del cristal en donde las ondas del segundo armónico generadas están desfasadas 180° entre sí, como se muestra en la Fig. 1a). Ésta es la máxima distancia entre dos regiones en las que todas las ondas generadas interfieren constructivamente, por lo que se le conoce como la longitud de coherencia. Si de alguna manera se pudiera invertir la fase de las ondas generadas cada distancia l_c , entonces todas las ondas generadas por el medio interferirían constructivamente. Esto se puede lograr si en vez de usar un medio homogéneo se usa uno en donde la susceptibilidad no lineal de orden dos $\chi^{(2)}$ - la cual es una constante de proporcionalidad entre el cuadrado del campo eléctrico a la frecuencia ω y la polarización a 2ω que se genera - cambia de signo periódicamente cada distancia l_c , como se muestra en la Fig. 1b).

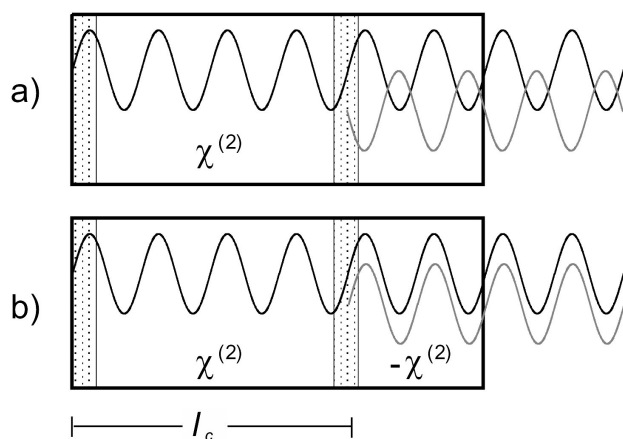


FIGURA 1. Adición de ondas generadas en diferentes regiones del medio no lineal. Debido a la diferencia de velocidades de propagación de la onda de bombeo y el segundo armónico, las ondas generadas por diferentes regiones del material en general no están en fase. a) Medio homogéneo; las ondas generadas por dos regiones separadas una distancia l_c están desfasadas 180° . b) El signo de la no linealidad del medio alterna cada distancia l_c . Las ondas generadas por dos regiones separadas por l_c están en fase.

Sea Λ la periodicidad de la alternación del signo de $\chi^{(2)}$, en este caso dado por $\Lambda = 2l_c$; la condición de cuasiempatamiento de fases está dada por [2]

$$\frac{2\omega}{c} |n(2\omega) - n(\omega)| = \frac{2\pi}{\Lambda}, \quad (4)$$

o, equivalentemente,

$$\left| n(\lambda_p) - n\left(\frac{\lambda_p}{2}\right) \right| = \frac{\lambda_p}{2\Lambda}, \quad (5)$$

donde λ_p es la longitud de onda del haz de bombeo en el vacío.

De la misma manera, se puede demostrar que para que se dé el proceso de generación óptica paramétrica por empatamiento de fases se debe cumplir, adicionalmente a la Ec.(1), que

$$\frac{n_p}{\lambda_p} - \frac{n_s}{\lambda_s} - \frac{n_i}{\lambda_i} = 0, \quad (6)$$

donde n_p , n_s y n_i son los índices de refracción y λ_p , λ_s y λ_i son las longitudes de onda en el vacío correspondientes a las frecuencias ω_p , ω_s y ω_i . Para el caso de cuasiempatamiento de fases, la Ec. (6) se modifica a [2]

$$\left| \frac{n_p}{\lambda_p} - \frac{n_s}{\lambda_s} - \frac{n_i}{\lambda_i} \right| = \frac{1}{\Lambda}. \quad (7)$$

En resumen, en el caso de cuasiempatamiento de fases lo que determina qué longitudes de onda se generan eficientemente en el medio es la periodicidad Λ .

La técnica de cuasi-empatamiento de fases presenta varias ventajas sobre el empatamiento de fases, pero la principal es que se puede alterar el medio a nuestra conveniencia para obtener el proceso no lineal que queramos. Existen algunos materiales que poseen un gran coeficiente no lineal, pero con una birrefringencia tal que no es posible lograr el empatamiento de fases a las longitudes de onda deseadas. Sin embargo, la no linealidad sí puede ser aprovechada utilizando cuasiempatamiento de fases. Incluso es posible generar varios procesos no lineales simultáneamente o en cascada; por ejemplo, generar dos ondas sintonizables y luego generar el segundo armónico de una de ellas en el mismo cristal, simplemente introduciendo dos periodicidades diferentes en la estructura de dominios ferroeléctricos. Esto es imposible de lograr utilizando la técnica de empatamiento de fases.

Es relativamente fácil variar el signo de $\chi^{(2)}$ en medios ferroeléctricos. Los ferroeléctricos son medios anisótropos que poseen un momento dipolar espontáneo que sólo puede apuntar hacia algunas direcciones privilegiadas, y que puede ser girado 180° mediante la aplicación de un campo eléctrico. Resulta ser que en los ferroeléctricos tanto la magnitud como el signo de $\chi^{(2)}$ dependen de este momento dipolar. De esta manera, aplicando un campo eléctrico en las regiones adecuadas del cristal se invertirá periódicamente la polarización espontánea, y consecuentemente se obtendrá una alternación espacial del signo de la no linealidad del medio.

En este trabajo reportamos la fabricación de cristales ferroeléctricos periódicamente polarizados para ser usados en óptica no lineal. El material utilizado es niobato de litio, que es un material altamente no lineal y altamente transparente (absorción $< 0,1 \text{ cm}^{-1}$) para radiación entre 400 y 5000 nm, lo cual lo hace ideal para la generación del segundo armónico y la generación óptica paramétrica en todo este intervalo del espectro electromagnético. Además, debido a que este material es usado en teléfonos celulares y en televisores, su costo es extremadamente reducido comparado con otros materiales no lineales, por lo que es un buen candidato para la fabricación comercial de diversos dispositivos no lineales, como los osciladores ópticos paramétricos.

2. Teoría básica de ferroeléctricos

Como se mencionó en la Introducción, los ferroeléctricos son materiales que poseen un momento dipolar intrínseco \mathbf{P}_s , llamado polarización espontánea, que puede ser invertido por un campo eléctrico. La magnitud mínima E_c del campo eléctrico requerido para invertir \mathbf{P}_s se conoce como campo coercivo, y su valor depende del material, su pureza y su temperatura, entre otras cosas. Estos materiales presentan histéresis, es decir, que una vez que \mathbf{P}_s es invertido permanece en su nueva dirección aun después de que se deje de aplicar el campo eléctrico, y es necesario aplicar un campo con una magnitud E_c pero de sentido contrario para retornar al cristal a su estado original, como se muestra en la Fig. 2.

La curva de histéresis mostrada en la Fig. 2 es una idealización de lo que realmente ocurre. En la práctica, no está perfectamente definido el campo coercivo, ya que éste es influenciado por los defectos presentes dentro del cristal, por lo que al aplicar un campo eléctrico por arriba del campo coercivo no se invierte instantáneamente la polarización espontánea en la totalidad del cristal, sino que se forman dominios ferroeléctricos, esto es, regiones en donde la dirección de \mathbf{P}_s es diferente a la que tiene en el resto del material. La forma y orientación de estos dominios depende del material, y en el caso de LiNbO_3 , \mathbf{P}_s solamente puede tomar dos direcciones, paralelo y antiparalelo al eje cristalográfico "c"; a estos dominios se les conoce como dominios de 180° .

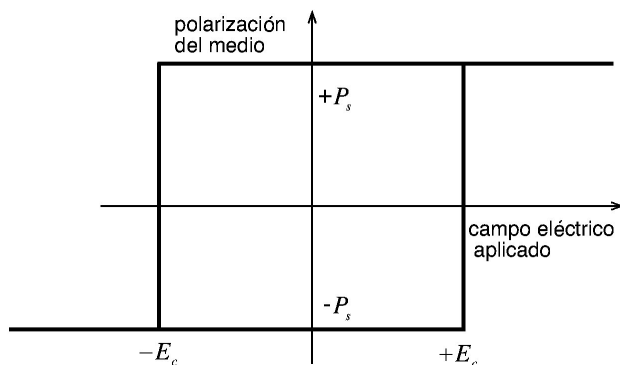


FIGURA 2. Curva de histéresis de un cristal ferroeléctrico.

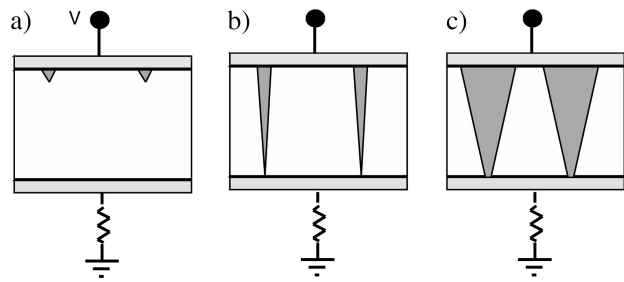


FIGURA 3. Mecanismo de formación de dominios ferroeléctricos en niobato de litio. a) Nucleación de dominios; b) Propagación longitudinal rápida de los dominios; c) Crecimiento lateral lento de los dominios.

Supongamos que una placa paralela de LiNbO_3 homogéneamente polarizado y de espesor d se encuentra entre dos electrodos, uno aterrizado y otro al cual se le aplica un voltaje V , como se muestra en la (Fig. 3). Si $V \geq dE_c$, el campo eléctrico induce la nucleación de pequeños dominios en una de las superficies (Fig. 3a); el lugar exacto donde se nuclean los dominios depende de ligeras inhomogeneidades tanto del pulido de las superficies y los electrodos como de la presencia de impurezas dentro del material. Estos núcleos rápidamente crecen hacia el otro electrodo, formando dominios en forma de cuñas (Fig. 3b). Al llegar a la otra superficie, el crecimiento longitudinal de los dominios ya no es posible y empiezan a crecer lateralmente, como se muestra en la Fig. 3c. El crecimiento lateral por lo general es algunos órdenes de magnitud más lento que el crecimiento longitudinal [3].

Al formarse los dominios se crea una densidad de corriente de desplazamiento $j = dP_s/dt$ la cual puede ser monitoreada midiendo el voltaje a través de la resistencia que se muestra en la Fig. 3. La integral con respecto al tiempo de j no es más que la densidad de carga requerida para obtener la inversión de la polarización espontánea, la cual es suministrada por la fuente de voltaje. Se puede demostrar usando las ecuaciones de Maxwell, que para que se pueda invertir la polarización en toda la placa se requiere una carga total dada por

$$Q = 2P_s A, \quad (8)$$

donde A es el área de cada electrodo. La importancia de esta fórmula se verá más adelante al describir el proceso de fabricación de PPLN.

3. Óptica no lineal en materiales ferroeléctricos

La polarización inducida en un medio por campos eléctricos que oscilan a frecuencias ópticas puede ser expandido en una serie de Taylor, en donde las variables son los campos eléctri-

cos, de la siguiente manera [1, 4]:

$$P_i(\omega) = \epsilon_0 \chi_{ij}^{(1)}(\omega; \omega) E_j(\omega) + \epsilon_0 \chi_{ijk}^{(2)}(\omega; \omega_1, \omega_2) E_j(\omega_1) E_k(\omega_2) + \epsilon_0 \chi_{ijkl}^{(3)}(\omega; \omega_1, \omega_2, \omega_3) E_j(\omega_1) E_k(\omega_2) E_l(\omega_3) + \dots \quad (9)$$

En esta ecuación $P_i(\omega)$ es la i -ésima componente cartesiana del vector de polarización del medio que oscila a la frecuencia ω ; $E_j(\omega)$, $E_k(\omega_1)$, etc., son las componentes cartesianas de los vectores de los campos eléctricos que oscilan a las frecuencias ω , ω_1 , etc., ϵ_0 es la permitividad del vacío, $\chi_{ij}^{(1)}$ es la componente ij del tensor de susceptibilidad lineal o de orden uno, $\chi_{ijk}^{(2)}$ es la componente ijk del tensor de susceptibilidad de orden dos y $\chi_{ijkl}^{(3)}$ es la componente $ijkl$ del tensor de susceptibilidad de orden tres. La convención de Einstein de sumatoria sobre índices repetidos se aplica a esta ecuación. Las frecuencias que aparecen entre paréntesis después de los elementos de las susceptibilidades indican la frecuencia de la polarización resultante (la frecuencia antes del punto y coma) y las frecuencias de los campos eléctricos que generan esta frecuencia (las frecuencias que aparecen a la derecha del punto y coma). Por ejemplo, el término que da lugar a la generación del segundo armónico es $\chi_{ijk}^{(2)}(2\omega; \omega, \omega) E_j(\omega) E_k(\omega)$, y para la generación óptica paramétrica el término que da lugar a la polarización a la frecuencia de la onda señal, ω_s , es $\chi_{ijk}^{(2)}(\omega_s; \omega_p, -\omega_i) E_j(\omega_p) E_k(-\omega_i)$.

En el caso particular de los ferroeléctricos, el tensor de susceptibilidad de orden dos está íntimamente ligado al tensor de susceptibilidad de orden tres y a la polarización espontánea \mathbf{P}_s , de la siguiente manera [5]:

$$\chi_{ijk}^{(2)}(\omega; \omega_1, \omega_2) \propto \chi_{ijkl}^{(3)}(\omega; \omega_1, \omega_2, 0) P_{s,l}. \quad (10)$$

La Ec. (10) tiene una interpretación intuitiva muy conveniente: la polarización espontánea hace las veces de un campo eléctrico adicional de frecuencia cero que actúa sobre la susceptibilidad de orden tres, dando origen a la susceptibilidad de orden dos.

Una consecuencia muy importante de esta relación es que si cambia la polarización espontánea, cambia también la susceptibilidad de orden dos. En particular, si la orientación de \mathbf{P}_s gira 180° de manera discontinua de un lugar a otro en el cristal, como es el caso de los dominios ferroeléctricos de 180° , los elementos del tensor $\chi^{(2)}$ también cambian de signo, y consecuentemente también la fase de las ondas generadas por $\chi^{(2)}$ sufren un cambio discontinuo de 180° .

La estructura cristalina de los ferroeléctricos determina cuáles de los elementos de $\chi^{(2)}$ son diferentes de cero. Para el caso particular de niobato de litio a temperatura ambiente, los únicos elementos de $\chi^{(2)}$ diferentes de cero son $\chi_{311}^{(2)} = \chi_{322}^{(2)}$, $\chi_{222}^{(2)}$ y $\chi_{333}^{(2)}$. El elemento $\chi_{333}^{(2)}$, que es el que cuantifica la interacción entre las componentes z (paralelo a \mathbf{P}_s) de los campos eléctricos y la polarización resultante, es por mucho el mayor de todos [6].

4. Curvas de sintonización del niobato de litio

De acuerdo a la Ec. (5), la longitud de onda a la cual se da el empatamiento de fases para la generación del segundo armónico depende tanto de la dispersión del índice de refracción como de la periodicidad de los dominios. Como $\chi_{333}^{(2)}$ es el elemento de mayor valor, y como las ondas que interactúan a través de este elemento tienen polarización extraordinaria, nos interesa solamente la dispersión del índice extraordinario n_e . Hasta la fecha los valores más exactos de n_e de niobato de litio en función tanto de la longitud de onda como de la temperatura son los determinados por Jundt [7]. Utilizando estos valores y la Ec. (5), se obtienen los resultados mostrados en la Fig. 4.

De la misma manera, utilizando los mismos valores de n_e y la Ec. (7) se obtiene la curva de sintonización para la generación óptica paramétrica, la cual se muestra para dos temperaturas diferentes en la Fig. 5. La longitud de onda de bombeo es de $1.064 \mu\text{m}$, correspondiente a la línea de emisión de un láser Nd:YAG.

De la dos figuras anteriores vemos que para una longitud de onda de bombeo de $1.064 \mu\text{m}$ la periodicidad requerida para obtener el segundo armónico es de $6.8 \mu\text{m}$, mientras que para obtener generación óptica paramétrica entre 1 y 5 micras (el intervalo de transparencia del material), se requieren periodicidades entre 25 y $32 \mu\text{m}$.

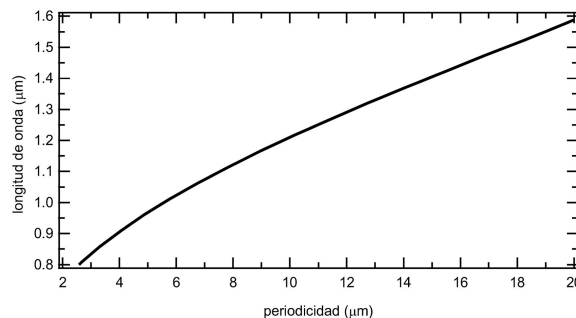


FIGURA 4. Generación de segundo armónico por cuasiempatamiento de fases en niobato de litio. Longitud de onda del haz de bombeo contra periodicidad de inversión de dominios. $T=25^\circ\text{C}$.

5. Fabricación de PPLN

Para la fabricación de PPLN se requiere aplicar campos eléctricos en los lugares donde se desea invertir la polarización espontánea. En la literatura se han reportado varias maneras de lograr esto; por su sencillez, nosotros utilizamos un procedimiento que está basado en el uso de electrodos líquidos aislados periódicamente por una película de fotorresina creada fotolitográficamente, similar a los procedimientos descritos en las Refs. 8, 9, 10.

El primer paso consiste en la fabricación de la mascarilla que servirá como patrón para la creación fotolitográfica de los electrodos periódicos. Estas mascarillas consisten de muchos pares de líneas claras y oscuras, con la periodicidad adecuada para el proceso que se quiera generar. La exactitud de la

periodicidad de los dominios es vital para obtener una elevada eficiencia de conversión del haz de bombeo a la onda que se quiera generar; además, entre más nítidos sean los bordes de los electrodos más fácil es la inversión selectiva de P_s , por lo que estas mascarillas deben ser de alta resolución (aproximadamente 1 micra) y de una periodicidad bien definida a lo largo de toda la mascarilla. Debido a esto, los diferentes grupos que fabrican PPLN utilizan mascarillas de cromo grabadas por haces de electrones (la misma tecnología usada para fabricar las mascarillas para hacer circuitos integrados), las cuales son muy costosas, del orden de 2,000 dólares cada una. Como tenemos contemplado diseñar y usar muchas de estas mascarillas con diferentes periodicidades y dimensiones, decidimos desarrollar nuestro propio método para su fabricación.

El dispositivo usado para generar nuestras mascarillas se muestra en la Fig. 6. Un haz expandido proveniente de un láser de argón ilumina uniformemente una rendija de grosor variable. Una lente forma la imagen de la rendija sobre película fotográfica, la cual está montada sobre una platina traslacional controlada por computadora. Un obturador, también controlado por computadora, controla el paso de la luz al arreglo. Se expone una línea sobre la película, después se traslada la película un distancia Λ con el obturador cerrado, se vuelve a exponer la película y así sucesivamente hasta crear la mascarilla del tamaño deseado. Debido a la alta resolución requerida, fue necesario usar una lente con un mínimo de aberraciones, por lo que se escogió una lente de ampliadora fotográfica comercial, las cuales están diseñadas para formar un imagen fiel de un objeto planar sobre otro plano. Como película utilizamos película holográfica, la cual tiene una resolución de más de 1,500 pares de líneas por milímetro, y para trasladar la película usamos una mesa traslacional que de acuerdo a las especificaciones del fabricante tiene una exactitud de 100 nanómetros por cada desplazamiento. Con este arreglo logramos obtener de forma rutinaria mascarillas nítidas de más de 5 cm de longitud y de 1 cm de ancho con las periodicidades típicas para la generación óptica paramétrica.

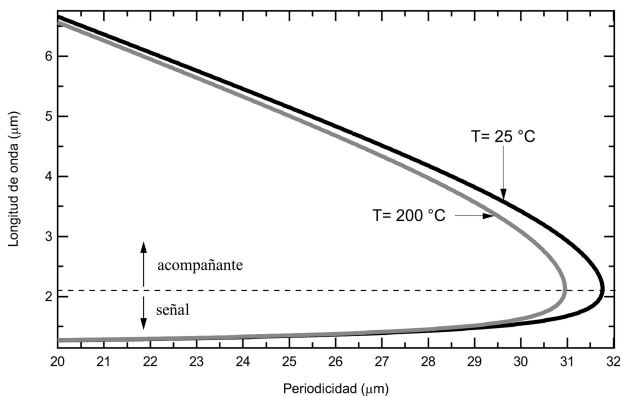


FIGURA 5. Generación óptica paramétrica por empatamiento de fases en niobato de litio. Longitud de onda de las ondas generadas contra periodicidad de los dominios. Longitud de onda de bombeo: $1,064\mu\text{m}$.

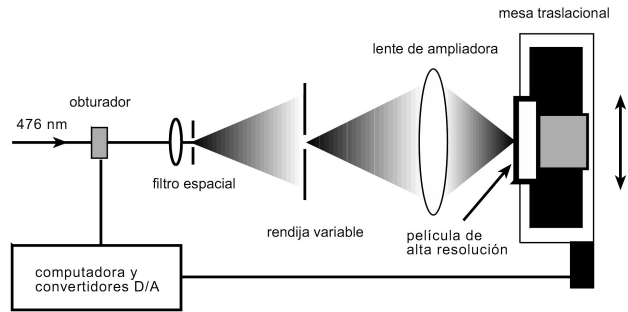


FIGURA 6. Dispositivo para fabricar mascarillas.

El siguiente paso consiste de depositar una película delgada de fotorresina sobre el sustrato de niobato de litio para fabricar los electrodos periódicos. Como sustratos usamos obleas de niobato de litio de 3 pulgadas de diámetro y 0.51 mm de grosor, en donde la dirección de P_s coincide con la normal de la superficie de las obleas (corte "z"). Estas obleas fueron obtenidas de dos fabricantes diferentes, CAS-TECH y Crystal Technology, y en ambos casos sus dos caras ya estaban pulidas a nivel óptico por lo que no fue necesario un pulido adicional para su inversión. Mediante la técnica de "spin coating" se deposita una película uniforme de fotorresina (Shipley 1818), de aproximadamente dos micras de grosor, sobre la cara positiva del cristal, y después el cristal se hornea a una temperatura de 110°C durante aproximadamente una hora. Es importante mencionar que en la literatura existe una ambigüedad sobre la definición de cuál es el lado positivo del cristal, al igual que en la nomenclatura de los ejes cristalinos. En este artículo nos apegamos a las convenciones dadas en la Ref. 11.

Una vez depositada y horneada la capa de fotorresina, la mascarilla se pone en contacto con esta última, se expone con una fuente de luz ultravioleta y se revela. La orientación de la rejilla con respecto a los ejes cristalinos es importante; el vector de onda de la rejilla (vector normal a las líneas de la mascarilla) se alinea paralelo al eje x . La exposición y el revelado de la fotorresina (en nuestro caso con Microposit 351) se escogen de manera tal que las zonas expuestas a la luz sean totalmente disueltas por el revelador para que el sustrato de niobato de litio quede expuesto en estas zonas, y que además las paredes de la fotorresina no expuesta que quedan después del revelado sean lo más verticales y altas posible.

El siguiente paso es inducir la inversión de polarización. Para esto es necesario aplicarle a la muestra un alto voltaje, alrededor de 10 kV para una oblea de 0.5 mm de espesor. Para obtener el contacto eléctrico, ambas caras de la oblea son bañadas con un electrodo líquido - cloruro de litio disuelto en agua - contenido y delimitado por dos "o-rings", como se muestra en la Fig. 7. Con una fuente de alto voltaje controlado por computadora se aplica un voltaje positivo al lado donde se encuentra el patrón de fotorresina. El diagrama esquemático básico del circuito utilizado se muestra en la Fig. 8. Tanto el voltaje aplicado a la oblea como la corriente de desplazamiento que se genera al ocurrir la inversión de la polarización espontánea son monitoreados en tiempo real en

los puntos *A* y *B* mediante convertidores analógico-digitales y una computadora. La corriente es integrada con respecto al tiempo digitalmente por la computadora para saber la carga total depositada sobre las superficies de la oblea. La carga requerida para invertir el 100 % de la muestra está dada por la Ec. (8), por lo que para obtener una estructura con dominios ferroeléctricos periódicamente invertidos con un ciclo de trabajo del 50 % (los grosores de los dominios positivos y negativos son iguales) se requiere depositar la mitad del valor dado por la Ec. (8).

Inicialmente el voltaje es incrementado lentamente hasta un valor cercano al requerido para nuclear dominios cercano a las paredes de la fotorresina. La resistencia de la oblea es muy alta ($> 10^{12} \Omega$), por lo que la corriente que fluye a través de la resistencia es nula para cualquier fin práctico, y por lo mismo el voltaje en el punto *B* con respecto a tierra es cero. Cuando el voltaje en el punto *A* alcanza un valor alrededor de 10.5 kV la nucleación de dominios comienza alrededor de las esquinas de las paredes de la fotorresina debido a que ahí el campo eléctrico es ligeramente mayor que en el bulto del material. Esta formación de dominios es detectada por la aparición de un voltaje en el punto *B*. En este momento el programa deja de incrementar el voltaje suministrado por la fuente para así mantener una corriente aproximadamente constante (entre 10 y 100 μA) a través de la resistencia. Cuando la carga obtenida por la integración de esta corriente llega al valor deseado, el voltaje es disminuido lentamente a cero para cesar la formación de dominios. De no disminuirse el voltaje en este momento, la inversión continúa, pero más lentamente. Esto ocurre cuando los dominios ya no pueden crecer longitudinalmente y solamente crecen lateralmente, por debajo de la fotorresina, que por lo general es un efecto no deseado. Una vez realizada la inversión la oblea es extraída del arreglo mostrado en la Fig. 7 y la capa de fotorresina es removida con acetona.

Aunque en principio los dominios ferroeléctricos de 180° deben ser invisibles (el índice de refracción es igual para las dos direcciones opuestas de P_s), después del proceso de inversión son perfectamente visibles entre polarizadores cruzados. Esto es debido a que en el proceso de formación de dominios también se generan esfuerzos y distribuciones de carga libre que distorsionan localmente el índice de refracción del material. Estas inhomogeneidades pueden y deben

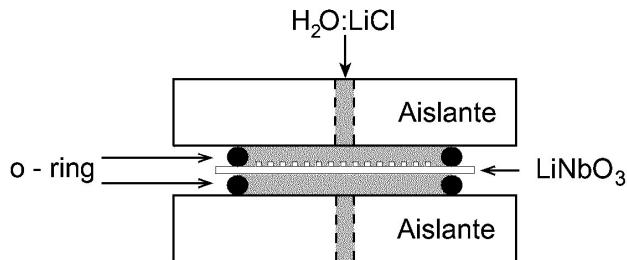


FIGURA 7. Electrodo líquido.

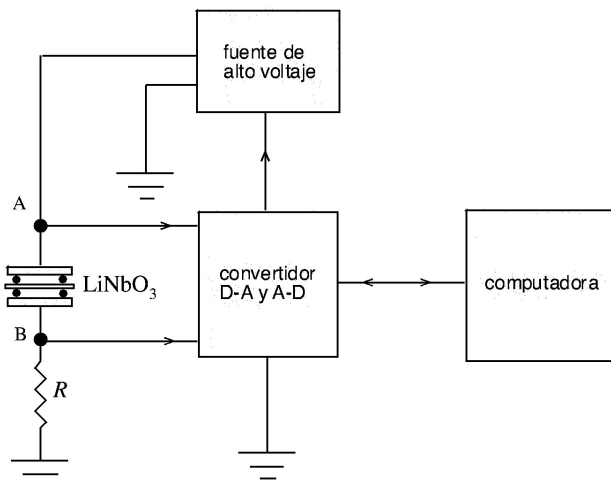


FIGURA 8. Diagrama esquemático simplificado del circuito utilizado para la inversión de polarización.

ser reducidas lo más posible, ya que reducen la eficiencia de conversión no lineal, además de introducir esparcimiento. Esto se logra calentando la muestra por varias horas a una temperatura superior a aproximadamente 100° C. En la Fig. 9 a) vemos la imagen de una muestra de PPLN con una periodicidad de 29.9 μm , justo después de realizarse la inversión, y en la Fig. 9 b) se ve la misma muestra después de ser calentada a 110° C por más de dos horas. Finalmente, las obleas son cortadas con un disco de diamante y pulidas utilizando técnicas comunes para este fin.

Como ejemplo del desempeño de los cristales de PPLN que hemos fabricado, mostramos los resultados obtenidos con una oblea en donde registramos patrones de 5 periodicidades diferentes, 28.3, 28.8, 29.3, 29.8 y 30.9 μm , cada rejilla de aproximadamente 1 cm de ancho, en un cristal de 2.5 cm de largo y 0.51 mm de grosor. Escogimos estas periodicidades de tal manera que al bombear el cristal con un láser Nd:YAG pulsado se pudiera obtener radiación sintonizable por generación óptica paramétrica en la mayor parte del intervalo de transparencia del niobato de litio en el infrarrojo, similar al trabajo reportado en la Ref. 12.

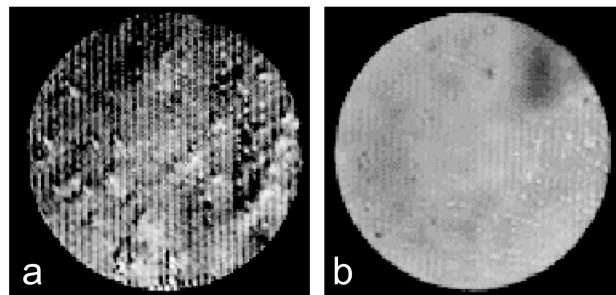


FIGURA 9. Visualización de los dominios entre polarizadores cruzados. a) Imagen obtenida después de la inversión de dominios; b) imagen obtenida después de calentar la muestra a 110° C por más de dos horas. $\Lambda = 29.9 \mu m$.

El arreglo experimental utilizado para obtener la generación óptica paramétrica se muestra en la Fig. 10. Un haz de bombeo proveniente de un láser Nd:YAG pulsado de ~ 7 nanosegundos de duración se enfoca dentro de la muestra de PPLN, formando una cintura de $\sim 55 \mu\text{m}$ HWHM dentro del medio. La radiación generada se recolecta por una lente y se enfoca en la entrada de un espectrógrafo (resolución $> 0.1 \text{ nm}$) para su análisis. Nótese que el cristal no se encuentra inmerso en un resonador, por lo que la radiación observada se obtiene con un solo paso de los haces por la muestra. La sintonización burda de este generador óptico paramétrico se obtiene trasladando la muestra para cambiar la periodicidad de la estructura ferroeléctrica vista por el haz de bombeo. Debido a que el índice de refracción depende de la temperatura, para una periodicidad dada, la señal y el acompañante pueden ser sintonizados de manera continua en un pequeño intervalo con solamente calentar o enfriar el cristal, por lo que la muestra está montada en un horno capaz de regular su temperatura entre 20 y 120 °C.

Se obtuvieron los espectros de la radiación generada por cada región del cristal para varias temperaturas. La longitud de onda obtenida de cada región se muestra en la Fig. 11 para dos temperaturas diferentes, 25 y 100 °C. Las líneas continuas representan la predicción teórica basada en la fórmula de dispersión del índice de refracción dada en la Ref. 7. La concordancia entre los datos y la teoría es bastante buena.

Finalmente, como ejemplo de la sintonización por temperatura mostramos en la Fig. 12 los espectros obtenidos para varias temperaturas con una sola periodicidad, $\Lambda = 29.8 \mu\text{m}$. En este ejemplo, el pico de emisión puede sintonizarse entre 1532 y 1560 nm con tan sólo variar la temperatura entre 25 y 100 °C. Vemos que el ancho de banda para todas las temperaturas es más o menos constante, alrededor de 4 nm FWHM. El ancho de banda depende de la longitud de interacción dentro del cristal (entre más corta es la longitud de interacción, más grande es el ancho de banda), por lo que podemos evaluar la longitud efectiva de la estructura de dominios midiendo el ancho de banda de la emisión. En la figura también se muestra un cálculo teórico del espectro esperado para una temperatura de 75 °C. Sin entrar en detalles, este cálculo se realizó resolviendo las ecuaciones de modos acoplados usadas comúnmente en óptica no lineal [1,4] suponiendo que todos los haces que interactúan son planos, que la longitud de interacción es de 2.5 cm (longitud real del cristal), y que la eficiencia de conversión es baja, por lo que el agotamiento de la onda de bombeo pudo ser despreciado. Teóricamente, encontramos que $\Delta\lambda_{FWHM} = 3.6 \text{ nm}$, por lo que podemos concluir que casi todo - si no es que todo - el cristal contribuye a la generación óptica paramétrica, y por

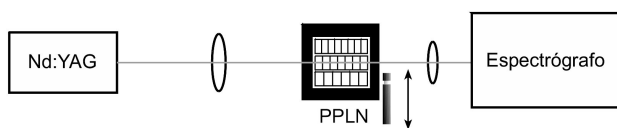


FIGURA 10. Arreglo experimental para la generación óptica paramétrica sintonizable.

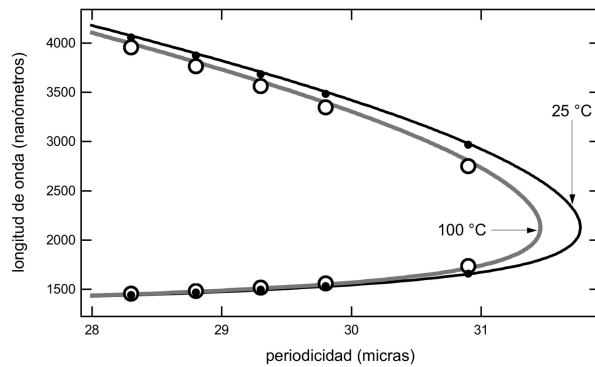


FIGURA 11. Longitudes de onda generadas contra periodicidad. Longitud de onda de bombeo: $1,0642 \mu\text{m}$.

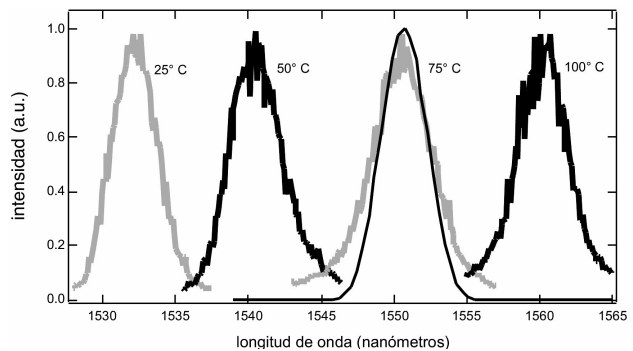


FIGURA 12. Espectro de la generación óptica paramétrica en función de la temperatura. Líneas gruesas: resultados experimentales. Línea delgada: predicción teórica. Para poder comparar visualmente los resultados experimentales con los cálculos teóricos, estos últimos fueron recorridos 4 nm hacia las longitudes de onda largas para que los máximos coincidieran.

lo mismo concluimos que hemos logrado obtener una inversión periódica de dominios a lo largo de todo el cristal.

6. Conclusiones

En resumen, hemos presentado una técnica de fabricación de estructuras de dominios ferroeléctricos de alta calidad que puede ser utilizado para crear medios adecuados para su uso en óptica no lineal, en particular niobato de litio periódicamente polarizado (PPLN) para la generación óptica paramétrica, con periodicidades de entre 25 y 30 micras. Aunque solamente se mostraron resultados de muestras de 2.5 cm de longitud, hemos logrado fabricar PPLN de más de 5 cm de largo, y hasta donde sabemos lo único que limita la longitud de estas estructuras es el diámetro de la oblea original, o sea 3 pulgadas. Hasta la fecha no hemos intentado fabricar estructuras adecuadas para la generación del segundo armónico (alrededor de 6 micras para doblar la frecuencia de un láser Nd:YAG), pero con la misma técnica descrita aquí hemos fabricado estructuras de 11 micras con las que hemos realizado exitosamente experimentos de suma y resta de frecuencias entre dos ondas, por lo que confiamos plenamente en que podamos fabricar estructuras de 6 micras de alta calidad en un futuro cercano.

Agradecimientos

Quisiéramos agradecer a M. Missey, V. Dominic, P. Smith y R. Eason por invaluable discusiones sobre fabricación de

PPLN, a E. Méndez por discusiones sobre depósito de fotorresina, a J. Dávalos y a J. Hajfler por recomendaciones en la técnica de pulido de niobato de litio, y a CONACyT por el apoyo brindado a través del proyecto 32205-E.

-
- *. Dirección actual: Departamento de Ciencias Básicas, Unidad Profesional Interdisciplinaria en Ingeniería y Tecnologías Avanzadas del IPN, Av. Instituto Politécnico Nacional No. 2580, C.P. 07340, México D.F. IPN.
1. Amnon Yariv, *Quantum Electronics* (John Wiley & Sons, third edition, 1989).
 2. J.A. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing, and P. S. Pershan, *Phys. Rev.* **112** (1962) 1918.
 3. R.C. Miller and A. Savage, *Phys. Rev.* **112** (1958) 755.
 4. P.N. Butcher and D. Cotter, *The Elements of Nonlinear Optics* (Cambridge University Press, 1991).
 5. M. DiDomenico and S. H. Wemple, *J. Appl. Phys.* **40** (1969) 720.
 6. R.C. Miller, W. A. Nordland, and P. M. Bridenbaugh, *J. Appl. Phys.* **42** (1971) 4145.
 7. D.H. Jundt, *Opt. Lett.* **22** (1997) 1553.
 8. L.E. Meyers, *et al.*, *J. Opt. Soc. Am. B* **12** (1995) 2102.
 9. M. Hou and P.D. Townsend, *J. Phys D: Appl. Phys.* (1995) 1747.
 10. M.J. Missey, *et al.*, *Optics Express* **6** (2000) 186.
 11. R.S. Weis and T.K. Gaylord, *Appl. Phys. A* **37** (1985) 191.
 12. L.E. Myers, *et al.*, *Opt. Lett.* **21** (1996) 591.