

# 薄膜铌酸锂集成非线性光学：走向全光信息时代的新路径\*

郑远林 陈险峰<sup>†</sup>

(上海交通大学物理与天文学院 上海 200240)

## Integrated nonlinear photonics on thin-film lithium niobate: a route to an all-optical information era

ZHENG Yuan-Lin CHEN Xian-Feng<sup>†</sup>

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

2023-12-25 收到

<sup>†</sup> email: xfchen@sjtu.edu.cn

DOI: 10.7693/wl20240103

**摘要** 光芯片的强大信息处理能力令人期待，而集成光子学是光芯片的基础。铌酸锂号称“光学硅”，是一种综合性能优异的多功能晶体材料。新兴的薄膜铌酸锂解决了传统铌酸锂基光学集成的重大难题，为现有集成光子学器件发展提供了新的爆发性点，也为非线性光学的研究和应用提供了良好的平台，有望实现高效的片上全光信息处理。文章将介绍薄膜铌酸锂平台上非线性光学相关的最新重要突破和进展，并简述集成非线性光学如何助推未来光子学革命。

**关键词** 薄膜铌酸锂，微纳光子学，非线性光学，光波导

**Abstract** Photonic chips with powerful information processing capability are highly sought after. These are based on integrated photonics technology, wherein lithium niobate (LN), dubbed as the “silicon of photonics,” is an excellent multifunctional crystal with comprehensive performance. The recent breakthrough using thin-film LN in overcoming the dense integration bottleneck of conventional LN based devices has provided a new avenue for integrated photonics, as well as a new platform for the research and application of nonlinear photonics, from which efficient all-optical on-chip processing may be expected in the near future. Here, we summarize recent important developments and explain how integrated nonlinear photonics based on thin-film LN will contribute to the future photonics revolution.

**Keywords** thin-film lithium niobate, micro-/nano-photonics, nonlinear optics, optical waveguides

## 1 引言

信息量的爆发式增长使得人们对信息处理能力的要求也不断提升。随着摩尔定律开始逼近物理极限，集成电路技术的发展面临着极限，电子

学的瓶颈越来越凸显，这一问题也迫使人们转向光子信息技术寻求新的解答。因为光子具有传播速度快、容量大、抗干扰等优势，光在信息传输和处理方面具有天然的巨大优势。光子技术受益于其相对电子快得多的响应速度，以及在光纤波分复用通信中已经得到证实的巨大信息载运能力，是大信息大数据的传输和交换的主流方法。高速光通信仍是当下集成光子学最凸显价值和最大的

\* 国家科技部重点研发计划(批准号: 2022YFA1205101; 2023YFA1407 202)、国家自然科学基金(批准号: 12074252; 12192252)资助项目、上海市市级科技重大专项(2019SHZDZX01-ZX06)

应用领域。但另一方面我们也可预见，片上光信息将是突破现有计算机瓶颈的理想解决方案，集成光子技术在不久的将来或将带来颠覆性的片上光信息处理模式乃至全新的全光计算模式。集成光子学便是人们为之期待的光信息处理芯片的基石，因此高密度集成光子学的快速发展将助推全光信息处理器时代的到来。

目前可用作光集成平台材料很多，诸如硅(Si)、铌酸锂(LN)、氮化硅(Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>)、磷化铟(InP)、碳化硅(SiC)、氮化铝(AlN)和砷化镓(GaAs)等是当下集成光子学研究的热门材料，在这些材料平台上人们取得了巨大的突破和进展。需要指出的是，目前还没有一种完美平台材料可以实现高效的片上光产生、传输、操控和探测等各项需求，这也是科研界的普遍共识之一。因此，混合集成和异质集成被认为是当下解决全光集成器件或芯片的必由之路。即使仅针对铌酸锂平台也已有诸多综述分别从不同角度不同层面对该领域的发展做了很好的总结<sup>[1-16]</sup>。为了尽量避免重述，本文将主要介绍新型薄膜铌酸锂材料在非线性光子集成平台的最新研究进展。

铌酸锂是一种较“古老”的材料，早在1965年 Albert A. Ballman 等人便使用提拉法首次人工生长出了铌酸锂单晶<sup>[17]</sup>。铌酸锂具有超宽的光学透明窗口，以及优异的非线性、电光、声光、压电、热电和光折变等特性。铌酸锂晶体还具有易生长、抗腐蚀、耐高温特性，并且机械性能稳定，生产成本较低，很快便成为了最具吸引力的光子学材料之一。铌酸锂晶体令人着迷之处在于其具有的多功能性，常被盛誉为“光学硅”。铌酸锂晶体莫氏硬度大、物理化学性质稳定，这既保证了器件的可靠性和耐久性，也对光子器件加工提出了很高的要求。几十年来虽然铌酸锂调制器在高速光纤骨干网的传输调制中起到关键作用，但在关键性能参数进一步提升方面一直遭遇瓶颈，而且体积较大，不利于集成。早期制约铌酸锂基集成光学发展的主要因素是高折射

率对比度波导工艺制备上的困难，该问题也限制了铌酸锂在高密度集成光子学方面的应用和发展。

这一问题随着薄膜铌酸锂(thin-film lithium niobate, TFLN)这一颠覆性技术的出现而得到突破。基于薄膜铌酸锂的集成光子器件让铌酸锂晶体又焕发了生机，再次成为集成光子学的研究焦点<sup>[18]</sup>。近年来，基于智能剥离技术，也有称离子(注入)剥离技术等<sup>[19]</sup>，人们研发了新型的薄膜铌酸锂和相关器件的加工工艺，极大地缩小了铌酸锂功能器件的尺寸，使大规模高密度铌酸锂光子集成成为现实。新兴的薄膜铌酸锂因其出色的光学特性和多功能性，在当前的集成光子学、集成非线性光子学的研究中受到了极大的关注。截至目前，薄膜铌酸锂商业化刚满十年，这也是薄膜铌酸锂基集成光学迅猛发展的黄金十年。目前，铌酸锂集成器件已经实现远超传统极限的高效率非线性频率变换、超高速电光调制、高性能射频滤波、宽带光学频率梳、波长捷变激光器、高亮度量子光源等功能集成。基于这些丰富的高性能器件以及多功能器件的高密度集成，可在片上实现对光的产生、调控、频率变换、探测等操作，未来薄膜铌酸锂集成光芯片通过复杂集成回路将可望实现经典或量子光信息处理、光模拟及光计算芯片，并突破电子学瓶颈，原理概念如图1所示。为此，2017年美国哈佛大学发表了题为“现在该进入铌酸锂谷的时代了(Now entering, Lithium Niobate Valley)”的报道<sup>[20]</sup>。

在当前电子信息迈入光子信息的大趋势下，薄膜铌酸锂集成光子学将是下一代颠覆性技术之一。得益于薄膜铌酸锂高密度集成光子方案，当

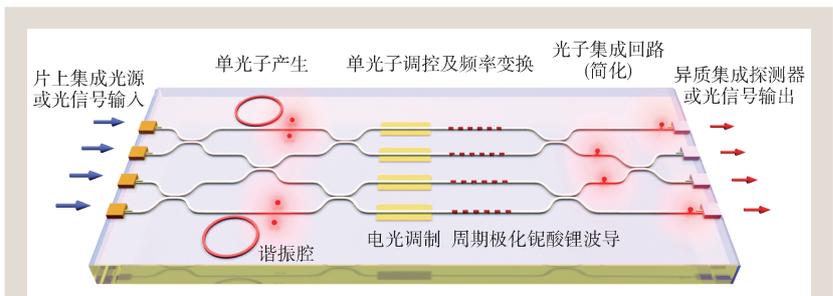


图1 薄膜铌酸锂集成光芯片示意图。通过将各种高性能功能器件(不仅限于图示)及光子回路集成或异质集成在同一薄膜铌酸锂光芯片上，实现对光的产生、调控、频率变换，并通过复杂集成回路实现光模拟及光计算

然再通过混合/异质集成, 可将微波电子、核心光子功能、无源光学和其他技术结合到小型化片上系统中, 从而实现高速复杂的光信息处理、高性能光电子甚至全光计算。这其中, 非线性光学原理是实现全光信息处理(即“光控光”)的重要手段之一, 但是光本身的抗干扰特性使得很难实现弱光下的光光相互转换。因此需要发展高性能的非线性光子学器件, 通过微纳结构或者微腔进行光场局域增强, 提高光与物质相互作用效率, 从而达到弱光非线性的目的。由于薄膜铌酸锂的波导折射率对比度高达0.7, 利用纳米波导即可以支持光导波模式传输。如此强的光场局域可以显著增加光场能量密度以及非线性强度, 并为大规模集成和色散调控提供了独特的能力。薄膜铌酸锂已被视为具有光明前景的集成光子学平台, 利用它可以突破很多传统非线性光学研究的局限。

## 2 薄膜铌酸锂波导微纳加工技术

绝缘体上铌酸锂(lithium niobate on insulator, LNOI)技术(将通过离子注入剥离或其他方法获得的铌酸锂单晶薄膜键合在绝缘体基底上的技术)的发展历史最早可以追溯到1998年。当时, Levy等人报道了通过离子切片从体块铌酸锂晶体上剥离出第一块高质量薄膜铌酸锂<sup>[21]</sup>, 面积大约 $10\text{ mm} \times 3\text{ mm}$ , 厚度为 $9\text{ }\mu\text{m}$ , 也就是微米级厚度的薄膜铌酸锂。但是由于较大厚度, 只能支持光的多模传输, 而且当时铌酸锂刻蚀工艺还未成熟, 因而在集成光子学方面的应用有限。2004年, Rabiei和Gunter利用智能切片工艺在二氧化硅衬底上制备了面积约 $1\text{ cm}^2$ 的铌酸锂单晶薄膜<sup>[22]</sup>, 为薄膜铌酸锂技术的开发提供了思路。期间人们还有使用BCB(苯并环丁烯树脂)作为中间层粘结剂材料来实现纳米厚度铌酸锂薄膜与基底的粘合<sup>[23]</sup>。更有意义的是, 胡卉等人2009年报道的3英寸晶圆级的亚微米厚度绝缘体上铌酸锂薄膜(LNOI), 后来名称也叫薄膜铌酸锂(TFLN)。薄膜铌酸锂键合在化学气相沉积的二氧化硅缓冲层上, 基底是 $z$ 切铌酸锂, 这种定型是目前智能切片工艺常采用的。并且他们还通过氩离子刻蚀制备了光波导, 但波

导的传输损耗还较大( $10\text{ dB/cm}$ 量级)<sup>[24-26]</sup>。这些早期工作发起了薄膜铌酸锂作为新型集成光子学研究的开端。目前智能切片工艺已是制备高品质、大尺寸薄膜铌酸锂的有效方法, 其工艺主要包括氩离子注入、晶片键合、热剥离以及化学机械抛光等。现在6英寸纳米薄膜铌酸锂晶圆以及稀土离子掺杂( $\text{Er}^+$ 、 $\text{Yb}^+$ )的薄膜铌酸锂晶圆已经商业化, 为铌酸锂集成及有源器件的研究提供了材料基础。

铌酸锂微纳米结构加工技术也迅速发展, 目前已发展出包括干法刻蚀、飞秒激光直写辅助化学机械抛光、金刚石切割、湿法刻蚀和聚焦离子束铣削等多种加工手段。前些年薄膜铌酸锂出现后铌酸锂基集成光子学发展还受到器件加工工艺的限制, 因为铌酸锂的微纳加工很难, 甚至比金刚石还难。早期在微米级厚度或体铌酸锂上, 可以使用高精度机械抛光的方法, 例如金刚石切割, 即划片法, 但只适用于制备直波导。在纳米薄膜铌酸锂上, 聚焦离子束铣削由于重离子(镓离子)注入使得晶格损伤的原因, 制备的微腔品质因子一般在 $10^5$ 量级以下, 而且也不适合制备长波导。湿法刻蚀受限于晶体各向异性以及铌酸锂化学惰性, 早期的刻蚀效果并不理想。近期湿法刻蚀的工艺也有了显著提升, 并可高效地制备铌酸锂微环腔且品质因子接近 $10^7$ , 不失为一种低成本高效率的新方法<sup>[27]</sup>。目前, 应用最广泛的方法仍是干法刻蚀工艺。根据结构精度要求不同, 干法刻蚀工艺又有电子束曝光干法刻蚀、深紫外光刻干法刻蚀和紫外光刻深度干法刻蚀三种不同的工艺。2014年, 哈佛大学Marko Loncar课题组报道了利用电子束曝光和氩离子刻蚀工艺实现高品质回音壁模式微盘腔(品质因子为 $10^5$ )<sup>[28]</sup>, 演示了在薄膜铌酸锂上制备高品质微纳结构并应用于集成光子学的可行性。目前, 干法刻蚀工艺制备的铌酸锂纳米波导的传输损耗已低至 $2.7\text{ dB/m}$ 水平(相对应的微环腔品质因子达到 $10^7$ )<sup>[29]</sup>。而利用飞秒激光辅助化学机械抛光方法制备的铌酸锂纳米波导的传输损耗甚至超过一些, 达到了 $0.34\text{ dB/m}$ 量级(相对应的微环腔品质因子达到 $10^8$ 。理论极限大约在 $0.1\text{ dB/m}$ )<sup>[30]</sup>, 该方法制备的波导长度可达米

量级。为实现大规模集成光子回路奠定了基础，特别是集成量子光学中单光子传输对损耗的苛刻要求。如图2所示，电子束曝光干法刻蚀工艺制备的波导纵横比大约为1，侧壁较陡直(侧壁角一般 $60^{\circ}$ — $80^{\circ}$ )，更容易实现波导间的耦合，这在很多功能器件中至关重要。利用化学机械抛光法制备的波导侧壁平缓(侧壁角一般小于 $10^{\circ}$ )，不易于实现波导间耦合。

不过利用这些工艺都可以实现晶圆级器件的制备。图3是利用现有不同工艺制备的晶圆级微纳波导的图片<sup>[31-33]</sup>。其中图3(a), (b)是在纳米薄膜铌酸锂晶圆上实现，图3(c)是在微米厚度薄膜铌酸锂上实现。微米波导在通信波段支持多模传输，因此一般制备的是直波导或者轻微弯曲波导器件，主要应用在非线频率变换中，可以在高功率光泵浦下运行。这种微米级波导对于未来制备红外非线性集成器件仍然是非常适用的。晶圆级制备能力都体现了这些工艺具备规模化量产潜能，当然器件的一致性还有待长时间的验证，这是未来实际应用中必须面对的工程问题。

在刻蚀深度方面，现有的干法和湿法刻蚀深度仍十分有限，主要受限于刻蚀过程中的选择比和掩膜版的抗刻蚀能力，百纳米厚度的光刻胶或铬研磨也只能达到亚微米尺度。而在紫外光刻和深度干法刻蚀工艺中，利用厚胶作为掩膜版，在同等的选择比条件下，刻蚀深度可以达到数微米<sup>[33, 34]</sup>。

### 3 薄膜铌酸锂集成非线性光学

铌酸锂的大部分光子应用是基于其电光效应和非线性光学过程，因为铌酸锂具有优良的二阶非线性特性。目前人们已在薄膜铌酸锂平台上制备了高效电光调制器、非线性光学频率转换器、光频梳器件、量子光源等器件。电光效应是一种特殊的二阶非线性过程，一般作为单独一种效应

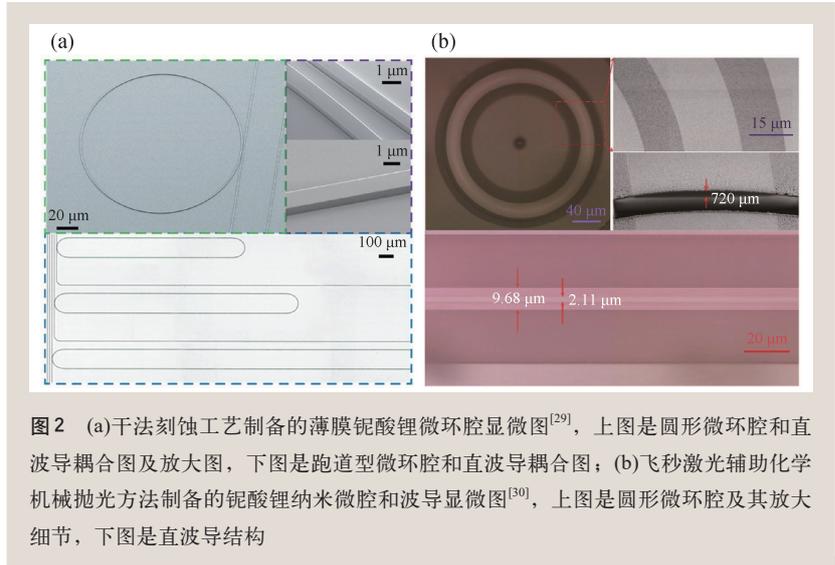


图2 (a)干法刻蚀工艺制备的薄膜铌酸锂微环腔显微图<sup>[29]</sup>，上图是圆形微环腔和直波导耦合图及放大图，下图是跑道型微环腔和直波导耦合图；(b)飞秒激光辅助化学机械抛光方法制备的铌酸锂纳米微腔和波导显微图<sup>[30]</sup>，上图是圆形微环腔及其放大细节，下图是直波导结构

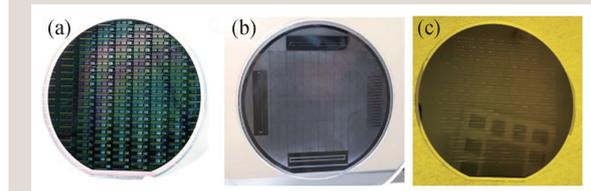


图3 利用不同工艺实现晶圆级微纳波导制备 (a)深紫外光刻和干法刻蚀工艺<sup>[31]</sup>，薄膜铌酸锂晶圆尺寸为6英寸；(b)飞秒激光直写辅助化学机械抛光工艺<sup>[32]</sup>，对应4英寸晶圆；(c)紫外光刻和深度干法刻蚀工艺<sup>[33]</sup>，对应4英寸晶圆

来研究和应用。基于薄膜铌酸锂平台的电光器件研究及其相关综述已有很多，不再赘述。这里主要介绍薄膜铌酸锂在集成二阶非线性光学效应中的发展和应用，这类典型的二阶非线性光学过程包括二次谐波(倍频)、和频/差频、光参量放大/光参量振荡过程、自发参量下转换等。为了实现高效的非线性混频或频率转换过程，相互作用的光波需要满足能量守恒和动量守恒。一旦过程发生则自动满足能量守恒，而由于材料色散往往不易实现动量守恒，需要通过相位匹配方式来实现，例如双折射相位匹配、模式相位匹配、准相位匹配等。灵活使用不同的相位匹配方式实现色散补偿对实现高效非线性光学频率转换至关重要。

基于准相位匹配的周期性极化铌酸锂(periodically poled lithium niobate, PPLN)是成熟的集成光学平台必不可少的，被广泛应用于非线性光学、光量子技术等多个领域。尤其是近些年来，畴工程技术的进步将准相位匹配技术与极化周期结构

的铌酸锂相结合，提高了频率转换效率并扩大了应用波段范围。自1993年M. Yamada第一次利用外加电场极化法成功制备出PPLN晶体以来，该方法得到了迅速的发展，目前已是制备周期极化晶体最重要的方法。薄膜铌酸锂的极化也采用的是同样的方法。图4(a)显示的是相位匹配时二次谐波(倍频)光产生与作用距离的关系，体现了相位匹配(动量守恒)对非线性效率的重要影响。铌酸锂是一种铁电晶体，可以通过电场极化技术实现畴反转，进而导致二阶非线性系数符号的改

变，重要应用是利用其周期性极化畴反转结构实现准相位匹配。图4(b), (c)分别对应的是 $x$ 切和 $z$ 切薄膜铌酸锂中利用电场极化实现周期性畴反转的基本原理。通过施加一个极化电压(极化电场强度大于铌酸锂晶体的矫枉场)，使晶体的自发极化方向发生反转，如图中箭头所示。所形成的周期性非线性光栅结构提供的倒格矢弥补了相互作用光在波导中由于色散引起的相位差，重新达到动量守恒条件，即准相位匹配。

在集成平台上实现超高效率的非线性过程对于未来强烈要求低功耗和大规模

制造兼容性的光子系统至关重要。对于非线性过程，光场强度/能量密度越大，相互作用也越强，相应的转化效率也会越高。薄膜铌酸锂集成光子学的重要进步就是它可以将光波局域在微纳米尺度的光波导中，从而极大地提高了非线性过程的相互作用强度或效率。例如，王骋等人率先实现了高品质的周期性极化铌酸锂纳米波导，并演示了高效率的二次谐波过程，实验上效率高达 $2600\%W^{-1}cm^{-2}$ (理论值为 $4500\%W^{-1}cm^{-2}$ )<sup>[35]</sup>，并实现了超过50%的绝对转化，如图5(a), (b)所示，这比传统质子交换波导的归一化效率提高一个数量级以上。不过由于纳米波导的强色散，1550 nm倍频过程对应的极化周期仅为 $4\mu m$ 左右，这也为畴反转结构制备增加了不少难度。

研究人员也演示过其他多种实现准相位匹配的方案，例如通过波导宽度调制、超表面结构辅助等方法，但是效率都比较低，无法达到实用化水平。当然利用一些特殊设计，通过模式相位匹配可以实现高效的二次谐波过

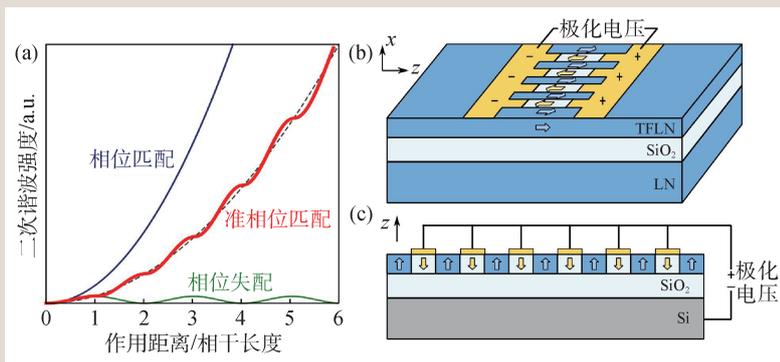


图4 相位匹配机制以及周期极化薄膜铌酸锂制作过程 (a)相位匹配不同时二次谐波强度与作用距离的关系； $x$ 切(b)和 $z$ 切(c)薄膜铌酸锂中利用电场实现周期性畴反转的示意图。其中，图中箭头表示畴自发极化方向， $z$ 轴也是铌酸锂晶体的光轴方向

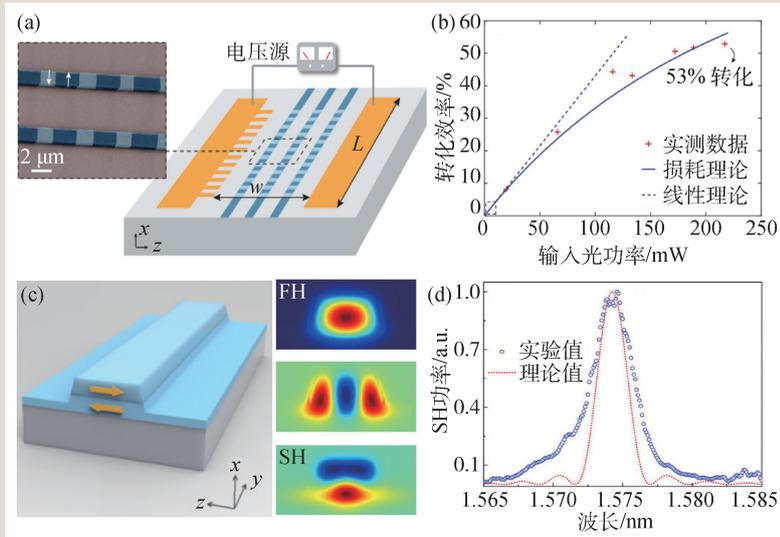


图5 薄膜铌酸锂纳米波导实现高效二次谐波产生 (a) $x$ 切薄膜铌酸锂周期极化示意图以及制备的周期性极化纳米波导显微图<sup>[35]</sup>；(b)周期性极化铌酸锂纳米波导中二次谐波转化效率随输入泵浦光功率的变化关系；(c)双层铌酸锂薄膜脊波导结构以及波导模式分布示意图<sup>[36]</sup>，其中箭头表示畴自发极化方向，FH表示基频光，SH表示倍频光；(d)二次谐波转化效率随波长的变化关系

程。例如，利用双层铌酸锂薄膜制备薄膜脊波导结构，如图5(c)，(d)所示，上下两层铌酸锂薄膜的厚度分别270 nm和300 nm，且极化方向相反。利用这一独特的结构能够实现倍频光二阶模和基频光基模之间的模式匹配，从而大大提高转换效率，归一化转换效率的实验值达到 $5540\%W^{-1}cm^{-2}$  (理论值为 $10^4\%W^{-1}cm^{-2}$ 量级)<sup>[36]</sup>。虽然铌酸锂纳米波导的归一化效率很高，但是波导长度一般只有几个毫米，而传统质子交换波导的长度可超过5 cm，因而整体纳米铌酸锂非线性器件的绝对效率(小于 $10^3\%W^{-1}$ )与传统质子交换波导(约等于 $5\times 10^3\%W^{-1}$ )相比还有一定的差距。

铌酸锂纳米波导具有很强的光场限制效应，结构色散很强，这使得匹配条件对纳米波导的几何形状非常敏感。在纳米光子铌酸锂波导中，二阶非线性效率的进一步提升，需要打破纳米尺度不均匀性的限制。最近有报道通过自适应极化方法，依据薄膜铌酸锂厚度的起伏相应地修正极化周期，从而消除纳米尺度不均匀性的影响，实现了大于 $10000\%W^{-1}$ 的整体二次谐波效率<sup>[37]</sup>，如图6所示，接近纳米光子铌酸锂波导的理论性能，且该效率是传统长距离质子交换波导的两倍以上。在泵浦功率低至20 mW时，即可实现泵浦光到二次谐波的转换率大于80%的性能。这为高效和可扩展的非线性光源、波长转换、参量放大器提供了重要的解决方案。但这种方法需要每次精确测量各处薄膜的厚度并且极化周期修正值严重依赖经验值，而且极化电极也需要依次修改，因此量化制备的效率也受限。这一问题的根本解决方案有赖于上游薄膜铌酸锂晶圆制备上对其厚度的精确控制。

高效非线性作用的重要前景是实现弱光条件下的光光相互转化或参量作用，从而应用于全光

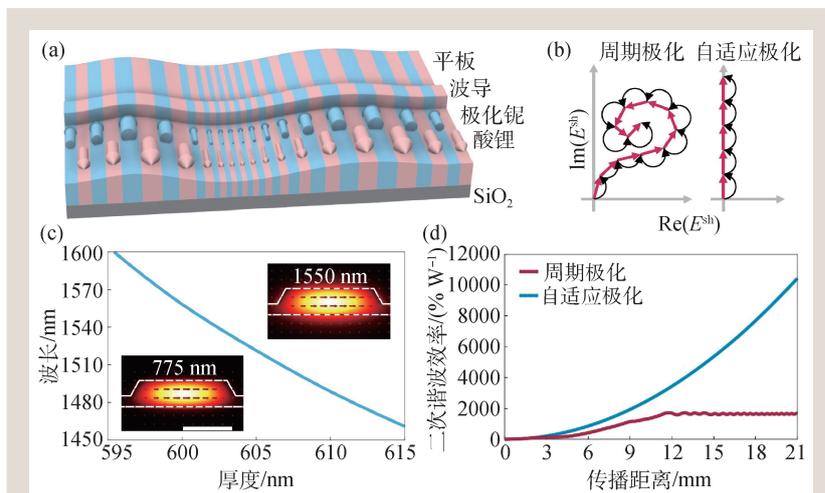


图6 纳米光子铌酸锂波导中的自适应极化实现高效二次谐波产生<sup>[37]</sup> (a)极化周期随薄膜铌酸锂厚度涨落而微调；(b)周期极化和自适应极化波导中二次谐波产生的相图，表明二次谐波由于周期极化薄膜铌酸锂厚度涨落产生的匹配偏差而无法持续增长，在自适应极化中，二次谐波可以持续增长；(c)极化周期不变时，薄膜铌酸锂厚度变化时对应的准相位匹配波长也发生变化；(d)理论计算通过周期极化(红色)以及利用自适应极化(蓝色)的薄膜铌酸锂纳米波导转化效率随传播距离的关系

信息处理。如前所述，光虽然很适合实现互联和长距离高速数据传输，但目前处理光所携带的信息时仍然需要引入光电转换以及电学器件，电子学的最高运行速度在100 GHz左右。全光开关和全光信息处理是突破传统光电信息处理中速度极限的关键之一。然而相比于电子和电子之间很强的相互作用，光和光之间很难产生相互作用。受制于固体光学材料中有限的非线性光学和光能量密度，过去实现固态全光开关的方式需要用很强的光功率，这会显著提高信息处理的能耗。最近研究人员利用周期性极化薄膜铌酸锂纳米波导，在不利用谐振增强条件下，仅用80 fJ (1 fJ= $10^{-15}$  J)的能耗实现了快达46 fs的光学开关速度<sup>[38]</sup>，对应的带宽为9.6 THz，超过电子学上限速度约两个数量级。其核心是通过二次谐波(SHG)和简并光参量放大(DOPA)两个效应的级联过程，如图7所示。并且精确地控制铌酸锂纳米波导的准相位匹配和色散，既保持了脉冲间的高效率作用同时还防止了脉冲波形的畸变。高速全光开关为实现全光超快信息处理和计算又前进了一步。

除了微纳波导实现，通过高品质微腔谐振效应，例如回音壁模式光学微腔，可以进一步增强

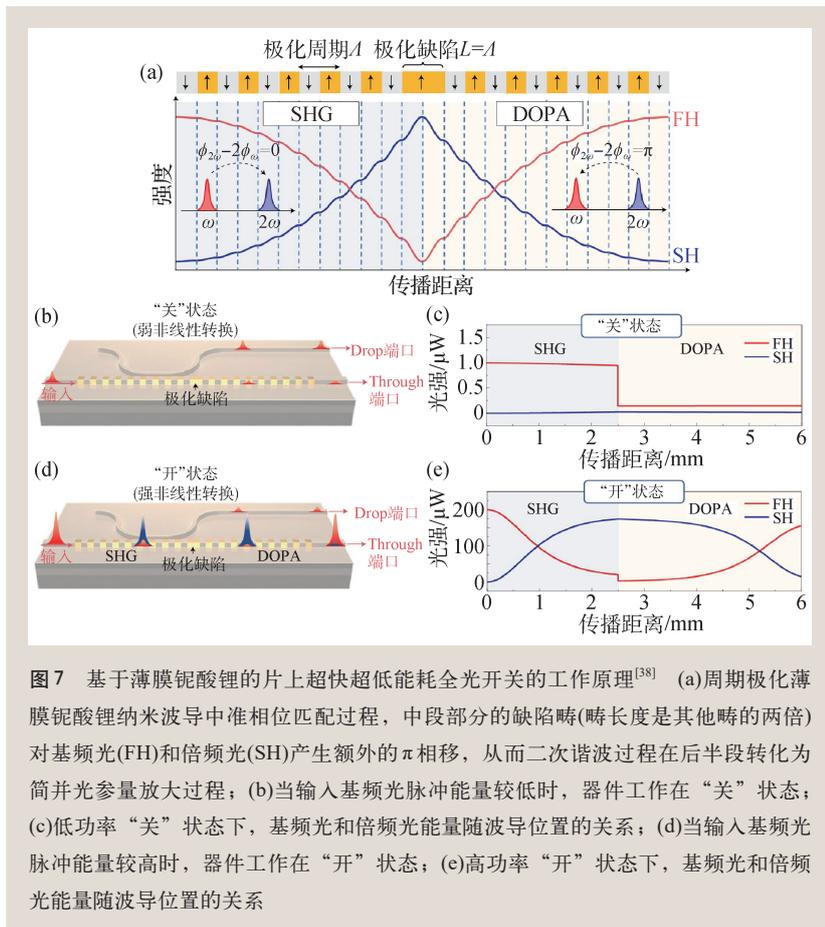


图7 基于薄膜铌酸锂的片上超快超低能耗全光开关的工作原理<sup>[38]</sup> (a)周期性极化薄膜铌酸锂纳米波导中准相位匹配过程,中段部分的缺陷畴(畴长度是其他畴的两倍)对基频光(FH)和倍频光(SH)产生额外的 $\pi$ 相移,从而二次谐波过程在后半段转化为简并光参量放大过程;(b)当输入基频光脉冲能量较低时,器件工作在“关”状态;(c)低功率“关”状态下,基频光和倍频光能量随波导位置的关系;(d)当输入基频光脉冲能量较高时,器件工作在“开”状态;(e)高功率“开”状态下,基频光和倍频光能量随波导位置的关系

腔内光场强度以及实现更高效的光与物质相互作用。由于铌酸锂在其透明波段的本征吸收很小,很适合用于制备高品质微腔,同时结合其二阶非线性效应,可以实现更高效的非线性频率变换,从而大大降低了非线性效应发生所需的激光功率,为纳米级、单光子量级的非线性科学开辟了新的可能性。

在较早的时候,人们基于微盘腔中的模式相位匹配,可观测到较强的非线性效应。因为微盘相对易于制备,且模式密度较大,容易自动实现基频低阶模式(通常是基模)和二次谐波高阶模式之间的模式相位匹配。2017年,我们课题组在薄膜铌酸锂微盘腔上实现了二次谐波的同时观测到了级联三次谐波产生,但是转换效率相对较低<sup>[39]</sup>。也有利用 $x$ 切薄膜铌酸锂微盘中有效非线性系数周期性变化的特点,实现类准相位匹配的宽带二次谐波产生<sup>[40]</sup>。真正高效的腔增强非线性过程,需要精确设计和制备微腔的结构和尺寸。例如,

通过周期性极化获得的薄膜铌酸锂微腔就是最有效的方法,但是实现高效转换的条件十分苛刻,需要在基频光和倍频光同时共振的条件下再满足准相位匹配,这要求精准的色散管理和微纳制备能力。2020年,耶鲁大学唐红星研究组在周期性极化薄膜铌酸锂微环腔(PPLNMR)中实现了非线性转化效率高达 $5 \times 10^6 \% W^{-1}$ 的腔增强二次谐波过程<sup>[41]</sup>,如图8所示,这是目前波导的最高纪录。在非线性光学系统中直接观测到单光子级的光子相互作用仍然极为困难,即使在如此高的归一化效率下,也仅相当于1%的单光子非线性非简谐度,实现单光子的阻塞效应还需进一步提高光子相互作用强度。实验中微环腔的极化周期为 $2.95 \mu m$ ,在基频光和倍频光波段的负载品质因子大

约为 $5 \times 10^5$ ,输入基频光功率也低至 $10 \mu W$ 以下。这种室温条件下即可实现单光子量子效应的体系在集成量子光学的应用中具有巨大的前景。

## 4 薄膜铌酸锂在量子光学领域的应用

高性能薄膜铌酸锂集成器件不仅有力地推动了经典集成光子学的发展,也对光量子集成发展起到了关键的促进作用。当下,薄膜铌酸锂集成量子器件已经能够实现光子态的高效率产生、调控、频率转换以及通过异质集成实现单光子探测等等<sup>[42-48]</sup>,在不久的将来有望形成全功能集成的光量子芯片,推动量子物理基础研究和光量子信息技术应用的发展。与其他衬底材料相比,薄膜铌酸锂量子集成器件可以在室温和低温下工作<sup>[49]</sup>,还可以通过电光、声光、热光等效应在不引入额外损耗的前提下实现对光子态的高速调控。

量子光源是光量子计算和信息通信的核心资源，常用的制备量子光源的方法是利用铌酸锂材料具有高的二阶非线性效应并基于自发参量下转换(SPDC)过程实现双光子态制备，可用作预报式单光子源。最直接的方案是利用高效的铌酸锂微纳米波导实现低噪声、高亮度的下转换光子对。目前铌酸锂基量子光源，尤其是铌酸锂薄膜量子光源，已经展示了其高亮度、高集成度等特点，为有源集成的光量子芯片制备打下了很好的基础。图9是在周期极化铌酸锂纳米波导中产生高品质光子对的装置， $x$ 切薄膜铌酸锂通过外加电场极化实现周期性畴反转，满足自发参量下转换过程中的准相位匹配。该过程将一个高频泵浦光子(785 nm)在非线性能波导中自发地劈裂成两个通信波段光子(1570 nm)，也就是关联光子对。实验获得的符合计数与随机符合计数比(CAR)高达67000，并且在亚毫瓦功率泵浦下产生了10 MHz的高亮度光子对<sup>[42]</sup>，相比传统铌酸锂波导泵浦功率降低了两个数量级。低泵浦功率有助于抑制多光子产生。这种片上集成化单光子源将是未来量子集成回路的重要组成部分之一。

在高品质薄膜铌酸锂微腔中可以进一步提高自发参量下转换过程的效率。史蒂文斯理工学院的课题组利用一个高品质周期极化的铌酸锂微环腔仅在3.4  $\mu\text{W}$ 和13.4  $\mu\text{W}$ 的泵浦功率下分别获得了8.5 MHz和36.3 MHz的光子对产率<sup>[43]</sup>，如图10所示，其亮度相对于其他材料平台上的结果有数量级的提升。在低光子对产率时，符合计数与随机符合计数比可超过 $10^5$ ；在高光子产率时，符合计数与随机符合计数比也远高于100。这种绝佳的性能得益于微腔中多重谐振、准相位匹配以及腔

增强的巨大光学非线性效应。

量子回路对损耗特别敏感，而且不能通过光学放大过程来弥补损耗。上述的纳米薄膜铌酸锂的波导和微腔结构作为片上单光子源的性能虽好，但是在与光纤耦合时，由于二者模式严重失配仍存在较大的耦合损耗，极大地影响了器件的纤到纤性能表现。在与光纤网通信应用相关的领域中，器件光纤兼容性也必须考虑。铌酸锂薄膜非线性波导器件走向实用化的关键因素一方面在于高效非线性效应的实现，另一个方面也必须解决在实际应用中规模化制备工艺和光纤兼容性问题。由于二阶非线性过程的波长跨度大(倍频程)，设计和制备超宽带或多波长的模板转换器仍具有一

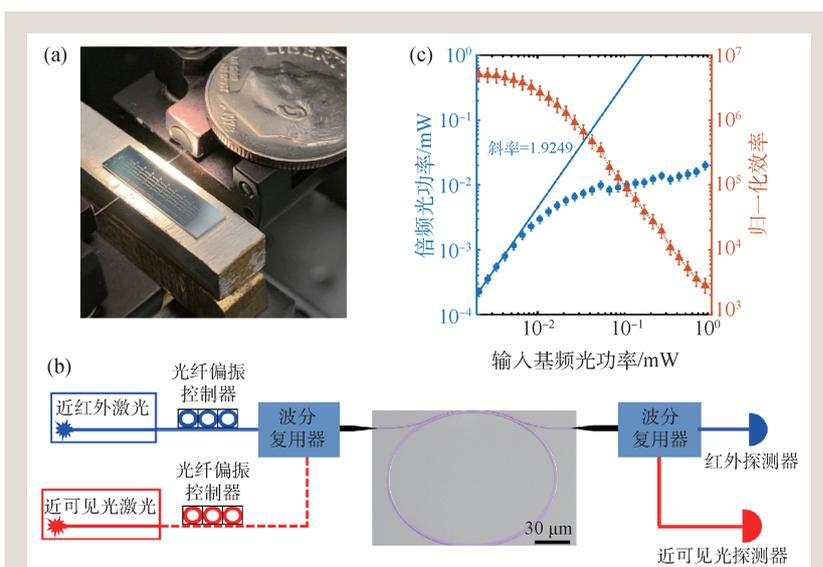


图8 周期性极化薄膜铌酸锂微环腔实现高效腔增强的二次谐波产生<sup>[41]</sup> (a)薄膜铌酸锂芯片实物图；(b)实验装置示意图；(c)倍频光功率以及归一化效率随输入基频光功率的变化关系

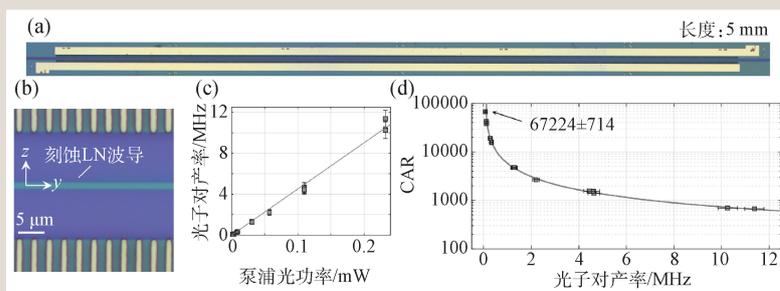


图9 薄膜铌酸锂纳米波导以及自发参量下转换的性能表现<sup>[42]</sup> (a)周期性极化薄膜铌酸锂纳米波导的光学显微镜图；(b)样品的局部放大图，其中上下梳状金属结构为极化电极；(c)光子对产率随泵浦光功率增加；(d)符合计数与随机符合计数比随光子对产率关系

定的困难,已有的研究报道也比较少。我们课题组研发的微米级铌酸锂非线性波导实现了可扩展的、光纤兼容的、高效的铌酸锂薄膜非线性器件<sup>[33]</sup>。利用紫外光刻和干法刻蚀技术制得的高品质周期性极化铌酸锂微米波导,其波导模式在基频和倍频波段都与光纤模式有较好的匹配,解决了铌酸锂芯片中光纤—波导—光纤耦合难题。

我们利用紫外光刻和干法刻蚀工艺实现了3 μm厚薄膜铌酸锂的深度刻蚀,制备的铌酸锂微米波导横截面约为3×4 μm<sup>2</sup>,如图11(a)所示。相比传统铌酸锂波导制备工艺既简化了流程且提高了非线性效率,又避免了纳米波导中由于模场失配导致的光纤接口不适配的问题。最终实现了高效二阶非线性与低耦合损耗的整体性能,在纤到纤层面上实现的二次谐波转换效率约为1320 %W<sup>-1</sup>。此外,在亚毫瓦泵浦功率下的自发参量下转换光子对产生速率(PGR)达到178 MHz/mW,在微瓦泵浦功率下的符合计数与随机符合计数比(CAR)可达到8000以上,如图11(b), (c)所示。这表明该器件在经典与量子领域

的总体性能可媲美当下薄膜铌酸锂纳米波导的最优结果。同时由于在量化制备以及光纤兼容性方面的优势,其与片上光源集成或者与光纤链路链接都具备更大的优势。

薄膜铌酸锂非线性波导同时也是实现单光子频率转换的重要手段之一。量子频率转换要求在实现频率转换的过程中保持量子态不变,在量子信息领域发挥着重要作用,例如单光子探测、量子存储接口、量子频率接口等。薄膜铌酸锂基集成器件高效率、低损耗的特性使其成为单光子频率转换的天然选择。最近基于薄膜铌酸锂波导的单光子频率上转换器件,采用长波泵浦技术实现通信波段光子与近可见光波段光子的波长转换,在泵浦光为268 mW时(片上泵浦功率约100 mW),片上的单光子上转换效率达到72%,频率转换过程中噪声计数约900 cps,归一化转换效率达到(2837±97) %W<sup>-1</sup>cm<sup>-2</sup>[44]。在光量子信息技术中,不同量子单元功能器件(例如传输、存储、探测等)对光子波段的要求不同,因此实现高效率的单光子频率转换满足不同功能的量子光学需求是必不可少的。薄膜铌酸锂片上单光子频率变换是构建未来量子模拟或量子计算以及推动量子信息系统构建的重要一环。未来进一步的发展目标是实现超低泵浦功率下接近100%的转换效率。

## 5 总结与展望

薄膜铌酸锂已经逐渐成为一个成熟的平台,与传统体铌酸锂材料或者其他实现方法相比,薄膜铌酸锂是实现集成非线性光子学的理想选择。基于薄膜铌酸锂的集成光学在非线性领域不仅打破了传统铌酸锂器件的各项性能指标,更是开创了新的重要研究方向和应用。薄膜铌酸锂器件的飞速发展也为集成光子学迎来了新的机遇,为大规模的铌酸锂集成光芯片提供了基础,而铌酸锂基光芯片中电光、声光、热光等丰富的光子态调控方式也将在可重构的集成光子回路构建中发挥巨大作用,相信在不久的将来,更多种类的高密度集成、多功能薄膜铌酸锂芯片将迈向新应用。薄膜铌酸锂有望在光信息时代发展成为下一代的

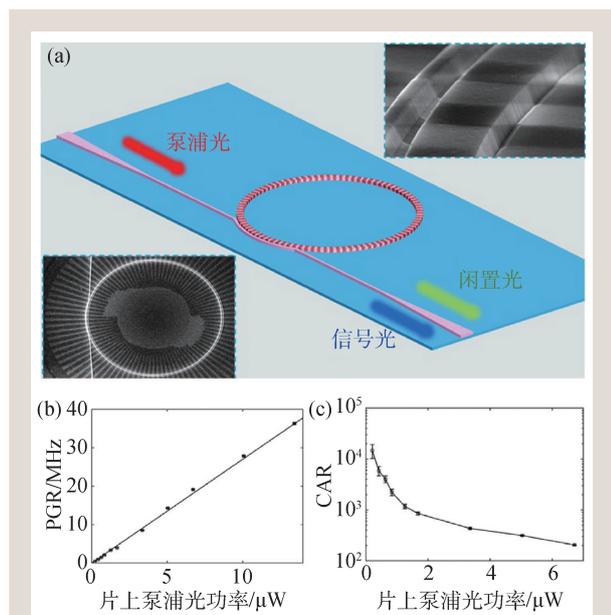


图10 高品质薄膜铌酸锂微腔实现高亮度下转换单光子对产生<sup>[44]</sup> (a)薄膜铌酸锂微环腔产生自发参量下转换过程示意图,其中内嵌图是样品的扫描电子显微图及局部放大图;(b)光子对产率(PGR)随片上泵浦光功率线性增加;(c)符合计数与随机符合计数比(CAR)随片上泵浦光功率增加而减小

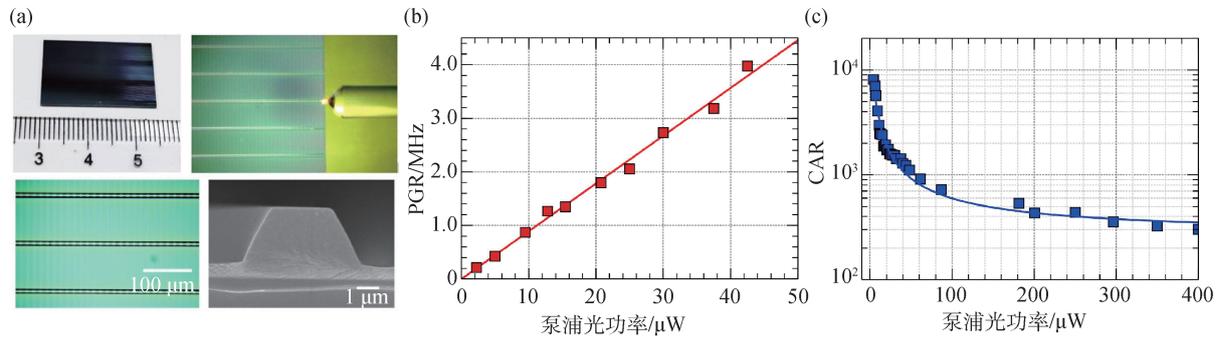


图11 基于铌酸锂薄膜微米波导的高效非线性器件 (a)铌酸锂薄膜微米波导器件图及其扫描电子显微镜图；(b)光子对产率随泵浦光功率线性增加；(c)符合计数与随机符合计数比随泵浦光功率逐渐减小<sup>[33]</sup>

绝缘体上硅，并极大地促进光通信和信息处理等领域的飞速发展。除此之外，单光子之间的非线性相互作用是在室温下实现可扩展光量子信息处理的核心资源，因此需要进一步推进薄膜铌酸锂片上单光子量级的非线性效应研究，提高非线性

光学频率转化效率。未来铌酸锂光量子集成还有望解决单光子相互作用这一根本难题，并推动光模拟、光计算、微波光子学和量子光学等应用的新突破，从而为走向片上全光信息处理提供新路径。

## 参考文献

- [1] Andreas B *et al.* *Science*, 2023, 379: eabj4396
- [2] Chen G Y, Li N X, Jun D N *et al.* *Advanced Photonics*, 2022, 4 (3): 034003
- [3] Zhu D, Shao L B, Yu M J *et al.* *Adv. Opt. Photon.*, 2021, 13: 242
- [4] Saravi S, Pertsch T, Setzpfandt F *et al.* *Adv. Optical. Mater.*, 2021, 9: 2100789
- [5] Lin J T, Bo F, Cheng Y *et al.* *Photon. Res.*, 2020, 8: 1910
- [6] Li Y, Huang Z J, Qiu W T *et al.* *Chin. Opt. Lett.*, 2021, 19: 060012
- [7] Zheng Y L, Chen X F, *Advances in Physics: X*, 2021, 6(1): 1889402
- [8] Vazimali M G, Fathpour S. *Advanced Photonics*, 2022, 4(3): 034001
- [9] Wang Z J, Wang C H, Yu H K. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, 2023, 56: 083001
- [10] Honardoost A, Abdelsalam K, Fathpour S. *Laser & Photonics Reviews*, 2020, 14: 2000088
- [11] 程亚. *物理*, 2020, 49(5): 277
- [12] 刘时杰, 郑远林, 陈险峰. *光学学报*, 2021, 41(8): 0823013
- [13] 田晓慧, 尚鸣昊, 祝世宁 等. *物理*, 2023, 52(8): 534
- [14] 熊霄, 曹启韬, 肖云峰. *物理学报*, 2023, 72(23): 234201
- [15] 吴肖, 郝振中, 薄方 等. *科学通报*, 2022, 67: 3915
- [16] 高博锋, 任梦昕, 郑大怀 等. *人工晶体学报*, 2021, 50(7): 1183
- [17] Albert A. *Journal of the American Ceramic Society*, 1965, 48: 112
- [18] Chang G Q. *Advanced Photonics*, 2022, 4(3): 030503
- [19] Jia Y C, Wang L, Chen F. *Appl. Phys. Rev.* 1 March, 2021, 8 (1): 011307
- [20] Now entering, Lithium Niobate Valley. <https://seas.harvard.edu/news/2017/12/now-entering-lithium-niobate-valley>
- [21] Levy M, Osgood R M, Liu R *et al.* *Appl. Phys. Lett.*, 1998, 73 (16): 2293
- [22] Rabiei P, Gunter P. *Appl. Phys. Lett.*, 2004, 85 (20): 4603
- [23] Guarino A, Poberaj G, Rezzonico D *et al.* *Nature Photon*, 2007, 1: 407
- [24] Hu H, Ricken R, Sohler W. Large area, crystal-bonded LiNbO<sub>3</sub> thin films and ridge waveguides of high refractive index contrast. Topical Meeting "Photorefractive Materials, Effects, and Devices-Control of Light and Matter" (PR 09), Bad Honnef, Germany, 2009
- [25] Hu H, Ricken R, Sohler W. *Opt. Express*, 2009, 17: 24261
- [26] Poberaj G, Hu H, Sohler W *et al.* *Laser & Photon. Rev.*, 2012, 6: 488
- [27] Zhuang R J, He j Z, Qi Y F *et al.* *Advanced Materials*, 2023, 35: 2208113
- [28] Wang C, Burek M J, Lin Z *et al.* *Opt. Express*, 2014, 22: 30924
- [29] Zhang M, Wang C, Cheng R *et al.* *Optica*, 2017, 4: 1536
- [30] Gao R H, Yao N, Guan J L *et al.* *Chin. Opt. Lett.*, 2022, 20: 011902
- [31] Luke K, Kharel P, Reimer C *et al.* *Opt. Express*, 2020, 28: 24452
- [32] 华东师范大学极端光机电实验室. <https://xxl.ecnu.edu.cn/Conferencepresentations/list.htm>
- [33] Zhang Y T, Li H, Ding T T *et al.* *Optica*, 2023, 10(6): 688
- [34] Yang F F, Li H, Liu H G *et al.* *Optics Letters*, 2023, 48(24): 6376
- [35] Wang C, Langrock C, Marandi A *et al.* *Optica*, 2018, 5: 1438
- [36] Wang L, Zhang X Q, Chen F. *Laser & Photonics Reviews*, 2021, 15: 2100409

- [37] Chen P K, Briggs I, Cui C H *et al.* Nat. Nanotechnol., 2023, <https://doi.org/10.1038/s41565-023-01525-w>
- [38] Guo Q S, Sekine R, Ledezma L *et al.* Nature Photonics, 2022, 16:625
- [39] Liu S J, Zheng Y L, Chen X F. Optics Letters, 2017, 42(18):3626
- [40] Lin J T, Yao N, Hao Z Z *et al.* Phys. Rev. Lett., 2019, 122: 173903
- [41] Lu J J, Li M, Zou C L *et al.* Optica, 2020, 7:1654
- [42] Zhao J, Ma C X, Rüsing M *et al.* Phys. Rev. Lett., 2020, 124:163603
- [43] Ma Z H, Chen J Y, Li Z *et al.* Phys. Rev. Lett., 2020, 125:263602
- [44] Wang X, Jiao X F, Wang B *et al.* npj Quantum Inf., 2023, 9:38
- [45] Zhu D, Chen C, Yu M *et al.* Light Sci. Appl., 2022, 11:327
- [46] Chen J Y, Li Z, Ma Z H *et al.* Phys. Rev. Appl., 2021, 16: 064004
- [47] Sayem A A, Cheng R S, Wang S H *et al.* Appl. Phys. Lett., 2020, 116:151102
- [48] Lomonte E, Wolff M A, Beutel F *et al.* Nature Communications, 2021, 12:6847
- [49] Lomonte E, Wolff M A, Beutel F *et al.* Nat. Commun., 2021, 12: 6847

## 新书推荐

磁学既古老又年轻。磁学已经有两千多年的发展历史，自20世纪初的物理学重大突破性发展以来，它经历了四次重大变革：磁性质的物理理论、向微波和高频的拓展、软磁硬磁和磁硬盘等各种各样的技术应用以及新近出现的自旋电子学，并为20世纪信息科学技术的高速发展做出了巨大贡献。J. M. D. Coey (杰·姆·德·柯艾)教授的英文专著 *Magnetism and Magnetic Materials* (Cambridge University Press 2010)，对磁学这个历史悠久、内容丰富而又充满了生命力的学科做了全面的总结和展望，是一本颇具特色的科研教学参考书。受Coey教授本人和剑桥大学出版社的授权委托，由韩秀峰研究员团队负责翻译成《磁学与磁性材料》、中国科学技术大学出版社2024年在国内出版发行。

《磁学与磁性材料》是在原著最新版的基础上经增补部分内容而形成。这本专著对磁学和磁性材料应用以及磁学发展历程进行了全面的论述与介绍，内容丰富而系统，包含了磁学和磁性材料方面的基本物理概念、实验方法和应用。既有定性描述，又有定量分析，并对磁学相关的概念、现象、材料、器件及应用，注意给出其数值大小、实用的具体数据及其实施案例，还提供了丰富而实用的磁性材料信息，详细介绍了多种重要磁性材料。

这是一本现代磁学教科书，针对的读者是对磁学和磁性材料感兴趣并且希望快速获得相关专业基础知识、基本原理和广泛应用介绍的物理学、化学、材料科学、微电子学、管理科学、科普和工程等领域的青年学者、教师、工程师以及广大的高年级本科生和硕士博士生等研究人员。这本专著可以帮助读者迅速了解和掌握磁学领域的相关专业基础知识及应用方式和方法，是一部通俗易懂且有极高学术价值的专著。

**作者简介：**Coey教授是凝聚态物理和磁学领域的国际知名专家，是爱尔兰皇家科学院院士、英国皇家科学院院士、美国科学院外籍院士和欧洲科学院院士。他长期从事“磁学和磁性材料”及“自旋电子学”研究，在 *Nature*、*Science* 等重要国际学术杂志上发表SCI论文800余篇，论文总引用量超过60000次、H因子达110；其中被引用超过千次的论文有10篇、被引用超过百次的论文有100余篇。荣获爱尔兰皇家科学院金奖、爱尔兰皇家都柏林协会/英特尔奖、马克斯·玻恩奖、2020年“北京市科学技术奖国际合作中关村奖”、2022年“中国科学院国际科技合作奖”等27项奖项。曾任爱尔兰皇家学会副主席、*Phys. Rev. Lett.* 和 *J. Magn. Magn. Mater.* 等专业杂志的顾问编委。他撰写和出版了 *Magnetic Glasses* (Elsevier

1984); *Rare Earth Iron Permanent Magnets* (Oxford 1996); *Permanent Magnetism* (IOP 1999); *Magnetism and Magnetic Materials* (Cambridge University Press 2010)等6部磁学方面的专著，具有广泛的学术影响力。



作者：J. M. D. Coey (爱尔兰)  
译者：韩秀峰、姬扬、余天等  
出版社：中国科学技术大学出版社  
出版时间：2024年1月  
定价：128.00元  
页码：600页  
购买链接：  
<https://k.youshop10.com/mmzy7TUC>

