

國立臺灣大學電機資訊學院光電工程學研究所

碩士論文

Graduate Institute of Photonics and Optoelectronics

College of Electrical Engineering and Computer Science

National Taiwan University

Master Thesis

準相位匹配鉭酸鋰紅、綠、藍光倍頻雷射晶片之研製

Quasi-Phase-Matching Second Harmonic R G B Lasers in

Periodically-Poled Lithium Tantalate



Chu-Hsuan Huang

指導教授：彭隆瀚 博士

Advisor : Lung-Han Peng, Ph.D.

中華民國 97 年 7 月

July 2008



致謝

首先要感謝我的指導教授彭隆瀚博士，您縝密的思路引導總是有如醍醐灌頂般點醒俯睡在表象裡的瑕疵，循循教誨有如春風化雨潛潤於學生心中，於此的數行文字尚不能勾勒出師恩之輪廓。感謝口試委員王維新博士、張宏鈞博士、陳秋麟博士、李文欽博士指點寶貴的思考方向，使學生的論文更加嚴緊與完善。特別感謝黃升龍博士與孔慶昌博士提供儀器設備與技術指導，使我的實驗能夠順利完成。

感謝漢敏學長，你實事求是的態度，為實驗室打造了專業的風範，咖啡、書、故事帶給我不少實驗之餘所能奢求的閑意。感謝菘豐學長，你嚴謹的處事原則，讓我明白如何將事情高效率的迅速解決，實驗上一些盲點的釐清亦使我受惠不少。感謝政衛學長，你談諧的人生理念，在我的實驗室生活中滴入不少歡笑的顯影劑。感謝原分所的善莊學長，你幽默的言語，帶給我們許多樂趣。感謝已經畢業的順涵學長、昶伸學長、鈺珮學姐，你們精準的領導方針，讓我們在紮實的訓練中受益匪淺。感謝益寧，沒有你精湛的光學量測與理論分析，我的實驗無法順利完成。感謝揆倫，你輕鬆卻又不失嚴實的對事策略，總是讓人在壓力之中發崛關鍵的反轉點。感謝佳伶，妳緻密的思緒讓人欣羨，總

是能滲透事情的核心。感謝伯淳，你豐富的知識閱歷讓人震撼，總是能解決各類疑難雜症。感謝建宇，你氣定神閒的穩定度，總是鎮壓住此間實驗室的緊張氛圍。感謝俊瑩學弟，實驗在你細膩條理的進行下必定成果不凡。感謝英耀學弟，實驗在你認真仔細的處理下必定成果非凡。感謝宏瑋學弟與旻棟學弟，實驗在你們嚴密詳實的規劃下必定成果超凡。感謝今年剛加入的建志學弟、均彥學弟、建樹學弟、俊緯學弟，你們為實驗室帶來初生之犢的強烈朝氣，希望未來亦是。

感謝一璞，你總是勇於劃破穩度的臨界，在你身上讓我學到了如何佈置年久失修的願望。最後要感謝我摯愛的父母，在我的心井沈澱下透明的音符，串起一段又一段幸福的樂章，讓我能無後顧之憂的完成漫長的學業。

七月的句點輕輕描畫著，
一束一束的困倦。
也許只有在這樣的極端裡，才足以
修飾那徹底瘋狂的真實。

日子謹慎的浸泡在繁複的程序裡，
早已昏迷的囁語。
我淺酌著蜜釀的應許，低語
鉛色的感謝。

筑瑄 于 2008 年 夏

摘要

本篇論文主要分為相位匹配理論之介紹，一維週期性極化反轉鉍酸鋰雷射晶片之研製，以及紅、綠、藍光倍頻雷射晶片之光學量測與特性分析。

原理部分闡述非線性頻率轉換與準相位匹配理論。製程部分則剖析數種研製方法，並論述其優缺。我們利用鎳金屬內擴散混合高電壓致區域反轉製程技術於厚度為 0.5 mm 共熔鉍酸鋰晶片；成功研製出週期為 12.78 μm 、7.76 μm 、5.15 μm 之一維與二維週期性極化反轉鉍酸鋰倍頻雷射晶片。至於週期為 7 μm 之一維週期性極化反轉鉍酸鋰光學參量振盪雷射晶片，以及週期為 7.76 / 4.99 μm 之一維週期性極化反轉鉍酸鋰級聯雷射晶片，亦以前述方法製備。上述週期性極化反轉結構之有效長度皆可達 20 mm，足以因應倍頻實驗以及光學參量振盪器架設研究之用。在光學實驗部分，先以波長為 1064 nm 之奈秒雷射進行綠光倍頻實驗，繼而以實驗室架設之光學參量振盪器做為泵浦光源，進行紅、藍光倍頻實驗，測量並分析雷射晶片之轉換效率。



Abstract

In this thesis, the theory of quasi-phase-matching (QPM) and nonlinear optical generation and the fabrication techniques of periodically poled ferroelectric nonlinear crystals will be first introduced. I then will emphasize on the nickel-diffusion assisted electric poling method that leads to the realization of periodically poled QPM structures of 20 mm length on 0.5 mm thick congruent-grown lithium tantalate (PPCLT) substrates. The QPM-based PPCLT chips with periodicity of 12.78, 7.76, and 5.15 μm suitable for producing second harmonic generation (SHG) of red, green, and blue lasers and for optical parametric oscillator (OPO) of near infrared lasers have been demonstrated and characterized. Finally a green pumped cascaded OPO-SHG blue laser with double-periodicity of 7.76 / 4.99 μm in PPCLT will be demonstrated and discussed.



目錄

第一章 緒論	- 1 -
1.1 研究動機	- 1 -
1.2 非線性晶體	- 3 -
1.3 鉬酸鋰晶體	- 5 -
1.3.1 基本特性	- 5 -
1.3.2 相變化	- 6 -
1.3.3 長晶技術	- 8 -
1.4 極化反轉製程	- 10 -
1.4.1 鋰離子外擴散法	- 10 -
1.4.2 特殊金屬內擴散法	- 10 -
1.4.3 質子交換法	- 11 -
1.4.4 高電壓致極化反轉法	- 11 -
1.4.5 淺層反轉混合高電壓致極化反轉法	- 12 -
1.4.6 結論	- 12 -
1.5 非線性頻率轉換技術	- 13 -

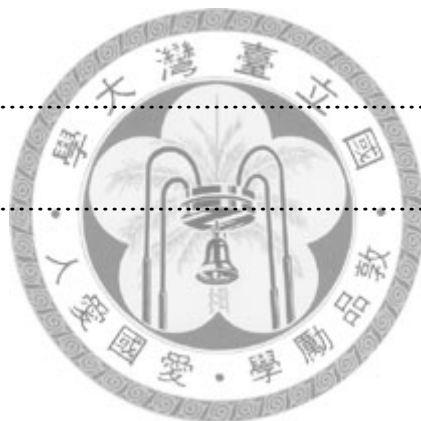


1.5.1 倍頻產生.....	- 13 -
1.5.2 光學參量振盪器.....	- 14 -
1.6 論文內容概述.....	- 15 -
第二章 相位匹配理論.....	- 16 -
2.1 非線性頻率轉換與相位匹配.....	- 17 -
2.1.1 平面波近似.....	- 18 -
2.1.2 高斯波近似.....	- 19 -
2.2 雙折射相位匹配.....	- 21 -
2.3 準相位匹配.....	- 24 -
2.3.1 一維空間.....	- 25 -
2.3.2 二維空間.....	- 29 -
2.4 光學參量振盪器理論.....	- 31 -
2.4.1 傳統光參產生及準相位匹配光參產生.....	- 31 -
2.4.2 波長可調性.....	- 32 -
2.4.3 光參產生細部理論.....	- 33 -
2.4.4 光學參量振盪器理論.....	- 35 -
第三章 設計與製程.....	- 38 -



3.1 週期設計	- 39 -
3.2 極化反轉模型	- 45 -
3.3 高電壓波形	- 48 -
3.4 高電壓致極化反轉	- 50 -
3.4.1 液態電極與基座設計	- 52 -
3.4.2 金屬電極之選擇	- 53 -
3.4.3 金屬電極定義方式	- 54 -
3.4.4 O 形環對高電壓反轉法的影響	- 56 -
3.5 內建電場量測	- 58 -
3.6 利用光阻定義週期性結構	- 59 -
3.7 利用鎳金屬內擴散機制定義週期性結構	- 63 -
3.7.1 製作鎳金屬圖形	- 65 -
3.7.2 熱處理	- 65 -
3.8 成核時間控制	- 67 -
3.9 製程討論	- 70 -
第四章 光學量測分析	- 71 -
4.1 光學參量振盪器	- 71 -

4.1.1 930 nm 共振腔.....	- 73 -
4.1.2 長度 20 mm 光學參量振盪雷射晶片	- 75 -
4.2 倍頻晶片特性量測	- 80 -
4.2.1 綠光倍頻晶片特性量測.....	- 80 -
4.2.2 藍、紅光倍頻晶片特性量測.....	- 85 -
4.3 光學實驗討論	- 95 -
第五章 結論與未來展望.....	- 96 -
5.1 結論	- 96 -
5.2 未來展望	- 97 -



附表目錄

表 1.1	三種常用非線性晶體之特性比較	- 4 -
表 3.1	紅、綠、藍雷射光源之基頻光與倍頻光波長	- 38 -
表 3.2	鉭酸鋰波長轉換與準相位匹配週期之關係	- 44 -
表 3.3	外加電壓為 12 kV 時限流電阻與反轉電流之關係.....	- 51 -
表 3.4	量測內建電場	- 59 -
表 3.5	製程討論	- 70 -
表 4.1	光學參量振盪雷射晶片規格	- 72 -
表 4.2	930 nm 共振腔特性	- 74 -
表 4.3	930 nm 共振腔特性	- 76 -
表 4.4	1260 nm 共振腔特性	- 78 -
表 4.5	綠光倍頻雷射晶片規格	- 80 -
表 4.6	綠光倍頻實驗泵浦光源特性	- 80 -
表 4.7	藍光倍頻雷射晶片規格	- 86 -
表 4.8	藍光倍頻實驗泵浦光源特性	- 87 -
表 4.9	紅光倍頻雷射晶片規格	- 90 -
表 4.10	紅光倍頻實驗泵浦光源特性	- 92 -





附圖目錄

圖 1.1	鈮酸鋰晶體結構(a)鐵電相(b)順電相	- 5 -
圖 1.2	鐵電相時鋰離子在氧平面附近之位能	- 6 -
圖 1.3	共熔鈮酸鋰、計量比鈮酸鋰之電滯曲線特性	- 7 -
圖 1.4	柴氏提拉法長晶過程	- 8 -
圖 1.5	常用非線性晶體之光折變效應閾值	- 9 -
圖 1.6	倍頻示意圖	- 13 -
圖 1.7	光學參量振盪器架構示意圖	- 15 -
圖 2.1	高斯光束發散	- 21 -
圖 2.2	準相位匹配結構示意圖	- 25 -
圖 2.3	倍頻光強度與晶片長度之關係	- 28 -
圖 2.4	(a)真實空間中 $\chi^{(2)}$ 的分佈(b)倒置晶格結構	- 29 -
圖 2.5	非線性之 Ewald construction	- 30 -
圖 3.1	鈮酸鋰倍頻之波長與非普及化折射率關係	- 41 -
圖 3.2	鈮酸鋰倍頻之溫度與非普及化折射率關係	- 42 -
圖 3.3	鈮酸鋰倍頻之基頻光波長與週期關係	- 43 -
圖 3.4	鈮酸鋰倍頻之基頻光波長與週期關係	- 44 -
圖 3.5	高電壓極化反轉之成核側擴散模型(a)~(f)	- 45 -
圖 3.6	側向擴散終止的情形	- 47 -
圖 3.7	高電壓極化反轉電壓電流圖(a)~(f)	- 48 -
圖 3.8	高電壓極化反轉之實驗架構圖	- 50 -
圖 3.9	高電壓極化反轉之液態電極基座設計	- 53 -
圖 3.10	外加絕緣層遮蔽電場法之結構	- 54 -
圖 3.11	(a)表面淺層反轉(b)極化反轉機制發生後	- 56 -
圖 3.12	O 形環造成的不均勻反轉	- 56 -
圖 3.13	(a)電極面積大於 O 形環(b)電極面積小於 O 形環	- 57 -
圖 3.14	於-Z 面覆蓋絕緣層	- 57 -
圖 3.15	週期 $12.8 \mu\text{m}$ 之一維 PPCLT(a)晶片+Z 面(b)晶片-Z 面	- 58 -
圖 3.16	高電壓致極化反轉製作流程(a)~(e)	- 60 -
圖 3.17	(a)週期 $21.5 \mu\text{m}$ (b)週期 $12.8 \mu\text{m}$ (c)週期 $12.8 \mu\text{m}$	- 61 -
圖 3.18	使用厚光阻 AZ [®] P4620 在小週期呈現梯形結構	- 62 -
圖 3.19	-Z 面週期 $7.7 \mu\text{m}$ (a)二維結構(b)一維結構	- 62 -
圖 3.20	以 HF 蝕刻過後相對高度	- 63 -

圖 3.21	鎳金屬內擴散混合高電壓致極化反轉製作流程(a)~(e)	- 64 -
圖 3.22	以掀離法製作的鎳金屬一維週期性級聯結構	- 65 -
圖 3.23	熱處理的溫控曲線	- 66 -
圖 3.24	熱處理後殘留的氧化層	- 67 -
圖 3.25	一維週期 $7.76 \mu\text{m}$ 之結構	- 68 -
圖 3.26	一維週期 $4.99 \mu\text{m}$ 之結構	- 69 -
圖 3.27	一維週期 $7.76 / 4.99 \mu\text{m}$ 之級聯結構	- 69 -
圖 3.28	一維週期 $3.22 \mu\text{m}$ 之結構	- 69 -
圖 4.1	光學參量振盪雷射晶片表面結構情形	- 72 -
圖 4.2	光學參量振盪器架構簡圖	- 73 -
圖 4.3	光學參量振盪器輸出波長與晶片操作溫度之關係	- 74 -
圖 4.4	930 nm 共振腔輸出功率與泵浦功率之關係	- 75 -
圖 4.5	光學參量振盪器輸出波長與晶片操作溫度之關係	- 76 -
圖 4.6	930 nm 共振腔輸出功率與泵浦功率之關係	- 77 -
圖 4.7	1260 nm 共振腔輸出功率與泵浦功率之關係	- 79 -
圖 4.8	綠光倍頻實驗架構	- 81 -
圖 4.9	綠光倍頻晶片溫度調變曲線	- 82 -
圖 4.10	綠光倍頻泵浦光源波長頻寬圖	- 83 -
圖 4.11	綠光倍頻轉換效率圖	- 85 -
圖 4.12	藍光倍頻雷射晶片	- 86 -
圖 4.13	藍光倍頻實驗架構	- 87 -
圖 4.14	藍光倍頻泵浦光源波長頻寬圖	- 88 -
圖 4.15	藍光倍頻轉換效率圖	- 90 -
圖 4.16	紅光倍頻雷射晶片	- 91 -
圖 4.17	紅光倍頻實驗架構	- 92 -
圖 4.18	紅光倍頻泵浦光源波長頻寬圖	- 93 -
圖 4.19	紅光倍頻轉換效率圖	- 94 -

第一章 緒論

1.1 研究動機

新力公司 (Sony) 於 2005 年日本愛知世博會 (The 2005 World Exposition, Aichi, Japan) 採用最新研發的雷射放映系統以及無縫銀幕，展示艷麗絕倫的雷射夢幻電影院¹。慧視通訊科技 (Arasor)、Novalux 與三菱 (Mitsubishi) 亦不惶多讓，2006 年立即於澳洲雪梨發表共同研發的全球首款雷射電視 (Laser TV) 原型機，結合 Arasor 的光電元件，Novalux 的雷射投影裝置，並由三菱打造出 52 英寸的概念機 WD-52627²，此舉實已為 2007 年於美國拉斯維加斯消費性電子展 (Consumer Electronics Show, CES) 驚世登場的首款雷射電視劃下伏筆。於是在 2008 年初，三菱傲視群雄成功展示其巨獻，並緊鑼密鼓的於三個月後正式將產品行銷名稱定為「LaserVue」³，預計於 2008 年秋季上市，勢必將於產業界掀起一股競相研發的波瀾。反觀近來蔚為風潮的微型化投影市場，三星以及樂金亦於 2008 年的 CES 上展示其應用德儀數位光源處理 (DLP) 晶片所研發的可攜式投影機；而投影手機相關研發則有 Microvision 的 PicoP⁴、德州儀器 (TI) 的 DLP Pico chipset⁵、Explay 的

oio⁶...等技術平台。

雷射的起源可追溯自 1960 年 Maiman 發明紅寶石雷射⁷，因其具有能量集中與同調性高的優點，歷經多年發展，在學術研究與工業應用方面皆已嶄露頭角。然則近來所開發的微型投影技術均是採用 LED 光源，亮度介於 20~50 流明度⁸，必須在弱光環境才可投影出模糊的影像，若要擴大應用層面，亮度提升將是重要的關鍵。可攜式投影的單原色雷射功率規格端看用途之不同而異，以手機投影來說著重於隨機性的 50 mW 等級，到適用於電視以及電影等大型娛樂的 1 W 等級不等。紅、藍光雷射光源部分，部分產品的設計是以半導體雷射為主；綠光雷射部分，現階段僅能以非線性方式產生而無法以半導體雷射取代。回顧最早的光學非線性現象，Franken 等人在 1961 年於石英中發現倍頻現象⁹，於隔年 Armstrong 和 Bloembergen 等人即發表非線性頻率轉換的概念¹⁰，發展至 1970 年代理論基礎已趨完整。非線性頻率轉換包含倍頻、和頻以及差頻等型式，可產生異於原光波電場頻率之輸出。倍頻以及和頻主要應用範圍在 350~550 nm 波段的綠、藍以及 UV 光雷射，可作為雷射顯示器光源或微機械加工...等；差頻主要應用於光參量振盪器，提供具有波長可調性的遠紅外光雷射，可用來檢測微量氣體成分。V. Berger 並於 1998 年提出二維準相位匹配之概念¹¹，相較於一維

結構著重於高效能的頻率轉換，二維結構開拓多方向的相位匹配，以輸出不同頻率的多功能效應見長。

反觀目前眾多雷射投影光源技術的研發平台，Navalux 曾經發表令人驚羨的外延共振腔面射型二極體 Novalux Extended Cavity Surface Emitting Laser (NECSEL)，結合面射型雷射泵浦源、週期性極化反轉鋰酸鋰 (PPLN) 準相位匹配倍頻晶體 (QPM-SHG)¹²，並採用外腔倍頻的優點，以充分利用面射型雷射 TEM₀₀ 模態匹配於半導體與反射鏡所形成之平凹腔基本模態，從而提升頻率轉換效率。康寧 (Corning) 則是採用 PPLN 波導方式製備綠光雷射，產生紅、綠、藍之瓦級雷射光源¹³，利用 NGK 製備之長度為 12 mm 的 x-cut PPLN 光脊波導，與自製之 DFB 雷射，發展出 100 mW 等級之綠光雷射。

而於今 2008 年台北國際電腦展，結合 3M 與奇景光電的 LCOS 可攜式投影原型機業已搶先亮相，微型投影元件與行動通訊的結合已然成為消費性電子產品未來的重要趨勢。

1.2 非線性晶體

鋰酸鋰 (LiNbO₃, LN)、鉭酸鋰 (LiTaO₃, LT) 以及磷酸氧鈦鉀 (KTP) 為常用之非線性晶體，其基本特性列於表 1.1 中。由表 1.1 知悉，

鉍酸鋰擁有最高的非線性係數，且長晶技術已臻成熟，故早期鐵電性積體光學元件多採用此材料。

	非線性 係數 d_{33} (pm/V)	透明區間 (nm)	矯頑電場 E_c (kV/mm)	長晶技術	光折變抗性
LiNbO ₃	34.4	325 ~ 5500 ¹⁴	21	CZ	差
LiTaO ₃	26.0	290 ~ 5500 ¹⁴	21	CZ	次之
KTP	10.7	365 ~ 4300 ¹⁴	5	HT or flux-growth	佳

CZ : Czochralski method

HT : Hydrothermal growth method

表 1.1 三種常用非線性晶體之特性比較

傳統商業化之鉍酸鋰晶體為共熔 (congruent) 組成，主要以柴氏提拉法 (Czochralski) 提拉法生長，其生長快速且容易，易於生長大尺寸晶體，且光學品質高，然則卻嚴重受限於光折變效應 (photorefractive effects)，以致於無法適用於高功率環境；鉍酸鋰之非線性係數未能媲美鉍酸鋰，卻擁有較佳的抗光折變能力，另與幾乎不受光折變影響的磷酸氧鈦鉀相較之下，亦具有透明區間較寬、非線性係數較高之優勢。

1.3 鉭酸鋰晶體

1.3.1 基本特性

鉭酸鋰 (LiTaO_3) 之居里溫度 (curie temperature) 約為 601°C ，居里溫度會隨著 $\text{Li}_2\text{O} : \text{Ta}_2\text{O}_5$ 趨近於 1 : 1 或是摻雜 MgO 而提增。低於此溫度時，屬菱形六面體，可歸類為 $3m$ 點群。此時鋰離子 Li^+ 朝 +Z 軸些微偏離氧三角平面，鉭離子 Ta^{5+} 亦朝 +Z 方向偏離原處的氧八面體中心，不對稱性致使自發性極化 (spontaneous polarization) 現象的發生，極化之正向為 +Z 軸，此時存在電光、壓電等效應，稱為鐵電相 (ferroelectric phase)，如圖 1.1(a) 所示。當晶體溫度高於居里溫度時，鋰離子回復於氧三角平面上，鉭離子位於氧八面體中心，極性消失，晶體轉變為順電相 (paraelectric phase)，如圖 1.1(b) 所示。

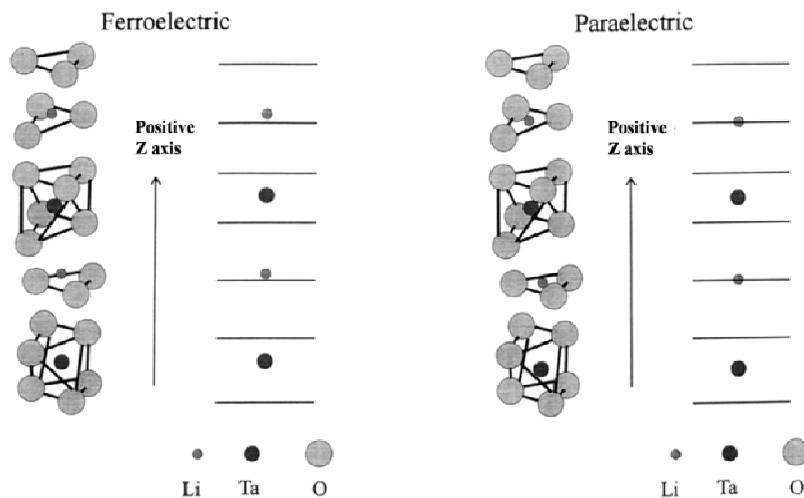


圖 1.1 鉭酸鋰晶體結構(a)鐵電相(b)順電相

1.3.2 相變化

鉬酸鋰呈鐵電相時，鋰離子位於氧平面附近存在兩個位能低點，表示鋰離子可穩定處於這兩個穩態，如圖 1.2 所示。由於極化方向取決於鋰離子相對於氧平面之位置，欲使極化方向反轉，則需藉由外加能量，使鋰離子克服氧平面之位能障壁到達另一穩態，所需外加之最小電場稱為矯頑電場 E_c (coercive field)，而此種重新定義極化方向之機制稱為區域反轉 (domain inversion)。由於氧平面之位能障壁隨溫度升高而降低，矯頑電場亦隨溫度升高而降低。如晶體溫度超過居里溫度時，此位能障壁會完全消失，極性亦不復存，即使晶體再次降溫至居里溫度之下，亦無法復回至鐵電相。

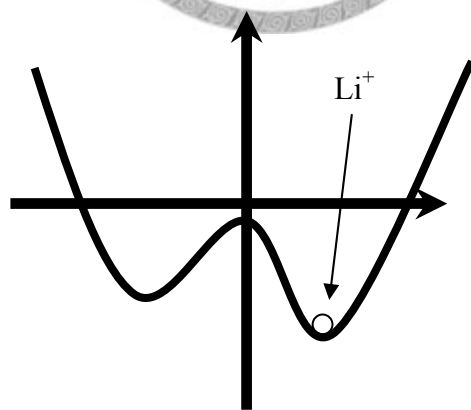


圖 1.2 鐵電相時鋰離子在氧平面附近之位能

於圖 1.2 中亦可發現，兩個穩態所處之能量並不相同，表示鋰離子從第一個穩態激發到第二個穩態，與從第二個穩態激發到第一個穩態，所需能量不相同，此現象肇因於內建電場 E_{int} (internal field) 的存在。內建電場源自於長晶過程中 $Li_2O:Ta_2O_5 \neq 1:1$ ，如共熔鉭酸鋰之 $E_{int} = 4.56 \text{ kV/mm}$ ，計量比鉭酸鋰之 $E_{int} \sim 0$ 。由此可知，鉭酸鋰之鐵電性具有電滯曲線之特性，如圖 1.3 所示¹⁵。

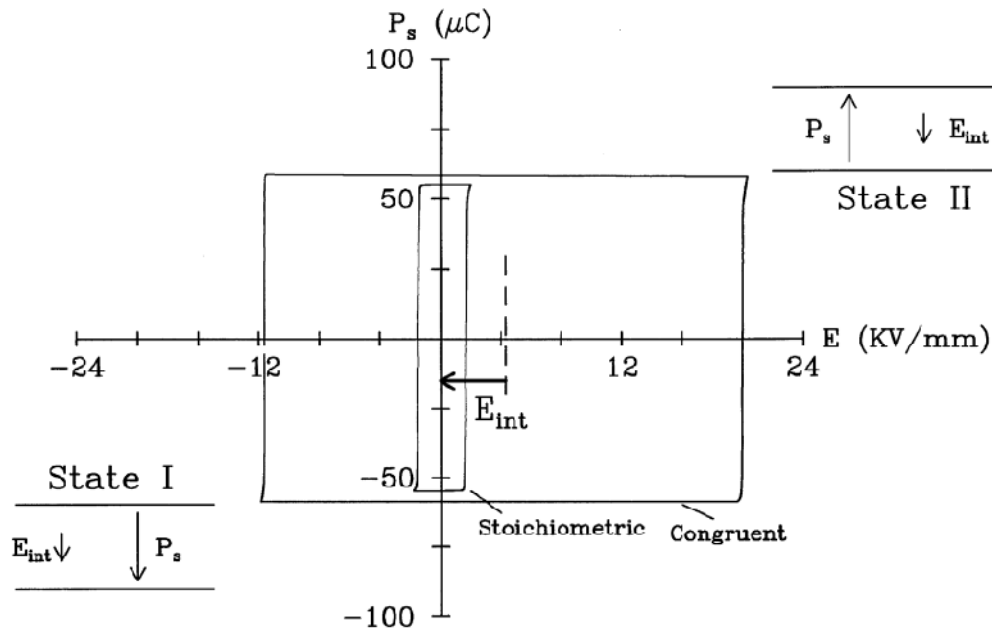


圖 1.3 共熔鉭酸鋰、計量比鉭酸鋰之電滯曲線特性

圖 1.3 曲線中定義矯頑電場為足以致使極化電荷反轉一半時所應施加之電場，當所施加電場大於矯頑電場時，電偶極之極化方向即可被反轉。在考量內建電場之作用下，可發現 $-P_s$ 到 $+P_s$ 所需電場大於從 $+P_s$ 到 $-P_s$ 所需反向電場。

1.3.3 長晶技術

傳統的共熔 (congruent) 鉬酸鋰長晶技術為柴氏提拉法 (Czochralski, CZ)，典型長晶過程如圖 1.4 所示。以此方式長成的鉬酸鋰組成約為 $\text{Li}_2\text{O} : \text{Ta}_2\text{O}_5 \sim 48.5 \text{ mol \%} : 51.5 \text{ mol \%}$ ，其比例因鋰離子外擴散現象而有些微誤差。

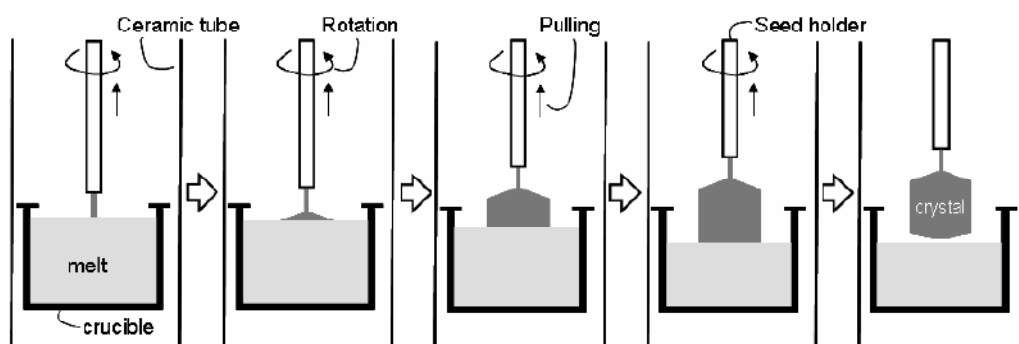


圖 1.4 柴氏提拉法長晶過程

因 $\text{Li}_2\text{O} : \text{Ta}_2\text{O}_5 \neq 1:1$ ，晶體中存在很多鋰離子空缺，這些空缺則致使光折變效應產生。光折變效應為光致折射率變化效應，晶體中空缺充當電荷施體 (donor) 或受體 (acceptor)，當泵浦光強度超過臨界值，被激發之電荷進入鄰近能帶形成光載子如電子或電洞。這些處於導電帶之電子與價電帶之電洞，會因濃度梯度擴散或於電場作用下漂移產生相應空間電荷場，並經由電光效應造成折射率改變。

為增加晶體對光折變效應之抗性，因而持續有關於 $\text{Li}_2\text{O} : \text{Ta}_2\text{O}_5 \sim$

1 : 1 之計量比鉭酸鋰 (Stoichiometric Lithium Tantalate, SLT) 的研究。Kitamura 等人於 1998 年發表雙坩鍋連續進料 (Double-Crucible Czochralski growth, DC-CZ) 的長晶技術，已可生長結構較為完整且空缺密度較少的晶體，其內建電場幾乎為零，矯頑電場降低至 1.7 kV/mm。然則以此方式的長晶尚不能完全消除空缺，光折變效應仍無法有效克服，因而多摻雜 1.0 mol % MgO 以達成增加晶體抗光折變能力之目的，如圖 1.5 所示¹⁶。

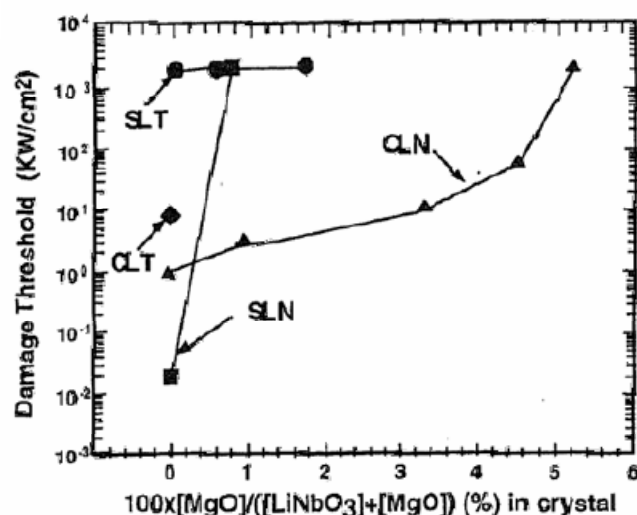


圖 1.5 常用非線性晶體之光折變效應閾值

近年來一維 1.0 mol% MgO-doped Stoichiometric LiTaO₃ (PPMgSLT) 研究以日本最為完整，厚度突破方面可達到週期 31.8 μm 厚度 2 mm 長度 35 mm 之結構¹⁷，小線寬突破方面可達到週期 6.1 μm 厚度 0.3 mm 之結構¹⁸。

1.4 極化反轉製程

1.4.1 鋰離子外擴散法

於晶片表面製作週期性遮罩，常用遮罩材料為二氧化矽¹⁹。將晶片加熱至略微低於居里溫度後，持平一段時間，此時不需外加電場，鋰離子與氧自然結合形成 Li_2O ，鋰離子數目因而減少，外擴散現象發生，致使晶片表層極化反轉。當溫度越高，或加熱時間越長，反轉深度會越深。



1.4.2 特殊金屬內擴散法

鉭酸鋰之金屬內擴散技術延攬自早期鈮酸鋰鈦金屬內擴散波導技術²⁰。於晶片表面以鈦金屬定義結構，進而作高溫熱處理，擴散溫度設定在 $1050 \sim 1150^\circ\text{C}$ 範圍內。此法操作溫度雖然比鋰離子外擴散法略低，顯然仍高出鉭酸鋰之居里溫度，因而鋰離子外擴散效應必然伴隨而生。鋰離子外擴散效應之抑制方式，如利用氧化鋰或鈮酸鋰粉末置入高溫爐中，藉以增加鋰離子之表面分壓而達成抑制效果，卻因無法控制得當失去有效抑制的作用，致使鈦金屬內擴散法難以應用於鉭酸鋰之極化反轉。鎳金屬於 580°C 即可擴散入鉭酸鋰表面²¹，此溫度低於鉭酸

鋰之居里溫度，應已符合製作極化反轉的擴散源需求。

1.4.3 質子交換法

將晶片置於弱酸中加熱，如苯甲酸或是焦磷酸，使得晶片-Z 面的鋰離子與酸中的氫離子交換²²，以進行極化反轉機制通常不欲反轉極化以抗腐蝕力強的鈿金屬作為遮罩。因屬於低溫擴散處理，故無需擔憂鋰離子外擴散效應。此法亦是先於鈿酸鋰研發成功後²³，繼而應用於鈿酸鋰波導製程技術。



1.4.4 高電壓致極化反轉法

Camlibel 於 1969 年發脈衝式高電壓致極化反轉技術²⁴，取代早期的直流式電壓反轉技術。利用介電材料定義圖樣，於晶片上直接施加大於矯頑電場之高電壓以進行極化反轉機制。早期為避免高電壓易造成材料介電崩潰 (dielectric breakdown)，實驗裝置必須處於真空或浸在高壓油中。1995 年美國史丹佛大學 Byer 教授提出以液態電極取代金屬電極²⁵，成功延長於 25 kV/mm 高壓下之脈衝時間，於空氣中亦不會介電崩潰。於本實驗室即使電壓高達 36 kV/mm，亦無介電崩潰現象發生。

1.4.5 淺層反轉混合高電壓致極化反轉法

1995 年 Mizuuchi 提出先用質子交換反轉無金屬遮罩處²⁶，可使晶片表面具有週期性淺層反轉極化，這些極化由於淺層已反轉，無法輕易以高電壓進行反轉，因而能有效抑制表面反轉極化側擴散現象發生。本論文實驗中則是以鍍金屬內擴散反轉鉍酸鋰表面之金屬極化，與上述原理相同，利用此法定義所需反轉之極化，已可研製出厚度 0.5 mm 週期 5.15 μm 的極化反轉結構塊狀 (bulk) 晶片²⁷。

1.4.6 結論

無論是鋰離子外擴散法、金屬內擴散法或是質子交換法，盡屬淺層極化反轉，滿足波導應用方面之條件，卻無法有效應用於塊狀晶片之研製；高電壓致極化反轉法可快速製作大面積、均勻度高之塊狀晶片，是現今最為廣泛使用之製程技術。而混合波導淺層反轉與高電壓致極化反轉技術，則為精確控制與快速量產結合之可能性另起希望。



1.5 非線性頻率轉換技術

非線性頻率轉換技術以非線性光學為基礎理論，建立數種模式的頻率轉換方式，本實驗室主要著重於倍頻以及光學參量振盪器之研究，故擇其予以簡介。

1.5.1 倍頻產生

利用紅外光波段的半導體雷射激發固態雷射倍頻短波長，可有效利用固態雷射之高品質輸出模態以及峰值功率等優勢，達成體積微型化、生命週期長以及成本合宜等應用考量。

倍頻產生 (Second-Harmonic Generation, SHG) 的工作原理為利用具有二階非線性係數 $\chi^{(2)}$ 的晶體，將頻率 ω 的基頻光轉換為頻率 2ω 的倍頻光，此現象遵守能量守恆 $\omega + \omega \rightarrow 2\omega$ ，如圖 1.6 所示。

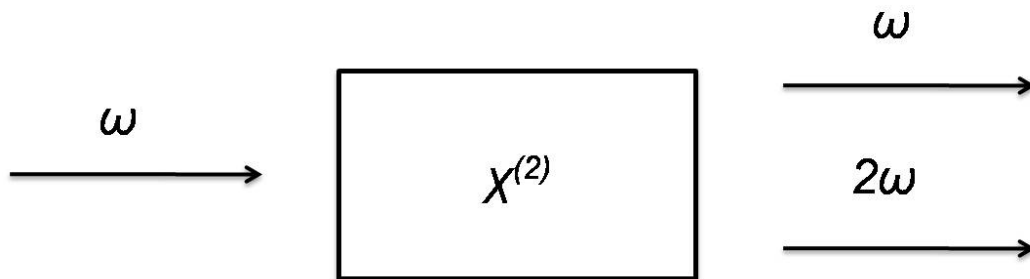


圖 1.6 倍頻示意圖

1.5.2 光學參量振盪器²⁸

由於現今半導體雷射無法涵蓋所有波段，而固體、氣體雷射可調動的波段範圍亦不夠大，利用非線性光學原理的光學參量振盪器 (Optical Parametric Oscillator, OPO)，因具有波長可調範圍大、架構簡單等等潛力而被廣泛研究。低功率波長可調雷射系統可應用於檢測有毒氣體，如甲烷 (CH₄) 以及氨氣 (NH₃)；高功率波長可調雷射系統可應於長距離測量，如遙感技術。

以光學參量產生 (Optical Parametric Generation, OPG) 原理為基礎衍生而成的光學參量振盪器 (Optical Parametric Oscillation, OPO)，其工作原理為利用具有二階非線性係數 $\chi^{(2)}$ 的晶片轉換頻率 ω_p (pump) 的高能量泵浦光為兩種低能量光波：信號光頻率為 ω_s (signal) 以及閒置光頻率為 ω_i (idler)。信號光依字面通常定義為此過程中欲獲得的波段，而藉由高反射鏡面鍍膜以截取之。以光學參量振盪器來說，將非線性晶片置於由兩面反射鏡構成的光學共振腔內，如圖 1.6 所示為其基本架構，信號光的定義實為共振腔設計主要欲共振之光波。光學參量產生之現象遵守能量守恆 $\omega_p = \omega_s + \omega_i$ ，若固定泵浦光之波長，經由調整非線性晶片之溫度或角度，即可得到波長連續變化的信號光以及閒置光，

以此可量測分析波長調變特性。

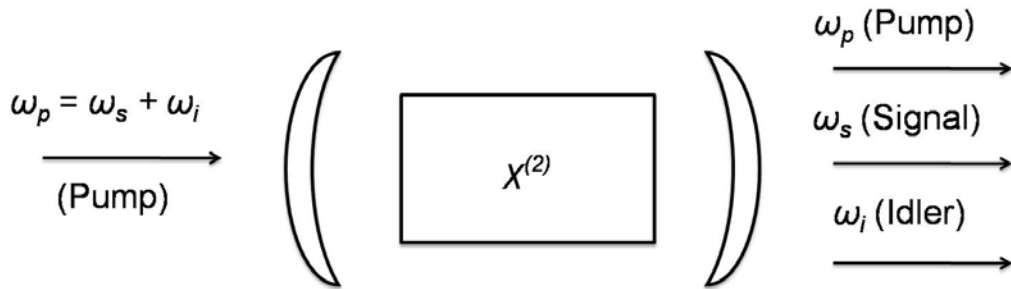


圖 1.7 光學參量振盪器架構示意圖

1.6 論文內容概述

本篇論文主旨為鎳金屬內擴散混合高電壓致極化反轉製程之研究，實驗目的為研製準相位匹配紅、綠、藍光倍頻雷射晶片以及光學參量振盪雷射晶片。主要材料採用中國大陸中電科技德清華螢電子生產的鈮酸鋰晶片 Z-cut LT Wafer $\Phi 3'' * 0.5 \pm 0.02$ mm (Z-cut Double side optical polished)。第二章介紹相位配理論，非線性頻率轉換與準相位匹配原理，並以理論與實驗相互佐證頻率轉換機制。第三章介紹高電壓致極化反轉系統，並逐一論述數種製程研究，進而論其優缺。第四章為光學量測與特性分析。第五章為總結與未來展望。

第二章 相位匹配理論

於非線性介質中傳播之光波電場可藉波動方程來描述

$$\nabla \times \nabla \times \mathbf{E} + \mu_0 \varepsilon \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} = -\mu_0 \frac{\partial^2 \mathbf{P}}{\partial t^2} \quad (2.1)$$

$$\mathbf{P} = \mathbf{P}_L + \mathbf{P}_{NL} = \varepsilon_0 \vec{\chi}^{(1)} \cdot \mathbf{E} + \varepsilon_0 (\vec{\chi}^{(2)} : \mathbf{E}\mathbf{E} + \vec{\chi}^{(3)} : \mathbf{E}\mathbf{E}\mathbf{E} + \dots) \quad (2.2)$$

μ_0 ：空氣中導磁係數

ε_0 ：空氣中介電常數

n ：介質的折射率

$\vec{\chi}$ ：磁化率張量

$\vec{\chi}^{(1)}$ 屬線性光學之範疇，反射、折射以及繞射等皆由此項所造成；

$\vec{\chi}^{(2)}$ 僅存於非中心對稱 (non-centro-symmetric) 的晶體中，是造成非線

性頻率轉換現象如倍頻、和頻、差頻...等最重要的參數； $\vec{\chi}^{(3)}$ 造成柯爾

效應 (Kerr effect)。



2.1 非線性頻率轉換與相位匹配

式(2.1)描述介質中光波間的耦合作用，假設作用光波均為單色平面波，則光波電場可表示為

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{2} \sum_n \mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega_n) e^{i(k_n \mathbf{r} - \omega_n t)} + c.c. \quad (2.3)$$

假設光波沿 Z 軸傳播，由式(2.1)可得知各頻率分量之波動方程

$$\nabla \times \nabla \times \mathbf{E}(\omega_n, z) + \mu_0 \omega_n^2 \varepsilon(\omega_n) \mathbf{E}(\omega_n, z) = -\mu_0 \omega_n^2 \mathbf{P}_{NL}(\omega_n, z) \quad (2.4)$$

考慮緩慢振幅增益 $\partial^2 E / \partial z^2 \ll k \partial E / \partial z$ 且無損耗之狀況下

$$\mathbf{E}(\omega_n, z) = \mathbf{e}_n E_n e^{ik_n z} \quad (2.5)$$

式(2.5)代入式(2.4)並省略 $d^2 E(\omega_n, z) / dz^2$ 項得到

$$\frac{dE_n(z)}{dz} = \frac{i\mu_0 \omega_n^2}{2k_n} \mathbf{e}_n P_{NL}(\omega_n, z) e^{-ik_n z} \quad (2.6)$$

式(2.6)描述光波於非線性介質中相互作用之基本關係，稱為耦合波方程式 (coupled wave equation)。假設介質中有三個光波相互作用，則可藉下列耦合波方程組來描述

$$\frac{dE_1}{dz} = -\frac{i\omega_1^2 \chi_{eff}}{k_1 c^2} E_2^* E_3 e^{-i\Delta k z} \quad (2.7a)$$

$$\frac{dE_2}{dz} = -\frac{i\omega_2^2 \chi_{eff}}{k_2 c^2} E_3 E_1^* e^{-i\Delta k z} \quad (2.7b)$$

$$\frac{dE_3}{dz} = -\frac{i\omega_3^2 \chi_{eff}}{k_3 c^2} E_1 E_2 e^{i\Delta k z} \quad (2.7c)$$

$$\Delta k = k_3 - k_1 - k_2 = 2\pi \left(\frac{n_3}{\lambda_3} - \frac{n_1}{\lambda_1} - \frac{n_2}{\lambda_2} \right) \quad (2.8)$$

2.1.1 平面波近似

考慮平面波之情況，以倍頻為例，則耦合波方程可簡化為

$$\frac{\partial E_1(z)}{\partial z} = -\frac{i\omega_1 d_{eff}}{cn_1} E_2(z) E_1^*(z) e^{-i\Delta k z} \quad (2.9a)$$

$$\frac{\partial E_2(z)}{\partial z} = -\frac{i\omega_1 d_{eff}}{cn_2} E_1^2(z) e^{i\Delta k z} \quad (2.9b)$$

$$\Delta k = k_2 - 2k_1 \quad (2.10)$$

d_{eff} : 有效非線性係數

ω : 基頻光頻率

式中 $d_{eff} = \chi^{(2)}/2$ 。利用平面波近似，即視基頻光電場於作用過程中變化很小，令為常數而得 $dE_1/dz = 0$ ，於是可直接積分式(2.9b)得

$$\int_0^L dE_2(z) = -\frac{i\omega}{cn_2} d_{eff} E_1^2(0) \int_0^L e^{i\Delta k z} dz \quad (2.11)$$

假設晶片長度為 L ，定義 $z = 0$ 處倍頻光強度為零可得

$$E_2(L) = -\frac{\omega L d_{eff} E_1^2(0)}{cn_2} \text{sinc} \left(\frac{1}{2} \Delta k L \right) \quad (2.12)$$

於折射率 n 之介質中，光波功率密度 $I = P/A = (1/2)nc\epsilon_0 |E|^2$ ，

式(2.12)可以光波功率密表示為

$$I_2 = \frac{8\pi^2 L^2 d_{eff}^2}{n_1^2 n_2 \lambda^2 c \epsilon_0} I_1^2 \text{sinc}^2\left(\frac{1}{2} \Delta k L\right) \quad (2.13)$$

亦可以此推得倍頻光功率，倍頻轉換效率定義為倍頻光功率與基頻光功率之比即為

$$\eta = \frac{|P_2|}{|P_1|} = \frac{8\pi^2 L^2 d_{eff}^2}{n_1^2 n_2 \lambda^2 c \epsilon_0} \cdot \frac{P_1}{A} \text{sinc}^2\left(\frac{1}{2} \Delta k L\right) \quad (2.14)$$

由式(2.14)得知，倍頻轉換效率大小主要取決於 sinc 函數。當滿足 $n_2 = n_1$ ，即 $\Delta k = 0$ 時稱為相位匹配 (phase-matching)，倍頻輸出功率會隨晶片有效長度的平方快速成長。



2.1.2 高斯波近似

實際狀況下，雷射光源較相近於高斯光束 (Gaussian beam) 形式，基頻光電場若把高斯光束光散的情況考慮進去

$$E_1(r) = E_1 e^{-r^2/w_0^2} \quad (2.15)$$

w_0 : 最小光腰半徑 (beam waist)

假設各光波均沿水平作用方向傳播，則可直接積分式(2.9b)得到

$$E_2(r) = -\frac{i\omega d_{eff}}{cn_2} E_1^2(r) L \text{sinc}\left(\frac{1}{2} \Delta k L\right) \quad (2.16)$$

因而可將倍頻光寫成

$$E_2(r) = -\frac{i\omega d_{eff}}{cn_2} E_1^2 L e^{-2r^2/w_0^2} \text{sinc}\left(\frac{1}{2}\Delta kL\right) \quad (2.17)$$

倍頻光功率為

$$\begin{aligned} P_2 &= \frac{1}{2} \varepsilon_0 cn_2 \int_0^{2\pi} \int_0^{\infty} |E_2(r)|^2 r dr d\varphi \\ &= \frac{\pi\omega^2 d_{eff}^2 L^2 \varepsilon_0 w_0^2}{8cn_2} |E_1|^4 \text{sinc}^2\left(\frac{1}{2}\Delta kL\right) \end{aligned} \quad (2.18)$$

同理可得基頻光功率為

$$P_1 = \frac{1}{2} \varepsilon_0 cn_1 \int_0^{2\pi} \int_0^{\infty} |E_1(r)|^2 r dr d\varphi = \frac{1}{4} \pi \varepsilon_0 cn_1 w_0^2 |E_1|^2 \quad (2.19)$$

式(2.19)代入式(2.18)可得

$$P_2 = \frac{8\pi^2 L^2 d_{eff}^2}{n_1^2 n_2 \lambda^2 c \varepsilon_0} \cdot \frac{P_1^2}{\pi w_0^2} \text{sinc}^2\left(\frac{1}{2}\Delta kL\right) \quad (2.20)$$

以倍頻光功率與基頻光功率之比值來表示轉換效率

$$\eta = \frac{|P_2|}{|P_1|} = \frac{8\pi^2 L^2 d_{eff}^2}{n_1^2 n_2 \lambda^2 c \varepsilon_0} \cdot \frac{P_1}{\pi w_0^2} \text{sinc}^2\left(\frac{1}{2}\Delta kL\right) \quad (2.21)$$

考慮光波電場平行傳播，由式(2.21)可得知，倍頻轉換效率與晶體長度的平方成正比，與基頻光光腰成反比。然而考慮高斯光束之空間傳播效應，並不是晶體長度越長效率就會越高，尚需符合最小光腰半徑恰於作用晶體長度 L 中，致使光束發散幅度符合 $L = 2z_R$ ，其中 $z_R = \pi w_0^2/\lambda$ 為 Rayleigh range，此即為共聚焦條件，如圖 2.1 所示。

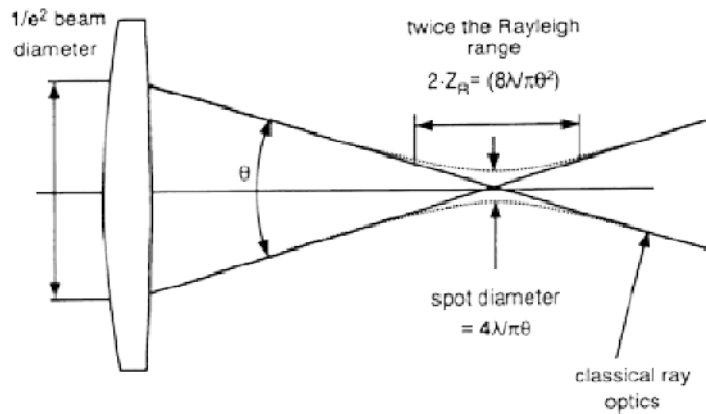


圖 2.1 高斯光束發散

於 $2z_R$ 範圍內可視光束為平行光，式(2.21)經修正後表示為

$$\eta = \frac{|P_2|}{|P_1|} = \frac{16\pi^2 L d_{eff}^2}{n_1^2 n_2 \lambda^3 c \epsilon_0} P_1 \text{sinc}^2 \left(\frac{1}{2} \Delta k L \right) \quad (2.22)$$

與式(2.21)相較可知，若滿足共距焦條件，則倍頻轉換效率與晶體長度成正比，而不是與其平方成正比。

2.2 雙折射相位匹配²⁹

光波於非等向性晶體 (anisotropic crystals) 中傳播時，不同極化方向的光折射率不相同，以單軸 (uniaxial) 晶體為例，存在普極 (ordinary) 折射率 n_o 與非普極 (extraordinary) 折射率 n_e ，其關係如下所示

$$\frac{1}{n_e^2(\theta)} = \frac{\cos^2(\theta)}{n_o^2} + \frac{\sin^2(\theta)}{n_e^2} \quad (2.23)$$

若 $n_e > n_o$ ，稱為正單軸晶體 (positive uniaxial crystals)；若 $n_e < n_o$ ，

稱為負單軸晶體 (negative uniaxial crystals)。可利用晶體的雙折射特性，選擇適當入射晶體的角度 θ_m ，致使基頻光於晶體中的折射率恰等於倍頻光之折射率，即 $n_1 = n_2$ ，則基頻光與倍頻光可以相同的相速度 (phase velocity) 行進，稱為雙折射相位匹配 (Birefringence Phase-Matching, BPM)，然則雙折射相位匹配卻有如下幾項限制。

非線性係數

極化方向必須選定在特定的方向上，則無法選用晶體的最大非線性係數。以鉬酸鋰為例，滿足雙折射相位匹配所使用的係數是 d_{31} ，但最大的非線性係數是 d_{33} ，轉換效率與非線性係數大小成平方關係，故效率受到侷限。

發散角

由於雷射光束在傳輸時有一定的發散角，光束入射晶體後，其發散光必然會偏離相位匹配角，偏離角度越大，相位匹配程度越差，轉換效率也將大幅下降。雖然可透過透鏡聚焦來增加基頻光功率密度，但因發散角在經過透鏡聚焦後也將相對變大，故未必能有效的提高轉換效率。我們可依照晶體的雙折射特性，將非線性頻率轉換可接受角 $\Delta\theta$

(acceptance angle) 定義為轉換效率降為最大值的 1/2 時，其光束偏離的角度，晶體有效長度越大亦會縮小其範圍。

空間離散效應

入射基頻光與輸出倍頻光不在同一極化方向上，因而兩種不同極化方向的波隨著波前向量之方向傳播時，於空間中疊合會越來越少，致使倍頻光能量無法累積而降低轉換效率，此為非普極化光與普極化光之空間離散 (walk-off) 效應，致使轉換效率也跟著降低。



溫度調變限制

某些晶體的折射率會隨溫度而劇烈變化，而且 n_e 隨溫度的變化比 n_o 的變化大，適當調變晶體溫度，使得倍頻光與基頻光之折射率相同。雖然藉由調制晶體溫度可以改變倍頻光與基頻光在晶體中之折射率，然而倍頻晶體本身的折射率也會因溫度改變而有所變化，使得倍頻的轉換效率受限於倍頻晶體的溫度頻寬。當倍頻晶體因溫度變化而導致折射率改變時，易使相位匹配的程度變差。式(2.24)以 oo-e 為例。

$$\Delta T_{FWHM} = 2\Delta T_{\frac{1}{2}} = \frac{0.886 \frac{\lambda}{2}}{L[\partial n_1^o(T_m)/\partial T - \partial n_2^e(T_m)/\partial T]} \quad (2.24)$$

ΔT : 溫度頻寬

T_m : 達相位匹配時的臨界溫度

2.3 準相位匹配

與雙折射相位匹配相較，準相位匹配因無需特定角度入射，基頻光與倍頻光不會因傳播方向不同而漸行漸遠，可避免發生空間離散效應。由於入射方向不受限制，亦解除特定非線性係數之限制，因而可選用晶體的最大非線性係數。以鉬酸鋰為例，於晶體中進行倍頻轉換時，以磷酸氧鈦鉀的雙折射相位匹配等效非線性係數 $d_{31} = 10.7 \text{ pm/V}$ ，而鉬酸鋰的準相位匹配等效非線性係數 $d_{33}(2/\pi) = 16.6 \text{ pm/V}$ ，轉換效率因而可被提高。

2.3.1 一維空間

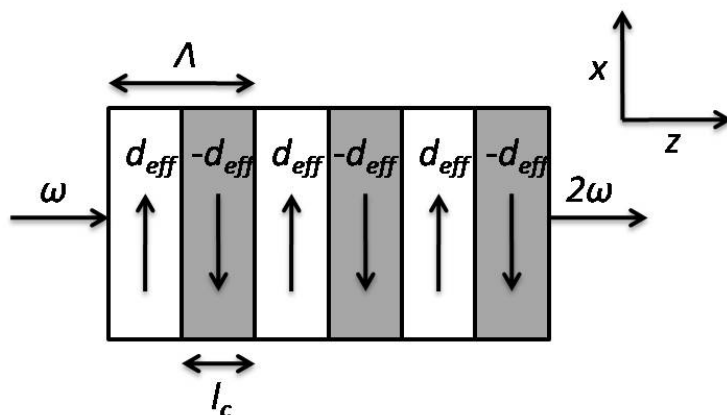


圖 2.2 準相位匹配結構示意圖

哈佛大學的 Bloembergen 教授於 1962 年發表準相位匹配 (Quasi-Phase-Matching, QPM) 理論³⁰。其基本構想是透過週期性調變晶片的非線性係數，提供入射光波進行非線性頻率轉換所需特定大小之光柵動量，避免因相位不匹配引起破壞性干涉，造成頻率轉換之能量無法持續累積。圖 2.2 為準相位匹配結構示意圖，表示等效非線性係數 d_{eff} 隨傳播方向調變的情形， l_c (coherence length) 表示極化反轉的區域， Λ 為週期。

假設光波延 Z 軸傳播，以倍頻為例，則式(2.9)可改寫為

$$\frac{dE_2}{dz} = \Gamma \chi^{(2)}(z) e^{-i\Delta kz} \quad (2.25)$$

式中 $\Gamma = i\omega E_1^2/n_2c$ 。式(2.10)的相位差以 l_c 表示可重寫為

$$\Delta k = k_2 - 2k_1 = \frac{\pi}{l_c} \quad (2.26)$$

$$l_c = \frac{\lambda}{4(n_2 - n_1)} \quad (2.27)$$

對式(2.25)積分可得在長度為 L 之晶體末端的倍頻光電場為

$$E_2(L) = \Gamma \int_0^L \chi^{(2)}(z) e^{-i\Delta kz} dz \quad (2.28)$$

式(2.28)可以傅立葉型式寫為式

$$E_2(L) = \Gamma \chi^{(2)}(G_m) L \quad (2.30)$$

$$\chi^{(2)}(G_m) = \frac{1}{L} \int_0^L \chi^{(2)}(z) e^{-i\Delta kz} dz = \frac{2}{\pi m} d_{eff} \quad (2.31)$$

$$\chi^{(2)}(z) = \sum_{m=-\infty}^{\infty} \chi^{(2)}(G_m) e^{iG_m z} \quad (2.32)$$

$$G_m = \frac{2\pi m}{\Lambda} \rightarrow \Lambda = m \frac{\lambda}{2} \cdot \frac{1}{n_2 - n_1}, m \in N \quad (2.33)$$

G_m : 光柵向量 (grating vector)

由式(2.31)~(2.33)得知，此結構將提供某些特定光柵動量，此光柵動量大小可由空間上被調變之週期 Λ 所決定。對式(2.31)積分後代入式(2.30)可得

$$E_2 \approx i e^{-\frac{\Delta k L}{2}} \Gamma d_Q L \text{sinc}\left(\frac{\Delta k L}{2}\right) \quad (2.34)$$

$$d_Q = \chi^{(2)}(G_m) = \frac{2}{\pi m} d_{eff} \quad (2.35)$$

d_Q : 準相位匹配有效非線性係數

若經過調變後之相位差可表示為式(2.36)，與原來的相位差式(2.26)相比，多出一可調變項 G_m 。當 $\Delta k_Q = 0$ 便稱為準相位匹配條件 (QPM condition)。

$$\Delta k_Q = k_2 - 2k_1 - G_m \quad (2.36)$$

考量一週期 Λ 長方波，其極化反轉的區域長度為 l_c ，定義佔空比 (duty cycle) 為

$$D = \frac{l_c}{\Lambda} \quad (2.37)$$

假設傅立葉轉換裡的每一項皆為相位匹配，即令 $G_m = \Delta k$ ，則 G_m 可表示為式(2.38)，以最佳化的角度來看，則其值為 1 時 d_Q 可為最大值，如式(2.39)所示。由此可知準相位匹配倍頻轉換效率與傳統雙折射相位匹配倍頻轉換效率相較之下，會有 $(2/\pi m)^2$ 倍之落差。若 m 為奇數值時，最佳化的佔空比為 50%；若 m 為偶數值時，最佳化的佔空比為 25% 或 75%。

$$\chi^{(2)}(G_m) = \frac{2}{\pi m} d_{eff} \sin(\pi m D) \quad (2.38)$$

$$d_Q = \chi^{(2)}(G_m) = \frac{2}{\pi m} d_{eff} \sin(\pi m D) \quad (2.39)$$

在不考慮折射率及等效二階非線性係數差異前提下，比較相位匹配、相位不匹配以及準相位匹配等三種方式之倍頻強度隨雷射入射距離的變化，如圖 2.2 所示。

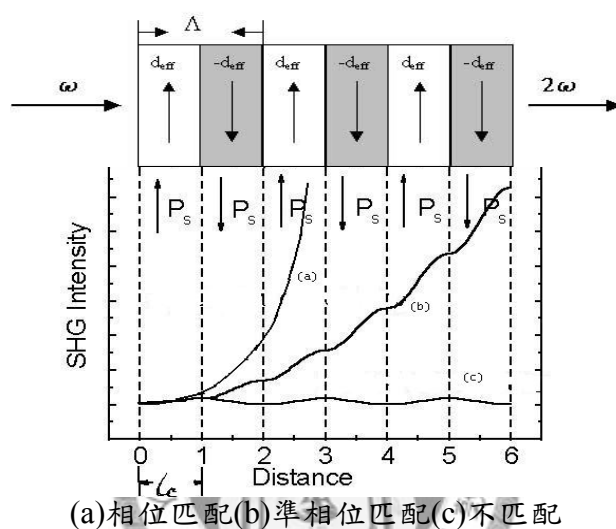


圖 2.3 倍頻光強度與晶片長度之關係

相位不匹配時，最大倍頻光功率於晶片中傳播經過 $l_c = \Lambda/2$ 作用後，能量又開始流回基頻光。因而當相位不匹配時，倍頻轉換效率會以 Λ 週期振盪，此週期正是準相位匹配所調變之最小週期單位。最佳化的 duty cycle 設計是於原來相位不匹配之倍頻能量開始流回至基頻能量時，將非線性係數之正負變號，以持續累積倍頻能量。

2.3.2 二維空間

V. Berger於1988年提出二維週期性極化反轉之準相位匹配理論³¹。

若晶片折射係數為定值，且晶片之極性在空間中之調變製作成二維方向分佈，則其二階非線性係數 $\chi^{(2)}$ 大小將呈二維週期性分佈，如圖 2.5(a)所示。

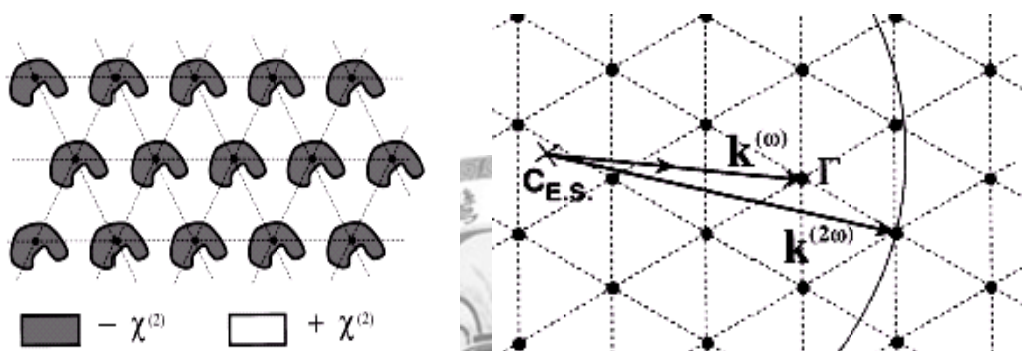


圖 2.4 (a)真實空間中 $\chi^{(2)}$ 的分佈(b)倒置晶格結構

$\chi^{(2)}$ 應修正為一般化的寫法為

$$\chi^{(2)}(\mathbf{r}) = \sum_{\mathbf{K}_m \in \text{ERL}} \chi^{(2)}(\mathbf{G}_m) e^{-i\mathbf{K}_m \cdot \mathbf{r}} \quad (2.40)$$

由二維空間的傅立葉分析，得到倒置晶格空間的分佈如圖 2.5(b)所示。式(2.40)中對應的光柵向量 \mathbf{G}_m 為倒置晶格中之分量，在倒置晶格空間中任兩個點連線，都是二維結構所能提供之光柵動量，和一維柵狀結構相比，二維結構提供多方向相位匹配的應用。在二維結構中，相位差應修改為

$$\Delta K_Q = k_3 - k_1 - k_2 - G_m \quad (2.41)$$

欲檢驗基頻光於某個方向入射時，能否達到準相位匹配以產生倍頻輸出，可利用 Ewald construction 來檢驗，如圖 2.5 所示。

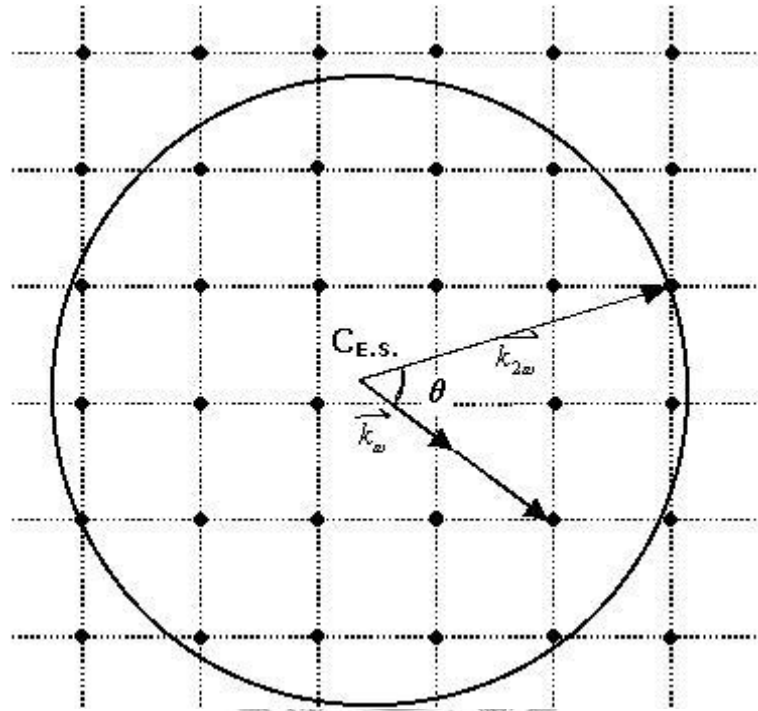


圖 2.5 非線性之 Ewald construction

通常 $2|k_\omega| < |k_{2\omega}|$ ，Ewald construction 之畫法與一般晶格繞射不同，原點 (Ewald 圓中心) 取在距離被作用之倒置晶格點 $2|k_\omega|$ 處，以 $|k_{2\omega}|$ 為半徑畫一圓，則由落於圓上之倒置晶格點，即可決定發生二維準相位匹配之倒置晶格向量 G_m 位置 (由原點至此點的向量) 在此可產生倍頻。在同樣之倒置晶格點陣列平面中，不一定僅有一個點在圓上，因而符合準相位匹配之倒置晶格向量因而亦不會唯一。此外，亦可藉由

改變溫度、入射光波長方式，改變基頻光與倍頻光之動量，即改變 Ewald 圓之半徑；轉動晶片角，即轉動倒置晶格結構之角度。這些方法都將致使不同方向之倍頻光輸出。因而於二維結構可提供多種不同大小之光柵動量，致使除了倍頻轉換之外，亦可發生其他種類的準相位匹配之非線性頻率轉換，如和頻、差頻等等。

2.4 光學參量振盪器理論

2.4.1 傳統光參產生及準相位匹配光參產生

考慮 3 個不同頻率的單頻光 ω_p 、 ω_s 、和 ω_i ，滿足式(2.42)之關係。考慮緩慢振幅變化後，則可導出與式(2.7)極為相似的耦合波方程組。

$$\omega_p = \omega_s + \omega_i \quad (2.42)$$

ω_p ：泵浦光頻率

ω_s ：信號光頻率

ω_i ：閒置光頻率

假設泵浦光強度不變，即 E_p 視為定值，解耦合波方程組可得光參放大之單次通過功率增益 (single-pass power gain)，如式(2.43)所示。

$$G(L) = \frac{|E_s(L)|^2}{|E_s(0)|^2} - 1 \approx \frac{2\omega_s\omega_i d_{eff}^2 I_p}{n_s n_i n_p \epsilon_0 c^3} L^2 \text{sinc}^2\left(\frac{\Delta k L}{2}\right) \quad (2.43)$$

於準相位匹配光參產生時，非線性係數做傅立葉級數展開代入耦合波方程組可發現與前述僅差在 d_Q 與 Δk_Q 。

$$\Delta k_Q = k_p - k_s - k_i - G_m \quad (2.44)$$

當 $\chi^{(2)}(z)$ 之調變為一方波型式，亦週期性極化反轉時，第一階準相位匹配時 Λ 為

$$\Lambda = 2l_c = \frac{2\pi}{k_p - k_s - k_i} \quad (2.45)$$

假設基頻光強度不變，可得到與式(2.43)極為相似的準相位匹配光參產生之單次通過功率增益為

$$G(L) = \frac{|E_s(L)|^2}{|E_s(0)|^2} - 1 \approx \frac{2\omega_s\omega_i d_Q^2 I_p}{n_s n_i n_p \epsilon_0 c^3} L^2 \text{sinc}^2\left(\frac{\Delta k_Q L}{2}\right) \quad (2.46)$$

2.4.2 波長可調性

由式(2.44)得知，當達到第一階準相位匹配時 $\Delta k_Q = 0$ ：

$$\Lambda = \left[\frac{n(\lambda_p, T)}{\lambda_p} - \frac{n(\lambda_s, T)}{\lambda_s} - \frac{n(\lambda_i, T)}{\lambda_i} \right]^{-1} \quad (2.47)$$

其中 λ_p 、 λ_s 、 λ_i 滿足能量守恆 $\lambda_p^{-1} = \lambda_s^{-1} + \lambda_i^{-1}$ 。

式(2.47)說明準相位匹配光參產生之波長可調特性：

- (1) 固定光柵週期 Λ ，調整溫度 T ，輸出倍頻光波長會改變；
- (2) 固定溫度 T ，調整光柵週期 Λ ，輸出倍頻光波長亦會改變。

2.4.3 光參產生細部理論

重寫式耦合波方程組可得

$$\frac{dE_s}{dz} = K_s E_i^* \exp(i\Delta kz) \quad (2.48a)$$

$$\frac{dE_i}{dz} = K_i E_s^* \exp(i\Delta kz) \quad (2.48b)$$

式中 $K_j = i(\omega_j d_{eff} / n_j c) E_p$ ， $j = s, i$ 。假設式(2.48)的解為

$$E_s(z) = (F e^{gz} + G e^{-gz}) e^{i\Delta kz/2} \quad (2.49a)$$

$$E_i(z) = (C e^{gz} + D e^{-gz}) e^{-i\Delta kz/2} \quad (2.49b)$$

其中 g 為光波電場之空間變化速率， C 、 D 、 F 、 G 為常數。將式(2.49)

帶入式(2.48)中比較係數後可得

$$F \left(g + \frac{i\Delta kz}{2} \right) = K_s C^* \quad (2.50a)$$

$$G \left(\frac{i\Delta kz}{2} - g \right) = K_s D^* \quad (2.50b)$$

$$C \left(g + \frac{i\Delta kz}{2} \right) = K_i F^* \quad (2.50c)$$

$$D \left(\frac{i\Delta kz}{2} - g \right) = K_i C^* \quad (2.50d)$$

將式(2.50a)、式(2.50c)寫為矩陣形式

$$\begin{bmatrix} g + \frac{1}{2}\Delta kz & -K_s \\ K_i^* & -\left(g - \frac{i\Delta kz}{2}\right) \end{bmatrix} \begin{bmatrix} F \\ C^* \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 0 \\ 0 \end{bmatrix} \quad (2.51)$$

令行列式為零，可得

$$g = \sqrt{K_s K_i^* - \frac{1}{4}\Delta k^2} \quad (2.52)$$

定義光參增益係數 (parametric gain coefficient) 為

$$\Gamma^2 = K_s K_i^* = \frac{\omega_s \omega_i |d_{eff}|^2 |E_p|^2}{n_s n_i c^3} = \frac{2\omega_s \omega_i |d_{eff}|^2 I_p}{n_s n_i n_p \epsilon_0 c^3} \quad (2.53)$$

將邊界條件 $E_s(0)$ 、 $E_i(0)$ 代入(2.49)可得

$$E_s(0) = F + G \quad (2.54a)$$

$$E_i(0) = C + D \quad (2.54b)$$

解式(2.50)、式(2.54)可得一般解為

$$E_s(x) = \left[E_s(0) \left(\cosh gx - \frac{i\Delta k}{2g} \sinh gl \right) + \frac{K_s}{g} E_i^*(0) \sinh gx \right] e^{\frac{i\Delta kx}{2}} \quad (2.55a)$$

$$E_i(z) = \left[E_i(0) \left(\cosh gz - \frac{i\Delta k}{2g} \sinh gl \right) + \frac{K_i}{g} E_s^*(0) \sinh gz \right] e^{\frac{i\Delta kz}{2}} \quad (2.55b)$$

得到單次通過功率增益為

$$G_i(l) = \frac{|E_i(l)|^2}{|E_i(0)|^2} - 1 = \left[1 + \left(\frac{\Delta k}{2g} \right)^2 \right] \sinh^2 gl = \Gamma^2 l^2 \frac{\sinh^2 gl}{(gl)^2} \quad (2.56)$$

於高增益近似下

$$G_i(l) = \frac{1}{4} e^{2\Gamma l}, \left(\frac{\Delta k}{2} \right) < g \text{ 或 } \Gamma^2 l^2 > \left(\frac{\Delta k l}{2} \right)^2 \quad (2.57)$$

於低增益近似下

$$G_i(l) = \Gamma^2 l^2 \operatorname{sinc}^2 \left\{ \left[\left(\frac{\Delta k}{2} \right)^2 - \Gamma^2 \right]^{\frac{1}{2}} l \right\}, \Gamma^2 l^2 < \left(\frac{\Delta k l}{2} \right)^2 \quad (2.58)$$

定義增益頻寬為

$$\left| \left(\frac{\Delta k}{2} \right)^2 - \Gamma^2 \right|^{\frac{1}{2}} l = \pi \quad (2.59)$$



2.4.4 光學參量振盪器理論

將非線性晶片置入共振腔中即形成光學參量振盪器。於泵浦光作用下，非線性晶片對信號光及閒置光可提供增益。當增益超過腔體損耗，光學參量振盪器就會達到共振腔閾值並且共振。其特性相似於雷射，輸出光為同調並與泵浦光同向。

光參振盪器有許多分類。就操作模式來分，可分為連續波 (CW OPO) 或是脈衝波 (pulse OPO)。此外，光學參量振盪器有分為腔內 (intra-cavity OPO) 及腔外。就共振腔不同來分，最重要的兩種為 SRO

(singly resonant oscillator) 與 DRO (doubly resonant oscillator) 。若共振腔只對信號光或閒置光其中一個共振，稱為 SRO；若共振腔同時對信號光及閒置光共振，稱為 DRO。

泵浦光功率超過共振腔閾值，光學參量振盪器即可共振出光，其閾值分析類似於雷射。於一典型之光參振盪器中，當泵浦光單次通過晶片時，根據式(2.55)，信號光及閒置光得到增益而成長，經過反射和回程後，當信號光和閒置光再度與泵浦光同向時，又可得到增益而再次被放大。因而光學參量振盪器之增益是為單向型式，其損耗要計算整個迴路。當相位匹配時 $\Delta k = 0$ ，達到共振腔閾值之情況為

$$E_s(l=0)e^{\alpha_s l} = E_s(0) \cosh \Gamma l + \frac{K_s}{\Gamma} E_i^*(0) \sinh \Gamma l \quad (2.60a)$$

$$E_i(l=0)e^{\alpha_i l} = E_i(0) \cosh \Gamma l + \frac{K_i}{g} E_s^*(0) \sinh \Gamma l \quad (2.60b)$$

其中 α_s 、 α_i 為信號光及閒置光於腔內來回一次之電場損耗(roundtrip electric field loss)。假設低損耗 $e^{\alpha_s l} \sim 1 + \alpha_s l$ 、 $e^{\alpha_i l} \sim 1 + \alpha_i l$ 則可解得

$$\cosh \Gamma l = 1 + \frac{\alpha_s \alpha_i l^2}{2 + \alpha_s l + \alpha_i l} \quad (2.61)$$

$$\Gamma^2 l^2 \sim \alpha_s \alpha_i l^2, (DRO) \quad (2.62)$$

$$\Gamma^2 l^2 \sim 2\alpha_s l, (SRO) \quad (2.63)$$

其中 α_s 、 α_i 為信號光和閒置光之單次通過 (single-pass) 功率損耗，單次通過功率增益在光學參量振盪器中扮演極為重要的角色。準相位匹配技術比傳統雙折射相位匹配能提供更大之增益。



第三章 設計與製程

雷射二極體激發固態雷射 (diode pump solid state laser, DPSSL) 技術突破熱透鏡侷限，以成熟的磊晶技術精密匹配固態雷射中增益介質晶體的吸收光譜³²，相較於以往連續激發型之雷弧燈或脈衝激發型之閃光燈的數百奈米頻譜，雷射晶體的吸收帶寬僅有 10 nm 左右，有效抑制落於晶體有效吸收極化外之能量，亦省去液態冷卻系統的必要性。

目前顯示光源方面，最有商機發展性的應用即是可見光雷射光源，若著眼於體積可攜性，投影手機已於今年美國拉斯維加斯國際消費類電子產品展覽會初試啼聲；欲追求豐富的色彩範圍，則以雷射電視的 3 原色光源為其重點。短波長波段應用方面，另有高密度資訊儲存以及生醫檢測之可看性，因短波長雷射二極體尚處於研發階段，成本高昂，DPSSL 技術亦提供另一發展的可能性。

	紅光波長 (nm)	綠光波長 (nm)	藍光波長 (nm)
基頻光	1260	1064	930
倍頻光	630	532	465

表 3.1 紅、綠、藍雷射光源之基頻光與倍頻光波長

論文實驗中紅、綠、藍雷射光源研究之波長分別設定列於表 3.1 中。於第二章已對準相位匹配原理做過分析，利用週期性結構的傅立葉係數項補償波前相量的相位差。第三章則將此理念應用於鉬酸鋰晶片的週期設計，並詳述製程部分。

3.1 週期設計

設定好泵浦光源的波長與頻率轉換方式，都可由式(2.36)或式(2.41)計算出所對應的 PPCLT 雷射晶片週期，以達到準相位匹配，藉此滿足最大的頻率轉換效率。以第一階的倍頻轉換為例 $m = 1$ 代入式(2.33)可得

$$\Lambda = \frac{\lambda}{2} \cdot \frac{1}{n_2 - n_1} \quad (3.1)$$

由式(3.1)可知，以基頻光泵浦 PPCLT 雷射晶片時，週期由折射率決定。欲利用鉬酸鋰最大非線性係數 d_{33} ，需將基頻光極化方向設計於晶片 Z 軸方向，故式(3.1)中 n 值表示鉬酸鋰之非普及化折射率 n_e 。鉬酸鋰晶片折射率之計算採自於史丹佛大學 Fejer 教授所提出的 *Sellmeier equation*³³ 如下式所示

$$n_e^2(\lambda, T) = A + \frac{B + b(T)}{\lambda^2 - [C + c(T)]^2} + \frac{E}{\lambda^2 - F^2} + D\lambda^2 \quad (3.2)$$

$$A = 4.5284$$

$$b(T) = 2.6794 \times 10^{-8}(T + 273.15)^2$$

$$B = 7.2449 \times 10^{-3}$$

$$c(T) = 1.6234 \times 10^{-8}(T + 273.15)^2$$

$$C = 0.2453$$

$$D = -2.3670 \times 10^{-2}$$

$$E = 7.7690 \times 10^{-2}$$

$$F = 0.1838$$

由式(3.2)可計算各種基頻光於PPCLT進行一階倍頻轉換的 n_1 、 n_2 ，以預先固定操作溫度於 100°C 的情況下，觀其基頻光與非普及化折射率關係如圖 3.1 所示，由圖可知基頻光波長越長則非普及化折射率會越小，尤以短波長紫外光範圍時隨波長增加 n_2 會銳減，導致相位差變小，因而可判斷基頻光波長越大，則週期會越大。

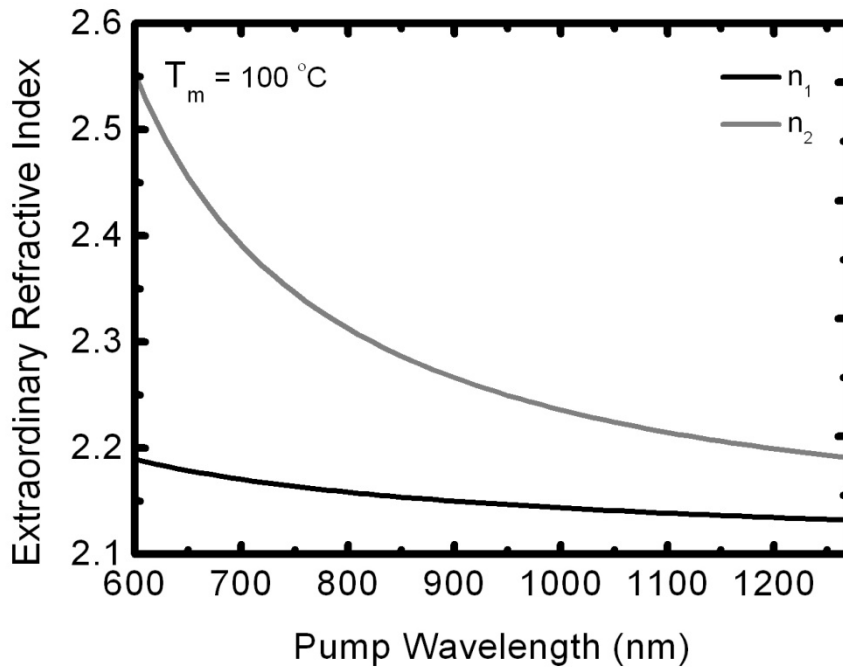


圖 3.1 鉍酸鋰倍頻之波長與非普及化折射率關係

固定基頻光波長，設計操作溫度，由式(3.2)可得所需 n_1 、 n_2 。以準相位匹配 PPCLT 倍頻綠光 532 nm 為例，基頻光設定為 1064 nm，其操作溫度與非普及化折射率之關係如圖 3.2 所示，由圖中可知，隨溫度升高， n_1 、 n_2 皆有上升的趨勢，雖然 n_2 變化較快，致使相位差變大，週期因而在操作溫度設定較高的情況下線寬較大。

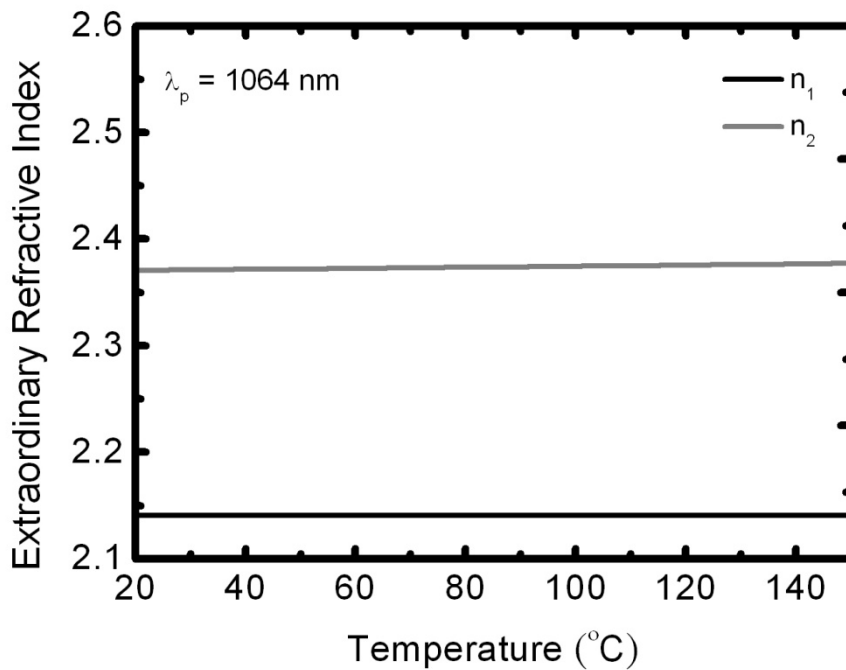


圖 3.2 鉍酸鋰倍頻之溫度與非普及化折射率關係

將非普及化折射率代入式(3.1)中可得固定操作溫度下之週期，如圖 3.3 所示，由圖中曲線趨勢可知，設計的泵浦波長越短，則週期會越小；設計的操作溫度越低，則週期會越大。但由圖中曲線趨勢可知相較於基頻光波長調變，操作溫度影響週期甚微。

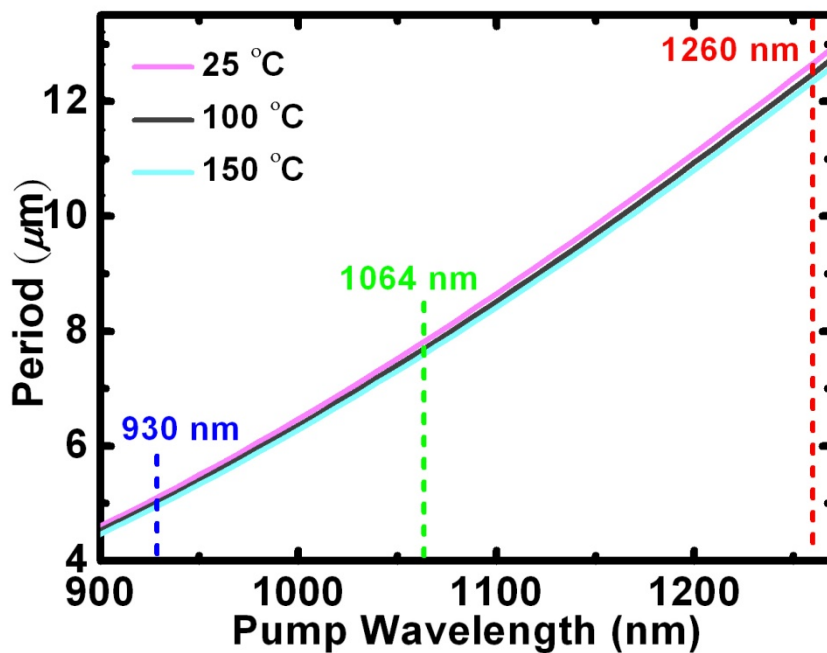


圖 3.3 鉍酸鋰倍頻之基頻光波長與週期關係

對於佔空比為 50 % 的週期性非線性係數調變，可對相位差做第奇數階的倍頻轉換；對於佔空比為 25 % 或 75 % 的週期性係數調變，可對相波相位差做第偶數階的倍頻轉換。由於有效非線係數與 m 的平方成反比關係，第一階倍頻轉換會有最大的轉換效率，但卻需要最小的週期，亦即較佳的製程技術。以基頻光波長於紫外光範圍的 680 nm 為例，其第一階倍頻轉換所需週期為 $1.6 \mu\text{m}$ ，而若能將佔空比做成 25 % 或 75 %，利用第二階倍頻轉換則週期可調寬至 $3.2 \mu\text{m}$ ，其倍頻轉換效率是一階的四分之一倍。而以三階考量雖可調至更大的週期 $4.8 \mu\text{m}$ ，其倍

頻轉換效率是一階的九分之一倍已難以應用。

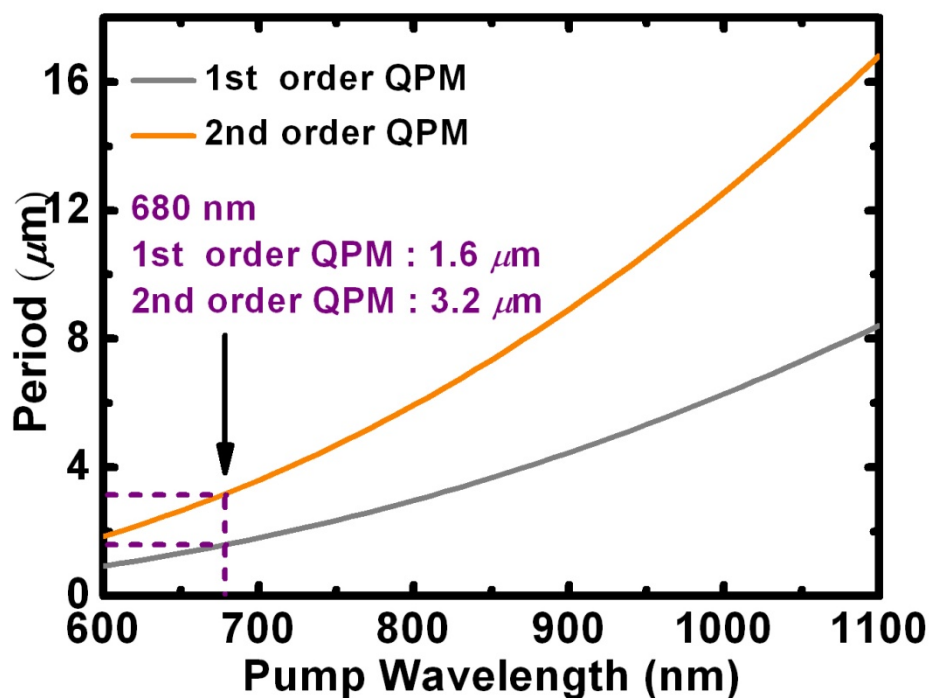


圖 3.4 鉬酸鋰倍頻之基頻光波長與週期關係

數種特定波長轉換及其對應週期列於表 3.2 中。

波長轉換 (nm)	頻率轉換 形式	操作溫度 (°C)	準相位匹配週期 (μm)
1260 + 1260 \rightarrow 630(R)	SHG	25	12.673
1260 + 1260 \rightarrow 630(R)	SHG	100	12.492
1064 + 1064 \rightarrow 532(G)	SHG	25	7.831
1064 + 1064 \rightarrow 532(G)	SHG	100	7.701
930 + 930 \rightarrow 465(B)	SHG	25	5.129
930 + 930 \rightarrow 465(B)	SHG	100	5.040
532 \rightarrow 930 + 1243	OPG	100	7.835
532 \rightarrow 930 + 1243	OPG	140	7.758

表 3.2 鉬酸鋰波長轉換與準相位匹配週期之關係

3.2 極化反轉模型

R. C. Miller 於 1960 年發表成核後側擴散模型 (nucleation control sidewise wall model)³⁴ 之後，G.D. Miller 繼而以此模型建構出週期性極化反轉的過程³⁵。以週期性金屬電極規範表面結構為例，分六階段描繪出電壓致極化反轉的情形。

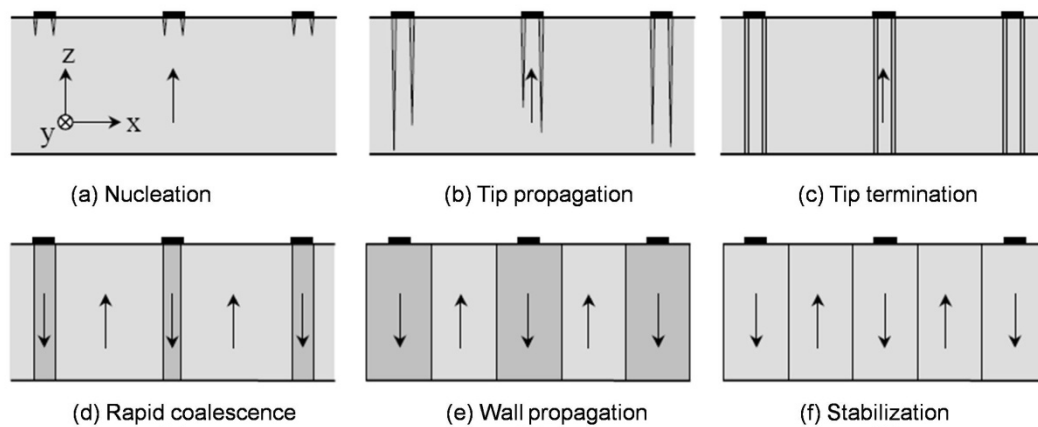


圖 3.5 高電壓極化反轉之成核側擴散模型(a)~(f)

成核 (nucleation)

如圖 3.9(a)所示，施加一高電壓於晶片時，會致使其表面出現多處極化反轉的起始點，稱為成核點 (nucleation site)。然則成核點並不會依特定分佈方式出現，反倒容易隨晶片的缺陷而成不規則的群落、弧線亦或直線形態。若先製作週期性結構於晶片表面，則因邊緣電場效應 (fringe field effect) 導致成核點較容易出現於金屬電極邊緣附近。成

核點密度 (Nucleation Site Density, NSD) 受施加電場之高低與成核時間之長短的影響，但是當外加電壓超過某個臨界值，成核點的數目會趨於飽和。

縱向擴散 (tip propagation)

如圖 3.9(b)所示，成核後反轉的區域會迅速的由+Z面延伸向-Z面，延伸的同時+Z面的成核點會發生側擴散現象。極化反轉沿著 Z 軸生長的速度 (tip propagation velocity) 遠大於橫向的側擴散速度 (sidewise domain wall velocity)，一般而言約為 100 : 1 ~ 1000 : 1，因而此時的側擴散並不會造成區域合併，但此比值會隨著+Z面成核點的不均勻性增加而減少。

縱向擴散終止 (tip termination)

如圖 3.9(c)所示，當反轉區域延伸至-Z面，即會生成與+Z面相對應的同直徑反轉圖形，以鈹酸鋰來說會呈現三角形，如圖 3.14 所示，因週期為 21 μm 屬大週期結構，故側擴散現象雖有但不明顯。

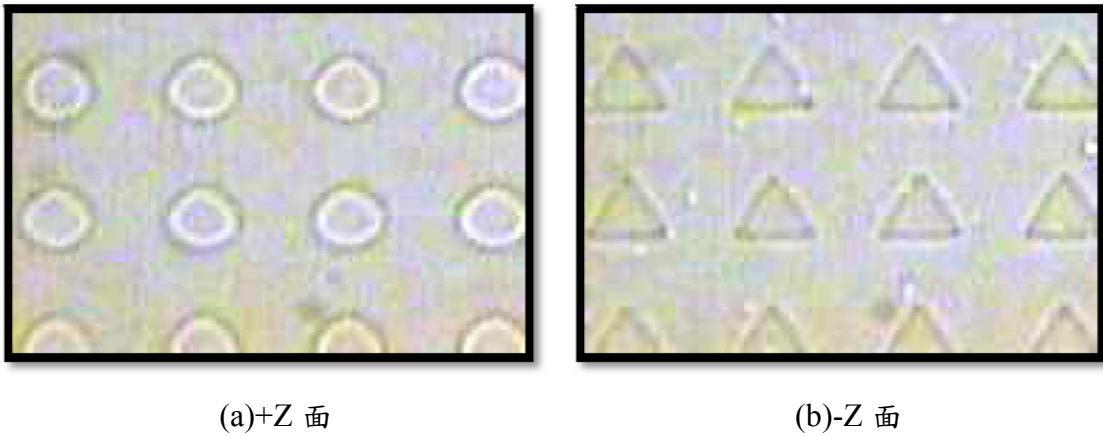


圖 3.6 側向擴散終止的情形

快速內側合併 (rapid coalescence)

如圖 3.9(d)所示，由於電極下方的電場高於無電極處的電場，故會先進行電極下方的內擴散合併。

側擴散 (wall propagation)

如圖 3.9(e)所示，當極化反轉區域佈滿整個電極下方後，外擴散會使得反轉區域超出電極定義的範圍。

反轉區域穩定 (stabilization)

如圖 3.9(f)所示，當達到所需要的佔空比時，仍需施加高電壓一段

時間，使得反轉區域穩定，此電壓必須低於矯頑電壓。

以此極化反轉模型可知，反轉區域定會超出金屬電極所定義的區域，因而設計佔空比時需考量此因素不可直接定為 50%，否則容易致使整個-Z 面反轉區域合併 (merge)，尤以小週期特別顯著；然而若佔空比過小，亦會導致結構容易斷裂，一但斷裂情況發生，則會致使其它區域反轉電荷過多而區域合併。故實驗中設計之佔空比皆為 25% ~ 33.3%。



3.3 高電壓波形

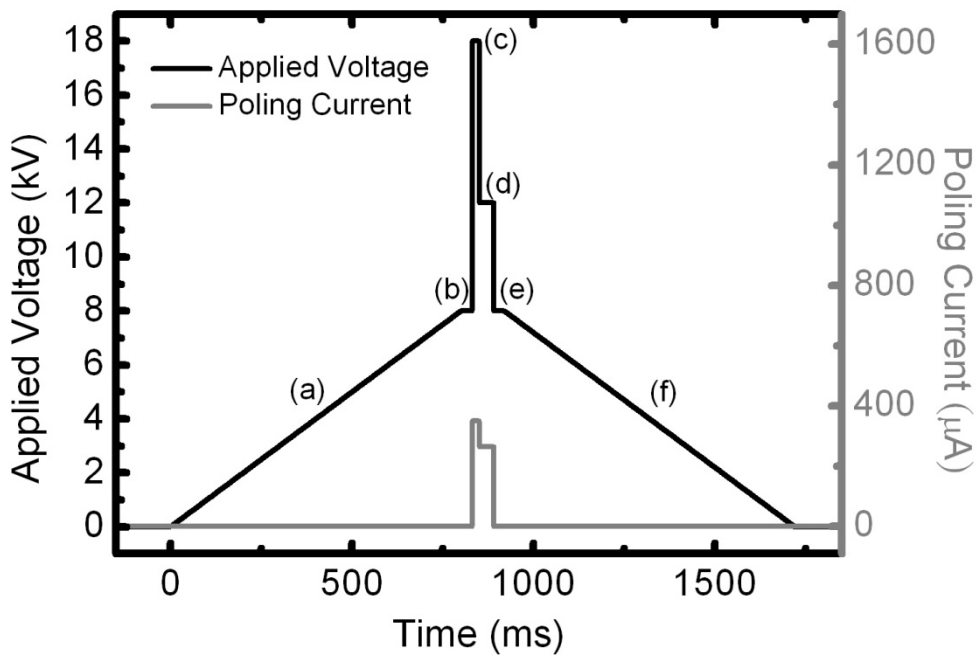


圖 3.7 高電壓極化反轉電壓電流圖(a)~(f)

依成核後側擴散模型，高電壓波形分為六個階段，如圖 3.7 所示。

(a) 設定電壓以 0.01 kV/ms 的速率上升至穩定電壓 8 kV，避免瞬間高電壓致使晶片因電容效應產生瞬間高電流 $I = C dV/dt$ ，而發生介電崩潰現象。穩定電壓值應略低於反轉電壓。

(b) 穩定電壓：於 8 kV 下維持 30 ms 的時間，確保高電壓放大器、所有接線、電極都完成充電，使之後通過電流不受線路充放電影響。

(c) 成核電壓：利用瞬間較高的電壓形成密度高且均勻的成核點。通過晶片的電流會因為電壓驟升而劇增，加上電容效應致使電流帶於初期會有一小段震盪³⁶。

(d) 極化反轉電壓：施加一電壓略高於矯頑電壓，以完成極化反轉機制。

(e) 穩定電壓：電壓降至 8 kV 維持 30 ms 使反轉區域穩定。

(f) 電壓由 8 kV 以 0.01 kV/ms 速率穩定下降至 0 kV。



3.4 高電壓致極化反轉

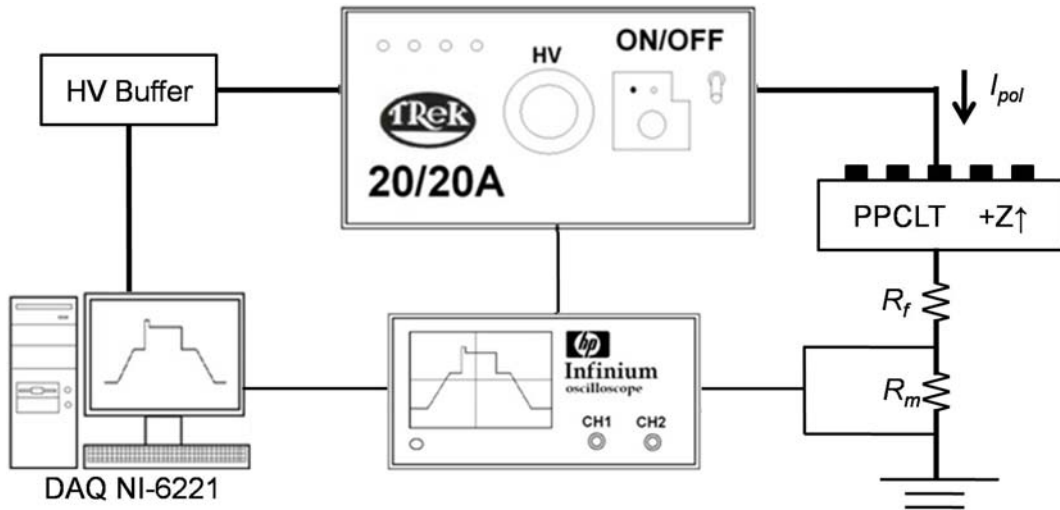


圖 3.8 高電壓極化反轉之實驗架構圖

於室溫下的高電壓致區域反轉實驗架構如圖 3.5 所示，適用於所加電場大於或等於矯頑電場時，施加脈衝式電壓於晶片上，反應時間以數毫秒至數百毫秒，因而需利用數位示波器，以截取反轉電流訊號，並以此來估計供給的電荷。採用的高電壓產生器是 Trek 20/20A，最高輸出電壓為 20 kV，最大輸出電流為 20 mA。先於電腦中 National Instruments 公司之 DAQ NI-6221 資料擷取卡產生一±10V 範圍內的特定類比電壓波形，最大速度為 15 V/μs。經 Trek 20/20A 高電壓放大器將此類比電壓波形放大 2000 倍，導入晶片+Z 面，並於接地端與晶片-Z 面中間串聯限流電阻 R_f 與取樣電阻 R_m 。

R_f 主要功能為限制電流，避免電流過大造成晶片介電崩潰，其置

配範圍為 3~300 M Ω 。當晶片之跨壓大於 V_{th} 時，反轉電流會劇增，限流電阻之壓降亦隨之上升，致使晶片之跨壓下降，反轉電流亦下降，而限流電阻之壓降亦隨之下降。此過程又導致晶片之跨壓上升，反轉電流亦上升。此現象致使反轉電流會被箝制在某個值上來回振盪，而晶片之跨壓亦會被箝制在 V_{th} 附近來回振盪。

施加之電壓 $V_{applied}$ 大於矯頑電壓 V_c 時，於晶片+Z 面即產生極化反轉機制，以 HP Infinium 54810A 示波器偵測取樣電阻 $R_m = 5\text{ k}\Omega$ ³⁷ 上之跨壓，將此跨壓除以取樣電阻值可得反轉電流 I_{pol} 。論文實驗中以定值外加電壓，所測得傳統光阻製程的限流電阻與反轉電流關係如表 3.3 所示，可得知限流電阻之跨壓大約固定在 1.9 kV，反推晶片跨壓約為 20.2 kV/mm 與理論值的矯頑電壓 21 kV/mm 有所偏差，推測可能導因於晶片生成時矯頑電場已偏移，或是仍受線路充放電影響所致。

限流電阻 R_f (M Ω)	反轉電流 I_{pol} (mA)
93	0.0202
21	0.0895
9	0.2088

表 3.3 外加電壓為 12 kV 時限流電阻與反轉電流之關係

對反轉電流積分可得到反轉電荷量，如式(3.3)所示。並可由式(3.4)可推得矯頑電壓 V_c 。

$$Q = \int I_{pol} dt = 2P_s A \approx I_{pol} t \quad (3.3)$$

$$I_{pol} = \frac{V_{applied} - V_c}{R_f + R_m} \quad (3.4)$$

式中 P_s 為晶片的自發性極化反轉 (spontaneous polarization) 值，如鈹酸鋰約為 $50 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ ，可以此先估算所需反轉電荷量，再以實驗測得的 I_{pol} 反推反轉時間。

為防止晶片介電崩潰時，瞬間高電壓與電流破壞資料擷取卡與其他數位電子儀器，以 HV buffer 緩衝 DAQ NI-6221 之 AO 端³⁸，尚需留心 TREK 20/20A 高電壓輸出經過晶片與電阻後，應保持獨立接地，避免與其他電子儀器共同接地。

3.4.1 液態電極與基座設計

電極部分採用史丹佛大學 Byer 教授提出之液態電極，晶片基座結構如圖 3.2 所示。基座材質為鐵氟龍，具有良好的高電壓絕緣效果且易加工。以 O 形環防止液態電極外流與平均分散夾具對晶片的壓力，其材料的選擇也必需考量絕緣能力，實驗中使用的材質為 Viton³⁹，是一種能耐酸鹼的人造橡皮。液態電極一般採用 LiCl 或 NaCl 飽和水溶液，但經實驗得知採用去離子水 DI 與其並無明顯差異，且尚有不易造成金

屬設備腐蝕之優點。由圖 3.2 可知 O 形環尺寸亦決定極化反轉面積之大小，尺寸越大易造成 O 形環對晶片之壓力變小，致使液態電極外流而介電崩潰。

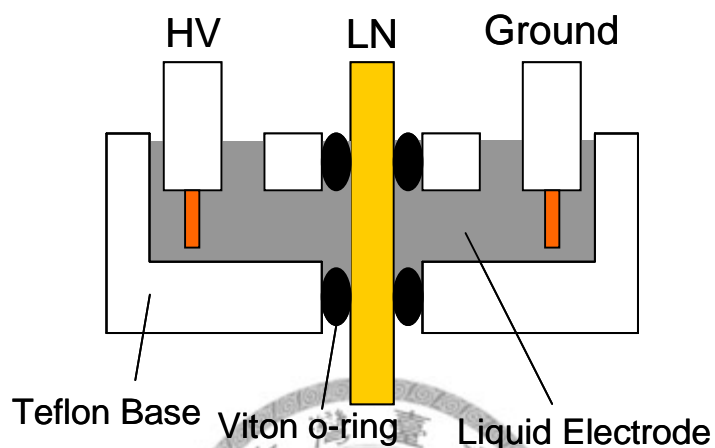


圖 3.9 高電壓極化反轉之液態電極基座設計

3.4.2 金屬電極之選擇

金屬電極之選取通常考量與晶片的附著力與製程的準備便利性。

由於金屬電極之優劣會影響高壓反轉極化的均勻性，故需注意：

- (1) 金屬膜的厚度應大於 2500\AA
- (2) 為顧及厚度均勻性與金屬膜品質，鍍率要低

論文實驗中易於取得且適於電極材料之金屬有金 (Au)、鋁 (Al)、鎳 (Ni) 以及鈦 (Ti)。其中以金最為昂貴，雖導電度極佳，卻因難以附著於鈹酸鋰表面而不宜；鋁金屬於空氣中易於氧化，常附著一層

Al_2O_3 於電極表面，且對於鈮酸鋰的附著力亦不佳⁴⁰；以本實驗室來說以濺鍍機制製作電極，鎳金屬鍍率相較於鈦金屬來說快上一倍，因而權衡之下採用鈦金屬作為電極。

3.4.3 金屬電極定義方式

施加高電壓進行極化反轉機制時，欲達到週期性反轉之結構，需於晶片表面進行遮蔽製程，致使電場週期性差異擴增。可先分為兩大類方式：(1)外加絕緣層遮蔽電場法(2)自發性結構遮蔽電場法

外加絕緣層遮蔽電場法常利用介電材料來遮蔽電場，如光阻(photoresist)、二氧化矽(SiO_2)、氧化鎵(Ga_2O_3)等等。又可細分為兩種結構，分別如圖 3.3 所示⁴¹。

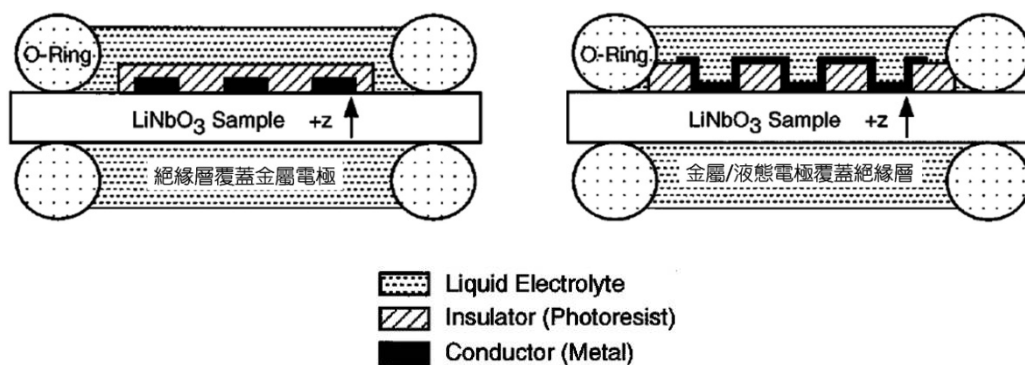


圖 3.10 外加絕緣層遮蔽電場法之結構

絕緣層覆蓋金屬電極法，如圖 3.3(a)所示，先製作週期性金屬電極，再於上方覆蓋絕緣層。優點是可覆蓋較厚之絕緣層，提供較大的電場差異性；缺點是製程繁複，須先以掀離法 (lift-off) 或蝕刻法 (etching) 定義好金屬電極，再蓋上絕緣層，最後在絕緣層上開窗，致使金屬電極與液態電極接觸，僅適用一維週期性結構。

金屬/液態電極覆蓋絕緣層，如圖 3.3(b)所示，先製作週期性絕緣層結構，於此絕緣層表面再鍍上一金屬電極層。優點是製程較為簡單，且可有效抑制邊緣電場效應⁴²。但當絕緣層厚度不夠厚時，則無法提供足夠電場差異性，致使絕緣層發生介電崩潰現象。然則欲增加絕緣層厚度，在製程上難以實現小週期結構，是這種方法最大之缺點。

自發性結構遮蔽電場法利用第 1.4 節中之鋰離子外擴散法、特殊金屬內擴散法，或質子交換法等等，於晶片表面先行造成淺層反轉或結構改變。當高電壓接觸到晶片表面時，已淺層反轉之極化難以再次反轉，因而產生遮蔽電場之效果⁴³。此類方法不需外加絕緣層定義結構，藉由晶片表面自發性之結構達到週期性電場大小之效果，如圖 3.4 所示

44。

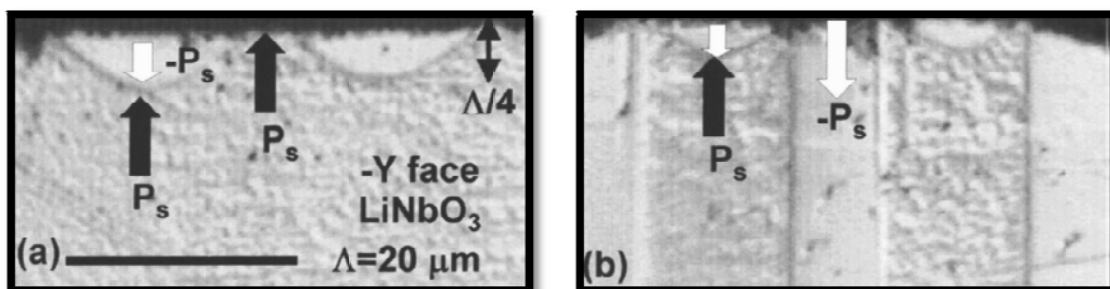


圖 3.11 (a)表面淺層反轉(b)極化反轉機制發生後

3.4.4 O 形環對高電壓反轉法的影響

為避免晶片與用作固定用途之 O 形環發生尖端集電導致介電崩潰，可先行塗佈矽油於 O 形環上，然則在固定晶片時，O 形環仍會傳遞壓力於晶片表面，此承壓部份在進行高電壓極化反轉機制時，相較於其它極化易生較大之電場效應，因而常會先行反轉，大片極化區域合併，致使反轉極化過於集中而無法得到大面積均勻週期性結構，如圖 3.5 所示⁴⁵。

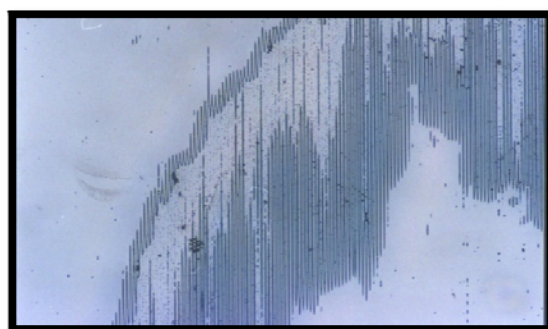


圖 3.12 O 形環造成的不均勻反轉

為避免此結果，應將金屬電極鍍於 O 形環內，侷限住反轉極化，

如圖 3.6(b)所示。

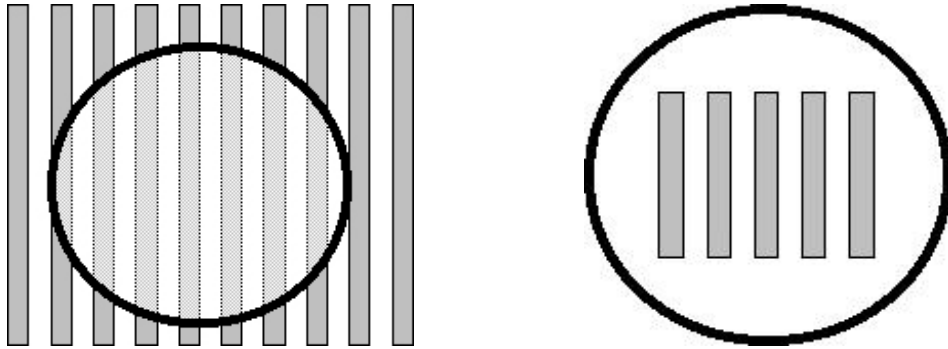


圖 3.13 (a)電極面積大於 O 形環(b)電極面積小於 O 形環

於晶片-Z 面反轉極化外覆蓋厚絕緣層，以緩衝 O 形環壓力亦為有效之方法。絕緣層本應選擇高介電係數之氧化膜，權衡製程需於+Z 面已有結構之晶片的-Z 面覆蓋氧化膜實為不易，且容易破壞既成之結構，因而採用 3M 生產的 Scotch 810D 絕緣膠帶，成份為醋酸酯類，亦提供良好之遮蔽效應，如圖 3.7 所示。

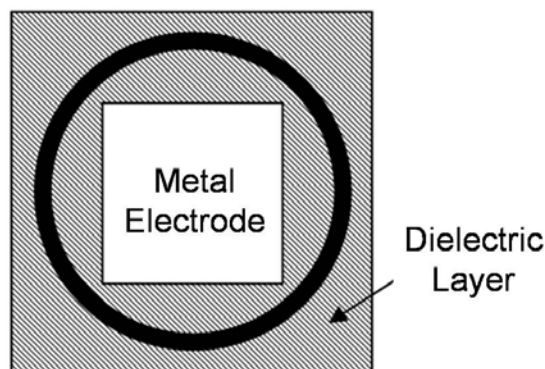


圖 3.14 於-Z 面覆蓋絕緣層

雖於邊緣呈現不平整之反轉圖樣，但此情況反轉已不會形成大片極化合併，能證明有厚絕緣層時 O 形環下不再是最易反轉之極化，如圖 3.8(a)(b)所示。

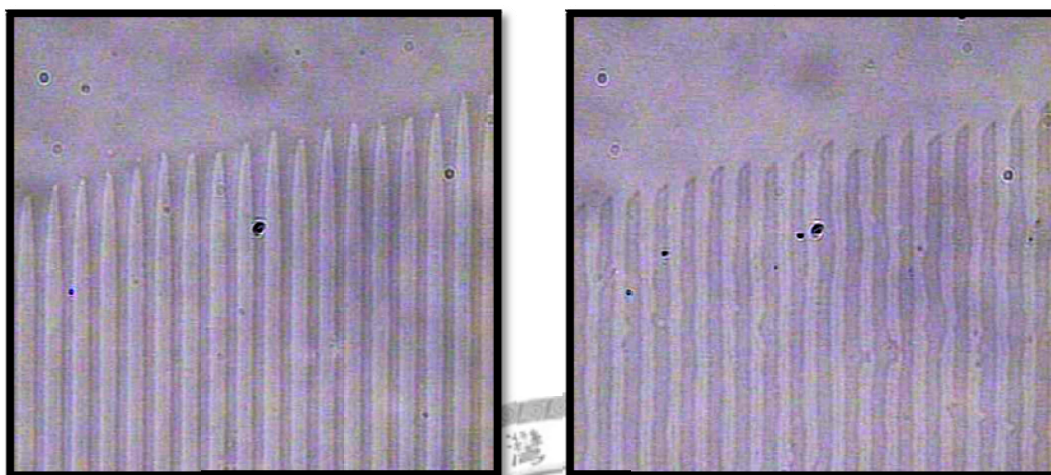


圖 3.15 週期 $12.8\ \mu\text{m}$ 之一維 PPCLT(a)晶片+Z 面(b)晶片-Z 面

3.5 內建電場量測

為確保購入晶片內建電場與矯頑 (coercive field) 電場是否正常，應先予以量測，以式(3.5)定義其關係。

$$E_{th} = \frac{(E_c)_f + (E_c)_r}{2} \quad (3.5a)$$

$$E_{int} = \frac{(E_c)_f - (E_c)_r}{2} \quad (3.5b)$$

由量測可得反轉電流，代入式(3.4)可知晶片之跨壓，進而推得順向矯頑電場 $(E_c)_f$ 、反向臨界電場 $(E_c)_r$ ，代入式(3.5)即可求得內建電場 E_{int} 。

以表 3.x 可推得內建電場約為 4.37 kV/mm 與理論值 4.56 kV/mm 相近不遠，而由此量測得知矯頑電場約為 20.2 kV/mm，亦與前述以定電壓 12 kV 調變電阻測得週期性結構之跨壓 20.1 kV/mm 相近。

外加電壓 V_{applied} (kV)	反轉電流 I_{pol} (μA)	反轉電荷 Q (μC)	矯頑電場 E_c (kV/mm)
10.2	7.8	0.39	20.07
10.3	10.8	0.54	20.15
10.4	15.4	0.77	20.15
10.5	13.8	0.69	20.42
10.6	23.2	1.16	20.23
5	3	0.15	11.31
6	7.8	0.39	11.67
6.1	16.2	0.81	11.52
6.2	25.2	1.26	11.34
6.3	27.0	1.35	11.47

表 3.4 量測內建電場

3.6 利用光阻定義週期性結構

如圖 3.3(b)所示，以光阻作為絕緣層是製作二維 PPCLT 最簡單又有效率的一種方法。由求解 *Poisson Equation* 可得知以高介電係數的材料作為絕緣層，會有較佳的遮蔽電場效果，且能降低側擴散速度⁴⁶。由於光阻並非高介電係數材料，故使用厚膜光阻強化邊緣電場差異效果，光阻開孔大小約取所需週期之 0.2 ~ 0.25 倍，以完整反轉 0.5 mm 塊狀晶片之週期性結構。製作流程如圖 3.9 所示。

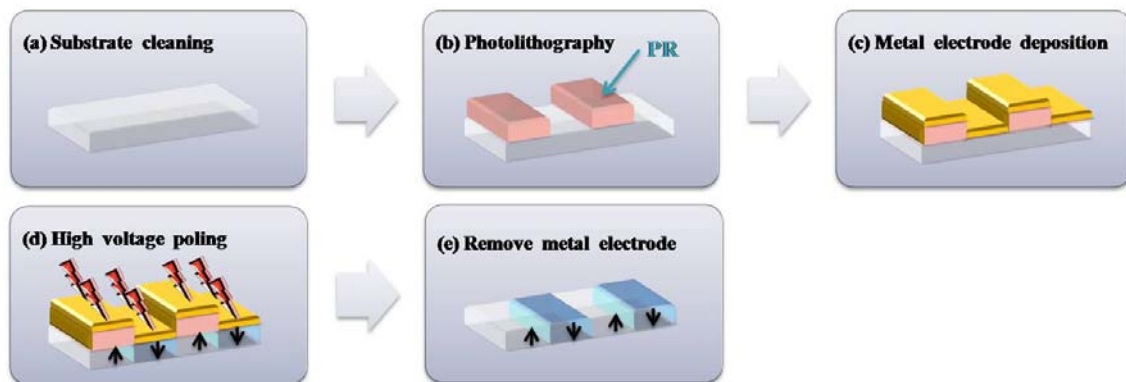


圖 3.16 高電壓致極化反轉製作流程(a)~(e)

由於僅用週期性光阻接觸液態電極進行高電壓極化反轉機制，不易得到大面積且均勻之週期性極化反轉結構。肇因於液態電極中常會存在微小氣泡懸浮，以致卡在光阻開孔中，此空氣隙縫會影響高電壓施加時之電場分佈，造成極化反轉不均勻易形成大片極化合併，因而需在光阻表面鍍上金屬電極層幫助電場均勻分佈。此電極層僅鍍於需要進行高電壓極化反轉之極化，於電極表面再覆以厚絕緣層，此絕緣層阻擋金屬電極與液態電極之接觸，尚需於絕緣層表面開窗致使液態電極可接觸小部份金屬，開窗寬度一般小於 1 mm。絕緣層亦使用 3M 生產之 Scotch 810D 絕緣膠帶取代傳統高介電係數之氧化膜⁴⁷。

於金屬電極上覆蓋絕緣層後有三個優點：(1)絕緣層的確有增加電場差異性的效果，因此使用較薄光阻即可達到與高介電係數氧化膜類

似的效果。(2)由於液態電極的導電度與均勻度比不上金屬，而用絕緣層阻隔液態電極與金屬電極，使得電場可以僅藉由金屬膜更均勻的分布在晶片表面，因此可以作到大面積均勻的極化反轉。(3)由於覆蓋絕緣層，液態電極與晶片表面直接接觸的面積很少，且金屬電極緊密的被包覆在絕緣層中，使得在極化反轉時晶片能承受更高的電壓，而不會介電崩潰。

利用光阻作為主要絕緣層，此法可輕易製作出週期 $12\ \mu\text{m}$ 以上厚 $0.5\ \text{mm}$ 之一維與二維大週期極化反轉結構，長度可達 $20\ \text{mm}$ ，如圖 3.10(a)(b)所示。

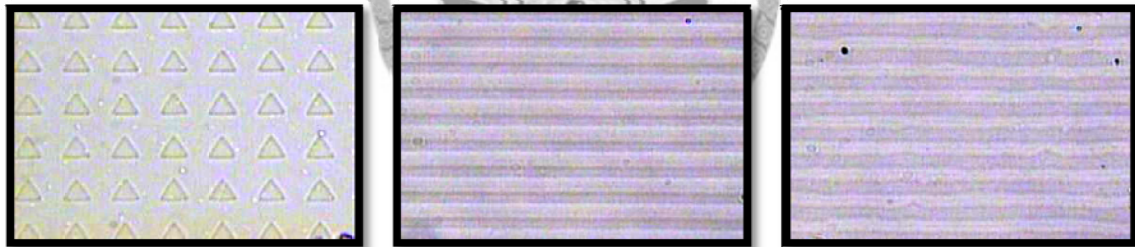


圖 3.17 (a)週期 $21.5\ \mu\text{m}$ (b)週期 $12.8\ \mu\text{m}$ (c)週期 $12.8\ \mu\text{m}$

然則以光阻為絕緣層最大之缺點是為深寬比限制，當縮小週期時，光阻之形狀會呈現梯形，嚴重時則會影響光阻結構的開孔大小與厚度，如圖 3.11 所示。

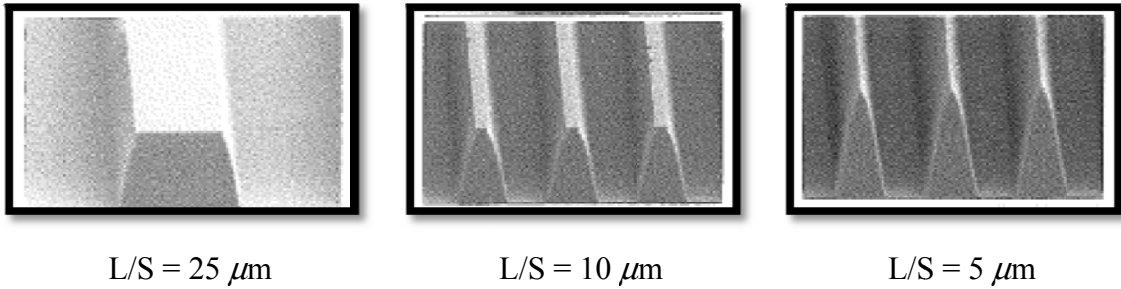


圖 3.18 使用厚光阻 AZ[®] P4620 在小週期呈現梯形結構

且鋇酸鋰之-Z 面反轉形狀易隨晶格面而成三角形，對於一維來說已較難以達成一直線之週期性結構，二維週期 $7.7 \mu\text{m}$ 之結構雖仍可製作出，如圖 3.12(a)所示。然則一維同週期之結構卻呈現嚴重斷斷續續，如圖 3.12(b)所示。

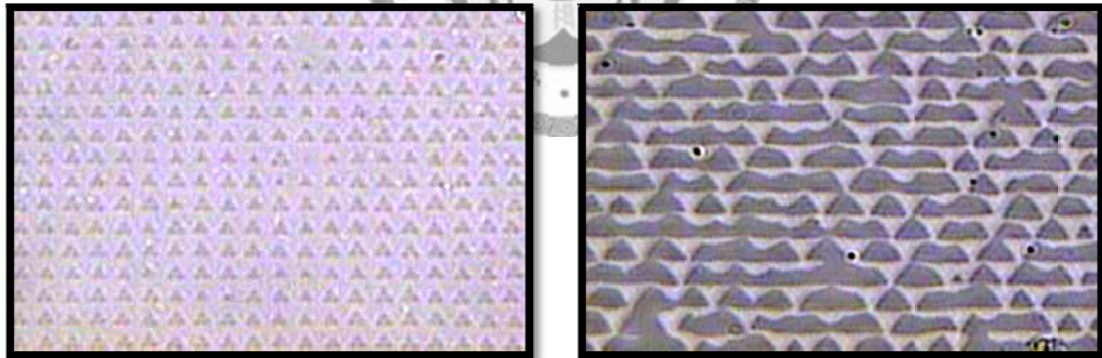


圖 3.19 -Z 面週期 $7.7 \mu\text{m}$ (a)二維結構(b)一維結構

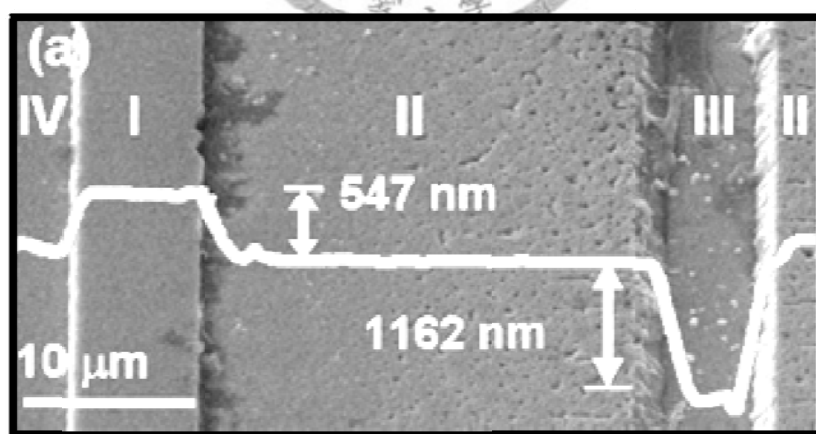
3.7 利用鎳金屬內擴散機制定義週期性結構

根據 Landauer 提出的成核理論，擴散區域邊界會有電荷聚集，致使施加高電壓時則難以進行成核機制⁴⁸。以 $1 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ 的電荷密度來說，則可以產生約 $10^7 \text{ V}/\text{cm}$ 強大的退極化電場，相較於鈦酸鋰晶片的矯頑電場大兩個數量級，因而可有效抑制成核點的產生。此外，鎳擴散區域的邊緣電荷會因電荷排斥力抑制側向反轉區域擴張，亦能有效侷限反轉區域的形狀。

以 HF 蝕刻後觀察可得知，其蝕刻速率比較為：

高電壓極化反轉 > 鎳擴散淺層反轉 > 未極化反轉

如圖 3.20 所示。



I	未鎳擴散	未極化反轉
II	鎳擴散	高電壓極化反轉
III	未鎳擴散	高電壓極化反轉
IV	鎳擴散	未極化反轉

圖 3.20 以 HF 蝕刻過後相對高度

以光阻定義週期性結構，可有效應用至二維綠光倍頻 PPCLT，然則以一維來說，卻易生成斷裂嚴重的點、線狀結構，而對於更小線寬的設計，則難以達成均勻化的週期性結構。而鎳擴散機制實可有效抑制+Z 面的側擴散，完成均勻的週期性結構。

於鈮酸鋰晶片+Z 面進行微影製程完成週期性結構，再利用鎳金屬內擴散機制定義週期性極化，繼以高電壓致極化反轉，因淺層擴散極化需較高的電壓予以導通，選擇適當的電壓即可完成週期性極化反轉結構。其製作流程如圖 3.21 所示。

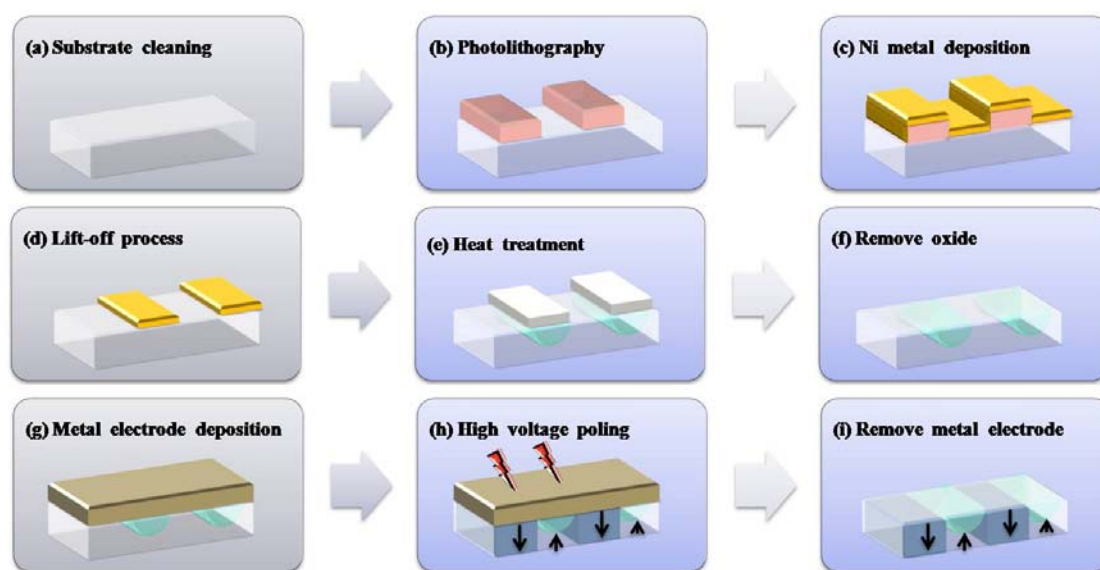


圖 3.21 鎳金屬內擴散混合高電壓致極化反轉製作流程(a)~(e)

3.7.1 製作鎳金屬圖形

於晶片表面製作鎳金屬週期性結構，可使用蝕刻法 (etching) 或掀離法 (lift-off)，以平整度來說掀離法較為符合需求。惟以掀離法製作小週期圖形時，需注意金屬厚度應以能容光阻接觸到丙酮為前提，避免難以掀離的情形發生。以濺鍍機於晶片濺鍍厚度 300 Å 的鎳金屬層，再以丙酮進行掀離法。圖 3.22 為進行完掀離法週期為 7.76 / 4.99 μm 之級聯結構，白色較亮的地方是晶片表面，其它是鎳金屬。

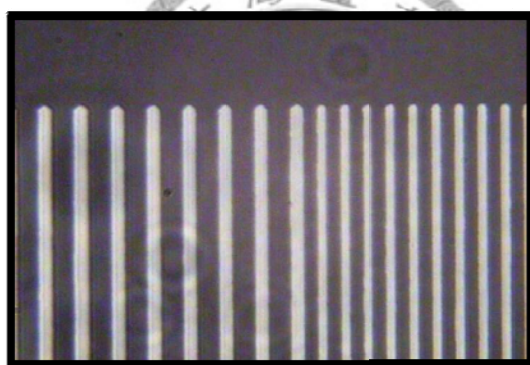


圖 3.22 以掀離法製作的鎳金屬一維週期性級聯結構

3.7.2 熱處理

熱處理之目的為致使鎳金屬擴散至結構定義的週期性區域裡面，因淺層擴散極化需較高的電壓予以導通，選擇適當的電壓即可完成週期性極化反轉結構。然則而鉭酸鋰的居理溫度為 601 °C，操作溫度必

需設定於此溫度之下，以避免鋰離子外擴散效應進而造成整體極性的改變。論文實驗中操作溫度設定為 $580\text{ }^{\circ}\text{C}$ ⁴⁹，尚需避免晶片於劇烈升降溫時容易裂壞的情形，因而設定為上升與下降速率皆為 $6\text{ }^{\circ}\text{C}/\text{min}$ ，圖 3.23 為熱處理溫控曲線。

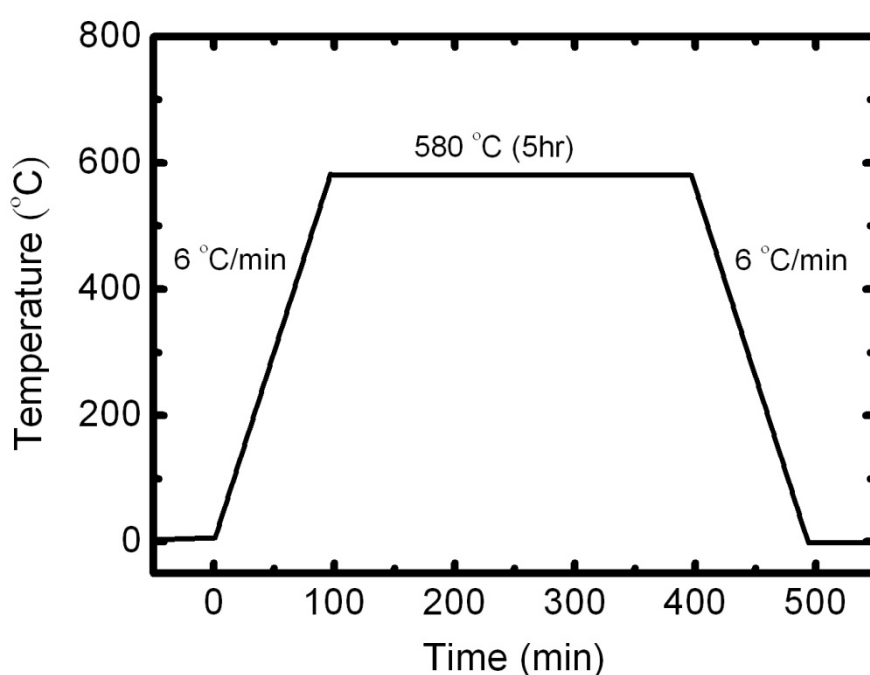


圖 3.23 熱處理的溫控曲線

鎳金屬於 $400\text{ }^{\circ}\text{C}$ 時易被氧化而形成透明的氧化鎳，如圖 3.24 所示，因而於熱處理時會通入流量為 50 sccm 的氮氣以避免嚴重氧化導致鎳金屬難以擴散入晶片表面，熱處理後以王水去除殘留的氧化層，再以濺鍍機濺鍍金屬電極，進行高電壓致區域反轉機制。

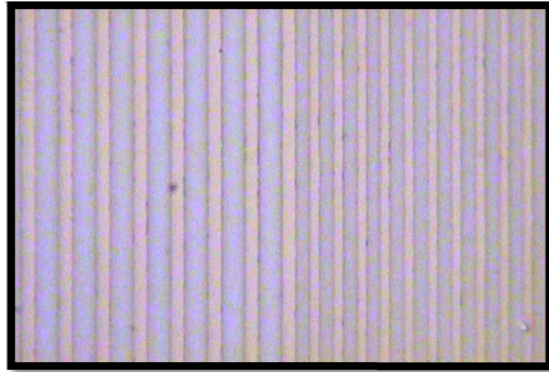


圖 3.24 熱處理後殘留的氧化層

3.8 成核時間控制

成核機制為高電壓致極化反轉法的第一階段。若於施加高電壓時，無法於晶片有效面積內產生均勻的成核點，實則難以完成設計的週期性結構。成核時間過短會導致成核點疏密不均，密度較低的區域會形成結構上的斷裂；密度較高的區域會因過量的電荷充入導致大面積反轉區域合併。成核時間過長則會強化側擴散效應，以光阻定義週期性結構，因+Z面亦無法有效侷限其側擴散，因而當線寬降至小週期時會導致晶片+Z與-Z面區域合併情形嚴重；以鎳擴散定義週期性結構，可強制+Z面依照設計的結構極化反轉，然則此為淺層反轉製程，並不能將控制範圍延伸至-Z面。

實驗中得知，瞬間高電壓導致介電崩潰的限制其實應可解讀為，

瞬間高電壓導致反轉電流劇增，晶片所能承受的時間越短，因此若先以瞬間高電壓進行成核機制，緊接著施加一介於成核電壓與矯頑電壓力間的緩衝電壓，即可有效避免反轉電流劇減導致介電崩潰的現象。

一般來說，以較小的反轉電流可得到較均勻的結構，卻不易製作出大面積；而較大的反轉電流雖然可輕易獲得大面積結構，卻易使-Z面區域合併嚴重。權衡考量下，採用先利用高電壓致使大面積成核點均勻生成後，再以小電壓反轉完成-Z面的結構，其重要環結在於成核時間的控制必需極為精確，依所需反轉面積而定，並不是僅憑數個毫秒的短時間脈衝即可達成。

以鎳金屬內擴散機制控制+Z面側擴散，調變成核時間控制-Z面側擴散，已可研製如圖 3.25 ~ 3.27 之數種週期性結構。而如圖 3.28 所示，週期 $3.22 \mu\text{m}$ 仍在測試階段，已可反轉區塊性的週期結構，期以間隔的週期性結構克服。

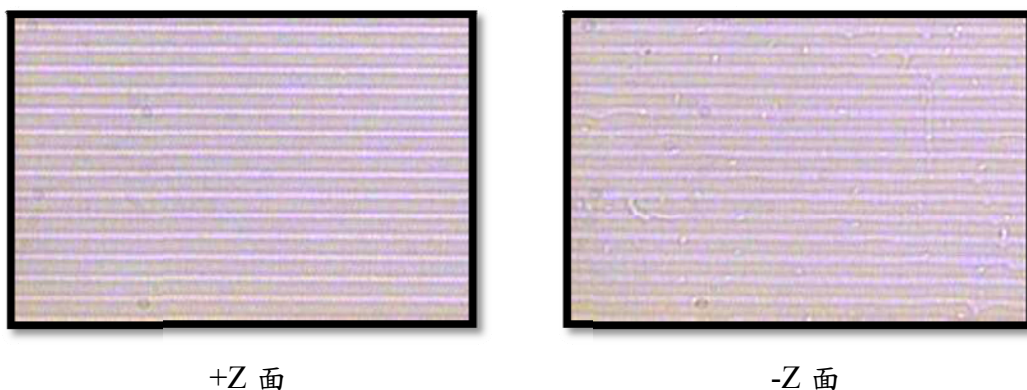
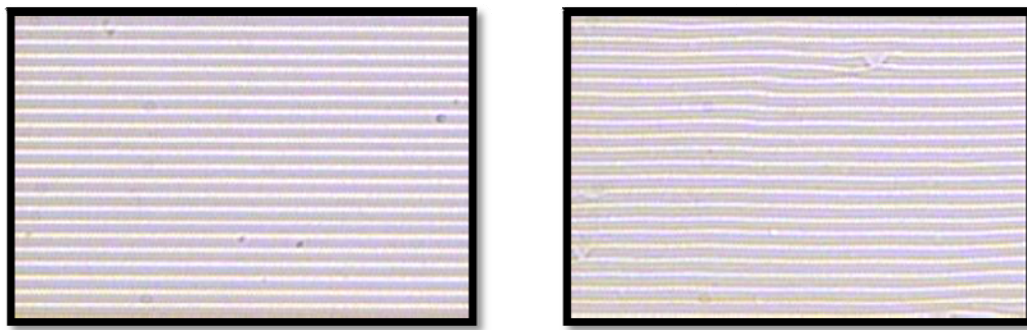


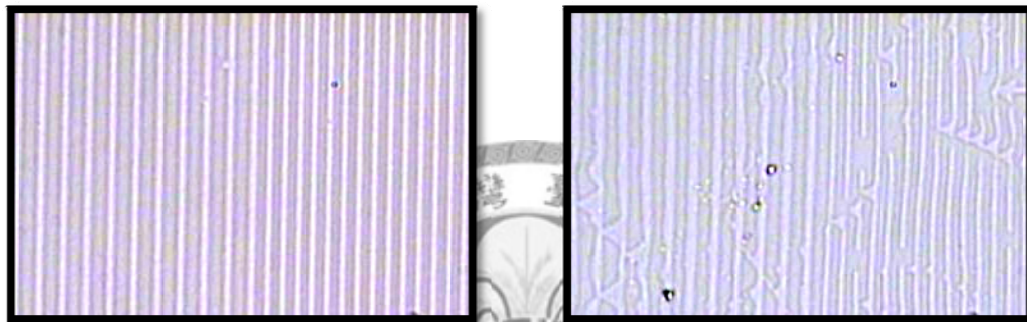
圖 3.25 一維週期 $7.76 \mu\text{m}$ 之結構



+Z 面

-Z 面

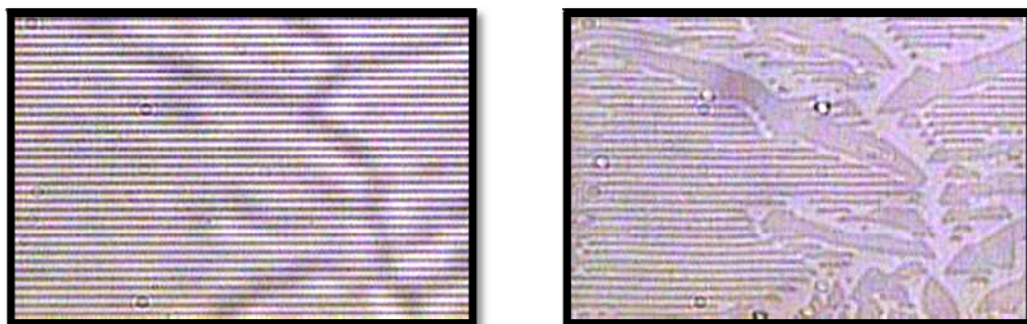
圖 3.26 一維週期 $4.99 \mu\text{m}$ 之結構



+Z 面

-Z 面

圖 3.27 一維週期 $7.76 / 4.99 \mu\text{m}$ 之級聯結構



+Z 面

-Z 面

圖 3.28 一維週期 $3.22 \mu\text{m}$ 之結構

3.9 製程討論

	第 3.6 節 光阻+絕緣層	第 3.7 節 鎳擴散	第 3.8 節 鎳擴散+成核時間控 制
阻隔電場能力	普通	高	高
高溫製程	不適合	適合	適合
目前優點	+Z、-Z 面側擴散程 度相近，可製做佔空 比 ~50%的週期性 結構	淺層反轉區域邊緣 有電荷累積，可有效 抑制+Z 面側擴散， 容易完成不同的設 計結構	除鎳擴散製程之優 點，-Z 面亦可完整呈 現區域極化反轉結 構
目前缺點	+Z、-Z 面側擴散快， 小週期容易區域合 併，一維結構難以製 作	小週期-Z 面側擴散 仍然嚴重，較難達成 佔空比 ~50%的週 期性結構	更小週期的突破未 能確定
目前成果	2D 7.7 μm (6 mm)	2D 5.07 μm (6 mm) 1D 7.76 μm (6 mm)	1D 7.76 μm (20 mm) 1D 4.99 μm (20 mm) 1D 7.76 μm (10 mm) + 1D 4.99 μm (10 mm)


表 3.5 製程討論

第四章 光學量測分析

欲量測自製的倍頻雷射晶片，則需備有基頻光波段之泵浦光源。

綠光之基頻光波段可選用普遍於業界的 1064 nm 波段，以 Nd : YVO₄ 晶體為增益介質之雷射作為泵浦光源；然則尚缺乏適用於紅、藍光倍頻實驗之泵浦光源，因而以第三章所介紹之鎳金屬內擴散混合高電壓致極化反轉製程技術，研製光學參量振盪雷射晶片供其架設研究，並以此可調雷射進行紅、藍倍頻雷射晶片之光學量測以及特性分析。

4.1 光學參量振盪器



光學參量振盪雷射晶片的規格列於表 4.2 中。週期依其設計的準相位匹配溫度差異，大致皆分部於 7 μm 附近，準相位匹配溫度越高，週期越小。於此規格週期，目前已可研製長度達 20 mm 的光參量振盪雷射晶片，亦可依不同需要調整其長度。如圖 4.1 所示，整面晶片的一維週期性極化反轉結構完整，應可達成高效能頻率轉換。雷射晶片兩端面拋光成鏡面，未鍍抗反射膜。

泵浦波長 (nm)	信號光波長 (nm)	閒置光波長 (μm)	光柵週期 (μm)	操作溫度 ($^{\circ}\text{C}$)	晶體長度 (mm)
532	878 ~ 994	1145 ~ 1350	7.83	103	6
532	896 ~ 1032	1099 ~ 1309	7.76	139	20

表 4.1 光學參量振盪雷射晶片規格



圖 4.1 光學參量振盪雷射晶片表面結構情形

圖 4.2 為實驗室架設之光學參量振盪器架構簡圖。以主動式 Q 開關雷射二極體泵浦 Nd : YVO₄ 雷射 (RMI, UP-10) 做為泵浦雷射，重複率範圍 0 ~ 200 kHz，輸出光模態 TEM₀₀，M² 值約為 1.2。於泵浦光作用下，雷射晶片對信號光與閒置光可提供增益，當增益超過腔體損耗時，光學參量振盪器即超過共振閾值而共振出光。一般文獻上提及之光學參量振盪器皆使用長度 20 mm 以上之雷射晶片以強化增益效果，為驗證自製的準相位匹配雷射晶片之品質，因而預先以長度 6 mm 光學參量振盪雷射晶片測試，證實於共振閾值限制嚴苛的條件下依然

可共振出光，進而更換為長度 20 mm 光學參量振盪雷射晶片，提高出光功率以利後續的倍頻實驗。紅、藍光倍頻實驗分別以不同的兩組共振腔，選擇 930 nm 或 1260 nm 波段為信號光共振做為泵浦光源。

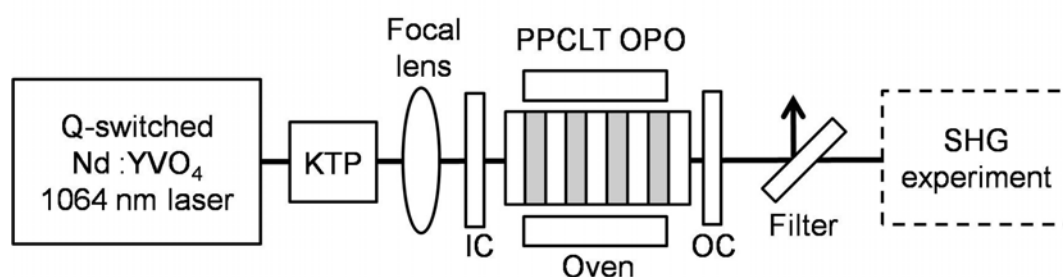


圖 4.2 光學參量振盪器架構簡圖

4.1.1 930 nm 共振腔

長度 6 mm 光學參量振盪雷射晶片



週期 $7.83 \mu\text{m}$ 長度 6 mm 準相位匹配雷射晶片，其調變溫度於 $55^{\circ}\text{C} \sim 165^{\circ}\text{C}$ 之範圍時，共振出的信號光波段涵蓋 $878 \text{ nm} \sim 994 \text{ nm}$ 之範圍，閒置光可涵蓋 $1145 \text{ nm} \sim 1350 \text{ nm}$ 之範圍，溫度調變與輸出波長之關係如圖 4.3 所示。

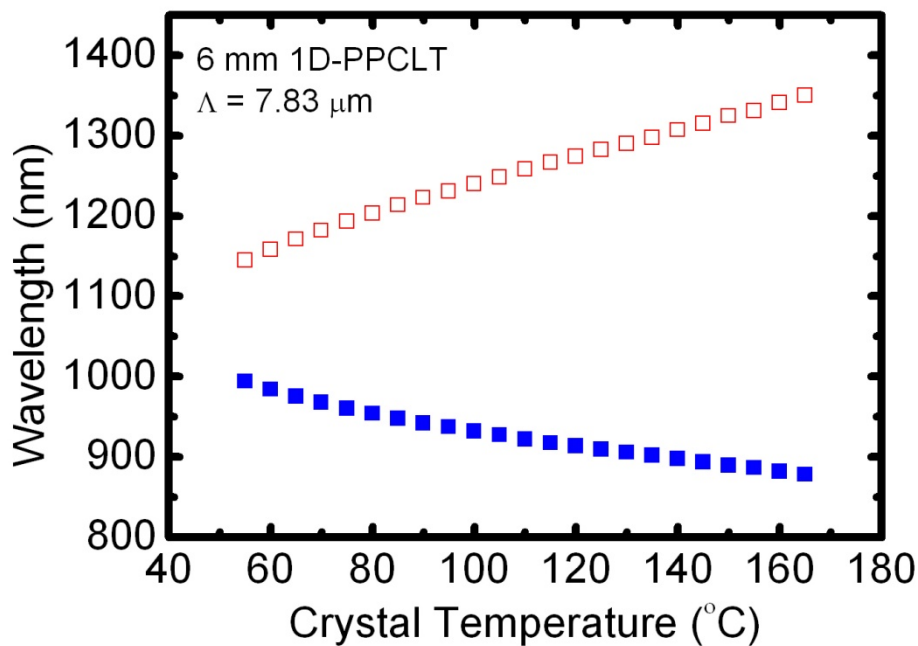


圖 4.3 光學參量振盪器輸出波長與晶片操作溫度之關係

930 nm 共振腔

晶片長度 (mm)	溫度 (°C)	信號光波長 (nm)	閒置光波長 (nm)	腔長 (mm)
6	103	929.2	1244.5	12

表 4.2 930 nm 共振腔特性

圖 4.4 為 930 nm 共振腔的輸出功率與泵浦功率之關係，6 mm 光參量振盪雷射晶片置於腔長為 12 mm 的共振腔內，操作溫度為 103 °C，輸出信號光之中心波長為 929.2 nm，閒置光之中心波長為 1244.5 nm，上述相關特性列於表 4.3。由圖 4.4 可知，共振腔閾值約為 140 mW (7.7

MW/cm²), 信號光功率斜線效率為 22.2%, 閒置光功率斜線效率為 18.7%, 總和功率斜線效率為 40.9%。於最大泵浦強度 (19.9 MW/cm²) 時, 信號光最大轉換效率為 13.6%, 閒置光最大轉換效率為 11.5%, 總和轉換效率為 25.1%。

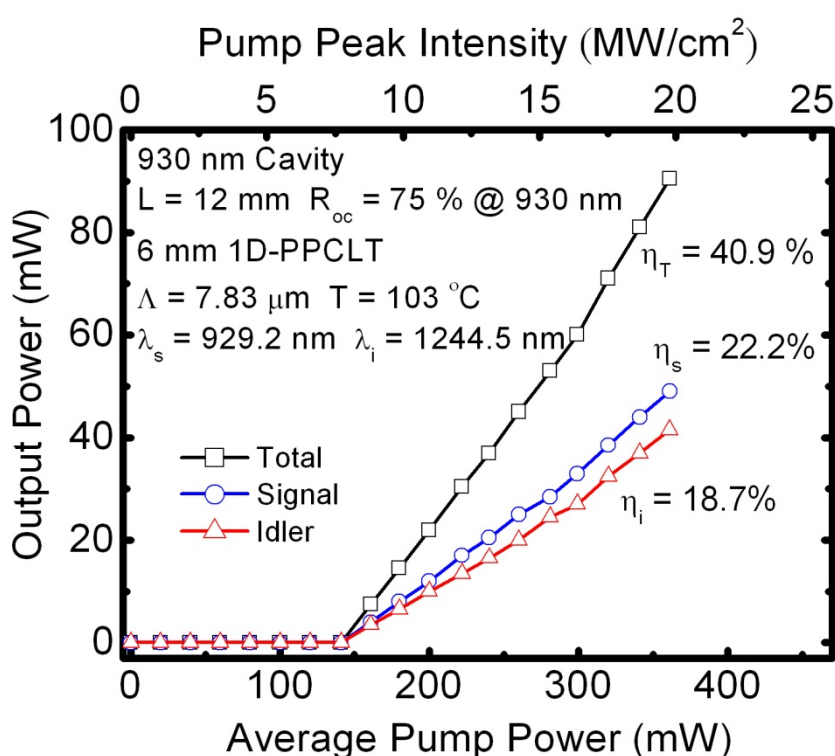


圖 4.4 930 nm 共振腔輸出功率與泵浦功率之關係

4.1.2 長度 20 mm 光學參量振盪雷射晶片

週期 7.76 μm 長度 20 mm 晶片其溫度調變範圍為 75 $^\circ\text{C}$ ~ 165 $^\circ\text{C}$ 時, 信號光可涵蓋 896 ~ 1032 nm 之範圍, 閒置光可涵蓋 1099 ~ 1309 nm

之範圍，如圖 4.5 所示。

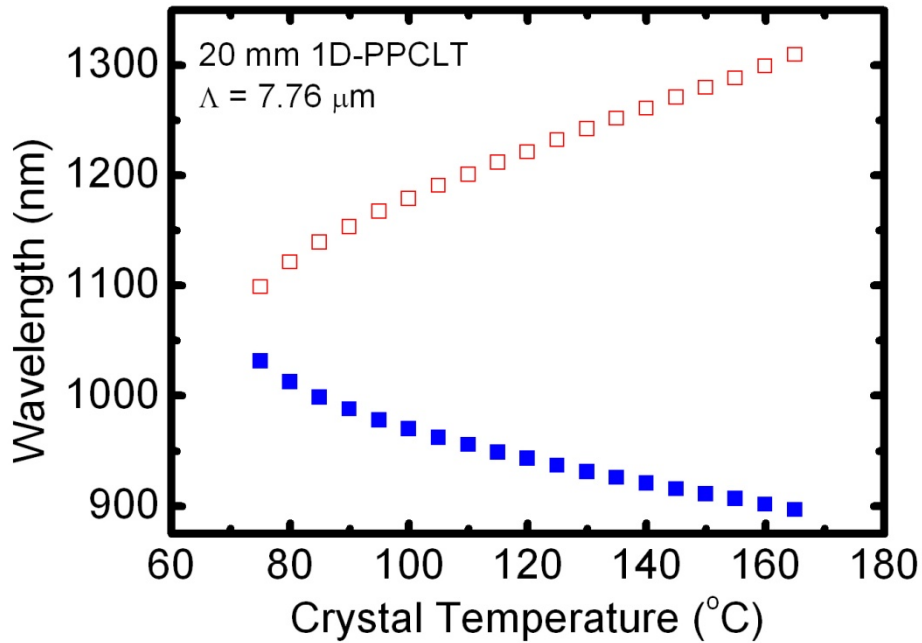


圖 4.5 光學參量振盪器輸出波長與晶片操作溫度之關係

930 nm 共振腔

晶體長度 (mm)	溫度 (°C)	信號光波長 (nm)	閒置光波長 (nm)	腔長 (mm)
6	128.5	931.3	1240.8	30

表 4.3 930 nm 共振腔特性

圖 4.6 為於 930 nm 共振腔架構的輸出功率與泵浦功率之關係，20 mm 晶片置於腔長為 30 mm 的共振腔內，操作溫度為 128.5 °C，輸出信號光之中心波長為 931.3 nm，閒置光之中心波長為 1240.8 nm，上述

相關特性列於表 4.4。由圖 4.6 可知，共振腔閾值約為 109 mW (6.0 MW/cm^2)，信號光功率斜線效率為 22.8%，閒置光功率斜線效率為 23.5%，總和功率斜線效率為 46.3%。於最大泵浦強度 (20.9 MW/cm^2) 時，信號光最大轉換效率為 16.7%，閒置光最大轉換效率為 16.3%，總和轉換效率為 33.0%。

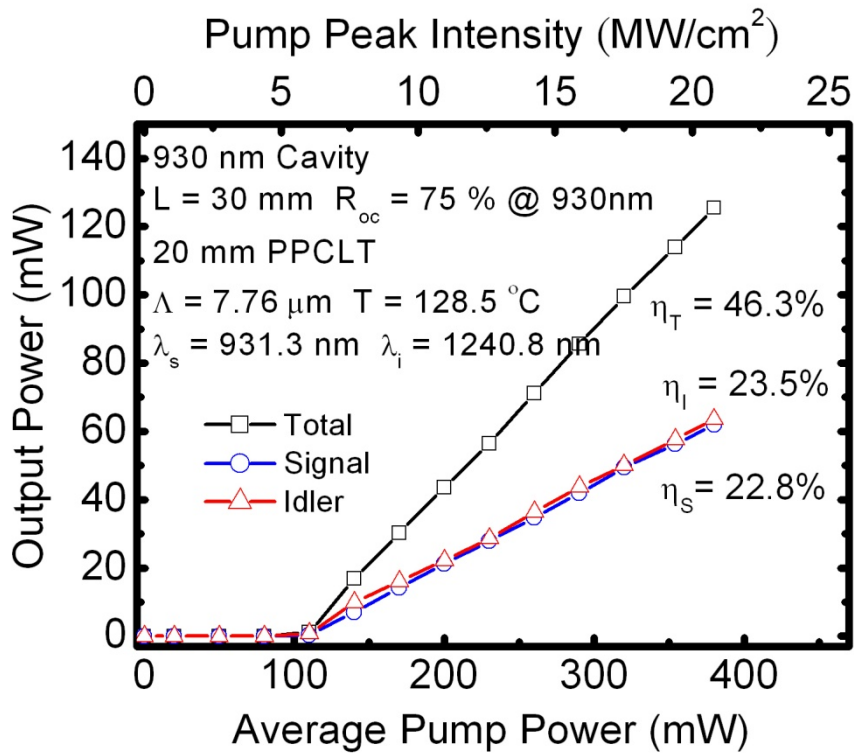


圖 4.6 於 930 nm 共振腔輸出功率與泵浦功率之關係

1260 nm 共振腔

晶體長度 (mm)	溫度 (°C)	信號光波長 (nm)	閒置光波長 (nm)	腔長 (mm)
6	139	1264.3	918.5	31

表 4.4 1260 nm 共振腔特性

圖 4.7 為於 1260 nm 共振腔架構的輸出功率與泵浦功率之關係，20 mm 晶片置於腔長為 31 mm 的共振腔內，操作溫度為 139 °C，輸出信號光之中心波長為 1264.3 nm，閒置光之中心波長為 918.5 nm，上述相關特性列於表 4.5。由圖 4.7 可知，共振腔閾值約為 80 mW (4.4 MW/cm²)，信號光功率斜線效率為 13.9%，閒置光功率斜線效率為 32.5%，總和功率斜線效率為 46.4%。於最大泵浦強度 (20.9 MW/cm²) 時，信號光最大轉換效率為 10.9%，閒置光最大轉換效率為 25.7%，總和轉換效率為 36.6%。

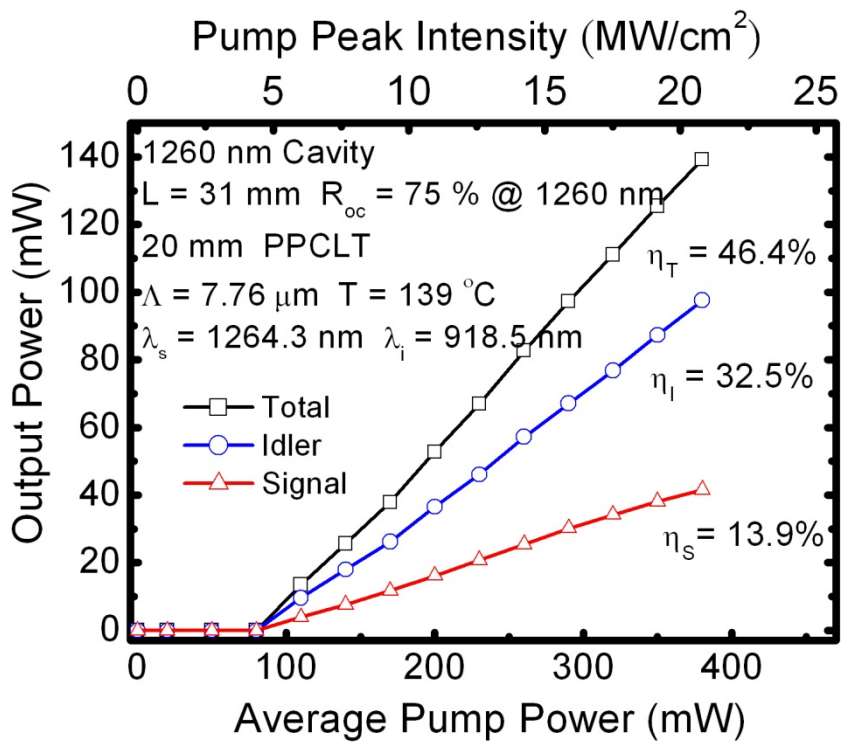


圖 4.7 1260 nm 共振腔輸出功率與泵浦功率之關係

以實驗室架設之光學參量振盪器做為泵浦光源，於最大泵浦強度情況下進行倍頻實驗，相較於小功率，大功率下的波長頻寬較大，由限制波長頻寬外之能量無法有效轉換，侷限住倍頻轉換效率。

4.2 倍頻晶片特性量測

4.2.1 綠光倍頻晶片特性量測

維度	基頻光波長 (nm)	倍頻光波長 (nm)	光柵週期 (μm)	操作溫度 ($^{\circ}\text{C}$)	晶體長度 (mm)
1D	1064	532	7.76	78	6

表 4.5 綠光倍頻雷射晶片規格

一維長度 6 mm 綠光倍頻雷射晶片規格列於表 4.6，設計週期為 7.76 μm ，以 1064 nm 泵浦倍頻 532 nm 綠光，原設計的準相位匹配溫度為 71 $^{\circ}\text{C}$ ，然則實驗中最佳相位匹配溫度為 78 $^{\circ}\text{C}$ ，推測此偏移現象肇因於光罩製作或晶片製程上的誤差所致。此週期恰巧與前述光學參量振盪雷射晶片相同，如圖 4.1 所示可知極區域反轉結構完整。晶片兩端面拋光成鏡面，未鍍抗反射膜。

重複率 (kHz)	脈衝寬度 (ns)	波長頻寬 (nm)	光腰半徑 (μm)	最大泵浦強度 (MW/cm^2)
4	17.2	0.25	60	25.7

表 4.6 綠光倍頻實驗泵浦光源特性

以波長為 1064 nm 的 Nd : YVO₄ 脈衝雷射做為泵浦光源，電流固定在 31 A 下進行單趟路徑之倍頻實驗，泵浦光源特性列於表 4.7，重複率 (repetition rate) 為 4 kHz，脈衝寬度 (pulse duration) 為 17.2 ns，

波長頻寬 (linewidth) 為 0.25 nm，光腰半徑 (beam waist) 為 60 μm ，最大泵浦強度 (peak intensity) 為 25.7 MW/cm^2 。圖 4.8 為倍頻實驗架構，雷射後面放置隔絕器 (isolator) 防止雷射光反射回雷射導致雷射輸出不穩定，再以半波片 (half-wave plate) 與偏光片 (polarizer) 調整泵浦光功率大小，偏光片的極化方向要沿著晶片 Z 軸，以達成 ee-e 方向之準相位匹配。最後再以一焦距為 10 cm 的透鏡將基頻光聚焦至晶片中央。晶片後面置放一鍍有 1064 nm 高反射膜之濾波片，以過濾 1064 nm 基頻光進而萃取 532 nm 之倍頻光。

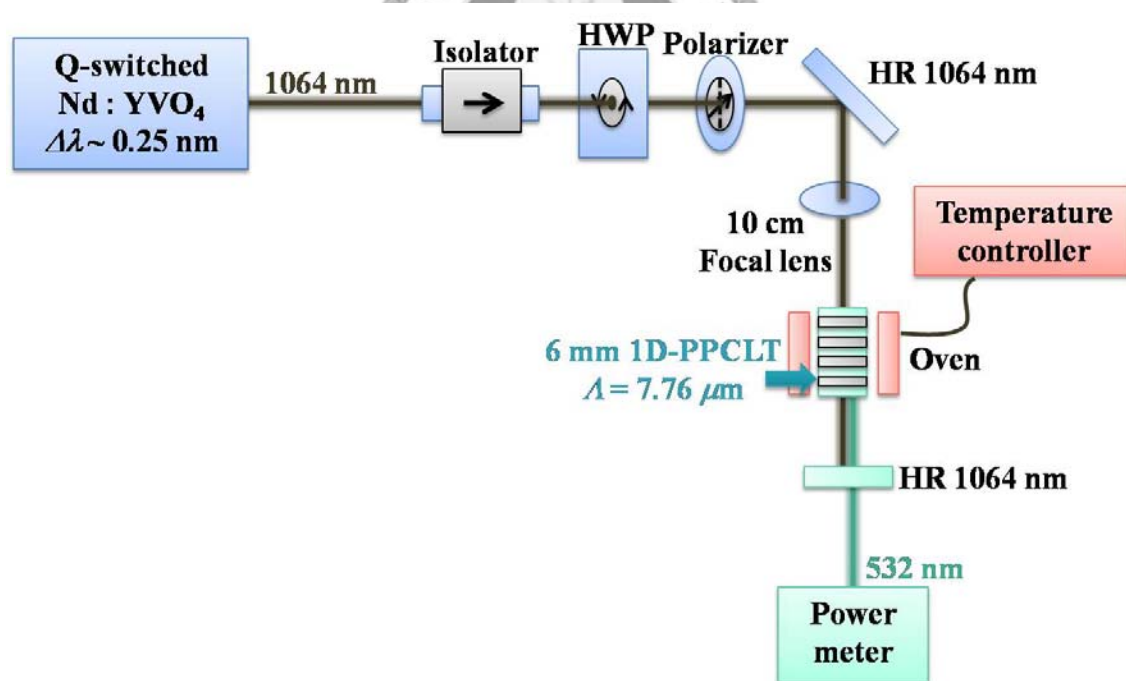


圖 4.8 綠光倍頻實驗架構

欲驗證綠光倍頻晶片之有效長度，惟以小功率量測溫度調變曲線，

如圖 4.9 所示。並以量得曲線之半高寬 ΔT_{FWHM} 反推晶片有效長度 L_{eff} ，以實驗量得之 $\Delta T_{FWHM} \sim 5.2^\circ\text{C}$ ，代入式(4.1)可得 $L_{eff} \sim 6\text{ mm}$ 與晶片長度符合。

$$\Delta T = \frac{1.772\pi}{L \left[\frac{\partial \Delta k}{\partial T} \right]_{T=T_m}} \quad (4.1)$$

以此有效長度以 2.1 節之理論模擬可得一 sinc 型式曲線，由於 ΔT_{FWHM} 不大，因而可與 Δk 近似於正比關係，實驗數據所描繪的曲線可驗證此模擬結果。

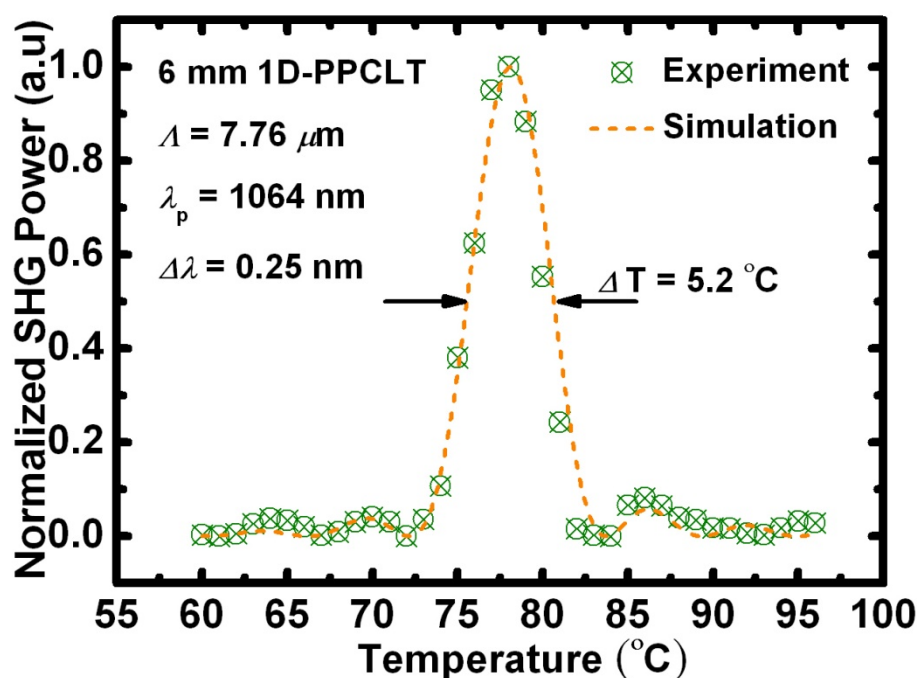


圖 4.9 綠光倍頻晶片溫度調變曲線

當溫度固定時，倍頻轉換效率的波長頻寬將會影響倍頻轉換效率，若泵浦光源頻寬過大，頻寬外的波段則無法有效轉換，致使轉換效率受限。以式(2.20)計算歸一化之倍頻轉換效率與波長之關係求得綠光倍頻波長限制頻寬為 0.4 nm，如圖 4.10 所示。實驗中得知最佳準相位匹配溫度為 78 °C，量測此溫度之波長頻寬約為 0.25 nm 已於晶片可接受波長頻寬範圍內，因而確定頻率可有效轉換。

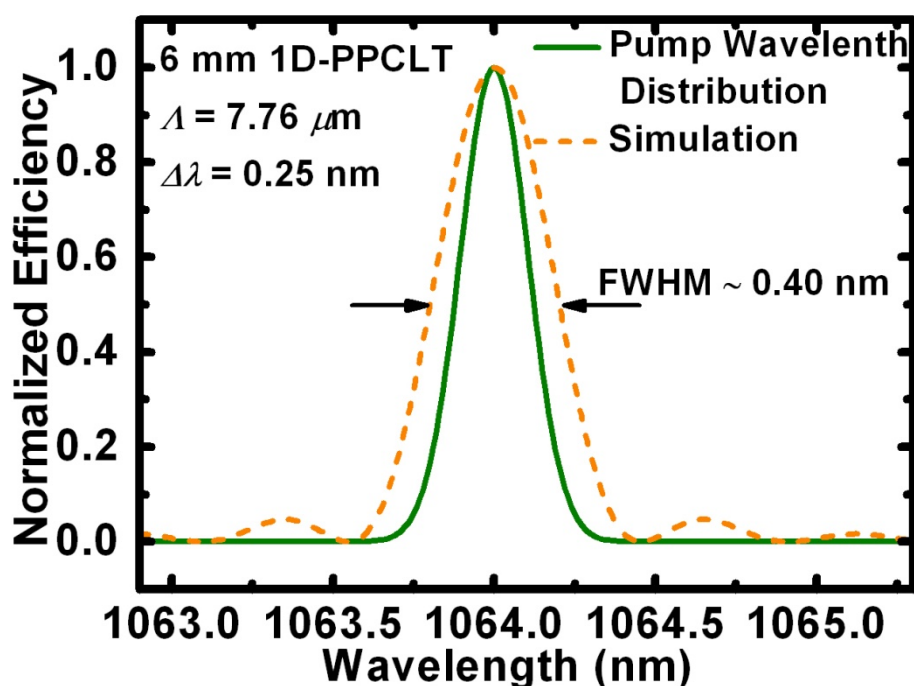


圖 4.10 綠光倍頻泵浦光源波長頻寬圖

將操作溫度固定於最佳相位匹配溫度 78 °C，改變泵浦光源強度，量測之倍頻轉換效率關係如圖 4.11 所示。由圖 4.11 中可知，倍頻光輸

出功率與基頻光功率符合二次曲線之型式；倍頻轉換效率與基頻光強度符合線性正比關係。當基頻光強度為 25.7 MW/cm^2 時，外部轉換效率達到 26 %。隨著基頻光強度增加，曲線會逐漸達到飽和狀態，以倍頻光輸出功率與基頻光強度之關係會趨於線性正比情形；倍頻轉換效率與基頻光強度之關係則會趨於水平線情形。圖 4.11 並無法明顯看出曲線有趨於飽和之情形，若基頻光功率再提升，便可確定轉換效率之飽和情形，然則 100 mW 基頻光功率已達實驗目的之預設功率，即使以更大功率達到更大倍頻轉換效率已無必要。此外，若換算成晶體內部倍頻轉換效率，則需考慮晶體端面之損耗，但此效率型式並無應用價值，以外部倍頻轉換效率為考量點之情況下，量測時基頻光功率並未考慮聚焦鏡之損耗，而倍頻光功率亦未考慮其通過濾波片之損耗，因而外部轉換效率應較高。

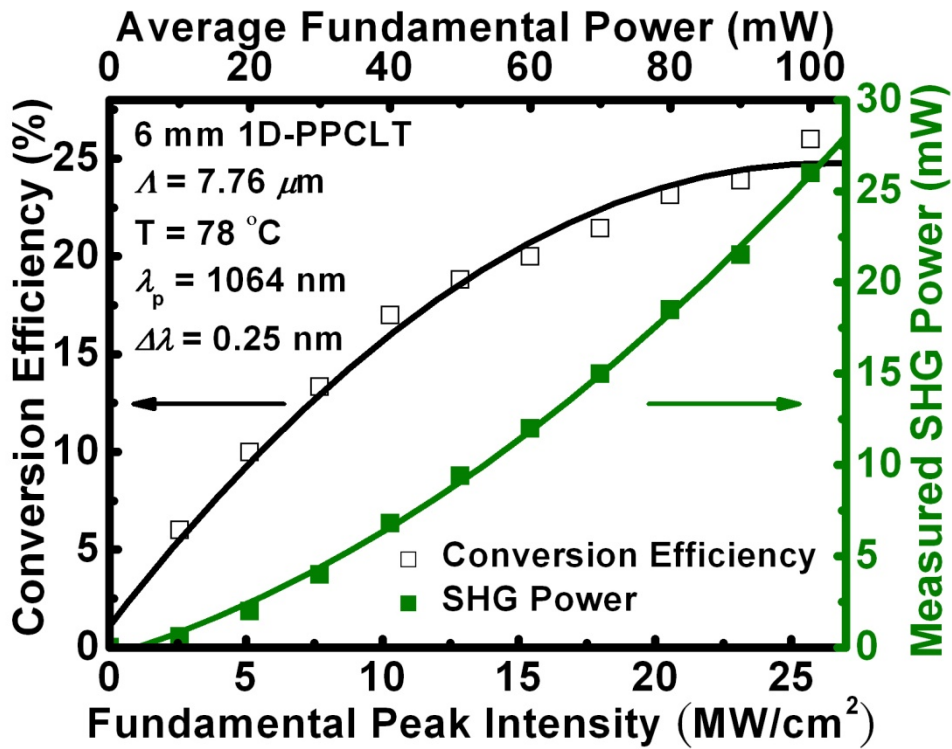


圖 4.11 綠光倍頻轉換效率圖

4.2.2 藍、紅光倍頻晶片特性量測

以自製週期 $7.76 \mu\text{m}$ 之光學參量振盪雷射晶片供其架設，以此可調雷射作為倍頻實驗的為泵浦光源，並進行藍、紅光倍頻晶片特性量測。

藍光倍頻晶片特性量測

維度	基頻光波長 (nm)	倍頻光波長 (nm)	光柵週期 (μm)	操作溫度 ($^{\circ}\text{C}$)	晶體長度 (mm)
1D	930	465	5.15	25	6

表 4.7 藍光倍頻雷射晶片規格

表 4.8 為一維長度 6 mm 藍光倍頻雷射晶片之規格，設計週期為 5.15 μm ，此光柵週期應用於倍頻時所對應之基頻光波長約於 930 nm 之波段。如圖 4.1 所示，極化反轉結構完整貫穿厚度 0.5 mm 之晶片，應可有效做倍頻轉換。晶片兩端面拋光成鏡面，未鍍抗反射膜。

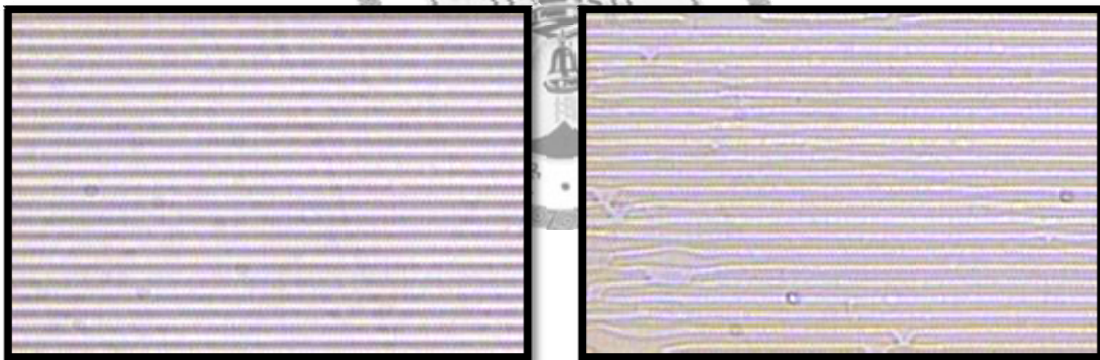


圖 4.12 藍光倍頻雷射晶片

圖 4.13 為藍倍頻實驗架構。以 930 nm 共振腔共振產生的連續可調信號光做為泵浦光源，當信號光於 930 nm 附近時，重複率為 4 kHz，脈衝寬度為 16.8 ns，頻寬約為 2.37 nm，最大功率約為 54 mW (9.1 MW/cm^2)，泵浦光源特性列於表 4.9。使用一焦距為 5 cm 的透鏡將基

頻光聚焦至晶片中央，聚焦後之光腰半徑約為 $75 \mu\text{m}$ ，晶片置於無控溫的夾具中，在室溫下進行倍頻實驗。並於晶片後面放置一鍍有 930 nm 之高反射膜的濾波片，目的為阻擋基頻光，萃取倍頻光並以功率計量其功率。

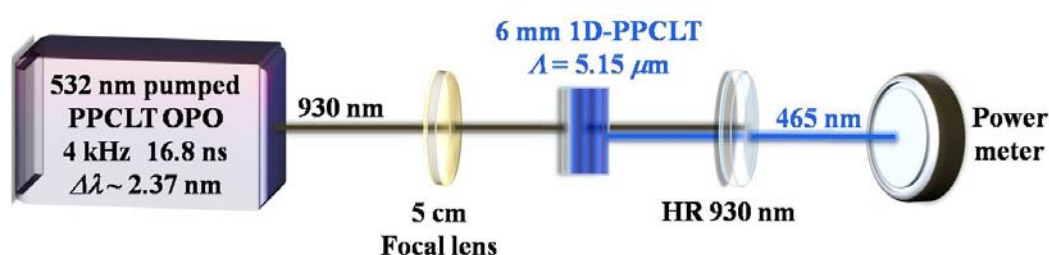


圖 4.13 藍光倍頻實驗架構

重複率 (kHz)	脈衝寬度 (ns)	波長頻寬 (nm)	光腰半徑 (μm)	最大泵浦強度 (MW/cm^2)
4	16.8	2.37	75	9.1

表 4.8 藍光倍頻實驗泵浦光源特性

如圖 4.14 所示，晶片於溫度固定之情況下，以式(2.20)計算歸一化之倍頻轉換效率與波長之關係可得藍光倍頻轉換的波長頻寬限制為 0.21 nm ，而以光學參量振盪器做為泵浦光源，量測可得中心波長於 930 nm 附近時的波長頻寬約為 2.37 nm ，與限制頻寬相差頗劇，由於限制頻寬外的波段無法有效轉換，推測大部份泵浦光源應是被浪費，必然侷限住倍頻轉換效率，若降低泵浦功率，則頻寬亦會減小，效率應可

提高，但倍頻轉換效率正比於泵浦功率，理想情況是趨於飽和之前，以愈大功率泵浦可得較大的倍頻轉換效率，此關係則應可提升轉換效率。

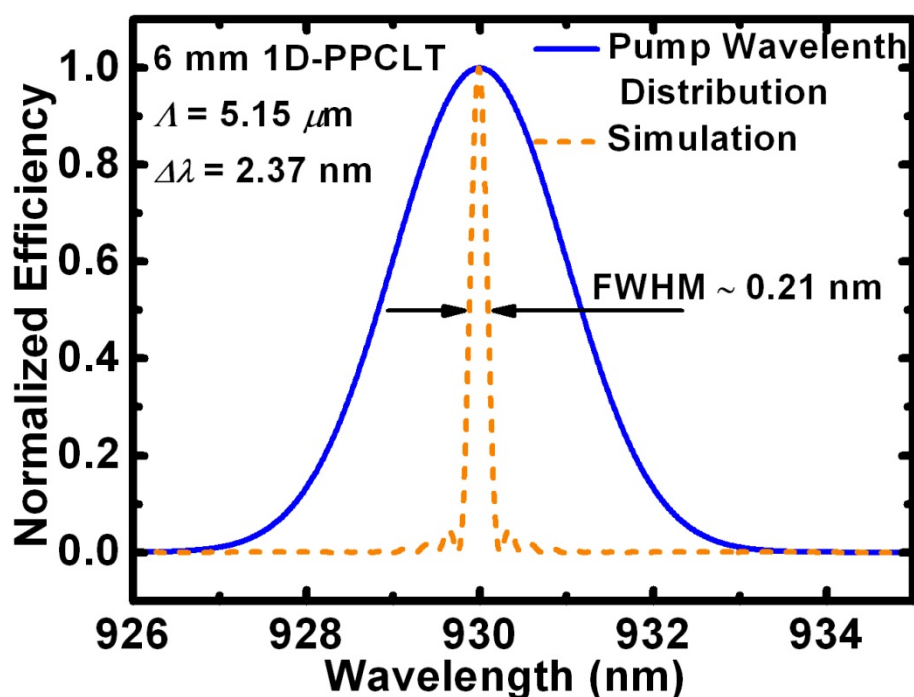


圖 4.14 藍光倍頻泵浦光源波長頻寬圖

圖 4.15 為量測之倍頻轉換效率關係，此為晶片置於室溫下，改變光學參量振盪器出光強度所得。由圖 4.15 中可知，倍頻光輸出功率與基頻光功率符合二次曲線之型式；倍頻轉換效率與基頻光強度符合線性正比關係。當基頻光強度為 9.1 MW/cm^2 時，外部轉換效率僅為 5%，依前述波長頻寬限制導致有效轉換被侷限在小範圍內，此倍頻轉換效

率低落之結果大致預測可得。隨著基頻光強度增加，曲線會逐漸達到飽和狀態，以倍頻光輸出功率與基頻光強度之關係會趨於線性正比情形；倍頻轉換效率與基頻光強度之關係則會趨於水平線情形。圖 4.15 並無法明顯看出曲線有趨於飽和之情形，然則光學參量振盪器於最佳相位匹配溫度下之最大功率為 54 mW 已無法再提升，若基頻光功率可再提升，便可確定轉換效率之飽和情形。若考慮基頻光經過聚焦鏡之損耗，則打入倍頻晶片之基頻光功率應無法到達量得之值，而倍頻光通過濾波片亦有損耗，倍頻晶片轉換輸出之功率應不僅於量得之值，故外部轉換效率應可再提高。



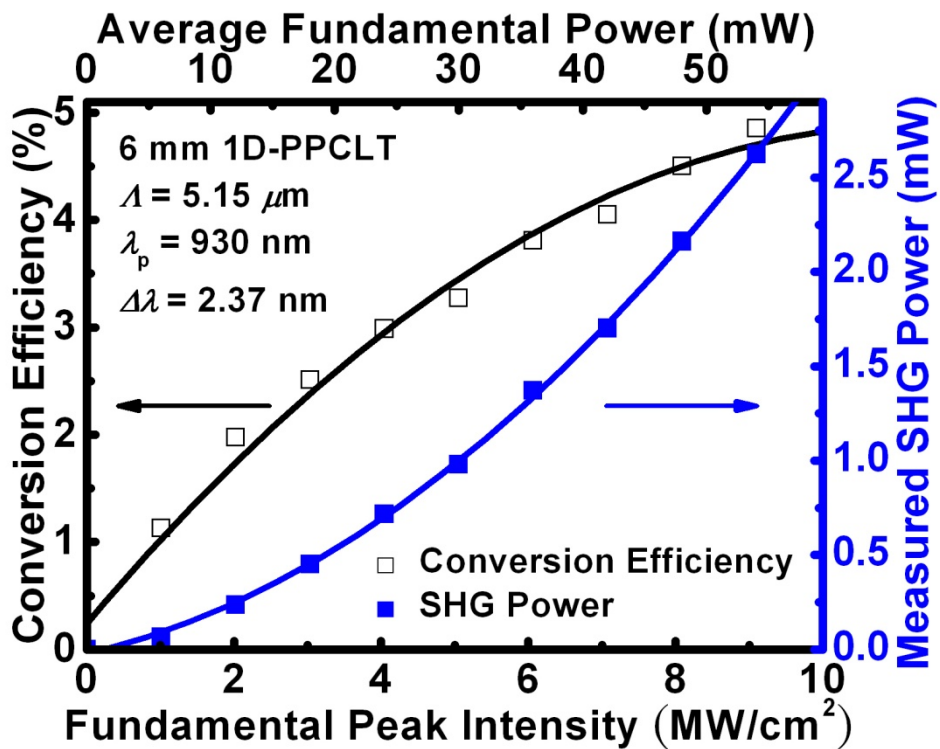


圖 4.15 藍光倍頻轉換效率圖

紅光倍頻晶片特性量測

維度	基頻光波長 (nm)	倍頻光波長 (nm)	光柵週期 (μm)	操作溫度 ($^{\circ}\text{C}$)	晶體長度 (mm)
1D	1260	630	12.78	25	6

表 4.9 紅光倍頻雷射晶片規格

12.78 μm 之週期應用於倍頻時所對應之基頻光波長約於 1260 nm 之波段，紅光倍頻實驗所量測之晶片為一維長度 6 mm 紅光倍頻雷射晶片，其規格列於表 4.9。此週期屬較大之線寬，可直接以光阻製程研製

出完整之週期性極化反轉結構，如圖 4.15 所示。以此接近於 1:1 之結構，應可做有效的頻效轉換。晶片兩端面拋光成鏡面，未鍍抗反射膜。

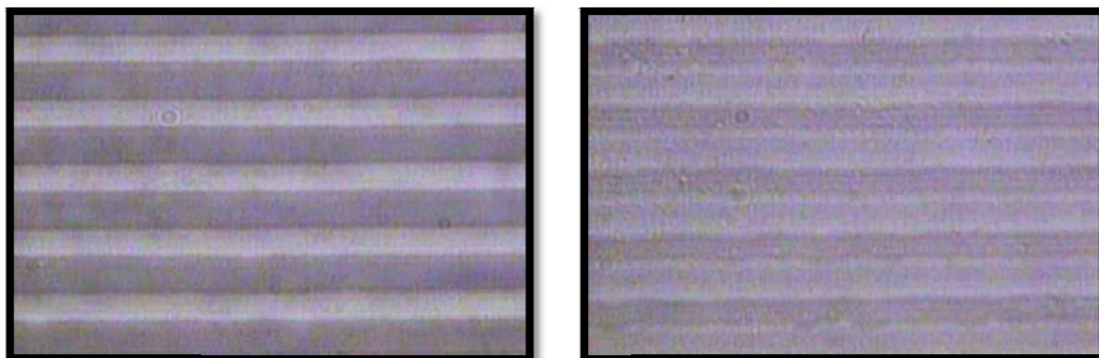


圖 4.16 紅光倍頻雷射晶片

以 1260 nm 共振腔共振產生的連續可調信號光做為泵浦光源，圖 4.17 為紅光倍頻實驗架構。當信號光於 1260 nm 附近時，重複率為 4 kHz，脈衝寬度為 17.2 ns，頻寬約為 4.6 nm，最大功率約為 37.8 mW (9.7 MW/cm²)，泵浦光源特性列於表 4.11。使用一焦距為 5 cm 的透鏡將基頻光聚焦至晶片中央，聚焦後之光腰半徑約為 60 μm，晶片置於無控溫的夾具中，在室溫下進行倍頻實驗。並於晶片後面放置一鍍有 1260 nm 之高反射膜的濾波片，目的為阻擋基頻光，萃取倍頻光並以功率計量其功率。

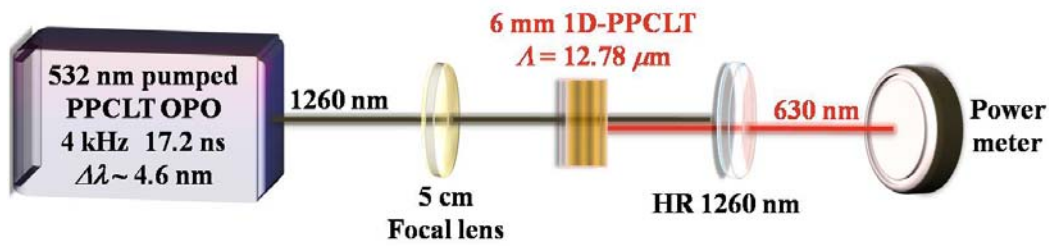


圖 4.17 紅光倍頻實驗架構

重複率 (kHz)	脈衝寬度 (ns)	波長頻寬 (nm)	光腰半徑 (μm)	最大泵浦強度 (MW/cm^2)
4	17.2	4.6	70	7.1

表 4.10 紅光倍頻實驗泵浦光源特性

固定晶片溫度於室溫，如圖 4.18 所示，以式(2.20)計算歸一化之倍頻轉換效率與波長之關係可得紅光倍頻轉換的波長頻寬限制為 0.90 nm，光學參量振盪器做為泵浦光源量測得知，中心波長於 1260 nm 附近時的波長頻寬約為 4.6 nm，較之前 930 nm 波段之頻寬 2.37 nm 又提高許多，雖則紅光限制頻寬較鬆，泵浦光源之頻寬亦大範圍落於限制頻寬外，以致於仍有部份泵浦光源應是被浪費，倍頻轉換效率之低落可預見。若降低泵浦功率，則頻寬亦會若能降低泵浦光源之波長頻寬，應可提升轉換效率。

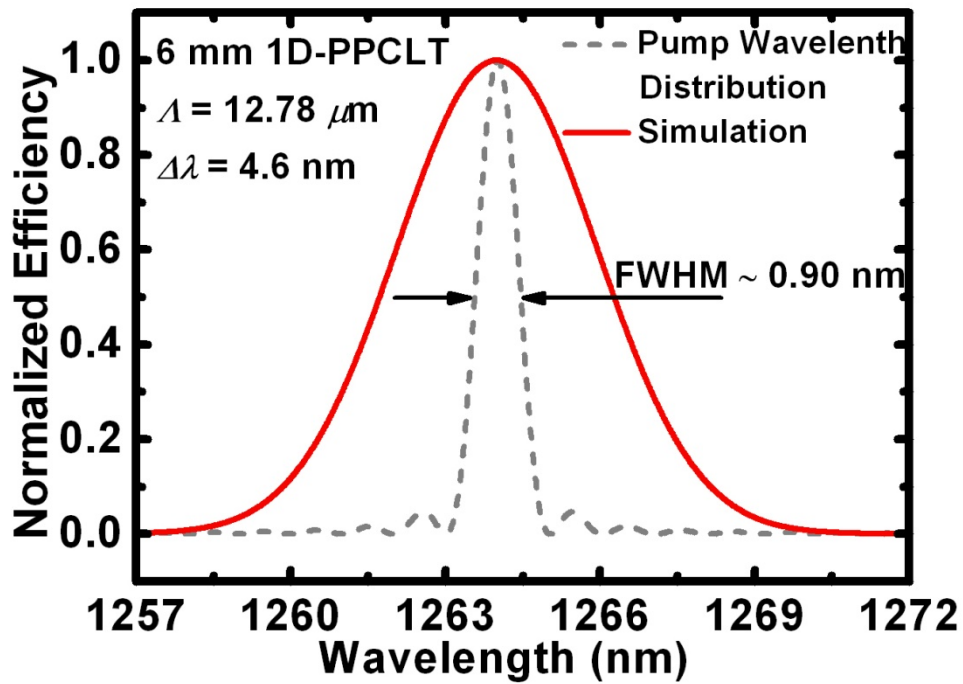


圖 4.18 紅光倍頻泵浦光源波長頻寬圖

於室溫下改變泵浦光源強度，量測之倍頻轉換效率關係如圖 4.19 所示。由圖 4.19 中可知，倍頻光輸出功率與基頻光功率符合二次曲線之型式；倍頻轉換效率與基頻光強度符合線性正比關係。當基頻光強度為 7.1 MW/cm^2 時，外部轉換效率達到 4.7 %。

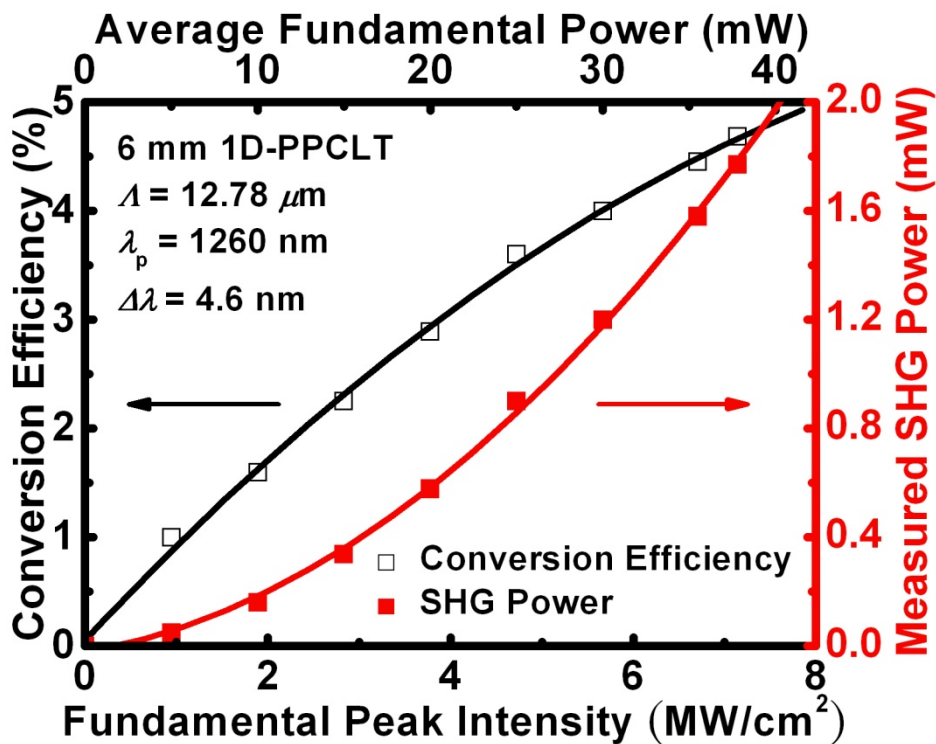


圖 4.19 紅光倍頻轉換效率圖

隨基頻光強度增加，曲線將會逐漸呈現飽和。圖 4.19 並無法明顯看出曲線有趨於飽和之情形，然則以光學參量振盪器做為泵浦光源所能供予的最大功率為 37.8 mW，若基頻光功率再提升，便可確定轉換效率之飽和情形。

4.3 光學實驗討論

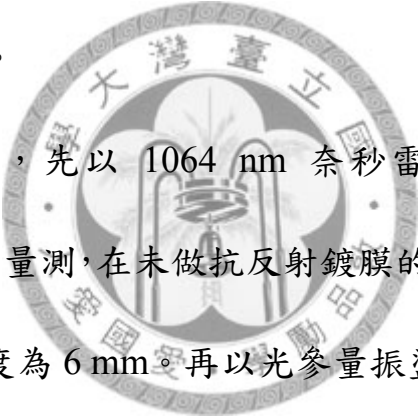
以長度 6 mm 光學參量振盪雷射晶片可達成共振並出光，是為證明晶片的週期性極化反轉結構應具有良好的均勻性。然則與以同厚度 0.5 mm 同長度 20 mm 的 PPMgSLT 相較之下，謹以”Green-pumped high-power optical parametric oscillator based on periodically poled MgO-doped stoichiometric LiTaO₃,” *OPTICS LETTERS* Vol.31(24), 2006⁵⁰ 為例，唯有在共振閾值上略勝一疇。PPCLT 的共振腔閾值，其 930 nm 共振腔為 6 MW/cm²，1260 nm 共振腔為 4.4 MW/cm²；PPMgSLT 的共振腔閾值通為 7 MW/cm²。PPCLT 出光的頻寬較廣，應可利用此一特性發展寬頻研究。

泵浦光源頻寬實為影響倍頻轉換效率一大因素，以綠光倍頻實驗可得知，若泵浦光源之頻寬於限制頻寬範圍內，則可有效轉換。而以 PPCLT 的晶片特性，光學參量振盪器的出光頻寬皆大於限制頻寬數倍以上，以致於無法有效利用泵浦波長以達成高效能倍頻轉換效率。

第五章 結論與未來展望

5.1 結論

我們以鎳擴散機制於鉬酸鋰晶片+Z 面有效的定義出週期性結構，配合精確的成核時間控制，成功製作出厚度 0.5 mm 的紅、綠、藍光倍頻雷射晶片以及週期為 7.76 / 4.49 μm 之級聯雷射晶片，上述結構皆可達有效長度 20 mm。高良率的 PPCLT 晶片，可應用於光參量振盪器之架設研究與倍頻實驗。



光學量測的部分，先以 1064 nm 奈秒雷射進行週期 7.76 μm 1D-PPCLT 的綠光倍頻量測，在未做抗反射鍍膜的情況下已有高達 26 % 的出光效率且有效長度為 6 mm。再以光參量振盪器為泵浦光源，測量並分析藍、紅光倍頻轉換效率。相較於倍頻限制波長頻寬，以光參量振盪器為泵浦光源的出光波長頻寬實為過大，導致無法有效轉換入射頻率，倍頻轉換效率因而受限。然則經由實驗得知，以結合光參量振盪與藍光倍頻的級聯結構可增加倍頻限制波長頻寬的範圍，倍頻轉換效率因而幅提升。

5.2 未來展望

結合光參量振盪與倍頻過程的級聯結構可有效提升倍頻轉換效率，若以商業化的半導體紅光雷射做為泵浦光源，利用級聯結構的二階段頻率轉換，應可達成高經濟效益之綠、藍光雷射。

此外，由於鐳擴散機制可有效侷限鉍酸鋰晶片+Z面的週期性結構，對於更小線寬之突破，如紫外光領域之拓展實有發揮的可能性。佐以間隔性的週期性結構，侷部性均勻化，應可達成倍頻紫外光之理念。



參考文獻

-
- [1] www.expo2005.or.jp.
- [2] www.cnet.com.au, "Laser TV unveiled in Australia," Oct 11th 2006.
- [3] www.engadgethd.com, "LaserVue it is!," Apr 7th 2008.
- [4] www.microvision.com.
- [5] www.dlp.com.
- [6] www.explay.co.il.
- [7] T. H. Maiman, "Stimulated Optical Emission in Ruby," *Journal of the Optical Society of America*, Vol. 50, pp. 1134-1134, 1960.
- [8] www.engadget.com.
- [9] P. A. Franken, G. Weinreich, C. W. Peters, and A. E. Hill, "Generation of Optical Harmonics," *Physical Review Letters*, Vol. 7, pp. 118-119, 1961.
- [10] J. A. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing, and P. S. Pershan, "Interactions between Light Waves in a Nonlinear Dielectric," *Physical Review*, Vol. 127, pp. 1918-1939, 1962.
- [11] V. Berger, "Nonlinear photonic crystals," *Physical Review Letters*, Vol. 81, pp. 4136-4139, 1998.
- [12] www.novalux.com
- [13] Hong Ky Nguyen, M.H. Hu, N. Nishiyama, N.J. Visovsky, Yabo Li, Kechang Song, Xingsheng Liu, J. Gollier, L.C. Hughes, R. Bhat, and Chung-En Zah, "107-mW low-noise green-light emission by frequency doubling of a reliable 1060-nm DFB semiconductor laser diode," *IEEE Journal of Quantum Electron*, Vol 18(5), pp. 682-684, 2006.
- [14] V. Gopalan, N. Sanford, J. A. Aust, K. Kitamura and Y. Furukawa, "Handbook of Advanced Electronic and Photonic Materials," *Academic Press*, pp. 62, 2001.
- [15] V. Gopalan, K. Kitamura, and Y. Furukawa, "Domain reversal and wall structure of 180o ferroelectric domains in LiTaO₃ crystals," *FUNDAMENTAL PHYSICS OF FERROELECTRICS 2000: Aspen Center for Physics Winter Workshop. AIP Conference Proceedings*, Vol. 535, pp. 183-190, 2000.

-
- [16] K. Kitamura, Y. Furukawa, S. Takekawa, T. Hatanaka, H. Ito, and V. Gopalan, "Non-stoichiometric control of LiNbO₃ and LiTaO₃ in ferroelectric domain engineering for optical devices," *Ferroelectrics*, Vol. 257, pp. 235-243, 2001.
- [17] Y. Liu, S. Kurimura, M. Nakamura, S. Takekawa, and K. Kitamura, "Effective aperture in periodically poled Mg-doped stoichiometric LiTaO₃ for quasi-phase-matched optical parametric oscillation," *Japanese Journal of Applied Physics*, Vol. 45, pp. 4064-4067, 2006.
- [18] X. Liu, K. Kitamura, K. Terabe, and S. Takekawa, "Stabilization of periodically poled domain structures in a quasiphase-matching device using near-stoichiometric LiTaO₃," *Journal of Applied Physics*, Vol. 102, 2007.
- [19] L. H. Peng, Y. J. Shih, and Y. C. Zhang, "Restrictive domain motion in polarization switching of lithium niobate," *Applied Physics Letters*, Vol. 81, pp. 1666, 2002.
- [20] S. Thaniyavarn, T. Findakly, D. Booher, and J. Moen, "Domain inversion effects in Ti-LiNbO₃ integrated optical devices," *Applied Physics Letters*, Vol. 46, pp. 933, 1985.
- [21] 陳威霖, "鎳擴散式鉭酸光波導之研製," 國立台灣大學光電工程學研究所博士論文, 1995
- [22] 吳振弘, "鉍酸鋰準相位匹配二倍頻元件之研製," 國立台灣大學光電工程學研究所碩士論文, 1996.
- [23] 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 Electron*, Vol. 30, pp. 2953, 1994.
- [24] I. Camlibel, "Spontaneous polarization measurements in several ferroelectric oxides using a pulsed-field method," *Journal of Applied Physics*, Vol. 40, pp. 1690, 1969.
- [25] L. E. Myers, R. C. Eckardt, M. M. Fejer, and R. L. Byer, "Quasi-phase-matched optical parametric oscillators in bulk periodically poled LiNbO₃," *Journal of the Optical Society of America B*, Vol. 12, pp. 2102, 1995.
- [26] K. Mizuuchi and K. Yamamoto, "Harmonic blue light generation in bulk periodically poled LiTaO₃," *Applied Physics Letters*, Vol. 66, pp. 2943, 1995.
- [27] Peng, L. H., Tseng, Y. P., Lin, K. L., Huang, Z. X., Huang, C. T., Kung, and A. H., "Depolarization field mitigated domain engineering in nickel diffused lithium tantalate,"

Applied Physics Letters, Vol. 92, 2008.

[28] 盧昶伸, “準相位匹配鋯酸鋰光學參量振盪器之研究,” 國立台灣大學光電工程學研究所碩士論文, 2007.

[29] 楊順涵, “腔內倍頻準相位匹配綠光雷射之研究,” 國立台灣大學光電工程學研究所碩士論文, 2007.

[30] J. A. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing, and P. S. Pershan, “Interactions between Light Waves in a Nonlinear Dielectric,” *Physical Review*, Vol. 127, pp. 1918-1939, 1962.

[31] V. Berger, “Nonlinear photonic crystals,” *Physics Review Letters*, Vol. 81, pp. 4136, 1998.

[32] R. Newman, “Excitation of the Nd^{3+} fluorescence in CaWO_4 by recombination radiation in GaAs,” *Journal of Applied Physics*, Vol. 34, pp. 437, 1963.

[33] Meyn, J. P. 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.

[34] R. C. Miller and G. Weinreich, “Mechanism for the Sidewise Motion of 180° Domain Walls in Barium Titanate,” *Physical Review*, vol. 117, pp. 1460-1466, 1960.

[35] G. D. Miller, “Periodically Poled Lithium Niobate: Modeling, Fabrication, and Nonlinear-Optical Performance,” 1998.

[36] 林立峰, “摻氧化鋅鋯酸鋰二維非線性光子晶體之研究,” 國立台灣大學光電工程學研究所碩士論文, 2005.

[37] 張永昌, “鋯酸鋰準相位匹配倍頻轉藍、綠光雷射之研製,” 國立台灣大學光電工程學研究所碩士論文, 2001.

[38] 陳逸豪, “利用鋯酸鋰一維非線性光子晶體產生光參共振可調波長雷射光源之研究,” 國立台灣大學光電工程學研究所碩士論文, 2006.

[39] 房宜激, “高電壓導致鋯酸鋰區域反轉之研究,” 國立台灣大學光電工程學研究所碩士論文, 1998.

[40] 林宜慶, “高電壓致鋯酸鋰小週期極化反轉與動力學研究,” 國立台灣大學光電工程學研究所碩士論文, 1999.

[41] L. E. Myers, R. C. Eckardt, M. M. Fejer, and R. L. Byer, “Quasi-phase-matched

optical parametric oscillators in bulk periodically poled LiNbO₃,” *Journal of the Optical Society of America B*, Vol.12, pp. 2102, 1995.

[42] S. Nagano, M. Konishi, T. Shiomi, and M. Minakata, “Study on formation of small polarization domain inversion for high-efficiency quasi-phase-matched second-harmonic generation device,” *Japanese Journal of Applied Physics*, Vol. 42, pp. 4334, 2003.

[43] 史毅駿, “鉍酸鋰二維非線性光子晶體之研製,” 國立台灣大學光電工程學研究所碩士論文, 2002.

[44] Peng, L. H., Shih, Y. C., Tsan, S. M., and Hsu, C. C., “Mitigation of transverse domain growth in two-dimensional polarization switching of lithium niobate,” *Applied Physics Letters*, vol. 81, No.27, pp. 5210-5212, 2002

[45] 陳贊元, “週期性極化反轉鉍酸鋰的研究與製作,” 國立台灣大學光電工程學研究所碩士論文, 2000.

[46] 林威呈, “利用高介電係數材料與高溫製程作二維非線性光子晶體,” 國立台灣大學光電工程學研究所碩士論文, 2004.

[47] 林承德, “利用鉍酸鋰二維非線性光子晶體倍頻產生紅、綠、藍雷射光源之研究,” 國立台灣大學光電工程學研究所碩士論文, 2006.

[48] M. Büttiker, R. Landauer, “Nucleation Theory of Overdamped Soliton Motion,” *Physical Review Letters*, vol 43(20), pp.1453-1456, 1979.

[49] 林耀東, “鉍酸鋰非線性光子晶體雷射與其高溫製程,” 國立台灣大學光電工程學研究所碩士論文, 2003.

[50] Shih-Yu Tu, A. H. Kung, Z. D. Gao, S. N. Zhu, S. Kurimura, and K. Kitamura, “Green-pumped high-power optical parametric oscillator based on periodically poled MgO-doped stoichiometric LiTaO₃,” *Optics Letters*, Vol. 31(24), pp. 3632-3634, 2006.

I would spread the cloths under your feet:
But I, being poor, have only my dreams;
I have spread my dreams under your feet;
Tread softly because you tread upon my dreams.

W. B. Yeats