ETH zürich

ETH Library

The Electro-Optic Frequency Response of Barium Titanate and Lithium Niobate

Doctoral Thesis

Author(s):
Chelladurai, Daniel

Publication date:
2024

Permanent link:
https://doi.org/https://doi.org/10.3929/ethz-b-000668626

This page was generated automatically upon download from the ETH Zurich Research Collection.
For more information, please consult the Terms of use.

DISS. ETH NO. 30095

THE ELECTRO-OPTIC FREQUENCY RESPONSE OF BARIUM TITANATE AND LITHIUM NIOBATE

A thesis submitted to attain the degree of

DOCTOR OF SCIENCES

(Dr. sc. ETH Zurich)

presented by

DANIEL CHELLADURAI

MSc ETH in Micro and Nanosystems, ETH Zurich

born on 03.10.1991

Accepted on the recommendation of

Prof. Dr. Juerg Leuthold, examiner

Prof. Dr. Camille-Sophie Brès, co-examiner

2024

Abstract

We live in a world of electromagnetism, constantly surrounded by light waves. It is human nature to want to control our environment, so our desires to harness the power of light should come without surprise. Attempts to control light can be traced with certainty at least as far back as ancient Greece with the first lenses. However, technologies to manipulate light have only truly taken off after the 19th century when James Clerk Maxwell and Oliver Heaviside ignited the modern electromagnetic theory of light with the famous Maxwell's equations.

In today's word, light is controlled in a multitude of ways. With the rise of microchip technology, perhaps no method is more promising than using electrical signals at the micro- and nanoscales. This combination of electronics and light – or optics – is known as electro-optics and it forms the basis for a variety of essential technologies in the world today. The internet is probably the most well-known example, where a massive network of fiber optic cables that run along the ocean floor connects the world by transmitting incomprehensible amounts of data. Electro-optics is responsible for the vital step of taking information carried by electrical signals generated from computers and converting it to information carried by light waves. Electro-optics is also poised to have an outsized influence in the technologies of tomorrow. It is expected to play crucial roles in quantum computing, augmented and virtual realities, as well as computer vision for artificial intelligence and self-driving cars.

At the heart of electro-optics are special materials that change their properties in response to electrical signals. These so-called nonlinear or electro-optic materials come in many shapes and forms, each with their own unique electro-optic properties. Two of the most important properties are the permittivity and the Pockels coefficient. They define how efficiently a material can manipulate light. But how can one determine these electro-optic properties for a material? How does one choose which material to use for a particular application? These are just a few of the questions that are central to this thesis.

The work presented here focuses on two of the most important electro-optic materials: lithium niobate (LN) and barium titanate (BTO). LN has long been used in commercial electro-optic devices, but BTO has recently emerged as a candidate to supplant LN. However, there has remained some shroud of mystery surrounding BTO's electro-optic properties, particularly when it comes to how these properties change depending on the frequency of the electrical signals.

For the first time, this shroud has been lifted with the results in this thesis. The permittivity and Pockels coefficient in LN and BTO have been characterized over an unprecedentedly large frequency range that spans from MHz to sub-THz. Most importantly, it covers a range where the electro-optic properties in BTO have an unusually strong frequency dependence. LN is shown to have constant values across this frequency range for both the permittivity (ε = 27) and for the Pockels coefficients (r_{42} = 15 pm/V, r_{33} = 27 pm/V). BTO, on the other hand, is shown to have remarkably high values for the permittivity and Pockels coefficients but with an astonishing frequency dependence (ε = 1136, r_{42} = 481 pm/V, r_{33} = 125 pm/V at 100 MHz, ε = 453, r_{42} = 191 pm/V, r_{33} = 60 pm/V at 330 GHz). The previous uncertainty with respect to the frequency response is one reason why the development of high-bandwidth devices based on BTO has lagged behind those based on LN. This is despite the fact that the Pockels coefficients of BTO are still larger than LN at high frequencies. The availability of these fundamental material parameters that are a result of the work here will help to close that gap.

The method for characterizing the electro-optic properties is another significant achievement of this thesis. The method presented here is exceptionally broadband, capable of determining these material parameters over many orders of magnitude in frequency. It relies on specialized devices in photonic integrated circuits that were developed as a part of this thesis for the explicit purpose of highly accurate characterization. Based on hybrid gap plasmon waveguides, these devices have characteristics that are uniquely suited for the task.

Even though these devices were developed for characterization, they can also be used for optical communications. In another world-first demonstration, the hybrid gap plasmon waveguide structure has been used to transmit data at rates up to 200 Gbit/s. Further improvements on this first prototype promise even higher speeds.

Finally, another type of hybrid plasmonic waveguide was investigated in this thesis too, in an attempt to reduce the losses related to plasmonic waveguides. A metal-insulator-semiconductor (MIS) hybrid plasmonic structure can be used as a compromise between the strong electric field confinement of a plasmonic slot and the low optical losses of a photonic waveguide. Still, the large mismatch between the size of photonic and plasmonic waveguide modes leads to large conversion losses at the interface between the two. As part of this thesis, a directional coupler was developed to transition between photonic and hybrid plasmonic waveguides with a record 94% efficiency.

This thesis is organized as follows:

- **Chapter 1** introduces electro-optics and the significant role it plays in the technologies of the past, present and future. It discusses the importance of electro-optic materials and why their efficiency might have a frequency dependence. It also gives a history of the efforts to determine the electro-optic properties of the materials in the title of this thesis, lithium niobate and barium titanate. Finally, it summarizes the achievements of this thesis towards advancing our knowledge of electro-optic material properties and how to characterize them.
- **Chapter 2** lays out the theoretical basis for the later chapters including the mathematical framework for the Pockels effect, the concept of hybrid gap plasmon waveguides, phase modulation for electro-optic characterization, and impedance characterization using a vector network analyzer.

- **Chapter 3** presents the primary results of this thesis: the experimental results for the permittivity and the Pockels coefficients in barium titanate and lithium niobate. This chapter also goes into depth about the novel method that was developed for electro-optic characterization and is applicable to any electro-optic material.
- **Chapter 4** contains the first demonstration of a high-speed electro-optic modulator based on the hybrid gap plasmon waveguide concept. It shows how the same type of phase shifter that was used for electro-optic characterization can also be used to transmit data at rates up to 200 Gbit/s.
- **Chapter 5** includes work on a different and more conventional type of hybrid plasmonic waveguide for photonic integrated circuits. Here, a directional coupler was developed to couple light into a hybrid plasmonic waveguide with an efficiency of 94%.
- **Chapter 6** summarizes the achievements of this thesis with an outlook towards future developments that would benefit from the ideas and results in this work.

Zusammenfassung

Wir leben in einer Welt des Elektromagnetismus, ständig umgeben von Lichtwellen. Es liegt in der menschlichen Natur, unsere Umwelt kontrollieren zu wollen, sodass unsere Wünsche, die Macht des Lichts zu nutzen, nicht überraschend sein sollten. Versuche, Licht zu kontrollieren, lassen sich mit Sicherheit mindestens bis ins antike Griechenland mit den ersten Linsen zurückverfolgen. Allerdings haben Technologien zur Manipulation von Licht erst nach dem 19. Jahrhundert wirklich Fahrt aufgenommen, als James Clerk Maxwell und Oliver Heaviside die moderne elektromagnetische Theorie des Lichts mit den berühmten Maxwell-Gleichungen entfachten.

In der heutigen Welt wird Licht auf vielfältige Weise kontrolliert. Mit dem Aufstieg der Mikrochip-Technologie ist vielleicht keine Methode vielversprechender als die Nutzung elektrischer Signale im Mikro- und Nanobereich. Diese Kombination aus Elektronik und Licht – oder Optik – wird als Elektro-Optik bezeichnet und bildet die Grundlage für eine Vielzahl wesentlicher Technologien in der heutigen Welt. Das Internet ist wahrscheinlich das bekannteste Beispiel, bei dem ein riesiges Netzwerk von Glasfaserkabeln, die entlang des Meeresbodens verlaufen, die Welt durch die Übertragung unvorstellbarer Datenmengen verbindet. Elektro-Optik ist verantwortlich für den entscheidenden Schritt, Informationen, die durch elektrische Signale von Computern übertragen werden, in Informationen umzuwandeln, die durch Lichtwellen getragen werden. Elektro-Optik wird auch in den Technologien von morgen eine bedeutende Rolle spielen. Es wird erwartet, dass sie entscheidende Rollen in der Quantencomputing, der erweiterten und virtuellen Realität sowie in der Computer Vision für künstliche Intelligenz und selbstfahrende Autos spielen wird.

Im Herzen der Elektro-Optik stehen spezielle Materialien, die ihre Eigenschaften als Reaktion auf elektrische Signale ändern. Diese sogenannten nichtlinearen oder elektro-optischen Materialien gibt es in vielen Formen, jede mit ihren eigenen einzigartigen elektro-optischen Eigenschaften. Zwei der wichtigsten Eigenschaften sind die Permittivität und

der Pockels-Koeffizient. Sie definieren, wie effizient ein Material Licht manipulieren kann. Aber wie kann man diese elektro-optischen Eigenschaften eines Materials bestimmen? Wie wählt man das geeignete Material für eine bestimmte Anwendung aus? Dies sind nur einige der Fragen, die im Mittelpunkt dieser Arbeit stehen.

Die hier vorgestellte Arbeit konzentriert sich auf zwei der wichtigsten elektro-optischen Materialien: Lithiumniobat (LN) und Bariumtitanat (BTO). LN wird seit langem in kommerziellen elektro-optischen Geräten verwendet, aber BTO hat sich kürzlich als Kandidat herausgestellt, um LN abzulösen. Dennoch blieb eine gewisse Unklarheit über die elektro-optischen Eigenschaften von BTO, insbesondere hinsichtlich der Frage, wie sich diese Eigenschaften in Abhängigkeit von der Frequenz der elektrischen Signale ändern.

Zum ersten Mal wurde diese Unklarheit mit den Ergebnissen dieser Arbeit beseitigt. Die Permittivität und der Pockels-Koeffizient in LN und BTO wurden über einen beispiellos großen Frequenzbereich charakterisiert, der von MHz bis Sub-THz reicht. Am wichtigsten ist, dass dieser Bereich eine Frequenz abdeckt, in der die elektro-optischen Eigenschaften von BTO eine ungewöhnlich starke Frequenzabhängigkeit aufweisen. Es wurde gezeigt, dass LN über diesen Frequenzbereich hinweg konstante Werte für sowohl die Permittivität (ε = 27) als auch für die Pockels-Koeffizienten (r_{42} = 15 pm/V, r_{33} = 27 pm/V) aufweist. BTO hingegen zeigt bemerkenswert hohe Werte für die Permittivität und die Pockels-Koeffizienten, jedoch mit einer erstaunlichen Frequenzabhängigkeit (ε = 1136, r_{42} = 481 pm/V, r_{33} = 125 pm/V bei 100 MHz, ε = 453, r_{42} = 191 pm/V, r_{33} = 60 pm/V bei 330 GHz). Die bisherige Unsicherheit hinsichtlich der Frequenzabhängigkeit ist ein Grund dafür, dass die Entwicklung von Hochbandbreitengeräten auf Basis von BTO hinter denen auf Basis von LN zurückgeblieben ist. Dies obwohl die Pockels-Koeffizienten von BTO auch bei hohen Frequenzen größer als die von LN sind. Die Verfügbarkeit dieser grundlegenden Materialparameter, die aus der Arbeit hier resultieren, wird dazu beitragen, diese Lücke zu schließen.

Die Methode zur Charakterisierung der elektro-optischen Eigenschaften ist ein weiterer bedeutender Erfolg dieser Arbeit. Die hier vorgestellte Methode ist außerordentlich breitbandig und in der Lage, diese Materialparameter über viele Größenordnungen in der Frequenz zu bestimmen. Sie basiert auf spezialisierten Geräten in photonischen integrierten Schaltkreisen, die im Rahmen dieser Arbeit speziell für die hochgenaue Charakterisierung entwickelt wurden. Basierend auf hybriden Gap-Plasmon-Wellenleitern haben diese Geräte Eigenschaften, die für diese Aufgabe einzigartig geeignet sind.

Obwohl diese Geräte zur Charakterisierung entwickelt wurden, können sie auch für die optische Kommunikation verwendet werden. In einer weiteren Weltneuheit wurde die Hybrid-Gap-Plasmon-Wellenleiterstruktur verwendet, um Daten mit Geschwindigkeiten von bis zu 200 Gbit/s zu übertragen. Weitere Verbesserungen an diesem ersten Prototyp versprechen noch höhere Geschwindigkeiten.

Schließlich wurde in dieser Arbeit auch ein anderer Typ von hybriden plasmonischen Wellenleitern untersucht, um die Verluste im Zusammenhang mit plasmonischen Wellenleitern zu reduzieren. Eine Metall-Isolator-Halbleiter (MIS) hybride plasmonische Struktur kann als Kompromiss zwischen der starken elektrischen Feldkonzentration eines plasmonischen Schlitzes und den geringen optischen Verlusten eines photonischen Wellenleiters verwendet werden. Dennoch führt der große Unterschied in der Größe der photonischen und plasmonischen Wellenleitermodi zu großen Umwandlungsverlusten an der Schnittstelle zwischen beiden. Im Rahmen dieser Arbeit wurde ein Richtkoppler entwickelt, um den Übergang zwischen photonischen und hybriden plasmonischen Wellenleitern mit einer Rekordeffizienz von 94% zu ermöglichen.

Diese Arbeit ist wie folgt organisiert:

- **Kapitel 1** führt in die Elektro-Optik ein und erläutert die bedeutende Rolle, die sie in den Technologien der Vergangenheit, Gegenwart und Zukunft spielt. Es diskutiert die

Bedeutung elektro-optischer Materialien und warum ihre Effizienz möglicherweise eine Frequenzabhängigkeit aufweist. Es gibt auch einen Überblick über die Bemühungen, die elektro-optischen Eigenschaften der Materialien im Titel dieser Arbeit, Lithiumniobat und Bariumtitanat, zu bestimmen. Schließlich werden die Errungenschaften dieser Arbeit zusammengefasst, die unser Wissen über elektro-optische Materialeigenschaften und deren Charakterisierung voranbringen.

- **Kapitel 2** legt die theoretische Basis für die späteren Kapitel dar, einschließlich des mathematischen Rahmens für den Pockels-Effekt, des Konzepts hybrider Gap-Plasmon-Wellenleiter, der Phasenmodulation zur elektro-optischen Charakterisierung und der Impedanzcharakterisierung mit einem Vektor-Netzwerkanalysator.
- **Kapitel 3** präsentiert die wichtigsten Ergebnisse dieser Arbeit: die experimentellen Ergebnisse für die Permittivität und die Pockels-Koeffizienten in Bariumtitanat und Lithiumniobat. Dieses Kapitel geht auch ausführlich auf die neuartige Methode ein, die zur elektro-optischen Charakterisierung entwickelt wurde und auf jedes elektro-optische Material anwendbar ist.
- **Kapitel 4** enthält die erste Demonstration eines Hochgeschwindigkeits-Elektro-Optik-Modulators basierend auf dem Konzept des Hybrid-Gap-Plasmon-Wellenleiters. Es zeigt, wie derselbe Typ von Phasenschieber, der für die elektro-optische Charakterisierung verwendet wurde, auch zur Datenübertragung mit Geschwindigkeiten von bis zu 200 Gbit/s eingesetzt werden kann.
- **Kapitel 5** umfasst Arbeiten zu einem anderen und konventionelleren Typ hybrider plasmonischer Wellenleiter für photonisch integrierte Schaltkreise. Hier wurde ein Richtkoppler entwickelt, um Licht mit einer Effizienz von 94% in einen hybriden plasmonischen Wellenleiter zu koppeln.

- **Kapitel 6** fasst die Errungenschaften dieser Arbeit zusammen und gibt einen Ausblick auf zukünftige Entwicklungen, die von den in dieser Arbeit vorgestellten Ideen und Ergebnissen profitieren würden.