

外加电场极化法制备 LiNbO_3 铁电畴反转光栅

陈云琳 倪文俊 赵玉强 迟 杨 李世忱

耿 凡

(天津大学精密仪器与光电子工程学院 天津 300072)

(航天工业总公司 8358 所 天津 300070)

提要 在室温下,应用外加电场极化法对 z 切 0.5 mm 厚的 LiNbO_3 晶体实现了铁电畴反转,并成功地制备了 LiNbO_3 铁电畴反转光栅。

关键词 LiNbO_3 晶体,铁电畴反转,电场极化

1 引言

1962年 Armstrong 和 Bloembergen 提出了准相位匹配的理论^[1],从理论中得出通过周期性调制晶体的二阶非线性系数能够大幅度提高二次谐波的转换效率。利用 LiNbO_3 晶体铁电畴的周期性反转来实现准相位匹配是一种有效而简便的方法。用铁电畴反转光栅实现准相位匹配的 LiNbO_3 波导倍频器件是小型化短波长相干光源的理想器件之一。而生产这种器件的主要步骤是形成铁电畴反转光栅。目前已有许多技术可以实现铁电畴反转。如 Ti 从 LiNbO_3 正畴表面的扩散^[2,3],Li 离子的外扩散^[4], SiO_2 镀膜并热处理^[5],在 230℃ 温度下,通过加热,由质子交换可在 LiNbO_3 晶体正畴面诱发畴反转^[6],另外还可以应用电子束扫描的方法制备 LiNbO_3 晶体畴反转光栅^[7]。除电子束扫描的方法外,以上几种技术所形成的畴反转仅仅发生在晶面附近有限较浅的三角区域内,而且这些技术的工艺过程均需要在一定的温度下进行,虽然运用电子束扫描法可以制备出反转层较深的畴反转光栅,但是其畴反转连续性不好,就其逐个样品扫描来说难以大批量生产,而且造价高,不宜于商品化。

因为 LiNbO_3 晶体具有较大的非线性光学系数,并且制备 LiNbO_3 波导的技术发展很快,因此我们选用了 LiNbO_3 晶体作为实验样品,报道了在室温下对样品进行外加电场极化实现铁电畴反转的新方法。此方法的使用大大降低了极化晶体的难度和成本,提高了周期极化晶体的质量长度,从而使准相位匹配技术得到了迅速的发展。

2 实验

由 LiNbO_3 铁电体的电滞回线可知,当在 z 切 LiNbO_3 晶体的正、负畴面所加电场大于 LiNbO_3 铁电体的矫顽场(≈ 21 kV/mm)时其铁电畴将发生反转;而当对晶体加一个持续的直流

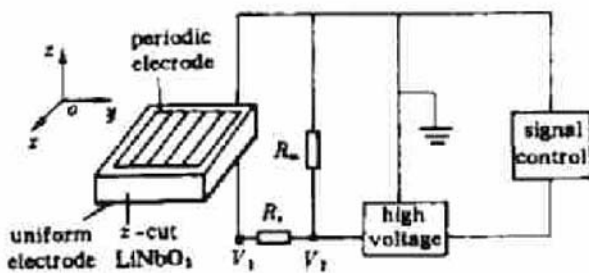


图 1 外加电场极化法制备 LiNbO₃ 晶体
铁电畴反转光栅的简图

Fig. 1 Fabrication of the domain-inverted grating
by applying electric-field poling

在极化过程中,回路中极化电流的幅值可由下式给出

$$I_{\text{pot}} = \frac{V_1 - V_2}{R_1} - \frac{V_2}{R_m} \quad (1)$$

式中 R_1 为一个系列电阻器, V_2 相应于 LiNbO₃ 晶体的矫顽场的电压 (≈ 21 kV/mm), R_m 是一个电压调节电阻。通过改变 R_m 可以得到不同的电流值,在实验中我们所用极化电流的范围为 20~50 μA 。当厚为 500 μm 的 LiNbO₃ 晶体实现极化反转时,所需的电荷 Q 主要由极化电流 i 和脉冲持续时间来决定,而极化电流 i 的变化可由示波器来观测,将示波器接到和晶体样品相连的电阻上。电荷 Q , 电流 i 和畴发生反转面积 A 的关系为

$$Q = \int i dt = 2P_s A \quad (2)$$

其中 $P_s = 0.71$ C/m² 为 LiNbO₃ 的自发极化强度,极化电流 i 与脉冲电压强度有关,当脉冲强度确定以后,反转畴区域的面积 A 可由脉冲所持续的时间控制。

在铁电畴反转光栅的制备中,占空比(畴反转宽度与周期的比值)直接影响着倍频转换效率,为了得到最佳的畴反转光栅结构,其占空比必须是 0.5^[6]。实际上铁电畴反转并不仅仅发生在周期性 Al 栅格条以下的垂直区域,由于边缘电场和散射场的存在,往往导致铁电畴反转区域扩散变大,因此我们在设计周期性 Al 栅格电极时,每一栅格的宽度与其周期的比值约为 1/3。

将极化后的样品放入 NaOH 的水溶液中去掉 Al 膜,然后将其放置到温度为 100℃ 的 HNO₃ 和 HF(2:1) 的混合液中进行腐蚀,腐蚀时间为 5 min 左右,最后在偏光光学显微镜下进行观察和拍照。

在用外加电场极化法制备 LiNbO₃ 铁电畴反转光栅的多次实验中,我们发现脉冲电压的幅值、宽度、周期和个数及极化电流的大小是直接影响畴反转光栅制备的主要参量。通过对这些参量取值范围内(脉冲电压的幅值: -11.5~-13.6 kV, 脉冲宽度, 5~100 ms, 周期: 150~500 ms, 脉冲个数: 8~20, 极化电流: 20~50 μA) 的多次反复实验,我们最终得出了制备三级准相位匹配 LiNbO₃ 铁电畴反转光栅的最佳参量值。它们分别是: 脉冲电压幅值为

高压时晶体往往被击碎,为了避免这一现象,我们对晶体施加一系列与 LiNbO₃ 晶体自发极化方向相反的方形电压脉冲,每个脉冲都要大得足以使晶体早先的剩余极化反向。图 1 为应用外加电场极化法制备 LiNbO₃ 铁电畴反转光栅的示意图。在实验中所用样品是垂直于 z 轴切割的厚为 500 μm 的 LiNbO₃ 晶片,通过光刻技术在晶片的正畴表面刻蚀出周期性的 Al 电极(面积为 2×5 mm²), Al 厚度为 200 nm; 晶片的负畴面镀一层厚为 200 nm 的均匀 Al 电极。

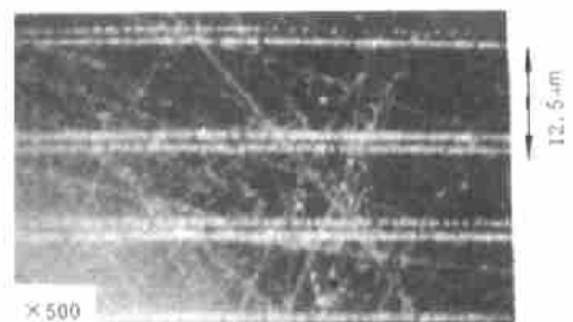


图 2 用外加电场极化制备的周期为 12.5 μm
的正畴(C+)表面的畴反转光栅结构

Fig. 2 C+ top view of the main-inverted grating of
12.5 μm period formed by applying
electric-field poling

-12 kV, 脉冲宽度为 6 ms, 周期为 400 ms, 脉冲个数为 10, 极化电流为 30 μ A。图 2 就是在这些最佳参量值条件下所制备的周期为 12.5 μ m 的 LiNbO₃ 畴反转光栅 +z 面结构。将图 2 所示样品沿 y 向切割并进行腐蚀可得畴反转光栅的横截面结构图 3。从图 3 可以清晰地看到畴的反转贯穿整个 LiNbO₃ 晶片的厚度, 并且反转畴的界面与晶体表面垂直。

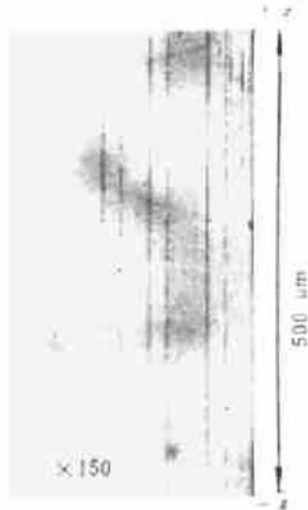


图 3 沿 y 向切割的横向畴反转结构
Fig. 3 Cross-sectional structure of the domain-inverted grating on the y face

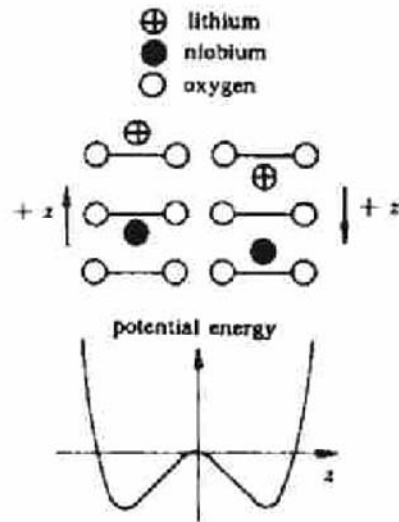


图 4 LiNbO₃ 铁电相定性示意图, 外加电场使金属离子进行迁移发生极化反转

Fig. 4 Scheme of ferroelectricity in LiNbO₃. Domain polarity can be reversed by application of a field sufficient to move the ions from one stable location to the other

3 讨 论

畴反转的机理至今还没有被充分阐明。畴反转过程包括了畴壁运动和新畴成核过程, 若要实现 LiNbO₃ 铁电体的铁电畴反转, 就需要外界提供一定的能量来满足畴极化反转时所需要的畴壁能和其退极化能, 当对 LiNbO₃ 晶体施加一系列连续极性相反的电压脉冲时, 外加的极化电场就提供了足够的能量来实现畴反转。

从 LiNbO₃ 晶体的铁电相定性图 4 来看, 铁电畴的极化转向是由铌和锂离子偏离氧平面层所致。通过与 LiNbO₃ 晶体自发极化相反的外加电场可以使铌和锂离子移到一个新的位置, 离子的迁移导致正负电荷的分离, 当外加极性相反的电场足够大时, LiNbO₃ 晶体的自发极化就发生了反转。

参 考 文 献

- 1 J. A. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing *et al.*. Interactions between light waves in a nonlinear dielectric. *Phys. Rev.*, 1962, **127**:1918~1939
- 2 E. J. Lim, M. M. Fejer, R. L. Byer *et al.*. Blue light generation by frequency doubling in periodically poled lithium niobate channel waveguide. *Electron. Lett.*, 1989, **25**(11):731~732
- 3 Y. Ishigame, T. Suhara, H. Nishihara. LiNbO₃ waveguide second-harmonic-generation device phase matched with a fan-out domain-inverted grating. *Opt. Lett.*, 1991, **16**(6):375~377
- 4 J. Webjorn, F. Laurell, G. Arvidsson. Blue light generated by frequency doubling of laser diode light in lithium

- niobate channel waveguide. *IEEE Photon. Technol. Lett.*, 1989,1;136
- 5 J. Webjorn, F. Laurell, G. Arvidsson. Fabrication of periodically domain inverted channel waveguides in lithium niobate for second harmonic generation. *J. Lightwave Technol.*, 1989,7(10);1597~1600
- 6 Zhang Zhiyong, Zhu Yongyuan, Zhu Shining *et al.*. Domain inversion in LiNbO₃ by proton exchange and quick heat treatment. *J. of Synthetic Crystals* (人工晶体学报), 1995,24(1);1~4 (in Chinese)
- 7 Chen Yunlin, Ruan Yongfeng, Yao Pei *et al.*. Fabrication of domain-inverted grating in LiNbO₃ by electron-beam scanning. *Chinese J. Lasers* (中国激光), 1996,A23(6);505~508 (in Chinese)
- 8 Chen Yunlin, Ni Wenjun, Wang Dongmei *et al.*. Theoretical analysis of LN waveguide second harmonic generation quasi phase matched with ferroelectric domain inversion gratings. *Chinese J. Lasers* (中国激光), 1998,A25(5);448~452 (in Chinese)

Ferroelectric-domain-inverted Gratings in LiNbO₃ Fabricated by Electric-field Poling

Chen Yunlin Ni Wenjun Zhao Yuqiang Chi Yang Li Shichen

(College of Precision Instrument and Opto-electronic Engineering, Tianjin University, Tianjin 300072)

Geng Fan

(8358 Institute, China Aerospace Corporation, Tianjin 300070)

Abstract It is reported that by means of an electric-field poling process, a z-cut 0.5 mm thick LiNbO₃ crystal with a uniform domain structure can be reliably fabricated.

Key words LiNbO₃, ferroelectric-domain-inverted, electric-field poling