

热及电场诱导的多载流子模型及分析

刘雪明 张明德 孙小菡 甘朝钦 黄海峰
(东南大学电子工程系, 南京 210096)

摘 要 提出了热及电场诱导的多载流子模型, 在完全耗尽近似下, 得出了耗尽区厚度和电场强度的计算公式。公式表明, 耗尽区厚度、耗尽区最大电场与诱导时外界电压成平方根关系, 而二次谐波的转换效率与应用电压成平方关系。耗尽区的厚度为 $3\sim 8\ \mu\text{m}$; 耗尽区的最大场强为 $1\sim 4\ \text{V/nm}$, 并位于阳极表面下 $1\sim 6\ \mu\text{m}$ 。

关键词 热及电场诱导, 载流子, 耗尽区, 熔融石英。

1 引 言

1991 年美国的一个研究小组发现^[1], 对熔融石英玻璃进行热及电场诱导后, 不但能产生二次非线性效应, 而且非常稳定, 在室温下, 几个月没有衰减的迹象。此外, 也可以去诱导和再诱导。另一些研究小组在石英光纤中也进行了类似的实验^[2], 显示同样的效应。对 D 型光纤进行适当的处理和热及电场诱导后, 在 12 cm 长的诱导光纤中, 仅加压 75 V, 就能观察到半波平移, 即 $V_{\pi}L = 900$ ^[3], 如果进一步优化实验条件, $V_{\pi}L$ 值将更低。虽然目前已经提出了许多种不同诱导方法, 如 UV 法^[4]、质子束法^[5]、电子束法^[6]、电晕法^[7]等, 但热及电场法最典型, 它不但在实验中能较好地控制各种参数, 而且二次非线性的稳定性也较好, 因而该方法受到人们的广泛重视。对热及电场诱导的理论分析一般采用单载流子模型^[1, 8], 即假设在诱导过程中只有一种可移动的载流子(如 H_3O^+ 、 Na^+ 、 Ca^{++} 或 Al^{++} 等)。该模型表明, 诱导区的最大电场强度在阳极表面附近。但实验结果发现, 场强的最大值不在阳极表面, 而在样品的内部, 耗尽区域不是仅仅只有正空间电荷, 而是正、负空间电荷交替分布^[9, 10], 因此, 必须采用新的模型。本文利用耗尽近似方法, 提出了多载流子模型, 理论上计算了熔融石英玻璃诱导后, 耗尽区厚度、耗尽区电场分布与诱导时电压、熔融石英的载流子浓度的关系, 及二次谐波的转换效率与诱导时外界电压的关系。

2 模型及理论

所谓热及电场诱导法, 就是: 通过加热到 $250\sim 300^\circ\text{C}$ (典型值约 280°C), 在石英玻璃或 D 型光纤两边加压 $3\sim 8\ \text{kV}$ (典型值是 $5\ \text{kV}$), 并保持几分钟到几十分钟, 然后慢慢降低温度。冷却到室温后撤掉电压。当熔融石英玻璃通过热及电场诱导后, 在阳极表面附近的 $4\sim$

20 μm 厚的区域内诱导出的二次非线性系数达 0.5~ 6 pm/V, 该区域内电场强度约为 10⁷ V/cm; D 型光纤诱导出的电光系数 $r = 0.3 \sim 0.7$ pm/V。熔融石英的二次非线性的形成机理一般认为: 强电场打破了 SiO₂ 的中心对称, 经三阶电极化率 $\chi^{(3)}$ 建立有效的二阶电极化率 $\chi^{(2)}$, 即 $\chi^{(2)} = 3\chi^{(3)}E_{dc}$; 或通过电偶极子或键的取向建立 $\chi^{(2)}$ ^[1, 8]。在单载流子模型中, 阳极表面附近在强场强作用下形成均匀的耗尽层, 如图 1 所示, 因而, 耗尽层厚度 d 和它内部的电场强度 $E(x)$ 为

$$d = \sqrt{\frac{2\epsilon V}{eN}}, \tag{1}$$

$$E(x) = \begin{cases} eN(d - x)/\epsilon, & (0 < x < d) \\ 0, & (x > d) \end{cases} \tag{2}$$

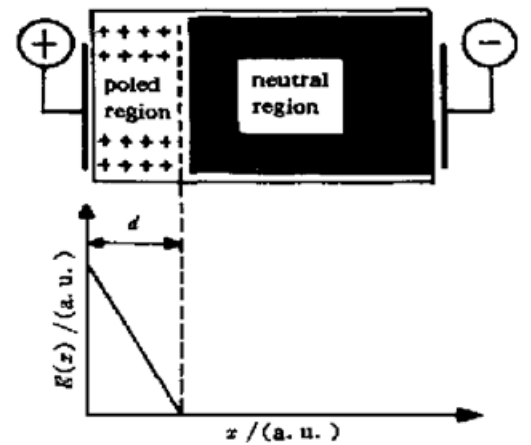


Fig. 1 Distribution of the poled region for single charge carrier model

式中 N 为载流子密度, V 为诱导样品两端所加的电压, ϵ 为材料的介电常数, e 为单位电荷。

然而, 实验表明, 在热及电场诱导中, 二次非线性效应表现为多时间标度^[9], 因而, 熔融石英玻璃的热及电场诱导应是多种载流子运动的结果。在多载流子模型中, 诱导层的形成过程一般描述为: 在温度高于 200℃ 的热激励下, 石英玻璃中 Na⁺ 能在 SiO₂ 网格中自由移动, 在石英玻璃样品两边再加高电压时, 阳极表面的 Na⁺ 向阴极漂移并与电子中合, 于是在极薄 (约 1 μm) 的区域内建立很强的电场 (高于 10⁷ V/cm), 在强的场强下, 熔融石英中的 OH 离子经化学反应产生 H₃O⁺, 接着也向阴极漂移并中和, 这样诱导区中形成了负耗尽区, 如图 2(b) 中 x_2 区所示。随着诱导时间的继续, 负耗尽区慢慢向样品内部漂移, 阳极表面的强电场与空气中水分子作用下, 经化学反应产生的 H₃O⁺ 被注入阳极表面附近。同时, 由于阳极表面在高电场作用下, 发生离子化, 电子将流进阳极。于是, 在阳极表面又建立一个正耗电层, 如图 2(b) 中 x_1 区所示。在多离子载流子模型中, Na⁺ 是快离子, H₃O⁺ 是慢离子, 其中前者比后者快 10³~ 10⁴ 倍^[11]。在完全耗尽近似下, 假设耗尽区域中正、负空间电荷是均匀的, 如图 2(a)、图 2(b) 所示。由

$$\frac{\partial E(x)}{\partial x} = \frac{en}{\epsilon}, \tag{3}$$

$$\frac{\partial V(x)}{\partial x} = - E(x), \tag{4}$$

及边界条件

$$E|_{x=0} = E|_{x=d} = 0, \quad V|_{x=0} = V_0, \quad V|_{x=d} = 0,$$

得

$$n_1x_1 - n_2x_2 = 0, \tag{5a}$$

$$n_1x_1^2 + 2n_1x_1x_2 - n_2x_2^2 = \frac{2V_0\epsilon}{e}, \tag{5b}$$

$$n_1x_1 = \frac{E_{\max}\epsilon}{e}, \tag{5c}$$

式中 x 为耗尽区的深度, 如图 2(b) 所示, n 为离子浓度, $E(x)$ 为耗尽区电场强度, $V(x)$ 为耗尽区电势, d 为耗尽区的厚度 ($d = x_1 + x_2$), n_1 、 n_2 分别为正负耗尽区离子浓度, x_1 、 x_2 分别

为正、负耗尽区的厚度, E_{\max} 为耗尽区的最大场强, V_0 为诱导时外界的电压。

由(5)式可得

$$x_1 = \frac{1}{n_1(n_2 + n_1)} \sqrt{2 \frac{\epsilon}{e} V_0 n_1 n_2 (n_2 + n_1)}, \quad (6)$$

$$x_2 = \frac{1}{n_2(n_2 + n_1)} \sqrt{2 \frac{\epsilon}{e} V_0 n_1 n_2 (n_2 + n_1)}, \quad (7)$$

$$d = x_1 + x_2 = \frac{1}{n_1 n_2} \sqrt{2 \frac{\epsilon}{e} V_0 n_1 n_2 (n_2 + n_1)}, \quad (8)$$

$$E(x) = \begin{cases} E_{\max} x / x_1 & (0 < x \leq x_1), \\ E_{\max} (x_1 + x_2 - x) / x_2 & (x_1 < x \leq x_1 + x_2), \\ 0 & (x > d = x_1 + x_2), \end{cases} \quad (9)$$

$$E_{\max} = \frac{e}{\epsilon(n_2 + n_1)} \sqrt{2 \frac{\epsilon}{e} V_0 n_1 n_2 (n_2 + n_1)}. \quad (10)$$

于是得出了耗尽区厚度 d 和电场强度 $E(x)$ 的表达式。从(8)式、(9)式可以发现, 与单载流子模型相比, 多载流子模型不仅表明了诱导区的最大电场在所诱导样品的内部, 而且表明了诱导的条件对诱导结果的影响, 如空气中 H_2O 浓度、样品中 OH 浓度、诱导时外界电压等的影响(前两者依次决定 n_1 、 n_2 大小)。由于 $\chi^{(2)} \propto E_{\text{dc}}$ (E_{dc} 是耗尽区的平均场强)^[11, 111], 为提高 $\chi^{(2)}$, 必须提高 E_{dc} 的值。由图 2(c) 可知, $E(x)$ 是三角形分布, 因而, 易得 $E_{\text{dc}} = E_{\max}/2$ 。在相干长度范围内, 由于二次谐波的转换效率 $\eta \propto (\chi^{(2)} \times d)^2$ ^[12], 而 $\chi^{(2)} \propto E_{\text{dc}} = E_{\max}/2$, 则 $\eta \propto (E_{\max} \times d)^2$ 。因此, 由(8)式、(10)式可得, $\eta \propto V_0^2$ 。

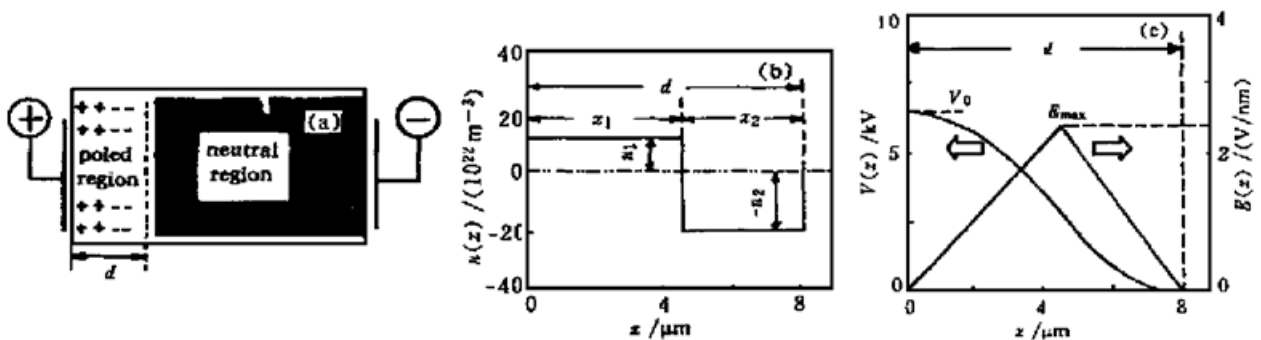


Fig. 2 Distribution of the poled region for multiple-carrier model

3 计算及结果分析

由(6)~(10)式可知, 耗尽区 E_{\max} 、 x_1 、 x_2 、 d 与 V_0 、 n_2/n_1 有直接关系。图 3 和图 4 给出了它们之间的关系(计算时, 假设 $n_2 = 20 \times 10^{22} \text{ m}^{-3}$, $\epsilon = 3.8\epsilon_0$, ϵ_0 为真空中的介电常数^[111])。

由图 3 可知, 随着诱导区的负耗尽区离子密度 n_2 与正耗尽区离子密度 n_1 比值的减小, E_{\max} 开始近似指数增加, 然后增加缓慢; x_1 迅速地减小; x_2 开始增加较快, 然后缓慢增加; d 开始迅速地增加, 然后趋近某一常数。由(6)~(10)式可知, E_{\max} 、 x_1 、 x_2 、 $d \propto V_0^{0.5}$, 图 4 给出了它们在不同条件下的诱导结果与电压的关系。该图表明, 当 n_2/n_1 取不同值时, E_{\max} 、 x_1 、 x_2 、 d 随 V_0 的增加快慢明显不同, 且 $E_{\max} = 1 \sim 4 \text{ V/nm}$, $x_1 = 1 \sim 6 \mu\text{m}$, $x_2 = 1 \sim 4 \mu\text{m}$,

$d = 3 \sim 8 \mu\text{m}$ 。因此, 在石英玻璃中的 OH 和 Na 离子一定的情况下, 改变诱导环境, 使得空气中水分子扩散到石英玻璃中的离子密度 n_1 越大, E_{max} 越大, 因而 $\chi^{(2)}$ 越大。

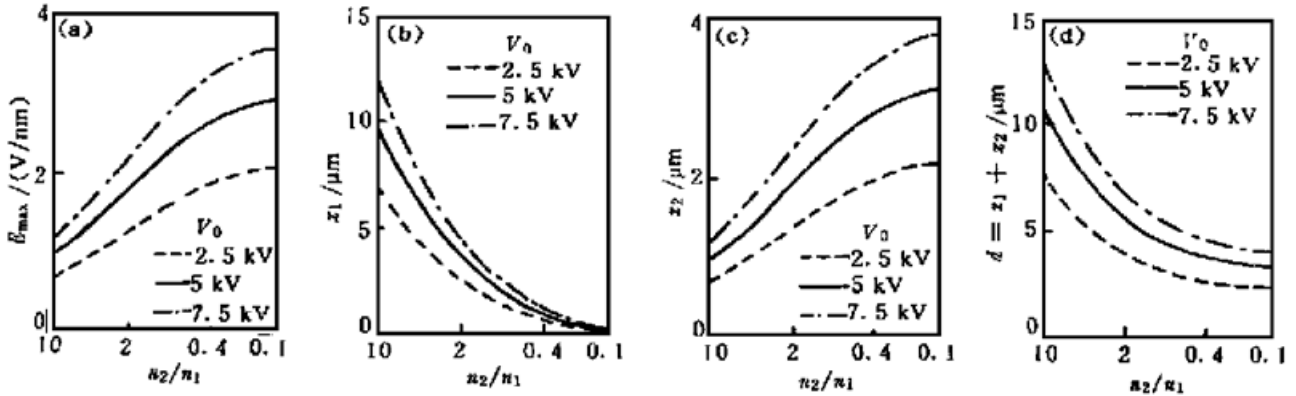


Fig. 3 E_{max} , x_1 , x_2 , and d vs. n_2/n_1

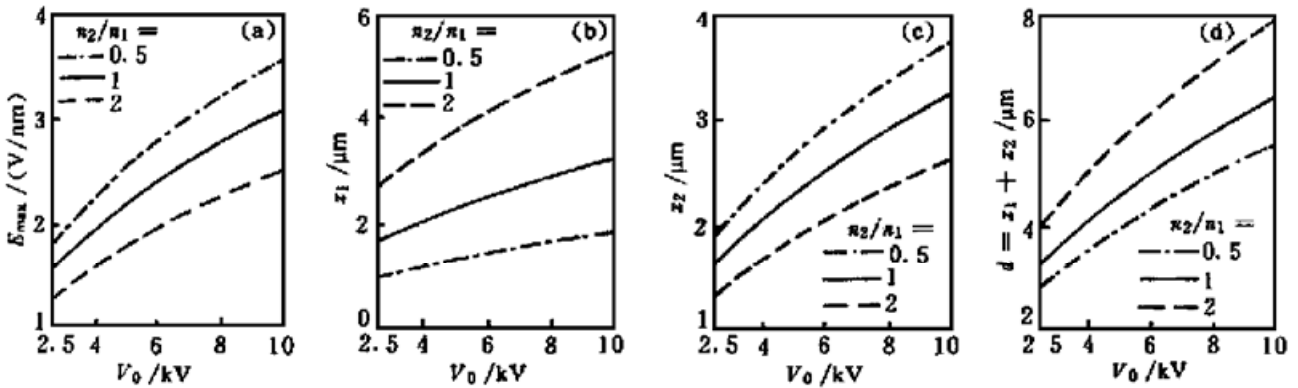


Fig. 4 E_{max} , x_1 , x_2 , and d vs. V_0

结 论 在完全耗尽近似下, 给出了耗尽区的多载流子模型, 根据此模型, 得出耗尽区厚度 d 和电场强度 $E(x)$ 的表达式。在实验中, 如果测出热及电场诱导后的样品的二阶电极化率 $\chi^{(2)}$, 根据 $\chi^{(2)} = 3\chi^{(3)}E_{\text{dc}}$, 就能得出 E_{dc} , 于是就能近似地计算出耗尽区的离子浓度分布 $n(x)$ 和电场分布 $E(x)$ 以及耗尽区的厚度 d 。理论结果表明, 耗尽区最大场强 E_{max} 在样品内部 $1 \sim 6 \mu\text{m}$, 且 $E_{\text{max}} = 1 \sim 4 \text{ V}/\text{nm}$, 耗尽区的厚度 $d = 3 \sim 8 \mu\text{m}$, 这与实验结果吻合得很好^[9, 11]。此模型证明了二次谐波的转换效率 η 与诱导的应用电压 V_0 是平方关系, 这与实验相当一致^[11, 12]。该理论不仅证明了增加 V_0 能明显地提高 $\chi^{(2)}$ 和 η , 而且表明了, 增加 $\chi^{(2)}$ 值必须以减小 d 为代价。这也解释了当热及电场诱导达到一定阶段后, 随着诱导的时间的增长, 虽然耗尽区厚度 d 也增大, 但是 $\chi^{(2)}$ 却减弱。

参 考 文 献

- [1] Myers R A, Mukherjee N, Brueck S R J. Large second-order nonlinearity in poled fused silica. *Opt. Lett.*, 1991, **16**(22): 1732~ 1734
- [2] Kazansky P G, Dong L, Russell P S J. High second-order nonlinearities in poled silicate fiber. *Opt. Lett.*, 1994, **19**(4): 701~ 703
- [3] Long X C, Brueck S R J. Large-signal phase retardation with a poled electrooptic fiber. *IEEE. Pho. Tech. Lett.*, 1997, **9**(6): 767~ 769

- [4] Fujiwara T, Wang D, Zhao Y *et al.*. Electro-optic modulation in germanosilicate fiber with UV-exciting poling. *Electron. Lett.*, 1995, **31**(7) : 573~ 575
- [5] Henry L J, McGrath B V, Alley T G *et al.*. Optical nonlinearity in fused silica by proton implantation. *J. Opt. Soc. Am. (B)*, 1996, **13**(5) : 872~ 836
- [6] Kazansky P G, Kamal A, Russel S J. High second-order nonlinearities induced in lead silicate glass by electron-beam irradiation. *Opt. Lett.*, 1993, **18**(9) : 693~ 695
- [7] Horinouchi S, Imai H, Zhang G J *et al.*. Optical quadratic nonlinearity in multilayer corona-poled glass films. *Appl. Phys. Lett.*, 1996, **68**(25) : 3552~ 3554
- [8] Mukherjee N, Myers R A, Brueck S R J. Dynamics of second-harmonic generation in fused silica. *J. Opt. Soc. Am. (B)*, 1994, **11**(4) : 665~ 669
- [9] Alley T G, Brueck S R J. Visualization of the nonlinear optical space-charge region of bulk thermally poled fused-silica glass. *Opt. Lett.*, 1998, **23**(15) : 1170~ 1172
- [10] Kazansky P G, Smith A R, Russell S J. Thermally poled silica glass: laser induced pressure pulse probe of charge distribution. *Appl. Phys. Lett.*, 1996, **68**(2) : 269~ 271
- [11] Alley T G, Rueck S R J B, Myers R A. Space charge dynamics in thermally poled fused silica. *J. Non-Crystal Solids*, 1998, **242**(2/3) : 165~ 181
- [12] Akebe H T, Kazansky P G, Russell P S J. Effect of poling conditions on second-harmonic generation in fused silica. *Opt. Lett.*, 1996, **21**(7) : 468~ 470

Multiple-Carrier Model and Analysis for the Thermal/Electrical Poling

Liu Xueming Zhang Mingde Sun Xiaohan
Gan Chaoqin Huang Haifeng

(Department of Electronic Engineering, Southeast University, Nanjing 210096)

(Received 10 March 1999; revised 20 May 1999)

Abstract The multiple-carrier model for thermal/electrical poling is presented. Under the approximation of the full depletion, the calculating formulas for the width and electrical field of depletion region are obtained. They show that the relationship for the width and the maximum electrical field in depletion region against the applied voltage is square-root, while the conversion efficiency of second-harmonic generation is square with voltage. The width of the depletion region is 3~ 8 μm , and the maximum electrical field below the anode surface 1~ 6 μm is 1~ 4 V/nm.

Key words thermal/electrical poling, carrier, depletion region, fused silica.