

文章编号: 0253-2239(2001)05-0618-03

外加电场极化法制备 LiNbO_3 周期性畴反转的工艺研究

陈云琳¹⁾ 许京军¹⁾ 宋 峰¹⁾ 张光寅¹⁾ 倪文俊²⁾ 李世忱²⁾

(1), 南开大学物理学院光子学中心, 天津 300071
(2), 天津大学精密仪器与光电子工程学院, 天津 300072)

摘要: 对用外加电场极化法实现铁电畴周期性极化反转 LiNbO_3 晶体(PPLN)的工艺进行了研究, 首先采用光刻工艺技术在 Z 切厚度为 0.5 mm 的 LiNbO_3 晶体的正畴面和负畴面上刻蚀出与掩膜板完全对应的金属 Al 电极, 然后在两电极上施加一系列的脉冲电压; 在实验研究中, 通过控制脉冲幅度、脉冲宽度、脉冲个数和脉冲电流, 确定了最佳实验参量, 并成功地制备出了周期为 9.5 μm 的三阶准相位匹配铁电畴周期性极化反转 LiNbO_3 晶体。

关键词: LiNbO_3 晶体; 周期性极化反转 LiNbO_3 晶体(PPLN); 准相位匹配

中图分类号: O731 文献标识码: A

1 引 言

早在 1962 年, Armstrong 等人^[1]首次提出了准相位匹配技术, 并应用此技术对体材料进行光倍频、光参量振荡等过程的研究。采用体材料准相位匹配非线性过程的铁电畴周期性极化反转结构可以补偿光波间的相位失配。自 90 年代初以来, 人们研究出了许多新技术、新工艺来实现铁电体的铁电畴周期性极化反转, 主要有: 扩 Ti 法、 Li_2O 外扩散法、喷镀 SiO_2 加热法、质子交换诱发法、电子束扫描法和外加电场极化法^[2-9]。在这些技术中, 由前四种技术所产生的畴反转仅仅发生在晶体表面附近较浅的三角区域内, 不利于基波与谐波的充分耦合, 而且这四种技术的工艺过程均需要在一定的高温 and 较苛刻的实验条件下进行。而运用电子束扫描法可以制备出反转层较深的畴反转结构, 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, 不易于商品化。最后, 用外加电场极化法可以大大降低畴反转极化的难度和成本, 因此此种技术备受人们的重视。应用外加电场极化法已在厚为 0.25 mm 的 Z 切 LiNbO_3 、 LiTaO_3 和 KTiOPO_4 晶体样品上制备出了铁电畴周期性反转结构^[10-12]。

本文选用 LiNbO_3 晶体作为实验材料, 自 1996 年以来一直从事准相位匹配 LiNbO_3 铁电畴周期性

极化反转(PPLN)的研究^[6-8, 13-15]。本文报道了运用外加电场极化法在 0.5 mm 厚的 Z 切 LiNbO_3 上制备周期性极化 LiNbO_3 铁电畴反转的研究。

2 制备周期性极化反转 LiNbO_3 晶体工艺的实验研究

将所选用的已单畴化了的 Z 切 LiNbO_3 晶体进行清洗, 在清洗后的 LiNbO_3 晶体的 -Z 面进行金属 Al 掩膜的蒸镀, 其膜厚为 200 nm。通过光刻技术在晶体的 +Z 表面刻蚀出按所设计的掩膜板结构的周期性 Al 栅格电极。图 1 为周期性金属 Al 栅格电极的横截面结构示意图。然后采用图 2 所示的外加电场极化装置制备周期性极化反转 LiNbO_3 晶体(PPLN)。由图 2 可见, 晶体正畴面上金属栅格电极接地, 负畴面上的金属平面电极接电源。在实验中发现, 若对晶体加一个持续的直流高压, 往往发生电崩现象导致晶体被击碎(如图 3 所示)。为了避免这一现象, 在实验中采用对晶体施加一定数量的与

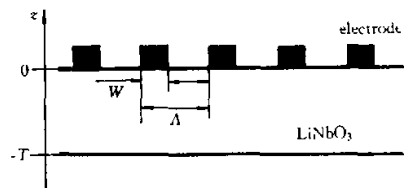


Fig. 1 Cross-sectional structure of Al periodic electrode

晶体极化相反的方形电脉冲,每个脉冲电压都要大到足以使晶体固有的剩余极化反向。电源所给的脉冲电压为 $-10 \sim -15$ kV,脉冲宽度为 $0.5 \text{ ms} \sim 6.0 \text{ ms}$,脉冲个数为 $5 \sim 15$ 。

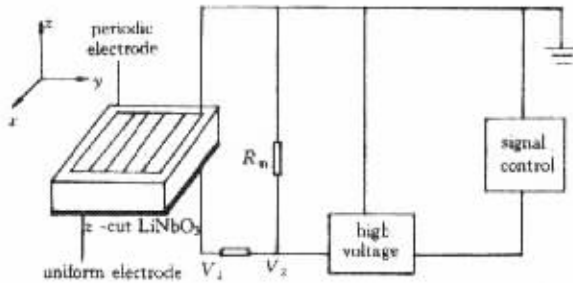


Fig. 2 Schematic of applying electric field for PPLN

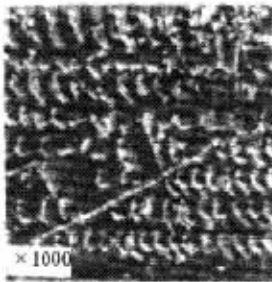


Fig. 3 Pattern of electric breakdown

将极化后的样品放到 NaOH 的水溶液中去掉金属 Al 掩膜,然后将其放置到温度为 $100 \text{ }^\circ\text{C}$ 的 HNO₃ 和 HF(2:1)的混合液中进行腐蚀,腐蚀时间为 5 min 左右。由于负畴表面腐蚀的速率远远大于正畴面,故样品腐蚀后能清晰地显现出畴反转的结构图样。最后在偏光光学显微镜下观察和拍照。

图 4 是在极化电压幅值为 -12 kV ,脉冲宽度为 2 ms ,脉冲个数为 9 的参量条件下所制备的周期为 $9.5 \text{ }\mu\text{m}$ 的周期性极化反转 LiNbO₃ 晶体 + Z 面结构。将图 4 所示样品沿 Y 向切割抛磨并进行腐蚀,可得到周期性极化反转 LiNbO₃ 晶体的横截面结构(图 5)。从图 5 可以清晰地看到畴的反转几乎贯穿整个 LiNbO₃ 晶片的厚度,并且反转畴的界面与晶体表面垂直。这种周期性极化反转 LiNbO₃ 晶体结

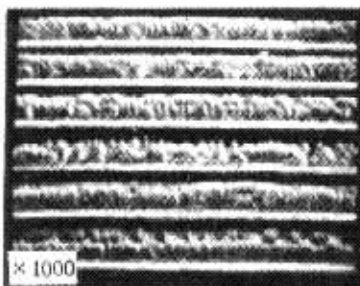


Fig. 4 +Z top view of the PPLN with a period of $9.5 \text{ }\mu\text{m}$

构是准相位匹配非线性光耦合所要求的最佳结构。



Fig. 5 Cross-sectional structure of PPLN on Y face

在用外加电场极化法制备周期性极化反转 LiNbO₃ 晶体的大量实验中,发现脉冲电压的幅值、脉宽和脉冲个数是直接影影响周期性极化反转 LiNbO₃ 晶体成功制备的主要参量。通过对这些参量取值范围内(脉冲电压的幅值: $-10 \text{ kV} \sim -15 \text{ kV}$,脉冲宽度: $0.5 \text{ ms} \sim 6.0 \text{ ms}$,脉冲个数: $5 \sim 15$)的多次反复实验,可得出以下结果:

1) 当脉冲宽度(2 ms)和脉冲个数(9 个)确定时,随极化电压幅值增大,周期性极化反转 LiNbO₃ 晶体的畴反转结构宽度明显变宽。当电压增到一定值时,将发生电崩现象,其变化关系如图 6 所示。

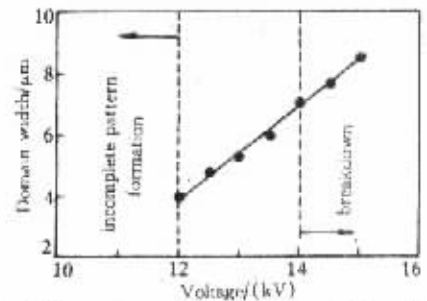


Fig. 6 Dependence of domain-inverted line width on pulse voltages

2) 当脉冲电压幅值(12 kV)和脉冲个数(9 个)一定的情况下,随着脉冲宽度的增大,周期性极化反转 LiNbO₃ 晶体的畴反转结构宽度将变宽,其变化关系如图 7 所示。

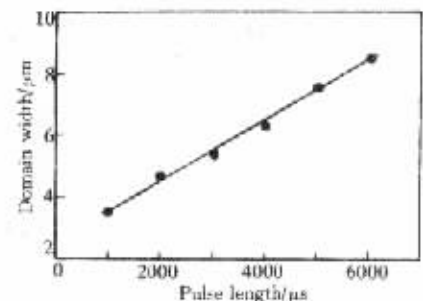


Fig. 7 Dependence of domain-inverted line width on pulse length

3) 在脉冲电压幅值(12 kV)和脉冲宽度(2 ms)

取定值的情况下,随着脉冲个数的增加,周期性极化反转 LiNbO_3 晶体的畴反转结构宽度明显变宽,其变化关系如图 8 所示。

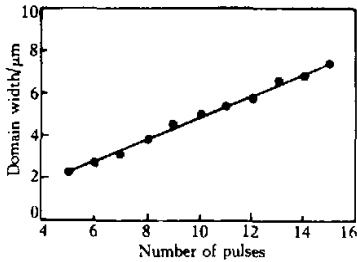


Fig. 8 Dependence of domain-inverted line width on number of pulse

由文献[13,15]可知,在准相位匹配非线性光学相互作用二次谐波产生、光参量振荡、光参量放大中,周期性极化反转 LiNbO_3 晶体畴反转区域的宽度并非越宽越好,其最佳占空比为 0.5。从对实验工艺的摸索和研究所得到的图 6、图 7、图 8 中可以看出,用外加电场极化法在 Z 切厚为 0.5 mm 的 LiNbO_3 晶体上制备周期为 9.5 μm 的周期性极化反转 LiNbO_3 晶体最佳制备参量是:脉冲电压幅值为 12 kV,脉冲宽度为 2 ms,脉冲个数为 9。

参考文献

- [1] Armstrong J A, Bloembergen N, Ducuing J *et al.*. Interactions between light waves in a nonlinear dielectric. *Phys. Rev.*, 1962, **127**(6):1918~1939
- [2] Lim E J, Fejer M M, Byer R L *et al.*. Blue light generation by frequency doubling in periodically poled lithium niobate channel waveguide. *Electron. Lett.*, 1989, **25**(5):731~732
- [3] Webjorn J, Laurell F, Arvidsson G. Blue light generated by frequency doubling of laser diode light in Lithium niobate channel waveguide. *IEEE Photo. Technol. Lett.*, 1989, **1**(1):136~138
- [4] Webjorn J, Laurell F, Arvidsson G. Fabrication of periodically domain inverted channel waveguides in LiNbO_3 for second harmonic generation. *Lightwave Technol.*, 1989, **7**(10):1597~1599
- [5] 张志永,朱永元,祝世宁等.一种制备 LiNbO_3 周期性畴反转的新方法. *人工晶体学报*, 1995, **24**(1):1~9
- [6] 陈云琳,阮永丰,姚 珩等.电子束扫描 LiNbO_3 制备畴反转光栅. *中国激光*, 1996, **A23**(6):505~508
- [7] 陈云琳,姚 珩,阮永丰等.制备 LiNbO_3 周期性畴反转的一种新方法. *人工晶体学报*, 1997, **26**(1):20~23
- [8] 陈云琳,倪文俊,李世忱.外加电场极化法制备 LiNbO_3 铁电畴反转光栅. *中国激光*, 1999, **A26**(10):889~892
- [9] Webjorn J, Pruneri V, Russell P S *et al.*. Quasi-phase-matched blue light generation in bulk lithium niobate electrically poled via periodic liquid electrodes. *Electron. Lett.*, 1994, **30**(11):894~895
- [10] Burns W K, McElhanon W, Goldberg L. Second harmonic generation in field poled, quasi-phase-matched, bulk LiNbO_3 . *IEEE Photo. Lett.*, 1994, **6**(2):252~254
- [11] Sawaki I, Miura M, Kurimura S. Deep and fine periodic domain inversion on LiTaO_3 with direct electric field. *Japan Soc. Appl. Phys.*, 1992, **18a-X-2**(9):187~189
- [12] Chen Q, Wisk W P. Periodic poling of KTiOPO_4 using an applied electric field. *Electron. Lett.*, 1994, **30**(10):1516~1517
- [13] Ruan Yongfen, Chen Yunlin, Wang Xiaoming. The phase compensation effect of the domain-inverted grating formed in LiNbO_3 waveguide. *Opt. Commun.*, 1996, **122**(1):135~140
- [14] 姚 珩,陈云琳,阮永丰.扫描电镜加工 LiNbO_3 晶体电畴反转光栅的研究. *电子显微学报*, 1997, **16**(2):148~151
- [15] 陈云琳,倪文俊,李世忱.准相位匹配 LN 倍频波导铁电畴反转光栅的研究. *中国激光*, 1998, **A25**(5):445~448

Study on Technology of Periodic Poling Bulk LiNbO_3 by Applying External Field

Chen Yunlin¹⁾ Xu Jingjun¹⁾ Song Feng¹⁾ Zhang Guangyin¹⁾ Ni Wenjun²⁾ Li Shichen²⁾

(1), Photonics Center, College of Physics Science, Nankai University, Tianjin 300071

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

(Received 19 January 2000; revised 23 March 2000)

Abstract: The technology of the periodic poling LiNbO_3 (PPLN) by applying external field was experimentally studied. A periodic Al electrode was formed on one side of Z-cut LiNbO_3 and uniform electrode on the other side by photolithographic in 0.5 mm thick samples. A series of high voltage pulses was applied between the electrodes at room temperature. The voltage application was performed under various conditions including magnitude, duration of voltage pulse and the peak current. The third quasi-phase-matched periodic poling LiNbO_3 (PPLN) with periods of 9.5 μm was fabricated.

Key words: LiNbO_3 crystal; periodic poling LiNbO_3 ; quasi-phase-matched