

文章编号: 0253-2239(2007)12-2220-5

紫外激光诱导近化学计量比钽酸锂晶体铁电畴反转*

职亚楠 刘德安 曲伟娟 周煜 刘立人 杭寅

(中国科学院上海光学精密机械研究所, 上海 201800)

摘要: 对紫外激光诱导近化学计量比钽酸锂晶体铁电畴反转进行了实验研究。波长为 351 nm 的连续紫外激光被聚焦在近化学计量比钽酸锂晶体的 $-z$ 表面,同时沿与晶体自发极化相反的方向施加均匀外电场。实验证实紫外激光辐照可以有效地降低晶体畴反转所需的矫顽电场,采用数字全息干涉测量技术检测证实在激光辐照区域实现局域畴反转。研究表明采用紫外激光诱导可以实现对近化学计量比钽酸锂晶体铁电畴反转的局域控制。提出了物理机理的理论分析,认为外电场和激光辐照场的共同作用在晶体内部产生高浓度、大尺寸的缺陷结构,缺陷一定程度上降低畴体成核和畴壁运动所需要克服的退极化能和畴壁能,实现激光诱导畴反转。

关键词: 铁电体; 畴反转; 紫外激光诱导; 近化学计量比钽酸锂; 数字全息干涉测量; 矫顽电场

中图分类号: O731 文献标识码: A

Ultraviolet Laser-Induced Ferroelectric Domain Inversion in Nearly-Stoichiometric LiTaO₃ Crystal

Zhi Yanan Liu Dean Qu Weijuan Zhou Yu Liu Liren Hang Yin

(Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, the Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800)

Abstract: Ultraviolet laser-induced ferroelectric domain inversion in nearly-stoichiometric LiTaO₃ was investigated. The continuous ultraviolet laser with 351 nm wavelength was focused on the $-z$ surface of nearly-stoichiometric LiTaO₃, and the homogeneous electric field which was antiparallel to the direction of spontaneous polarization was applied simultaneously. It is proved that the coercive field is effectively reduced by the laser radiation. The local domain inversion induced in the laser radiation area is confirmed by the digital holographic interferometry. The investigation proves that the ferroelectric domain inversion can be locally controlled by the ultraviolet laser irradiation. It is regarded that the defect structure with jumbo size and high density in the crystal lattice is generated by the complex coaction of incident irradiation field and external electric field. The defect dominates the nucleation by reducing depolarization energy and domain-wall energy required for domain-nucleus growth and domain wall movement, and the laser-induced domain inversion is realized.

Key words: ferroelectrics; domain inversion; ultraviolet laser induction; nearly-stoichiometric LiTaO₃; digital holographic interferometry; coercive field

1 引 言

近化学计量比钽酸锂晶体是一种综合性能较为优秀的人工铁电晶体材料,除了具有优良的电光、压电和热电性能,还具有矫顽电场低、抗光损伤能力强和紫外吸收小等物理优势。随着近年来周期极化近

化学计量比钽酸锂晶体在准相位匹配非线性光学领域的研究越来越深入^[1,2],其制备技术也成为研究的热点。通常施加周期分布外电场在钽酸锂或钽酸锂晶体中制作周期反转畴^[3~6],是目前唯一能够实现实用化的畴反转技术,但是反转畴体尺寸被预先

* 国家自然科学基金(60708018)和国家 863 计划(2007AA01Z298)资助课题。

作者简介: 职亚楠(1980—),男,河南人,博士研究生,主要从事光学信息处理以及晶体光学方面的研究。

E-mail: jackiezhi@mail. siom. ac. cn

导师简介: 刘立人(1942—),男,上海人,研究员,博士生导师,主要从事星际激光通信、衍射光学、光折变、激光雷达等方面的研究。E-mail: lirenliu@mail. shenc. ac. cn

收稿日期: 2007-01-08; 收到修改稿日期: 2007-06-21

制作的周期金属或液体电极限制在几个微米左右,很难进一步减小,极化过程中畴壁的侧向扩张成为严重制约制备小周期准相位匹配器件和电光器件的技术瓶颈。为了克服这个瓶颈,目前已经研发出很多种新型的极化技术,激光诱导铁电畴反转就是其中很具有发展潜力和应用前景的一项新技术。

激光诱导铁电畴反转是在畴反转进行过程中,对钽酸锂或钽酸锂晶体进行一定波长和强度的激光辐照,通过激光与晶体之间复杂的相互作用,能够在较低的均匀外电场下不依赖电极直接将激光光斑的形状转换为反转畴结构,实现对晶体畴反转的有效控制,是一种具有良好应用前景的畴反转技术方案,有望实现微米和亚微米量级的畴反转,因而目前得到越来越多的重视。激光诱导钽酸锂晶体畴反转已经取得较大进展: M. Müller 等^[7]采用波长为 334 nm 的紫外激光诱导同成分钽酸锂晶体畴反转; M. C. Wengler 等^[8]采用波长分别为 305 nm 和 334 nm 的紫外激光诱导近化学计量比和掺镁钽酸锂晶体畴反转; V. Dierolf 等^[9]采用 488 nm 波长的聚焦激光诱导同成分钽酸锂晶体畴反转; C. L. Sones 等^[10]采用可见激光(514 nm, 488 nm, 457 nm)聚焦诱导同成分纯净和掺镁钽酸锂晶体; 本课题组研究了 365 nm 波长的紫外激光诱导同成分钽酸锂晶体畴反转^[11], 和从 351 nm 至 799 nm 波段内的不同波长和光强的聚焦激光诱导对掺镁钽酸锂晶体成核场的影响^[12]。

激光诱导钽酸锂晶体畴反转研究也取得一定进展。1995 年 S. Chao 等^[13]发现了同成分钽酸锂晶体正向和反向矫顽电场的弛豫效应。1996 年, S. Chao 等^[14]证实多线氩离子激光(488 nm 或 514 nm, 最大超过 1000 mW)的辐照能够在连续的反转周期中升高晶体的矫顽场,阻碍畴反转的进行,利用这种原理可以实现激光控制钽酸锂晶体极化。1997 年, G. W. Ross 等^[15]采用空间调制的多线紫外激光(351 nm 和 364 nm 波长占主导)实现对畴反转的激光诱导,制作出周期极化钽酸锂晶体。1999 年, P. T. Brown 等^[16]采用功率 150 mW、波长为 351~364 nm 的多线紫外激光(364 nm 波长占主导)入射到同成分钽酸锂晶体的 y 面,在晶体内部形成干涉条纹,同时沿晶体 z 向施加均匀外电场,能够制作出周期为 6.3 μm 的周期极化钽酸锂晶体。这些激光

诱导极化方法是一种间接的激光控制畴反转的方法,需要在连续的畴反转周期中进行,并且效果比较差。相比激光诱导钽酸锂晶体畴反转,激光诱导钽酸锂晶体畴反转的研究发展比较缓慢。

本文研究采用波长为 351 nm 的聚焦连续紫外激光诱导近化学计量比钽酸锂晶体铁电畴反转。实验中发现紫外激光诱导能够有效降低近化学计量比钽酸锂晶体畴反转所需的矫顽电场。经过数字全息干涉测量技术检测证实,在紫外激光辐照区域实现畴反转。

2 实 验

实验中采用的是光学量级的近化学计量比钽酸锂单晶,经过 z 向切割和抛光后的尺寸为 10 mm \times 10 mm \times 0.9 mm。实验装置如图 1 所示:石英液体电极提供均匀的外加电场,并允许在加电场的同时进行激光辐照;直流高压电源提供畴反转所需的外电场,沿晶体的 z 向施加电场,为防止外电场突增损坏晶体,采取逐渐升高电压的方法,电压升高速率约为 10 V/s;从氩离子激光器输出波长为 351 nm 的连续紫外激光经过扩束、滤波和准直后,用透镜聚焦在晶体的 $-z$ 表面,焦点处的激光光斑直径约 100 μm ;诱导极化装置被耦合进马赫-曾德尔干涉仪的一支光路中,波长 633 nm 的探测光沿着晶体 z 方向透射形成物光波,与参考光波在电荷耦合器件(CCD)的表面形成干涉场。对于干涉场的应用有两个方面:一方面在诱导反转过程中采用同轴干涉,由于反转区域会在电场的作用下与未反转区域产生光程差,导致干涉场的亮暗发生变化,因此可以据此判断畴反转发生的时机;另一方面,在激光诱导畴反转结束后可将干涉场调整为离轴干涉,对晶体进行数字全息干涉测量^[17,18],定量分析畴反转的实验结果。

图 2 为激光诱导近化学计量比钽酸锂晶体畴反转示意图。连续紫外激光聚焦在晶体的 $-z$ 表面,在激光辐照的同时沿与晶体自发极化相反的方向施加均匀外电场 E_{ext} 。在外电场与激光辐照场的共同作用下,辐照区域逐渐发生畴反转。反转畴与未反转畴的自发极化方向是相反的,可以分别表示为 $P_{\text{s-r}}$ 和 $P_{\text{s-v}}$ 。如果在某一时刻撤去外电场和辐照场,晶体中的反转畴结构便保存下来。

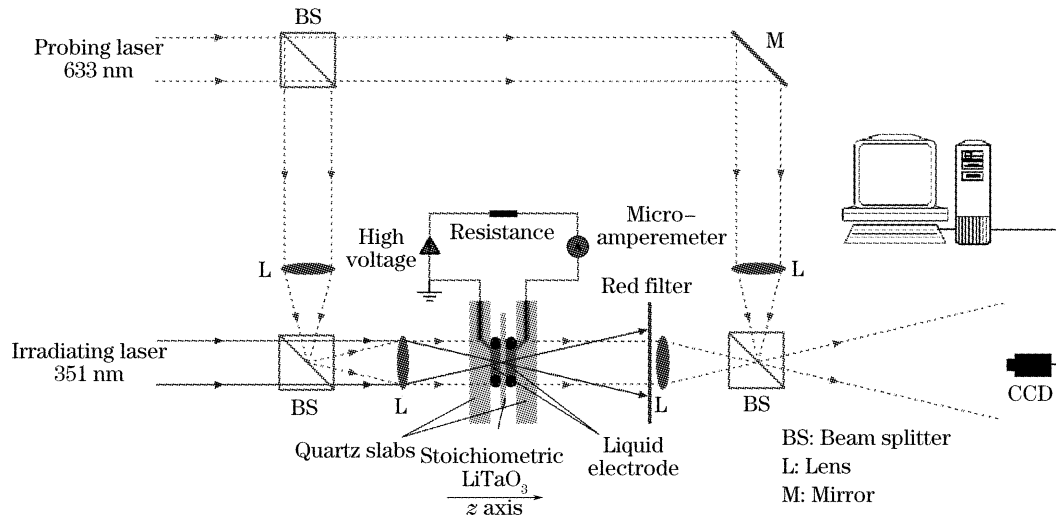


图 1 实验装置示意图

Fig. 1 Schematic drawing of experimental setup

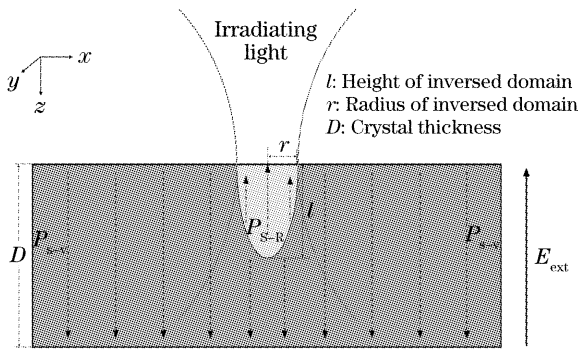


图 2 激光诱导近化学计量比钽酸锂晶体畴反转示意图

Fig. 2 Schematic drawing of laser-induced domain inversion in nearly-stoichiometric LiTaO₃

在诱导反转结束后,对近化学计量比钽酸锂晶体进行数字全息干涉测量。在不加外电场的情况下,沿 z 向传播的探测光经过反转区域与未反转区域没有相位延迟;如果沿晶体的 z 方向施加一定均匀外电场,并且该电场远低于畴反转阈值,就不会对原有畴结构造成任何不利影响,在电光和压电效应的共同作用下,探测光经过未反转区域和反转区域都会沿 z 方向分别产生相移,但是由于未反转区域和反转区域自发极化方向是相反的,产生的相移不同,可以分别表示为 $\Delta\varphi_V$ 和 $\Delta\varphi_R$:

$$\Delta\varphi_V = \frac{2\pi}{\lambda} \left[\frac{1}{2} n_o^3 \gamma_{13} - (n_o - n_w) \left(\frac{e_{33}}{C_{33}} \right) \right] E_{\text{ext}} D, \quad (1)$$

$$\Delta\varphi_R = \frac{2\pi}{\lambda} \left[-\frac{1}{2} n_o^3 \gamma_{13} E_{\text{ext}} l + (n_o - n_w) \left(\frac{e_{33}}{C_{33}} \right) E_{\text{ext}} l + \frac{1}{2} n_o^3 \gamma_{13} E_{\text{ext}} (D - l) - (n_o - n_w) \left(\frac{e_{33}}{C_{33}} \right) E_{\text{ext}} (D - l) \right], \quad (2)$$

因此探测光通过反转区域与未反转区域产生相位延迟 $\Delta\varphi$:

$$\Delta\varphi = \Delta\varphi_R - \Delta\varphi_V = \frac{2\pi}{\lambda} \left[-n_o^3 \gamma_{13} + 2(n_o - n_w) \left(\frac{e_{33}}{C_{33}} \right) \right] E_{\text{ext}} l, \quad (3)$$

这里假定所加电场 E_{ext} 的方向与 P_{S-V} 的方向相反,与 P_{S-R} 方向相同。式中 γ_{13} 是晶体的电光张量元, e_{33} 为晶体的线性压电张量元, C_{33} 为晶体的刚度张量元, n_o 为晶体的寻常光折射率, n_w 为液体电极的折射率。(3)式表明晶体的相位延迟可以由加电场前后透过晶体的物光波信息中的相位信息差值体现。

数字全息干涉测量技术采用电荷耦合器件分别记录加电场前后晶体的像面全息图,将记录的全息图通过计算机进行数值再现,可获得物光波在加电

场前后的相位信息,二者之间的差值即为所求的相位延迟 $\Delta\varphi$ 。由于所得到的相位延迟 $\Delta\varphi$ 与反转畴高度 l 成正比,可以由相位延迟 $\Delta\varphi$ 通过换算得出反转畴的高度 l 。在反转畴体的形成过程中畴体高度不断增长,最后反转畴体穿透晶体实现完全反转,此时的畴体高度 l 和晶体的厚度 D 达到一致。

3 结果和分析

在进行激光诱导畴反转之前,首先测得近化学

计量比钽酸锂晶体在无激光辐照情况下的矫顽场 $E_c(I=0)$ 约为 5.0 kV/mm。然后以不同光强的聚焦紫外激光辐照晶体的一 z 表面,在激光辐照的同时沿与晶体自发极化相反的方向施加均匀外电场。通过监视干涉场的变化确定诱导畴反转发生的时机,记录下不同光强辐照下的晶体矫顽场,实验结果如图 3 所示。351 nm 波长的紫外激光辐照可以有效降低晶体畴反转所需的矫顽电场。入射诱导光强存在一个阈值,低于此阈值就观察不到明显的矫顽场降低;在阈值以上,矫顽场 $E_c(I)$ 随诱导光强的增加呈指数规律下降,在高诱导光强下出现饱和。

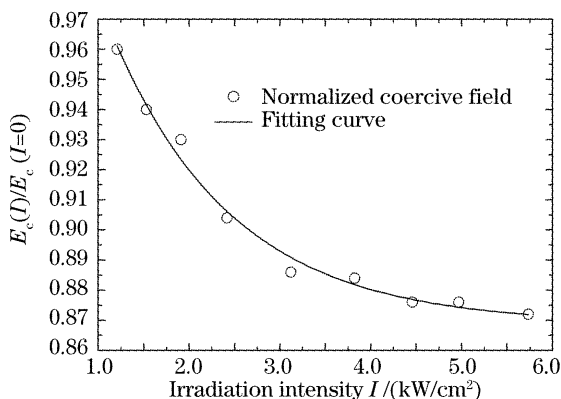


图 3 波长为 351 nm 的紫外激光诱导近化学计量比钽酸锂晶体正向反转情况下,不同诱导光强对归一化矫顽场的影响

Fig. 3 Plot showing the normalized coercive field $E_c(I)/E_c(I=0)$, versus the incident intensity I in the laser-induced forward poling in LiTaO₃

在诱导反转结束后撤去外电场和激光辐照场,采用数字全息干涉测量技术对晶体进行测量,得到反转畴的相位延迟,通过换算进一步可以得到反转

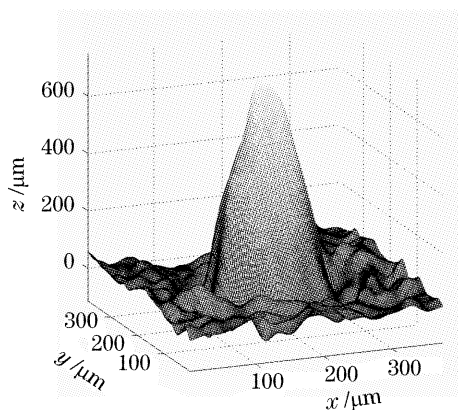


图 4 采用数字全息干涉测量技术绘制激光诱导近化学计量比钽酸锂晶体反转畴体的三维立体形貌

Fig. 4 Three-dimensional inverted domain by laser induction surveyed by digital holographic interferometry in nearly-stoichiometric LiTaO₃ crystal

畴的三维形貌,如图 4 所示。在紫外激光辐照区域实现诱导畴反转,反转畴具有类似半个拉长的橄榄球形状,底面直径约为 120 μm ,高度约为 720 μm ,尚没有穿透晶体的 z 向厚度。如果进一步提高紫外激光的辐照功率和外电场,反转畴体可以穿透晶体的 z 向厚度。尽管速度不同,反转畴的纵向扩张与横向扩张是同时进行的,纵向畴体高度越高,横向畴体直径也就越大。反转畴的形状和聚焦激光光斑功率密度分布有着直接的联系,因此如果采用掩模板来改变聚焦光斑的功率密度分布,可以得到不同形状的反转畴。

与文献[13~16]报导不同,实验中 351 nm 波长的紫外激光诱导能够降低近化学计量比钽酸锂晶体畴反转所需矫顽电场,无论现象还是物理机制都和以往的报导存在很大的不同。从能量的角度分析,为实现畴反转,对晶体施加的外部能量必须超过晶体内部的退极化能和畴壁能^[19]。根据文献[12]的研究结果,在外电场和激光辐照场的共同作用下,晶体内部会产生高浓度、大尺寸的缺陷结构,这些缺陷能够一定程度上降低畴体成核所需要克服的退极化能和畴壁能,因此围绕这些缺陷中心出现优先畴体成核,从而实现激光诱导畴反转。诱导激光的波长越短、光强越强并且所加外场越高,则形成缺陷的尺寸越大,降低成核和畴壁运动所需的能量越多,因此反转成核率也就越高。实验证实这些缺陷结构可以在激光诱导畴反转后保留下来,在新的反转过程中继续充当晶体的优先反转中心。激光诱导钽酸锂和钽酸锂晶体畴反转的物理本质目前尚不清楚,需要做进一步的研究。

在近化学计量比钽酸锂晶体中初步实现了激光诱导畴反转,为系统地开展近化学计量比钽酸锂晶体激光诱导畴反转的相关研究提供了可能的方案。目前有两个关键因素制约实验的进展:一是聚焦激光光斑的尺寸。由于采用透镜聚焦,光斑尺寸约为 100 μm ,诱导反转产生的反转畴尺寸与之相对应,如果采用大数值孔径的显微物镜可以将聚焦光斑尺寸降低一个量级,而且在相同入射光强下聚焦激光光斑的功率密度会提高两个量级,能够使反转畴尺寸降到 10 μm ,甚至降至微米量级,并且完全穿透晶体的 z 向厚度;二是聚焦激光光斑的定位。采用手动控制定位非常困难,很难保证聚焦光斑沿预先设定的方向直线前进,无法实现在晶体中制作出直线型的反转畴,并且如果光斑移动速度控制不均匀,会造成某一位置的反转畴生长失控,制作出的反转畴

会严重不均匀。

预期在充分理解激光诱导畴反转机理和规律的基础上,采用精密的光学聚焦系统和自动控制定位装置,可以在近化学计量化钽酸锂晶体中的任意位置制作任意尺寸与形状的反转畴。

4 结 论

研究了采用波长为 351 nm 的聚焦紫外激光在近化学计量比钽酸锂晶体中实现激光诱导畴反转,并且采用数字全息干涉测量术对畴反转区域进行了三维测量。实验结果表明紫外激光辐照可以有效降低近化学计量比钽酸锂晶体畴反转所需的矫顽电场,在阈值以上激光光强越高,矫顽电场越低,最终在高激光光强下趋于饱和。紫外激光诱导可以实现对近化学计量比钽酸锂晶体铁电畴反转的局域控制,并提出了物理机理的理论分析。这是一种新的紫外激光诱导近化学计量比钽酸锂晶体畴反转的方法,可以为系统地开展近化学计量比钽酸锂晶体激光诱导畴反转的进一步研究提供可行的技术方案。

参 考 文 献

- Shih-Yu Tu, A. H. Kung, Z. D. Gao *et al.*. Efficient periodically poled stoichiometric lithium tantalate optical parametric oscillator for the visible to near-infrared region[J]. *Opt. Lett.*, 2005, **30**(18): 2451~2453
- Z. D. Gao, S. N. Zhu, Shih-Yu Tu *et al.*. Monolithic red-green-blue laser light source based on cascaded wavelength conversion in periodically poled stoichiometric lithium tantalate [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2006, **89**(18): 181101~181103
- M. Yamada, N. Nada, M. Saitoh *et al.*. First-order quasi-phase matched LiNbO₃ waveguide periodically poled by applying an external field for efficient blue second-harmonic generation[J]. *Appl. Phys. Lett.*, 1993, **62**(5): 435~436
- J.-P. Meyn, C. Laue, R. Knappe *et al.*. Fabrication of periodically poled lithium tantalate for UV generation with diode lasers[J]. *Appl. Phys. B*, 2001, **73**(2): 111~114
- Lü Hang, Chen Xianfeng, Chen Lijun *et al.*. Electrical-poling technology of lithium tantalate for quasi-velocity-matching phase modulator[J]. *Chin. J. Lasers*, 2006, **33**(3): 371~375 (in Chinese)
吕 航,陈险峰,陈理军等. 准速度匹配相位调制器钽酸锂晶体的室温电场极化技术[J]. *中国激光*, 2006, **33**(3): 371~375
- Chen Yunlin, Xu Jingjun, Song Feng *et al.*. Study on technology of periodic poling bulk LiNbO₃ by applying external field[J]. *Acta Optica Sinica*, 2001, **21**(5): 618~620 (in Chinese)
陈云琳,许京军,宋 峰等. 外加电场极化法制备 LiNbO₃ 周期性畴反转的工艺研究[J]. *光学学报*, 2001, **21**(5): 618~620
- Manfred Müller, Elisabeth Soergel, Karsten Buse. Influence of ultraviolet illumination on the poling characteristics of lithium niobate crystals[J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2003, **83**(9): 1824~1826
- M. C. Wengler, B. Fassbender, E. Soergel *et al.*. Impact of ultraviolet light on coercive field, poling dynamics and poling quality of various lithium niobate crystals from different sources [J]. *J. Appl. Phys.*, 2004, **96**(5): 2816~2820
- V. Dierolf, C. Sandmann. Direct-write method for domain inversion patterns in LiNbO₃ [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2004, **84**(20): 3987~3989
- C. L. Sones, M. C. Wengler, C. E. Valdivia *et al.*. Light-induced order-of-magnitude decrease in the electric field for domain nucleation in MgO-doped lithium niobate crystals [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2005, **86**(21): 212901~212903
- Xi Qingxin, Liu Dean, Zhi Yanan *et al.*. Experimental study of ultraviolet laser-induced domain reversion in LiNbO₃ crystals[J]. *Acta Optica Sinica*, 2005, **25**(3): 431~432 (in Chinese)
奚庆新,刘德安,职亚楠等. 钽酸锂晶体紫外激光诱导畴反转实验研究[J]. *光学学报*, 2005, **25**(3): 431~432
- Ya'nan Zhi, De'an Liu, Weijuan Qu *et al.*. Wavelength dependence of light-induced domain nucleation in MgO-doped congruent LiNbO₃ crystal[J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2007, **90**(4): 042904~042906
- Shiuh Chao, William Davis, David D. Tuschel *et al.*. Time dependence of ferroelectric coercive field after domain inversion for lithium-tantalate crystal [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 1995, **67**(8): 1066~1068
- Shiuh Chao, Chien-Chung Hung. Large photoinduced ferroelectric coercive field increase and photodefined domain pattern in lithium-tantalate crystal [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 1996, **69**(25): 3803~3805
- Graeme W. Ross, Peter G. R. Smith, Robert W. Eason. Optical control of electric field poling in LiTaO₃ [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 1997, **71**(3): 309~311
- Paul T. Brown, Graeme W. Ross, Robert W. Eason *et al.*. Control of domain structures in lithium tantalate using interferometric optical patterning [J]. *Opt. Commun.*, 1999, **163**(4~6): 310~316
- Ya'nan Zhi, Weijuan Qu, De'an Liu *et al.*. Ridge-shape phase distribution adjacent to 180° domain wall in congruent LiNbO₃ crystal[J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2006, **89**(11): 112912~112914
- Qu Weijuan, Liu De'an, Zhi Ya'nan *et al.*. Visualization of domain inversion region characteristics in RuO₂:LiNbO₃ crystal by digital holographic interferometry[J]. *Acta Physica Sinica*, 2006, **55**(8): 4276~4281 (in Chinese)
曲伟娟,刘德安,职亚楠等. 利用数字全息干涉术观察 RuO₂:LiNbO₃ 晶体中畴反转的区域特性[J]. *物理学报*, 2006, **55**(8): 4276~4281
- Rolf Landauer. Electrostatic considerations in BaTiO₃ domain formation during polarization reversal [J]. *J. Appl. Phys.*, 1957, **28**(2): 227~234