

诱导光偏振态对激光诱导掺杂铌酸锂晶体畴反转的影响

侯培培 职亚楠 孙建锋 刘立人

(中国科学院上海光学精密机械研究所空间激光通信及检验技术重点实验室, 上海 201800)

摘要 研究了诱导光的偏振态对激光诱导原子数分数为 3% 掺镁同成分铌酸锂晶体和原子数分数为 3% 掺钪同成分铌酸锂晶体畴反转的影响。用数字全息干涉测量的方法再现了激光诱导畴反转过程中的相位分布。通过对比线偏振、圆偏振和椭圆偏振不同偏振态诱导光形成的成核场, 认为诱导过程中出现的沿 z 方向的空间电荷场对激光诱导优先畴成核有着非常重要的影响。不仅给出了激光诱导畴工程进一步优化的基本信息, 而且为激光诱导畴成核理论的研究提供了新的实验依据。

关键词 激光光学; 畴反转; 激光诱导; 偏振态; 数字全息干涉术; 空间电荷场; 光生伏打效应

中图分类号 O731 **文献标识码** A **doi**: 10.3788/AOS201131.0216004

Influence of Polarization State on Laser-Induced Domain Nucleation in Doped Lithium Niobate

Hou Peipei Zhi Yanan Sun Jianfeng Liu Liren

(Key Laboratory of Space Laser Communication and Testing Technology, Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China)

Abstract The influence of polarization state on laser-induced domain nucleation in Mg-doped and Hf-doped LiNbO₃ is investigated. The phase distributions during laser-induced domain nucleation are reconstructed by digital holographic interferometry. The comparisons of nucleation field with different polarization states including linear polarization, circular polarization and elliptical polarization are performed. The generated space-charge field along z direction is thought to be important mechanism. Not only the essential information for the future optimization of laser-induced domain engineering is provided, but also the new experimental evidences for the future mechanism investigation of laser-induced domain nucleation are supplied.

Key words laser optics; domain inversion; laser induction; polarization state; digital holographic interferometry; space-charge field; photovoltaic effect

OCIS codes 160.3380; 290.5855; 040.5350

1 引 言

激光诱导铁电畴反转是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, 有望实现微米和亚微米量级的畴反转, 对畴工程的发展具有重要的意义。激光诱导铌酸锂晶体(LN)畴反转已经取得较大进展: 报道了纯净 LN 和掺杂 LN 的激光诱导畴反

收稿日期: 2010-05-24; **收到修改稿日期**: 2010-06-25

基金项目: 国家自然科学基金委员会青年基金(60708018, 60908029)、上海市自然科学基金(09ZR1435300)和中国科学院“院长奖获得者”科研启动专项资金资助课题。

作者简介: 侯培培(1981—), 女, 博士研究生, 主要从事铁电晶体畴工程及光折变光学等方面的研究。

E-mail: houpeipei@siom.ac.cn

导师简介: 刘立人(1942—), 男, 博士, 研究员, 主要从事激光技术和光学信息领域等方面的研究。

E-mail: lirenliu@mail.shnc.ac.cn

本文电子版彩色效果详见中国光学期刊网(<http://www.opticsjournal.net>)

转^[1];报道了聚焦可见光直接在非掺杂 LN 表面写入表面畴^[2];研究了紫外光对非掺杂和掺镁 LN 极化特性的影响^[3~5];报道了聚焦可见激光诱导掺镁 LN 降低成核场^[6];系统研究了近紫外-近红外不同波长诱导掺镁同成分铌酸锂晶体(MgCLN)畴反转^[7];实现了在掺锆^[8]和掺铪^[9]铌酸锂晶体(HfCLN)中激光诱导畴反转;观察到了在单轴 LN 中激光诱导产生的极化延迟^[10]。然而,诱导光的偏振态在同成分掺杂的 LN 中对激光诱导畴反转的影响^[11,12]目前还没有系统的研究报道。

激光诱导 LN 畴反转过程的基本信息需要通过实时观测和分析得到。数字全息干涉技术是解决这一问题的最好方法^[13~16]。作为无接触、无破坏且具有较高分辨率的测量透明介质中相位变化的技术,数字全息干涉术通过对折射系数和深度引起的光路变化的测量实现了准实时监控、检测和分析^[17]。本文利用数字全息干涉术获得了激光诱导畴反转的实时相位图,分析讨论了诱导光的偏振态对激光诱导 LN 畴反转的影响。

2 实验设置

实验采用 Czochralski 法提拉生长,经极化、退火处理后的晶体沿 z 轴方向切割, z 切基片为 0.5 mm 厚、掺镁原子数分数为 3% 的 MgCLN 和掺

铪原子数分数为 3% 的 HfCLN 晶体。实验装置示意图如图 1 所示。石英液体电极提供沿晶体 $-z$ 轴方向均匀的外加电场,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,采取逐渐升高电压的方法,电压升高速率约为 10 V/s;波长 514 nm 的连续可见光作为诱导光,经过扩束、滤波和准直后,以不同偏振态经透镜聚焦在晶体的 z 表面,焦点处的激光光斑直径约 30 μm 。利用半波片实现不同的线偏振,利用 $\lambda/4$ 波片实现不同的椭圆偏振。诱导极化装置被耦合进马赫-曾德尔干涉仪的一支光路中,一束波长 633 nm 的探测光通过偏振光束分光镜耦合与诱导光(514 nm)共轴,沿着晶体的 z 方向透射后,诱导光被滤波片滤波,只允许由探测光形成的物光波通过。物光波和另一束波长 633 nm 的参考光波在 CCD 感光表面干涉。CCD 的分辨率为 9.4 $\mu\text{m} \times 9.4 \mu\text{m}$,像素数为 720 pixel \times 576 pixel,成像系统 10 倍放大,成像分辨率为 0.94 $\mu\text{m} \times 0.94 \mu\text{m}$ 。激光诱导优先畴成核过程中,CCD 以 15 frame/s 的速度记录干涉图像的变化,通过数字全息干涉术的数值重建可以得到畴成核过程中相位变化,实现对激光诱导优先畴成核过程的定量和定性分析。在相位分布上首次观察到 180° 反转畴体成核定义为畴成核。在无任何激光辐照下沿正极化方向测得的矫顽场 $E_c(I=0)$ 称为暗极化电场。

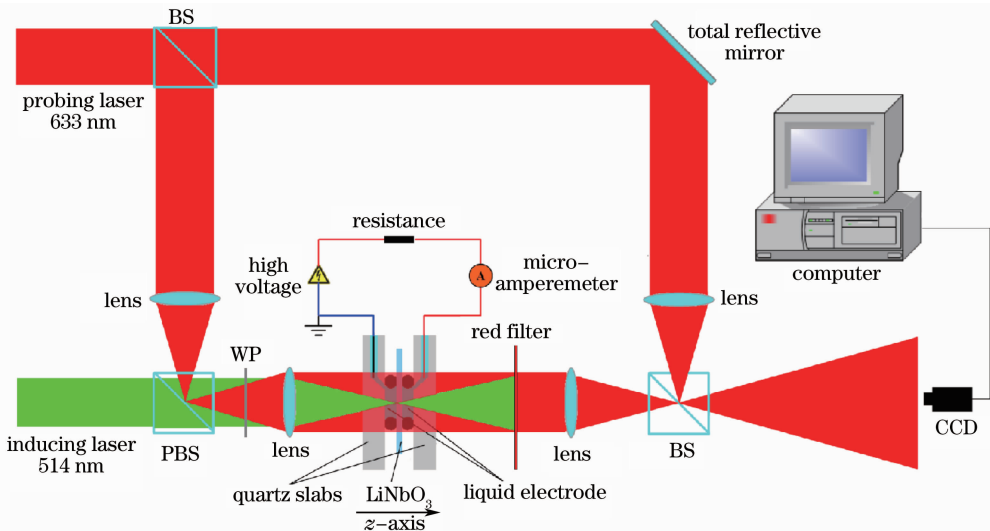


图 1 实验装置示意图

Fig. 1 Schematic diagram of experimental setup

3 实验结果和分析

图 2 给出了利用数字全息干涉术重建的激光诱导 MgCLN 优先畴成核过程中连续二维相位分布,6

幅图描述了不同时刻线偏振诱导光辐照的畴成核过程,相邻两幅图之间的时间间隔约为 10 s。颜色代表重建的相位值,深度代表相位符号。实验观察和

分析如下。首先,观察到了在 LN 中不同偏振态激光诱导优先畴成核过程,测得成核场 $E_n(I)$ 、畴核尺寸和形状等重要信息。其次,线偏振辐照产生的畴

核相位大致呈中心对称分布,(a),(b)给出了 MgCLN 样品环状的初始阶段相位分布实验结果,在 HfCLN 样品中也观察到了相似结果。

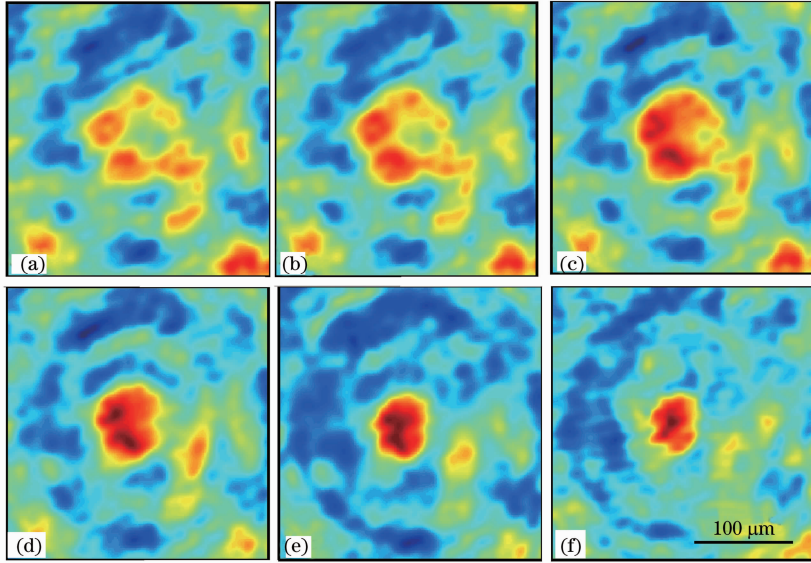


图 2 应用数字全息干涉术重建的激光诱导 MgCLN 优先畴成核过程中连续二维相位分布

Fig. 2 Selected sequence of reconstructed two-dimensional wave-field phase distributions during the laser-induced domain nucleation in MgCLN by digital holographic interferometry

图 3(a),(b)给出了 MgCLN 和 HfCLN 分别在垂直偏振、水平偏振、圆偏振和椭圆偏振 4 种不同偏振态的规一化成核场 $E_n(I)/E_n(I=0)$ 。实验采用两种诱导方式:1)在晶体的 $+z$ 面聚焦;2)在晶体的 $-z$ 面聚焦。椭圆的长轴与主光轴约成 30° ,椭圆的长短半轴关系满足 $a/b=\sqrt{3}$ 。实验观察和分析如下。1)在低光强辐照下成核场随诱导光强的增强呈线性减小,在高光强辐照下逐渐达到饱和值。2)相同诱导方式下,低光强辐照时水平和垂直偏振的结果明显不同,相同的辐照光强垂直偏振成核场低于水平偏振成核场。这种差别随辐照光强的增加逐渐

减小,最后消失。3) $-z$ 面聚焦时,相同辐照光强下线偏振的成核场比圆偏振和椭圆偏振低,相应的线偏振成核场的饱和值低于圆偏振和椭圆偏振。4)相同辐照光强下,线偏振诱导光 $+z$ 面聚焦形成的成核场高于 $-z$ 面,相应的 $+z$ 面聚焦的成核场饱和值高于 $-z$ 面。将样品刻蚀后在显微镜下观察,两种诱导方式均在 $-z$ 面优先畴成核。由于数字全息干涉只能提供沿 z 方向压缩的相位信息,不能获得深度分析,因此进一步的实验证明是必要的。5)MgCLN 晶体在低光强辐照下成核场的饱和值低于 HfCLN 晶体,但它们的变化过程十分相似。

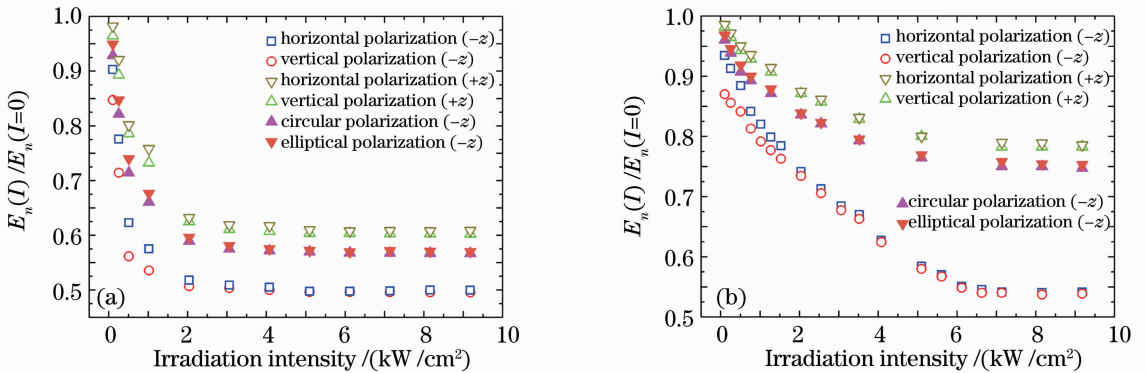


图 3 (a) MgCLN 和 (b) HfCLN 在不同偏振态的规一化成核场 $E_n(I)/E_n(I=0)$

Fig. 3 Normalized nucleation field $E_n(I)/E_n(I=0)$ is shown as the function of irradiation intensity with different polarization states in (a) MgCLN and (b) HfCLN, respectively

4 讨 论

依据实验结果,在接下来的分析和讨论中激光诱导 HfCLN 畴反转的机理与 MgCLN 相同。认为体光伏打效应产生的空间电荷场^[18]对激光诱导优先畴成核现象起着重要影响。图 4 给出了激光诱导畴成核物理模型的示意图。图中 P_{S-R} 为反转畴的自发极化; P_{S-V} 为未反转畴的自发极化; E_{ext} 为沿 $-z$ 方向施加的均匀的电场; E_{sc} 为空间电荷场。以最简单的例子进行说明,仅考虑竖直偏振诱导光在 $y-z$ 平面内,其产生沿 $-z$ 方向的光生伏打电流 j_3^{phv} 。根据欧姆定理得到沿 $-z$ 方向的空间电荷场可以表示为

$$E_{sc}(z) = \frac{j_3^{phv}}{\sigma_{ph}(z) + \sigma_d(z)}, \quad (1)$$

式中 $\sigma_{ph}(z)$ 和 $\sigma_d(z)$ 分别表示光强沿 z 方向均匀分布时有光照和无光照时的电导率。入射光 j_1^{phv} 和 j_2^{phv} 分量决定在 $x-y$ 平面的相位分布, j_3^{phv} 分量决定沿 z 方向分布的空间电荷场,如图 4(a) 所示。图 4(b) 表明 z 方向空间电荷场的形成有利于优先畴成核。对于线偏振辐照, j_1^{phv} 和 j_2^{phv} 均为零。因此会观察到成核的相位分布大致呈中心对称。空间电荷场的分布与强度由辐照区域载流子的光激发和俘获之间复杂的竞争来决定,在图 2(a), (b) 中观察到激光焦点畴核周围的环状分布。此外,沿晶体 z 方向的光生伏打电流可以进一步表述为光生伏打张量结构形式:当入射光偏振方向为竖直偏振时,入射光的偏振方向

在各方向的电场分量 $E_1 \neq 0, E_2 \neq 0, E_3 \neq 0$, 则沿晶体 z 方向的光生伏打电流为

$$j_3^{phv} = \beta_{31} |E_1|^2 + \beta_{31} |E_2|^2 + \beta_{33} |E_3|^2. \quad (2)$$

当入射光偏振方向为水平偏振时,入射光的偏振方向在各方向的电场分量 $E_1 \neq 0, E_2 \neq 0, E_3 = 0$, 则沿晶体 z 方向的光生伏打电流为

$$j_3^{phv} = \beta_{31} |E_1|^2 + \beta_{31} |E_2|^2, \quad (3)$$

式中 β_{33}, β_{31} 为光生伏打张量元,且 $\beta_{31} < \beta_{33}$ ^[19]。因此,入射光强相同的情况下,竖直偏振诱导光形成的沿晶体 z 方向的光生伏打电流高于水平偏振诱导光沿晶体 z 方向形成的光生伏打电流,所以,竖直偏振激光诱导畴反转的成核场低于水平偏振激光诱导畴反转的成核场。图 3 给出不同偏振态诱导光的成核场明显不同,证实上述偏差与实验观察相符合。从图 3 实验结果同时可以观察到,空间电荷场的强度随辐照光强逐渐增加,在低光强辐照时空间电荷场的强度和辐照光强成正比,在这种情况下成核场随辐照光强增加大致呈线性减少;在高光强辐照时空间电荷场逐渐达到某一饱和值,对应的成核场也逐渐达到饱和值。依据实验结果,在低光强辐照时空间电荷场的强度和辐照光强成正比,所以光生伏打电流与光强的关系也成正比,则光生伏打电流密度和光强的关系可以表示为^[20]

$$j_{phv} = aI. \quad (4)$$

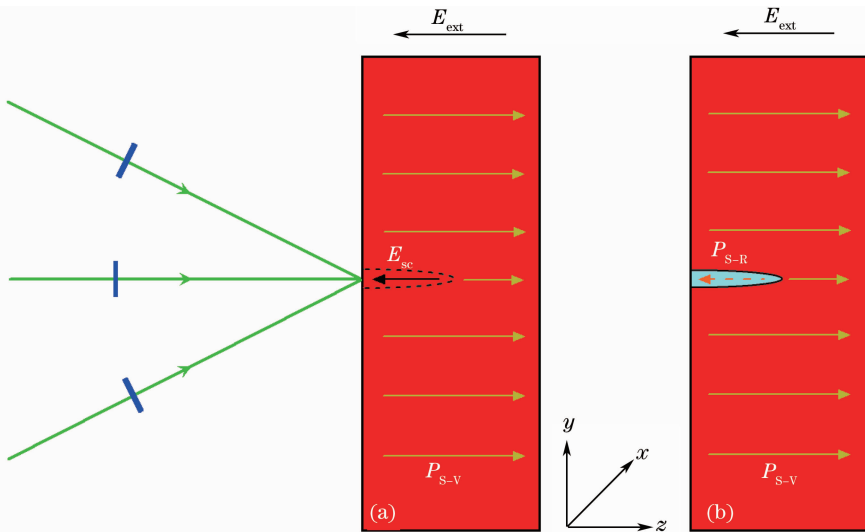


图 4 激光诱导畴体成核的定性的物理模型

Fig. 4 Qualitative physical model of laser-induced domain nucleation

在高光强辐照下空间电荷场会逐渐达到某一饱和值,此时对应的光生伏打电流与光强的关系成线

性,则在高光强辐照下光生伏打电流密度和光强的关系可以表示为^[20]

$$j_{\text{phv}} = aI + bI^2. \quad (5)$$

空间电荷场沿 z 方向随诱导时间逐渐增加,因此成核过程在几秒的时间内发生。这种方式产生强空间电荷场,所以高光强、短波长更适合激光诱导畴反转。诱导光偏振态影响光生伏打效应,显然空间电荷场也依赖于诱导光偏振态。光电离的扩散和漂移影响电场的分布,但不是主要影响因素。Mg 或 Hf 掺杂离子对体光生伏打电流没有的影响,但光电导是增大的^[21]。尽管掺杂 Mg 和 Hf 的 LiNbO₃ 晶体可以降低光折变效应,但是如果光强足够高,光生伏打效应产生的空间电荷场可以达到每毫米千伏量级。通过测量 $E_n(I=0)$ 和饱和值 $E_n(I)$ 得到 HfCLN 和 MgCLN 沿 z 方向的空间电荷场分别为 2.5 kV/mm 和 1.4 kV/mm。

本文对研究激光诱导掺杂的 LN 畴反转具有重要的意义。一方面,激光诱导畴反过程的重要信息有利于未来激光诱导畴工程的优化。本实验方法可以实现激光诱导畴反转的精确控制。另一方面,本文为激光诱导 LN 畴成核的理论研究提供了新的实验依据。目前激光诱导畴反转已经给出不同的物理解释^[2~8]。但定性的解释必须有足够的实验证据。本文认为光生伏打效应产生沿 z 方向的空间电荷场引起优先畴成核,并给出了相应的实验依据。由于晶体内未知的参数和复杂的不均匀光分布等因素,很难计算出与实验结果对应的具体的空间电荷场。体光生伏打张量元,不仅取决于诱导光的偏振和波长,还取决于晶体的掺杂类型和浓度,根据光生伏打效应的空间电荷场理论给出了定性的物理模型。但该模型还不能合理的解释许多实验结果,例如激光诱导畴反转的两种入射方式下,一 z 面出现优先畴成核现象;激光诱导使掺镁 LN 畴反转成核场降低一个数量级^[5]等。目前空间电荷场只能被视为是激光诱导畴反转的重要机制。一系列的理论分析和空间电荷场模拟包括波长、偏振态、强度、脉冲持续时间和掺杂类型等还没有完成。真正的影响机制是非常复杂的,需要进一步研究。

5 结 论

本文研究了诱导光的偏振态对激光诱导 MgCLN 和 HfCLN 畴反转的影响。给出了激光诱导畴反转过程重建的二维相位分布。测量和对比了竖直偏振、水平偏振、圆偏振和椭圆偏振不同偏振态诱导光与成核场的关系。提出 z 方向空间电荷场的形成是影响激光诱导 LN 优先畴成核的重要因素,

并给出了定性的物理模型。

参 考 文 献

- Mingli Hu, Longjiang Hu, Jenqyang Chang. Polarization switching of pure and MgO-doped lithium niobate crystals [J]. *J. Appl. Phys.*, 2003, **42**(12): 7414~7417
- V. Dierolf, C. Sandmann. Direct-write method for domain inversion patterns in LiNbO₃ [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2004, **84**(20): 3987~3989
- M. Müller, E. Soergel, K. 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]. *Appl. Phys.*, 2004, **96**(5): 2816~2820
- M. C. Wengler, U. Heinemeyer, E. Soergel *et al.*. Ultraviolet light-assisted domain inversion in magnesium-doped lithium niobate crystal [J]. *Appl. Phys.*, 2005, **98**(6): 064104~064104-7
- 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): 212901~212901-3
- Y. N. Zhi, D. A. Liu, W. J. Qu *et al.*. Wavelength dependence of light-induced domain nucleation in MgO-doped congruent LiNbO₃ crystal [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2007, **90**(4): 042904~042904-3
- W. J. Wang, Y. F. Kong, H. D. Liu *et al.*. Light-induced domain reversal in doped lithium niobate crystals [J]. *J. Appl. Phys.*, 2009, **105**(4): 043105~043105-4
- P. P. Hou, Y. N. Zhi, L. R. Liu. Laser-induced preferential domain nucleation in hafnium-doped congruent lithium niobate crystal [J]. *Appl. Phys. A*, 2010, **99**(1): 105~109
- Y. J. Ying, C. E. Valdivia, C. L. Sones *et al.*. Latent light-assisted poling of LiNbO₃ [J]. *Opt. Express*, 2009, **17**(21): 18681~18692
- A. Novikov, S. Odoulov, O. Oleinik *et al.*. Beam-coupling, four-wave mixing and optical oscillation due to spatially oscillation photovoltaic currents in lithium niobate crystals [J]. *Ferroelectrics*, 1987, **75**(1): 295~315
- Melania Paturzo, Lara Aiello, Felice Pignatiello *et al.*. Investigation of optical birefringence at ferroelectric domain wall in LiNbO₃ by phase-shift polarimetry [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2006, **88**(15): 151918~151918-3
- Wang Hui. Development status of digital holography and its application in 3D display and detection [J]. *Laser & Optoelectronics Progress*, 2009, **46**(8): 19~25
王 辉. 数字化全息及其在三维显示和检测中的应用[J]. *激光与光电子学进展*, 2009, **46**(8): 19~25
- Y. N. Zhi, D. A. Liu, J. F. Sun *et al.*. Phase mapping of domain kinetics in lithium niobate by digital holographic interferometry [J]. *J. Appl. Phys.*, 2009, **105**(2): 024106~024106-8
- Zhi Yanan, Liu Dean, Qu Weijuan *et al.*. Ultraviolet laser-induced ferroelectric domain inversion in nearly-stoichiometric LiTaO₃ crystal [J]. *Acta Optica Sinica*, 2007, **27**(12): 2220~2224
职亚楠, 刘德安, 曲伟娟等. 紫外激光诱导近化学计量比钽酸锂晶体铁电畴反转[J]. *光学学报*, 2007, **27**(12): 2220~2224
- 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

- 曲伟娟, 刘德安, 职亚楠 等. 利用数字全息干涉术观察 RuO_2 : LiNbO_3 晶体中畴反转的区域特性[J]. 物理学报, 2006, **55**(8): 4276~4281
- 17 I. Yamaguchi, T. Zhang. Phase-shifting digital holography [J]. *Opt. Lett.*, 1997, **22**(6): 1268
- 18 K. Buse. Light-induced charge transport processes in photorefractive crystals I: materials and experimental methods [J]. *Appl. Phys. B*, 1997, **64**(4): 273~291
- 19 M. Simon, St Wevering, K. Buse *et al.*. The bulk photovoltaic effect of photorefractive LiNbO_3 : Fe crystals at high light intensities [J]. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, 1997, **30**(1): 144~149
- 20 R. Sommerfeldt, L. Holtmann, E. Krätzig *et al.*. Influence of Mg doping and composition on the light-induced charge transport in LiNbO_3 [J]. *Phys. Stat. Sol. (a)*, 1988, **106**(1): 89~98
- 21 K. Buse. Light-induced charge transport processes in photorefractive crystals II: Materials [J]. *Appl. Phys. B*, 1997, **64**(4): 391~407