

# 掺镁铌酸锂晶体亚微米畴结构特性研究\*

姚江宏 陈亚辉 颜博霞 邓浩亮 孔勇发 陈绍林 许京军 张光寅

(南开大学物理学院, 天津 300071)

(南开大学泰达学院应用物理学院, 天津 300060)

(2003 年 7 月 3 日收到, 2004 年 2 月 13 日收到修改稿)

基于畴背向反转效应, 利用外加短脉冲极化电场, 通过对脉冲宽度、脉冲间隔以及脉冲个数的有效控制, 在掺 5 mol% 镁的铌酸锂晶体上得到周期为  $1.7 \mu\text{m}$  的均匀亚微米畴结构, 其纵向深度为  $30\text{--}50 \mu\text{m}$ . 同时, 使用脉冲宽度为 100 ms 的宽脉冲信号得到了畴带宽度仅为  $0.5 \mu\text{m}$  的非对称微畴结构. 对亚微米畴结构产生的微观机制和物理过程进行了初步探讨.

关键词: 畴结构, 背向反转效应, 掺镁铌酸锂晶体, 周期极化

PACC: 7780, 4270

## 1. 引言

近年来, 铌酸锂晶体以其优异的电光和非线性光学性能, 成为制备周期极化准相位匹配光学器件的常用材料之一. 到目前为止, 人们利用准相位匹配技术, 已经在周期极化铌酸锂晶体上实现了蓝绿光倍频输出<sup>[1, 2]</sup>以及光学参量振荡<sup>[3, 4]</sup>. 与上述应用相联系的微畴工艺也得到了迅速发展, 其中外加电场极化法已成为制备周期微结构最成熟、最常用的方法之一. Miller 等<sup>[5]</sup>通过控制极化电场波形, 在 76 mm 长, 0.5 mm 厚的  $\text{LiNbO}_3$  晶体上得到了周期为  $6.5 \mu\text{m}$  的均匀畴结构, 而且目前已经出现了商品化的周期极化铌酸锂(PPLN)非线性光学器件. 然而在利用外场极化法制备周期微结构的过程中, 存在着极化电场过大(21 kV/mm), 成核不均匀以及畴壁横向扩展等一系列问题, 这些因素严重制约了短周期微结构的制备, 影响了光学微结构的应用领域和范围.

随着周期极化畴工艺的发展, 亚微米甚至纳米周期微结构的制备正引起人们更多的关注, 并取得了一定进展. Sugita 等<sup>[6]</sup>采用施加多个短脉冲的方法通过抑制畴横向扩展成功地在掺镁铌酸锂晶体上制备出周期为  $2.2 \mu\text{m}$ 、厚度为  $1.5 \mu\text{m}$  的均匀周期

畴结构. 文献[7]报道了利用畴的背向反转效应(backswitching)通过控制极化电场的输出方式实现了均匀纳米周期畴结构制备. 然而在上述制备过程中, 不可避免地存在着极化电场控制复杂、微畴结构的尺寸及均匀性不易控制等问题. 本文基于畴极化过程中的背向反转效应, 提出采用短脉冲外加极化场, 通过对脉冲宽度、脉冲间隔以及脉冲个数的有效控制, 在掺镁铌酸锂晶体上直接得到了均匀的亚微米周期畴结构, 并对亚微米畴结构产生的物理过程和微观机制进行了初步探讨.

## 2. 实验原理

通常所用的铌酸锂晶体为同成分组分, 即  $[\text{Li}]/[\text{Li} + \text{Nb}]$  为 48.4%, 由于存在非化学计量组分, 根据锂空位模型, 晶体中存在大约 4mol% 的反位铌和锂空位. 这些本征缺陷的存在, 导致在铌酸锂晶体中形成一内场, 通常此内场与铁电畴的自发极化方向一致. 在利用外电场进行周期极化的过程中, 当铁电畴在外场作用下发生极化反转后, 内场的方向会随着畴反转通过弛豫过程发生改变. 大量实验研究表明, 晶体中的内场可分为两部分, 分别对应不同的本征缺陷结构. 在常温条件下, 一部分内场的反转弛豫时间为  $10\text{--}100 \text{ms}$ , 而另一部分的反转弛豫

\* 国家自然科学基金重大项目(批准号 90101022), 天津市自然科学基金(批准号 033600911)和红外物理国家重点实验室基金资助的课题.

时间则需要数天<sup>[8,9]</sup>,我们将这两种不同性质的内场分别称为  $E_f$  和  $E_s$ .同时,内场在弛豫完成前会对极化反转畴产生反作用,迫使其恢复到极化前的状态,这种现象称为极化畴的背向反转效应.由于  $E_f$  比  $E_s$  大一个数量级<sup>[10]</sup>,因此  $E_f$  在背向反转效应中起主要作用.在传统的周期极化工艺中,铁电畴极化反转后外加电场不能立即去掉,需要在矫顽场附近保持一段时间,然后再缓慢下降到零,使内场  $E_f$  得到有效弛豫从而抑制极化畴的背向反转<sup>[11]</sup>.如果采用短脉冲外加电场,设计脉冲宽度小于内场  $E_f$  的弛豫时间,则当极化信号结束后  $E_f$  的方向还没得到有效反转,极化畴就会在此内场的作用下发生背向反转,重新回到初始状态.由于极化畴的背向反转总是从电极的边缘开始,因此背向反转效应会导致极化畴的劈裂,形成亚微米畴结构<sup>[7]</sup>.

本文就是基于上述背向反转效应,通过对高掺镁铌酸锂晶体施加短脉冲极化电场得到亚微米畴结构.在极化过程中,通过合理控制极化电场的脉冲宽度和脉冲间隔,控制实际注入样品的电荷量,从而实现极化反转和背向反转畴结构的有效控制.在整个实验过程中,极化电场信号的脉冲宽度、间隔以及数量是控制周期畴结构的主要参量.

### 3. 结果与讨论

本文使用的样品为掺 5mol% 镁的 Z 切铌酸锂晶体,厚度为 1 mm,长和宽均为 10 mm.这里我们选用掺 5mol% 镁的铌酸锂晶体作为周期极化材料,主要考虑到该晶体不仅具有良好的抗光折变性能,同时它的极化电场要比同成分铌酸锂低<sup>[12]</sup>.样品被双面抛光后,在 Z 向两面各蒸镀一层厚度为 400 nm 左右的金属铝膜,采用半导体光刻工艺在其 +Z 面制备出周期为 6.8  $\mu\text{m}$  的条纹电极.对晶体两端面的极化电压以及流过晶体的极化电流使用数字示波器进行监测.所用电源是自行设计的高压脉冲电源,其脉冲宽度和脉冲间隔在 1 ms—1 s 间可调.

实验中我们首先注意到,对高掺镁铌酸锂晶体只需 8 kV/mm 的外加脉冲电场就能实现畴极化反转,此结果只相当于同成分铌酸锂晶体极化电场的 1/3.这对制备厚度大于 0.5 mm 的周期微结构非常有利.实验开始时采用强度为 8 kV/mm、脉冲宽度和间隔分别为 10 和 20 ms 的极化电场对样品进行极化,用数字示波器记录了晶体两端的极化电压和极

化电流波形,如图 1 所示.从图 1 可以看出,当电源输出一个脉冲电压信号时,晶体中出现一个极化电流,标志着畴发生极化反转.而当脉冲信号结束时,在电流波形中出现一反向电流,此反向电流即为背向反转电流,其峰值要比极化电流小,持续时间在 15 ms 左右.这表明在内场的作用下,极化畴发生了背向反转.此外,畴背向反转时间与内场  $E_f$  弛豫时间相接近,间接证实了  $E_f$  在背向反转效应中起主要作用.

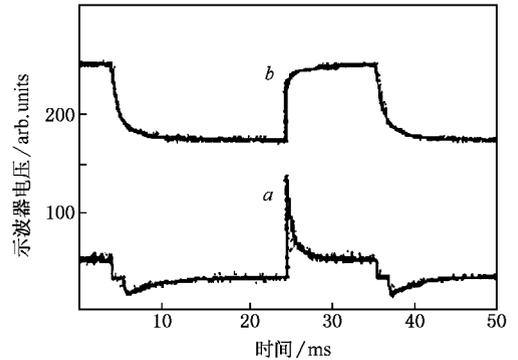


图 1 掺镁铌酸锂晶体极化电压和电流波形. 曲线 a 为电流波形,曲线 b 为电压波形

采用上述脉冲极化电场,我们在条纹电极周期为 6.8  $\mu\text{m}$  的样品上得到了周期为 1.7  $\mu\text{m}$  的微畴结构,如图 2 所示.由于所得畴结构周期很小,若用传统腐蚀法观测,在腐蚀过程中容易破坏得到的畴结构,这里采用微区显微拉曼偏光显微镜对得到的亚微米畴在未腐蚀情况下直接观测.

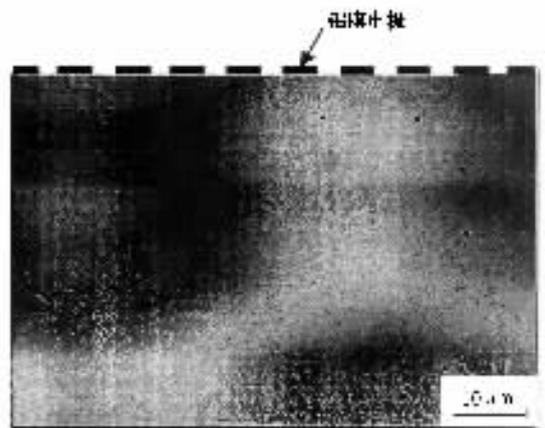


图 2 周期极化掺镁铌酸锂亚微米畴结构

从图 2 可以看出,镀电极的区域畴劈裂成 5 部分,而未镀电极部分畴劈裂为 3 部分,从而形成周期为 1.7  $\mu\text{m}$  左右的亚微米畴结构.当施加极化脉冲信

号时,样品上镀铝膜电极区域的畴发生极化反转,由于畴壁的横向扩展,极化反转畴会超出电极区域.脉冲信号结束后,在内场的作用下极化反转畴会发生背向反转.畴的背向反转首先从电极边缘的畴核开始,这些畴核在内场作用下运动,导致了在电极边缘出现两条与电极平行的背向反转畴带,使镀电极的区域劈裂成 5 部分.未镀电极区域中间也出现了一条反转畴带,使未镀电极的区域劈裂成 3 部分.对于未镀电极区域出现的这条反转畴,在文献 [7] 中也有报道,但其产生的微观机制目前还不十分清楚.所形成的微畴结构的方向平行于晶体的  $Y$  轴,排列非常规则,体现了铌酸锂晶体铁电畴在极化反转和背向反转过程中的一种自组织行为.同时,使用微区显微拉曼偏光显微镜,通过对极化样品不同层面进行聚焦,观测了畴结构的纵向分布,发现这种亚微米畴结构只存在于  $+Z$  面表面附近,其深度与施加脉冲信号的个数有关.当施加 30 个脉冲时,亚微米畴结构纵向深度在  $30\text{--}50\ \mu\text{m}$  之间.由于此亚微米畴结构的纵向深度较小,因此更适合于制备波导器件.

在样品周期极化过程中,通过对不同实验条件下极化电流和背向反转电流波形的观测,注意到内场  $E_f$  的弛豫时间与外加极化电场大小有关,极化电场越大,  $E_f$  的弛豫时间越短.当极化电场为  $8\ \text{kV/mm}$  时,  $E_f$  的弛豫时间为  $25\ \text{ms}$  左右.如果所加极化电场的脉冲宽度大于内场  $E_f$  弛豫时间,内场  $E_f$  的弛豫反转就会在极化过程中完成,使背向反转效应受到有效抑制.图 3 给出了在极化电场脉冲宽度为  $100\ \text{ms}$ 、间隔为  $200\ \text{ms}$  条件下得到的周期极化畴



图 3 极化电场脉冲宽度和间隔分别为  $100\ 200\ \text{ms}$  时的极化畴结构

结构.由于脉冲宽度远大于内场弛豫时间,畴结构未发生由内场导致的劈裂现象,其周期仍为  $6.8\ \mu\text{m}$ ,与设计周期结构相一致.但由于极化时间长,畴壁横向扩展十分明显,大部分区域都已极化反转,未发生反转的畴带只有  $0.5\ \mu\text{m}$ ,形成了非对称的亚微米周期畴结构.

为了进一步证实内场  $E_f$  在畴劈裂微结构制备过程中的作用,在极化实验装置中加入一个单向导通二极管,在脉冲信号结束时,禁止反向电流通过,从而消除背向反转效应的影响.图 4 给出了加入二极管后,在极化电场为  $8.0\ \text{kV/mm}$ 、宽度为  $10\ \text{ms}$ 、间隔为  $20\ \text{ms}$  时得到的周期畴结构.从图 4 可以看出,此时的畴结构由于消除了背向反转效应而未发生劈裂,形成了周期为  $6.8\ \mu\text{m}$  的均匀周期极化畴结构,且占空比接近  $0.5$ .这一结果也进一步证实了亚微米畴结构是由背向反转效应形成的.

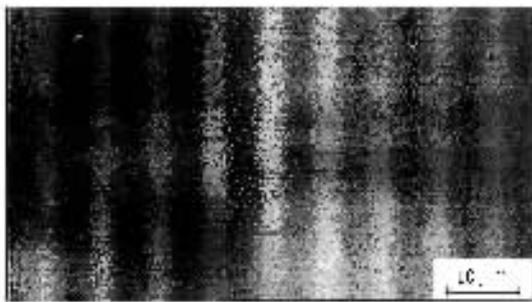


图 4 消除背向反转效应后得到的极化畴结构

## 4. 结 论

本文提出利用畴背向反转效应,采用短脉冲极化电场,通过对脉冲宽度、脉冲间隔以及脉冲数量的有效控制,在高掺镁铌酸锂晶体上直接得到了周期为  $1.7\ \mu\text{m}$  的均匀亚微米畴结构,其纵向深度为  $30\text{--}50\ \mu\text{m}$ ,非常适合于制备波导器件.同时对上述亚微米畴结构产生的微观机制和物理过程进行了初步探讨.我们希望利用上述极化工艺制备出高质量的亚微米周期畴结构,并在此基础上实现短波段准相位匹配倍频输出.

- [ 3 ] Hsu C W , Yang C C 2001 *Opt. Lett.* **26** 1412
- [ 4 ] Shen D Y , Tan S C , Lan Y L *et al* 2000 *Electron. Lett.* **36** 1488
- [ 5 ] Miller G D , Batchka R G , Tulloch W M *et al* 1997 *Opt. Lett.* **22** 1834
- [ 6 ] Sugita T , Mizuuchi K , Kitaoka Y *et al* 2001 *Jpn. J. Appl. Phys.* ( Part 1 ) **40** 1751
- [ 7 ] Shur V Y , Rumyantsev E L , Nikolaeva E V *et al* 2000 *Appl. Phys. Lett.* **76** 143
- [ 8 ] Wang H F , Zhu Y Y , Ming N B 1997 *Appl. Phys. A : Mater. Sci. Proc.* **65** 437
- [ 9 ] Chao S , Davis W , Tuschel D D *et al* 1995 *Appl. Phys. Lett.* **67** 1066
- [ 10 ] Ro J H , Cha M 2000 *Appl. Phys. Lett.* **77** 2391
- [ 11 ] Myers L E , Eckardt R C , Fejer M M *et al* 1995 *J. Opt. Soc. Am. B* **12** 2102
- [ 12 ] Mizuuchi K , Yamamoto K , Kato M 1996 *Electron. Lett.* **32** 2091

## Submicron domain patterning in LiNbO<sub>3</sub> doped MgO<sup>\*</sup>

Yao Jiang-Hong   Chen Ya-Hui   Yan Bo-Xia   Deng Hao-Liang

Kong Yong-Fa   Chen Shao-Lin   Xu Jing-Jun   Zhang Guang-Yin

( *Institute of Physics , Nankai University , Tianjin 300071 , China* )

( *Teda Applied Physics College , Nankai University , Tianjin 300060 , China* )

( Received 3 July 2003 ; revised manuscript received 13 February 2004 )

### Abstract

By using a microsecond pulse field , we succeeded in fabricating a uniform submicron domain pattern with a period of 1.7  $\mu\text{m}$  in LiNbO<sub>3</sub>-doped 5 mol% MgO. And the depth of these domain strips is , typically , about 30 to 50  $\mu\text{m}$ . When a poled field with a pulse width of 100 ms is applied , the domain-inverted structure with a width of 0.5  $\mu\text{m}$  was obtained. Using the spontaneous domains backswitching and domain side-grown effects , we can explain the mechanism of the submicron domains evolution.

**Keywords** : domain-structure , backswitching , MgO-doped LiNbO<sub>3</sub> , periodical poling

**PACC** : 7780 , 4270

\* Project supported by the Major Program of the National Natural Science Foundation of China ( Grant No.90101022 ) , the Natural Science Foundation of Tianjin , China ( Grant No.033600911 ) , and the Foundation of State Key Laboratory for Infrared Physics , China.