

周期极化 LiNbO_3 晶体中电极布置对 反转畴扩张的影响^{*}

王 霆[†] 马博琴 盛 艳 程丙英 张道中

(中国科学院物理研究所北京凝聚态物理国家实验室和中国科学院光物理重点实验室, 北京 100080)

(2005 年 4 月 16 日收到, 2005 年 5 月 18 日收到修改稿)

利用外加电场极化的方法, 分别研究了三种不同方式布置的极化电极对 C 向切割 LiNbO_3 晶体极化反转畴扩张的影响. 实验结果表明在相同极化条件下, 当极化电极长度方向与六边形反转畴一对边呈 90° 和 0° 角时, 极化扩张速度分别为 $0.089 \mu\text{m/ms}$ 和 $0.011 \mu\text{m/ms}$. 实验结果揭示, 为了有效地控制极化占空比, 在制备一维准相位匹配 LiNbO_3 晶体时应避免极化电极与六边形反转畴壁中一对边呈 90° 的情况.

关键词: 周期极化, 极化扩张, 准相位匹配

PACC: 4265K, 4262A, 4270F

1. 引 言

自 1990 年以来, 用外加电场周期极化铁电材料的方法制备准相位匹配器件方面取得了很大的发展^[1-5]. 极化时畴壁的侧向扩张是阻碍制备小周期准相位匹配器件的主要问题, 很多研究小组对此进行了研究^[6-8], 一般认为周期极化过程由三个步骤组成: (1) 铁电材料在高压电场作用下形成极小的畴反转区域称为畴反转核; (2) 畴反转核在电场的作用下沿自发极化轴的方向生长; (3) 畴反转核壁侧向扩张相互连接, 所以为了制备出具有最优占空比的准相位匹配晶体, 极化电极的线宽一般选择为极化周期的 $1/3-1/4$, 目前利用这种方法可以制备的最小周期为 $1.7 \mu\text{m}$ ^[9, 10]. 更多的研究表明, 由于电极的边缘效应, 极化电场不仅有沿极化轴的垂直分量 E_z , 而且有垂直电极边缘的切向分量 $E_{\text{切}}$ 存在, 并且切向电场会将电荷引导至电极以外区域成为极化补偿电荷, 从而造成极化反转畴的扩张^[11, 12]. 对于极化加宽机制的研究目前还没有关于布置方位影响的报道, 因此研究极化电极与铁电材料之间的布置方位对于深入了解极化扩张机制有重要意义.

2. 实 验

实验所用的铁电材料是厚度为 0.4 mm , 大小为 $15 \text{ mm} \times 15 \text{ mm}$, z 向切割的 LiNbO_3 晶体. LiNbO_3 晶体具有 $3m$ 对称性, 并且锂离子和铌离子在氧离子的周围呈六边形排列, 在进行外加电场极化的时候反转畴壁也呈现为六边形^[13], 这一点在极化二维准相位匹配晶体的时候很容易观察到^[14], 如图 1 所示.

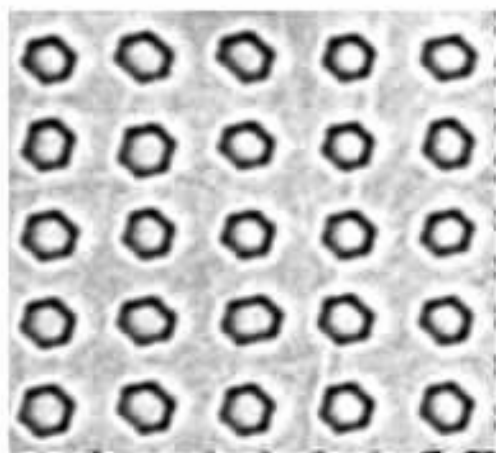


图 1 极化圆点形成六边形的反转畴壁, 六边形环绕的部分是极化反转区域

为了研究一维条形电极与六边形畴壁的位置关

^{*} 国家重点基础研究发展规划(批准号: 2001CB6104)和国家自然科学基金(批准号: 60345008)资助的课题.

[†] 通讯联系人. E-mail: wangting@aphy.iphy.ac.cn

系对极化产生的影响,分别设计了两种模板,如图 2 所示

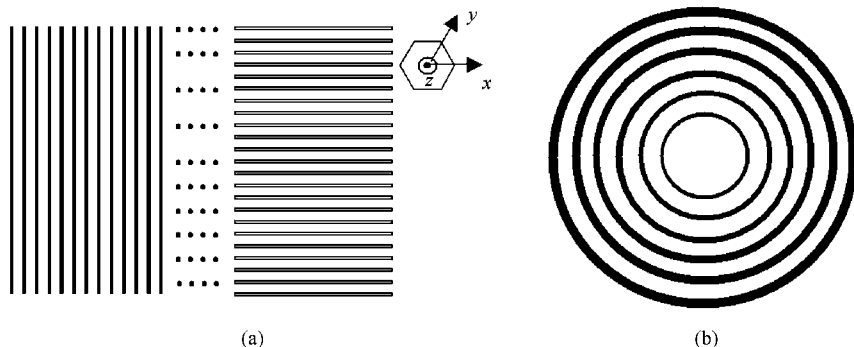


图 2 极化电极掩膜版示意图 图中黑色部分为极化电极, x, y, z 分别代表晶体轴方向, (a) 条形电极边缘切线方向分别与六边形畴壁呈 90° 和 0° (b) 圆环形电极

图 2(a) 是将相互垂直的两个条状电极做在同一块模板上, 这样可以观察到在相同极化条件下, 条形电极边缘切线方向与六边形反转畴壁其中一对边垂直(即电场 $E_{\text{切}}$ 的方向与六边形中一条对角线平行)和与其中一对平行边平行(即电场 $E_{\text{切}}$ 的方向与六边形中一条对角线呈 30° 角)两种电极布置方法极化结果的区别. 由于极化小圆点后可以观察到呈六边形的畴壁, 所以在这两个周期条状电极的中间加入了 4 列圆点, 这样在极化后便可以判断条状电极与六边形畴壁之间的角度关系; 另一块模板是将电极设计为同心圆的形状如图 2(b), 这样就可以观察到电极边缘切线方向与六边形畴壁一对边呈各种角度时对极化结果的影响.

按照标准的制备 QPM 晶体的工艺, 利用紫外曝光的方法将上述膜版图样光刻到 LiNbO_3 晶体表面. 用 O 型圈将 LiCl 饱和溶液限制在晶体的两个表面, 溶液通过光刻胶被刻掉的部分与晶体的表面接触形成液体电极. 所加电压约为 21 kV/mm . 在晶体极化的过程中, 用分压电阻将极化电流转变为电压信号并用计算机采集. 由于铁电体本身存在电容, 所以加电压时先对电容充电, 这时电流较大, 但这个过程十分短暂, 充电完毕后才形成极化电流. 我们实验中的极化电流为 $10\text{--}20 \mu\text{A}$.

极化完成后, 将晶体放入 HF 酸中腐蚀 $10\text{--}15 \text{ min}$, 由于 HF 酸对晶体正负表面腐蚀的速度不一样, 腐蚀后便能清晰的看到极化产生的反转畴的边界, 这样就可以在显微镜下测量反转畴的宽度, 根据极化时间就可以推算畴壁侧向扩张的速度.

3. 实验结果与分析

设计的膜版线宽为 $3 \mu\text{m}$, 经过光刻显影后光刻到晶体表面的图形的线宽扩展为 $3.5 \mu\text{m}$, 经过外电场极化的结果见图 3.

可以看出, 在极化的第三阶段反转核开始扩张并连接在一起使电极覆盖下的晶体全部反转并扩张到电极以外的区域. 如果电极的边缘平行于六边形畴壁的一对边, 极化出来的畴反转区域边界平整, 而电极的边缘垂直于六边形畴壁其中的两边时则极化出来的畴反转区域边界崎岖不平质量很差, 而且在相同的电压和脉冲宽度下, 图 3(a) 的极化线宽要比图 3(b) 极化的线宽要小, 这就说明了 $E_{\text{切}}$ 与六边形畴其中的一条对角线平行时, 会使畴侧向扩张更加严重. 图 3(c) 中更加清晰地看到电极边缘与六边形对角线的角度不同所引起的畴壁侧向扩张量的不同. 图中 6 条有阴影的区域就是反转畴连接后形成的, 这是由于 LiNbO_3 晶体有 6 重旋转对称性造成的. 图 4 显示了条形电极与六边形畴之间的角度关系与极化扩张速度的关系, 图中 0° 所对应的是电极边缘与六边形畴一条对边垂直时的情况(电场 $E_{\text{切}}$ 的方向与六边形中一条对角线平行). 随着电极角度的变化, 极化扩展速度不断减小, 当电极边缘与六边形畴壁一对边平行时极化扩展的速度最小. 扩展速度的最大值约为 $0.089 \mu\text{m/ms}$, 最小值约为 $0.011 \mu\text{m/ms}$, 二者相差约 8 倍. 由于 LiNbO_3 晶体的对称性, 极化扩展速度与条形电极旋转角度以 60° 为周期重复. 实验结果揭示了极化电极以不同方位角布置所导致的极化扩张的差异可能与 LiNbO_3 晶体中 Li 离子和

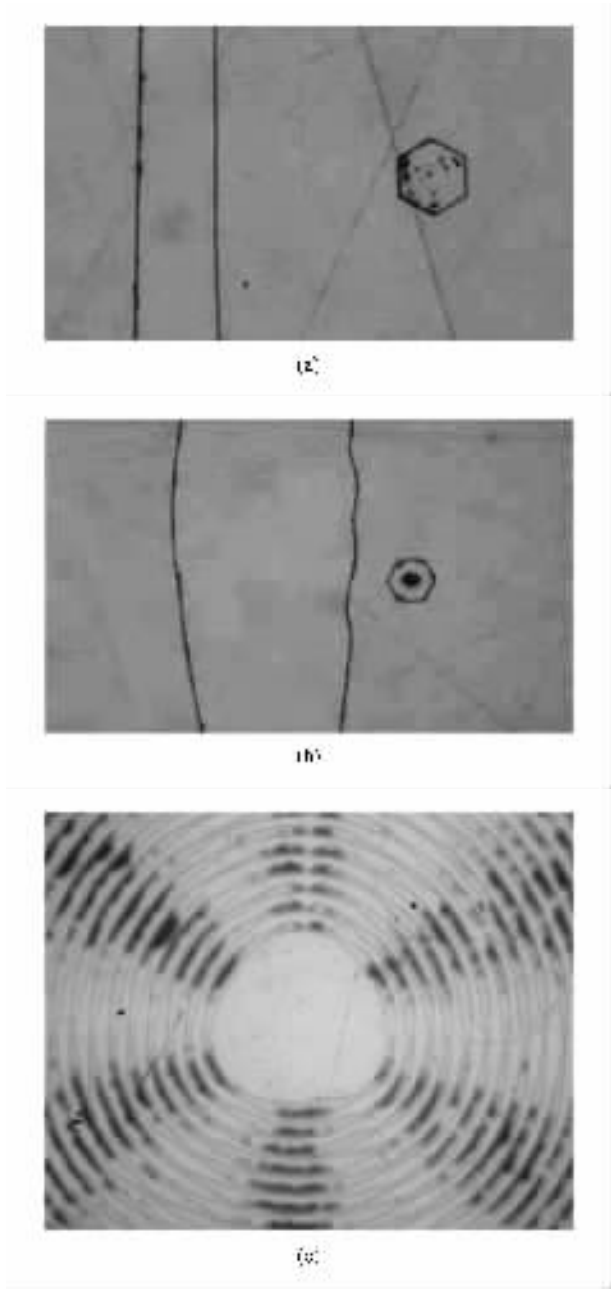


图 3 外加高压电场极化结果 (a)极化电极边缘与六边形畴的一对边平行 (b)极化电极边缘与六边形畴的一对边垂直 (c)极化电极呈同心圆环

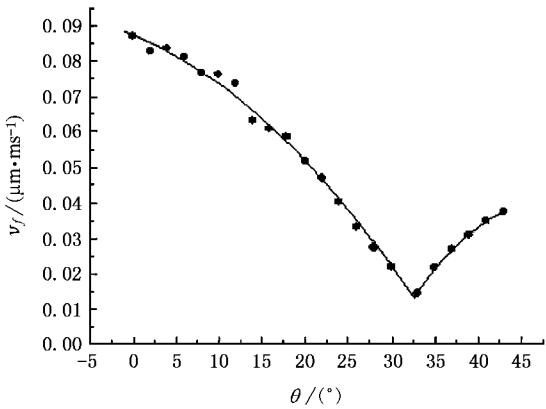


图 4 电极边缘切线方向与畴壁侧向扩张速度曲线 v_f 为畴壁侧向扩张速度 θ 为侧向电场 $E_{\text{切}}$ 与六边形畴一条对角线的夹角 黑色圆点为实验值 实线为拟合曲线

Nb 离子排列的各项异性相关.

4. 结 论

本文研究了利用液体电极周期极化 LiNbO₃ 时, 条形电极边缘切线方向与六边形反转畴壁之间的角度关系, 并测量了该角度关系与极化扩展速度之间的关系. 根据实验结果可以认为反转畴的扩张是沿着六条对角线的方向发生的, 由于电极的边缘效应, 极化电场会有垂直于电极边缘的切向分量 $E_{\text{切}}$ 存在, 当 $E_{\text{切}}$ 的方向与六边形的对角线相平行的时候就十分有利于反转核的扩张. 相反, 如果 $E_{\text{切}}$ 的方向与六边形对角线呈一定的角度则只有一部分的 $E_{\text{切}}$ 对于反转畴核的扩张起作用, 这样就能抑制反转畴的侧向扩张. 所以在制备一维准相位匹配晶体时, 条状电极相对于六边形畴壁的布置对于极化的结果有重要的影响.

[1] Magel G A , Fejer M M and Byer R L 1990 *Appl. Phys. Lett.* **56** 108
[2] Zhang B G , Yao J Q , Lu Y *et al* 2005 *Chin. Phys.* **14** 353
[3] Myers L E , Eckardt R C , Fejer M M *et al* 1995 *J. Opt. Soc. Am.* B **12** 2102
[4] Chowdhury A , Staus C and Boland B F 2001 *Opt. Lett.* **26** 1353
[5] Xue T , Yu J , Ni W J *et al* 2002 *Acta Phys. Sin.* **51** 565 (in Chinese) [薛 挺、于 建、倪文俊 等 2002 物理学报 **51** 565]
[6] Shur V Y , Romyantsev E L , Nikolaeva E V *et al* 2000 *Appl. Phys. Lett.* **77** 3636
[7] Hjirohashi J , Yamada K , Kamio H *et al* 2004 *Jpn. J. Appl. Phys.* **43** 559

- [8] Shur V Y , Gruverman A L , Letuchev V V *et al* 1989 *Ferroelectrics* **98** 29
- [9] Meyn J P and Fejer M M 1997 *Opt. Lett.* **22** 1214
- [10] Meyn J P , Laue C , Knappe R *et al* 2001 *Appl. Phys. B* **73** 111
- [11] Rosenman G , Garb Kh and Skliar A 1998 *Appl. Phys. Lett.* **74** 865
- [12] Peng L H , Shih Y J and Zhang Y C 2002 *Appl. Phys. Lett.* **81** 1666
- [13] Jach T , Kim S , Gopalan V *et al* 2004 *Physical Review B* **69** 064113
- [14] Ni P G , Ma B Q , Cheng B Y *et al* 2003 *Acta Phys. Sin.* **52** 1925
(in Chinese) [倪培根、马博琴、程丙英等 2004 物理学报 **52** 1925]

The effect of electrode configuration in domain broadening of periodically poled LiNbO₃^{*}

Wang Ting[†] Ma Bo-Qin Sheng Yan Cheng Bing-Ying Zhang Dao-Zhong

(Key Laboratory of Optical Physics , Beijing National Laboratory , for Condensed Matter Physics ,
and Institute of Physics Chinese Academy of Sciences , Beijing 100080 , China)

(Received 16 April 2005 ; revised manuscript received 18 May 2005)

Abstract

The effect of LiNbO₃ electrode with three different configurations on domain broadening by using poling method applying external electric field is studied. The effect of poling electrode configuration in domain broadening is studied. The experiment demonstrated that under the same poling condition , the broadening velocities are 0.089 μm/ms and 0.011 μm/ms when the angle between the poling electrode and the diagonals of hexagonal domain nucleus are 90° and 0° , respectively , therefore the circumstance of 90° angle between poling electrode and the diagonals of hexagonal domain nucleus should be avoided in fabricating one-dimension nonlinear photonic crystal .

Keywords : periodically poling , domain wall expansion , quasi-phase-matching

PACC : 4265K , 4262A , 4270F

^{*} Project supported by the National Basic Research Program of China (Grant No. 2001CB6104) and the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 60345008).

[†] Corresponding author. E-mail : wangting@aphy.iphy.ac.cn