

掺镁铌酸锂亚微米结构畴反转的研究*

闫卫国^{1)†} 陈云琳^{1)‡} 王栋栋^{1)‡} 郭娟^{1)‡} 张光寅¹⁾

1) 教育部弱光非线性光子学材料先进技术及制备实验室,南开大学物理学院,天津 300071)

2) 晶体材料国家重点实验室,山东大学,济南 250100)

(2006 年 2 月 28 日收到,2006 年 3 月 30 日收到修改稿)

研究了掺镁铌酸锂($\text{MgO}:\text{LiNbO}_3$)的极化特性及其畴壁运动的性质,通过调节多个脉冲外加电场来控制畴壁的运动,在背向反转效应作用下,反转畴发生劈裂,制备出均匀的掺镁铌酸锂亚微米周期畴结构,并分析探讨了掺镁铌酸锂亚微米结构的成因及其反转机理.

关键词:亚微米畴结构,掺镁铌酸锂,背向反转

PACC: 4265, 7780D

1. 引言

近年来,人们在准相位匹配技术基础上,制备出周期极化铌酸锂晶体(PPLN),实现了蓝、绿光的有效倍频输出^[1,2].室温下采用高压电场极化法是制备周期结构铁电畴晶体(LiNbO_3 ^[3], LiTaO_3 ^[4], KTiOPO_4 ^[5])的最佳方法.随着畴工艺的不断完善,亚微米周期结构成为人们关注的焦点.通过亚微米周期畴结构进行波长转换是得到短波长光的有效途径.目前,短波长的光在光学数据储存、大屏幕显示及海底光通讯领域具有广泛的应用价值.

铌酸锂(LiNbO_3)铁电晶体以其具有较大的非线性系数和低廉的价格是制备周期极化铌酸锂的首选材料之一.然而,其矫顽场过高,畴壁扩张速率过快等因素抑制铌酸锂在亚微米周期畴结构中的应用,同时限制了铌酸锂在短波范围内的拓展.与同成分铌酸锂相比,掺镁铌酸锂矫顽场低,抗光损伤性能强,透光范围广,畴壁扩张速率慢等优点^[6,7],弥补了铌酸锂在亚微米周期畴反转方面的不足,为制备亚微米周期畴结构提供了良好的介质材料. Sugita 等采用多脉冲外加电场极化方法,成功制备出周期为 $2.2\mu\text{m}$ 、厚度为 1.5mm 的均匀周期结构掺镁铌酸锂晶体^[8].本文通过研究掺 Mg 铌酸锂($\text{MgO}:\text{LiNbO}_3$)的周期极化特性及畴壁运动的性质,基于畴极化过

程中的背向反转效应,通过控制脉冲宽度、脉冲间隔、脉冲个数等有效参数,成功制备出了掺 Mg 铌酸锂亚微米均匀周期畴结构.

2. 实 验

实验所使用的样品分别是厚为 1mm 的 Z 切同成分铌酸锂晶体(LN1),厚为 0.5mm 和 1mm 的掺 $6.5\text{mol}\%$ 镁 Z 切铌酸锂晶体(LNMg0.5, LNMg1).采用半导体光刻工艺分别在样品(LN1, LNMg0.5, LNMg1)的 +Z 面镀厚为 200nm ,周期为 $6.2\mu\text{m}$ 的铝栅格电极,同时在 -Z 面镀厚为 200nm 的平面铝电极,晶体两端接到脉冲高压电源上进行极化,其详细极化过程见文献[7].

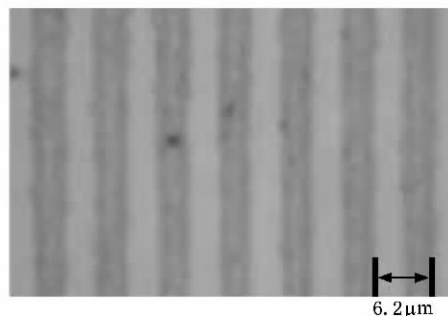


图 1 LN1 + Z 面极化畴反转结构

对样品 LN1 极化所采用的极化开关电场、脉冲

* 国家自然科学基金(批准号: 60544004, 90501004),天津市自然基金和长江学者及高校创新团队项目资助的课题.

† E-mail: ylchen@nankai.edu.cn

宽度、脉冲间隔和脉冲个数分别为 25kV/mm, 40ms, 30ms 和 5。在极化过程中, 由于脉冲宽度和铌酸锂晶体反转弛豫时间相近^[9], 因此在反转畴形成时, 本身的内场会对反转畴产生相斥作用, 但由于其畴壁运动速率很快, 在背向反转电流出现时反转畴已稳定, 无法劈裂反转畴, 最终形成周期为 6.2 μ m 的均匀周期结构铌酸锂晶体。将极化后的样品用 1:2 的硝酸和氢氟酸混和液在 80℃ 下进行腐蚀约 5min, 其腐蚀图如图 1 所示。

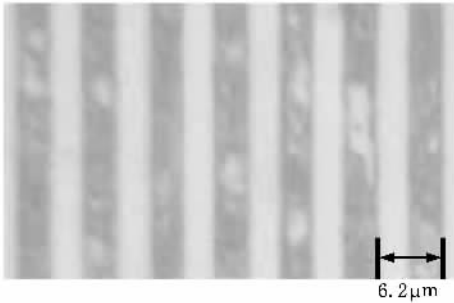


图 2 LN Mg0.5 + Z 面极化畴反转结构

对于样品 LN Mg0.5 采用极化开关电场为 3.3kV/mm, 脉冲宽度分别为 1, 5, 10ms, 脉冲间隔分别为 20, 15, 10ms, 脉冲个数均为 13 进行极化, 经过多次的极化实验, 没有发现背向反转电流出现, 畴极化反转结构均未发生劈裂现象, 形成亚微米畴结构。图 2 所示为该样品 + Z 面反转结构腐蚀图。

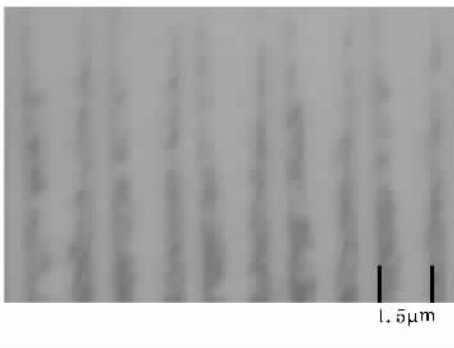
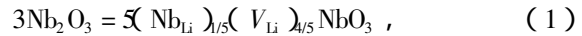


图 3 LN Mg1 + Z 面极化畴反转劈裂为亚微米结构

对于 LN Mg1 采用极化开关电场为 6.5kV/mm, 脉冲宽度为 1.5ms, 脉冲间隔为 3ms, 脉冲个数为 10 的物理参数极化。实验中我们发现, 在极化过程中产生峰值约为 9mA 脉冲电流的同时, 有约为 2.5mA 的背向反转电流产生, 表明极化过程发生了背向反转作用, 出现了畴劈裂现象。图 3 所示为其 + Z 面劈裂为亚微米结构腐蚀图。

3. 结果与讨论

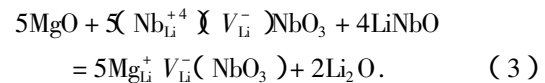
铁电畴晶体畴反转过程包括畴壁运动和新畴的稳定两个过程, 在同成分铌酸锂晶体中, 根据锂空位模型^[10]



晶体中存在反位铌和空位锂, 由于本征缺陷的存在, 铌酸锂晶体中形成较高的矫顽场, 当晶体在外加电场作用下发生畴反转时, 铌酸锂晶体中畴壁将会发生运动, 其运动速率和极化电场关系式^[11]为

$$v(E) = 16300\exp[-25.0(E - 19.2)], \quad (2)$$

与铌酸锂晶体相比, 掺镁铌酸锂晶体是在铌酸锂晶体中掺入 MgO, 当掺镁量达到阈值时, Mg 离子分别代替反位 Nb 和空位 Li, 以自由电荷补偿的方式进入铌酸锂晶体, 化学式^[10]表示为



由于掺镁铌酸锂的本征缺陷结构, 其矫顽场会比铌酸锂低很多^[12], 同时畴壁运动速率也会迅速减慢, 其畴壁运动速率和极化电场的关系式^[11]为

$$v(E) = 38.0\exp(-19.0/E), \quad (4)$$

由(2)和(4)式可以分别得到铌酸锂和掺镁铌酸锂极化反转电场与畴壁运动速率间的数值曲线图 4。

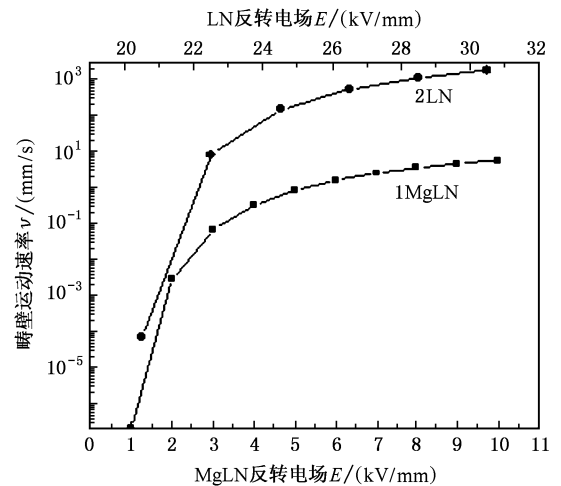


图 4 MgLN 和 LN 的畴壁运动速率与极化电场的关系

在铌酸锂晶体极化过程中, 由图 4 可知, 当铌酸锂的极化电场从 21kV/mm 变化到 30kV/mm 时, 其畴壁运动的速率从 10⁻⁴ mm/s 变化到 10³ mm/s, 由于铌酸锂反转畴的畴壁运动速率对于极化电场的变化非常敏感, 因此, 铌酸锂晶体的畴反转过程主要取决

于畴壁的运动,在制备亚微米周期结构铌酸锂时很难控制反转畴壁的运动速率,限制了铌酸锂在亚微米周期结构中的应用。

在掺镁铌酸锂极化过程中,从图 4 可见,当极化电场从 1kV/mm 到 10kV/mm 之间变化时,其畴壁运动速率从 10^{-7} mm/s 变化到 ~ 7 mm/s,相比铌酸锂晶体畴壁运动速率降低了 3 个数量级,因此,掺镁铌酸锂畴反转的过程主要取决于新畴稳定过程。同样由于其本征缺陷的存在,会在掺镁铌酸锂晶体中形成一内场,其方向与晶体的自发极化方向相反^[13],当掺镁铌酸锂晶体畴发生反转时,内场会对反转畴产生反极化效应,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^[14]。而对于较薄的掺镁铌酸锂晶体(厚度 ≤ 0.5 mm),由于晶体厚度的减少导致自身电阻的降低易出现漏电现象^[15],致使极化时背向反转效应不能充分利用,使得反转畴不能劈裂,从而得不到均匀的亚微米周期结构^[15]。因此,

制备亚微米周期结构掺镁铌酸锂时,晶体厚度一般要大于 0.5mm^[16]。

基于掺镁铌酸锂晶体的背向反转机理,通过调节外加电场的脉冲宽度、间隔及个数,可以有效的控制反转畴的背向反转机理,反转畴在背向反转效应的作用下发生劈裂,最终形成均匀的亚微米周期畴结构。

4. 结 论

通过分析掺镁铌酸锂晶体的畴壁运动,利用晶体在自身内场作用下产生的背向反转效应,采用多个短脉冲,窄脉宽的极化电场来控制反转畴的畴壁运动速率,在厚为 1mm 的掺镁铌酸锂晶体上制备出周期为 1.5 μ m 的均匀亚微米周期结构。实验表明采用多个短脉冲,窄脉宽极化电场为制作掺镁铌酸锂亚微米周期微结构提供有效途径。

-
- [1] Lu Y L ,Lun M ,Ming N B 1994 *Opt . Lett .* **19** 14
- [2] Pruneri V ,Butterworth S D ,Hanna D C 1996 *Opt . Lett .* **21** 6
- [3] Yamada M ,Nada N ,Saitoh M *et al* 1993 *Appl . Phys . Lett .* **62** 453
- [4] Mizuuchi K , Yamamoto K 1995 *Appl . Phys . Lett .* **66** 2943
- [5] Karlsson H ,Laurell F ,Henriksson P *et al* 1997 *Appl . Phys . Lett .* **71** 3474
- [6] Chen Y L , Guo J , Lou C B *et al* 2004 *J . Crystal Growth* **263** 427
- [7] Chen Y L ,Lou C B , Xue J J *et al* 2003 *J . Appl . Phys .* **94** 3350
- [8] Sugita T ,Mizuuchi K , Kitaoka Y *et al* 2001 *Jpn . J . Appl . Phys .* **40** 1751
- [9] Myers L E ,Echardt R C ,Fejer M M *et al* 1995 *J . Opt . Soc . Am B* **12** 2102
- [10] Liu J J ,Zhang W L , Zhang G Y *et al* 1996 *Phys . Stat . Sol .* **156** 285
- [11] Robert C , Miller , Albert S *et al* 1959 *Phys . Rev .* **115** 1176
- [12] Chen Y L ,Guo J , Liu X J *et al* 2004 *Acta Phys . Sin .* **53** 156 (in Chinese)[陈云琳、郭 娟、刘晓娟等 2004 物理学报 **53** 156]
- [13] Chen Y L ,Yan W G , Guo J *et al* 2005 *Appl . Phys . Lett .* **87** 2904
- [14] Shur V Y ,Rumyantsev E Y , Nikolaeva E V *et al* 2000 *Appl . Phys . Lett .* **76** 143
- [15] Mizuuchi K ,Morikawa A , Sugita T *et al* 2004 *J . Appl . Phys .* **96** 11
- [16] Nakamura K ,Kurz J ,Parameswaran K *et al* 2002 *J . Appl . Phys .* **91** 71

Research on the submicron domain inversion structure of $\text{MgO}:\text{LiNbO}_3$ *

Yan Wei-Guo^{1,2)} Chen Yun-Lin^{1,2)†} Wang Dong-Dong^{1,2)} Guo Juan^{1,2)} Zhang Guang-Yin¹⁾

1 *Key Laboratory of Advanced Technique and Fabrication For Weak-Light Nonlinear Photonics Materials ,
Ministry of Education , College of Physics , Nankai University , Tianjin 300071 , China)*

2 *The State Key Laboratory of Crystal Materials , Shandong University , Jinan 250100 , China)*

(Received 28 February 2006 ; revised manuscript received 30 March 2006)

Abstract

We have investigated the periodic poling characteristics of $\text{MgO}:\text{LiNbO}_3$ and properties of the domain wall velocity. Based on back-switching reaction, domain-inverted velocity can be accurately controlled by multi-impulse electric field, which can be used to fabricate $\text{MgO}:\text{LiNbO}_3$ with submicron uniform periodical structure. At the same time, we studied the cause of formation and the mechanism of submicron domain-inverted structure.

Keywords : submicron domain-structure , $\text{MgO}:\text{LiNbO}_3$, back-switching

PACC : 4265 , 7780D

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 60544004 , 90501004) and the Natural Foundation of Tianjin and Program for Changjiang Scholars and Innovative Research Team in University.

† E-mail : ylchen@nankai.edu.cn