

文章编号: 1000-324X(2008)04-0851-04

外加电场法制备 LiNbO₃ 周期畴的工艺研究

陈建华^{1,2}, 屈绍波^{2,3}, 魏晓勇², 徐卓², 朱林户³

(1. 空军工程大学 工程学院, 西安 710038; 2. 西安交通大学 电子陶瓷与器件教育部重点实验室, 西安 710049; 3. 空军工程大学 理学院, 西安 710051)

摘要: 研究了 LiNbO₃ 单晶周期极化畴结构的制备工艺, 讨论了外电场的特性对周期极化过程的影响. 在对周期畴制备各工艺步骤进行实验研究的基础上, 提出解决 LiNbO₃ 单晶周期畴制备中一直存在的边缘击穿问题, 必须选择合适的周期电极形式并对脉冲波形进行优化. 采用所提出的工艺, LiNbO₃ 周期极化畴的成品率提高到了 90%. 为解决周期极化过程中反转畴的侧向扩展, 在对周期极化物理过程进行分析的基础上, 采取了对周期电极宽度进行优化设计和在样品上包覆聚酰亚胺绝缘胶的方法, 有效克服了这一问题, 制备了占空比符合预期的高质量周期畴结构.

关键词: LiNbO₃ 周期极化畴; 介电击穿; 畴扩展

中图分类号: TM282 **文献标识码:** A

Technology of Periodic Poling Bulk LiNbO₃ by Applying External Field

CHEN Jian-Hua^{1,2}, QU Shao-Bo^{2,3}, WEI Xiao-Yong², XU Zhuo², ZHU Lin-Hu³

(1. The Engineering College, Airforce Engineering University, Xi'an 710038, China; 2. Electronic Materials Research Laboratory, Key Laboratory of Ministry of Education, Xi'an Jiaotong University, Xi'an 710049, China; 3. The Science College, Airforce Engineering University, Xi'an 710051, China)

Abstract: The preparation technics of periodically poled LiNbO₃ crystal (PPLN) was studied and the effects of external field characteristics including magnitude, duration of voltage pulse on periodic poling process were investigated. Improving magnitude of pulse could accelerate the poling process. After a detailed study of all technological steps, a resolution to overcoming fringe breakdown is proposed, *i.e.* appropriate electrode figure and optimum waveform must be selected. By using the technics proposed, ratio of finished product reaches 90%. To eliminate the negative effects of reverse domain side expansion, a thin insulator layer is coated on the samples and the electrode width is optimized. By this method, high-quality periodically poled LiNbO₃, which meets the expected occupation ratio perfectly, is prepared successfully.

Key words: periodically poled LiNbO₃; dielectric breakdown; domain broadening

1 引言

1962 年, Armstrong 和 Bloembergen 首次提出了准位相匹配技术^[1], 采用周期极化的非线性晶体是实现准相位匹配的有效方法. 在非线性晶体中, LiNbO₃ 由于具有大的电光、声光和二阶非线性系

数, 同时由于其晶体生长技术十分成熟, 价格低廉, 因此被广泛应用. 制备 LiNbO₃ 周期极化畴结构的技术手段主要有: 扩钛法、Li₂O 外扩散法、喷镀 SiO₂ 加热法、质子交换诱发法、电子束扫描法、晶体生长法^[2-7]. 其中, 前四种方法畴反转的范围限制在晶体表面附近较浅的三角区域, 并且这四种

收稿日期: 2007-08-30, 收到修改稿日期: 2007-12-23

基金项目: 国家自然科学基金重点项目 (50632030); 国家自然科学基金 (10474077); 陕西省自然科学基金基础研究计划 (2005E115); 空军工程大学工程学院优秀博士学位论文创新基金 (BC0511)

作者简介: 陈建华 (1978-), 男, 博士研究生. E-mail: metamaterials@126.com

工艺均需要高温等苛刻的实验条件下才能实现;电子束扫描可以制备出较深的畴反转结构,但畴的连续性不好,并且该技术不适合于大批量生产,难以实现商品化;晶体生长法也是当前的一个研究方向,但其精度和质量不高. 1993年, Yamada 等首次利用外加电场极化法制备了厚 0.2mm 的周期极化 LiNbO₃(Periodically Poled LiNbO₃, PPLN)^[6]. 该方法大大降低畴反转极化的成本,同时畴的连续性较好,因而成为研究的热点. 一些研究者对该方法开展了研究,取得了一定的进展^[2,3,9-11]. 从制备工艺的角度看,外加电场极化法需要解决的主要问题有: LiNbO₃ 晶体在高的外加极化电场下的击穿和反转极化畴的侧向扩展. 前者导致成品率太低,而后者导致制备的周期尺寸偏离设计值. 要批量制备高精度的 LiNbO₃ 晶体周期极化畴,必须解决这两个问题.

本工作研究了外加脉冲电信号的电场强度和脉冲宽度对周期极化过程的影响,从电极制备、脉冲信号选取、实验操作等角度给出了克服击穿问题的有效方法. 针对反转极化畴的扩展,采用在电极表面包覆聚酰亚胺和对电极图案进行特殊设计的方法,提高了周期畴的精度,制备了占空比符合预期的周期畴结构.

2 实验

2.1 周期极化实验过程及装置

实验样品为单畴化的 z 切 LiNbO₃ 晶片,厚度 $d=0.35$ mm. 首先利用真空蒸镀技术在抛光并清洗好的 LiNbO₃ 晶片正 c 面蒸镀一层 200~300nm 厚的铝膜,用光刻技术刻出宽度 $w_e=16\sim 250\mu\text{m}$ 的周期电极图案,用浓磷酸腐蚀得到周期电极,然后在负 c 面涂敷室温银电极. 将晶片浸在二甲硅油中,施加场强为 24.3~25.1kV/mm、脉冲宽度为 30~50ms 的脉冲方形电信号. 周期极化实验及反转电流采样电路如图 1 所示. 其中信号发生器为 SRS DS345 型任意信号发生器,信号放大器采用 Trek Model609A

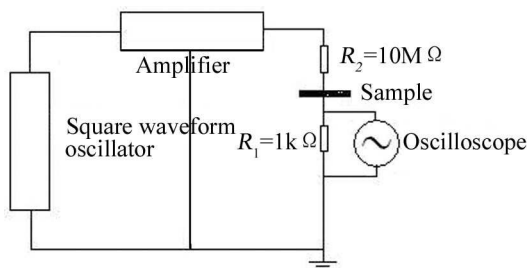


图 1 周期极化实验及电流采样电路

Fig. 1 Schematic of applying electric field for PPLN

型放大器,示波器为 Tektronix TDS2022 型示波器,分压电阻 R_2 的阻值为 10M Ω ,采样电阻 R_1 为 1k Ω .

3 实验结果及讨论

3.1 电场强度和脉冲宽度对周期极化的影响

为研究不同电场强度和脉冲宽度对周期极化过程的影响,设计了如下的实验研究:(1)固定脉冲宽度为 30ms,对样品施加电场强度分别为 24.3 和 25.1kV/mm 的脉冲方波电信号;(2)固定电场强度为 24.3kV/mm,对样品施加脉冲宽度分别为 30 和 50ms 的脉冲方波电信号.

实验所用的样品为 z 切向 LiNbO₃ 晶体, $w_e=125\mu\text{m}$. 测量了样品在实验过程中压电系数 d_{33} 的变化,并将实验数据绘制成图,见图 2.

由图 2 可知,提高外加脉冲电信号的电场强度有利于缩短极化时间,而增大脉冲宽度导致了周期极化时间的延长.

3.2 周期电极尺寸对极化过程的影响

相同工艺条件下,不同尺寸周期畴结构的极化过程有所差异. 为研究这一问题,制备了不同周期尺寸的畴结构(周期电极宽度分别为 $w_e=250$ 、125、65 μm),记录各尺寸的畴结构在周期极化过程中压电系数 d_{33} 的变化,绘制成图 3. 实验采用的脉冲方波场强为 24.3kV/mm,脉冲宽度为 30ms.

由图 3 可见,随着周期畴结构尺寸减小,完成反转极化所需的时间明显减少. $w_e=250$ 、125、65 μm ,所需时间分别约为 2500、1500、1000ms. 这是由于在周期极化过程中,反转畴首先在电极边缘成核,其数量与边缘长度成线性关系(约 100~2000 个/mm),之后贯穿、稳定、融合、扩展^[7]. 周期电极宽度 w_e 减小一倍,则相同面积内电极的边缘长度就增加一倍,在其他条件不变的情况下,反转畴的成核密度相应增加一倍,因而反转极化过程明显加快.

3.3 解决 LiNbO₃ 周期畴制备过程中击穿问题的工艺要点

由于 LiNbO₃ 晶体的矫顽场高达 21.0kV/mm,接近其电子雪崩场强,因此在制备周期极化 LiNbO₃ 的过程中,如何解决强场下的击穿问题一直是一个工艺难点,也是提高成品率的关键. 经过反复的实验研究,发现在制备周期极化 LiNbO₃ 的过程中,做到以下几点,能有效地解决击穿问题,成品率达到 90% 以上:

(1) 周期电极应该制备在正 c 面. 同将电极制

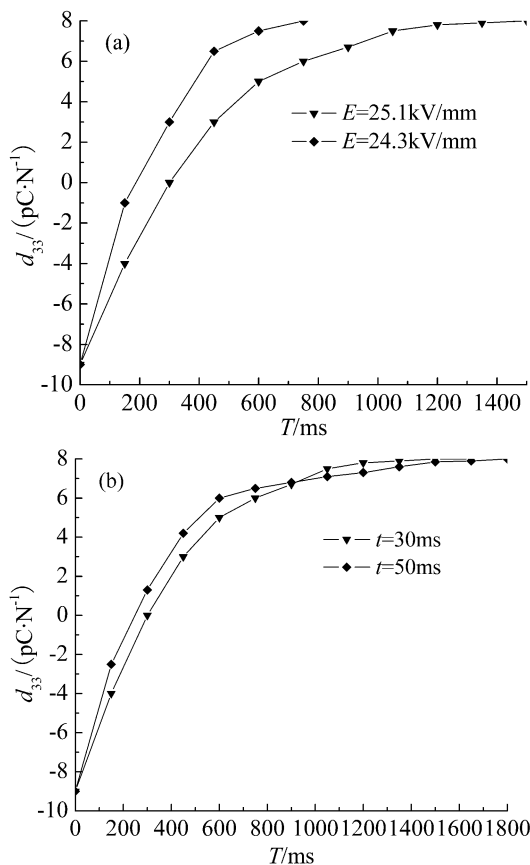


图 2 电场强度 (a) 和脉冲宽度变化 (b) 对周期极化的影响

Fig. 2 Effects of electric field magnitude (a), duration of voltage pulse (b) on periodically poling

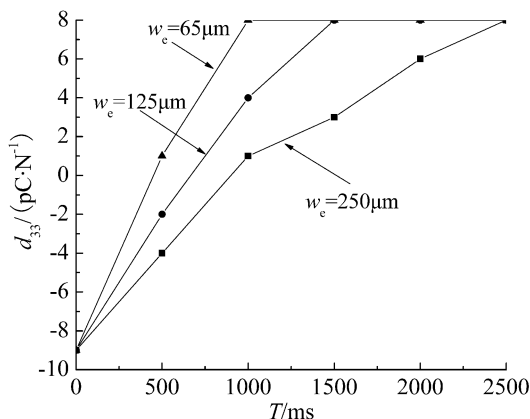


图 3 周期电极宽度对周期极化过程的影响

Fig. 3 Effects of electrode width on periodically poling

备在负 *c* 面相比, 在正 *c* 面制备周期电极降低了反转畴成核的阈值场强, 有利于反转畴成核.

(2) 周期电极应选择框型电极 (图 4), 且电极条带必须连续性好. 在梳状电极开口尖端直角处的电场强度极高, 是金属条边缘的数倍, 极易导致局部击穿, 使用框型电极可以避免这一情况. 而电极连续性不好, 会导致缺陷处的电场集中, 引起击穿.

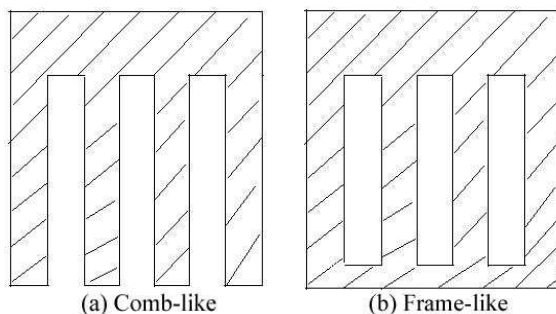


图 4 周期电极示意图

Fig. 4 Schematic diagram of the periodic electrode (a) Comb-like; (b) Frame-like

(3) 电极和晶片表面必须接触良好, 否则会大大降低反转畴成核的密度, 而完成周期极化所需要的时间则因此增加, 从而增大了周期极化的难度.

(4) 在晶片上周期电极的四周留出一圈不镀电极的空白区域, 是克服击穿问题的有效方法. 实验证明, 这一点对于克服 LiNbO₃ 周期极化过程中的击穿难题极为重要.

(5) 选择恰当的电场强度和脉冲宽度. 对于本实验使用的 LiNbO₃ 样品 (德清华莹电子有限公司, 光学级), 电场强度应大于 24.3kV/mm, 单个脉冲宽度不低于 30ms. 否则无法实现稳定有效的反转极化.

(6) 在实验操作方面, 在对单晶片施加脉冲方波作用时, 频率不宜过快, 每两个脉冲之间应该有一定的时间间隔, 间隔在 5s 以上为宜. 过快的连续施加脉冲电信号, 很容易导致击穿. 这是由于电荷在晶片表面的快速积累引起电极间电压的迅速升高导致的.

3.3 反转极化畴的侧向扩展及控制

在条形电极间的空白区域存在切向的电场, 这一电场导致了反转畴向两侧的扩展, 从而偏离所设计的占空比 (如图 5(a)). 为了制备高精度的周期极化畴, 必须设法控制畴的扩展或者在设计电极时将畴的扩展考虑在内. 基于这样的考虑, 在实验中采取了这样的措施: (1) 在制备好电极的样品表面包覆聚酰亚胺绝缘胶以减小切向电场, 从而控制反转畴的扩展; (2) 将电极图案按照公式 $w_e = 4.3845 \times 10^{-4} \times \Lambda^2 + 0.45569 \times \Lambda - 0.70599$ 进行特定设计 [10], 其中 w_e 为电极宽度, Λ 为光栅周期宽. 最终制备得到 $w_e = 16\mu\text{m}$ 的占空比为 0.5 的周期极化畴显微结构照片如图 5(b).

由图 5 可知, 采取上述措施明显改善了周期畴结构的占空比偏离预期的情况, 得到了高精度的周期极化畴结构.

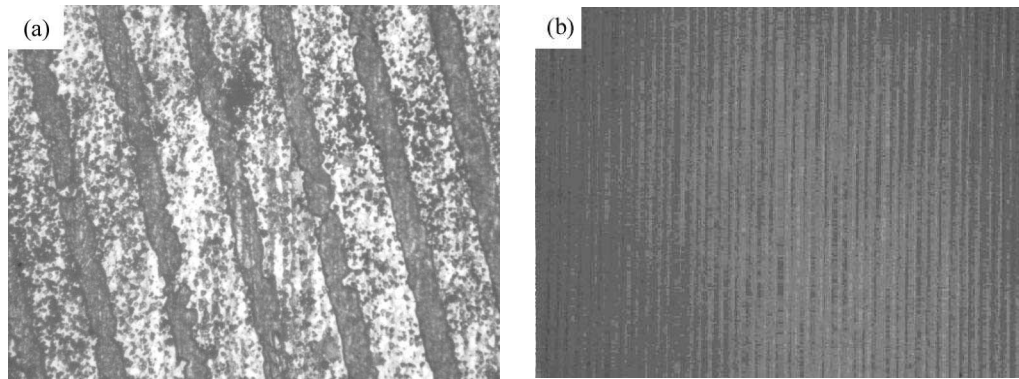


图 5 周期极化畴结构的显微照片

Fig. 5 Polarization microscope photos of PPLN

(a) Reverse domain side expansion; (b) Domains meet the occupation

4 结论

研究了外加电场法制备 LiNbO_3 晶体周期极化畴结构的相关问题, 结果表明:

1. 提高外加脉冲电信号的电场强度有利于缩短极化时间, 增大脉冲宽度导致极化时间的延长.

2. 周期电极宽度变化对 LiNbO_3 晶体周期极化过程有明显的影 响, 电极宽度越小, 周期极化越快, 完成周期极化需要的时间越短.

3. 在晶片正 c 面制备接触良好的框状电极, 在电极四周留有空白区域, 并且缓慢地施加恰当的脉冲电信号可以有效地解决 LiNbO_3 单晶周期极化过程中的击穿问题.

4. 在样品上包覆绝缘胶并对周期电极进行优化设计是控制反转畴扩展的有效方法. 采用这一方法, 得到了占空比为 0.5 的周期畴结构.

参考文献

[1] Armstrong J A, Bloembergen N, Ducuing J. *et al. Phys.*

Rev., 1962, **127** (6): 1918–1939.

[2] 姚江宏. 量子电子学报, 1999, **16** (4): 289–293.

[3] Zhu S N, Zhu Y Y, Qin Y Q, *et al. Phys. Rev. Lett.*, 1997, **78** (6): 2725–2755.

[4] Feng D, Ming N B, Hong J F, *et al. Appl. Phys. Lett.*, 1980, **37** (5): 607–609.

[5] 陈云琳, 许京军. 光学学报, 2001, **12** (5): 618–621.

[6] Miyagawa S. *J. Appl. Phys. Lett.*, 1979, **50** (7): 4599–4603.

[7] Lim E J, Fejer M M, Byer R L, *et al. Electron. Lett.*, 1989, **25** (11): 731–732.

[8] Yamada M, Nada N, Saitoh M, *et al. Appl. Phys. Lett.*, 1993, **62**: 435.

[9] Miller G D, Batchka R G, Tulloch W M, *et al. Opt. Lett.*, 1997, **22**: 1834.

[10] Myers L E, Eckardt R C, Fejer M M, *et al. J. Opt. Soc. Am. B*, 1995, **12**: 2102.

[11] 纪磊, 于建, 倪文俊, 等. 人工晶体学报, 2005, **34** (5): 805–811.

[12] 纪磊, 于建, 倪文俊, 等. 人工晶体学报, 2005, **34** (5): 920–925.