

文章编号: 0258-7025(2006)03-0371-05

准速度匹配相位调制器钽酸锂晶体的 室温电场极化技术

吕航, 陈险峰*, 陈理军, 张军锋, 陈玉萍, 夏宇兴

(上海交通大学物理系, 上海 200240)

摘要 利用准速度匹配技术可以实现大调制度的电光相位调制器,从而可以用来展宽激光频谱,它在光谱学、激光变频以及改善激光均匀性等方面有重要应用。当大功率激光通过调制器时,要求晶体的通光面积越大越好,所以大面积并且具有较大厚度的铁电晶体的室温极化技术成为准速度匹配实现的关键技术。详细研究了大面积并且厚度达到1 mm的钽酸锂晶体的电场室温极化过程,针对在极化过程中外部施加高电压时产生的回流现象,采用了改变极化时间来抑制,取得了较好的效果。利用热释电和化学腐蚀方法,成功地实现了钽酸锂晶体的大面积畴反转。该种技术同样可以用于其他大面积铁电晶体的极化。

关键词 材料;电光调制;畴反转;室温电场极化;准速度匹配

中图分类号 O 737 文献标识码 A

Electrical-Poling Technology of Lithium Tantalate for Quasi-Velocity-Matching Phase Modulator

LU Hang, CHEN Xian-feng, CHEN Li-jun,
ZHANG Jun-feng, CHEN Yu-ping, XIA Yu-xing

(Department of Physics, Shanghai Jiaotong University, Shanghai 200240, China)

Abstract Quasi-velocity-matching can be used to realize electro-optics phase modulator with high modulation index, which has essential applications in spectroscopy, laser frequency conversion and improving laser beam uniformity. When laser beam with high power propagates through the modulator, the larger aperture of the device is necessary, so the poling technology on ferroelectric crystal with large-area and high-thickness is essential for high power quasi-velocity-matching. In this paper, the electrical-poling process in room temperature on LiTaO₃ crystal with the thickness of 1 mm is studied in detail. In order to restrain back current during poling process, control of electrical poling time is adopted in the experiments. large-area domain inversion of LiTaO₃ is successfully realized proved by thermoelectric effect and chemistry etching method. The proposed technology can be also employed in other ferroelectric crystal poling.

Key words materials; electro-optics modulation; domain inversion; room temperature electrical-poling; quasi-velocity-matching

1 引言

大调制度的电光相位调制器在很多领域有重要应用。例如对连续激光进行高频相位调制时,输出

的频谱被显著地展宽^[1],可以广泛用于光谱学、激光变频^[2]以及改善单色激光均匀性等方面。当调制器的微波调制频率过高的时候,由于微波与光波在晶体中的速度失配,无法实现深度调制。为了解决这

收稿日期:2005-07-20;收到修改稿日期:2005-11-06

基金项目:国家自然科学基金(60477016,60407006)、上海市重大基础研究(04DZ14001)和上海市教委曙光计划合作资助项目。

作者简介:吕航(1981—),男,湖北武汉人,上海交通大学硕士研究生,主要从事准速度匹配理论及相关调制器工艺方面的研究。E-mail:nlvhang@sjtu.edu.cn

*通信联系人。E-mail:xfchen@sjtu.edu.cn

个问题,国内外采用对晶体进行周期性畴反转,即将晶体中调制度下降部分对应的晶体自发极化方向反转(畴反转),使此区域内电光系数改变符号,相应频率下微波的相位得到补偿,达到微波和光波的准速度匹配,以实现深度调制^[1,3]。由于极化钽酸锂主要用于准相位匹配激光频率转换方面,其厚度往往不会大于0.5 mm,极化的单畴面积也非常小^[4]。在波导器件的表面实现极化也已有报道,但所涉及到的钽酸锂厚度也仅仅是0.5 mm^[5]。虽然国际上已经有研究小组成功地实现了较大面积钽酸锂晶体的电场极化,并研制出大调制度的准速度匹配相位调制器,该调制器已经用在大功率激光装置上的光谱均匀化^[6,7]。但他们报道的厚度仅有0.5 mm与0.65 mm。众所周知,大功率激光束作用要求晶体的通光面积越大越好,所以研究更厚钽酸锂晶体的室温电场极化技术成为关键。另外随着晶体厚度的增加,在所需的极化电压增加的同时,在极化时间末尾也出现了比较特别的回流现象,这对制备高质量的大面积极化晶体不利。

本文研究了大面积并且厚度达到1 mm的钽酸锂晶体的电场室温极化过程,发现通过改变极化时间可以很好地抑制电场极化时产生的回流。利用热释电和化学腐蚀方法,证实了钽酸锂晶体的大面积畴反转。

2 准速度匹配和电场极化

在调制器中由于微波与光波在介质中的传播速度不同,必然会造成速度失配。采用周期性畴反转的目的是为了实现准速度匹配。当群速度为 v_0 的光在 t_0 时刻入射晶体,微波频率为 f_m ,微波在晶体中的速度为 v_m ,晶体对微波的折射率为 n_m ,在 $t_0 + (y/v_0)$ 时刻到达晶体中的 y 处,此时晶体的折射率为

$$n(t_0 + \frac{y}{v_0}, y) = n_e + n_m \cos \left\{ 2 f_m \left[t_0 - \left(\frac{1}{v_m} - \frac{1}{v_0} \right) y \right] \right\}, \quad (1)$$

那么波长为 λ 的光到达 y 处的相位变化量为

$$= \frac{2\pi}{\lambda} \int_0^y n dy = \phi_0 + \cos(2 f_m t_0 - U), \quad (2)$$

其中 $\phi_0 = \frac{2\pi}{\lambda} n_e y$, $U = \frac{4\pi L}{\lambda} n_m \sin U$,

$$U = f_m y \left(\frac{1}{v_m} - \frac{1}{v_0} \right).$$

只有在 $v_m = v_0$ 的情况下,调制度才与 y 成比例增加。而一般情况下都是以 $2L$ 为周期来增减, L 为

$$L = \frac{1}{2} f_m \left(\frac{1}{v_m} - \frac{1}{v_0} \right). \quad (3)$$

当 f_m 较大时,因为相互作用长度无法增加,很难获得大调制度。

使晶体中调制度下降的那部分的晶轴反转(畴反转)后,使此区域内的电光系数变化反向,此区域的折射率变为

$$n_1 = n_e - n_m \cos \left\{ 2 f_m \left[t_0 - \left(\frac{1}{v_m} - \frac{1}{v_0} \right) y \right] \right\}, \quad (4)$$

则当光波再传播到 y 处时,光波的相位变化为

$$= \frac{2\pi}{\lambda} \int_0^L n dy + \frac{2\pi}{\lambda} \int_L^{2L} n_1 dy + \dots + \frac{2\pi}{\lambda} \int_{(q-1)L}^q n dy = \phi_0 + \cos(2 f_m t_0 + \phi), \quad (5)$$

则此时可实现的调制度为

$$= \begin{cases} \frac{2n_m}{f_m(1/v_m - 1/v_0)} \sqrt{q^2 + (2q+1)\sin^2 U}, & q \text{ 为偶数} \\ \frac{2n_m}{f_m(1/v_m - 1/v_0)} \sqrt{q^2 + (2q+1)\cos^2 U}, & q \text{ 为奇数} \end{cases} \quad (6)$$

图1为速度匹配、速度失配和准速度匹配情况下,相位调制度的比较。由于微波和光波存在速度差别,所以图中的速度匹配曲线只存在理论上的意义。以 $2L$ 为周期进行畴反转后,微波和光波在晶体中实现了准速度匹配,从图中可以看出,准速度匹配可以大大提高相位调制度,而且随着晶体长度的增加,调制度以近似线性关系增加。

外加电场极化法是将一定的电场加载在晶体的

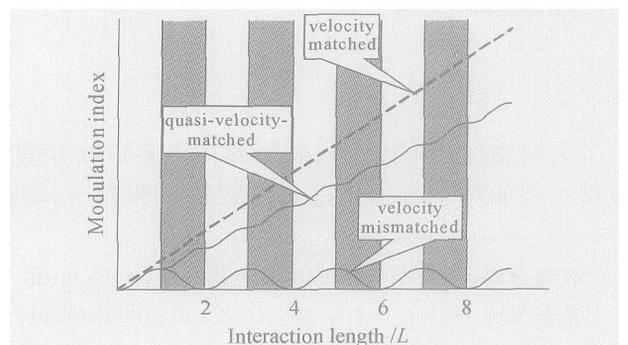


图1 相互作用长度与调制度的关系

Fig. 1 Relationship between interaction length and modulation index

上下表面, 以实现晶体内部电畴反转的方法。在制备周期畴结构的各种技术中, 外加电场极化法是目前比较常用也比较行之有效的方法之一, 能大大降低畴反转极化的难度与成本, 已经被广泛应用于各类铁电晶体, 如铌酸锂等的畴反转制备^[8]。实验过程中完成极化反转所需要的电量主要由极化电流和极化时间所决定^[9]

$$Q = idt = 2 P_s A, \quad (7)$$

式中 A 为极化区域的面积, P_s 为晶体的自发极化强度, 对于钽酸锂晶体, 它的自发极化率 $P_s = 50 \mu\text{C}/\text{cm}^2$, Q 由极化时间控制。根据具体条件来确定高压脉冲的幅度、宽度与个数。

另外, 当整个金属电极下的畴反转结束后, 如果再向晶体施加脉冲电压, 畴反转很容易扩散到电极以外的区域。

3 实验装置及实验结果

实验中, 用于高功率激光相位调制器的钽酸锂晶体的厚度达到 1 mm。考虑到镍的致密性, 使用这种金属作为溅射在晶体上的金属电极, 如图 2 所示。钽酸锂晶体表面单个电极的面积为 $14 \text{ mm} \times 5 \text{ mm}$ 。图 3 为室温电场极化装置, 实验中高压源采用了 TTI TGA1241 任意信号波形产生器与 Trek $\pm 30 \text{ kV}$ 高电压放大系统, 将信号波形产生器生成的任何电压幅值放大 1500 倍。图中的电阻 R 起到分压的作用。系统的正负电极与钽酸锂晶体上的金属电极连接。由于钽酸锂具有比较高的矫顽场 ($V_c = 21 \text{ kV}/\text{mm}$), 所以在极化时外加的电压也比较高, 如果直接裸露在空气中的话会因为表面电场过强而

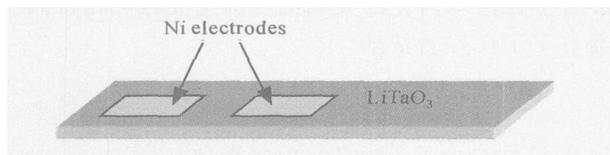


图 2 实验中的钽酸锂样品

Fig. 2 LiTaO₃ sample in experiment

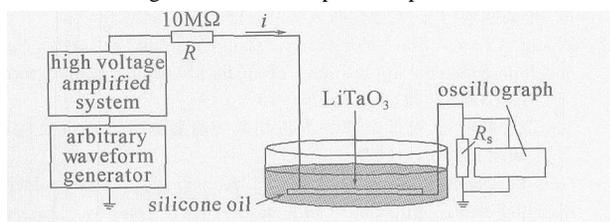


图 3 极化装置示意图

Fig. 3 Sketch of LiTaO₃ polarization method

放电与打火。为了避免这种情况, 在极化过程中需要在晶体表面覆盖介电常数较大的物质, 液体甚至可以是固体。晶体厚度越大, 极化所需的电压越高, 需要表面覆盖物质的绝缘性就越好。在实验中, 将晶体整体浸泡在绝缘硅油中。示波器的两端接在电阻 R_s 的两侧, 以检测电路中流过的电流变化。

任意信号发生器输出的电压曲线如图 4 所示。电压值要在实验中进行调整, 所以图示中纵坐标只表示电压值的相对值, 而并非实际值。

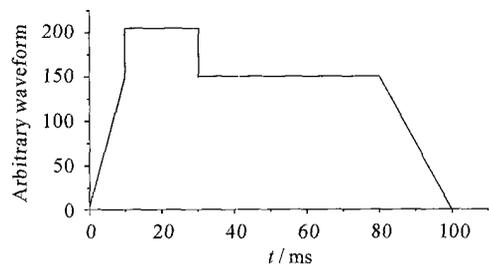


图 4 极化电压与时间的关系

Fig. 4 Relationship between voltage of polarization and time

晶体上的上下金属电极可以等价于一个平板电容, 检测的实际上就是充放电电流。首先选择任意信号发生器输出电压为 10 V , 经过放大之后输出为 15 kV , 这个电压形成的电场强度还小于钽酸锂晶体的矫顽场 ($V_c = 21 \text{ kV}/\text{mm}$)。这是为了检验系统正负极与晶体上的金属电极是否接触完好, 确认没有短路。当刚把电压加到晶体上的时候, 电流曲线如图 5(a) 所示, 此时出现了一次充电过程与两次放电过程。充电所示箭头指向的充电电流为电压陡然上升跳变时刻产生的, 而放电 1 箭头指向的是电压值由最高点陡降到平坦区时的一次放电; 放电 2 箭头指向的是由平坦区降到电压为零时的放电电流。

然后, 从 10 V 开始把电压逐渐加上, 根据钽酸锂的矫顽场值, 1 mm 厚度的晶体极化电压应该为 21 kV 。折算到信号发生器的输出电压为 14 V , 但考虑到 10 M 的电阻的分压作用, 设置任意信号发生器输出的电压比 14 V 略高。当晶体两面之间的电压超过矫顽场的值的时候, 晶体开始极化。如图 5(b) 所示, 此时充电电流尖峰开始变宽, 出现了极化电流。其宽度在极化初始阶段随着施加的脉冲个数增加而增大, 最宽时可以达到 20 ms 。而在放电 2 箭头所指的放电电流后面出现了一个向下的小尖峰, 对应的电流与充电电流方向相反, 与放电电流方向相同。经分析这是一段回流, 回流的宽度一般在

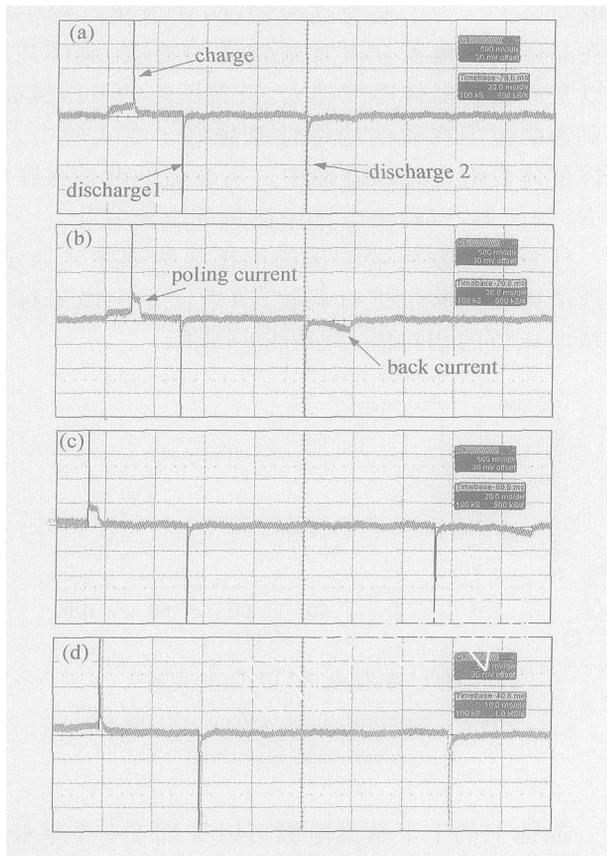


图5 电流时间关系

- (a) 未产生极化时;(b) 开始极化时;
(c) 极化时间延长后;(d) 极化完成

Fig. 5 Relationship between poling current and time

- (a) without domain inversion;
(b) beginning of domain inversion;
(c) extending poling time; (d) completion of domain inversion

20 ms左右。回流产生是因为在极化过程中电场要被削弱,而越靠近正极的区域电场越强,越靠近负极的区域电场越弱。当晶体厚度较大时,若电压不够高或者极化时间不够长。电场都无法抵达晶体的 $-z$ 面就折回来了,使极化无法成功实现。

从上面分析知道,抑制极化产生的回流可以通过提高极化电压或者延长极化时间来实现。但是在实验中发现单方面提高极化电压,可能会导致 $+z$ 面的电场过强,造成表面击穿而损伤晶体。所以没有继续提高极化电压,而是维持在一定的值的同时,通过延长极化的时间来抑制回流,如图5(c)中所示。当极化时间延长之后,对比图5(b)和(c),极化电流的宽度变化不大,但回流比图5(b)中显得平缓了许多,可见延长极化时间对抑制回流是有效的。维持这样的极化时间不变,对晶体多次施加脉冲电压。可以观察到极化电流的宽度逐渐变小,回流逐

渐趋于与横轴平行。当极化电流与回流都消失的时候,如图5(d)所示,晶体的极性反转就完成了。

极化完成以后,通过铁电体的热释电效应在晶体的 $\pm z$ 面来检测电极区域的晶轴是否已经反转。不论在晶体的 $+z$ 还是 $-z$ 面,金属电极区域热释电产生的电流方向都与电极未覆盖处热释电产生的电流方向相反,说明已经完全实现了畴反转。在显微镜下清晰地看到了晶体的畴反转边界,如图6所示,可以肯定极化达到了预期的效果。

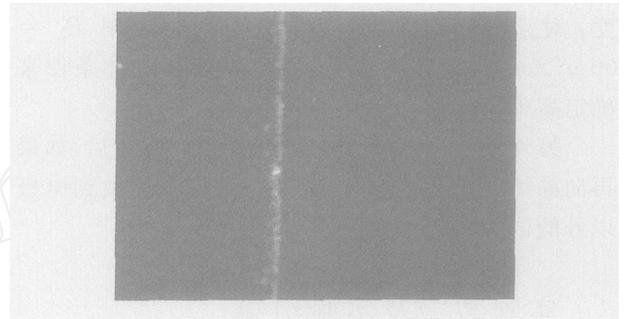


图6 畴反转边界的光学显微镜照片

Fig. 6 Microscope picture of the inverted domain edge

4 结论

在制备大面积周期性畴反转钽酸锂晶体时利用了室温外加电场极化法,针对厚度较大的晶体在实验中出现的回流现象,提出了通过在维持一定电压基础上延长极化时间的方法来抑制,并通过多脉冲极化实现了大面积区域的畴反转。本方法适用于常温下钽酸锂、铌酸锂、掺铈铌酸锂等铁电晶体,可以采取类似的方法进行大面积极化,实验过程中采取的参数将有所不同。本工作为研制用于高功率激光装置上光谱均匀化的大调制速度匹配相位调制器打下了良好的基础。

参考文献

- Guo Fengzhen, Yu Changtai, Wang Wei *et al.*. A novel type of electrooptic modulator suitable for THz-width sidebands generation [J]. *Acta Optica Sinica*, 1995, **15**(7): 935 ~ 938
郭凤珍,于长泰,汪伟等.用于产生太赫超宽带光谱的新型电/光调制器[J]. *光学学报*, 1995, **15**(7): 935 ~ 938
- Zhang Chao, Zhu Yongyuan, Zhu Shining *et al.*. New developments and applications of quasi-phase-matched material [J]. *Physics*, 2002, **31**(2): 75 ~ 79
张超,朱永元,祝世宁等.准位相匹配材料研究新进展及应用[J]. *物理*, 2002, **31**(2): 75 ~ 79
- Guo Fengzhen, Yu Changtai, T. Kobayashi. Quasi velocity matched electrooptic phase modulator [J]. *Chinese J. Lasers*, 1997, **A24**(4): 307 ~ 310
郭凤珍,于长泰,小林哲郎.准速度匹配电光相位调制器[J]. *中国激光*, 1997, **A24**(4): 307 ~ 310

- 4 Tattee Khayim, Akira Maruko, Akihiro Morimoto *et al.*. Ultrafast unidirectional deflection by electrooptic traveling phase grating using periodic domain inversion [C]. Technical Digest. CLEO/Pacific Rim '99. Pacific Rim Conference on Lasers and Electro-Optics (Cat. No. 99TH8464), 1999, Vol. 3:726~727
- 5 A. Busacca, M. Cherchi, S. Riva Sanseverino *et al.*. Surface periodic poling in lithium niobate and lithium tantalate [C]. Fibres and Optical Passive Components, 2005. Proceedings of 2005 IEEE/LEOS Workshop on 22~24 June 2005. 126~130
- 6 Hiroshi Murata, Akihiro Morimoto, Tetsuro Kobayashi *et al.*. Optical pulse generation by using quasi-velocity-matched guided-wave electrooptic phase modulator [J]. *Optical and Quantum Electron.*, 2001, **33**(7-10):785~794
- 7 Dae-Sik Kim, Tattee Khayim, Akihiro Morimoto *et al.*. Ultrashort optical pulse shaping by electrooptic synthesizer [J]. *IEICE Transactions on Electron.*, 1998, **E81-C**(2):260~263
- 8 Chen Yunlin, Ni Wenjun, Zhao Yuqiang *et al.*. Ferroelectric-domain-inverted gratings in LiNbO₃ fabricated by electric-field poling [J]. *Chinese J. Lasers*, 1999, **A26**(10):889~892
陈云琳,倪文俊,赵玉强等. 外加电场极化法制备 LiNbO₃ 铁电畴反转光栅[J]. *中国激光*, 1999, **A26**(10):889~892
- 9 L. E. Myers, R. C. Eckardt, M. M. Fejer *et al.*. Quasi-phase-matched optical parametric oscillators in bulk periodically poled LiNbO₃[J]. *J. Opt. Soc. Am. B*, 1995, **12**(11):2102~2116

www.cnki.net