

铌酸锂热释电性能的研究*

冯锡洪 张雁行 李海沧 邵黎熹

(中国科学院上海硅酸盐研究所) (上海激光技术研究所) (上海无线电六厂)

提 要

由材料参数测试和器件响应率测试证实, LiNbO_3 晶体的热释电响应率优值 M_V 为一般公认值的二倍. 而且当温度升高时, M_V 缓慢降低, 并不出现某些文献所预示的明显增加. 着重研究了 LiNbO_3 探测器在高功率密度连续激光辐照下的输出特性. 研究表明, 在相同条件下, LiNbO_3 探测器的输出开始偏离线性所对应的最大功率密度远高于 LiTaO_3 . 仔细测定了 LiNbO_3 晶体的固有介质损耗, 并据此估计 LiNbO_3 器件探测率的极限值. 分析表明, 就制备背景探测率的器件的潜力而言, LiNbO_3 不低于 TGS.

一、引 言

铌酸锂 (LiNbO_3) 是一种优良的电光和压电晶体, 但是作为一种热释电材料, 却一向不受重视, 以致在一些关于热释电材料的重要评述文章中常常不予列入. 对 LiNbO_3 热释电探测器的研究工作也不多见, 仅日本和苏联有过少量工作^[1,2], 而且它们都是在低频、小信号的情况下运用, 并未充分发挥 LiNbO_3 材料的长处.

本文叙述 LiNbO_3 热释电探测器的器件结构、制作工艺和性能. 结果表明, LiNbO_3 晶体的电压响应率优值比一般公认的值高出一倍, 这已从材料参数和器件响应率测试两方面得到证实. 还着重研究了 LiNbO_3 器件在大信号输入情况下的工作特性, 与同样结构的 LiTaO_3 器件相比, 它有宽得多的线性输出工作范围, 充分显示出这种高居里点铁电材料作为高功率密度连续激光接收器件的能力. 文中还就 LiNbO_3 器件探测率的极限值进行了讨论. 我们相信, 这些工作对于正确评价 LiNbO_3 晶体作为热释电材料的价值是有意义的.

二、铌酸锂的响应率优值和器件制备

使用一致熔化组分的 LiNbO_3 单晶, 晶体性能如表 1 所示. 作为比较, 同时列出本所自制的 LiTaO_3 单晶的数据.

表中所列数据除 C_V 引自文献 [3] 外, 都为实测值^[4,5]. 以前报道的 LiNbO_3 的响应率优值 M_V 各家数据相差很大^[6-8], 这主要反映在热释电系数的差异. 究其原因, 可能与晶

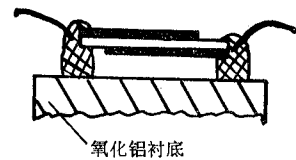
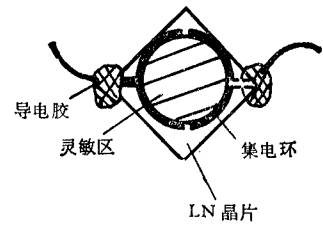
* 1981年6月10日收到.

表 1 LiNbO₃、LiTaO₃ 单晶的性能Tab. 1 Pyroelectric properties of LiNbO₃ and LiTaO₃ Single crystal

材料	组分	居里温度 $T_c(^{\circ}\text{C})$	介电常数 ϵ	体积比热 $C_V(\text{J}/\text{cm}^3\text{C})$	热释电系数 $P(\text{C}/\text{cm}^2\text{C})$	响应率优值 $M_v = \frac{P}{\epsilon \cdot C_V} (\times 10^{-10})$
LiNbO ₃	Li/Nb = 0.946	1140	29	2.99	0.85×10^{-8}	0.98
LiTaO ₃	Li/Ta = 0.95	598	42	3.16	1.8×10^{-8}	1.35

体组分、单畴化程度和测试精度等因素有关。一般公认的数值是, 热释电系数 P 为 $0.4 \times 10^{-8} \text{C}/\text{cm}^2\text{C}$, M_v 为 0.48×10^{-10} , 仅为 LiTaO₃ 的 35%。但由表 1 可见, 这里 LiNbO₃ 的 M_v 值约为 LiTaO₃ 的 72%, 热释电系数高出一倍, 与文献 [8] 一致。热释电系数由电荷累积法测得^[4], 该测试系统对 LiTaO₃ 的结果与国内外的数据基本符合。表 1 所列结果为大量 LiNbO₃ 样品的统计平均值, 变化范围在 $\pm 5\%$ 之内。而且, 由材料参数测试得到的这一结果, 也已为这两种探测器电压响应率的测试结果所证实。在相同的工艺条件下制得的两种器件, 对相同的灵敏元面积, LiTaO₃ 的响应率约为 150—160 V/W, 而 LiNbO₃ 的则为 90—100 V/W, 约为前者的 61%, 与材料测试结果相当接近。

取 (001) 方向生长的晶体, 切割成边长为 $2.8 \times 2.8 \text{mm}^2$ 的小片, 垂直于极化轴。晶片两面抛光, 最终厚度约 $20 \mu\text{m}$ 。灵敏元直径为 2mm。上电极为半透明铬层, 周边带有 0.2mm 宽的集电金环。下电极为铬/金双层电极。器件为桥式悬空结构, 衬底为氧化铝陶瓷。图 1 为管芯结构。器件性能见表 2。由于受探测系统的限制, 实际探测率高于表中所列数值。

图 1 LiNbO₃ 探测器管芯结构Fig. 1 LiNbO₃ pyroelectric detector construction表 2 LiNbO₃ 热释电探测器的性能Tab. 2 Performance of LiNbO₃ pyroelectric detector

材料	灵敏元直径 (mm)	器件电容 $C_d(\mu\text{F})$	电压响应率 $R_V(20, 6)(\text{V}/\text{W})$	探测率 $D^*(500, 20, 1)(\text{cm} \cdot \text{Hz}^{1/2}/\text{W})$	等效噪声功率 $\text{NEP}(\text{W}/\text{Hz}^{1/2})$
LiNbO ₃	2	50—60	90—100	$1.2—1.4 \times 10^8$	1.3×10^{-9}

三、高功率密度连续激光辐射下的输出特性

这里着重讨论在接收 $10.6 \mu\text{m}$ CO₂ 激光的情形。设入射辐射具有如下形式:

$$W = W_0(1 - e^{i\omega t}) = W_0 + W' \quad (1)$$

在大信号情况下, 其中直流分量的作用使晶片升至某一平衡温度 T_E 。至于交流分量的作

用,当 $\omega^2\tau_i^2 \gg 1, \omega^2\tau_e \gg 1$ (τ_i, τ_e 分别为热的和电的时间常数)时,器件的电压响应率为:

$$R_V = \frac{P}{C_V \cdot \varepsilon} \cdot \frac{\eta}{A \cdot \omega} = M_V \cdot \frac{\eta}{A \cdot \omega} \quad (2)$$

在宽的温度范围内工作时,响应率优值 $M_V = M_V(T)$ 是温度的函数,由于 LiNbO_3 的居里温度是所有已知铁电体中最高的,因此,即使在大信号输入或很高环境温度情况下, M_V 随温度的变化也远较其它铁电体平缓.这就使它具有更宽的线性工作范围.

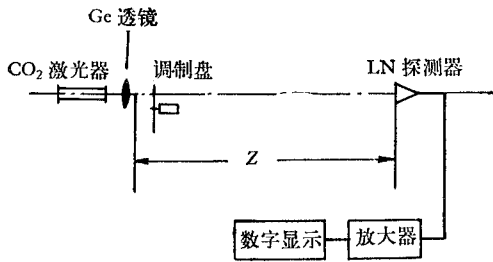


图 2 LiNbO_3 探测器输出特性测量装置

Fig. 2 The experimental arrangement used for measuring the output characteristics of pyroelectric detectors

LiNbO_3 探测器输出特性的测量装置如图 2 所示.光源为一稳定的连续波 CO_2 激光器,输出功率 3W, TEM_{00} 模.光束经锗透镜聚焦后再发散,焦距 f 为 25mm. 设 Z 为透镜焦点至探测器的距离,则器件所接收的激光功率由下式给出.

$$P_a = 2P_0 \left(\frac{\pi \omega_0}{\lambda} \right)^2 \frac{1}{Z^2}, \quad (3)$$

式中 P_0 为通过调制盘后的激光功率; λ 为激光波长; ω_0 为透镜焦点处的光斑半径,

$\omega_0 = f\theta$, θ 为光束发散角.用微泡胶卷时差法测出激光束光强分布^[9],再由光强的 $1/e^2$ 半径确定 θ ,由此测得的 ω_0 值与根据理论计算的值基本符合.探测器输出信号经放大处理后由数字电压表读出.探测器的负载电阻为 240 k Ω .

图 3 为 LiNbO_3 和 LiTaO_3 探测器的输出特性.两者的结构和制作工艺相同.很清楚, LiNbO_3 比 LiTaO_3 有宽得多的线性范围. LiNbO_3 的输出开始饱和的激光功率密度 (B 点) 约为 171 mW/cm². LiTaO_3 在 A 点呈现饱和,考虑到 ZnS 窗的衰减作用(约 30%), LiTaO_3 呈现饱和的激光功率密度约为 36 mW/cm²,仅为 LiNbO_3 的 21%. 上面列出的为平均功率密度.若考虑到调制盘开孔与挡光比为 1:3,则相应的幅值功率密度应为 680 mW/cm² (B 点) 和 140 mW/cm² (A 点).

有趣的是,当灵敏元因激光辐照而使温度大幅度升高时, LiNbO_3 器件并未出现一些文献([6—7])所预示的超线

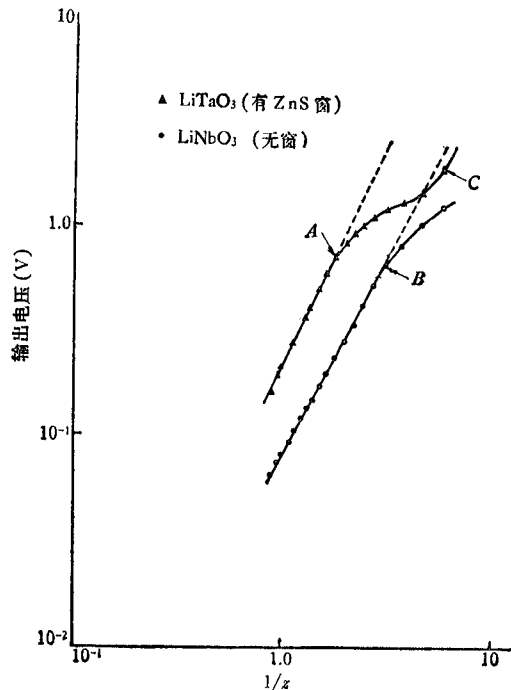


图 3 两种器件的输出特性

Fig. 3 The output characteristics of LiNbO_3 and LiTaO_3 crystal pyroelectric detectors

性,而是趋于饱和。根据这些资料,100°C时LiNbO₃的 M_V 值比25°C时增加20—30%。我们认为这是由于对LiNbO₃的热释电系数及其温度关系的测量误差所造成的。我们对LiNbO₃的实际测量表明,当温度由25°C升至100°C时, M_V 值将由0.98降至0.92,因此在高温下LiNbO₃器件的输出将呈现饱和,详见表3。在图3C点,当激光功率密度大于430 mW/cm²时(幅值功率密度为1700 mW/cm²),LiTaO₃器件的输出急剧增加,粗略的计算表明,这些灵敏元的温度已超过300°C,长时间工作将导致退化。

表3 LiNbO₃晶体在25°C和100°C时的参数比较Tab. 3 Pyroelectric material parameters of LiNbO₃ crystal at 25°C and 100°C

材 料	组 分	测试温度 (°C)	热释电系数 $P(\times 10^{-3}\text{C}/\text{cm}^2\text{°C})$	介电常数 ϵ	热容 $C_V(\text{J}/\text{cm}^3\text{°C})$	响应率优值 $M_V(\times 10^{-10})$
LiNbO ₃	Li/Nb = 0.946	25	0.85	29	2.99	0.98
		100	增加 8%	增加 6%	3.26	0.92

四、铌酸锂探测器极限探测率的讨论

Putley^[10]最近证明,热释电探测器的热噪声有可能低于由灵敏元的辐射热导所确定的热噪声。他认为随着新的器件工艺,如离子束刻蚀的发展,已有可能使探测器灵敏元对环境的热导接近辐射热导限,此时由热噪声确定的最小等效噪声功率 $P_{N(\text{Jmin})}$ 与背景限等效噪声功率 $P_{N(\Delta T)}$ 之比为

$$q_{N(\text{Jmin})} = \frac{P_{N(\text{Jmin})}}{P_{N(\Delta T)}} = \frac{1}{P} (2C_V \cdot \epsilon \cdot \epsilon_0 \text{tg} \delta_d / \eta_T)^{1/2} \quad (4)$$

式中 $\text{tg} \delta_d$ 为材料固有的介质损耗,它与热导无关; T 为背景温度;注意式中一项

$$\phi = P^{-1} (C_V \cdot \epsilon \cdot \text{tg} \delta_d)^{1/2} \quad (5)$$

仅与材料性能有关。

由(4)式可见,材料的正切损耗对制备背景限探测器有举足轻重的影响。然而热电探测器的正切损耗不同于材料的本征正切损耗 $\text{tg} \delta_d$,它是一个对器件结构和工艺敏感的参量。因此,为得到 $\text{tg} \delta_d$ 的正确值,必须仔细排除其它因素的影响。当 $\omega^2 \tau_i^2 \gg 1$ 时,热释电晶片正切损耗测量值为:

$$\text{tg} \delta = \text{tg} \delta_T + \text{tg} \delta' + \text{tg} \delta_d, \quad (6)$$

其中

$$\text{tg} \delta_T = \frac{k_T \cdot G}{C_V \cdot A \cdot d \cdot \omega}, \quad (7)$$

$$G = G_c + G_r + G_t. \quad (8)$$

$\text{tg} \delta_T$ 为电热电耦合引起的损耗^[11]; G 为总热导,它为空气传导 G_c 、辐射热导 G_r 和横向热导 G_t 之和。 $\text{tg} \delta'$ 为由表面处理、接触电阻等引起的附加损耗。

取单畴 LiNbO₃ 晶体加工成 $2.9 \times 2.9 \text{mm}^2$ 的小片,垂直 C 轴。两面用 M_1 钻石膏仔细

抛光,再用 600eV 氩离子束两面腐蚀 20 分钟,最终厚度约 $50\mu\text{m}$. 在相对两面分别加上直径为 2.4mm 的铬薄层作电极,用洁净氧化铝陶瓷作衬底,并用导电胶接出引线. 然后置于真空屏蔽盒内,用 QS-16 精密电容电桥测试,测试频率为 400Hz. 由于采取上述措施, $\text{tg } \delta'$ 降至最小, G_r 、 G_c 均可忽略. 在这些样品中测得的 $\text{tg } \delta$ 值为 3.4×10^{-4} . 由 (6)、(7)、(8) 式扣除 $\text{tg } \delta_T$, 求得 LiNbO_3 的固有损耗值 $\text{tg } \delta_d$ 为 2.6×10^{-4} . 该值并非 LiNbO_3 可能达到的最低值,但就我们的晶体而言,则是现在可能达到的值,据此我们推出 LiNbO_3 的 ϕ 值,并与一些重要的材料作了比较,结果列于表 4. 表中 TGS、 LiTaO_3 和 PLZT 的数据取自文献 [10]*.

表 4 一些材料的热释电性能

Tab. 4 Properties of some pyroelectric materials

材 料	热释电系数 $P(\text{C}/\text{cm}^2\text{C})$	热容 $C_V(\text{J}/\text{cm}^3\text{C})$	介电常数 ϵ	固有正切损耗 $\text{tg } \delta_d$	优值因子 ϕ $P(C_V \cdot \epsilon \cdot \text{tg } \delta_d)^{-1/2}$	$q_N(J/\text{min})$
TGS	3.5×10^{-8}	2.5	30	5×10^{-3}	4.0×10^{-8}	0.43*
LiTaO_3	2.3×10^{-8}	3.2	47	$\leq 1 \times 10^{-4}$	1.9×10^{-7}	0.14
PLZT	10×10^{-8}	2.6	1400	5×10^{-3}	2.3×10^{-8}	1.04*
LiNbO_3	0.85×10^{-8}	3.0	29	$> 2.6 \times 10^{-4}$	5.7×10^{-8}	0.43

由表 4 可见,就制作背景限探测器的潜力而言, LiNbO_3 不低于 TGS.

LiTaO_3 和 LiNbO_3 的离子束腐蚀是由冶金所任宗欣同志协助完成的,谨致谢意!

参 考 文 献

- [1] 山香英三, 电子材料, **11**(1972), 97.
- [2] П. С. Кременчугский, оптико-мех. пром., **2**(1980), 35.
- [3] В. В. Желловых и Дру., Ф.Т.Т. **10**(1968), 1725.
- [4] 张雁行等, 新型无机材料, **8**(1980), 50.
- [5] 金吉人等, 中国科学院硅酸盐研究所工作报告, 1980.
- [6] H. P. Beerman, Infrared Phys., **15**(1975), 225.
- [7] S. Weiner et al., NASA-CR-122334.
- [8] R. L. Byer and C. B. Roundy, Ferroelectrics, **3**(1972), 333.
- [9] 潘世明等, 激光, **7**(1979), 46.
- [10] E. H. Putley, Infrared Phys., **20**(1980), 149.
- [11] S. E. Stoskowski, Appl. Phys. Let., **29**(1976), 393.

* 文献 [10] 表 2 中数据计算有误. 计算时设 $\eta = 1$, $T = 300\text{K}$.

INVESTIGATION ON LITHIUM NIOBATE PYROELECTRIC DETECTOR

Feng Xi-qi Zhang Yan-xing

(Shanghai Institute of Ceramics, Academia Sinica)

Li Hai-cang

(Shanghai Institute of Laser Technology)

Shao Li-xun

(No. 6 Radio Works, Shanghai)

Based on the experimental results obtained from both the measurement of material parameters and device responsivity, it is verified that the pyroelectric responsivity figure of merit of LiNbO_3 crystal, M_v is twice as high as that generally acknowledged value. Furthermore, when the temperature rises, M_v slowly decreases rather than increases evidently with temperature as reported in certain literatures. In this paper, the output characteristics of LiNbO_3 pyroelectric detector which is irradiated by the high-power CW CO_2 laser has been investigated. The results show that the maximum power density at which the output characteristics of LiNbO_3 detector begin to deviate from linear range far exceeds that of LiTaO_3 detector under the same conditions. We have carefully measured the intrinsic dielectric loss $\text{tg } \delta_a$ of LiNbO_3 crystal. The value obtained can be used to estimate the detectivity limit of LiNbO_3 pyroelectric detector. Detailed analysis proves that, for producing the pyroelectric detector with background limited performance, its figure of merit of LiNbO_3 crystal is favorable, and no less than those of most commonly used materials, such as TGS.