

Mg:LiNbO₃에서 제 2고조파발생의 온도 및 직류전장 의존도*

진용성 · 김유민 · 이주현 · 박광서 · 이범구

서강대학교 물리학과

(1993년 2월 9일 받음)

Mg(4 mole%)-LiNbO₃에서 제 2고조파발생특성을 온도와 직류전장의 함수로 측정하여, Mg:LiNbO₃결정의 공간적 균일성을 조사하였다. 발생된 제 2고조파빛의 세기가 위상정합된 상태의 최대값으로부터 최초로 0이 되는 온도가 결정의 광축으로 가해준 직류전장의 변화에 선형적으로 변위함을 관찰하였다. 이로부터, 최초로 Mg가 4 mole % 첨가된 Mg:LiNbO₃의 전기광계수가 Congruent LiNbO₃의 해당하는 값보다 1.5배가 더 큼을 알 수 있었다.

I. 서 론

LN(LiNbO₃)결정은 2차 비선형 광학계수가 높아 전기광(Electro-Optic)효과를 이용한 광변조 장치^[1,2] 및 제 2고조파 발생(Second Harmonic Generation; SHG)장치^[3,4]의 소자로 널리 응용되어 오고 있다. SHG에 있어 순수한 LN결정은 광손상 효과^[5]가 수반되어 그 응용성이 제한되어 왔으나, 1980년 G.G. Zhong등에^[6] 의하여 LN결정에 4 mole %의 Mg을 첨가시킨 Mg:LN은 순수한 LN결정에 비해 광손상 효과가 100배 이하로 약화됨이 발견된 이후로 Mg:LN결정에 관한 결합특성^[7-9] 및 제 2고조파 발생 특성^[10,11]을 위한 다양한 연구가 활발히 진행되어 오고 있다. 이와 같은 많은 연구에도 불구하고 Mg:LN의 응용에 있어 필수적인 복굴절에 관한 중요상수들이 알려져 있지 않고 있다.

본 연구에서는 공간적 균일성이 좋은 것으로 알려진 congruent melt^[12]조성 조건에서 MgO를 4 mole % 첨가시켜 성장시킨 Mg:LN결정에 대하여 Nd:YAG레이저빛의 입사로 발생되는 제 2고조파 빛의 세기 변화를 온도와 직류전장의 함수로 측정하여, 결정의 공간적 균일성을 조사하고, 아울러 이제까지 알려져 있지 않은 Mg:LN의 복굴절율 차의 온도변화율과 전기광 효과에 관한 중요상수를 최초로 정밀히 결정하고자 한다.

II. 제 2고조파 발생의 온도 및 전장 의존성

LN결정은 Rhombohedrally Centered Hexagonal 형태의 격자 구조를 갖고 있는 강유전체이며, 선형 광학적 성질로는 자발 분극 방향(c-축)을 광축으로 extra-ordinary굴절률 n_r 가 ordinary 굴절률 n_o 보다 작은 negative uniaxial 복굴절성(birefringence)을 갖고 있다.^[13] 따라서 그림 1에서 나타낸 바와 같이 LN결정의 b-축 방향으로 편광된 진동수 ω 의 빛이 b-축과 c-축에 동시에 수직한 결정의 a-축 방향으로 진행하도록 입사 시키면, 결정 내에 c-축으로 다음과 같이 표현되는 2차 비선형 분극, $\vec{P}^{(2)}$ (2ω), 이 결정 내에 유도된다.^[3]

$$\vec{P}^{(2)}(2\omega) = \hat{c} \chi_{322}^{(2)} E(\omega) E(\omega) \quad (1)$$

여기서 $E(\omega)$ 는 진동수 ω 의 입사빛의 전장이며, $\chi_{322}^{(2)}$ 는 결정의 2차 비선형 광학계수 중 상술된 편광조건에 유효한 한 성분이다. 이와 같은 2차 비선형 분극이 유도

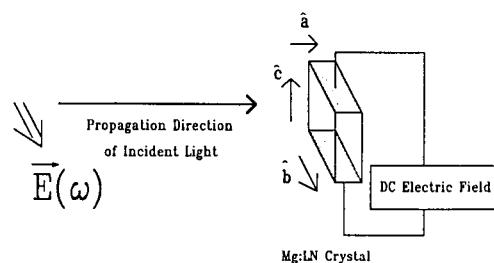


그림 1. 결정축에 대한 입사빛의 편광 및 진행방향.

* 이 연구는 유전체 물성연구센터를 통한 한국과학재단의 1992년도 연구비 지원에 의해 이루어졌다.

되어 있는 길이 L 의 결정속을 진동수가 ω 인 입사빛의 통과에 의하여 입사빛과 같은 진행방향으로 발생되는 제 2고조파의 세기, $I_2(2\omega)$ 는 다음과 같이 된다.^[14]

$$I_2(2\omega) = \frac{32\pi^3 \omega^2 |\chi_{32}^{(2)}|^2 L^2}{n_e(2\omega) n_o(\omega)^2 c^3} I(\omega)^2 \left[\frac{\sin(\xi)}{\xi} \right]^2 \quad (2)$$

여기서 c 와 $I(\omega)$ 는 각각 광속과 진동수 ω 의 입사빛의 세기이며, ξ 는 위상변위변수이고 다음과 같이 표현된다.

$$\xi = \frac{\omega}{c} L [n_o(\omega) - n_e(2\omega)] \quad (3)$$

결과식 (2)는 결정이 공간적으로 균일하다는 전제하에서 유도된 것으로, 만일 공간적으로 불균일하게 성장된 결정의 경우 제 2고조파 발생특성은 식 (2)와 여러가지로 다르게 될 수 있다. 실제로 이 사실을 이용하여 온도변화에 따른 제 2고조파 발생특성실험을 통하여 결정의 상태를 분석하는데 많은 응용이 이루어져 왔다.^[12,15]

또한, 식 (2)로부터 제 2고조파 빛의 세기는 ξ 변화에 의해 민감하게 변화함을 알 수 있고, $\xi=0$ 일 때 최대가 되는데 이 경우를 위상정합 조건이라 하며 이 조건을 만족시키는 온도를 위상정합온도(T_{pm})라고 한다. 또 ξ 가 π 의 정수배 값에서는 제 2고조파 빛은 0이 되며, 이 조건은 입사빛의 세기 요동에 무관함으로 실험적으로 정밀히 측정될 수 있다. 이와 같은 특수조건들은 복굴절율의 차, $n_o(\omega) - n_e(2\omega)$ 가 일반적으로 온도와 외부에서 걸어준 결정내 직류전장, E_o 의 함수이므로 온도와 직류전장을 가변하여 만족시킬 수 있다. 이제 직류전장이 걸리지 않은 상태에서 위상정합 온도를 중심으로 작은 온도 및 변화에 대한 복굴절율의 차를 선형근사 시키면 다음과 같이 전개된다.

$$n_o(\omega; T, E_o) - n_e(2\omega; T, E_o) = \alpha(T - T_{pm}) + \beta E_o \quad (4)$$

여기서

$$\alpha = \frac{\partial [n_o(\omega) - n_e(2\omega)]}{\partial T} \Big|_{T_{pm}, E_o=0} \text{이며,}$$

$$\beta = \frac{\partial [n_o(\omega) - n_e(2\omega)]}{\partial E_o} \Big|_{T_{pm}, E_o=0} \text{이다.}$$

특히 β 는 전기광효과의 복굴절 상수로 불리우며, c -축으로 직류 전기장을 거는 경우 LN의 전기 광계수 r_{13} 및 r_{33} 로 다음과 같이 표현된다.^[16, 17]

$$\beta = \frac{1}{2} [r_{13} n_o(\omega)^3 - r_{33} n_e(2\omega)^3] \quad (5)$$

식 (2), (3) 및 (4)로부터 제 2고조파의 세기가 최초로 0이 되는 두 온도 $T_o^+(\xi=\pi \text{인 경우})$ 와 $T_o^-(\xi=-\pi \text{인 경우})$ 을 구하면 다음과 같다.

$$T_o^+ = T_{pm} + \frac{1}{\alpha} \left[\pm \frac{\pi c}{\omega L} - \beta E_o \right] \quad (6)$$

여기서 잘 알려진 LN결정의 복굴절율에 관한 성질,^[12] 즉 $\frac{\partial n_e(2\omega)}{\partial T} \gg \frac{\partial n_o(\omega)}{\partial T}$ 로부터 α 가 음수라는 사실을 식

(6)과 함께 고려하면 $T_o^+ < T_{pm} < T_o^-$ 의 관계가 성립함을 알 수 있다. 이 점을 고려하여 위상정합온도를 전후로 제 2고조파 세기가 최초로 0이 되는 두 온도차(쪽), ΔT_o 를 양이 되도록 $\Delta T_o = T_o^- - T_o^+$ 로 정의하면, 식 (6)으로부터 ΔT_o 와 T_o^+ 혹은 T_o^- 의 직류전장에 의한 변위, ΔT_{E_o} ,는 다음과 같이 계산된다.

$$\Delta T_o = -\frac{\pi c}{\alpha \omega L} \quad (7)$$

$$\Delta T_{E_o} = -\frac{\beta}{\alpha} E_o \quad (8)$$

따라서 ΔT_o 과 ΔT_{E_o} 를 실험적으로 구하면 α 와 β 를 결정할 수 있다.

III. 실험 방법

Mg:LN결정은 congruent composition melt(LiO₂:Nb₂O₅=48.6 : 51.4)상태에 4 mole %의 MgO를 첨가시켜 광축인 c -축방향으로 Czochralski방법으로 약 1 cm의 직경으로 2.5 cm까지의 길이로 성장시킬 수 있었다. 성장된 결정은 4.6×5×5 mm (abc)와 1.05×5×5 mm (abc)의 두가지 크기로 절단하고 표면을 1 μm 이하의 정밀도로 연마하였다. 이 결정의 제 2고조파 발생을 위하여 Nd:YAG레이저의 편광방향을 b -축으로 하여 빛이 a -축방향으로 진행하도록 입사시켜, 발생하는 제 2고조파의 세기를 관측하였다.

그림 2는 본 실험의 실험장치를 나타낸 것으로 사용된 Nd:YAG레이저는 dye sheet을 이용한 수동형 Q-switched 레이저로 펄스폭은 35±2 nanosecond이고, 공간적모양은 Gaussian으로 빛살폭은 570±25 μm이었다. 결정에 입사되는 에너지는 제 2고조파 발생에 따른 진동수 ω 의 입사빛의 에너지 감소가 무시될 수 있는 조건을 만족시키기 위하여 펄스당 에너지가 1 mJ 이하가 되도록 하였다.

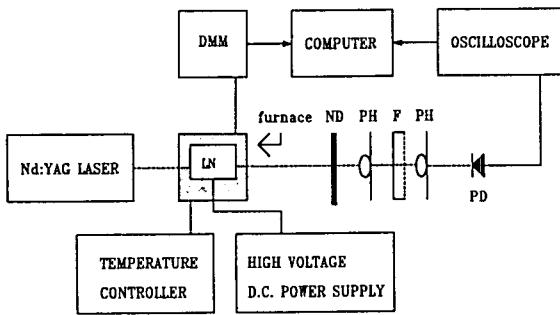


그림 2. 제 2고조파 발생특성의 측정을 위한 실험장치도.
 DMM; Digital Multi-meter, ND; Neutral Density Filter, PH; Pinhole, PD; Photo-diode, F; Nd:YAG 빛 제거하기 위한 Infrared Band Edge Filter.

발생된 제 2고조파 빛 중 레이저와 같은 방향으로 진행하는 빛만을 선택하기 위하여, 두개의 pinhole을 서로간에 10 cm 간격으로 삽입하였다. 결정을 통과한 Nd: YAG레이저 빛을 제거하여 순수한 제 2고조파 빛만을 선택적으로 관측하기 위하여, 결정과 Photodiode 사이에 적외선차단 Band Edge Filter(Oriel, No.51970)를 삽입하였다. 따라서 filter와 이 두개의 pinhole을 통과한 제 2고조파 빛만을 Photodiode로 감지하여 Oscilloscope(Philips, PM3335)로 그 세기를 읽고 Computer를 이용하여 결과를 기록하였다.

결정의 온도조절은 상온에서 200°C 까지 0.1°C 범위내로 온도를 안정시킬 수 있는 온도조절기(한영전자, HY-P100)를 사용하여, 위상정합 온도 근방 전후로 분당 0.1°C 씩 변화시켰다. LN 결정의 온도는 백금 저항 sensor에 직류 전류를 흘리고 그것의 전압을 1 μ V까지 측정할 수 있는 Digital Multimeter(Fluke, 9840A)를 사용하여 읽었고, computer를 이용하여 측정한 전압값에 해당되는 온도로 환산하여 제2고조파 신호와 동시에 기록하여 결과를 분석하였다.

결정의 c-축으로 직류전장을 걸기 위하여 결정의 두 개의 c-축에 수직한 위, 아래 두 면에 silver paste를 바르고 두께를 가변적으로 압축접착 시킬 수 있는 Aluminum 전극틀 사이에 삽입한 후, 두 전극에 고압 직류 전원 장치(Keithley, 246)로 고압을 가하였다. 본 실험에서는 결정에 가할 수 있는 최대 직류전장의 세기는 ± 5.7 KV/cm \circ 였다.

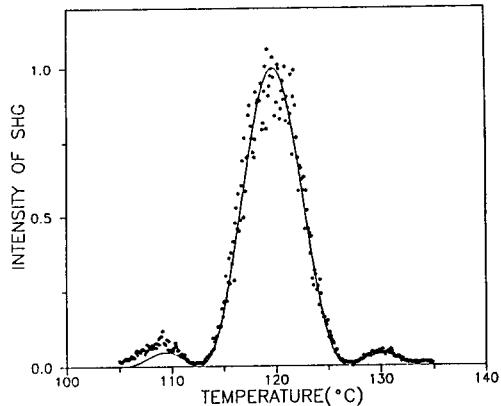


그림 3. 길이 1.05 mm의 LN결정에서 온도변화에 따른
제2고조파 세기의 실험값(별)과 이 실험값에
최소편차를 주는 위상정합 함수(실선)와의 비
교.

직류전장을 걸지 않고 a-축의 길이가 $L=1.05$ mm인 Mg:LN 결정에 대하여 온도 변화에 따른 제 2고조파의 세기 변화를 측정한 결과를 그림 3에 나타내었다. 이 그림에서 별표가 실험적으로 측정된 제 2고조파의 세기이며, 제 2고조파 세기는 임의의 선형 축척으로 나타내었다. 본 실험에서 Nd:YAG레이저 빛의 세기에 대한 요동을 보상하지 않아 위상정합 온도부근에서 제 2고조파 빛의 세기가 큰 폭으로 산재되어 나타났고, 따라서 본 실험의 측정 결과로부터 정확한 위상정합 온도를 직접 관측할 수는 없었다. 그러나, 이론 설명에서 언급한 바와 같이 위상정합 온도전후에서 제 2고조파 세기가 최초로 0이 되는 두 온도(T_+^0 와 T_-^0)는 레이저 빛의 요동과 무관하여 0.1°C 이내의 정확도로 그 값들을 결정할 수 있음을 알 수 있다. 따라서 본 실험에서 두 온도사이의 온도폭 $\Delta_o (=T_-^0 - T_+^0)$ 은 쉽게 측정되며, ΔT_o 의 측정결과는 $14.5 \pm .16^\circ\text{C}$ 였으며, 이 결과치를 식 (7)에 대입하여 α 값을 구한 결과 $\alpha = (7.0 \pm .1) \times 10^{-5} \text{ }^\circ\text{C}^{-1}$ 로 산출되었다. 이와 같이 결정된 α 값을 이용하여, 실험치와 최소편차를 주는 위상정합함수 $(\sin \xi / \xi)^2$ 를 구하여 그림 3에 실험치와 함께 실선으로 나타내었으며, 이것으로부터 제 2고조파 세기변화의 온도의존 특성이 이론식 (2)에 잘 따르는 것을 알 수 있었다. 또 이론곡선으로부터 위상정합 온도를 구하여 본 결과 $T_{pm} = 119.5 \pm 0.1^\circ\text{C}$ 이였고, 이 값은 다른 연구의 결과^[8, 18]와 1°C 이내로 잘 일치함을 알 수 있었다. 또한 식 (7)로부터, ΔT_o 는 결정의 길이(L)에 반비례하여 줄어들음을 알 수 있다. 실제로 a-축의 길이가 $L=4.6$ mm의 같은 결정에 대하여 제 2고조파 세기의

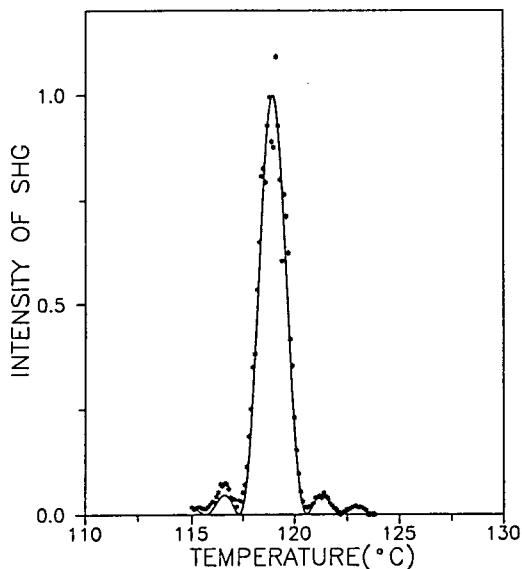


그림 4. 길이 4.6 mm의 LN결정에서 온도변화에 따른 제 2고조파 세기의 실험값(별)과 이 실험값에 최소편차를 주는 위상정합 함수(실선)와의 비교.

온도 의존성을 측정하였고, 그 대표적 결과를 그림 4에 나타내었으며 실선은 실험값들과 최소편차를 주는 위상 정합 함수로 앞서 결정된 같은 α 값을 이용하여 그린 것이다. 이 경우 $\Delta T_c = 3.4 \pm 1.1^\circ\text{C}$ 로 측정되었으며, 두 측정된 실험비 $\Delta T_c(L=1.05 \text{ mm})/\Delta T_c(L=4.6 \text{ mm}) = 4.26$ 으로 두 결정의 길이비와 3% 오차 범위내로 일치함을 알 수 있었다. 이상에서와 같이 온도변화에 따른 실험적 제 2고조파 세기의 변화특성이 식 (2)의 위상정합 함수에 일치한다는 점, 또 T_{pm} 값의 일치와 함께 ΔT_c 의 결정길이 의존도가 식 (7)과 일치하는 점들은 모두 본 실험실에서 키운 Mg:LN결정이 공간적으로 균일하게 잘 성장된 양질의 결정임을 확인해 주고 있다. 한편, 본 연구에서 측정된 Mg:LN의 값을 congruent의 그것($-5.84 \times 10^{-5} \text{ }^\circ\text{C}^{-1}$)과^[12] 비교하여 본 결과 거의 같은 것을 알 수 있었다.

제 2고조파 발생 특성의 직류전장 의존도를 보기 위하여, 직류전장을 c-축과 같은 방향과 반대방향으로 각각 최대 5.7 KV/cm까지 길이가 $L=1.06 \text{ mm}$ 인 Mg:LN결정에 가하여 제 2고조파 발생의 온도의존 특성을 관찰하였다. 대표적으로, 최대 5.7 KV/cm의 직류전장이 걸린 상태의 온도변화에 따른 제 2고조파 세기의 변화의 측정결과를 그림 5에 나타내었다. 이 그림에서 전류 전장

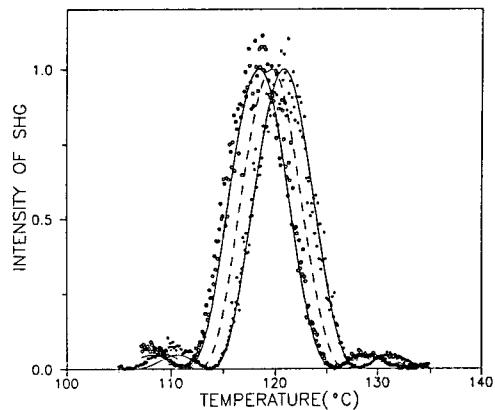


그림 5. 길이 1.05 mm의 LN결정에서 온도변화에 대한 제 2고조파 발생특성의 직류전압 의존도.
원: c-축 방향으로 5.7 KV/cm의 전압이 걸린 경우의 실험치, 별: c-축에 반대 방향으로 5.7 KV/cm의 전압이 걸린 경우의 실험치, 실선: 각 실험치에 최소편차를 주는 위상정합 함수, 점선: 그림 3에 나타낸 전압이 걸리지 않는 경우의 위상정합 함수.

방향이 c-축 방향인 경우는 원으로, 또 전장방향이 이와 반대인 경우는 별 표식으로 각각 나타내었다. 여기서 전장방향이 c-축 방향과 같을 때 낮은 온도쪽으로 변위하고 있는 것은 β 의 부호가 음임을 뜻하며, 이 결과는 LN결정에 있어 r_{33} 가 r_{31} 비해 큰 성질이^[19] MgO첨가에 의하여 변하지 않음을 뜻한다. 특히 위상정합온도 전후로 제 2고조파 세기가 최초로 0이 되는 두 온도(T_c^+ 와 T_c^-)가 직류전장의 c-축에 대한 극성의 양음에 따라 서로 반대칭적으로 변위함을 알 수 있는 데, 이는 본 실험에 사용된 결정은 5.7 KV/cm의 전장세기로는 domain의 역전이 불가능함을 뜻하며, 본 실험방법을 역이용하면 강유전체 광축의 극성을 규명하는 연구에 응용될 수 있다.

그림 6과 그림 7에서는 길이가 $L=1.05 \text{ mm}$ 인 Mg:LN에 대하여 5.7 KV/cm(광축과 전장방향이 같은 경우)에서 -5.7 KV/cm 까지의 직류전장의 세기변화에 따른 T_c^+ 와 T_c^- 의 변위를 측정한 결과를 오차 범위와 함께 나타낸 것으로, 이 두 그림에서 각 실선은 각 측정값과 최소편차를 주는 일차함수로 두 경우의 기울기가 서로 같음을 확인할 수 있었다. 이 결과로부터 T_c^+ 와 T_c^- 의 변위는 직류전장의 세기에 선형 비례 함을 알 수 있고, 최소편차를 주는 일차함수의 기울기를 식 (9)에 대입하여 β 를 구한 결과 $\beta = (1.49 \pm .02) \times 10^{-8} \text{ cm/V}$ 로 계산되었다.

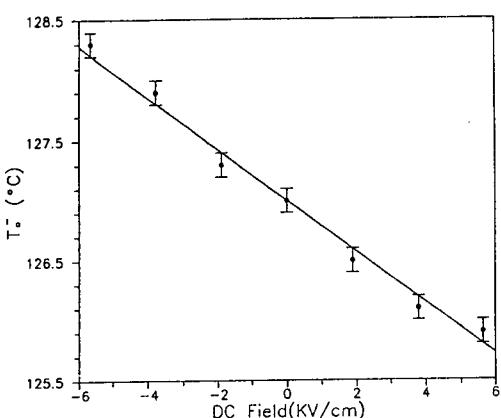


그림 6. 직류전장의 세기변화에 따른 T_c^- 의 변위.
원; 실험치, 실선; 실험치와 최소편차를 주는 일차함수.

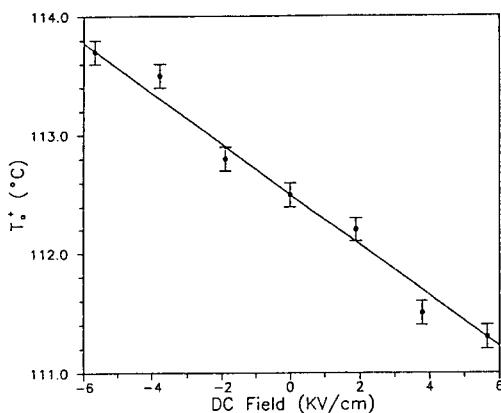


그림 7. 직류전장의 세기변화에 따른 T_c^+ 의 변위.
원; 실험치, 실선; 실험치와 최소편차를 주는 일차함수.

이 값은 이미 알려진 Congruent LN결정의 그것과^[16] 비교해 본 결과 1.5배가 더 큰 것으로 나타났다.

V. 결 론

본 연구에서 Mg가 4 mole % 첨가된 LN결정의 제2고조파 발생 특성을 위상정합 온도 균방에서 온도 및 직류전장의 함수로 관찰함으로서, 본 연구실에서 키운 Mg:LN결정이 공간적으로 균일한 양질의 결정임을 확인함과 동시에, 결정의 응용에 중요한 복굴절율차의 온도변화율 α 와 복굴절 상수 β 를 2% 이내의 오차범위 내로 결정할 수 있었다. 특히 본 연구에서 최초로 측정된 Mg:

LN의 값이 Congruent LN결정의 β 에 비해 1.5배나 큰 것으로 나타났으며, 이로부터 Mg가 첨가된 LN결정이 제2고조파 발생 소자뿐 아니라 광변조 장치의 소자로서도 응용성이 높은 결정임을 알 수 있었다. 아울러, 본 연구에서 사용된 제2고조파 발생 특성을 위상정합 온도 균방에서 온도 및 직류전장의 함수로 관찰하는 실험방법으로 제2고조파 발생을 위한 입사빛의 세기의 요동에도 불구하고 결정의 중요한 물리변수들을 정밀히 결정할 수 있을 뿐 아니라, 결정의 공간적 성질 및 강유전체의 광축 결정에도 활용할 수 있음을 증명하였다.

참 고 문 헌

- [1] R. Keil and F. Aurachher, Opt. Commun. **30**, 23 (1978).
- [2] R. Chen and C. S. Tsai, Opt. Lett. **11**, 546 (1986).
- [3] G. D. Boyd, R. C. Miller, K. Nassau, W. L. Bond, and A. Savage, Appl. Phys. Lett. **5**, 234 (1964).
- [4] P. M. Bridenbaugh, J. R. Carruthers, J. M. Dziedzic, and F. R. Nash, Appl. Phys. Lett. **17**, 104 (1970).
- [5] F. S. Chen, J. Appl. Phys. **40**, 3389 (1969).
- [6] G. G. Zhong, J. Jian, and Z. K. Wu, 11th International Quantum Electronics Conference, IEEE Cat. No. 80 CH1561-0, p631 (June 1980).
- [7] K. L. Sweeney and L. E. Halliburton, Appl. Phys. Lett. **43**, 336 (1983).
- [8] D. A. Bryan, R. R. Rice, R. Gerson, H. E. Tomaschke, K. L. Sweeney, and L. E. Halliburton, Opt. Eng. **24**, 138 (1985).
- [9] H. Donnerberg, S. M. Tomlinson, C. R. A. Catlow, and O. F. Schirmer, Phys. Rev. **B40**, 11909 (1989).
- [10] J. Q. Yao, W. Q. Shi, J. E. Millerd, G. F. Xu, E. Garmire, and M. Birnbaum, Opt. Lett. **15**, 1339 (1990).
- [11] K. Yamamoto, H. Yamamoto, and T. Taniuchi, Appl. Phys. Lett. **58**, 1227 (1991).
- [12] R. L. Byer, J. F. Young, and R. S. Feigelson, J. Appl. Phys. **41**, 2320 (1970).
- [13] A. M. Prokhorov and Y. S. Kuz'mimov, *Physics and Chemistry of Crystalline Lithium Niobate* (Adam Hilger, New York, 1990).
- [14] Y. R. Shen, *The Principles of Nonlinear Optics*, Chapter 7 (John Wiley & Sons, New York, 1984).
- [15] F. R. Nash, G. D. Boyd, M. Sargent III, and P. M. Bridenbaugh, J. Appl. Phys. **41**, 2564 (1970).
- [16] B. H. Soffer and I. M. Winer, Phys. Lett. **24A**, 282 (1967).

- [17] M. Allerie, M. D. Fontana, F. Abdi, C. Carabatos-Nedelec, and Theophanous, *Ferroelectrics* **94**, 93 (1989).
- [18] T. R. Volk, N. M. Rubinina, V. I. Pryalkin, V. Krasnikov, and V. V. Volkov, *Ferroelectrics* **109**, 345 (1990).
- [19] E. H. Turner, F. R. Nash, and P. M. Bridenbaugh, *J. Appl. Phys.* **41**, 5278 (1970).

Temperature and DC Electric Field Dependence of Second Harmonic Generation in Mg:LiNbO₃

Yong-Sung Jin, Yu-Min Kim, Ju-Hyun Lee, Gwangseo Park, and Bum Ku Rhee

Department of Physics, Sogang University, Seoul 121-742, Korea

(Received: February 9, 1993)

Spatial homogeneity of Mg (4 mole %):LiNbO₃ is investigated by studying the characteristic of Second Harmonic Generation in Mg:LiNbO₃ as a function of temperature and DC Electric Field. It is found that the temperatures at which the intensity of the second harmonic is reduced to the first zero from its maximum for the phase matching condition is shifted linearly to the strength of DC Electric field applied to optic axis of Mg:LiNbO₃. From these results, the electro-optic coefficient of Mg:LiNbO₃ is estimated to be higher than that of Congruent LiNbO₃ by a factor of 1.5.