

## Fiber형 단결정 성장을 위한 LHPG 장치의 제작

임 기 수

충북대학교 물리학과

이 민 영

한국표준과학연구원 분광연구실

(1993년 2월 5일 받음)

25 W CO<sub>2</sub> 레이저를 이용하여 다양한 단결정재료를 fiber형태로 빠른 속도로 성장시킬 수 있는 LHPG (Laser-Heated Pedestal Growth) 장치를 제작하였다. LHPG장치는 레이저 빔의 집속을 위한 Reflexicon, 구멍이 뚫린 타원거울과 포물면경으로 구성되는 광학계 및 source와 seed의 이동을 위한 translation 시스템으로 구성되어 있다. 장치의 성능을 평가하기 위해 직경 600  $\mu\text{m}$ , 길이 2 cm의 루비 fiber를 성장시키고 그 형광특성을 조사하였다.

### I. 서 론

일반적으로 고순도의 단결정을 성장하기 위해서는 많은 비용과 시간이 소요된다. 응용가능성이 있는 새로운 재료를 개발하려면 이러한 성장 과정과 특성 평가를 여러번 거쳐야 하므로 보다 경제적인 방법이 필요하게 된다. 특히 고체레이저 재료는 host의 종류 뿐만아니라 doping된 이온의 종류나 농도에 따라 광 특성이 크게 달라지므로,<sup>[1]</sup> 새로운 파장영역에서의 발전이나 다른 특성을 갖는 레이저재료의 개발을 위해서는 적은 비용으로 빠른 시간내에 성장이 가능한 방법이 절실히 요구된다. 이러한 필요성은 고체레이저 재료 뿐만아니라 다른 여러종류의 광재료 및 단결정 재료에도 적용된다.

최근 Feigelson 등<sup>[2,3]</sup>에 의해 개발된 LHPG(Laser-Heated Pedestal Growth) 방법은 기존의 단결정 성장 기술을 획기적으로 개량한 방법으로서 광재료 뿐만아니라 다양한 용도의 여러 재료들을 경제적으로 제조할 수 있는 방법으로 알려져 있다. 이 방법은 가열원으로 저항이나 전자빔을 사용하지 아니하고 레이저를 사용함으로써 fiber 형태의 단결정을 직경이 수  $\mu\text{m}$ 까지 그리고 길이가 수 십 cm까지 성장이 가능하다. 또한 이 방법은 vapor나 solution 이 아닌 melt 방법으로서 기본적으로 Czochralski 방법과 Floating Zone 방법<sup>[4]</sup>의 혼합형태라 할 수 있다. 뿐만아니라 crucible이나 furnace가 필요없기

때문에 오염가능성이 작으며, 직경 크기가 균일한 fiber형태로 성장시킬 수 있는 방법이다. 이 방법은 레이저 재료뿐 아니라, 고온 센서용 사파이어 waveguide<sup>[5]</sup> 및 각종 electro-optic modulator 등의 광 파이버 응용재료의 개발에도 사용될 수가 있다. LHPG 방법 외에도 기존의 단결정 파이버 성장 방법으로는 EFG(edge-defined growth)법,<sup>[6]</sup> capillary나 die를 이용하는 법<sup>[7]</sup> 등이 있으나 일부 제한된 재료만 성장이 가능하다는 단점이 있다. 지금까지 LHPG는 주로 Nd:YAG fiber 레이저<sup>[8]</sup>나 MgO:LiNbO<sub>3</sub><sup>[9]</sup> 등의 광 소자 개발에 사용되어 왔으며 일부 반도체 재료나 고온 초전도체 재료<sup>[10]</sup> 등의 연구에도 사용되어 왔다. 본 연구에서는 새로운 고체레이저 재료의 개발과 레이저 다이오드 펄핑에 의한 소형 레이저의 개발에 사용될 수 있는 다양한 레이저 재료의 경제적인 성장을 위해 LHPG 장치를 설계 제작하였다. 성능을 테스트 하기위해 잘 알려진 고체레이저 재료인 루비를 선택하여 성장하고 그 특성을 조사하였다.

### II. LHPG 장치의 제작

LHPG 장치의 가열원으로는 램프보다 집속이 용이하며 필요한 파장에서 고출력을 얻기 쉬운 레이저를 사용한다. 산화물을 비롯한 대부분의 광 재료들이 다른 고출력 레이저의 파장보다 CO<sub>2</sub> 레이저의 10.6  $\mu\text{m}$ 에서

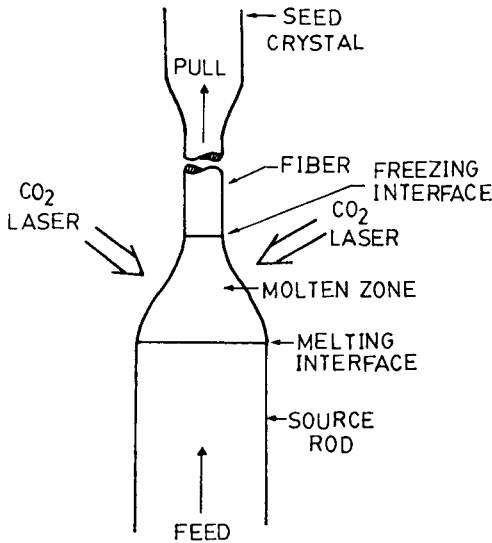


그림 1. Block diagram of the laser-heated pedestal growth.

multi-phonon absorption 과정에 의해 강한 흡수를 나타내기 때문에 가열원으로 연속출력의 CO<sub>2</sub> 레이저를 사용하였다. 그림 1은 제작한 LHPG 장치의 개략도이다.

사용한 레이저는 25 W급 연속출력 CO<sub>2</sub> 레이저(원다 레이저사)로서, 비편광 다중모드로 빔 직경은 약 8 mm이다. 빔의 정렬을 위해 CO<sub>2</sub> 레이저빔과 2 mW의 He-Ne 레이저 빔이 ZnSe beam combiner에서 만나게 하였다. CO<sub>2</sub> 레이저 빔의 진로를 관찰하기 위해 자외선 램프와 함께 thermal image plate를 사용하였고, gold-coating된 거울들을 사용하여 성장용 chamber 입구로 입사시켰다. 성장 chamber 내부에 그림 2와 같이 3종류의 구리거울을 설치하여 beam을 집중시켰다. 이 세개의 거울은 고순도의 구리위에 산화방지를 위해 nickel plate를 입히고 금도금한 것이다. 입구에 있는 Reflexicon<sup>[11]</sup>은 outer cone과 inner cone으로 이루어져 있고 입사빔을 직경 3'의 반지모양의 빔으로 바꾸는 역할을 한다. 광산란을 줄이기 위해 inner cone의 끝부분이 단면적 1.8 mm<sup>2</sup>인 평평한 면으로 제작되었으며, 이 경우 입사한 레이저 빔의 직경이 커질수록 산란광 손실이 적게된다. 중앙에는 구멍이 뚫린 타원형 거울을 45°각으로 놓아 빔을 상방으로 반사시키도록 하였다. 타원형 거울에서 반사된 빔은 직경 1"의 구멍이 뚫린 초점거리 1"인 포물면경에서 반사되어 집중되며, 초점에서의 빔의 크기는 200 μm 미만으로 추정된다. Translator는 source와 seed의 이동을 위해 두개의 독립된 부분으로 이루어져 있다. 구동모터는

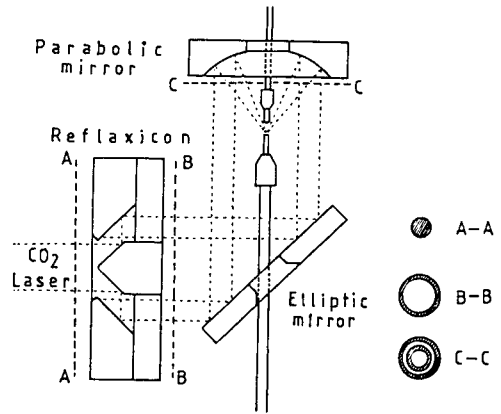


그림. 2 Schematic representation of focusing system.

감속기어의 비가 각각 23520 : 1과 54880 : 1인 두 개의 직류 servo 모터(2233012S, MINI-MOTOR, SWISS)를 사용하였고, 이동방식은 backlash를 줄이기 위해 톱니방식이 아닌 나사회전방식을 택하였다. translator의 최대 이동속도는 source가 1.4 mm/min, seed가 3.3 mm/min이 되도록 하였고, PC로 속도를 조절하였다. source가 가열되는 곳으로부터 seed를 끌어올리는 상부translator의 이동거리는 약 5 cm가 되도록 제작하였다. 그림 3은 상부 translator와 3개의 거울을 보여주는 growing chamber의 사진이다. 성장 chamber는 대기의 흐름을 차단하기 위해 차폐시켰으나 대기압을 그대로 유지하였다.

그림 4는 CO<sub>2</sub> 레이저로 source를 가열하고 melting 후 seed의 이동에 의해 fiber를 성장시키는 과정의 개략도이다. 성장시 seed의 속도를  $V_s$ , source의 속도를  $V_r$ 라하고 fiber와 source의 직경을 각각  $R_f$ ,  $R_s$ 라 하면 질량보존의 법칙에 따라  $V_s/V_r = (R_f/R_s)^2$ 으로 표현할 수 있다. 그러나 수십 혹은 수백 μm 직경의 대부분의 oxide와 fluoride 파이버 성장의 경우 안정된 성장을 위해 직경의 비를 1/2~1/4로 유지하고 melting zone의 길이를 source 직경의 1.5~2배 정도로 유지하는 것이 좋다고 알려져 있다.<sup>[2,3]</sup> 이와같은 방법으로 1차 성장된 fiber를 다시 source로 사용하여 성장을 반복하면 fiber의 직경을 줄여 갈 수가 있다.

Seed는 source와 같은 단결정이나 백금선을 사용할 수 있다. Source는 일반적으로 단결정이나 정확한 성분 비로 배합된 powder를 압축 및 소결시킨 재료를 사용한다. 성장시에 CO<sub>2</sub>레이저로 가열된 source의 극부 온도는 매우 높으나 fiber의 단면적이 매우 작기 때문에 단면적내의 온도가 균일하고 축방향의 온도 gradient가

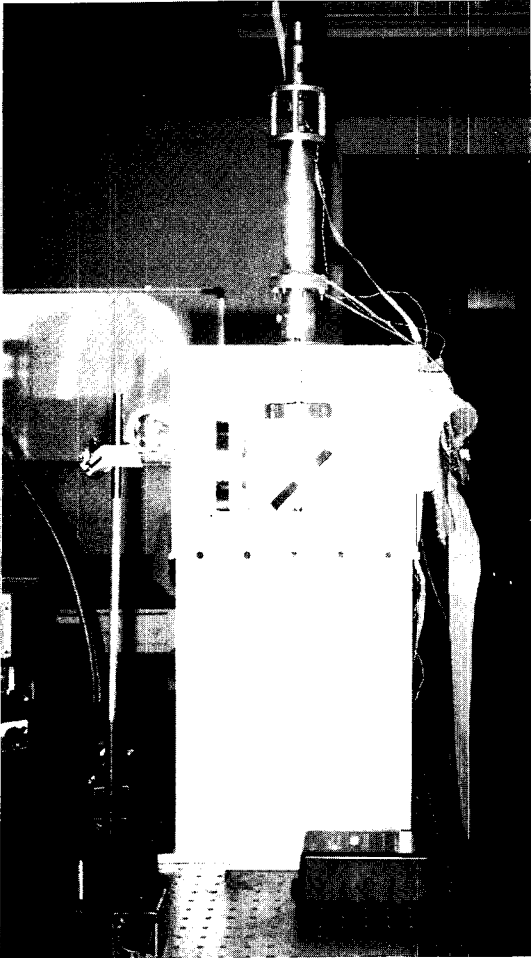


그림. 3 Photograph of the constructed growing chamber and the translation stage.

1000°C/cm 이상이므로<sup>[12]</sup> 별도의 냉각장치가 필요없을 뿐 아니라 온도가 고르지 못해 생기는 dislocation의 가능성이 bulk 성장의 경우보다 현저히 감소한다. fiber 성장시 레이저 출력의 안정도는 온도의 안정도와 직접 관련되기 때문에 매우 중요하다. 불안정한 레이저의 출력은 fiber내부에 온도변화를 가져오고 이로인한 격자의 결함은 레이저 재료내의 doping된 이온의 위치에 따라 multi-site를 형성할 가능성이 있다. 이러한 multi-site의 존재는 각 site에 속하는 이온마다 고유의 에너지 분포를 보여 레이저 재료로서 부적합하게 된다.

또한 기계적 진동이나 레이저 beam의 방향변화 등이 fiber의 직경변화에 영향을 줄 수 있으나 optical device 개발이 아닌 재료의 분광 특성연구에는 크게 중요하지

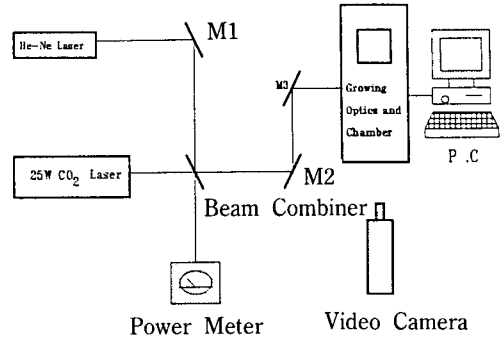


그림. 4 Basic features of the LHPG system.

않으므로 여기서는 고려하지 않았다. 성장과정을 관측하기 위해선 우선 CO<sub>2</sub> 레이저에 의한 가열로 재료에서 발생하는 강한 빛을 감쇄시켜야 한다. 이를 위해 filter를 사용하였고 재료가 작기 때문에 확대기와 함께 video camera를 사용하여 관찰하였다.

### III. 실험

최초의 고체 레이저 재료이고 단단하며 재료의 성질이 잘 알려진 루비를 선택함으로써 LHPG 장치의 성능 평가가 용이하도록 하였다. 성장용 source 재료로는 단면이 1.2×1.2 mm이고 길이가 2~3 cm인 bulk 루비 단결정을 사용하였다. Seed로는 끝이 뾰족하게 잘린 루비 조각을 사용하였다. 그림 5는 CO<sub>2</sub> 레이저의 가열로 녹은 source로부터 루비fiber를 성장시키는 모습을 보여주는 사진이다.

가열용융점이 2045°C로 매우 높아 CO<sub>2</sub>레이저 출력이 25 W에 도달해서야 source가 녹기 시작하였으며 수분 후에 표면이 곡면을 이루는것을 확인하고 seed를 잠기게 하였다. 25 W의 레이저 출력은 Reflexicon 중앙부의 일부와 여러개의 거울에 의한 반사로 인해 감소하며 이를 고려하면 실제로 source를 녹이는데 사용된 레이저의 출력은 이보다 약간 작은 값이다. 성장시 source의 속도는 0.1 mm/min이고, seed의 속도는 0.4 mm/min였다. 성장된 루비 fiber들의 직경은 600~700 μ였다. 그림 6은 성장된 여러개의 루비 fiber 중 하나를 주사 전자현미경(S 2500C, HITACHI)으로 찍은 것이며 사진에서 보듯이 fiber의 직경이 윗부분으로 가면서 조금씩 감소 했음을 볼 수 있다. 이것은 seed와 source의 속도비가 적정치를 약간 초과한 때문이고 약간의 굴곡이 있는 것은 상부 translator가 나사 회전방식으로 이동하기 때문에 seed의



그림. 5 Photograph of a ruby fiber grown by the LHPG method.



그림. 6 SEM photograph of the surface of a grown ruby fiber.

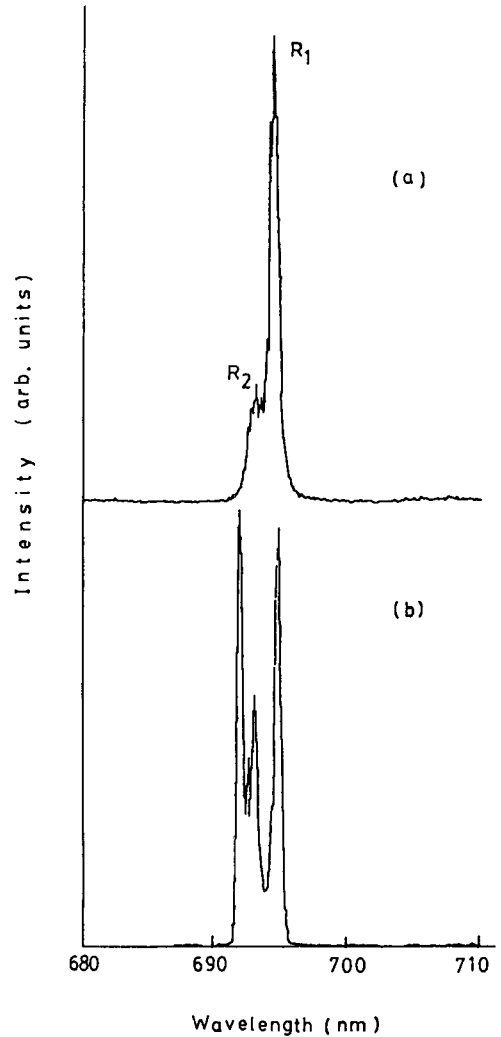


그림. 7 Fluorescence spectra of (a) a grown ruby fiber and (b) a source ruby.

끝이 중심축에서 약간 벗어난 것 때문으로 추정된다. 또한 이러한 요인으로 본 실험에서 성장된 fiber의 길이가 20 mm를 초과하지 못했던 것으로 판단된다.

Fiber의 단결정성을 보기위해 X선 회절실험을 한 결과 bulk 루비와 거의 동일한 회절 사진과 peak를 얻었다.<sup>[13]</sup> 루비 fiber의 형광을 측정하기 위해 Q-switched, 2nd harmonic Nd:YAG laser (Spectron, SL404G)를 여기 광원으로 사용하였다. 상온에서 측정된 형광소멸 시간이 약 4 msec로 루비 레이저에 사용되는 재료가 3 msec인데 비해 길게 나타났다. 이것은 상업용 루비레이저 재료의 Cr<sup>3+</sup> 농도가 보통 0.05% 인데 비하여 매우 진한 붉은

빛을 띤 source 루비로부터 성장된 루비fiber의  $Cr^{3+}$  농도가 이보다 더 높음으로 인해  $Cr^{3+}$  이온들 간의 형광의 재흡수로 형광소멸시간이 길어지기 때문으로 추측된다.<sup>[14]</sup> source로 사용한 bulk 루비와 성장된 루비fiber의 형광스펙트럼은 그림 7과 같다. 루비레이저 재료의 형광의  $R_1$ 과  $R_2$  선은 694.3 nm ( $14403\text{ cm}^{-1}$ )과 692.9 nm ( $14432\text{ cm}^{-1}$ )에서 발견된다. source의 경우 695.3 nm, 693.3 nm, 692.3 nm의 3개의 peak가 나타났고, 루비fiber는 694.6 nm와 693.3 nm에서 peak를 얻었다. 루비의 형광 위치는 온도의 증가에 따라 강한 red-shift가<sup>[15]</sup> 일어나는데, 형광을 얻기위해 532 nm의 여기광의 강한 집속으로 인해 시료의 국부온도가 상온보다 약간 높아짐으로 말미암아 약  $8\text{ cm}^{-1}$ 의 shift가 발생했다고 판단된다. 그러나 내부 strain에 의한 red-shift의 가능성도 완전히 배제할 수 없으므로 성장조건에 따른 시료의 형광특성에 대한 더 정확한 원인분석이 필요하다.  $Cr^{3+}$  이온 농도가 높아지면  $Cr^{3+}$  이온쌍들이 형성되고 이들의 존재는 형광스펙트럼에서 단일  $Cr^{3+}$  이온의  $R_1$ ,  $R_2$  선 부근의 여러개의 peak들로 나타나기 때문에,<sup>[16]</sup> 성장된 fiber와는 달리 진한 붉은 빛을 띤 source시료에서 여러개의 peak가 나타나는 것은 당연하다. 그러나 이러한 source로부터 성장된 루비fiber는 고순도 루비의  $29\text{ cm}^{-1}$ 와 거의 동일한  $27\text{ cm}^{-1}$  간격을 가진 분명한  $R_1$ ,  $R_2$ 의 형광을 보여주고, 역시  $R_1$ 선이  $R_2$  선보다 더 강하게 나타나고 있다. 이것은  $CO_2$  레이저에 의한 성장시 source 내부에 있던 상당량의  $Cr^{3+}$  이온의 evaporation을 의미한다.  $R_1$ 과  $R_2$ 의 간격은 spin-orbit coupling과 trigonal symmetry 성분<sup>[17]</sup>에 기인하므로 약간의 차이는 루비fiber 내부의 결정구조의 일부 변형때문일 가능성은 있으나 측정오차의 범위 내에 있어 성장된 fiber는 고순도 루비와 거의 동일한 형광을 나타낸다고 할 수 있다.

#### IV. 결 론

$CO_2$  레이저를 가열원으로 사용한 단결정 fiber 성장 장치인 LHPG 장치를 설계제작하였다. LHPG장치는 광학계와 translator 장치부로 분리되어 있다. 광학계의 핵심부분으로서  $CO_2$  레이저 빔을 잘 집속할 수 있도록 Reflexicon, 구멍이 뚫린 타원 거울과 포물면경을 성장 chamber내부에 설치하였다. translator는 encoder가 부착된 두개의 저속 직류 servo 모터를 사용하였고 PC로 각각 속도조절을 하였으며, 성장가능한 fiber의 최대길이 약 5 cm 되도록 translator의 이동범위를 정하였다. 또한 성장관측을 위한 monitor 시스템을 구성하였다.

그리고 장치의 성능을 평가하기 위해 잘 알려진 루비fiber의 성장 및 형광측정실험을 하였다. 성장된 fiber의 형광특성이 고순도 루비의 특성과 거의 동일하여 제작한 LHPG 장치가 비교적 양질의 단결정fiber를 성장할 수 있음을 보여주었다.

#### 감사의 글

본 연구를 수행하는 중에 많은 도움을 준 이수천, 전형식 군과 한국표준과학연구원의 이인원 박사, 그리고 원다레이저사의 원종욱 박사에게 깊은 사의를 표합니다. 또한 본 연구는 한국표준과학연구원의 연합협동연구과제로 수행되었음을 밝힙니다.

#### 참 고 문 헌

- [1] A. A. Kaminskii, *Laser Crystals*, (Springer-Verlag, Berlin, 1981) pp. 1-407.
- [2] R. S. Feigelson, in *Tunable Solid State Lasers*, ed. by P. Hammerling, A. B. Budgor and A. Pinto (Springer-Verlag, Berlin, 1985) pp.129-142.
- [3] M. M. Fejer, J. L. Nightingale, G. A. Magel and R. L. Byer, *Rev. Sci. Instrum.* **55**, 1791 (1984).
- [4] D. Mateika, in *Advanced Crystal Growth*, ed. by P. M. Dryburgh, B. Cockayne and K. G. Barracough (Prentice Hall, New York, 1986) pp. 149-178.
- [5] R. R. Dils, *J. Appl. Phys.* **54**, 1198 (1983).
- [6] H. E. LaBelle, Jr., *Mat. Res. Bull.* **6**, 581 (1971).
- [7] H. P. Weber, P. F. Liao, B. C. Tofield and P. M. Bridenbaugh, *Appl. Phys. Lett.* **26**, 692 (1975).
- [8] M. Dignonnet, C. J. Gaeta, D. O'Meara and H. J. Shaw, *J. Lightwave Technol.* **LT-5**, **642** (1987).
- [9] M. Dignonnet, M. Fejer and R. Byer, *Opt. Lett.* **10**, 235 (1985).
- [10] R. S. Feigelson, D. Gazit, D. K. Fork and T. H. Geballe, *Science* **240**, 1642 (1988).
- [11] W. E. Edmonds, *Appl. Opt.* **12**, 1940 (1973).
- [12] Y.-S. Luh, R. S. Feigelson, M. M. Fejer and R. L. Byer, *J. Crystal Growth* **78**, 135 (1986).
- [13] K. S. Lim, unpublished results.
- [14] G. F. Imbusch, in *Energy Transfer Processes in Condensed Matter*, ed. by B. Di Bartolo (Plenum, New York, 1984) pp. 471-496.
- [15] D. E. McCumber and M. D. Sturge, *J. Appl. Phys.* **34**, 1682 (1963).
- [16] G. F. Imbusch and R. Kopelman, in *Laser Spectro-*

roscopy of Solids, ed. by W. M. Yen and P. M. [17] R. M. Macfarlane, J. Appl. Phys. **39**, 3118 (1963).  
Selzer (Springer-Verlag, Berlin, 1986) pp.471-496.

### **Construction of Laser-heated Pedestal Growth System for Single Crystal Fibers**

Ki-Soo Lim

*Department of Physics, Chungbuk National University, Cheongju 360-763, Korea*

Minyung Lee

*Spectroscopy Laboratory, Korea Research Institute of Standards  
and Science, Taejon 305-606, Korea*

(Received: February 5, 1993)

We constructed a laser-heated pedestal growth station using a 25 W CO<sub>2</sub> laser to grow various single crystal fibers. The LHPG system consists of the optical system which includes a reflexicon, an elliptic mirror and a parabolic mirror with their centers drilled, and the translation system to move a source and a seed independently. To test the system, we pulled a few ruby fibers with diameter of 600  $\mu\text{m}$  and length of 2 cm, and studied characteristics of their photoluminescence.