≪연구논문≫ The Journal of Optical Society of Korea (Korean Edition) Volume 6, Number 4, December 1995

반도체가 첨가된 유리의 암색화에 따른 포화흡수 변화와 영구 회절격자의 회절효율 연구*

백성현 · 신상훈 · 김상천 · 최문구 · 박승한 · 김 웅
연세대학교 이과대학 물리학과

(1995년 6월 10일 받음)

미세 반도체가 첨가된 유리에 암색화에 따른 정상상태 포화흡수 변화를 조사하였고 축퇴 4광파 혼합 실험으로 영구 회절격자를 형성시켜 회절 효율을 연구하였다. 사용된 레이저는 Q-switch된 Nd:YAG 레이저의 제 2조화파(λ=532 nm)로 펄스 폭은 15 ns이었다. 시료가 암색화됨에 따라 포화 흡수세기 I_s는 증가하였고, 축퇴 4광파 혼합 실험 장치로부터 전방 펌프빔과 조사빔에 의한 큰 간격의 영구 회절격자를 형성하여 후방 펌프빔의 세기에 따라 회절 되어 나오는 빛의 세기를 측정하였다. 영구 회절격자는 암색화 현상에 의한 것으로 회절효율은 회절 되는 후방 펌프빔의 세기가 크지 않을 때 그 세기에 비례하는데, 이는 암색화에 의해 형성된 회절격자 사이의 흡수 차이에 의한 것임을 알 수 있었다.

I. 서 론

크기가 수백에서 수천 Å인 미세 반도체(CdS_xSe_{1-x})가 첨가된 유리(semiconductor doped glass)는 color filter glass로 상업적으로 이용되고 있고 실험실에서 열처리를 통하여 평균크기 및 크기분포를 조절하여 3차원 양자구속 효과를 관측할 수 있다.[1,2] 이러한 유리는 반도체가 1% 정도의 부피 비로 첨가되어 있지만 흡수된 빛에 의하여 생성된 자유전하 운반자들이 반도체 내에 구속되어 bulk 상태의 반도체 보다 크고, 빠른 광학적 비선형성을 나타내므로, 광 스위치나 wave guide 등의 광소자로의 이용 가능에 대한 연구도 이루어지고 있다.[3] 그러나 축퇴 4광파 혼합 실험과 absorption saturation, 간섭계에 의한 비선형 굴절률 측정 실험 등으로 3차 비선형 광감수율 $\chi^{(3)}$의 크기와 비선형성의 빠르기를 측정할 때 연구마다 그 결과에 큰 차이가 보이는데,[4-8] Roussignol 등이 발견한 암색화 현상으로 이에 대한 많은 설명이 이루어졌다.[9] 암색화 현상은 강한 세기의 레이저 빔이 시료에 조사되면 밴드갭 근처의 넓은 파장 영역에 걸쳐 흡수계수가 증가하여 시료가 약간 어두워져 보이는 현상으로[10] 명확한 원인규명은 아직 부족한 상태이다. 하지만 암색화에 따르는 위상 공액파의 세기감소, 운반자들의 수명시간 감소, 그리고 trap level 에 의한 broad band luminescence의 감소 등, 광학적 특성 변화에 대한 연구는 많이 이루어졌다. 이에 따라 암색화 현상이 영상신호 기억소자나 영구 홀로그램에 이용 가능성이 기대되어지는데 그중 암색화 현상에 의하여 형성된 영구 회절격자는 Roussignol 등이 축퇴 4광파 혼합 실험을 통하여 처음 발견하여 회절 되어 나오는 빛의 세기가 후방펌프 빔의 세기에 따라 비선형적인 것을 측정하였고,[9] Vanhaudenarde 등에 의하여 Dye 레이저에 의하여 형성된 격자가 암색화 되가는 과정에서의 회절효율 변화도 보고된 바 있다.[11] 그러나 Roussignol 등의 연구는 너무 후방 펌프빔의 세기가 넓은 범위에 걸쳐 측정이 이루어져 회절의 원인이나 효율을 정확하게 설명하는 것이 가능하지 않았고, Vanhaudenarde 등은 밴드갭 보다 작은 에너지를 갖는 파장에 의한 실험이므로 굴절률 변화만을 회절의 원인으로 취급하였다. 따라서 본 연구에서는 먼저 그림 1의 선형 흡수 스펙트럼을 갖는 CdS_xSe_{1-x} 반도체가 첨가된 Schott glass 회사의 OG 550 (x=0.8), OG 590 (x=0.6) color filter glass에 Q-switching된 Nd:YAG 레이저의 제 2조화파(λ=532 nm)를 조사시켜 암색화를 만든 후 암색화 되지 않은 신선한 시료와 암색화된 시료에 각각 파장 532 nm의 레이저 광원의 입사 세기에 따른 흡수계수의 변화를 측정하였다.

*본 연구는 초미세 표면과학 연구센터를 통한 한국과학재단의 1995년도 연구비지원과한국과학재단 목적기초연구(94-1400-03-01-3)의 지원및 교육부 기초과학 육성연구비(BSRI-94-2423)의 지원에 의하여 수행 되었습니다.

그리고 파장 532 nm의 레이저광원의 축퇴 4광파 혼합 실험으로 암색화에 의한 영구 회절격자를 만들고 전방 펌프빔(forward pump beam)과 조사빔(probe beam)을 차단한 후 격자가 손상되지 않는 낮은 세기의 후방 펌프빔(backward pump beam)을 입사시켜 회절되어 나오는 빛의 세기를 측정하여 영구 회절격자의 회절효율과 격자 사이의 흡수변화와의 관계를 조사하였다.

II. 실험 및 결과

1. 암색화 및 포화흡수

암색화된 시료와 신선한 시료의 빛의 세기에 따른 흡수계수 변화를 측정하기 위하여 먼저 Nd:YAG 레이저 제 2조화파(펄스 폭=15 ns)를 peak intensity 1.38 MW/cm^{2}의 세기로 두께 300 μm인 Schott glass회사의 OG 550, OG 590 시료에 10분간 10 Hz로 입사시켜 암색화 시켰다. 그림 2는 암색화 시키면서 입사되는 빛의 세기 I_{in}과 투과되는 빛의 세기 I_t를 측정하여 각 레이저 펄스의 투과율 $T=I_t/I_{in}$을 관측한 결과이다. OG 590 시료가 OG 550 시료보다 같은 갯수의 펄스가 입사 되었을 때 투과율 변화가 크므로 암색화가 더 빨리 진행되는 것을 볼 수 있다. 암색화된 시료의 포화흡수 실험시 암색화된 곳을 쉽게 찾기 위하여 빔직경(e^{-2})을 2 mm로 하였다. 시료에 레이저 빔이 조사되어 암색화가 된 곳은 레이저 빔의 조사가 멈춘 후에도 계속하여 흡수계수가 변한 상태로 있게 된다. 다만 시료를 다시 재열처리를 하면 원래의 성질을 회복하게됨이 알려져 있다.[9] 그림 3과 같이 파장 532 nm에 대한 흡수계수 측정 장치로 이미 암색화된 시료와 암색화 되지 않은 신선한 시료에 입사빔의 세기와 투과빔의 세기를 측정하여 입사빔의 세기에 따른 흡수계수 $\alpha=-\ln(I_t/I_{in})$를 측정하였다. CVI 회사의 $\lambda/2$ plate와 Glan linear polarizer를 사용하여 빛의 세기를 변화시켜 측정을 하였고, 렌즈의 촛점거리는 20 cm이었다. 입사빔의 세기와 투과빔의 세기를 동시에 측정하기 위하여 파장 532 nm에 50%의 반사율을 갖는 빛 가르게를 사용하여 빛을 나누고 각각의 빛의 세기를 측정하기 위하여 energy meter는 Molectron 회사의 energy indicater(JD 2000)와 pyroelectric detector인 energy meter probe (JS-05) 2개를 사용하였다. 그림 4와 그림 5는 OG 550 OG 590 시료의 입사빔의 세기에 따른 흡수계수를 측정한 결과로 시료가 암색화가 되면 신선한 시료보다 흡수계수가 증가하고 포화 흡수세기도 커짐을 볼 수 있다. 특별히 주의할 것은 신선한 시료의 흡수계수 측정시, 측정하는 동안 시료가 암색화 되는것을 방지하여야

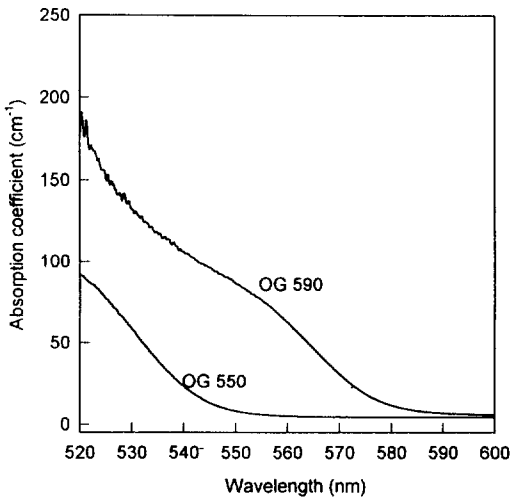

그림 1. OG 550 OG 590의 선형 흡수 스펙트럼.

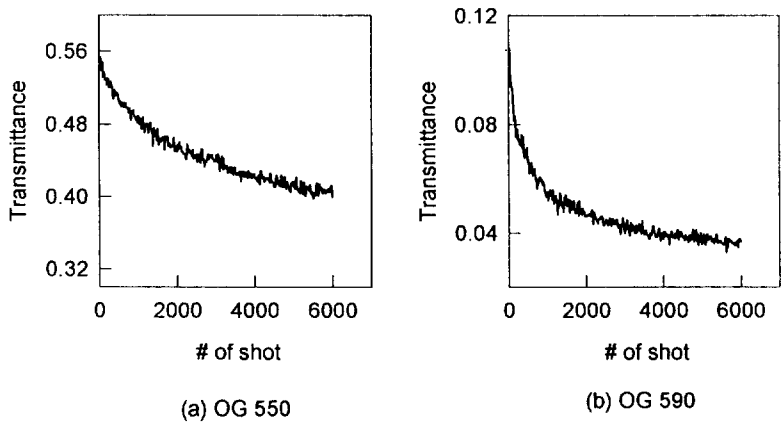

그림 2. 파장 532 nm의 광원을 입사시켜 시료를 암색화시키는 동안의 투과율 변화.

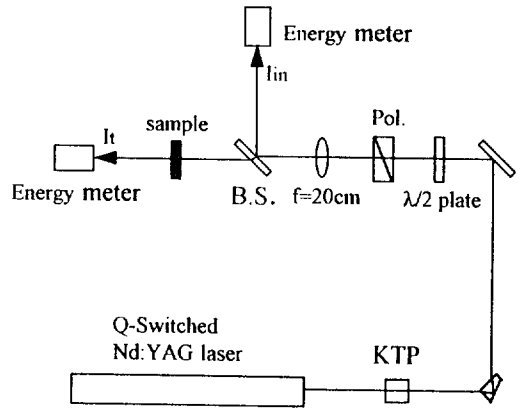

그림 3. 빛의 세기에 따른 흡수계수 측정 장치.

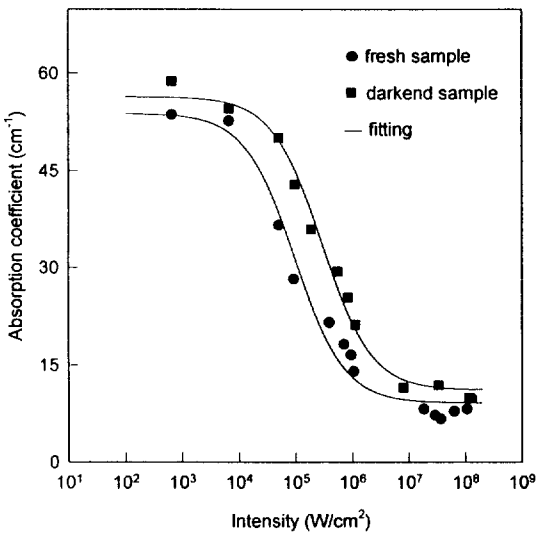

그림 4. 532 nm 파장에 대한 OG 550 시료의 입사빔의 세기에 따른 흡수계수변화.
(■): 암색화된 시료, (●): 신선한 시료, (—): fitting

하므로 단일펄스로 측정을 하였고 시료의 위치를 조금씩 바꿔가며 실험을 하여 암색화에 의한 영향을 극소화 하였다. 그림에서 실선은 반도체의 띠채움 효과에 의한 정상상태(steady-state)의 흡수계수 변화 $\alpha=\alpha_o/(1+I/I_s)+\alpha_B$의 fitting 곡선이고 fitting으로부터 신선한 시료와 암색화된 시료의 포화 흡수세기를 구하여 표 1에 나타내었다.

2. 영구 회절격자 형성 및 회절효율

그림 6과 같이 파장 532 nm의 축퇴 4광파 혼합 실험

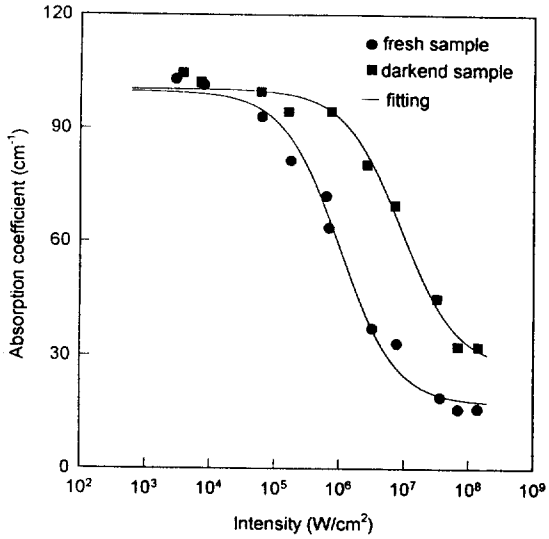

그림 5. 532 nm 파장에 대한 OG 590 시료의 입사빔의 세기에 따른 흡수계수변화.
(■): 암색화된 시료, (●): 신선한 시료, (—): fitting

표 1. 시료의 암색화에 따른 포화흡수세기 I_s의 fitting 결과

	OG 550	OG 590
신선한 시료	9.8×10^4 W/cm²	1.0×10^6 W/cm²
암색화된 시료	2.9×10^5 W/cm²	8.8×10^6 W/cm²

장치에서 후방 펌프빔(I_b)을 차단하고 $I_f=10$ MW/cm², $I_p=I_f/8$로 시료에 300개의 펄스를 조사시켜 영구 회절격자를 형성시켰다. 시료에 입사되는 두빔의 간섭에 의하여 시료 내에 간섭무늬의 빛의 세기가 강한 곳은 암색화 되고 세기가 약한 곳은 암색화 되지 않고 그대로 있게 되므로 영구 회절격자가 형성된다. 전방 펌프빔과 조사빔의 사이의 각도는 2°이고 빛 가르게의 반사율은 B.S.1은 55% B.S.2는 20% 그리고 B.S.3는 50%를 사용하였다. Energy meter는 흡수계수 측정시 사용한 것과 같았다. 다만 회절되어 나오는 빛의 세기(I_d)의 측정은 그 크기가 작기 때문에 더 예민한 energy meter probe (Molectron사 J3S-05)를 사용하여 측정하였다. 영구 회절격자를 만들 때 너무 강한 세기의 빛을 사용하거나 너무 오래 조사시키면 오히려 효율적인 격자가 형성되지 않아 회절되어 나오는 빛의 세기가 작게 된다. 그리고 회절 되는 후방 펌프빔의 세기가 포화 흡수세기 정도가 되면 격자가 손상되기 시작하므로 후방 펌프빔을 격자가

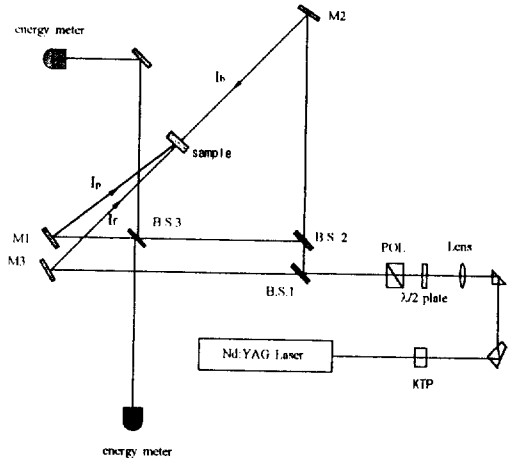

그림 6. 축퇴 4광파 혼합 실험장치.
렌즈의 촛점 거리는 1 m로 시료에 각빔의 촛점이 일치하도록 거리를 같게 하였고 B.S.1의 반사율은 55%, B.S.2는 20%, B.S.3는 50% 그리고 $I_f=I_b$이고 $I_p=I_f/8$이었다.

지워지지 않는 약한 세기로 입사시켜 회절 되어 나오는 빛의 세기를 측정하였다. 암색화는 시료를 재 열처리를 하기 전까지는 유지되므로 암색화에 의하여 형성된 영구격자는 암색화가 사라지기 전까지는 격자로 지속될 것으로 추측된다. 다만 본 실험에서 실험 장치의 정렬이 유지되는 동안은 후방 펌프빔의 회절로 격자의 형성을 확인할 수 있었는데 실험 장치의 정렬의 지속은 약 2일 동안이었다. 그림 7과 그림 8은 영구 회절격자가 형성된 후 전방 펌프빔과 조사빔을 차단하고 입사되는 후방 펌프빔(I_b)의 세기에 따라 회절 되어 나오는 빛(I_d)의 세기를 측정하여 후방 펌프빔의 세기에 따른 회절효율을 나타낸 것이다. 결과의 fitting 처럼 회절효율 $\eta=I_d/I_b$ 은 회절 되는 후방 펌프빔의 세기에 비례하여 증가함을 볼 수 있다.

III. 논 의

반도체가 첨가된 유리의 532 nm 파장의 포화 흡수현상은 수십 ps 펄스 폭을 갖는 레이저로 연구된 바 있고,[12,13] 펄스 레이저의 passive Q-switching에 이용 가능함도 보고된 바 있다.[14] 그러나 생성된 자유전하 운반자들(free carrier)의 수명시간(수백 ps)보다 짧은 펄스 폭에 의한 실험은 포화흡수세기 I_s가 정상상태(steady-state)로 취급할 수 있는 본 실험의 나노초의 펄스 폭에 의한 실험 결과보다 크게 되는데, 이는 펄스 폭이 길면 작은 빛의 세기에서도 많은 양의 운반자들이 생성되어 쉽게 포화가 일어나기 때문이다. 시료에 입사되는 빛의 세기에 따른 흡수계수의 변화는 반도체의 띠채움 효과에 의하여 설명되어지는데, 이에 의하면 흡수된 빛에 의하여 생성된 자유전하 운반자수 N과 흡수계수 α는 다음과 같이 주어진다.[15]

$$\alpha=\alpha_o\left(1-\frac{N}{N_s}\right) \tag{1}$$

여기서 α_o는 선형 흡수계수이고, N_s는 흡수가 완전히 포화되는 운반자 수이다. 그리고 운반자수의 시간변화 dN/dt는 다음과 같은 율방정식에 의하여 주어진다.

$$\frac{dN}{dt}=\frac{\alpha I}{\hbar w}-\frac{N}{\tau}$$

여기서 τ는 운반자들의 소멸 시간인데 미세 반도체 첨가 유리의 경우 수백 ps이므로 실험에서 사용한 레이저의 펄스폭 t_l(15 ns)이 τ보다 크므로 정상상태(steady-state)로 취급할 수 있다. 따라서 $dN/dt=0$이므로 운반자수 N은

$$N=\frac{\alpha\tau I}{\hbar w} \tag{2}$$

이고 (1)과 (2)로부터 흡수계수 α는 다음과 같이

$$\alpha=\frac{\alpha_o}{1+I/I_s} \tag{3}$$

된다. 여기서

$$I_s=\frac{N_s\hbar w}{\alpha_o\tau} \tag{4}$$

이다. 그림 4, 5의 결과처럼 암색화가 되면 I_s가 증가하는데, 이는 잘 알려진 바와 같이 자유전하 운반자 소멸 시간 τ가 암색화 되면서 작아지므로, (4)식에서와 같이 I_s는 τ에 반비례하여 증가하게 된다.

그리고 포화 흡수실험의 결과에서 빛의 세기가 계속 증가하여도 흡수가 완전히 포화되지 않아 흡수계수가 0으로 되지 않는 것은 자유 운반자수가 증가하면서 이에 따르는 자유전하 운반자 흡수(free carrier absorption)에 의한 영향과, 빔이 공간적으로 Gaussian 형태이므로 빔 주위의 낮은 세기의 흡수가 주된 원인이라 볼 수 있다. 그러므로 실험결과를 fitting할 때 배경흡수 α_B를 고려하여 다음과 같이

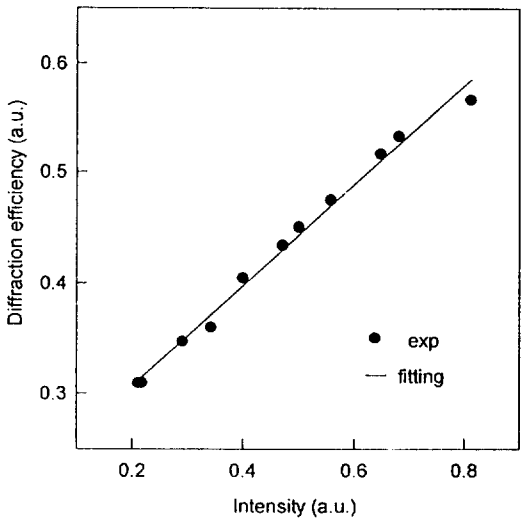

그림 7. OG 550 시료의 영구 회절격자의 후방 펌프빔의 세기에 따른 회절효율.

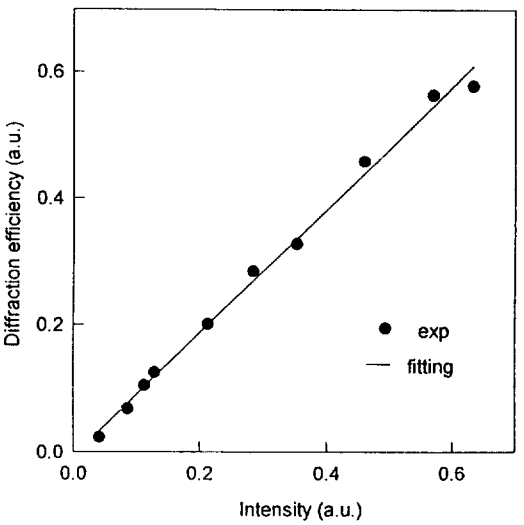

그림 8. OG 590 시료의 영구 회절격자의 후방 펌프빔의 세기에 따른 회절효율.

$$\alpha=\frac{\alpha_o}{1+I/I_s}+\alpha_B$$

의 형태로 하였다.

이와 같이 암색화가 되면 α_0 및 I_s가 커지므로 빛 세기에 따른 흡수계수 변화가 암색화가 되지 않은 신선한 시료와는 다르게 된다. 그러므로 암색화에 의하여 형성된 영구 회절격자의 회절효율이 빛 세기에 따라 다르게 될 것인데 실험 결과의 그림 7과 그림 8과 같이 회절 되는 후방 펌프빔의 세기에 따라 회절효율이 비례하여 증가함을 볼 수 있다. 이는 격자의 회절효율은 격자 사이의 굴절률 차이의 제곱이나 흡수차이의 제곱에 비례하는데[16] 암색화에 의한 회절격자는 파장 532 nm에 대하여 흡수 격자이므로 회절효율은 $(\Delta\alpha)^2$에 비례하게 될 것이다. 따라서 전방 펌프빔과 조사빔의 간섭에 의한 회절무늬의 빛의 세기가 강한 곳은 300개의 펄스가 조사된 후 충분히 암색화 되므로 격자의 암색화가 된 부분과 그렇지 않은 곳과의 흡수계수 차이 $\Delta\alpha$는 다음과 같이 근사시킬 수 있다.

$$\Delta\alpha=\frac{\alpha_o'}{1+I/I_s'}-\frac{\alpha}{1+I/I_s}$$

$$\cong\alpha_o'(1-I/I_s')-\alpha_o(1-I/I_s)$$

$$(\Delta\alpha)^2=(\alpha_o'-\alpha_o)^2+2(\alpha_o'-\alpha_o)\times\left(\frac{\alpha_o}{I_s}-\frac{\alpha_o'}{I_s'}\right)I+\left(\frac{\alpha_o}{I_s}-\frac{\alpha_o'}{I_s'}\right)^2I^2$$

$$\cong a+bI\ (\because I\ll I_s)$$

여기서 α_o'와 I_s'는 회절격자에서 암색화가 된 곳의 선형 흡수계수와 포화 흡수세기이다. 따라서 회절된 빛의 세기 I_d는 회절 되는 후방 펌프빔의 세기 I_b가 크지 않을 때 $(\Delta\alpha)^2I_b=aI_b+bI_b^2$의 형태를 갖고 회절효율 $\eta=I_d/I_b=a+bI_b$으로 회절되는 후방 펌프빔의 세기에 비례하게 된다.

IV. 결 론

CdS_xSe_{1-x} 미세 반도체가 첨가된 Schott glass의 OG 550, OG 590 유리에 파장 532 nm에 대한 빛의 세기에 따른 흡수계수를 암색화된 시료와 신선한 시료에 대하여 측정하였다. 포화흡수계수 I_s는 암색화가 되면 커지게 되는데 이는 생성된 운반자들의 소멸 시간이 암색화 되면 작아지기 때문이다. 그리고 축퇴 4광파 혼합 실험으로 영구 회절격자를 형성시켜 격자의 회절효율을 측정하였는데, 암색화에 따른 격자 사이의 흡수 차이에 의하여 후방 펌프빔의 세기에 비례하여 회절효율이 증가함을 알 수 있었다.

참 고 문 헌

[1] S. H. Park, Michael P. Casey and Joel Falk, J. Appl. Phys. 73(12), 15, 8041 (1993).
[2] S. H. Park, R. A. Morgan, Y. Z. Hu, M. Lindberg,

S. W. KocH and N. Peyghambarian, J. Opt. Soc. Am. **B7**, 2097 (1990).
[3] A. Sergio Bezerra Sombra, Solid State Commun. **88**, 305 (1993).
[4] R.K. Jain and R.C. Lind, J. Opt. Soc. Am. **73**, 647 (1983).
[5] P. Roussignol, D. Ricard, K. C. Rustagi and C. Flytzanis, Opt. Commun. **55**, 143 (1985).
[6] S. S. Yao, C. Karaguleff, A. Gabel, R. Fortenberry, C. T. Seaton and G.I. Stegeman, Appl. Phys. Lett. **46**, 801 (1985).
[7] F. Hache, M. C. Klein, D. Ricard and C. Flytzanis, J. Opt. Soc. Am. **B8**, 1802 (1991).
[8] S. M. Saltiel, B. Van Wonterghem and P. M. Rentzepis, Opt. Lett. **14**, 183 (1989).
[9] P. Roussignol, D. Ricard, J. Luckasik and C. Flytzanis, J. Opt. Soc. Am. **B4**, 5 (1987).
[10] J. Malhotra, D. J. Hagan, B. G. Potter, J. Opt. Soc. Am. **B8**, 1531 (1991).
[11] A. Vanhaudenarde and M. Trespidi, J. Opt. Soc. Am. **B11**, 1474 (1994).
[12] Martin Kull and Jean-Louis Coutaz, J. Opt. Soc. Am. **B7**, 1463 (1990).
[13] D. W. Hall and N. F. Borrelli, J. Opt. Soc. Am. **B5**, 1650 (1988).
[14] E. Munin, A. B. Villaverde, M. Bass, Opt. Commun. **108**, 278 (1994).
[15] D. A. B. Miller, C. T. Seaton, M. E. Prise and S. D. Smith, Phys. Rev. Lett. **47**, 197 (1981).
[16] H. J. Eichler, P. Gunter, and B. W. Pohl, *Laser-induced Dynamic Gratings* (Springer-Verlag, New York, 1986).

The Absorption Saturation and Diffraction Efficiency of the Permanent Gratings Due to the Photodarkening in Semiconductor Doped Glasses

Sung-Hyun Baek, Sang Hoon Shin, Sang-Cheon Kim, Moon-Goo Choi, Seung-Han Park and Ung Kim
Department of Physics, Yonsei University, Seoul 120-749, Korea

(Received: June 10, 1995)

The steady-state absorption saturation of the photodarkend SDG was investigated. The absorption saturation intensity was observed to increase for the photodarkened sample. The diffraction efficiency of the permanent grating due to photodarkening was also measured using the backward DFWM technique. For the low backward pump intensity, the diffraction efficiency was proportional to the intensity of the pump beam. The origin of increasing diffraction efficiency is attributed to the difference in absorption between the permanent gratings created by photodarkening.