

論文95-32A-12-21

준위상정합된 리튬탄탈레이트 광도파로에서의 청색 광파 생성

(Blue Light Generation in a Quasi-Phase-Matched LiTaO₃ Optical Waveguide)

李相潤*, 申相永*, 陳勇盛**

(Sang-Yun Yi, Sang-Yung Shin, and Yong-Sung Jin)

요 약

주기적 분극반전에 의하여 준위상정합된 제2고조파 발생 LiTaO₃ 광도파로 소자를 제작하여 파장 417.6nm, 광파워 0.15mW의 청색 광파를 생성하였다. LiTaO₃ 기판에 결정 성질 저하가 작은 주기적 분극반전 격자를 제작하기 위하여 금속-산화물 박막으로 구성된 마스크를 이용한 새로운 열처리 방법을 제안하였다. 금속-산화물 박막 마스크는 열처리 동안 분극반전을 위하여 초기 교환된 양자의 외부확산을 억제함으로써 내부 확산을 촉진시키는 역할을 한다. 제안된 열처리 방법은 분극반전을 위한 초기 양자교환율을 크게 감소시킬 수 있을 뿐만 아니라 양자의 외부확산에 수반되는 표면 결정 결함의 형성을 억제할 수 있다. 따라서 초기 양자교환에 의하여 발생하는 결정의 비선형 계수 감소 및 산란 손실을 줄일 수 있었다.

Abstract

Blue light of 0.15mW at 417.6nm is generated in a quasi-phase-matched LiTaO₃ optical waveguide. A new heat-treatment technique using a metal-oxide mask is proposed to fabricate the periodic domain-inverted grating with less degraded optical properties. The mask promotes the proton indiffusion by inhibition of the proton outdiffusion during the heat treatment. It reduces the amount of the initial proton exchange for the domain inversion and prevents the formation of crystal defects on the surface accompanied by the proton outdiffusion. Consequently, it minimizes the degradation of nonlinear coefficient and scattering loss caused by the initial proton exchange.

I. 서 론

초소형, 완전 고체 청색 레이저는 광기록, 미세 패턴 lithography, 천연색 디스플레이 장치등의 응용에

있어서 핵심 소자로 인정받고 있다.^[1] 현재, 청색 레이저 개발은 830nm 파장의 다이오드 레이저를 비선형 결정(LiNbO₃, LiTaO₃, KTP) 광도파로에서 제2고조파 발생(second-harmonic generation : SHG)시켜 얻는 방법과 에너지 밴드 갭이 큰 화합물 반도체(ZnSe, GaN)에서 직접 청색 광을 얻는 방법으로 진행되고 있다. 이 두가지 방법중 전자는 이미 성숙된 기술인 830nm 파장대의 GaAs 다이오드 레이저 제작기술과 집적광학 광도파로 소자 제작 기술을 적용할 수 있기 때문에 쉽게 청색 광파를 생성할 수 있는 장점이 있다.

효율적인 제2고조파 발생을 위해서 요구되는 조건은

* 正會員, 韓國科學技術院 電氣 및 電子工學科

(Dept. of Elec. Eng. Korea Advanced Institute of Science and Tech.)

** 正會員, LG 電子 技術院 素子材料 1 室

(Devices & Materials Laboratory LG Elec. Research Center)

接受日字: 1995年6月11日, 수정완료일: 1995年11月18日

다음과 같다.

- 1) 비선형 계수가 큰 매질
- 2) 위상정합
- 3) 긴 비선형 상호작용 거리 전반에 걸친 광파의 고집속 이외에도 광손상에 대한 저항성이 큰 매질이 요구된다.

비선형 결정중 LiNbO₃, LiTaO₃는 비선형 계수가 매우 크며, 청색 광파 영역에서 흡수가 적기 때문에 청색 제2고조파 발생 소자의 비선형 매질로 적당하다. 위상정합은 펌핑광의 전파 상수와 제2고조파의 전파 상수를 일치시켜 주는 것으로 제2고조파 발생의 핵심 기술이다. 대부분의 비선형 결정에서는 펌핑 광파의 굴절률과 제2고조파의 굴절률이 매질분산(material dispersion) 때문에 같지 않아 위상정합이 되지 않는다. 따라서 위상정합을 위한 몇가지 방법들이 고려되었으며, 그 중 분산과 복굴절(birefringence)을 이용한 각도 위상정합(angle phase matching)^[2]과 비선형 계수의 주기적 변조를 이용한 준위상정합(quasi phase matching)^[3] 방법이 대표적이다. 비선형 계수가 큰 결정인 LiNbO₃, LiTaO₃는 제2고조파가 청색 파장을 갖는 영역에서 분산에 비해 충분한 복굴절을 갖지 않으므로 각도 위상정합 방법을 사용할 수 없다. 따라서 후자의 방법을 사용해야 한다. 준위상정합 방법은 펌핑 광파와 제2고조파 사이의 위상 부정합을 주기 구조(periodic structure)의 격자 벡터로 보상하는 위상정합 방법이다. 비선형 계수의 변조 주기 Λ 는 다음 식이 만족되도록 결정된다.

$$\Delta \vec{k} = \vec{k}_{SH} - 2 \cdot \vec{k}_{PUMP} - \frac{2\pi}{\Lambda} \vec{g} = 0 \quad (1)$$

여기서 \vec{k} 는 전파 상수 벡터이며 \vec{g} 는 격자의 단위 벡터이다. 준위상정합 방법은 변조 주기를 적절히 선택함으로써 결정의 복굴절 량에 관계없이 임의의 파장에 대하여 위상정합이 가능할 뿐만 아니라 LiNbO₃ 및 LiTaO₃ 결정의 가장 큰 비선형 계수인 d₃₃계수(각도 위상정합에서 사용하는 비선형 계수인 d₃₁에 비하여 약 6배가 큼)를 사용할 수 있는 장점이 있다. 이런 이유로 각도 위상정합이 가능한 파장 영역에서도 준위상정합 방법을 사용하기도 한다^[4]. 긴 비선형 상호작용 거리 전반에 걸친 광파의 고집속을 위해서는 광도파로 구조를 이용하는 것이 효율적이다. 이 경우 광도파로의

단면적은 보통 10 μm^2 이하이기 때문에 광도파로 내에는 매우 큰 광파 밀도(intensity)가 얻어지며, 이로 인해 광손상(optical damage) 현상이 발생되기도 한다. LiTaO₃는 LiNbO₃에 비하여 광손상에 대한 저항성이 크기 때문에^{[5], [6]} 고출력 청색광파 생성에 보다 유리하다. 따라서, 효율적인 고출력 청색광파 생성을 위해서는 준위상정합된 LiTaO₃ 광도파로를 이용한 제2고조파 발생 소자가 적합함을 알 수 있다.

준위상정합된 광도파로 청색광파 발생소자의 핵심기술은 비선형 계수의 주기적 변조이다. 이를 위해서는 LiTaO₃ 결정의 강유전체 자연분극(spontaneous polarization)의 방향을 주기적으로 바꾸어 주어야 한다^[3]. 분극의 방향을 바꾸어 주는 공정을 분극반전(domain inversion)이라 하며 여러가지 방법등이 제안되었다^{[7]-[9]}. 이들 중 대표적인 것이 양자교환(proton exchange) 후 열처리 방법이다. 이 방법은 재료의 두께 및 크기에 상관없이 넓은 영역에 걸쳐 균일한 분극반전 격자를 제작할 수 있어, 현실점에서 유일하게 웨이퍼 단위의 대량생산에 적합한 장점이 있다. 이 방법으로 제작된 청색광파 생성 소자의 개략도를 그림 1에 나타내었다.

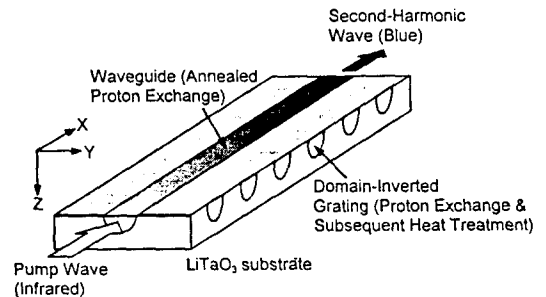


그림 1. 준위상정합된 LiTaO₃ 제2고조파 발생 소자
Fig. 1. Quasi-phase-matched LiTaO₃ SHG device.

준위상정합된 광도파로 제2고조파 발생 소자는 다음과 같이 제작된다. 우선 -c면 LiTaO₃ 기판 위에 주기적인(보통 주기 3.5 μm) 양자교환을 한 후 이를 500 $^{\circ}\text{C}$ 이상의 고온에서 열처리를 한다. 열처리 도중 양자교환된 곳에는 분극반전이 형성된다. 즉, 기판 전면에 분극반전 격자가 형성된다. 이 후 제작된 분극반전 격자에 수직하게 채널 광도파로를 위한 두번째 양자교환을 한다. 광도파로를 위한 충분한 깊이를 얻기 위하여 350 $^{\circ}\text{C}$ 정도에서 어닐링을 수행한다. 마지막으로 광도파로

의 양 단면을 연마하면 제2고조파 발생 소자가 완성된다.

효율적인 제2고조파 발생을 위해서는 분극반전 격자와 광도파로 도파 모드의 중첩이 커야한다. 이를 위해선 duty ratio가 50%이고 광도파로의 깊이 보다 깊은 분극반전 격자가 요망된다. 이러한 분극반전 격자는 보통의 열처리 방법으로는 제작하기 어려우며, 이를 위해 고안된 급속 열처리(quick heat-treatment)^[10] 방법을 사용해야 한다. 급속 열처리 방법의 특징은 50 °C/sec 이상의 빠른 온도 상승률, 수초~수십초 정도의 짧은 열처리, 그리고 빠른 냉각을 특징으로 한다. 급속 열처리 방법을 이용하면 1차 준위상정합에 적합한 분극반전 격자(폭 1.7 μ m, 깊이 1.5 1.5 μ m)를 제작할 수 있으므로^[10] 효율적인 청색 광파 생성을 기대할 수 있다^[11]. 그럼에도 불구하고 아직 이 방법은 근본적으로 해결 해야할 다음과 같은 결점들을 갖고 있다.

첫째, 충분한 깊이를 갖는 분극반전을 얻기 위해서는 열처리 동안 깊이 방향으로 많은 양의 양자가 내부 확산해야 하는데 이를 위해서는 많은 양의 초기 양자 교환이 필요하다. 그러나 기관에 과도한 양자교환을 할 경우, 이로 인해 결정의 비선형 계수가 심하게 감소하며^{[12], [13]} 또한 기관의 표면 굴절율이 증가하여 표면 도파 현상을 야기한다. 표면 도파 현상은 도파 모드의 집속도를 떨어뜨려 결과적으로 변환효율을 낮추는 요인으로 작용한다.

둘째, 분극반전을 위한 초기 양자교환 그리고 고온 열처리에 의하여 기관 표면에 결정 결함(crystal defect)이 형성된다. 이는 분극반전 격자 제작 후 이와 수직하게 제작되는 광도파로의 산란손실(특히, 짧은 파장인 청색 제2고조파에 대하여 치명적임)을 발생시킨다.

따라서, 효율적인 LiTaO₃ 청색 광파 생성 소자를 제작하기 위해서는 분극반전 격자 제작에 필요한 초기 양자교환 양을 최소화할 수 있는 방법이 필요하다. 또한 분극반전 과정 중 기관 표면에 형성되는 결정 결함 형성을 억제할 수 있는 방안이 필요하다.

본 논문에서는 양자교환 후 열처리 방법으로 제작되는 분극반전 격자의 결정 성질 저하를 최소로 줄일 수 있는 새로운 열처리 방법을 제안한다. 제안된 열처리 방법은 열처리시 초기 교환된 양자의 외부확산을 억제함으로써 양자의 내부확산을 촉진시키는 열처리 방법이다. 이를 위하여 금속 박막과 산화물 박막으로 구성

된 마스크를 양자 외부확산 억제 마스크로서 사용하였다. 금속 산화물 박막에 의하여 촉진된 양자 내부확산은 적은 양의 초기 양자교환으로도 깊은 분극반전을 형성할 수 있게 하였다. 또한 양자 외부확산을 억제함으로써 양자 외부확산에 수반되는 표면층의 결정 결함 형성을 억제할 수 있었다. 따라서, 이 열처리 방법은 결정의 비선형 계수를 보존하며, 고집속 광도파로를 제작할 수 있게 한다. 또한 표면층의 결정 결함 형성을 억제함으로써 분극반전 격자와 수직하게 제작되는 광도파로의 산란 손실을 줄인다.

제안된 열처리 방법을 이용하여 분극반전 격자를 제작하였으며 이를 이용하여 청색 광파 생성 소자를 제작하였다. 제작된 청색 광파 생성 소자는 33mW의 적외선 입력광으로 0.15mW의 청색 광파를 생성하였다. 이때 펄핑광 파워 및 소자 길이로 정규화된 변환효율은 17%/Wcm² 이다.

II. 양자교환 후 열처리에 의한 분극반전 형성

단일 결정 LiTaO₃는 Curie 온도(605°C) 이하에서 자연분극 P_s를 갖는 강유전체이며, 잘 알려진 전기광학 재료인 LiNbO₃와 이질동형(isomorph) 결정이다. 자연분극의 방향은 결정내의 리튬 이온과 탄탈륨 이온의 상대적 위치에 의하여 결정되며 광축방향으로 상향 또는 하향의 두가지 방향만을 갖는다. 분극반전을 위해서는 결정의 항전장(coercive field, 상온에서 20KV/mm 정도) 보다 큰 전장을 자연분극과 반대 방향으로 가해야 한다.

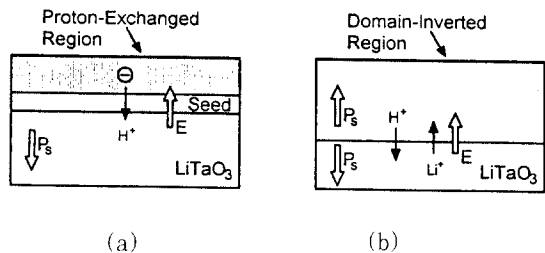


그림 2. 양자교환 후 열처리에 의한 분극반전 형성
(a) 분극반전 씨앗 생성
(b) 분극반전 성장

Fig. 2. Formation of domain inversion by proton exchange and subsequent heat treatment (a) Formation of domain-inversion seed (b) Growth of domain inversion.

분극반전 과정은 일단 기관 표면 근처에 분극반전의 씨앗(seed)이 형성되고 이것이 자연분극 방향과 반대로 가해진 전장의 영향을 받아 기관내로 성장하는 것으로 알려져 있다^[14]. LiTaO_3 기관에 양자교환을 하고 이를 열처리할 때 기관의 $-c$ 면에서 분극반전이 일어나는 현상도 같은 과정을 겪는다. 그림 2에 보이는 바와 같이 분극반전 씨앗은 초기 양자교환된 곳과 기관 내부 사이에 형성된다. 열처리 초기에 결정 내의 양자가 내부로 확산하면서 원래의 자리에 부전하(negative charge)를 띤 공동(vacancy)을 남기며, 이로 인해 공간전하 분포가 형성된다. 공간전하 분포에 의하여 기관 내부에서 기관 표면을 향한 전장이 유기되며(자연분극 방향과 반대 방향) 유기된 전장의 세기가 결정의 항전장(기관의 온도 및 양자 농도에 의하여 결정됨) 보다 클 경우 분극반전 씨앗을 형성한다. 이 현상은 열처리 초기에 발생하는 과도적 현상이며, 열처리의 정상 상태에서는 기관 내부에서 확산해온 리튬 이온이 공동을 차지함으로써 이러한 전하 불균형은 제거된다. 그러나 고온의 열처리 과정(500°C 이상)에서 양자에 비하여 리튬 이온의 확산 속도는 매우 작기 때문에^[15] 이를 상쇄시키기 위한 전장의 존재가 예측되며, 소위 양극확산(ambipolar diffusion : 같은 극성의 전하를 갖는 두 입자가 서로 반대 방향으로 확산, 또는 서로 다른 극성의 전하를 갖는 두 입자가 같은 방향으로 확산) 과정에서 도입되는 전장이 반드시 존재하여야 한다. 이 전장은 느린 속도의 확산 이온을 빠르게, 그리고 빠른 속도의 확산 이온을 느리게 확산되도록 하여 전체적인 전하이동의 균형을 이루어 준다^[16]. LiTaO_3 기관의 $-c$ 면에서 양자확산에 의한 양극확산 전장은 자연분극 방향과 반대 방향이며, 이 전장의 세기가 기관의 항전장 보다 작지 않은 영역까지 분극반전 씨앗을 기관 내부로 성장시킨다.

III. 양자외부확산 억제 마스크를 이용한 열처리

양자교환된 LiNbO_3 또는 LiTaO_3 기관을 열처리하면 초기 교환된 양자는 기관 내부 및 외부로 확산된다^{[17], [18]}. 양자 외부확산(proton outdiffusion)은 양자교환 LiNbO_3 , LiTaO_3 광도파로 소자의 열처리시 대부분 무시되어 왔는데, 이는 열처리 온도가 보통 350°C 이하로 양자 외부확산이 일어나기에는 비교적

낮았기 때문이었다. 그러나 LiTaO_3 의 분극반전을 위한 열처리 온도는 보통 500°C 이상이므로 양자 외부확산이 크게 일어날 것으로 예상된다. 양자 외부확산이 분극반전 형성에 미치는 영향은 두가지로 볼 수 있다.

첫째로, 분극반전 씨앗 형성 및 이의 성장을 위한 양자 교환율을 증대시킨다. 분극반전 씨앗은 앞에서 언급한 바와 같이 과도기적으로 생성된 공간전하 분포에 의하여 형성되므로 양자 외부확산이 양자 내부확산 속(proton-indiffusion flux : 단위 시간당 단위 면적을 통해 내부로 확산되는 양자의 양)을 감소시킬 경우, 분극반전 씨앗을 형성시키기 위해서는 보다 많은 양의 양자교환이 필요하게 된다. 그리고 분극반전 씨앗이 형성된 후에도 양자 내부확산 깊이가 양자 외부확산이 없는 경우에 비하여 얇기 때문에 깊은 분극반전을 얻기 위해서는 또한 많은 양의 양자교환이 필요하다.

두번째로, 고온에서 양자 외부확산이 일어날 경우 결정 표면에 결정 결함이 생성될 수 있다. 이는 양자 외부확산이 수소 가스 형태(H_2)로 외부확산되기 보다는 결정의 전기 중성화(electrical neutrality)를 위하여 산소와 결합한 형태(H_2O)로 외부확산되기 때문이다^[18]. 따라서, 기관 표면 근처에 마치 리튬 산화물(Li_2O)이 빠져나간 것과 같은 효과를 주는 공동이 형성된다. 이러한 공동들은 주변의 LiTaO_3 와 결합하여 리튬 산화물이 부족한 경우 흔히 생성되는 LiTa_3O_8 (lithium tritantalate)로 석출될 수 있다.^[19] 이 석출물은 광도파로의 산란손실을 증대시키며 전기광학 및 비선형 광학 효과를 저하시킨다.^[20] 결과적으로 양자 외부확산을 허용한 채 분극반전 격자를 제작하기 위하여 많은 초기 양자교환을 할 경우, 분극반전된 곳의 결정 성질 저하로 인해 효율적인 청색 광파 생성이 어려워진다.

양자 외부확산을 억제하기 위하여 양자교환된 기관의 표면에 박막 형태의 양자 외부확산 억제 마스크(proton-outdiffusion-protection mask)를 증착하였다. 양자 외부확산 억제 마스크로서 여러가지 금속 박막(Ta, W, Cr 등) 및 산화물 박막(SiO_2 , Al_2O_3)을 시험하였으며, 이들 모두 양자 외부확산 억제 효과를 보였다^{[21], [22]}. 이들 중 대부분의 금속 박막은 산화물 박막에 비하여 양자 외부확산 억제에 보다 효과적이었다. 산화물 박막의 경우 두께가 얇은 경우 양자 외부확산을 완전히 차단하기 어려웠으며, 두께가 두꺼운 경우도 열처리 도중 산화물 박막이 깨져 양자 외부확

산 억제에 효과적이지 못하였다. 산화물 박막의 깨짐 현상은 산화물 박막과 기판과의 열팽창 정도가 달라 발생하는 것으로 생각된다. LiTaO_3 기판의 a -방향 열팽창 계수는 산화물 박막(예를 들어 SiO_2)에 비해 30 배 이상 큰 것으로 알려져 있다. 그러나 금속 박막을 억제 마스크로 사용하는 경우에도 문제가 발생하였다. 모든 금속 박막은 고온의 열처리 중 LiTaO_3 기판 표면에 존재하는 산소와 결합하여 산화되는 현상을 보였으며, 이로 인해 결정 표면에 변색화(discoloration) 현상이 발생하였다. 하지만 산화물 박막을 억제 마스크로 이용하는 경우 이런 변색화 현상은 발생하지 않았다. 따라서 산화물 박막의 깨짐 현상과 금속 박막의 변색화 문제를 모두 해결하기 위하여 금속 박막과 기판 표면 사이에 얇은 산화물 박막(보통 50~250nm 두께)을 끼워넣은 금속-산화물 마스크를^[21] 양자 외부확산 억제 마스크로 사용하였다. 이때 끼워 넣은 얇은 산화물 박막은 일종의 완충층(buffer layer) 역할을 하며 완충층까지는 일부 양자 외부확산이 되더라도 그 위의 금속 박막에 의하여 더 이상 양자 외부확산이 일어나지 않게 된다. 본 논문의 실험에서는 Ta 박막과 SiO_2 박막을 금속-산화물 억제 마스크로서 사용하였다. Ta- SiO_2 마스크는 단일의 두꺼운 산화물 박막에 비하여 양자 외부확산 억제에 보다 효과적 이었다.

1. 양자외부확산 억제에 의한 분극반전 깊이 증대

열처리시 양자 외부확산을 억제함으로써 양자 내부확산 속이 증대되는 것을 간단한 방법으로 보이기 위하여 열처리된 기판의 적외선 흡수 스펙트럼을 측정하였다. 기판 내부에 포함되어 있는 양자에 의한 적외선 흡수 띠는 3480cm^{-1} 주변에서 나타나며 흡수 스펙트럼의 면적은 기판 내부에 있는 양자의 갯수에 비례한다^[23]. 적외선 흡수 스펙트럼 측정을 위하여 두개의 시료가 준비되었다. 우선, LiTaO_3 기판 두개를 260°C 순수한 벤젠산에서 $-c$ 면에 만 50분간 양자교환 하였다. 이들 중 하나에 Ta- SiO_2 마스크를 스퍼터링 방법으로 증착하였다. 그 다음 실온에서 590°C 까지 40초 동안 온도를 상승시켰으며, 산소 분위기 590°C 에서 30초간 열처리 하였다. 열처리가 끝난 후 곧바로 시료를 자연냉각 시켰다. 열처리 후 마스크는 식각액을 이용해 제거하였다. 그림 3에 시료 각각의 적외선 흡수 스펙트럼을 나타내었다. 두개 곡선으로 둘러싸인 면적이 외부확산된 양자의 양이다. 기판내 양자의 양은 마

스크가 있는 경우가 없는 경우에 비해서 25%가 더 많았다. 비록 열처리 시간은 대단히 짧지만 열처리 온도가 높기 때문에 초기 교환된 양자 중 많은 양이 외부로 빠져 나갔음을 의미한다. 이것은 다시말해 양자 외부확산을 억제하면 열처리의 과도 상태 그리고 정상 상태에서 결정내의 양자 내부확산 속을 증대시켜 적은 양의 초기 양자교환으로도 분극반전 씨앗을 생성할 수 있을 뿐만 아니라 깊은 분극반전을 얻을 수 있음을 말한다.

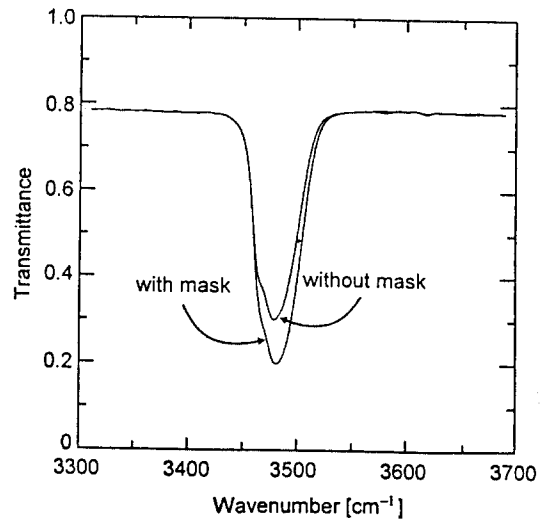


그림 3. 마스크가 있는 경우와 없는 경우의 적외선 흡수 스펙트럼

Fig. 3. Infrared absorption spectra with and without mask.

양자 외부확산을 억제함으로써 분극반전 깊이가 증대됨을 보이기 위하여 양자 외부확산 억제 마스크가 있을 때와 없을 때의 분극반전 깊이를 비교하였다. 이는 양자 외부확산 억제 마스크를 이용하여 양자 내부확산 속을 증대시킴으로써 양자교환 양을 늘리지 않고도 분극반전 깊이를 증대시킬 수 있음을 보이기 위함이다. 양자교환은 260°C 순수한 벤젠산에서 수행하였으며 열처리 과정은 위에서 언급한 것과 동일하게 하였다. 분극반전은 $1\text{HF} + 2\text{HNO}_3$ 용액에 LiTaO_3 기판을 식각하여 관측하였다^[17]. 부분적으로 분극반전된 시료의 y 면을 거울면 연마(polishing)하여 $1\text{HF} + 2\text{HNO}_3$ 용액에 식각하면 결정의 분극 구조(domain structure)에 따라 단면에 요철이 나타나며, 이것을 전자 현미경(scanning electron

microscope : SEM)으로 관찰하면 분극반전 모양을 알 수 있다. 분극반전 깊이는 전자 현미경 사진으로 부터 측정하였다. 그림 4에 양자 외부확산 억제 마스크가 있는 열처리와 없는 열처리로 부터 얻어진 분극반전 깊이를 나타내었다. 적외선 흡수 스펙트럼 결과에서 예상했던 바와 같이 양자 외부확산 억제 마스크를 갖은 시료의 분극반전 깊이가 마스크가 없는 시료 보다 깊게 얻어졌다. 실험 결과로 부터 알 수 있는 것은 동일한 분극반전 깊이에 대해 양자 외부확산 억제 마스크가 있는 경우는 양자 외부확산 마스크가 없는 기존의 열처리에 비해 십분~수십분 정도 양자교환 시간을 줄일 수 있다는 것이다. 즉, 양자 외부확산 억제 마스크를 이용하여 초기 양자교환 율을 낮출 수 있다.

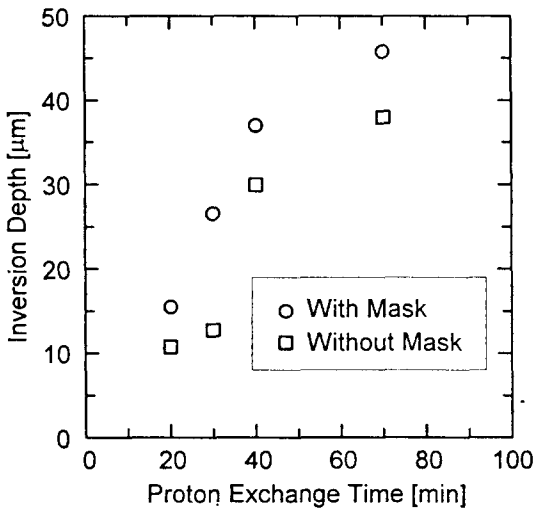
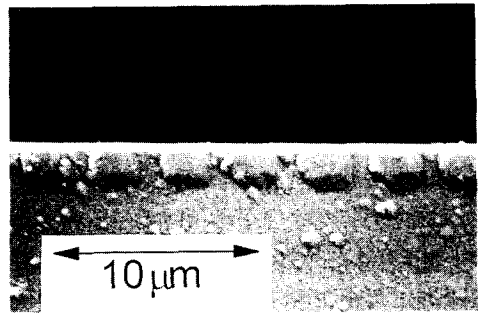


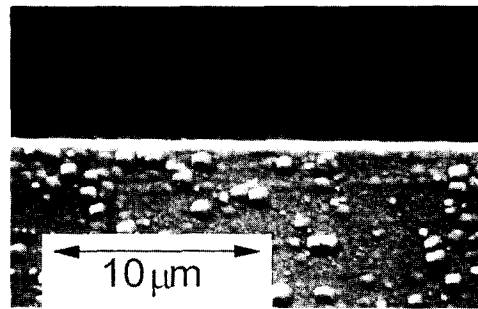
그림 4. 양자교환 시간에 따른 분극반전 깊이
Fig. 4. Domain inversion depth against proton-exchange time.

양자 외부확산 억제 마스크가 주기적인 분극반전 격자 제작에도 유용함을 보이기 위하여 주기 3.5μm의 분극반전 격자를 제작하고 이를 양자 외부확산이 있는 경우와 비교하였다. 열처리는 적외선 열원을 사용한 급속 열처리 장비를 이용하여 80℃/sec로 빠르게 온도를 상승시켰다. 이것은 열처리 초기에 과도적인 공간전하 분포를 유도하여 분극반전 씨앗이 용이하게 생성되도록 하기 위함이다. 양자교환은 220℃ 순수한 벤젠산에서 2시간 동안 수행되었고, 열처리는 550℃에서 30초간 수행되었다. 그림 5는 양자 외부확산 억제 마스크

가 있는 시료와 없는 시료의 식각된 -y단면을 보여준다.



(a)



(b)

그림 5. 마스크가 있는 경우와 없는 경우의 식각된 시료의 단면 (a) 마스크가 있는 경우 (b) 마스크가 없는 경우

Fig. 5. Etched cross-sectional photographs of the samples with and without mask. (a) With mask (b) Without mask.

그림에서 돌출된 부분이 분극반전된 부분이다. 양자 외부확산 억제 마스크가 있는 시료는 그림 5(a)에서 보이는 바와 같이 폭 1.7μm, 깊이 1.7μm의 분극반전이 얻어졌다. 그러나 마스크가 없는 시료는 그림 5(b)에서 보이는 바와 같이 기판 안에 무작위적으로 존재하는 미세한 분극반전을 제외하고는 의도된 주기적 분극반전이 전혀 얻어지지 않았다. 이와 같이 분극반전 씨앗 조차 생성되지 못한 것은 양자 내부확산 속이 양자 외부확산 때문에 감소하여 열처리 동안 양자확산에 의해 생성된 전장이 결정의 항전장을 넘지 못함으로 생각된다. 즉, 양자 외부확산이 있는 경우, 주어진 열처리 조건에서 220℃, 2시간의 양자교환은 분극반전을

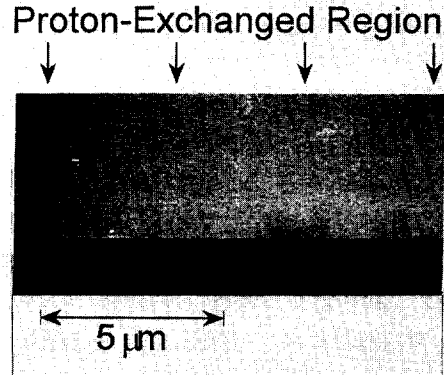
형성하기에는 양자교환 시간이 너무 짧음을 의미한다. 이 경우 그림 5(a)와 같은 분포의 분극반전을 얻기 위해서는 220°C 순수한 벤젠산에서 3.5시간의 양자교환이 필요하였다. 이것은 양자 외부확산 억제 마스크가 주기적인 분극반전 격자 제작에도 양자교환 율을 줄이는데 매우 유용함을 말해준다. 따라서, 양자 외부확산 억제 마스크를 이용하여 초기 양자교환 율을 줄임으로서 양자교환에 의한 비선형 계수의 감소를 최소화하고 고집속 도파모드를 갖는 광도파로를 제작할 수 있음을 보였다.

2. 양자외부확산에 의한 표면 결정결함 형성

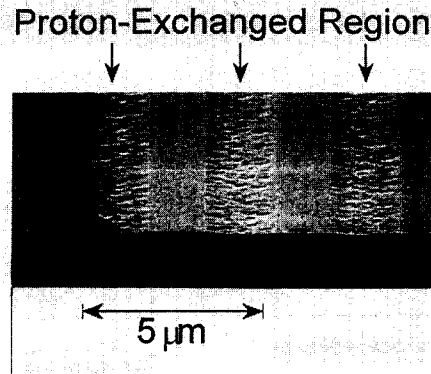
LiTaO₃ 및 LiNbO₃의 결정 결함을 판별하는 방법으로 1HF+2HNO₃ 식각액을 이용할 수 있다. 1HF+2HNO₃ 용액은 분극반전의 모양을 알아내기 위해서도 쓰이지만 결정결함을 알아내기 위해서도 유용하다^[24]. 결정의 결함 중심(defect center)은 보통의 결정에 비해 식각율이 큰 것으로 알려져 있다. 예를 들어, 양자교환된 LiTaO₃ 및 LiNbO₃는 격자결함(lattice disorder)이 발생하여 보통의 결정에 비해 식각율이 1000배나 큰 것으로 보고되고 있다^[25]. 그림 6(a)와 (b)는 각각 그림 5(a)와 (b)에 보인 시료의 -z면을 식각한 기판 표면 사진이다. 그림 6(a)에서 초기 양자교환이 된 부분은 주변에 비해 약간 솟아있다. 이것은 지극히 당연한 결과인데 초기 양자교환이 된 부분은 분극반전이 되어 +z면이 되었고 주변의 -z면이 식각되어 주변에 비해 솟아 보이는 것이다(1HF+2HNO₃ 용액에 -z면이 +z면에 비해 빨리 식각된다)^[7]. 여기서 주목해야 할 것은 초기 양자교환된 곳이 식각되지 않았다는 것이다. 이것은 초기 양자교환된 곳의 결정 성질이 양자 외부확산이 차단된 고온 열처리 과정을 통하여 완전히 회복된 것으로 생각된다. 그러나 그림 6(b)에서는 초기 양자교환된 부분이 심하게 식각되었으며 식각된 면이 매우 거칠게 보인다. 즉, 양자 외부확산에 의하여 결정 결함이 형성되었음을 말한다. 거친 식각면은 결함이 있는 결정의 성장면으로 생각된다.

따라서, 양자 외부확산 억제 마스크를 이용하여 열처리 도중 양자 외부확산에 수반되는 표면층의 결정 결함 형성을 억제할 수 있었다. 표면 결정 결함은 분극반전 격자 제작 후 이와 수직하게 제작되는 광도파로의 산란 손실을 유발할 수 있기 때문에 양자 외부확산

억제 마스크를 이용한 표면 결정 결함의 억제는 효율적인 청색 광파 생성에 매우 유익한 장점이라 할 수 있다.



(a)



(a)

그림 6. 마스크가 있는 경우와 없는 경우의 식각된 시료의 표면 (a) 마스크가 있는 경우 (b) 마스크가 없는 경우

Fig. 6. Etched surface photographs of the samples with and without mask. (a) With mask (b) Without mask

IV. 제2고조파 발생소자 제작 및 측정

준위상정합 제2고조파 발생소자는 그림 1에서 보이는 바와 같이 우선 분극반전 격자를 기판 전면에 형성하고 이와 수직하게 광도파로를 형성하여 제작한다. 그림 7은 본 논문의 제2고조파 발생 소자 제작 과정을

나타낸다. 분극반전 격자를 형성하기 위하여 주기 $3.5\mu\text{m}$ (duty ratio 50%)의 양자교환 마스크를 기판에 제작한 후 220°C 순수한 벤젠산에서 40분간 양자교환을 수행하였다. 양자교환 후 양자교환 마스크를 식각 제거한 뒤 기판의 전면에 Ta-SiO₂ 양자 외부확산 억제 마스크를 증착하였다. 열처리는 570°C 에서 20초간 수행하였다. 제작된 분극반전 격자는 그림 5(a)와 유사하였다. 광도파로는 SiO₂-cap을 이용한 양자확산 (proton diffusion) 방법에 의하여 제작되었다^[17]. 광도파로의 패턴 폭은 $3\mu\text{m}$ 이며 길이는 9mm로 형성하였다. 광도파로를 위한 양자교환은 220°C 순수한 벤젠산에서 2시간동안 수행하였다. 양자교환 후 충분한 광도파로 깊이(상기 조건의 양자교환 만으로는 약 $0.4\mu\text{m}$ 의 광도파로 깊이 밖에 얻을 수 없음)를 얻기 위하여 양자확산 공정을 수행하였다. 양자확산은 광도파로 위에 SiO₂-cap을 덮은 상태로 400°C 산소 분위기에서 1분간 수행하였다. 양자확산 후 SiO₂-cap은 광도파로의 표면 보호층으로 사용하였다. 이 SiO₂-cap은 외부의 먼지, 소자 취급시의 긁힘 등으로부터 광도파로를 보호하는 역할도 하였다.

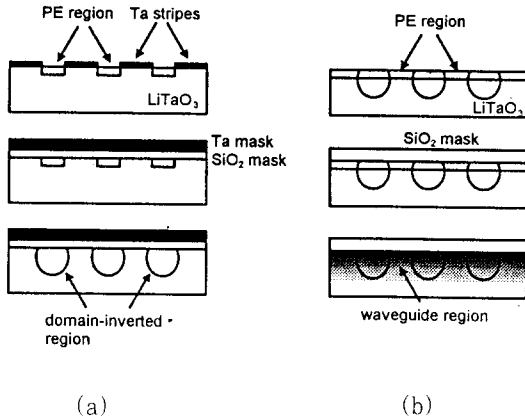


그림 7. 제2고조파 발생 소자 제작 과정
(a) 주기적 분극반전 격자
(b) 양자확산 광도파로

Fig. 7. Fabrication procedure of SHG device. (a) Periodic domain-inverted grating (b) Proton-diffused waveguide

제작된 제2고조파 발생소자는 파장 튜닝이 용이한 Ti:Al₂O₃ 레이저를 펄핑 광원으로 하여 소자의 제2고조파 변환 효율, 위상정합 파장 및 스펙트럼, 그리고

펄핑 광파 및 제2고조파 도파 모드를 측정하였다. 그림 8에 측정장치를 나타낸다. 제작된 소자는 기대했던 바와 같이 전혀 표면 도파 현상이 보이지 않았으며 청색 제2고조파의 산란 역시 거의 관측되지 않았다. 제2고조파 발생 소자의 위상정합 파장은 835.2nm 였으며, 펄핑 광 파워 33mW 로 0.15mW 의 청색 광파를 생성하였다. 이때 펄핑 광 파워 및 소자 길이로 정규화된 청색광파 생성 효율(η_{SH})은 다음식에 의하여 $17\%/W\text{cm}^2$ 이다.

$$\eta_{SH} = \frac{P^2_{SH}}{(P_{pump} \cdot L)^2} \times 100\% = 17\% / W\text{cm}^2 \quad (2)$$

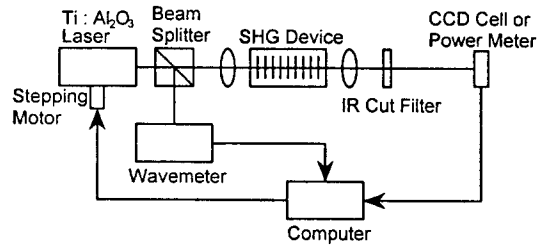


그림 8. 제2고조파 발생 측정장치
Fig. 8. Measurement setup of SHG.

그림 9는 펄핑 광 파워에 대한 청색 광 파워에 대한 관계이다. 잘 알려져 있는 것과 같이 청색 광 파워는 펄핑광 파워의 제곱에 비례하는 관계를 잘 만족하였다. 그림 10은 소자에 입력되는 펄핑 광 파장에 대한 청색 광파워를 측정한 것이다. 이 역시 잘 알려진 대로 sinc 함수 제곱 곡선과 유사하였다. 소자의 허용 파장 반치대역폭(Full Width at Half Maximum : FWHM)은 0.14nm 였다. 모드분포 측정 장치의 최대 허용오차는 $\pm 0.07\mu\text{m}$ 이었다. 펄핑 광파와 제2고조파의 도파 모드 크기는 $1/e^2$ 전체 크기 기준으로, 폭 방향이 각각 $4.3\mu\text{m}$, $1.8\mu\text{m}$ 이고 길이 방향이 각각 $2.9\mu\text{m}$, $1.6\mu\text{m}$ 였다. 펄핑 광파 및 청색 광파의 도파 모드가 차지하는 광도파로 면적은 $1/e^2$ 등고선(contour)을 기준으로 각각 $9.4\mu\text{m}^2$, $3.6\mu\text{m}^2$ 이었다. 측정된 펄핑 광파의 길이 방향 모드 크기는 효율적인 광도파로 제2고조파 발생 소자에서 요구하는 크기(분극반전 깊이, $1.7\mu\text{m}$)에 비하여 큰 편이며, 이것은 광도파로 제작 조건이 아직 최적화되지 않았기 때문이다. 제2고조파 발생 소자의 광도파로 제작 조건(양자교환 시간 및 온도, 양자확산 온도 및 시간, 광도파로 패턴 폭 등)을 최적화 한다면 보

다 큰 변환 효율을 얻을 수 있을 것이다.

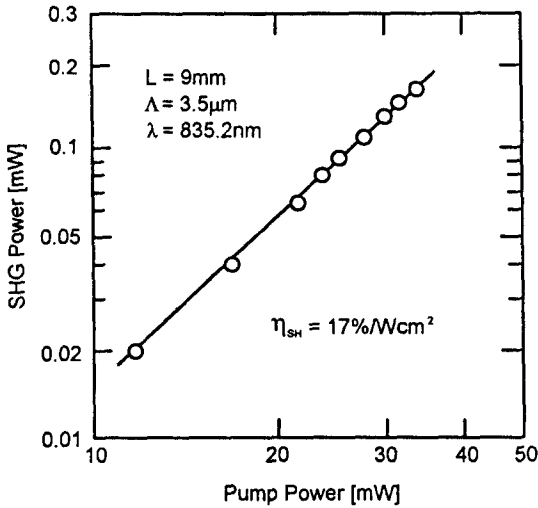


그림 9. 펌핑광 파워에 대한 제2고조파 파워
Fig. 9. Measured SHG power against pump power.

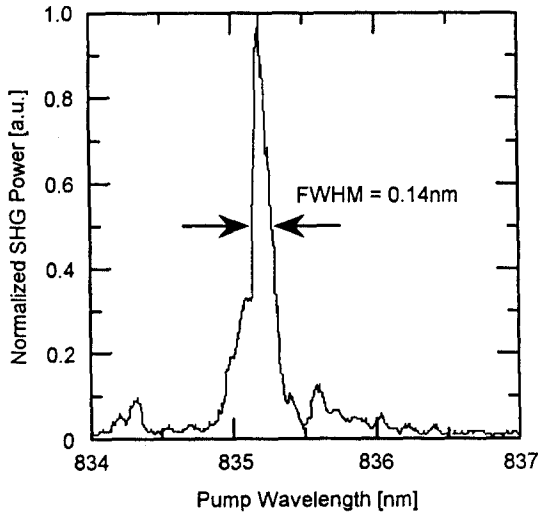


그림 10. 펌핑광 파장에 대한 정규화된 제2고조파 파워
Fig. 10. Normalized SHG power against pump wavelength.

V. 결론

LiTaO₃ 기판에 결정성질 저하가 작은 주기적 분극 반전 격자를 제작하기 위하여 금속 산화물 박막으로

구성된 양자 외부확산 억제 마스크를 이용한 새로운 열처리 방법을 제안하였다. 금속 산화물 박막 마스크는 열처리 동안 분극반전을 위하여 초기 교환된 양자의 외부확산을 억제함으로써 내부확산을 촉진시키는 역할을 하였다. 양자 외부확산 억제 마스크를 이용한 열처리 방법은 분극반전을 위한 초기 양자교환 율을 크게 감소시켜 결정의 비선형 계수 감소를 줄였을 뿐만 아니라 양자 외부확산에 수반되는 표면 결정 결함의 형성을 억제함으로써 분극반전 격자와 수직하게 제작되는 광도파로의 산란 손실을 줄였다.

제안된 열처리 방법을 이용하여 준위상정합된 광도파로 청색 광파 생성 소자를 제작하였다. 제작된 소자는 펌핑 광 파워 33mW로 광 파워 0.15mW, 파장 417.6nm의 청색 광파를 생성하였다. 소자의 정규화된 청색 광파 생성 효율은 17%/Wcm² 였다. 제작된 청색 광파 발생 소자의 변환 효율이 크지 않은 것은 양자교환 광도파로 제작 조건을 아직 최적화하지 않았기 때문이며, 이를 최적화 한다면 보다 고효율의 청색 제2고조파 발생 소자를 제작할 수 있을 것이다.

감사의 글

※ 본 연구는 LG전자 기술원의 연구비 지원(초소형 청색 레이저 제작 연구) 및 한국과학재단 광전자 연구센터의 연구비 지원(KOSEF-OERC-95K3-0809-01- 01-1) 으로 수행되었습니다.

참고 문헌

- [1] W. P. Risk, "Compact blue laser devices," *Optics & Photonics News*, May, pp. 10-15, 1990.
- [2] A. Yariv, P. Yeh, *Optical Waves in Crystals*, John Wiley & Sons, pp. 504-548, 1984.
- [3] J. Webjorn, F. Laurell, and G. Arvidsson, "Fabrication of periodically domain-inverted channel waveguides in lithium niobate for second harmonic generation," *IEEE J. Lightwave Technol.*, vol. 7, pp.1597-1600, 1989.
- [4] E. J. Lim, M. M. Fejer, and H. M. Hertz, "IR radiation generated by

- quasi-phase-matched, difference-frequency mixing in a periodically poled lithium niobate waveguide," in *Tech. Dig. Conf. Lasers Electro-Opt.*, 12-17 May, CTuV2, 1991, Baltimore, U.S.A..
- [5] T. Fujiwara, X. F. Cao, and R. V. Ramaswamy, "Photorefractive effect in annealed proton-exchanged LiTaO₃ waveguides," *IEEE Photon. Technol. Lett.*, vol. 5, pp. 1062-1064, 1993.
- [6] Y. Kondo and Y. Fujii, "Photorefractive effect in proton-exchanged waveguiding layers formed on lithium niobate and lithium tantalate crystals," *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 34, pp. 309-311, 1995.
- [7] K. Nakamura and H. Shimizu, "Ferroelectric inversion layers formed by heat treatment of proton-exchanged LiTaO₃," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 56, pp. 1535-1536, 1990.
- [8] W.-Y. Hsu and M. C. Gupta, "Domain inversion in LiTaO₃ by electron beam," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 60, pp. 1-3, 1992.
- [9] C. Takyu, M. Ohashi, M. Sato, and H. Ito, "Formation of periodic volume domain grating for quasi-phases-matched nonlinear optical processes," in *Tech. Dig. 4th IKETANE Conference on Optically Nonlinear Organic Materials and Applications*, Paper 18D11, pp. 134-137, May 17-20, 1994, Hawaii, U.S.A..
- [10] K. Mizuuchi, K. Yamamoto, and T. Taniuchi, "Fabrication of first-order periodically domain-inverted structure in LiTaO₃," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 59, pp. 1538-1540, 1991.
- [11] Y. Kitaoka, K. Mizuuchi, K. Yamamoto, M. Kato, N. Ito, and S. Mizuno, "Compact SHG blue laser using quasi-phase-matched LiTaO₃ waveguide devices," in *Tech. Dig. Symposium on Optical Memory 1994*, Paper P19, pp. 93-94, July 11-13, 1994, Tokyo, Japan.
- [12] H. Ahlfeldt, F. Laurell, and G. Arvidsson, "Strongly reduced optical nonlinearity in lithium tantalate due to proton exchange," *Electron. Lett.*, vol. 29, pp. 819-821, 1993.
- [13] H. Ahlfeldt, "Nonlinear optical properties of proton-exchanged waveguides in z-cut LiTaO₃," *J. Appl. Phys.*, vol. 76, pp. 3255-3260, 1994.
- [14] K. Mizuuchi, K. Yamamoto, and H. Sato, "Domain inversion in LiTaO₃ using proton exchange followed by heat treatment," *J. Appl. Phys.*, vol. 75, pp. 1311-1318, 1994.
- [15] D. P. Birnie III, "Review : Analysis of diffusion in lithium niobate," *J. Mater. Sci.*, vol. 28, pp. 302-315, 1993.
- [16] D. P. Birnie III and P. F. Bordui, "Defect-based description of lithium diffusion into lithium niobate," *J. Appl. Phys.*, vol. 76, pp. 3422-3428, 1994.
- [17] Y.-S. Son., H.-J. Lee, and S.-Y. Shin, "Control of mode profiles in proton-diffused LiNbO₃ waveguides using self-aligned SiO₂ cladding," *IEEE Photon. Technol. Lett.*, vol. 2, pp. 184-186, 1990.
- [18] G. R. Paz-Pujalt, D. D. Tuschel, G. Braunstein, T. Blanton, S. Tong-Lee, and L.-M. Salter, "Characterization of proton exchange lithium niobate waveguides," *J. Appl. Phys.*, pp. 3981-3987, 1994.
- [19] W. E. Lee, N. A. Sanford, and A. H. Heuer, "Direct observation of structural phase changes in proton-exchanged LiNbO₃ waveguides using transmission electron microscopy," *J. Appl. Phys.*, vol. 59, pp. 2629-2633, 1986.
- [20] S. T. Vohra, A. R. Mickelson, and S. E. Asher, "Diffusion characteristics and waveguiding properties of proton-exchanged and annealed LiNbO₃ channel waveguides," *J. Appl. Phys.*, vol. 66, pp. 5161-5174, 1989.
- [21] Sang-Yun Yi, Sang-Yung Shin, Doo-Hyeb Yun, Yong-Sung Jin, and

- Tae-Kyung Yoo, "Proton-outdiffusion effects on the domain inversion during the heat treatment of proton-exchanged lithium tantalate," in *Tech. Dig. '94 IEEE/LEOS annual meeting*, 31 Oct. - 2 Nov., OM2.2, 1994, Boston, Massachusetts, U.S.A.
- [22] Sang-Yun Yi, Sang-Yung Shin, "Enhancement of domain inversion in LiTaO₃ using heat treatment with metal-oxide mask," *Electron. Lett.*, vol. 31, pp. 1234-1235, 1995.
- [23] A. Loni, G. Hay, R. M. De La Rue, and J. M. Winfield, "Proton-exchanged LiNbO₃ waveguides: the effects of post-exchange annealing and buffered melts as determined by infrared spectroscopy, optical waveguide measurements, and hydrogen isotopic exchange reactions," *IEEE J. Lightwave Technol.*, vol. 7, pp. 911-919, 1989.
- [24] C. W. Pitt, "Chemical etching of lithium niobate," *Properties of Lithium Niobate*, United Kingdom : INSPEC, London, pp. 227-229, 1989.
- [25] K. Mizuuchi, K. Yamamoto, and T. Taniuchi, "High-efficiency coupling of laser diodes in tapered proton-exchanged waveguides," *Electron. Lett.*, vol. 26, pp. 1992-1994, 1990.

 저 자 소 개



李相潤(正會員)

1967년 8월 17일생. 1989년 2월 중앙대학교 전자공학과 졸업(공학사). 1991년 2월 한국과학기술원 전기 및 전자공학과 졸업(공학석사). 1991년 2월 ~ 현재 한국과학기술원 전기 및 전자공학과 박사과정 재학중. 주관심 분야는 LiNbO₃ 및 LiTaO₃ 광도파로, 광변조기, 그리고 제2고조파 발생 소자 등임

申相永(正會員)

1946년 9월 14일생. 1968년 서울대학교 전기공학과 졸업(공학사). 1973년 Polytechnic Institute of New York, Brooklyn, NY, 전기물리 (M.S.). 1976년 Polytechnic Institute of New York, Brooklyn, NY, 전기물리 (Ph.D.). 1975년-1977년 Polytechnic Institute of New York, Brooklyn, NY, 연구원. 1978년 - 현재 한국과학기술원 교수. 1986년-1987년 Optical Science Center, University of Arizona, Visiting Scholar. 주관심 분야는 집적광학 소자, 레이저 다이오드의 동력학, 그리고 광연결 등임

陳勇盛(正會員)

1968년 9월 10일생. 1991년 2월 서강대학교 물리학과 졸업(이학사). 1993년 2월 서강대학교 물리학과 졸업(이학석사). 1993년~현재, LG 전자 기술원 소자 재료1실 주임연구원. 주관심 분야는 LiNbO₃ 및 LiTaO₃ 광도파로, 분극반전, 그리고 청색 제2고조파 발생 소자 등임