

KTP 단결정 성장 및 광학 특성에 관한 연구

이성국 · 김용훈 · 마동준 · 한재용 · 박성수 · 이상학
삼성종합기술원

Growth and Optical Property Characterization of KTP Crystal

S.K. Lee, Y.H. Kim, D.J. Ma, J.Y. Han, S.S. Park, S.H. Lee
Samsung Advanced Institute of Technology, Suwon 440-600, Korea

초 록 $K_6P_4O_{13}$ flux로부터 $30 \times 40 \times 70\text{mm}^3$ 크기의 inclusion이 없는 KTP 단결정을 성장시켰다. 성장된 KTP 결정의 SHG 출력 특성 측정 결과 위상정합각은 $\theta=90^\circ$, $\phi=23.3^\circ$ 이었고, ϕ 방향의 angular acceptance는 약 2° 이었다. KTP 결정내 굴절을 변화에 따른 위상정합각 편차는 최대 0.17° 까지 변화였다. 또한 Nd : YAG와 brewster plate를 채용한 내부공진형의 diode pumped SHG module에 KTP 결정을 삽입하여 20mW의 녹색 laser를 얻었다.

Abstract Potassium Titanyl Phosphate(KTP) crystals, $30 \times 40 \times 70\text{mm}^3$ without inclusions were grown from the $K_6P_4O_{13}$ flux using a temperature cooling method. According to SHG outpower measurement, phase matching angle is $\theta=90^\circ$, $\phi=23.3^\circ$ and angular acceptance of ϕ direction is about 2 degree, Deviation of phase matching angle due to index inhomogeneity in KTP crystal is 0.17 degree. A 20mW green laser was obtained with the combination of a intracavity Nd : YAG and KTP crystal.

1. 서 론

Potassium Titanyl Phosphate(KTiOPO₄; 이하 KTP)결정은 frequency doubler, optical parametric oscillator, waveguide devices에 유용한 물질로 용제(Flux)법이나 수열법(Hydrothermal)법으로 육성된다. 이는 KTP가 용점 아래에서 TiO₂와 KPO₃로 분해되기 때문에 용점에서의 육성은 할 수 없고, 용점아래에서 사용되는 이들 방법들이 KTP 단결정 성장법으로 주류를 이루어 왔다. 용제법은 수열법에 비해 장치와 방법이 간단하여 커다란 크기의 결정을 제조할 수 있다는 장점이 있고, 수열법은 저온 성장이 가능하여 결정내 굴절률 homogeneity가 좋다는 장점이 있어 두 방법상의 장단점이 비교되었으나 최근 수열법으로 $40 \times 50 \times 80\text{mm}^3$ 크기의 결정이 성장되고, SHG (Second Harmonic Generation)효율과 optical damage가 응용상의 중요 문제로 부각됨에 따라 KTP 결정은 성장방법보다 결정 quality와 재현성에 관심의 초점이 모아지고 있다.¹⁾

KTP 결정의 응용은 refractive index, index

uniformity, absorption이나 scattering에 의한 손실, 결정결합과 phase matching mechanism과 같은 micro optical 특성에 크게 달려있으며, 이들중 결정내 index inhomogeneity와 optical damage을 일으키는 graytrack 현상은 결정결합의 관점에서 집중 조사되고 있다. Philips사는 지난해부터 이들 현상에 대한 원인 분석을 시작했으며, Yokotani등이 용제법으로 성장한 KTP단결정으로 부터 광학적으로 균일한 소자를 얻기 위해서는 단일 growth sector내에서 소자를 제조해야 한다고 보고하였다.²⁾ Sasaki등은 KTP 결정내 각각의 growth sector안에서도 성장방향에 따라 굴절률의 불균일성이 존재하여 위상 정합각이 변화된다고 보고하고 있고³⁾, Lee등은 종자결정부근에서 광학적 불균일로 인해 SHG 출력이 감소한다고 보고하고 있다⁴⁾.

이에따라 본 연구에서는 용제법으로 KTP 단결정을 성장하고, 성장된 결정내의 굴절을 변화에 따른 위상정합각의 변화를 측정하였고, 내부 공진형의 diode pumped green laser module를 제작하였다.

2. 이 론

1. KTP 결정의 Type II 위상정합각

KTP 단결정의 Type II 위상 정합을 이용한 SHG에서는 X-Y면이 중요한데 이는 이방향에서 KTP 단결정의 비선형광학계수 d_{eff} 가 크고 walk-off angle이 작기 때문이다.⁵⁾ X-Y면에서 ϕ 의 함수로써의 굴절율과 Z축의 굴절율은 식 (1), (2)와 같다. 여기서 각 파장에 대한 굴절율은 $n_x > n(\phi)$ 이다.

$$n(\phi) = \frac{n_z \times n_x}{(n_x^2 \cos^2 \phi + n_z^2 \sin^2 \phi)^{1/2}} \quad (1)$$

$$n = n_x \quad (2)$$

한편 KTP에 대한 Type II 위상정합 조건은 식 (3)과 같다.

$$n^{2*}(\phi) = 1/2(n^*(\phi) + n^{*z}) \quad (3)$$

여기서 파장이 1064nm인 Nd : YAG laser를 KTP 단결정에 입사시킬 때 식 (1), (2), (3)과 KTP 결정의 파장에 따른 방위별 굴절율값을⁶⁾ 나타낸 표 1에 의해 위상정합각을 계산하면 $\theta = 90^\circ$, $\phi = 23.61^\circ$ 이다.

2. KTP 변환효율과 angular acceptance

KTP의 변환효율은 식(4)와 같이 나타내어진다.⁷⁾

$$\eta = \frac{P(2W)}{P(W)} = 2(\mu_0/\epsilon_0)^{3/2} \frac{w^2 d_{ijk}^2 L^2 P(w) \sin^2(\Delta k L/2)}{n^3 S(\Delta k L/2)^2} \quad (4)$$

여기서 $P(2w)$ 는 SHG power, $P(w)$ 는 기본파의 power, w 는 1064nm의 진동수, L 은 KTP의 길이, d_{ijk} 는 비선형 광학계수, n 은 굴절율, S 는 입사빔의 단면적이다. 식 (4)에서 변환효율은 sinc함수에 비례함을 알 수 있는데 $x = \Delta k L/2$ 로 두면 변환효율(η)은

$$\eta \propto (\sin x/x)^2 \quad (5)$$

가 된다. 여기서 $x=0$, 즉 $\Delta k=0$ 시 sinc 함수는 최대값을 나타낸다. $x=1.39$ 일 때 sinc 함수는 0.5가 되며, 이때 Δk 가 각도와 파장의 HWHM(Half Width Half Maximum)이 되고, 이의 2배가 FWHM(Full Width Half Maximum)으로 각각의 angular acceptance로 정의된다.⁵⁾ Fig. 1에 점선으로 나타낸 것이 식 (4)을 이용하여 KTP의 Nd : YAG laser에 대한 Type II 위상정합조건부근에서 각도 ϕ 에 따

Table 1. Refractive index of KTP crystal

	n_x	n_y	n_z
1064nm	1.7377	1.7453	1.8297
532nm	1.7780	1.7886	1.8887

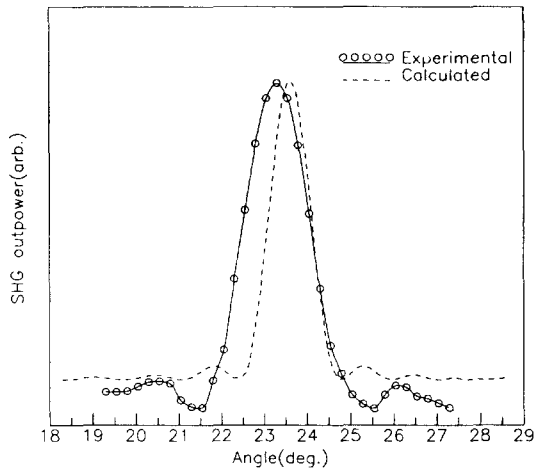


Fig. 1. SHG output power of KTP crystal according to angle(ϕ) change

른 SHG output power 변화로 최대 peak점을 나타내는 위상정합각과 이론적 angular acceptance을 알 수 있다. Angular acceptance는 1.2° 였고, 계산시 결정길이는 5mm, 굴절율값은 표 1를 사용했다.

3. 실험 방법

1. 단결정 성장

KTP 결정은 $K_2O-P_2O_5$ 계의 자체 flux를 사용하여 용제법의 일종인 TSSG(Top Seeded Solution Growth)법으로 성장하였고, 원료는 KH_2PO_4 (Johnson Matthey grade 1) K_2HPO_4 (시

Table 2. Crystal growth parameter

Crucible size	130mm ϕ × 130mmL.
Raw material system	$KH_2PO_4-K_2HPO_4-TiO_2$
Flux	$K_6P_4O_{13}$
KTP(g)/flux(g) ratio	0.6
Seed axis	b
Crystal rotation speed	70rpm
Growth period	≅ 1 month
Cooling rate	0.1 $^\circ$ C/hr
Temperature difference between seeding point and growth end point	≅ 60 $^\circ$ C

약급) 및 $TiO_2(99.99\%)$ 를 사용하였다. 결정 성장은 백금도가니에 원료를 충전하고 $1000^{\circ}C$ 에서 용융시켜 용융액을 혼합하고 성장, 냉각하는 순으로 하였다. 표 2에 결정성장시의 조건들을 나타냈고, 이 조건으로 성장한 결정의 모양을 Fig. 2에 나타냈다.

결정성장시 KTP와 Flux의 비를 0.6으로 하고 냉각속도를 $0.1^{\circ}C/hr$ 로 하면 한달간 결정 성장후 결정의 크기는 $30 \times 40 \times 70mm^3$ 이었고, 평균결정성장속도는 a축 $1.0mm/day$, b축 $1.2mm/day$, c축 $2.2mm/day$ 를 나타냈다. 성장된 결정은 육안으로 보이는 결함들이 없이 맑고 투명하였고, 잘 발달된 facet 모양을 갖추고 있다. 결정성장이 시작되고 완료될때까지의 성장과정을 보면 성장초기에 inclusions의 발생을 억제하기 위해 Fig. 3에 나타낸 것처럼 일정속도로 냉각하다가 일정온도에서 약 일주일 정도 등은 유지하고 이후 일정한 속도로 냉각하는 방법을 사용하여 완전한 결정을 얻었다.

2. KTP결정의 SHG출력 특성

비선형 단결정에서 최대 SHG output power는 위상정합이 되었을 때이며, 이 위상정합은



Fig. 2. As-grown KTP crystal

KTP결정의 온도와 방위의 함수이다. 본 실험에서 KTP결정의 SHG 출력 특성시 온도는 상온($25^{\circ}C$)으로 고정하였고, 방위는 typeII 위상정합각도 부근인 $\theta=90^{\circ}$, $\phi=23.3^{\circ}$ 로 하였으며 최종 시편의 두께를 5mm로 절단한 후 polishing하여 측정시편으로 하였다. 측정시 사용된 장치의 개략도를 Fig. 4에 나타냈다. TypeII 위상정합각도를 중심으로 ϕ 각도를 0.25° 씩 변화시키면서 Nd:YAG laser를 이용하여 각도변화에 따른 SHG출력특성과 최대 SHG output power를 측정하였다.

4. 결과 및 고찰

1. 위상정합각과 angular acceptance

앞서 나타낸 Fig. 1에 위상정합각의 계산에 의한 이론값과 실제 측정값을 비교하여 나타냈다. 그림에서 실선은 실험으로 측정한 ϕ 값 변화에 따른 SHG 곡선으로 o표시가 측정값을 나타내고 점선은 이론 모의 실험 결과이다. 그림에서 보듯 각도 변화에 따른 SHG 출력특성이 이론값과 동일하게 전형적인 gaussian분포를 이루고 있으나 실제 실험결과 SHG 출력은 이 이론각도인 $\theta=90^{\circ}$, $\phi=23.61^{\circ}$ 에서

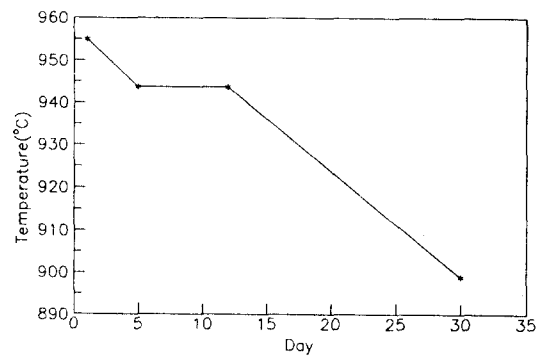


Fig. 3. Temperature colling schedule for crystal growth

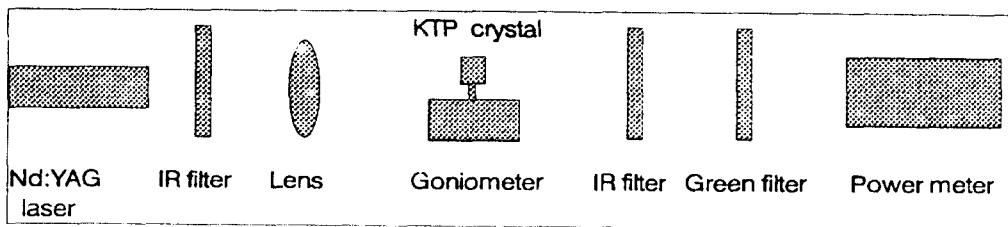


Fig. 4. The measuring system of SHG output power according to angle change

최대가 되지 않고 $\Theta=90^\circ$, $\phi=23.3^\circ$ 에서 최대이었다. 이는 성장된 KTP 결정의 굴절율이 이론적 계산에 사용된 굴절율값과 다르다는 것을 의미한다. 또한 Type II 위상정합조건에서 각도 ϕ 방향에 따른 이론적 angular acceptance와 실제측정 값과도 달랐다. 이론적 angular acceptance는 1.2° 였고 실제 측정된 angular acceptance는 약 2° 이었다. 이값은 앞서 계산된 이론값보다는 크지만 여전히 각도 변화에 SHG효율이 민감하게 변화함을 알 수가 있다.

2. KTP결정내 위상정합각의 변화

KTP결정내 굴절을 변화에 따른 위상정합각의 변화를 측정하고자 성장된 결정을 type II 위상 정합 각도로 절단하고 polishing한 후 결정내를 Nd : YAG laser로 scan하면서 SHG 출력을 측정하였다. Fig. 5(a)는 측정된 결정 시료를 확대하여 그린 것으로 o은 측정점을

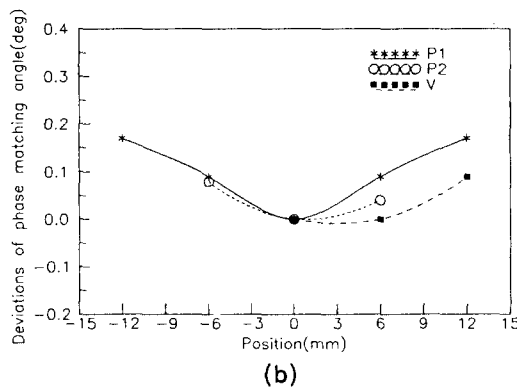
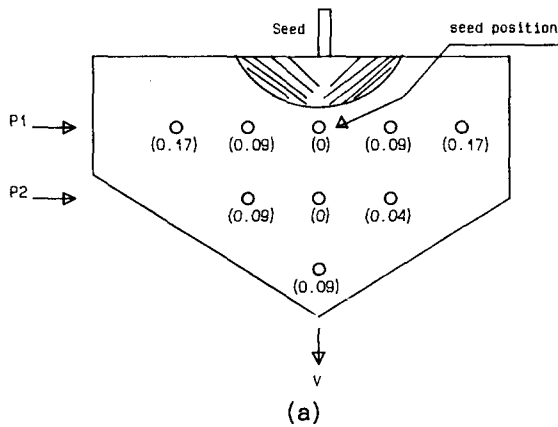


Fig. 5. (a) A schematic drawing of measured sample (b) Deviations of phase matching angle in KTP crystal Distance between the measured points is 6mm. Zero means the seed position(standard point).

나타내며, 종자위치(seed position)를 기준점으로 하였다. 각 측정점아래 괄호안의 수치는 기준점과의 위상정합각 편차를 나타낸다. 그림에서 P방향은 c축 방향이고, V는 이에 수직인 방향이다. Fig. 5(b)는 이 수치를 도식화한 것으로 P방향의 위상정합각 편차는 우물 모양으로 성장방향을 경계로 어느 정도 대칭성을 보이고, V방향은 한 방향으로만 편차를 나타낸다. 이는 결정이 성장될 수록 굴절을 변화가 심화되고, 같은 시기에 성장되는 결정 부위에서는 거의 같은 위상정합각 편차를 나타냄으로 보아 굴절을 변화가 이에 상응하여 변화되는 것으로 판단된다. 그리고 P방향의 위상정합각 편차는 최대 0.17° , V방향은 0.09° 로 Sasaki paper의 0.38° 보다 적어 결정내 index uniformity가 양호함을 알 수 있다.

한편 이와같이 제조된 KTP 결정을 $1.7 \times 1.7 \times 5 \text{mm}^3$ 의 소자로 만들어 Nd : YAG와 KTP를 사용하는 내부공진형의 diode pumped SHG module을 제작하였다. Module에 사용된 diode laser는 파장 809nm로 출력을 450mW로 할때 Nd : YAG laser의 출력이 약 150mW 정도이었고, KTP결정을 통해 나오는 532nm의 green laser 순간 peak power는 약 20mW이었다.

5. 결 론

- 1) $\text{K}_6\text{P}_4\text{O}_{13}$ 용제를 사용하여 KTP 단결정을 성장한 결과 $30 \times 40 \times 70 \text{mm}^3$ 크기의 맑고 투명한 결정을 얻었다.
- 2) 각도변화에 따른 SHG 출력특성측정결과 위상정합각은 $\Theta=90^\circ$, $\phi=23.3^\circ$ 이었고, ϕ 방향의 angular acceptance는 약 2° 이었다.
- 3) 결정내 굴절을 변화에 따른 위상정합각 편차는 최대 0.17° 로 양호한 index uniformity를 나타냈다.
- 4) Nd : YAG와 KTP를 사용하는 내부공진형의 diode pumped SHG module을 제작하여 20mW의 녹색 laser를 얻었다.

참 고 문 헌

1. R.F. Belt and T. Iradi, Laser Focus World 11, 155(1993)
2. A. Yokotani, A. Miyamoto, T. Sasaki and S. Nakai, J. Cryst. Growth, vol. 110, 963

- (1991)
3. T. Sasaki, A. Miyamoto, A. Yokotani and s. Nakai, J. Cryst. Growth, vol. 128, 950 (1993)
 4. J.Y. Han, S.K. Lee, D.J. Ma, Y.H. Kim, S. S. Park and S.H. Lee, 한국결정성장학회지, vol. 4, 76(1994)
 5. K. Asaumi and T. Orito, Optronics, No. 6, 206(1992)
 6. Catalogue of F. Castech
 7. A. Yariv and P. Yeh, Optical waves in crystals, John Wiley and Sons, Inc., Chap. 12(1984)