

제2고조파발생을 이용한 LiNbO₃의 주요 광굴절상수측정

김봉기 · 이범구[†]

서강대학교 물리학과

⑨ 121-742 서울시 마포구 신수동 1번지

(2001년 4월 6일 받음, 2001년 5월 10일 수정본 받음)

반전대칭이 없는 광굴절결정에 있어 위상접합이 민족되지 않은 상태에서 발생된 제2고조파의 세기가 외부전기장에 의존한다는 사실을 이용하여 광굴절결정의 광굴절률을 변형현상에 관한 중요상수를 측정할 수 있는 방법을 개발하였다. 마커무늬의 전기장의존도에 관한 근사식을 구하였고, 이를 이용하여 제2고조파의 세기변화로부터 공간전하장의 크기를 측정할 수 있었다. 실험적으로 congruent LiNbO₃에 빛을 두가지 다른 세기로 비추어 유도되는 공간전하장의 시간의존성을 조사하였고, 측정결과를 근사식과 비교분석하여 LiNbO₃의 광기전력상수, 암전도상수 및 광전도상수를 결정할 수 있었다.

분류코드 : NL.010, OM.010, IP010.

I. 서 론

광굴절결정 LiNbO₃는 부피홀로그램을 통한 대용량의 광정보저장, 광영상처리 및 광영상증폭 등을 구현하는데 높은 가능성을 갖고 있는 결정으로 알려졌다.^[1] 광굴절결정에서 빛에 의하여 유도되는 굴절율변화의 크기과 속도는 광기전력상수와 광전도상수에 주로 좌우되므로 광기전력상수와 광전도상수는 광굴절현상을 이해하는데 가장 중요한 물질상수이다.^[2-7] 특히 광전도도의 경우 빛이 비추어진 상태에서 결정을 통해 흐르는 전류를 직접측정하거나, 혹은 이광파호합실험을 통하여 광굴절율격자를 기록하는데 있어 격자기록시간상수 또는 지음시간상수를 분석하여 측정하여 왔다.^[8-11] 전자의 방법은 결정을 통하는 전류의 미약성으로 좋은 전극제작의 난점이 있으며, 후자의 경우에는 비교적 복잡한 실험장치가 요구될 뿐 아니라 전자들의 확산효과나 기록광들사이의 간섭효과들이 포함될 수 있어 정확한 전도상수를 얻기위하여 세심한 분석이 요구되는 것으로 알려졌다.^[9] 이상의 방법과는 다르게 MgO가 0.65 mole% 첨가된 LiNbO₃는 1.064 μm과장빛의 입사에 대하여 상온에서 위상정합이 민족된 제2고조파발생(noncritically phase-matched second harmonic generation)이 일어난다는 사실과 발생된 제2고조파의 빛의 세기가 직류전기장에 민감하게 의존함을 이용하여 결정내부에 유도되는 공간전하장을 직접적으로 측정하였고, 이로부터 MgO가 0.65mole% 첨가된 LiNbO₃의 광기전력상수와 광전도상수를 정확하게 측정할 수 있음을 증명하였다.^[12]

본 연구에서는 위상정합이 민족되지 않는 조건하에서 발생되는 제2고조파도 직류전기장에 민감하게 의존하며 이 사실을 이용하여 광굴절결정의내에 유도되는 공간전하장을 측정할 수 있고, 따라서 반전대칭이 없는 어떤 광굴절결정에 대하여

여서도 제2고조파 발생을 이용하여 광기전력상수와 광전도상수를 측정할 수 있음을 보이고자 한다. 실제로 제시된 방법을 이용하여 congruent LiNbO₃의 주요 광굴절상수를 측정하였으며, 본 방법은 LiNbO₃에 다양한 종류의 원소와 농도로 첨가된 다양한 LiNbO₃결정연구^[13]에 널리 적용할 수 있다.

진동수 ω 의 기본파가 입사하여 제2고조파가 발생할 시 대부분의 경우 위상정합조건은 민족되지 않으며 민밀 이때 결정을 투과해 나오는 진동수 2ω 로 진동하는 제2고조파세기(P_{sh})는 기본파의 입사각(θ)의 함수로 진동하며 이와같은 특성을 마커무늬라 부른다. 마커무늬의 정량적 표현은 다음과 같다.^[14]

$$P_{sh}(\theta) = F(n_1, n_2(\theta), d_e(\theta)) P_\omega^2 \sin^2 \left[\frac{2\pi L}{\lambda} (n_1 \cos \theta_1 - n_2 \cos \theta_2) \right] \quad (1)$$

여기서 F 는 마커무늬덮개함수, n_1 과 n_2 는 진동수 ω 와 2ω 에서의 물질의 굴절률, d_e 는 효과 2차비선형 광학계수, P_ω 와 λ 는 기본파의 세기와 공기중에서의 파장, L 은 시료의 길이, θ_1 와 θ_2 는 시료내에서 기본파와 제2고조파의 굴절각이다. LiNbO₃는 type I의 제2고조파발생^[15]에 중요하므로 기본파와 제2고조파의 편광은 각각 정상과 비정상방향을 갖게되며, 따라서 $n_2(\theta_2)$ 는 비정상굴절률로 θ_2 에 따라 변하며 제2고조파의 정상굴절률 $n_o(2\omega)$ 와 비정상굴절률 $n_e(2\omega)$ 로 부터 결정되는 복굴절 타원방정식^[15]으로부터 결정된다. 특히 F 는 식(1)의 오른쪽에 있는 sine제곱함수와 비교해 볼때 θ 의 변화에 따라 천천히 변하는 함숫이므로 작은 각도변화범위에서 다음과 같이 근사적 으로 나타낼 수 있다.

$$F = \text{constant} \times t_\omega^4 T_{2\omega} |d_e(\theta)|^2 \frac{1}{(n_1 - n_2)^2} \quad (2)$$

여기서 기본파의 편광이 입사면에 수직한 경우(s-편광)에는 $t_\omega = 2\cos\theta / (n_1\cos\theta_1 + \cos\theta)$, 또 $T_{2\omega} = 2n_2\cos\theta_2(n_1\cos\theta + \cos\theta_1) / (n_2\cos\theta_1 + n_1\cos\theta_2) / (n_2\cos\theta_2 + \cos\theta)^3$ 이다.

[†]E-mail: brhee@ccs.sogang.ac.kr

식 (1)과 (2)에서 n_1 과 n_2 는 직류전기장에 의존하므로 P_{sh} 은 주워진 입사각 θ_o 에서 직류전기장(E)의 함수로 다음과 같이 근사적으로 나타낼 수 있다.

$$P_{sh} \propto \frac{1}{[\delta n^o + (\gamma_1 - \gamma_2)E]^2} \times \sin^2 \left[\phi_o + \frac{2\pi L}{\lambda} \left(\frac{n_1 \gamma_1}{\sqrt{n_1^2 - \sin^2 \theta_o}} - \frac{n_2 \gamma_2}{\sqrt{(n_2^o)^2 - \sin^2 \theta_o}} \right) E \right] \quad (3)$$

$$\text{여기서 } \delta n^o = n_1 - n_2^o, \quad \gamma_1 = \frac{\partial n_1}{\partial E}, \quad \gamma_2 = \frac{\partial n_2}{\partial E} \Big|_{\theta=\theta_o}, \quad \phi_o = \frac{2\pi L}{\lambda}$$

$(\sqrt{n_1^2 - \sin^2 \theta_o} - \sqrt{(n_2^o)^2 - \sin^2 \theta_o})$ 이며 n_2^o 는 $\theta = \theta_o$ 에서 제2고조파에 대한 굴절율이다. 특히 입사각이 거의 수직에 가까울 경우 $\sin \theta_o \ll n_1, n_2$ 가 성립하며, $\delta n^o \gg (\gamma_1 - \gamma_2)E$ 인 경우 식 (3)은 다음과 같이 더욱 간단히 나타낼 수 있다.

$$P_{sh} \propto \frac{1}{[\delta n^o]^2} \times \left(1 - \frac{2\Gamma E}{\delta n^o} \right) \sin^2 \left(\phi_o + \frac{2\pi L}{\lambda} \Gamma E \right) \quad (4)$$

여기서 $\Gamma = \gamma_1 - \gamma_2$ 이며 물질의 전기광학계수이다. 이 결과로부터 $\delta n^o, \Gamma$ 및 ϕ_o 를 안다면 위상정합이 만족되지 않는 상태에서 발생되는 제2고조파 세기변화로 부터 E 을 알 수 있다.

한편 광굴절결정에 확산효과가 배제되도록 균일한 빛세기분포를 갖는 빛을 비추면 내부에 공간전하장 E_{sc} 이 빛의 노출시간의 함수로 다음과 같이 유도됨이 알려졌다.^[16]

$$E_{sc}(t) = E_{sat} \left[1 - \exp \left(\frac{t}{T_o} \right) \right] \quad (5)$$

여기서 E_{sat} 과 T_o 는 포화 공간전하장과 유전율이완시간 (dielectric relaxation time)이며, 이들의 구체적 표현은 각각 다음과 같다.

$$E_{sat} = \frac{pI}{\sigma}, \quad T_o = \frac{e}{\sigma} \quad (6)$$

여기서 p 는 광기전력상수이며, I 는 공간전하장을 유도하는 기록광의 세기, σ 는 전도도, 또 e 은 유전상수이다. 일반적으로 σ 는 암전도도(σ_d)와 빛세기 I 에 비례하는 광전도도($\sigma_p = SI$)의 합으로 $\sigma = \sigma_d + \sigma_p$ 이다. 따라서 만일 광굴절결정에 제2고조파를 발생하도록 한 상태에서 E_{sc} 가 유도되면 제2고조파빛의 세기가 변화 할 것이며 식 (4)를 이용하여 E_{sc} 를 측정할 수 있게 된다.

본 연구에서는 congruent LiNbO₃의 광굴절상수를 제시된 방법으로 측정하여 보았다. LiNbO₃는 a 및 b축(광축)방향으로 $1.54 \times 10 \times 4.6$ mm³의 길이를 갖는 직육면체로 만들어 c-축에 수직한 면을 1/4파장이하로 연마하여 사용하였다. E_{sc} 을 측정하기 위한 실험장치도를 그림 1에 나타내었다. 광굴절을 변화를 일으키는 공간전하장은 파장 $\lambda = 514.5$ nm의 Ar-ion 레이저빛(기록광)을 결정면에 수직하게 입사시켜 유도하였다. 기록광은 균일한 빛세기조건으로 공간전하장이 유도될 수 있도록 하기 위하여 빛살의 직경을 2.5 mm 정도의 크기로 확대시켜 사용하였다. 기록광의 편광과 진행방향은 c와 a-축에 각각 나란하게 하였다. 제2고조파 발생을 위하여 기본파광원으로 연속출력 다이오드레이저로 펌프한 Nd:YVO₄ 레이저(탐사광)를 사용하였고 파장은 1064 nm이였다. 탐사광은 20 cm 초

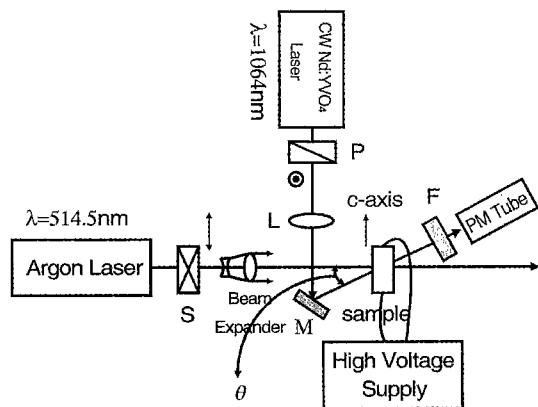


그림 1. 제2고조파발생을 이용한 공간전하장 측정 장치도. P: polarizer, L: lens, S: shutter, M: mirror, F: band-pass filter (532 nm와 1064 nm에서 각각 60% 및 0%의 투과율).

점거리를 갖는 볼록렌즈로 집광하여 빛살의 직경이 35 μm 정도로 작게 만들어 기록광의 중심에서 공간전하장의 변화를 측정하도록 하였다. 탐사광의 편광방향은 광축에 수직하게 하여

Type I 제2고조파 발생조건을 만족하도록 하였다. 발생된 제2고조파는 광증배관(photonmultiplier tube)으로 감지하였으며 광증배관앞에 기본파를 차단하는 필터를 사용하여 제2고조파만을 검지 하였다. 본 실험에서 발생하는 제2고조파의 세기는 위상정합이 만족되지 않는 상태에서 만들어지는 제2고조파로 그 크기가 매우 작아 제2고조파발생에 따른 기본파의 에너지감소나 발생된 제2고조파에의한 광굴절변화는 무시할 수 있음을 실험적으로 확인 할 수 있었다.

우선 그림 2에 상온에서 전혀 광굴절변形이 없는 LiNbO₃로부터 발생한 제2고조파의 세기를 기본파의 입사각의 함수로 측정한 결과를 원형으로 나타내었으며 전형적인 마커무늬의 특성을 보여주고 있다. 실선은 식 (1)을 이용하여 곡선맞춤으로 최소편차를 주는 계산결과로, 이 결과를 얻기 위하여 필요한 두 굴절율의 수치는 이미 발표된 값인 $n_1 = 2.2322$ 과 $n_2(2\omega) = 2.3231$ ^[17]을 이용하였으며 $n_e(2\omega)$ 값은 최적맞춤조건으

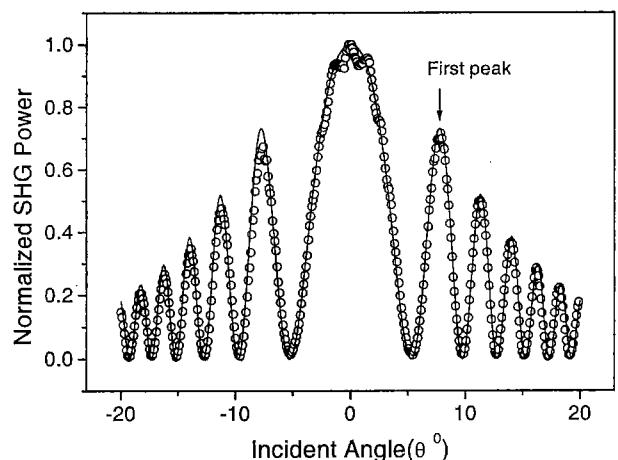


그림 2. LiNbO₃의 마커무늬; 제2고조파세기의 입사각 의존특성. 실선은 이론적 최적 맞춤곡선.

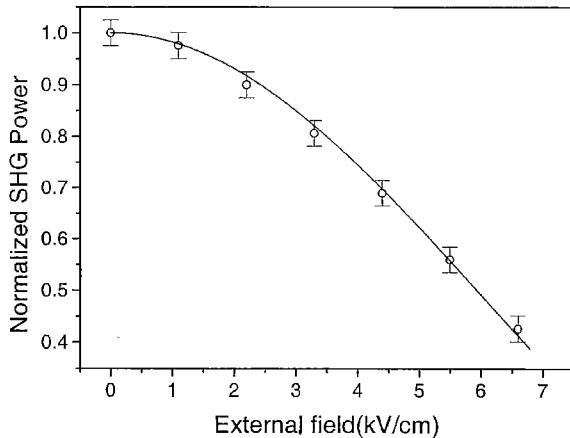


그림 3. 고정된 입사각 $\theta = 8^\circ$ 에서 제2고조파세기의 직류전기장의 존특성, 실선은 이론적 최적 맞춤곡선.

로 결정될 수 있으며 $n_e(2\omega) = 2.2337$ 이었다. 실험결과와 이론 맞춤곡선이 잘일치 함을 알 수 있으며 0° 근방의 작은 크기의 봉우리는 결정의 두면사이에서 제2고조파의 디중반사에 의한 간섭에 기인한다.

다음으로 입사각을 마커무늬의 첫극대(first peak)가 일어나는 $\theta_o = 8^\circ$ 에 고정시키면 $\phi_o = m\pi + \pi/2$ 가 성립되므로 식 (4)의 발생되는 제2고조파세기의 직류전기장의 존함수는 다음과 같이 더욱 간단하게 된다.

$$P_{sh} = P_{sh}^{1st} \left(1 \pm \frac{2\Gamma E}{\delta n^o} \right) \cos^2 \left(\frac{2\pi L}{\lambda} \Gamma E \right) \quad (7)$$

여기서 P_{sh}^{1st} 는 전기장의 영향이 전혀 없을때의 제2고조파의 첫 극대 세기이며 전기장계수앞의 부호는 LiNbO_3 의 경우 전기장이 자발분극방향과 같은 방향이면 '+'이고 반대방향이면 '-'가 된다. 본 실험에서는 $\theta_o = 3.4^\circ$ 로 복굴절타원방정식으로부터 $\delta n^o = 2.32 \times 10^{-3}$ 임을 알 수 있으며 따라서 P_{sh} 의 전기장의 존도를 측정하여 식 (7)과 비교하면 Γ 를 결정할 수 있다. 공간전하장은 항상 자발분극방향으로 유도되므로 외부전기장의 방향을 자발분극방향과 같은 방향으로 걸었으며, P_{sh} 의 변화를 직류전기장의 함수로 측정한 후 해당 측정값을 P_{sh}^{1st} 으로 나눈 결과를 그림 3에 원형으로 나타내었으며 실선은 식 (7)을 이용하여 최적맞춤으로 구한 곡선이다. 이 맞춤을 통하여 $\Gamma = (1.4 \pm 0.2) \times 10^{-5} \text{ cm/kV}$ 임을 알 수 있었다. 그림 3의 결과에서 전기장은 실험상의 제약으로 6.5 kV/cm 이상으로 높게 하지는 못하였다.

마지막으로 Ar-ion레이저빛을 일정한 세기로 결정면에 수직하게 비추며 유도되는 E_{sc} 로 인하여 $\theta_o = 8^\circ$ 로 입사된 기본파에의하여 발생되는 P_{sh} 의 변화를 Ar-ion레이저빛살의 노출시간의 함수로 측정하였고 그 결과를 그림 4에 $I = 1.6 \text{ W/cm}^2$ 인 경우는 원형, $I = 3.2 \text{ W/cm}^2$ 인 경우에는 사각형으로 각각 나타내었다. 유도되는 공간전하장의 방향은 알려진 바와같이 자발분극과 같은 방향이였다.

다시 그림 4의 노출시간에 따른 P_{sh} 변화관계를 식 (7)과 결정된 Γ 값을 이용하여 해당하는 공간전하장으로 변환할 수

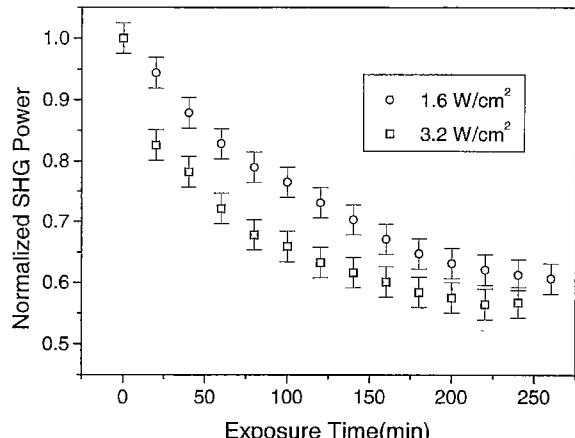


그림 4. Ar-ion 레이저 빛의 노출시간에 따른 제2고조파세기 변화(원형: $I = 1.6 \text{ W/cm}^2$, 사각형: $I = 3.2 \text{ W/cm}^2$).

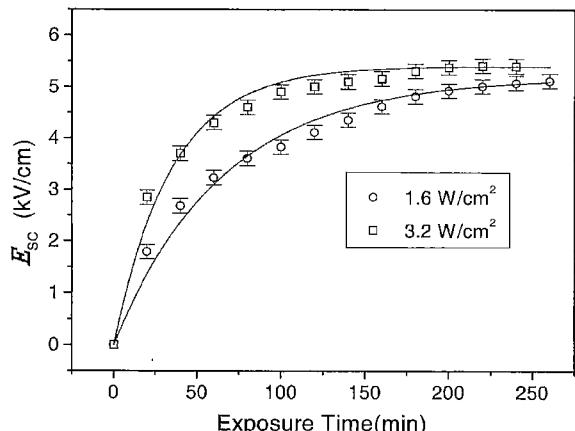


그림 5. Ar-ion 레이저 빛의 노출시간에 따른 E_{sc} 의 변화(원형: $I = 1.6 \text{ W/cm}^2$, 사각형: $I = 3.2 \text{ W/cm}^2$).

있으며, 그 결과를 그림 5에 $I = 1.6 \text{ W/cm}^2$ 인 경우는 원형, $I = 3.2 \text{ W/cm}^2$ 인 경우에는 사각형으로 나타내었다. 이 결과로 부터 E_{sc} 는 노출시간에 따라 지수함수로 증가하며 일정한 값으로 포화한다는 사실을 알 수 있다. 이 실험결과에 대하여 다시 식 (5)를 이용한 최적 곡선맞춤을 통하여 각 노출광세기에 해당하는 T_o 와 E_{sat} 을 결정할 수 있으며 그 결과를 표 1에 나타내었다. 두 서로 다른 I 에 대하여 E_{sat} 가 완전히 같지 않음을 알 수 있는데 이는 본 실험조건에서 전도도는 빛세기에 비례하는 σ_p 만 기여하는 것이 아니라 암전도도 σ_d 도 관계함을 뜻하며 표 1의 T_o 와 E_{sat} 의 수치들을 식 (6)에 대입하여 σ_d , σ_p 와 p 값을 결정할 수 있다. 그 결과로 LiNbO_3 의 경우 $\sigma_d = (4.2 \pm 0.5) \times 10^{-16} (\Omega\text{cm})^{-1}$, $I = 1.6 \text{ W/cm}^2$ 에서 $\sigma_p = (4.4 \pm$

표 1. 두 다른 Ar-ion 레이저 빛세기에 따른 LiNbO_3 의 T_o , E_{sat} 및 σ 값

I W/cm^2	T_o min	E_{sat} kV/cm	$\sigma = \sigma_d + \sigma_p$ $\times 10^{-16} (\Omega\text{cm})^{-1}$
1.6	55 ± 6	5.2 ± 0.3	8.6 ± 0.9
3.2	36 ± 4	5.4 ± 0.3	13 ± 1.4

$0.5 \times 10^{-16} (\Omega\text{cm})^{-1}$ 및 $p = (2.5 \pm 0.4) \times 10^{-12} \text{ A/W}$ 임을 결정 할 수 있었다.

결론적으로 본연구에서는 위상정합이 만족하지 않는 조건에서 발생하는 제2고조파의 빛세기와 직류전기장사이의 정량적 관계식을 유도하였으며 이를 이용하여 광굴절 결정내에 기록 빛에 의하여 유도되는 공간전하장을 측정 할 수 있는 방법을 확립하였다. 이 방법을 congruent LiNbO₃에 적용하여 LiNbO₃의 광기전력상수 $p = 2.5 \pm 10^{-12} \text{ A/W}$ 임을 측정 할 수 있었다. 특히 기록빛의 세기가 충분히 약한 조건에서는 광전도뿐 아니라 암전도도 광굴절변화의 속도에 관여함을 알 수 있었으며, 이로 인하여 광전도도와함께 암전도도까지 결정할 수 있었다. 본 광굴절상수 측정방법은 실험장치와 분석방법이 기존의 다른방식과 비교해 볼때 상대적으로 간단한 이점을 갖고 있으며 이로 인하여 중요 광굴절 상수들을 정확하게 측정 할 수 있다.

감사의 글

이 연구는 2000년도 서강대학교 교내연구비 지원에 의하여 이루어졌음.

참고문헌

- [1] P. Günter and J.-P. Huignard (eds.): *Photorefractive Materials and Applications I and II, Topics Appl. Phys.* vol. 61, 62 (Springer-Verlag, Berlin, 1988, 1989).
- [2] A. M. Glass, D. von der Linde, and T. J. Negran, "High-voltage bulk photovoltaic effect and photorefractive process in LiNbO₃," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 21, no. 4, pp. 233-235, 1974.
- [3] W. Jösch, R. Munser, W. Ruppel, and P. Würfel, "The photovoltaic effect and the charge transport in LiNbO₃," *Ferroelectrics*, vol. 21, pp. 623-625, 1978.
- [4] J.-K. Wen, L. Wang, Y.-S. Tang, and H. Wang, "Enhanced resistance to photorefraction and photovoltaic effect in Li-rich LiNbO₃:Mg crystals," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 53, no. 4, pp. 260-261, 1988.
- [5] J.-K. Wen, L. Wang, Y.-S. Tang, W. Hong, Y. Zhu, and H. Wang, "Photovoltaic effect and photorefraction in LiNbO₃:Mg crystals," *Ferroelectrics*, vol. 101, pp. 299-301, 1990.
- [6] F. Jermann and E. Krötzig, "Charge transport processes in LiNbO₃: Fe at high intensity laser pulses," *Appl. Phys. A*, vol. 55, pp. 114-118, 1992.
- [7] Y. Furukawa, K. Kitamura, S. Takekawa, K. Niwa, and H. Hatano, "Stoichiometric Mg:LiNbO₃ as an effective material for nonlinear optics," *Opt. Lett.*, vol. 23, no. 24, pp. 1892-1894, 1998.
- [8] C.-T. Chen, D.M. Kim, and D. von der Linde, "Efficient hologram recording in LiNbO₃: Fe using optical pulses," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 34, no. 5, pp. 321-324, 1979.
- [9] K. Buse, "Light-induced charge transport processes in photorefractive crystals I: Models and experimental methods," *Appl. Phys. B*, vol. 64, pp. 273-291, 1997.
- [10] R. Göring, Z. Yuan-Ling, St. Steinberg, "Photoconductivity and photovoltaic Behaviour of LiNbO₃ and LiNbO₃ waveguides at high optical intensities," *Appl. Phys. A*, vol. 55, pp. 97-100, 1992.
- [11] 이재철, 장지웅, 김준태, 신승호, "LiNbO₃:MgO결정에서 광굴절 격자의 회절 특성," *한국광학회지*, vol. 10, no. 5, pp. 391-395, 1999.
- [12] B. G. Kim, B. K. Rhee, and M. Cha, "Simple Measurement of space-charge field in a LiNbO₃ crystal doped with 0.65 mol.% MgO using second harmonic generation," *Opt. Comm.*, vol. 173, pp. 377-380, 2000.
- [13] G. Zhang, G. Zhang, S. Liu, J. Xu, Q. Sun, and X. Zhang, "The threshold effect of incident light intensity for the photorefractive light-induced scattering in LiNbO₃:Fe, M(M = Mg²⁺, Zn²⁺, In³⁺ crystals)," *J. Appl. Phys.*, vol. 83, no. 8, pp. 4392-4396, 1998.
- [14] J. Jerphagnon and S. K. Kurtz, "Maker fringes: A detailed comparison of theory and experiment for isotropic and uniaxial crystals," *J. Appl. Phys.*, vol. 41, no. 4, pp. 1667-1681, 1970.
- [15] R.W. Boyd, *Nonlinear Optics*, (Academic Press, New York, 1992), Sec. 2.7.
- [16] R. Grousson, M. Henry, S. Mallick, and S. L. Xu, "Measurement of bulk photovoltaic and photorefractive characteristics of iron doped LiNbO₃," *J. Appl. Phys.*, vol. 54, no. 6, pp. 3012-3016, 1983.
- [17] R.C. Eckardt, C.D. Nabors, W.J. Kozlovsky, and R.L. Byer, "Optical parametric oscillator frequency tunning and control," *J. Opt. Soc. Am. B*, vol. 8, no. 3, pp. 646-667, 1991.

Determination of photorefractive constants in LiNbO₃ using second harmonic generation

Bong Gi Kim and Bum Ku Rhee[†]

Department of Physics, Sogang University, Seoul 100-611, KOREA

[†]E-mail: brhee@ccs.sogang.ac.kr

(Received April 6, 2001 ; Revised manuscript received May 10, 2001)

We report a simple method for determining photovoltaic constant and conductivities of any photorefractive crystals which have no inversion symmetry by utilizing the electric field dependence of non-phase-matched second harmonic generation. New theoretical expression for the electric field dependence of Maker fringes is derived and space charge field can be determined using this from the observed change of intensity of second harmonic wave. The photovoltaic constant, dark conductivity and photoconductivity are easily deduced from an analysis of the measured relaxation behavior of space-charge field at two different light intensities. We demonstrate this method for LiNbO₃ at 514.5 nm.

Classification codes : NL.010, OM.010, IP.010.