

Nd:LSB 마이크로 칩 레이저 연구

장원권†

한서대학교 컴퓨터응용물리학과

Ⓣ 356-706 충남 서산시 해미면 대곡리 360번지

김태훈 · 유영문

한국광기술원

Ⓣ 500-210 광주시 북구 본촌동 459-3

(2002년 9월 11일 받음, 2002년 12월 2일 수정본 받음)

초소형 마이크로 칩 형태의 새로운 레이저 매질인 Nd:LSB($\text{Nd}^{3+}:\text{LaSc}_3(\text{BO}_3)_4$, lanthanum scandium borate)를 Czochralski pulling method에 의해 성장하여 광학 특성 조사 및 레이저 발진 실험을 하였다. 광학적, 화학적, 역학적 특성을 모두 그대로 유지한 채 높은 농도로 Nd^{3+} 이온의 도핑이 가능한 Nd:LSB의 결정 특성 및 광학 특성을 기존의 다른 Nd형 레이저 매질과 비교하고, 흡수 및 형광 스펙트럼과 형광 수명 등을 조사하였으며, 결정 구조를 분석하였다. 또한 Ti:sapphire 레이저를 펌핑 광원으로 하였을 때 레이저 발진 특성을 조사하였다.

주제어 : Nd:LSB, microchip laser.

I. 서 론

반도체 산업의 급속한 발달에 힘입어 다이오드 레이저 펌핑 고체레이저는 그 간결함과 효율성으로 꾸준히 연구되어오고 있다. 상대적으로 다른 이온에 비해 높은 펌핑광의 흡수효율을 가지는 Nd^{3+} 도핑 고체 매질은 높은 열 전달계수와 함께 광학적, 역학적 성질이 뛰어나 가장 널리 쓰이고 있지만, 원천적으로 낮은 도핑률 때문에 마이크로 레이저 매질로서 사용되기 어렵다.^[1] 즉, Nd^{3+} 이온은 그 크기가 Y^{3+} 이온 크기와 비교해 반경이 3% 정도 크므로 YAG(yttrium aluminum garnet) 내의 결정 조직에 원만히 삽입되지를 않는다. 최근의 몇몇 연구결과는 Nd:YAG도 열속성법, 플럭스법, 에피택시얼 박막법, 세라믹 기법 등을 이용할 경우 도핑률을 3.0~6.8%까지도 높일 수 있으며, 그 광학특성이 기존의 Czochralski method에 의해 성장된 결정에 비해 같거나 더 우수하다고 하지만 여전히 결정 성장의 어려움과 성장된 결정의 크기에 있어 제한이 있다.^[2,4] 그러므로 Nd형 마이크로 칩 레이저를 만들기 위해 높은 도핑률에도 불구하고 광학적 특성과 높은 효율성을 유지할 수 있는 새로운 결정에 대한 연구가 필요하다.

Nd:LSB(enodymium doped lanthanum scandium borate, $\text{LaSc}_3(\text{BO}_3)_4$)는 이러한 점에서 주목받는 물질이다. Nd^{3+} 이온은 호스트 물질인 LSB의 광학적, 역학적 특성을 거의 그대로 유지한 채 100%까지도 La^{3+} 이온과 교체가 가능하다. 더군다나 Nd형 레이저의 전형적인 펌핑 파장인 808 nm에서의 흡수 띠의 폭도 3 nm 정도로 넓으며, 낮은 농도 표백(concentration quenching) 때문에 마이크로 칩 레이저로서 적합하다.

본 연구에서는 Nd:LSB 결정을 성장하여 구조를 해석하고, 흡수 및 형광 스펙트럼을 조사하였으며, 다른 Nd 형 레이저 매질과 비교하여 마이크로 칩 레이저 매질로서의 가능성을 알아보았다. 형광 수명 조사와 기본적인 레이저 발진 실험을 통해 초소형 고밀도 집적 레이저 매질로서 새로운 매질인 Nd:LSB의 특성을 분석하고 논하였다.

II. Nd:LSB

Nd:LSB는 기본적으로 육방정계의 결정구조를 가지고 있지만 다양한 형태를 가지고 있다. 레이저 물질이나 비선형 광학 결정으로 유용하지만 지금까지 보고된 공간 군(space group)만 해도 C2/c(α -phase), R32(β -phase), Cc(γ -phase), 및 C2 등 최소 4가지 이상이다.^[5,6] 이러한 공간군의 구별은 실제로 결정 성장시 온도조건에 의하여 정해지는데 가장 높은 온도조건에서 성장하면 C2/c(α -phase), 중간 온도이면 R32(β -phase), 낮은 온도이면 Cc(γ -phase)의 구조를 갖는다. 모든 공간군의 결정은 비대칭형이고 단사정계이다. 그러나 결정의 구조면에서 보면 모두 약간의 결합각과 방향성이 차이가 있을 뿐 근본적인 변화는 관측할 수 없다.^[7,8] 즉, 결정성장 조건에 따라 Stark 준위가 약간씩 높거나 낮은 쪽으로 이동하면서 생기는 현상이다. 특이한 것은 β -위상인 R32 공간 군의 결정에서 나타나는데 대칭 중심이 없는 구조로 자체 주파수 증배로 잘 알려진 NYAB(neodymium doped yttrium aluminium borate)와 같은 구조를 가지고 있다. 그러므로 이 구조의 Nd:LSB에서 높은 도핑률을 가질 경우 제2조화파 발생이 보고된 바가 있어 이러한 구조를 가지는 결정에 대한 자체주파수 증배의 가능성을 암시한다.

†E-mail: jwk1@hanseo.ac.kr

잘 알려진 Nd형 레이저 매질인 Nd:YAG와 Nd:YVO₄ (neodymium doped yttrium vanadate)와 비교하여 보면 표 1에서 보는 바와 같이 많은 장점이 있는 것을 알 수 있다. Nd:LSB는 높은 도핑률에도 불구하고 결정 성장과 연마가 쉬울 뿐 아니라 전형적인 다이오드 레이저 펌핑 파장인 808 nm에서의 넓은 흡수 폭은 다이오드 레이저의 파장 선택을 용이하게 할 뿐 아니라 출력의 안정성 제고에도 유리하다. 그러나 다른 결정에 비해 흡수 깊이가 긴 것은 초소형의 마이크로 칩 레이저 시스템을 구성하는데 불리한 요소이며, 두께가 100 μm 보다 얇게 가공하는 것이 어려운 점을 감안하면 단일 모드 발진도 어려운 것이 단점이다.

결정 성장에 있어서는 다른 결정과 마찬가지로 Czochralski method로 가능하며, 99.99%의 순도를 가진 La₂O₃, Nd₂O₃, Sc₂O₃, H₃BO₃를 이용하여 합성하였다. 조성비는 La_{1.1-x}Nd_xSc_{2.9}(BO₃)₄의 조성식에서 x=0~1.1의 범위에서 조절되었으며, 조성비에서 약간의 조절이 필요하므로 15% Nd:LSB의 경우 x = 0.15에 해당한다. 하소(calcination)는 2단계로 건조는 800°C에서 한 시간 정도로, 소결(sintering)은 1350°C에서 다섯 시간 동안 진행되었다. <001> 방향의 LaSc₃(BO₃)₄ 단결정이 종자로 사용되었고, 직경과 높이가 각각 50 mm인 이리듬 도가니

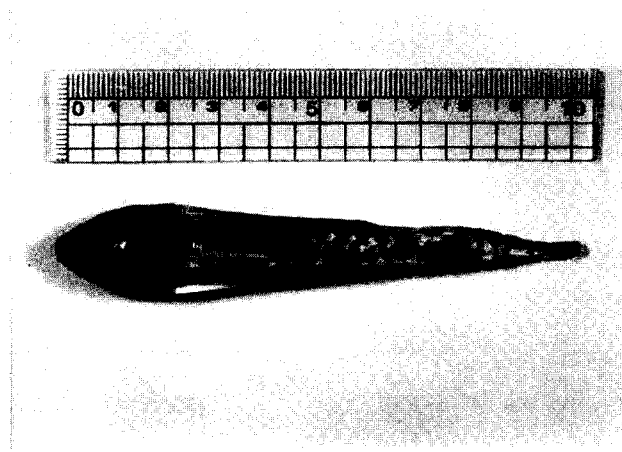


그림 1. 15% Nd:LSB 단결정.

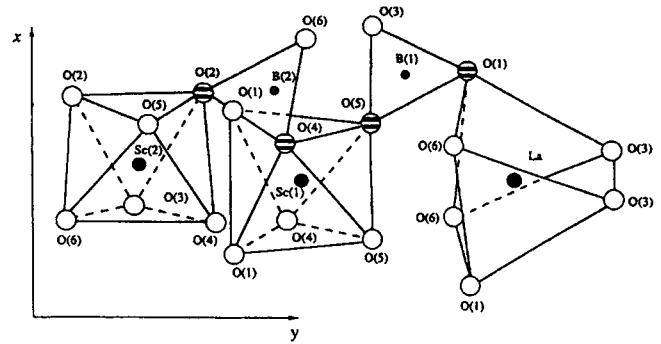


그림 2. Nd:LSB의 결정 구조.

가 사용되었다. 결정은 질소를 3 l/min의 속도로 흘리는 가운데 성장되었고, 결정을 끌어올리는 속도는 시간당 1.5 mm, 회전속도는 분당 10회전이였다. 물론 Nd:YAG와 Nd:YVO₄도 Czochralski method로 성장이 가능하지만 Nd:YAG는 결정성장 속도가 시간당 0.3~0.5 mm로 Nd:LSB보다 느리고, Nd:YVO₄의 경우 용해상태에서 조성비를 조절하기가 어려운 단점이 있다.^[9] 그림 1은 Czochralski method를 이용해 성장시킨 15% Nd:LSB 단결정이다. 직경 20 mm, 길이 100 mm의 Nd:LSB 결정을 성장하였으며, 광학적, 물리적 결함은 발견할 수 없었다.

그림 2는 4주기 x-선 회절계기(D/MaxIII B, Rigaku Co.)를 이용하여 조사한 결정구조이다. 비중심대칭(noncentrosymmetric) 구조에 결정의 공간 군은 C₂/c로 조사되었으며, 결정격자 상수는 표 1에 제시한 바와 같이 a=7.7 Å, b=9.8 Å, c=12.0 Å, β = 105.4°이었다.

III. 광학적 특성

그림 3는 상온에서 분광기(U-3500, Hitachi)를 이용하여 0.1 nm의 분해능으로 측정된 15% Nd:LSB의 흡수 스펙트럼이다. 결정은 두께가 1mm로 양면이 평행하게 연마된 것을 사용하였으며, Nd:YAG와 마찬가지로 300~900 nm의 파장 범위에서 885, 807, 748, 690, 589, 529, 477, 433, 369, 및 333 nm의 10개의 흡수 최대를 보였다. 특히 807nm에서의 흡수 최대는 바닥상태인 ⁴I_{9/2}로부터 들뜬 상태인 ⁴F_{5/2}와 ⁴H_{9/2}로의 전이

Table 1. Comparison of Nd-type laser crystals¹⁰⁻¹⁴

	Nd:LSB	Nd:YVO ₄		Nd:YAG
Nd ³⁺ doping level (at.%)	15	1.1	3.0	1.1
Nd concentration (atoms/cm ³)	5.1×10 ²⁰	1.5×10 ²⁰	4.5×10 ²⁰	1.4×10 ²⁰
Crystal lattice parameters (Å)	a = 7.7, b = 9.8, c = 12.0, β = 105.4°	a = 7.12, b = 6.29	a = 7.12, b = 6.29	a = 12.01
Melting point (°C)	1600	1825	1825	1950
Mohs hardness	~7	4~5	45	8.5
Thermal conductivity (W/cm·K)	0.028	0.052	0.052	0.13
Refractive index	1.82	1.97	1.97	1.82
Fluorescence lifetime (μs)	118	93.7	35.8	240
Absorption cross section (cm ²)	1.3×10 ⁻¹⁹	9.8×10 ⁻¹⁹	9.8×10 ⁻¹⁹	3.3×10 ⁻¹⁹
Polarization	π	π	π	None
Absorption length (μm)	109.9	321.5	90.1	1176.5
Saturation intensity (W/cm ²)	12×10 ³	2×10 ³	2×10 ³	2.4×10 ³

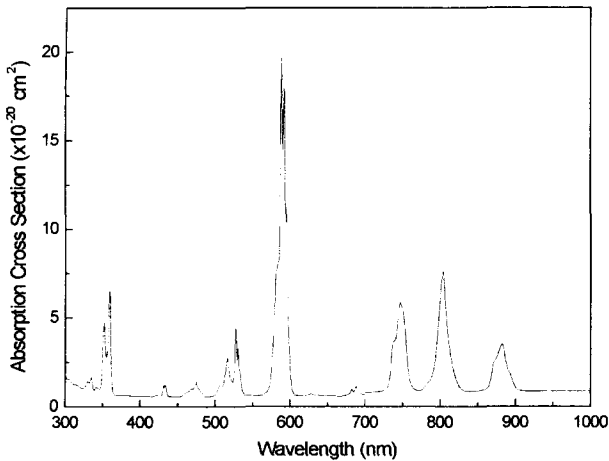


그림 3. 15% Nd:LSB의 흡수 스펙트럼.

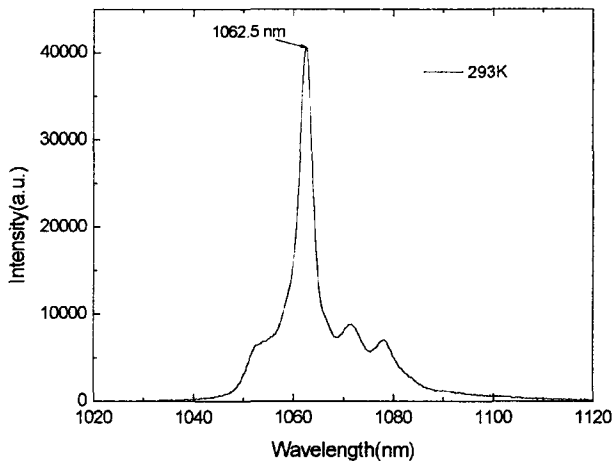


그림 4. 15% Nd:LSB의 형광 스펙트럼($^4F_{3/2} \rightarrow ^4I_{11/2}$).

에 의한 것인데 Nd:YAG와 비교하여 볼 때 스펙트럼의 흡수 선이 많이 무더진 것은 높은 도핑 농도로 인해 선폭 확대가 이루어졌기 때문이며, 이로 인해 807 nm에서 비교적 넓은 흡수 띠를 형성하게 되고 펌핑 광원의 파장 선택이 용이하게 되었다. 이것은 상업용 다이오드 레이저를 펌핑 광원으로 이용하는 고체 레이저 구성에 있어서 온도 조절에 의한 파장 조절이 거의 필요 없게 되므로 매우 유리한 조건을 제공하지만 전체적인 흡수계수의 저하는 레이저 발진 효율 면에서 불리하게 된다.

그림 4는 역시 상온에서 같은 결정으로부터 얻은 $^4F_{3/2} \rightarrow ^4I_{11/2}$ 에 해당하는 형광스펙트럼으로 중심 파장은 Nd:YAG보다 다소 짧은 1062.5 nm이다. 다중 구조인 $^4F_{3/2}$ 준위로부터 전이가 가능한 $^4F_{3/2} \rightarrow ^4I_{9/2}$, $^4F_{3/2} \rightarrow ^4I_{11/2}$, $^4F_{3/2} \rightarrow ^4I_{13/2}$, 및 $^4F_{3/2} \rightarrow ^4I_{15/2}$ 의 4개의 전이선 가운데 분기율(branching ratio)이 가장 큰 $^4F_{3/2} \rightarrow ^4I_{11/2}$ 로부터 얻어지는 이 선은 레이저 발진을 일으키는데 가장 일반적으로 이용된다. 이 전이선은 원래 6개의 Stark level이 존재하지만 역시 높은 도핑률로 인해 상온에서 그 존재가 잘 확인이 되지 않는다.

그림 5는 Nd^{3+} 이온의 도핑 농도에 따른 형광 수명의 변화

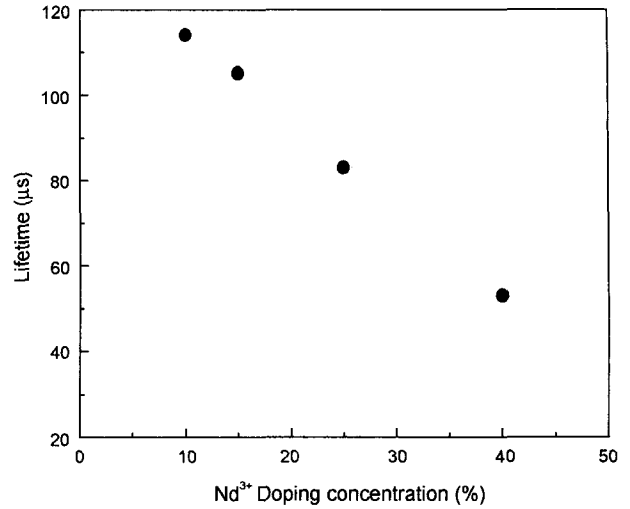


그림 5. Nd^{3+} 이온 도핑률에 따른 형광수명의 변화.

이다. 대부분의 무기질 결정에서 볼 수 있듯이 Nd^{3+} 이온의 도핑 농도의 증가는 형광 수명의 단축을 유발하였으며, 도핑 농도를 10~40% 까지 변화시켜가며, 조사한 결과 형광 수명은 10% 도핑 농도에서 114 μs 에서 40% 도핑 농도에서는 그 절반 수준인 53 μs 까지 급격하게 단축되었다.

IV. 레이저 발진

두께가 1 mm이고 가로 세로의 길이가 각각 2 mm인 10% Nd:LSB (α -phase)를 이용하여 레이저 발진 실험을 하였다. 입사면은 펌핑 파장인 808 nm에서 높은 투과율을 가지며, 동시에 레이저 발진 파장인 1062 nm에서 높은 반사율을 가지도록 이색코팅을 하였고 반대 면은 반사 손실을 줄이기 위해 1062 nm에서 무반사 코팅을 하였다. 결정은 레이저 발진시 발생하는 열을 제거하기 위해 구리로 만든 열 제거대 위에 고정하였으며, 출력경으로는 곡률 반경이 30 mm이며 반사율이 97%인 거울을 사용하였다. Nd:YAG에 비해 낮은 열전달계수를 가지므로 열전소자를 이용하여 상온을 유지하면서 실험하였다. 펌핑 광원으로는 빔질이 뛰어난 Ti:sapphire 레이저 (Spectra-physics, 3900S)를 사용하였다. Ti:sapphire 레이저 출력 빔의 직경은 600 μm 이었으며, M^2 는 1.3으로 집속시 빔의 크기는 65.5 μm 이었다.

그림 6은 10% Nd:LSB를 이용하여 레이저 발진 실험한 결과이다. 레이저 발진 실험 장치에서 공진기 내의 광밀도의 극대화를 위해 공진기의 길이를 30 mm 정도로 하여 임계조건을 이루도록 하였으며, 808nm에서 32 cm^{-1} 의 흡수계수를 가지므로 두께 1 mm의 결정에 의해 95%의 펌핑광이 흡수되었다. 펌핑광과 레이저 출력을 분리하기 위해 주파수 분리 필터가 사용되었고, 레이저 출력은 공진기 변수와 펌핑 파장에 비교적 민감하였다. 펌핑광의 흡수가 가장 큰 파장을 광 스펙트럼분석기 (Advantest, Q8381A)로 측정한 결과 808.0 nm이었으며, 이때 Ti:sapphire레이저의 출력 선폭은 1 nm 정도였다. 펌핑광의 출력을 조절하기 위하여 편광기와 위상 회전자를 이용하였는

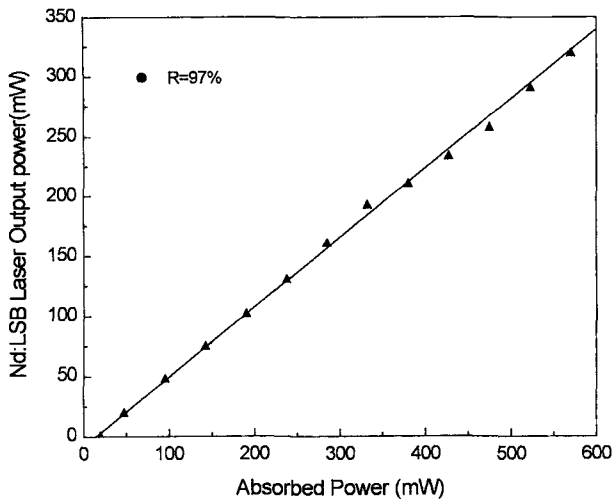


그림 6. 흡수 펌핑광의 출력에 따른 Nd:LSB 레이저 출력.

데 이것은 펌핑광인 Ti:sapphire 레이저의 출력을 조절하고자 알곤 레이저의 출력을 높일 경우 펌핑광의 파면의 출력분포가 변화할 수 있으며, 이것은 Nd:LSB 결정 내에서 펌핑 출력 밀도의 왜곡된 정보를 초래할 수 있기 때문이다.

97%의 반사율을 가진 출력경을 이용하였으며, 펌핑광을 Ti:sapphire 레이저로 하였을 경우에 대한 결과를 제시하였다. Ti:sapphire 레이저를 펌핑광원으로 하였을 경우 기율기 효율이 55%로 높았으며, 흡수된 펌핑광의 출력이 618 mW일 때 1062 nm에서의 레이저 출력이 342 mW였으며, 문지방 에너지는 20 mW였다.

V. 결 론

새로운 마이크로 칩 레이저 매질인 Nd:LSB를 전형적인 Czochralski 방법을 이용하여 단결정을 성장하였으며, 결정 구조 분석에 이어 광학적 특성과 레이저 발진 특성을 조사하였다. 고농도로 도핑이 요구되는 마이크로 칩 레이저는 높은 도핑 농도로 인해 활성 이온들 사이의 에너지 전달로 인해 비복사 전이율이 높아질 수 있다. 이러한 upconversion이나 down-conversion 과정은 들뜬 상태인 $^4F_{3/2}$ 의 밀도감쇠에 기여하게 되어 전체적인 레이저 효율을 떨어뜨리게 된다.¹¹⁵⁾ Nd:LSB는 고농도로 Nd³⁺ 이온이 도핑되었을 경우에도 광학적 특성이 거의 변하지 않았으며, 10% Nd:LSB를 이용하여 마이크로 칩 형태로 상온에서 레이저 발진을 시도하였을 경우 55%의 비교적 높은 기율기 효율을 보여준 것은 주목할 만하다. 고농도로 인해 발생하는 선풍 확대와 레이저 발진시 다중모드 발진 등 소형화에 따른 부정적 경향에도 불구하고 출력과 편의성에서 많은 가능성을 가지고 있어 향후 지속적인 연구로 좀 더 분석이 필요하다.

감사의 글

본 연구는 의학 레이저 연구센터의 지원에 의하여 수행되었

음(R12-2001-050-05002-0).

참고문헌

- [1] W. Chen, G. Wang, Z. Lin, and Z. Hu, "Spectral parameters of Nd³⁺ ion in β -Nd³⁺:LaSc₃(BO₃)₄ crystal," *Opt. Commun.*, 162, pp. 49-52 (1999).
- [2] P. Gavrilovic, M. S. O'Neill, K. Meehan, J. H. Zarrabi, S. Singh, and W. H. Grodkiewicz, *Appl. Phys. Lett.*, 60, 1652 (1992).
- [3] B. Ferrand, D. Pelenc, I. Chartier, and Ch. Wyon, *J. Cryst. Growth*, 128, 965 (1993). Ikesue, T. Kinoshita, K. Kamata, and K. Yoshida, *J. Am. Ceram. Soc.*, 78, 1033 (1995).
- [4] G. Wang, W. Chen, Z. Li, and Z. Hu, "Optical transition probability of Nd³⁺ ions in a α -Nd³⁺:LaSc₃(BO₃)₄ crystal," *Phys. Rev.*, B60, 15469-15471 (1999).
- [5] D. K. Sardar, F. Castano, J. A. French, J. B. Gruber, T. A. Reynolds, T. Alekel, D. A. Keszler, and B. L. Clark, "Spectroscopic and laser properties of Nd³⁺ in LaSc₃(BO₃)₄ host," *J. Appl. Phys.*, 90, 4997-5001 (2001).
- [6] J. B. Gruber, T. A. Reynolds, D. A. Keszler, and B. Zandi, "Spectroscopic properties of nonlinear NdSc₃(BO₃)₄," *J. Appl. Phys.*, 87, 7159-7163 (2000).
- [7] J. P. Meyn, T. Jensen, and G. Huber, "Spectroscopic properties and efficient diode-pumped laser operation of neodymium doped lanthanum scandium borate," *IEEE J. Quant. Electron.*, 30, 913 (1994).
- [8] O. Jarchow, F. Lutz, and K. H. Klaska, "Polymorphie und Fehlordnung von NdAl₃(BO₃)₄," *Z. f. Krist.*, 149, 162 (1979).
- [9] 이성영, A. Y. Ageyev, 정석중, 김병호, 유영문, "용액성장법에 의한 Nd:LaSc₃(BO₃)₄의 단결정 성장 연구," *한국결정학회지*, 10, 71-75 (1999).
- [10] A. A. Kaminskii, G. A. Bogolubova, L. Li, "Absorption, luminescence, stimulated emission and crystal field splitting of Nd³⁺ ions in YVO₄," *Izvetia akademii nauk. Ser. Neorg. Mat.*, 5, 673-690 (1969).
- [11] L. Zundu, J. Aidong, H. Yichuan, Q. Minwang, "Laser performance of large neodymium aluminium borate (NdAl₃(BO₃)₄) crystals," *Chinese Phys. Lett.*, 3, 541-544 (1986).
- [12] S. A. Kutovoi, V. V. Laptev, and S. Y. Matsnev, "Lanthanum scandoborates as a new highly efficient active medium of solid-state lasers," *Sov. J. Quantum. Electron.*, 21, 131-132 (1991).
- [13] T. Taira, A. Mukai, Y. Nozawa, and T. Kobayashi, "Single-mode oscillation of laser-diode-pumped Nd:YVO₄ microchip lasers," *Opt. Lett.*, 16, 1955-1957 (1991).
- [14] I. Shoji, Y. Sato, S. Kurimura, T. Taira, A. Ikesue, and K. Yoshida, "Optical properties and laser characteristics of highly Nd³⁺ doped Y₃Al₅O₁₂ ceramics," *Appl. Phys. Lett.*, 77, 939-941 (2000).
- [15] V. Lupei, A. Lupei, N. Pavel, T. Taira, and A. Ikesue, "Comparative investigation of spectroscopic and laser emission characteristics under direct 885-nm pump of concentrated Nd:YAG ceramics and crystals," *Appl. Phys.*, B73, 757-762 (2001).

Research of Nd:LSB microchip laser

Won Kweon Jang[†]

Dept. of Computer and Applied Physics, Hanseo University, Seosan 356-706, KOREA

[†]E-mail: jwk1@hanseo.ac.kr

Tae Hoon Kim and Young Moon Yu

Korea Photonics Technology, Kwangju 500-210, KOREA

(Received September 11, 2002, Revised manuscript December 2, 2002)

A new laser material, Nd:LSB ($\text{Nd}^{3+}:\text{LaSc}_3(\text{BO}_3)_4$, lanthanum scandium borate), of microchip type was grown by the Czochralski pulling method, and tested for optical and lasing properties. Nd:LSB, able to be highly doped with Nd^{3+} ions while maintaining good optical, chemical, mechanical properties, was compared to another Nd-type laser material. The absorption and fluorescence spectra, and fluorescence lifetime were measured, and the crystal structure was analyzed. The lasing characteristics were investigated by using Ti:sapphire laser as a pumping light source.

Classification code : LO.080.