

유기재료의 이상분산을 이용한 파장변환

김응수[†]

부산외국어대학교 디지털정보공학부
☎ 608-738 부산시 남구 우암동 55-1번지

김민성

동명정보대학교 정보통신공학과
☎ 608-711 부산시 남구 용당동 535번지

강신원

경북대학교 전자전기공학부
☎ 702-701 대구시 북구 산격동 1370번지

(2004년 4월 22일 받음, 2004년 11월 17일 수정본 받음)

Poled polymer를 사용하여 도파로구조를 제작하고 2차 비선형광학현상에 의해 제 2고조파(SHG)를 발생시켰다. 기본파와 제 2고조파 사이의 위상정합은 poled polymer의 이상분산 특성을 이용하여 기본파 도파모드(TM₀)로부터 제 2고조파 도파모드(TM₀)를 실현하였다. 이때 발생하는 제 2고조파의 power는 위상정합이 가능한 다른 모드의 기본파로부터 발생한 제 2고조파의 power보다 크게 됨을 이론적으로 확인하였고, 위상정합이 가능한 도파로를 제작하였다. 기본파로서 Ti-sapphire laser(740 nm)를 사용하여 근자의 영역의 제 2고조파(370 nm)를 관찰하였다.

주제어 : poled polymer, nonlinear optics, SHG, anomalous dispersion, phase matching.

I. 서 론

최근 초고속 정보통신에서 광의 역할이 커지면서 관심도가 증가하고 있다. 특히 all optical switch, electro-optics, frequency conversion등을 위해서 2차, 3차 비선형광학에 대한 연구가 활발히 진행되고 있다.^[1-6]

이중에서도 2차 비선형광학현상을 이용하면 제 2고조파(Second Harmonic Generation)를 발생시킬 수 있는데, 이렇게 발생된 제 2고조파는 단파장이므로 광메모리의 밀집도를 높이고, 계측기에서의 정밀도를 높이고, 집적회로소자공정의 광원용, 디스플레이 등으로 이용될 수 있어 산업계에서 강력히 요구되고 있다. 단파장을 실현하기 위해서 III-V족 반도체를 이용한 laser가 개발이 되었지만 재료특성상 파장범위가 제한되어진다.^[7] 반면 2차 비선형광학현상을 이용하면 기존 광원의 파장을 반으로 줄이는 것이므로 어떤 파장이라도 발생시키는 것이 가능하고, 가격도 저렴하게 할 수 있다. 2차 비선형광학현상에 의해 효율이 좋은 단파장을 발생시키기 위해서는 재료의 2차 비선형광학계수가 커야 하고, 발생시키고자 하는 제 2고조파의 파장과 기본파의 파장 범위에서 흡수가 없어야 한다. 최근에는 비정질인 실리카를 이용하여 제 2고조파 발생에 대하여 발표도 되었지만,^[8,9] 기본적으로 2차

비선형광학현상을 이용하기 위해서는 중심대칭성이 없는 재료이어야 한다. 비선형광학 재료 중 무기재료는 기계적강도가 좋고, 투명영역이 넓고, 단결정성장기술이 발달되어 있는 장점이 있지만 가격이 비싸고, 2차 비선형광학계수가 작은 것이 단점이다. 이에 반해 유기재료는 비선형광학특성계수가 크고, 응답속도가 빠르고, 분자구조설계가 가능하여 소자제작에 용이성이 좋으며, laser power에 대한 damage 한계치가 높은 장점이 있다.^[10]

본 연구에서는 2차 비선형광학현상을 이용하여 저가, 소형의 단파장 광원을 개발하기 위하여 monomer인 MMA (methylmethacrylate) 측쇄에 DR 1(disperse red 1)을 결합한 copolymer[poly(MMA-co-DR1MA)]를 이용하여 도파로소자를 제작하였다. 이러한 도파로구조는 기본파의 power밀도를 높이고, 기본파와 고조파와의 상호작용 길이를 길게하는 장점이 있다. 한편 제 2고조파를 발생시키기 위해서는 기본파와 제 2고조파 사이의 위상정합(phase matching)이 필요한데, 이러한 위상정합을 실현하기위해서 기본파 도파모드에 의한 도파모드의 제 2고조파 발생(guided phase matching), 기본파 도파모드에 의한 방사모드의 제 2고조파 발생(Cerenkov phase matching), 비선형광학계수의 분극반전을 이용한 의사 위상정합(quasi-phase matching)법의 3가지 방법이 많이 이용되고 있다.^[11-13] K. D. Singer 그룹 등은 재료의 이상분산을 이용하여 재료의 초분극을 측정과 blue파장을 발생을 보고하였다

[†] E-mail: eskim@pufs.ac.kr

[14,15]. 본 연구에서 사용한 유기재료는 가시광 영역에 강한 흡수가 존재하므로 이 영역을 피하여 짧은 파장을 발생시키기 위해서 투명영역이 존재하는 근자외영역의 제 2고조파를 발생을 위하여 poled polymer의 이상분산을 이용하였다. 기본파와 제 2고조파 사이의 Guided phase matching법에 의한 변환 효율 및 제 2고조파를 발생시키기 위한 막 두께는 이론적으로 계산하고 근자외 영역의 단파장(370 nm)을 실험적으로 확인하였다.

II. 이 론

기본파로부터 제 2고조파를 발생시키기 위해 그림 1과 같은 평면 도파로구조를 사용하였다. 그리고 기본파로부터 제 2고조파를 효과적으로 발생시키기 위해서는 기본파와 제 2고조파사이의 위상정합이 필수조건이다. 기본파와 제 2고조파사이의 위상정합이 되지 않으면 제 2고조파가 발생되지 않기 때문이다.

본 연구에서는 기본파가 도파 mode로 도파로를 전파하면서 도파모드의 제 2고조파를 발생시키는 도파모드-도파모드사이의 위상정합법을 사용하였다. 여기서 도파로로 사용된 poled polymer의 2차비선형계수를 효과적으로 이용하기 위하여 기본파는 TM 편광이 되도록 하였다. 기본파로부터 발생하는 제 2고조파도 TM 편광이 되므로 기본파로부터 발생하는 제 2고조파의 power는 다음과 같이 표현되어진다.

$$P^{2\omega} = \frac{2\epsilon_0^{1/2} \mu_0^{3/2} \omega^2 (N_{eff}^{\omega})^4 d_{33}^2 S^2 L^2 (P^{\omega})^2}{N_{eff}^{2\omega} W_{eff}^{2\omega} (W_{eff}^{\omega})^2 D} \text{sinc}^2\left(\frac{\Delta\beta L}{2}\right) \quad (1)$$

$$S = \int_{-\infty}^{\infty} (H_{ym}^{\omega})^2 H_{ym}^{2\omega} dx \quad (2)$$

여기서 기본파의 전파방향은 z 방향으로 하였고, 도파로 박막의 두께는 x 방향으로 하였다. L은 상호작용길이이고, $\Delta\beta$ 는 위상부정합(phase mismatching)을 의미한다. 만약 기본파와 제 2고조파사이에서 위상정합이 이루어지면 $\Delta\beta=0$ 이 되어 제 2고조파의 power는 최대가 되지만 위상정합이 되지 않으면 제 2고조파의 power가 급격하게 약해진다. N_{eff}^{ω} 는 기본파에 대한 유효 굴절율이고, $N_{eff}^{2\omega}$ 는 제 2고조파에 대한 유효굴절율이다. W_{eff}^{ω} 는 기본파에 대한 도파로의 유효막두께이고, $W_{eff}^{2\omega}$ 는 제 2고조파에 대한 유효 막두께이다. D는 기본파의 빔 직경이고, P^{ω} 는 기본파의 power이다. 제 2고조파의 power를 계산하기 위한 이론계산에서는 도파로인 polymer에서 기본파와 제 2고조파의 감쇄는 없는 것으로 가정하였다. d_{33} 은

poled polymer의 2차 비선형광학계수이다. poled polymer는 비정질이므로 대칭성을 고려하면 ∞ mm 구조로 표현되어진다.^[16] 그리고 Kleinman의 법칙^[17]에 의하면 poled polymer의 2차 비선형계수는 d_{31} , d_{33} 의 2성분이 있는데, 이 중에서 d_{33} 이 제일 크므로 본 논문에서는 copolymer의 2차 비선형계수 d_{33} 을 사용하였다. S는 도파모드인 기본파와 도파모드인 제 2고조파사이의 중첩적분으로, H_{ym}^{ω} 는 기본파 y 방향의 m+1차 도파모드의 규격화된 magnetic field이고 $H_{ym}^{2\omega}$ 는 제 2고조파 y 방향의 n+1차 도파모드의 규격화된 magnetic field이다. 폴리머의 굴절율은 기본파인 740 nm에서 1.538이고 제 2고조파인 370 nm에서는 1.522로 기본파의 굴절율보다 작다. 그림 2는 기본파와 제 2고조파에 대한 폴리머 막두께에 대한 mode 분산그래프이며, 기본파와 제 2고조파의 분산그래프가 교차하는 지점이 위상정합이 이루어지는 막두께이다. 그림 2에서는 기본파의 1, 2차 모드와 고조파의 1, 2, 3차 모드사이에서 위상정합이 이루어짐을 알 수 있고, 더 높은 도파모드에서도 위상정합이 이루어지지만 그림 2에서 보여주는 위상정합에 대해 발생하는 제 2고조파의 효율을 식 (1)을 사용하여 계산하였다. 기본파 power는 1W, d_{33} 은 Maker Fringe법에 의해 측정된 13.6 pm/V를 사용하여 계산된 결과는 표 1에 나타내었으며, 이 중에서 기본파 1차모드(TM₀)와 제 2고조파 1차모드(TM₀) 사이에서 발생하는 제 2고조파의 power가 가장 크게 됨을 이론적으로 확인하였다. 그 이유는 기본파 1차 도

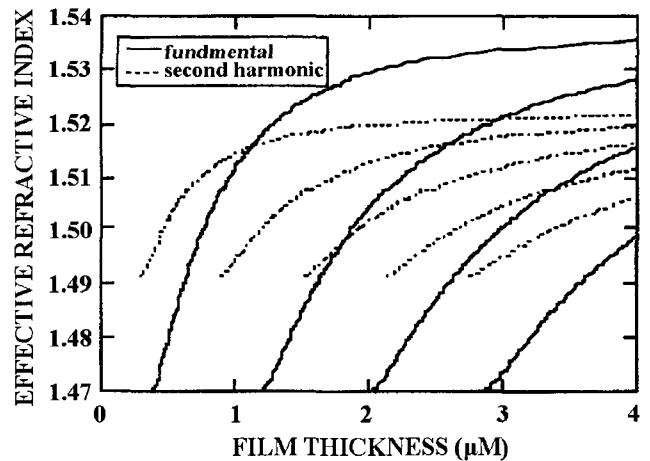


그림 2. polymer의 mode 분산그래프.

표 1. 도파모드의 기본파와 제 2고조파 사이에서 위상정합이 일어나는 막 두께와 변환 효율.

기본파도파 모드	제 2고조파 도파모드	효과굴절율	막두께 (μm)	효율
0	0	1.5156	1.124	1.0510 ⁻²
1	0	1.5209	2.971	9.1310 ⁻⁷
1	1	1.5162	2.594	1.6510 ⁻⁵
1	2	1.4974	1.80	6.310 ⁻⁴

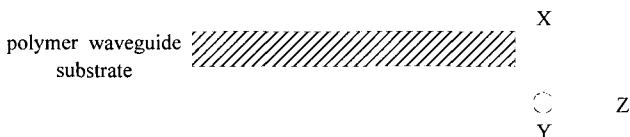


그림 1. 도파로 구조

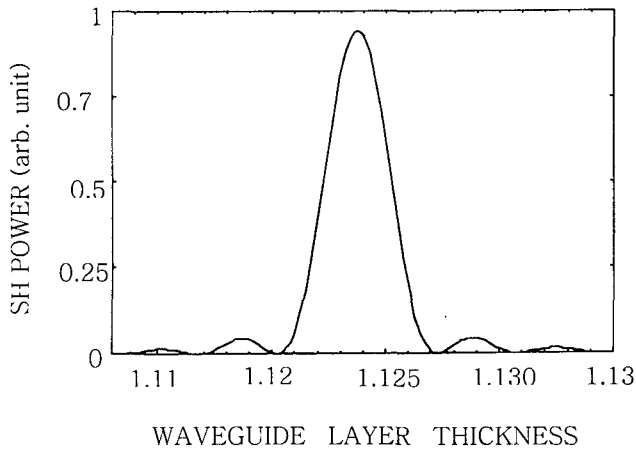


그림 3. 기본파의 1차 도파모드와 제 2고조파의 1차 도파모드사이의 위상정합 막 두께에 대한 제 2고조파의 power.

파모드와 제 2고조파 1차 도파모드사이의 중첩적분이 가장 크기 때문이다. 이때의 막두께는 약 1.124 μm 이다. 기본파 1차도파모드와 제 2고조파 1차 도파모드 사이에 위상정합이 이루어지는 막 두께 변화에 대한 제 2고조파의 power를 식 (1)을 이용하여 계산하면 그림 3과 같이 위상정합이 발생하는 막 두께에서 제 2고조파의 power가 가장 크고, 이 막 두께에서 벗어날수록 제 2고조파의 power는 sinc^2 함수로 급격하게 줄어드는 것을 알 수 있다. 그림 3에서는 기본파와 제 2고조파와의 상호작용 길이를 1 mm로 했을 경우인데, 이때 FWHM은 약 15 nm이다. 만약 상호작용길이가 길면 길수록 위상정합을 발생시킬 수 있는 FWHM은 점점 더 작아지게 된다.

III. 실험 및 결과

Monomer인 MMA(methylmethacrylate)에 DR1(disperse red 1)이 10wt.%가 되도록 하여 copolymer인 [poly(MMA-co-DR1MA)]를 제작하였다. 제작된 copolymer를 pyrex기판위에 spin coating한 후 corona poling 처리를 하여 copolymer의 비선형성을 증가시켰다.^[18] Poling 조건으로는 polymer의 유리전이온도 (T_g)보다 조금높은 110 $^\circ\text{C}$ 에서 15분간 5 kV의 고전압을 인가하면서 처리하였다. polymer를 poling 처리하면 polymer의 분자가 polymer 막 두께방향으로 배향되어 비선형성은 더 좋아진다. Poling을 가한 후 copolymer의 비선형성은 Q-switched Nd-YAG laser를 이용하여 Maker Fringe법으로 측정하였다.^[19] 제작된 copolymer의 비선형성을 조사하기 위해 사용한 참조시료로는 두께 3 mm인 Y-cut quartz이며, quartz의 2차비선형계수인 $d_{11}=0.4 \text{ pm/V}$ 를 이용하여 copolymer의 2차 비선형계수를 계산한 결과 copolymer의 2차 비선형계수 $d_{33}=13.6 \text{ pm/V}$ 였다. 그림 4에 Maker Fringe법으로 측정한 copolymer의 Maker Fringe pattern을 나타내었다. 입사각도는 -60° 에서 60° 로 변화시키면서 제 2고조파강도를 측정하였다. Poling을 한 후 copolymer의 2차 비선형계수 d_{33} 의 장기특성을 측정하였는데, 그림 5에서 알 수 있듯이 한 달 이상이 되어도 매우

좋은 특성을 나타내었다.

copolymer의 poling 전과 후의 흡수 spectrum을 조사한 결과는 그림 6에 나타내었는데, cutoff 파장은 약 600 nm이고, poling 후에는 흡수 peak가 감소 하였으며 red shift가 발생되었다. 본 연구에서 사용된 polymer는 가시광영역에 흡수가 있으므로 가시영역의 광을 발생시키는 것은 곤란하지만 370 nm 부근의 투명영역이 존재하므로 이 영역의 파장을 갖는 제 2고조파광을 발생시키는 것은 가능하다. polymer의 굴절률 측정은 흡수영역이 약 400 nm에서 600 nm이므로 ellipsometer와 m-line법을 이용하여 조사하였는데, 그림 7에서 알 수 있듯이 굴절률 분포는 이상분산을 나타내고 있다. 제 2고조파를 발생시키기 위한 소자제작을 위해 pyrex 기판위에 spin coating법으로 도파로구조를 제작하였는데, 이때 기본파와 제 2고조파사이의 위상정합이 중요하므로 표 1의 결과에서 변환효율이 가장 큰 기본파 1차 도파모드와 제 2고조파 1차 도파모드사이의 위상정합이 되는 막 두께를 실현하기 위하여 도파로는 taper상태가 되도록 하였다.

가시영역의 기본파로부터 근자외영역의 제 2고조파를 발

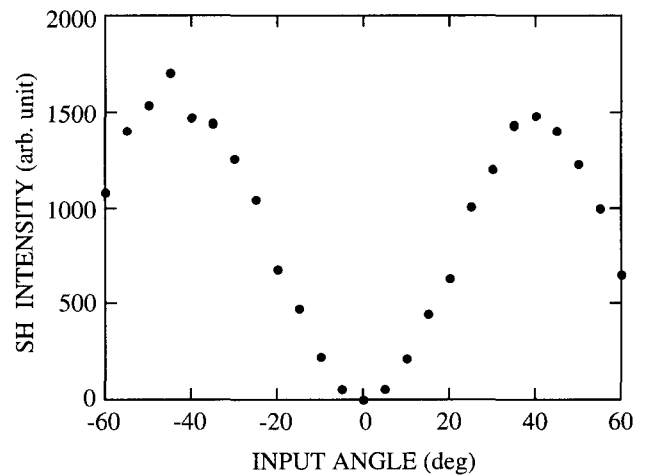


그림 4. poled polymer의 Maker Fringe pattern.

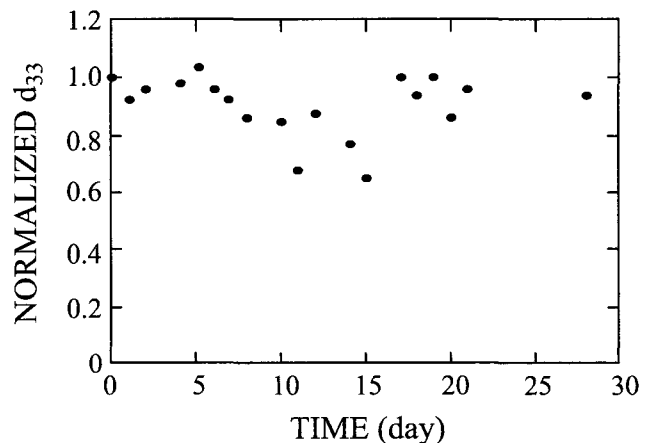


그림 5. poled polymer의 d_{33} 장기특성.

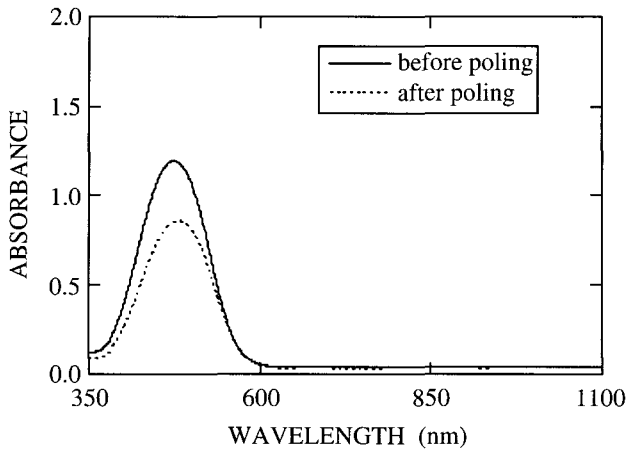


그림 6. polymer의 poling 전후 흡수스펙트럼.

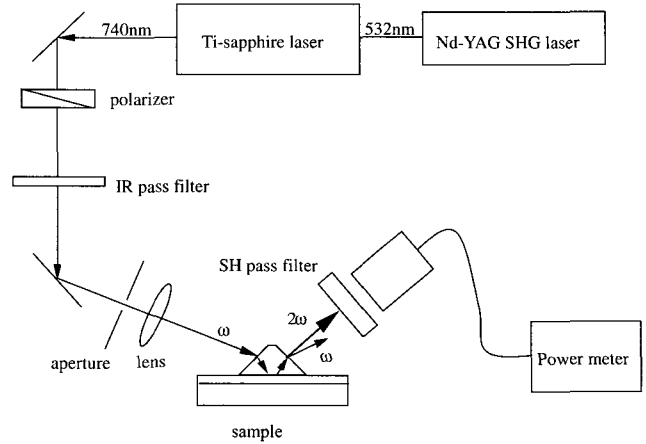


그림 8. 실험 장치도.

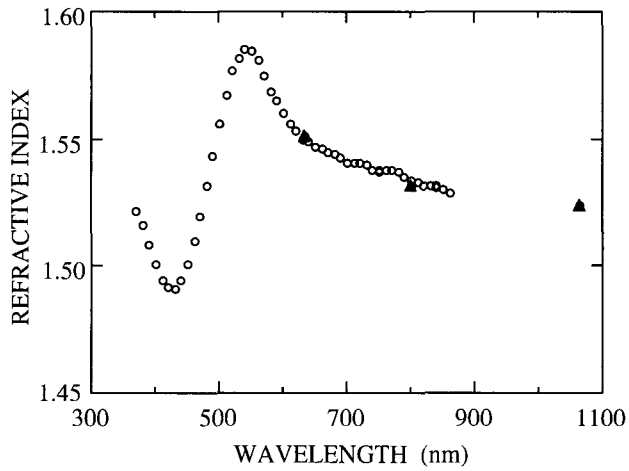


그림 7. poled polymer의 굴절율. 원은 ellipsometer로 측정된 결과이고 삼각형은 m-line법에 의해 측정된 결과이다.

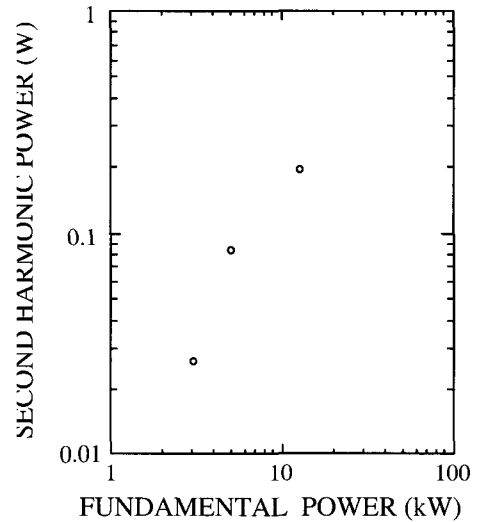


그림 9. 기본파 power에 대한 제 2고조파 power.

생성시키기 위한 실험장치는 그림 8과 같다. 도파로인 poled polymer에서의 흡수가 없고, 또 poled polymer의 투명영역에서 제 2고조파를 발생시키기 위하여 기본파의 광원으로 Ti-Sapphire laser를 이용하여 파장을 740 nm로 하였다.

poled polymer의 2차 비선형계수 d_{33} 을 이용하기 위해 기본파는 편광기를 사용하여 TM편광이 되도록 하여 렌즈를 통과시켜 소자에 입사시켰다. 소자는 X-Y 회전 stage 위에 놓여 있으며, 기본파를 소자에 결합시키기 위해 prism을 사용하였다. 제 2고조파를 발생시키기 위해서는 기본파와 제 2고조파사이의 위상정합이 이루어져야 하므로 stepping motor를 사용하여 소자를 정밀하게 이동시키면서 기본파를 입사하였고, 그림 3에서 보여주는 막 두께에서 제 2고조파가 발생되었다. 이때의 막 두께는 prism의 입사각으로부터 계산하였는데, 막 두께는 $1.123 \mu\text{m}$ 로 이론적으로 계산된 막 두께와 거의 일치하였다. 발생한 제 2고조파는 filter를 사용하여 기본파를 완전히 차단시킨 후, Si photodiode를 사용하여 측정하였는데, 측정된 제 2고조파의 power는 그림 9에 나타내었다.

식 (1)에 따르면 제 2고조파 power는 기본파 power의 제곱에 비례하는데, 그림 8에서는 기본파 power가 작을 때는 거의 제곱에 비례하지만 기본파 power가 클 때는 노이즈로 작용된 기본파의 영향이 있었을 것으로 판단된다. poled polymer의 투명영역을 이용하였지만 완전히 흡수가 없는 것이 아니고, 또 poled polymer내에서의 손실과 prism 결합 손실에 의한 영향이 조금 있으므로, 이것을 개선하고 채널도파로 구조로 한다면 발생하는 제 2고조파의 power는 더 클 것으로 생각된다.

IV. 결 론

poled polymer를 사용하여 도파로구조를 제작하여 가시영역의 기본파로부터 poled polymer의 흡수영역을 피하여 근자외영역의 제 2고조파를 발생시켰다. 제 2고조파를 발생시키기 위해서는 기본파와 제 2고조파사이의 위상정합이 중요한

데, poled polymer의 이상분산을 이용하여 기본파 1차 도파 모드로부터 제 2고조파의 1차 도파모드로의 위상정합을 실현하였다. 이러한 위상정합은 기본파의 도파모드와 다른 모드의 제 2고조파 도파모드사이의 위상정합의 경우보다 중첩적분이 가장크기 때문이다. 그리고 기본파로부터 제 2고조파로의 변환효율을 크게 하기 위해서는 손실이 적고, 제 2고조파영역에서 흡수가 작은 poled polymer의 개발이 필요하다.

감사의 글

본 연구는 정보통신부의 정보통신기초기술연구지원사업(정보통신연구진흥원)으로 수행한 연구결과입니다.

참고문헌

- [1] Y. R. Shen, The principles of nonlinear optics, (John Wiley & Sons, USA, 1984). pp. 86-108.
- [2] P. M. Lundquist, M. Jurich, J. F. Wang, H. Zhou, T. J. Marks, and G. K. Wong, "Electro-optical characterization of poled-polymer films in transmission," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 69, no. 7, pp. 901-903, 1996.
- [3] D. Fluck, T. Pliska, P. Günter, St. Bauer, L. Beckers, and Ch. Buchal, "Blue-light second-harmonic generation in ion-implanted KNbO₃ channel waveguides of new design," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 69, no. 27, pp. 4133-4135, 1996.
- [4] Y. Kondo, Y. Kuroiwa, N. Sugimoto, T. Manabe, and S. Ito, "Ultraviolet irradiation effect on the third-order optical nonlinearity of CuCl-microcrystallite-doped glass," *J. Opt. Soc. Am. B*, vol. 17, no. 4, pp. 548-554, 2000.
- [5] E. S. Kim, T. Kinoshita, K. Sasaki, T. Senoh, and T. Yamanaka, "Optical second harmonic generation by a novel waveguide device with nonlinear organic crystal," *Nonlinear Optics*, vol. 14, pp. 257-262, 1995.
- [6] F. Z. Henari, K. Morgenstern, W. J. Blau, V. A. karavanskii, and V. S. Dneprovskii, "Third-order optical nonlinearity and all-optical switching in porous silicon," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 67, no.3, pp. 323-325, 1995.
- [7] S. Nakamura and G. Fasol, "The blue laser diode" (Springer, germany, 1997.) pp. 1-5.
- [8] L. Xu, L. Liu, J. Yu, W. Wang, and F. Li, "Time evolution of structural changes and second-order optical nonlinearity of hemicyanine doped silica film," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 69, no. 25, pp. 3791-3793, 1996.
- [9] J. Khaled, T. Fujiwara, M. Ohama, and A. J. Ikushima, "Generation of second harmonics in Ge-doped SiO₂ thin films by ultraviolet irradiation irradiation under poling electric field," *J. Appl. Phys.*, vol. 87, no. 5, pp. 2137-2141, 2000.
- [10] H. Takezoe, "有機非線型光學材料," *電子情報通信學會誌*, vol. 74, no. 1, pp. 57-65, 1991.
- [11] O. Sugihara, T. Kinoshita, M. Okabe, S. Kunioka, Y. Nanaka, and K. Sasaki, "Phase-matched second harmonic generation in poled dye/polymer waveguide," *Applied Optics*, vol. 30, no. 21, pp. 2957-2960, 1991.
- [12] P. K. Tien, R. Ulrich, and R. J. Martin, "Optical second harmonic generation in form of coherent cerenkov radiation from a thin film waveguide," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 17, no. 10, pp. 447-450, 1970.
- [13] D. H. Jundt, G. A. Magel, M. M. Fejer, and R. L. Byer, "Periodically poled LiNbO₃ for high-efficiency second-harmonic generation," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 59, no. 21, pp. 2657-2659, 1991.
- [14] P. A. Cahill, K. D. Singer and L. A. King, "Anomalous-dispersion phase-matched second harmonic generation," *Opt. Lett.*, vol. 14, no. 20, pp. 1137-1139, 1989.
- [15] T. C. Kowalczyk, K. D. Singer, and P. A. Cahill, "Anomalous-dispersion phase matched second harmonic generation in a polymer waveguide," *Opt. Lett.*, vol. 20, no. 22, pp. 2273-2275, 1995.
- [16] K. D. Singer, J. E. Sohn, and S. J. Lalama, "Second harmonic generation in poled polymer films," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 49, no. 5, pp. 248-250, 1986.
- [17] T. Ogawa, "結晶物理工學," (Yokoyama 出版, Japan, 1990), pp. 48.
- [18] D. S. Chemla and J. Zyss, "Nonlinear optical properties of organic molecules and crystals," (Academic Press, 1987), pp. 458-465.
- [19] 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.

Frequency conversion using anomalous dispersion of organic material

Eung Soo Kim[†]

*Div. Digital Information Engineering, Pusan University of Foreign Studies
55-1, Uam-Dong, Nam-Ku, Pusan 608-738, Korea*

[†]*E-mail: eskim@pufs.ac.kr*

Min Sung Kim

*Dept. Information Communication Engineering, Tongmyong University of Information Technology
535, Yongdang-Dong, Nam-Ku, Pusan 608-711, Korea*

Shin Won Kang

*School Electronic and Electrical Engineering, Kyungpook National University
1370, Sankyuk-Dong, Buk-Ku, Taegu 702-701, Korea*

(Received April 22, 2004, Revised manuscript November, 17, 2004)

Second harmonic generation(SHG) by guided phase matching is observed in waveguide structure using the anomalous dispersion of a poled polymer. The second harmonic TM_0 guided mode could be generated from the fundamental TM_0 guided mode and then the second harmonic power was higher than any other phase matchable mode because the overlap integral between the fundamental and the second harmonic wave was the largest in the theoretical analysis. Near UV SHG(370 nm) was obtained from the fundamental wavelength of Ti-sapphire laser(740 nm).

OCIS Codes : 190.4400, 230.4320, 310.2790, 160.5470.