

1. 머리말

강유전체(ferroelectrics)는 외부에 전기장을 가하여 자발분극(spontaneous polarization)의 방향을 바꿀 수 있는 물질로 정의된다. 자발분극은 초전성, 압전성 혹은 비선형광학계수와 같은 유용한 성질과 관련이 있다. 만일 자발분극의 방향을 바꿀 수 있다면 이들 분극과 관련 있는 모든 물성의 방향도 바꿀 수 있게 된다. 따라서 동일한 분극인 영역, 즉 도메인(domain)의 형태를 미리 설계된 모양으로 만들 수 있는 도메인 엔지니어링(domain engineering) 혹은 도메인 패터닝(domain patterning)이라고 부르는 기술을 가지게 된다면 물질의 고유한 성질에 도메인의 구조로 표현되는 인공적인 물성을 가감할 수 있다. 이러한 응용의 대표적인 예가 이번 특집의 주제가 되는 준위상정합(quasi-phase matching, QPM)소자이다.

패터닝 기술을 살펴보면, Ti diffusion [1], Li out-leakage [2], electrical poling with photolithography [3,4], scanning force microscope with voltage bias [5-7], calligraphic poling [8], direct electric beam writing [9-12] 등이 있다. 최근에 들어서는 atomic force microscope (AFM)을 이용하여 화학적 물성의 영역이라고 할 수 있는 나노미터 영역의 도메인 패터닝도 가능하게 됨에 따라 물성 조절의 범위가 더욱 넓어졌다[13,14].

도메인 패터닝의 개념을 반드시 강유전체에만 적용할 필요는 없지만, 강유전체는 전기장 만으로도 물성의 전환이 가능할 정도로 패터닝이 쉬운 점 때문에 지금까지의 도메인 패터닝 기술은 주로 강유전체를 중심으로 개발되었으며, 그 주된 대상 물질은 리튬나이오베이트 계열의 단결정이다. 리튬나이오베이트 결정은 1949년 발견된 이후로, 물성이 단단하고 화학적으로 안정하며 고품질의 결정기판

특집 ─ QPM 소자기술

리튬나이오베이트의 도메인 패터닝 Domain Patterning of Lithium Niobate

노정훈*

QPM 소자는 물질에서 서로 다른 파장에서의 빛의 위상 속도를 일치시키기 위한 소자인데, 그 목적을 위한 소위 결맞음 길이(coherence length)가 대체로 수 μm 범위이므로 QPM 소자를 만들기 위해서는 이 정도 크기의 도메인 패터닝 기술이 필요하였고, 이 때문에 이 기술을 한동안 강유전체 도메인의 마이크로 엔지니어링(micro-engineering)이라고도 불렀다. 액체 전극과 광리소그라피(photolithography) 전극기술에 기반한 상온에서의 전기장에 의한 리튬나이오베이트의 주기적 분극반전이 1990년대초에 구현된 이후로, QPM과 관련한 도메인 패터닝 기술은 빠르게 발전하고 있다. 그 동안 교안된 여러 가지

의 수급이 용이하여 여러 가지 측면에서 연구가 많이 된 물질임에도 불구하고 오랫동안 상온에서는 전기장에 의한 분극반전이 불가능하다고 간주되었다. 그러나 1990년도에 접어들면서 그 우수한 비선형 광학적 성질을 활용하는 QPM 소자의 제작을 위한 상온에서의 주기적인 분극반전이 성공하게 되었고, 이 때문에 오히려 분극반전과 관련된 물리의 연구가 더욱 촉진되었다. 현대 물리학의 초석이라 할 수 있는 상대성이론이나 양자역학의 개념이 도입된 것이 20세기 초의 일이지만 강유전체라는 용어는 1940년이 될 때 까지도 널리 사용되지 못한 개념이었고, 실상 개념이 정립된 것은 1960년대에 이르러서이다. 마찬가지로 강

* 부산대학교 의과대학 의공학과

리튬나이오베이트의 도메인 패터닝

유전체를 재료로 하는 도메인 패터닝의 기술은 아직까지도 기계적 상태에 머물고 있다고 하겠다. 이 글에서는 리튬나이오베이트의 도메인 패터닝의 대표적인 방법인 상온 전기장 분극반전법을 바탕으로 이와 관련한 물리를 살펴보기로 하겠다.

2. 리튬나이오베이트의 상온 전기장 도메인 패터닝

통상적인 상온 전기장 분극반전의 개요를 그림 1에 보였다. 분극이 한 방향으로 정렬된 단결정 기판의 한 면에 반전하고자 하는 패턴의 전극 형상을 만들고 전기장을 가하면 패턴 형상으로 반전 되는 분극이 결정을 통과하여 반대편 면까지 형성된다.

전극 패턴은 QPM 소자를 제작할 경우에는 같은 간격의 띠 모양의 형상이 되겠지만 경우에 따라서는 여러가지 형상과 불규칙한 간격을 지닐 수 있다[21]. 재료의 분극 방향은 주로 그림 1에서 보는 것처럼 수직방향으로 선택하지만 필요에 따라서는 다양한 각도를 선택하기도 한다[15]. 공통적으로 특이한 점은 표면에 형성된 전극에서 결정의 z축을 따라 매우 큰 종횡비(aspect ratio)로 반전 영역이 형성된다는 것이다.

재료인 강유전체 물질은 보통 조화용융조성비(congruent)의 리튬나이오베이트(CLN) 단결정을 사용하지만, 동일 계열의 결정군, 즉 리튬탄탈레이트(LiTaO₃, CLT), 화학당량적(stoichiometric) 리튬나이오베이트(SLN) 및 리튬

탄탈레이트(SLT), 마그네슘 첨가 리튬나이오베이트(MgSLN) 결정 등에도 같은 방법의 적용이 가능하다. 강유전체의 물성이 자발분극 격자들의 장거리 상호작용의 결과로 이해된다면 유사한 결정군에 대한 물성이 대체로 비슷할 것으로 생각할 수 있으므로 이 방법은 보다 일반적으로 적용될 수 있다.

2.1 전극의 형성과정

통상적인 전기장 분극반전 방법에서는 z 축으로 가공된 판상의 결정(wafer)의 표면을 깨끗하게 처리한 다음 +z 면에 포토레지스트(photoresist)를 입히고 리소그래피(lithography) 방법으로 전극을 형성한다. 포토레지스트가 자외선 등에 노광(exposure)되면 그렇지 않은 부분과 현상액에 의해 제거되는 속도가 다른 것을 이용하여 패턴 모양이 새겨진 마스크(mask)의 형상을 결정면에 복사할 수가 있다. 마스크는 필요한 효과를 얻기 위해 미리 설계하고 제작하는데, 대량 생산이 아닌 한 두 번의 시료 제작 과정에서는 가장 비용이 많이 드는 부분이다. 포토레지스트는 절연성이 좋은 아크릴 수지 계통을 사용하는 것이 좋다. 노광된 부분이 현상시 제거되는 포지티브(positive) 레지스트와 노광부분이 남는 네거티브(negative) 레지스트가 있어 적절히 선택하여 사용한다. 포토레지스트를 표면에 고른 두께로 코팅(coating)하기 위해 스핀코터(spin coater)를 사용하고 회전속도를 조절하여 두께를 제어한다. 코팅 두께는 전극의 가장자리 효과로 분극반전핵을 형성하고, 분극이 반전되는 동안 적절한 절연성을 유지할 수 있도록 최종적으로 1~2 μm 정도의 두께가 남을 수 있도록 조절한다[16]. 코팅 후에 용제를 제거하기 위해 통상 80~90℃ 정도에서 30분 정도 노광전 굽기(pre-bake)을 하는데, 리튬나이오베이트는 강한 초전성(pyroelectricity)을 가지므로 가열 및 냉각시 급격한 온도변화에 주의하여야 한다. 특히 항전기장(coercive field)이 낮은 SLN, SLT 등의 재료인 경우 빠르게 냉각하면 표면에 원하지 않는 분극 반전 영역이 생길 수 있으므로 대체로 수십분 이상에 걸쳐 서서히 냉각한다. 다음으로 마스크를 얼라이너(aligner)에 장착하고 결정축 방향을 잘 맞추어 패턴을 노광한다. 분극 반전 영역이 성장하는 방향이 결정축에 따라 다르므로 패턴의 나란한 면이 리튬나이오베이트의 경우는 그림 2에서 보는 y축 방향이 되도록 설정한다. 노광 후 현상을 한 다

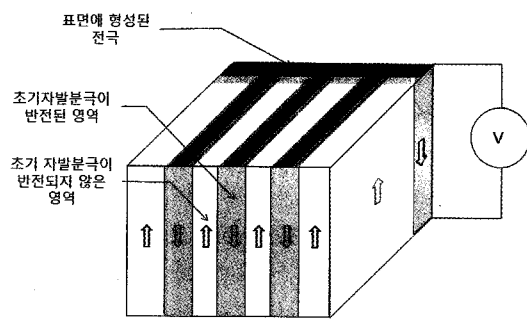


그림 1. 대표적인 도메인 패터닝 소자인 주기적 분극반전 소자의 표면과 단면의 개요도

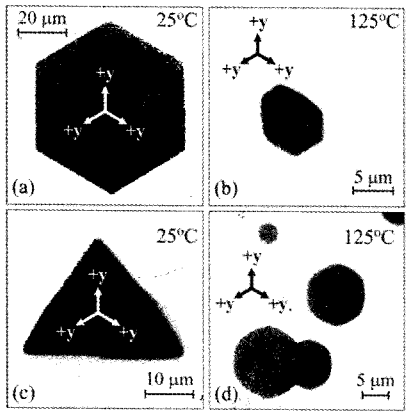
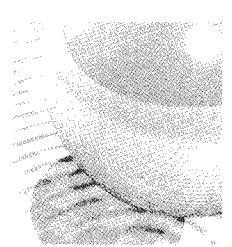


그림 2. Piezoelectric force microscope로 관찰한 도메인 모습. 패턴 형상에 맞추어 결정의 방향을 정해야 한다. (a), (b) congruent 리튬나이오베이트, (c), (d) congruent 리튬탄탈레이트 (23)

음 단단하게 굽기(hard-bake)를 하는데, 보통 110~120 °C 정도에서 1~2시간 이상 충분히 굽는다. 이 과정은 남은 포토레지스트 수지의 감광성을 제거하고 잔류한 용매를 완전히 제거하기 위한 과정이다. 필자가 사용한 포토레지스트 중에는 이정도 온도로 가열하는 과정에서 포지티브에서 네거티브로 성질이 변화하여 여전히 감광성을 가지는 경우가 있어 수지를 안정화하기 위해 보다 높은 온도(150~180°C)로 가열하여야 했다. 높은 온도로 가열하면 포토레지스트가 연화되어 표면이 매끄럽고 부드러운 형상이 되고 결정과의 접촉부분은 표면장력에 의해 자연스러운 기울기 각도와 선 모양이 형성된다. 이 단계에서도 역시 가열 및 특히 냉각 과정에서 초전성에 의한 전압 발생에 주의하여야 한다.

다음 단계로 노광 부위에 잔류할 지 모르는 유기물 등을 완전히 제거하고, 보다 좋은 전극 접촉을 위해 표면을 플라즈마로 에칭 하는 것이 좋다. 경우에 따라서 보다 높은 분극반전 핵화 밀도를 얻기 위해 +z 면에서 분극반전 핵의 밀도를 높여주는 Al, Ni, Cr 등의 금속을 스퍼터링(sputtering) 및 기타 방법으로 증착한다. 이러한 금속들은 산화물 강유전체 결정의 산소 층과 강력하게 결합하여 그 아래 존재하는 양이온 층을 밀어주는 로컬 전기장을 만들어 핵화를 촉진하는 것으로 생각된다. 이들을 -z 면에 증착한다면 분극반전이 억제되는 효과를 얻게 된다. 금속 전극을 증착한 다음에는 보다 강한 가장자리 효과를 얻기 위해 전극 부분 외의 포토레지스트를 제거하고 다시 전체적으로 포토레지스트를 코팅하는 경우도 있다.

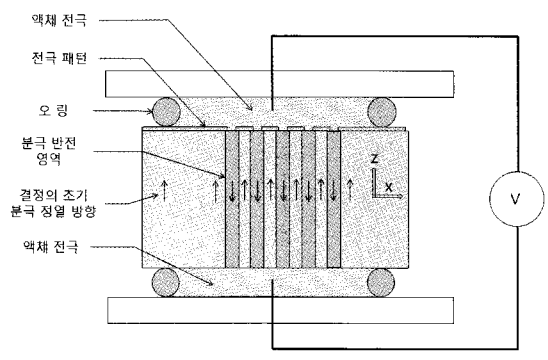


그림 3. 전극이 형성된 시편이 장착된 분극반전장치의 개요도. 패턴이 없는 면은 전체적으로 전극과 접촉하여 전압이 인가된다.

2.2 전압 인가 과정

필요한 만큼의 분극반전 영역을 형성하기 위해서, 전극이 형성된 시편을 그림 3과 같은 형태로 장착하고, 패턴 전극과 반대면의 전극사이에 전류, 전압 혹은 전하량을 제어하면서 일정한 전압이나 혹은 설계된 전압 파형을 걸어 준다.

분극반전이 형성되는 과정은 그림 4에 보인바와 같이 핵화, 결정축 방향의 분역벽 성장, 수평축 분역벽 성장과 억제, 안정화 등의 과정들이 복합되어 있다. CLN의 경우 0.5 mm 두께의 QPM 소자에서 10 μm 이상의 주기적 패턴을 만드는 것은 비교적 쉽지만 그 미만의 주기에서는 재현성 있는 고른 패턴을 얻는 기술이 아직 확립되지 않고 있다. 이것을 이해하기 위해 리튬나이오베이트의 분극반전 과정을 좀더 상세히 이해할 필요가 있다.

2.2.1 절연파괴전압의 관찰

절연 물질에 강한 전기장을 인가하여 유리된 전자가 가속되어 평균자유행로 동안 다른 원자를 이온화 시킬만한 충분한 에너지를 얻으면 결과적으로 전자 사태를 촉발하여 부분적인 전도성 채널이 형성되면서 절연 파괴가 일어난다. 절연파괴전압은 인가되는 전기장의 세기뿐만 아니라 시료의 두께와 인가 펄스의 폭과도 상관관계가 있지만 통상적으로 두께에 비례한다고 볼 수 있다. 그러나 무엇보다도 전극의 형태에 의해 국소적인 집중된 전기장이 형성되면 그 부분을 통해 먼저 절연파괴가 발생한다. 따라서

리튬나이오베이트의 도메인 패터닝

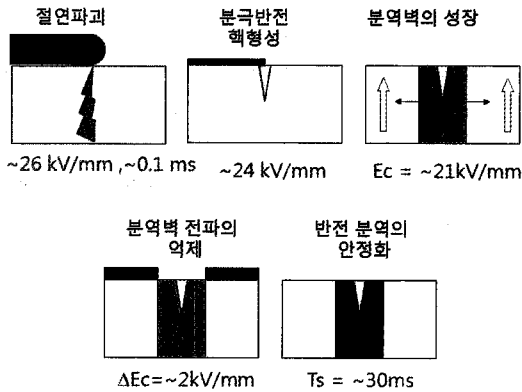


그림 4. 전기장의 세기와 분극반전에 따른 리튬나이오베이트 단결정의 반응

항전기장이 큰 물질의 분극반전에 있어서는 전체적인 전극에서 전기장이 집중될 수 있는 가장자리의 형태를 부드럽게 만들어 주어 인가할 수 있는 전압의 범위를 넓혀 주어야 한다. CLN의 경우 항전기장이 21 kV/mm 정도에 이르므로 전압 인가시 절연 파괴를 막기 위해 둥근 전도성 오링(σ -ring) 등으로 액체전극 주변을 감싸주면 가장자리 전극 모양을 둥글게 만들어 줄 필요가 있다. 공기는 통상 10 kV/cm 정도에서 절연파괴가 일어나므로, 결정주변으로 절연막을 삽입하여 전극간의 간격이 충분히 길게 형성되도록 만들거나, 공기를 제거하여 진공을 만들거나 절연가스(SF₆ 등)를 투입하여 전자사태를 억제하는 분위기를 조성하지 않으면 전극 주변으로 방전이 발생할 수도 있다. 전극 모양과 주변 환경을 잘 조성하더라도 대체로 결정에 인가되는 전기장이 26 kV/mm 정도에 이르기 전에 절연파괴가 발생함을 관찰할 수 있다. 같은 결정군에 속하는 물질이라도 항전기장이 낮은 MgLN이나 SLN 같은 물질의 절연파괴전압은 CLN보다도 훨씬 낮고, 또한 절연파괴는 시료의 두께와 인가 전압의 크기 뿐만 아니라 인가 전압 펄스의 폭과도 관계가 있으므로, 적절한 인가전압파형의 설계를 위해 절연파괴와 인가 전압 펄스폭과의 관계를 실험적으로 평가해 둘 필요가 있다.

2.2.2 분극반전핵의 형성

상온 전기장 분극반전 방법에서 전극의 가장자리의 역할을 잘 이해할 필요가 있다. 그림 5에서 보인바와 같이 각진 전극 패턴의 주변에는 매우 강한 가장자리 전기장

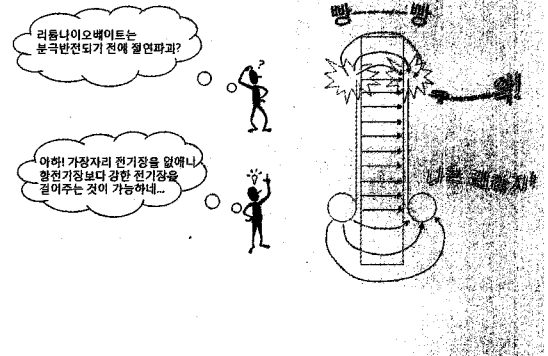
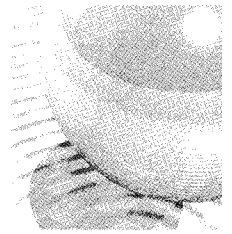


그림 5. 전극 가장자리에 의해 집중된 전기장은 절연파괴를 촉진하므로 둥근 가장자리 전극을 사용하면 더 높은 전기장을 시편에 가할 수 있다.

(fringe field) 이 형성되어 초기 분극반전에 필요한 분극반전핵의 형성에 결정적인 역할을 하는 것으로 알려졌다. 수십 나노미터 미만의 박막이 아닌 이상, 어느 정도 크기를 가진 강유전체 결정에서 분극반전은 결정 전체에서 동시에 발생하는 것이 아니고, 결함 등에 의해 미리 존재하거나 국소적으로 강한 전기장에 의해 발생하는 분극반전핵이 먼저 발생하고 인접 영역으로 분역 벽이 퍼져나가는 형태가 된다. 분역벽의 이동에 의한 분극반전은 핵의 발생과 같은 형태의 분극반전에 비해 훨씬 낮은 전기장에 의해서도 가능하기 때문에 특별한 억제효과가 없는 한, 단 하나의 분극반전핵에 의해서도 결정 전체가 낮은 전압에서 분극반전될 수 있기 때문에 그동안 측정되고 보고된 대부분의 항전기장의 세기는 모두 분역벽의 이동에 대한 항전기장으로 이해되어야 한다. CLN의 경우 우수한 광학결정이라 하더라도 대략 1000개/mm² 정도의 밀도로 반전핵이 관찰된다. 이는 항전기장 수준의 전기장에 의해 생성되었다기 보다는, 결정의 표면 결함 등에 의해 이미 존재하는 핵으로서 인가 전기장의 세기와 관계가 없다. 그러나 이 정도의 밀도는 μm 영역의 패턴 형성에는 턱없이 부족한 밀도로서, 세밀한 패터닝을 위해서는 전극에 의한 분극핵의 형성이 필수적임을 알 수 있다. 통상적 전극형태에서 항전기장 정도의 전압을 인가하면 전극 주변으로는 대략 0.1 ~ 2개/ μm 정도의 선밀도로 분극반전핵이 형성된다고 한다.

분극반전핵은 적어도 수십 nm 이상의 크기에서만 안정되게 형성되므로[17] 전극의 형태나 조성은 이 영역보다 큰 범위에서 핵화에 충분한 전기장을 형성할 수 있도록 설



계할 필요가 있다. 분극반전핵이 형성되면 핵주변으로 분역벽의 이동에 의한 분극반전이 형성되는데는 초기 핵화에 필요한 전기장보다 훨씬 낮은 세기의 전기장이면 충분한 것으로 알려져있다. 이 때문에 복잡한 패턴을 형성할 때는 각 패턴영역마다 적어도 하나의 분극반전핵이 형성되어야 하는데, 일단 핵이 형성되면 더욱 낮은 전압에서 분극반전이 일어나므로 다른 쪽의 핵 형성에 지장을 주게 된다면 좋은 패턴을 얻을 수 없게 된다.

한편 가장자리 전기장 외에도 재료 물질과 전극 접촉 부분간의 화학적 작용에 의해 분극반전핵의 형성이 촉진 혹은 억제되기도 한다. +z 면에 진공증착 혹은 스퍼터링 방법으로 Si 금속 전극을 형성하면 액체전극을 사용한 것보다 핵 형성이 촉진되고 밀도도 높아진다. 대신 -z 면에 Si를 부착하면 핵 형성이 억제된다. 실험적으로는 +z 면에 니크롬을 스퍼터링 방법으로 증착하는 것이 가장 높은 밀도로 핵형성을 촉진하여 결과적으로 분극반전 전압을 2 kV/mm 이상 낮추는 효과를 주는 것으로 알려져 있다[18].

2.2.3 분역벽의 전파와 억제

전극 주변으로 분극반전핵이 형성되면, 전극과 접촉한 부분으로는 도메인 벽의 이동이 빠르게 발생하고 전극이 없는 절연체에 접촉한 부분으로는 도메인 벽 혹은 분역벽이 느리게 이동됨으로써 소위 패턴잉이 완성된다.

분역벽의 수평 이동 속도는 인가되는 전기장의 세기, 분역벽의 형태, 재료의 두께 및 인근 분역벽과의 거리 등의 함수로 알려져 있다. 그림 6은 MgSLT 및 MgSLN에서의

분역벽 이동속도와 전기장과의 관계를 측정된 결과이다. MgSLT에서 보듯이 분역벽의 이동이 개시되는 소위 항전기장의 세기는 두께와 상관없이 일정한 듯 보이나, 분역벽의 이동 속도는 전기장이 항전기장 보다 커지기 시작하면 서부터 지수적으로 증가하다가 어느정도 높은 전기장부터는 전기장의 증분에 선형적으로 비례하는 관계를 보인다. 이러한 양상은 모든 동일계열 결정군에 대해 같은 것으로 측정되고 있다. 이 경향은 결정 축 방향으로 분극반전시 발생하는 이온 전류가 통과하면서 저항과 같이 발생하는 전압 강하 성분만큼 분극반전이 억제된다는 모델로서 설명이 될 수 있다.

한편 빠른 분역벽 이동속도에서 전기장에 대한 기울기는 두께에 반비례하는 것으로 관찰된다. 결정 축 방향으로의 분극반전은 높은 전기장의 세기에서 한계속도가 있고, 그것이 대략 음속과 같다[19]는 다른 연구 결과로 생각해 보면 전체적인 분극반전 속도는 두께에 반비례하는 것이 이해될 수 있다.

그림 6의 오른 쪽의 MgSLN의 경우는 한 결정에서 구별되는 두 종류의 분극반전을 측정된 것이다. 미리 존재하는 분극반전핵에서는 다른 부분에서보다 항전기장이 훨씬 낮은 것을 보여준다. 최근의 측정에 의하면 분역벽의 형태에 따라서도 3~4 kV/mm 이상의 항전기장의 차이가 있었다[20]. 이 때문에 패턴잉 전극 주변에 전압 인가 초기에 임의적으로 형성된 반전핵으로부터 안정된 형태의 분역모양이 형성된다. CLN이나 SLN, SLT 등의 결정에서 대표적인 안정된 도메인의 형태는 결정축 방향에서 보아 육

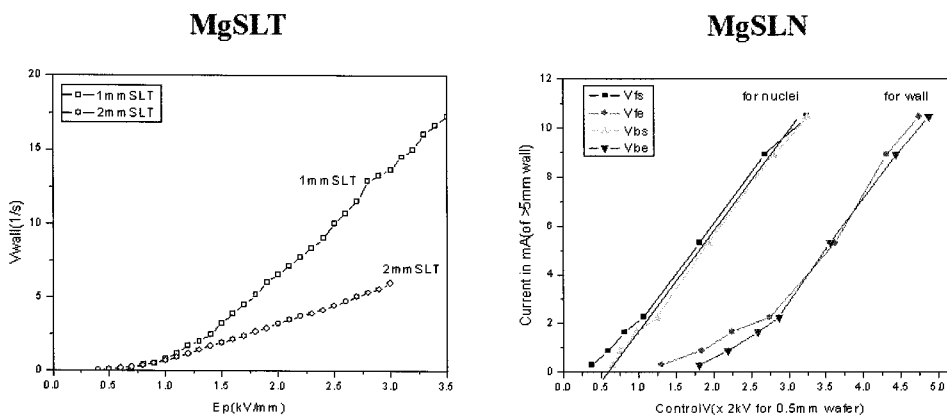


그림 6. 두께 및 분극 형상에 따른 분극반전 전기장과 분역벽 이동속도의 관계

리튬나이오베이트의 도메인 패터닝

각형이다. 새로운 핵의 생성이 없으면 이러한 형태가 완성된 이후로는 전극과 접촉된 부분이라고 하더라도 도메인 벽이 진행하기 위해서는 더 높은 전압을 인가할 필요가 생긴다. 육각형 형태의 분역벽이 외부로 자라나가기 시작하면 다른 도메인에서 자라나온 분역벽과 만나게 되는데 인접한 분역벽이 합치기 위해서도 약간의 장벽이 존재하는 것으로 관찰된다. 그러나 인접한 분역벽이 한부분이라도 합류하면 형태가 불안정한 모양이 되어 수 kV/mm 낮은 전기장에서도 분역벽이 자라게 되어 다시 안정된 형태의 분역벽 모양이 되기까지 빠른 분극반전이 진행되어 Barkhausen 효과로 알려진 급격한 전류가 흐르게 되고 공급되는 전류에 한정이 있으면 전압이 강하하는 것도 관찰하게 된다[20].

한편 분역 벽에서의 새로운 핵 발생이 억제되는 기전에 의해 분역벽의 성장은 제한된다. 결정 표면에서 화학 결합 등의 형태로도 국소적인 분극반전핵의 형성이 억제될 수 있지만, 표면에 부착된 일반적인 절연체에 의해서도 표면 전하가 움직일 수 없게 되어 분역벽의 성장이 억제된다. 전기장 분극반전 방법에 있어서 일반적인 절연체 패턴의 경우 약간의 과전압에 의해서도 패턴의 경계로부터 1~2 μm 정도 분역벽이 침투하는 경우가 발생하므로 녹색이나 청색의 조화파를 발생하기 위한 주기 수 μm 정도의 세밀한 패터닝을 만들 때 유의해야 할 기술적 문제가 된다[20]. 또한 분역벽의 형태에 따라 다른 항전기장의 세기를 충분히 극복할 만큼의 억제력을 가지는 것이 바람직 하지만 그렇지 못한 경우 최적의 패터닝이 되도록 적당한 분극반전

전압의 파형을 인가할 필요가 있다.

2.2.4 반전 분역의 안정화

CLN은 결정 성장시 고온에서 가벼운 Li 이온이 부족하게 조성이 되어 대략 5% 나 되는 Li 결함이 존재한다. 대신에 전체 전하 조성을 유지하기 위해 Nb 이온이 Li-site에 존재하여 분극 방향에 따라 안정된 형태를 지니고 있다. 분극이 반전되면 이러한 결함과 관련된 내부 전기장은 쉽게 사라지지 않고 어느 정도의 시간을 두고 반전된 분극 구조에 따라 재배치하게 된다. 그림 7은 CLN에서의 대략 22 kV/mm 나 되는 항전기장에서, 구별하여 측정할 수 있는 성분 요소를 분석해 놓은 것이다. 그 중 가장 큰 크기를 차지하는 것이 대략 분극반전 후 30~50 ms 정도의 지수 함수적 이완 시간을 가진 내부 전기장으로서는 16 kV/mm 정도의 크기를 가진다. 나머지 오랜 시간 존재하는 내부 전기장은 3.5 kV/mm 정도의 크기로서 결정을 150℃ 정도에서 30분 정도 가열하면 사라지지만 상온에서는 수개월 이상 존재하는 것으로 관찰되었다. 그 외에도 분역벽의 속도가 빠르면 앞절에서 언급된 바와 같이 두께에 비례하여 증가하는 수 kV/mm의 저항성의 전압강하가 발생하지만 이 부분은 분역의 이동이 정지하면 사라지는 성분이다. 결과적으로 리튬나이오베이트의 고유한 항전기장의 크기는 불과 1~2 kV/mm 남짓하므로 분극반전 후 즉시 외부 전기장을 제거해버리면 아직 잔재하는 강한 내부 전기장 때문에 반전된 분극 영역이 재반전되는 현상이 일어난다. 따라서 적어도 내부 전기장의 크기가 항전기장의 크기 이하로 감소할 때까지 대략 50 ms 정도 분극의 재반전이 일어나지 않을 정도(CLN에서는 대략 18 kV/mm 정도)의 외부 전기장을 유지할 필요가 있다. 한편 Mg를 첨가하거나 결함 농도를 보완한 SLN, SLT와 같은 재료에서는 내부 전기장의 세기가 현저하게 줄어들어 이 부분에 대한 방법도 다르게 적용되어야 한다. SLN의 경우 2000년도에 불순물 농도에 따른 내부 전기장의 변화로 예측한 고유 항전기장의 크기가 1 kV/mm 정도였는데 [21], 최근 측정된 바에 의하면 1 mol% MgSLN의 경우 0.8 kV/mm 정도에 0.2 kV/mm 정도의 내부 전기장이 관찰되었다[20].

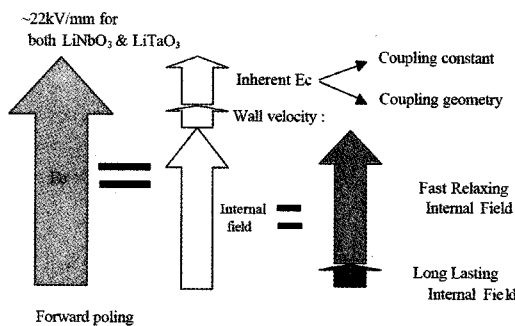


그림 7. 리튬나이오베이트 결정의 항전기장의 구성 요소. 강유전체 자체의 항전장은 전체 22 kV/mm에서 불과 1 kV/mm 이하로 측정되었다[21].

2.2.5 분극반전용 인가 전기장 파형

그림 8 (a)는 이상의 물성을 고려하여 리튬나이오베이트

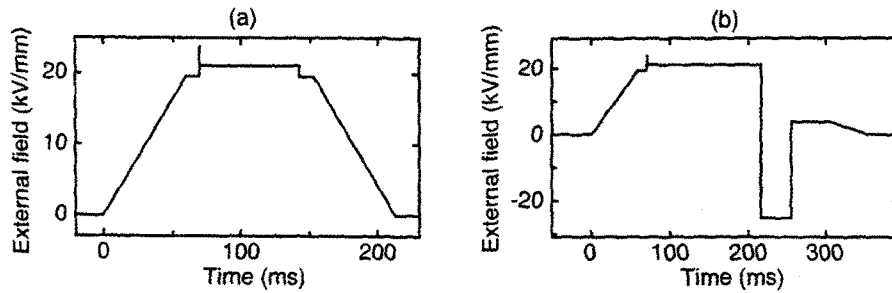
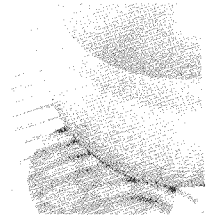


그림 8. 대표적인 리튬나리오베이트 용 도메인 패턴링 파형. 분극반전을 마친 후 일정 시간의 안정화 전기장을 가하는 부분이 있다(22).

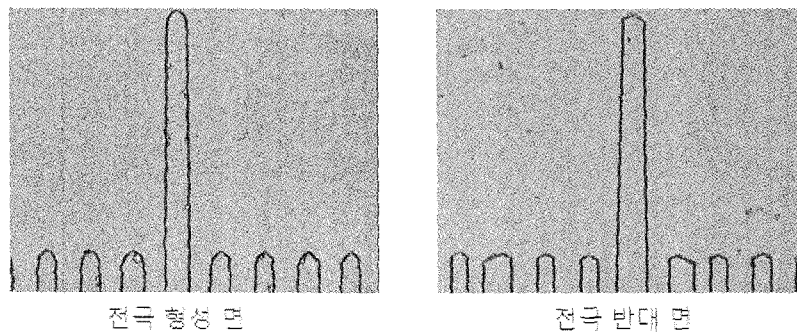


그림 9. HF 로 식각하여 경계면이 확인된 주기 18.5 μm 의 준주기적 분극반전 도메인(21).

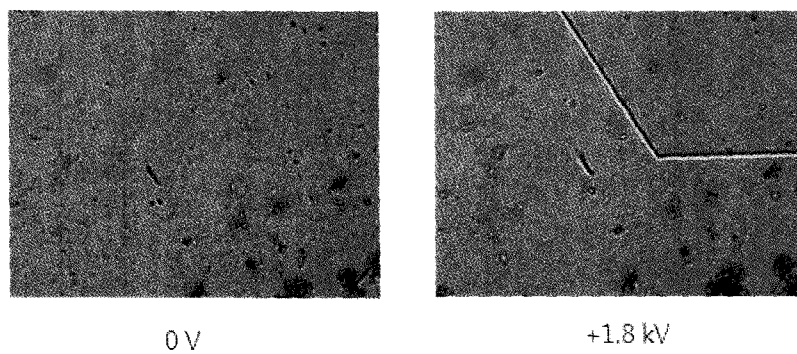


그림 10. 식각하지 않고 전기광학효과로 가시화한 분역벽. 사진 화면의 크기는 1 mm x 1.5 mm 이다.

트의 전기장 도메인 패턴링을 위한 전형적인 인가 전기장 파형이다. 분극반전에 앞서 항전기장 이하의 전압부분은 측정이나 고전압 증폭 장치의 특성을 위해 두는 측면도 있으나, LiCl 포화용액으로 사용하는 액체전극에서 Li 이온

이 결정 내로 확산되면, 결함을 보충하여 항전기장이 낮아지는 효과와, 전극 가장자리에서 분극반전핵이 형성되는 효과도 기대할 수 있다. 항전기장보다 높은 펄스성 전압을 인가하는 초기에는 분역벽의 길이가 얼마되지 않으므로

리튬나이오베이트의 도메인 패터닝

한정된 전류로도 높은 전압을 가할 수 있게 된다. 따라서 높은 전압으로 분극반전핵의 생성을 촉진하는 효과를 기대할 수 있다. 그러나 강한 전기장을 오래 인가하면 절연 파괴의 가능성이 높아지므로 분극반전의 이동이 개시되는 대부분의 분극반전 시간동안은 이 펄스보다 낮은 전압을 인가하는 것이 안전하다. 패터닝에 충분한 전하가 공급되면 항전기장의 크기보다 낮으면서 재반전이 발생하지 않는 전압에서 내부 전기장이 충분히 이완될 시간동안 유지하고 최종적으로 전기장을 제거한다.

인가 파형은 전극의 조건, 기타 소자 제작 방법에 따라 다양하게 변형될 수 있으며, 보다 세밀한 패터닝을 얻기 위한 재반전(backswitching) 형성용 파형이나(그림 8(b)), 더 나은 핵 형성을 위한 다수의 사전 펄스 인가 방법 등 연구팀에 따라 다양한 시도가 되고 있다. 이러한 파형을 일일이 함수 발생기로 발생하는 것이 용이하지 않은데, 국내에서는 지난 2006년부터는 장영실고등학교 학생들이 R&E 연구 일환으로 전용 파형발생기와 PC용 프로그램을 만들어서 국내외 여러 연구 그룹에 보급하여 편리하게 사용하고 있다.

2.3 완성된 패터닝의 관찰

이상의 과정으로 무사히 분극반전을 수행하면 완성된 소자의 품질을 확인할 필요가 있다. 대개 패터닝 할 때 만든 전극부분을 제거한 다음 HF 등으로 식각하여 광학 현미경으로 관찰한다. HF 식각의 원리는 우선 수소 이온이 산소층에 접근하여 산소와 결합하여 산소를 제거하면 불소이온이 노출된 금속 이온과 결합하여 부피가 커진 불화물이 떨어져 나오는 것으로 해석된다. 때문에 +z 방향에는 양이온인 수소이온의 접근이 힘들기 때문에 -z 면이 빨리 식각된다. 그림 9는 식각하여 관찰한 분극반전된 영역이다. 그러나 HF는 매우 위험한 물질로 알려져 있어 취급에 주의를 요하며, 관찰방법이 침습적이고 off-line 적이기 때문에, 그림 10에서와 같이 보다 비파괴적이고 in-situ 관찰이 가능한 방법이 제시되고 있다[20].

3. 마무리 말

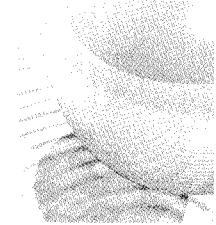
도메인 패터닝이란 결국 물질의 인위적인 조작을 위해

설계된 패턴에 따라 선택적으로 공간적인 물성을 변화 시킨다는 것이다. 도메인 패터닝에 있어서 강유전체가 특별히 선호되는 이유는 원하는 영역의 분극의 방향을 전기장을 가하여 손쉽게 바꿀 수 있는 특성이 있기 때문이다. 반드시 전기장 만이 강유전체의 분극반전을 유도할 수 있는 것은 아니지만, 앞에서 살펴본 전기장에 의한 분극반전 방법과 같이, 비교적 큰 영역의 분극반전을 얻으려면 전기장에 의한 것이 가장 유리하다고 보인다.

도메인 패터닝 과정에는 물질의 물리적, 화학적 기본 성질에 대한 깊은 통찰을 할 수 있는 내용과 기술적인 요소들이 산재하여 있어 교육적 주제로서의 가치도 크다. 지금은 어느 정도 기본적인 물리가 밝혀진 상태지만 아직도 연구해야 할 영역이 많이 남아있다고 보인다. 이 글에서는 하나의 예로서 리튬나이오베이트에 대한 도메인 패터닝을 논했지만 유사한 강유전체 결정군에 대해서는 대체로 같은 접근이 가능할 것이다. 리튬나이오베이트의 도메인 패터닝 방법에 있어 현재의 주요관심사인 자외선 영역의 파장변환과 고효율용 소자의 개발을 위한 기술적 한계를 이해하고, 더 두껍고, 더 강하고, 더 세밀한 패턴의 소자를 위해 개발되는 새로운 재료에 대해 우수한 패터닝 전략을 수립하는데 부족하지만 이 글이 약간이라도 도움이 되기를 바란다.

참고문헌

- (1) S. Miyazawa, J. Appl. Phys. 50, 4599 (1979).
- (2) K. Yamamoto, K. Mizuuchi, K. Takeshige, Y. Sasai, T. Tanichi, J. Appl. Phys. 70, 1947 (1991).
- (3) G. D. Miller, R.G. Batchko, M.M. Fejer, R.L. Byer, Proc. SPIE 2700, 34 (1996).
- (4) S. Zhu, Y. Zhu, Y. Qin, H. Wang, C. Ge, N. Ming, Phys. Rev. Lett. 78, 2752 (1997).
- (5) A. Gruverman, O. Auciello, H. Tokomoto, Annu. Rev. Mater. Sci. 28, 101 (1998).
- (6) H. Hidaka, T. Maruyama, I. Sakai, M. Saitoh, et al., Integr.Ferroelectr. 17, 319 (1999).
- (7) K. Terabe, M. Nakamura, S. Takekawa, K. Kitamura, et al., Appl.Phys. Lett. 82, 433 (2003).
- (8) M. Mohageg, D. V. Strelakov, A. A. Savchenkov, A. B. Matsko, V. S. Ilchenko and L. Maleki, Optics Express, 13, Issue 9, 3408 (2005).
- (9) C. Restoin, C. Darraud-Taupiac, J.L. Decossas, J.C. Vareille, J. Appl. Phys. 88, 6665 (2000).
- (10) W. Hsu, M.C. Gupta, Appl. Phys. Lett. 60, 1 (1993).
- (11) M.C. Gupta, W.P. Risk, A.C.G. Nutt, S.D. Lau, Appl. Phys. Lett. 63, 1167 (1993).



- [12] J. He, S.H. Tang, Y.Q. Qin, P. Dong, H.Z. Zhang, C.H. Kang, W.X. Sun, Z.X. Shen, J. Appl. Phys. 93, 9943 (2003).
- [13] X. Liu, K. Terabe, and K. Kitamura, Japanese. J. Appl. Phys. 44, 7012 (2005).
- [14] X. Liu, K. Kitamura, and K. Terabe, Appl. Phys. Lett. 89, 132905 (2006).
- [15] Y. Lee and T. B. Norris, Laser Focus World, April, p. 67, (2005).
- [16] X. Li, K. Terabe, H. Hatano, and K. Kitamura, J. Cryst. Growth 292, 324 (2006).
- [17] S. Ducharme, V. M. Fridkin, A. V. Bune, S. P. Palto, L. M. Blinov, N. N. Petukhova, and S. G. Yudin, Phys. Rev. Lett. 84, 175 (2008).
- [18] G. D. Miller, Ph.D. thesis, Stanford University (1998).
- [19] W. J. Merz, Phys. Rev. 95, 690 (1954).
- [20] N. E. Yu, J. H. Ro, "In-vivo Domain Wall Visualization of Stoichiometric Lithium Niobate Crystals", unpublished paper.
- [21] J. H. Ro, Ph.D. thesis, Pusan National University (2001).
- [22] G. D. Batchko, G. D. Miller, V. Ya. Shur, E. L. Romyantsev, M. M. Fejer, and R. L. Byer, SPIE Conf. Laser Mater. Crys. Grow. Nonlinear Mater. Dev. 3610, 36 (1999).
- [23] D. A. Scrymgeour and V. Gopalan, Phys. Rev. B 71, 184180 (2005).

약 력



노정훈

• 현재 근무처 :
부산대학교 의학전문대학원 의공학교실(조교수)

• 최종학력 :
부산대학교 물리학과 (박사)

• 주요경력 :
부산대학교병원 의공학과 과장
유메티칼주식회사 이사
부산대학교 BK21 핵심사업팀 박사후 연구원

• E-mail : jhro@pnu.edu
