

Domain formation and expansion during periodic poling of congruent LiNbO₃ using external field

S.W. Kwon^{†*}, W.-S. Yang^{**}, H.M. Lee^{**}, W.K. Kim^{**}, H.-Y. Lee^{**}, D.H. Yoon^{***} and Y.S. Song^{*}

^{*}Department of Materials Engineering, Hankuk Aviation University, Goyang 412-791, Korea

^{**}Nano Bio-photonics Team, Korea Electronics Technology Institute, Bundang 463-816, Korea

^{***}Department of Advanced Material Engineering, Sungkyunkwan University, Suwon 440-746, Korea

(Received November 4, 2005)

(Accepted January 25, 2006)

Abstract When external field was applied to congruent LiNbO₃, it was investigated for domain formation and expansion of LiNbO₃. The domain wall velocities of 0.5 mm thickness LiNbO₃ were 28.70, 16.02 and 5.75 $\mu\text{m}/\text{sec}$ under poling field of 23.5, 22.0 and 21.0 kV/mm, respectively. As 1 M Ω resistor was used in domain inversion system, harmonic domain inversion was not achieved by rapid domain expansion. And 50 % duty cycle periodically poled LiNbO₃ have been fabricated by charge control using 10 M Ω resistor.

Key words Periodically poled lithium niobate, Coercive field, Duty cycle, Domain wall velocity, Quasi phase matching

조화용융조성 LiNbO₃의 주기적 분극 반전 동안 도메인 생성 및 이동에 관한 연구

권순우^{†*}, 양우석^{**}, 이형만^{**}, 김우경^{**}, 이한영^{**}, 윤대호^{***}, 송요승^{**}

^{*}한국항공대학교 항공재료공학과, 고양, 412-791

^{**}전자부품연구원 나노바이오포토닉스팀, 분당, 463-816

^{***}성균관대학교 신소재공학과, 수원, 440-746

(2005년 11월 4일 접수)

(2006년 1월 25일 심사완료)

초 록 조화용융조성 LiNbO₃ 결정에 외부 전계를 인가하였을 때 초기 도메인 생성 및 이동에 관하여 연구하였다. 0.5 mm 두께의 LiNbO₃ 결정에 23.5, 22.0, 21.0 kV/mm의 전계를 인가하였을 때 도메인 벽은 각각 28.70, 16.02, 5.75 $\mu\text{m}/\text{sec}$ 의 속도를 나타내었다. 분극 반전 시스템에 전류 제어를 위한 외부저항으로 1 M Ω 를 사용하였을 시 너무 빠른 도메인 성장으로 인하여 원활한 분극 반전 제어가 이루어지지 않으므로 10 M Ω 외부저항을 사용하여 전하량을 제어하여 50 % duty cycle을 가진 주기적 분극 반전 LiNbO₃ 결정을 제작하였다.

1. 서 론

LiNbO₃는 높은 전기광학, 압전 및 비선형 계수를 갖는 강유전체이다. 최근, LiNbO₃ 결정을 이용하여 결정 내에 주기적 반전 구조를 갖는 periodically poled lithium niobate(PPLN)를 이용한 optical storage 및 optical parametric oscillators(OPOs) 등의 소자제작을 위해 많은 연구가 진행되고 있다[1, 2]. 특히, 이러한 소자는 입사된 빛이 결정내를 진행하는 동안 quasi-phase matching(QPM)에 의해 출력되는 빛의 self-frequency doubling(SFD)

및 secondary harmonic generation(SHG) 등의 현상을 이용하며, 결정내 도메인 반전에 의한 QPM은 반전된 주기의 길이로 동작과장영역을 설정할 수 있기 때문에 매우 중요하다[3].

QPM은 비선형 유전분극의 주기적 반전에 의해 형성된다. 주기적 도메인 반전은 주로 외부전기장의 인가에 의해 이루어진다. 도메인 반전에 필요한 coercive field는 결정성장의 특성에 따라 변한다. Congruent LiNbO₃의 경우 coercive field는 약 21 kV/mm이다. 도메인 반전에서 반전 핵생성과 성장은 주기적 반전의 주요한 요소이다. 반전공정을 제어하기 위해서 전극, 절연재료, 분극반전 전압제어와 결과에 대한 해석의 최적화가 필요하다. 또한, 주기적인 반전을 위한 절연재료의 형상 디자인도 QPM 비선형 결정을 발전시키기 위한 중요한 요소이

[†]Corresponding author

Tel: +82-31-789-7395

Fax: +82-31-789-7399

E-mail: wsyang@keti.re.kr

다. 절연재료의 형상 디자인은 결정의 도메인 반전에 필요한 외부전기장을 인가시키는 전극영역을 결정한다[4-8].

본 연구에서는 Z-cut, 0.5 mm 두께 LiNbO₃ 결정에 주기 16.6 μm와 폭 3.3 μm의 전극영역을 가지고 있는 절연막을 형성하여 23.5, 22.0, 21.0 kV/mm의 전계를 인가하였을 때 도메인 벽 이동속도에 관한 연구와 이를 바탕으로 보다 원활한 분극 반전을 위해 전하량 제어를 하여 50 % duty cycle을 가진 PPLN을 제작하였다.

2. 실험 방법

조화용융조성의 양면이 광학연마된 0.5 mm 두께의 3인치 Z-cut LiNbO₃ 기판(Crystal Tech. Inc)을 사용하였다. LiNbO₃ 기판을 아세톤, NH₄OH : H₂O : H₂O₂ 및 HCl : H₂O : H₂O₂의 용액을 이용하여 초음파 세척기로 세정하였다. 준비된 기판의 +Z면 위에 감광액을 약 3 μm 두께로 도포한 후 사진식각 공정으로 노광 및 현상을 통해 패턴을 형성하였다. Fig. 1에 도메인 반전을 위한 패턴의 모식도를 나타내었다. 주기 16.6 μm와 폭 3.3 μm의 전극영역을 가지고 있는 절연막을 X축을 따라서 패턴을 형성한다. 패턴이 형성된 기판을 50×8 mm² 크기로 절단한 후 도메인 반전을 위한 지그에 샘플을 장착, 외부전계를 인가하여 도메인을 반전시켰다.

도메인 반전 주기의 균일성을 향상시키고 50/50 duty cycle을 가진 PPLN을 제작하기 위해서 전압, 전류 제어 시스템과 공정조건이 최적화 되어야 한다. Fig. 2(a)는 외부전기장과 외부저항에 의한 도메인 벽 이동속도의 연구를 위한 전기장 제어 시스템의 개략도를 보여준다. 도메인 반전 동안 흐르는 전류가 1 kΩ 저항을 적용하여 측정되었고 LiNbO₃ 결정에 가해진 외부전기장이 100 MΩ 임피던스를 가지고 있는 high voltage probe에 의해 측정되었다. 또한, 1 MΩ 저항이 LiNbO₃ 결정에 가해지는 전류흐름을 제어하기 위해 연결되었다. LabView software가 DAQ board를 사용한 제어시스템을 위해 프로그램되고 실험데이터가 도메인 반전공정 동안의 전류, 전압과 전하량의 변화를 연구하기 위해 저장되었다. Fig.

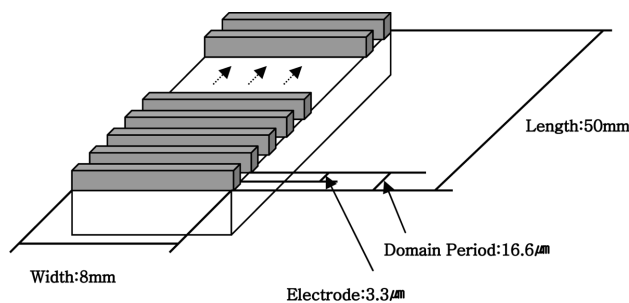


Fig. 1. Design of micro-scale patterned domain period.

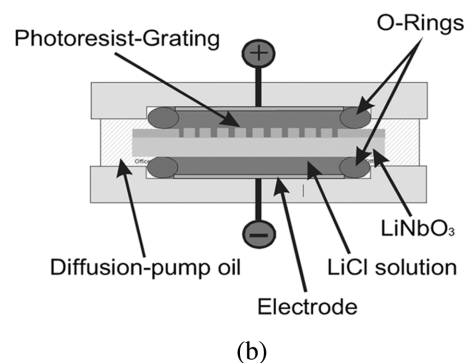
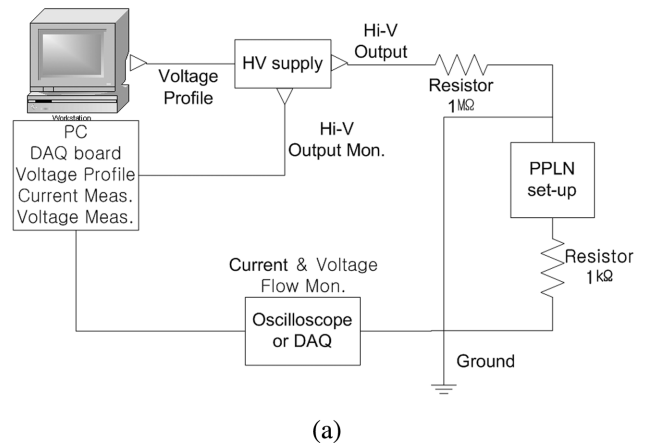


Fig. 2. (a) Circuit diagram of the electric poling system, (b) schematic diagram of the poling jig.

2(b)는 분극반전 지그를 보여준다. 외부전압소스의 전극이 LiCl 전해액에 직접 연결되어 있는 금속전극에 연결되었다. O-ring은 LiCl의 누수와 전류의 누전을 막는데 사용되었다.

도메인 반전된 PPLN이 식각용액(HF : HNO₃ = 1 : 2)에 의해 약 15분 동안 식각되었고 도메인 반전구조가 광학 현미경에 의해 관찰되었다.

3. 결과 및 고찰

본 연구에서는 Fig. 2(a) 시스템 구성도에서 설명한 바와 같이 1 MΩ 저항과 LiNbO₃ 결정을 직렬로 구성하고 이에 외부전압소스를 사용하여 Fig. 3과 같이 전기장을 인가하였다. 실험에서 사용한 전기장은 23.5, 22.0, 21.0 kV/mm의 세가지 조건을 적용하였다. 23.5 kV/mm인 경우에서 전기장값이 초반부에서 다소 떨어진 것은 외부전계 제어 시스템에서 전류값 제한기능을 사용한 결과이다. 본 실험에서 적용한 전류 제한값은 1 mA를 적용하였다. 분극반전 주기를 조절하기 위해서는 LiNbO₃ 결정을 통해 흘러간 전류의 양을 측정하고 이를 조절해야 한다. 전류양은 장비에서 출력된 전압(V₁)과 사용된 LiNbO₃

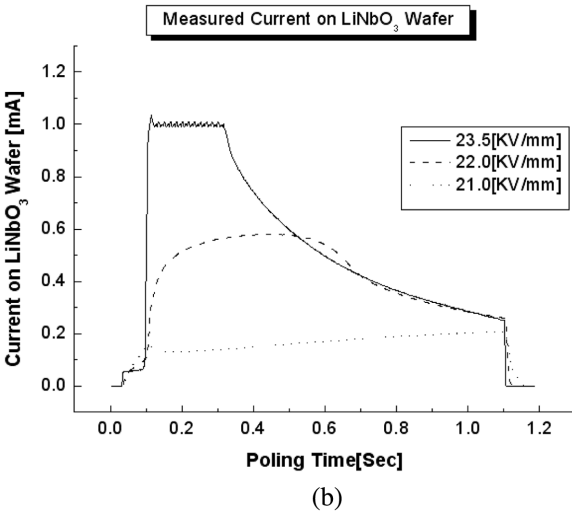
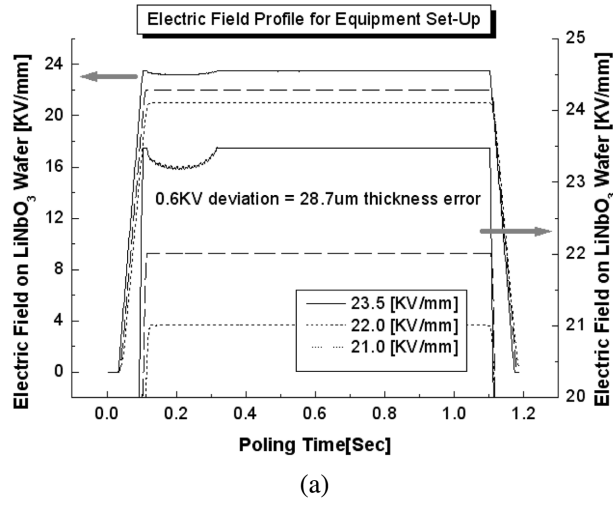


Fig. 3. (a) Three cases of electric field profiles for the power supply, (b) measured current on LN wafer with different electric field.

결정의 coercive field상수값(V_c)과 시스템에 적용된 저항값들로 구성된 다음식과 같이 표현될 수 있다.

$$I_{pol} = \frac{V_1 - V_c}{R_s} - \frac{V_c}{R_{vm}} \quad (1)$$

여기서, 실험에 적용한 LiNbO₃ 결정의 coercive field 값은 대략 21 kV/mm이다.

Fig. 3(b)는 50×8 mm², 0.5 mm 두께를 갖는 LN 칩에 23.5, 22.0, 21.0 kV/mm의 세가지 전기장을 인가한 실험을 한 경우에서의 전류 그래프를 나타낸다. 23.5 kV/mm인 경우의 전류 그래프는 초반부에 1.0 mA를 유지하는 구간이 있음을 볼 수 있다. 이는 Fig. 3(a)에서 설명한 바와 같이 전류값 제한기능을 사용한 결과를 나타낸다. 22.0 kV/mm의 경우 초반부는 전류값이 급격히 증가를 보이고 0.58 mA 정도의 값이 유지된 후 지수형태로 감소하는 형태를 보임을 알 수 있다. 21.0 kV/mm의 경

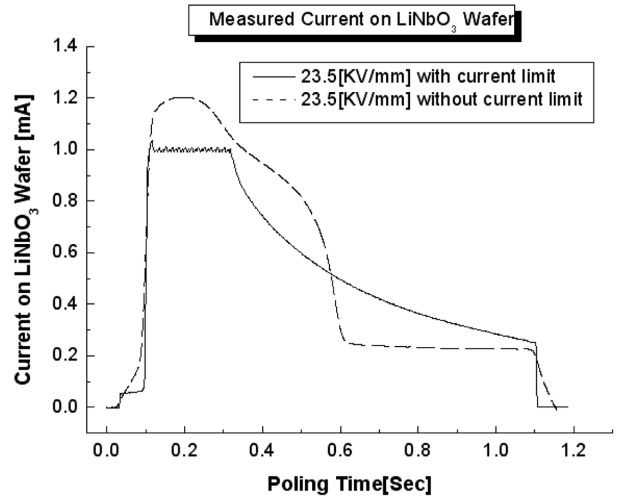
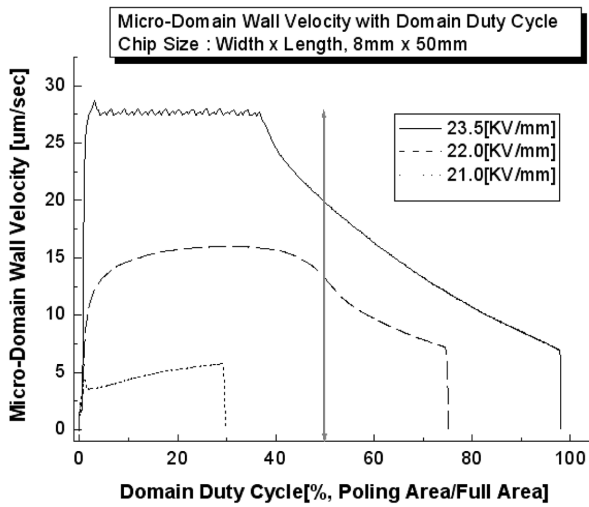


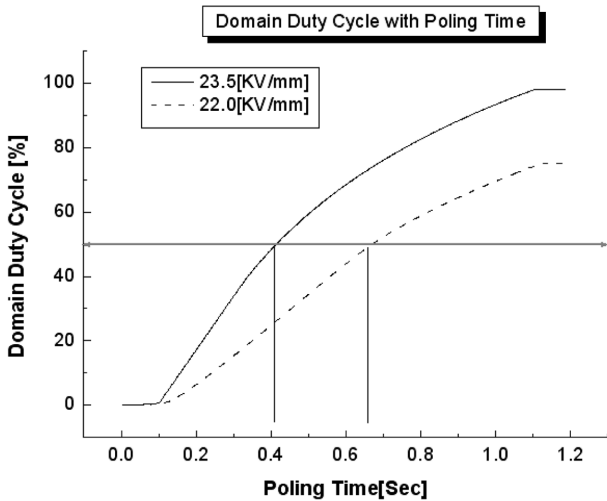
Fig. 4. Measured current on LN wafer with and without current limit.

우는 전류의 급격한 상승구간 없이 완만하게 상승하는 형태를 보인다. 이러한 현상은 외부에 부하된 전기장이 coercive field 값과 비슷한 경우에 발생하며, 도메인 반전 핵생성과 성장이 초반부에 급격히 진행되는 것이 아니라 국부적으로 형성된 후 불균일하게 점차적으로 성장 속도가 증가하는 형태를 보임을 예측할 수 있다. 이는 Fig. 6(c) 에서 확인할 수 있다.

Fig. 4는 power supply 장비의 전류값 제한설정을 사용한 경우와 사용하지 않은 경우에서의 분극반전 시간에 따른 전류값 변화 그래프를 나타낸다. 이때 사용된 외부 전기장은 23.5 kV/mm이다. 전류값 제한설정을 사용하지 않은 경우에는 그림에서와 같이 후반부에 전류의 변화 곡선이 불규칙적인 형태를 보임을 알 수 있다. 반면, 전류값 제한설정을 사용하는 경우에는 그림에서와 같이 후반부에 역지수형태의 일정한 변화곡선을 갖고 있음을 알 수 있다. 이러한 전류값 변화 곡선은 분극반전에 의한 50% 도메인 주기를 갖는 QPM 제작에 가장 중요한 요소라고 할 수 있다. 전류값 변화 곡선이 공정조건에 큰 변화없이 일정할 경우 제작된 QPM의 재현성이 향상될 수 있으며 이를 통해 제작된 소자의 비선형 효율을 극대화할 수 있다. 전류값 제한 설정을 하는 경우 더욱 일정한 전류값 변화 곡선을 얻을 수 있음을 예측할 수 있다. 또한, 일정한 전류값 변화곡선을 유지하면서 분극반전 시간을 길게 유지시킬 경우 50% 도메인 주기를 결정하기 위해 전하량을 사용한 피드백 시스템 제어를 할 경우의 시간적 분해능을 향상시킬 수 있다. 전류값 제한을 설정을 하는 경우 분극반전 시간, 즉 도메인 성장 속도를 지연시키는 효과를 갖고 있음을 알 수 있다. 따라서, 본 연구결과에서와 같이 전류값 제한 설정을 통해 분극반전 실험을 진행하는 것이 50% 도메인 주기를 갖는 QPM 제작에 있어서 향상된 재현성과 반복성을 얻



(a)



(b)

Fig. 5. (a) Micro-domain wall velocity with domain duty cycle, (b) micro-domain duty cycle with poling time the photographs of domain inversion patterns in case of 23.5 kV/mm, 22.0 kV/mm and 21.0 kV/mm.

을 수 있음을 결론지을 수 있다.

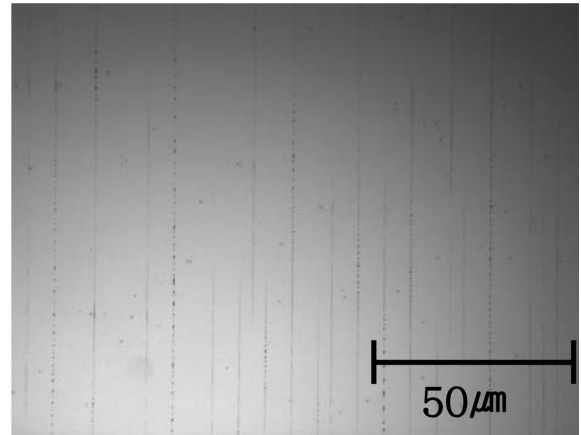
LiNbO_3 결정의 도메인 성장속도는 전류 측정 그래프에서 전하량을 계산한 후, 여기에 spontaneous polarization coefficient 값을 적용함으로써 계산될 수 있다. 이는 다음식과 같이 표현될 수 있다.

$$Q = 2P_s A \quad (2)$$

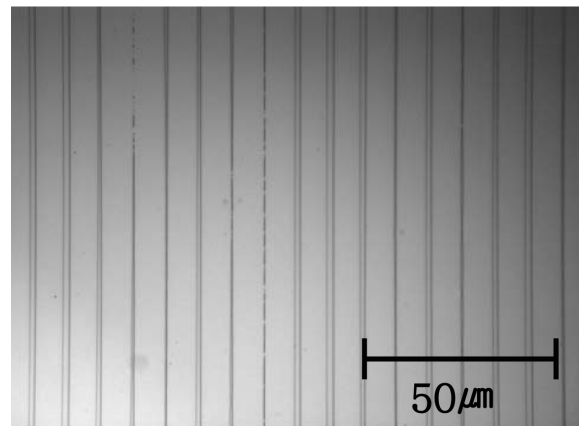
여기서, LiNbO_3 결정의 경우 P_s 는 대략 $71 \sim 78 \text{ mC/cm}^2$ 이다.

상기의 식을 적용하여 23.5 kV/mm, 22.0 kV/mm와 도메인 반전 속도를 분석하면 Fig. 5(a)와 같다. Fig. 5(a)와 Fig. 3(b)를 비교하면 그 형태와 동일함을 알 수 있다. 즉, 도메인 성장속도는 전류의 양으로 조절됨을 알

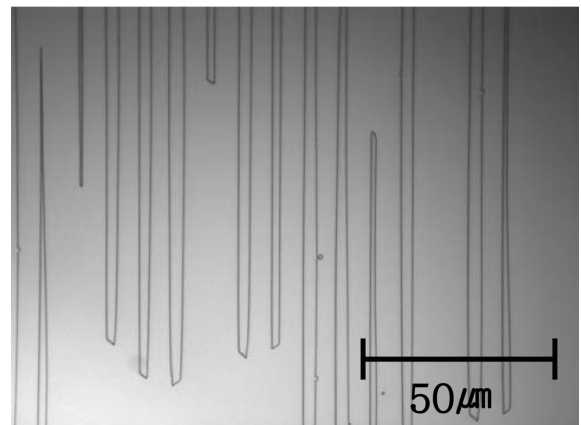
수 있다. 그림에서 가운데 선으로 표시한 것은 50%의 도메인 주기를 갖는 위치를 나타낸다. 21.0 kV/mm인 경우를 제외하면, 50% 분극주기를 갖는 위치가 도메인 성장 속도가 감소하는 영역의 변곡점 부분에 있음을 알 수 있다. 23.5, 22.0, 21.0 kV/mm 외부 전기장하에서 도메인 벽 이동속도가 각각 28.70, 16.02, 5.75 $\mu\text{m/sec}$ 였



(a)



(b)



(c)

Fig. 6. Optical image of etched +Z surfaces in case of (a) 23.5 kV/mm, (b) 22.0 kV/mm and (c) 21.0 kV/mm electric field.

다. 또한, 분극 반전 주기가 50 %에 도달하는 시점을 분석하기 위해 분극반전 시간에 따른 분극 반전 주기 변화 그래프를 Fig. 5(b)와 같이 나타내었다. 23.5 kV/mm인 경우 50 % 도메인 주기 도달 시간은 23.5 kV/mm와 22.0 kV/mm 각각의 경우에서 0.41 sec와 0.66 sec임을 알 수 있다. 21.0 kV/mm인 경우 불규칙적인 도메인 반전 특성을 갖고 있으므로 제외하였다. 1 % 오차를 갖는 분극 반전 주기를 제어하기 위해 필요한 시간은 23.5 kV/mm와 22.0 kV/mm 각각의 경우에서 9 msec와 12 msec임을 알 수 있다.

Fig. 6(a), (b), (c)는 각각 (a) 23.5 kV/mm, (b) 22.0 kV/mm, (c) 21.0 kV/mm 경우에서 결정의 식각결과를 현미경으로 관찰한 사진이다. Fig. 6(a)의 경우는 Fig. 5(a)에서 도메인 반전 주기 결과가 거의 100 %에 도달한 것과 같이 실제 패턴 사진도 거의 전영역에서 분극 반전이 일어났음을 보여준다. Fig. 6(b)의 경우 도메인 반전 주기가 대략 75 %에 도달한 것과 같이 일부 영역에서 주기적으로 도메인 반전이 일어나지 않았음을 보

여준다. Fig. 6(c)의 경우는 외부에서 걸어준 전기장이 coercive field 값과 거의 유사한 경우의 패턴 형상을 나타낸다. 가장 중요한 특징은 핵생성과 도메인 성장이 일정한 방향으로 유지되지 않는다는 것이다. 따라서, 안정적인 도메인 반전을 위해서는 대략 coercive field 값보다 1 kV/mm 이상의 외부 전기장을 가해주어야 균일한 패턴을 갖는 분극 주기를 생성할 수 있음을 알 수 있다.

위의 결과를 토대로 너무 짧은 시간 동안 외부전기장을 인가시켰을 경우 원활한 분극 반전이 이루어지지 않으므로 한계를 개선하기 위해 1 M Ω 저항을 10 M Ω 저항으로 교체하여 전하량 제어를 통하여 50 % duty cycle을 가지고 있는 PPLN을 제작하였다.

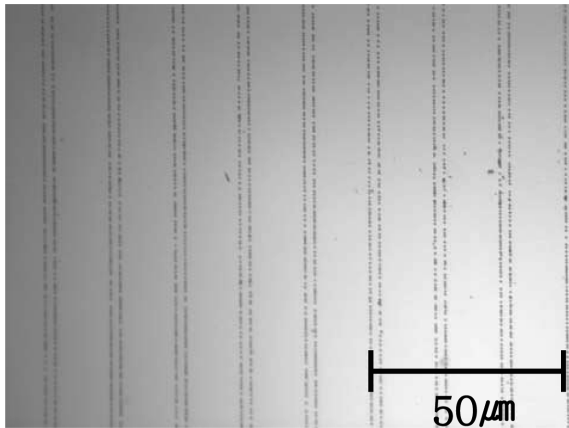
Fig. 7(a)와 (b)는 식 (2)에 의해 전극영역을 계산하여 원하는 면적의 분극 반전을 실행하여 제작된 PPLN의 식각 후 +Z면의 형상을 관찰한 사진이다. Fig. 7(a)는 분극 반전시 도메인 핵생성을 시킨 사진이며 (a)에서 볼 수 있듯이 핵생성시 전극영역의 가장자리에서 도메인 핵이 먼저 생성이 되었다. Fig. 7(b)는 50 % duty cycle 면적의 전하량을 계산하여 외부 전기장에 의해 제작된 주기 30 μ m PPLN 사진이다.

4. 결 론

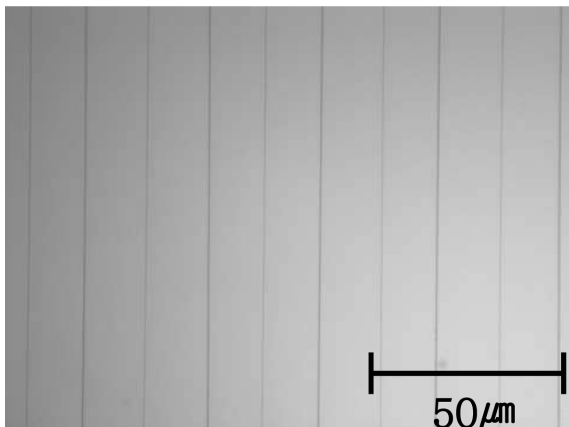
전극, 외부전기장, 시스템과 같은 분극반전 조건의 효과가 bulk PPLN을 제작하여 연구하였다. LiNbO₃ 결정에 X축을 따라서 주기 16.6 μ m와 폭 3.3 μ m 전극영역을 가지고 있는 절연막을 형성하였다. 제작된 결정의 외부전기장을 달리하여 분극 반전시킨 결과 23.5, 22.0, 21.0 kV/mm의 외부전기장하에서 각각 28.70, 16.02, 5.75 μ m/sec의 도메인 벽 이동속도를 나타내었다.

또한, 시스템 회로의 전류값 제한 설정을 하는 경우 일정한 전류값 변화곡선과 분극반전 시간을 길게 유지하는 효과를 얻을 수 있다. 이는 50 % 도메인 주기를 갖는 QPM 제작에 있어서 향상된 재현성과 반복성을 얻기 위한 중요한 요소임을 알 수 있다. 외부 전기장이 coercive field와 유사한 경우 핵생성과 도메인 성장이 일정한 방향으로 유지되지 않는 결과를 보임을 알 수 있었다. 따라서, 안정적인 도메인 반전을 위해서는 대략 coercive field 값보다 1 kV/mm 이상의 외부 전기장을 가해주어야 균일한 패턴을 갖는 분극 주기를 생성할 수 있음을 알 수 있다.

또한 위의 실험결과 시간이 짧을 경우 원활한 분극 반전이 이루어지지 않은 점을 개선하기 위해 1 M Ω 저항을 10 M Ω 저항으로 교체하고 전하량으로 외부전기장을 제어하여 47~55 % duty cycle과 평균 50.96 % duty cycle을 가지고 있는 PPLN을 제작하였다.



(a)



(b)

Fig. 7. Optical image of etched +Z surfaces (a) domain nucleus generation PPLN, (b) 50 % duty cycle PPLN.

참 고 문 헌

- [1] Y. Zhu and N. Ming, "Second-harmonic generation in a Fibonacci optical superlattice and the dispersive effect of the refractive index", *Phys. Rev. B* 42 (1990) 3676.
- [2] L.E. Myers and W.R. Bosenberg, "Periodically poled lithium niobate and quasi-phase-matched optical parametric oscillators", *IEEE J. Quantum. Electron.* 33 (1997) 1663.
- [3] J.A. Armstrong, N. Bliembergen, J. Duccing and P.S. Pershan, "Interactions between light waves in a nonlinear dielectric", *Phys. Rev.* 127 (1962) 1918.
- [4] M. Taya, M.C. Bashaw and M.M. Fejer, "Photorefractive effects in periodically poled ferroelectrics", *Optics Letters* 21 (1996) 857.
- [5] V. Gopalan and M.C. Gupta, "Origin and characteristics of internal fields in LiNbO₃ crystals", *Ferroelectrics* 198 (1997) 49.
- [6] V. Gopalan and M.C. Gupta, "Origin of internal field and visualization of 180 degrees domains in congruent LiTaO₃ crystals", *Journal of Applied Physics* 80 (1996) 6099.
- [7] C. Baron, H. Cheng and M.C. Gupta, "Domain inversion in LiTaO₃ and LiNbO₃ by electric field application on chemically patterned crystals", *Applied Physics Letters* 68 (1996) 481.
- [8] L.E. Myers, R.C. Eckardt, M.M. Fejer, R.L. Byer, W.R. Bosenberg and J.W. Pierce, "Quasi phase-matched optical parametric oscillators in bulk periodically poled LiNbO₃", *J. Opt. Soc. Amer. B* 12 (1995) 2102.

K C I