

## Congruent LiNbO<sub>3</sub> Crystal Periodically Poled by Applying External Field

Soon-Woo Kwon, Woo-Seok Yang,<sup>†</sup> Hyung-Man Lee,\* Woo-Kyung Kim,\*  
Han-Young Lee,\* Dae-Ho Yoon,\*\* and Yo-Seung 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 Materials Engineering, Sungkyunkwan University, Suwon 440-746, Korea

(Received September 29, 2005; Accepted October 27, 2005)

### 외부전계 인가에 의한 조화용융조성 LiNbO<sub>3</sub> 결정의 주기적 분극반전

권순우 · 양우석<sup>†</sup> · 이형만\* · 김우경\* · 이한영\* · 윤대호\*\* · 송요승

한국항공대학교 항공재료공학과

\*전자부품연구원 나노바이오포토닉스팀

\*\*성균관대학교 신소재공학과

(2005년 9월 29일 접수; 2005년 10월 27일 승인)

#### ABSTRACT

When an electric field higher than a characteristic coercive field is applied to a ferroelectric such as LiNbO<sub>3</sub>, the orientation of the spontaneous polarization is reversed, which causes the reversal of the sign of odd-rank tensor properties such as electro-optic and nonlinear optic coefficients. A fabrication process of insulator and periodic external field assisted poling of a z-cut LiNbO<sub>3</sub> have been optimized for a periodic 180° phase inversion along z-axis. The poling jig and the poling control system, fully controlled by a computer, for high quality and reproducible PPLN fabrication have been devised. Periodically polarization reversed PPLN was adjusted based on the fabricated thickness of insulator. The poling structure of PPLN was observed under a microscope after etching PPLN samples by an etching solution (HF:HNO<sub>3</sub>=1:2) for about 15 min.

**Key words** : LiNbO<sub>3</sub>, PPLN, Etching solution, Duty cycle, Nonlinear optic

#### 1. 서 론

LiNbO<sub>3</sub>는 높은 전기광학, 압전 및 비선형 계수를 갖는 강유전체이다.<sup>1)</sup> 최근, LiNbO<sub>3</sub> 결정을 이용하여 결정 내에 주기적 반전 구조를 갖는 Periodically Poled Lithium Niobate(PPLN)를 이용한 optical storage 및 Optical Parametric Oscillators(OPO's) 등의 소자제작을 위해 많은 연구가 진행되고 있다.<sup>2-4)</sup> 특히, 이러한 소자는 입사된 빛이 결정 내를 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.<sup>5-9)</sup>

PPLN의 비선형 특성에 영향을 끼치는 중요 요소는 외부 전계에 의한 도메인의 반전 주기와 duty cycle이다. 고

효율의 특성을 갖는 고품질의 PPLN을 제작하기 위해서는 균일한 주기와 50% duty cycle 구현이 필수적이다. 따라서, 분극반전을 시키기 위한 전압 및 전류의 제어 시스템 및 제작 공정의 최적화가 중요하다.<sup>6,7)</sup>

본 연구에서는 0.5 mm 두께의 조화용융조성 z-cut LiNbO<sub>3</sub> 결정 기판에 외부전계 인가법을 이용하여 16.6 μm 주기의 도메인 분극을 형성시켰다. LiNbO<sub>3</sub> 결정기판 위에 각각 1.7 μm과 3 μm 두께의 절연막을 이용하여 다양한 폭의 전극 패턴을 형성하였으며, 같은 외부전압 조건하에서 도메인 반전을 수행하였다. 외부전압 인가에 따른 도메인 반전동안 출력되는 전류 및 전압을 측정하였으며, 식각되어진 도메인 형상 및 duty cycle에 관하여 논의 하였다.

#### 2. 실험 방법

조화용융조성의 양면이 광학연마된 0.5 mm 두께의 3인치 z-cut LiNbO<sub>3</sub>기판 (Crystal Tech. Inc)을 사용하였다. LiNbO<sub>3</sub> 기판을 아세톤, NH<sub>4</sub>OH:H<sub>2</sub>O:H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> 및 HCl:H<sub>2</sub>O:H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>의 용액을 이용하여 초음파(ultrasonic) 세척기를 이용하여 세정하였다. 준비된 기판의 +z 면 위에 감광액을 약 1.7 μm

<sup>†</sup>Corresponding author : Woo-Seok Yang

E-mail : wsyang@keti.re.kr

Tel : +82-31-789-7355 Fax : +82-31-789-7369

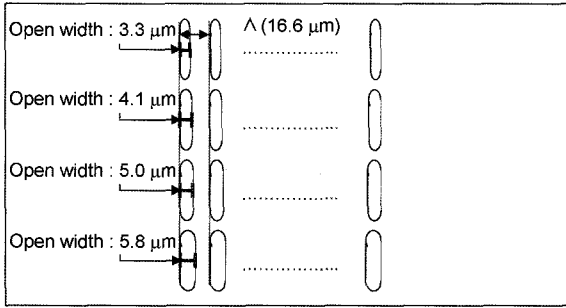


Fig. 1. Period mask patterns for domain reverse.

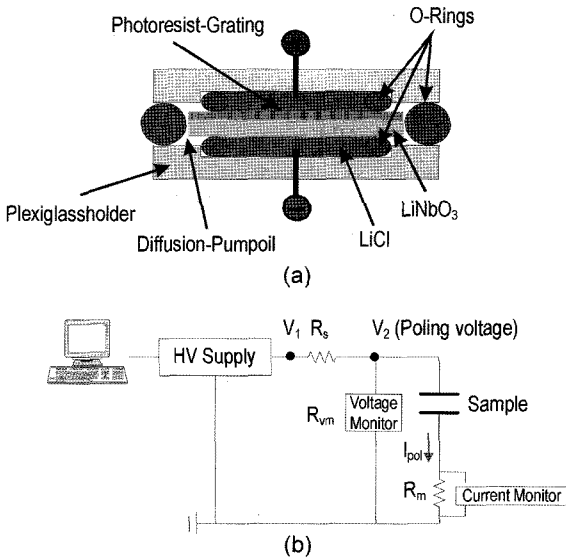


Fig. 2. Poling jig and control system set-up for PPLN fabrication.

와 3 μm로 각각 도포 한 후 사진식각 공정으로 노광 및 현상을 통해 패턴을 형성하였다. 패턴이 형성된 기판을 65×10 mm<sup>2</sup> 크기로 절단한 후 도메인 반전을 위한 지그에 샘플을 장착, 전압을 인가하여 도메인을 반전시켰다.

Fig. 1에 도메인 반전을 위한 패턴의 모식도를 나타내었다. 패턴 내 도메인 주기는 16.6 μm이며, 도메인 반전 후 duty cycle 변화를 알아보기 위해 3.3, 4.1, 5.0, 5.8 μm의 각기 다른 폭의 전극패턴을 제작하였다.

Fig. 2는 분극반전시 사용된 지그 및 시스템의 개략도이다. 도메인 반전을 위해 구동전압( $V_1$ )은 23.4 kV/mm, 반전전압( $V_2$ )은 21.6 kV/mm을 사용하였고, 전류의 흐름을 조절하기 위해 100 MΩ( $R_{vm}$ ), 1 MΩ( $R_s$ ), 1 kΩ( $R_m$ ) 저항을 각각 사용하였다. 또한, 패턴이 형성된 결정에 외부전압을 인가하기 위해 결정과 전극사이에 LiCl 전해용액을 사용하였으며, 고무오링을 이용하여 전해용액의 방출을 막고 오링 외부는 실리콘 오일을 이용하여 인가된 전압에 대한 누설전류를 억제하였다.

제작된 분극반전 LiNbO<sub>3</sub> 결정의 도메인 형상 및 duty

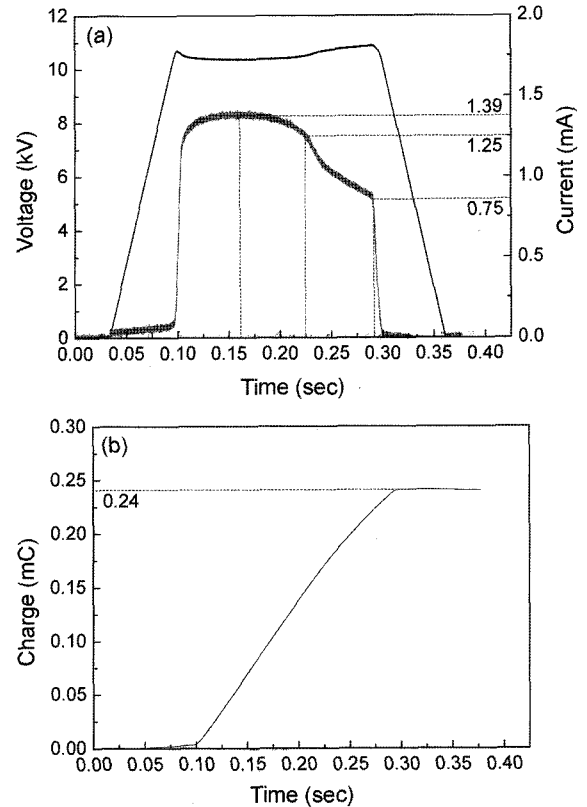


Fig. 3. Applied voltage, current and charge profile from control system for poling (1.7 μm PR thickness).

cycle 분석을 위해, 도메인 반전 된 결정을 +y 방향으로 절단 및 연마하여 약 15분 동안 식각(HF : HNO<sub>3</sub> = 1 : 2)한 후 결정 방위에 따른 반전형상을 광학현미경을 통하여 관찰하였다.

### 3. 결과 및 고찰

Fig. 3(a) 및 (b)는 1.7 μm 절연막 두께 패턴을 갖는 결정에 인가된 전압과 이에 따른 전류와 전하량의 변화를 나타내었다. Fig. 3(a)에서 전류량 1.25 mA까지의 전류의 흐름은 절연막 가장자리에서 핵 생성 후, 핵 성장에 의한 도메인 벽이 생성되어 절연막으로 도포된 영역과 도포되지 않은 영역으로 도메인 벽이 이동을 하게 되는데 절연막이 도포되지 않은 영역에서 양쪽 도메인 벽이 만나게 되어 전부 분극반전 될 때까지의 전류의 흐름을 보여주고 있다. 0.75 mA로의 전류량 감소 곡선은 절연막으로 도포된 영역으로 도메인 벽이 이동하여 분극반전되는 영역의 전류 흐름을 나타낸다. Fig. 3(b)은 도메인 반전을 시키는데 사용된 총 전하량값 0.24 mC을 나타내었다.

Fig. 4(a) 및 (b)는 3 μm 절연막 두께 패턴을 갖는 결정에 인가된 전압과 이에 따른 전류와 전하량을 나타낸다. Fig. 4(a)에서 전류량의 흐름을 보면 1.45 mA와 1.0 mA의

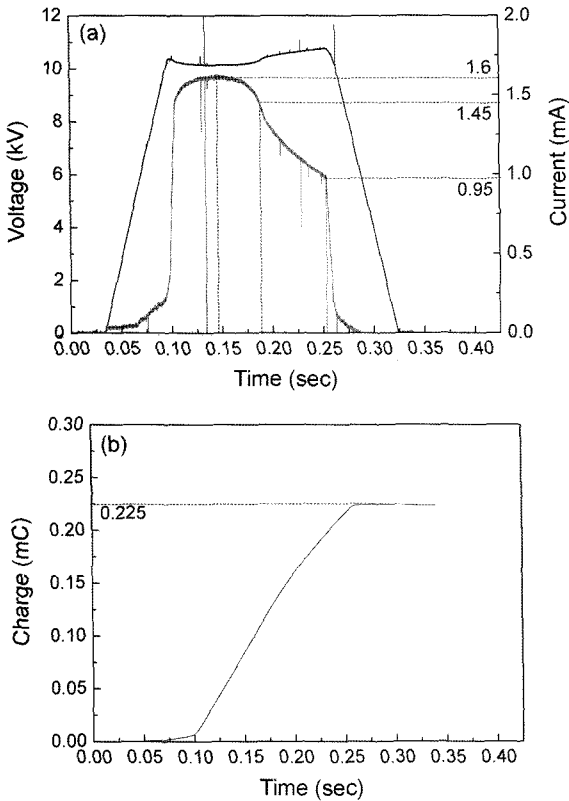


Fig. 4. Applied voltage, current and charge profile from control system for poling (3.0 μm PR thickness).

두 영역으로 나누어 볼 때, 1.45 mA까지 전류의 흐름은 절연막이 도포되지 않은 영역에서 분극반전이 일어날 때까지의 전류흐름과 1.0 mA까지 전류흐름은 절연막 도포된 영역에서의 분극반전으로 나누어 볼 수가 있다. 도메인 반전을 위한 총 전하량은 0.225 mC를 나타내었다. Fig. 3(a)와 4(a)에서 최고 전류량의 차이는 두 기판의 두께에 따른 오차의 결과로 생각되어지며, 최종 전하량의 차이는 절연막의 두께가 다르기 때문에 전기장이 미치는 범위가 달라졌음을 의미한다. 절연막의 두께가 얇을 경우 전기장이 미치는 범위가 더 넓어져서 더 높은 전하량이 흐르고 절연막의 두께가 두꺼울 경우 상대적으로 전기장이 미치는 범위가 더 적으므로 더 낮은 전하량 흐름을 나타낸다.

분극반전된 결정을 광학현미경으로 관찰하기 위해 LiNbO<sub>3</sub> 식각용액(HF:HNO<sub>3</sub>=1:2)에 약 15분 동안 식각시킨 후 광학현미경으로 +z과 -z면을 관찰하였다. LiNbO<sub>3</sub>의 식각속도가 +z면보다 -z면에서 더 빠르기 때문에 +z면과 -z면의 높이차로 인하여 주기적으로 분극반전된 영역을 볼 수가 있다.<sup>8)</sup>

Fig. 5(a)와 (b)는 분극반전시킨 1.7 μm 절연막 두께의 결정을 LiNbO<sub>3</sub> 식각용액(HF:HNO<sub>3</sub>=1:2)에 약 15분 동안 식각시킨 후 광학현미경으로 관찰한 +z과 -z면을 나타낸다. +z면의 경우 패턴의 형상대로 주기적인 분극반전이

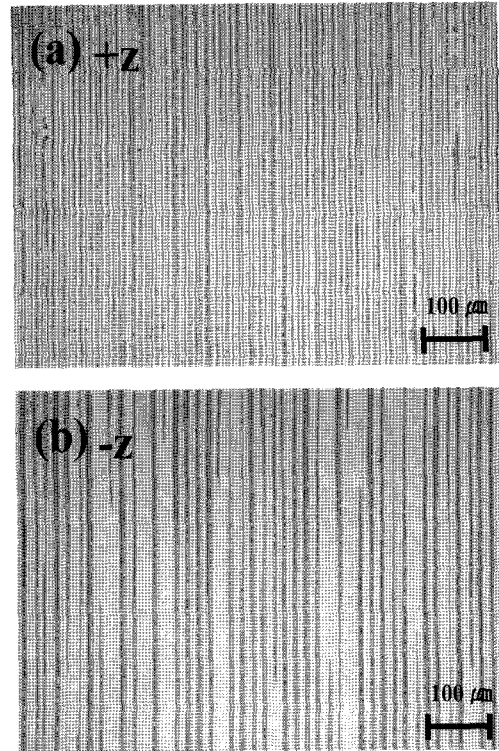


Fig. 5. Etched +z and -z surface shape of fabricated PPLN (1.7 μm PR thickness).

이루어진 것을 볼 수가 있으나 -z면에서는 패턴의 형상이 아닌 임의대로 주기가 합쳐진 형상을 볼 수가 있다. 이와 같은 형상은 절연막의 두께가 낮음으로 인하여 절연역할을 하지 못하고 절연막 아래에서 핵이 생성되었거나 도메인 벽이 절연막 아래로의 이동으로 인하여 원하지 않는 영역까지 분극반전이 일어났다고 생각된다.

Fig. 6은 분극반전시킨 3 μm 절연막 두께의 결정을 LiNbO<sub>3</sub> 식각용액(HF:HNO<sub>3</sub>=1:2)에 약 15분 동안 식각시킨 후 광학현미경으로 관찰한 +z, +y 및 -z 식각면에 대한 결과이다. (a)와 (c)의 경우 패턴의 형상대로 주기적인 반전이 일어난 것을 확인할 수가 있다. 앞의 1.7 μm 절연막 두께의 결정과는 달리 -z면에서도 주기적인 반전이 일어난 것으로 봐서 절연막이 절연역할을 함으로 전기장의 차단이 잘 되었다고 생각된다. 이 형상이 결정의 중간에서도 같은 형상을 보이게 하는지를 확인하기 위해 +y면을 다이싱한 후 광학현미경으로 관찰하였다. (b)에서 보이듯이 +z면에서 -z면까지 분극반전된 영역이 이어진 것을 볼 수가 있었다.

Fig. 5(b)와 6(c)에서 볼 수 있듯이 전하량이 증가할수록 도메인 벽의 이동범위가 더 넓어지는 현상을 볼 수가 있다. 1.7 μm 절연막 두께의 결정에서 절연막이 절연역할을 제대로 하지 못하였기 때문에 더 많은 전기장의 영향을 받은 것으로 생각된다. 따라서 1.7 μm 절연막 두께의 결

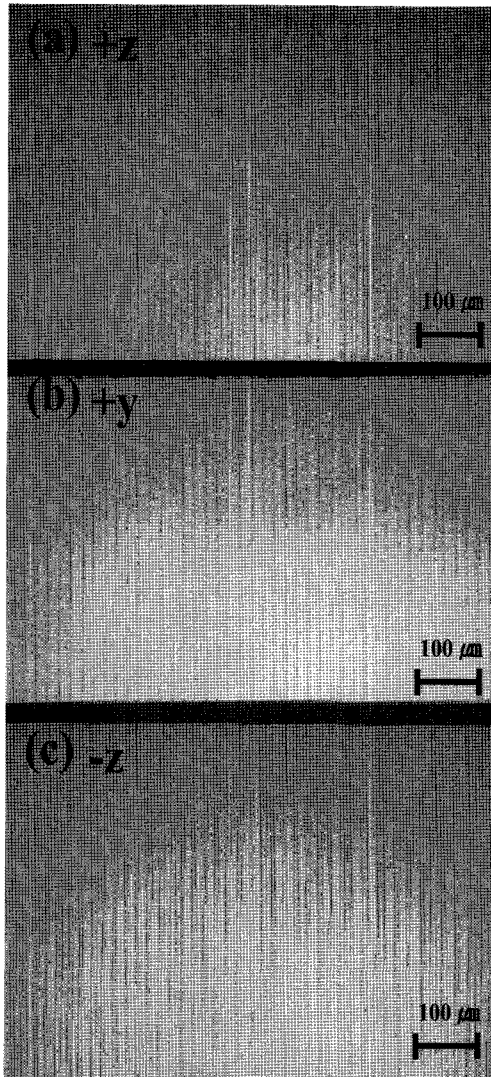


Fig. 6. Etched +z, -z surface and cross section (+y face) shape of fabricated PPLN (3.0  $\mu\text{m}$  PR thickness).

정의 결과를 토대로 절연막의 두께를 조정하여 전압을 인가해 본 결과 Fig. 6(c)와 같이 -z면이 주기적으로 반전된 영역을 확인할 수가 있었다.

Fig. 7에서 3  $\mu\text{m}$  절연막 두께에서 분극반전후의 평균 duty cycle을 측정해 본 결과 3.3, 4.1, 5.0, 5.8  $\mu\text{m}$  패턴을 가지고 있는 각각의 평균 duty cycle이 49.9, 54.6, 61.4, 67.5%를 나타내었고 3.3  $\mu\text{m}$  패턴일 경우 50% duty cycle을 나타냄을 확인하였다.

#### 4. 결 론

16.6  $\mu\text{m}$  주기를 갖는 고품질 PPLN을 LiCl 전해용액을 이용하여 제작하였다. 1.7  $\mu\text{m}$  두께 주기 패턴의 경우 외부 인가전계에 대한 완전한 차단을 하지 못했으며, 이러한 결과로써 도메인의 분포가 불균일 하고 -z면에서 도메

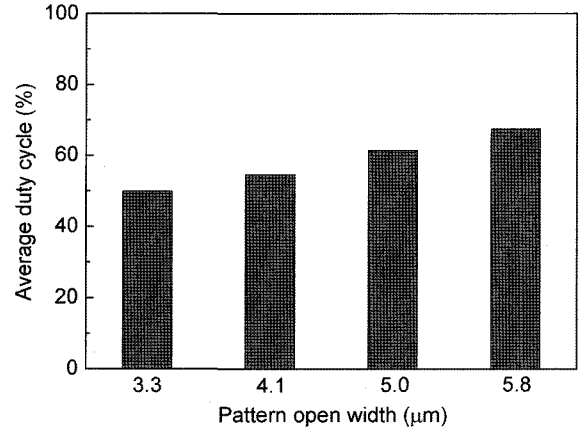


Fig. 7. Average duty cycle for periodic mask pattern after poling (3.0  $\mu\text{m}$  PR thickness).

인의 주기가 합쳐지는 현상이 관찰 되었다. 3  $\mu\text{m}$  두께 주기 패턴의 경우 +z면서 시작된 도메인반전이 -z면까지 균일하게 반전이 되었으며, 전체적인 도메인 반전의 균일성도 우수하였다. 또한, 외부전계가 인가되는 오픈패턴을 각각 3.3, 4.1, 5.0, 5.8  $\mu\text{m}$ 로 제작하여 도메인 반전 해본 결과 3.3  $\mu\text{m}$ 에서 duty cycle이 50% 달성되었다.

#### REFERENCES

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** 3676-79 (1990).
2. L. E. Myers, R. C. Eckardt, M. M. Fejer, and R. L. Byer, "Multigrating Quasi-Phase-Matched Optical Parametric Oscillator in Periodically Poled LiNbO<sub>3</sub>," *Opt. Lett.*, **21** 591-93 (1996).
3. L. E. Myers and W. R. Bosenberg, "Periodically Poled Lithium Niobate and Quasi-Phase-Matched Optical Parametric Oscillators," *IEEE J. Quantum. Electron.*, **33** 1663-72 (1997).
4. P. E. Britton, D. Taverner, K. Puech, D. J. Richardson, P. G. R. Smith, G. W. Ross, and D. C. Hanna, "Optical Parametric Oscillation in Periodically Poled Lithium Niobate Driven by a Diode-Pumped Q-switched Erbium Fiber Laser," *Opt. Lett.*, **23** 582-84 (1998).
5. J. A. Armstrong, N. Bliembergen, J. Ducuing, and P. S. Pershan, "Interactions between Light waves in a Nonlinear Dielectric," *Phys. Rev.*, **127** 1918-39 (1962).
6. M. Nakamura, M. Kotoh, H. Taniguchi, and K. Tadatomo, "Bulk Periodically Poled MgO-Doped LiNbO<sub>3</sub> by External Electric Field Application," *J. Appl. Phys.*, **38** 512-14 (1999).
7. Y. Cho, S. Kazuta, and H. Ito, "Scanning-Nonlinear-Dielectric-Microscopy Study on Periodically Poled LiNbO<sub>3</sub> for a High-Performance Quasi-Phase Matching Device," *Appl. Phys. Lett.*, **79** 2955-57 (2001).
8. B. Vincent, A. Boudrioua, R. Kremer, and P. Moretti, "Second Harmonic Generation in Helium-Implanted Periodically Poled Lithium Niobate Planar Waveguides," *Opt. Commun.*, **247** 461-69 (2005).