

폴링된 폴리머 광도파로를 이용한 Cerenkov 형 제2고조파 생성

(Cerenkov type second harmonic generation in poled Polymer waveguide)

金應秀 * , 趙元珠 **

(Eung-Soo Kim and Won-Ju Cho)

요 약

도파로 구조를 이용하여 단파장의 광을 발생시키는 파장변환소자를 개발하여 녹색, 근자외영역의 제 2 고조파 (SHG)를 관찰하였다. 기판위에 형성되는 도파로 재료로는 유기 polymer인 PMMA (polymethylmethacrylate)층에 DR 1 (Disperse Red 1)분자를 결합시킨 poly(MMA-co-DR1MA)를 사용하여 기판위에 도파로를 형성하였다. Copolymer의 비선형성을 증가시키기 위하여 poling처리를 한 후, 기본파로써 Q-switched Nd-YAG laser (1064nm)와 Ti-sapphire laser (740nm)를 이용하여 Cerenkov 위상정합법에 의해 단파장의 제 2 고조파를 관찰하였다. 도파로의 막 두께는 이론계산을 통하여 결정하였는데, 이는 실험과 일치하는 좋은 특성을 나타내었다.

Abstract

Optical broadband second harmonic generation (SHG) in thin film waveguide structure was investigated. The copolymer poly(MMA-co-DR1MA) which was consisted of PMMA (polymethylmethacrylate) and DR 1 (Disperse Red 1) was spin coated on the pyrex substrate. The green and near UV SHG were observed from the fundamental beam even though the poled polymer has the absorption in second harmonic wavelength range. It was able to generate SHG by Cerenkov type phase matching. The poled polymer film thickness was decided by theoretical analysis. The green (532nm) and near UV SHG (370nm) were observed from the Q-switched Nd-YAG laser (1064nm) and Ti-sapphire laser (740nm). It was in good agreement with the experimental results.

I. 서 론

최근 광에 대한 관심이 높아지면서 광을 응용한 기술이 많은 주목을 받고 있다. 특히 optical switch, electrooptics, frequency conversion등을 위해서 비선형광학에 대한 연구가 활발히 진행되고 있다^[1-8].

이중에서도 2차 비선형광학현상을 이용한 제 2 고조파(second harmonic generation, SHG)에 대한 연구가 많이 되고 있다. 2차 비선형광학현상을 이용하여 제 2 고조파에 의한 단파장의 광원은 광메모리의 밀집도를 높이고, 계측기에서의 정밀도를 높이고, 집적회로 소자공정의 광원용으로 이용될 수 있기에 산업계에서 강력히 요구되고 있는 실정이다. 단파장을 실현하기 위해서는 반도체 laser개발^[9-12], 비선형광학현상^[4-8]을 이용하는 방법이 많이 연구되고 있다. 반도체 laser의 경우는 II-VI족 화합물인 GaN, ZnS를 이용하여 청색의 광을 발전 시켰지만 상용화하기에는 해결되어야 할 문제점이 많이 남아있다. 따라서 실현가능

* 正會員, 釜山外國語大學校 電子工學科

(Dept. Electronic Engineering, Pusan University of Foreign Studies)

** 正會員, LG 半導體 ULSI研究所

(ULSI Lab. LG Semicon Co. Ltd)

接受日字:1998年4月8日, 수정완료일:1998年5月28日

성이 높은 것은 2차 비선형광학현상을 이용하여 파장 변환을 하는 것으로 이에 대한 연구가 가장 주목을 받고 있다. 이러한 비선형광학현상을 실현하기 위해서는 중심대칭성이 없는 재료가 이용되어야만 한다. 현재 많이 이용되고 있는 재료로는 무기, 유기재료이고 이러한 비선형광학재료에 대한 연구결과가 많이 보고되고 있다^[13,14]. 무기재료는 기계적 강도가 크고, cutoff frequency가 짧고, 단결정 성장기술이 발달되어 있는 장점이 있지만 비선형광학특성계수가 작기 때문에 유기재료에 대한 관심이 높아지고 있다. 유기재료의 장점으로는 비선형광학특성계수가 크고, 빠른 응답, 구조설계의 용이, laser power에 대한 damage 한계치가 높다.

본 연구에서는 유기 polymer [poly(MMA-co-DR1MA)]를 이용하여 2차 비선형광학현상에 의하여 넓은 범위의 파장을 갖는 소형의 단파장 광원을 개발하는 것이다. 단파장광을 발생시키기 위한 소자구조로서는 도파로구조를 이용하였다. 이러한 도파로 구조는 기본파power밀도를 높이고, 상호작용장을 길게 하는 장점이 있다. 한편 제 2고조파를 발생시키기 위해서는 기본파와 제 2 고조파 사이의 위상정합(phase matching)이 필요한데, 이 위상정합을 실현하기 위해서 ①기본파 도파 mode에 의한 도파 mode의 제 2 고조파 발생 (guided phase matching)^[4], ②기본파 도파 mode에 의한 방사 mode의 제 2 고조파 발생 (Cerenkov phase matching)^[5,15], ③비선형광학정수의 분극반전을 이용한 의사 위상정합 (quasi-phase matching)^[7,8] 법의 3가지 방법이 많이 이용되고 있다. Guided phase matching의 경우, 위상정합을 실현하기 위한 도파로 막 두께 조절이 어려운 단점이 있고, quasi-phase matching의 경우는 위상정합을 실현하기 위한 비선형광학정수의 분극반전주기를 정확하게 조절해야하는 단점이 있다. 그래서 본 연구에서는 위상정합을 실현하기 위한 도파로 막 두께 조절이 쉬운 Cerenkov 위상정합법을 채택하여 가시영역의 녹색과 근자의 영역의 제 2고조파를 관찰하였다.

II. 이 론

기본파로부터 제 2 고조파를 발생시키기 위해서는 기본파와 제 2 고조파사이의 위상정합이 필수조건이다. 본 연구에서는 기본파의 도파 mode가 도파로를 전파

할때, 기본파로부터 발생되는 제 2 고조파가 기본파의 도파방향과 α 의 각으로 기관으로 방사되는 Cerenkov위상정합법을 채택하였다. Cerenkov 위상정합법에 의해 그림 1에 보이는 3층 도파로 구조에서 기본파로부터 발생되는 제 2 고조파 power는 아래 식으로 표현된다. 여기서 도파로막의 비선형성을 유효하게 이용하기 위하여 기본파는 TM 편광이 되도록 하였고, 기본파 power의 감소는 무시하였다.

$$P^{2\omega} = \frac{\sqrt{2}\pi \omega^2 d^2 L (n_{eff}^\omega)^4 (P^\omega)^2 S^2}{c^3 \epsilon_0 (W_{eff}^\omega)^2 D (n_{3x}^{2\omega}) \sin \alpha} \quad (1)$$

$$S = \frac{1}{(n_{2x}^\omega)^4 (n_{2x}^{2\omega})^2} \int_{-\infty}^{\infty} (H_y^\omega)^2 (H_y^{2\omega}) dx \quad (2)$$

여기서 ω 는 기본파, 2ω 는 제 2 고조파, d 는 재료의 비선형광학정수인데 본 연구에서는 polymer를 사용하였기에 polymer의 비선형광학정수중에서 제일 큰 d_{33} 을 이용하였다. (n_{eff}^ω) 는 도파로에서의 기본파에 대한 효과굴절율, P^ω 는 기본파 power, L 는 상호작용장, D 는 beam width, $(n_{3x}^{2\omega})$ 는 기관의 제2고조파에서의 굴절율, (W_{eff}^ω) 는 기본파의 도파 mode에서의 효과 막 두께를 나타낸다. x 는 도파로 두께방향을 나타내고, 기본파의 진행방향은 z 방향이다. S 는 기본파와 제 2 고조파와의 중첩적분으로 비선형성이 있는 층에만 해당되는 것으로 본 연구에서는 도파로 막 두께까지 적분하면 된다. (n_{2x}^ω) 는 기본파에서 도파로 굴절율, $(n_{2x}^{2\omega})$ 는 제 2 고조파에서의 도파로 굴절율을 의미한다. α 는 Cerenkov angle로써 식 (2)로 표시되어진다.

$$\alpha = \cos^{-1} \left(\frac{n_{eff}^\omega}{n_{3x}^{2\omega}} \right) \quad (3)$$

식 (1)에서 알 수 있듯이 제 2 고조파 power를 크게 하기 위한 중요한 요소로는 기본파와 제 2 고조파와의 중첩적분과 재료의 비선형광학정수 등이다.

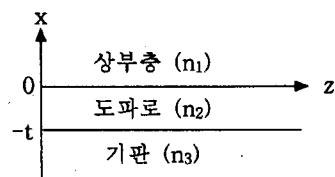


그림 1. 도파로 구조
Fig. 1. The waveguide structure.

그림 2는 식 (1)을 이용하여 녹색의 SHG (532nm)

를 발생시키기 위하여 기본파의 파장을 1064nm로 하였을 경우의 기본파 TM_0 mode로부터 발생하는 제 2 고조파 power를 도파로 막 두께에 대하여 계산한 것이다. 그림 2에서 알 수 있듯이 발생하는 제 2 고조파의 power는 막두께에 의존함을 알 수 있으며, 최대 power가 발생하는 도파로 막 두께는 $0.74\mu\text{m}$ 이다. 이렇게 막 두께에 따라 발생하는 제 2 고조파의 power가 차이가 나는 이유는 기본파의 도파 mode와 제 2 고조파의 방사 mode 간의 중첩적분이 각 도파로 막 두께에 따라 틀리기 때문이다. 이것은 도파로 막 두께에 따라 기본파에 대한 도파로의 효과굴절율이 틀리기 때문이다.

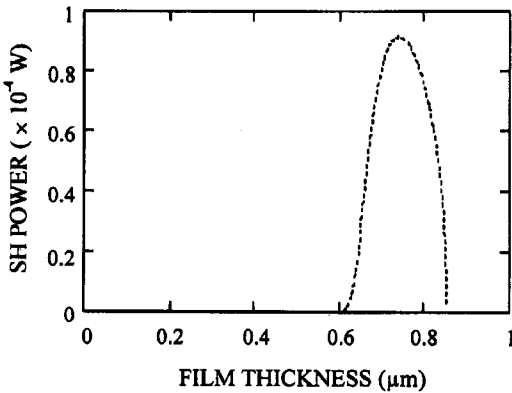


그림 2. 기본파 1064nm에서 도파로 막두께에 따른 제 2 고조파의 power

Fig. 2. The SH power versus waveguiding layer thickness in the waveguide structure. The fundamental wavelength is 1064nm.

그림 3은 근자의 영역의 제 2 고조파를 발생시키기 위하여 기본파의 파장을 740nm로 하였을 경우에 발생하는 제 2 고조파의 power를 도파로 막 두께에 대하여 나타내는데, 점선은 기본파 TM_0 mode로부터 발생하는 방사 mode의 제 2 고조파 power를 나타내고 실선은 기본파 TM_1 mode로부터 발생하는 방사 mode의 제 2 고조파의 power를 나타낸다. 여기서 기본파 TM_0 mode로부터 발생하는 방사 mode의 제 2 고조파 power보다 기본파 TM_1 mode로부터 발생하는 방사 mode의 제 2 고조파의 power가 크게되었고, 이때의 도파로 막두께는 $1.53\mu\text{m}$ 이다. 그림 3에서도 발생하는 제 2 고조파의 power는 도파로 막 두께에 의존함을 알 수 있고, 이러한 이유는 기본파의 도파

mode와 제 2 고조파의 방사 mode 간의 중첩적분이 막 두께에 따라 다르기 때문이다.

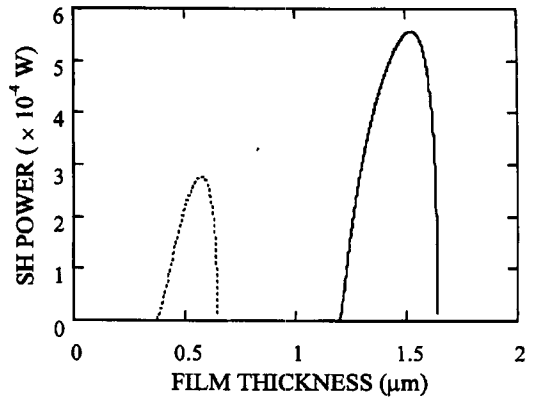


그림 3. 기본파 740nm에서 도파로 막두께에 따른 제 2 고조파의 power. 점선은 기본파 TM_0 mode로부터 발생하는 제 2 고조파 power를 나타내고, 실선은 기본파 TM_1 mode로부터 발생하는 제 2 고조파의 power를 나타낸다.

Fig. 3. The SH power versus waveguiding layer thickness in the waveguide structure. The fundamental wavelength is 740nm. The dashed line indicates the second harmonic power from the fundamental TM_0 guided mode and The solid line indicates the second harmonic power from the fundamental TM_1 guided mode.

III. 실험 및 결과

PMMA (polymethylmethacrylate)와 DR1 (Disperse Red 1) 10wt.%을 이용하여 copolymer [poly(MMA-co-DR1MA)] 를 제작하였다. 제작된 copolymer의 분자구조를 그림 4에 나타내었는데 PMMA 측쇄에 DR1 분자가 결합되어있다. 도파로 구조의 파장변환소자를 만들기 위해서 제작된 copolymer를 pyrex 위에 spin coating법으로 도파로 막을 제작하였다. 막 두께는 이론계산에서 최대 효율의 제 2 고조파가 발생하는 두께가 되도록 조절하였다. 이 후에 corona poling을 통하여 copolymer의 비선형성을 증가시켰다. Poling 조건으로는 110°C , 5kV, 15분간 처리하였다. Poling 과정은 그림 5에 나타난 장치를 이용하여 실시되었다. 시료는 ground 전극위에 놓여지고 시료위에 있는 직경 $40\mu\text{m}$ 의 텅스텐 wire는 양극으로 작용한다. 시료는 polymer의 glass

temperature (T_g)까지 온도를 올린 후 전압을 인가하여 polymer분자를 배향시킨 후 전압을 인가된 상태로 온도만 상온으로 내린다음 전압을 제거한다. 이러한 poling처리를 통하여 polymer의 비선형성은 훨씬 좋아진다.

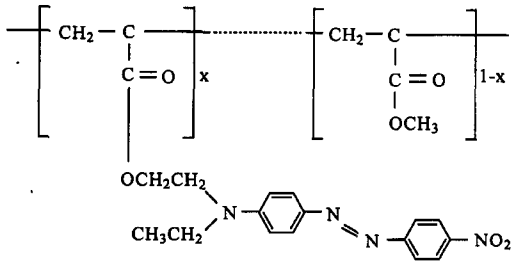


그림 4. Poled polymer [poly(MMA-co-DRIMA)]의 구조
Fig. 4. The structure of poly(MMA-co-DRIMA).

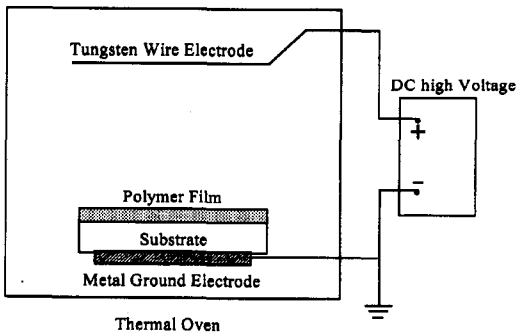


그림 5. Poling 장치도
Fig. 5. The schematic of poling system.

그림 6은 제작된 copolymer의 poling 전후의 흡수 spectrum을 보여주고 있다. 흡수 spectrum에서 알 수 있듯이 copolymer의 cutoff 파장은 약 600nm이고 poling 전과 후에는 spectrum의 흡수 peak가 감소하였고, 흡수 peak파장은 장파장쪽으로 이동하였음을 알 수 있다. 이로써 poling 후에 copolymer의 분자가 도파로 막에 수직으로 배향되었음을 알 수 있다. Poling을 가한 후 copolymer의 비선형성을 측정하기 위하여 Q-switched Nd-YAG laser(1064nm)를 이용하여 Maker fringe법^[16]으로 측정을 하였다. 참조 시료로는 두께 3mm인 Y-cut quartz의 $d_{11}=0.4\text{pm/V}$ 를 사용하여 copolymer의 2차 비선형광학정수를 계산한 결과 copolymer의 2차 비선형광학정수 d_{33} 은 13.6 pm/V였다.

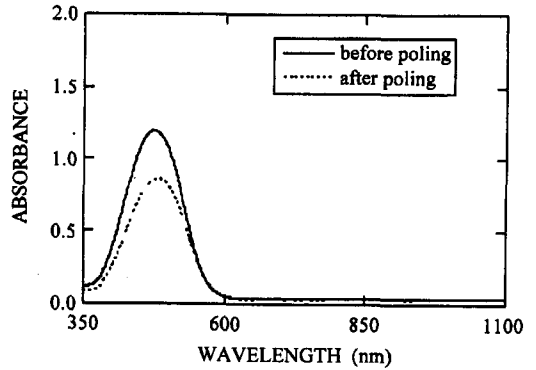


그림 6. Polymer의 poling 전·후의 흡수 spectrum
Fig. 6. The absorption spectrum of poly(MMA-co-DRIMA).

이렇게 제작한 소자를 이용하여 그림 7에서 보이는 실험장치에서 녹색의 제 2 고조파 (532nm)를 발생시키기 위하여 기본파로서 Q-switched Nd-YAG laser (1064nm)를 사용하였다. 기본파는 편광기를 통하여 TM 편광 시킨 후 lens를 통하여 소자에 입사시켰다. 기본파를 도파로에 결합시키기 위해서는 prism 결합법을 사용하였다. Cerenkov 위상정합법에 의해 기본파는 도파로를 도파하면서 제 2 고조파를 기판으로 방사하게 된다. 기본파로부터 발생한 제 2 고조파의 power를 측정하기 위해 기본파는 filter를 사용하여 완전히 차단하였다. 그림 8은 스크린에 비친 녹색의 제 2 고조파의 사진을 보여주고 있는데, 아치형의 제 2 고조파가 발생되었기에 Cerenkov 위상정합에 의해 제 2 고조파가 발생되었음을 알 수 있다. 이때의 도파로 두께는 기본파의 prism 입사각으로부터 구한결과, 두께는 $0.8\mu\text{m}$ 였는데 이론해석결과와 잘 일치하였다. 그림 9는 실험에 의하여 측정된 기본파 power에 대한 제 2 고조파 power를 나타내고 있다. 이때 기본파로부터 제 2 고조파로의 변환효율은 $2.39 \times 10^{-4}\%$ 였다. 또 기본파로서 Ti-sapphire laser(740nm)를 이용하여 그림 10에 보이듯이 형광스크린에 조사된 근자의 영역의 제 2 고조파 (370nm)를 관찰하였다. 이때 기본파의 입사각으로부터 구한 도파로 막두께는 $1.52\mu\text{m}$ 였는데 이론해석결과와 일치함을 알 수 있다. 그림 11에는 기본파 power에 대한 근자의 영역의 제 2 고조파 power를 나타내고 있다. 여기서 제 2 고조파 power가 낮게 측정된것은 powermeter의 감도와 그림 6에서 보이듯이 polymer가 제 2 고조파의 파장영역에서 조금의 흡수가 있기 때문으로 고려된다. 또한

기본파가 prism에 의해 도파로에 결합되는데, 이때의 결합효율이 낮기 때문에 생각된다.

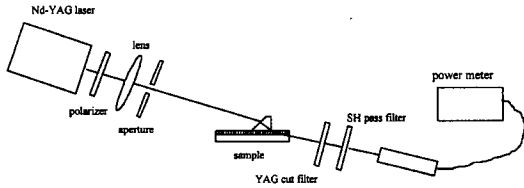


그림 7. 실험장치도
Fig. 7. The experimental setup.



그림 10. 도파로 막두께 1.52 μm 에서 발생한 녹색의 제 2 고조파 사진

Fig. 10. The photograph of the Cerenkov type SHG (370nm) from the Ti-sapphire laser(740nm) at waveguiding layer thickness 1.52 μm .



그림 8. 도파로 막두께 0.8 μm 에서 발생한 녹색의 제 2 고조파 사진

Fig. 8. The photograph of the Cerenkov type SHG (532nm) from the Q-switched Nd-YAG laser (1064nm) at waveguiding layer thickness 0.8 μm .

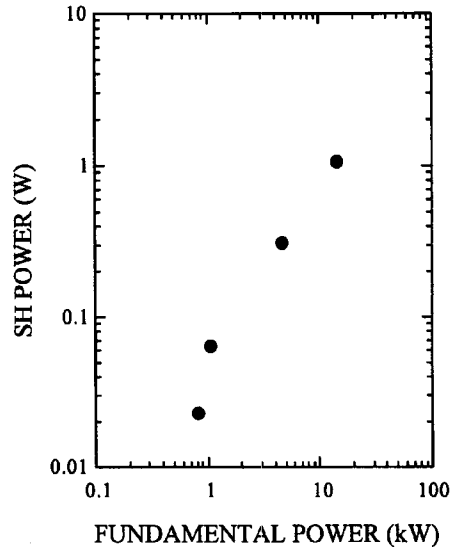


그림 11. 기본파 power에 대한 제 2 고조파 power
Fig. 11. The output SH power as a function of fundamental power.

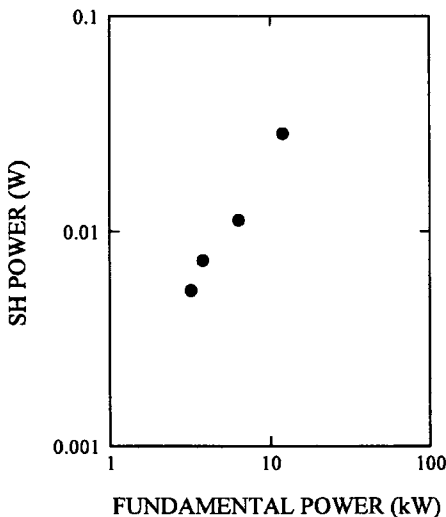


그림 9. 기본파 power에 대한 제 2 고조파 power
Fig. 9. The output SH power as a function of fundamental power.

따라서 기본파를 도파로에 결합하는 방법으로 grating 결합법을 이용하고, 도파로구조로는 평판 도파로 구조 대신 channel형의 도파로구조를 이용하면 기본파로부터 발생되는 제 2 고조파의 power가 높아질 것으로 생각된다. 또 유기재료를 이용하여 효과적인 제 2 고조파 발생을 위해서는 제 2 고조파 파장영역에서 완전하게 투명한 재료의 개발이 필요하다. 이상의 결과로서 그림 6에서 알 수 있듯이 도파로가 제 2 고조파에서 흡수가 있어도 기판을 통하여 제 2 고조파를 발생시키는 Cerenkov 위상정합법이 효과적임을 알 수 있

었고, 이 방법에 의해 넓은 범위의 제 2 고조파를 발생시킬 수 있음을 확인하였다.

IV. 결 론

PMMA(polymethylmethacrylate) 측쇄에 DR1 (Disperse Red 1)을 결합시킨 copolymer를 제작하였다. 제작된 copolymer를 가지고 pyrex 기판 위에 도파로를 형성하여 녹색(532nm)과 근자외 영역의 제 2 고조파(370nm)를 발생시켰다. 이 copolymer의 cutoff 파장은 600nm로써 단파장인 녹색과 근자외 영역에서 흡수가 존재하지만 기본파로부터 발생하는 제 2 고조파가 기판으로 방사되는 Cerenkov 위상정합법을 이용하여 도파로 막에서의 제 2 고조파 흡수문제를 해결하였다. 이 방법에 의해 넓은 범위의 파장영역을 갖는 제 2 고조파를 발생시킬 수 있음을 확인하였다. 또 제 2고조파의 power는 도파로의 막 두께에 의존함을 이론과 실험을 통하여 확인하였다. 따라서 제 2고조파의 power를 크게 하기 위해서는 비선형성이 큰 재료를 사용하여야 하며 중첩적분이 크게되도록 도파로 구조를 설계하여야 한다.

감사의 글

※ 본 연구에 대하여 조언을 해주신 일본 keio대학의 K. Sasaki, T. Kinoshita, 경북대학교 센서기술연구센터 강신원 교수님께 감사드립니다.

참 고 문 헌

- [1] G. Assanto, G. I. Stegeman, M. Sheik-Bahae, and E. VanStryland, "A novel approach to all-optical switching based on second-order nonlinearities", Proc. Nonlinear Optics:Materials, Fundamentals, and Applications, pp. 1-4, 1993.
- [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., 69, pp. 901-903, 1996.
- [3] Y. R. Shen, The principles of nonlinear optics, John Wiley & Sons, pp. 86-107, 1984.
- [4] D. Fluck, T. Pliska, P. Günter, St. Bauer, L. Beckers, and Ch. Buchal, "Blue-light second-harmonic generation in ion-implanted KNbO₃ channel waveguide of new design", Appl. Phys. Lett., 69, pp. 4133-4135, 1996.
- [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, 14, pp. 257-262, 1995.
- [6] T. Veng, T. Skettrup, and K. Pedersen, "Second-order optical nonlinearities in dilute melt proton exchange waveguides in z-cut LiNbO₃", Appl. Phys. Lett., 69, pp. 2333-2335, 1996.
- [7] K. Mizuuchi, H. Ohta, K. Yamamoto, and M. Kato, "Second-hrmonic generation with a high-index-clad waveguide", Opt. Lett., 22, pp. 1217-1219, 1997.
- [8] K. El Hadi, M. Sundheimer, P. Aschieri, P. Baldi, M. P. De Micheli, D. B. Ostrowsky, and F. Laurell, "Quasi-phase-matched parametric interactions in proton-exchanged lithium niobate waveguide", J. Opt. Soc. Am. B, 14, pp. 3197-3203, 1997.
- [9] M. A. Hasse, J. Qiu, J. M. DePuydt, and H. Cheng, "Blue-green laser diodes", Appl. Phys. Lett., 59, pp. 1272-1274, 1991.
- [10] H. Okuyama, Y. Kishita, T. Miyajima, A. Ishibashi, and K. Akimoto, "Epitaxial growth of p-type ZnMgSSe", Appl. Phys. Lett., 64, pp. 3434-3436, 1994.
- [11] S. Guha, J. M. DePuydt, M. A. Hasse, J. Qiu, and H. Cheng, "Degradation of II-VI based blue-green light emitters", Appl. Phys. Lett., 64, pp. 3107-3109, 1994.
- [12] 大島雅志, "東芝がGaN系靑紫色半導体レーザの室温パルス發振に成功", 電子材料, pp. 8-9, 1996년 11월.
- [13] T. Kodaira, A. Watanabe, O. Ito, M. Matsuda, K. Clays and A. Persoons, "Evaluation of hyperpolarizability of non-

linear optical organic molecules by hyper-rayleigh scattering”, Jpn. J. Appl. Phys., 35, pp. 6074-6078, 1996.

- [14] Y. Wu, P. Fu, J. Wang, Z. Xu, L. Zhang, Y. Kong, and C. Chen, “Characterization of CsB₃O₅ crystal for ultraviolet generation”, Opt. Lett., 22, pp. 1840-1842, 1997.
- [15] K. Clays, N. J. Armstrong, and T. L.

Penner, “Blue and green Cerenkov-type second-harmonic generation in a polymeric Langmuir-Blodgett waveguide”, J. Opt. Soc. Am. B, 10, pp. 886-893, 1993.

- [16] J. Jerphagnon and S. K. Kurtz, “Maker Fringe: A detailed comparison of theory and experiment for isotropic and uniaxial crystals”, J. Appl. Phys., 41, pp. 1667-1681, 1970.

저 자 소 개



金 應 秀(正會員)

1966년 1월 19일생. 1990년 2월 경북대학교 전자공학과(공학사). 1992년 2월 경북대학교 전자공학과(공학석사). 1996년 3월 일본 게이오 대학원 물질과학과(공학박사). 1996년 3월 ~ 1997년 3월 LG 반도체 주식회

사 ULSI 연구소 선임연구원. 1997년 3월 ~ 현재 부산외국어대학교 전자공학과 전임강사. 주관심분야는 비선형광학, 광집적회로, 광센서, 반도체 제조공정, 절연막 형성 및 평가기술



趙 元 珠(正會員)

1967년 7월 13일생. 1989년 2월 경북대학교 전자공학과(공학사). 1991년 3월 일본 게이오 대학원 전자전기공학과(공학석사). 1994년 3월 일본 게이오 대학원 전자전기공학과(공학박사). 1994년 2월 ~ 현재 LG 반도체

주식회사 반도체 연구소 선임연구원. 주관심분야는 광 집적회로, 절연막 형성 및 평가 기술, 박막 CVD형성 및 평가 기술, DRAM 소자 제조 기술 및 공정 기술 개발, Wafer material 평가 및 개발 등임