

## 다중-노출 홀로그래피 방법을 이용한 광자준결정 제작

### Fabrication of Photonic Quasicrystals using Multiple-exposure Holographic Method

윤상돈<sup>1</sup>, 여종빈<sup>1</sup>, 이현용<sup>2,a</sup>  
(Sang-Don Yun<sup>1</sup>, Jong-Bin Yeo<sup>1</sup>, and Hyun-yong Lee<sup>2,a</sup>)

#### Abstract

Two-dimensional photonic quasicrystal (PQCs) template patterns have been fabricated on a 1.1  $\mu\text{m}$ -thick DMI-150 photoresist using a multiple-exposure holographic method. A 442-nm HeCd laser was utilized as a light source and the holographic exposure was carried out at a fixed angle of  $\theta = 6^\circ$ . After the first holographic exposure, the sample was rotated to a proper angle and the second exposure was performed to the same manner. This exposure process was repeated  $n/2$  times to obtain  $n$ -fold symmetric PQC patterns and then the sample was developed. The diffraction patterns of the fabricated PQC template were observed using a 632.8-nm HeNe laser. The fabricated PQCs exhibited 8, 10 and 12-fold rotational symmetry, which was in a good agreement with the interference simulation results. In addition, the diffraction patterns with  $n$ -rotation symmetry were observed for the corresponding  $n$ -fold PQCs. We believe that the multiple-exposure holography is a good method to fabricate the mesoscale PQCs with a high rotational symmetry.

**Key Words** : Photonic quasicrystal, Holographic method, Rotational symmetry, Diffraction patterns

#### 1. 서론

1960년대 초 개발된 레이저는 물질의 광학적 특성을 이해하고 연구하는데 큰 역할을 하였으며, 많은 응용분야와 빛의 흐름을 이용한 다양한 연구 및 측정에 사용하기에 이르게 되었다. 또한 이러한 빛의 흐름을 조절하는 인위적 구조체인 광자결정(photonic crystal; PC)에 대한 연구가 진행됨에 따라서 광전자소자 및 광통신 산업분야의 큰 발전이 기대되고 있다.

PC란 유전율(또는 굴절률) 차이를 갖는 물질의 주기적인 구조체로 정의되며, 잘 설계된 PC는 광의 전파방향이나 편광에 무관하게 일정 주파수 범

위에 대해 완전한 광자금지대(photonic bandgap; PBG)를 갖는다[1,2]. 이러한 PBG를 이용함으로써 빛의 흐름을 제어하여 필터, 도파로, 공진기 등으로 응용하려는 연구가 이루어지고 있다. 한 예로 PC-기반 도파로는 빛의 구속을 원리로 하기 때문에 급격한 구부림이나 장거리 도파에서 극히 적은 손실을 갖는다. 하지만 PC는 비교적 큰 유전율 차이를 요구하기 때문에 재료의 선택의 폭이 좁고, 현재 광통신 분야에서 사용되어지는 재료에 대한 호환성이 문제가 된다. 특히, 협소한 재료 선택범위가 PBG-구조체의 응용에 제한을 가져오는 것이 사실이다. 이러한 문제점들을 해결하기 위한 대안으로 본 연구진을 비롯한 해외 유수의 석학들은 광자준결정(photonic quasicrystal; PQC)개념을 제시하여 연구를 진행 중에 있다[3].

PQC는 PC와 같은 공간 주기성이나 병진 대칭성을 갖는 완전한 결정체는 아니지만 긴 범위 차수의 준주기성과 높은 회전대칭성(rotational symmetry)을 갖는다. PQC의 가장 큰 특징인 높은 회전대칭

1. 전남대학교 대학원 신화학소재공학과  
2. 전남대학교 응용화학공학부, 촉매연구소  
(광주시 북구 용봉동 300)  
a. Corresponding Author : hyleee@chonnam.ac.kr  
접수일자 : 2008. 4. 7  
1차 심사 : 2008. 7. 17  
심사완료 : 2008. 8. 19

성으로 인하여 매우 큰 광학적 등방성을 보이며 완전한 PBG를 얻기 위하여 요구되는 임계유전율 차이를 줄여줄 수 있다[3,4]. 상대적으로 작은 유전율 대비를 갖는 재료의 사용 가능성은 광 도파로나 광 섬유 등의 재료로 사용되는 물질을 이용하여 PBG-구조체를 제작할 수 있다는 장점을 갖는다. 이는 접속 손실을 줄여줄 수 있고 기존의 도파로와 PBG 도파로 간의 기하학적인 근사도를 높여줄 것이다[5,6].

본 연구의 목적은 이러한 PQC 구조체를 2차원 PC 제작법으로 사용해진 이중 홀로그래피 법을 약간 수정한 다중 홀로그래피 법으로 제작하고 최적의 제작 조건을 확립하는데 있다. 본 연구 그룹에서 선행 연구한 결과인 2차원 PC 제작 공정에서 확립된 결과를 바탕으로 하여 2차원 PQC 구조체를 제작하였으며, 다중 노광을 통해 n-fold의 높은 회전 대칭성을 갖도록 샘플 홀더의 정밀한 회전이 가능케 설계하여 다중 노광시에 이루어지는 회전에서의 오차를 줄임으로써 높은 회전 대칭성을 갖는 8, 10, 12-fold PQC를 제작하였다.

## 2. 실험

기판은 p-Si (100) 웨이퍼를 사용하였으며 아세톤, 트리클로로에틸렌, 이소프로필알콜, 초수순 순으로 세척한 후, 폴리머레지스트(DMI-150)를 스핀-코팅(3000 rpm) 방법으로 도포하였다. 코팅 후 시료는 110 °C에서 120초 동안 진공, 건조시켜주었다. 이때 AFM으로 측정된 레지스트의 두께는 약 1.1 μm로 평가되었다.

그림 1은 2차원 PQC 제작에 사용한 다중 홀로그래피 장치의 개략도이다. 홀로그래피의 광원으로는 442 nm 파장의 HeCd 레이저를 사용하였으며 셔터, 미러, 대물렌즈(N.A=0.65), 핀홀(Φ=10 μm), 콜리메이터, 회전 스테이지로 구성된다[7]. 레이저로부터 나온 빔은 콜리메이터에 의해서 일정한 지름(10 cm)과 균일한 세기(6.5 mW)로 확장되며 회전 스테이지의 광학 밀러에 의해 두 개의 동등한 빔으로 나누어져 시료에 전사된다. 두 빔은 시료의 x, y 평면으로 전사된 후 간섭에 의해 재조합되어 간섭패턴을 형성하게 된다.

시료에 입사하는 두 빔에 의한 간섭패턴의 세기 변화는 식 (1)로 나타내어진다.

$$I = E_{01}^2 + E_{02}^2 + 2E_{01}E_{02}\cos(\theta_{12})\cos(\delta) \quad (1)$$

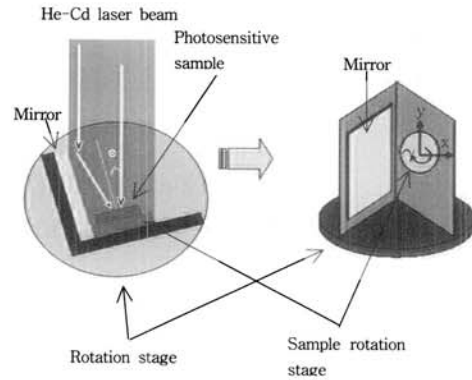


그림 1. 다중 노출 홀로그래피를 위한  $\theta$  및  $\gamma$ -rotation stage의 개략도.

Fig. 1. Schematic diagram of  $\theta$  and  $\gamma$ -rotation stages for the multiple exposure holography.

여기서  $E_{01} E_{02}$ 는 두 평면파의 진폭을 나타내며  $\delta$ 는  $[\vec{k}_1 - \vec{k}_2] \cdot \vec{r} + (\epsilon_1 - \epsilon_2)$ 이며 두 평면파의 경로차와 초기 위상차에 의해서 발생하는 합성 위상차를 나타낸다. 그리고  $\theta_{12}$ 는 두 평면파간의 편광 방향을 나타내며 다중 홀로그래피 법에서 두 빔은 같은 편광 방향을 가짐으로써  $\theta_{12}$ 는 0이 되어  $\cos(\theta_{12})$ 는 1이 된다. 식 (1)에서 간섭패턴의 총 세기는  $I_1 + I_2$ 보다 크거나, 작거나, 또는 같을 수 있으며 이는 합성위상차( $\delta$ )에 의존하며 합성위상차가  $2\pi$ 의 정수 배수, 즉  $\cos \delta$ 가 1일때 두 빔은 같은 위상을 갖게 되는 완전 보강간섭을 일으켜 최대값을 갖는다. 식 (2)는 입사각에 따른 간섭패턴의 주기를 나타낸다.

$$A = \frac{\lambda}{2\sin(\theta)} \quad (2)$$

여기서  $\theta$ 는 광감성 샘플과 빔이 이루는 각도를 나타내며  $\lambda$ 는 HeCd 레이저 파장을 나타낸다. 식 (2)로부터 두 빔의 간섭에 의한 패턴의 크기를 예상할 수 있으며 입사각을 조절함으로써 원하는 크기의 준결정 패턴의 제작을 가능하게 한다. 본 실험에서는  $\theta = 6^\circ$ 로 하였으며 이때 간섭 패턴의 주기가 2.1 μm임을 알 수 있다. 1차 노출 후 시료를 일정 각도로 회전시켜 2차 노출을 수행하고 이를 반복하여 다중 노출을 수행하였고 1차 노출 시 좌

표를 기준으로 시료회전각( $\gamma$ )를 조절함으로써 n-fold PQC를 제작하였다. 노출 후 현상된 PQC 패턴은 SEM을 이용하여 관찰하였고 632.8 nm 파장의 HeNe 레이저를 이용하여 반사회절패턴을 관찰하였다.

### 3. 결과 및 고찰

그림 2(a)는 8-fold PQC 패턴 제작을 위해 4회 노광( $\gamma=0^\circ, 45^\circ, 90^\circ, 135^\circ$ 로 유지) 시킨 경우에 대한 광감성 샘플 평면에서 교차되어질 간섭 패턴의 모습이다.

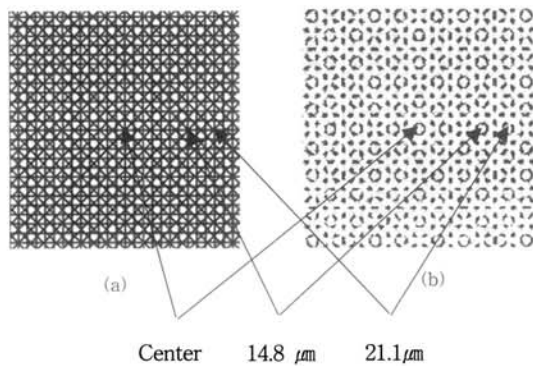


그림 2. (a) 4회 홀로그래피 노출( $\gamma=0^\circ, 45^\circ, 90^\circ, 135^\circ$ )에 따른 시료표면에서의 교차 간섭 패턴과 (b) 이로부터 제작될 8-fold PQC 패턴의 시뮬레이션 결과.

Fig. 2. (a) The intersected interference patterns by 4-holographic exposures ( $\gamma=0^\circ, 45^\circ, 90^\circ, 135^\circ$ ) and (b) the simulation result of 8-fold PQC patterns formed by (a).

그림 1(a)에서 보는 바와 같이 4개의 간섭 빔은 중심에서 가장 높은 세기로 조사되어 교차하며 광감성 샘플의 x, y 평면의 전체 영역에 걸쳐 중심 영역과 비슷한 조사가 동시 다발적으로 이루어진다. 광감성 샘플에 축적된 조사량은 각각의 단계에서 빔의 조사량을 합함으로써 얻어질 수 있으며 특정한 영역에서의 축적된 조사량은 매우 높을 것이며 다른 영역에서는 낮으며 일부 지역에서는 조사가 이루어지지 않을 것이다. 중심 영역의 최대 조사량은 각각의 빔의 파워와 노출시간을 조절함으로써 변경이 가능하다. 그림 2(a)와 식 (2)를 이

용함으로써 4개의 간섭 빔에 의해 전체 영역에 걸쳐 축적된 조사량과 중심영역과 비슷한 조사가 이루어지는 영역과의 거리가 계산된다.

그림 2(b)는 이를 바탕으로 4번의 회전을 통해 제작될 8-fold PQC 패턴의 시뮬레이션 결과이며 이는 본 실험에서 빔의 노광 시간을 62초로 하여 제작된 현상패턴[그림 3(c)]과 상당히 일치함을 알 수 있다.

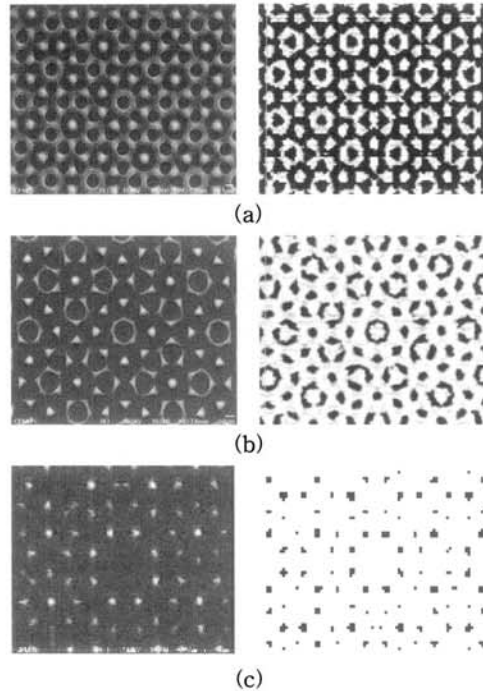


그림 3. 노광시간 (a)62초, (b)67초, (c)72초로 4회 홀로그래피 노출( $\gamma=0^\circ, 45^\circ, 90^\circ, 135^\circ$ )시켜 제작한 8-fold PQC 현상패턴의 SEM 이미지(좌측)와 시뮬레이션 결과(우측).

Fig. 3. SEM images (left) and simulated results (right) of the developed 8-fold PQC patterns fabricated by 4-holographic exposures ( $\gamma=0^\circ, 45^\circ, 90^\circ, 135^\circ$ ) with the step-duration of (a)62 s, (b)67 s and (c)72 s.

그림 3(a)는 HeCd 레이저 파워를 고정, 노광 시간을 62초로 동등하게 하여  $\gamma=0^\circ, 45^\circ, 90^\circ, 135^\circ$ 의 4회 홀로그래피 노출 후 현상된 8-fold PQC 패턴의 실제 SEM 이미지와 시뮬레이션 결과이며,

그림 3(b)와 3(c)는 각각 노광시간이 67초와 72초에 대한 결과이다. 시뮬레이션 결과와 실제 제작된 PQC패턴이 서로 매우 일치함을 알 수 있다. 광감성 샘플의 회전각( $\gamma$ )을 정밀히 조절함으로써 높은 회전대칭성을 갖는 PQC 패턴을 제작할 수 있다. 또한, 그림 3에서 보는 바와 같이 노광 시간에 따라서 다른 충전율(filling factor)을 갖는 PQC 제작이 가능하므로 노광시간을 정밀 제어함으로써 원하는 충전율의 2차원 PQC를 제작할 수 있다.

그림 4는 기준좌표로부터 시료회전각을 각각  $36^\circ$ 와  $30^\circ$ 씩 증가시키면서 5회 홀로그래피 노출( $\gamma=0^\circ, 36^\circ, 72^\circ, 108^\circ, 144^\circ$ )과 6회 노출( $\gamma=0^\circ, 30^\circ, 60^\circ, 90^\circ, 120^\circ, 150^\circ$ )로 제작된 10-fold와 12-fold PQC 패턴의 SEM이미지와 그에 상응하는 시뮬레이션 결과를 보여준다.

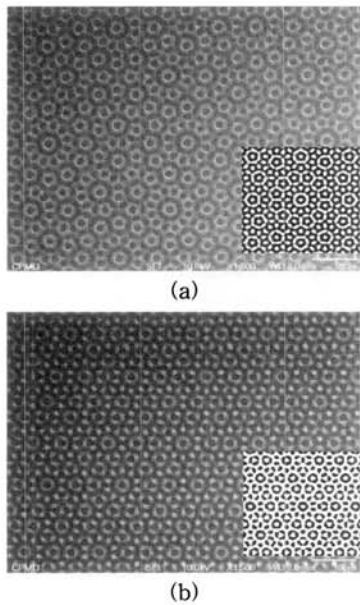


그림 4. (a)10-fold와 (b)12-fold PQC 패턴의 SEM이미지와 시뮬레이션 패턴(삽입그림).  
Fig. 4. SEM images and simulated result (inset) for (a)10- and (b)12-fold PQC patterns.

PQC 패턴 제작을 위한 총 노광시간은 2차원 PC 제작시 DMI-150 레지스트의 경우 최적의 노출시간으로 평가되는 250초를 기준으로 하였다[8]. 그림 3(b)와 그림 4의 경우 총 조사 시간은 250초로 같으며 시료를 1회 회전시킨 후 조사시키는 빔의 노광 시간은 8-fold, 10-fold, 12-fold PQC 패턴

제작을 위한 노광 회수만큼 나누어 (8-fold~62초, 10-fold~50초, 12-fold~41초) 조사시켜 제작하였다. 총 조사 시간을 동일하게 하므로 광감성레지스트 시료 전체 영역에 걸쳐 축적된 조사량 또한 같아지며 그에 따라 제작된 n-fold PQC 패턴들의 충전율은 40%로 비슷한 값을 보였다. 또한 위의 실험과 동일한 조건에서 보다 정밀한 회전과 실험공정이 필요한 14-fold PQC 제작을 위한 실험이 진행 중에 있다.

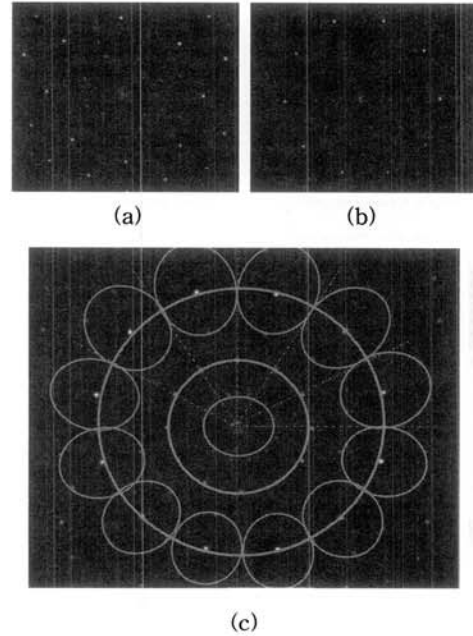


그림 5. (a) 8-fold, (b) 10-fold, (c) 12-fold PQC 패턴의 회절 패턴.  
Fig. 5. Diffraction patterns for (a) 8-fold, (b) 10-fold and (c) 12-fold PQC.

제작된 8-fold, 10-fold, 12-fold PQC template에 632.8 nm 파장의 HeNe 레이저를 수직으로 입사시켜 반사되어 나오는 회절 패턴의 이미지를 그림 5에 보였다. 제작된 PQC의 높은 회전대칭성으로 인하여 회절 패턴 또한 중심으로부터 서로 다른 세기의 spot series를 갖는 8, 10, 12-fold의 회전대칭을 나타낼 수 있다. PQC의 회절 패턴은 선명한 점들로 구성되어 있다는 점에서 PC의 회절 패턴[7,8]과 비슷하지만 PC는 병진 대칭성을 보이는 반면 준결정은 병진 대칭성보다 높은 회전 대칭을 보여준다는 점에서 결정의 회절 패턴과는 확연히

구별된다. 그림 5(c)에서 보는 바와 같이 12-fold 회전대칭을 이루며 중심으로부터 뻗어나가는 주 회절 패턴과 세 번째 큰 원을 이루는 회절 점을 감싸는 또 다른 12-fold 회절 점들을 볼 수 있다. 이는 주기적 구조를 갖는 결정의 회절 패턴에서는 찾아 볼 수 없는 PQC의 주 주기와 부 주기 구조에 의해 나타나는 독특한 회절 패턴의 특성을 잘 보여준다.

#### 4. 결론

광자결정(PCs)의 상대적으로 높은 굴절율 대비 물질의 필요성과 그에 따른 현재 광통신 분야에 사용되는 물질과의 호환성의 문제를 극복하기 위한 대안으로 낮은 굴절율 대비에서도 광자 밴드갭을 갖는 광자준결정(PQCs)이 하나의 대안으로 떠오르고 있다.

본 논문에서는 샘플 홀더의 정밀한 회전이 가능케 하여 다중 홀로그래피법을 이용하여 광감성 시료(DMS-150)의 회전수와 노출 시간을 조절함으로써 8, 10, 12-fold의 2차원 PQCs 패턴을 제작하였으며 신뢰성을 가지고 대면적의 2차원 PQCs 제작이 가능한 기술 중의 하나가 다중 홀로그래피법을 보였다. 시료의 회전을 정밀하게 제어함으로써 높은 회전 대칭을 갖는 준결정 패턴을 제작할 수 있었으며 노출 시간과 광량을 조절함으로써 원하는 충진율을 갖는 패턴을 제작할 수 있었다.

이미 여러 연구 결과에 의해 밝혀진 Penrose tiling과 Amman-Beenker tiling과 같은 비주기 타일링 구조를 이용하여 제작된 2차원 PQCs 구조가 낮은 굴절율 물질에서도 광자 밴드갭을 갖는 것과 같이 다중 홀로그래피법에 의해 제작된 준결정 구조 또한 그러한 특성을 충분히 나타낼 것아고 예측된다. 본 연구 그룹에서는 높은 aspect ratio 기판 에칭 기술을 연구 중에 있으며 FDTD(finite difference time domain) 시뮬레이션 툴과 여러 측정 장비를 이용하여 제작된 준결정 패턴의 광학적 특성을 파악하기 위한 연구가 계획되어 있다.

#### 감사의 글

본 연구는 산업자원부 지방기술혁신사업(RTI 04-03-03) 지원으로 수행되었음. 본 연구에 많은 도움을 준 교육인적자원부 BK21 기능성 나노 신화학소재 사업단에 감사의 말씀을 드립니다.

#### 참고 문헌

- [1] E. Yablonovitch, "Photonic crystals", *Journal of Modern Optics*, Vol. 41, No. 2, p. 173, 1994.
- [2] E. Yablonovitch, "Photonic band-gap crystals", *J. Phys.: Condensed Matter*, Vol. 5, No. 16, p. 2443, 1993.
- [3] Y. S. Chan, C. T. Chan, and Z. Y. Liu, "Photonic band gaps in two dimensional photonic quasicrystals", *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 80, No. 5, p. 956, 1998.
- [4] M. E. Zoorob, M. D. B. Chariton, G. J. Parker, J. J. Baumberg, and M. C. Netti, "Complete photonic bandgaps in 12-fold symmetric quasicrystals", *Nature*, Vol. 404, p. 740, 2000.
- [5] J. D. Joannopoulos, R. D. Meade, and J. N. Winn, "Photonic crystals: Modeling the flow of light", Princeton University Press, 1995.
- [6] J. Romero-Vivas, D. N. Chigrin, A. V. Lavrinenko, and C. M. Sotomayor Torres, "Photonic quasicrystals for application in WDM systems", *phys. Stat.*, Vol. 202, p. 997, 2005.
- [7] J. B. Yeo, S. D. Yun, and H. Y. Lee, "Realization of dot and antidot-type two dimensional photonic crystals by double holographic method", *J. Appl. Phys.*, Vol. 102, No. 8, p. 084502, 2007.
- [8] 여종빈, 윤상돈, 이현용, "광자결정 제작을 위한 홀로그래피 공정연구", *전기전자재료학회 논문지*, 20권, 8호, p. 726, 2007.
- [9] J. B. Yeo, S. D. Yun, and H. Y. Lee, "influence of substrate and structure on Ag-photodoping into amorphous GeSe films by using aholographic method", *J. Korean Phys. Soc.*, Vol. 52, No. 2, p. 345, 2007.
- [10] M. A. Kaliteevski, S. Brand, R. A. Abram, T. F. Krauss, P. Millar, and R. De La Rue, "Diffraction and transmission of light in low refractive index Penrose-tiled quasicrystals", *J. Phys.: Condens. Matter*, Vol. 13, p. 10459, 2001.
- [11] M. A. Kaliteevski, S. Brand, R. A. Abram, T. F. Krauss, R. M. De La Rue, and P. Millar,

- "Two-dimensional penrose-tiled photonic quasicrystals: From diffraction to band structure", *Nanotechnology*, Vol. 11, p. 274, 2000.
- [12] X. Zhang, Z.-Q. Zhang, and C. T. Chan, "Absolute photonic band gaps in 12-fold symmetric photonic quasicrystals", *Phys. Rev., B*, Vol. 63, p. 081105, 2001.
- [13] J. Romero-Vivas, D. Chigrin, A. Lavrinenko, and C. Sotomayor Torres, "Resonant add-drop filter based on a photonic quasicrystal", *Optics Express*, Vol. 13, p. 826, 2005.