

시분해 반스톡스 라만 분광 신호의 스톡스광과 펄프광의 상관관계에 대한 의존성 계산

고 춘 수
원광대 물리학과

(1997년 3월 29일 받음)

시분해 반스톡스 라만 분광법에서 펄프광과 스톡스광의 상관관계에 대한 의존성을 계산하였다. 시간 지연된 두 펄프광을 라만 매질에 입사시키면 하나의 펄프광에 발생된 스톡스광과 펄프광들의 결합에 의해 반스톡스광 신호를 얻을 수 있는데 지연 시간에 따른 반스톡스광 신호의 규격화된 크기를 계산하였다. 매질의 라만 선폭이 레이저의 선폭 보다 매우 작지 않을 때에는 스톡스광이 펄프광과 완전한 상관관계를 갖지 못하므로 일반적인 매질에서 발생된 스톡스광과 펄프광의 상관관계에 대해 간단한 모델을 세우고 그 매개변수에 따른 신호의 변화를 계산하였다. 일반적으로 비선형 라만 실험에서는 선폭이 넓은 광원을 사용하므로 파동들을 chaotic field로 기술하여 계산을 하였으며 여러 가지 매질의 선폭에 대해 그 결과들을 비교하였다.

I. 서 론

최근에 선폭이 넓은 광원을 이용해 매질의 짧은 시간상수를 측정하는 시분해 분광법이 많이 연구되고 있다.^[1,2] 이러한 분광법에서 시간 분해능은 광원의 결맞음시간에 의해 결정된다. 일반적으로 시분해 라만 분광법에서는 펄프광과 스톡스광 또는 반스톡스광을 매질에 입사시켜 신호를 얻는데 두가지의 광원을 사용하므로 장치가 복잡해진다. 그런데 라만 매질에서 펄프광이 충분히 강할 경우에는 유도 라만 산란에 의해 스톡스광이 발생하므로 이를 이용하면 펄프광만을 입사시켜 스톡스광 또는 반스톡스광의 시분해 분광 신호를 얻을 수 있다. 이 논문에서는 상대적인 시간차를 갖는 두 펄프광만을 사용하여 반스톡스광의 신호를 얻는 방법을 고려하고 그 경우의 신호의 세기를 계산하였다.

라만 매질에서 유도 라만 산란에 의해 생성되는 스톡스광은 그 펄프광과 위상 상관관계를 갖고 있음이 알려져 있다.^[3,4] 라만 선폭이 펄프광의 선폭에 비해 매우 작을 때에는 스톡스광의 선폭이 펄프광의 그것과 같으므로 이 때 스톡스광과 펄프광의 교차 상관관계(cross correlation)는 펄프광끼리의 상관관계와 같다. 그러나 매질의 선폭이 커질 때에는 스톡스광의 선폭이 펄프광보다 커지므로 두 광 사이의 상관관계는 앞의 경우와 다르리라 예상할 수 있다. 이러한 경우에 상관관계의 정도와 그 특성시간 등에 대한 정량적 분석은 아직 이루어지지 않았다. 우리는 Lorentzian lineshape을 갖는 펄프광과 스톡스광의 교차 상관관계에 대해 간단한 모델을 세우고 이를 이용하여 반스톡스광의 신호를 계산하였으며 그 모델의 매개변수에 따른 신호의 변화를 고찰하였다. 선폭이 넓은 광원을 기술하기 위해서는 chaotic field model^[5,6]을 사용하였다.

II. 이론 및 계산

두 펄프광과 하나의 스톡스광이 매질에 입사할 때 상호작용 영역에서 파동을 다음과 같이 쓸 수 있다.

$$\begin{aligned}
 E(\vec{r}, t) = & E_{p1}(t) \exp[i(k_{p1} \cdot \vec{r} - \omega_p t)] \\
 & + E_{p2}(t) \exp[i(k_{p2} \cdot \vec{r} - \omega_p t)] \\
 & + E_s(t) \exp[i(k_s \cdot \vec{r} - \omega_s t)] \\
 & + c. c.
 \end{aligned} \tag{1}$$

여기서 p,s는 각각 펄프광과 스톡스광을 의미한다. 선폭이 넓은 레이저를 사용할 때 위의 각 파동은 일반적으로 위상 뿐만 아니라 진폭도 요동한다. 위의 각 파동이 Lorentzian lineshape을 갖을 때 1차의 상관관계(correlation)는 다음과 같이 된다.

$$\begin{aligned}
 \langle E_p^*(t) E_p(t') \rangle &= \overline{|E_p|^2} e^{-\Gamma_p |t-t'|} \\
 \langle E_s^*(t) E_s(t') \rangle &= \overline{|E_s|^2} e^{-\Gamma_s |t-t'|}
 \end{aligned} \tag{2}$$

여기서 $\langle \rangle$ 는 시간 평균을 의미하지만 ergodic theorem에 의해 요동할 때의 ensemble 평균이 되고 우변의 $\overline{(\quad)}$ 는 파동의 세기의 평균이다. Γ_p, Γ_s 는 각 파동의 선폭(HWHM)이다. 위의 식을 보면 시간차에 따라 상관관계를 나타내 주는 상관함수가 지수적으로 감소하며 그 특성시간(characteristic time)이 각 선폭의 역수로 주어짐을 알 수 있다. 각 파동들이 chaotic field라 가정할 때 n-차의 상관관계는 다음과 같이 된다.^[6]

$$\begin{aligned}
 \langle E_p(t_1) E_p^*(t_2) E_p(t_3) E_p^*(t_4) \cdots E_p(t_{2n-1}) E_p^*(t_{2n}) \rangle \\
 = \sum_P \prod_{i \text{ odd}}^{2n-1} \langle E_p(t_i) E_p^*(t_{P(i+1)}) \rangle
 \end{aligned} \tag{3}$$

여기서 P는 순열(permutation)을 의미한다.

그림 1에서와 같이 두 펄프광 $E_{p1}(t-\tau), E_{p2}(t)$ 가 라만 매질로 입사할 때, 라만 공진($\omega_p - \omega_s = \Omega$, Ω 는 매질의 라만 진동수)

*이 논문은 '96년도 원광대학교 교비지원에 의하여 이루어졌으며 이에 감사드립니다.

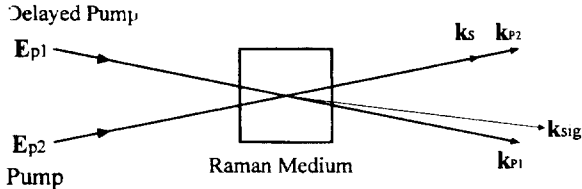


그림 1. 두 펌프광에 의한 반스톡스광 신호의 발생을 나타내는 diagram.

이외의 다른 공진 조건이 없는 경우에, 발생하는 반스톡스광의 편극 벡터는 다음과 같이 쓸 수 있다.

$$P^{(3)}(t) = Ce^{-i(\omega_s t - \omega_p \tau)} \int_{-\infty}^t dt' e^{-\gamma(t-t')} [E_{p1}(t'-\tau)E_{p2}(t) + E_{p1}(t-\tau)E_{p2}(t')]E_s^*(t') \quad (4)$$

여기서 C는 상수이고 γ 는 매질의 라만 선포, τ 는 두 펌프광의 시간차이다. 이러한 편극 벡터에 의해 발생하는 신호광의 세기 또한 시간에 따라 요동을 하는데 그 평균값은 다음과 같이 된다.

$$\begin{aligned} \hat{I}(\tau) &\propto \langle P^{(3)*}(t)P^{(3)}(t) \rangle \\ &\propto \int_{-\infty}^t dt' e^{-\gamma(t-t')} \int_{-\infty}^t dt'' e^{-\gamma(t-t'')} \times \\ &\langle E_{p1}(t'-\tau)E_{p2}(t)E_s^*(t') + E_{p1}(t-\tau)E_{p2}(t')E_s^*(t') \rangle \\ &\langle E_{p1}^*(t''-\tau)E_{p2}^*(t)E_s^*(t'') + \\ &E_{p1}^*(t-\tau)E_{p2}^*(t'')E_s^*(t'') \rangle \end{aligned} \quad (5)$$

위 식에서 $\langle \rangle$ 안의 함수를 전개하면 네 항의 3차 상관관계 함수가 나온다. 이를 식 (3)을 이용하여 1차 상관함수들의 곱으로 표현할 수 있는데 이를 계산하기 위해서는 펌프광과 스톡스광의 상관관계를 알아야 한다. 유도 라만 산란 과정의 초기 단계에서 스톡스광은 자발 라만 산란(spontaneous Raman scattering)된 광에서 출발하므로 펌프광과 위상 상관관계를 갖지 않는다. 그러나 그 신호가 펌프광에 의해 증폭되면서 펌프광과 위상이 맞는 성분들이 크게 증폭되므로 스톡스광의 이득이 클수록 펌프광과의 위상 상관관계가 커지게 된다.^[7] 매질의 라만 선포가 레이저 선포에 비해 매우 작을 때에는 스톡스광의 선포가 펌프광의 선포와 같고 이 때 두 광은 식 (2)와 같은 상관관계를 갖는다. 그러나 라만 선포가 클 때에는 스톡스광의 선포가 커지고 상관관계 또한 완벽하지 못할 것이다. 펌프광과 매질이 Lorentzian lineshape을 가질 때 스톡스광도 역시 Lorentzian lineshape을 갖게 되므로, 펌프광과 스톡스광의 1차 상관함수는 시간차에 따라 지수적으로 감소할 것이다. 그런데 유도 라만 산란 과정에서 스톡스광의 이득이 충분하지 않을 때 스톡스광과 펌프광은, 비록 시간차가 없더라도, 위상이 완전히 일치하지 않을 것이다. 이러한 고려에 따라 우리는 스톡스광과 펌프광의 상관관계를 다음과 같이 가정하였다.

$$\langle E_p^*(t)E_s(t') \rangle = a \overline{E_p^* E_s} e^{-\Gamma_{ps}|t-t'|} \quad (6)$$

즉, 시간차가 커질수록 상관함수가 지수적으로 감소할 때 그 특성시간을 $1/\Gamma_{ps}$ 라 하였고 상관관계의 불완전성을 계수 a

로 표현하였다. 이러한 모델을 사용하여 신호의 크기를 계산하였고 두 상수 a, Γ_{ps} 에 따른 신호의 변화를 고찰하려 한다.

식 (3)을 정리하면 세 개의 1차 상관함수들의 곱으로 이루어진 항들이 24개 나온다. 이를 식 (2),(6)을 이용하여 적분하면 다음과 같은 결과를 얻는다.

$$\begin{aligned} I(\tau) &\propto C(\gamma, \Gamma_p, \Gamma_s, \Gamma_{ps}, a) \\ &+ f_p(\gamma, \Gamma_p, \Gamma_s, \Gamma_{ps}, a; \tau), \quad \tau > 0 \\ I(\tau) &\propto C(\gamma, \Gamma_p, \Gamma_s, \Gamma_{ps}, a) \\ &+ f_m(\gamma, \Gamma_p, \Gamma_s, \Gamma_{ps}, a; \tau), \quad \tau < 0 \end{aligned} \quad (7)$$

여기서 C는 지연시간 τ 와 관계가 없는 상수항이고, f_p 및 f_m 은 τ 의 절대값이 커지면 크기가 지수적으로 감소하는 함수들인데 식이 너무 길어 뒤의 부록에 실는다. 일반적으로 f_p 와 f_m 은 서로 다른 함수이며 τ 의 부호에 따른 이러한 비대칭성은 기하학적으로, 또한 식 (5)에 의해서도 예측할 수 있다. 식 (7)에서 지연시간이 매우 커지면 f_p 와 f_m 은 0에 접근하므로 $C(\gamma, \Gamma_p, \Gamma_s, \Gamma_{ps}, a) \equiv I(\infty)$ 라고 하면 규격화된 신호광의 세기를 다음과 같이 정의할 수 있다.

$$\hat{I}(\tau) \equiv I(\tau)/I(\infty) \quad (8)$$

$\hat{I}(\tau)$ 는 $\tau=0$ 근처에서 큰 값을 갖으며 $|\tau|$ 가 커질수록 1에 접근하는 함수가 된다.

III. 계산 결과 및 토론

두 펌프광이 라만 매질에 입사할 때 생기는 반스톡스광 신호의 크기는 매질의 라만 선포와 펌프광의 선포의 비율에 따

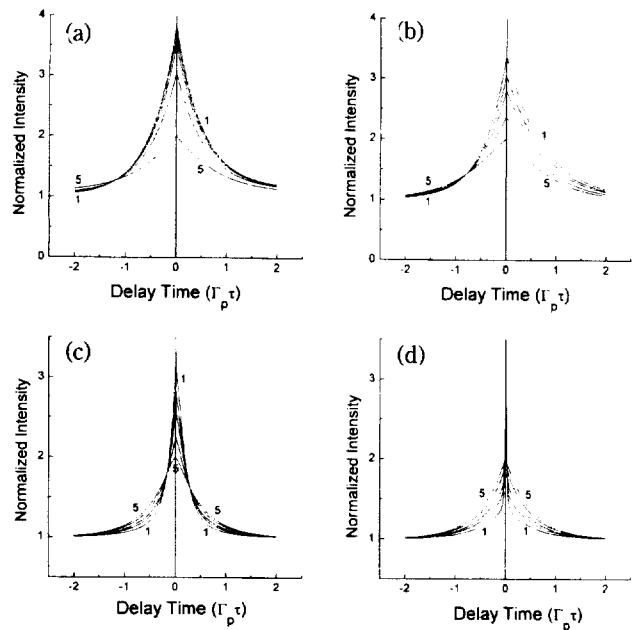


그림 2. 경로차에 따른 규격화된 신호광의 이론적 세기. (a) $\gamma/\Gamma_p=0.1$, (b) $\gamma/\Gamma_p=1$, (c) $\gamma/\Gamma_p=10$, (d) $\gamma/\Gamma_p=100$. 모든 경우에 $\Gamma_m=(\Gamma_r+\Gamma_s)/2$ 라고 가정하였고 1번부터 5번까지(위쪽에서 아래쪽으로) 각각 $|a|^2=1.0, 0.5, 0.2, 0.1, 0$ 이다.

라 양상이 달라질 것이므로 네가지의 경우 즉, $\gamma/\Gamma_p=0.1, 1, 10, 100$ 인 경우에 대해 각각 계산하였다. 두 펄스광의 경로차에 따른 상관함수 즉, 규격화된 신호광의 세기 I 가 그림 2에 나타나 있다. 경로 지연 시간은 펄스광의 결맞음 시간($1/\Gamma_p$)으로 규격화하였다. 식 (6)으로 나타내지는 펄스광과 발생한 스톱스광의 상관관계에 따라 신호광의 세기가 달라지리라 예상할 수 있는데 그림 2에서는 우선 $\Gamma_m=(\Gamma_p+\Gamma_s)/2$ 라 가정하였고 $|a|^2=1, 0.5, 0.2, 0.1, 0$ 등 다섯가지의 경우에 대한 결과를 나타내었다. $\alpha/\Gamma_p=0.1$ 일 때(그림 2(a)에는 $|a|^2=0$ 인 경우를 제외하고는 큰 차이 없이 비슷한 결과를 나타내었다. 라만 선평이 작을수록 스톱스광의 선평이 펄스광의 선평과 비슷하고 위상 상관관계도 펄스광과 유사할 것이다. 따라서 이 때 $|a|^2$ 의 값 또한 1에 가까운 값을 갖게 되는데 그림 2(a)의 결과는 $|a|^2$ 의 값이 1 보다 작은 값을 갖더라도 결과가 크게 달라지지 않음을 보여 준다. $\gamma/\Gamma_p=1$ 인 경우(그림 2(b)에는 $|a|^2$ 의 값에 따른 차이가 앞의 경우보다는 비교적 뚜렷한데 $|a|^2$ 의 값이 클수록 최대값($I(\tau=0)$)이 크고 상관함수의 비대칭성이 심하다. 그러나 그 폭은 큰 변화가 없고 펄스광의 결맞음시간과 거의 비슷한 결과를 보인다. 라만 선평이 펄스광의 선평에 비해 매우 클 경우(그림 2(c),(d)에는 상관함수의 폭이 크게 좁아지고 특히 $|a|^2$ 가 클수록 좁지만 γ/Γ_p 의 비율만큼 좁아지지는 않는다. 이는 발생한 스톱스광의 선평은 그만큼 커지지만 스톱스광과 두 펄스광 등 세 광의 결합에 의해 신호가 발생하므로 그 비율이 그대로 반영되지 않은 것으로 이해된다. 또한 $|a|^2$ 의 값이 클수록 위상 결맞음에 의한 증강 효과가 크므로 상관함수의 폭이 좁아지는 것이라 여겨진다.

그림 2를 보면 전체적으로 그래프가 비대칭적이지만 $\tau=0$ 에서 최대값을 갖고 그 최대값이 비슷한 범위 내에 있음을 알 수 있다. 따라서 실험적으로 $|a|^2$ 의 값을 대략 알아내기 위해서는 최대값 즉, 경로차가 없을 때의 규격화된 신호의 세기를 알아내면 된다. 그림 3에 이러한 최대값을 Γ_m 의 함수로 나타내었다. 스톱스광의 선평은 펄스광의 선평과 매질의 라만 선평의 합이라 가정하였고 따라서 Γ_m 의 범위는 Γ_p 와 Γ_s 의 사이값으로 하였다. 여기서도 그림 2에서와 같이 여러 가지 γ/Γ_p 및 $|a|^2$ 값들에 대한 결과를 나타내었다. 모든 그래프에서 $|a|^2$ 가 클수록 최대값이 증가하였고 Γ_m 에 따라서는 큰 변화가 없음을 알 수 있다. γ/Γ_p 가 커질수록 Γ_m 에 따른 최대값의 변화가 커지지만 주어진 Γ_m 의 범위가 상식적으로 가능한 최대의 범위임을 감안하면 $|a|^2$ 의 값이 결정되면 최대값이 거의 결정된다고 할 수 있다. 따라서 실험적으로 최대값 ($I(\tau=0)$)을 측정하면 γ/Γ_p 가 1 보다 작을 때에는 거의 정확하게 $|a|^2$ 의 값을 알아낼 수 있고 1 보다 클 때에는 대략의 범위를 알 수 있다.

라만 매질에서 유도 라만 산란에 의해 생성된 스톱스광과 그 펄스광과의 상관관계는 식 (6)에서 두 상수 a 와 Γ_m 로 결정된다. $I(\tau=0)$ 의 값으로부터 $|a|^2$ 가 결정되었을 때 Γ_m 에 따라 상관함수의 모양이 어떻게 달라지는가를 그림 4에서 볼 수 있다. 여기서 $|a|^2=1.0$ 으로 고정하였고 네가지의 γ/Γ_p 에 대해 나타내었으며 각 경우에 세가지의 Γ_m 값 즉, $\Gamma_m=\Gamma_p, \Gamma_m=(\Gamma_p+\gamma/\Gamma_p)/2, \Gamma_m=\Gamma_s(\Gamma_p+\gamma)$ 에 대해 그래프로 나타내었다. 그림에

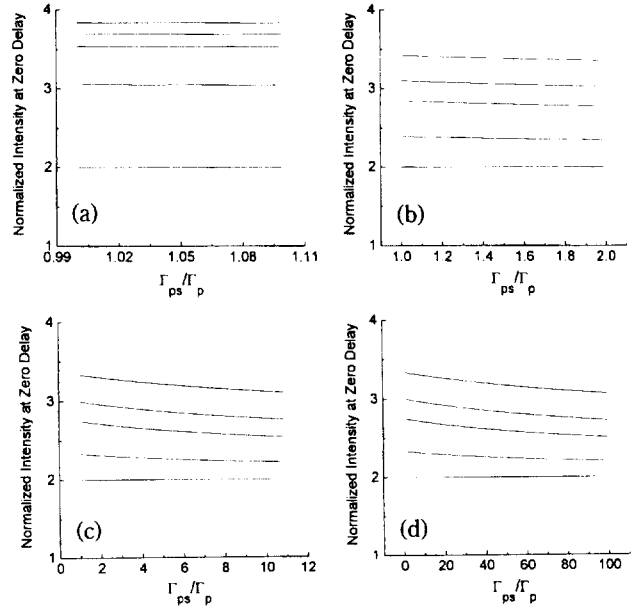


그림 3. 경로차가 없을 때 Γ_m 에 따른 규격화된 세기의 이론적 변화. (a) $\gamma/\Gamma_p=0.1$, (b) $\gamma/\Gamma_p=1$, (c) $\gamma/\Gamma_p=10$, (d) $\gamma/\Gamma_p=100$. 모든 그래프에서 위쪽 곡선부터 각각 $|a|^2=1.0, 0.5, 0.2, 0.1, 0$ 이다.

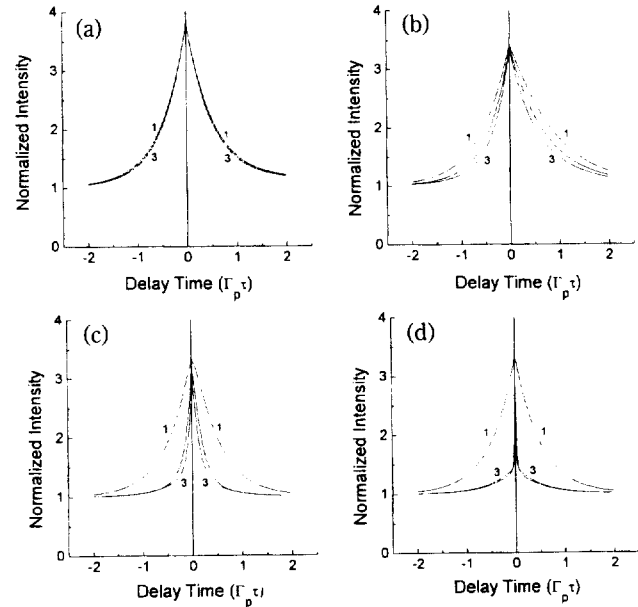


그림 4. $|a|^2=1.0$ 일 때 경로차에 따른 규격화된 세기의 이론적 변화. (a) $\gamma/\Gamma_p=0.1$, (b) $\gamma/\Gamma_p=1$, (c) $\gamma/\Gamma_p=10$, (d) $\gamma/\Gamma_p=100$. 1: $\Gamma_m=\Gamma_p$, 2: $\Gamma_m=(\Gamma_p+\Gamma_s)/2$, 3: $\Gamma_m=\Gamma_s$.

서 폭이 클수록 Γ_m 가 작은 경우에 해당한다. $\gamma/\Gamma_p=0.1$ 인 경우(그림 4(a)에는 세 그래프가 거의 일치하는데 이는 γ 가 작아 모든 경우에 스톱스광의 분광학적 특성이 펄스광과 유사하기 때문이다. $\gamma/\Gamma_p=1$ 인 경우(그림 4(b)에는 세 그래프의 차이가 비교적 뚜렷한데 특히 폭이 차이를 보인다. 그러나 제일 바깥쪽 그래프와 안쪽 그래프를 비교할 때, Γ_m 의 값은 안쪽 그래프가 두 배 크지만 그래프의 폭은 두 배만큼 작지는 않다. 이

는 신호가 Γ_{ps} 뿐만 아니라 Γ_p, Γ_s 등에도 의존하기 때문이다. 이러한 경향은 γ/Γ_p 가 더 커질 때에도 나타나는데 그림 4(c), (d)에서 각각 안쪽의 두 그래프들은 Γ_{ps} 가 약 두배의 비율을 갖는데 그래프는 거의 비슷한 모양을 갖는다. 또한 그림 4에서 γ/Γ_p 는 다르더라도 $\Gamma_{ps}=\Gamma_p$ 에 해당하는 네 그래프가 유사함을 알 수 있다. γ 가 다르면 Γ_s 가 달라지므로 위의 결과는 Γ_s 자체는 규격화된 신호의 크기에 큰 영향을 주지 못한다고 할 수 있다. 그러나, Γ_{ps} 는 펌프광과 스톡스광이 상관관계를 갖는 특성시간의 역수에 해당하므로, Γ_s 가 변할 때 Γ_{ps} 가 변하지 않는다는 것은 물리적으로 곤란한 가정이며 실험으로 관측하면 Γ_p 보다 큰 Γ_{ps} 의 값을 얻으리라 예상된다.

IV. 결 론

라만 매질에서 두 개의 펌프광만을 사용한 시분해 반스톡스 라만 분광법을 제안하고, 임의의 선풍을 갖는 광원을 사용할 때의 신호광의 크기를 계산하였다. $\langle E_p^*(t)E_s(t') \rangle = a E_p^* E_s e^{-\Gamma_{ps}|t-t'|}$ 라는 모델을 사용하여 펌프광들의 상대적인 지연시간에 따른 규격화된 반스톡스광 신호의 크기를 계산한 결과 시간지연이 없을 때 최대의 크기를 나타냈으며 지연시간의 부호에 따라 신호의 크기가 달라 상관함수가 비대칭적인 모양이 되었다. 또한 위의 모델에서 $|\alpha|^2$ 의 크기는 신호의 최대값 $I(z=0)$ 로부터, 그리고 Γ_{ps} 는 상관함수의 폭을 이용하여 그 범위를 결정할 수 있으며, 실험 결과와의 맞춤 과정을 통하여 스톡스광과 펌프광의 상관관계를 정량화할 수 있으리라 예상된다. 앞으로 실험을 통한 검증이 필요할 것이며 또한 이러한 결과를 토대로 선풍 등의 분광학적 정보들을 알아내는 데에도 기여할 수 있기를 기대한다.

부 록

식 (6)을 계산한 결과는 다음과 같다.

$$\begin{aligned}
 & C(\gamma, \Gamma_p, \Gamma_s, \Gamma_{ps}, a) \\
 &= \frac{1}{\gamma(\gamma+\Gamma_p+\Gamma_s)} + \frac{2}{(\gamma-\Gamma_p-\Gamma_s)(\gamma+\Gamma_p+\Gamma_s)} \\
 &\quad - \frac{1}{\gamma(\gamma-\Gamma_p-\Gamma_s)} + \frac{2}{(\gamma+\Gamma_p)(\gamma+\Gamma_p+\Gamma_s)} \\
 &\quad + \frac{2}{(\gamma+\Gamma_p-\Gamma_s)(\gamma+\Gamma_p+\Gamma_s)} - \frac{1}{(\gamma+\Gamma_p)(\gamma+\Gamma_p-\Gamma_s)} \\
 &\quad + |a|^2 \left\{ \frac{1}{\gamma^2} + \frac{2}{\gamma(\gamma+\Gamma_p+\Gamma_{ps})} + \frac{1}{2(\gamma+\Gamma_{ps})(\gamma+\Gamma_p+\Gamma_s)} \right. \\
 &\quad \left. + \frac{1}{(\gamma+\Gamma_{ps}+\Gamma_p)(\gamma+\Gamma_{ps}-\Gamma_p)} - \frac{1}{2(\gamma+\Gamma_{ps})(\gamma+\Gamma_{ps}-\Gamma_p)} \right\} \\
 & f_p(\Gamma_p, \Gamma_s, \Gamma_{ps}, a, \tau) = \\
 & \text{Exp}[-2\Gamma_{ps}\tau] \left\{ \frac{|a|^2}{\gamma^2} + \frac{1}{\gamma(\gamma+\Gamma_p-\Gamma_{ps})} + \frac{|a|^2}{2(\gamma-\Gamma_{ps})(\gamma-\Gamma_{ps}+\Gamma_p)} \right.
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 & \left. \frac{|a|^2}{2(\gamma-\Gamma_{ps})(\gamma-\Gamma_{ps}-\Gamma_p)} + \frac{|a|^2}{(\gamma-\Gamma_{ps}+\Gamma_p)(\gamma-\Gamma_{ps}-\Gamma_p)} \right\} \\
 & + 2|a|^2 \text{Exp}[-(\Gamma_{ps}+\Gamma_p)\tau] \\
 & \left\{ \frac{1}{\gamma(\gamma+\Gamma_{ps}+\Gamma_p)} + \frac{1}{(\gamma-\Gamma_{ps}-\Gamma_p)(\gamma+\Gamma_{ps}-\Gamma_p)} \right. \\
 & + \frac{1}{\gamma^2} + \frac{1}{2(\gamma+\Gamma_{ps})(\gamma+\Gamma_p+\Gamma_{ps})} + \frac{1}{(\gamma+\Gamma_{ps}-\Gamma_p)(\gamma+\Gamma_{ps}+\Gamma_p)} \\
 & \left. - \frac{1}{2(\gamma+\Gamma_{ps})(\gamma+\Gamma_{ps}-\Gamma_p)} - \frac{1}{(\gamma-\Gamma_p)(\gamma+\Gamma_{ps}-\Gamma_p)(\gamma+\Gamma_{ps}+\Gamma_p)} \right. \\
 & \left. + \frac{1}{\gamma(\gamma+\Gamma_{ps}+\Gamma_p)} - \frac{1}{\gamma(\gamma-\Gamma_{ps}-\Gamma_p)} \right\} \\
 & + \text{Exp}[-2\Gamma_p\tau] \left\{ \frac{1}{2(\gamma-\Gamma_p)(\gamma-\Gamma_p+\Gamma_s)} - \frac{1}{2(\gamma-\Gamma_p)(\gamma-\Gamma_p-\Gamma_s)} \right. \\
 & + \frac{1}{(\gamma-\Gamma_p+\Gamma_s)(\gamma-\Gamma_p-\Gamma_s)} + \frac{1}{(\gamma+\Gamma_p)(\gamma+\Gamma_p+\Gamma_s)} \\
 & \left. + \frac{1}{\gamma(\gamma+\Gamma_p-\Gamma_p)} + \frac{2}{(\gamma-\Gamma_s-\Gamma_p)(\gamma+\Gamma_p+\Gamma_p)} - \frac{1}{2\gamma(\gamma-\Gamma_s-\Gamma_p)} \right\} \\
 & + \text{Exp}[-\gamma+\Gamma_p+\Gamma_{ps}]\tau \frac{-4\Gamma_{ps}|a|^2}{\gamma(\gamma+\Gamma_{ps}+\Gamma_p)(\gamma+\Gamma_p-\Gamma_{ps})} \\
 & + |a|^2 \text{Exp}[-2\gamma\tau] \left\{ \frac{1}{\gamma(\gamma+\Gamma_{ps}+\Gamma_p)} + \frac{1}{(\gamma-\Gamma_{ps}-\Gamma_p)(\gamma+\Gamma_{ps}+\Gamma_p)} \right. \\
 & \left. - \frac{1}{2(\gamma+\Gamma_{ps})(\gamma+\Gamma_{ps}-\Gamma_p)} - \frac{2}{(\gamma-\Gamma_{ps}-\Gamma_p)(\gamma+\Gamma_{ps}+\Gamma_p)} \right. \\
 & \left. - \frac{1}{2(\gamma-\Gamma_{ps})(\gamma-\Gamma_{ps}+\Gamma_p)} + \frac{1}{(\gamma-\Gamma_{ps}+\Gamma_p)(\gamma-\Gamma_{ps}-\Gamma_p)} \right. \\
 & \left. + \frac{1}{2(\gamma-\Gamma_{ps})(\gamma-\Gamma_{ps}-\Gamma_p)} \right\} \\
 & + |a|^2 \text{Exp}[\gamma+\Gamma_{ps}+\Gamma_p]\tau \\
 & \left\{ \frac{2}{(\gamma-\Gamma_{ps}-\Gamma_p)(\gamma+\Gamma_{ps}+\Gamma_p)} - \frac{2}{(\gamma-\Gamma_{ps}+\Gamma_p)(\gamma-\Gamma_{ps}-\Gamma_p)} \right\} \\
 & + \text{Exp}[-2\gamma\tau] \left\{ \frac{1}{2(\gamma+\Gamma_p)(\gamma+\Gamma_p+\Gamma_s)} + \frac{1}{(\gamma+\Gamma_p-\Gamma_s)(\gamma+\Gamma_p+\Gamma_s)} \right. \\
 & \left. - \frac{1}{2(\gamma+\Gamma_p)(\gamma+\Gamma_p-\Gamma_s)} - \frac{2}{(\gamma-\Gamma_p-\Gamma_s)(\gamma+\Gamma_p+\Gamma_s)} \right. \\
 & \left. - \frac{1}{2(\gamma-\Gamma_p)(\gamma-\Gamma_p+\Gamma_s)} - \frac{1}{(\gamma-\Gamma_p+\Gamma_s)(\gamma-\Gamma_p-\Gamma_s)} \right. \\
 & \left. + \frac{1}{2(\gamma-\Gamma_p)(\gamma-\Gamma_p-\Gamma_s)} \right\} \\
 & + \text{Exp}[-(\gamma+\Gamma_p+\Gamma_s)\tau] \\
 & \left\{ \frac{2}{(\gamma-\Gamma_p-\Gamma_s)(\gamma+\Gamma_p+\Gamma_s)} - \frac{2}{(\gamma-\Gamma_p+\Gamma_s)(\gamma-\Gamma_p-\Gamma_s)} \right. \\
 & \left. + \frac{1}{\gamma(\gamma+\Gamma_s+\Gamma_p)} - \frac{1}{\gamma(\gamma+\Gamma_s-\Gamma_p)} \right\}
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 f_m(\Gamma_p, \Gamma_s, \Gamma_{ps}, a, \tau) = & \\
 |a|^2 \text{Exp}[2\Gamma_{ps}\tau] & \left\{ \frac{2}{\gamma(\gamma + \Gamma_{ps} + \Gamma_p)(\gamma + \Gamma_{ps} - \Gamma_p)} \right. \\
 + \frac{1}{(\gamma + \Gamma_{ps})(\gamma + \Gamma_p + \Gamma_{ps})} - \frac{1}{(\gamma + \Gamma_{ps})(\gamma + \Gamma_{ps} - \Gamma_p)} & \\
 + 2|a|^2 \text{Exp}[(\Gamma_{ps} + \Gamma_p)\tau] & \left\{ \frac{1}{\gamma(\gamma + \Gamma_{ps} - \Gamma_p)} \right. \\
 + \frac{1}{(\gamma + \Gamma_{ps} - \Gamma_{sbp})(\gamma + \Gamma_{ps} + \Gamma_p)} + \frac{1}{\gamma^2} + \frac{1}{\gamma(\gamma + \Gamma_{ps} + \Gamma_p)} & \\
 + \text{Exp}[2\gamma\tau] & \left\{ \frac{1}{2(\gamma + \Gamma_p)(\gamma + \Gamma_p + \Gamma_2)} \right. \\
 + \frac{1}{(\gamma + \Gamma_p - \Gamma_2)(\gamma + \Gamma_p + \Gamma_2)} - \frac{1}{2(\gamma + \Gamma_p)(\gamma + \Gamma_p - \Gamma_2)} & \\
 - \frac{1}{(\gamma - \Gamma_p - \Gamma_1)(\gamma + \Gamma_p + \Gamma_1)} - \frac{1}{2(\gamma - \Gamma_p)(\gamma - \Gamma_p + \Gamma_1)} & \\
 + \frac{1}{(\gamma - \Gamma_p + \Gamma_2)(\gamma - \Gamma_p - \Gamma_2)} + \frac{1}{2(\gamma - \Gamma_p)(\gamma - \Gamma_p - \Gamma_2)} & \\
 + \text{Exp}[(\gamma + \Gamma_p + \Gamma_s)\tau] & \\
 \left\{ \frac{2}{(\gamma - \Gamma_p - \Gamma_s)(\gamma + \Gamma_p + \Gamma_s)} - \frac{2}{(\gamma - \Gamma_p + \Gamma_s)(\gamma - \Gamma_p - \Gamma_s)} \right. & \\
 + \frac{1}{\gamma(\Gamma_s - \Gamma_p)(\gamma + \Gamma_s + \Gamma_p)} - \frac{1}{\gamma(\gamma - \Gamma_s - \Gamma_p)} & \\
 \left. + \frac{1}{(\gamma - \Gamma_s - \Gamma_p)(\gamma + \Gamma_s + \Gamma_p)} - \frac{2}{(\gamma - \Gamma_s + \Gamma_p)(\gamma + \Gamma_s - \Gamma_p)} \right\} & \\
 + \text{Exp}[2\Gamma_p\tau] & \left\{ \frac{1}{2(\gamma - \Gamma_p)(\gamma - \Gamma_p + \Gamma_s)} \right. \\
 - \frac{1}{2(\gamma - \Gamma_p)(\gamma - \Gamma_p - \Gamma_s)} + \frac{1}{\gamma - \Gamma_p + \Gamma_s} - \frac{1}{(\gamma - \Gamma_p - \Gamma_s)} & \\
 + \frac{1}{(\gamma - \Gamma_s + \Gamma_p)(\gamma + \Gamma_s - \Gamma_p)} + \frac{1}{2\gamma(\gamma + \Gamma_s + \Gamma_p)} & \\
 \left. - \frac{1}{2\gamma(\gamma - \Gamma_s + \Gamma_p)} + \frac{1}{(\gamma + \Gamma_p)(\gamma + \Gamma_p + \Gamma_s)} \right\} &
 \end{aligned}$$

참고문헌

[1] D. DeBeer, E. Usadi and S. R. Hartmann, Phys. Rev. Lett. **60**, 1262 (1988).
 [2] K. Wynne, M. Muller and J. D. W. Van Voorst, Phys. Rev. **A 41**, 6361 (1990).
 [3] G. G. Lombardi and H. Injeyan, J. Opt. Soc. Am. **B 3**, 1461 (1986).
 [4] C. S. Go, Y. S. Lim, H. J. Moon, J. H. Lee and J. S. Chang, Opt. Lett. **20**, 2366 (1995).
 [5] R. Loudon, *The Quantum Theory of Light* (Clarendon Press, Oxford, 1983).
 [6] N. Morita and T. Yajima, Phys. Rev. **A 30**, 2525 (1984).
 [7] J. P. Partanen and M. J. Shaw, J. Opt. Soc. Am. **B 3**, 1374 (1986).

Dependence of the time resolved anti-Stokes Raman signal on the correlation between pump and Stokes waves

Chun-Soo Go

Department of Physics, Wonkwang University, Iksan 570-749, Korea

(Received : March 29, 1997)

We study the time resolved anti-Stokes Raman spectroscopy with correlated pump and Stokes waves. When only two pump waves with relative delay are incident into a Raman medium, the Stokes waves generated by stimulated Raman scattering couple with the pump waves to generate anti-Stokes signal. Since the correlation between Stokes and the pump waves are not perfect and not quantified yet, we make a simple model for it and calculate the normalized anti-Stokes signal intensities as a function of time delay. The broadband light is regarded as chaotic field.