

## 비선형 광신호의 간섭현상 연구\*

이은성 · 한재원 · 박승남 · 이충희

한국표준과학연구원, 플라즈마연구소

(1992년 10월 12일 받음)

KDP 결정에서 2차 고조파가 발생될 때와 질소기체에서 CARS신호가 발생될 때 나타나는 간섭현상을 조사하였다. 비선형 신호들의 위상차이를 주기 위하여 광학유리를 이용하여 제작된 위상변이장치와 고압기체셀을 사용하였으며 각 매질에 대한 가간섭길이를 측정하였다. 특정한 스톱스광의 파장에서 CARS 신호가 상쇄간섭을 일으키도록 위상변이장치의 두께를 조정한 후, 넓은 파장영역에서 상쇄간섭된 질소 CARS 스펙트럼을 얻었다. 위상변이장치의 두께를 바꾸면서 상쇄간섭정도의 변화를 관찰하였다.

### I. 서 론

비선형 광학현상으로 물질에서 발생하는 광신호들은 코히런트하기 때문에 서로 중첩되어 간섭할 수가 있다.<sup>[1]</sup> 예를 들면 어떤 물질의 표면과 내부에서 비선형 광학 현상으로 각각 발생한 신호는 위상의 차이가 있으므로 간섭효과를 보여 준다. 따라서 표면에서 발생한 신호만을 보려하면 내부에서 발생한 신호를 다른 비선형 물질에서 발생한 신호에 180도의 위상차를 주어 상쇄간섭시키면 된다. 비선형 광학적 간섭효과로 알려진 실험은 2차 비선형 감수율  $\chi^{(2)}$ 에 의한 2차 고조파 발생(SHG),<sup>[2]</sup> 3차 비선형 감수율  $\chi^{(3)}$ 에 의한 3차 고조파 발생(THG),<sup>[3]</sup> 주파수차 발생(DFG)<sup>[4]</sup>이 있는데 각각의 경우에 모두 비선형 신호가 간섭하여 위상차에 의존하는 간섭무늬를 보여 준다.

CARS(coherent anti-Stokes Raman spectroscopy)는 Maker와 Terhune<sup>[5]</sup>이 첫선을 보인 이래 어떤 물질의 온도나 농도와 같은 물리량을 측정하는데 강력한 도구로 사용되고 있다. 그러나 매질 속에 소량 들어있는 분자를 분석하고자 할 때, 그 매질의 3차 비선형 감수율의 비공명항에 의한 CARS신호가 미량분자의 공명항에 의한 신호보다 크면, 미량원소에 대한 CARS 신호의 분석이 매우 힘들게 된다. 이러한 비공명항을 없애기 위하여 도입된 편광분광학<sup>[6,7,8]</sup>은 신호대 잡음비를 개선하였으나 원하는 공명항에 의한 신호마저도 감소시키는 단점이

있다. 따라서 이런 비선형 광신호의 간섭현상을 이용하여 CARS 신호의 비공명항을 없애는 연구가 최근에 활발히 진행되고 있다.<sup>[9]</sup> 본 연구에서는 2차 고조파발생에서 비선형광학신호의 간섭현상을 간단한 모델로 설명하고 KDP 결정으로 실험하여 가간섭거리를 측정하였다. 또한 질소의 CARS 신호들을 상쇄간섭시킴으로써 CARS 신호의 비공명항을 제거할 수 있는 가능성을 보였다.

### II. 비선형 광학신호의 간섭 이론

#### 1. 2차 고조파 발생

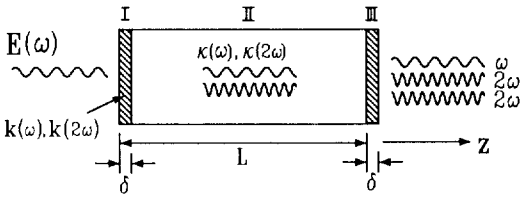
2차 고조파발생에서 간섭현상을 정성적으로 이해하기 위해 그림 1과 같이 두께  $\delta$ 인 얇은 비선형매질이 길이  $L$ 의 분산매질의 양쪽에 놓인 간단한 광학계를 가정한다. 초기에 (1) 식으로 표현되는 주파수  $\omega$ 인 평면파가 굴절률  $n(\omega)$ 인 비선형 매질내의  $Z$ -방향으로 진행할 때 막스웰 방정식을 이용한 2차 고조파 발생이론<sup>[11]</sup>에 의해서 (2) 식과 같은 미분방정식을 얻는다.

$$E(\omega) = E_0(\omega) \exp[i(k(\omega)Z - \omega t)], \quad (1)$$

$$\frac{dE_0(2\omega)}{dZ} = -i\omega\sqrt{\mu_0/\epsilon}\chi^{(2)}E_0(\omega)^2 \exp[i(2k(\omega) - k(2\omega))Z] \quad (2)$$

$Z=0$ 에서  $E_0(2\omega)=0$ 라고 가정하고 비선형매질의 길이를

\* 본 연구는 1991년도 과학기술처의 특정연구사업으로 수행된 것임.



I, III : Nonlinear media for the 2nd harmonic generation  
II : Dispersive medium

그림 1. Simplified model for nonlinear interferometry in SHG.

δ로 매우 얇다고 가정하면  $0 < Z < \delta$ 에서 근사적으로 (3) 식과 같은 2차 고조파를 얻게 된다.

$$E(2\omega) = E_0(2\omega) \exp[i(k(2\omega)Z - 2\omega t)] \\ = i\alpha\delta \exp[i(2k(\omega) - k(2\omega))Z] \exp[i(k(2\omega)Z - 2\omega t)] \\ [\alpha = -\omega \sqrt{\mu_0/\epsilon} \chi^{(2)} E_0(\omega)^2]. \quad (3)$$

따라서 영역 I에서 생성된 2차 고조파는  $i\alpha\delta \exp[i(k(2\omega)Z - 2\omega t)]$ 이 되고 이 파가 경계조건을 만족하면서 영역 II를 지나 영역 III에 도달하였을 때는

$$E_1(2\omega) = i\rho\delta \exp[i(\kappa(2\omega) - k(2\omega))L] \exp[i(k(2\omega)Z - 2\omega t)] \\ [\rho = 4\alpha k(2\omega)\kappa(2\omega)/(k(2\omega) + \kappa(2\omega))^2] \quad (4)$$

이 되고 영역 I에서의 기본파가 경계조건을 만족하면서 영역 II를 지나 영역 II에서 발생시킨 2차 고조파는 다음식과 같다.

$$E_2(2\omega) = i\eta\delta \exp[i(2(\kappa(\omega) - k(\omega))L - (k(2\omega) - 2k(\omega))L)] \\ \times \exp[i(k(2\omega)Z - 2\omega t)] \\ [\eta = 16\alpha[(k(\omega)\kappa(\omega))^2/(k(\omega) + \kappa(\omega))^4]]. \quad (5)$$

여기서  $k(\omega)$ 는 주파수  $\omega$ 일때 비선형 매질에서 파수벡터이고  $\kappa(\omega)$ 는 분산매질에서의 파수벡터이다. 실제로 출력되는 2차 고조파의 전장은 (4)와 (5) 식의 합으로 표현된다.

$$E_1(2\omega) + E_2(2\omega) \\ = i\rho\delta \exp[i(k(2\omega)Z - 2\omega t)] \exp[i(2\kappa(\omega) - k(2\omega))L] \\ \times [1 + \gamma \exp(i\Delta\kappa L)] \\ [\Delta\kappa = \kappa(2\omega) - 2\kappa(\omega), \gamma = \eta/\rho]. \quad (6)$$

로 측정되는 2차 고조파의 세기는 다음과 같이 쓸 수 있다.

$$|E_1(2\omega) + E_2(2\omega)|^2 \\ = \rho^2 \delta^2 [1 + \gamma^2 + 2\gamma \cos(\Delta\kappa L)]. \quad (7)$$

윗 식에 의하면 분산매질(영역 II)의 길이  $L$ 이 변함에 따라 밝고 어두운 무늬가 교대로 나타나는 간섭현상을 보게 된다. 여기서  $2\pi/\Delta\kappa$ 를 2차 고조파발생에서 분산 매질의 가간섭길이  $L_c^{[10]}$ 라고 하며 이는 매질의 종류에 따라 다르다. 물리적으로 볼 때, 기본파  $E(\omega)$ 와 비선형 신호  $E_1(2\omega)$ 가 분산이 있는 매질을 지나면서 위상관계가 변하게 된다. 따라서 이 기본파에 의해 영역 III에서 생성될 비선형신호  $E_2(2\omega)$ 는  $E_1(2\omega)$ 와 위상차이를 가지게 된다. 매질의 길이가 커짐에 따라 점점 그 차이는 커지는데 그 차이가  $2\pi$ 가 되는 길이를 분산매질의 가간섭길이라 한다.

### 2. CARS에서 비공명항 제거

CARS 경우에도 비슷한 이론적 취급을 할 수 있으며, 이 경우 가간섭길이는 다음과 같이 표현된다.<sup>[9]</sup>

$$L_c = (2\pi/\Delta\kappa) = 2\pi/(2\kappa_p - \kappa_s - \kappa_{CARS}). \quad (8)$$

여기서  $\kappa_p$ 는 펌프광(pump beam)의 파수벡터이고  $\kappa_s$ 는 스톡스광(Stokes beam)의 파수벡터이다. 앞서 언급한 CARS 신호에서 3차 비선형감수율의 비공명항을 제거하는 방법을 간략히 정리하면 다음과 같다. CARS 신호를

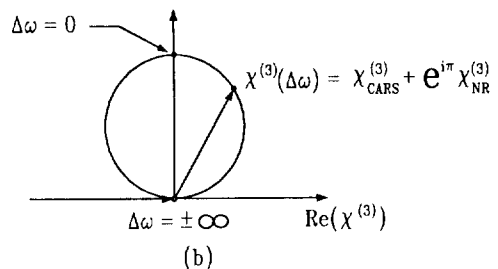
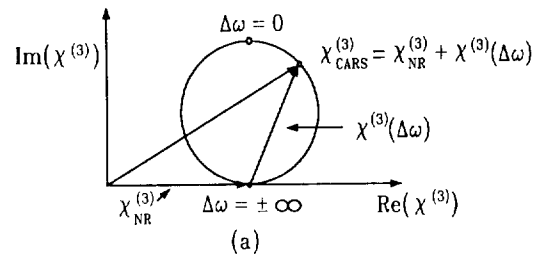


그림 2. CARS type nonlinear susceptibility in complex plane (a) before and (b) after cancelling  $\chi_{NR}^{(3)}$ .

발생시키는 비선형분극  $P_{CARS}^{(3)}$ 는 다음 식으로 표현된다.

$$P_{CARS}^{(3)} = \chi_{CARS}^{(3)} E_p^2 E_s \quad (9)$$

여기서  $E_p$ 와  $E_s$ 는 각각 펌프광과 스톱스광의 전장의 크기를 나타낸다. 펌프광과 스톱스광의 파장이 공명선에서 멀리 떨어져 있을 때 CARS신호의 발생과 관련된 3차 비선형 감수율  $\chi_{CARS}^{(3)}$ 는 공명항과 비공명항 둘로 나눌 수 있다. 즉,

$$\chi_{CARS}^{(3)} = \chi_{NR}^{(3)} + \chi^{(3)}(\Delta\omega) = \chi_{NR}^{(3)} + \frac{\chi_R^{(3)}}{\Delta\omega + i\Gamma} \quad (10)$$

$$[\Delta\omega = \omega - (2\omega_p - \omega_s)].$$

이것을 복소평면에 나타내면 그림 2(a)와 같다. 여기에 그림 2(b)와 같이  $\chi_{CARS}^{(3)}$ 에 새로운 실수부  $\exp(im)\chi_{NR}^{(3)}$ 를 더하면 비공명항은 제거되고 순수한 공명항  $\chi^{(3)}(\Delta\omega)$ 만이 남게 된다. 이를 실현하기 위하여 실험적으로는 시료에서 발생된 CARS 신호와 비공명항만 있는 시료-불활성기체와 같은 단원자기체나 공명선이 멀리 떨어져 있는 시료에서 발생된 CARS 신호를 위상차이를 주어 간섭시킨다.

### III. 실험 결과 및 논의

#### 1. KDP 단결정에서 발생된 Nd:YAG 레이저 2차 고조파의 간섭

발생된 2개의 비선형 신호의 위상차이를 조절하기 위해서는 그림 1에서 보는 바와 같이 분산매질이 필요하다. 이러한 분산매질로 기올기가 똑같은 두개의 켈기

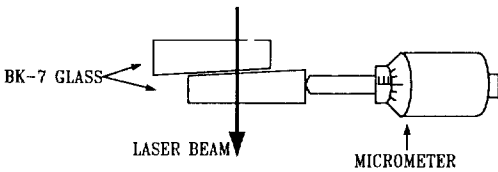


그림 3. Phase shifting unit (P.S.U.).

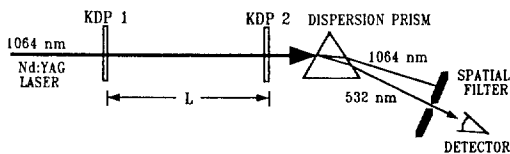


그림 4. Experimental configuration of nonlinear interferometry in second harmonic generation.

모양 BK-7 유리를 포개어 사용하면 편리하다. 이러한 용도로 제작된 위상변이장치(phase shifting unit-P.S.U.)를 그린 것이 그림 3이다. 본 연구에서 KDP 단결정에서 발생된 Nd:YAG 레이저광의 2차 고조파의 간섭을 보기 위하여 사용한 장치가 그림 4이다. 신호의 세기는 실리콘 광검출기와 박스카 평균기를 이용하여 측정하였다. KDP 1에서 생긴 2차 고조파(532 nm)가 1차 기본파(1064 nm)와 함께 위상변이장치를 통과하면 두 파의 위상관계가 변하여 KDP2에서 생성된 2차 고조파는 KDP1에서 생성된 파와 위상이 달라져 서로 간섭을 일으킨다.

두 개의 KDP 결정사이의 분산매질로 위상변이장치, 대기-결정간의 거리를 바꿈으로 그리고 압력셀을 사용하여 실험하였다. 실험에서 얻어진 결과가 그림 5에 그려져 있다. 그림 5의 (a)는 위상변이장치를 삽입하여 실험한 결과로 BK-7 유리의 가간섭길이는  $L_c = 41 \mu\text{m}$ 로 측정되었고 이는 굴절률 표로 계산한  $L_c = 42 \mu\text{m}$ 와 잘 일치한다.<sup>[12]</sup> 상온(295 K)의 1 기압 공기를 위상변이장치로 사용하여 실험한 결과가 그림 5(b)에 나타나 있다. 결과로부터 상온(295 K) 1 기압 공기의 가간섭길이는  $L_c = 125 \text{mm}$ 로 측정되었다. 그림 5(c)는 길이 17 cm 압력셀에 질소기체를 넣고 그 압력을 변화시키면서 측정된 결과이다. 여기서 간섭무늬 주기는  $\Delta P_c = 800 \text{mbar}$  이다.

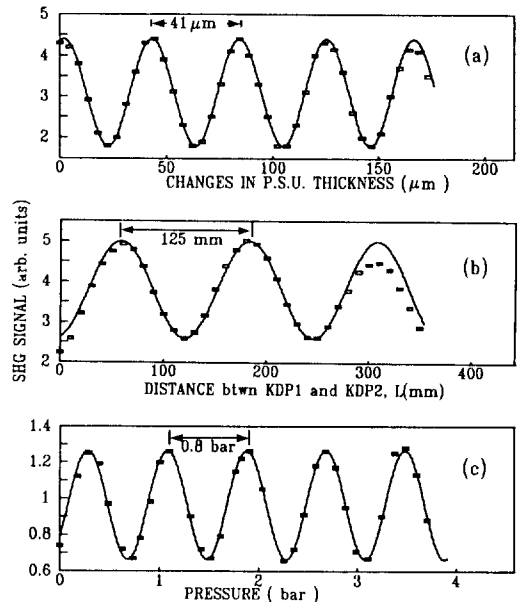


그림 5. Interference pattern. (a) using BK-7 glass. (b) using 1 atm air at 297 K. (c) using nitrogen gas.

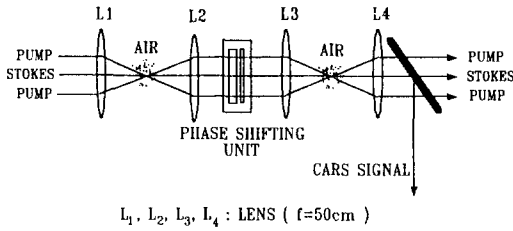


그림 6 Experimental configuration of nonlinear interferometry in CARS.

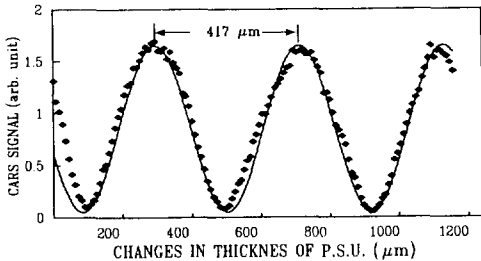


그림 7. Interference pattern using BK-7 glass as a P.S. U.

2. 질소기체에서 발생한 CARS 신호의 간섭

질소기체의 CARS 신호 간섭현상을 관찰하기 위하여 사용한 장치가 그림 6이다. 펌프광으로는 Nd:YAG 레이저(Quantel YG660)의 2차 고조파를, 스토크스광으로는 파장가변 펄스색소레이저(Lumonics Hyper DYE-300 SLM)광을 사용하였다. 전체 실험장치의 구성과 사양은 이미 다른 논문에서 보고된 바 있다.<sup>[13]</sup> 색소레이저 파장을 질소의 라만 Q-가지, 분광  $J=0$  근처(라만편이:  $2330 \text{ cm}^{-1}$ )의 CARS 신호가 나오게 맞추고 그림 6의 위상변이장치를 조절하면서 CARS 신호의 간섭을 관찰한 결과가 그림 7이다. 위상변이장치의 두께 변화를 이용하여 계산한 가간섭길이  $L_c$ 는  $420 \mu\text{m}$  이었다.

그림 6의 위상변이장치 앞에서 측정된 질소의 CARS 스펙트럼을 그린 것이 그림 8(a)이다. 그림 6의 실험장치에서 위상변이장치를 어떤 파장의 질소기체 CARS 분광신호가 완전히 상쇄간섭을 일으키도록 조정한 후 질소기체의 CARS 스펙트럼을 측정하였다. 그림 8(b)는 라만편이  $2328.64 \text{ cm}^{-1}$ 에서 상쇄간섭을 시킨 경우이고 (c)는 라만편이  $2330.3 \text{ cm}^{-1}$ 에서 상쇄간섭을 시킨 경우이다. 그림 8(b)를 보면 측정된 스펙트럼 영역에서 CARS 신호가 거의 상쇄간섭하는 것을 볼 수 있다. 그러나 그림 8(c)를 보면 상쇄간섭이 되도록 맞춘 파장에서 멀어짐에 따라 약간의 CARS 신호가 새어 나오는 것을 볼 수 있다.

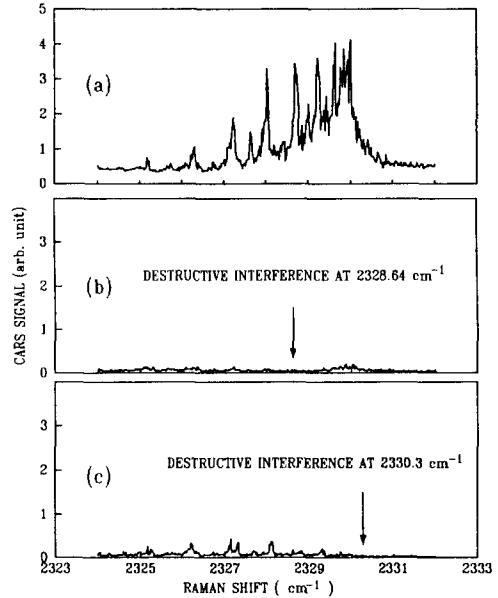


그림 8. CARS spectrum of nitrogen gas (a), and destructive interference at Raman shift  $2328.64 \text{ cm}^{-1}$  (b), and at Raman shift  $2330.3 \text{ cm}^{-1}$  (c).

이것은 그림 6에서 CARS 신호가 발생하는 두 영역 사이에 있는 분산매질-위상변이장치, 렌즈, 대기등의 굴절률이 색소레이저의 파장이 변하면서 함께 변하기 때문이다. 굴절률이 변하면 (8) 식에서 정의된 가간섭길이  $L_c$ 가 변하게 된다. 즉, 파장이 변하면 간섭조건 즉, 위상차이가 달라지게 되는 것이다. 이러한 상쇄간섭의 영역을 넓히려면 분산매질의 길이-광로정, 렌즈의 두께, 위상변이장치의 두께를 가능한 줄이던가 색소 레이저 파장을 변화시키면서 위상변이장치의 두께를 동시에 변화시켜 주면 된다. 그림 8의 결과에서 볼 때 위상변이장치를 적절히 잘 맞추면 그림 8의 (b)와 같이 CARS 신호를 거의 상쇄간섭시킬 수 있음을 알 수 있으며, 현재의 실험조건에서도 약 3~5개 정도의 라만 Q-가지 분광선이 거의 완전히 상쇄간섭됨을 확인할 수 있다.

IV. 결 론

본 연구에서는 비선형 광신호의 간섭현상을 이해하기 위하여 KDP 단결정에서 발생한 Nd:YAG 레이저광의 2차 고조파의 간섭과 질소의 CARS 신호의 간섭실험을 각각 수행하였다. 얻어진 간섭무늬로부터 각 분산매질의 가간섭 길이를 측정하였고 이론적으로 계산한 값과 비

교하여 일치하는 결과를 얻었다. 이러한 비선형 신호의 간섭현상을 이용하여 CARS 신호에서 비공명항에 의한 신호를 제거하는 문제를 논의하였다. 특히 스펙트럼의 전체 파장영역에서 완전히 상쇄간섭을 일으키게 하기 위해서는 색소레이저 파장을 변화시키면서, 동시에 각 파장에서 완전상쇄간섭을 일으키도록 위상변이장치와 두께를 변화시켜 주어야함을 발견하였으며 이를 위해 위상변이장치에 자동조절할 예정이다.

참 고 문 헌

[1] J.E. Sipe, D.J. Moss and H.M. van Driel, Phys. Rev. **B35**, 1129 (1987).

[2] Y.R. Shen, J. Vac. Sci. Technol. **B3**,1464 (1985).

[3] J.E. Sipe, V. Mizrahi and G.I. Stegeman, Phys. Rev. **B35**, 9091 (1987).

[4] M.D. Levenson and N. Bloembergen, Phys. Rev. **B10**, 4447 (1974).

[5] P.D. Maker and R.W. Terhune, Phys. Rev. **137**, A801 (1965).

[6] J.J. Song, G.L. Eesley and M.D. Levenson, Appl. Phys. Lett. **29**, 567 (1974).

[7] J.-L. Oudar, R.W. Smith and Y.R. Shen, Appl. Phys. Lett. **34**,758 (1979).

[8] A.C. Eckbreth and R.J. Hall, Combust. Sci. Tech. **25**,175 (1981).

[9] G. Marowsky and G.L. pke, Appl. Phys. **B51**, 49 (1990).

[10] G.L pke, G.Marowsky and R. Steinhoff, Appl. Phys. **B49**, 283 (1989).

[11] J.I. Steinfeld, *Molecules and Radiation* (The MIT Press, Cambridge, Mass., London, England 1985).

[12] HOYA optical glass technical data, HOYA corporation (1985).

[13] J.W. Hahn, S.N. Park, E.S. Lee and C. Rhee, Korean Appl. Phys. **4**, 314 (1991).

Study on the Interference Phenomena of Nonlinear Optical Signals

Eun Seong Lee, Jae Won Hahn, Seung Nam Park, and Chunghi Rhee  
*Plasma Lab., Korea Reserch Institute of Standards and Science, Taejon 305-606, Korea.*

(Received: October 12, 1992)

We have investigeted the interference phenomena of the second harmonic waves of Nd:YAG laser generated at KDP single crystals and the nitrogen CARS signals. To get the phase difference between the successively generated nonlinear optical signals, a phase shifting unit made of BK-7 glass and a high pressure gas cell are used. Coherence lengths of several samples for the nonlinear signals are measured. Adjusting the thickness of the phase shifting unit where the CARS signals make destructive interference completely, the CARS spectrum of nitrogen suppressed over wide wavelength range is obtained. Also, we have observed the change in degree of suppression of the spectrum for the variation of the thickness of the phase shifting unit.