

## CARS에서 배경신호의 제거에 의한 분광선회복\*

이은성 · 한재원

한국표준과학연구원, 양자연구부

(1993년 10월 8일 받음)

비선형광의 간섭효과로 비공명 혹은 공명항에 의한 CARS 신호를 선택적으로 제거할 수 있음을 조사하였다. 스톡스광의 파장변화에 대한 분산매질-BK7 유리의 가간섭길이변화를 계산하였고 전체 스펙트럼 영역에서 이 변화를 고려해 CARS 신호의 위상을 자동조절할 수 있게 하였다. 소량의 일산화탄소 공명선이 프로판의 비공명신호속에서 왜곡되어 있는 경우와 소량의 염화수소기체의 공명선이 프로판의 공명선 속에 섞여 있는 경우에 대해서 각각 상쇄간섭을 통해 프로판만의 CARS 신호를 제거하는 실험을 수행하였다. 펄스레이저를 사용하기 때문에 모든 스펙트럼은 각 펄스마다 비공명 CARS 신호만으로 된 기준신호에 의해 규격화되었다.

### I. 서 론

비선형 광학현상에 의해 발생하는 Coherent anti-Stokes Raman scattering (CARS)은 공간적 시간적으로 간섭성(coherent)이 크고,<sup>[1]</sup> 자발적 라만산란(spontaneous Raman scattering)과 달리 신호가 레이저처럼 방향성이 있고 신호대 잡음비가 크다.<sup>[2]</sup> 또한 펄스광과 스톡스광이 렌즈에 의해 모여져 만나는 매우 좁은 영역에서만 신호가 발생하기 때문에 공간분해능이 우수하다.<sup>[3,4]</sup> 그리하여 자발적 라만산란보다 복잡하고 어려운 실험수행과정에도 불구하고 그것만의 장점 때문에 분광학에 많이 이용되고 있다.<sup>[5,6]</sup> 예로서 분자들의 회전운동모드 스펙트럼을 측정함으로써 광고온계나 열전대등 기타 온도계로는 측정할 수 없는 높은 온도의 기체나 불꽃의 온도분포를 잴 수 있고 소량으로 존재하는 원소의 농도를 측정할 수 있다. 이런 경우 측정하고자하는 원소주위에 때때로 다량으로 섞여 있는 다른원소들의 비공명 혹은 공명 감수율에 의한 광신호가 배경잡음(background noise)으로 존재하여 원하는 공명항 스펙트럼이 왜곡되어 가려내기 힘들어지는 수가 있다. 특히 펄스레이저를 사용하는 경우에는 각 펄스세기의 변동이 심하여 신호가 큰 비공명잡음들 속에 공명선들이 파묻히는 수가 있다. 이런 문제를 해결하려는 여러가지 시도가 있으나<sup>[7,11]</sup> 여기서는 CARS의 성질들 중에 신호의 간섭성을 이용한 비선형

광의 간섭효과<sup>[1,12,13]</sup>를 소개하고자 한다. 즉, 배경잡음도 비선형 광신호이므로 간섭성을 가지고 있고 이 잡음에 대해 위상차  $\pi$ 인 새로운 잡음신호를 만들어 간섭시키면 잡음은 제거된다는 원리이다. 자발적 라만산란의 경우에는 라만신호가 간섭성이 없는 광이므로 간섭효과에 의한 배경잡음 제거효과를 얻을 수 없다.

본 연구에서는 일산화탄소(CO: 라만편이  $2145 \text{ cm}^{-1}$ )에 배경잡음으로서 프로판분자들의 비공명 CARS신호가 섞여있는 경우와 염화수소(HCl: 라만편이  $2890 \text{ cm}^{-1}$ )기체에 프로판분자들의 공명 CARS신호가 잡음으로서 섞여있는 경우 각각에 대해 비선형광의 간섭효과를 적용해 그 실제적 응용성을 검토해 보았다. 이를 위해 좀더 개선된 Marowski<sup>[12]</sup>의 방법을 사용하였다. 즉, 위상이동장치(P.S.U.-phase shifting unit)<sup>[12,13]</sup>를 자동조절할 수 있게 하여 스톡스광의 파장변화에 따른 가간섭길이<sup>[11]</sup>의 변화를 보상할 수 있게 하였고 공간분해능을 좋게 하기 위해 접혀진 상자형 위상맞춤조건(Folded BOXCARS Phase matching condition)을 사용하였다.

### II. 이 론

#### 1. CARS 형태 비선형광의 간섭원리

2차 고조파발생에서 비선형광의 간섭원리는 이미 앞선 논문<sup>[13]</sup>에서 언급된 바있고 여기서는 CARS 형태 비선형광의 간섭원리에 대해 설명하고자 한다. 우선 폭이  $\delta$ 인 두 개의 얇은 비선형매질이 굴절률  $n_1(\omega)$ ,  $n_2(\omega)$ , ...,  $n_l(\omega)$ ,

\* 본 연구는 1993년도 과학기술처의 특정연구사업으로 수행된 것임.

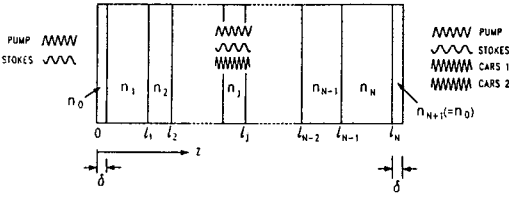


그림 1. Simplified model for nonlinear interferometry in CARS.

...,  $n_N(\omega)$ 인 흡수가 없는  $N$ 개의 분산매질 양쪽에 놓여 있는 경우를 고려해 본다.(그림 1) 초기에 (1), (2)식으로 표현되는 주파수  $\omega_p, \omega_s$ 인 펌프광과 스톱스광이 굴절률이  $n_0(\omega)$ 인 비선형매질 내를  $z$ -방향으로 진행할 때 맥스웰 방정식으로부터 CARS 신호발생과 관련된 미분방정식(3)을 얻는다.<sup>[5]</sup>

$$E_p(\omega_p) = E_p^{(0)} \exp[i(k_0(\omega_p)z - \omega_p t + \phi_p)] \quad (1)$$

$$E_s(\omega_s) = E_s^{(0)} \exp[i(k_0(\omega_s)z - \omega_s t + \phi_s)] \quad (2)$$

$$(k_0(\omega) = n_0(\omega)\omega/c)$$

$$\frac{dE_c^{(0)}}{dz} = i \frac{2\pi\omega_c}{n_0(\omega_c)c} \chi_{CARS} E_p^{(0)2} E_s^{(0)} \times \exp[i\Delta k_0 z] \exp[i(2\phi_p - \phi_s)] \quad (3)$$

$$(\omega_c = 2\omega_p - \omega_s, \Delta k_0 = 2k_0(\omega_p) - k_0(\omega_s) - k_0(\omega_c))$$

여기서  $\Delta k_0$ 는 매질  $n_0$ 에서의 위상부정합(phase mismatch)이다. 미분방정식으로부터 비선형매질(I)에서 얻어진 CARS 신호는 (4)식과 같다. ( $\phi_p, \phi_s = 0$ 로 가정)

$$E_c(\omega_c, l) = i \frac{2\pi\omega_c}{n_0(\omega_c)c} \chi_{CARS} E_p^{(0)2} E_s^{(0)} \delta \exp[i(k_0(\omega_c)z - \omega_c t)] \equiv E_c^{(0)} \exp[i(k_0(\omega_c)z - \omega_c t)] \quad (4)$$

펌프광과 스톱스광은 비선형매질(I)에서 CARS신호를 만들고 난 후 여러단계의 분산매질을 거치면서, 각 매질간의 경계조건을 만족하며 진행하여 비선형매질(II)에 도착하였을 때 다음과 같이 표현된다. 이때 각 경계면에서 반사된 후 이전 경계면들에서 다시 반사되어 돌아오는 광은 무시하였다.

$$E_p(\omega_p) = \left( \prod_{j=0}^N t_{pj} \right) E_p^{(0)} \exp[i \sum_{j=1}^N (k_j(\omega_p) - k_{j+1}(\omega_p)) l_j] \times \exp[i(k_0(\omega_p)z - \omega_p t)] \quad (5)$$

$$E_s(\omega_s) = \left( \prod_{j=0}^N t_{sj} \right) E_s^{(0)} \exp[i \sum_{j=1}^N (k_j(\omega_s) - k_{j+1}(\omega_s)) l_j]$$

$$\times \exp[i(k_0(\omega_s)z - \omega_s t)] \quad (6)$$

여기서  $k_j(\omega) = n_j(\omega)\omega/c$ 이고  $t_{pj}, t_{sj}$ 는 각 경계면에서의 투과계수로서  $t_{pj} = 2n_j(\omega_p)/(n_j(\omega_p) + n_{j+1}(\omega_p))$ ,  $t_{sj} = 2n_j(\omega_s)/(n_j(\omega_s) + n_{j+1}(\omega_s))$ 이다. 마찬가지로  $E_c(\omega_c, l)$ 의 경우에도 비선형매질(II)에 도착하였을 때 다음과 같이 표현된다.

$$E_c(\omega_c, l) = \left( \prod_{j=0}^N t_{cj} \right) E_c^{(0)} \exp[i \sum_{j=1}^N (k_j(\omega_c) - k_{j+1}(\omega_c)) l_j] \times \exp[i(k_0(\omega_c)z - \omega_c t)] \quad (7)$$

또한 (5), (6)과 (3)식으로부터 비선형매질(II)에서 생성된 CARS 신호  $E_c(\omega_c, l)$ 는

$$E_c(\omega_c, l) = i \frac{2\pi\omega_c}{n_0(\omega_c)c} \chi_{CARS} \left( \left( \prod_{j=0}^N t_{pj} \right) E_p^{(0)2} \left( \prod_{j=0}^N t_{sj} \right) E_s^{(0)} \right) \delta \times \exp[i\Delta k_0 l_N] \exp[i2 \sum_{j=1}^N (k_j(\omega_p) - k_{j+1}(\omega_p)) l_j - i \sum_{j=1}^N (k_j(\omega_s) - k_{j+1}(\omega_s)) l_j] \times \exp[i(k_0(\omega_c)z - \omega_c t)] \quad (8)$$

$$d_j = l_j - l_{j-1}, \prod_{j=0}^N t_{pj} \equiv T_p, \prod_{j=0}^N t_{sj} \equiv T_s, \prod_{j=0}^N t_{cj} \equiv T_c \text{를 이용하여}$$

(4)와 (8)식의  $E_c(\omega_c, l)$ 와  $E_c(\omega_c, l)$ 을 다시쓰면

$$E_c(\omega_c, l) = T_c E_c^{(0)} \exp[i \sum_{j=1}^N k_j(\omega_c) d_j] \exp[-ik_0(\omega_c) l_N] \times \exp[i(k_0(\omega_c)z - \omega_c t)]$$

$$E_c(\omega_c, l) = T_p^2 T_s E_c^{(0)} \exp[i\Delta k_0 l_N] \exp[-i(2k_0(\omega_p) - k_0(\omega_s)) l_N] \times \exp[i \sum_{j=0}^N (2k_j(\omega_p) - k_j(\omega_s)) d_j] \times \exp[i(k_0(\omega_c)z - \omega_c t)]$$

$$= T_p^2 T_s E_c^{(0)} \exp[-ik_0(\omega_c) l_N] \times \exp[i \sum_{j=0}^N (2k_j(\omega_p) - k_j(\omega_s)) d_j] \times \exp[i(k_0(\omega_c)z - \omega_c t)] \quad (9)$$

$\gamma \equiv T_p^2 T_s / T_c$ 로 정의하면,

$$E_c(\omega_c, l) + E_c(\omega_c, l) = T_c E_c^{(0)} \exp[i \sum_{j=1}^N k_j(\omega_c) d_j - ik_0(\omega_c) l_N] \times (1 + \gamma \exp[i \sum_{j=1}^N \Delta k_j d_j])$$

$$(\Delta k_j = 2k_j(\omega_p) - k_j(\omega_s) - k_j(\omega_c)) \quad (10)$$

$$\begin{aligned}
 I_c &= |E_c(\omega, I) + E_c(\omega, II)|^2 \\
 &= T_c^2 |E_c^{(0)}|^2 [1 + \gamma^2 + 2\gamma \cos(\sum_{j=1}^N \Delta k_j d_j)] \\
 &= T_c^2 |E_c^{(0)}|^2 [(1 - \gamma)^2 + 4\gamma \cos^2(\sum_{j=1}^N \Delta k_j d_j)] \quad (11)
 \end{aligned}$$

그리하여 (11)식의  $d_j$ 가 변하면서 밝고 어두운 무늬가 교대로 나타나는 간섭현상을 보게 된다. 이는 (9)식에서 알 수 있듯이 첫번째 CARS 신호와 두번째 CARS 신호사이의 위상차가  $\Delta k_j d_j$  (편의상 합산기호  $\Sigma$ 는 이하생략)로 나타나기 때문이다. 반복되는 무늬의 한 주기를  $j$ 번째 분산매질의 가간섭길이라 하고  $L_c (= 2\pi/\Delta k)$ 로 나타내며 매질의 종류에 따라 다르다. 이 가간섭길이는 물리적으로, 분산매질의 길이( $d_j$ )를 변화시킴에 따라  $z=0$ 에서 생성된 CARS 신호와  $z=l_N$ 에서 생성된 CARS 신호는 위상차가  $\phi$ 에서  $\phi'$ 로 변하게 되는데  $\phi' - \phi = 2\pi$ 만큼의 위상변화에 대한 분산매질의 길이변화를 뜻한다.

2. 비공명 및 공명 배경잡음 제거

분산매질들의 각 경계면에 무반사 코팅을 하여 표면에서의 반사와 매질의 흡수를 무시하면 (9)식에서  $T_p, T_s, T_c \approx 1$ 이 되어 (11)식은 다음과 같이 된다.

$$I_c \approx 4|E_c^{(0)}|^2 \cos^2[(1/2)\Delta k_j d_j] \quad (12)$$

즉, 두 CARS 신호의 위상차  $\Delta k_j d_j$ 가  $\pi$ 가 될 경우 완전 소멸간섭을 일으킨다. 이 원리를 이용하여 원하지 않는 CARS 신호를 제거할 수 있다. (4)식으로부터 3차 비선형 감수율에 의한 CARS 신호는

$$E_c^{(0)} \sim \chi_{CARS} E_p^{(0)2} E_s^{(0)} \quad (13)$$

만일 비선형매질이 일산화탄소와 프로판으로 섞여 있다면 3차 비선형 감수율은 일산화탄소의 공명선근처에서 다음과 같이 표현된다.

$$\chi_{CARS} = \chi_{R,CO} + \chi_{NR,CO} + \chi_{NR,propane} \equiv \chi_{R,CO} + \chi_{NR} \quad (14)$$

여기서  $\chi_{R,CO}, \chi_{NR,CO}$ 는 각각 CO의 공명,비공명 감수율이고  $\chi_{NR,propane}$ 는 프로판의 비공명 감수율이다. 이 혼합매질의 CARS 신호로부터 우리는  $\chi_{R,CO}$ 에 의한 공명신호만을 얻고자 한다. 그러기 위해  $\chi_{NR}$ 에 의한 비공명 CARS 신호와 위상차가  $\pi$ 인 제 2의 비공명 CARS 신호를 만들어 간섭시키면 된다. (14)식으로부터 발생한 CARS 신호는 (9)식에 의해서 분산매질을 거친 후 다음과 같이 표현된다.

$$\begin{aligned}
 E_c^{(0)}(I) &\sim \exp[ik_j(\omega_s)d_j] \exp[-ik_0(\omega_s)l_N] \\
 &\times (\chi_{R,CO} + \chi_{NR}) E_p^{(0)2} E_s^{(0)} \quad (15)
 \end{aligned}$$

그리고 분산매질을 지나온 펄프광과 스투스광으로부터 생성된 제 2의 CARS 신호는

$$\begin{aligned}
 E_c^{(0)}(II) &\sim \chi_{NR} \exp[i(2k_j(\omega_p) - k_j(\omega_s))d_j] \\
 &\times \exp[-ik_0(\omega_s)l_N] E_p^{(0)2} E_s^{(0)} \\
 &= \exp[ik_j(\omega_s)d_j] \exp[-ik_0(\omega_s)l_N] \\
 &\times \exp[i\Delta k_j d_j] \chi_{NR} E_p^{(0)2} E_s^{(0)} \quad (16)
 \end{aligned}$$

(15)와(16)식을 더하면,

$$\begin{aligned}
 E_c^{(0)}(I) + E_c^{(0)}(II) &\sim \exp[ik_j(\omega_s)d_j] \exp[-ik_0(\omega_s)l_N] \\
 &\times \{\chi_{R,CO} + (1 + \exp[i\Delta k_j d_j])\chi_{NR}\} E_p^{(0)2} E_s^{(0)} \quad (17)
 \end{aligned}$$

분산매질의 길이  $d_j$ 를 적당히 조절하여  $\Delta k_j d_j = \pi$ 로 만들면 일산화탄소의 공명신호만이 남게 된다.

$$I_c = |E_c^{(0)}(I) + E_c^{(0)}(II)|^2 \sim |\chi_{R,CO}|^2 I_p^2 I_s \quad (18)$$

마찬가지 방법으로 두 개의 공명선이 겹쳐져 있는 혼합매질의 CARS 신호에서 원하는 공명신호만을 가려낼 수 있다. 본 연구에서는 다량의 프로판 공명선 속에 소량의 염화수소 진동모드가 묻혀 있는 경우 염화수소의 분광선을 회복하는 것을 시도해 보았다. 이때에도 혼합매질의 CARS 신호에 대해 위상이  $\pi$ 만큼 차이가 나는 프로판만의 두번째 CARS 신호를 만들어 주면 된다.

III. 실험장치

두 CARS 신호 사이의 위상차를 조절하기 위해서는 분산매질의 두께를 자유자재로 조절할 수 있어야 한다. 이런 용도를 위해 제작된 것이 위상이동장치(phase shifting unit-P.S.U.)이다. 이는 기울기가 같은 두 개의 췌기모양을 BK7유리로 만들어 포개놓은 형태이다. 췌기의 기울기는  $\tan\theta = 0.1014$ 이다. 이 장치를 사용한 비선형광의 간섭실험의 구성도가 그림 2에 나타나 있다. 광의 진행방향에 수직한 면에서 펄프, 스투스 그리고 CARS 광의 배열을 장치도의 위쪽에 나타내었다. 펄프광으로는 Nd:YAG 레이저(Quantel YG660)의 2차 고조파(532 nm)를, 스투스광으로는 파장가변 펄스색소레이저(Lumonics Hyper DYE-300 SLM)를 사용하였다. 기체시료용 용기를 사용해 시료를 담아둘 수 있게 하였고 레이저의 각 펄스마다 측정된 CARS 신호를 규격화하기 위해서 비공

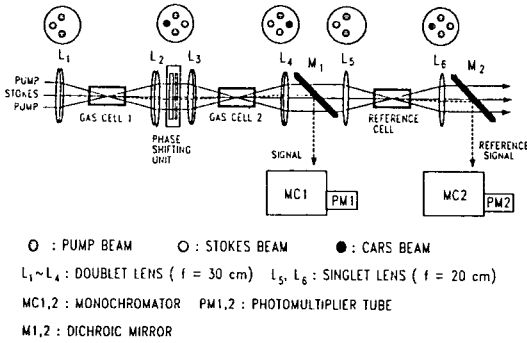


그림 2. Experimental configuration of nonlinear interferometry in CARS.

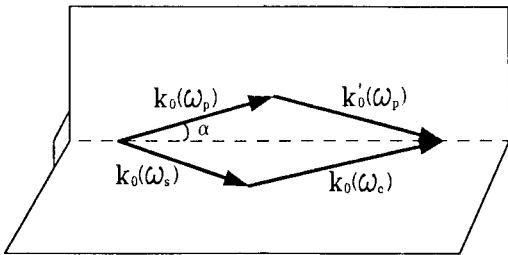


그림 3. Phase matching for CARS.

명신호만을 만드는 기준시료용기를 설치하였다. CARS 신호발생의 위상맞춤조건은 공간분해능이 우수함(~2 mm) 접혀진 상자형 위상맞춤조건(folded BOXCARS phase matching condition)을<sup>[5]</sup> 사용하였다.(그림3) 실험에서 각도  $\alpha = \tan^{-1} 0.006$  이다. 그림 2에서도 알 수 있듯이 완전한 간섭효과를 얻기 위해서는 두 CARS 신호가 만들어지는 상황이 대칭성을 가지고 있어야 한다. 따라서 집속렌즈로는 색수차렌즈( $f=25$  cm)를 사용하여 파장이 다른 펌프광과 스톱스광을 한점에 모아 첫번째 CARS 신호를 만들고 다시 평행광을 만들어 똑같은 조건으로 두번째 CARS 신호를 만들게 하였다. 일반적인 렌즈를 사용할 경우 첫번째 CARS 신호를 만들때 펌프광과 스톱스광이 한점에 모아지지 않을 뿐만아니라 다시 평행광으로 만들 수 없어 두번째 CARS 신호를 만들때 같은 조건이 되지 않는다. 따라서 간섭현상이 불안정해 소멸, 보강간섭이 완전하지 못하게 된다.

그림 2의 실험장치도와 이론전개를 위해 사용한 모델을 비교해 볼 때 실험에서는 상자형 위상맞춤조건을 사용하였으므로 위상부정합이  $\Delta k_0 = |k_0(\omega_p) + k_0'(\omega_p) - k_0$

$(\omega_s) - k_0(\omega_c)|$ 으로 표현된다. 그런데  $\tan \alpha = 0.006$ 이므로 CARS 신호를 포함한 각 광에 대한 파수벡터(wave vector)의 방향은 일직선상에서 크게 벗어나지 않는다. 따라서  $\Delta k_0 \approx |k_0(\omega_p) + |k_0'(\omega_p) - |k_0(\omega_s) - |k_0(\omega_c)| = 2k_0(\omega_p) - k_0(\omega_s) - k_0(\omega_c)$ 이다. 이로써 실험상황이 이론적인 모델 그림 1과 같음을 알 수 있다. 모델과 비교하였을 때 실험장치에서는 두 비선형매질사이에 분산매질이 13개 부분으로 나뉘어져 있는 셈이된다. 시료용기 내부의 기체가 두 부분을 차지하고 시료용기 외부의 공기가 4부분을 차지한다. 색수차렌즈는 BK7유리와 SF2유리의 조합으로 이루어져 있고 위상이동장치와 기체시료용기의 창은 재질이 BK7유리로 이루어져 있으므로 전체적으로 볼 때 기체가 6부분이고 BK7유리가 5부분, SF2유리가 2부분으로 구성된 형태이다. 그런데 기체매질의 경우 굴절률이 진공의 굴절률과 큰 차이가 없고 파장변화에 대해 굴절률변화도 실험조건내에서 무시할 수 있으므로  $\Delta k_j \approx 0$ 로 놓을 수 있다. 즉, 두 CARS 신호 사이에 위상차를 주지 않는다. 따라서 위상차  $\Delta k_j d_j$ 는 BK7유리와, SF2유리 부분에 대해서만 합해주면 된다.

$$\Delta k_j d_j = \Delta k_{BK7} L_{BK7} + \Delta k_{SF2} L_{SF2} \quad (19)$$

여기서  $L_{SF2}$ 는 전체 SF2유리의 길이로서 고정되어 있고  $L_{BK7}$ 는 전체 BK7유리의 길이로서 위상이동장치의 두께 변화에 따라 변할 수 있다. 이 두께를 조절하여  $\Delta k_j d_j = \pi$ 로 만들어 줌으로써 원하지 않는 신호를 제거할 수 있는 것이다.

그런데 (19)식에서  $\Delta k (=2\pi/L_c)$ 는 스톱스광의 파장의 함수이므로 CARS 스펙트럼을 얻을때 스톱스광의 한 파장에서 소멸간섭을 얻었다 할지라도 파장을 변화시켜 가면서 스펙트럼 전영역에서 소멸간섭을 만들 수는 없다. 그림 4은 16642  $\text{cm}^{-1}$  부근에서 스톱스광의 파장변화에 따른 BK7유리의 가간섭길이변화를 알려진 굴절률 값으

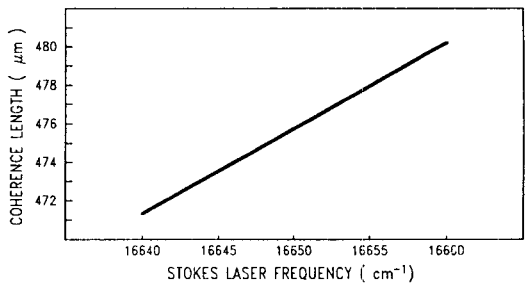


그림 4. Variation of coherence length in CARS type nonlinear interferometry (pump beam-18797  $\text{cm}^{-1}$ ).

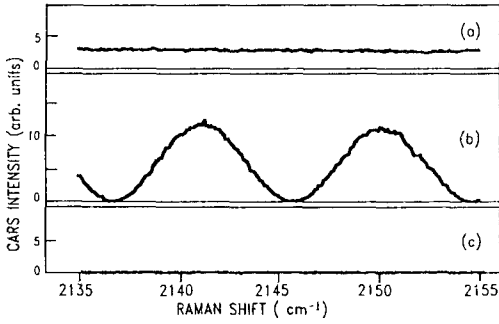


그림 5. (a) CARS spectrum of 400 Torr propane (b) Interference fringe of two CARS signals of propane without phase control. (c) Complete cancellation of the CARS signals by phase control.

로부터 계산된 결과이다.<sup>[14]</sup> 그림 5(a)는 프로판의 비공명 CARS 스펙트럼이고 (b)는 파장이 변하면서 두 프로판 CARS 신호 사이의 위상차  $\Delta k, d$ 가 변하는 모습을 보여준다.  $16642 \text{ cm}^{-1}$ 에서 소멸간섭이 있었으나 파장이 옮겨지면서 위상차가 변해  $16647 \text{ cm}^{-1}$  부근에서는 보강간섭이 일어남을 볼 수 있다. 따라서 이런 문제점을 제거하고 전체 스펙트럼영역에서 위상차를  $\pi$ 로 유지하려면  $\Delta k_{BK7}, \Delta k_{SF2}$ 의 변화를  $L_{BK7}$ 의 변화로 보상해야 한다.  $L_{BK7}$ 의 변화 정도는 다음과 같이 계산된다. 우선 파장이 변하여도 위상차가 변하지 말아야 하므로 (19)식에서,

$$\begin{aligned} \delta(\Delta k; d) &= (\delta\Delta k_{BK7})L_{BK7} + \Delta k_{BK7} \delta L_{BK7} + (\delta\Delta k_{SF2})L_{SF2} = 0 \\ &= (-2\pi/L_{c-BK7}^2)(dL_{c-BK7}/dv)L_{BK7} \delta v + (2\pi/L_{c-BK7}) \\ &\quad \times \delta L_{BK7} + (-2\pi/L_{c-SF2}^2)(dL_{c-SF2}/dv)L_{SF2} \delta v = 0 \end{aligned} \quad (20)$$

여기서  $L_{BK7}, L_{SF2}$ 는 CARS 스펙트럼을 측정할때 시작되는 파장에서의 초기 BK7, SF2유리의 전체 길이이고  $\delta v$ 는 파수(wave number)에 대한 변분이다.  $L_{c-SF2}, L_{c-SF2}$ 는 각각 BK7, SF2유리의 가간섭길이,  $dL_{c-BK7}/dv, dL_{c-BK7}/dv$ 는 파수변화에 대한 각 매질의 가간섭길이의 변화이다. 따라서,

$$\delta L_{BK7} = \left[ \frac{L_{BK7}}{L_{c-BK7}} \left( \frac{dL_{c-BK7}}{dv} \right) + \frac{L_{c-BK7}}{L_{c-SF2}} \frac{L_{SF2}}{L_{c-SF2}} \left( -\frac{dL_{c-SF2}}{dv} \right) \right] \delta v \quad (21)$$

(21)식에 의거해 위상이동장치의 두께를 색소레이저 파장변화에 대해 자동으로 변화시키기 위해서 스텝모터를

표 1. Parameter used to control the P.S.U.

	$16642 \text{ cm}^{-1}$	$15907 \text{ cm}^{-1}$
$L_{BK7}$	31.2 mm	31.2 mm
$L_{SF2}$	8.2 mm	8.2 mm
$L_{c-BK7}$	$471.4 \mu\text{m}$	$262.1 \mu\text{m}$
$L_{c-SF2}$	$166.8 \mu\text{m}$	$92.49 \mu\text{m}$
$\frac{dL_{c-BK7}}{dv}$	$0.4436 \mu\text{m}/\text{cm}^{-1}$	$0.1834 \mu\text{m}/\text{cm}^{-1}$
$\frac{dL_{c-SF2}}{dv}$	$0.1575 \mu\text{m}/\text{cm}^{-1}$	$0.0652 \mu\text{m}/\text{cm}^{-1}$
$\delta L_{BK7}/\delta v$	$51.24 \mu\text{m}/\text{cm}^{-1}$	$38.21 \mu\text{m}/\text{cm}^{-1}$

설치하였다. 우리의 실험조건(표 1)으로부터 얻어진  $(\delta L_{BK7} / \delta v)$ 는  $16642 \text{ cm}^{-1}$  근처에서  $51.24 \mu\text{m}/\text{cm}^{-1}$  이고  $15907 \text{ cm}^{-1}$  근처에서는  $38.21 \mu\text{m}/\text{cm}^{-1}$ 이다. 표 1에 나와 있는 대로  $L_{BK7}, L_{SF2}$ 는  $31.2 \text{ mm}, 8.2 \text{ mm}$ 로 측정되었고  $L_{c-BK7}, L_{c-SF2}, dL_{c-BK7}/dv, dL_{c-SF2}/dv$ 는 알려진 굴절률로부터 각 파장에서 계산된 결과이다.<sup>[14]</sup> 이 장치를 써서 전 스펙트럼 영역에서 두 프로판 CARS 신호를 소멸간섭시켜 얻은 결과가 그림 5(c)이다.

#### IV. 결과 및 논의

먼저 펄스레이저 광원의 세기변동에 의한 신호의 요동을 줄이기 위하여 기준시료용기(그림 2의 reference cell)을 사용하여 신호를 규격화하였다. 그림 6(a)는 프로판 1기압 속에 일산화탄소 10 Torr가 섞여있을 경우 규격화하지 않은 상태의 스펙트럼이다. 비공명신호의 심한 변동으로 전체 스펙트럼의 모습을 분간하기 어렵다. (b)는 2.4 기압의 기준시료용기내의 프로판으로부터 만들어진 비공명신호로서 규격화를 위한 기준신호이다. 여기서 (a), (b) 모두 각 파장에서 5개 펄스신호를 평균하여 얻은 결과이다. (c)는 5개의 규격화된 펄스 신호를 평균한 결과로서 소량의 일산화탄소 공명신호에 의해 프로판의 비공명 CARS 스펙트럼이 변조된 모습을 잘 보여주고 있다.

이렇게 규격화된 조건하에서 우선 비공명신호의 제거에 대한 결과를 보면 그림 7과 같다. 소량의 일산화탄소 Q-가지 공명선이 다량의 프로판(3차 비선형 감수율:  $80 \times 10^{18} \text{ cm}^3/\text{erg}$ )<sup>[15]</sup> 비공명신호에 섞인 경우이다. (b)는 시료용기 1에 프로판 780 Torr와 일산화탄소 20 Torr를 혼합한 기체에서 측정된 스펙트럼이고 (c)는 시료용기 2에 프로판 780 Torr 만을 넣어 시료용기 1에서 발생한

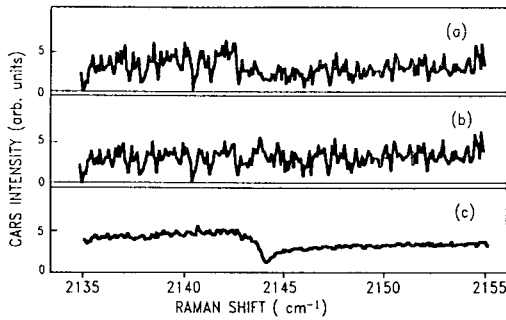


그림 6. CARS spectrum of (a) 10 Torr CO in propane at 780 Torr (b) 2.3 atm propane(reference). (c) Normalized spectrum. Signals are 5-shot averaged at each wavelength.

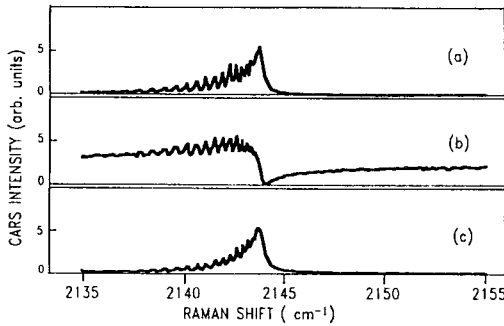


그림 7. CARS spectrum of carbon monoxide-(a) 20 Torr CO without nonresonant background, (b) with background, (c) with background suppressed.

CARS 신호와 간섭시켜 얻은 스펙트럼이다. 그리고 (a)는 비공명향이 프로판에 비해 매우 작은 질소기체( $8.5 \times 10^{-18} \text{ cm}^3/\text{erg}$ )<sup>[16]</sup> 780 Torr와 일산화탄소 20 Torr를 혼합하여 (c)와 비교하기 위해 얻은 스펙트럼이다. 즉, 질소기체는 완충기체(buffer gas)의 역할만을 한다. (c)를 (a)와 비교하였을 때 효과적으로 비공명 CARS 신호가 제거되었음을 볼 수 있다. (c)를 얻기 위해 우선 색소레이저의 파장을  $16640 \text{ cm}^{-1}$ (라만편이  $2155 \text{ cm}^{-1}$ )에 맞추고 소멸간섭을 일으킨 후 (21)식에 따라서 레이저파장과 위상 이동장치의 두께를 동시에 변화시켜 나갔다.

다음으로 공명신호의 제거에 대한 예로서 소량의 염화수소기체의 Q-가지 진동모드의 CARS 신호에 프로판기체의 C-H 진동모드 공명신호가 배경잡음으로 섞여 있는 경우인데, 두 기체는 모두 라만편이  $2890 \text{ cm}^{-1}$  근처에서 공명선을 가지고 있다.<sup>[17]</sup> 그림 8(c)는 프로판기체

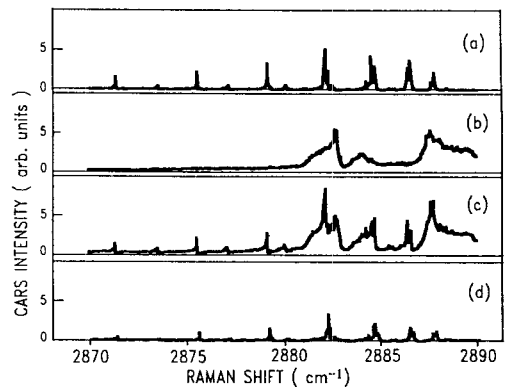


그림 8. CARS spectrum of (a) 20 Torr HCl, (b) 400 Torr propane, (c) the mixture gas, (d) HCl with propane signal suppressed.

400 Torr 속에 염화수소 20 Torr가 섞여 있는 혼합기체에 대한 CARS 스펙트럼이다. (d)는 프로판의 공명신호가 제거되고 염화수소의 Q-가지 공명선만이 얻어진 결과이다. 그리고 비공명신호의 제거에서와 마찬가지로 (a)는 (d)와 비교하기 위해 질소기체 400 Torr와 염화수소 20 Torr를 혼합하여 얻은 스펙트럼이다. (b)는 프로판만의 스펙트럼이다. 이 결과로부터 공명신호에 의한 배경잡음도 효과적으로 제거될 수 있음을 알 수 있다. 그런데 이 경우에는 규격화된 스펙트럼을 얻기 위한 기준신호로서 프로판을 사용할 수 없으므로 메탄 4기압의 신호를 사용하였다.

이상의 결과에서 알 수 있듯이 서로 다른 두 장소에서 발생한 CARS 신호가 얼마나 완벽하게 소멸간섭을 일으키느냐에 따라 배경잡음의 제거효과는 그 결과가 결정되는 것이다. 우리의 경우, 그림 5(b)에서 보듯이 두 CARS 신호가 보강간섭과 소멸간섭이 되었을 때 각 경우 신호의 최대값과 최소값의 비를 구하면 150정도였다. 본 연구에서는 공간분해능이 높은 상자형 위상맞춤조건을 쓰기 때문에 펌프광과 스톱스광들이 입체적인 배열을 갖게 된다. 따라서 광학정렬도 어려울뿐 아니라 앞절에서 언급했듯이 비록 색소차렌즈를 쓰기는 하지만 잔존하는 수차로 완전한 간섭효과를 얻기는 어려웠다.

## V. 결 론

본 연구에서는 비선형광의 간섭효과를 이용해 원하는 CARS 신호만을 가려낼 수 있음을 보였다. 전체 스펙트럼영역에서 BK7유리의 가간섭길이변화를 제안하였다.

스펙트럼영역 전체에서 소멸간섭조건을 충족시키기 위해 스텝모터로 조절되는 위상이동장치를 제작 사용하였다. 프로판의 비공명 신호에 의해 왜곡된 일산화탄소의 공명선 스펙트럼을 효과적으로 회복하였고 또한 염화수소의 Q-가지 진동모드 스펙트럼에 겹쳐있는 프로판의 C-H 진동모드 공명선을 간섭원리로 제거할 수 있었다.

참 고 문 헌

[1] G. Lüpke, G. Marowsky and R. Steinhoff, Appl. Phys. **B49**, 283(1989).  
 [2] Y. Yacoby, R. Fitzgibbon and B. Lax, J. Appl. Phys. **51**, 3072(1980).  
 [3] J. P. Boquillon, M. Pealat, P. Bouchardy, G. Collin, P. Magre and J. P. Taran, Optics Lett. **13**, 722(1988).  
 [4] A. C. Eckbreth, Appl. Phys. Lett. **32**, 421(1978).  
 [5] A. C. Eckbreth, "Laser Diagnostics for Combustion Temperature and Species", in *Energy & Engineering*, Science Series 7, A.K. Gupka, D.G. Lilley, eds.(Abacus, Tunbridge Wells, 1988).  
 [6] H. W. Schrotter, H. Frunder, H. Berger, J. P. Boquillon, B. Lavorel and G. Millot, in *Advances*

*in Non-Linear Spectroscopy*(Wiley, New York, 1988).  
 [7] R. T. Lynch, Jr., S. D. Kramer, H. Lotem and N. Bloembergen, Opt. Commun. **16**, 372(1976).  
 [8] A. F. Bunkin, S. G. Ivanov and N. I. Kroteev, Dokl. Akad. Nauk. SSSR **233**, 82(1977).  
 [9] J. J. Song, G. L. Eesley and M. D. Levenson, Appl. Phys. Lett. **29**, 567(1974).  
 [10] J. L. Oudar, R. W. Smith and Y. R. Shen, Appl. Phys. Lett. **34**, 758(1979).  
 [11] A. C. Eckbreth and R. J. Hall, Combust. Sci. Tech. **25**, 175(1981).  
 [12] G. Marowsky and G. Lüpke, Appl. Phys. **B51**, 49(1990).  
 [13] E. S. Lee, J. W. Hahn, S. N. Park and C. Rhee, J. Opt. Soc. of Korea, **3**, 239(1992).  
 [14] HOYA optical glass technical data, HOYA Corporation (1985).  
 [15] R. L. Farrow, R. P. Lucht and L. A. Rahn, J. Opt. Soc. Am. **B4**, 1241(1987).  
 [16] R.L. Farrow and L.A. Rahn, J. Opt. Soc. Am. **B2**, 903(1985).  
 [17] G. Herzberg, *Molecular Spectra and Molecular Structure*, 2nd ed (D.Van Nostrand Com. Inc., Princeton, 1945).

Recovery of Spectral Line Shape by Coherent Cancellation of Background in CARS

Eun Seong Lee and Jae Won Hahn

Division of Quantum Metrology, Korea Research Institute of Standards and Science, Taejeon 305-606, Korea

(Receiver: October 8, 1993)

We investigated that the CARS signals generated from resonant or nonresonant contributions can be selectively suppressed by phase-controlled nonlinear interferometry. To control the phase of the CARS signal over a broad spectral range, a home-made phase shifting unit was used, whose thickness was automatically controlled as the wavelength of Stokes beam scanned. Using this technique, we recovered the Q-branch resonance lines of carbon monoxide and HCl which had been distorted and buried by the nonresonant and resonant signal of propane respectively. All the spectrum measured have been normalized by reference signal which had no resonance lines over the spectral range of interest.