

새로운 3차 비선형 광학 과정

A New Third-Order Nonlinear Optical Process

김민수, 윤춘섭

한국과학기술원 물리학과

csyoon@convex.kaist.ac.kr

비선형 감수율은, 비선형 광학 현상을 기술하는 중요한 특성값으로서, 비선형 광학 연구가 시작된 이래 지속적으로 많은 관심을 받아 왔다. 그러나 연구의 주된 범위가 2차 비선형 감수율 $\chi^{(2)}$ 와 그 응용에 집중되어 왔으며, 고차 비선형 감수율이 큰 물질의 부족으로 인해, 고차 비선형 광학 효과를 얻기 위하여 직접적인 고차 과정을 이용하기 보다 그림 1(a)와 같이 2차 비선형 광학 효과의 연속적인 과정을 통해 구현하는 방법이 선호되어, 비선형 감수율의 일반적인 특성에 대해서는 충분한 이해가 이루어지지 못하였다.

3차 비선형 감수율 $\chi^{(3)}$ 와 그 효과에 관한 첫 번째 연구는, 2차 비선형 광학 특성이 없는 물질인 방해석을 이용한, Terhune 등[1]의 3차 조화파 발생 실험이었다(그림 1(b)). 1972년에는 GaAs를 이용한 삼파 혼합(three-wave mixing) 실험이 보고되었는데[2], 이 실험에서는 그림 1(c)에서와 같이 $\chi^{(3)}$ 의 효과와 더불어 $\chi^{(2)} \cdot \chi^{(2)}$ 의 효과가 함께 활용되었다. $\chi^{(2)} \cdot \chi^{(2)}$ 에 의한 3차 비선형 광학 효과는 그 후 캐스캐이딩 효과(cascading effect)라 불리게 되었으며, 근래에 들어 이 효과에 대한 많은 응용들이 시도되고 있다.

한편, 지금까지 알려진 여러 가지 실험 결과들로부터, $\chi^{(3)}$ 의 값이 실험 조건, 특히 입사광의 펄스폭에 따라 같은 물질에서도 큰 차이를 보인다는 사실이 최근에 보고되었다[3]. 이러한 특성은 주파수에 대한 분산을 고려하는 것만으로 충분한 것으로 여겨 온 $\chi^{(2)}$ 의 특성과는 본질적으로 차이를 보이는데, 이로 부터 물질의 비선형 감수율을 기술할 수 있는 보다 기본적인 물리량의 필요성이 제안되었다. 이런 주장은 전자기론에서 거시적으로 정의되는 비선형 감수율이 미시적 영역에서 발생하는 비선형 광학의 기본적 상호작용을 기술하기에는 적합하지 않다는 사실로부터 정당성을 가지며, 이러한 이해에 근거하여 비선형 감수율에 관련한 미시적 접근의 필요성이 제기된다.

본 연구에서는, 전기 쌍극자 수준에서 발생하는 미시적 상호작용을 기술하기 위해, 2차 및 3차의 비선형 결합(nonlinear coupling)을 갖는 고전적인 비조화 진동자(anharmonic oscillator) 모델에 Rayleigh-Schrödinger 건드림 방법을 적용하여[4], 비선형 상호작용 하에서 전자의 운동을 고전적으로 기술하고 이로부터 비선형 감수율을 이론적으로

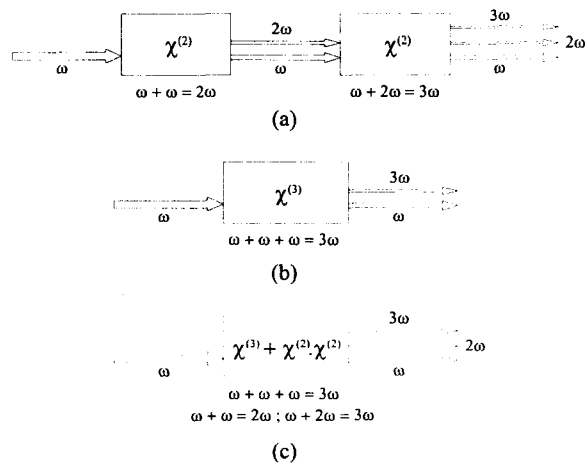


그림 1. 3차 조화파 발생에 활용되는 여러 가지 방법들. (a) 2차 비선형 광학 효과의 연속적 활용, (b) 3차 비선형 광학 효과의 활용, (c) 3차 비선형 광학 효과 및 2차 캐스캐이딩 효과의 동시 활용.

로 유도하였으며, 그 결과로부터 3차 비선형 감수율의 근원과 특성을 분석하였다. 본 연구에서 사용된 광법은 비선형 감수율에 대한 기존의 연구에서도 활용되었던 방법이지만, 기존의 연구에서는 입사 전기장으로부터 유도되어 발생하는 전기장의 비선형항들을 고려하지 않았으므로, 3차 비선형 광학 효과에 기여하는 다양한 비선형 광학적 과정들을 완전히 규명하지 못하였다.

본 연구에서 비선형 결합항들을 포함한 전자의 포텐셜 에너지는

$$U = \frac{1}{2} m\omega_i^2 x_i^2 + \frac{1}{3} m a_{ijk} x_i x_j x_k - \frac{1}{4} m b_{ijkl} x_i x_j x_k x_l + \dots$$

의 형태로 기술할 수 있는데, 여기서 a_{ijk} 와 b_{ijkl} 은 2차 및 3차 비선형 결합을 나타내는 텐서 \mathbf{a} 와 \mathbf{b} 의 각 성분들을 나타낸다.

Rayleigh-Schrödinger 근드립 방법을 사용하여 분석한 결과, 3차 비선형 광학 효과에 기여하는 과정들은 기존에 알려진 그림 2(a)와 2(b)의 과정 외에 그림 2(c)와 같은 새로운 과정이 존재함을 밝혀내었다. 그림 2(a)의 과정은 서로 다른 두 개의 비조화 진동자에서 연속적으로 발생한 2차 비선형 광학 과정의 캐스캐이딩에 의한 효과로서 $\chi^{(2)} \cdot \chi^{(2)}$ 에 의해 기술되며, 나머지 두 과정은 비조화 진동자 내에서 발생한 3차 비선형 결합 \mathbf{b} 에 의한 효과와(그림 2(b)), 하나의 비조화 진동자 내에서 연속적으로 발생한 2차 비선형 결합 과정의 캐스캐이딩 $\mathbf{a} \cdot \mathbf{a}$ 에 의한 효과이다(그림 2(c)). 그림 2(b)와 2(c)의 과정들은 미시적 상호작용의 과정에서는 서로 확연히 구별되지만, 거시적인 특성만을 설명하는 비선형 감수율에 의해서는 서로 구별되지 않으며, 두 과정들이 함께 $\chi^{(3)}$ 의 값에 기여하게 된다.

물질 내 쌍극자의 감쇠시간이 대략 τ 정도라고 가정하면, 그림 2의 (a)와 (b), (c) 각각의 과정에 대해 대략 4τ , 2τ , 3τ 정도의 지연시간이 발생하게 되는데, 이와 같은 효과가 $\chi^{(3)}$ 값의 펄스폭 의존성을 일으키는 원인을 제공하는 것으로 생각된다.

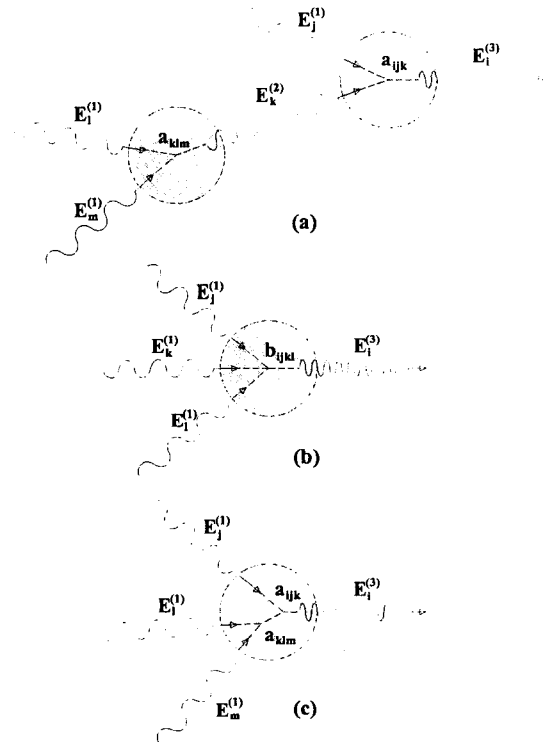


그림 2. 3차 비선형 광학 효과의 세 근원. (a) 연속적인 2차 비선형 광학 효과에 의한 캐스캐이딩 과정, (b) 직접 3차 비선형 결합 과정, (c) 연속적인 2차 비선형 결합에 의한 캐스캐이딩 과정. 빗금친 원은 비선형 결합이 발생하는 유효영역을, 점선들은 쌍극자의 유지 시간을, 점선들이 만나는 점은 비선형 결합의 발생을 나타낸다.

[1] R. W. Terhune, P. D. Maker, and C. M. Savage, Appl. Phys. Lett. 2, 54 (1963).
 [2] E. Yablonovitch, C. Flytzanis, and N. Bloembergen, Phys. Rev. Lett. 29, 865 (1972).
 [3] E. W. Van Stryland, R. Negres, E. Miesak, D. J. Hagan, and M. Sheik-Bahae, in *Nonlinear Optics '98: Materials, Fundamentals and Applications Topical Meeting*, IEEE Lasers and Electro-Optics Society (IEEE, Piscataway, 1998), paper WC1.
 [4] R. W. Boyd, *Nonlinear Optics* (Academic, San Diego, 1992), p. 21.