

# CsLiB<sub>6</sub>O<sub>10</sub> 결정에서 직접 및 캐스캐이딩 과정에 의한 단일 매질 삼차 조화파 발생 Single Medium Third-Harmonic Generation via Direct and Cascaded Processes in CsLiB<sub>6</sub>O<sub>10</sub> Crystals

김민수, 류기한, 윤춘섭  
KAIST 물리학과  
csyoon@mail.kaist.ac.kr

자외선 영역의 결맞는 광원은 초고집적도 반도체 리소그래피와 초정밀 가공 등의 응용분야에서 이미 필수적인 도구로 자리잡고 있으며, 기초 연구와 의료 분야에서도 그 사용이 갈수록 증가하는 추세에 있다. 현재 엑시머 레이저가 자외선 광원으로서 널리 사용되고 있지만, 부식성이 강한 유독 기체의 사용으로 인한 유지 및 관리의 어려움과 높은 반복률을 얻을 수 없다는 단점들로 인해, 비선형 광학 효과를 이용한 고효율 고체 레이저의 파장변환이 엑시머 레이저의 대안으로서 관심을 끌고 있다.

지금까지 삼차 조화파를 효율적으로 얻는 방법으로는, 두 개 이상의 이차 비선형 광학 매질을 써서 이차 조화파 발생(second-harmonic generation, SHG;  $\omega + \omega \rightarrow 2\omega$ )과 합 주파수 발생(sum-frequency generation, SFG;  $\omega + 2\omega \rightarrow 3\omega$ )을 순차적으로 일으키는 방법이 주로 사용되어 왔다. 최근 들어 초고출력 레이저의 개발과 더불어, 매우 높은 레이저 광손상 문턱값과 우수한 자외선 영역 투과 특성을 갖는 봉산 계열의 비선형 광학 물질들이 널리 보급됨에 따라, 단일 매질에서 직접 삼차 과정 및 이차 캐스캐이딩 과정을 이용하여 고효율의 삼차 조화파 발생(third-harmonic generation, THG)을 얻고자 하는 시도가 행해지기 시작하였고<sup>(1)</sup>, 그 성과로  $\beta$ -BaB<sub>2</sub>O<sub>4</sub>(BBO) 단결정을 이용한 6%에 이르는 높은 효율의 단일 매질 THG 결과가 보고되었다<sup>(2)</sup>. 그러나 단일 매질 THG에 대한 기존의 연구들은 고효율의 파장변환에만 초점을 맞추어 왔을 뿐, 매질 내에서 동시에 일어나는 여러 가지 유형의 직접 및 캐스캐이딩 과정들에 의해서 발생하는 다양한 효과들을 엄밀하게 이론적으로 정립하여 분석하거나 실험적으로 특성 측정하는 데에는 소홀하였다.

본 논문에서는, 단일 매질 THG에 대한 이론적 연구를 바탕으로, 삼차 비선형 광학 효과를 결정짓는 가장 중요한 계수, 종합 유효 삼차 비선형 감수율(overall-effective third-order nonlinear susceptibility)에 대한 엄밀한 표현식들을 소개한다. 또한 비교적 최근에 개발되어 BBO와 더불어 자외선 영역의 파장변환에 폭넓게 이용되고 있는 CsLiB<sub>6</sub>O<sub>10</sub>(CLBO) 단결정을 이용하여 Nd:YAG 레이저의 1.064  $\mu$ m 파장에 대한 단일 매질 THG를 얻고, 발생 신호에 대해 전반적인 특성 조사를 수행하여 이론적인 예측과 비교, 분석한 결과를 제시한다.

단일 매질 THG에서는 직접 삼차 과정과 이차 캐스캐이딩 과정이 THG에 동시에 관여하므로, THG 위상정합 조건 뿐 아니라 SHG 및 SFG 위상정합 조건에서도 삼차 조화파가 효율적으로 발생하는 것으로 알려져 있다. 각각의 위상정합 조건 근처에서 비감소 펌프 근사(undepleted-pump approximation)를 적용하여 단일 매질 THG에 대한 결합된 진폭 방정식의 해를 구하면, 삼차 조화파에 대한 진폭은 다음

식과 같이 표현된다<sup>(3)</sup>.

$$A_3(z) = \frac{3i\omega X_{eff}^{(3)}}{2n_{PMC} \cos^2 \rho_{PM}} A_1^3 z \exp(i\Delta k_{PM} z/2) \text{sinc}(\Delta k_{PM} z/2).$$

여기서  $\omega$ 는 기본파의 주파수를 나타내며,  $\Delta k_{PM}$ 은 위상정합 조건에 가장 가까운 비선형 상호작용에 대한 파수벡터 부정합을,  $n_{PMC}$ 과  $\rho_{PM}$ 은  $\Delta k_{PM}$ 의 파수벡터 부정합을 갖고 발생하는 전기장 성분의 굴절률과 walk-off 각을 나타낸다. 한편  $X_{eff}^{(3)}$ 는 직접 삼차 과정 및 이차 캐스캐이딩 과정의 효과를 포함한 종합 유효 삼차 비선형 감수율로서, 각각의 위상정합 조건 근처에서 표 1에 정리된 식들로 표현된다. 이 식들에서  $\chi^{(2)}$ 와  $\chi^{(3)}$ 는 아랫첨자로 표현된 비선형 광학 과정들에 대한 이차 및 삼차의 유효 비선형 감수율을 나타내며,  $\Delta n_{SHG}$ 와  $\Delta n_{SFG}$ 는 각각  $\Delta k_{SHG} c/2\omega$ ,  $\Delta k_{SFG} c/3\omega$ 의 식으로 주어진다. 또한  $n_{m\alpha}$ 와  $n_{m\theta}$ 는  $m$ 차 조화파에 대한 정상광선의 굴절률과 파수벡터 방향에 대한 함수로서 표현되는 이상광선의 굴절률을 나타내며,  $\alpha$ 는 정상광선의 편광방향을 기준으로 한 기본파의 편광각을 나타낸다.

위 식과 표 1의 결과로부터, 기존에 알려진 바와 같이 단일 매질 THG가 SHG, SFG, 그리고 THG의 위상정합 조건에서 효율적으로 발생된다는 사실을 확인할 수 있다. 또한 SHG 및 SFG 위상정합 조건 근처에서는  $X_{eff}^{(3)}$ 의 값이 서로 다른 편광각 의존성을 갖는 여러 캐스캐이딩 항들의 합으로 주어짐을 확인할 수 있으며, SHG 위상정합 조건 근처에서 얻은  $X_{eff}^{(3)}$ 에 대한 계산식의 경우에는 각각의 캐스캐이딩 과정들과 관련하여 다양한 위상항들이 포함되어 있는 것을 발견할 수 있다.

표 1. 음성 단축결정에서의 종합 유효 삼차 비선형 감수율.

PM condition		$X_{eff}^{(3)}$
SHG	Type I	$\frac{2\chi_{SHG,ooo}^{(2)} \sin 2\alpha_P}{3} \left[ \left\{ \frac{\chi_{SFG,ooo}^{(2)} \exp(i\Delta k_{SFG,ooo} z)}{n_{3\alpha} \Delta n_{SFG,ooo}} + \frac{\chi_{SFG,ooo}^{(2)} \exp(i\Delta k_{SFG,ooo} z)}{n_{3\theta} \Delta n_{SFG,ooo} \cos^2 \rho_3} \right\} \cos \alpha_P \right. \\ \left. + \left\{ \frac{\chi_{SFG,ooo}^{(2)} \exp(i\Delta k_{SFG,ooo} z)}{n_{3\alpha} \Delta n_{SFG,ooo}} + \frac{\chi_{SFG,ooo}^{(2)} \exp(i\Delta k_{SFG,ooo} z)}{n_{3\theta} \Delta n_{SFG,ooo} \cos^2 \rho_3} \right\} \sin \alpha_P \right]$
	Type II	$\frac{2\chi_{SHG,ooo}^{(2)} \cos^2 \alpha_P}{3} \left[ \left\{ \frac{\chi_{SFG,ooo}^{(2)} \exp(i\Delta k_{SFG,ooo} z)}{n_{3\alpha} \Delta n_{SFG,ooo}} + \frac{\chi_{SFG,ooo}^{(2)} \exp(i\Delta k_{SFG,ooo} z)}{n_{3\theta} \Delta n_{SFG,ooo} \cos^2 \rho_3} \right\} \cos \alpha_P \right. \\ \left. + \left\{ \frac{\chi_{SFG,ooo}^{(2)} \exp(i\Delta k_{SFG,ooo} z)}{n_{3\alpha} \Delta n_{SFG,ooo}} + \frac{\chi_{SFG,ooo}^{(2)} \exp(i\Delta k_{SFG,ooo} z)}{n_{3\theta} \Delta n_{SFG,ooo} \cos^2 \rho_3} \right\} \sin \alpha_P \right]$
SFG	Type I	$-\frac{\chi_{SFG,ooo}^{(2)} \cos \alpha_P}{n_{2\alpha}} \left[ \frac{\chi_{SHG,ooo}^{(2)} \cos^2 \alpha_P}{\Delta n_{SHG,ooo}} + \frac{\chi_{SHG,ooo}^{(2)} \sin 2\alpha_P}{\Delta n_{SHG,ooo}} + \frac{\chi_{SHG,ooo}^{(2)} \sin^2 \alpha_P}{\Delta n_{SHG,ooo}} \right]$
	Type II	$-\frac{\chi_{SFG,ooo}^{(2)} \sin \alpha_P}{n_{2\alpha}} \left[ \frac{\chi_{SHG,ooo}^{(2)} \cos^2 \alpha_P}{\Delta n_{SHG,ooo}} + \frac{\chi_{SHG,ooo}^{(2)} \sin 2\alpha_P}{\Delta n_{SHG,ooo}} + \frac{\chi_{SHG,ooo}^{(2)} \sin^2 \alpha_P}{\Delta n_{SHG,ooo}} \right]$
	Type III	$-\frac{\chi_{SFG,ooo}^{(2)} \cos \alpha_P}{n_{2\theta} \cos^2 \rho_2} \left[ \frac{\chi_{SHG,ooo}^{(2)} \cos^2 \alpha_P}{\Delta n_{SHG,ooo}} + \frac{\chi_{SHG,ooo}^{(2)} \sin 2\alpha_P}{\Delta n_{SHG,ooo}} + \frac{\chi_{SHG,ooo}^{(2)} \sin^2 \alpha_P}{\Delta n_{SHG,ooo}} \right]$
THG	Type I	$\left\{ \chi_{THG,ooo}^{(3)} + \frac{\chi_{SFG,ooo}^{(2)} \chi_{SHG,ooo}^{(2)}}{n_{2\alpha} \Delta n_{SHG,ooo}} + \frac{\chi_{SFG,ooo}^{(2)} \chi_{SHG,ooo}^{(2)}}{n_{2\theta} \Delta n_{SHG,ooo} \cos^2 \rho_2} \right\} \cos^3 \alpha_P$
	Type II	$\left\{ 3\chi_{THG,ooo}^{(3)} + \frac{\chi_{SFG,ooo}^{(2)} \chi_{SHG,ooo}^{(2)}}{n_{2\alpha} \Delta n_{SHG,ooo}} + \frac{\chi_{SFG,ooo}^{(2)} \chi_{SHG,ooo}^{(2)}}{n_{2\theta} \Delta n_{SHG,ooo} \cos^2 \rho_2} \right. \\ \left. + \frac{2\chi_{SFG,ooo}^{(2)} \chi_{SHG,ooo}^{(2)}}{n_{2\alpha} \Delta n_{SHG,ooo}} + \frac{2\chi_{SFG,ooo}^{(2)} \chi_{SHG,ooo}^{(2)}}{n_{2\theta} \Delta n_{SHG,ooo} \cos^2 \rho_2} \right\} \cos^2 \alpha_P \sin \alpha_P$
	Type III	$\left\{ 3\chi_{THG,ooo}^{(3)} + \frac{\chi_{SFG,ooo}^{(2)} \chi_{SHG,ooo}^{(2)}}{n_{2\alpha} \Delta n_{SHG,ooo}} + \frac{2\chi_{SFG,ooo}^{(2)} \chi_{SHG,ooo}^{(2)}}{n_{2\theta} \Delta n_{SHG,ooo} \cos^2 \rho_2} \right. \\ \left. + \frac{\chi_{SFG,ooo}^{(2)} \chi_{SHG,ooo}^{(2)}}{n_{2\alpha} \Delta n_{SHG,ooo}} + \frac{\chi_{SFG,ooo}^{(2)} \chi_{SHG,ooo}^{(2)}}{n_{2\theta} \Delta n_{SHG,ooo} \cos^2 \rho_2} \right\} \cos \alpha_P \sin^2 \alpha_P$

단일 매질 THG의 특성 측정을 위해 그림 1과 같은 구조의 실험 시스템을 제작하였다. 광원으로 사용한 Nd:YAG 레이저(1.064  $\mu\text{m}$ )의 펄스폭은 9 ns이며, 반복률은 10 Hz이다. CLBO 시료는 본 연구실에서 성장시킨 CLBO 단결정을 유형 I의 THG가 가장 효율적으로 일어나는 방향( $\theta = 48.5^\circ$ ,  $\varphi = 22.5^\circ$ )으로 절단 후 광학연마하였으며, 그 길이는 4.6 mm이다.

그림 2는 편광각  $\alpha$ 의 다양한 값에 대해서, 방위각을  $\varphi = 22.5^\circ$ 로 유지시키고 극각  $\theta$ 의 방향으로 기본파의 입사각을 바꾸면서 측정한 삼차 조화파의 세기를 나타낸 것이다. THG 위상정합각 외에 SHG와 SFG에 대한 위상정합각에서도 삼차 조화파가 효과적으로 발생되는 것을 확인할 수 있으며, 측정된 각각의 위상정합각들은 Mori 등이 보고한 Sellmeier 방정식<sup>(4)</sup>을 사용한 계산 결과와  $0.12^\circ$  이내의 오차로 매우 잘 일치한다. 위상정합 허용각의 경우에는 측정값들이 계산값에 비해 다소 크게 나타났는데, 이것은 비동축 위상정합과 walk-off 효과에 의한 영향으로 해석할 수 있었다. 한편 SHG와 SFG 위상정합각 근처에서는 삼차 조화파의 세기 분포가 편광각에 대해 비대칭적으로 나타나는 것을 확인할 수 있다. 이는 기존에 잘 알려져 있는 이차 비선형 광학 효과에서는 발견되지 않는 특이한 양상으로, 삼차 비선형 광학 효과에서는 종합 유효 삼차 비선형 감수율이 서로 다른 편광각 의존성을 갖는 캐스캐이딩 항들의 합으로서 표현되기 때문이다. 그림 3은 유형 II의 SHG 위상정합각 부근에서 보다 자세하게 측정한 삼차 조화파의 세기 변화이다. 일반적으로 위상정합 부근에서 예상되는 sinc 제곱 함수 형태와는 상당히 다른 모습들이 나타나는 것을 확인할 수 있는데, 이는 SHG 위상정합 조건 근처에서  $X_{eff}^{(3)}$ 가 여러 개의 위상항들을 포함하기 때문에 발생하는 효과이다.

극각  $\theta$ 에 수직한 방향으로 기본파의 입사각을 바꾸는 경우에는,  $\varphi$  뿐만 아니라  $\theta$ 까지도 그 값이 변하게 된다. 따라서 방위각  $\varphi$ 에 대한 함수로서 위상정합된 단일 매질 THG의 세기 변화를 측정하기 위

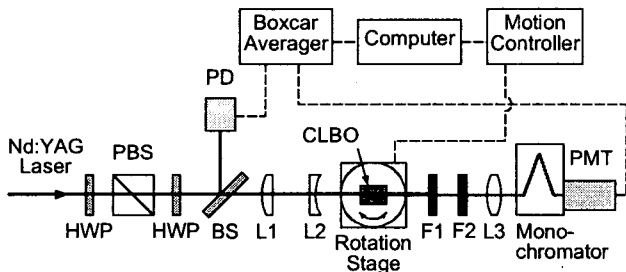


그림 1. 단일 매질 삼차 조화파 발생 및 측정 장치도.

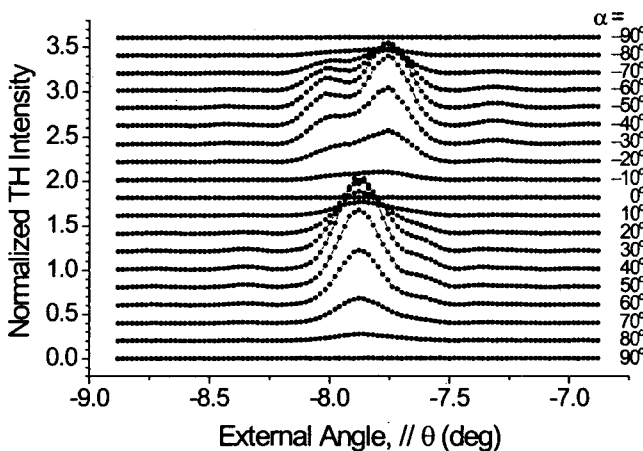


그림 3. 유형 II 이차 조화파 발생 위상정합각 부근에서 측정한 단일 매질 삼차 조화파 발생의 세기 변화.

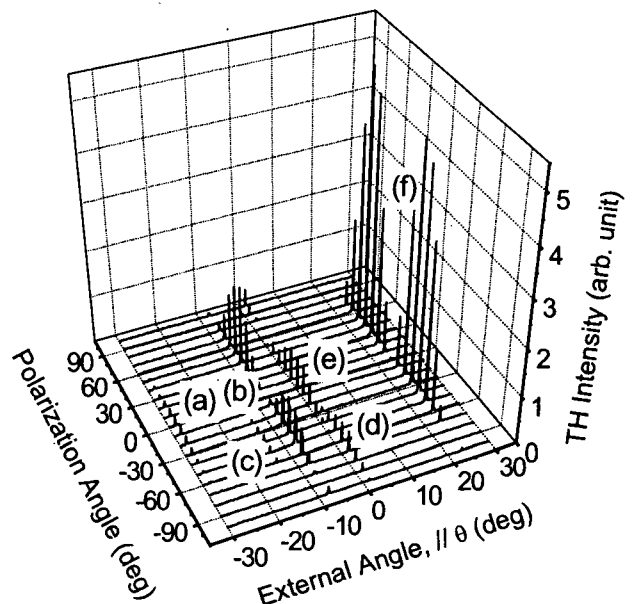


그림 2. 편광각과 극각의 변화에 따른 단일 매질 삼차 조화파 발생의 세기 변화. (a) 유형 I 이차 조화파 발생, (b) 유형 II 이차 조화파 발생, (c) 유형 I 합주파수 발생, (d) 유형 II 합주파수 발생, (e) 유형 I 삼차 조화파 발생, (f) 유형 II 삼차 조화파 발생의 위상정합각에서 측정된 삼차 조화파의 세기.

해서는 다소 복잡한 측정 방법이 필요하다. 그림 4는 유형 II의 THG 위상정합각( $\theta = 64.0^\circ$ ) 부근에서,  $\varphi = 22.5^\circ$ 를 기준으로 극각  $\theta$ 에 수직한 방향으로 기본파의 입사각을 바꾸면서 측정한 삼차 조화파의 세기 변화이다. 각 측정 곡선의 최대값은 위상정합 조건에서의 삼차 조화파 세기에 해당하므로, 이들 최대값들의 궤적으로부터 단일 매질 THG의 방위각 의존성을 얻을 수 있다. 표 1에 의한 계산을 통하여 유형 II의 THG 위상정합각 부근에서  $X_{eff}^{(3)}$ 의 방위각 의존성을 나타내는 데 적합한 맞춤 함수의 형태를 구할 수 있는데, 그림 4에서 실선으로 나타낸 곡선은 이 맞춤 함수를 사용하여 얻은 최대값들의 자취 곡선이며, 점선으로 나타낸 곡선은 이차의 캐스캐이딩 효과만을 고려한 계산 결과를 맞춤 곡선의 최대값에 대해 규격화하여 나타낸 것이다.

한편 효율적인 파장변환을 얻기 위한 실험에서는, 훨씬 높은 세기의 기본파를 CLBO 시료에 입사시키기 위해서 33 ps, 10 Hz의 Nd:YAG 레이저를 광원으로 사용하였다. 그림 5는 THG 위상정합각에서 측정한, 기본파의 펄스 에너지에 따른 삼차 조화파의 에너지 변화를 보여준다. 측정된 값들은 예상되는 삼차의 맞춤 곡선(실선 곡선들)과 잘 부합함을 알 수 있다. 변환효율이 비교적 높은 영역에서는 삼차 조화파 에너지의 증가율이 점차로 둔화되는 것을 확인할 수 있는데, 이는 삼차 조화파에 의한 이광자 흡수의 영향으로 파악된다. 삼차 조화파의 변환효율은 기본파의 세기가  $8.4 \text{ GW/cm}^2$ (펄스 에너지 12.4 mJ) 일 때 최대 약 0.2%까지 얻을 수 있었는데, 이는 기존의 연구 결과들과 비교할 때 입사한 기본파의 세기에 비해서 비교적 높은 변환효율에 해당한다.

이상의 이론적, 실험적인 연구 결과들을 통하여, CLBO를 이용한  $1.064 \mu\text{m}$ 의 단일 매질 THG에 대해서 전반적인 특성을 파악할 수 있었다. 측정된 위상정합각들은 계산에 의한 예측과 매우 잘 일치하였으며, 위상정합 허용각은 계산값에 비해 다소 크게 나타났는데, 그 이유는 비동축 위상정합과 walk-off에 의한 효과 때문이다. 종합 유효 삼차 비선형 감수율에 대한 이론적 분석으로부터, 단일 매질 THG에서 관찰된 특이한 편광각 의존 특성과 SHG 위상정합각 근처에서 나타나는 단일 매질 THG의 심한 왜곡 효과를 규명할 수 있었다. 또한 방위각 의존성에 대한 측정 결과에서는 직접 삼차 과정에 의한 효과를 구분하였다. 기본파의 에너지에 따른 삼차 조화파의 에너지 측정에서는, 기본파 에너지에 대한 삼차의 의존성을 확인할 수 있었으며 기본파의 세기  $8.4 \text{ GW/cm}^2$ 에서 최대 0.2%의 변환효율을 얻었다.

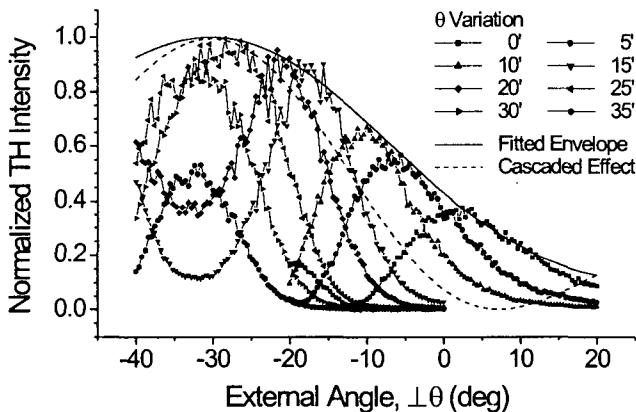


그림 4. 유형 II 삼차 조화파 발생 위상정합각 부근에서 측정한, 극각에 수직한 방향의 각도 변화에 따른 단일 매질 삼차 조화파 발생의 세기 변화.

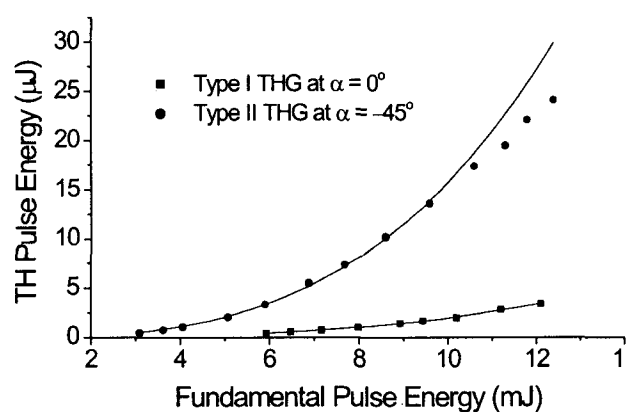


그림 5. 펄스폭 33 ps의 Nd:YAG 레이저를 이용하여 측정한, 삼차 조화파 발생 위상정합각에서의 기본파 에너지에 따른 삼차 조화파의 에너지 변화.

1. P. Qiu and A. Penzkofer, Appl. Phys. B 45, 225 (1988).
2. P. S. Banks, M. D. Feit, and M. D. Perry, Opt. Lett. 24, 4 (1999).
3. M.-s. Kim and C. S. Yoon, Phys. Rev. A, to be published (2002).
4. Y. Mori, I. Kuroda, S. Nakajima, T. Sasaki, and S. Nakai, Jpn. J. Appl. Phys. 34, L296 (1995).