

Balanced CPM(Colliding Pulse Mode-locked) 링 색소 레이저 제작

정영봉·김동호

한국표준연구소 분광·색채연구실

이인원

한국표준연구소 광학연구실

(1990년 7월 24일 받음)

4개의 프리즘으로 구성된 군속도분산 조절장치를 이용하여 CPM 링 색소 레이저에서 62 fs의 펄스를 얻었다. Ar^+ 레이저 출력, DODCI 농도 및 위치, 프리즘과 레이저 거울의 조정상태를 변화시켜 가며 레이저 펄스폭을 측정해서 가장 짧은 펄스폭을 얻을 수 있는 조건을 구했다.

I. 서 론

레이저 펄스 발생방법에는 Q-switching 과 모드록킹이 있는데 극초단 펄스를 얻기 위해서는 모드록킹 방법을 주로 사용한다. 모드록킹은 다시 수동형과 능동형 등으로 구분되는데, 이들 중 수동형 모드록킹 (passive mode-locking)이 극초단 펄스 발생에 가장 유리해서 현재 레이저에서 직접 얻어지는 가장 짧은 펄스폭인 27 fs (27×10^{-15} sec)⁽¹⁾도 수동형 모드록킹 색소 레이저에서 얻어진다.

최초의 색소 레이저 모드록킹된 루비 레이저나 Nd : glass 레이저를 광원으로 사용한 동기펌핑 (synchronous pumping) 방법⁽²⁻⁵⁾을 이용했으나 수동형 모드록킹이 성공한 이후로는 가장 짧은 펄스는 항상 이 방법으로 발생되고 있다. 특히, E.P. Ippen 등⁽⁶⁾과 F. O'Neill 등⁽⁷⁾이 1 ps (1×10^{-12} sec) 영역의 펄스를 얻은 후 I.S. Ruddock 등⁽⁸⁾이 300 fs, R.L. Fork 등⁽⁹⁾이 100 fs, J.A. Valdaminis 등이 27 fs로 펄스폭을 보다 짧게 향상시켜 가는 동안 수동형 모드록킹 색소 레이저가 변함없이 사용되어 왔다. 이 과정에서 Rhodamine-6G와 DODCI 색소 및 연속출력 Ar^+ 레이저는 이득색소 (gain dye)와 흡수색소 (absorber dye) 및 펌핑광원으로 계속 사용되어 왔는데, 이것은 보다 짧은 레이저 펄스의 개발이 새로운 색소나 펌핑광원의 개발보다는 레이저 이론 및 레이저 공진기 설계기술의 발전에 전적으로 기인한 것을 뜻한다. I.S. Ruddock 등은 선형 공진기 거울에 흡수색

소 용액을 직접 접촉시켜 거울에 반사된 펄스와 입사하는 펄스가 흡수색소에서 간섭이 일어날 때 포화효과 (saturation effect)가 커지는 현상을 이용해서 300 fs의 펄스를 얻었고 R.L. Fork 등은 링 공진기내에서 서로 반대방향으로 진행하는 두 펄스가 포화색소 용액내에서 충돌하는 CPM(Colliding Pulse Mode-locked) 링 색소 레이저를 개발해서 펄스폭을 100 fs로 개선시켰다. 이들 레이저에서는 흡수색소가 보다 효율적으로 포화되도록 공진기를 개선해서 펄스폭을 짧게 할 수 있었으나 100 fs 이하의 영역에서는 공진기 내부에서 일어나는 펄스의 군속도분산 (group velocity dispersion)과 자기위상변조 (self phase modulation) 효과가 펄스폭이 보다 짧아지는 것을 방해하므로 이것을 보상하는 4개의 프리즘을 이용한 balanced CPM 링 색소 레이저에 의해 펄스폭을 27 fs로 개선할 수 있었다. R.L. Fork 등⁽¹⁰⁾은 이 펄스를 증폭하고 광섬유와 회절격자 및 프리즘을 사용한 펄스 압축 (pulse compression) 장치로 6 fs의 펄스를 얻었다. 이러한 극초단 펄스가 개발됨에 따라 1 ps 시간영역 이하의 초고속 현상측정이 가능해져서 초고속 광소자 연구와 분자 광반응이나 분자 여기상태 등의 연구에 활용되고 있다.

본 연구에서는 balanced CPM 링 색소 레이저 및 자체상관계 (autocorrelator)를 제작하고 펄스폭, 분광스펙트럼 등을 측정하여 가장 짧은 펄스폭을 얻을 수 있는 공진기 조정 및 흡수색소농도 등의 조건을 구하고 이들을 분석했다.

II. Balanced CPM 링 색소 레이저에 관한 이론

색소 레이저 수동형 모드락킹은 포화흡수(saturated absorption)와 포화이득(saturated gain or gain depletion)의 두 과정에 의해 일어난다. G.H.C. New^(11,12)는 수동형 모드락킹 색소 레이저에서 이득색소와 흡수색소의 이완시간(relaxation time) τ_g, τ_a 가 펄스 왕복시간(round trip time of pulse) τ_{rt} 보다 작을 때는 포화흡수와 포화이득의 두 과정에 의해 흡수색소의 이완시간(relaxation time) τ_a 보다 짧은 펄스폭 τ_p 의 레이저 펄스가 생성됨을 증명했다.

그림 1(b), (d)는 위의 조건을 만족하는 수동형 모드락킹 색소 레이저에서 레이저 펄스가 공진기내에서 이득색소와 흡수색소를 통과할 때 시간에 따른 이득과 흡수의 변화를 나타낸 것으로 이 두 효과에 의해 그림 1(c)와 같은 순이득(net gain)을 펄스가 갖게 된다. 순이득은 펄스의 정점에서 가장 큰 값을 가지며 펄스의 앞(leading edge)과 뒷부분(trailing edge)에서 음의 값을 가지게 되어 펄스 압축이 일어나게 된다. 즉, 펄스의 앞부분은 포화흡수가 일어나기 전에 흡수색소를 통과하므로 흡수에 의한 손실이 크고, 펄스의 뒷부분은 펄스의 정점이 통과해서 포화이득이 일어난 다음에 이득매질을 통과하므로 이득이 적으며, 펄스의 정점은 흡수색소에서는 손실이 적고 이득색소를 통과하면서는 큰 이득을 얻게 되어 펄스폭이 좁아진다.

G.H.C. New가 정의한 색소 레이저 펄스 생성의 안정

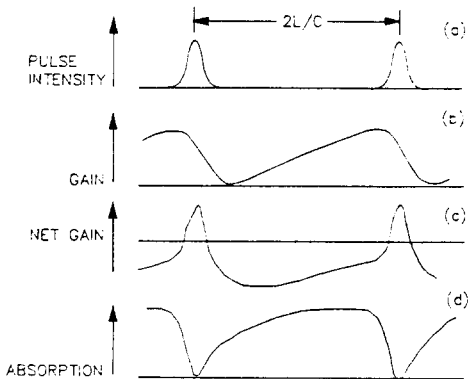


Fig. 1. Schematics of the pulse compression in a passively modelocked dye laser.

The combined action of the saturation in the amplifier and absorber produces net losses at both edges and net gain at the center of the pulse.

변수 S 는 이득과 흡수색소의 단면적 σ_g, σ_a 와 레이저 광의 단면적 A_g, A_a 에 의해 다음 식으로 주어진다.

$$S = A_g \sigma_a / A_a \sigma_g \quad (1)$$

여기서 안정변수 S 는 빛이 이득매질과 흡수매질을 포화시키는 상대적 효율을 의미하므로 이득매질에 비해 흡수매질을 보다 쉽게 포화시키는 장치가 모드락킹에 유리함을 알 수 있다.

CPM 레이저는 수동형 모드락킹 색소 레이저 중에서 성능이 가장 뛰어난 것으로서, 링 레이저 공진기내에서 서로 반대방향으로 진행되는 두 펄스가 포화흡수체에서 충돌하도록 해서 흡수체를 효율적으로 포화시키는 장치다. 두 레이저 펄스가 포화색소에서 겹치게 되면 간섭이 일어나 정상파를 형성한다. 이 때 정상파의 antinode에서는 강도가 최대므로 흡수색소를 포화시키는 효과가 크며 node에서는 레이저 강도가 0이므로 흡수에 의한 손실이 없어져 1개의 펄스만 통과할 때에 비해 포화흡수 효과가 1.5배⁽¹³⁾ 좋아진다. 또한, 두 개의 레이저 펄스가 포화흡수체에 동시에 도달하므로 흡수색소 포화에 사용되는 레이저 에너지가 2배이고 간섭효과까지 고려하면 안정변수 S 는 1개의 펄스가 입사될 때보다 3배 커진다. R.L. Fork 등이 처음 개발한 CPM 레이저는 다른 수동형 모드락킹 색소 레이저보다 안정변수 S 의 값이 커서 처음으로 100 fs 영역의 펄스를 얻을 수 있었다. 100 fs 이하의 레이저 펄스영역에서는 레이저 공진기 내부에서 일어나는 자기위상변조, 군속도분산 등의 비선형 현상을 보정해주는 장치가 필요하다. R.L. Fork⁽¹⁴⁾ 등은 4개의 프리즘을 그림 2와 같이 구성하여 군속도분산을 0에서 +, -값으로 연속적으로 변화시킬 수 있는 장치를 개발했다. 이 장치는 모든 빛이 프리즘에 Brewster's angle로 입사되며 분산된 파장성분이 다시 집속되어 선형분산이 없고 4개의 프리즘을 통과한 빛이 입사한 빛과 평행하게 진행하므로 공진기 내부에서 군속도분산을 조

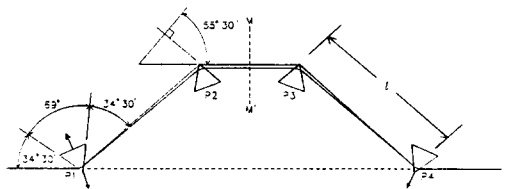


Fig. 2. Four prism sequence having negative dispersion.

The prisms are oriented so that the rays enter and leave at Brewster's angle. The arrangement is symmetric about plane MM' .

정하기에 적합하다. J.P. Gordon⁽¹⁵⁾에 의하면 분산상수 D 는 다음 식으로 주어진다.

$$D = -L^{-1} \frac{dT}{d\lambda} = \left(\frac{\lambda}{cL}\right) \frac{d^2p}{d\lambda^2} \quad (2)$$

여기서 L 는 빛이 지나간 길이, P 는 광로정, λ 는 공기 중의 파장, T 는 광펄스가 L 을 지나가는 시간이다. 그림 2에서 프리즘 P_1 의 정점과 프리즘 P_2 의 정점 사이의 거리가 l 일 때 각 정점을 연결하는 선과 β 의 각으로 진행되는 빛의 광로정 P 는 다음과 같다.

$$P = l \cos\beta \quad (3)$$

그림 2의 장치는 MM'축에 대해 대칭이므로 분산에 기여하는 총 광로정 P 는 $2l \cos\beta$ 이다.

R.L. Fork⁽¹⁴⁾의 계산에 의하면 β 의 값이 작을 때는 $d^2P/d\lambda^2$ 은 다음과 같이 주어진다.

$$\frac{d^2P}{d\lambda^2} = 4l \left[\left\{ \frac{d^2n}{d\lambda^2} + \left(2n - \frac{1}{n}\right) \left(\frac{dn}{d\lambda}\right)^2 \right\} \beta - 2\frac{dn}{d\lambda} \right] \quad (4)$$

$0.62 \mu\text{m}$ 파장에서 수정의 굴절률 n 은 1.457 , $dn/d\lambda$ 는 $-0.03059 \mu\text{m}^{-1}$, $d^2n/d\lambda^2$ 는 $0.1267 \mu\text{m}^2$ 이다.⁽¹⁶⁾ 따라서 $l\beta$ 를 레이저 광 직경의 약 2배인 2mm 로 가정하면⁽¹⁴⁾ (4)식은 다음과 같이 주어진다.

$$\frac{d^2P}{d\lambda^2} = 1.0354 - l (7.48 \times 10^{-3}) \quad (5)$$

여기서 P 와 l 의 단위는 mm 이다. 따라서 $l \geq 138.4 \text{mm}$ 에서는 음의 값을 가진 군속도분산을 얻을 수 있다.

III. Balanced CPM 링 색소 레이저 구성 및 특성측정

이 실험에서 제작한 balanced CPM 링 색소 레이저는 Valdmanis⁽¹⁾ 등이 구성한 것과 동일한 형태로 그림 3과 같다. 펄핑광원은 514.5nm 에서 최대 출력 7Watt

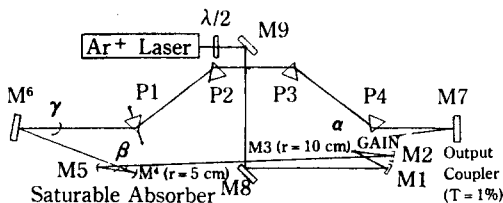


Fig. 3. Schematic diagram of the six mirror ring cavity incorporating a four prism sequence for the adjustment of intracavity group velocity dispersion.

인 Coherent 사의 I-200 Ar⁺ 레이저를 사용했으며 M₁, M₂, M₃는 반경이 10cm, M₄, M₅는 반경이 5cm인 오목거울이며, M₆, M₇은 평면거울이다. M₁은 514.5nm 에서 반사율 99.8%이며 M₇은 620nm 에서 투과도가 1%인 output coupler 이다. 나머지 거울의 반사율은 모두 620nm 에서 99.8%이다. 모든 거울은 single stack dielectric mirror 를 사용해서 펄스폭이 거울에 의해 커지는 효과가 없도록 했다.⁽¹⁷⁾ 흡수색소 및 이득색소로 사용되는 DODCI 와 Rhodamine 6-G 색소는 각각 에틸렌 글리콜(ethylene glycole)에 녹여 색소펌프(dye pump)로 노즐(nozzle)을 통과시켜 색소제트(dye jet) 를 형성한다. 노즐은 X-Y translator 를 사용해 위치를 조절할 수 있도록 장치했다. 포화흡수 색소의 두께는 레이저 펄스폭보다 작아야 하므로 짧은 펄스를 얻기 위해서는 얇을수록 좋다.⁽⁹⁾ 그림 4는 실험에 사용된 흡수색소 제트의 파장에 따른 투과도를 spectrophotometer 로 측정함으로써 간섭무늬에 의해 관찰된 제트의 두께는 8μm 이다. 링 색소 레이저 공진기의 길이는 3.4m 로 조정해서 모드록킹이 되었을 때 88MHz 의 반복률로 펄스가 발진되도록 했으며 M₂와 M₅ 사이의 간격은 77.5cm 로 했다. 공진기 내부에서 서로 반대방향으로 진행되는 두 펄스가 동일한 이득을 얻도록 하기 위해서는 이득색소와 흡수색소 사이의 광로정이 전체 공진기 길이의 1/4 이 되어야 하기 때문이다.⁽⁹⁾

그림 5는 펄스폭 측정을 위해 제작한 자체상관기의 개략도로서 입사된 레이저 펄스가 광분할기에서 두 펄스로

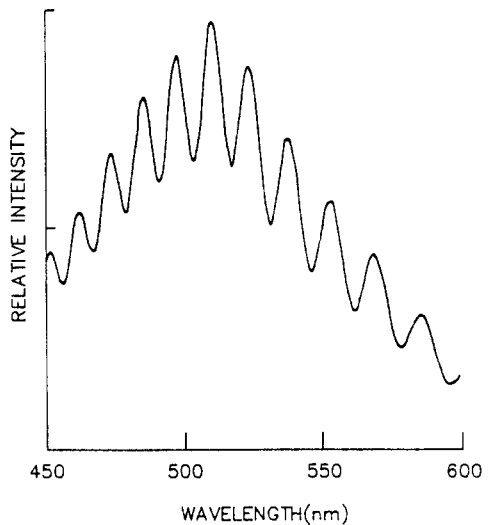


Fig. 4. Transmittance of absorber jet as a function of wavelength.

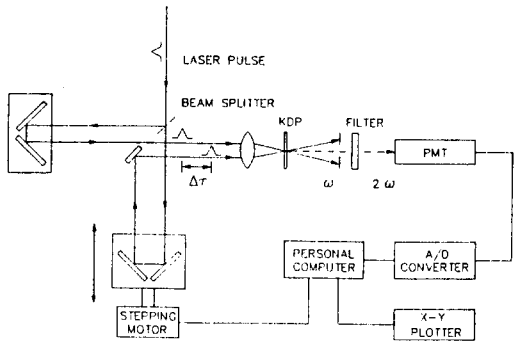


Fig. 5. Experimental arrangement for the measurement of the background-free autocorrelation functions using SHG. The detection system allows averaging of the measurement by repeated scanning of the delay interval.

분리되어 서로 겹치지 않고 렌즈에 평행하게 입사되는 비공선 자체상관기이다. 자체상관기에는 전부 Al 거울을 사용했으며, 두께 1mm인 BK-7 유리에 50% 반사코팅된 광분할기를 사용했다. Al 거울은 pulse broadening 효과가 적고, 1mm 두께의 BK-7 유리로 제작된 광분할기에서는 군속도분산에 의한 펄스폭의 변화가 매우 작으므로 펄스폭 측정에 사용되는 자체상관기에 적합하다.⁽¹⁷⁾ SHG에 사용된 비선형 매질은 두께가 $100 \mu\text{m}$ 인 Cleverand사의 KDP 결정인데 1ps 이하의 펄스폭을 측정할 때는 KDP 결정내에서 펄스의 군속도분산에 의한 측정오차를 줄이기 위해 두께가 얇은 KDP 결정을 사용해야 한다.⁽¹⁸⁾ KDP에 입사되는 두 펄스의 각도 α 는 4° 이하가 되도록 광축조정을 했다. α 에 따른 측정오차는 펄스직경이 d 일 때 약 $(d/c)\tan\alpha$ 로 주어진다. 초점거리에서 펄스직경을 약 $10 \mu\text{m}$ 로 가정하면 α 가 4° 일 때 측정오차는 약 2.2fs 이하이다. 펄스의 시간 지연 (time delay)은 컴퓨터에 연결된 stepping motor로 조절한다.

Balanced CPM 링 색소 레이저의 광축조정은 펄스폭에 직접적인 영향을 준다. 광축조정은 그림 3에서 프리즘을 제거하고 흡수색소 노즐에 DODCI가 포함되어지 않은 상태에서 시작하며, α, β, γ 는 각각 $4^\circ, 6^\circ, 10^\circ$ 로 했다. 발진이 되면 4개의 프리즘을 그림 3과 같이 배치하고 프리즘을 조정하여 다시 발진시킨다. 발진된 레이저의 광의 직경은 공진기 내부에서 균일한 크기를 갖도록 M_2, M_3, M_4, M_5 로 조정한다. 광축조정이 끝난 다음 DODCI를 에틸렌 글리콜에 조금씩 첨가하면서 광다이오

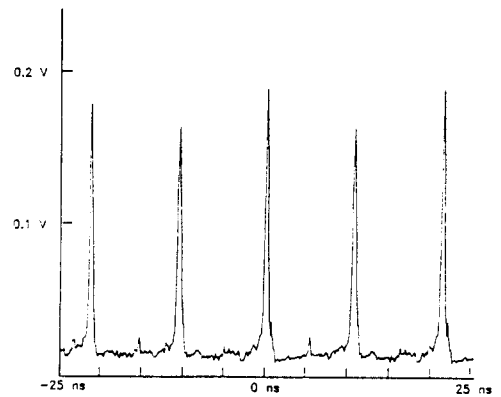


Fig. 6. Pulse train of balanced colliding pulse mode-locked ring dye laser.

드로 모드록킹이 일어나는지 확인한다.

실험에 사용된 PIN 광다이오드(EG & G, FND-100)는 반응시간이 1ns이므로 90MHz로 발진되는 레이저 펄스 관찰에 적합했다. 그림 6은 대역폭 1GHz인 오실로스코프(HP 54100A/D)를 사용해서 측정한 결과이다. 펄스간의 간격은 11ns로서 공진기의 길이 3.4m와 잘 일치하고 있다. Balanced CPM 링 색소 레이저의 펄스폭은 4개의 프리즘 위치와 포화흡수체의 농도 및 위치에 따라 민감하게 변화하며, 이들을 조정하는 과정에서 광축도 조금씩 변화하므로 광축조정이 까다로운 자체상관기로 펄스폭을 측정하지 않고 단색화 장치로 펄스의 분광선폭 및 발진과장만 측정한다. DODCI의 농도가 진행되면 발진과장이 길어지고 선포도 증가한다. 이 실험에서는 DODCI의 농도를 $2 \times 10^{-3} \text{ M/l}$ 까지 증가시켰다. 이 밀도에서 자체상관기와 단색화 장치로 펄스폭과 스펙트럼을 측정하면서 프리즘과 포화흡수체 세트 위치를 조정하여 가장 짧은 펄스폭을 얻은 결과가 그림 7(b), (b')이다. 이 때 프리즘 P_1 과 P_2 사이의 거리는 29.5cm, Ar⁺ 레이저 출력이 2.8W, 스펙트럼 반치폭은 10nm이고, 레이저 펄스형태를 sech^2 으로 가정하면⁽¹⁹⁾ 펄스폭은 62fs이다. 이 결과는 프리즘 간격이 30cm로 했을 때 가장 짧은 펄스를 얻은 Valdmis⁽¹⁾의 결과와 일치한다. 그림 7(b), (b')에서 $\Delta\nu \cdot \Delta t$ 는 0.484로서 sech^2 펄스의 푸리에 변환 한계(Fourier transform limit)인 0.32에 접근했으므로 모드록킹 상태가 좋은 것으로 판단된다. 그림 7(a), (a')은 프리즘을 고정시키고 포화흡수체 세트 위치를 $20 \mu\text{m}$ 움직여 측정한 결과로 스펙트럼 반치폭은 5.2nm이고, 펄스폭은 130fs, $\Delta\nu \cdot$

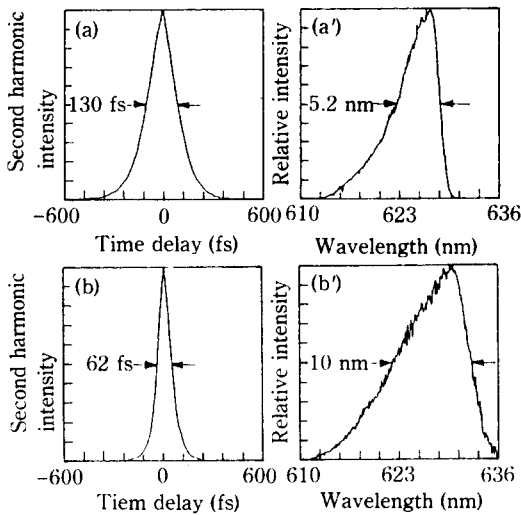


Fig. 7. Pulse widths and spectrum band widths of balanced colliding pulse mode-locked ring dye laser.

Δt 는 0.528 로 모드락킹이 나빠지면서 펄스폭이 증가한 결과를 보여주고 있다.

IV. 결 론

연속발전 Ar^+ 레이저를 펌핑광원으로 사용하여 balanced CPM 레이저를 구성했으며 자체상관기로 측정된 레이저 펄스폭은 62 fs 였다. Valdmanis 는 투과도 3.5%인 output coupler 를 사용해서 27 fs의 펄스폭까지 얻을 수 있었는데 이 기록은 색소를 항상 새로운 것으로 교환한 직후에 DODCI 농도 및 프리즘 등의 광축조정이 최적화된 까다로운 조건을 만족한 후에 나온 것이다. 따라서 본 실험에서 사용한 투과도 1%인 output coupler 를 3.5%로 교환하고 DODCI 농도를 최적화하면 보다 짧은 펄스폭을 얻을 수 있을 것으로 판단된다. 아울러 현재 얻은 결과만으로도 60 fs까지의 초고속현상 연구가 가능하므로 활용도가 높을 것으로 예상된다.

참 고 문 헌

- [1] J. A. Valdmanis, R. L. Fork, C. V. Shank, *Opt. Lett.* **10**, 131 (1985).
- [2] D. J. Bradley, A. J. Durrant, *Phys. Lett.* **27A**, 73 (1968).
- [3] D. J. Bradley, A. J. Durrant, G. M. Gale, M. Moore, P. D. Smith, *IEEE J. Quantum Electron.* **QE-4**, 707 (1968).
- [4] W. H. Glenn, M. J. Brienza, A. J. De Maria, *Appl. Phys. Lett.* **12**, 54 (1968).
- [5] B. H. Soffer, J. W. Linn: *J. Appl. Phys.* **39**, 5859 (1968).
- [6] E. P. Ippen, C. V. Shank, D. Diens, *Appl. Phys. Lett.* **21**, 348 (1972).
- [7] F. O'Neil, *Opt. Commun.* **6**, 360 (1972).
- [8] I. S. Ruddock, D. J. Bradley, *Appl. Phys. Lett.* **29**, 296 (1976).
- [9] R. L. Fork, B. I. Greene, C. V. Shank, *Appl. Phys. Lett.* **38**, 671 (1981).
- [10] R. L. Fork, C. H. Brito Cruz, P. C. Becker, C. V. Shank, *Opt. Lett.* **12**, 483 (1987).
- [11] G. H. C. New, *Opt. Commun.* **6**, 188 (1972).
- [12] G. H. C. New, *IEEE J. Quantum Electron.* **QE-10**, 115 (1974).
- [13] E. M. Garmier and A. Yariv, *IEEE J. Quantum Electron.* **QE-3**, 222 (1967).
- [14] R. L. Fork, O. E. Martinez and J. P. Gordon, *Opt. Lett.* **9**, 150 (1984).
- [15] J. P. Gordon, R. L. Fork, *Opt. Lett.* **9**, 153 (1984).
- [16] D. Marcuse, *Appl. Opt.* **19**, 1653 (1980).
- [17] J. D. Simon, *Rev. Sci. Instrum.* **60**, 3597 (1989).
- [18] E. P. Ippen, C. V. Shank, *Appl. Phys. Lett.* **27**, 488 (1975).
- [19] H. A. Haus, *IEEE J. Quantum Electron.* **QE-11**, 736 (1975).

Fabrication of Balanced CPM(Colliding Pulse Mode-locked) Ring Dye Laser

Young Boong Chung and Dongho Kim
Spectroscopy & Color Laboratory, Korea Standards Research Institute

In Won Lee
Optics Laboratory, Korea Standards Research Institute

(Received: July 24, 1990)

Balanced CPM ring dye laser was fabricated. Pulses as short as 62 fs were measured using noncollinear second harmonic generation autocorrelator. The optimum conditions were studied by changing the concentration of saturable absorber, pumping power of Ar⁺ laser and alignments of the intracavity four-prism sequence.