

미세 물방울에서의 공명 유도라만산란의 특성*

문희종 · 김광훈 · 임용식 · 고춘수 · 이재형 · 장준성

서울대학교 물리학과

(1995년 5월 9일 받음)

Q 스위칭 Nd:YAG 레이저 빔을 펌프광으로 하여 35~62 μm 크기의 물방울에서의 공명 유도라만산란 신호를 검출하였다. 신호광은 간격이 일정한 peak들의 형태로 나타났고 방울크기가 커질수록 그 간격이 좁아짐을 관측하였다. 또한 두 물방울을 결합하면서 유도라만산란 신호를 검출한 결과 결합된 물방울이 거의 구의 형태가 될 때 신호광이 공명 특성을 띠게 됨을 확인하였다. 실험으로 측정한 같은 모드순서의 공명모드 사이의 간격오차는 약 5%였다.

I. 서 론

최근 10~100 μm 크기 정도의 액체방울에서의 비선형 과정에 대한 연구들이 활발히 진행되고 있다. 액체방울은 Cavity Q 값이 매우 큰 하나의 3차원 Cavity의 특성이 있으므로 비선형성이 있는 액체나 분자가 액체방울에 있을 때 신호광의 특성이 덩어리 시료의 경우와 달리 나타나는데 이를 이용한 레이저 발진(Lasing)^[1], 유도라만산란(stimulated Raman scattering; SRS)^[2], 유도브릴루양산란(stimulated Brillouin scattering; SBS)^[3], 축퇴사광파혼합(Degenerate four wave mixing; DFWM)^[4] 등의 실험이 수행되고 있다. 이론적으로 이 정도 크기의 유전체구에서는 Cavity Q 값이 10^{24} 정도까지 가능하나 액체방울을 이용한 실제 실험에서는 공기의 영향이나 열요동 등으로 약 10^6 정도로 제약된다^[5].

액체방울에서의 유도라만산란은 일반적 비선형 현상의 특징을 포함하여 실험이 간단하기 때문에 많은 연구가 진행되어 왔다. 유도라만산란 과정은 액체방울 경계면에서 신호광을 전반사시키는 되먹임 효과로 이해되고 있다. 펌프광이 액체방울에 입사될 때 그 내부에서의 광세기의 분포가 주어지고 이는 그 지점에서의 라만이득을 결정한다. 액체분자의 라만잡음이 펌프광이 만든 이득 매질을 지나면서 증폭되는데 morphology dependent resonance (MDR)을 만족하는 특정파장의 신호광은 구 Cavity의 영향으로 방울내부에 갇히게 되며 이는 유효

작용거리(effective interaction length)를 길어지게 하는 효과가 있다. 따라서 덩어리 액체의 유도라만산란과 비교하여 펌프광의 문턱세기(threshold intensity)가 작아지고, 물과 같이 라만 띠가 넓을 경우 라만 띠 내의 MDR 모드들 만이 신호광으로 관측되는 공명유도라만산란의 특성을 띠게 된다. 벤젠과 같이 라만 선폭이 MDR 모드 간격보다 매우 작은 경우에는 Purcell 효과에 의한 자발라만단면적(spontaneous Raman crossection)의 증가^[6] 등이 나타난다. 액체방울에서의 이러한 유도라만산란의 특성에 의해 액체에 섞여있는 미량의 성분을 분석하거나 dye와 같은 종자(seed)를 사용하여 액체의 약한 라만모드를 검출하는 등의 응용을 할 수 있다.

본 실험에서는 2900~3650 cm^{-1} 의 넓은 라만 띠^[7]를 갖는 물(H_2O)을 수십 μm 크기의 방울로 만들어 유도라만산란 실험을 수행하였다. 물의 경우 넓은 라만 띠를 가지는 이유는 물 분자 사이의 수소결합에 의해서이다. 또한 두 물방울을 결합하면서 유도라만산란 신호를 검출할 때 신호광의 스펙트럼 변화를 관측하였다.

II. 이론적 배경

1. 공명 모드 사이의 간격

평면파에 의한 유전체 구의 산란이론은 Mie 이론으로 잘 알려져 있다. 반경이 a 이고 굴절율이 m 인 유전체구에 파장이 λ 인 평면파가 입사할 때 유전체구에 의해 산란되는 파의 산란계수 a_n , b_n 은 다음과 같이 표현된다^[8].

$$a_n = \frac{j_n(x)[mxj_n(mx)]' - m^2 j_n(mx)[xj_n(x)]'}{h_n^{(1)}(x)[mxj_n(mx)]' - m^2 j_n(mx)[xh_n^{(1)}(x)]'} \quad (1)$$

*본 연구는 한국원자력연구소 원자력 중장기 위탁 연구비와 1995년도 교육부 기초과학육성연구비의 지원으로 이루어졌음.

$$b_n = \frac{j_n(x)[mxj_n(mx)]' - j_n(mx)[xj_n(x)]'}{h_n^{(1)}(x)[mxj_n(mx)]' - j_n(mx)[xh_n^{(1)}(x)]'}$$

여기서 $x (= 2\pi a/\lambda)$ 는 크기변수(size parameter)이고 $j_n(x)$ 는 구 Bessel 함수이며 $h_n^{(1)}(x) (= j_n(x) + i n j_n(x))$ 는 1차 구 Hankel 함수이다. 식 (1)은 다음과 같은 형태로 쓸 수 있다.

$$a_n = \frac{A_n}{A_n + iB_n}$$

$$B_n = n_n(x)[mxj_n(mx)]' - m^2 j_n(mx)[xn_n(x)]' \quad (2)$$

크기변수 x 가 특정값 x_n' 일 때 산란계수 a_n 의 실수값이 1, 허수값이 0이 되는 공명조건을 만족하게 되는데 이를 TM_n' 모드라 한다. 여기서 n 은 모드수(mode number), l 은 모드순서(mode order)라 불린다. 산란계수 a_n 이 공명조건을 만족하는 크기변수 x 는 주어진 n 에 대해 여러개 존재하는데 모드순서 l 은 x 가 몇 번째 공명 조건을 만족하는가를 나타내는 순서를 의미하며 $l=0$ 인 커질수록 그에 관계된 Cavity Q값이 작아진다. 마찬가지로 산란계수 b_n 이 특정 크기변수 x_n' 에서 공명조건을 만족할 때 이를 TE_n' 모드라 한다. 산란계수 a_n 이 공명조건을 만족할 때 식 (2)가 0이 되므로 이를 정리하면 다음과 같이 쓸 수 있다.

$$N_{n+1/2}(x)J_{n-1/2}(mx) - mJ_{n+1/2}(mx)N_{n-1/2}(x) = 0 \quad (3)$$

일반적인 실험조건인 $x \gg 1$, $n \gg 1$, $mx > n$ 인 경우에 Bessel 함수와 Neumann 함수의 근사값^[9]으로부터 식 (3)은 다음과 같이 표현된다.

$$\cos[(n-1/2)\psi - \pi/4] [K(x-n-1/2) - x^{1/3}] - m \cos[(n+1/2)\psi - \pi/4] [K(x-n+1/2) - x^{1/3}] = 0 \quad (4)$$

여기서

$$\psi = \sqrt{\left[\left(\frac{mx}{n}\right)^2 - 1\right]} - \tan^{-1} \sqrt{\left[\left(\frac{mx}{n}\right)^2 - 1\right]}$$

$K \approx 0.6$

만약 $|x-n| \gg 1/2$ 이라면 식 (4)는 다음과 같이 근사할 수 있다.

$$F(x, n) \equiv \cos[(n-1/2)\psi - \pi/4] - m \cos[(n+1/2)\psi - \pi/4] = 0 \quad (5)$$

x_n' 에서 TM_n' 모드의 공명조건을 만족하고 x_{n+1}' 에서 TM_{n+1}' 모드의 공명조건을 만족한다고 할 때 두 모드 사이의 간격 $\Delta x = x_{n+1}' - x_n'$ 의 근사치를 구하기 위해

$F(x, n)$ 이 공명조건을 만족하면서 n 이 $n+1$ 로 연속적으로 변한다고 가정하면^[10] 모드 사이의 간격은 다음과 같은 관계식으로부터 구할 수 있다.

$$\Delta x = -\frac{\partial F}{\partial n} / \frac{\partial F}{\partial x} \quad (6)$$

식 (5)를 이용하여 (6) 식을 계산하면 다음과 같이 표현된다.

$$\Delta x = -\frac{x \tan^{-1} \sqrt{\left(\frac{mx}{n}\right)^2 - 1}}{n \sqrt{\left(\frac{mx}{n}\right)^2 - 1}} \quad (7)$$

만약 $|x-n| \gg 1/2$ 이 만족되지 않고 $x/n \sim 1$ 이라면 식 (6)은 다음과 같이 근사할 수 있다.

$$\Delta x = \frac{\tan^{-1} \sqrt{m^2 - 1}}{\sqrt{m^2 - 1}} \quad (8)$$

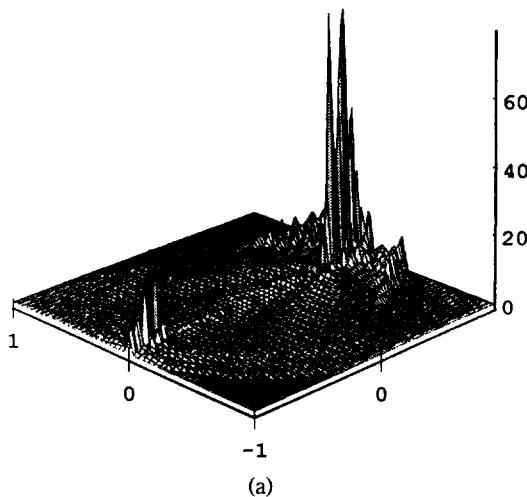
식 (7)이나 (8)은 모드순서 $l=0$ 과 같고 모드수 n 이 1 차이가 나는 두 공명모드 사이의 간격을 기술하는 근사적인 관계식으로 산란계수 a_n 을 직접 계산하여 구한 간격과 비교해서 $|x-n| > 4$ 일 때는 (7)식이, $|x-n| < 4$ 일 때는 (8)식이 약 1% 정도의 오차 내에서 일치하는 식이다^[10]. TE 모드에 대해서도 똑같은 계산을 하면 식 (7)과 (8)을 얻을 수 있다. 그러나 실제 실험에서 모드수 n 을 알지 못하므로 식 (7)은 사용할 수 없고 식 (8)을 약 2% 오차 내에서 적용할 수 있다. 실험에서는 스펙트럼의 두 공명모드 사이의 파장 차이를 측정하므로

$$\Delta \lambda = \frac{\lambda^2}{2\pi a} \Delta x \quad (9)$$

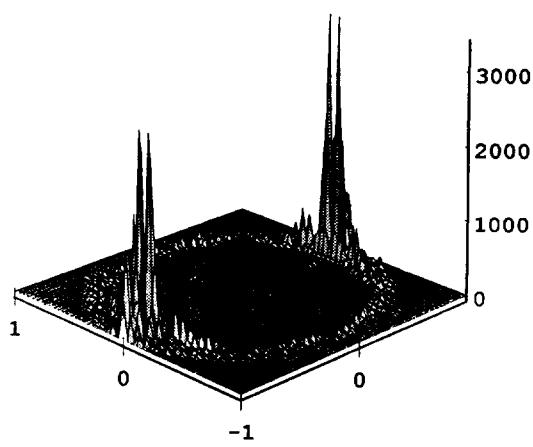
의 관계식을 이용한다.

2. 액체방울에서의 유도라만산란

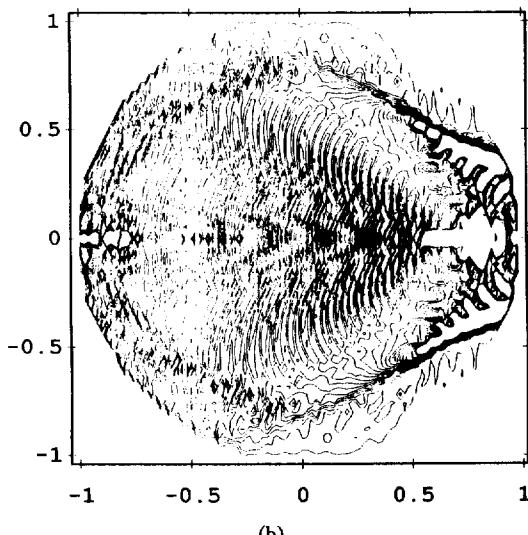
펌프광이 액체방울에 입사할 때 평면파라 가정하고 액체방울 내부의 펌프광의 세기분포를 Mie 이론으로 계산할 수 있다. 그럼 1은 굴절률 m 이 1.33, 크기변수 x 가 170인 물방울일 경우의 내부 펌프광의 세기분포를 보여준다. 이 경우 펌프광이 공명조건을 만족하지 않으므로 광선 광학으로 예측할 수 있는 펌프광의 분포로 나타난다. 방울 뒷쪽과 앞쪽에 촛점이 맷 힘으로 그 위치에만 펌프광 세기가 10~100 정도 증가함을 알 수 있다. 또한 펌프광의 입사방향과 약 21° 근처의 방울표면에도 펌프광이 센 부분이 있는데 이를 Decartes ring^[11]



(a)



(a)

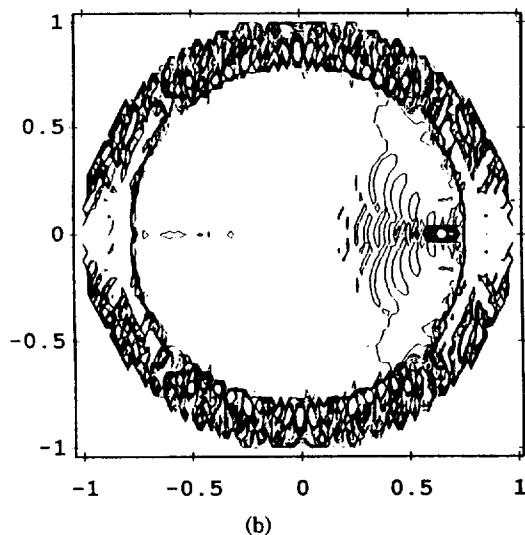


(b)

그림 1. (a) 크기변수 x 가 170일 때의 물방울($m=1.33$) 내부의 펌프광의 세기분포. 공명조건을 만족하지 않을 때 입사광의 편광방향과 그 진행방향이 만드는 평면중 유전체구의 중심을 포함하는 평면에 나타나는 펌프광의 세기분포이다.
 (b) 그림 1. (a)의 contour 그림.

이라 한다.

그림 2는 펌프광이 공명조건을 만족할 때($x=167.08852$)의 방울 내부의 펌프광 세기분포를 보여준다. 공명이 일어나지 않을 때와 비교하여 방울 경계면 근처에 상당한 펌프광의 분포가 존재하고 펌프광의 세기가 매우 커짐을 알 수 있다. 이러한 공명현상은 방울 경계면에서 전반사가 일어날 때 구 경계면을 따라가는 표면파가 존재하고 이 표면파가 다시 구 내부로 재굴절되는 과정들을 거쳐



(b)

그림 2. (a) 공명조건을 만족할 때($x=167.08852$) 물방울 내부의 펌프광의 세기분포. ($Cavity Q \sim 10^6$ 인 TM_{130}^6 모드)
 (b) 그림 2. (a)의 contour 그림.

방울을 한 바퀴 돌 때 펌프광의 경로길이가 파장 λ 의 정수배가 될 때 일어나며, 방울내부를 서로 반대방향으로 도는 두 파의 간섭현상으로 정현파의 형태가 되어 방울 경계면 근처에 존재하는 펌프광의 분포가 물결 형태가 된다.

라만 잡음으로부터 출발한 유도라만산란 신호는 펌프 광이 센 부분에서 이득을 얻고 방울을 돌면서 산란이나 흡수, 방울외부로의 누설 등의 손실이 있게 된다. 펌프 광의 고갈(depletion)을 고려하지 않으면 1차 유도라만

산란 신호는 지수함수적으로 증폭되며 다음식과 같이 근사적으로 쓸 수 있다^[12],

$$I_s(\lambda_s) = I_{s0} \exp[-(gI_p - \alpha)z(\lambda_s)]. \quad (10)$$

여기서 I_p 는 $a/m(\lambda) < r < a$ 에서의 펌프광의 세기 분포를 평균한 평균세기를 나타내고, α 는 흡수계수이다. $z(\lambda_s)$ 는 파장 λ_s 의 신호광이 펌프광과 상호작용하는 유효길이를 나타내며, 신호광이 공명조건을 만족할 때 Cavity Q값이 매우 커지기 때문에 상당히 커지게 된다. 이득계수 g 는 신호광이 공명조건을 만족할 때 라マン 띠의선풍 Γ 가 방울 Cavity의 모드간격 ($\Delta\nu$)보다 훨씬 작으면 덩어리 시료에서의 이득계수 g_0 보다 약 $(\Delta\nu)/\Gamma$ 배 증가하는 Purcell 효과가 고려된다^[6]. 여기서 $(\Delta\nu)_s$ 은 식 (8), (9)에서 구한 Δx 와 $(\Delta\nu)_s = \Delta x/2\pi a$ 의 관계가 있다. 그러나 물의 경우처럼 Γ 가 $(\Delta\nu)_s$ 보다 크면 이득계수는 g_0 와 거의 같다. 펌프광이 공명조건을 만족하지 않을 때는 방울 앞쪽의 촛점근처에서 주로 이득을 얻고 공명조건을 만족할 때는 방울 경계면에서도 이득을 얻는다. MDR 모드의 특성 때문에 공명 유도라만산란 신호의 분포는 $a/m(\lambda_s) < r < a$ 에 국한된다.

이렇게 발생된 신호광은 방울외부로 방출되며 이는 신호광이 방울을 돌면서 경계면에 수평한 방향으로 누설이 생기거나 강한 펌프광에 의한 굴절율의 국부적 변화, 강한 펌프광에 의한 방울 표면 모양의 변화에 의한 신호광의 산란 등에 의해 설명되고 있다^[13]. 펌프광에 의해 유도된 신호광의 산란은 주로 방울내부의 촛점이나 Decartes ring에서 일어난다. 식 (7)이나 (8)은 MDR 특성이므로 탄성산란 뿐만 아니라 유도라만산란 과정의 경우에도 그대로 적용될 수 있다.

III. 실험

물방울에서의 유도라만산란 실험을 수행하기 위해 그림 3(a)와 같은 장치를 구성하였다. 유리관을 이용한 액체방울 발생기에서 만들어진 크기가 일정한 물방울들이 위쪽 방향으로 진행하도록 하고, 촛점거리 2 cm 렌즈(L1)로 He-Ne 레이저 빔을 물방울에 접속하여 산란되는 빛을 광 다이오드(P.D)로 측정하여 물방울들이 일정한 간격을 갖고 발생하는지 확인하도록 하였다. 필스폭 10 ns, 반복율 20 Hz의 Q 스위칭 Nd:YAG 레이저 빔의 제 2고조파(532 nm)를 촛점거리 40 cm 렌즈(L2)로 접속하여 He-Ne 레이저 방향과 수직인 평면에서 물방울들에 입사시켜 펌프광으로 사용하였다. 물방울에 조사되는 펌프빔의 크기는 물방울 크기보다 상당히 크게하여 거의 매 펄

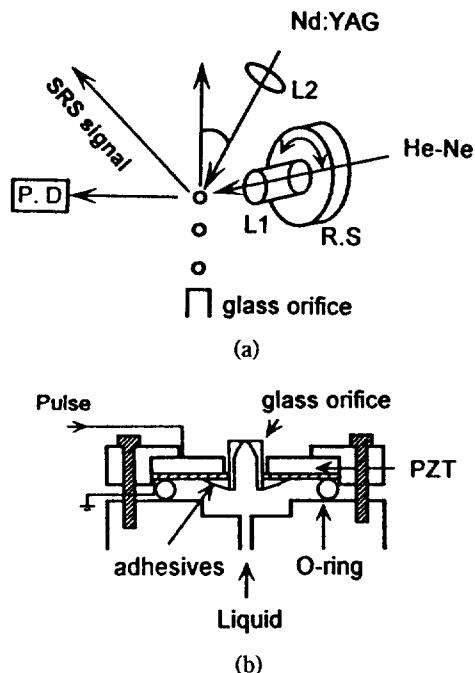


그림 3. (a) 물방울에서의 유도라만산란 신호를 검출하는 실험장치도. (R.S.: 회전판, L1, L2: 렌즈, P.D.: 광 다이오드)
(b) 액체방울 발생기의 유리 tip 부분의 개략도.

스마다 물방울에 맞도록 하였다. 액체방울 발생기는 회전판(R.S)에 고정시켜 물방울의 진행 방향과 펌프광 사이의 각도를 조절할 수 있도록 하였다. 본 실험에서는 이 각도를 약 60° 정도로 하였다. 발생된 유도라만산란 신호는 렌즈로 집속하여 분광기로 들어가고 분광기 내의 회절격자(600 groove/mm)에 의해 파장 별로 분리되어 출구에 장착된 광 다이오드 어레이(PDA, 채널수 2048)로 검출하였고 디지타이징 오실로스코프와 P.C로 데이터를 읽어 들었다. 강한 펌프광이 PDA에 들어가지 않도록 칼라 필터(OG 570)를 PDA 앞에 붙었으며 He-Ne 레이저 (632.8nm)를 기준으로 하여 검출된 신호의 파장을 결정하였다. 펌프광의 세기가 너무 세면 물방울의 break down이 일어나면서 노란색을 띠게 되며 소리가 발생한다. 펌프광은 물방울의 break down이 약간 일어날 정도의 세기를 갖도록 약 1 mJ/pulse로 고정하였다. 칼라 필터로 펌프광을 막고 신호광을 눈으로 관찰하면 매우 빨간 색을 띠고 있음을 확인할 수 있다. 유리 tip으로부터 물방울이 펌프광과 겹치는 위치까지의 거리는 물방울들이 구의 형태가 되는 약 2 cm 정도로 하였다.

본 실험에 사용된 액체방울 발생기의 끝 부분이 그림

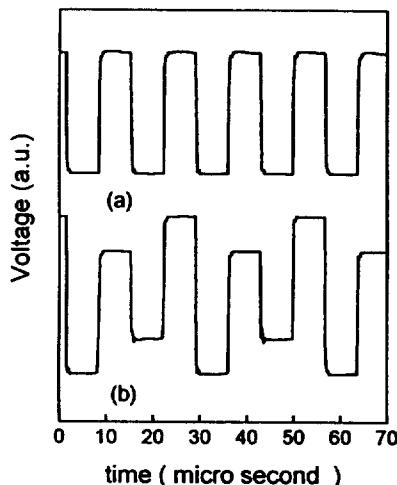


그림 4. PZT에 걸어주는 사각펄스의 모양.

(a) 주파수 71 kHz의 사각펄스, (b) (a)의 사각펄스를 변조할 때의 펄스

3(b)에 나타나 있다. 크기가 $20 \mu\text{m}$ 정도의 구멍을 가진 유리 tip을 두께 0.2 mm 정도의 스테인레스판에 접착제로 고정시켜 스테인레스 홀드에 고정시키고 PZT를 스테인레스판에 바로 접촉시켜 PZT의 멜림이 잘 전달되도록 하였다. 이는 방울 크기와 방울 사이의 간격의 균일성(uniformity)을 더 향상하기 위해 이전의 액체방울 발생기^[14]를 개선한 방법이다. 시료는 2차 중류수를 사용하였고 유리 tip이 막히지 않도록 필터로 걸려서 들어가도록 하였으며 액체를 밀어내는 질소가스의 압력은 약 2기압이었다. PZT에 들어가는 사각펄스의 형태가 그림 4에 나타나 있다(주파수=71 kHz). 그림 4의 (a)는 힘수 발생기에서 발생되는 주기 T (주파수= $1/T$)인 사각펄스의 형태를 보여준다. 이 힘수발생기에서 발생된 사각펄스로 주기가 $2T$ 인 사각펄스를 다시 발생시켜 주기 T 인 원래의 사각펄스와 전기적으로 합하면 그림 4의 (b)와 같은 형태의 변조된 사각펄스가 된다. 주기 $2T$ 인 사각펄스의 전압의 크기를 VCA(voltage controled amplifier)를 사용하여 외부에서 직류 전압을 가해 조절하였다. 이와 같이 변조된 전압을 PZT에 가하면 액체 제트(jet)에 인가되는 표면파가 변조되고 이는 발생된 액체방울에 속도차(velocity difference)가 생기게 한다. 이러한 속도차는 액체방울들을 속도가 다른 두 그룹으로 나누게 되고 공기중을 진행하면서 방울쌍(droplet pair)^[15]의 형태가 된다.

주파수 71 kHz의 사각펄스가 PZT에 인가될 때의 광다이오드로 측정한 물방울의 산란 형태가 그림 5에 나

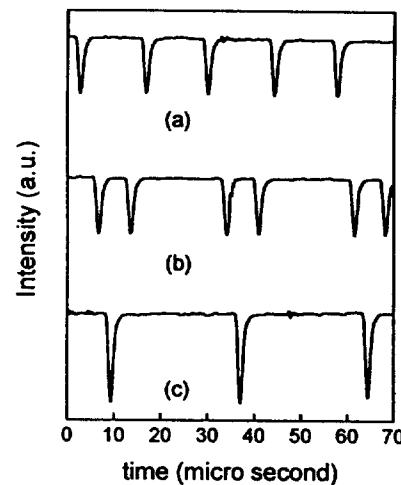


그림 5. He-Ne 레이저 빔의 물방울에 의한 산란광의 형태. (a) 사각펄스를 변조하지 않았을 때, (b) 사각펄스를 변조하여 물방울이 방울쌍이 될 때, (c) 변조전압을 더욱 크게하여 방울쌍이 결합하여 진동하다가 거의 구의 형태가 될 때

타나 있다. 산란강도는 방울크기에 따라 달라지는데 그림 5의 (a)는 변조전압을 가하지 않았을 때 크기가 일정하고 방울 간격이 거의 일정한 형태를 보여준다. 유리 tip 바로 위에서 측정한 산란형태는 그림 5의 (a) 형태보다 그 간격이 더 일정하나 물방울이 진행하면서 공기의 저항이나 초기의 작은 속도요동 때문에 펌프광의 위치에서는 그 간격의 균일성이 떨어지게 된다. 그림 5의 (b)는 VCA에 인가되는 직류 전압을 조절하여 사각펄스를 변조했을 때 물방울들이 방울쌍이 될 때의 산란형태를 보여준다. 이 때에도 물방울쌍의 거리가 거의 일정함을 알 수 있다. 변조전압을 더욱 크게 증가시키면 속도차가 더욱 커져서 방울쌍이 결합하게 되고 결합된 방울이 진동하다가 크기가 $2^{1/3}$ 배 되는 새로운 물방울이 된다. 크기가 $2^{1/3}$ 배의 물방울이 되었을 때의 산란 형태가 그림 5의 (c)에 나타나 있다.

He-Ne 레이저로 측정한 산란 형태를 보고 방울들이 일정하게(산란 peak 사이의 시간 간격이 걸어준 사각펄스의 주기 T 와 같을 때) 발생함을 알 수 있으며 본 실험 조건에서 사각펄스의 주파수가 30~210 kHz 범위에서 일정하게 발생함을 알 수 있었다. 또 사각펄스를 변조하여 방울쌍을 만들 때의 속도차는 주파수에 매우 민감하게 나타났다. 이는 액체 제트에 인가되는 표면파의 진폭은 시간에 따라 자수함수적으로 증가하며, 그 증가 정도가 주파수에 따라 매우 민감하게 변하기 때문이다.

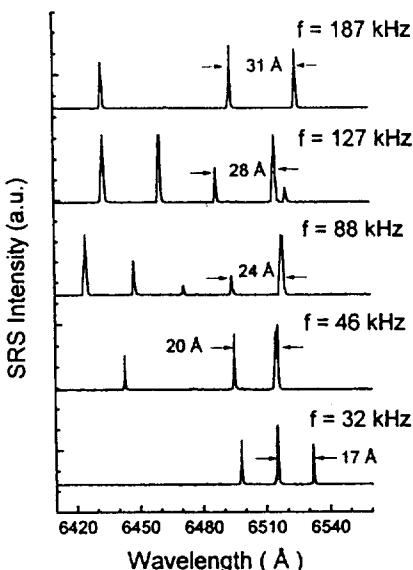


그림 6. 주파수를 바꾸면서 측정한 물방울의 공명 유도라만산란 신호(f가 32 kHz일 때 측정된 물방울 크기는 $\sim 62 \mu\text{m}$, 187 kHz일 때는 $\sim 35 \mu\text{m}$)

IV. 결과 및 분석

인가된 사각펄스의 주파수를 달리하면서 측정한 물방울의 유도라만산란 신호가 그림 6에 나타나 있다. 유도라만산란 신호는 간격이 일정한 peak들의 형태(peak 간격의 측정상의 오차는 약 1 \AA)로 발생됨을 알 수 있으며 이는 같은 모드순서의 공명모드들만이 펌프광이 만들어 놓은 이득매질을 들면서 가장 빨리 증폭되기 때문이다. 물방울의 크기가 약 $35 \mu\text{m}$ 에서 $62 \mu\text{m}$ 까지 커짐에 따라 peak 사이의 간격이 약 31 \AA 에서 17 \AA 으로 줄어들고 있음을 알 수 있다. 고정된 주파수에 대해 유도라만산란 신호는 단일 shot로 측정되기 때문에 shot마다 신호가 달라지는데 그림 6은 가장 자주 나타나는 유도라만산란 형태를 측정한 것이다. shot마다 신호 형태가 달라지는 것은 펌프광의 세기 변화, 물방울 크기의 작은 변화, 펌프빔에 맞는 물방울의 위치 변화, 물의 자발라만산란 띠의 넓음 등에 기인한다고 추정되고 있다^[16]. 각 shot마다 peak의 위치가 바뀐 형태와 그 세기 양상이 달라진 형태 등으로 분류할 수 있으나 각 경우에 있어서도 그 peak사이의 간격은 변화가 없음을 확인하였다. PMT를 사용한 분광기로 여러 shot들의 평균으로 검출한 유도라만산란 신호의 형태는 큰 peak들 사이에 여러 작은 peak들이 위치하였으며, 따라서 단일 shot로 신호를 검출할 필요가 있었다.

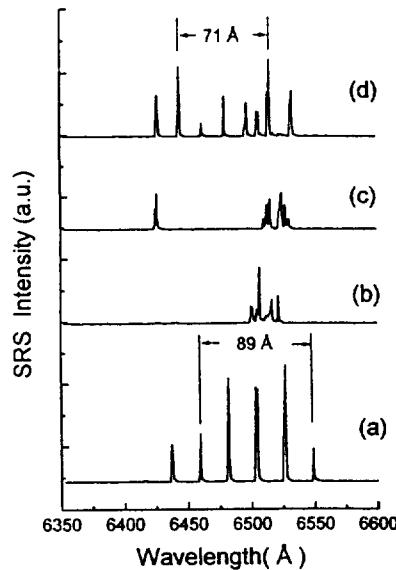


그림 7. 두 물방울을 결합하면서 측정한 유도라만산란 신호의 변화 ($f=71 \text{ kHz}$). (a) 변조하지 않았을 때, (b), (c) 두 물방울이 결합하여 회전타원체에서 구의 형태로 전이할 때, (d) 거의 완전한 구의 형태가 될 때

펌프광의 펌프방향이 산란 평면에 있기 때문에 발생되는 유도라만산란 신호는 주로 TM모드가 나타남을 알 수 있는데 주파수가 127 kHz 에서는 6520 \AA 근처에서 다른 모드도 발생됨을 알 수 있다. 사각펄스의 주파수를 변화시키면서 유도라만산란 신호를 검출할 때 특정 주파수에서는 매우 넓은 파장 영역에서 간격이 일정한 신호 형태가 나타나고 그 강도가 매우 크게 나타나는데 이는 펌프광이 물방울의 MDR조건을 만족하여 신호광과 펌프광이 모두 공명조건을 만족하는 이중 공명(double resonance)을 일으키기 때문이라고 생각된다. 유도라만산란 신호는 $6400 \text{ \AA} \sim 6550 \text{ \AA}$ 영역에서 발견되는데 이는 자발라만산란 띠가 매우 넓지만 이 영역에서 상대적으로 크기 때문이다. 특히 6520 , 6495 , 6430 \AA 에서 액체 물분자의 분자진동모드(Intramolecular vibration mode)^[16]와 결합된 유도라만산란 신호가 위치하고 있기 때문이다.

사각펄스를 변조시켜 물방울을 결합시키면서 유도라만산란 신호를 검출한 데이터가 그림 7에 나타나 있다. 그림 7의 (a)는 주파수가 71 kHz 이고 변조전압을 가하지 않았을 때의 신호이다. 물방울쌍이 결합하여 진동을 하게 되면 구 형태를 유지하지 않기 때문에 공명라만신호가 나타나지 않게 되는데 물방울이 진동하다가 어느 정도 구의 형태가 되면 그림 7의 (b)와 같은 신호가 나타난다.

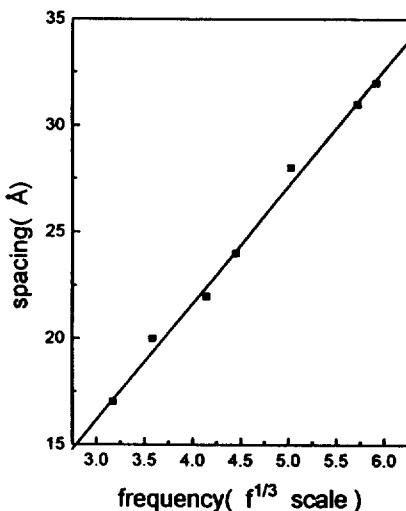


그림 8. 주파수($f^{1/3}$ scale)에 따른 유도라만산란 신호 peak의 파장 간격

이렇게 회전타원체 형태가 되면 Cavity Q값이 작아지게 되므로 펌프광의 문턱세기가 커지게 되어 신호가 작아진다. 어느 정도 구의 형태가 되면 그림 7의 (c)와 같이 6430 Å 근처에 신호가 나타나고 물방울이 거의 구의 모양을 갖추게 되면 그림 7의 (d)와 같이 간격이 일정한 공명 유도라만산란 신호가 나타난다. 그림 7의 (d)에서는 그림 7의 (a)와 비교하여 간격이 줄어들었음을 알 수 있다. 크기가 같은 두 물방울이 합쳐지면 부피가 두배로 되고 방울의 크기가 $2^{1/3}$ 배 증가한다. 그림 7의 (a)와 (d)에서 4개의 peak 간격이 각각 89 Å과 71 Å으로 측정되었는데, 식 (9)에 의해 peak 간격이 방울 반경에 반비례하므로 이 둘 사이의 비가 $2^{1/3}=1.26$ 이 되어야 한다. $89/71=1.25$ 이므로 방울쌍을 결합했을 때 물방울이 쪼개지지 않고 크기가 $2^{1/3}$ 배 증가했음을 확인할 수 있었다.

두 방울을 접근시키면서 결합되기 전의 유도라만산란 실험을 수행한 결과 유도라만산란 신호의 peak 위치가 조금씩 다른 두 가지 형태의 신호패턴이 가장 많이 나타났는데 이로부터 방울쌍 내의 각각의 크기가 약간 다름을 알 수 있었다. 변조전압의 크기가 커질 수록 신호 peak의 이동이 커지게 나타났으며, 이는 변조전압방법으로 속도차가 생기게 할 경우 중력이 작용하고 항력 효과가 존재하는 공기중에서 불가피한 현상이라 생각된다. 그러나 그 크기차이가 매우 작으므로 ($\Delta a \sim 10^{-2}a$) 변조전압 방법은 두 액체방울의 거리에 따른 산란실험이나 두 방울이 결합하여 거의 완전한 구의 형태가 될 때 까지의 시간측정 등의 실험에 매우 유용한 방법이

될 것이다.

실험에 사용된 레이저 펄스는 다중모드로 선폭이 약 0.3 cm^{-1} 였다. 물의 경우 브릴루앙 산란의 선폭은 레이저 선폭보다 매우 작고 라만산란의 선폭은 레이저 선폭보다 매우 크므로 유도브릴루앙산란의 문턱세기가 유도라만산란의 문턱세기보다 크다. 따라서 유도브릴루앙산란은 유도라만산란을 펌핑하는데 거의 역할을 하지 않는다. 그러나 레이저 펄스가 단일모드인 경우에는 유도브릴루앙산란의 문턱세기가 더 낮아 유도브릴루앙산란이 유도라만산란을 펌핑한다고 알려져 있다^[3].

그림 8은 실험 데이터에서 얻은 사각펄스의 주파수와 유도라만산란 peak의 파장 간격과의 관계를 나타낸 그림이다. 물방울의 반경이 $f^{-1/3}$ 에 비례하므로 peak 간격이 물방울 반경에 반비례함을 알 수 있다. 실험에서 측정한 물의 흐름율(flow rate) $R(=14 \text{ mL/h})$ 로부터 물방울의 반경 $a(a=(3R/4\pi)^{1/3})$ 를 구할 수 있다. 식 (9)로부터 그림 8의 테이터를 분석한 결과 같은 모드순서의 두 공명모드 사이의 간격 Δx 는 약 0.785였으나 식 (8)로부터 구한 Δx 는 0.821로 약 5% 정도 작게 나왔다. 식 (8)이 2% 정도의 오차가 있는 식임을 감안하면 실험적으로 얻은 데이터와 식 (8)이 대체로 일치함을 알 수 있었다. 물의 흐름율 R 의 측정을 1시간 동안 물방울들을 모은 양으로 정하였는데 물의 증발에 의해 정확한 R 보다 작아지게 되므로 식 (8)에서 계산한 값보다 작은 쪽으로 오차가 커졌을 것이다.

V. 결 론

$35 \mu\text{m} \sim 62 \mu\text{m}$ 크기의 물방울에서 공명 유도라만산란 실험을 수행하였다. 공명 유도라만산란 신호는 간격이 일정한 peak들의 형태로 검출되었고 물방울 크기가 커지면 그 간격이 좁아짐을 관측하였다. 신호광은 단일 shot로 검출되었고 펌프광이 물방울에 맞는 위치 변화나 물방울 크기의 작은 요동 등으로 신호광의 스펙트럼이 일정하지는 않았으나 자주 나타나는 형태는 항상 존재하였다며 peak 사이의 간격도 일정하였다. 또한 변조전압 방법으로 두 물방울을 결합시키면서 유도라만산란 실험을 수행한 결과 물방울이 거의 완전한 구의 형태가 되지 않으면 MDR 특성이 나타나지 않음을 확인하였다. 실험적으로 측정된 모드 간격값은 예측된 값보다 약 5% 작게 나왔고 이는 물의 흐름율 측정에 있어서 물의 증발량을 고려하지 않았기 때문이라 생각되며 근사적으로 예측된 Δx 값은 약 2% 이내에서 잘 맞는 식이라 할 수 있다.

참 고 문 헌

- [1] J. C. Knight, H. S. T. Driver, and G. N. Robertson, Opt. Lett. **15**, 980(1990).
- [2] V. Srivastava and M. A. Jarzembski, Opt. Lett. **16**, 126(1991).
- [3] J. Z. Zhang, G. Chen, and R. K. Chang, J. Opt. Soc. Am. **B7**, 108(1990).
- [4] E. Freysz, E. Laffon, and A. Ducasse, Opt. Lett. **16**, 1644(1991).
- [5] H. M. Lai, P. T. Leung, and K. Young, Phys. Rev. A**41**, 5199(1990).
- [6] H. B. Lin, J. D. Eversole, and A. J. Campillo, Opt. Lett. **17**, 828(1992).
- [7] J. B. Snow, S. X. Qian, and R. K. Chang, Opt. Lett. **10**, 37(1985).
- [8] 문희종, 김광훈, 임용식, 고춘수, 이재형, 장준성, 응용물리. **7**, 221(1994).
- [9] P. M. Morse and H. Freshbach, *Methods of Theoretical Physics* (McGraw-Hill, New York, 1953), Chap. 5. 3.
- [10] P. Ch lek, J. Opt. Soc. Am. A**7**, 1609(1990).
- [11] J. -G. Xie, T. E. Ruekgauer, J. Gu, R. L. Armstrong, and R. G. Pinnick, Opt. Lett. **16**, 1310(1991).
- [12] M. Golombok and D. B. Pye, J. Phys. D : Appl. Phys. **23**, 1109(1990).
- [13] G. Chen, D. Q. Chowdhury, and R. K. Chang, J. Opt. Soc. Am. **B10**, 620(1993).
- [14] H. J. Moon, G. H. Kim, Y. S. Lim, C. S. Go, J. H. Lee, and J. S. Chang, Rev. Sci. Instrum. **66**, 3030(1995).
- [15] M. Orme and E. P. Muntz, Rev. Sci. Instrum. **58**, 279(1987).
- [16] J. -G. Xie, T. E. Ruekgauer, J. Gu, R. L. Armstrong, and R. G. Pinnick, Appl. Opt. **33**, 368(1994).

The Characteristics of Resonant Stimulated Raman Scattering in the water droplet

Hee-Jong Moon, Guang-Hoon Kim, Yong-Sik Lim, Chun-Soo Go,

Jai-Hyung Lee and Joon-Sung Chang

Department of Physics, Seoul National University, Seoul 151-742, Korea

(Received: May 9, 1995)

We have detected the resonant stimulated Raman scattering signal when the Q-switched Nd:YAG laser beam are incident on the $35 \mu\text{m} \sim 62 \mu\text{m}$ sized water droplet as pump beam. The signals appeared as uniformly spaced peaks and the intervals between peaks become narrow as the droplet size increases. Also we have confirmed the morphology dependent resonances (MDR's) characteristic of the stimulated Raman scattering signal when the water droplet becomes nearly spherical shape after two water droplets are coupled to a droplet. The error in the measured intervals between MDR's of same mode order is about 5%.