

## 이광자 형광법과 비공선 일중 이차고조파법에 의한 피코초 레이저 펄스폭과 펄스형 측정

한기호 · 박종락 · 이재용 · 김현수 · 엄기영 · 변재오 · 공홍진

한국과학기술원 물리학과, 305-701

(1996년 4월 23일 받음)

주 공진기 Nd:YLF 레이저에서 Q-switching and mode-locking(QSML)된 펄스열로부터 단일 펄스를 선택한 후 4중경로 Nd:glass 레이저 증폭기를 통과시켜 얻은 증폭된 빔의 펄스폭을 이광자 형광법(TPF)으로 측정하였고 비공선 일중 이차고조파법을 이용하여 CW mode-locked 펄스열의 자기상관을 구해 펄스폭과 함께 펄스형을 결정하였다. 측정된 TPF 자기상관 패턴은 QSML 펄스열에서 단일 펄스를 선택하는 위치에 따라 다른 양상을 보였다. 즉, 펄스열 전반부에서 선택된 펄스의 자기상관은 곡선이 부드러운 펄스형을 보이는 반면, 펄스열 후반부일 때는 예리한 spike와 중앙의 substructure를 나타냈다. TPF법에 의한 증폭된 빔의 자기상관으로부터 펄스폭은 44.4 ps, 대비비는 2.86로 측정되었으며 이 대비로부터 펄스와 배경을 합한 전체 에너지에 대한 펄스의 에너지비  $E_p/E_{total}=0.62$ 를 구할 수 있었고 또한 mode-locking만 된 펄스를 사용한 SHG 자기상관 실험에서는 펄스폭이 46.6 ps로 측정되었다. 한편, 측정된 SHG 자기상관 신호를 여러 펄스형으로 fitting한 결과 펄스형이 sech<sup>2</sup>형에 가까움을 확인할 수 있었다. 이 펄스형을 이용한 시뮬레이션을 통해 4중경로 증폭기를 통과한 펄스의 펄스폭 감소 효과를 확인하였다.

### I. 서 론

1965년 passively modelocked Nd:glass 레이저의 발명으로 피코초의 펄스를 얻을 수 있었으나, 그 펄스폭을 측정하는데 있어서 종래의 광검출기나 오실로스코프와 같은 직접적인 방법으로는 분해능에 있어 한계를 보였다. 따라서 이러한 극초단 레이저 펄스폭을 측정하기 위해서는 새로운 기술이 필요하게 되었는데 이때 등장한 방법이 비선형 현상에 근거한 이차고조파발생(SHG: Second Harmonic Generation)법과 이광자 형광(TPF: Two-Photon Fluorescence)법 및 광학적 Kerr 효과를 이용한 간접적 방법들이었다. 이러한 방법들은 광학적 자기 상관계를 이용하는 것으로 검출한 상관 함수로부터 역으로 펄스폭을 결정한다. 이 외에도 직접적인 펄스폭 측정 방법으로 streak camera가 이용되는데, 이것은 수백 fs까지 분해할 수 있지만 그 장비가 매우 고가인 이유로 사용이 용이하지만은 않다.

이광자 형광법(TPF법)은 1967년 Giordmaine 등<sup>[1]</sup>에 의해 최초로 시도된 이후, 고출력 mode-locked 레이저에 의해 발생된 펄스들을 연구하는데 가장 널리 사용되어 왔다. 이는 자기상관계의 구성이 간단하고 single shot<sup>[2,3]</sup>

으로 이차 자기상관함수를 완벽하게 측정할 수 있기 때문이다. TPF법은 입사 레이저 펄스를 광분할기를 이용하여 같은 세기의 두 펄스로 나눈 다음 dye와 같은 유기 물질을 녹인 용액에서 두 펄스를 충돌시켜서 발생하는 형광세기를 분석하여 펄스폭을 결정하는 방법이다. 이 방법은 빔의 강도, 정렬, dye의 농도 및 빔 편광상태에 따라 민감한 자기상관 패턴을 보이므로, 구성이 간단한 실험장치에 비해 그 자기상관 신호를 검출하기가 용이하지 않은 않다. 특히, 정렬, 빔 강도에 있어서의 미세한 변화에도 TPF 신호의 대비비(contrast ratio)는 큰 차이를 보인다<sup>[4]</sup>. 이러한 대비비는 레이저의 모드록킹 정도와 펄스가 지닌 에너지비를 알려준다<sup>[2]</sup>.

최초의 picosecond 펄스폭 측정은 이차고조파 발생법(SHG법)을 사용함으로써 가능하게 되었다<sup>[5]</sup>. 이 방법은 레이저 펄스를 둘로 나누어 광로차를 준 다음 다시 KDP와 같은 결정에서 합치도록 하여 이차고조파를 발생시킴으로써 자기상관을 측정하여 펄스폭을 결정하는 방법으로 1966년 거의 동시에 위상정합조건에 따른 세 가지 방법이 발표되었다. Weber는 공선 2중(collinear type II) 위상정합을 이용하였고 Armstrong은 같은 공선 2중이지만 비선형 결정 bulk대신 GaAs 결정의 표면을

이용하였다. Maier 등은 비공선 1종(noncollinear type I)을 사용했다. 본 실험에서는 비공선 일종 SHG 실시간 자기상관계<sup>[6,7]</sup>를 사용하여 반복률이 높은 CW mode-locked Nd:YLF 레이저의 펄스폭을 측정하였다.

이 밖에 광학적 Kerr shutter법은, 편광된 강한 펄스가 Kerr 매질에 입사되면 광학적 복굴절성이 발생하는데 이러한 복굴절성이 없어지는 완화 시간에 의해 분해능이 결정되며 펄스폭을 결정하는 방법이다.

본 연구에서는 4중경로 증폭기를 통과한 단일 펄스의 TPF 자기상관 패턴으로부터 펄스폭을 구하고 CW mode-locked 레이저 펄스열의 비공선 일종 SHG 자기상관 신호로부터 역시 펄스폭을 측정한다 다음 그 상관 패턴을 여러 함수로 fitting하여 펄스형도 함께 결정한다<sup>[8]</sup>. 이 두 가지 방법에 의한 결과들을 비교하기 위해 4중경로 증폭기에 의한 증폭과 Q-switching 효과를 고려하였고 특히, 4중경로 증폭기에 의한 펄스폭 감소 효과를 시뮬레이션에 의해 확인하였다. 또한 TPF 자기상관 패턴과 그 대비비로부터 레이저의 모드록킹 정도와 배경(background)을 포함한 전체 에너지 중 펄스가 가진 에너지비를 간접적으로 알 수 있었다. 그리고 QSML 펄스열에서 펄스를 선택하는 위치에 따라 서로 다른 양상을 보이는 자기상관 패턴으로부터 substructure와 spike를 확인하고 비교 분석하였다.

## II. 이 론

### 2.1 자기상관함수와 대비비

비선형 현상을 이용한 TPF나 SHG법에 의해 검출되는 2차 자기상관 함수는 다음과 같이 정의된다.

$$G^2(\tau) = \frac{\int_{-\infty}^{\infty} dt I(t)I(t+\tau)}{\int_{-\infty}^{\infty} dt I^2(t)} = \frac{\langle I(t)I(t+\tau) \rangle}{\langle I^2(t) \rangle} \quad (1)$$

여기서, 광펄스  $E(t)$ 의 광학적 시간 평균  $I(t)$ 는  $I(t) \propto \langle E(t) \rangle^2 = \xi^2(t)$ 이며  $E(t)$ 는  $E(t) = \xi(t)\cos\{\omega t + \phi(t)\}$ 이다. 이 2차 자기상관 함수  $G^2(\tau)$ 로부터 입력 펄스  $I(t)$ 의 펄스폭을 표 1에 의해 결정할 수 있다. 표 1은 함수  $I(t)$ 에 대한 상관함수  $G^2(\tau)$  및 이와 관련된 여러가지 펄스들의 반치폭(FWHM)들 사이의 관계를 나타내고 있다. 또한, 입력 광펄스  $I(t)$ 가 만약 대칭적이라면 검출한 자기상관 함수  $G^2(\tau)$ 로부터  $I(t)$ 를 역으로 추정할 수 있다. 일반적으로  $I(t)$ 를 유일하게 결정하기 위해선  $G^2(\tau)$ 의에도 더 높은 차수의 상관함수를 사용해야 한다.  $n$ 차 상관함수는 다음과 같이 주어진다.

표 1. Second-order autocorrelation functions corresponding to various input pulse shapes.

$I(t)$	$\tau_c/\tau_p$	$G^2(\tau)$	$\Delta\nu \cdot \tau_p$
$e^{-\frac{(4\ln 2)t^2}{\tau_p^2}}$	$\sqrt{2}$	$e^{-\frac{8\ln 2 \cdot \tau^2}{\tau_c^2}}$	0.441
$\text{sech}^2\left(\frac{1.76t}{\tau_p}\right)$	1.55	$\frac{3\left(2.71\frac{\tau}{\tau_c}\coth\left(2.71\frac{\tau}{\tau_c}\right)-1\right)}{\sinh\left(2.71\frac{\tau}{\tau_c}\right)}$	0.315
$1 + \left(\frac{2t}{\tau_p}\right)^2$	2	$\frac{1}{1 + \left(\frac{2\tau}{\tau_c}\right)^2}$	0.220
$e^{-\frac{(\ln 2)t}{\tau}} \quad (t \geq 0)$	2	$e^{-\left \frac{2\ln 2 \cdot \tau}{\tau_c}\right }$	0.11

$$G^n(\tau_1, \tau_2, \dots, \tau_{n-1}) = \frac{\langle I(t)I(t+\tau_1)\dots I(t+\tau_{n-1}) \rangle}{\langle I^n(t) \rangle} \quad (2)$$

하지만,  $G^2$ 와  $G^3$ 만 정확히 알면 모든 차수의 상관함수를 결정할 수 있고 따라서 그 펄스 자체를 기술할 수 있다.

2차 자기상관 신호로부터 측정할 수 있는 대비비  $K$ 를 이론적으로 유도하면 다음과 같다. 앞에서 언급한 바와 같이 강도 자기상관 함수  $G^2(\tau)$ 는 wave packet의 전기장과 관련된 해석신호  $V(t)$ 의 함수로 다음과 같이 표현할 수 있다.

$$G^2(\tau) = \langle V(t)V(t+\tau)V^*(t)V^*(t+\tau) \rangle \quad (3)$$

또한, 함수  $I(t)$ 의 반치폭(FWHM)  $\tau_p$ 는 해당하는 상관함수  $G^2(\tau)$ 의 반치폭  $\tau_c$ 에 비례한다. 즉, 표 1에서도 확인할 수 있듯이  $\tau_c = a\tau_p$ 이다.  $a$ 는 form factor이다. 그리고  $-z$ 와  $z$ 방향으로 진행되는 동일한 두 펄스에 의한 형광 강도  $F(\tau)$ 는  $G^2(\tau)$ 에 의해 주어진다<sup>[10,53]</sup>.

$$F(\tau) = 2F_0(1 + 2G^2(\tau)/G^2(0)) \quad (4)$$

여기서  $\tau = 2z/v_g$ 이고  $v_g$ 는 파속의 group velocity이며  $F_0$ 는 단일경로형광(single-pass fluorescence)이다. 대비비  $K$ 는  $\tau=0$ 에서의 침투형광과  $\tau$ 가 큰 값일 때의 배경형광의 비로 정의된다.

$$K = \frac{F(0)}{F(\tau \rightarrow \infty)} \quad (5)$$

배경강도가 없을 때는  $K=3$ 이고 가우스 노이즈에 대해서는  $K=1.5$ 이다. 다음과 같이 광파가 요동하는 배경위에

있는 펄스로 구성되어 있다고 생각하자.

$$V(t) = V_p(t) + V_s(t) \tag{6}$$

$V_p(t)$ 는 가우스 노이즈의 강도분포를 따르고  $V_s(t)$ 는 well-defined 시간함수처럼 변한다.  $\tau_p$ 는  $V_p(t)$ 에 의한 반치폭이고  $T$ 를 배경의 전체 duration, 즉 mode-locked 펄스열에서 연속하는 두 최고치사이의 시간 간격이라고 하자. 만약  $\beta = E_p/E_{total}$ 을 도입해서( $E_p$ : 펄스에너지,  $E_{total}$ : 펄스와 배경의 에너지) (6)을 (3), (4) 및 (5)에 대입하면,

$$K(\beta) = \frac{3 + 6(1/\beta^2 - 1)(\tau_p/T)\alpha}{1 + 4(1/\beta^2 - 1)(\tau_p/T)\alpha} \tag{7}$$

와 같다.  $K(\beta)$ 는 펄스형에 거의 의존하지 않는다. 이 (7) 식을 이용하여 측정된 자기상관 계단의 대비비로부터 펄스가 지닌 에너지비  $\beta$ 를 간접적으로 알 수 있다.

## 2.2 위상정합조건에 따른 SHG법 분류

### 2.2.1 공선 1종법 (collinear type I)

공선 1종법은 입사파인 두 기본파가 같은 선편광을 갖고 공선적으로 KDP와 같은 비선형 매질에 입사되는 방법으로 유배경 상관(correlation with background)을 검출한다. 입사하는 두 기본파는 서로  $\tau$ 의 시간차를 갖는 동일한 광펄스로서 공선적이며 정상(ordinary)광선이다. 2차고조파는 이상광선으로서 역시 공선적이다. 이때 위상정합조건은 다음과 같다.

$$n_r^{\omega} = n_r^{2\omega}(\theta_m) \text{ (부단축 결정)} \tag{8}$$

$\theta_m$ 는 위상정합각을 나타내고  $\omega$ 는 기본파의,  $2\omega$ 는 2차 고조파의 각주파수이다. 또한, 입사하는 두 기본파를  $E(t)$ ,  $E(t+\tau)$ 로 표시하면 고조파  $E_{2\omega}(t, \tau)$ 는  $E_{2\omega}(t, \tau) \propto |E(t) + E(t+\tau)|^2$ 로 나타낼 수 있으며 검출되는 이차고조파의 강도  $V(\tau)$ 는 다음을 만족시킨다.

$$\begin{aligned} V(\tau) &\propto \left\langle \int_x^x dt [E(t) + E(t+\tau)]^2 \right\rangle_t \\ &\propto \left\langle \int_x^x dt I^2(t) + 2 \int_x^x dt I(t)I(t+\tau) \right\rangle_t \\ &\propto 1 + 2G^2(\tau) \end{aligned} \tag{9}$$

이 때  $\tau \gg \tau_p$ 인 경우  $G^2(\tau) = 0$ 이 되어도  $V(\tau) \neq 0$ 이므로 공선 1종 상관을 유배경상관(correlation with background)이라고 한다.

### 2.2.2 비공선 1종법 (noncollinear type I)

같은 선편광을 갖는 두 기본파 사이에 작은 각도를 주어 두 기본파가 겹쳐질 때 이차고조파가 나오게 하는

방법으로서 무배경상관으로 양날개 부분을 정밀하게 볼 수 있어 상관형태를 판별하는데 유리하며 공선 2종법에서 나타나는 두 기본파 사이의 군속도차에 의한 오차가 없다는 잇점이 있다. 그러나 두 기본파 사이의 각도에 의한 기하학적인 상관폭의 증가가 오차를 주게 되므로 두 기본파 사이의 각도를 될수록 작게 해야 한다. 입사하는 두 기본파는 서로  $\tau$ 의 시간차를 갖는 동일한 펄스로서 둘다 정상광선이지만 서로 비공선적이다. 2차 고조파는 이상광선으로서 두 기본파가 동시에 지나갈 때 그 이등분선의 방향으로 나아간다. 이때 위상정합 조건은

$$n_r^{\omega} \cos \alpha_m = n_r^{2\omega}(\theta_m) \text{ (부단축 결정)} \tag{10}$$

이며  $\alpha_m$ 은 두 기본파 사이의 각도의 반이다. 비공선 1종 상관의 경우 고조파  $E_{2\omega}(t, \tau)$ 는

$$E_{2\omega}(t, \tau) \propto E(t)E(t+\tau) \tag{11}$$

이며 검출되는 고조파의 강도  $V(\tau)$ 는 다음을 만족시킨다.

$$\begin{aligned} V(\tau) &\propto \left\langle \int_x^x dt [E(t)E(t+\tau)]^2 \right\rangle_t \\ &\propto \left\langle \int_x^x dt I(t)I(t+\tau) \right\rangle_t \\ &\propto G^2(\tau) \end{aligned} \tag{12}$$

이 때는  $\tau \gg \tau_p$ 인 경우  $G^2(\tau) = 0$ 이고  $V(\tau) = 0$ 이므로 비공선 1종 상관을 무배경상관(background free correlation)이라고 한다.

## III. 실험 및 결과

### 3.1 TPF 실험

이광자 형광에 의한 자기상관 측정을 통해 펄스폭을 결정할 수 있는 전체적인 실험장치 구성은 그림 1과 같다. 여기서 굵은 실선은 레이저 빔의 경로를, 얇은 실선은 전기 신호를 나타낸다. 그림 1에서 보는 바와 같이 주 공진기(master oscillator) Nd:YLF 레이저로부터 나온 QSML(Q-switched and mode-locked) 펄스열 편광상태는 수평으로, PBS1(Polarization Beam Splitter)은 통과하나 PBS2는 통과하지 못한다. QSML 펄스열에서 하나의 펄스를 선택하여 수직 편광상태를 만들어 PBS2를 통과시키기 위해서 포켈셀에 8 kV의 전압을 7 ns동안 가한다. 이때 시간 동기화를 위해 다음과 같은 과정을 거친다. 단일펄스선택을 위해 trigger를 시키면 400 Hz scaler로부터 계속해서 신호를 받고 있던 컴퓨터는 역시



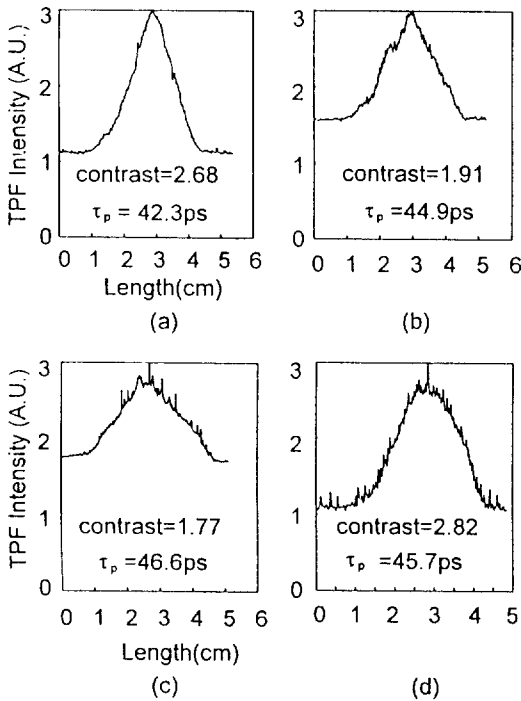


그림 3. Comparison of TPF yield in terms of degree of mode-locking.

QSMML 펄스열 속의 모드록킹된 펄스 뒤에 오는 satellite 펄스들의 강도 즉 배경(background)강도가 모드록킹이 안될수록 강해지기 때문이며 따라서 첨두(peak)에서 배경간의 간격이 좁아져 대비비가 감소하는 것이다. 또한 이와 함께 펄스폭도 증가함을 확인할 수 있다. 그리고 (a), (b), (c)로 갈수록 곡선의 패턴이 부드러워지고 굴곡이 심하며 예리한 spike들을 뚜렷이 볼 수 있다. 이는 모드록킹 정도가 약할수록 모드들 사이의 위상이 임의적(random)으로 되어 가우스 노이즈에 가까워지기 때문이다. 위상이 임의적일수록 선택한 단일 펄스속에 spike들이 점점 더 증가하고 이 spike들은 더욱 더 날카롭고 예리해진다. (b)와 (c)의 TPF 패턴을 보면 언덕 부분을 볼 수 있는데 이는 부분적인 spike들을 가진 단일 펄스의 envelope에 의한 것이다. 즉 가우스 노이즈 burst인 경우와 유사한 자기상관을 나타낸다. 그러나 (d)의 자기상관은 앞에서 한 분석으로 설명할 수 없는 모순을 나타내고 있다. 대비비 2.82으로 비교적 모드록킹이 잘 됐는데도 불구하고 곡선이 부드러워지고 많은 spike들을 내포하고 있다. 이것은 펄스의 자체위상변조(self-phase modulation) 때문이며 그림 4를 통해 설명할 수 있다.

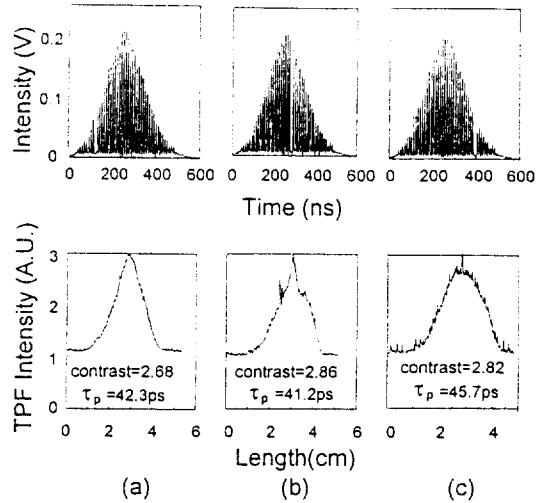


그림 4. Different TPF patterns according to position of selecting a single pulse in QSMML pulse train.

그림 4는 QSMML 펄스열에서 단일 펄스를 선택하는 위치에 따라서 TPF 패턴이 서로 다를 것을 보여준다. (a)는 펄스열의 전반부 (b)는 중간 (c)는 후반부에서 선택했을 때의 자기상관 패턴들이다. 앞에서 분석한 바와 같이 세 경우 모두 비교적 비슷한 대비비를 가져 모드록킹의 정도도 비슷함을 알 수 있다. 그러나 단일 펄스를 선택하는 위치가 펄스열의 후반부로 갈수록 자기상관 패턴은 더 날카롭고 많은 spike들을 나타낸다. 그리고 거의 펄스형에 가까운 (a)에 비해 (b)와 (c)는 언덕 부분과 중앙에 substructure를 보이고 있다. 이 같은 결과의 원인은 다음과 같다. Substructure와 spike는 펄스열이 만들어지는 동안 발생하는 spectral broadening현상으로 설명할 수 있다. 이 broadening은 펄스들이 비선형 굴절률의 분산매질인 레이저 rod를 지나면서 자체위상변조를 하기 때문이다. 자체위상변조는 펄스 강도가 센 펄스열의 중간 부분에서부터 발생하는데, 이러한 강도가 센 펄스들은 광 Kerr 효과에 의해 펄스의 앞 부분은 진동수가 낮아지고 뒷 부분은 높아져서 결과적으로 spectral broadening 현상이 일어나 시간축에서의 spike와 substructure를 만드는 것이다. 또한 진동수 변조(FM)가 강화된 중간 펄스들은 분산 매질 속을 진행하면서 FM에서 AM으로의 변환이 일어난다. 따라서 substructure와 spike들은 자체위상변조와 그로 인한 FM에서 AM으로의 전환에 의한 것으로 보인다. 이러한 실험적인 관측으로 펄스열 후반부의 펄스는 다소 불규칙적으로 요동하는 spike들의 다발(bunch)로 구성되었다고 볼 수 있다. (b),

(c)의 언덕은 이 다발의 envelope에 의한 것이고 중앙의 substructure는 다발속에 있는 spike들에 의한 것이다. 한편 자체위상변조를 겪지 않는 전반부에서 선택한 펄스는 선폭(bandwidth)에 의해 영향을 받지만 후반부에서 뽑은 펄스는 자체위상변조로 펄스폭이 전적으로 선폭에 의해 결정된다고 보기 힘들며 분산매질로 인해 펄스폭이 길어질 것이다. 그림 4의 (c)를 보면 (a)에 비해 펄스폭이 길지만 (b)는 (a)보다 펄스폭이 짧다. 이는 4중경로 증폭기에서 펄스가 이득매질을 지나면서 증폭되어 펄스폭이 줄어들기 때문이다. (b)는 (a)보다 펄스폭이 짧으므로 4중경로 증폭기에 의한 증폭효과가 Nd:YLF 매질의 분산효과보다 더 크게 작용한 경우이고 (c)는 (a)보다 길므로 Nd:YLF 매질의 분산효과가 더 크게 작용했다고 볼 수 있다.

3.2 SHG 실험

Q-switching과 4중경로 증폭이 되지 않고 modelocking만 된 피코초의 CW Nd:YLF 레이저 펄스의 펄스폭을 측정하기 위해서 그림 5와 같은 자기상관계를 이용하였다. 비선형 매질로는 두께가 1 mm와 10 mm인 KDP결정을 사용하였으며 비공선 1중 상관법을 채택하여 무배경상관의 scanning type 자기상관계를 사용하였다.

반사율이 50%인 광분할기에 입사한 광펄스는 같은 비율로 나누어져 회전 block으로 입사하게 된다. 회전 block에 입사하는 각 펄스의 입사각  $\theta$ 와  $\phi$ 는  $\theta + \phi = 75^\circ$ 로 설계되었다. 회전 block을 통과한 광펄스는 되반사용 프리즘(retro reflecting prism) P1과 P2에서 되반사되어 회전 block을 다시 통과하게 되는데, 회전 block을 통과한 두 광펄들 사이에는  $L(\theta, \phi)$ 만큼의 광로정차(OPLD)를 갖게 된다. 되반사용 프리즘을 사용하여 광파를 shift시키는 것은 나중에 볼록렌즈를 사용하여 배정이 없는 비공선 1중 상관법으로 펄스폭을 측정하기 위해서이다. 즉  $L(\theta, \phi)$ 만큼 OPLD를 가진 두 광파는 광분할기에서 비공선적으로 다시 만나게 되는데, 볼록렌즈를 사용하여 위상정합각(phase matching angle)으로 KDP결정에 집속시키면 2차 고조파가 발생하게 된다. 이때 발생하는 고조파의 강도는 OPLD가 0일 때 최대가 되며 OPLD가 커질수록 점점 약해져서  $\tau_p$ 보다 충분히 더 큰 OPLD에서는 고조파의 강도가 0이 된다. 광펄스가 KDP를 통과하고 나면 주파수가  $\omega$ 인 기본파와  $2\omega$ 인 2차 고조파가 섞여 나오게 되는데 기본파를 제거하기 위하여 IR filter를 사용하였다. IR filter를 통과한 고조파는 광 증배관(PM tube)으로 검출하여 oscilloscope와 chart recorder로 관찰하였다.

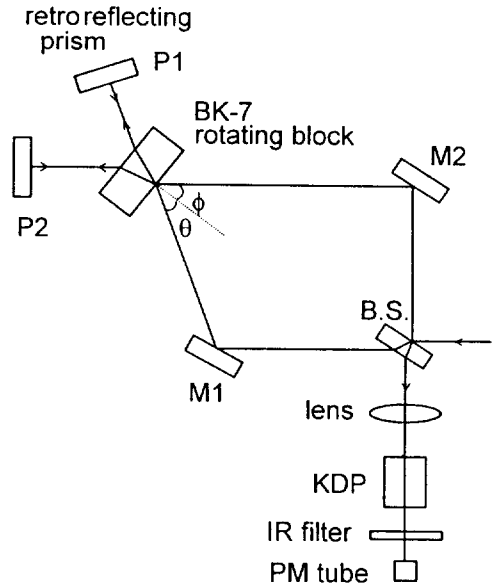


그림 5. Noncollinear type I SHG autocorrelator using cw mode-locked pulse train.

회전 block에 의해 발생하는 광로정 차이를 구해보면 다음과 같다. Block에 입사하는 두 광파의 입사각을 각각  $\theta, \phi$ 로 정의하면 OPLD는  $\theta$ 와  $\phi$ 의 함수로 주어진다. Block이 회전함에 따라 변하는 각 arm의 광로정  $l(\theta)$ 와  $l(\phi)$ 는 다음과 같이 주어진다.

$$l(\theta) = L + t(\sqrt{n^2 - \sin^2 \theta} - \cos \theta) + t,$$

$$l(\phi) = L + t(\sqrt{n^2 - \sin^2 \phi} - \cos \phi) + t \tag{13}$$

여기서  $L$ 은  $\theta, \phi = 0$ 일 때, 회전 block밖에서 광펄스가 진행한 광로정이며  $n$ 은 BK-7 block의 굴절률( $n = 1.50669$  at  $\lambda = 1.053 \mu\text{m}$ )이며  $t$ ( $= 54 \text{ mm}$ )는 block의 두께를 나타낸다. 따라서 자기상관계 각 arm을 진행한 후 각 광펄들 사이에 발생한 OPLD는

$$L(\theta, \phi) = 2[l(\theta) - l(\phi)]$$

$$= 2t(\sqrt{n^2 - \sin^2 \theta} - \cos \theta - \sqrt{n^2 - \sin^2 \phi} + \cos \phi) \tag{14}$$

로 주어진다. 그림 6은  $\theta, \phi$ 에 따라 변하는 광로정차  $L(\theta, \phi)$ 를 나타낸다. 그림 6에서 보는 바와 같이 본 연구에서 사용한 자기상관계의 최대 OPLD는 42.6 mm이며 따라서 측정 가능한 최대 펄스폭은 142 ps이다.

chart recorder에 기록된 자기상관 패턴으로부터 실제 펄스폭을 계산하는 방법은 다음과 같다. rotating block을 회전시키는 stepping motor의 1회전당 시간은 30 sec/

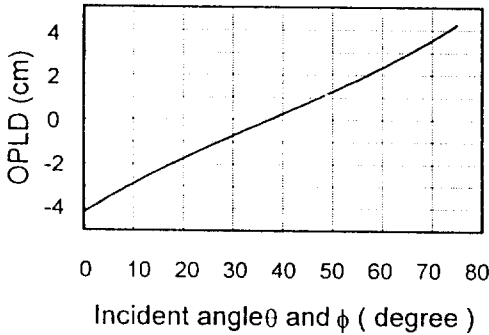


그림 6. OPLD,  $L(\theta, \phi)$  with regard to incident angle at rotating block.

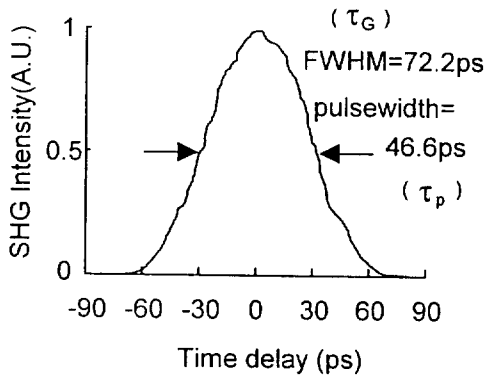


그림 7. SHG signal by the autocorrelator with the use of cw mode-locked pulse train.

turn, chart recorder의 scanning속도는 10 mm/sec, 최대 펄스폭 측정 범위가 142 ps임을 이용하여 1회 scan에 걸리는 시간과 chart recorder에 기록된 거리에 해당하는 시간폭의 비를 구하면 다음과 같다.

$$\frac{75^\circ}{360^\circ} \cdot \frac{\text{revolution}}{\text{scan}} \times \frac{30}{1} \cdot \frac{\text{sec}}{\text{revolution}} = 6.25 \cdot \frac{\text{sec}}{\text{scan}}$$

$$\left(142 \cdot \frac{\text{ps delay}}{\text{scan}}\right) / \left(10 \cdot \frac{\text{mm}}{\text{sec}} \times 6.25 \cdot \frac{\text{sec}}{\text{scan}}\right)$$

$$= 2.27 \frac{\text{ps delay}}{\text{mm}} \quad (15)$$

$\text{sech}^2$ 의 펄스형을 고려하면 표 1에 의해 펄스폭은

$$\tau_p(\text{ps}) = 1.47 \times \text{FWHM} (\text{mm}) \quad (16)$$

로 환산되어 결정할 수 있다.

그림 7은 CW mode-locked 펄스열을 이용하여 이러한 자기상관계로부터 구한 시간축으로 나타낸 SHG 자기상관 신호이다. 이 SHG 패턴의 반치폭은 72.2 ps로 측

표 2. Measured pulsewidth and spectral width for various pulse shapes assumed.

$I(t)$	$\tau_c/\tau_p$	$\Delta\nu \cdot \tau_p$	$\tau_p$ (ps)	$\Delta\nu (\times 10^9 \text{ Hz})$
$1(0 \leq t \leq \tau_p)$	1	0.886	68.6	12.9
$e^{-\frac{(\ln 2)t^2}{\tau_p^2}}$	$\sqrt{2}$	0.441	48.5	9.09
$\text{sech}^2\left(\frac{1.76t}{\tau_p}\right)$	1.55	0.315	44.3	7.11
$\frac{1}{1 + \left(\frac{2t}{\tau_p}\right)^2}$	2	0.221	34.3	6.44
$e^{-\frac{(\ln 2)t}{\tau_p}} (t \geq 0)$	2	0.11	34.3	3.20

정되었고 표 1로부터  $\text{sech}^2$  펄스형에 대해 실제 mode-locked 펄스의 펄스폭은 46.6 ps가 됨을 알 수 있다. 그림 8로부터 그림 7의 SHG 자기상관을 여러 펄스형으로 fitting한 결과, 입사 펄스형이  $\text{sech}^2$ 에 가까움을 확인할 수 있다.

### 3.3 4중경로 증폭에 의한 펄스폭 감소 시뮬레이션

4중경로 Nd:glass 증폭기에 의한 펄스폭 감소 효과를 시뮬레이션에 의해 확인하였다. 본 연구에서는 레이저 펄스폭이 앞에서 측정한 바와 같이 44 ps인데 비하여, Nd:glass 이득매질의 형광 수명은 약 300  $\mu\text{s}$ 이고 펌핑광 펄스의 시간폭이 약 400  $\mu\text{s}$ , 레이저 하준위의 이완시간이 10~100 ns로 매우 길기 때문에 4준위 레이저계를 2준위 레이저계로 근사할 수 있다. 이렇게 하여 광자수송 방정식을 구하면 다음과 같다.

$$\frac{\partial n}{\partial t} = -2\alpha\phi n$$

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} + c \frac{\partial \phi}{\partial x} = \alpha n \phi \quad (17)$$

여기서  $n$ 은 밀도반전  $n = n_2 - n_1$ 이고  $\phi$ 는 광자 밀도로 광강도  $I$ 와  $I = c\phi h\nu$ 의 관계를 가지고  $\alpha$ 는 이득매질의 유도방출 단면적이다. 이득매질의 길이를  $L$ 이라 할 때 경계조건

$$n(x, -\infty) = n_s(x), \quad 0 \leq x \leq L$$

$$\phi(0, t) = \phi_s(t) \quad (18)$$

을 이용하여 (17)식의 광자 밀도를 구하면 다음과 같다.

$$\phi(x, t)$$

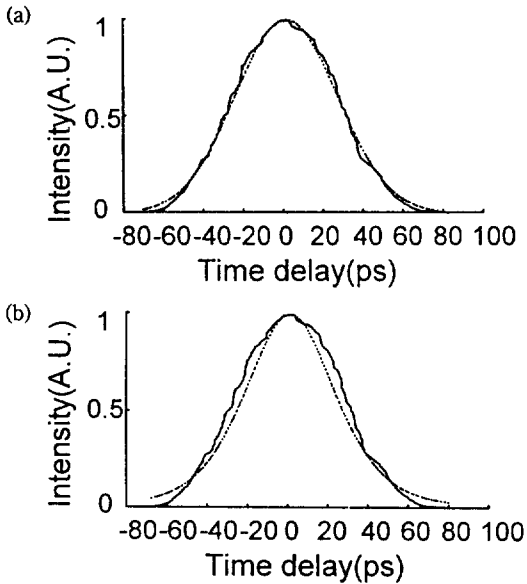


그림 8. Deduction of pulse shape by fitting SHG signal with second-order autocorrelation function of (a)  $\text{sech}^2$  and (b) Gaussian type. (a) shows better agreement than (b).

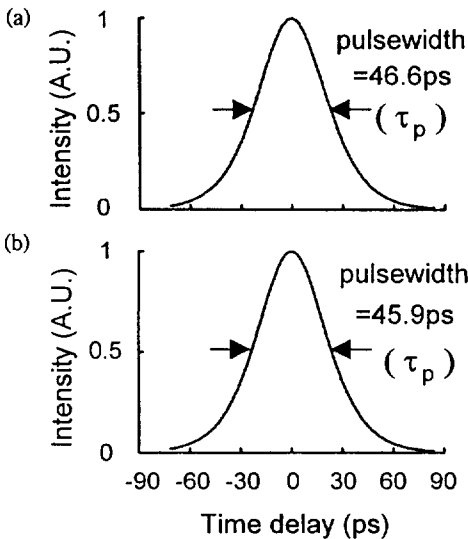


그림 9. (a) Determined input pulse with temporal width and shape of  $\text{sech}^2$ . (b) Computed width of pulse after passing through four-pass amplifier by simulation.

$$= \frac{\phi_0(t-x/c)}{1 - \left[ 1 - \exp\left(-\sigma \int_0^x n_0(x') dx'\right) \right] \exp\left(-2\alpha \int_x^{t-x/c} \phi_0(t') dt'\right)} \quad (19)$$

여기서 입력 펄스는  $\phi_0(t) = \text{sech}^2(1.76t/\tau_p)$ 로 초기 밀도 반전  $n_0(x')$ 를 일정하다고 둔다. 그리고 4중경로로 증폭되므로, 출력 펄스  $\phi(x=L, t)$ 가 다시 반사하여 매질에 입사할 때는 입력 펄스로 작용한다. 이런 방법으로 4번의 증폭을 거쳐 나온 출력 펄스는 그림 9(b)와 같다. (a)는 초기 입력 펄스를 나타낸다. 그림에서 보는 바와 같이 4중경로 증폭에 의해 0.7 ps의 펄스폭 감소를 확인할 수 있는데 증폭효과가 아주 약함을 알 수 있다. (b)에서 보듯이 0.7 ps의 펄스폭 감소를 감안한다 하더라도 펄스폭이 45.9 ps로 여전히 앞에서 TPF로 측정된 44.4 ps에는 1.5 ps의 차가 있게 된다. 이러한 차이는 Nd:YLF 주공진기 안에서의 Q-switching 효과로 펄스 증폭에 의한 시간폭 감소에 해당하는 것으로 보인다.

#### IV. 결 론

본 연구에서는 단일 펄스를 이용하여 이광자형광법으로, 펄스열을 이용하여 비공선 일종 이차고조파법으로 각각 검출한 자기상관패턴을 측정함으로써 피코초의 펄스폭과 펄스형을 결정하였다. 이 두가지 방법으로 측정된 두 펄스폭간의 차이를 4중경로 증폭 시뮬레이션을 통해 함께 설명하였다.

TPF 실험결과 자기상관패턴으로부터 44.4 ps의 펄스폭과 2.86의 대비비를 얻었다. 2.86의 대비비로부터 배경과 펄스의 전체에너지 중 펄스가 지닌 에너지비가 62%임을 알 수 있었다. QSML 펄스열에서 단일 펄스를 선택하는 위치에 따라 다른 양상을 보이는 TPF 패턴은 펄스열 전반부일 때 펄스형에 가깝고 후반부로 갈수록 많은 예리한 spike들과 중앙의 substructure들을 나타내었다. 이는 펄스가 만들어지는 과정에서 펄스열 중앙의 강도가 강한 펄스부터 광 Kerr 효과에 의한 자체위상 변조(self-phase modulation)를 하여 spectral broadening 현상을 일으키기 때문이다. 이 자체위상 변조는 레이저 매질의 비선형 굴절률에 의한 것으로 FM에서 AM으로의 변환을 동반하여 substructure와 spike들을 야기하는데, 이 TPF 패턴으로부터 단일 펄스가 다소 불규칙적인 요동을 보이는 spike들과 그것들을 둘러싼 envelope로 구성되었다고 추정할 수 있다.

Q-switching과 증폭을 거치지 않은 CW mode-locked 펄스열을 이용한 SHG 자기상관실험으로부터 46.6 ps의 펄스폭을 얻었으며 fitting을 통해 이 자기상관의 펄스형이  $\text{sech}^2$ 형에 가까움을 확인했고 이 펄스폭을 지닌  $\text{sech}^2$ 형의 펄스로 시뮬레이션에 의해 다시 4중경로 증폭기를 거치게 한 후 계산된 펄스폭은 45.9 ps로 나왔다.



TPF 실험으로부터 얻은 펄스폭(44.4 ps)이 SHG 실험으로 구한 펄스폭(46.6 ps)보다 짧은 이유는 4중경로 증폭기와 Q스위칭의 증폭으로 인한 펄스폭 감소효과 때문인 것으로 보인다.

참 고 문 헌

[1] J. A. Giordmine, P. M. Rentzepis, S. L. Shapiro, K. W. Wecht, *Appl. Phys. Lett.* **11**, 216(1967).  
 [2] D. von der Linde, *IEEE J. QE-8*, 328 (1972).

[3] P. Myslinski, *Rev. Sci. Instrum.* **58**, 711 (1987).  
 [4] H. P. Weber and H. G. Danielmeyer, *Phys. Rev. A*, **2**, 2074 (1970).  
 [5] M. Maier, W. Kaiser and J. A. Giordmaine, *Phys. Rev. Lett.* **17**, 1275 (1966).  
 [6] E. P. Ippen, H. A. Haus and L. Y. Liu, *J. Opt. Soc. Am.* **B6**, 1736 (1989).  
 [7] Z. A. Yasa, N. M. Armer, *Opt. Comm.* **36**, 406 (1981).  
 [8] Tapie J, Mourou G, *Opt. Lett.* **17**, 136 (1992).

**Measurement of Picosecond Laser Pulsewidth and Pulseshape by Two-Photon Fluorescence and Noncollinear Type I Second Harmonic Generation Method**

Ki Ho Han, Jong Rak Park, Jae Yong Lee, Hyun Su Kim, Ki Young Um, Jae Oh Byun and Hong Jin Kong

*Department of Physics, Korea Advanced Institute of Science and Technology, Taejon 305-701, Korea*

(Received: April 23, 1996)

Two-Photon Fluorescence (TPF) experiment measures temporal width of an amplified short laser pulse which has passed through a four-pass Nd:glass amplifier, after selecting a single pulse from pulse train Q-switched and mode-locked (QSML) in Nd:YLF master oscillator. Determination of pulsewidth and pulseshape was also made with detection of autocorrelation trace of CW mode-locked pulse train by using noncollinear type I Second Harmonic Generation (SHG) method. The observed TPF track showed various patterns, depending on pulse-selecting position in QSML pulse train. That is, autocorrelation of a pulse extracted at front of the train displayed smooth pulse shape, while one from the trailing part of the train created many sharp spikes and substructure in the pulse. By TPF method, pulsewidth was measured to be 44.4 ps with contrast ratio of 2.86 which enabled us to find out energy fraction of a pulse to total energy, (sum of pulse and background); we obtain the value of 0.62. Pulsewidth of 46.6 ps was also acquired in another SHG experiment with the help of only mode-locked pulse train. On the other hand, we confirmed that shape of the pulse is close to  $\text{sech}^2$  one as a result of fitting the SHG autocorrelation signal with various functions. With simulation using this  $\text{sech}^2$  type of pulse, pulsewidth reduction of the beam, having passed through four-pass amplifier, was also verified.