

테라헤르츠 시간 영역 분광의 광정류시 발생하는 테라헤르츠 스펙트럼 모델링

Modeling of THz Frequency Spectrum via Optical Rectification in THz Time Domain Spectroscopy

이강희*, 이민우*, 안재욱*[†]

Kang Hee Lee*, Minwoo Yi* and Jeawook Ahn*[†]

초 록 최근 비파괴 검사를 위한 테라헤르츠 전자기파 기술에 대한 관심이 높아지고 있으며 특히 비파괴검사사에서 많은 응용이 기대된다. 테라헤르츠 시간 영역 분광법은 이러한 테라헤르츠 기술에 핵심이 되는 기술로 많은 실험이 이루어지고 있다. 본 논문에서는 테라헤르츠 시간 영역 분광에서 비선형 전광물질을 이용하는 광정류 방식을 통해 발생된 테라헤르츠 전자기파 스펙트럼이 비선형 맥스웰 방정식의 해와 실험에 의해 결정되는 흡수, 회절, 표면간섭 효과 등을 고려한 본문의 모델을 통하여 예측가능하며 실제 티타늄:사파이어 레이저 펄스를 400 μm CdTe에 조사하여 발생된 테라헤르츠파 주파수 스펙트럼의 측정 결과와 비교하여 매우 유사하다는 사실을 보여준다. 이를 통하여 본문에서 소개된 모델은 다른 전광물질을 통해 발생된 테라헤르츠 스펙트럼에도 확장되어 적용 될 수 있다.

주요용어: 테라헤르츠 시간영역 분광법, 광정류법, CdTe, 주파수 스펙트럼

Abstract In recent years, gradually increasing interest has been directed to the use of terahertz technology in nondestructive testing and non-invasive measurements, and terahertz time domain spectroscopy (THz-TDS) has become a key technology in such applications. This paper deals with the terahertz pulse generation from cadmium telluride via optical rectification process of femto-second infrared laser pulses. The measured terahertz spectrum is compared with the result of model calculation based on space-time domain nonlinear Maxwell equations for coherent frequency mixing process. The propagation process of terahertz and infra-red pulses in the material as well as the surface interference and free space diffraction effects are also considered. The experimental results are in good agreements with the calculated spectrum.

Keywords: THz-Time Domain Spectroscopy, Optical Rectification, CdTe, Frequency Spectrum

1. 서 론

테라헤르츠 전자기파는 적외선과 마이크로파 사이에 위치한 전자기파를 의미한다. 테라헤르츠 전자기파는 전기적으로나 광학적으로 발생시키거나 측정하는 것이 어려워 이 영역 내에 해당하는 기술

은 타 영역대의 전자기파에 비해 그 발전이 더디었다. 하지만 최근 광학 기술의 발전에 힘입어 큰 관심을 받고 있는 분야이다.

테라헤르츠 파가 관심을 받는 가장 큰 이유는 여러 가지 물질을 잘 투과하며 마이크로파에 비해 비교적 선명한 이미지를 얻을 수 있고 X-선과 같은

높은 주파수를 갖는 전자기파와는 다르게 조사하는 물체에 해를 주지 않기 때문이다. 때문에 약물이나 위험물에 대한 비파괴검사가 가능하고 반도체 투과 영상을 얻을 수도 있으며 공항 내부의 위험물 탐지에도 더욱 광범위하게 이용될 것이라 기대된다[1-3].

이러한 테라헤르츠 전자기파의 응용분야 중 테라헤르츠 시간영역 분광 기술은 초고속 펄스 레이저를 이용하여 발생시킨 테라헤르츠 펄스 파를 이용한 분광기술로 이미 1980년대부터 연구가 진행되어 왔다[4,5]. 최근의 테라헤르츠 시간영역 분광법에서의 테라헤르츠 펄스 파 발생은 광전자 안테나법과 광정류법이 대표적이다. 이때 광정류법을 이용하여 테라헤르츠 펄스 파를 발생시키면 광전자 안테나법에 비해 펄스의 세기는 작지만 더 넓은 주파수 영역을 가진 펄스를 만들어 낼 수 있다.

광정류법은 비선형 전광물질에 초고속 펄스 레이저를 조사하여 이차 분극 계수에 의한 비선형 광학 현상을 이용한 테라헤르츠파 발생 방법이다. 여러 비선형 전광물질에 대해 광정류법을 이용한 테라헤르츠파를 발생시키는 실험이 보고되어 있고[6,7] 이렇게 발생하는 테라헤르츠파의 주파수 영역의 스펙트럼에 대한 이론적 계산도 보고되어 있다[8].

하지만 지금까지 테라헤르츠 전자기파 발생에 대한 이론적 계산은 실험적 조건에 따라 구체적으로 수행되지 않았다. 특히 대부분의 계산이 비선형 전광물질에 초고속 펄스레이저가 충분히 잘 통과하는 경우에 대해서만 적용되었기 때문에 비선형 전광물질에 의한 흡수를 고려한 경우가 드물다. 본 논문에서는 여러 가지 물리적 효과를 적용시킴으로써 계산에 대한 실제적 모델링을 제시하여 실험적 결과와 상당히 일치하는 테라헤르츠파의 스펙트럼 계산을 수행하였다.

2. 모델링

2.1. 비선형 맥스웰 방정식의 해

광정류법을 이용한 테라헤르츠 전자기파의 발생은 difference frequency mixing이므로 주파수 대역에서 비선형 맥스웰 방정식을 풀어 발생하는 테라헤르츠 펄스 파의 주파수 스펙트럼을 계산할 수 있다[9]. 비선형 전광물질 반도체에서 초고속 펄스 레이저파가 진행한 거리를 z 라고 하면 그 지점에서 발생하는 테라헤르츠 주파수 Ω 에 해당하는 테라헤르츠 전기장 $E^{THz}(\Omega, z)$ 은 다음과 같다.

르츠 전기장 $E^{THz}(\Omega, z)$ 은 다음과 같다.

$$\frac{\partial^2}{\partial z^2} E^{THz}(\Omega, z) + \epsilon(\Omega) \frac{\Omega^2}{c^2} E^{THz}(\Omega, z) - \frac{4\pi\Omega^2}{c^2} P(\Omega, z) \quad (1)$$

여기서 c 와 $\epsilon(\Omega)$ 그리고 $P(\Omega, z)$ 는 각각 빛의 속도, 유전계수, 분극이다. 분극 $P(\Omega, z)$ 는 초고속 펄스 레이저에 의해 생성되므로 이차분극 계수 $\chi^{(2)}(\Omega)$ 와 다음의 관계를 갖는다.

$$P(\Omega, z) = \chi^{(2)}(\Omega) I(\Omega) \exp\left(\frac{i\Omega z}{v_g}\right) \quad (2)$$

v_g 와 $I(\Omega)$ 는 초고속 펄스 레이저 파의 군속도와 세기이다. 또한 초고속 펄스 레이저 파의 스펙트럼을 가우시안으로 가정하고 그 폭을 τ_{opt} 으로 나타내면 $I(\Omega) = I_0 \exp\left(-\frac{(\tau_{opt}\Omega)^2}{2}\right)$ 로 표현할 수 있다.

식 (1)에 식 (2)인 $P(\Omega, z)$ 를 대입해서 풀면 다음과 같은 결과 식을 얻는다[8].

$$E^{THz}(\Omega, z) \propto \Omega^2 \chi^{(2)} I_0 z \text{sinc}[\Delta k z / 2] \quad (3)$$

Δk 는 운동량 비정합 항으로서 $\Delta k = \pi/l_c$ 로 정의되며 결맞음 거리 l_c 는 다음과 같이 계산된다[10].

$$l_c(\lambda_{opt}, \Omega) = \frac{\pi c}{\Omega |n_o(\lambda_{opt}) - \lambda_{opt} \frac{dn_o(\lambda_{opt})}{d\lambda} - n_t(\Omega)|} \quad (4)$$

여기서 n_o 와 λ_{opt} 는 초고속 레이저 펄스 파의 굴절계수와 그 파장이고 n_t 는 테라헤르츠 파 펄스의 굴절계수이다.

2.2. 실제적 고려

우리의 모델에서는 식 (3)에 실제적 실험 상황에 맞추어 흡수, 회절, 패브리-페로 효과를 고려하였다.

2.2.1. 비선형 전광물질에서 흡수

실제 측정되는 테라헤르츠 펄스의 전기장은 식 (3)에서 구한 $E^{THz}(\Omega, z)$ 의 합으로 주어지므로 z 를 작은 간격으로 변화 시키면서 $E^{THz}(\Omega, z)$ 를 합해주면 측정되는 테라헤르츠 펄스의 전기장을 구

해 줄 수 있다.

때문에 정확한 계산을 위해서는 z 변화에 따른 식 (3)의 계산이 필요하게 되는데 본 논문의 계산에서는 초고속 펄스 레이저파의 흡수와 발생한 테라헤르츠 펄스의 흡수를 고려하여 $E^{THz}(\Omega, z)$ 를 계산하였다.

2.2.1.1. 초고속 펄스 레이저의 흡수

만일 가해주는 반도체에 초고속 펄스 레이저 파의 흡수가 많이 일어난다면 식 (3)에서 레이저의 세기 I 가 z 에 대해서 바뀌게 된다. 따라서 초고속 펄스 레이저 펄스 파에 대한 흡수계수를 α_{opt} 라고 하면 다음과 같이 쓸 수 있다.

$$I = I_0 e^{-\alpha_{opt} z} \tag{5}$$

흡수계수 α_{opt} 는 잘 알려진 선형 흡수 계수를 써서는 안 된다. 왜냐하면 테라헤르츠 전자기파를 발생시키는 초고속 펄스 레이저의 경우 비선형 효과를 고려해야 할 만큼 그 세기가 강하기 때문이다. 따라서 정확한 계산을 위해서는 레이저의 세기에 따라서 변하는 $\alpha_{opt}(I)$ 를 고려해야한다. 뿐만 아니라 펄스 레이저를 조사하는 상황이므로 주파수별로 흡수되는 정도 역시 다를 것이다. 하지만 이러한 효과를 일일이 고려하기란 상당히 까다롭다. 따라서 본 논문에서의 계산은 α_{opt} 가 세기와 주파수에 대하여 상수라고 가정한 다음 계산하고자 하는 비선형 전광물질에 초고속 펄스파의 투과율을 직접 측정함으로써 식 (5)에 fitting 시켜 구하였다.

2.2.1.2. 테라헤르츠 펄스의 흡수

흡수는 초고속 펄스 레이저뿐만 아니라 각각의 점에서 발생한 테라헤르츠 전자기파에서도 나타난다. 각 지점에서 발생한 테라헤르츠 파는 자신이 발생한 위치에서 반도체의 끝부분까지 진행하면서 약해지므로

$$E^{THz}(\Omega, z) \propto e^{-\frac{\alpha_{THz}}{2}(l-z)} \tag{6}$$

만큼 곱해주어야 한다. 이 경우의 흡수 계수 α_{THz} 는 발생하는 테라헤르츠 파의 세기가 약하므로 위의 경우와는 다르게 다른 논문을 통해 잘 알려진

선형 흡수 계수를 사용해도 무방하다.

이러한 두 가지 흡수 효과를 고려하면 각각의 점에서 발생한 테라헤르츠 전자기파는

$$E^{THz}(\Omega, z) \propto e^{-\frac{\alpha_{THz}}{2}(l-z)} \Omega^2 \chi^{(2)} I_0 e^{-\alpha_{opt} z} z \text{sinc}[\Delta kz/2] \tag{7}$$

이 된다.

2.2.2. 회절

광정류법을 이용한 테라헤르츠 전자기파의 발생은 테라헤르츠 전자기파의 파장과 비슷한 크기의 영역에서 일어나므로 회절 효과를 고려해야 한다. 참고문헌[11]에 따르면 빔이 퍼져나가는 각도 θ 에 따라 테라헤르츠 전기장은

$$E(\theta)^{THz} \propto \frac{J_1(k_{THz} a \sin \theta)}{k_{THz} a \sin \theta} \tag{8}$$

이 된다.

테라헤르츠 시간영역 분광법에서 측정되는 테라헤르츠 펄스의 전기장은 위와 같이 퍼져나가는 전기장을 렌즈나 미러를 통하여 모아주고 그 값을 측정하므로 $E = \int E(\theta) d\Omega$ 이라고 표현 할 수 있고 따라서

$$E^{THz} \propto \int_0^{\theta_{max}} \frac{J_1(k_{THz} a \sin \theta)}{k_{THz} a \sin \theta} \sin \theta d\theta \tag{9}$$

가 된다.

여기서 a 는 가해주는 레이저 빔의 반지름이고 θ_{max} 는 테라헤르츠 펄스를 모을 수 있는 최대 각도이다. 대부분의 광정류 실험에서 a 는 대략 $100 \mu m$ 에서 $300 \mu m$ 이며 θ_{max} 는 $0.2 rad$ 가 된다.

실제로 참고문헌 [11]에 따르면 식 (3)에서 $\text{sinc}[\Delta kz/2]$ 항도 각도 θ 에 따라 조금 달라지는데 보통의 테라헤르츠 시간 영역 분광 실험에선 이 변화는 무시할 만하다.

참고문헌 [12]에서는 전기장을 계산하기 위해 참고문헌 [11]에 대해 본 논문과는 다른 식으로 해석하였는데 이러한 방식은 참고문헌 [13]과 같이 θ_{max} 가 커지면서 오히려 세기가 작아지는 현상을 설명할 수 없다. 반면 본 논문에서의 모델은 이 현상에 대해 설명 가능하며 또한 잘 알려진 프라운호

퍼 회절과 비슷하므로 참고문헌 [12]에 비해 더욱 근거 있는 설명이 될 것으로 사료된다.

2.2.3. 패브리-페로 효과

발생한 테라헤르츠 전자기파는 발생하는 광전기 결정에서 반사되면서 패브리-페로 효과를 보이게 된다. 이러한 패브리-페로 효과에 대한 계산은 다음과 같다[14].

$$E^{THz} \propto \frac{1-R}{1-Re^{(-\alpha_{THz} z) e^{i(2k_{THz} L + \phi)}}} \quad (10)$$

이때 R은 반사율이며 k_{THz} 는 테라헤르츠 펄스 파의 파수이며 L은 광전기 결정의 두께이다.

3. 계산 결과 및 비교

본 논문에서 제시한 계산법에 맞추어 참고문헌 [15]에서 400 μm 의 CdTe 샘플의 시간 영역 분광 실험 데이터와 비교를 해보았다. 참고문헌 [15]에서의 실험 데이터는 초고속 티타늄:사파이어 펄스 레이저를 이용하여 400 μm CdTe에서 테라헤르츠 펄스 전자기파를 발생시킨 후 시간 영역 분광 스펙트럼에서 가장 크게 나오는 테라헤르츠 펄스를 잘라 푸리에 변환한 스펙트럼이다. 참고문헌 [15]에서는 이런 실험 데이터의 패브리-페로 효과를 고려하지 않고 계산한 반면 본 논문은 시간 영역 분광 스펙트럼 실험 데이터 자체를 바로 푸리에 변환한 결과와 비교 분석하였기 때문에 패브리-페로 효과를 고려해야한다.

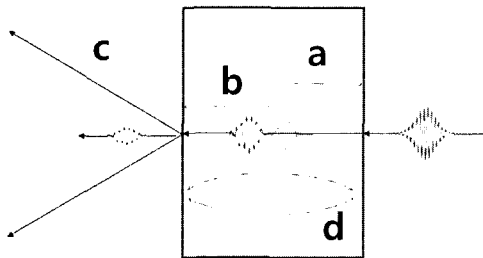


Fig. 1 Schematic diagram of the model calculation (a) optical pulse absorption in electro-optic crystal (b) THz pulse absorption in electro-optic crystal (c) diffraction and (d) Fabry-Perot effect

실험 상황에서 쓰인 초고속 펄스 레이저의 파장 대역은 CdTe의 band gap보다 높은 에너지를 갖는 파장대역이므로 이때의 선형흡수계수는 테라헤르츠 전자기파의 발생이 이루어 질 수 없을 만큼 높다. 하지만 실험상황에서 초고속 펄스 레이저의 peak power density는 1~2 GW/cm^2 정도로 매우 강하므로 포화흡수가 일어나게 되어 실제 흡수계수는 선형흡수계수보다 훨씬 낮게 된다. 계산에 쓰인 흡수계수인 α_{opt} 는 본 논문의 모델링에 따라 초고속 레이저 펄스파의 투과율을 실험적으로 측정하여 fitting을 함으로써 알아내었다. Fig. 2는 그 값과 참고문헌 [16]에서부터 구한 선형흡수 계수를 같이 나타낸 그래프이다.

초고속 펄스 레이저의 굴절계수 n_o , 발생하는 테라헤르츠 펄스파의 굴절계수 n_r , 테라헤르츠 펄스파의 흡수 계수 α_{THz} , 반사율 R은 참고문헌 [16,17]을 참고 하였다. 그 외의 상수들은 실험이 이루어진 상황을 고려하여 초고속 펄스 레이저의 폭은 90 fs, CdTe에 가해주는 초고속 펄스 레이저 빔의 반지름 a는 0.2 mm, 테라헤르츠 전자기파를 모아줄 수 있는 최대 각도 θ_{max} 는 0.17 rad으로 하여 계산하였다.

Fig. 3는 계산 결과를 순차적으로 보여주고 실험데이터와 비교하는 그림이다. (a)는 비선형 광전기 결정에 의한 흡수효과까지 고려한 그림이며 (b)는 회절 효과까지 고려한 그림이다. 참고문헌 [9]에서는 이 정도까지 고려되었다. (c)는 패브리-페로 효과까지 고려한 그림이며 (d)는 실험 결과이다. 실험 데이터와 계산 결과가 상당부분 유사함을 알 수 있다.

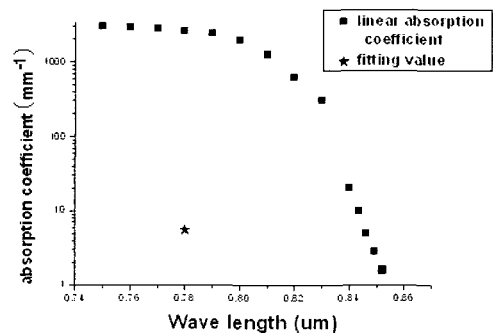


Fig. 2 Linear absorption coefficients and the fitting value from experiments. The fitting value is much low than Linear absorption coefficients due to saturable absorption

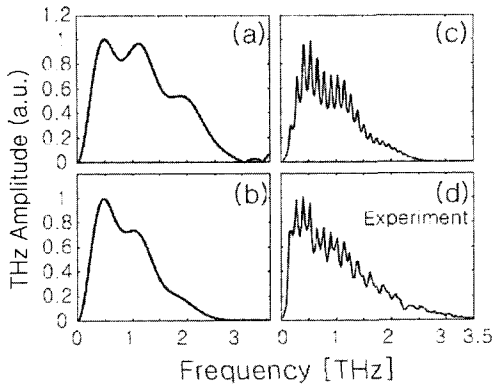


Fig. 3 Model of 400 μm CdTe case and experiment data. Calculation considering (a) absorption effect only (b) absorption and diffraction effects (c) absorption, diffraction and Fabry-Perot effects (d) experimental result

4. 결론

본 논문은 테라헤르츠 시간영역 분광을 통해 얻을 수 있는 테라헤르츠 신호를 이론적으로 계산하여 실제 실험값과 비교한 논문이다. 본 논문에서는 비선형 맥스웰 방정식으로부터 얻을 수 있는 테라헤르츠 전기장에 실제 상황에 맞는 여러 물리적 현상인 흡수, 회절, 표면간섭효과를 적용하는 계산 모델을 제시하였다. 또한 400 μm CdTe 결정에 초고속 펄스 레이저를 가해 테라헤르츠 파를 발생시킨 실험적 상황에 대해 제시한 모델을 이용하여 계산해보고 실험값과 비교하여 일치함을 보였다. 본문의 모델을 이용하면 다른 전광물질을 통해 발생된 테라헤르츠 스펙트럼에도 확장되어 적용될 것으로 예측된다.

참고문헌

[1] K. Kawase, O. Yuichi, W. Yuuki and I. Hiroyuki, "Non-destructive terahertz imaging of illicit drugs using spectral fingerprints," *Optics Express*, Vol. 11, Issue 20, pp. 2549-2554, (2003)
 [2] B. B. Hu and M. C. Nuss, "Imaging with terahertz waves," *Optics Letter*, Vol. 20, pp. 1716-1720, (1995)
 [3] 윤두협, 박민환, 유용구, 류한철, "테라헤르츠

파 기술의 현황과 전망", ETRI 전자통신동향 분석, 21권 4호, (2006)
 [4] D. H. Auston, K. P. Cheung, J. A. Valdmanis and D. A. Kleinman, "Cherenkov radiation from femtosecond optical pulses in electro-optic media," *Physical Review Letter*, Vol. 53, pp. 1555-1558, (1984)
 [5] C. Fattinger and D. Grischkowsky, "Point source terahertz optics," *Applied Physics Letter*, Vol. 53, pp. 1480-1482, (1988)
 [6] C. Winnewisser, P. Uhd Jepsen, M. Schall, V. Schyja, and H. Helm, "Electro-optic detection of THz radiation in LiTaO₃, LiNbO₃, and ZnTe," *Applied Physics Letter*, Vol. 70, pp. 3069-3071, (1997)
 [7] X. Xie, J. Xu and X.-C. Zhang, "Terahertz wave generation and detection from a CdTe crystal characterized by different excitation wavelengths," *Optics Letter*, Vol. 31, pp. 978-980, (2006)
 [8] J. Ahn, A. Efimov, R. Averitt and A. Taylor, "Terahertz waveform synthesis via optical rectification of shaped ultrafast laser pulses," *Optics Express*, Vol. 11, pp. 2486-2496, (2003)
 [9] J. P. Caumes, L. Videau, C. Rouyer and E. Freysz, "Kerr-Like nonlinearity induced via terahertz generation and the electro-optical effect in Zinc blend crystals," *Physical Review Letter*, Vol. 89, pp. 047401, (2002)
 [10] A. Nahata, A. S. Weling and T. F. Heinz, "A wideband coherent terahertz spectroscopy system using optical rectification and electro-optic sampling," *Applied Physics Letter*, Vol. 69, pp. 2321-2323, (1996)
 [11] Y. R. Shen, "Principle of nonlinear optics," A Wiley-Interscience Publication Jone Wiley & Sons, pp. 110-113, (1984)
 [12] A. Syouji, S. Saito, K. Sakai, M. Nagai, K. Tanaka, H. Ohtake, T. Bessho, T. Sugiura, T. Hirosumi and M. Yoshida, "Evaluation of a terahertz wave spectrum and construction of a terahertz wave-sensing system using a Yb-doped fiber laser," *Journal of the Optical*

- Society of America B, Vol. 24, Issue 8, pp. 2006-2012, (2007)
- [13] R. Yano, H. Gotoh, Y. Hirayama, T. Hattori and S. Miyashita, "Synthesis of terahertz electromagnetic wave pulses using amplitude-and-phase masks," *Chemical Physics*, Vol. 326 pp. 577-582, (2006)
- [14] E. Hecht, *Optics*, 4th Edition, pp. 416-421, Addison Wesley, (2002)
- [15] M. Yi, K. H. Lee and J. Ahn, "Tailoring the spectra of terahertz emission from CdTe and ZnTe electro-optic crystal," *Japanese Journal of Applied Physics*, Vol. 47, No. 1, pp. 202-204, (2008)
- [16] E. D. Palik, *Handbook of Optical Constants of Solids*, pp. 409-443, Academic Press, (1985)
- [17] T. Hattori, Y. Homma and A. Mitsuishi, "Index of refraction of ZnS, ZnSe, ZnTe, CdS, CdSe, and CdTe in the Far Infrared," *Optics Communications*, Vol. 7, No. 3, pp. 229-232, (1973)