

Measurement of the Radiative Quantum Efficiency of a Solid-State Laser Using Photoacoustic Spectroscopy

Byung-Tai Kim[†]

Department of Laser & Optical Information Engineering, Cheongju University, Cheongju 360-763, Korea

(Received February 25, 2015; Revised manuscript March 24, 2015; Accepted March 25, 2015)

The radiative quantum efficiency of a solid-state laser was measured by photoacoustic spectroscopy with a PZT as the detector. The radiative quantum efficiency was about 58.3 % for a laser-diode pumped Nd:S-VAP laser under lasing conditions. The measurement of radiative quantum efficiency was presented as an effective method for the optimization of a laser resonator.

Keywords: Photoacoustic spectroscopy, Radiative quantum efficiency, Diode pumped solid-state laser

OCIS codes: (110.5125) Photoacoustics; (260.2160) Energy transfer; (270.3430) Laser theory; (140.3480) Laser, diode-pumped

광음향 분광을 이용한 고체레이저의 방사양자효율 측정

김병태[†]

청주대학교 이공대학 레이저광정보공학과
Ⓣ 360-763 충북 청주시 청원구 대성로 298

(2015년 2월 25일 받음, 2015년 3월 24일 수정본 받음, 2015년 3월 25일 게재 확정)

PZT를 검출기로 사용하는 광음향 분광 측정법으로 고체레이저의 방사양자효율을 측정하였다. 반도체레이저 여기 Nd:S-VAP 레이저에서 레이저가 발진하고 있을 때 약 58.3 %의 양자효율을 얻었다. 방사양자효율의 측정은 레이저 공진기의 최적화를 가능하게 하는 한 방법임을 제시하였다.

Keywords: 광음향 분광, 방사양자효율, 반도체레이저 여기 고체레이저

OCIS codes: (110.5125) Photoacoustics; (260.2160) Energy transfer; (270.3430) Laser theory; (140.3480) Laser, diode-pumped

I. 서 론

광음향 분광은 물질의 비방사천이를 다루며, 물질의 분광 측정 및 표면과 내부 특성 측정에 응용되는 계측 기술이다.^[1] 광음향 분광 계측의 장점은 광음향 신호가 물질 내에 축적되는 열에 의한 것으로 물질 표면의 산란이나 반사되는 빛의 영향을 받지 않는다는 것이다. 이런 이유로 광음향 분광은 물질의 흡수스펙트럼을 얻는 것이 가능하여 물질 내에서 방사와 비방사천이 과정 사이의 관계를 알 수 있게 한다. 광음향 분광학의 흡수스펙트럼 측정은 고체, 액체 및 기체의 분광학적 연구 등에 걸쳐 응용 범위가 넓다. 광음향 신호를 검출하는 방법에는 크게 마이크로폰(microphone)법과 트랜스듀서(transducer)법으로 나눌 수 있다.^[2] 트랜스듀서법은 감도가 좋고, 배치가 용이하며 응답속도가 빠른 PZT를 이용하여 고체 내부에서의 에너지 흡수를 측정할 수 있으며 진공

중에서도 측정이 가능하다는 장점을 갖고 있다. 그러나 트랜스듀서법은 신호가 물질의 형태와 트랜스듀서 배치에 의존하기 때문에 정량적인 해석이 곤란하고, 여기광의 산란 등에 의한 영향을 받기 쉬운 등 문제점도 내재해 있다. PZT 등의 압전소자를 이용하는 직접적인 방법은 물질 내에서 발생한 열에 의해 왜곡되는 것을 물질에 밀착시킨 검출기로 측정하는 것이다. 이를 이용하면 레이저 공진기 내에서의 에너지 관계도 규명할 수 있게 된다. 따라서 공진조건에 따른 반도체레이저 여기 고체레이저에서 공진기 내부의 에너지 변환 관계를 이해하고, 양자효율을 측정할 수 있게 된다. 또 이와 같이 에너지 관계를 이용하여 레이저 공진기를 최적화시킬 수도 있다.

상준위로 여기된 원자가 하준위로 천이 될 때는 방사천이, 광화학적 반응, 내부에서의 에너지 전이, 그리고 비방사천이가 발생하게 되는데 이중 비방사천이의 해석에 광음향 분

[†]E-mail: btkim@cju.ac.kr

광학이 이용된다. 광음향 발생은 일반적으로 광음향 발생 효율 즉, 빛에너지 흡수에 대한 음향에너지가 발생하는 효율을 가지며, 매질에서 빛에너지 흡수에 의한 열탄성 팽창은 광음향 분광학에서 사용되는 가장 기본적인 절차이다.^[8]

광음향 분광학의 에너지 변환 과정은 광→열→음→전기 신호 순서로 된다. 이와 같은 변환 과정 중에서 열은 확산하여 전달되기 때문에 열→음의 변환 과정은 다른 과정과 비교하면 느리지만 가장 중요한 과정이고 그만큼 복잡하다. 측정에서는 물질에서 발생한 열을 검출하는 것이 필요하다. 그러기 위해서 음→전기 변환의 검출 방법을 사용한다. 광조사에 의해서 물질이 흡수한 에너지가 열로 변환하는 경우 광음향 신호는 흡수스펙트럼에 따라 대응하게 된다. 발광재료의 경우 일반적으로 루미네스센스와 광음향 신호는 상보적인 관계가 성립한다. 양자를 비교하는 과정에서 비방사전이 혹은 레이저 출력효율을 조사하는 것이 가능하다.

본 논문에서는 Nd:S-VAP^[9-11]를 레이저 매질로 하는 레이저 공진기에서 에너지의 변환과정을 PZT를 이용하여 측정하고, 이를 분석하여 계산한 방사양자효율에 대해서 기술한다.

II. 본 론

2.1. 광음향 계측

고체에 광에너지를 조사시키면 고체는 흡수계수에 비례하여 광에너지를 흡수 확산한다. 고체에 흡수된 빛에너지는 열로 변환되고, 고체의 온도를 올리게 된다. 입사광이 초퍼에 의해서 제어되어 주기성을 갖게 되고, 이 과정에 의해 고체 내에 주기적인 응력변화(음파)가 발생한다. 이것을 고체에 밀착시킨 감도가 예민한 PZT로 검출하고, lock-in amp. 등을 이용하여 신호처리하는 것이 광음향 계측의 기본 원리이다. 일반적으로 광음향 분광학에서는 파장가변 레이저와 섬광등을 광원으로 사용하고 광을 변조시켜 주기적으로 에너지를 광음향 셀이나 고체 등에 입사시킨다. 주기적인 열에 의한 광음향 신호를 PZT나 마이크로폰, 하이드로폰 등의 검출기를 이용하여 측정한다. 측정된 음향신호를 lock-in amp., boxcar averager 및 오실로스코프 등의 광음향 신호 처리장치로 보내 기록한다. 광음향 분광학은 광 파장의 변화에 따른 출력을 기록함으로써 물질의 스펙트럼을 구할 수 있다. 이 방법은 분말, 기체, 액체 및 고체^[7,12]의 분광측정 그리고 매질의 표면과 내부 흡수 특성 등에 널리 응용할 수 있다. 매질의 표면 반사도가 크지 않을 경우 광음향 분광학은 그 물질 자체의 광음향 정보를 제공하며, 종래의 흡수나 반사 기술로는 해석할 수 없었던 절연체, 반도체 및 금속분야에 까지 연구를 가능케 하였다. 특히 절연체의 경우 광음향 스펙트럼은 물질의 흡수영역에 대한 직접적인 정보를 갖는다.

광음향 계측 방법 중 트랜스듀서법은 PZT, ZnO 및 TiBaO₃ 등의 검출 소자를 사용한다. 에너지 변환 과정을 측정하고자 하는 매질에 검출소자를 고정시키는 방법과 트랜스듀서 위에 물질을 접착하는 방법을 이용할 수 있다. 여기서 가장 주의해야 할 것은 트랜스듀서에 여기광이 조사되지 않도록 하

는 것이다. 매질에 조사되는 여기광이 주기적으로 변조되어 진행하며 물질에 입사되면 에너지를 흡수하여 열이 발생하고 팽창하게 되어 열에 의한 압력과 응력이 생기게 된다. 이 응력에 의해 발생된 광음향 신호는 PZT에서 전기적 신호로 변환되고, 매질 내에서의 음향신호는 지수함수적으로 감소하게 된다. 매질에서의 음향신호 $S^{(1)}$ 는

$$S = CN_i \sigma l P_i (1 - \eta_Q) S_M \quad (1)$$

로 나타낼 수 있다. 여기서 C 는 PZT의 매개변수이고, 하준위 E_i 내에서 흡수하는 분자들의 밀도 N_i , 흡수단면적 σ 와 광경로 길이 l , 조사된 레이저 파워 P_i 및 계측기의 감도 S_M 에 비례한다. 또 음향신호의 강도는 양자효율 η_Q 의 증가에 따라 감소하게 된다.

2.2. 레이저 공진기 내부에서의 에너지 변환

반도체레이저 여기 Nd:S-VAP 레이저 공진기 내부에서의 에너지 변환 관계를 해석하기 위하여 Fig. 1과 같은 레이저 공진기 구성을 이용하였다.^[13] 공진기는 안정된 형태로 808 nm에서 무반사, 1064 nm에서 전반사하는 이색성 코팅을 한 10×10×2¹ mm인 평면거울과 곡률반경이 120 mm인 출력거울이 반구면(hemispherical) 형태를 취하도록 하였다. 레이저 매질은 Nd³⁺이 0.38 at.% 첨가되고 3×3×4¹ mm의 크기를 갖는 것이다.

전술한 일반적인 광음향 분광 측정 실험을 약간 변형시켜 PZT를 사용하고, 직접 광음향 신호를 검출할 수 있는 장치를 Fig. 2와 같이 구성하였다. 그림에서 레이저 매질이 음영으로 그려진 것은 여기원인 반도체레이저가 레이저 매질의 단면에서 집속되는 관계로 흰부분처럼 여기광이 매질 내를 빠져 나가면서 흡수됨을 의미한다. 여기광원으로 10 Hz로 반복동작하는 반도체레이저는 집속광학계를 통하여 Nd:S-VAP 매질 단면에 직접 조사하였다. 흡수된 광에 의해 매질 내부에서 열이 발생하여 열팽창이 일어나고, 이 열팽창에 의해 발생된 광음향 신호를 민감하고 응답속도가 빠른 PZT로 검출한다. 여기에 사용된 PZT는 8×8×1¹ mm 크기로 초음파 검

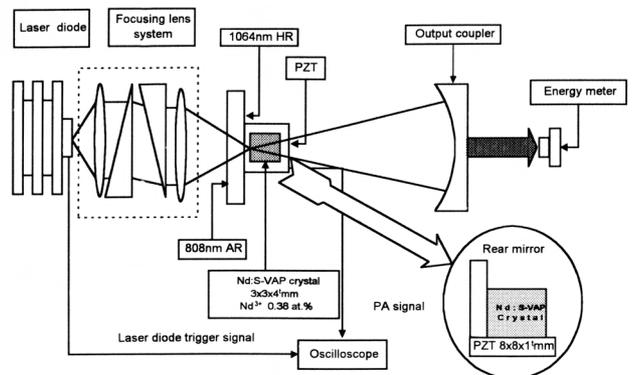


FIG. 1. Schematic diagram of laser-diode end-pumped Nd:S-VAP laser for the measurement of photoacoustic signal.

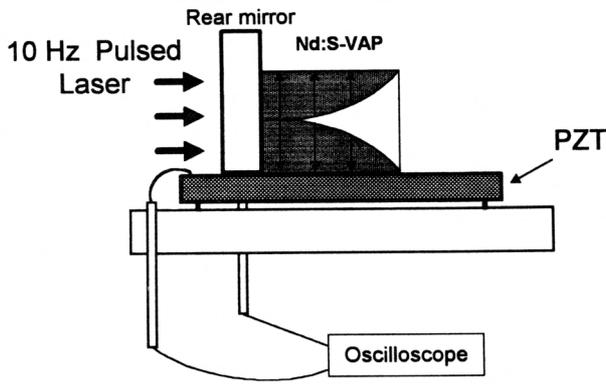


FIG. 2. Detailed experimental setup of the laser head with a Nd:S-VAP, and a PZT in a circle of Fig. 1.

출기에서 사용하는 것이다. 매질 내부에서의 열 침투는 거리의 지수함수로 감소하게 된다. PZT에서 생성된 전기적 광음향 신호는 오실로스코프로 형상화하여 측정한다.

여기원으로 사용한 반도체레이저는 GaAlAs계로 2 W(1 J/500 ms)의 정격 출력을 낼 수 있다. PZT와 Nd:S-VAP 매질을 부착할 때에는 PZT에 압력을 주지 않는 범위 내에서 살짝 접촉시켰고, PZT에서 검출된 광음향 신호를 오실로스코프에서 처리하기 위해 반도체레이저의 트리거 신호를 사용하였다. 레이저 공진기에 사용한 반사거울과 출력거울은 1.06 μm에 대해 코팅되어 있기 때문에 Nd³⁺이 첨가된 여타의 레이저 매질 에너지준위와 같이 809 nm로 여기했을 때 1065 nm로 천이하는 것에 대해서만 고려하였다. PZT 위에 놓여 있는 반사거울의 여기광 흡수에 의한 영향은, 808 nm 무반사 코팅으로, 미미하다고 판단되어 고려하지 않았다.

검출기로서 PZT의 사용 가능성에 대해서도 확인하였다. 입력 에너지를 변화시키며 조사하였을 때 PZT에서 검출된 광음향 신호의 강도가 선형성을 갖는 것이 확인되었고, 온도 변화에 따른 광음향 신호의 선형성 또한 확인되어 검출기로 충분히 사용할 수 있게 되었다.

여기원의 구동조건이 펄스폭 700 μs, 구동온도 28.5 °C 인 경우 공진조건이 성립하지 않았을 때 공진기 내에서의 기본적인 에너지 흐름을 보면, 집속광학계를 지난후의 에너지 1,123 μJ을 100 %로 볼 때 Nd:S-VAP 매질을 통과한 에너지는 전체 에너지의 3.5 % 정도인 39 μJ이 투과되었고, 반사거울에서 손실을 무시한다면 전체 에너지 E_i에서 투과된 에너지 E_t를 뺀 나머지 1,084 μJ의 에너지가 매질 내에 흡수되었다고 볼 수 있다. 흡수된 에너지 E_a는 PZT에서 검출된 광음향 신호의 크기에 비례하게 된다. 흡수된 에너지와 검출된 광음향 신호의 정량적인 환산은 공진기 내부의 에너지 변환 관계를 해석하는데 가장 기본적인 양이 된다. 여기서 공진조건이란 광축이 정렬되어 레이저가 발진할 수 있는 상태를 의미한다.

Figure 3은 공진조건이 성립되었을 때 공진기 내부에서의 에너지 상태를 나타낸다. 공진기가 형성되면 1065 nm의 레

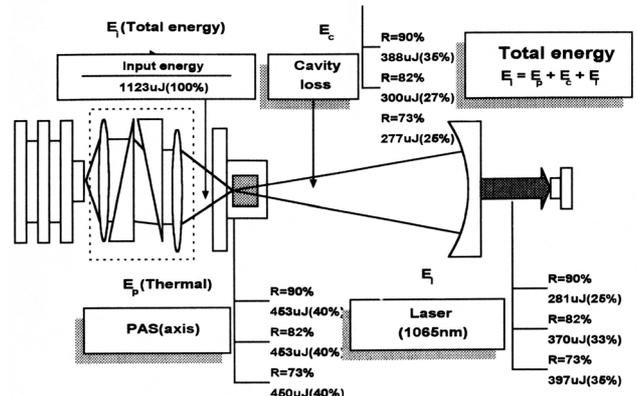


FIG. 3. Energy relations in a resonator with the reflectances of output coupler such as 73 %, 82 %, and 90 % under lasing condition.

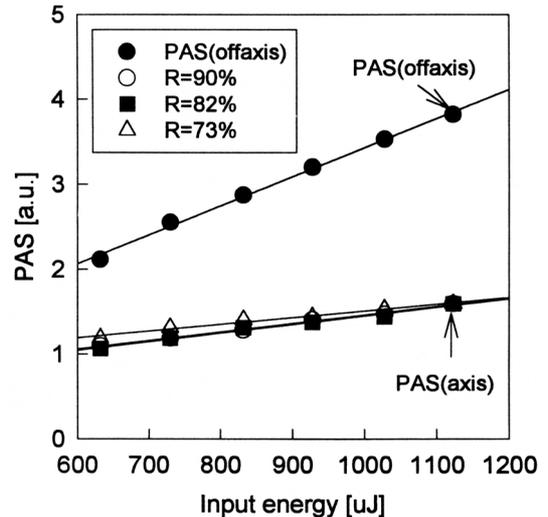


FIG. 4. Photoacoustic signal(PAS) intensities as a function of input energy under nonlasing(off axis), and lasing(axis) condition.

이저광이 방출하게 되고, 공진기 내부에는 손실도 발생하게 된다. PZT에서 검출된 광음향 신호의 강도는 공진조건이 성립되지 않았을 때 검출된 광음향 신호의 강도에 비해 상대적으로 줄어들게 된다. 이렇게 줄어든 신호의 강도는 다른 파장 영역에서는 발진 조건이 성립하지 않기 때문에 1065 nm로 발진되는 양으로만 간주했다. 출력거울의 반사율을 73 %, 82 % 및 90 %로 바꾸어 가며 측정했을 때 매질에서 흡수된 에너지는 출력거울의 반사율에 관계없이 거의 같았다. 그러나 공진기 내부의 손실 에너지는 출력거울의 반사율이 커질수록 증가하고, 출력거울의 반사율이 낮아질수록 발진되는 레이저 에너지가 증가함을 알 수 있었다. 이 결과는 반도체 레이저 여기 Nd:S-VAP 레이저의 정상발진 특성과 일치한다.^[13] 이와 같은 과정으로 측정된 광음향 신호 관계를 Fig. 4에 나타낸다. 그림에 표기된 광음향 신호의 크기는 오실로스코프에서 잡은 신호의 최대 진폭으로 나타낸 것이다. 그림의

위쪽이 공진조건이 성립하지 않았을 경우에 측정된 광음향 신호의 크기이고, 아래쪽이 공진조건이 성립되었을 때 검출된 광음향 신호의 크기를 나타낸다. 측정된 두 광음향 신호 사이의 차이는 1065 nm로 변환된 에너지로 분석된다. 그중의 일부가 공진조건에 따라 출력거울을 통해 레이저광으로 발진된 것이다. 이것은 식 (1)에서 표현된 것처럼 양자효율의 증가에 따라 광음향 신호가 감소되는 것을 보여주고 있다. 그림에서 보는 것처럼 공진조건이 성립되었을 때, 출력거울의 반사율에 관계없이 레이저매질에서 흡수되는 에너지의 양은 거의 같다는 것도 알 수 있다.

2.3. 방사양자효율

여기에 의해 매질에서 흡수된 광양자들의 일부는 상준위에서 유효한 광양자를 만들지 못한다. 일부는 상준위를 포함한 다른 에너지 준위로 천이하는 반면 일부는 비방사천이에 의해 바닥준위로 천이하게 된다. 일반적으로 양자효율은 상준위에서 유효하게 작용하는 광양자수와 흡수된 여기 광양자수의 비 즉, 방출되는 광양자수와 입사된 광양자수의 비를 의미한다.^[14-15]

레이저가 발진하고 있는 상태에서 반도체레이저 여기 Nd:S-VAP 레이저의 양자효율을 다음과 같이 정의하였다. 809 nm의 광원으로 여기했을 때 흡수된 에너지 E_a 에 대해서 1065 nm로 발진되는 에너지 ($E_c - E_l + E_l$)의 비가 방사양자효율 η_Q 인 것이다.

$$\eta_Q = \frac{(E_c - E_l) + E_l}{E_a} \quad (2)$$

여기서 E_c 는 Fig. 3과 같이 공진조건이 성립되었을 때 공진기 내에서 발생한 손실 에너지, E_l 는 공진조건이 성립되지 않았을 때 레이저 매질을 투과한 에너지, 그리고 E_l 은 레이저로 발진된 나오는 에너지를 의미한다. 출력거울의 반사율 73 %, 82 % 및 90 %에 대해서 측정된 Fig. 3의 결과와 공진조건이 성립되지 않았을 때의 측정결과를 식 (2)로 계산한 방사양자효율은 각각 58.5 %, 58.2 % 및 58.2 %로 평균 58.3 %를 나타내었다. 이 때 반도체레이저의 구동조건은, 레이저 매질의 최대 흡수파장에 맞추기 위하여, 펄스폭 700 μ s, 구동전류 3.5 A 에 구동온도는 28.5 $^{\circ}$ C로 하였다. 위의 정의에 의해서 계산한 양자효율을 Fig. 5에 나타낸다. 레이저 매질의 흡수파장 영역과 여기원의 발진파장 영역이 일치되어감에 따라 양자효율도 증가하고 있음을 알 수 있다. Nd:S-VAP 결정의 흡수파장 영역과 여기원의 발진파장 영역이 일치하는 곳에서는 출력거울의 반사율에 관계없이 약 58.3 %의 방사양자효율을 나타내었고, 그 관계를 Fig. 6에서 확인 할 수 있다. 일반적으로, 양자결손(quantum defect)을 고려한, GaAlAs 계 반도체레이저를 여기원으로 사용하고 Nd^{3+} 이 첨가된 매질을 사용하는 고체레이저의 양자효율이 약 75 % 정도^[15]로 알려진 것에 비하면 약 17 %나 작게 나온 결과이다. 이는 이

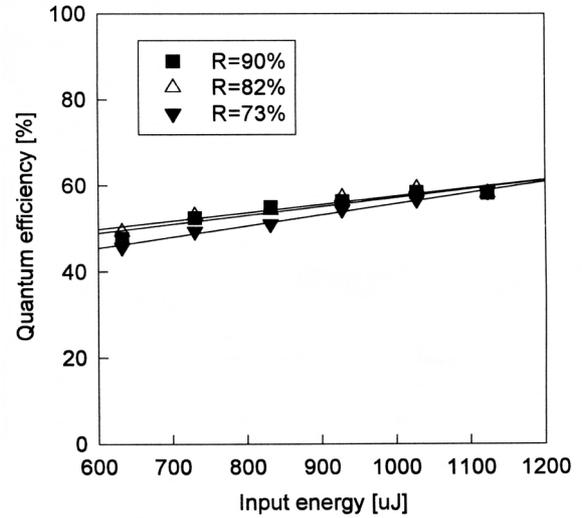


FIG. 5. Radiative quantum efficiency as a function of input energy.

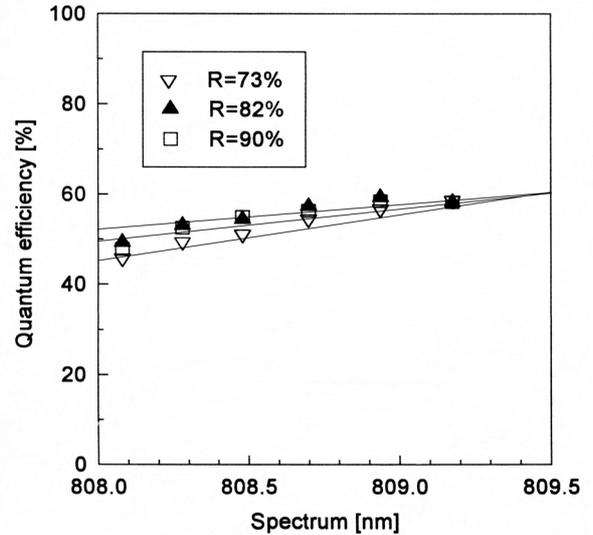


FIG. 6. Radiative quantum efficiency as a function of spectrum of laser-diode as a pumping source.

론적 계산 결과와 실제 레이저가 발진하고 있는 과정에서 이론으로 계산할 수 없었던 공진기의 손실 및 에너지 준위간의 천이 손실 등이 포함된 측정 결과의 차이라고 판단된다. 이상과 같이 레이저 공진기에서 에너지 변환 관계를 해석할 수 있다면 방사양자효율 측정은 레이저 공진기의 최적화^[13]를 가능하게 하는 효과적인 방법임을 보여주었다.

III. 결 론

반도체레이저 여기 Nd:S-VAP 레이저에서 방사양자효율을 광음향 분광법을 이용하여 측정하였다. 매질 내에서 광음향 방법으로 비방사천이를 해석하기 위해서 PZT를 광음향 신호 검출기로 사용하였다. 검출된 광음향 신호로 레이저 공진기

내부의 에너지 변환 관계를 해석할 수 있었고, 이를 이용하여 레이저가 발진되고 있을 때의 양자효율을 구했다. 반도체 레이저 여기 Nd:S-VAP 레이저의 방사양자효율은 약 58.3 %를 나타냈고, 공진기 내부에서의 손실 에너지와 발진 에너지의 관계를 이용하여 레이저 출력 및 효율의 최대화를 위한 출력거울의 최적 반사율 결정 즉, 공진기의 최적화를 가능하게 하는 효과적인 방법임을 제시하였다.

감사의 글

이 논문은 2014학년도에 청주대학교 산업과학연구소가 지원한 학술연구조성비(특별연구과제)에 의해 연구되었습니다.

References

1. W. Demtroder, *Laser Spectroscopy* (Springer-Verlag, 1982).
2. T. Kouda and H. Kukimoto, *Measurement Techniques on Optical Properties of Matter (光物性測定技術)* (University of Tokyo Press, 1988).
3. A. Rosencwaig and A. Gersho, "Theory of the photoacoustic effect with solids," *J. Appl. Phys.* **47**, 64-69 (1976).
4. M. A. Afromowitz, P.-S. Yeh, and S. Yee, "Photoacoustic measurements of spatially varying optical absorption in solids: A theoretical treatment," *J. Appl. Phys.* **48**, 209-211 (1977).
5. M. F. Cox and G. N. Coleman, "Measurement of single-pulse photoacoustic signals," *Anal. Chem.* **53**, 2034-2036 (1981).
6. M. Villagrán-Muniz and A. Zaragoza-Lemus, "Photoacoustic measurement of intracavity energy in pulsed lasers," *Rev. Sci. Instrum.* **70**, 1 (1999).
7. F. B. G. Astrath, N. G. C. Astrath, J. Shen, J. Zhou, and M. L. Baesso, "A composite photothermal technique for the measurement of thermal properties of solids," *J. Appl. Phys.* **104**, 066101 (2008).
8. X. X. Zhang, P. Hong, G. B. Loutts, J. Lefaucheur, M. Bass, and B. H. T. Chai, "Efficient laser performance of Nd³⁺:Sr₅(PO₄)₃F at 1.059 and 1.328 μm ," *Appl. Phys. Lett.* **64**, 3205 (1994).
9. D. K. Sardar and P. D. Bella, "Optical characterization of Nd³⁺:Sr₅(VO₄)₃F," *J. Appl. Phys.* **76**, 5900-5904 (1994).
10. R. E. Peale, P. L. Summers, H. Weidner, B. H. T. Chai, and C. A. Morrison, "Site-selective spectroscopy and crystal-field analysis for Nd³⁺ in strontium fluorovanadate," *J. Appl. Phys.* **77**, 270-276 (1995).
11. P. Hong, X. X. Zhang, R. E. Peale, H. Weidner, M. Bass, and B. H. T. Chai, "Spectroscopic characteristics of Nd³⁺-doped strontium fluorovanadate and their relationship to laser performance," *J. Appl. Phys.* **77**, 294-300 (1995).
12. M. Grinberg, A. Śliwiński, and A. Sikorska, "Nonradiative processes in transition ions in crystals," *Rev. Sci. Instrum.* **74**, 312 (2003).
13. B. T. Kim and T. S. Kim, "Pulsed laser-diode-pumped Nd:S-VAP laser with a low threshold for use as a miniature laser," *J. Korean Phys. Soc.* **34**, 185 (1999).
14. J. A. Caird, A. J. Ramponi, and P. R. Staver, "Quantum efficiency and excited-state relaxation dynamics in neodymium-doped phosphate laser glasses," *J. Opt. Soc. Am. B* **8**, 1391-1403 (1991).
15. K. Naito, Ph. D. Thesis, Osaka University, Osaka, Japan (1993).