

준위상 정합의 다양한 비선형 단결정 구조를 이용한 테라헤르츠파 발생연구

이규섭 · 고도경 · 유난이*

광주과학기술원

I. 서 론

테라헤르츠파(Terahertz wave, T-ray)는 주파수가 약 10^{12} Hz (= 1 THz) 정도로, 0.1~10 THz 대의 주파수대를 말한다. 이 영역은 밀리미터파(millimeter wave)와 원적외선(far infrared) 대 사이에 위치한다. 그에 따라, 각각의 전자파 및 광파 연구가 T-ray 연구에서 그 연결고리가 만들어지며, 두 가지 상이한 기술들이 서로 접목되어 새로운 연구 분야로 자리잡고 있다. 예를 들어, T-ray 발생은 광학 결정에서 비선형 광학효과를 이용해 발생을 시키며, 그 측정은 광전도 안테나에서 전기적 현상을 이용해 이루어진다. 또한, 이 반대과정 및 다양한 방법으로 T-ray 발생 및 검출이 이루어지고 있다. 뿐만 아니라, 반도체 소자를 이용한 T-ray 발생 및 광 파이버 기반 wave guide를 이용해 T-ray 측정을 통해, 초소형의 T-ray 광원 개발 및 이를 이용한 체내 내시경 및 *in-vivo* 영상기술 등이 개발되고 있다. 이처럼 T-ray 연구는 다양한 분야의 기술을 이용한 발생 및 응용 기술 개발이 활발히 이루어지고 있다.

본 원고에서는, 다양한 발생 및 검출 기법 중 광파 및 광학 결정을 이용한 방법을 기술하고자 한다. 근적외선 레이저의 극초단 펄스가 비선형 광학매질에 입사하면, 매질 내 짧은 시간 동안 이차 비선형 분극이 발생하며, 분극의 시간 변화에 의해 T-ray 영역의 전자기파가 발생하게 된다. 근적외선 영역의 빠르게 진동하는 파가 광학매질의 광정류 작용에 의해 상대적으로 느리게 진동하는 원적외선 영역의 파로 변하는 현상으로 해석된다^[1]. 그러나 최근에는 극초단 펄스 레이저의 특성을 이용하는 차주파수 발생(Difference Frequency Generation; DFG)이 이용된다. 스펙트럼 선포가 매우 넓은 펨토초 펄스를 이용해, 단일 펄스 내 주파수 성분들끼리의 비선형 상호작용이 일어나며, 특히 두 파의 주파수 차이만큼의

새로운 파가 T-ray 영역에서 발생된다^[2].

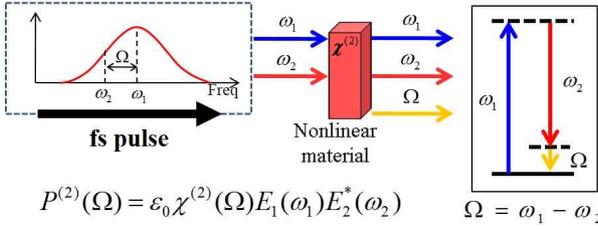
위 방법에서는 매질의 굴절률 및 흡수율이 매우 중요하며, 펌프 광원과 발생한 T-ray의 결맞음(phase-matching)을 이용해 높은 변환 효율 및 강한 세기의 파를 얻을 수 있다. 그에 따라, 본 연구진은 광학 매질의 T-ray 영역에서 광학계수를 분석하고, 가장 우수한 광학매질을 선택하였다. 또한, 다양한 형태의 구조를 이용해 여러 형태의 T-ray 발생 연구를 진행 중이다. 특히, 준위상정합(Quasi-Phase-Matching; QPM) 구조의 광소자를 이용해 주파수 가변이 쉬운 좁은 선포의 T-ray 발생 기법과 그 특징을 소개하고자 한다.

II. 본 론

2-1 준위상정합 비선형 광학단결정을 이용한 좁은 선포의 T-ray 발생 및 검출

광파를 이용한 T-ray 발생으로는, 비선형 광학 결정을 이용한 주파수 변환기법이 가장 많이 활용된다. 두 대의 연속 발진 레이저의 차주파수 발생을 통해, 단일 주파수의 연속 파 T-ray를 발생시킬 수 있다. 또한, 연속발진 레이저와 파장이 매우 인접한 나노초 및 수백 피코초의 펄스시간(pulse duration)이 긴 레이저를 이용한 T-ray 발생 기법도 있다^{[3][4]}. 본 발표에서는 시간상으로 짧고 스펙트럼 선포가 넓은 한 대의 극초단 펨토초 펄스 레이저를 이용해, 하나의 펄스 내의 주파수 성분끼리의 상호작용을 통해 침투 출력이 큰 넓은 선포의 T-ray를 발생시키는 기법에 대해 다루고자 한다. [그림 1]에서와 같이, 선포가 넓은 펨토초 펄스의 두 성분(ω_1, ω_2)에 의해 차주파수($\Omega = \omega_1 - \omega_2$) 만큼에 해당하는 새로운 파가 광학 물질 내에서 발생한다. 새로운 파의 광원은 매질의 이차

본 연구는 한국연구재단의(KRF) 이공계분야 기초연구사업(2013R-1A1A3007080)과 2015년 광주과학기술원의 재원인 첨단산업기술기초연구사업 및 극초단광량자빔응용 분광센서기술연구 사업의 공동으로 지원되었습니다.



[그림 1] 극초단 펄스파를 이용한 차주파수 발생원리

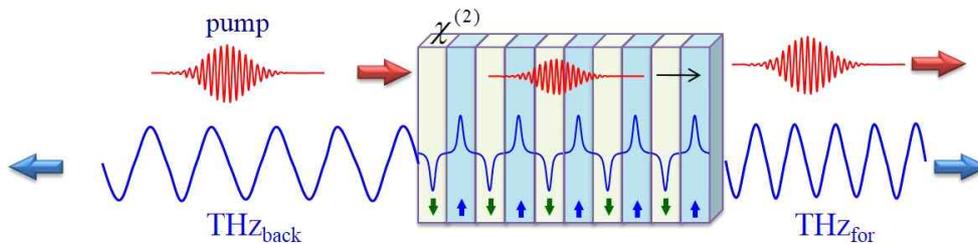
비선형 분극이며, $P^{(2)}(\Omega)$ 로 [그림 1]의 식처럼 기술된다. 따라서 하나의 펄스 내의 다양한 주파수 선택에 의해 만들어지는 테라헤르츠파의 주파수는 펄스 파장의 선포에 의해 결정되어진다. 기본적으로 펄스 광원의 선포가 넓을수록 광대역의 T-ray가 발생된다. 그러나 넓은 선포를 가진 펄스파일수록, 광학 물질 내의 분산이 커지고, 시간상 펄스길이(time duration)가 짧아지므로 테라헤르츠파의 발생에 제한적이다. 또한, 비선형 광학 매질은 일반적으로 강한 분산성을 지니므로, 광파와 테라헤르츠파 사이의 위상 정합(phase-matching)이 이뤄질 수 없고, 낮은 출력의 테라헤르츠파를 발생시킨다. 이에 따라, 비선형 광학 물질의 구조를 임의로 변경하여 테라헤르츠파의 출력을 높이는 방법이 이용된다.

강 유전체의 자발 분극(spontaneous polarization)을 주기적으로 반전을 시켜 펄스 광의 위상과 발생된 파의 위상을 임의적으로 맞추는 기법을 준위상정합(Quasi-Phase-Matching; QPM)이라 한다. 준위상정합은 간단한 광 얼라인먼트에서도 높은 효율을 가지는 주파수 변환에 널리 이용되는 방식이다. 예를 들어, 이차조화파 발생(Second Harmonic Generation; SHG)을 통해 근적외선을 가시광선으로 변환하여 디스플레이용 광원으로 발생하는 기법이 널리 이용된다. T-ray 영역에서는 가시광선 발생에 쓰이는 QPM 소자보다 주기가 긴 구조를 이용하게 된다. 이는 발생되는 테라헤르츠파의 파장(1 THz = 300 μm)

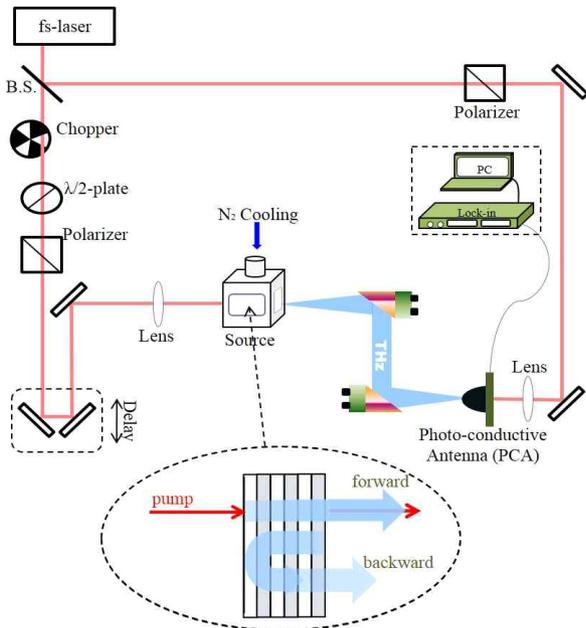
이 길어 위상정합에 필요한 매질의 폭이 길어지기 때문이다. 매질의 광 특성에 따라 다르지만, 일반적으로 약 수십 μm의 분극반전 주기를 이용한다. [그림 2]와 같이, 극초단 펄스파의 차주파수 발생을 통해 테라헤르츠파가 발생되며, 준위상정합 조건에 의해 펄스파의 진행방향에 따라 두 반대방향으로(forward 및 backward) 파장이 다른 테라헤르츠파가 발견된다. 테라헤르츠파의 위상은 매질의 주기적인 구조에 따라 결정된다. 따라서 분극 반전된 도메인의 수와 일치하며, 길이에 상응하는 multi-cycle의 좁은 선포의 T-ray가 발견된다. QPM 주기에 비례하여 테라헤르츠파의 중심 파장이 길어지며, 도메인의 수에 반비례하여 파장 선포가 결정된다. 중심 주파수는 QPM 조건에 따라 아래의 식 (1)과 같이 결정된다. c 는 진공에서의 광속, Λ 는 QPM 주기, n_{opt} 와 n_{THz} 는 광파 및 테라헤르츠파 영역에서의 매질의 굴절률이다. 분모의 부호는 테라헤르츠파의 진행방향에 따라 다르다. (-)는 forward, (+)는 backward T-ray에 해당한다.

$$\nu_{THz} = \frac{c}{\Lambda(n_{opt} \mp n_{THz})} \quad (1)$$

실험은 반복률 76 MHz, 중심파장 798 nm, 펄스폭 190 fs, 평균 출력 1 W의 Ti:sapphire 레이저(Maitai)를 사용하였다. [그림 3]은 주파수 변환을 통한 T-ray 발생 및 광전도 안테나를 이용한 펄스-프로브 방식의 검출 시스템이다. T-ray 발생 광소자로는 길이는 2 mm, 분극반전의 주기는 60 μm인 1 mol% MgO-doped periodically poled stoichiometric lithium tantalate (MgO: PPSLT) 결정을 이용하였다. 일반적으로 T-ray 발생에 사용되는 광 결정소자는 THz 영역에서 transverse-optical phonon 모드가 여기되며, 이에 따른 흡수 특성을 보인다. 따라서 주기는 발생된 T-ray의 매질 내 재흡수가 적은 주파수대를 계



[그림 2] 주기적으로 분극 반전된 강 유전체를 이용한 준위상정합 기반의 T-ray 발생

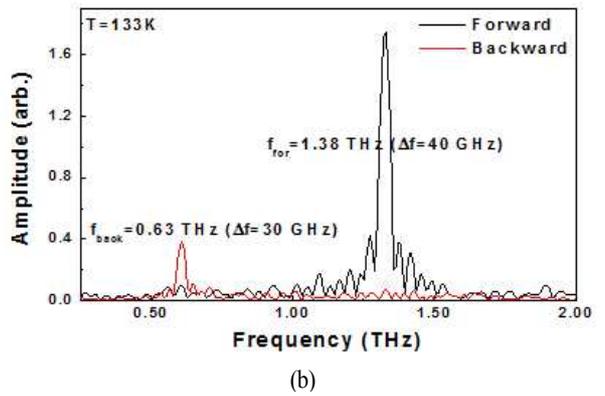
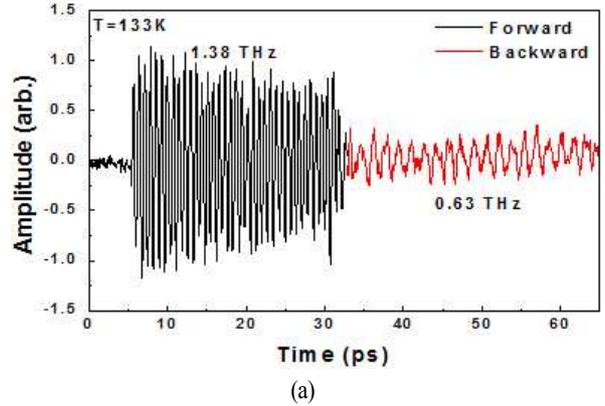


[그림 3] 펨토초 레이저 기반의 T-ray 발생 및 검출 시스템

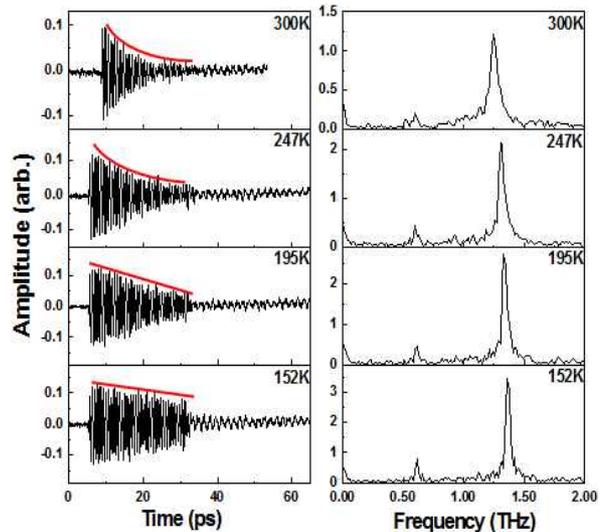
산하여 선택하였다. 또한, T-ray의 흡수를 줄이기 위하여 액체질소 기반의 저온 시스템을 이용하였다. Backward T-ray 검출은 매질 내 입사면에서 반사되는 부분만 forward 방향에서 측정하였다.

[그림 4]는 133 K의 저온에서 측정된 테라헤르츠파의 파형 및 스펙트럼을 보여준다. 이론과 같이 multi-cycle의 파장이 다른 두 개의 파를 동시에 검출하였다. 검출기에 먼저 도착하는 forward T-ray가 앞단(검정)에, backward T-ray가 뒷단(빨강)에 측정되었다. 주파수 및 선포는 각각 forward와 backward 방향에서 1.38 THz($\Delta f=40$ GHz)와 0.63 THz($\Delta f=30$ GHz)로 좁은 선포를 가진다.

온도에 따른 T-ray의 흡수특성을 측정하였다. [그림 5]와 같이, 상온에서는 multi-cycle의 시간에 따라, 즉 매질 내에서 진행함에 따라 출력이 줄어드는 것이 확인되었다. 그러나 온도를 내림에 따라 흡수의 정도가 줄어드는 것을 보였다. 1-Dimensional 평면파 진행 모델을 이용한 시뮬레이션을 통해, T-ray의 온도에 따른 흡수특성을 분석하였다^[5]. 온도에 따라 중심 주파수가 미세하게 바뀌는 것은, 매질의 테라헤르츠파 영역에서의 굴절률의 변화로 인한 것이다. 상온과 극저온(80 K)의 매질의 길이수축을 고려했을 때, 그 비는 0.1% 이하로



[그림 4] PPSLT($\lambda = 60 \mu\text{m}$, $L = 2 \text{ mm}$)에서 발생한 T-ray 파형 (a) 및 스펙트럼(b)



[그림 5] 온도에 따른 PPSLT 기반 T-ray 발생 및 흡수 특성

계산되어지므로 큰 영향을 미치지 못 한다⁶⁾. 또한 매질의 광 파영역에서의 굴절률은 약 2.15로 온도에 의한 영향이 역시 0.1% 이하로 영향이 크지 않다⁷⁾. 식 (1)에서 확인되듯이, 주 파수를 결정시키는 나머지 요인은 테라헤르츠파 영역에서의 굴절률이며, 이에 의한 미세한 주파수 변화를 확인하였다.

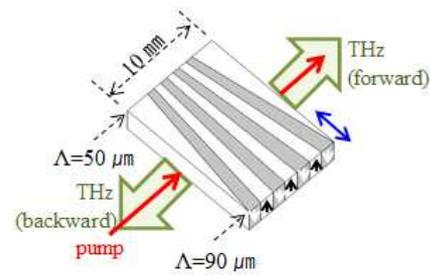
2.2 부채꼴 형태의 준위상정합 구조에서 주파수 가변이 쉬운 T-ray 발생

준위상정합 구조기반의 T-ray 발생은 간단한 광 얼라인먼트를 이용해 높은 변환효율을 가지는 기법이다. 하지만 광결정의 주기는 분극반전 형태 제작 이후에 쉽게 바꿀 수 없다. 즉, 발생 T-ray의 주파수 및 선평의 가변이 힘들다는 단점이 있다. 그에 따라, 쉬우면서도 효율적인 주파수 가변을 위한 준위상정합 구조를 디자인하고 실험을 하였다.

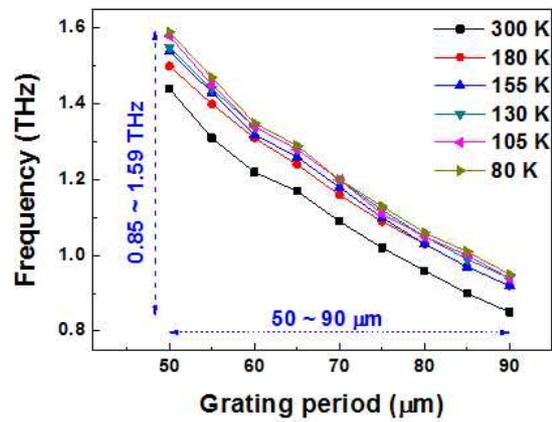
[그림 6]은 주파수 가변을 위한 부채꼴 형태로 분극 반전된 QPM 구조이다. 주기는 50~90 μm로 선형적으로 변한다. 준위상정합 조건에 의해 발생된 테라헤르츠파의 파장은 QPM 주기에 상응하므로, 아래와 같은 구조의 광소자의 위치를 이동하면서 펌프 펄스가 상호작용하는 QPM 조건을 쉽게 바꿀 수 있다. 그에 따라 T-ray의 주파수를 선택적으로 조절할 수 있다. 또한 온도변화를 주어 미세한 주파수 변화도 조절 가능하다. 그 결과가 [그림 7]에 나타나 있다. 약 0.85~1.59 THz 범위에서 forward T-ray의 중심 주파수를 가변한 결과이다. 즉, 준위상정합 기반의 쉽고, 효율적인 주파수 가변한 T-ray 발생 기법을 개발하였다. 또한, 입사광의 측면방향으로의 크기를 조절함으로써, 발생하는 T-ray의 선평을 조절할 수 있다. 즉, 상호작용하는 QPM 주기의 폭에 비례하여 발생 선평을 늘릴 수 있다.

2.3 비선형 광학 단결정의 다양한 구조별 T-ray 발생 및 비교

일반적으로 준위상정합 구조를 이용하는 것은, 앞서 언급한 대로 매질 내 강한 분산에 의한 위상 정합이 이루어지지 않기 때문이다. 발생하는 파의 위상을 시간상으로 준정합을 시켜 강한 출력의 파를 만드는 기법이다. 하지만, J. Hebling 과 그의 그룹은 펌프 광원의 위상을 비스듬히 정렬시켜 공간상에서 발생하는 테라헤르츠파와 위상 정합이 되는 기법



[그림 6] 부채꼴 형태의 준위상정합 구조의 PPSLT



[그림 7] 부채꼴 형태의 PPSLT 기반의 QPM 주기 및 온도에 따른 주파수 가변 결과

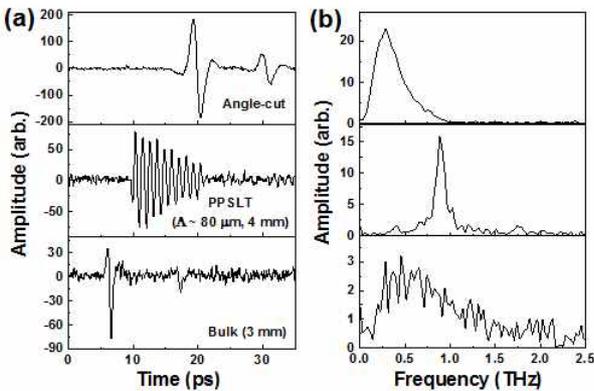
(Tilted pulse-front excitation method)을 개발하였다⁸⁾. 위상정합이 공간상에서 완전하게 이뤄질 수 있으므로 강한 침투 출력을 가지는 테라헤르츠파 발생이 가능하다. 하지만 Collinear phase-matching 방식이 아니므로 광 얼라인먼트가 어렵고, 펌프빔의 펄스면을 임의로 조정해야 하는 과정에서 이미징 오차가 발생할 수 있다는 단점이 있다. 그럼에도 불구하고 높은 변환효율을 얻을 수 있기 때문에, 많은 연구진에 의해 그 기법이 개발 및 발전되고 있다.

이번 논문에서는, 광소자의 구조 및 형태를 기반으로 발생하는 T-ray의 출력 및 특성의 변화를 측정 및 분석하였다. 레이저는 반복률 1 kHz, 중심파장 798 nm, 펄스폭 120 fs, 펄스당 에너지 1 mJ의 Ti:sapphire regenerative amplifier 시스템 (Hurricane)을 사용하였다. 광소자는 MgO:SLT를 이용하였고, 그 구조는 단결정(bulk) 및 주기적으로 분극 반전된 QPM 구조(PPSLT)와 프리즘 타입의 단결정(angle-cut)을 이용하였다.

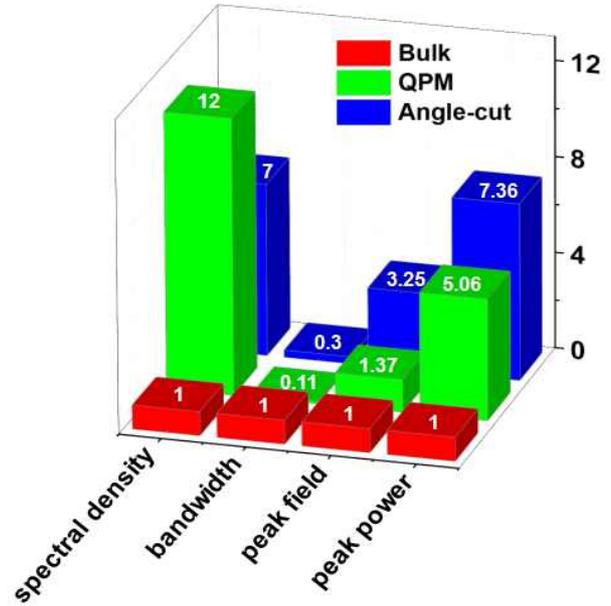
Bulk 및 PPSLT에서는 collinear 방식의 입사 및 검출기법을 사용하였고, angle-cut 구조에서는 non-collinear 방식의 tilted pulse-front excitation 기법을 이용하였다.

[그림 8]은 구조 및 형태에 따른 T-ray 발생모습을 보여준다. Bulk에서는 위상정합이 되지 않은 약한 크기의 T-ray가 발생되었다. 매질 내에서 분산에 의한 위상 부정합의 결과로, 표면에서 발생한 테라헤르츠파만 기여를 하게 되며, 시간상에서 떨어진 두 개의 약한 single-cycle의 전기장 형태를 보인다. 하지만, PPSLT에서는 매질 내에서 위상이 준정합하므로 multi-cycle의 긴 펄스의 모양을 보이며, 선폭도 좁게 나타난다. Angle-cut 구조에서는 공간상에서 위상이 완전히 정합되므로 강한 single-cycle의 전기장과 상대적으로 넓은 선폭의 T-ray가 발생된다. 광소자의 구조 및 형태에 따라 위상정합의 정도가 달라지며, 이에 따른 T-ray의 형태 및 출력이 다르게 나타남을 확인되었다.

[그림 9]는 3가지 형태의 광소자 구조에서 발생한 T-ray의 전기장 및 스펙트럼의 형태를 비교한 것이다. 위상정합을 통한 angle-cut 구조에서 가장 강력한 전기장 및 상대적으로 넓은 선폭을 보인다. 이는 일반적인 분광실험에 필수적인 광원으로 쓰일 수 있다. 준위상정합을 통한 PPSLT 구조에서는 첨두 출력인 낮지만, 단위 주파수당 세기는 angle-cut 구조보다 높게 나오는 것을 확인할 수 있다. 즉, 좁은 선폭에 많은 에너지가 포함되어 있어, 초고해상도 분광 및 영상에 필수적인 광원으로 쓰일 수 있다. 또한, 샘플의 원하는 모드만 여기시키고, 인접 모드에는 영향을 미치지 않게 하여 THz-pump optic-probe 실험 등에서 각광을 받을 수 있다.



[그림 8] 광소자의 구조 및 형태에 따른 T-ray 발생



[그림 9] 3가지 다른 구조에서 발생한 T-ray의 전기장 및 스펙트럼 분석

III. 결 론

펨토초 극초단 펄스광원 및 비선형 광학 결정 기반의 T-ray 발생에 대해 다루었다. 특히, 주기적으로 분극 반전된 형태의 광소자에서 multi-cycle의 스펙트럼 선폭이 매우 좁은 T-ray 발생에 대해 분석하였다. 주기가 60 μm인 QPM 구조에서 중심주파수가 약 1.38 THz 및 0.63 THz의 약 30~40 GHz의 선폭을 가진 테라헤르츠파를 발생하였다. 온도(80~300 K)에 따라 매질의 THz 영역에서 굴절률이 변하는 광 특성에 의해, 미세하게 중심주파수가 변하는 발생특성을 분석하였다. 또한, 부채꼴 형태의 준위상정합구조를 이용해 중심주파수 가변이 쉽고, 효율적인 T-ray 발생기법을 개발하였다. QPM 주기를 50~90 μm로 선형적으로 변하는 구조를 통해 forward 방향의 주파수를 0.85~1.59 THz 내에서 가변하였다. 부채꼴 형태의 기울기의 변화와 주기의 범위를 통해 주파수 가변의 정확도 및 범위를 조절할 수 있다.

위상정합의 조건에 따라 발생하는 T-ray의 형태를 비교하였으며, Bulk SLT 및 PPSLT와 angle-cut SLT를 이용하고, 그에 맞는 광 정렬 시스템을 고려하여 각각의 T-ray를 발생 및 분석하였다. Angle-cut 구조에서는 위상이 완전히 정합된 결

과로 강한 세기의 single-cycle의 넓은 선폭의 테라헤르츠파를 발생하였으며, 이는 일반적으로 분광 광원으로 널리 쓰이고 있는 기법이다. 하지만, 고분해능 분광 및 영상, T-ray 무선통신, 특히 THz-pump optic-probe 실험 등 매우 좁고 강한 세기의 테라헤르츠파가 필요한 분야에서는 준위상정합 구조기반의 multi-cycle의 테라헤르츠파가 훨씬 유용하게 쓰일 것으로 예상된다. 이를 통해 반도체 구조의 양자점 및 양자우물의 특성 분석이나, 우리 생활에서의 예상치 못하게 배달되어 사회의 물의를 일으킬 수 있는 우편물 속 불법 마약 탐지, T-ray 센서 개발 등에 매우 유용한 광원으로써 개발 요구가 늘어나고 있다.

참 고 문 헌

- [1] Y.-S. Lee, T. Meade, V. Pertin, H. Winful and T. B. Norris, "Generation of narrow-band terahertz radiation via optical rectification of femtosecond pulses in periodically poled lithium niobate", *Appl. Phys. Lett.*, 76, 18, p. 2505, 2000.
- [2] N. E. Yu, C. Kang, H. K. Yoo, C. Jung, Y. L. Lee, C.-S. Kee, D.-K. Ko, J. Lee, K. Kitamura and S. Takekawa, "Simultaneous forward and backward terahertz generations in periodically poled stoichiometric LiTaO₃ crystal using femtosecond pulses", *Appl. Phys. Lett.*, 93, 4, p. 041104, 2008.
- [3] Y. J. Ding, Wei Shi, "From backward THz difference-frequency generation to parametric oscillation", *IEEE J. Select. Topic in Quant. Elec.*, 12, p. 352, 2006.
- [4] Y. Sasaki, H. Yokoyama and H. Ito, "Surface-emitted continuous-wave terahertz radiation using periodically poled lithium niobate", *Elec. Lett.*, 41, p. 712, 2005.
- [5] N. E. Yu, K.-S. Lee, D.-K. Ko, C. Kang, S. Takekawa and K. Kitamura, "Temperature dependent narrow-band terahertz pulse generation in periodically poled crystals via difference frequency generation", *Opt. Commun.*, 284, p. 1395, 2011.
- [6] I. Dolev, A. Ganany-Padowicz, O. Gayer, A. Arie, J. Mangin and G. Gadret, "Linear and nonlinear optical properties of MgO:LiTaO₃", *Appl. Phys.*, B 96, p. 423, 2009.
- [7] V. Z. Kolev, M. W. Duering and B. Luther-Davies, "Corrections to refractive index data of stoichiometric lithium tantalate in the 5-6 μm range", *Opt. Lett.*, 31, 13, p. 2033, 2006.
- [8] J. Hebling, G. Almasi and Z. Kozma, "Velocity matching by pulse front tilting for large-area THz-pulse generation", *Opt. Express*, 10, 21, p. 1611, 2002.

≡ 필자소개 ≡

이 규 섭



2011년: 광주과학기술원 물리학과 (이학석사)
2011년~현재: 광주과학기술원 물리학과 박사
과정

고 도 경



1992년: 서울대학교 물리학과 (이학박사)
1992년~2003년: 원자력연구원 선임/책임연구원
2003년~현재: 광주과학기술원 교수
[주 관심분야] 초고속 초고출력 레이저 개발 및
응용, 비선형 광학 분광 현미경, 시분해 분광
시스템 개발

유 난 이



2002년: 부산대학교 물리학과 (이학박사)
2002년~2005년: 국립물질과학연구소 박사후 연
구원 (일본 NIMS, 츠쿠바)
2005년~현재: 광주과학기술원 고등광기술연구
소 선임/책임연구원
2014년~현재: 고등광기술연구소 분광센서 연구
실장

[주 관심분야] 비선형 파장변환, 레이저디스플레이, THz광원개발, 준위
상정합 광소자 제작 및 분석