

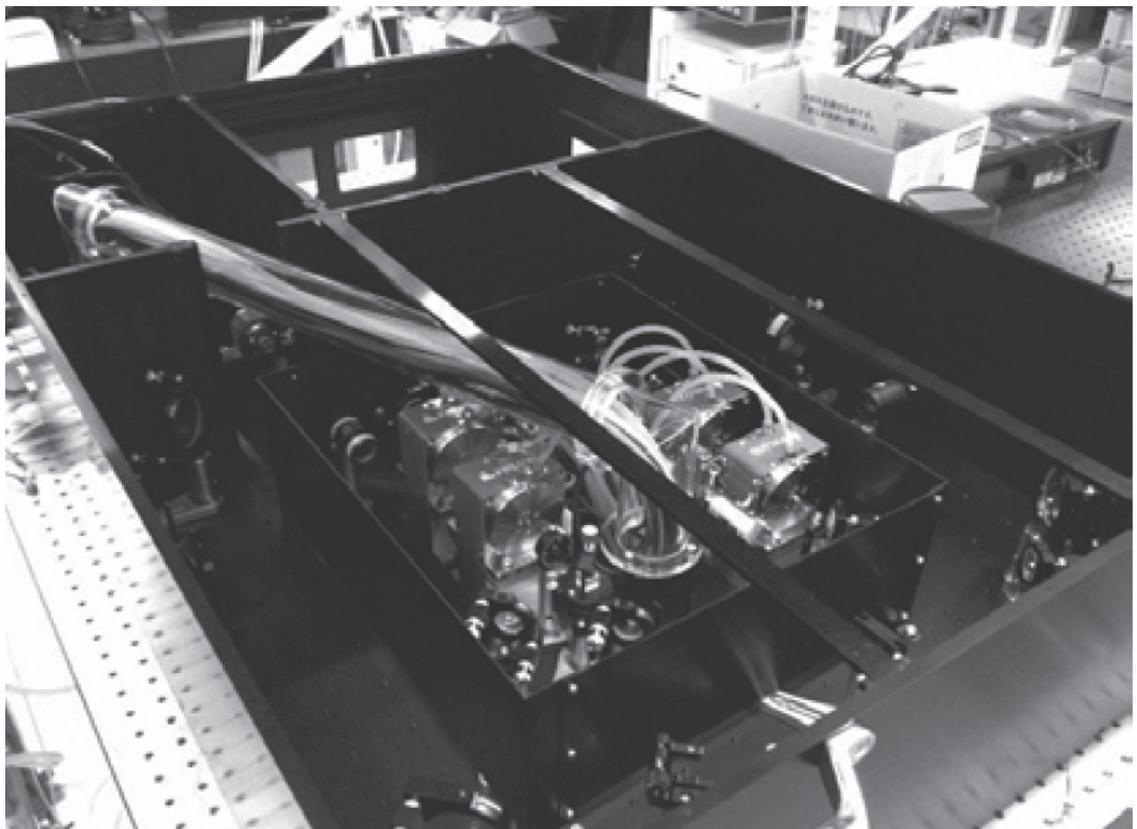
# 이노베이션 창출을 향한 비선형 광학 · 고휘도 테라헤르츠파 광원의 개발

글 히로아키 / 국립연구개발법인 이화학연구소 광양자공학연구센터 테라헤르츠 광원연구팀 팀리더 미나미데  
번역 유정훈 / 그린광학 사업개발그룹장

## 1. 처음

이화학연구소 광양자공학연구센터에서 실시하고 있는 테라헤르츠파 연구는 동 센터 내에서 취급하는 전자파로서는 최장파장의 연구이다. 센다이지역에 활동거점을 두고 세 개의 팀이 테라헤르츠파의 광원개발, 응용연구, 반도체소자개발을 주요 테마로 각각 연구를 행하고 있다. 테라헤르츠파는 초고속 · 대용량 무선통신의 주파수자원과 비금속계 물질에 적당한 투과성을 가지는 특징에서 비파괴검사 응용에 도움 되는 프로브 광으로서 중요하고, 각종 이용이 제안되고 있다.

그림1 광주입형 테라헤르츠파 파라메트릭광원



AT&T 벨연구소의 Nuss씨 등이 약 25년 전에 테라헤르츠파로 반도체 집적회로 중의 배선과 잎의 수분함유량 변화를 볼 수 있는 것을 보고<sup>1)</sup>한 이래, 테라헤르츠파의 가능성을 추구하기 위해 세계의 연구 기관에서 다양한 연구가 발전해 왔다. 당시부터 넓게 이용되고 있는 테라헤르츠파 발생에는 펄드초 레이저의 펄스출력을 광전도안테나에 조사해서 발생시키는 방법이 사용되어 왔다. 광대역스펙트럼을 커버하는 테라헤르츠파 광원이고, 광지연 샘플링방식에 의한 시간 영역 분광법으로서의 이용이 가장 보급하고 있다<sup>2)</sup>.

한편, 최근에는 연속파광원의 개발도 진행해 공명터널다이오드<sup>3)</sup>와 주파수 체배기 등 반도체 테라헤르츠파 디바이스가 실용레벨에 가깝고, 차세대 통신과 비파괴센싱이 보다 한층 가까워지고 있다. 그러나 테라헤르츠파 카메라를 이용한 이미징과 화물검사 등 광범위를 검사하고 싶은 경우 등에서는 단소자에서의 출력은 약하고, 어레이화와 별도 방식의 고출력광원이 필요하다. 그 외에도 고출력화에 관해서는 전계강도가 MV/cm급의 거대출력을 발생할 수 있는 기술이 보고되고<sup>4)</sup>, 그 출력을 사용해서 전자가속<sup>5)</sup>과 분자결정구조의 변화<sup>6)</sup> 등이 실험적으로 표시되고, 고강도 테라헤르츠파는 독자의 이용 응용을 향한 길을 열고 있다.

테라헤르츠파 광원연구팀에서는 지금까지 비선형 광학을 이용해서 근적외 레이저와 테라헤르츠파의 고효율인 파장변환방법을 연구해 왔다. 최근에서는 광주입형 테라헤르츠파 파라메트릭발생<sup>7-9)</sup>(그림 1)에 의해 약 100 kW의 피크강도가 달성되고, 한편 테라헤르츠파를 근적외광으로 역변환해서 고강도 근적외검출기로 계속하는 테라헤르츠파 검출에 의해 수십 아토 줄의 미약 테라헤르츠파의 검출<sup>8,9)</sup>을 실현하는 등 테라헤르츠파 기술의 상향식 효과를 겨냥해서 포토닉스기술에 의한 즉효성이 있는 성과를 달성해왔다.

본고에서는 비선형 광학결정으로서 벌크의 니오브산 리튬결정을 사용해서 고효율로 근적외광과 테라헤르츠파 간에서 파장 변환하는 방법을 말하고, 한층 더 발전으로서 주기분극반전 니오브산 리튬결정을 사용한 완전히 새로운 후진파 테라헤르츠파 파라메트릭 발진의 실현과, 각 단의 소형화, 고효율화에 의한 새로운 테라헤르츠파 이노베이션창출을 향한 광원개발의 현상을 소개하겠다. 또 역변환에 의한 테라헤르츠파 검출에 관해 주기분극반전 니오브산 리튬의 유효성에 대해서도 말하겠다.

## 2. 고효율 비선형 광학파장변환

비선형 광학효과를 사용한 파장변환은 레이저 발명직후부터 연구가 행해져, 분광계측을 중심으로 기초과학과 산업에서 이용되어 온 긴 역사를 가진다. 니오브산 리튬결정을 사용한 테라헤르츠파 발생에 관해서는 1970년대의 스탠포드대학에서의 연구<sup>10)</sup>가 단서이다. 그 후 파장가변 테라헤르츠파 광원의 개발은 이토 · 카와세씨 등에 의해 1996년 이후 스탠포드대학의 연구를 발전시켜<sup>11)</sup>, 테라헤르츠파 파라메트릭발진 또는 발생의 연구가 한층 진행해왔다. 그러나 효율의 면에서는 긴 과제로서 남아있었다. 고효율발생은 별도의 연구에서도 관심이 높아, 2003년쯤에 Hebling씨 등이 펄스면 경사펄드초 레이저를 니오브산 리튬결정에 사용하는 방법<sup>12)</sup>을 보고해서 주목을 모았다. 발생효율 향상이 서서히 높아지는 중, 단색성이 우수한 고휘출 테라헤르츠파의 발생은 근본적인 검토가 필요했다.

니오브산 리튬결정은 플라리톤을 거친 유도라만산란에 의해 코히런트 테라헤르츠파를 발생<sup>13)</sup>할 수 있는 소재로서 중요하고, 원리와 이용의 종합적인 관점에서 아직 본 소재를 완전히 능가하는 것은 출현하고 있지 않다. 100 MW/cm<sup>2</sup>정도의 고강도 여기광에 의해 큰 이득을 발생할 수 있지만, 파수 248 cm<sup>-1</sup>에 있는 최저준위의 A<sub>1</sub>대칭 포논모드에 의한 흡수도 크다. 일반적으로 고휘출발생을 실현하는 것에는 간단한 방법으로서 입출력의 스케일링을 이용할 수 있다. 이때 광손상을 방지하기 위해 여기광 빔의 사이즈를 확대해서 플루언스(fluence)를 일정으로 할 필요가 있다. 그러나 테라헤르츠파 파라메트릭 광원에서는 결정의 측면에서 실리콘 · 프리즘 등의 외부결합기를 거쳐 테라헤르츠파를 추출하기 때문에 확대 빔 사이즈에 의한 결정내부에서의 테라헤르츠파의 추출은 흡수 문제로 효율이 나쁘다. 이 때문에 이득영역을 결정내의 공기와의 경계면근방에 모으는 방법을 고안해서 테라헤르츠파 빔의 품질향상과 파장가변의 광대역에 공헌했지만, 효율 면에서는 대폭적인 개선이 보이지 않았다.

그래서 우리들은 테라헤르츠파 파라메트릭발생에 있어 근본적인 재검토를 도모해, 유도 브릴루앙 산란에 의한 테라헤르츠파 발생이득의 감소를 발견했다<sup>9)</sup>. 개선 방법에는 종래부터 사용하고 있는 나노초 여기펄스로 바꿔 서브나노초 펄스로 했다. 이것에 의해 유도 브릴루앙 산란의 발생을 억제할 수 있고, 근적외광에서 테라헤르츠파

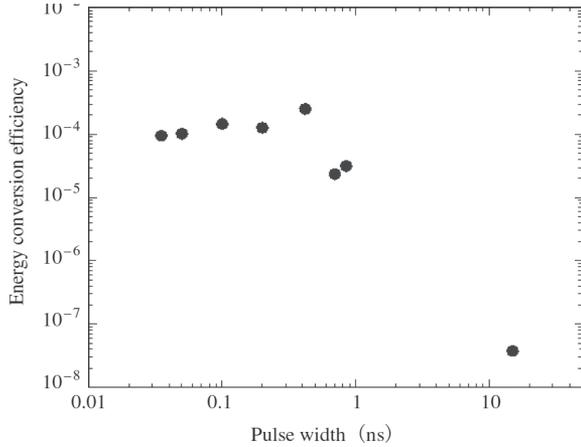


그림2 니오브산 리튬결정을 사용한 광주입형 테라헤르츠파 파라메트릭 발생에 의한 에너지변환효율(Manley-Rowe 관계에 의해 최대변환효율은 10<sup>-2</sup>로 된다.)

로의 고효율 파장변환을 실현할 수 있는 것을 알았다. 그림2에 여기 광 펄스폭에 대한 근적외광에서 테라헤르츠파로의 변환효율을 나타냈다<sup>14)</sup>. 결과로서 서브나노초 펄스폭을 이용한 경우, 4자리 정도의 격단의 효율향상이 실현되었다. 그리고 결정길이나 빔 플루언스, 또 위상정합조건 등 광학적인 최적화에 관해서 연구를 진행한 결과, 광주입형 테라헤르츠파 파라메트릭 발생에서 약 100 kW의 첨두값을 가지는 고툰력 테라헤르츠파 발생을 실현할 수 있었다.

이와 같이 발생효율 향상에 관해서 비선형 광학파장변환을 사용한 테라헤르츠파 발생에서 원리적 지침을 나타내 공헌해왔다. 한편 보다 소형이고 고효율발생을 실현하는 것에는 의사위상정합 디바이스가 유효하고, 이어서 획기적인 광원 발명을 소개하겠다. 또 테라헤르츠파에서 근적외광으로의 파장변환에 의한 테라헤르츠파 검출 기술에 대해서 말하겠다.

### 3. 사주기(斜周期) 분극반전 니오브산 리튬을 사용한 테라헤르츠파 발생 및 검출

#### 3.1 후진파 테라헤르츠파 파라메트릭 발진기<sup>15)</sup>

의사위상정합은 비선형결정이 가지는 광학적 성질을 근거로 주기 분극반전기술을 사용해서 인공적으로 설계할 수 있는 위상정합이다. 벌크결정에서는 실현할 수 없는 위상정합조건을 얻을 수 있는 것이 특징이고, 주로 광파대의 고효율 파장변환소자로서 연구 개발되어 왔다. 테라헤르츠파대에 있어서도 효율적인 테라헤르츠파 출력방식의 연구 등에 이용되어왔지만, 파장차가 약 두 자리 다른 것에서 소재의 광학적 특성이 대폭적으로 다르기 때문에 위상정합조건의 설계가 광파대에 비해 복잡해서 난해했다. 한편, 복잡한 특성 때문에 새로운 위상정합의 가능성도 기대할 수 있고, 우리들은 테라헤르츠파대에서 파장가변성을 가지는 후진파 광 파라메트릭 발진을 발견했다.

후진파 광 파라메트릭 발진은 여기광 입사방향에 대해서 신호광 또는 아이들러광이 역방향으로 발진하는 특수한 위상정합조건과 에너지보존법칙을 만족하는 경우에 일어난다. 1966년에 Harris가 원리적 제안을 행하고<sup>16)</sup>, 후에 광파대에서 몇 가지의 발진현상이 보고되었다. 그러나 여기광에 2파장을 입사해서 차주파발생에서 후진파를 발생시키는 보고도 많고, 원리제안과 같이 여기광 1파장을 비선형소자에 조사해서 후진파 발진을 실현한 예는 적다. 공진기 거울을 사용하지 않고 일어나는 발진은 미러레스 광 파라메트릭 발진이라고 하고, 한정된 조건하에서 일어나는 현상이기 때문에 그 메커니즘이 불명하고, 테라헤르츠파대에서의 발진에 성공한 예는 없었다.

이것에 비해, 우리들은 그림3에 나타낸 사주기 분극반전 니오브산 리튬을 사용해서 후진파 테라헤르츠파 파라메트릭 발진을 실현했다. 특히 여기광, 테라헤르츠파, 아이들러광 및 격자벡터 사이에서 noncollinear 위상정합조건을 만족하는 특수한 조건하에서 실현할 수 있는 것을 나타냈다. 우리들이 제안한 위상정합조건에서는 여기광의 파수벡터와 결정의 격자벡터가 이루는 각을 변화시켜, 테라헤르츠파의 주파수를 조정할 수 있다(그림4). 또 최대 동조범위는 주기 분극반전의 피치에 의해 결정할 수 있고, 피치길이가 짧을수록 최

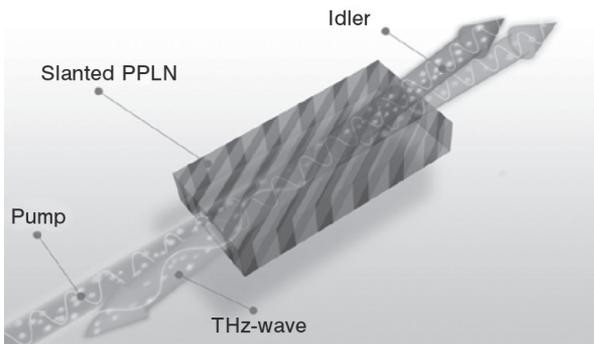


그림3 후진파 테라헤르츠파 파라메트릭 발진의 개략도

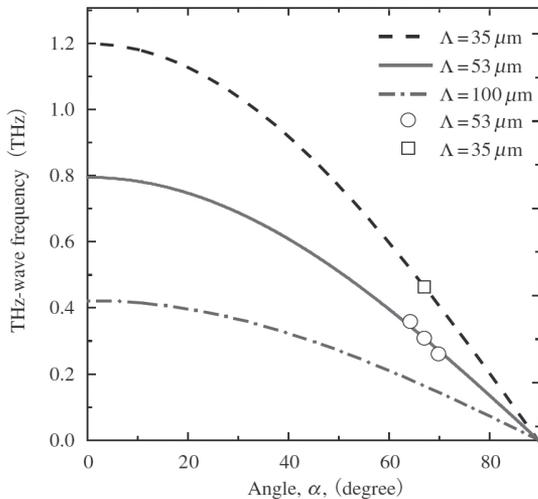


그림4 테라헤르츠파의 주파수와 여기광의 파수벡터와 결정의 격자벡터가 이루는 각의 관계

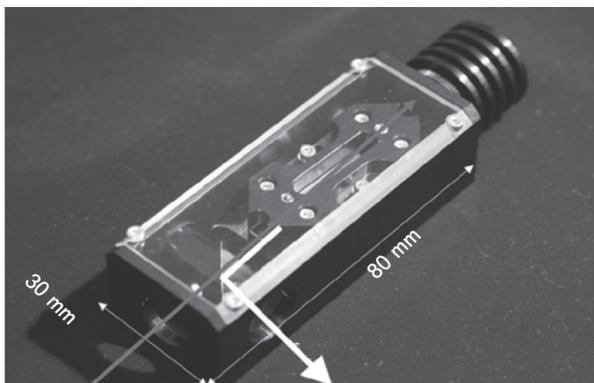


그림5 후진파 테라헤르츠파 파라메트릭 발진기

대 가변범위를 크게 할 수 있다.

실제로 개발한 발진기의 일례로서 0.3 THz에서 발진하는 후진파 테라헤르츠파 파라메트릭 발진기의 사진을 그림5에 나타냈다. 여기 광은 비축포물면경에 설치된 홀을 거쳐 결정에 입사시켰다. 발생한 테라헤르츠파는 입사여기광과는 역방향으로 발생하고, 포물면경에서 반사해서 테라헤르츠파를 추출하는 측면포트에서 출사된다. 공진기 전체의 사이즈는 광 감쇠기를 제외해서 30 mm × 80 mm, 무게는 약 80 g으로 콤팩트하고, 공진기 거울이 없기 때문에 동작안정성도 높고 가볍고 견고한 구조이다. 테라헤르츠파의 발진 스펙트럼 폭은 약 7 GHz로 좁고, 공명현상을 이용하는 플라즈몬 디바이스와 분광 센싱, 또는 비파괴검사 등의 다양한 테라헤르츠파 응용으로의 적용이 생각된다.

### 3.2 상향변환(Upperconversion) · 고감도 테라헤르츠파 검출

상기에서는 주로 비선형 광학파장변환에 의한 테라헤르츠파 광원의 개발에 관해서 소개해왔다. 유도 브릴루앙 산란의 억제와 주기 분극반전 니오브산 리튬을 사용해서 종래 성능을 현저히 향상해왔다. 이들 결과는 테라헤르츠파와 근적외광 사이에서 고효율로 양자 광학적인 파장변환을 실현한 것이고, 이것을 응용하는 것에서 테라헤르츠파 발생뿐만 아니라 고감도한 테라헤르츠파 검출도 실현할 수 있다. 이어서 사주기 분극반전 니오브산 리튬을 사용한 파장변환에 의해 상향변환(Upperconversion) 광을 발생시켜, 그 검출신호광을 광파대의 고감도검출기로 계속하는 고감도 테라헤르츠파 검출에 대해서 말하겠다.

테라헤르츠파 검출에서 사용하는 위상정합조건에서는 여기광의 파수벡터와 테라헤르츠파의 파수벡터가 직교하고, 한편 여기광의 파수벡터와 검출신호의 파수벡터는 콜리니어(collinear)로 된다. 격자벡터는 이들 파수벡터의 관계를 포착하는 형태에서 위상정합 조건을 만족한다. 이와 같은 광학적 배치로 되도록 설계한 이유는 테라헤르츠파대와 광파대에서 사용하는 광학부품이 다르기 때문이고, 각 파에 대해서 각각의 계통에서 최적화를 실시하는 것을 가능으로 하기 때문이다. 그림6에 시스템화한 일례를 나타냈다<sup>17)</sup>. 여기 광은 레이저 다이오드를 광원으로 펄스구동하고, 광파이버중폭에

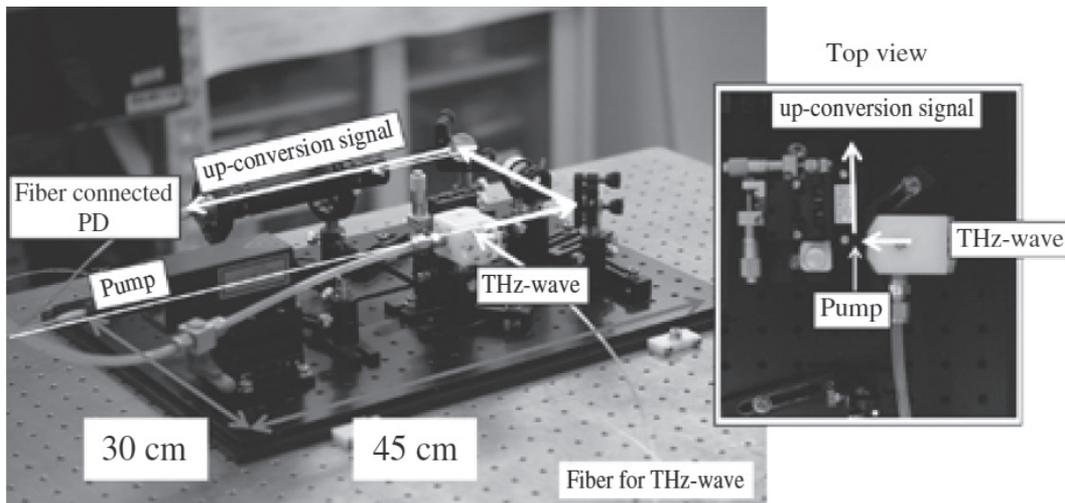


그림6 상향변환 · 고감도 테라헤르츠파 검출시스템

서 출력을 증대한다. 주기 분극반전 니오브산 리튬결정으로의 결합은 한번 공간에 내고나서 집광해서 조사한다. 별도, 테라헤르츠파는 테라헤르츠파 파이버를 거쳐 결정으로 이끌어지고, 파이버 내는 질소치환해서 대기 중의 수증기에 의한 감쇠를 극력 억제하려고 했다. 상향변환 광은 여기광과 테라헤르츠파가 동시에 입사했을 때에 발생하고, 결정 외에서 필터를 사용해서 여기광과 분리한 후, 다시 신호광만 광파이버에 집광해서 pigtail부착 광 검출기로 검출할 수 있도록 하고 있다.

다음으로, 상향변환에 의한 테라헤르츠파 검출의 성능에 관해서 말하겠다. 실험은 별도 광학계를 구축해서 실시하고, 얻어진 결과를 그림7에 나타냈다. 여기광원은 마이크로 팁레이저(2.5 mJ, 590 ps)를 사용해서 행했다. 사주기 분극반전 니오브산 리튬의 결정길이는 40 mm이고, 입사 테라헤르츠파 에너지를 70 nJ에서 최소 100 aJ까지 검출할 수 있었다<sup>17)</sup>. 이 경우, 파장변환은 여기광과 테라헤르츠파의 차주파발생에서 생긴다. 최소검출감도는 광 파라메트릭형광의 발생레벨과 광 검출기의 노이즈레벨에서 결정되지만, 그것이상의 신호노이즈레벨에서는 상향변환 광은 여기광과 나란히 가고 있기 때문에 광 파라메트릭 증폭을 받아, 최소한의 노이즈로 억제되면서 신호강도가 증대되어 유효하다. 보다 긴 결정을 사용하면 보다 높은 감도를 기대할 수 있다.

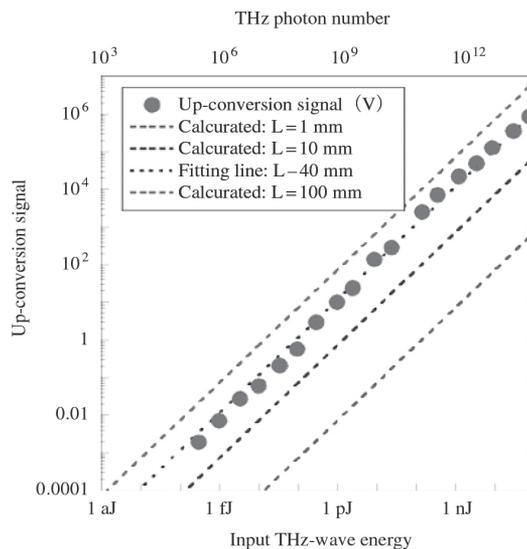


그림7 상향변환 신호와 테라헤르츠파 입력의 관계



그림8 nano tech 2018 제17회 국제 나노테크놀로지 종합전·기술회의에서 프로젝트상의 수상식 모습

#### 4. 결론

테라헤르츠파는 지금까지의 세계적인 연구개발에서 그 성질이 꽤 상세히 이해되고, 초고속·대용량 무선통신, 비파괴검사, 부가가치가 있는 센싱 등에서 매력적인 전자파로서 주목되고 있다. 한편, 적극적인 테라헤르츠파 이용에는 소형이고 고성능인 각종 디바이스의 충실이 필요하다. 작금의 활발한 연구개발에서 일렉트로닉스 측에서의 기술개발에 의한 반도체 디바이스의 광원, 검출기의 약진도 훌륭해서 더욱 테라헤르츠파 응용을 위한 노력이 활성화되고 있는 상황이다.

본고에서 소개한 광파와 테라헤르츠파의 교두보를 실현하는 발명을 포함해, 우리들이 몰두하는 프로젝트연구에 대해서 마침내 최근의 nano tech 2018에서 프로젝트상을 받았다(그림8). 종래 디바이스 성능과 비교해서 비약적인 성능을 가져오고, 일렉트로닉스와 포토닉스 경계에 있는 테라헤르츠파 영역을 개척함에 있어, 이용 가능한 기술의 선택지를 확대했다고 자부하고 있다. 이후 테라헤르츠파 응용을 향한 더욱 연구 활동과 이노베이션 창출을 위한 도전을 생각해 가고 싶다.

#### 참고문헌

1. B. B. Hu et al., Opt. Lett. 20, 1716-1718 (1995).
2. M. Tonouchi, Nature Photonics 1, 97-105 (2007).
3. T. Maekawa et al., Appl. Phys. Express 9, 024101 (2016)
4. H. Hirori et al., Appl. Phys. Lett. 98, 091106 (2011).
5. E. A. Nanni et al., Nat. Commun. 6, 8486 (2015).
6. H. Hoshina et al., Sci. Rep. 6, 27180 (2016).
7. H. Minamide, IEEE Trans. Terahertz Sci. Technol. 5, 1104-1109 (2015).
8. H. Minamide et al., J. Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves 35, 25-37 (2014).
9. S. Hayashi et al., Sci. Rep. 4, 05045 (2014).
10. M. A. Piestrup et al., Appl. Phys. Lett. 26, 418-421 (1975).
11. K. Kawase et al., Appl. Phys. Lett. 68, 2483-2485 (1996).
12. A. G. Stepanov et al., Appl. Phys. Lett. 83, 3000-3002 (2003).
13. J. Shikata et al., Electron. Commun. Jpn. 82, 46-53 (1999).
14. K. Nawata et al., IEEE Trans. Terahertz Sci. Technol. 7, 617-620 (2017).
15. K. Nawata et al., "Backward THz-wave parametric oscillation with tunability," Laser Congress 2017 (ASSL, LAC) Proceedings, AM2A. 6 (2017).
16. S. E. Harris, Appl. Phys. Lett. 9, 114-116 (1966).
17. K. Nawata et al., Appl. Phys. Lett. 104, 091125 (2014).