

Na 원자의 형광 스펙트럼

정종선*, 윤선현, 고도경, 이재형, 장준성

서울대학교 물리학과

초 록

원자와 강력한 빛이 상호작용을 하면 섭동이론으로 취급되지 않는 형광선들이 나타나게 된다. Nd:YAG 레이저로 펌핑된 색소레이저를 열 파이프 오븐에 발생시킨 Na 원자 기체의 D₁ 및 D₂ 흡수선에 입사 여기서서 Na 원자를 공명여기 시켰다. 그 결과 빛짜인 원자 모델에서 예측한 7개의 형광선을 얻었고 이들 형광선에 대한 입사광의 세기 및 detuning 에 의한 효과에 대해 논의 검토 하였다.

I. 서 론

원자에서 공명성 형광분광학은 간단한 2준위 원자계에서 레이저 빛을 고전적^[1] 혹은 양자역학적으로^[2] 취급하여 연구되었지만 강력한 레이저 빛을 사용할때 나타나는 현상들을 용이 설명하지 못하거나 현상의 일부만 설명할수 있어서 형광선의 위치, 세기 및 선평등을 간단하게 예측하고 다 준위 원자로 쉽게 일반화 시키는 점에서는 만족스러지 못하였다. 그러나 Cohen등에 의해 빛짜인 원자모델(dressed atom model)을 써서 강력한 레이저 beam을 사용할 경우의 공명성 형광 스펙트럼의 정량적 설명을 할 수 있음을 보였고 다준위 원자계로도 쉽게 일반화 시킬수 있음을 보였다.^[3]

빛짜인 원자 모델은 원자에너지를 단독으로 고려하기 보다는 원자와 레이저 광자의 계로 보아 이 복합계의 에너지 준위를 결정한 다음 그 계에서의 자발방출로 공명성 형광을 설명하는 것이다. 이 복합계의 에너지 준위간의 쌍극자 전위와 이에 해당하는 Bohr 주파수가 형광선의 갭수와 위치를 결정하게 되고, 또 밀도 행렬의 운동방정식으로 부터 각 형광선의 세기와 진폭을 비교적 간단하게 예측할 수 있다.

본 논문에서는 열 파이프 오븐내에 발생시킨 Na 원자 기체에 Nd:YAG 레이저로 펌핑된 색소 레이저로 부터 공명 주파수 근방의 빛을 입사시키고 입사광과 수직인 방향으로 방출되는 형광 스펙트럼을 연구하였다. Na 원자는 D₁ 및 D₂의 흡수선으로 잘 알려진 3준위 원자로서 빛짜인 원자 모델에 의하면 빛과 원자간의 비선형 상호작용으로 인한 2개의 삼광자 산란(Three Photon Scattering:TPS)과 2개의 여기상태 라만산란(Exited States Raman Scattering:ESRS)에 의한 형광신호가 D₁ 및 D₂ 선에서의 형광신호와 함께 나타나게 된다. 또 여기 광인 레이저 빛의 에너지에 해당하는 에너지에서도 형광선이 나타나게 된다. 즉 보통의 약한 세기의 여기 광에서 나타나는 2개의 형광선(D₁ 및 D₂ 형광)과 달리 총 7개의 형광선들이 나타난다.^[4]

II. 이론적 배경

1. 빛짜인 원자(Dressed atom) 접근법

원자에 의한 빛의 산란은 빛의 세기가 약하다면 일반적인 섭동이론으로 이해할 수 있다. 그러나 빛이 강한 경우에는 섭동 고차항을 계속 고려하는 것이 바람직하지도 않고 수렴하지 않을 수도 있다. 빛짜인 원자 접근법은 빛과 원자를 하나의 계로 취급하여 모든 차수의 상호작용을 고려하는 방법이다.^[5]

여기상태가 e, e', \dots 의 부준위로 기저상태가 g, g', \dots 의 부준위로 이루어진 다준위 원자를 생각하자.

상호작용을 고려하지 않는다면 전체 계(원자 + 빛)의 에너지 준위는 두 개의 양자수, 즉 원자의 양자수 $e, e', \dots, g, g', \dots$ 와 ω_L 레이저 모드의 광자수 n 에 의해 매겨지게 된다. 준공명성(Quasi-resonant)의 경우, $|e, n\rangle, |e', n\rangle, \dots, |g, n+1\rangle, |g', n+1\rangle, \dots$ 준위들이 거의 축퇴되어 r 차원의 다중상태 e_n 에 해당하는 한 무리를 이루고 근접한 다중상태 e_n 과 e_{n-1} 의 거리가 ω_L 인 주기적인 에너지 구도가 형성된다(그림 1-a).

상호작용을 고려할 때는, RWA(Rotating Wave Approximation)^[6]에 의해 한 다중상태 안에서만 결합(Coupling)을 고려한다. 다중상태 e_n 에 대한 결합 Hamiltonian V 를 대각화 시키면 r 개의 새로운 고유상태 $|i, n\rangle$ 를 얻게된다(그림 1-b). $|i, n\rangle$ 은 $|e, n\rangle, \dots, |g, n\rangle, \dots$ 로 전개되며 $n\omega_L + E_i$ 의 에너지를 갖는다. $|i, n\rangle$ 은 레이저 "빛에 휩싸인 원자"의 에너지 준위라고 생각할 수 있다.^[3]

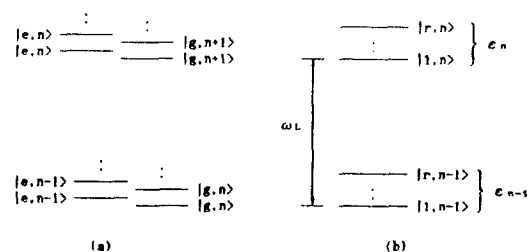


그림 1. 에너지준위 구조

이러한 계의 자발방출을 연구하기 위해서는 $|1, n\rangle$ 준위들 사이의 쌍극자 모멘트 연산자 D 가 필요하고, D 는 n 이 같은 여기준위 e 와 기저준위 g 만을 결합시키므로 근접한 다중상태 사이에서만 행렬 요소가 살아남음을 $|i, n\rangle$ 을 전개해보면 쉽게 알 수 있다.

$$\langle 1, n | D | j, n+1 \rangle = d^+_{ij} \quad (1)$$

또
$$d^+_{ij} = (d^-_{ji})^* \quad (\text{Hermitian}) \quad (2)$$

이와 같은 빛자이인 원자모델에서 천이율과 선폭에 대한 연구가 수행되어 왔다. 그 결과로 형광선의 면적(세기)은 다음과 같이 쓸 수 있음이 알려져 있다^[3].

$$\Lambda(\omega_L + \omega_{ij}) = \Gamma_{ji} \int_0^T \Pi_i(t) dt \quad (3)$$

여기서 ω_L 은 입사 레이저의 주파수, ω_{ij} 는 $\omega_{ij} = E_i - E_j$ ($\hbar = c = 1$)로 원자준위간의 에너지 차이, Γ_{ji} 는 j 및 i 준위 사이의 천이율 그리고 $\Pi(t)$ 는 i 준위의 시간 t 에서의 원자의 population에 해당한다. 통과시간이 상당히 길어서 무시될 수 있다면 식(3)은

$$\Lambda(\omega_L + \omega_{ij}) = T \Gamma_{ji} \Pi_i(\infty) \quad (4)$$

로 간단화 할 수 있다. 또 선폭을 알기 위해서는 다음의 울림 쌍극자 연산자를 보아야 한다.

$$D^+ = \sum |i, n\rangle \langle i, n | D | j, n-1\rangle \langle j, n-1 | \\ = \sum D^+_{ij} \quad (5)$$

그리고 D^+_{ij} 의 평균값이 다음식을 만족함을 알 수 있다.

$$\langle D^+_{ij} \rangle = \text{Tr} \sigma(t) D^+_{ij} = \sum d^+_{ij} \sigma^-_{ji}(t) \\ = d^+_{ij} \rho^-_{ji}(t) \quad (6)$$

그러므로 $\rho^-_{ji}(t)$ 와 $\langle D^+_{ij} \rangle(t) / d^+_{ij}$ 는 같은 식을 만족하고, $i=j$ 인 경우

$$d \langle D^+_{ij} \rangle(t) / dt \\ = [i(\omega_L + \omega_{ij}) - L_{ij}] \langle D^+_{ij} \rangle(t) \quad (7)$$

$$L_{ij} = (1/2)(\Gamma_i + \Gamma_j) - d^-_{ij} d^+_{ij} \quad (8)$$

이 성립한다. 이 식에서 L_{ij} 가 형광선의 선폭을 의미함을 알 수 있다.

2. 3 준위 원자의 형광 스펙트럼.

기저준위 g 와 여기준위 e_1, e_2 를 가진 3준위 원자를 생각하자. 두 개의 천이 $e_1 \rightarrow g, e_2 \rightarrow g$ 는 각각 ω_{01}, ω_{02} 에 해당하고 그 쌍극자 모멘트와 천이율은 다음과 같다.

$$\langle g | D | e_1 \rangle = d_1, \quad \gamma_1 = d_1^2 \\ \langle g | D | e_2 \rangle = d_2, \quad \gamma_2 = d_2^2 \quad (9)$$

ω_{01} 에 가까운 ω_L 의 레이저 빛이 입사한 경우

$$s = \omega_{02} - \omega_{01}, \quad \delta = \omega_L - \omega_{01} \quad (10)$$

하나의 다중상태는 세 준위로 구성되며(그림 2) 결합 Hamiltonian V 는 다음과 같다.

$$V = V_1 + V_2 \\ = (\Omega_1/2) \sum_n (|e_1, n\rangle \langle g, n+1| + |g, n+1\rangle \langle e_1, n|) \\ + (\Omega_2/2) \sum_n (|e_2, n\rangle \langle g, n+1| + |g, n+1\rangle \langle e_2, n|) \quad (11)$$

Ω_1 과 Ω_2 는 각 천이에 해당하는 라비 주파수로 결합 정도를 의미한다.

그림 3의 에너지 구도로 부터 가능한 천이를 생각 할 수 있고 7개의 형광신호가 나오는 것을 알 수 있다. 결합에 의한 에너지 변화가 작으므로 $\omega_{12} \approx s - \delta, \omega_{13} \approx s, \omega_{23} \approx \delta$ 로 놓을 수 있으므로 형광선의 위치는 그림 4.와 같이 7개의 형광선이 나타나게 된다. 이들 형광선의 선폭과 세기는 식(4), (7) 및 식(8)로부터 다음과 같음을 알 수 있다.

$$L_{23} = L_{32} \\ = (1/2) \gamma_1 (1 + (\Omega_2/2s)^2) + \gamma_1 \sin^2 \phi \cos^2 \phi \\ L_{21} = L_{12} \\ = (1/2) \gamma_1 \sin^2 \phi (1 + (\Omega_2/2s)^2) \\ + (\gamma_1 \gamma_2)^{1/2} \sin \phi \cos \phi \\ L_{13} = L_{31} \\ = (1/2) \gamma_1 \cos^2 \phi (1 + (\Omega_2/2s)^2) \\ + (\gamma_1 \gamma_2)^{1/2} \sin \phi \cos \phi \quad (12)$$

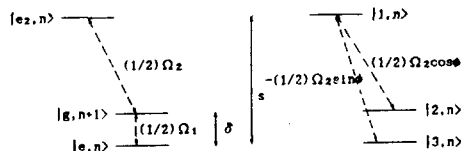


그림 2. 3준위 원자의 다중상태 ϵ_n

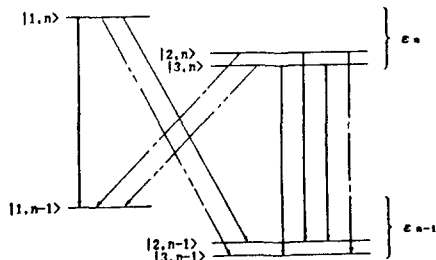


그림 3. 다중상태 ϵ_n 과 ϵ_{n-1} , 그리고 가능한 천이(일점쇄선은 삼광자산란, 이점쇄선은 여기라만산란).

$$\begin{aligned} \Lambda(\omega_L + \omega_{12}) &= \Lambda(\omega_L + \omega_{21}) \\ &= T\gamma_1(\Omega_2/2s)^2 \sin^2\phi \\ \Lambda(\omega_L + \omega_{13}) &= \Lambda(\omega_L + \omega_{31}) \\ &= T\gamma_1(\Omega_2/2s)^2 \sin^4\phi / \cos^2\phi \\ \Lambda(\omega_L + \omega_{23}) &= \Lambda(\omega_L + \omega_{32}) \\ &= T\gamma_1 \sin^4\phi \end{aligned} \quad (13)$$

또한 두 삼광자 신호의 세기 비는 아래와 같이 간단화 할 수 있다.

$$\frac{\Lambda(2\omega_L - \omega_{01} = \omega_L + \omega_{23})}{\Lambda(2\omega_L - \omega_{02} = \omega_L + \omega_{21})} = [(s/\delta)(\Omega_1/\Omega_2)]^2 \quad (14)$$

지금까지 3준위 원자에 빛자이 원자를 적용하여 형광선의 위치, 선폭, 세기를 계산하였다. 그러나 여기에는 충돌 효과^{[8][9]}가 고려되지 않았기 때문에 선폭과 세기는 실험조건에 따라서는 크게 다를 수 있다.

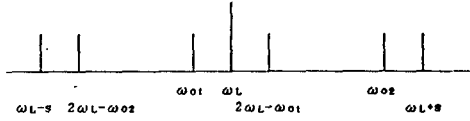


그림 4. 3준위 원자의 형광선의 위치

III. 실험 및 결과

강력한 세기의 레이저 빛에 의한 Na 에서의 공명 형광을 얻기 위하여 먼저 백색광을 이용하여 Na 원자의 공명선 $D_1(3S_{1/2}-3P_{1/2})$ 과 $D_2(3S_{1/2}-3P_{3/2})$ 에 대한 흡수 분광을 간단한 실험 장치로 얻었다. 그 결과 그림 5와 같은 결과를 얻었고 각 형광선의 위치는 아래와 같다.

$$\omega_{01}(D_1) = 5895.93 = 16960.85 \text{ cm}^{-1}$$

$$\omega_{02}(D_2) = 5889.96 = 16978.04 \text{ cm}^{-1}$$

$$s = \omega_{02} - \omega_{01} = 17.19 \text{ cm}^{-1}$$

공명형광 실험으로는 그림 6과 같은 실험장치로 Nd:YAG 레이저로 펌핑되는 색소레이저를 흡수선 근방으로 tuning 하여 열 파이프 오븐에 발생된 Na 원자기체에 입사시켜, 입사광과 수직방향으로 렌즈로 집속하고, 이중 회절분광기(Double Monochromator)와 광증배관(PMT)을 이용하여 측정하였다. 측정 간격은 0.05 Å, 적산시간(Integration time)은 2 초, 측정시 슬릿의 크기는 20 μm 였다.

실험 결과로 레이저의 출력과 주파수에 따라 다양한 모양의 스펙트럼이 나타났다. 먼저 7개의 형광선이 모두 나타난 전형적인 스펙트럼을 분석한 다음 레이저의 출력과 주파수에 따른 변화의 경향성을 각각 분석한다.

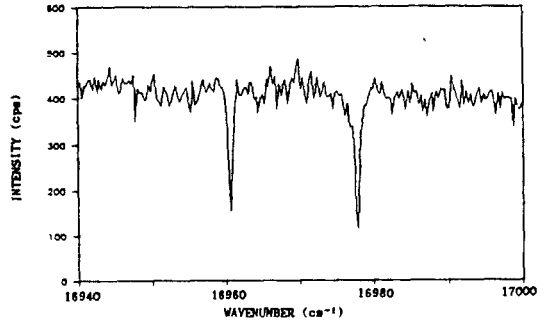


그림 5. Na 원자의 흡수스펙트럼

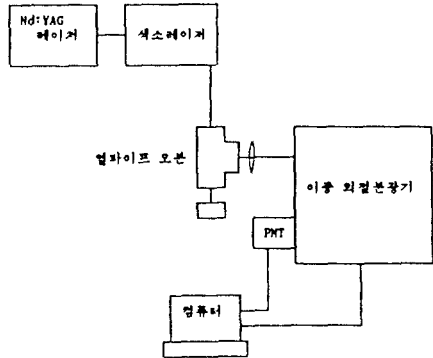


그림 6. 형광 스펙트럼 측정장치도

1. 7개 형광선의 확인

그림 7과 8의 a는 레이저 출력도 충분히 강하고 공명어긋남도 적당하여 7개의 형광선이 모두 나타날 경우이다. 레이저 주파수의 레이라이 산란과 D_1, D_2 선 그리고 두개의 삼광자(TPS) 신호와 두개의 여기 라만(ESRS) 신호가 확인 되었다(TPS는 ↓로 ESRS는 √로 표시). 레이저 출력은 같고 주파수는 앞 경우는 D_2 선에서, 뒷 경우는 D_1 선에서 각각 3 cm^{-1} 씩 어긋나 있다.

여기라만 신호는 두 경우 모두 분명하게 나타났다. 그러나 삼광자 신호 중 그림 7-a에서 D_1 선과 대칭인 것이 아주 작게 나왔다. 이것을 이해하기 위해 식(14)의 결과를 고려해 보자. s 와 δ 는 같고 Ω_1 과 Ω_2 만 뒤바뀐 셈이므로 두 경우의 삼광자 신호비의 차이는 Ω_1^2 와 Ω_2^2 의 비에서 생겼다고 볼 수 있다. 그런데 라비주파수 Ω 는 쌍극자 모멘트와 전기장의 세기에 비례하므로, 이 경우 레이저 출력이 같으므로 결국 D_1, D_2 선의 쌍극자 모멘트 d_1, d_2 의 제곱 즉 천이율에 의해 결정된다. 따라서 그림 7-a와 그림 8-a의 비교로부터 d_2 가 d_1 보다 크다는 것을 알 수 있다. 이것은 그림 5의 흡수 스펙트럼에서 D_2 선의 흡수가 더 강한 것과 일치하는 결과이다.

두 경우의 D 형광선을 비교해보면 그림 7의 형광선이 그림 8보다 세기도 크고 선폭도 넓은 것을 알 수 있다. 이것은 충돌효과가 더 크다는 것이며 결국 D_1, D_2 천이에 대한 충돌 영역 경계 주파수 δ_{21} 가

다르다는 것을 의미한다. 즉 기체의 온도, 압력과 레이저의 출력이 같더라도 천이선에 따라 δ_{ω} 가 다른 값이 됨을 알 수 있다.

형광선들의 선폭을 살펴보면 레이라이 산란을 제외 한 모든 선의 선폭이 상당히 크다는 것이 눈에 띈다. 이러한 선폭의 확대 요인^[12]으로는 여러가지를 생각할 수 있지만 기체 원자들 간의 충돌이 가장 큰 것으로 여겨지며 여기에 관해서는 좀 더 깊은 연구가 요구된다. 아울러 D 형광선들이 선명하게 갈라져 있는데 갈라진 폭이 그림 5의 흡수선의 폭과 비슷한 것으로 보아 빛을 받은 원자로부터 방출된 빛이 주위의 빛을 받지 않은 원자들에 의해 재흡수 된 것으로 생각된다^{[9][11]}.

2. 레이저 출력에 따른 변화

그림 7과 8에서 a, b, c는 레이저 주파수는 같고 출력만 서로 다른 경우의 스펙트럼이다. 세 경우의 출력의 상대비는 대략 5:3:1 이다. 레이저의 출력이 작아짐에 따라 형광선의 세기가 전반적으로 줄어들고 삼광자 신호와 여기라만 신호가 사라져 감을 볼 수 있다.

그림 7-c와 그림 8-c를 보면 삼광자 신호 보다 여기라만 신호가 먼저 사라지는데 이것은 여기라만 산란은 빛과 원자의 결합 뿐 아니라 여기원자의 수효가 전제되어야 하기 때문으로 생각된다. 또 그림 7-c와 그림 8-b를 비교해보면 D 형광선의 세기(여기원자의 수효)는 비슷하지만 빛 경우에는 여기라만 신호가 살아있다. 이것은 여기원자의 수효가 같더라도 빛과 원자의 결합이 강하면 여기라만 신호를 볼 수 있음을 의미한다.

3. 레이저 주파수에 따른 변화

그림 9는 레이저 주파수를 D 선 사이에서 2-3 cm^{-1} 간격으로 바꿔 가면서 측정한 스펙트럼을 비교를 위해 함께 그려본 것이다. 다섯 개의 스펙트럼에서 D 형광선은 모두 같은 자리에 나타나고 가장 선폭이 좁은 레이저 주파수의 형광선이 왼쪽으로 이동하면서 그에 따라 삼광자 신호와 여기라만 신호의 위치도 달라지는 것을 한눈에 볼 수 있다.

이 그림으로부터 이론의 1절에서 논의한 내용을 어느정도 확인할 수 있다. 공명 어긋남 δ 가 커져 충돌영역을 벗어나면 자발 방출 신호(D 형광선)의 세기가 작아지며 특히 d의 경우 자발 방출과 삼광자 신호의 세기가 거의 같아 이론적 계산^[11]을 뒷받침 한다. 아울러 c에서는 두신호가 중첩되어 거의 구별할 수 없기도 하지만 δ 가 좁음으로 인해 레이저 주파수의 형광선 이외의 다른 신호는 아주 작다. 이 또한 이론에서 논의한 것과 일치한다.

그림 10은 레이저 주파수가 D₁보다 작고 D₂보다 큰 경우의 스펙트럼인데 형광선의 수가 4개를 넘지 못한다. 이것은 δ 가 큰 천이선에 대해서는 빛과 원자의 상호작용이 거의 무시할만하다는 것을 의미하며 식(13)의 빛파인 원자의 계산 결과에서 D₂ 선의 삼광자 신호와 함께 여기라만 신호의 세기가 $(\Omega_2/s)^2$ 에 비례하는 것과도 연결되는 결과이다.

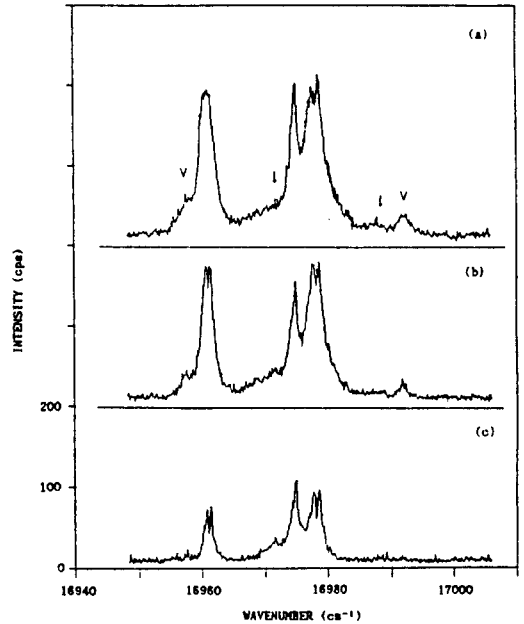


그림 7. $\omega_L = \omega_{02} - 3\text{cm}^{-1}$ 일때의 Na 원자의 형광 스펙트럼. 레이저 출력의 상대비는 a:b:c=5:3:1.

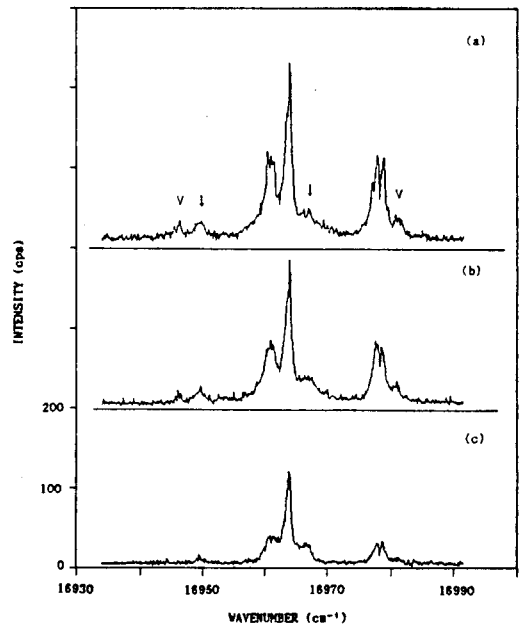


그림 8. $\omega_L = \omega_{02} + 3\text{cm}^{-1}$ 일때의 Na 원자의 형광 스펙트럼. 레이저 출력의 상대비는 a:b:c=5:3:1.

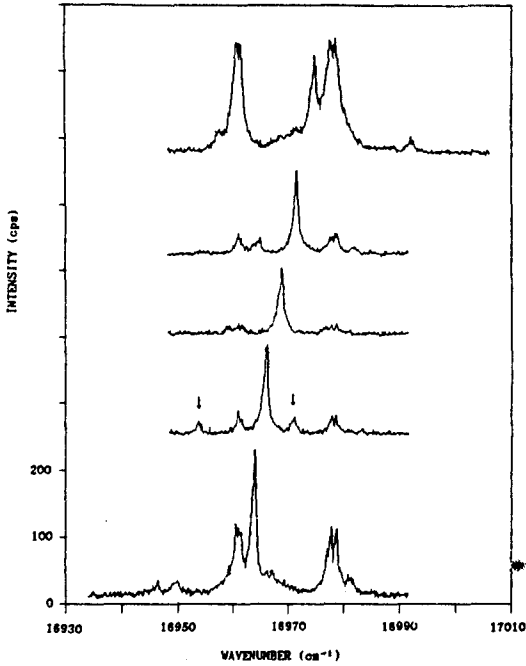


그림 9. Detuning에 따른 스펙트럼의 변화 ($\omega_1 < \omega_L < \omega_2$).

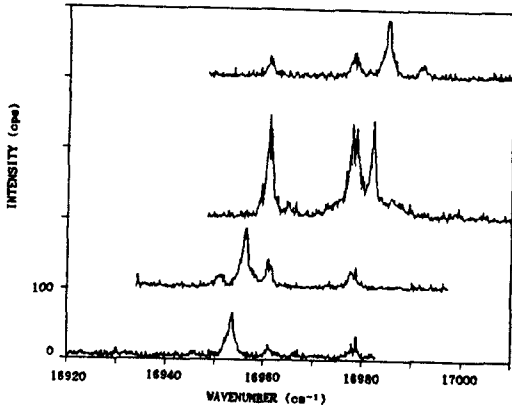


그림 10. Detuning에 따른 스펙트럼의 변화 ($\omega_L < \omega_1, \omega_L > \omega_2$).

IV. 결 론

이제까지 Na의 준공명성 형광스펙트럼을 삼광자 산란과 여기상태 라만산란을 중심으로 분석하여 레이저 산란과 두 개의 D 형광선에 두 개의 삼광자 산란 신호와 두 개의 여기상태 라만산란 신호를 합하여 모두 7 개의 형광신호를 확인하였다.

입사광이 약할 때는 입사광 주파수에 해당하는 레이저 산란 신호만 나타났다. 입사광이 강한 경우 일수록 삼광자 산란과 여기라만산란에 의한 형광 신호가 커지는데 이로부터 두 산란과정의 빛과 원자의 비선형적 상호작용에 의한 것임을 알 수 있었다. 형광선의 위치와 세기는 빛짜인 원자(dressed atom) 접근법을 3준위 원자에 적용하여 계산한 결과와 비교하였다. 공명어긋남(detuning)이 커짐에 따라 삼광자 산란 신호보다 여기라만산란 신호가 먼저 사라지는데 이는 여기라만산란이 원자간 충돌로 생기는 여기준위 원자의 수효에 크게 의존하는 것을 의미한다.

참고문헌

- [1] B.R.Mollow, *Phy.Rev.*, 188, 1969 (1969).
- [2] B.R.Mollow, *Phy.Rev. A*, 12, 1919 (1975).
- [3] C.Chohen-Tannoudji, *J.Phy.B*, 10, 345 (1977).
- [4] Y.Shevy, M.Rosenbluh and H.Friedmann, *Phy.Rev. A*, 31, 12(1985)
- [5] C.Chohen-Tannoudji, *Frontiers in Laser Spectroscopy*, Session 27 Ed. by R.Ballan etc. (1975).
- [6] *Coherent Nonlinear Optics*, Ed. M.S.Feld and V.S.Letokhov, Springer-Verlag(1980), p.170.
- [7] C.Chohen-Tannoudji, *J.Phy.B*, 10, 365 (1977).
- [8] B.R.Mollow, *Phy.Rev. A*, 15, 1023 (1977).
- [9] J.L.Calsten, *Phy.Rev. A*, 15, 1029 (1977). Addison-Wesley Reading (1967), p. 47..
- [10] C.R.Vidal and J.Copper, *J.App.Phy.*, 40, 3370 (1969).
- [11] 윤미숙, 석사학위 청구논문, "일 라이프 오븐의 제작과 특성연구"(1989).
- [12] A.E.Siegman, *LASER*, Oxf. Uni. Press (1986).
- [13] J.Huennkens and A.Gallagher, *Phy.Rev. A*, 28, 238 (1983).