

Self-Focusing/Defocusing에 의한 3차 비선형 광학계수의 측정

Measurement of Third Order Nonlinear Susceptibility
through Self-Focusing/Defocusing

이 범 구

서강대학교 이공대학 물리학과

I. 서론

강한 강도를 갖는 레이저 빛살이 물질을 통과할때 Self-focusing 또는 Self-defocusing 현상을 실험적으로 관찰할수 있다.^[1-6] 이러한 self-focusing 또는 defocusing(Self-F/D)효과는 비선형 광학적 특성의 하나로 물질의 3차 비선형 광학계수 $\chi^{(3)}$ 에 좌우된다.

물질이 갖는 3차 비선형 광학효과는 Kerr effect, Degenerate four wave mixing(DFWM), Third harmonic generation, Raman induced Kerr effect(RIKE)등의 다양한 현상으로 나타나지만, Self-F/D효과는 그것을 관측하는데 필요한 실험 장치가 비교적 간단할뿐 아니라, 그결과가 focusing인가 defocusing인가에 따라 $\chi^{(3)}$ 의 부호까지 결정할수 있어, $\chi^{(3)}$ 를 측정하는데 가장 바람직한 방법이라고 생각될 수있다. $\chi^{(3)}$ 측정에 있어 Self-F/D방법이 갖는 이와 같은 장점에도 불구하고, 1965년 Kelly의^[6] Self-F/D에 관한 선도적 이론 연구 이후 지난 25년간 Akhmanov, Wapner, Marburger, Lax, Weaire등의^[7-11]에 의해 꾸준히 이론적 발전이 이루어져 왔으나 모두 분석적 해를 구하는 과정에서 제한된 가정과 근사를 사용하여, 이들의 이론결과를 이용하여 $\chi^{(3)}$ 를 산출하는데 문제가 있다.

본 논고에서는 앞서 소개한 여러 Self-F/D에 관한 이론 중에서 현재까지 가장 널리 인용되는 Wagner, Haus 및 Marburger에 의해^[9] 전개된 이론(WHM이론)과 또 Weaire, Wherrett, Miller 및 Smith에 의해^[11] 전개된 이론(WMS이론)을 소개하고, 가상된 실험적 상황 및 물질 계수에 대해 이 두 이론의 결과를 적용하여 비교 분석함으로써 이론적 문제점을 포괄하고자 한다.

II. Self-Focusing/Defocusing 이론

주파수 ω 의 빛에 의해 물질에 유도되는 Polarization(P)가운데, 레이저와 같은 주파수 성분의 P(ω)는 3차 비선형 항까지 고려하면 다음과 같이 전개된다.

$$P(\omega) = \chi^{(1)}E + \chi^{(3)}(\omega; \omega, -\omega, \omega)|E|^2E$$

여기서 $\chi^{(1)}$ 은 선형 광학 계수이며 E는 물질내의 전기장이다. 따라서 물질내의 강한 전기장이 걸리면 물질의 유전상수 ϵ 와 굴절률 n은 선형효과만을 생각할때 유전상수 ϵ_0 와 굴절률 n_0 로부터 빛의 강도(Intensity)에 비례하여 다음과 같이 변화된다.

$$\epsilon = \epsilon_0 + \Delta\epsilon = (n_0 + \Delta n)^2 \quad (1)$$

$\epsilon_0 = 1 + 4\pi\chi^{(1)}$ 이고 $\Delta\epsilon = 4\pi\chi^{(3)}|E|^2$ 이므로, $n_0 \gg \Delta n$ 인 경우에 Δn 과 $\chi^{(3)}$ 는 n_2 의 정의와 함께 다음의 관계식으로 주어진다.

$$\Delta n = n_2|E|^2 = \frac{\Delta\epsilon}{2n_0} \quad (2)$$

여기서 $n_2 = \frac{4\pi}{2n_0}\chi^{(3)}$ 이다.

1. WHM 이론

비선형 유전을 변화 $\Delta\epsilon$ 을 포함시켜 주파수 ω 의 전기장에 대한 Maxwell 파동 방정식을 적어보면 다음과 같다.

$$\nabla^2 E + \frac{\omega^2}{c^2} (\epsilon_0 + \Delta\epsilon) E = 0 \quad (3)$$

여기서 c 는 광속이다. 공간을 원통 좌표계로 기술하여 빛의 중심이 진행하는 방향을 z -축으로 하고, z -축에 수직 방향의 거리를 r 로 잡아 전기장을 다음과 같이 표시하자.

$$E(r, z, t) = \epsilon(r, t) \exp[-i(kz + \omega t)] + \epsilon^*(r, z) [i(kz + \omega t)] \quad (4)$$

여기서 k 는 빛의 파수이며, $*$ 는 complex conjugate를 의미한다. 또 $\epsilon(r, z)$ 는 빛의 파장 정도의 거리 변화에 비해 충분히 천천히 변화하는 함수로 생각하면 (Slowly varying approximation) ϵ 에 대해 다음과 같은 근축 파동 방정식(Paraxial wave equation)을 얻는다.

$$\nabla_{\perp}^2 \epsilon + 2ik \frac{\partial \epsilon}{\partial z} = - \frac{\omega^2}{c^2} (\Delta\epsilon) \epsilon \quad (5)$$

여기서 ∇_{\perp}^2 은 z -축에 수직인 평면에서의 2차원 Laplacian 연산자이다. 다시 두 실수 함수 $A(r, z)$ 와 $\phi(r, z)$ 를 이용하여 $\epsilon = A e^{i\phi}$ 로 놓고 식(5)에 대입하여 실수부와 허수부를 구분하면 다음의 두개의 방정식을 얻는다.

$$k \frac{\partial A^2}{\partial z} + \nabla_{\perp} \cdot (A^2 \nabla_{\perp} \phi) = 0 \quad (6)$$

$$\frac{\partial \phi}{\partial z} + \frac{1}{2k} (\nabla_{\perp} \phi)^2 - \frac{k}{2} \left(\frac{\nabla_{\perp}^2 A}{k^2 A} + \frac{2\Delta n}{n_0} \right) = 0 \quad (7)$$

여기서 식(6)은 빛의 에너지 보존을 의미하는 방정식이고, 또 식(7)은 빛의 진행 경로를 결정하는 식으로 이방정식의 풀이 Hamilton의 Principle 함수와 닮았으므로, 그 해를 구하는데 이미 그 풀이 방법이 잘 알려져 있는 2차원 역학 문제로 바꾸어 생각할 수 있다. 즉, k 를 입자의 질량, z 를 시간, r 을 운동좌표로 비유할 수 있으며, 이러한 비유변환을 통해 운동에너지 K 와 위치에너지 V 는 다음과 같이 표시된다.

$$K = \frac{k}{2} \left(\frac{\partial r}{\partial z} \right)^2 \quad (8)$$

$$V(r) = - \frac{k}{2} \left(\frac{\nabla_{\perp}^2 A}{k^2 A} + 2 \frac{\Delta n}{n_0} \right) \quad (9)$$

이제 방정식 (7)의 구체적인 해로 초기에 Gaussian 빛살(TEM₀₀-mode)이 비선형 매질로 입사되었을때, 빛의 진행 과정에서 Gaussian꼴 자체는 변하지 않는다는 가정 하에 빛의 강도가 $1/e^2$ 로 되는 Gaussian빛살쪽 W 의 경로를 구해본다. 우선 Gaussian빛살의 표준형으로부터 (12), 해당하는 A 와 ϕ 는 다음과 같이 표현된다.

$$A(r, z) = A_0 \left(\frac{a_0}{W} \right) \exp(-r^2/W^2) \quad (10-a)$$

$$\phi(r, z) = - \frac{kr^2}{2z \left[1 + \left(\frac{d_0}{z} \right)^2 \right]} + \tan^{-1} \left(\frac{z}{d_0} \right) \quad (10-b)$$

여기서 $W = a_0 \sqrt{1 + \left(\frac{z}{d_0} \right)^2}$ 이며, $d_0 = \frac{\pi a_0^2}{\lambda_0}$ 이고, λ_0 는 진공에서의 빛의 파장이다. 식 (10)을 식 (9)에 대입하여 Gaussian 빛살에 대한 V 를 구해보면 다음과 같다.

$$V(r) = \frac{1}{k} \left[\frac{2}{W^2} - \frac{r^2}{W^4} - \frac{k^2 \Delta n}{n_0} \right] \quad (11)$$

여기서 Wagner 등은 식(11)의 위치에너지 표현에서 두번째 항을 무시하고 Gaussian 빛살쪽 W 에서 만의 V 를 생각하면 다음과 같이됨을 보일수 있다.

$$V(W) \approx \frac{2}{kW^2} \left(1 - \frac{P}{P_c} \right) \quad (12)$$

여기서 $P_c = \frac{1}{8} \left(\frac{\lambda_0}{2\pi} \right)^2 \frac{c}{n_2}$ 로 임계일률 (critical power)라 하고, P 는 입사된 레이저의 일률이다. 이제 에너지의 보존법칙, 즉 $\frac{1}{2} k \left(\frac{dW}{dz} \right)^2 + V(W)$ 가 일정하다는 원리를 사용하여 매질의 입사표면 ($z = 0$)에서 Gaussian 빛살의 초기조건 a_0 와 $\left. \frac{dW}{dz} \right|_0$ 에 대한 W 의 경로 방정식을 해석적으로 구할 수 있고 그 결과는 다음과 같음을 보일 수 있다.

$$\frac{W^2}{a_0^2} = \left(1 - \frac{P}{P_c} \right) \left(\frac{z^2}{d_0^2} \right) + \left[1 + \frac{dW}{dz} \Big|_0 \frac{z}{a_0} \right]^2 \quad (13)$$

2. WWS 이론

이 이론에서는 두께가 L인 비선형 매질에 입사 표면에서 빛폭이 a_0 인 Gaussian 빛살이 $\left. \frac{dW}{dz} \right|_0 = 0$ 상태로 입사 했음을 전제하고, 또 a_0 가 레이저 파장 λ_0 에 비해 대단히 큰 경우로 국한시켜 self F/D 문제를 기하 광학적 원리를 적용하여 생각한다.

상술한 조건으로 Gaussian 빛살이 매질에 입사되면 식 (2)의 굴절을 변화는 다음과 같이 표현된다.

$$\Delta n(r) = n_2 |E|^2 = n_2 |E_0|^2 \left(\frac{a_0}{W} \right)^2 e^{-\frac{2r^2}{W^2}} \quad (14-a)$$

$$\approx \Delta n_0 \left(\frac{a_0}{W} \right) \left(1 - \frac{2r^2}{W^2} \right), \quad r < W \quad (14-b)$$

여기서 $\Delta n_0 = n_2 |E_0|^2$ 이다. 이식에서 Gaussian 빛살이 물질에 입사됨으로서 굴절율은 공간적으로 불 균일함을 알 수 있고, 특히 (14-b)의 근사에서 Gaussian 빛살폭 내에서는 n_2 의 부호에따라 볼록 또는 오목 렌즈와 같은 역할을 함을 이해할 수 있다. 이때 해당되는 렌즈의 초점거리 f 는 다음과 같이 됨을 보일 수 있다.

$$f = \frac{n_0 a_0^2}{4L \Delta n_0} \quad (15)$$

이제 기하 광학적 원리로 빛의 경로를 예측하기위해, 얇은 렌즈 조건 즉

$$f \gg L \quad (16)$$

인 경우에, 물질의 선형 흡수 효과까지 고려하여 임의의 위치 r 에서 두께 L 의 매질을 통과한 후 생기는 비선형 효과에 의한 추가적 위상 변화 $\Delta \phi(r, L)$ 을 다음과 같이 계산할 수 있다.

$$\begin{aligned} \Delta \phi(r, L) &= -\frac{\omega}{c} \int_0^L \Delta n(r, z) dz \\ &= X e^{-\frac{r^2}{2a_0^2}} \end{aligned} \quad (17)$$

여기서 $X = -\frac{\omega}{c} \Delta n_0 \left[\frac{1 - \exp(-\alpha)}{\alpha} \right]$ 를 위상변이 변수 (phase shift parameter)라고 하고, α 는 이 물질

의 선형흡수계수이다. 이렇게 계산된 $\Delta \phi$ 를 고려하여, 매질 통과 직후 Gaussian 빛살의 전장의 표현은 다음과 같이 됨을 보일 수 있다.

$$\begin{aligned} \epsilon(r, L) &= A_0 \exp\left[-\frac{r^2}{a_0^2}\right] \exp(-i\Delta \phi(r, L)) \\ &= A_0 \sum_{m=0}^{\infty} \frac{(iX)^m}{m!} \exp(-r^2/a_m^2) \quad (18) \end{aligned}$$

여기서 m 은 정수이며, $a_m^2 = a_0/(2m+1)$ 이다. 이 결과는 비선형매질에 의해 빛살폭 a_0 의 Gaussian 빛은 여러 개의 빛살폭의 Gaussian 빛살의 합으로 표시됨을 뜻하고, 따라서 매질을 통과한 후 L 에 비해 충분히 큰 거리 ($z \gg L$)에서의 측정되는 빛과 관계되는 전장 ϵ 는 다음과 같이 표시된다.

$$\begin{aligned} \epsilon(r, z) &= A_0 \sum_{m=0}^{\infty} \frac{(iX)^m}{m!} \left[\frac{a_m}{W_m} \right] \times \\ &\exp(-r^2/W_m^2) \exp(-iQ_m) \quad (19) \end{aligned}$$

여기서 $W_m = a_m \sqrt{1 + z^2/d_m^2}$, $d_m = (2\pi/\lambda) a_m^2$

$$\text{또} \quad Q_m = \frac{k r^2}{2z(1+d_m^2/z^2)} - \tan^{-1}(z/d_m)$$

특히 $|X| < 1$ 인 경우에는 $m = 0$ 와 $m = 1$ 인 두 항으로 ϵ 의 완전한 결과에 충분히 가까울 것이고, 다음과 같이 두 항만으로 표시되는 빛의 광도에 관한 식으로 해당하는 실험결과와 비교 할 수 있을 것이다.

$$\begin{aligned} \frac{I(r, z)}{I_0} &= \frac{|\epsilon(r, z)|^2}{A_0^2} \\ &= \frac{\exp(-2r^2/W_0^2)}{1 + z^2/d_0^2} + \frac{X^2 \exp(-2r^2/W_0^2)}{1 + z^2/d_1^2} \\ &+ \frac{2X \exp(-1/W_0^2 + 1/W_1^2)}{\sqrt{1 + z^2/d_0^2} \sqrt{1 + z^2/d_1^2}} \sin(Q_1 - Q_0) \quad (20) \end{aligned}$$

II. 논의

앞서 전기된 두 이론의 타당성과 차이점을 논의하기 위해, 두 이론에서 얻어진 빛살쪽의 경로 방정식 (13)과 (20)을 두 이론이 요구하는 가정과 제한에 공히 부합하는, 동일한 가상의 실험조건에 적용하여 예측되는 결과를 비교해 보자.

실험에 사용하는 레이저로는 1.06μ의 파장을 갖는 Nd:YAG를 Q-Switching하여 20 nsec의 펄스폭을 갖고, 또 단위 펄스당 최대 14mJ의 에너지를 물질에 공급할 수 있는 $a_0 = 300\mu (3 \times 10^{-2} \text{cm})$ 의 Gaussian TEM₀₀-mode의 레이저 빛살을 생각하자. 비선형 매질은 선형흡수가 무시될 수 있는 Kerr type의 매질로 $\lambda_0 = 1.06\mu$ 에서 선형 굴절률 $n_0 = 2$ 이고 $\chi^{(3)} = 10^{-11} \text{esu}$ 라고 하고, 매질의 두께 $L = 0.1 \text{cm}$ 로 잡고, Gaussian 빛살은 입사 표면에서 $\left. \frac{dW}{dz} \right|_0 = 0$ 로 입사시켜 Self-F/D 실험을 한다고 한다.

첫째로 위의 가상의 상황을 WWM 이론에 적용하여 빛살쪽의 경로방정식 $W(z)$ 를 구하기 위해서는 해당식(13)으로부터 d , P 및 P_0 에 대한 수치를 구해야 한다. 상기 조건값을 대입하여

$$\begin{aligned} d &= n_0 a_0^2 / \lambda_0 = 53 \text{ (cm)} \\ P &= 14 \text{mJ} / (20 \text{ nsec}) = 700 \text{KW} \\ P_0 &= \frac{1}{8} \left(\frac{\lambda_0}{2\pi} \right) \frac{c}{n_2} \approx 3.4 \text{KW} \end{aligned}$$

로 계산됨을 보일 수 있고, Kerr 매질 내의 W 는 다음과 같이 된다.

$$\frac{W(z)}{a_0} = \sqrt{1 + \gamma Z^2} \quad (21)$$

여기서 $\gamma = (1 - \frac{P}{P_0}) / d^2 \approx -7.3 \times 10^{-2} \text{ (cm}^{-2}\text{)}$ 이다. 식 (21)의 결과를 이용하여 길이 L 의 매질을 통과한 직후, 다시 진공을 전파하는 Gaussian 빛살의 두 중요한 초기 변수들은 다음과 같이 변하게 된다.

$$W(L) = a_0' = a_0 \sqrt{1 + \gamma L^2} \approx a_0 \quad (22)$$

$$\left. \frac{dW}{dz} \right|_L = \frac{a_0 \gamma L}{\sqrt{1 + \gamma L^2}} \approx a_0 \gamma L \quad (23)$$

다시 이 두 초기 Gaussian 변수 식(22)와 (23)을 식(13)에 적용하여, 실험적으로 측정되는 $W(z)$ 를 최종적으로 구하면 다음과 같다.

$$\left(\frac{W(z)}{a_0} \right)^2 = \frac{z^2}{d_0^2} + (1 + \gamma L z)^2 \quad (24)$$

여기서 $d_0 = \frac{\pi a_0^2}{\lambda_0} = 26.7 \text{ (cm)}$ 이고 또 $\gamma L = -7.3 \times 10^{-3} \text{ (cm}^{-1}\text{)}$ 이다. 결과식 (24)가 예측하는 $W(z)/a_0$ 의 계산값들은 z 축상에서 1cm 간격으로 10cm까지 Fig. 1에, 또 5cm 간격으로 40cm까지 Fig. 2에 흰색원으로 나타나 있다. 또 Fig. 1과 Fig. 2에서 실선은 $a_0 = 3 \times 10^{-2} \text{ cm}$ 의 Gaussian 빛살이 비선형 효과 없이 자유공간에서 외접하는 경우의 $W(z)$ 를 나타낸 것이다.

마지막으로 동일한 가상 실험결과에 대해 WMS 이론으로 생각하기 전에, 앞의 가상실험 상황이 WMS 이론이 요구하는 두 개의 중요한 전제와 부합하는가를 생각해야 한다. 한 조건은 실험의 Gaussian 빛살쪽 $a_0 = 3 \times 10^{-3} \text{ cm}$ 로 $\lambda_0 = 1.06\mu$ 에 비해 대단히 크므로 만족하고, 두 번째로 가상된 여러 실험적 상황이 많은 텐즈 조건식 (16)이 성립하는가를 살펴 보아야 한다.

$$n_2 = \frac{2\pi}{n_0} \chi^{(3)} \text{ 임과 } |E_0|^2 = \frac{8\pi}{c n_0} \frac{P}{(\pi a_0^2)/2} \text{ 임을 이용하여 } P = 700 \text{KW를 대입하면}$$

$$\Delta n_0 = n_2 |E_0|^2 = 6.5 \times 10^{-5} \quad (25)$$

의 값을 얻게 되고, 다시 식 (25)의 결과를 식 (15)에 대입하여 f 를 구하면 $f = 69 \text{ cm}$ 을 얻게 되므로 조건식 (16)을 만족시킴을 알 수 있다.

또 식 (20)을 사용하기 위해서는 WMS의 중요한 위상 변이 변수 X 가 $|X| < 1$ 의 조건을 만족시켜야 하는데 본 가상 실험상황에 대해 구해보면

$$\begin{aligned} X &= - \lim_{\alpha \rightarrow 0} \left[\frac{\omega}{c} \Delta n_0 \left(\frac{1 - e^{-\alpha L}}{\alpha} \right) \right] \\ &= - \frac{2\pi}{\lambda_0} \Delta n_0 L = -0.4 \end{aligned}$$

로 계산되며, 이는 식 (20)으로 $W(z)$ 를 예측할 수 있음을 뜻한다. 상기의 본 가상 실험에 맞춰 계산된 수치들을 식(20)에 대입한 $W(z)/a_0$ 에 대한 계산값들을 z 축상에서 1cm 간격으로 10cm까지 Fig. 1에, 또 5cm 간격으로 40cm까지 Fig. 2에 흑색원으로 나타 내었다.

두 그림의 결과를 분석해보면, 두 이론 결과의 경우 모두 Self-focusing 현상을 설명해 주기는 하나, 구체적 모양에 있어 10% 정도의 차이를 주고 있다. 이 결과는 역으로 같은 실제 실험결과로부터 어떤 이론을 적용 했는가에 따라 그 물질의 $\chi^{(3)}$ 값이 다르게 산출됨을 뜻한다. 따라서 결론적으로 본 연구의 결과로부터 어느 이론이 더 타당한가에 대한 철저한 연구가 시도되어야 할 수 있고, 이를 위해 근사와 가정이 없는 원 방정식에 대한 수치해석 해에 대한 이론적 고찰과 함께, [13] 다른 비선형 실험에 의해 $\chi^{(3)}$ 가 실험적으로 잘 알려진 Kerr형 매질에 Self-F/D 실험을 통해 얻어진 결과를 실증 분석함으로써 이에 대한 답을 얻을 수 있을 것이다.

참고문헌

- 1] R.Y.Chiao, E.Garmire, and C.H.Townes, Phys. Rev. Lett. **13**, 479 (1964).
- 2] C.C.Wang and G.W.Racette, Appl. Phys. Lett. **8**, 256 (1966).
- 3] F.W.Dabby and J.R.Whinnery, Appl. Phys. Lett. **13**, 284 (1967).
- 4] J.E.Bjorkholm and A.Ashkin, Phys. Rev. Lett. **32**, 129 (1974).
- 5] A.V.Nowark and D.O.Ham, Optics Lett. **8**, 185 (1981).
- 6] I.Golub, Y.Beaudoin, and S.L.Chin, Optics Lett. **13**, 488 (1988).
- 7] P.L.Kelley, Phys. Rev. Lett. **15**, 1005 (1965).
- 8] S.A.Akhmanov, A.P.Sukhorukov, and R.V.Khokhlov, Soviet Physics Uspekhi, **93**, 609 (1968).
- 9] W.G.Wagner, H.A.Haus, and J.H.Marburger, Phys. Rev. **175**, 256 (1968).
- 10] M.Lax, W.H.Louisell, and W.B.McKnight, Phys. Rev. **A11**, 1365 (1975).
- 11] D.Weaire, B.S.Wherrett, D.A.B.Miller, and S.D.Smith, Optics Lett. **4**, 331 (1979).
- 12] H.Kogelnik and T.Li, Appl. Opt. **5**, 1550 (1966).
- 13] E.L.Dawes and J.H.Marburger, Phys. Rev. **179**, 862 (1968).

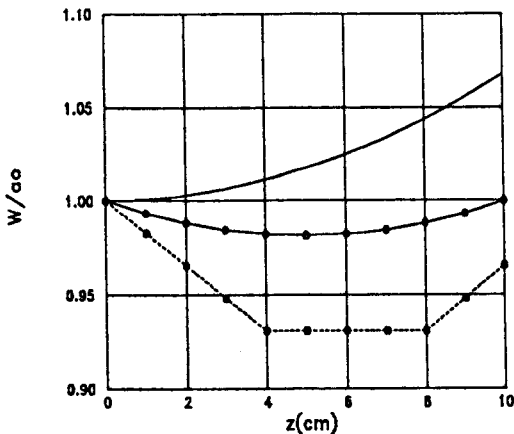


Fig. 1. Self-focusing에 의한 Gaussian 빛살 폭의 근거리 z에 대한 변화. 흰색원(WHM 이론), 흑색원(WWS 이론).

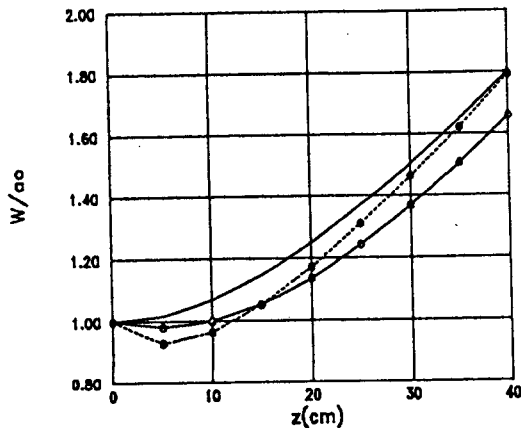


Fig. 2. Self-focusing에 의한 Gaussian 빛살 폭의 원거리 z에 대한 변화. 흰색원(WHM 이론), 흑색원(WWS 이론).