

# 공동광자감쇠 분광신호의 포화흡수 동력학에 대한 이론적 분석

## Theoretical analysis on the dynamic absorption saturation in cavity ringdown spectroscopy

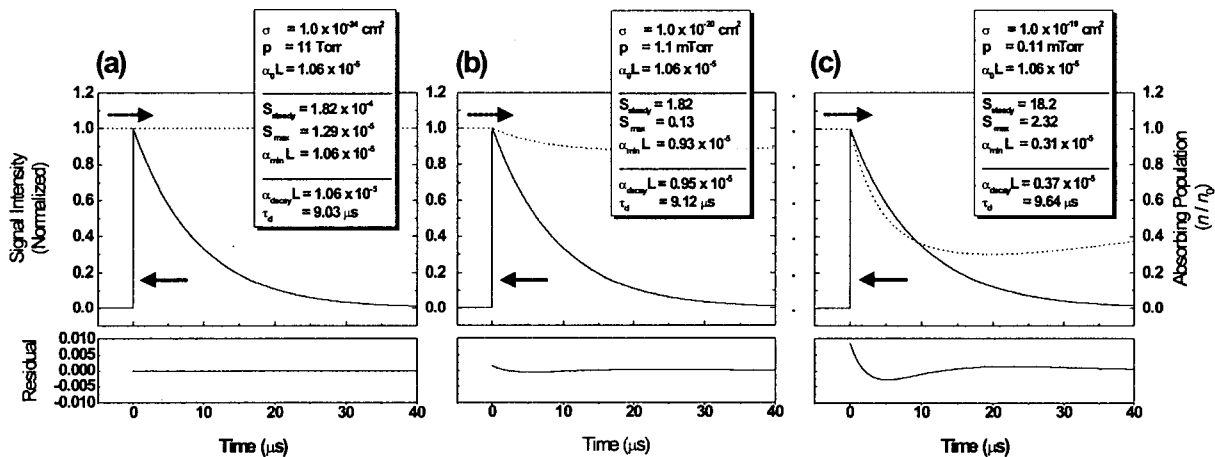
이재용, 한재원

한국표준과학연구원 광기술표준부 레이저계측 그룹

jwhahn@kriss.re.kr

공동광자감쇠 분광법 (Cavity Ringdown Spectroscopy: CRDS)은 높은 반사율의 거울로 구성된 광학 공동으로 레이저 광을 입사시킨 후 출력 거울을 통해 나온 빛의 강도 감쇠율 측정함으로써 시료를 포함한 공동 내부의 손실을 높은 감도로 측정하는 분광 기술이다.<sup>(1)</sup> 시료 흡수 및 손실의 절대량 측정이 보장되는 범위는 기본적으로 Beer 법칙을 준수하는 선형흡수 시료에 대한 측정으로 국한되는데, 이는 CRDS가 구현 원리상 단일 지수감소함수 형태의 공동광자감쇠 (CRD) 신호 획득 및 감쇠시간 결정이 전제되어야 하기 때문이다.<sup>(2)</sup> 따라서, 측정하고자 하는 시료의 포화흡수 (absorption saturation) 현상은 조사광의 초기 강도 및 시간 변화에 의존하여 비선형성을 유발하므로, 신뢰성 있는 CRDS 측정을 위해서는 반드시 고려해야 할 사항이다.

펄스 또는 연속파 레이저를 이용한 최근의 몇몇 CRDS 연구에서,<sup>(3-6)</sup> 측정시료의 포화흡수 현상 관측이 보고되었으며, 비지수 (Non-exponential) 감소 형태를 갖는 CRD 신호 측정 및 적절한 처리 방법이 논의되고 있다. 본 연구에서는 공동 내의 조사광 강도와 시료의 흡수 밀도에 대한 결합 공동 율방정식 (coupled cavity rate equation)을 이론적으로 모델링하여, 수치계산을 통해 주요 분광변수에 따른 공동 광자감쇠 신호의 비선형성 정도 및 흡수 측정에서의 발생오차를 분석하였다.



**Fig. 1.** Non-exponential CRD signals and depleted absorbing population in a pulsed CRDS system. Lower panels show the fit residuals of the non-exponential CRD signals. Parameters used in the simulation are shown in each inset: Samples are with the same single-pass absorbance  $\alpha_0 L$  of  $1 \times 10^{-5}$  and the indirect relaxation time  $T_{ind}$  set to be  $\sim 100 \mu\text{s}$ , but in different combinations of the cross-section and the pressure. The ringdown cavity with 99.99%-reflectivity mirrors in the separation of 30 cm, is excited by a laser pulse at 570-nm wavelength, delivering 5-mJ energy in the pulse duration of 5 ns and the beam diameter of 1 mm.

결합 공동 율방정식을 통한 시료 포화흡수 동력학의 분석은, 시료의 이완 시간이 매우 짧거나 긴 경우에만 적용가능한 근사를 이용해 CRDS에서의 포화흡수 효과를 조사한 이전의 연구와 달리 일반적인 시료 조건과 공동 변수에 대해서 정확한 수치 분석이 가능하다. 그림 1에서와 같이 계산된 비지수 감쇠 CRD 신호로부터 포화흡수 계수를 얻을 수 있으며, 주어진 공동 및 조사광 변수에 대해 그림 2의 결과에서 알 수 있는 바와 같이 CRDS 측정에서 시료의 포화흡수 정도를 예측할 수 있었다. 또한 본 연구에서는 수치적 곡선 맞춤 과정을 이용하여 포화흡수된 CRD 신호로부터 본래의 흡수 계수를 추출해 내는 신호처리 방법도 제안하고자 한다.

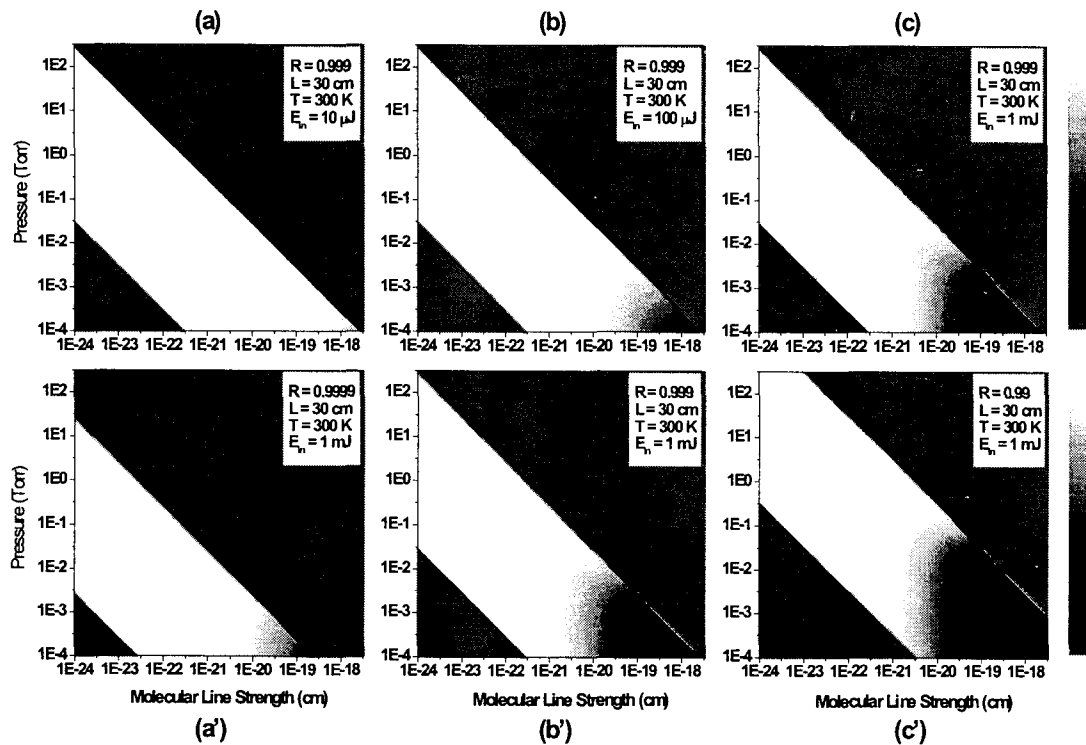


Fig. 2. Saturation-free dynamic range of the CRDS measurement depending on (a-c)the excitation pulse energy and (a'-c')cavity finesse. Dynamic ranges are determined over 2-D space of  $(n, S_{mol} = \int \sigma dv)$ , by estimating the sample depletion parameter  $D = (n/n_0)_{avg}$  at the line center of a given homogeneously broadened line. The shaded regions represent the parameter space beyond the CRDS dynamic range.

참고문헌

[1] K. W. Busch and M. A. Busch, "Introduction to cavity-ringdown spectroscopy," in Cavity-ringdown Spectroscopy: an ultratrace-absorption measurement technique, K. W. Busch and M. A. Busch, eds. (Oxford U. Press, New York, 1999), pp. 7 - 19.  
 [2] P. Zalicki and R. N. Zare, "Cavity ring-down spectroscopy for quantitative absorption measurements," J. Chem. Phys. **102**, 2708 - 2717 (1995).  
 [3] P. Zalicki, Y. Ma, R. N. Zare, E. H. Wahl, J. R. Dadamio, T. G. Owano, and C. H. Kruger, "Methyl radical measurement by cavity ring-down spectroscopy," Chem. Phys. Lett. **234**, 269 - 274 (1995).  
 [4] L. Lehr and P. Hering, "Quantitative nonlinear spectroscopy: a direct comparison of degenerate four-wave mixing with cavity ring-down spectroscopy applied to NaH," IEEE J. Quantum Electron. **33**, 1465 - 1473 (1997).  
 [5] D. Romanini, P. Dupré, and R. Jost, "Non-linear effects by continuous wave cavity ringdown spectroscopy in jet-cooled NO<sub>2</sub>," Vib. Spectrosc. **19**, 93 - 106 (1999).  
 [6] C. R. Bucher, K. K. Lehmann, D. F. Plusquellic, and G. T. Fraser, "Doppler-free nonlinear absorption in ethylene by use of continuous-wave cavity ringdown spectroscopy," Appl. Opt. **39**, 3154 - 3164 (2000).