

자외선과 가시광선 극초단 펄스 실험의 군속도 차이에 의한 시간 분해능 및 공간 겹침의 제한

김 성 규

성균관대학교 이과대학 화학과

(1994년 2월 7일 받음)

초고속 피음-들떡움 광학 실험에서 자외선과 가시광선을 쓸 때, 이들의 군속도 차이에 의한 두 펄스 겹침의 불일치를 계산하는 방법을 제시하여 이 효과에 의한 시간 분해능 및 실험 신호 세기의 제한을 논하였다. 이 결과에 의하면 단일 집속 렌즈를 사용하는 실험에서는 나쁜 시간 분해능과 약한 실험 신호를 야기시킨다. 색수차 보정 렌즈 쌍을 이용하는 실험의 해답은 비현실적이다. 그렇지만 각 펄스에 개별 렌즈를 사용하는 실험이나, 잘려진 보조 렌즈를 주 렌즈와 함께 사용하는 실험에서는 단일 렌즈를 사용하는 실험에 비해 시간 분해능 및 실험 신호 세기의 현저한 개선을 기대할 수 있다.

I. 서 론

시간 분해능이 수 내지 수십 femtosecond에 이르는 여러 광학 실험들에서,^[1,2] 실험 대상 물질의 물리적 혹은 화학적 감응과는 무관한 실험 조건상의 문제들로 인해 실험 결과의 해석이 오도될 수 있다. fs 실험의 경우 레이저 펄스 폭의 퍼짐 현상을 최소로 하는 광학 부품만을 써야 한다. 이는 비효율적인 성과 - 예를 들어, 고출력의 주파수배가 펄스를 얻기 위해 두꺼운 주파수배가 결정을 써야 할 경우-를 야기할 수도 있다. fs 실험의 광학 부품을 올바르게 선택해야 한다는 점은 자주 언급되어^[3] 실험자들 사이에 잘 인식되어 왔다. 하지만 실험자들이 간과하기 쉬운 점은 사용 렌즈의 초점 거리 및 위치, 빛의 입사각 등, 광학 도구의 기하학적인 배열에 의해서도 시간 분해능과 실험 신호의 세기가 제한을 받을 수 있다는 점이다.

후자의 경우 예를 들면, 310 nm의 레이저 펄스와 620 nm의 레이저 펄스를 가지고 cyclohexane 용매에 녹아 있는 어떤 시료에 대해서 피음-들떡움 실험을 행하는 경우를 들 수 있다. 두 자외선과 가시광선 펄스가 모두 무한히 짧은 펄스 폭을 가졌다고 가정하고 동시에 시료의 cell에 입사되었다고 하자. 이 경우 cell의 입사 지점으로로부터 1 mm 뒤의 위치에선 자외선과 가시광선의 cyclo-

hexane에서의 군속도(group velocity) 차이에 의해 가시광선 펄스가 약 0.31 ps 만큼 앞서게 된다. 따라서, 처음부터 자외선 펄스가 0.31 ps 먼저 입사된 경우와 구분이지 않는다. 이 경우 비록 시료의 감응이 순간적 이어서 시간의 계단 함수와 같더라도 약 0.25 ps의 신호 오름시간(risetime)을 유발하게 된다. 뿐만 아니라 두 펄스의 공간 겹침이 나빠지므로 실험 신호는 감소하게 된다.

위의 예는 단순한 계산으로서 대략적으로 문제점을 인식시켜 준다. 위의 상황은 두 펄스가 집속됨이 없이 colinear하게 입사된 경우에 해당되며 이 경우 군속도 차이에 의한 시간 불일치는 시료의 전 구간에 걸쳐 고르게 증가한다. 그러나 일반 실험에서는 두 펄스를 렌즈에 의해 집속시키고 일정한 입사각으로 교차시키므로 시료내에 펄스가 겹치는 공간 분포가 부분적으로만 나타나며 군속도 차이에 의한 실험 신호의 시간 불일치는 이 겹침 공간에 걸쳐서만 증가한다. 그러므로 위의 단순한 계산은 입사 방법에 대한 시간 퍼짐의 상한치인 셈이다. 각 펄스가 Gaussian 함수 등과 같은 공간 분포를 가지며 사용하는 렌즈의 종류와 입사 방법에 따라 시료내에 두 펄스가 겹치는 공간 분포를 간단한 광학 공식을 사용하여 계산할 수 있다. 군속도 차이에 의한 시간 불일치를 이 겹침 분포에 대해 가중 적분해 줌으로써 실험 신호의 시간 퍼짐을 계산할 수 있다. 본 논문에서는 실험적으로 가능한 여러 자외선-가시광선 피음-들떡움 실험

^a 신호 오름시간은 실험신호가 최대값의 10%에서 90% 까지 이르는 데 걸리는 시간을 의미.

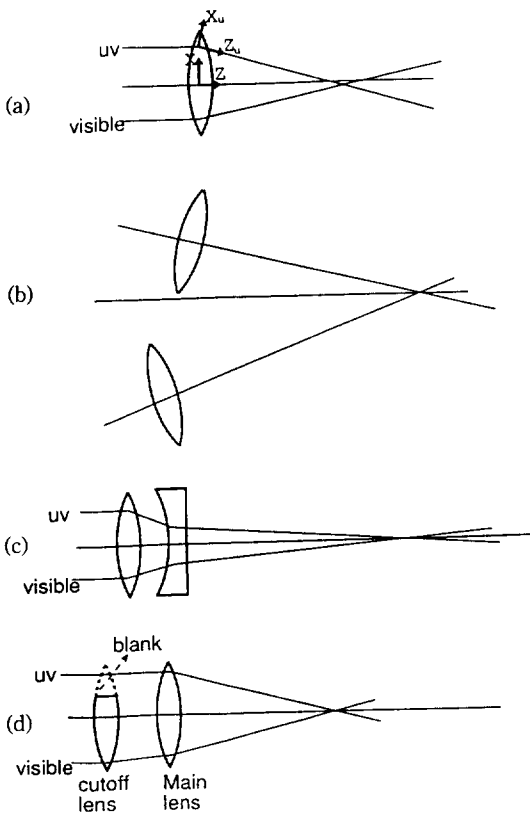


그림 1. 본 계산에 사용된 렌즈 배열. (a) 단일 렌즈 배열, (b) 개별 렌즈 배열, (c) 색수차 보정 렌즈 쌍 배열, (d) 잘려진 보조 렌즈(Cutoff lens)와 주 렌즈(Main lens) 쌍 배열.

험의 기하학적인 렌즈 배열에서 겹침 분포와 군속도 차이에 의한 실험 신호의 시간 퍼짐을 계산해 내는 방법을 설명하고, 이 방법을 써서 계산한 결과를 통해 시간 퍼짐 효과를 최소화하고 최대의 실험 신호를 얻을 수 있는 렌즈 배열을 제시하고자 한다.

II. 방 법

일반적인 띄움-들뜸 실험의 경우 광학적 배열 외에 다른 여러 요소들이 (예를 들어 빛의 세기, 시료의 빛 흡수도 등) 실험의 기기 감응 함수(instrument response function)의 결정에 영향을 준다. 본 논문의 계산은 우선 이러한 요소들의 영향을 무시하였다. 또 본 계산은 간단한 처리를 위하여 펄스의 스펙트럼 띠폭(bandwidth)을 무시하였다. 실지 fs 펄스는 상당한 스펙트럼 띠폭을

갖으므로 이 가정에 의한 본 계산의 한계는 토의 부분에서 논의를 할 것이다. 이러한 가정들 하에 실험 신호의 모양은 두 펄스 간의 cross-correlation 함수와 시료 감응 함수 간의 convolution으로 나타날 것이다. 무한히 짧은 두 펄스간의 cross-correlation 함수는 두 펄스의 군속도가 같다면 델타 함수로 나타나지만 군속도가 다르면 델타 함수에서 벗어난 모양을 보일 것이다.

Cross-correlation 함수는 띄움-들뜸 실험의 렌즈 배열에 따라 다르며 본 논문에서는 그림 1에 나타난 네 가지 경우로 분류하여 계산하였다. 그림 1-(a)은 자외선과 가시광선을 단일 렌즈로서 집속시키는 배열로서 보통 띄움-들뜸 실험에서 많이 사용한다. 그림 1-(b)는 각각의 펄스에 개별 렌즈를 사용하는 배열, 그림 1-(c)는 한 볼록 렌즈와 또 다른 오목 렌즈를 적당한 거리 만큼 떨어뜨려 놓은 배열로서 색수차 보정 렌즈 쌍(achromatic doublets)과 같은 배열이다. 그림 1-(d)는 잘려진 보조 렌즈(cutoff lens)를 주 렌즈(main lens)와 함께 사용하는 배열이다.

그림 1-(a) 배열에서 Z-축이 렌즈 중심축이고 XZ-평면은 두 펄스의 입사면이다. (X, Y, Z)의 원점은 렌즈 중심으로 잡는다. 펄스가 렌즈를 통과하면 렌즈의 초점 거리(f_a)와 입사 펄스의 렌즈 중심으로부터의 위치(X_{0a})에 따라 달라지는 각인 좌표축(X_a, Y, Z_a)을 사용해야 한다. (X_a, Y, Z_a)의 원점은 각 입사 펄스와 렌즈가 만나는 점이다. 이들 좌표계간의 변환은 식 (1)~(3)에 나타내어질 수 있다. 아래첨자 a 는 자외선(u) 혹은 가시광선(v)을 상징한다.

$$\begin{pmatrix} X_a \\ Y \\ Z_a \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \cos\theta_a & \sin\theta_a \\ -\sin\theta_a & \cos\theta_a \end{pmatrix} \begin{pmatrix} X - X_{0a} \\ Z \end{pmatrix} \quad (1)$$

$$(a = u \text{ 혹은 } v)$$

$$\theta_a = \arctan(X_{0a}/f_a) \quad (2)$$

$$f_a = f(n_p - 1)/(n_{pa} - 1) \quad (3)$$

식 (3)은 렌즈의 초점 거리(f)가 표시된 파장에서 렌즈 재질의 상굴절률(phase refractive index)은 n_p 이며 a 파장에서는 상굴절률이 n_{pa} 일 때 a 파장에서의 초점 거리 f_a 를 계산하는 식이다. 입사 펄스가 평면파이고 Gaussian 공간 분포를 지녔다고 한다면 교차점 근처의 빛의 공간 분포($I_a(X, Y, Z)$)는 식 (4)에 의해 나타내어질 것이다.

$$I_a(X, Y, Z) = \frac{2}{\pi} I_{0a} \omega_a^{-2}(Z_a) \exp\left(-\frac{2(X_a^2 + Y^2)}{\omega_a^2(Z_a)}\right) \quad (4)$$

위 식에서 I_{0a} 는 전체 광량이며 $\omega_a(Z_a)$ 는 Z_a 에서의 펄스

beam의 반지름으로서 식 (5), (6)에 의해 계산할 수 있다.^[4]

$$\omega_{\alpha}(Z_{\alpha}) = \omega_{\alpha} [1 + P_{\alpha} (f_{\alpha}^2 + X_{0\alpha}^2)^{1/2} - Z / \cos \theta_{\alpha}]^{1/2} \quad (5)$$

$$\omega_{\alpha} = (f_{\alpha} \lambda_{\alpha} / \pi \omega_{0\alpha}) / (1 + f_{\alpha} \lambda_{\alpha} / \pi \omega_{0\alpha}^2)^{1/2} \quad (6)$$

$$P_{\alpha} = ((\omega_{0\alpha} / \omega_{\alpha})^2 - 1) / (f_{\alpha}^2 + X_{0\alpha}^2) \quad (7)$$

위 식에서 ω_{α} , $\omega_{0\alpha}$ 는 각각 초점의 반지름과 입사 펄스의 반지름이며 λ_{α} 는 α 의 파장이다. 식 (1)~(7)식은 그림 1의 다른 배열에 적용할 때는 약간씩 수정을 해야 하는 데 그 내용은 아래와 같다.

그림 1-(b)는 각각의 펄스에 대해서 개별 렌즈를 사용하는 경우이다. 이 경우 Z축은 두 렌즈 축의 이분선으로 정한다. 그리고 Z_{α} 를 각 렌즈의 중심축으로 하면 식 (1)의 변환을 쓸 수 있다. 단 식 (1)의 θ_{α} 는 식 (2)에 의해 계산하지 않고 입력 변수로서 주어져야 한다.

이하 식 (1), (3)~(7)의 식은 똑같이 적용할 수 있지만 식 (1), (5), (7)에 $X_{0\alpha}=0$ 의 값을 입력하게 된다.

그림 1-(c)의 경우, 렌즈 1이 초점에서 먼 렌즈, 2가 초점에 가까운 렌즈라 할 때 두 렌즈 간의 거리가 d 라 하면 초점 거리는 다음과 같다.^[5,6]

$$f_{\alpha} = \frac{f_{1\alpha} f_{2\alpha}}{(f_{1\alpha} + f_{2\alpha} - d)} \quad (8)$$

위 식에서 $f_{i\alpha}$ 는 i 렌즈의 α 파장에서의 초점 거리이며 식 (3)과 같이 계산한다. 식 (8)의 f_{α} 는 식 (3)의 f_{α} 를 대신하여 식 (2)와 식 (5) 이하에 쓰이게 된다. 렌즈 1에 찍여 렌즈 2에 맺히는 상의 렌즈 2의 중심축까지의 거리 $X_{1\alpha}$ 와 반지름 $\omega_{1\alpha}$ 는 각각 다음과 같다.

$$X_{1\alpha} = X_{0\alpha} (1 - d/f_{1\alpha}) \quad (9)$$

$$\omega_{1\alpha} = \omega_{0\alpha} (1 - d/f_{1\alpha}) \quad (10)$$

위 식에서 계산된 $X_{1\alpha}$ 와 $\omega_{1\alpha}$ 는 식 (5)~(7)의 $X_{0\alpha}$ 와 $\omega_{0\alpha}$ 를 각각 대체하게 된다.

그림 1-(d) 배열에 대한 계산은 그림 1-(a)의 계산 방법과 1-(c)의 계산 방법을 함께 쓴다. 즉 보조 렌즈의 잘려진 부분으로 그냥 통과하는 펄스에 대해서는 식 (1)~(7)을 적용하고 (단, f_{α} 대신 $f_{2\alpha}$ 의 notation을 사용한다.) 잘려진 보조 렌즈에 의해 찍여진 펄스에 대해서는 식 (8)~(10)을 적용해야 한다.

한편 렌즈 중심축 Z 방향의 두 펄스의 공간 겹침($S(Z)$)은 다음과 같다.

$$S(Z) = \frac{1}{I_{0u} I_{0v}} \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} I_u(X, Y, Z) I_v(X, Y, Z) dXdY \quad (11)$$

식 (11)의 적분은 수치 적분 방법으로 계산할 수 있다. 즉,

$$S(Z) = \frac{1}{I_{0u} I_{0v}} \sum_{X_{min}(Z)}^{X_{max}(Z)} \sum_{Y_{min}(Z)}^{Y_{max}(Z)} I_u(X, Y, Z) I_v(X, Y, Z) \Delta X(Z) \Delta Y(Z) \quad (12)$$

식 (12)의 수치 적분이 정확하게 계산되기 위해서는 적분 구간이 무한히 커야 하고 증분이 무한히 작아야 하지만 이는 상당한 계산 시간을 요한다. 그 반대로 적분 구간이 작고 증분이 커지면 초점에 가까울수록 큰 값에 편중되는 오류를 범하게 된다. 그러므로 적분 구간 $(X_{min}(Z), X_{max}(Z))$, $(Y_{min}(Z), Y_{max}(Z))$ 와 증분 $\Delta X(Z)$, $\Delta Y(Z)$ 을 모두 beam waist $\omega(Z)$ 에 비례하도록 해 주어야 계산 시간을 절약하면서 편중되지 않은 계산을 할 수 있다.

식 (12)까지의 계산 방법은 시료에 의한 빛 흡수에 의해 빛의 세기가 시료내의 Z축을 따라 감쇠하는 효과를 고려하지 않았다. 시료의 기저 상태의 흡수만을 고려하면, 빛이 시료에 Z_0 지점에서 입사하여 Z지점까지 왔을 때까지 자외선과 가시광선이 각각 $e^{-A_u(Z-Z_0)}$, $e^{-A_v(Z-Z_0)}$ 만큼 감쇠하므로 $S(Z)$ 는 $e^{-(A_u+A_v)(Z-Z_0)}$ 만큼 감쇠한다. 여기에서 A_u , A_v 는 각각 자외선과 가시광선의 단위 길이 당 기저 상태 흡수도를 나타낸다. 또한 과도 흡수에 의한 들뜸 펄스의 감쇠를 고려해야 하는 데 이는 시료의 감응 함수가 시간에 대해 계단 함수와 같다면 띄움 펄스와 들뜸 펄스를 함께 만나는 시료의 분자수는 $S(Z)$ 에 비례하므로 $e^{-B \int_{Z_0}^Z S(Z) dZ}$ 만큼 감쇠한다. 여기서 B 는 과도 흡수도에 비례하는 상수이다. 이들을 종합하면,

$$S(Z) = S(Z) \exp\{- (A_u + A_v)(Z - Z_0) - B \int_{Z_0}^Z S(Z) dZ\} \quad (13)$$

위의 식은 흡수 효과를 무시한 식 (11)의 $S(Z)$ 를 초기 값으로 하여 반복 대입법으로 풀 수 있다.

Cross-correlation 함수 $C(t)$ 는 공간 좌표 Z를 시간 좌표로 변환하여 식 (14), (15)와 같이 계산할 수 있다.

$$t = Z(n_{gu} - n_{gv})/c \quad (14)$$

$$C(t) = S(Z_c - Z) \delta(Z_c - Z \pm L/2) \quad (15)$$

위 식에서 c 는 빛의 속도, Z_c 와 L 은 각각 시료 cell의 위치와 길이를 나타내며, n_{gu} , n_{gv} 는 각각 자외선과 가시광선 파장의 군굴절율(group refractive index)로서 문헌으로부터 상굴절율(n_p)을 찾으면^[7,8] Sellmeier 식^[9]으로부터 계산할 수 있다. 이 방법에 의해 계산되어진 t/Z 의 값은 물, methanol, cyclohexane, CS₂의 경우 각각 0.276

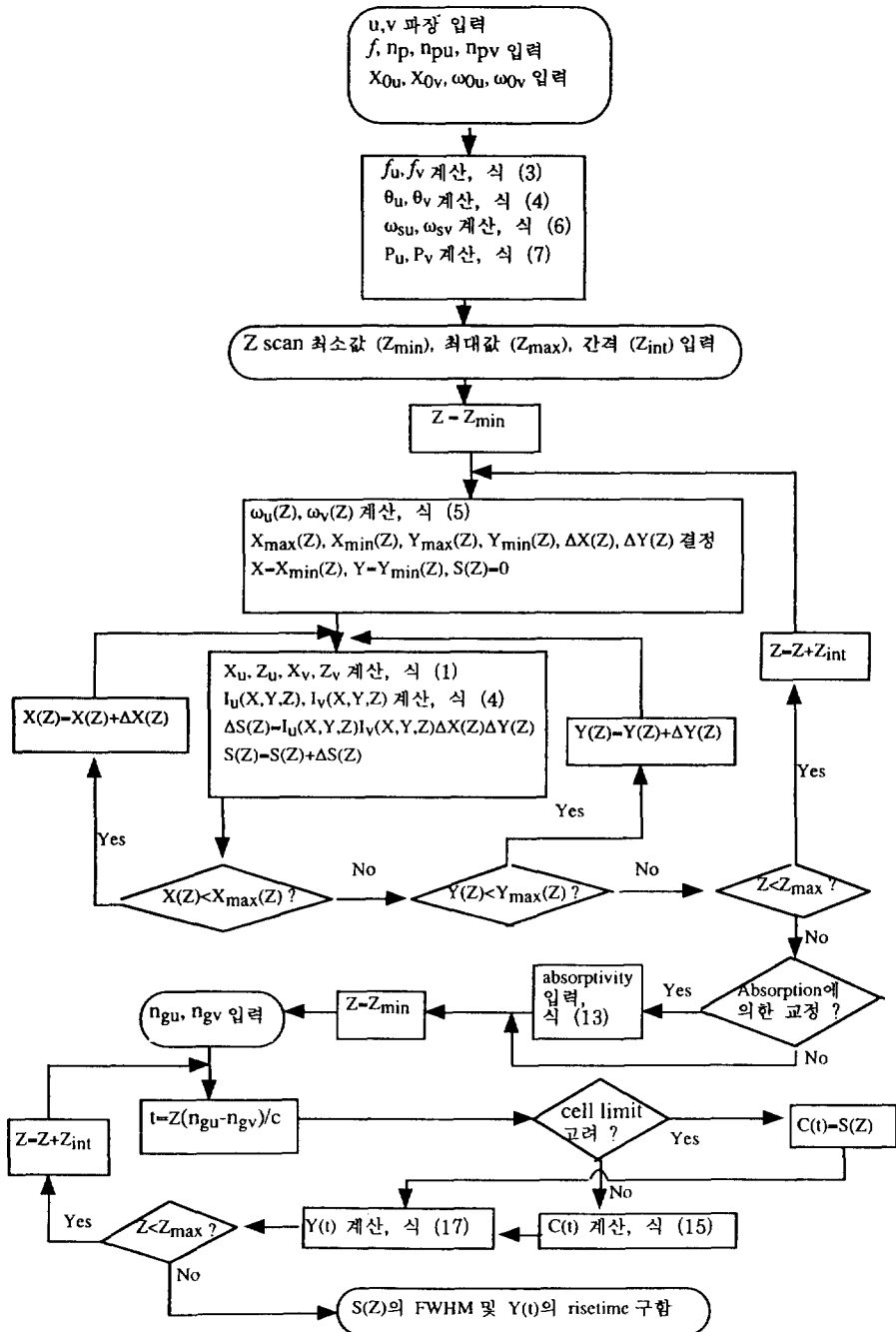


그림 2. 단일 렌즈 배열의 계산을 위한 알고리즘.

ps/mm, 0.242 ps/mm, 0.309 ps/mm, 1.77 ps/mm이다. 실험 신호 $Y(t)$ 는 $C(t)$ 와 시료 감응 함수 $R(t)$ 의 convolution으로 주어질 것이며 $R(t)$ 가 델타 함수와 같은 실험

에서는 (예를 들어 sum frequency generation과 같은 실험) 그 convolution이 $C(t)$ 이다. 이 경우 실험 신호의 최대 세기는 $C(t)$ 의 최대값, 즉 $C(0)$ 일 것이다. $R(t)$ 가

계단 함수일 때 $Y(t)$ 는 $C(t)$ 의 시간 적분이다. 이 경우 실험 신호의 최대 세기는 $Y(\infty)$ 일 것이다.

$$Y(t) = \int_{-\infty}^{\infty} C(\tau)R(\tau-t)d\tau \quad (16)$$

$$= \begin{cases} C(t), & (R(t) \text{가 델타함수일 때}) \\ \int_{-\infty}^t C(\tau)d\tau, & (R(t) \text{가 계단함수일 때}) \end{cases} \quad (17)$$

그림 2는 지금까지 제시한 계산법을 단일 렌즈 배열에 대해서 적용할 때 사용한 알고리즘이다. 다른 배열의 알고리즘도 이미 설명한 차이점을 고려하여 유사하게 만들 수 있을 것이다.

III. 결과 및 토의

본 계산을 여러 입력 변수들에 대해서 계산할 수 있지만 620 nm의 가시광선 펄스와 310 nm 펄스가 입사한 경우에 대해서만 논하겠다. 이들 파장은 fs 펄스가 가장 용이하게 만들어지는 Colliding Pulse Mode-locked 염료 레이저의 기본 발진 파장과 그 주파수 배가 파장이다. 특별한 언급이 없는 한, 각 입사 펄스의 반지름은 1.5 mm이고 렌즈에 수직하게 입사되며 두 펄스간의 간격은 10 mm이고 (그림 1-(b) 배열은 예외) 자외선용 렌즈는 synthetic fused silica, 가시광선만 투과하는 렌즈는 BK7의 굴절율에 대해서 계산하였다. 또 시료의 용매는 cyclohexane이며 시료의 감응은 델타함수나 계단 함수와 같이 순간적인 경우만을 논할 것이다.

그림 3은 두 펄스의 파장이 각기 310 nm와 620 nm이고 지름이 모두 3 mm이며 10 mm 간격으로 평행하게 날아오다가 63 mm의 초점 거리(500 nm에서 결정된)를 갖는 synthetic fused silica 렌즈에 그림 1-(a)와 같이 입사되었을 때 계산된 $S(Z)$ 의 모양이다. 공간 겹침 $S(Z)$ 은 두 펄스가 각기 집중되는 곳들의 중간 지점에서 최대값을 가지며 $S(Z)$ 의 FWHM (Full Width at Half Maximum) 값은 1.15 mm임을 보이고 있다. 두 펄스가 한 렌즈에 평행하게 입사된 경우 자외선 펄스는 가시광선 펄스와 다른 위치에 집중된다. 63 mm 렌즈를 사용하였을 경우 그림 3에 나타난 바와 같이 이 초점 거리의 차이는 3.7 mm에 달한다. 이 차이는 한 쪽 펄스를 기울인다거나 렌즈 중심축에 평행 이동하여 입사하는 방법으로는 완전히 해결할 수 없다. (참고문헌 10에 의하면 자외선 입사 펄스를 렌즈 중심축에 평행하게 이동하여 초점 거리의 차이를 0.2 mm까지 줄일 수 있음을 시사한다.) 그 결과 두 펄스는 넓은 공간에 걸쳐 겹침이 일어나며 따라서 약한 실험 신호를 낼 뿐만 아니라 시간 분해능도 나빠

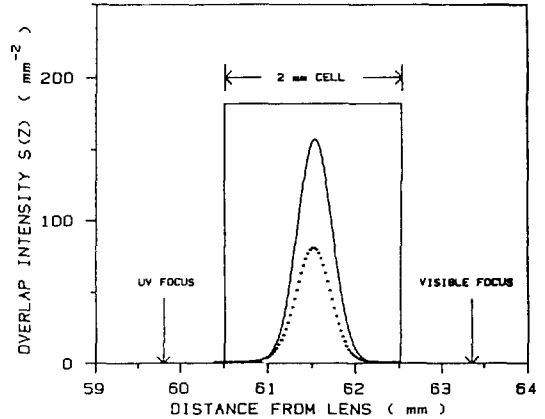


그림 3. 단일 렌즈 배열의 계산되어진 $S(Z)$. 63 mm 초점 거리 렌즈가 사용되어졌으며 각 펄스는 렌즈축으로부터 5 mm 떨어져서 평행하게 입사되었다. 그 외의 계산 변수들은 본문에 언급되어진 데로다. 실선은 시료에 의한 흡수를 고려하지 않은 계산이며 점선은 80%의 자외선 흡수도와 20%의 가시광선 과도 흡수도를 감안한 계산 결과이다. 그 외에 직사각형은 2 mm 시료 용기를 나타내며 자외선과 가시광선이 집중되는 위치를 표시하였다.

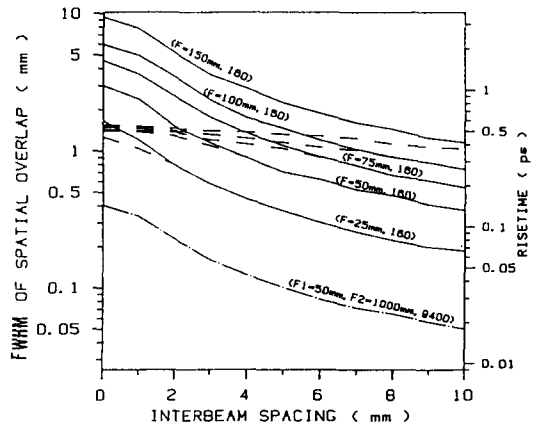


그림 4. 단일 렌즈 배열과 잘려진 보조 렌즈 배열의 계산 결과. 왼쪽 축: $S(Z)$ 의 FWHM (Full Width at Half Maximum), 오른쪽 축: cyclohexane이 용매일 때 $Y(t)$ 의 신호 오름 시간 (risetime), 실선: 단일 렌즈 배열의 계산, --- 선: 단일 렌즈 배열의 계산이 2 mm 시료 cell에 의해 제한된 경우, -.-.- 선: 잘려진 렌즈 쌍 배열의 계산. 계산에 사용된 렌즈의 초점 거리 (mm)와 $C(0)$ 값(mm^{-2})을 괄호 안에 나타내었다. $Y(\infty)$ 의 값은 근사적으로 $C(0)$ 와 $S(Z)$ 의 FWHM의 곱에 비례한다.

진다. 그림 3의 점선은 자외선이 시료 용기에서 80% 기저 상태 흡수를 일으키며 가시광선이 20% 과도 흡수되는 경우의 계산 결과이다. 흡수를 무시하고 계산한 굵은 선과 비교할 때 $S(Z)$ 의 퍼짐은 큰 차이를 보이지 않는다.

그림 4에서는 그림 1-(a) 배열에서 렌즈의 초점 거리와 두 펄스 간의 간격을 바꿔가면서 계산해 낸 결과를 도시하였다. 짧은 초점 거리의 렌즈를 사용할 수록 또 두 펄스간 간격이 좁을 수록 시간 분해능은 좋아짐을 보이고 있으나 대부분 0.1ps 이상이며 $C(0)$ 의 값도 160 mm^{-2} 정도이다. 한 쪽 펄스를 약간 기울인다 해도 두 초점이 서로 만날 수는 없으므로 이 렌즈 배열로서는 현저한 개선을 기대할 수 없다. 따라서 이러한 문제를 해결하기 위한 다른 광학 배열이 요구된다.

그림 1-(b)와 같이 각 펄스에 대해 개별 렌즈를 사용하는 방법이 있다. 그림 5에 여러 가지 렌즈 쌍을 사용했을 때의 결과를 나타내었다. $S(Z)$ 의 FWHM 값은 두 펄스의 교차각에 대해 매우 민감함을 보인다. 두 펄스의 교차각이 커지지만 시간 퍼짐이 작음을 의미한다. $C(0)$ 값은 교차각에 대해 차이를 보이지 않으나 $Y(\infty)$ 값은 근사적으로 $C(0) \cdot (S(Z)$ 의 FWHM)에 비례할 것이므로 교차각이 커질수록 민감하게 감소한다. 즉, 시료 반응 함수가 계단 함수와 같은 실험에서는 교차각이 커야 좋은 시간 분해능을 얻을 수 있겠지만 이와 반비례해서 실험

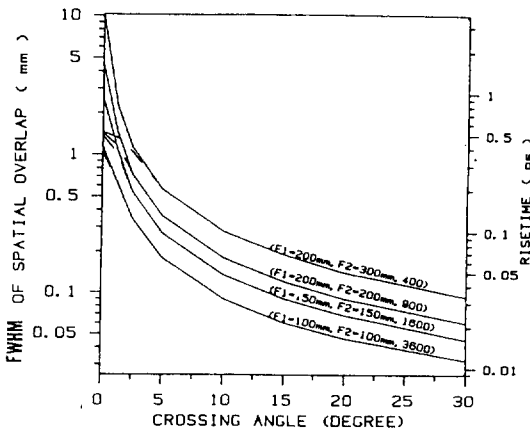


그림 5. 개별 렌즈 배열의 계산 결과. 왼쪽 축: $S(Z)$ 의 FWHM, 오른쪽 축: cyclohexane이 용매일 때 신호 오름 시간(risetime), 실선: 시료 cell에 대한 제한 없음, ---선: 각 계산이 2mm 시료 cell에 의해 제한된 경우. 계산에 사용된 렌즈의 초점 거리(mm)와 $C(0)$ 값(mm^{-2})을 괄호 안에 나타내었다. $Y(\infty)$ 의 값은 근사적으로 $C(0)$ 와 $S(Z)$ 의 FWHM의 곱에 비례한다.

표 1. 개별 렌즈 배열에서 두 렌즈에 의한 초점이 불일치를 일으킬 때의 공간 겹침 계산 결과. 두 렌즈의 초점 거리는 150 mm, 교차각은 20° 이다.

초점거리 불일치 (mm)	$C(0)$ (mm^{-2})	$Y(\infty)$ (mm^{-1})	$S(Z)$ 의 FWHM (mm)	$Y(t)$ 의 신호 오름시간 (ps)
0	1620	117	0.065	0.023
1	1230	102	0.077	0.027
2	719	78	0.095	0.034
3	424	60	0.13	0.046
5	183	39	0.20	0.071
8	77	26	0.31	0.11
12	42	19	0.43	0.15

신호의 세기는 감소할 것이다.

또 이 배열은 두 렌즈의 초점 위치를 정확히 일치시켜야 하는 까다로움이 있을 것이다. 표 1에서는 특히 초점 거리가 150 mm인 두 렌즈를 사용하고 교차각이 20° 일 때 두 초점이 불일치를 일으키는 경우의 계산 결과이다. 두 초점이 일치했을 때는 $C(0)$ 의 값은 1600 mm^{-2} , $Y(\infty)$ 의 값은 117 mm^{-1} 이고 시간 퍼짐은 0.023 ps 정도이다. 하지만 두 초점 위치가 5 mm 불일치했을 때 $C(0)$ 값은 약 9배, $Y(\infty)$ 값은 약 4배, 시간 퍼짐은 약 2.5배 정도 나빠짐을 보이고 있다.

두 펄스를 평행하게 입사시켜야 하는 경우라면 그림 1-(c)와 같이 볼록렌즈와 오목렌즈 쌍을 사용할 수 있을 것이다. 가시광선 영역에서는 볼록렌즈와 오목렌즈가 서로 접합된 색수차 보정 렌즈 쌍(achromatic doublets)이 상업적으로 만들어지고 있다. 그 두 렌즈는 반경이 서로 같지만 다른 종류의 재료로 만들어져 있다. 그렇지만 이런 방법은 자외선 펄스가 관여하는 본 연구 대상에서는 비실용적이다. 왜냐하면 자외선 영역에서는 굴절률의 변화가 심하고 자외선을 투과하는 물질의 종류는 적어지기 때문이다. 만일 같은 물질의 오목렌즈와 볼록렌즈를 조합하여 사용하려면 실패하고 만다. 왜냐하면 아래 식 (18)을 만족하는 두 렌즈간의 거리 d 는 양의 해가 없기 때문이다.

$$\text{조합렌즈의 초점 거리} = \frac{f_{2u}(f_{1u}-d)}{f_{2u}+f_{1u}-d} = \frac{f_{2v}(f_{1v}-d)}{f_{2v}+f_{1v}-d} > 0 \quad (18)$$

위 식에서 f_{iu} 는 i 렌즈의 u ($=u$ 혹은 v , 자외선 혹은 가시광선) 파장에서의 초점 거리이다. 위 식의 양의 해 d 는 렌즈 곡률이 다른 재료로써 만들어진 두 오목-볼록

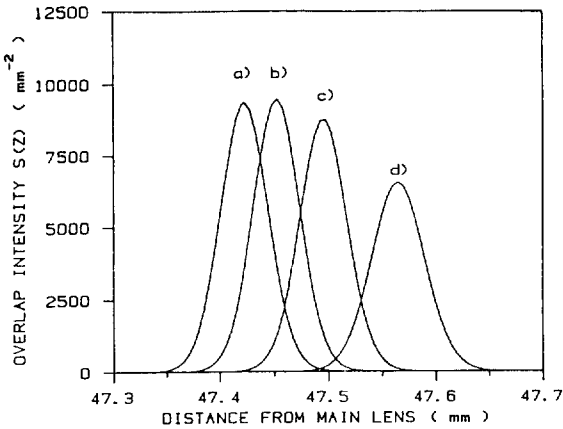


그림 6. 잘려진 보조 렌즈와 주 렌즈 쌍 배열의 $S(Z)$. 잘려진 보조 렌즈의 초점 거리는 1000 mm이고 본 렌즈의 초점 거리는 63 mm이며 두 렌즈 간의 거리는 a) 186 cm (최적), b) 166 cm, c) 136 cm, d) 86 cm이다.

렌즈 쌍의 경우 존재할 수 있지만 그 해답은 비실용적이다. 예를 들어, 50 mm 초점 거리를 갖는 sapphire 볼록 렌즈와 -50 mm 초점 거리의 synthetic fused silica의 경우 d 의 값은 2 mm의 해를 얻는 데 초점은 두 번째 렌즈로부터 약 2000 mm에 형성된다. 결국 색수차 보정 렌즈 쌍의 경우 자외선과 적외선의 초점 거리 차이를 완전히 해결하지 못한다.

그 반면 그림 1-(d)와 같이 두 렌즈 중 첫 번째 렌즈는 잘라 자외선이나 가시광선 중 하나는 그냥 통과시키고 다른 하나는 굴곡시키고 두 번째 렌즈에 의해 두 펄스를 공통집속시키는 방법을 쓸 수 있다. 이 배열을 만족시키는 렌즈 쌍은, 실용적인 면을 고려할 때, 1000 mm의 초점 거리를 갖는 렌즈를 잘라 가시광선만을 굴곡시키고 이어서 50 mm 초점 거리의 synthetic fused silica 렌즈로써 자외선, 가시광선을 공통집속시키는 방법이 있다. 이 경우 두 렌즈간의 거리는 186 mm이어야 한다. 또한 방법은 -1000 mm의 초점 거리를 갖는 잘려진 synthetic fused silica로써 자외선을 굴곡시키고 가시광선은 그냥 통과시켜 63 mm 렌즈로써 공통집속시키는 방법이 있는데 이 경우 120 mm가 두 렌즈간의 최적 거리이다. 그 외의 경우는 비실용적인 해답을 준다. 그림 4에서는 전자의 렌즈 쌍을 사용하였을 때의 계산 결과를 보여주는 데 잘라진 보조 렌즈가 없는 경우와 비교하기 위해서 그림 1-(a) 배열의 계산 결과와 함께 도시하였다. 그림 4는 잘라진 보조 렌즈의 사용에 의해 보통 띄움-띄움 배열보다 약 7배의 시간 분해능과 60배 이상의 공간

검침의 개선을 얻을 수 있음을 보여주고 있다. 이 배열은 또한 두 렌즈 사이의 거리가 최적에서 조금 벗어나도 큰 영향이 없음을 보여 준다 (그림 6).

마지막으로 펄스의 스펙트럼 띠폭(linewidth)에 의한 본 계산의 한계에 대해서 논하겠다. fs 펄스는 상당한 띠폭을 갖으므로 본 계산에서 가정된 띠폭에 의한 군속도 퍼짐 효과의 무시는 상당한 도전을 받을 수 있다. 추가 증폭과 펄스 압축 없이 레이저 발진기만에 의해서 만들어지는 펄스의 최소 폭은 현재 20 fs 정도이다. 이 펄스는 620 nm에서 만들어졌다면 약 24 nm 정도의 스펙트럼 띠폭을 갖는다. 이 펄스를 주파수 배가하면 310 nm에서 약 12 nm의 띠폭을 갖는 펄스를 얻게 될 것이다. 참고 문헌 9의 계산에 의하면 cyclohexane의 경우 (또 대부분의 다른 용매의 경우도 같은 내용) 군굴절율은 310 nm에서 1.544, 350 nm에서 1.526, 620 nm에서 1.452, 650 nm에서 1.448이다. 따라서 스펙트럼 띠내에서의 군굴절율의 차이(0.01 이하)는 자외선과 가시광선의 군굴절율의 차이(약 0.1)에 비해 매우 작다고 할 수 있다. 물론 스펙트럼의 띠폭이 더 크거나 자외선의 파장이 310 nm 보다 짧은 경우에는 띠폭내의 군속도에 의한 영향을 무시할 수 없게 될 것이므로 본 논문의 간단한 계산은 유효하지 못하다.

IV. 결 론

본 논문에서는 자외선과 가시광선을 동시에 사용하는 띄움-띄움 실험에서 자외선과 가시광선의 군속도 차이에서 발생하는 시간 및 공간 퍼짐을 계산하는 방법을 제시하여 여러 렌즈 배열에 적용하였다. 계산 결과에 의하면 단일 렌즈 배열로서는 시간 분해능이 좋지 않으며 약한 공간 검침을 야기한다. 자외선과 가시광선 각각에 개별 렌즈를 사용하는 경우는 이 점들을 많이 개선할 수 있지만 큰 교차각을 사용해야 한다거나 두 초점을 정확히 일치시켜야 하는 까다로움이 있다. 색수차 보정 렌즈 쌍은 비현실적인 해답만을 준다. 한편 잘려진 보조 렌즈를 주 렌즈와 함께 사용하는 배열에서는 단일 렌즈 배열에 비해 현저한 시간 분해능과 공간 검침의 개선을 기대할 수 있다.

참 고 문 헌

[1] R. L. Fork, C. H. Brito-Cruz, P. C. Becker and C. V. Shank, *Opt. Lett.* **12**, 483(1987); J. A. Valmanis, R. L. Fork, J. P. Gordon, *Opt. Lett.* **10**, 522(1985); R. L. Fork, O. E. Martinez and J. P.

- Gordon, *Opt. Lett.* **9**, 150(1984); R. L. Fork, C. V. Shank, R. Yen and C. A. Hirshman, *IEEE J. Quantum Electron.* **19**, 500(1983).
- [2] C. P. Huang, M. T. Asaki, S. Backus, H. Nathel, H. C. Kapteyn and M. M. Murnane, *Ultrafast Phenomena VIII*, 160(1993); Ch. Spielmann, P. F. Curley, T. Brabec, E. Wintner, A. J. Schmidt and F. Krausz, *Ultrafast Phenomena VIII*, 163 (1993); C. P. Huang, H. C. Kapteyn, J. W. McIntosh and M. M. Murnane, *Opt. Lett.* **17**, 139 (1992).
- [3] A. M. Weiner, J. G. Fujimoto and E. P. Ippen, *Opt. Lett.* **10**, 73(1985).
- [4] A. Yariv, *Optical Electronics*, 3rd ed. (CBS College Publish., New York 1985), p30.
- [5] E. Hecht and A. Zajac, *Optics* (Addison-Wesley, Reading, 1979), pp. 99-160.
- [6] G. R. Fowles, *Introduction to Modern Optics*, 2nd ed. (Holt, Rinehart and Winston, New York, 1968), pp. 294-304.
- [7] Landolt-Börnstein, *Eigenschaften Der Materie in Ihren Aggregatzuständen*, 8. Teil *Optische Konstanten*, (Springer-Verlag, Berlin-Göttingen-Heidelberg, 1962).
- [8] R. K. Freier, *Aqueous Solutions 2*, (Walter de Gruyter, Berlin, New York, 1978).
- [9] M. R. Topp and G. C. Orner, *Opt. Commun.* **13**, 276(1975).
- [10] A. C. Hardy and F. H. Perrin, *The Principles of Optics*, (McGraw-Hill, New York, London, 1932), Ch2.

Limitations of Time Resolution and Spatial Overlap Caused by Group Velocity Mismatch in Experiments Using Ultrashort UV and Visible Optical Pulses.

Seong Kyu Kim

Department of Chemistry, Sung Kyun Kwan University, Suwon 440-746, Korea

(Received: February 7, 1994)

The method of calculating overlap dispersion caused by group velocity mismatch between uv and visible pulses in ultrafast pump-probe experiments is presented to discuss limitations of the time resolution and signal intensity. The calculations show arrangements using a single focusing lens shall result in undesirable time resolution and low signal intensity. Achromatic doublets result in unrealistic solutions. However, dramatic improvement in the time resolution and signal intensity is expected in the optical arrangements using separate lens for each pulse and in the arrangements using a cutoff secondary lens with a main lens.