

원자분광용 Littman형 고체상태 색소 레이저 발진기

**Solid-State Dye Laser Oscillator with a Littman Configuration
for Atomic Spectroscopy**

임 권, 고도경, 김현수, 남성모, 차병현, 이종민

한국원자력연구소

대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

원자분광용 Littman형 고체 색소레이저 발진기를 제작하였다. PMMA에 Rh-6G가 주입된 고체 색소셀을 제작하여 고체 색소 레이저의 이득매질로 사용하였다. 자체 제작된 고체 색소셀의 특성평가를 위해 투명도 및 편평도 등을 He-Ne 레이저와 간섭계를 이용하여 상용화된 고체 색소 셀과 비교 분석하였다. 고체 색소레이저는 반복률 10Hz Nd:YAG 레이저 제 2 고조파로 펌핑되었으며 색소 레이저의 파장가변영역은 약 30nm이상 이었고 기울기 효율은 약 1.2%이었다. 이 때 단일 종모드로 발진된 레이저 광의 선폭은 1.5GHz로 매우 좁은 선폭을 가짐을 확인하였다.

Abstract

A solid-state dye laser oscillator with a Littman configuration for atomic spectroscopy and a Rh-6G doped PMMA solid-state dye for the gain medium was manufactured. We have measured the transparency, flatness of the manufactured solid-state dyes using a He-Ne laser and an interferometer and compared with those of the commercial solid-state dyes. The solid-state dye

laser was pumped by a second harmonic of a Nd:YAG laser with a repetition rate of 10Hz. The tuning range of the dye laser was more than 30nm and the slope efficiency was 1.2%. When it is operated in a single longitudinal mode, the measured linewidth of the laser beam was 1.5GHz which was sufficiently narrow for the application to atomic spectroscopy.

1. 서론

원자분광용 파장가변 레이저로서 색소 레이저가 널리 사용되는데, 파장가변영역이 근자외선영역에서 근적외선영역까지 매우 광범위하다. 또한, 원자로 주변의 대기를 원격 감시하는 데 사용되는 LIDAR 시스템 등에도 사용되는데 이 때 레이저 시스템은 소형화 될수록 레이저의 이동 및 휴대가 편리하여 여러 곳의 대기를 원격 분석하는 데 용이하다. 대개의 색소에서 얻을 수 있는 파장가변영역은 약 수십 nm 정도이다. 따라서 이 영역을 벗어난 다른 영역의 파장을 필요로 할 경우에는 그에 적당한 색소로 교환하여 사용하게된다. 현재까지 사용되고 있는 색소 레이저에서는 알콜과 같은 용매에 색소를 녹이고 색소 순환기를 이용하여 액체상태의 색소용액을 색소 셀에 흐르게 하여 사용하고 있다. 이와 같은 액체상태의 색소용액 순환방식에서 색소를 교환할 경우에 색소용기, 필터, 순환펌프, 튜브 및 색소 셀 등을 세척하여 사용하여야하므로 많은 불편을 가지게 되고, 액체의 순환으로 발생할 수 있는 진동 및 유체의 불균일한 흐름은 안정적인 레이저 발진의 장애요소가 될 수 있다. 또한 레이저 시스템을 구성할 때 광학부품 이외의 색소용액 순환기 시스템이 첨가됨으로써 시스템의 소형화를 이룰 수 없다. 이와 같은 액체상태의 색소를 사용하는 것에 비해 고체상태의 색소를 사용하면 색소교환이 용이하고, 안정적으로 레이저 주파수를 유지하기에 유리하며 초소형화의 레이저 시스템을 제작할 수 있게 된다.

고체상태의 색소를 사용하게 된 것은 1967년 B. H. Soffer와 B. B. McFarland^[1]의 시도로부터 시작되었고, 플라스틱이 고체 상태 호스트로 사용되어 색소가 첨가된 경우에 대하여 연구되었다^[2-3]. Poly(methylmethacrylate)(PMMA)는 액체 상태로 존재하는 MMA(methylmethacrylate) 모노머에 중합반응을 일으

키는 계시제(initiator)로서 AIBN(azo-bis-isobutyronile)이나 Benzoyl Peroxide를 첨가하고 색소를 잘 희석한 뒤에 이를 열처리함으로써 고체상태의 색소가 형성된다. 이러한 고체상태 색소 레이저에서 주된 관심사중의 하나는 레이저 수명이며 이는 호스트 매질에 의해서 향상될 수 있다. 1990년대부터 폴리머를 호스트물질로 하는 고체상태색소의 광안정성(photostability)와 변환효율^[7,18]들이 연구되었고 F. J. Duarte^[10,12,13,15-17]는 고체색소를 이용한 소형 발진기를 구성하였다. PMMA에 2-hydroxyethyl methacrylate(HEMA)^[19]과 Dimethyl sulfoxide(DMSO)를 첨가하여 고체상태색소를 제작한 것을 MPMMA(modified PMMA)^[11]라 하며 MPMMA는 MMA와 HEMA의 배합비에 따라서 색소의 형광세기 및 레이저 이득과 발진 파장에서 차이를 갖는다고 보고된 바 있다^[19]. Silicate 혼합물에 색소를 첨가하고 Sol-gel 기술^[5,6,14]을 이용하여 제작되는 고체상태색소에 관한 연구는 Sulforhodamine 640를 첨가한 경우에서 파장 630nm의 레이저 발진이 성공하였고^[4], 다양한 종류의 색소를 이용하여 레이저 파장 400nm에서 800nm까지 넓은 영역에서 발진이 성공한 경우도 있다^[8]. 최근 UV 파장영역의 색소를 첨가하여 좁은 선폭의 레이저를 발진시킨 경우도 보고된 바가 있다^[20].

고체상태의 색소는 액체상태의 색소와는 달리 색소가 순환되지 않기 때문에 여기광원의 지속적인 펌핑을 받으므로, 레이저 수명과 변환효율은 색소 자체의 수명과 밀접한 관련이 있다. 이러한 이유로 인하여 고효율의 레이저 색소 Pyromethene 계열^[9]이 고체 상태의 첨가 색소로 사용되어 레이저 수명을 증가시켰고, 발진기와 같은 작은 출력을 필요로 하는 경우에 액체 상태의 색소 레이저 출력특성과 비교될 만 한 실험 결과들이 발표되고 있다. 뿐만 아니라, 소형의 고체색소 레이저는 넓지 않은 공간에 설치할 수 있고 색소의 교환의 편의성 때문에 의료용 레이저에서도 사용분야가 확대될 수 있다.

본 연구에서는 PMMA에 색소 Rhodamine 6G를 첨가한 고체색소를 제작하여 하였으며 제품으로 상용화된 고체색소의 특성과 비교하였다. 고체 색소의 표면 편평도와 투명성은 간섭계와 He-Ne 레이저를 이용하여 조사되었다. 색소 레이저 발진기는 Littman형 공진기로 구성되었다. 여기광원이 Nd:YAG 레이저의 제 2 고조파이고 반복률은 10Hz이다. 색소 레이저의 종모드 구조, 발진 스펙트럼, 출력과 변환효율등이 측정되었다.

2. 본 론

레이저 색소가 첨가된 고체 상태 폴리머 호스트 PMMA의 제작되는 과정은 열처리에 의해 진행된다. 제작방법은 기초 경화 단계는 완전한 액체상태를 점도가 있는 액체상태로 전환시키는 단계이다. 모노머에서 폴리머 단계로의 첫중합 단계가 된다. 소량의 MMA 모노머를 100°C까지 온도를 올리면서 서서히 교반 하여준 뒤 다시 소량의 MMA를 주입하여 모노머가 끓는 것을 막고 80°C정도까지 유지한다. 다시 온도를 90~95°C를 유지하면서 점도를 유지한다. 이 과정을 반복하여 1 liter의 제법 점도 있는 액체상태를 유지하여준 뒤에 60°C까지 온도를 내려주어야 한다. 주의사항은 공기중의 10%이상 MMA의 가스가 분출되어도, 불꽃발생 시에 화재의 위험이 있다. 따라서 공기의 순환이 잘 이루어지는 곳에서 하여야 한다. 경화제(AIBN), 이형제 및 색소의 첨가단계에서 색소혼합액을 형틀에 주입한다. 중탕하듯이 물 속 수온이 45~50°C를 유지하여준다. 자체중합과정에서 열이 발생하므로 온도의 유지가 매우 중요하며 이 때 표면의 거칠기 및 공기입자의 발생률이 좌우된다. 48°C이하의 온도를 유지하는 것이 매우 중요하다. 약 10시간이 지나면 거의 고체상태로 전환된다. 그리고 경화 상태의 경도를 높이는 단계로서 PMMA를 열처리하는 과정은 95°C에서 2시간동안 유지하여줌으로써 완전히 고체상태로 전환된다.

고체상태색소의 내부 투명성을 조사하기 위하여 파장 612nm의 TEM₀₀ 모드, 빔 퍼짐도 1.04mrad을 갖는 He-Ne 레이저(Research Electro-Optics, Inc. Model : LHOR-0300)를 사용하였다. 그림 1을 보면, He-Ne 레이저 빔을 고체상태색소에 집속하는 렌즈로 초점거리가 200mm인 것이 사용되었고, 렌즈로 입사되는 레이저 빔의 직경이 약 5mm이었다. 그림과 같이 고체상태색소 시편에 투과된 빔을 측정하였는데 색소시편을 등간격 거리 50mm마다 이동시킬 때에 각각의 레이저 빔의 직경이 다르게 하였다. 시편은 미국 ELK 회사의 제품으로서 구입이 되었는데 첨가된 색소를 사양을 알려주지 않고 있기 때문에 Spectrophotometer를 이용하여 흡수도를 측정하여 본 결과, Rhodamine 계열로 판단되고 파장은 532nm에서 흡수도가 높게 측정되었다. 그리고 제작된 시편은 Rhodamine 6G(Exiton 회사)의 색소를 첨가하여 제작되었다. 제작된 고체 색소셀은 앞서 언급된 색소제작기법으로 만

들어 쪼고 색소가 균일하게 녹아있도록 하기 위해서 에탄올에 색소를 녹이고 이를 MMA와 혼합된 것이다. 상용화된 고체상태색소의 경우에 대한 측정된 결과, 그림1의 (a)에서 (e)는 거리 L1에서 L5까지 위치를 이동하면서 투과된 레이저 빔을 나타낸 것이다. 그림 1의 (e)는 렌즈의 초점거리에서 색소 시편을 공간적으로 상하좌우로 약 수 mm이동하여 여러 다른 위치에서도 균질한 지를 측정한 것이다. 초점거리에서 He-Ne의 레이저 빔의 직경이 약 수백 μm 이내가 되므로 고체상태색소 내부의 미세한 입자에 의한 산란 광들이 측정되었다. 마찬가지로 제작된 시편의 경우에 대한 결과도 그림 1의 (f)에서 (k)까지 측정되었다. 이 시편의 제작에서 색소분말이 잘 녹지 않아 일부분에서 균질성이 제대로 유지하지 못하였으나 분말의 완전히 녹은 부분에서는 상용화 고체상태색소에서의 결과와 비슷한 경향을 주고 있다. 물론 산란광의 빔 형태는 좋지 않았다. 간섭계(Zygo Corp.)를 이용한 두 시편의 편평도는 그림2의 (a)와 (b)에서 보여주듯이 간섭무늬 사이의 간격이 상용화 제품의 경우 등간격으로 측정되었으나, 제작된 고체 색소셀은 간섭무늬상의 왜곡이 있었다. 레이저 이득매질이 두께가 균일하지 못하고 내부에 이 물질 등이 있다면, 공진기내에서 round-trip하는 광 경로 진행을 바꾸거나 광 산란을 일으키므로 고체상태색소에서 투명성과 편평도는 레이저가 발진할 때 매우 중요한 특성이 된다. 또한 출력된 레이저의 횡모드의 변화에도 영향을 주게된다. 단일 종모드의 레이저 발진실험에서는 ELK사의 고체상태색소로 가능하였다. 따라서 다음의 제시되는 발진특성은 상용화 고체 색소에 대한 것들이다.

색소 레이저 발진기는 그림 3과 같이 종펌핑 구조의 Littman형 공진기로 구성되어 있다. Groove수 2400lines/mm의 홀로그래픽 회절격자(Edmund Industrial Optics 회사)로 비스듬이 입사되는 각은 거의 88° 이상을 유지한다. 후면경과 동조거울의 반사율은 파장영역 550nm~650nm에서 99%이상이다. 공진기 길이는 6cm로 매우 작게 구성되었고, stepping motor가 부착되어 있는 rotation stage(Newport사의 모델 471 series)를 이용하여 동조거울을 회전시키게 되어있다. 펌프 광은 반복률 10Hz, 펄스 폭 5ns의 Q-스윕징된 Nd:YAG 레이저(Quantel BrilliantB 회사)의 제 2조화파이다. 종펌핑 구조로 펌프 광을 집속시키기 위해 사용된 렌즈는 초점거리가 20cm이다. 집속 렌즈의 거리 조절에 의해서 고체 색소에서 집속면적이 달라지면 단면적당 레이저 세기가 변화한다. MPMMA에서 색소의

광표백(Photobleaching) 효과가 일어나는 문턱 에너지 밀도는 약 $0.7\text{J}/\text{cm}^2$ 이다. 또한, MPMMA의 경우에 물리적 손상이 일어나는 문턱 에너지 밀도는 약 $13\text{J}/\text{cm}^2$ 이다. 펌프광의 펄스당 에너지가 약 1mJ 이하에서 펌핑 면적 수백 μm 정도이면, 여기시킬 때 조건으로서 안정되었다고 할 수 있다.

레이저 발진 스펙트럼을 측정하기 위해 사용된 분광기(Oriel 회사, 모델 77200)는 길이 $1/4$ meter이고 입사슬릿의 간격이 $120\mu\text{m}$ 일 때, Groove 수 $1200\text{lines}/\text{mm}$ 인 회절격자에 의한 분해능은 약 0.1nm 정도이다. 스펙트럼이 분해된 것을 측정하는 데는 Photodiode Array Detector 모듈(Oriel 회사, 모델 77107)을 이용하였다. 그림 4와 같이 파장영역 $570\text{nm}\sim 605\text{nm}$ 에서 파장변화가 가능하였다. 레이저의 종모드 구조를 측정하기 위하여 두께 10mm , 파장 590nm 에서 반사율 95% 의 에탈론(CVI)을 사용하였고, 색소 레이저 파장 590nm 에서 에탈론 간섭무늬를 측정한 것이 그림 5이다. 에탈론의 자유 스펙트럼 영역(FSR)이 10GHz 이다. 레이저의 선폭을 다음의 식 $\Delta\nu = \nu_{\text{FSR}} \left(\frac{\nu'^2 - \nu^2}{\nu_2^2 - \nu_1^2} \right)$ 에 의해 계산해보면 약 1.5GHz 임을 알 수 있었다. 공진기 길이에 의한 종모드 간격은 약 2.5GHz 가 된다. 이 때의 펌프광의 에너지는 $1\text{mJ}/\text{pulse}$ 이었고 좁은 선폭의 레이저를 발진시키기 위하여 주의 할 점은 렌즈의 집속거리를 조절하여 단위면적당 펌프에너지를 조절하여주는 것이다. 또한 회절격자로 입사되는 레이저 광의 입사각을 최대한 크게 하여주는 것 중요하다. 그러나 회절격자는 입사 각이 크면 1차 회절빔의 효율이 매우 떨어져서 레이저의 레이징 문턱에너지 보다 낮게되면 발진하지 않을 수도 있다. 그래서 처음에는 입사각을 작게 하여 레이저를 발진시키고 조금씩 입사각을 크게 하여 레이저의 선폭을 안정적으로 유지하였다. 펌핑 spot size는 수백 μm 의 직경정도에서 되도록 작게 하여 주고 펌프 에너지를 $0.5\sim 1\text{mJ}/\text{pulse}$ 유지하는 것이 좋다. 그림 6의 레이저 출력 값은 종모드가 다중 모드의 레이저를 발진시키는 경우에 대하여 측정된 것이다. 레이저의 기울기 효율은 약 1.2% 이었으며, 레이저 펄스 폭은 약 3ns 이었다.

3. 결 론

PMMA를 이용한 고체상태색소를 제작하고 제작된 시편과 상용화된 제품의 투명성과 편평도를 측정한 결과, 미세입자에 의한 산란 광이 발생할 수 있음을 확인하였다. 따라서 고체 색소의 제작시에 미세 입자들을 필터링 해야함을 알 수 있었다. 종펌핑형 Littman 발진기에서 단일 종모드로 발진된 레이저 광의 경우에서 펌프 광의 에너지 1mJ/pulse로 여기하였을 때, 좁은 선폭 1.5GHz의 레이저를 발진시키는 데 성공하였으며 다중 모드의 레이저로 발진할 경우에는 파장 570nm~605nm까지 약 30nm이상의 파장 폭에서 파장변화가 가능하였고, 펌프 에너지 1mJ/pulse ~ 8mJ/pulse에서 기울기 효율은 약 1.2%이었다.

이상과 같은 고체상태 색소 레이저 발진기의 출력 특성과 고체색소의 특성이 조사되었다. 본 연구에서 수행된 고체상태 색소 레이저는 고분해능의 공진기 길이 6cm인 소형 발진기로서 이동 및 휴대하기 편리한 장점을 지니고 있다. 이는 파장 가변 레이저의 광원으로서 원자분광 분야 및 의료용 레이저 분야 등에서 유용하게 활용될 수 있을 것으로 기대된다.

참고논문

- [1]. B. H. Soffer and B. B. McFarland, "Continuously tunable narrow-band organic dye lasers", Appl Phys. Lett, 10, 266 (1967).
- [2]. O. G. Peterson and B. B. Snavely, "Stimulated emission from flashlamp-excited organic dyes in polymethyl methacrylate", Appl Phys. Lett, 12, 238 (1968).
- [3]. D. A. Gromov, K. M. Dyumaev, A. A. Manenkov, A. P. Maslyukov, G. A. Matyushin, V. S. Nechitalo, and A. M. Prokhorov, "Efficient plastic-host dye lasers", J. Opt. Soc. Am. B 2, 1028-1031(July 1985).
- [4]. F. Salin, G. Le Saux, P. Georges, A. Brun, C. Bagnall and J. Zarzycki, "Efficient tunable solid-state near 630 nm using sulforhodamine 640-doped silica gel", Opt. Lett, 14, 785-787(3 May 1989).
- [5]. E. J. A. Pope, M. Asami, and J. D. Mackenzie, "Transparent silica gel-PMMA composites", J. Mater. Res, 4, 1018-1026(1989).
- [6]. Edward T. Knobbe, Bruce Dunn, Peter D. Fuqua, and Furnito Nishida, "Laser behavior and photostability characteristics of organic dye doped silicate gel materials", Appl. Opt, 29, 2729-2733(20 June 1990).
- [7]. K. M. Dyumaev, A. A. Manenkov, A. P. Maslyukov, G. A. Matyushin, V. S. Nechitalio, and A. M. Prokhorov, "Dyes in modified polymers: problems of photostability and conversion efficiency at high intensities", J. Opt. Soc. Am. B 9, 143-151(January 1992).
- [8]. D. Lo, J. E. Parris, J. L. Lawless, "Laser and fluorescence properties of dye-doped sol-gel silica from 400nm to 800nm", Appl. Phys. B 56, 385-390(28 February 1993)
- [9]. Robert E. Hermes, Toomas H. Allik, Suresh CHandra, J. Andrew Hutchinson, "High efficiency pyrromethene doped solid-state dye lasers", Apl Phys. Lett, 63, 877-879(16 August 1993).
- [10]. F. J. Duarte, "Solid-state multiple-prism grating dye laser oscillators",

- Appl Opt, 33, 3857-3860(20 June 1994).
- [11]. A. Maslyukov, S. Sokolov, M. Kaivola, K. Nyholm, and S. Popov, "Solid-state dye laser with modified poly(methyl methacrylate)-doped active elements", Appl Opt, 34, 1516-1518(20 March 1995).
- [12]. F. J. Duarte, "Opportunity beckons for solid-state dye lasers", Laser Focus World 31(5), 187-189 (1995).
- [13]. F. J. Duarte, "Solid-state dispersive dye laser oscillator: very compact cavity", Opt. Commun, 117, 480-484 (15 June 1995).
- [14]. Mark D. Rahn and Terence A. King, "Comparison of laser performance of dye molecules in sol-gel, polycom, ormosil, and poly(methyl methacrylate) host media", Appl Opt, 34, 8260-8271(20 December 1995).
- [15]. F. J. Duarte, A. Costela, I. Garcia-Moreno, R. Sastre, J. J. Ehrlich, T. S. Taylor, "Dispersive solid-state dye laser oscillators", Opt. Quantum Electron, 29, 461-472 (1997).
- [16]. F. J. Duarte, "Multiple-prism near-grazing-incidence grating solid-state dye laser oscillator", Opt. Laser Technol, 29, 513-516 (1997).
- [17]. F. J. Duarte, T. S. Taylor, A. Costela, I. Garcia-Moreno, and R. Sastre, "Long-pulse narrow-linewidth dispersive solid-state dye laser oscillator", Appl Opt, 37, 3987-3989 (20 June 1998).
- [18]. Sergei Popov, "Dye photodestruction in solid-state dye laser with a polymeric gain medium", Appl Opt, 37, 6449-6455(20 September 1998).
- [19]. Shirn M. Giffin, Iain T. Mckinnie, William J. Wadsworth, Anthony D. Woolhouse, Gerald J. Smith, Tim G. Haskell, "Solid state dye lasers based on 2-hydroxyethyl methacrylate and methyl methacrylate co-polymers", Opt. Commun, 161, 163-170(1 March 1999).
- [20]. S. K. Lam, X.-L. Zhu, D. Lo, "Single longitudinal mode lasing of coumarin-doped sol-gel silica laser", Appl Phys, B 68, 1151-1153(1999).

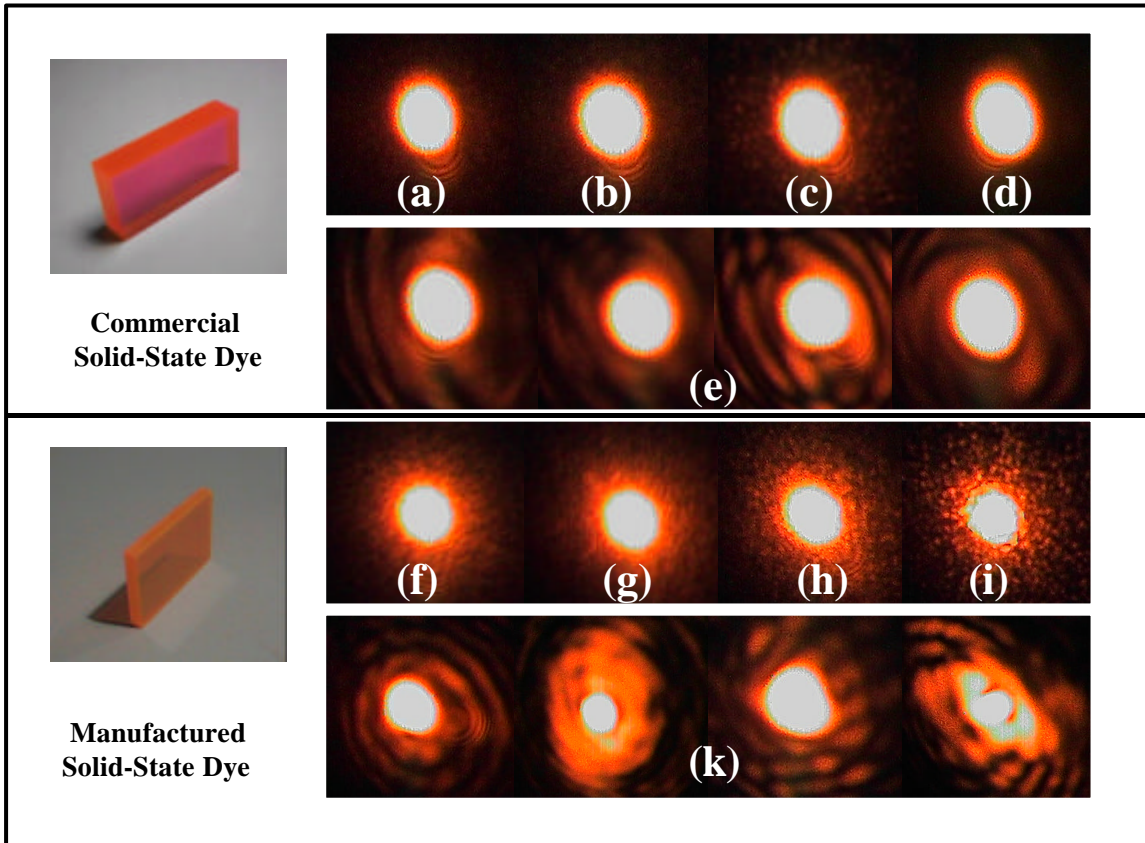
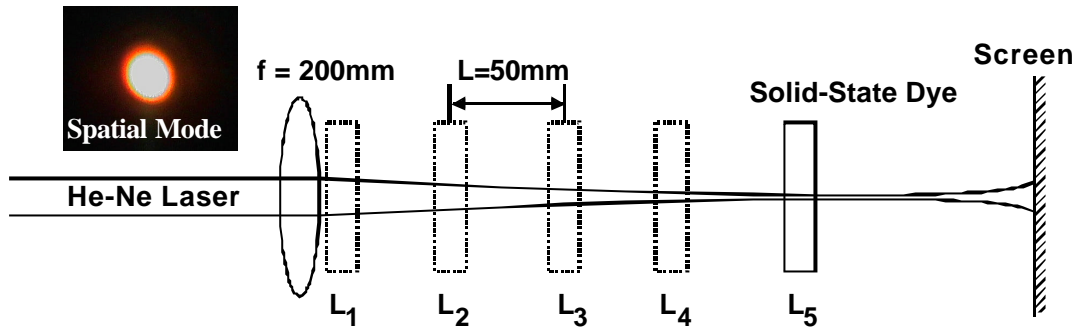
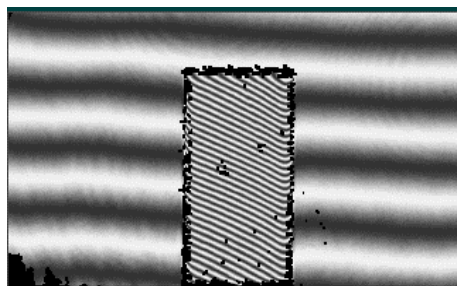
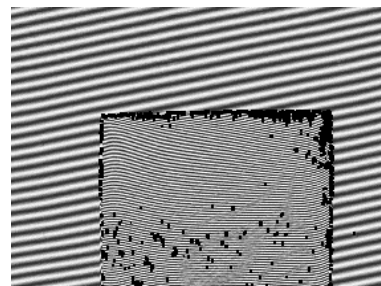


그림 1. 고체상태 색소 셀을 투과한 He-Ne 레이저 광의 공간분포.



Commercial Solid-State Dye



Manufactured Solid-State Dye

그림 2. Zygo를 이용한 간섭계 사진.

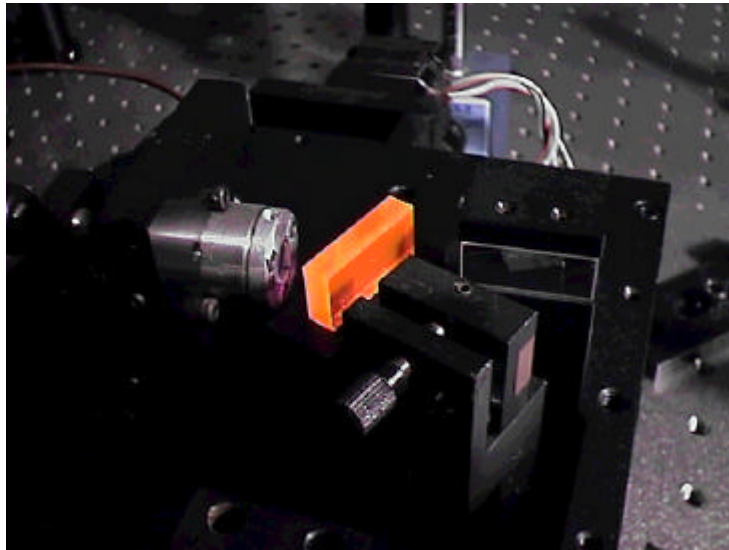


그림 3. Littman형 발진기형 고체상태 색소 레이저.

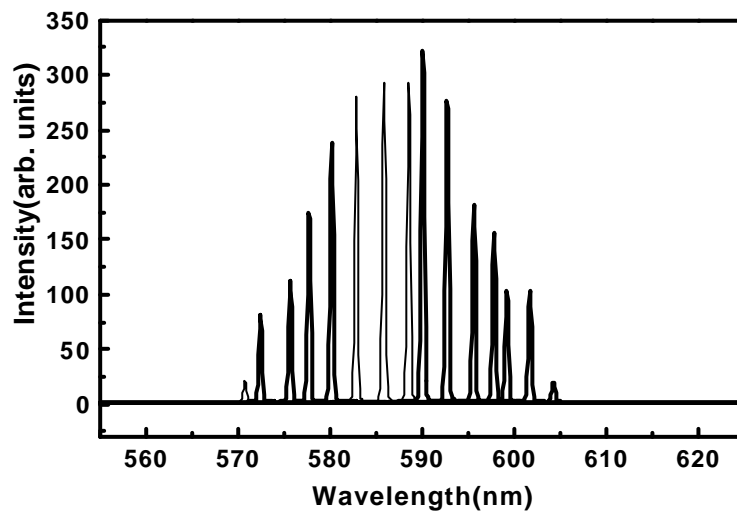


그림 4. 고체상태 색소 레이저의 파장가변 스펙트럼.

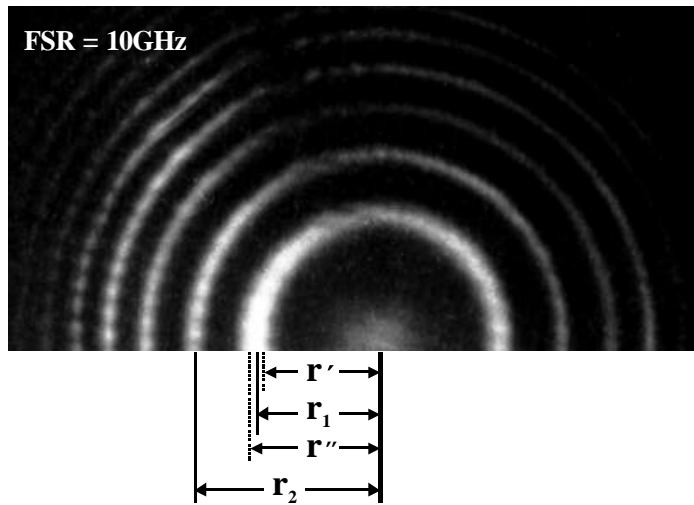


그림 5. 단일 종모드로 발진할 경우에 측정된 색소 레이저 광의 에탈론 간섭무늬.

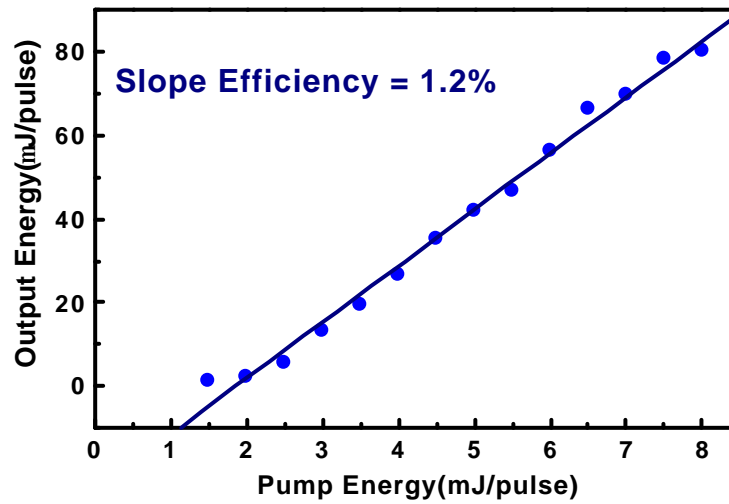


그림 6. 다중 종모드의 레이저로 출력될 때의 출력과 기울기 효율.