

고속 고분해 테라헤르츠 시간영역 분광기

김영찬 · 김기복 · 이대수[†]

한국표준과학연구원 안전계측연구단
☎ 305-340 대전광역시 유성구 도룡동 1번지

이민우 · 안재욱
한국과학기술원 물리학과
☎ 305-701 대전광역시 유성구 과학로 335 (구성동 373-1)

(2008년 8월 19일 받음, 2008년 10월 9일 게재 확정)

본 논문에서 비동시성 광샘플링(asynchronous optical sampling; AOS) 방식을 이용하는 고속 고분해 테라헤르츠 시간영역 분광(terahertz time domain spectroscopy; THz-TDS)을 시연한다. 모터로 구동되는 선형 스테이지를 사용하지 않고, 약간 다른 반복 주파수를 갖는 두 대의 펄스 레이저를 각각 테라헤르츠와 발생과 검출에 사용하여 고속으로 10 ns의 시간축 상의 신호를 획득하고 fast Fourier transformation(FFT)을 통하여 100 MHz의 주파수 분해능을 갖는 고분해 분광을 구현한다. Cross-correlation 방법에 의해 시간 분해능은 278 fs으로 측정되었다. 또한, 본 분광기를 이용하여 수증기의 투과 스펙트럼을 측정하고 흡수선들을 분석하였다.

주제어: Terahertz electromagnetic wave, Terahertz time-domain spectroscopy(THz-TDS), Asynchronous optical sampling(AOS)

I 서 론

효율적인 발생과 측정이 어려워 지금까지 사용되는 전자기파 스펙트럼 영역 중에서 가장 접근이 어려웠던 테라헤르츠 주파수 대역은 전파와 광파의 중간적인 성질을 가지고 있다.^[1] 테라헤르츠 전자기파는 X선과는 달리 인체에 해를 주지 않으면서 비금속과 무편광된 물질에서 투과하고 금속에서 반사하는 특성을 가지고 있으며 그 에너지는 분자들의 비틀림, 회전, 진동 에너지와 공명을 잘 일으키므로 물질 고유 특이 흡수 스펙트럼을 확인할 수 있다. 이러한 특성은 보안, 감시 분야에서 금지 약물과 위험물에 대한 모니터링과 유기물의 비파괴 분석연구 및 정량분석 등에 활용될 수 있다.^[2] 뿐만 아니라 테라헤르츠 전자기파의 수분에 대한 강한 흡수로 인해, 정상 세포에 비하여 암세포의 수분 함량의 상대적인 차이를 분별할 수 있으므로 의료 영상 분야에의 활용과 관련한 연구가 진행 중이다.^[3]

기존의 테라헤르츠 시간영역 분광 기술은 한 대의 펄스 레이저를 이용하여 빔 분할기로 펄스를 pump와 probe로 나눠 사용하였다. 대부분의 경우 시간 지연은 선형 모터 스테이지 또는 고속 스캔(fast-scanning) 방식이 사용된다. 전자의 경우 수백 피코초의 시간 지연이 가능하지만 빠른 측정이 어렵다. 반면 후자의 경우 10-100 Hz 정도의 빠른 측정이 가능하지만 10-100 ps 정도의 시간 지연의 제한을 받게 된다. 시간 지연은 주파수 분해능과 반비례 관계가 있기 때문에, 빠른 측정과 정밀한 주파수 분해능을 함께 구현하는 것은 어려운 과제였다. 또한 시간 지연을 주는 방식이 광학적인 길

이를 변화시키는 것이기 때문에, 측정 결과에는 빔 정렬에 따른 오차가 포함된다. 이러한 단점을 보완하기 위해서 실험 장치에서 선형 모터스테이지를 제거하는 비동시성 광샘플링(asynchronous optical sampling) 방식이 제안되었다.^[4,5]

비동시성 광샘플링 방법은 약간의 반복주파수 차이(차주파수)를 가지는 두 대의 펄스 레이저를 사용한다. 두 펄스 레이저의 차주파수를 정확히 제어하여 두 레이저의 펄스들 사이의 시간 지연이 자동적으로 빠르게 변한다. 이 방법을 이용하면 일반적인 테라헤르츠 시간영역 분광 기술에 비하여 고속으로 긴 시간 지연 효과를 얻을 수 있으므로, 고속 고분해 분광이 가능하다.^[6-8] 이러한 장점은 시간에 따라 변화하는 물질의 상태의 측정이나 고분해 측정에 이용될 수 있고,^[9] 테라헤르츠 전자기파를 이용할 수 있는 보안 및 의료 등의 다양한 분야에 중요한 영향을 미칠 것으로 예상된다.

본 연구에서는 100 MHz 펄스 레이저들을 이용하여 비동시성 광샘플링 방법에 의해 100 MHz의 주파수 분해능을 갖는 고속 테라헤르츠 시간영역 분광을 구현하였다. 펄스 레이저들 사이의 시간 지연에 의해 결정되는 시간 분해능을 cross-correlation 방법으로 측정하였다. 두 대의 펄스 레이저의 차주파수를 변화시키면서 신호대 잡음비(signal to noise ratio; SNR)를 측정하여 효율적인 반복주파수 차이를 결정하였다. 또한 본 실험 장치를 이용하여 수증기의 흡수선들을 측정하고 각각의 주파수와 반치폭을 분석하였다.

II 실험 장치

2.1. 펄스 레이저의 반복주파수 안정화

그림 1(a)는 전체 실험 장치의 개략도이다. 본 실험에서 사

[†]E-mail: dsyee@kriss.re.kr

용된 2대의 펨토초 펄스레이저 시스템은 10W 출력의 532 nm 연속파 레이저로 펌프되고 100 MHz 반복주파수와 800 nm 중심파장을 갖는다. 펄스폭은 각각 10 fs과 20 fs이다. 출력 안정도와 반복주파수의 안정화를 위해서, 펌프레이저와 펄스레이저들이 모두 한 상자에 들어있고 수냉식으로 밀판의 온도가 일정하게 제어된다.

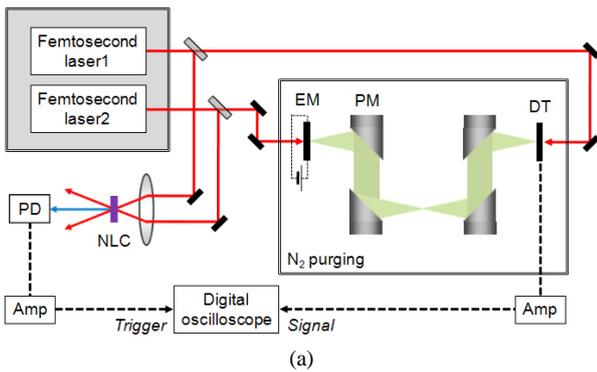
2개의 위상잠금루프(phase-locked loop)를 사용하여 2대의 펨토초 레이저의 반복주파수를 각각 서로 다른 주파수(f_1, f_2)로 안정화한다. 그림 1(b)에서 보여지는 것처럼, 위상잠금루프는 광검출기, 기준발진기, DBM(double-balanced mixer), PI(proportional-integral) 증폭기, 고전압 증폭기, 공진기 거울에 부착된 압전 작동기(piezoelectric actuator)로 구성된다. 펨토초 레이저 출력을 고속 광검출기로 검출하여 1 GHz의 10번째 고조파를 DBM을 이용하여 기준발진기 신호와 비교한다. 위상검출기로 작용하는 DBM의 출력은 위상 오차를 의미한다. 이 위상 오차를 PI 증폭기와 고전압 증폭기로 증폭하여 압전 작동기에 공급하고 공진기 거울의 위치를 제어하여 반복주파수를 안정화한다. 레이저1의 기준발진기로는 1 GHz의

고정주파수를 갖는 DRO(dielectric resonator oscillator)를 사용하여 반복주파수 f_1 은 100 MHz로 고정된다. 레이저2의 기준발진기로는 주파수가변 신호발생기를 사용하여 반복주파수 f_2 는 가변이므로 차주파수 $\Delta f(= f_1 - f_2)$ 를 변화시킬 수 있다. 기준발진기들은 같은 10 MHz 기준신호를 공유하여 잡음을 줄인다. 1개의 위상잠금루프와 주파수 이동기(frequency shifter)를 사용하여 2대의 펨토초 레이저의 차주파수를 안정화하는 방법에 비해, SSB 발생기(single sideband generator)로 구성되는 주파수 이동기를 사용하지 않으므로 주파수 이동기에서 발생하는 잡음의 영향을 받지 않는 장점이 있다.

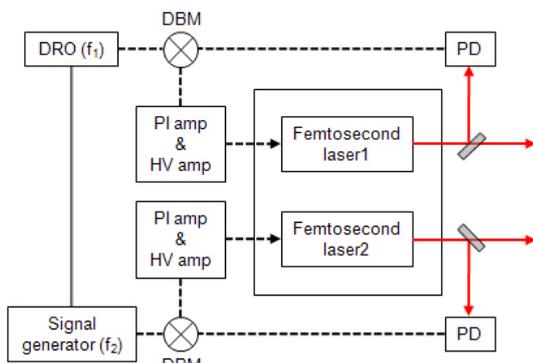
2.2. 테라헤르츠 시간영역 분광

테라헤르츠 전자기파의 발생과 검출은 광전도 안테나(photoconductive antenna; PCA)를 사용하였다. 레이저1의 60 mW의 빔을 초점거리 50 mm인 렌즈를 사용하여 발생기에 집속하고 60 V의 전압을 인가하여 발생된 테라헤르츠 전자기파는 초점거리가 3 inch인 4개의 비축 포물경(off-axis parabolic mirror)를 지나 검출기로 집속된다. 테라헤르츠파를 검출하기 위해, 레이저2의 30 mW 빔을 초점거리 50 mm인 렌즈를 거쳐 검출기에 집속하면서 광전류를 측정한다. 검출된 광전류를 가변이득 전류증폭기에 의해 증폭시키고 LPF(low-pass filter)를 거쳐 디지털 오실로스코프로 데이터를 획득한다. 이때, 차주파수 신호를 사용하여 오실로스코프를 트리거 하고 데이터를 평균화하여 신호 대 잡음비를 향상시킨다.

합주파수 발생(sum-frequency generation) 방법에 의해 트리거용 차주파수 신호를 만든다. 그림 1(a)와 같이 두 레이저 빔을 빔가르개를 이용하여 나눈 뒤 비선형 광 결정(BBO, 두께 2 mm)에 입사하여 발생하는 합주파수 신호를 12.5 MHz의 띠퍼비율을 갖는 광검출기로 검출하여 트리거 신호로 사용한다. 그림 2에서 파란색 선은 광검출기로 검출된 합주파수 신호를 보여준다. 이 경우에 차주파수는 100 Hz이었으므로



(a)



(b)

그림 1. 고속 고분해 테라헤르츠 시간영역 분광기의 개략도. EM: 테라헤르츠파 발생기, DT: 테라헤르츠파 검출기, PM: 비축 포물경, NLC: 비선형 광 결정, PD: 광검출기, Amp: 전류증폭기. (b) 2대의 펨토초 레이저의 반복주파수 안정화 방법. DRO: dielectric resonator oscillator, DBM: double-balanced mixer, PI amp: PI(proportional-integral) 증폭기, HV amp: 고전압 증폭기.

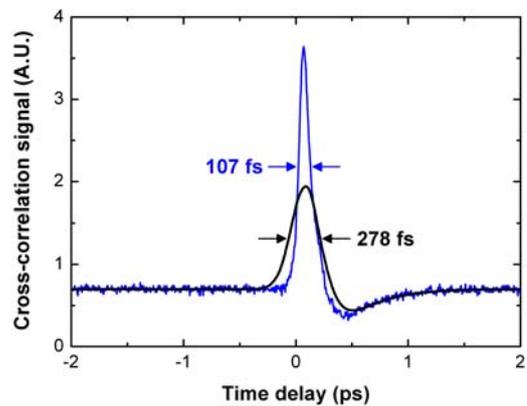
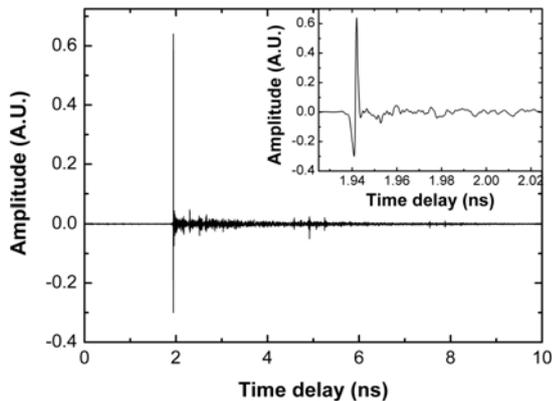


그림 2. 데이터 획득을 위한 트리거 신호로 사용되는 합주파수 신호를 보여준다. 파란색 선은 트리거 신호로 사용되는 한 번 스캔된 신호이고, 검정색 선은 트리거 펄스의 바로 뒤에 오는 펄스를 1000번 평균한 결과이다. 검정색 선의 반치폭 278 fs은 시간 분해능을 의미한다.

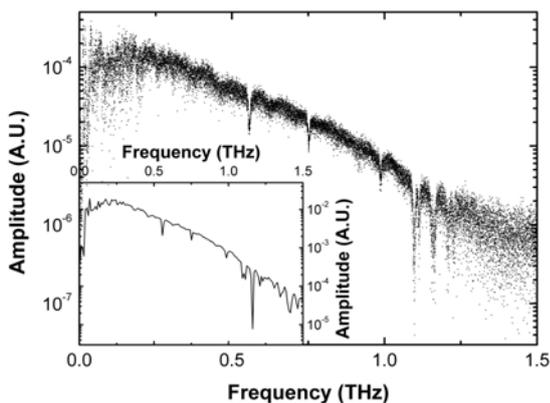
합주파수 신호도 100 Hz의 펄스 형태를 보여준다. 아래 식에 의해서 오실로스코프 상의 실시간을 시간 지연으로 환산할 수 있다.

$$\tau = t \frac{\Delta f}{f_i} \quad (1)$$

위의 식에서 τ 는 시간 지연이고 t 는 실시간이다. 합주파수 신호는 두 레이저의 펄스들의 cross-correlation을 의미하는데, 반치폭이 107 fs으로 10 fs과 20 fs의 펄스폭에 비해 넓은 이유는 분산에 의해 펄스폭이 넓어진 것과 광검출기의 띠틈비의 결합된 효과 때문이다. 검정색 선은 트리거 펄스로부터 10 ms 만큼 떨어진 바로 옆의 펄스를 1000번 평균하여 얻은 결과를 보여준다. 반치폭이 278 fs으로서 두 레이저의 펄스들 사이의 시간 지연을 보여주고, 이것은 펨토초 레이저의 반복 주파수 안정화 성능을 보여준다. 결과적으로, cross-correlation 방법으로 직접 측정된 본 시스템의 시간 분해능은 278 fs이다.



(a)



(b)

그림 3. (a) 본 분광기를 이용하여 10 ns의 시간 간격에서 측정된 테라헤르츠 시간축 신호와 확대된 100 ps의 시간 간격의 시간축 신호(삽입 그림). (b) (a)의 시간축 신호의 FFT로 얻은 테라헤르츠 스펙트럼(삽입 그림은 (a)의 삽입 그림에 있는 100 ps의 시간 간격의 시간축 신호에 해당하는 스펙트럼).

III. 실험 결과

3.1. 테라헤르츠 전자기파 측정

그림 3은 본 분광기에서 측정되는 전형적인 테라헤르츠 신호를 보여준다. 그림 3(a)와 (b)는 10 ns의 시간 간격에서 10^5 의 데이터 개수를 갖는 테라헤르츠 전자기파의 시간축 신호와 그것의 fast Fourier transformation(FFT)에 의해 얻어지는 스펙트럼이다. 두 레이저의 차주파수를 20 Hz로 설정하였고, 100초 동안 1000번의 평균 연산을 수행하여 테라헤르츠 신호를 얻었다. 스펙트럼은 0.1~1.2 THz의 띠틈비와 100 MHz의 주파수 분해능을 갖는다. 278 fs의 시간 분해능으로 가능한 띠틈비는 3.6 THz이지만, 실제로는 테라헤르츠 발생기와 검출기에 의해 띠틈비가 제한되었다. 시간축 신호의 SNR은 1000 이상이다. 스펙트럼 상의 변동성(fluctuation)은 시간축 신호에서 펄스를 따르는 긴 꼬리 신호에 기인하고, 꼬리 신호는 본 분광기에 사용되는 테라헤르츠 발생기와 검출기의 특성과 광학계들 사이의 다중 반사에 의해 일어난다. 또한, 스펙트럼 상에 수증기에 의한 흡수선들이 보인다. 일반적인 시간영역 분광에서 얻어지는 짧은 시간 간격의 신호와 비교하기 위해, 그림 3(a)의 삽입 그림에서 시간축 신호의 100 ps의 시간 간격을 확대하여 보여준다. 그림 3(b)의 삽입 그림은 그것의 FFT에 의해 얻어지는 스펙트럼이다.

3.2. 최적의 차주파수 결정

본 논문의 고속 고분해 테라헤르츠 분광기의 중요한 특성은 데이터 획득 속도, 스펙트럼 분해능, 신호대 잡음비, 스펙트럼 띠틈비이다. 펄스 사이의 시간 간격인 10 ns 전체에서 시간축 신호를 얻으면 스펙트럼 분해능은 레이저의 반복주파수인 100 MHz를 얻는다. 데이터 획득 속도, 신호대 잡음비, 스펙트럼 띠틈비를 최대화하기 위해서, 본 분광기에서 사용하는 검출기의 광전류를 증폭하는 가변이득 전류증폭기의 설정과 두 레이저의 차주파수 설정을 최적화하였다. 그림 4는 두 레이저의 차주파수를 변화시키면서 10초 동안 측정하여 평균한 시간축 신호의 신호대 잡음비를 보여준다. 이때,

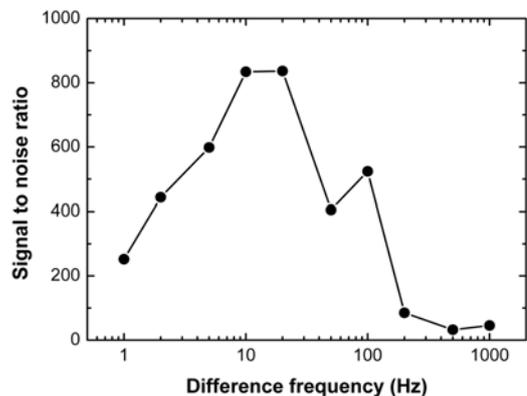


그림 4. 두 레이저의 차주파수 변화에 따른 테라헤르츠 시간영역 신호의 신호대 잡음비 변화.

아래 식에 의해 계산되는 가상 스펙트럼 띠너비가 1 THz 이상이면 이득이 최대가 되도록 차주파수의 변화에 따라 가변이득 전류증폭기의 설정을 변경하였다(표 1).

$$SB = AB \frac{f_i}{\Delta f} \quad (2)$$

위의 식에서 **SB**는 가상 스펙트럼 띠너비이고 **AB**는 전류증폭기의 띠너비이다. 또한, 차주파수의 변화에 따라 샘플링 속도를 변화시켜서 10 ns의 전체 시간 지연에서 10⁵개의 일정한 데이터 개수를 갖도록 하였다. 즉, 최소 시간 간격은 100 fs이다. 낮은 차주파수에서는 차주파수의 증가에 비례하여 10초 동안 평균화 횟수가 증가하지만 10⁵개의 데이터 처리 시간 때문에 높은 차주파수에서는 10초 동안 평균화 횟수가 차주파수에 비례하여 증가하지는 않는다. 1~20 Hz의 차주파수에서 보듯이, 같은 전류증폭기의 설정값을 가지고 차주파수가 증가하면 10초 동안 평균화 횟수가 증가하므로 신호대 잡음비가 증가한다. 차주파수가 20 Hz 이상으로 증가할 때, 10초 동안 평균화 횟수의 증가에도 불구하고 전류증폭기의 띠너비의 증가와 함께 이득이 감소하므로 신호대 잡음비가 감소한다. 따라서, 최적의 차주파수는 20 Hz로 결정되었다.

3.3. 수증기의 투과 스펙트럼

본 분광기를 이용하여 수증기의 흡수선들을 측정하였다. 향온향습 실험실에서 측정하였고 온도는 20°C, 습도는 44%

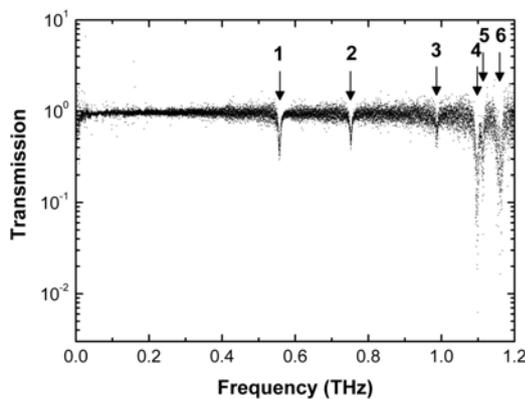
이었다. 44%의 습도에서 측정된 결과와 질소 환경의 5% 습도에서 측정된 결과로부터 계산된 투과 스펙트럼이 그림 5에 보여진다. 그림 5(a)는 10 ns의 시간 간격의 시간축 신호로부터 얻어진 투과 스펙트럼이고, 그림 5(b)는 100 ps의 시간축 신호에 500 ps의 0을 추가하여 계산된 투과 스펙트럼이다. 100 ps의 시간 간격의 시간축 신호로부터 얻어지는 스펙트럼은 10 GHz의 데이터 간격을 가지므로 수 GHz의 선폭을 측정하기에 부적합하여 500 ps의 0을 추가하였다.^[10] 1.2 THz까지 6개의 흡수선들을 확인할 수 있다. 표 2는 Lorentzian fitting을 이용하여 얻은 흡수선들의 주파수와 선폭을 보여준다. 주파수와 선폭은 전에 보고된 결과와 거의 일치한다.^[11] 10 ns의 시간축 신호로부터 얻어진 선폭이 100 ps의 시간축 신호로부터 얻어진 선폭보다 다소 작고, 이것은 주파수 분해능의 차이를 보여준다. 6번 흡수선에서 10 ns의 시간축 신호로부터 얻어진 선폭이 더 큰 이유는 잡음수준에 가깝기 때문이다.

IV. 결 론

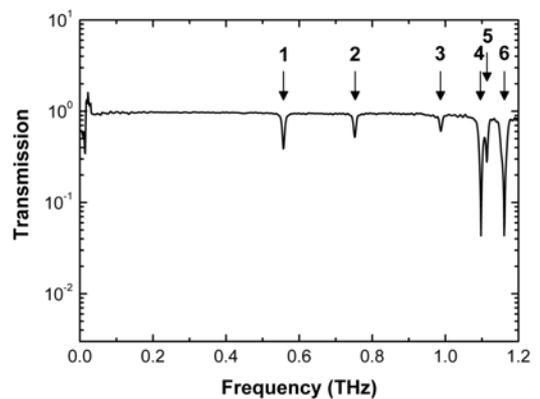
기계적인 스테이지 없이 2대의 반복주파수 안정화 펄스 레이저들을 이용하여 고속 고분해 테라헤르츠 시간영역 분광을 구현하였다. 두 레이저의 상대적인 시간 지연에 기인하는 278 fs의 시간 분해능을 확인하였다. 측정시간, 신호대 잡음비, 스펙트럼 띠너비를 고려하여 본 분광기에서 최적의 차

표 1. 두 레이저의 차주파수에 따른 전류증폭기와 샘플링 속도의 설정값

차주파수(Hz)		1	2	5	10	20	50	100	200	500	1000
가변이득 전류증폭기	띠너비(MHz)	0.22	0.22	0.22	0.22	0.22	1.8	1.8	3.5	14	14
	이득(V/A)	10 ⁷	10 ⁶	10 ⁶	10 ⁵	10 ⁴	10 ⁴				
가상 스펙트럼 띠너비(THz)		22	11	4.4	2.2	1.1	3.6	1.8	1.75	2.8	1.4
샘플링 속도(MS/sec)		0.1	0.2	0.5	1	2	5	10	20	50	100
데이터 개수		10 ⁵									
10초 동안 평균화 횟수		5	10	25	50	100	170	250	290	660	1000



(a)



(b)

그림 5. (a) 44%와 5%의 습도에서 측정된 10 ns의 시간축 신호들로부터 계산된 수증기의 투과 스펙트럼.

(b) 100 ps의 시간축 신호로부터 계산된 수증기의 투과 스펙트럼.

표 2. 그림 5의 투과 스펙트럼에 보이는 흡수선들의 주파수와 선폭

10 ns	주파수(GHz)	선폭(GHz)
1	557.137	8.366
2	752.186	7.413
3	987.562	6.630
4	1097.787	14.071
5	1113.123	3.921
6	1159.725	33.693

100 ps	주파수(GHz)	선폭(GHz)
1	557.117	8.655
2	752.174	8.174
3	987.532	7.889
4	1097.770	14.243
5	1113.231	5.994
6	1160.259	25.720

주파수가 20 Hz임을 확인하였다. 10 ns의 시간영역에서 측정된 테라헤르츠 신호로부터 얻어진 0.1에서 1.2 THz까지 수증기의 투과 스펙트럼에서 수증기의 흡수선들을 분석하였다. 스펙트럼의 정확도와 민감도를 높이기 위해 스펙트럼에 보이는 변동성을 줄이는 것이 필요하다. 높은 주파수 분해능과 빠른 측정시간을 가진 본 분광기는 다양한 분야에 많은 활용이 기대된다.

감사의 글

본 연구는 일부 교육과학기술부 지원으로 한국표준과학연구원 일반사업에서 수행되었고(KRISS-08-2402-221), 일부 지식경제부/정보통신연구진흥원의 IT원천기술개발사업에서 지원되었다(2008-F-021-01).

참고문헌

[1] C. Sirtori, "Bridge for the terahertz gap," *Nature*, vol. 417, no. 6885, pp. 132-133, 2002.

[2] K. Kawase, Y. Ogawa, Y. Watanabe, and H. Inoue, "Non-destructive terahertz imaging of illicit drugs using spectral fingerprints," *Opt. Express*, vol. 11, no. 20, pp. 2549-2554, 2003.

[3] S. Nakajima, H. Hoshina, M. Yamashita, C. Otani, and N. Miyoshi, "Terahertz imaging diagnostics of cancer tissues with a chemometrics technique," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 90, no. 4, p. 041102, 2007.

[4] P. A. Elzinga, R. J. Kneisler, F. E. Lytle, Y. Jiang, G. B. King, and N. M. Laurendeau, "Pump/probe method for fast analysis of visible spectral signatures utilizing asynchronous optical sampling," *Appl. Opt.*, vol. 26, no. 19, pp. 4303-4309, 1987.

[5] Y. Takagi and S. Adachi, "Subpicosecond optical sampling spectrometer using asynchronous tunable mode-locked lasers," *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 70, no. 5, pp. 2218-2224, 1999.

[6] T. Yasui, E. Saneyoshi, and T. Araki, "Asynchronous optical sampling terahertz time-domain spectroscopy for ultrahigh spectral resolution and rapid data acquisition," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 87, no. 6, p. 061101, 2005.

[7] C. Janke, M. Forst, M. Nagel, H. Kurz, and A. Bartels, "Asynchronous optical sampling for high-speed characterization of integrated resonant terahertz sensors," *Opt. Lett.*, vol. 30, no. 11, pp. 1405-1407, 2005.

[8] A. Bartels, R. Cerna, C. Kistner, A. Thoma, F. Hudert, C. Janke, and T. Dekorsy, "Ultrafast time-domain spectroscopy based on high-speed asynchronous optical sampling," *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 78, no. 3, p. 035107, 2007.

[9] C. Kistner, A. Andre, T. Fischer, A. Thoma, C. Janke, A. Bartels, T. Gisler, G. Maret, and T. Dekorsy, "Hydration dynamics of oriented DNA films investigated by time-domain terahertz spectroscopy," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 90, no. 23, p. 233902, 2007.

[10] P. R. Griffiths, *Chemical Infrared Fourier Transform Spectroscopy* (Wiley, New York, USA, 1975), pp. 89-91.

[11] M. van Exter, Ch. Fattinger, and D. Grischkowsky, "Terahertz time-domain spectroscopy of water vapor," *Opt. Lett.*, vol. 14, no. 20, pp. 1128-1130, 1989.

High-Speed High-Resolution Terahertz Time-Domain Spectrometer

Youngchan Kim, Ki-Bok Kim, and Dae-Su Yee[†]

*Safety Metrology Center, Korea Research Institute of Standards and Science
1 Doryong-dong, Yuseong-gu, Daejeon 305-340, Korea*

[†]*E-mail: dsyee@kriss.re.kr*

Minwoo Yi and Jaewook Ahn

*Dept. of Physics, Korea Advanced Institute of Science & Technology
335 Gwahangno, Yuseong-gu, Daejeon 305-701, Korea*

(Received August 19, 2008; Accepted October 9, 2008)

High-speed high-resolution terahertz time-domain spectroscopy (THz-TDS) is demonstrated using the asynchronous-optical-sampling (AOS) method. A time-domain signal with a 10-ns time window is rapidly acquired by using two femtosecond lasers with slightly different repetition frequencies to generate and detect a terahertz pulse wave, without a mechanical delay stage. The spectrum obtained by the fast Fourier transformation (FFT) of the time-domain waveform has a frequency resolution of 100 MHz. The time resolution of our spectrometer is measured using the cross-correlation method to be 278 fs. A transmission spectrum of water vapor is measured and the absorption lines are analyzed in the frequency range from 0.1 to 1.2 THz.

OCIS codes: (120.6200) Spectrometers and spectroscopic instrumentation; (300.6270) Spectroscopy, far infrared; (300.6190) Spectrometers.