초강력 레이저와 아토초 물리

DOI: 10.3938/PhiT.22.046

고동혁·김경택

Super-intense Laser and Attosecond Physics

Dong Hyuk KO and Kyung Taec KIM

In attosecond physics, ultrafast phenomena in atoms, molecules, and solids are explored. Attosecond ($1 \text{ as} = 10^{-18} \text{ s}$) is a characteristic time scale of ultrafast electron dynamics. Understanding ultrafast electron dynamics will not only expand our perception of nature but also provide a foundation for various technologies in future. Attosecond light pulses allow us to measure ultrafast ionization dynamics in atoms or molecules with unprecedented time resolution. Chemical processes can be monitored in time and controlled to a desired pathway. In addition, understanding electron dynamics in solids and semiconductors would offer faster communication or computing than ever. Thus, attosecond physics is an essential component for both fundamental research and future technologies. In this special report, we introduce recent research trends in attosecond physics.

서 론

아토초 물리는 원자/분자/고체/나노구조체 내에서 일어나는 초고속 현상을 관측하고 연구하는 학문이다. 아토초는 10^{-18} 초

저자약력

고동혁 박사는 한국과학기술원 물리학과에서 2013년 박사학위를 취득하였다. 현재 기초과학연구원 초강력 레이저과학 연구단에서 재직 중이며, 초강력 레이저장 내 원자/분자 매질의 아토초/펨토초 물리현상 연구에 참여하고 있다. (dhko@ibs.re.kr)

김경택 박사는 한국과학기술원 물리학과에서 2007년 박사학위를 취득하였다. 현재 캐나다 National Research Council의 Joint Attosecond Laboratory에서 연구원으로 재직 중이며, 초강력 레이저장을 이용한 고차 조화파 발생과 아토초 펄스 생성 및 측정에 관한 연구를 수행하고 있다. (kyungtaec@gmail.com)

에 해당하는 아주 짧은 시간으로, 전자의 초고속 동역학을 기술하는데 필요한 시간 단위이다. 펨토초 레이저 기술의 발전으로 고차조화파를 이용해 아토초 엑스선 펄스를 생성하게 되면서 아토초 물리 연구가 시작되었다. 초기에는 아토초 펄스를 기존의 여기-탐사(pump-probe) 연구에 새로운 광원으로 이용하려는 노력이 이루어졌다. 수십 혹은 수백 아토초에 불과한 아토초 펄스의 시간폭은 기존의 여기-탐사 실험의 시간 분해능(resolution)을 아토초 단위로 향상시켰다. 이로 인해, 실시간으로 진행되는 이온화 현상을 관측하는 등 기존에 불가능했던 연구가 가능하게 되었다. 아토초 펄스의 생성 과정을 이용해 분자구조 및 화학반응 과정을 연구하는 고차조화파 분광법(high harmonic spectroscopy)도 발전되었다. 더 나아가 최근에는 아토초 펄스를 이용하여 고체 및 나노구조체 내의 초고속 전자 동역학을 관측하고 이해하려는 연구가 활발히 진행되고 있다. 본 특집기사에서는 아토초 물리학의 전반적인 연구동향을 소개하고자 한다.

펨토초 레이저 기술의 발달

아토초 물리 연구는 초강력 펨토초 레이저 기술의 발달로 가능하게 되었다. 처프 펄스 증폭(chirp pulse amplification) 기술이 개발되면서 광학기기의 파손 한계로 인해 펨토초 레이저 펄스를 증폭할 수 없었던 문제가 해결되었고, 이를 통해 레이저 펄스의 순간 출력이 급격히 향상되었다. 펨토초 레이저 펄스를 원자/분자에 집속할 때 순간 세기가 $10^{14} - 10^{15} \text{ W/cm}^2$ 에 이르면 터널링 이온화를 통해 고차조화파가 발생되고 이로부터 아토초 펄스가 생성된다. 고차조화파는 구동 레이저의 매 반주기마다 발생되므로 일반적으로 아토초 펄스열이 얻어진다.

연구자들은 단일 아토초 펄스를 생성하기 위해 아주 짧은 레이저 펄스를 이용하기도 한다. 펄스폭이 불과 수 펨토초에 이르는 펄스 내에서는 전기장이 불과 한두 번만 진동하기 때문에 펄스의 절대위상(carrier-envelope-phase)에 따라 다른 모

Fig. 1. Semi-classical picture of the high harmonic generation process. The driving laser field is shown with a black line. Electron trajectories are shown with thick arrow lines for short quantum paths and thin arrow lines for long quantum paths.

양의 아토초 펄스가 생성된다. 따라서 일정한 아토초 펄스를 생성하기 위해, 절대위상 안정화 기술이 필요하게 되었다. 초기의 절대위상 안정화 기술은 반복적으로 생성되는 레이저 펄스 중 위상이 같은 레이저 펄스를 뽑아내는 형태였으나, 2003년 한국과학기술원 결맞는 엑스선 연구단에서 유태준 박사가 개발한 직접 잠금 절대위상 안정화 기술을 이용하면 레이저 시스템의 공진기에서 생성되는 모든 펄스의 절대위상을 안정화시키는 기술이 개발되어 더욱 안정적인 레이저 펄스를 이용할 수 있게 되었다.^[1]

아토초 펄스의 생성

아토초 펄스는 강력한 레이저 펄스를 매질에 집속할 때 발생하는 고차조화파를 이용하여 생성된다. 이러한 현상은 그림 1에 설명된 3단계 (이온화, 가속, 충돌) 모형으로 이해할 수 있다.^[2] 첫째, 강력한 레이저장에 의한 터널링 이온화로 자유전자가 생성된다. 둘째, 이온화된 전자는 레이저장에 의해 가속되어 멀어지다가, 레이저장의 부호가 바뀌면서 방향을 바꿔 양이온 방향으로 다시 가속된다. 이때, 전자는 운동에너지를 얻는다. 셋째, 가속된 전자가 원자와 충돌하면서, 전자의 운동에너지는 광에너지로 변환되어 고차조화파라 불리는 빛을 방출한다. 발생한 고차조화파 스펙트럼은 그림 2의 점선과 같이 넓고 평탄한 영역이 이어지다가 잘림 영역에서 사라지는 형태를 보인다. 전자의 터널링 이온화, 가속, 재결합으로 구성된 고차조화파 발생 과정은 구동 레이저장의 반주기마다 반복되기 때문에, 고차조화파의 스펙트럼은 그림 2와 같이 구동 레이저장 진동수의 홀수 배수만 남는다. 고차조화파는 극자외선 및 연엑스선 영역의 폭넓은 스펙트럼을 가지기 때문에 아토초 펄스 생성에 이용될 수 있다.

Fig. 2. Illustration of a typical high harmonic spectrum showing a large plateau structure.

고차조화파의 생성은 그림 1과 같이 이온화 시간에 따라 여러 가지 양자경로로 생성될 수 있다. 양자경로들은 전자궤적의 길이에 따라 짧은 양자경로와 긴 양자경로로 분류된다. 일반적으로 짧은 양자경로를 통해 생성된 고차조화파가 더욱 강하게 나타난다. 짧은 양자경로를 통해 생성된 고차조화파는 낮은 에너지의 빛이 먼저 생성되고 높은 에너지의 빛은 나중에 생성되어, 아토초 펄스는 필연적으로 양의 처프(chirp)를 가지게 된다.

아토초 펄스가 처프를 가지게 되면, 펄스폭이 길어지므로 이를 적절히 보상에 주어야 한다. 아토초 펄스의 처프를 보상하기 위해 연엑스선 영역에서 음의 분산(dispersion)을 가해주는 방법이 필요하였다. 2004년 한국과학기술원 결맞는 엑스선 연구단의 김경택 박사는 아토초 펄스가 매질을 지날 때 매질의 투과율이 증가하는 부분에서 음의 분산을 얻을 수 있다는 연구 결과를 발표하였다.^[3] 또한, 아토초 펄스의 발생매질 자체를 이용하여 처프를 보상할 수 있음을 그림 3과 같이 실험으로 검증하였다.^[4] 그 결과 변환한계값 200 아토초에 근접한 206 아토초의 펄스폭을 가지는 고차조화파 아토초 펄스를 생성하였다. 이를 더욱 확장하여 같은 연구팀의 고동혁 박사는 네온에서 폭넓은 스펙트럼의 고차조화파를 발생시키고 알곤을 통과시킴으로써 고차조화파의 양의 처프를 보상하여 변환한계폭 47 아토초에 근접한 63 아토초의 펄스를 생성하였다.^[5]

REFERENCES

- [1] T. J. Yu, K.-H. Hong, H.-G. Choi, J. H. Sung, I. W. Choi, D.-K. Ko, J. Lee, J. Kim, D. E. Kim and C. H. Nam, Opt. Express **15**, 8203 (2007).
- [2] P. B. Corkum, Phys. Rev. Lett. **71**, 1994 (1993).
- [3] K. T. Kim, C. M. Kim, M.-G. Baik, G. Umesh and C. H. Nam, Phys. Rev. A **69**, 051805(R) (2004).
- [4] K. T. Kim, K. S. Kang, M. N. Park, T. Imran, G. Umesh and C. H. Nam, Phys. Rev. Lett. **99**, 223904 (2007).
- [5] D. H. Ko, K. T. Kim, J. Park, J.-H. Lee and C. H. Nam, New J. Phys. **12**, 063008 (2010).

Fig. 3. Schematic illustration of the experimental setup for characterization of attosecond pulses. The design of the long gas cell is shown in the inset. Attosecond pulses are generated at the beginning of the gas cell and compressed by propagating through the rest part of the cell.

아토초 펄스의 생성은 펄초 레이저 펄스의 반주기마다 일어나기 때문에, 펄스열의 형태로 생성된다. 여기-탐사 실험 등의 응용을 위해서는 단일 아토초 펄스가 필요하다. 레이저 펄스의 반주기마다 생성되는 아토초 펄스열 중 하나의 아토초 펄스를 선택적으로 얻기 위해서 여러 가지 방법이 시도되었다. 아주 짧은 레이저 펄스를 이용하거나, 아토초 펄스 생성의 편광 의존도를 이용한 편광게이팅 방법 등이 여기에 해당한다.

최근에는 레이저 펄스의 공간적 처프를 이용한 방법이 개발되었다. 공간적 처프를 가지는 레이저 빔을 집속하게 되면, 다른 파장을 가지는 빛이 서로 다른 부분에 집속된다. 이를 시간 영역에서 보면 매 반주기마다 레이저 펄스의 파면(wavefront)이 회전하는 효과를 얻는다. 회전하는 파면에서 생성된 아토초 펄스는 각각 다른 방향으로 진행하게 되는데, 이를 아토초 등대 효과(attosecond lighthouse effect)라 부른다. 최근, 아토초 등대 효과를 이용해 고차조화파를 발생하여 아토초 펄스를 생성하는 실험이 수행되었다. 이는 각각의 반주기마다 생성되는 아토초 펄스를 공간적으로 분해할 수 있는 방법이다. 단일 아토초 펄스를 선택적으로 사용할 수 있을 뿐만 아니라, 각각의 반주기마다 생성되는 모든 아토초 펄스를 측정할 수 있기 때문에 ‘아토초 포토닉 스트리킹(Attosecond Photonic Streaking)’이라 부른다.^[6] 발생매질의 시간 변화를 직접 관측할 수 있기 때문에, 아토초 물리학의 중요한 도구로서 사용될 것이다.

아토초 펄스의 측정

아토초 펄스를 초고속 현상 규명에 이용하기 위해서는 펄스의 생성과 더불어 이를 정밀하게 진단할 수 있는 측정법이 필

요하다. 그러나 아토초 펄스의 파장이 극자외선 혹은 연엑스선 영역에 있기 때문에, 기존의 펄초 레이저 기술로는 측정이 어려웠다. 아토초 펄스열의 최초 측정은 2001년에 이루어졌다. 아토초 펄스와 시간지연된 펄초 레이저 펄스를 중첩하여 표적기체를 광이온화시킬 때 나타나는 이광자전이(two-photon transition) 현상을 이용하였다.^[7] 그러나 이 방법은 아토초 펄스가 매우 가는 선평의 빛살 스펙트럼으로 이루어져 있다는 가정을 내포하고 있어 정밀한 진단에는 부적합하다. 이를 극복한 방법으로 주파수분해 광게이팅 아토초 펄스 복원법(FROG CRAB)이 제시되었다.^[8] 한국과학기술원 결맞은 엑스선 연구단은 FROG CRAB 방법을 실험으로 측정된 광전자 스펙트럼에 적용하여 아토초 펄스열과 펄초 레이저 펄스를 정밀하게 복원하는데 성공하였다.^[9] 이 결과는 향후 진행된 아토초 펄스와 펄초 레이저 펄스를 이용한 원자/분자 내 초고속 동역학 연구에 밑바탕이 되었다.

기존의 아토초 펄스 측정법은 광전효과를 이용한다. 아토초 펄스가 강한 공간의존성을 가짐에도 불구하고, 광전자 분광기에 아토초 펄스를 집속하여 광전자 스펙트럼을 측정하기 때문에, 아토초 펄스가 가지는 공간적 변화를 측정할 수 없었다. 또한, 광전자 스펙트럼을 얻기 위해 오랜 시간 동안 축적된 데이터를 활용해야 하기 때문에, 제한적인 실험환경에 대해서만 측정법을 적용할 수 있었다. 기존의 방법과 달리 아토초 펄스를 광학적 방법으로 측정하는 방법이 개발되었는데, 아토초 펄스의 시간정보와 함께 공간정보를 같이 측정할 수 있는 방법이다.

아토초 펄스의 시간-공간 문제를 풀기 위해서, 섭동(perturbation)에 의한 고차조화파의 변화를 이용한다. 아토초 펄스의 진폭 및 위상은 펄스 생성에 사용되는 레이저장의 세기와 위상에 따라 민감하게 변화한다. 고차조화파를 생성하는 레이저빔에 아주 약한 2차 조화파를 작은 각도를 주어 겹치면, 매질 내에서 고차조화파의 세기와 위상이 변화한다. 이러한 변화는 원거리에서 관측되는 고차조화파의 분포를 바꾼다. 이 분포 변화를 측정해 위상복원 알고리즘을 적용하면 매질 내의 아토초 펄스 발생을 복원할 수 있다. 매질 내에서 아토초 펄스의 생성을 시간과 공간의 함수로 재구성함으로써 레이저장에 대한 단

REFERENCES

- [6] K. T. Kim, C. Zhang, T. Ruchon, J.-F. Hergott, T. Auguste, D. M. Villeneuve, P. B. Corkum and F. Quéré, *Nature Photonics* **7**, 651 (2013).
- [7] P. M. Paul, E. S. Toma, P. Breger, G. Mullot, F. Augé, Ph. Balcou, H. G. Muller and P. Agostini, *Science* **292**, 1689 (2001).
- [8] Y. Mairesse and F. Quéré, *Phys. Rev. A* **71**, 011401(R) (2005).
- [9] K. T. Kim, D. H. Ko, J. Park, V. Tosa and C. H. Nam, *New J. Phys.* **12**, 083019 (2010).

Fig. 4. (A) Interference of electron wave packets ionized through two different quantum paths. (B) Photoelectron spectrum obtained from He.

원자/분자 반응을 검출할 수 있다. 이 방법은 고차조화파와 분광학에 중요한 역할을 할 것으로 생각된다.^[10]

아토초 펄스를 이용한 실시간 이온화 관측

아토초 펄스와 펨토초 레이저 펄스의 짧은 펄스폭을 이용하여 초고속 이온화 현상을 연구할 수 있다. 아토초 펄스와 펨토초 레이저 펄스를 중첩하여 헬륨 원자를 광이온화할 때 서로 다른 두 경로로 이온화될 수 있다. 그림 4(A)에서 볼 수 있듯이 아토초 펄스의 17차 조화파에 의해 헬륨 바닥 상태의 전자를 하나의 광자로 이온화시킬 수 있다. 한편 15차 조화파에 의해 바닥 상태에 있던 전자는 1s3p 상태로 여기된 후 뒤따르는 펨토초 레이저 펄스를 통해 이온화될 수 있다. 이와 같은 두 가지 양자 경로로 이온화된 전자파속은 간섭 현상을 일으켜 그림 4(B)와 같이 광전자 스펙트럼에 간섭 신호를 볼 수 있다. 이렇게 측정된 간섭신호로 FROG CRAB 방법을 통해 1s3p에서 이온화되는 전자파속을 재구성하여 레이저 펄스 내에서 시간에 따라 어떻게 이온화가 진행되는지를 측정하였다.^[11] 아토초 펄스와 펨토초 레이저 펄스를 이용한 초고속 시분해 분광은 헬륨 원자뿐만 아니라 보다 복잡한 원자/분자에도 적용 가능하므로 향후의 활용 가능성이 매우 크다.

향후 연구방향

아토초 물리학은 2000년대 초에 시작되어 급격한 성장을 이루었다. 레이저 기술의 발전으로 단일 아토초 펄스를 생성할 수 있게 되면서, 아토초 펄스 여기와 펨토초 레이저 펄스 탐사 실험을 통해 이온화 현상 등의 연구가 활발히 이루어졌다. 이

와 함께, 고차조화파 분광학의 분석기법 발전으로 여러 가지 분자의 구조 및 반응에 대한 측정이 이루어졌다.

최근에는 펨토초 레이저 펄스의 스펙트럼을 자외선 및 적외선 영역까지 확장시켜 고차조화파를 이용하지 않고 아토초 레이저 펄스를 만들려는 연구도 활발히 진행되고 있다. 이러한 방식으로 더욱 더 강력한 아토초 펄스 광원을 개발할 수 있기 때문에, 아토초 펄스 여기와 아토초 펄스 탐사 방식의 실험도 가능할 것으로 생각된다. 이를 이용해 원자의 다중 이온화 현상을 관측하는 것은 아주 흥미로운 주제가 될 것이다.

그간의 아토초 물리는 주로 원자/분자를 표적으로 이루어졌다. 최근, 나노 구조체 등에서 생성되는 고차조화파 혹은 전자파속의 동역학에 대한 연구가 이루어지고 있다. 나노 구조체 등에서 생성되는 전자파속의 동역학을 이해하고 제어하는 방법을 개발하는 것은 새로운 개념의 정보처리기술을 위한 중요한 연구주제이다.

상대론 영역의 고차조화파 발생을 통한 아토초 펄스 생성은 앞으로 더욱 짧은 펄스 생성을 위한 새로운 길을 열어 줄 것이다. 고차조화파를 이용한 기체 매질에서의 아토초 펄스 생성은 대략 $10^{14} - 10^{15} \text{ W/cm}^2$ 의 세기에서 이루어진다. 레이저의 세기가 10^{18} W/cm^2 가 되면, 매끈한 고체 표면에 상대론 영역의 플라즈마를 생성할 수 있으며, 이 플라즈마는 고출력 레이저 펄스를 반사하기 때문에 플라즈마 거울이라 부르며, 여기에서 상대론적 진동 거울(Relativistic Oscillating Mirror) 등의 방식으로 고차조화파가 발생되어 아토초 펄스가 생성된다. 최근 광주과학기술원에서 발표한 상대론 영역에서의 강력한 고차조화파 발생에 관한 연구가 상대론적 진동 거울을 이용한 것이다.^[12] 이러한 연구는 대규모 레이저 시스템을 필요로 하기 때문에 반복률이 낮아 기존의 측정방법을 적용하기 어렵다. 따라서 광학적 접근법을 통한 아토초 펄스의 측정에 관한 연구가 필요하다. 상대론적 고차조화파의 발생 파장 영역을 경엑스선 영역으로 확장하면, 고차조화파의 펄스폭은 아토초보다 더 짧은 펨토초 영역에 이를 수 있다. 이러한 펨토초 펄스는 핵동역학을 연구할 수 있는 도구가 될 수 있어 아토 과학 연구는 켈트 과학이라는 새로운 학문 영역으로 확장될 것이다.

REFERENCES

- [10] K. T. Kim, C. Zhang, A. D. Shiner, S. E. Kirkwood, E. Frumker, G. Garipey, A. Naumov, D. M. Villeneuve and P. B. Corkum, *Nature Physics* **9**, 159 (2013).
- [11] K. T. Kim, D. H. Ko, J. Park, N. N. Choi, C. M. Kim, K. L. Ishikawa, J. Lee and C. H. Nam, *Phys. Rev. Lett.* **108**, 093001 (2012).
- [12] I. J. Kim, K. H. Pae, C. M. Kim, H. T. Kim, H. Yun, S. J. Yun, J. H. Sung, S. K. Lee, J. W. Yoon, T. J. Yu, T. M. Jeong, C. H. Nam and J. Lee, *Nature Communications* **3**, 1231 (2012).