

Gd₂(MoO₄)₃ 단결정의 강탄성구역과 굴절률특성

Ferroelastic Domain and Refractive Property of Gd₂(MoO₄)₃ Single Crystal

손종윤, 이찬구, 이수대(경남대), 김재형(인제대)

JongYoon Son, Chanku Lee, Sudaee Lee(Kyungnam Univ.), Jae-Hyung Kim(Inje Univ.)

Abstract

We investigated domains and conoscope under the polarizing microscope and the index of refraction on the c-plate GMO which has the ferroelectric and ferroelastic phase at room temperature. To observed the change of refractive index in connection with domain, we developed an apparatus to obtain the refractive index by measuring the Brewster's angle. The resolution of the minimum rotation angle of this apparatus is 0.001°. To obtain the refractive index map on the sample, the moving distance of XY stage loaded sample holder is 60 mm and the minimum moving distance is 0.002 mm. Also, To obtain the indicatrix for single crystal, vertical turntable with sample holder and XY stage was loading on horizontal turntable. The minimum resolution angle of this vertical turntable is 0.001°. We measured the refractive index of transparent materials such as ferroelectrics. In the case of Gd₂(MoO₄)₃, the Brewster angle is 62.11° and then, the refractive index is 1.8895 by using He-Ne Laser. Also the refractive distribution of c-plate GMO was obtained with 400 μm × 120 μm.

Key Words : Gd₂(MoO₄)₃, ferroelectric, ferroelastic, refraction, Brewster angle

1. 서 론

Gd₂(MoO₄)₃ 단결정은 강탄성체이면서 동시에 강유전체로 고체 레이저 호스트 결정으로 연구된 최초의 물질이다.[1] 실온에서 orthorhombic(Pba2)이고 160°C에서 상전이하여 tetragonal($\bar{4}2m$) 상이 된다.[2-9] 탄성변형력이 가해지면 강탄성구역 뿐만 아니라 강유전구역이 함께 변화한다.[10] 이러한 자발분극의 반전과 함께 자발복굴절의 부호가 반전하는

성질을 이용하여 광서터, 색상변조기, 공간변조기, 마이크로 포지셔너 등으로 이용이 가능하다.[11]

도메인에 따른 다양한 변화를 관측하기 위해 표면의 굴절률 분포를 관측할 수 있는 장치를 사용하였다. 3차원적 직선운동과 회전운동이 가능한 장치에 He-Ne 레이저를 이용하여 Brewster 각을 구하여 굴절률을 측정할 수 있는 장치를 제작하였다. 이 장치는 결정의 굴절률을 측정할 수 있을 뿐만 아니라 굴절률의 2차원 분포도를 얻을 수 있다. 측정가능한 최소 각도는 1 μm, 최소 제어거리는 각각 2 μm로 최대면적 30X30mm²을 측정할 수 있다. 회전 부분은 rotary stage를 사용하여 수직축과 수평축을 회전시켜 결정의 방향에 따른 변화를 관측할 수 있게 되어있다. 이 장치를 이용하여 실온에서 이축성 결정인 GMO 단결정의 c-plate에 대한 강탄성-강유전 구역특성을 살펴보고자 한다.

* : 인제대학교 컴퓨터응용과학과

(김해시 어방동 607번지,

Fax: 055-334-1577

E-mail : leesudaee@kyungnam.ac.kr)

2001년 1월 2일 접수, 2001년 3월 4일 1차 심사 완료,
2001년 4월 5일 2 차 심사 완료

2. 실험

단결정 GMO를 얻기 위한 원료물질은 99.99%의 Gd_2O_3 와 MoO_3 를 사용하였다. 이들을 화학양론적으로 칩량하여 3일간 불밀하여 섞고, 24시간 동안 $660^\circ C$ 에서 소결한 후 분쇄하여 다시 불밀과정을 거쳐 $1000^\circ C$ 에서 24시간 소결을 반복하였다. 소결한 GMO는 백금 도가니에서 RF 유도가열하였다. 결정의 성장조건은 종자결정방향이 $[110]$ 이고, 인상속도 $0.03mm/h$, 회전속도 $20rpm$ 고상-액상 경계면에서의 온도기울기는 $50^\circ C/cm$ 이었다. 이 때의 온도 제어는 $1160^\circ C$ 에서 $\pm 0.1^\circ C$ 이하가 되도록 제어하였다. 성장후 결정은 무색 투명하였으며 성장결정의 길이와 직경은 대부분 $25mm$ 와 $60mm$ 정도였다.

측정에 사용된 시료는 c-축에 수직으로 절단하여 표면이 매끄럽도록 $3\mu m$ 알루미늄이나 연마사에 연마하였다. c-면의 구역구조와 코노스코프 영상은 MEIJI사의 MP.POL-T 편광현미경으로 얻었다.

유전체에서 반사된 빛은 편광의 특성을 갖는다. 특수한 각이 아닌 경우의 반사되는 빛은 일반적으로 부분편광되어 있다. 에틴 말러스가 1808년에 이러한 효과를 최초로 연구하였다. 그리고 루 덴페르는 방해석 결정 연구를 통해 반사에 의한 편광을 발견하였다. 비간섭적이고 서로 직교하는 두 개의 p-편광상태로 입사하는 무 편광된 파가 있다면, 오직 입사면에 수직하게, 즉 결정면에 평행하게 편광된 성분만이 반사할 것이다. 이러한 특별한 입사각을 θ_B 라고 하고 편광각 또는 Brewster 각이라고 한다. 이 각에 대한 $\tan \theta_B$ 가 바로 그 물질의 굴절률이다. 이러한 성질을 이용하여 굴절률을 측정하거나 이를 응용한 광학장비에 대한 연구가 많이 이용되어 왔다.[12-16]

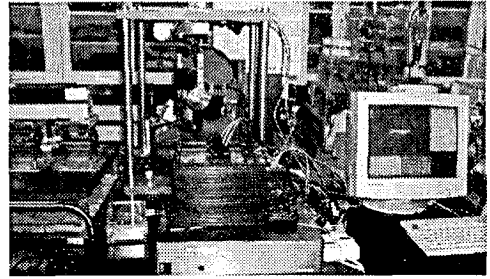


그림 1. 굴절률측정장치의 개략도와 전체구성장치.
Fig. 1. The block diagram and photograph of the measuring apparatus of refractive index

그림 1은 굴절률장치의 개략도와 전체구성사진이다. 제작한 장치는 크게 네 부분으로, 시료의 홀더를 x-축 및 y-축으로 움직일 수 있는 부분과, 수직축과 수평축을 중심으로 회전할 수 있는 회전부, 반사광을 검출할 수 있는 광 검출부, 그리고 편광된 빛을 넣어주는 부분으로 되어있다. 첫째에서 셋째부분까지 탑재하기 위한 기본적인 틀은 베크라이트 판과 동봉 4개를 사용하여 그림 1과 같이 제작하였다.

그림에서 He-Ne 레이저로부터 나온 광은 글렌 톰슨풀라이저를 지나면서 수직편광되어 입사되면 시료부와 광검출부가 회전하면서 반사광의 세기를 측정하면 그림 2와 같이 말안장과 같은 강도분포를 구할 수 있다. 여기서 안상구가 바로 브루스터각에 해당된다.

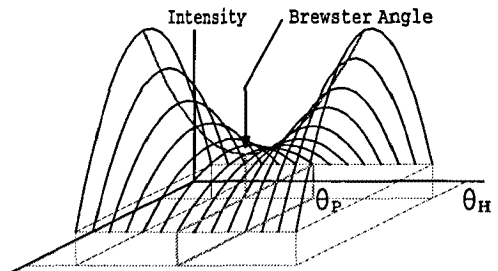
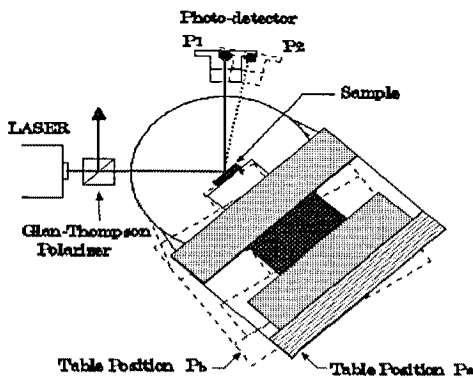


그림 2. 검출부로 측정된 광의 강도와 안상구.
Fig. 1. Intensity and saddle point of reflected light measured from the detector.

이러한 방법으로 측정된 여러 가지 물질들에 대한 굴절률은 브루스터각으로부터 구하여 그림 3에 나타내었다. 본 장치는 각도에 따른 반사광의 강도 측정만으로 쉽게 굴절률을 구할 수 있을 뿐만 아니라 정밀한 각도측정으로 타장비에 비해 매우 정확한 굴절률 값을 구할 수 있는 장점을 가졌다. 각도 분해능이 0.001° 이므로 1.75×10^{-5} 정밀도를 갖는다.

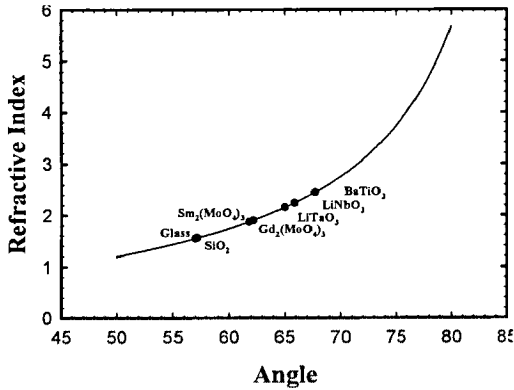


그림 3. 각 물질별 Brewster 각과 굴절률.
Fig. 3. The Brewster angle and the refractive index of transparent materials.

가돌리늄 몰리브데이트는 강유전성과 동시에 강탄성을 갖는 물질로 자발폭렬스 효과를 가진 결정이다. 이 결정에 전기장이나 기계적 응력이 작용하면 자발분극의 반전과 함께 자발복굴절의 부호가 반전하게 된다.[11] 만약 시료내에 강탄성구역이 다수 공존한다면 자발복굴절의 부호가 위치에 따라 다르게 관측 되어진다.

3. 결과 및 고찰

투명한 $Gd_2(MoO_4)_3$ 단결정에 대한 화학식과 실험을 토대로하여 정확하게 (001)면의 시편을 제작하여 편광현미경으로 conoscope를 관찰하였다. 그림 4(a)에 나타난 것처럼 GMO 단결정은 두 멜라토프를 갖는 이축성 코노스코프를 보인다. 코노스코프에 나타난 멜라토프와 아이소자이어의 대칭 패턴에서 다른쪽 보다 긴 축이 직방정계의 b_0 축이다. 두 멜라토프를 연결하는 선을 포함하는 광학면은 b 축을 따라 압축력을 가하면 분극반전에 의해 90° 회

전한다. 그림 (b)는 GMO 단결정의 c -면에 대한 구역사진으로 밝은 구역과 어두운 구역이 뚜렷하게 구분되어 나타난다. 그림에 보이듯이 90° 와 180° 구역들이 있고 바늘형 구역과 교차형 구역등이 관측된다.

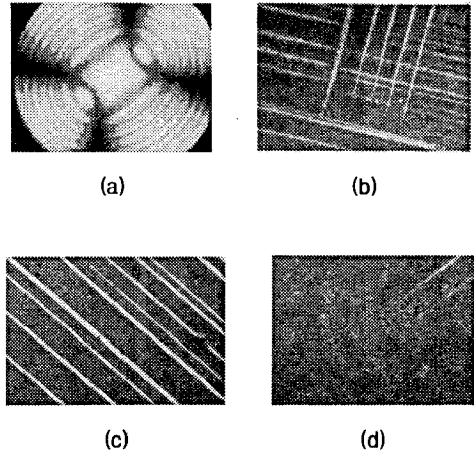


그림 4. GMO단결정의 c -면의 편광현미경 사진.
Fig. 4. Polarizing microscope images of the c -plate of GMO single crystal.

GMO는 Tc 이상에서 정방정계의 공간군인 광학 적 일축성 결정이고, Tc 이하에서는 점군 Pba2인 광학적으로 이축성이다. Kumada[17]는 KH_2PO_4 가 optically negative 인데 반해 GMO는 $n_c = 1.8409$ 와 $n_a = 1.7950$ 인 optically positive 결정이라고 보고하였다. 또, 그는 코노스코프 사진으로부터 광축각 $2V$ 는 $n_c = 1.85$ 를 이용하여 10.5° 로 계산되고 $2E = 17^\circ$ 로 측정되었다. 상온에서 복굴절 $\Delta n_{ab} = n_b - n_a$ 는 완전 흡광에서 두께의 정확한 측정으로부터 -4.08×10^{-4} 을 얻었다고 보고하였다.

그림 2에서 본 바와같은 이론적 모델에 대한 실제 GMO에서의 강도분포와 이에 의한 안상구를 그림 5에 보였다. 이것은 c -면의 한 고정점에 대한 결과이고 2차원 맵을 구하려면 x 축과 y 축으로 주사하면서 각 점에 대한 Brewster 각을 구해야 한다. 그림 5에 대한 최대값 만으로 된 입사각에 대한 강도 곡선을 그림 6에 나타내었다. GMO 단결정의 c -면에 대한 브루스터각은 62.11° 이었고 굴절률은 $n = 1.8895$ 가 되었다.

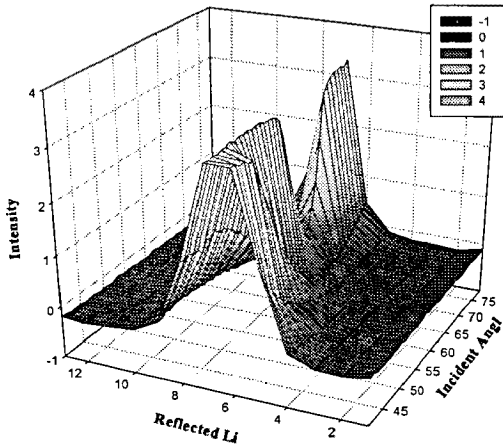


그림 5. GMO 단결정의 반사광의 강도분포
Fig. 5. Intensity of reflected light of GMO.

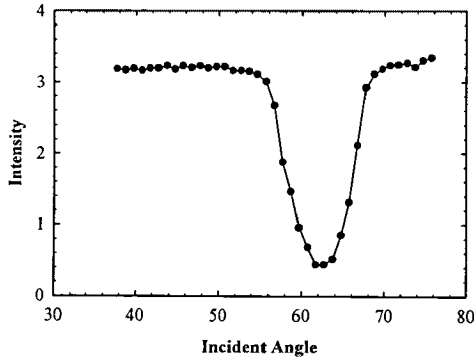


그림 6. GMO 단결정의 입사광에 대한 강도곡선.
Fig. 6. Intensity curve of incident light of GMO.

그림 7은 GMO 단결정의 c-면에 대한 $400\mu\text{m} \times 120\mu\text{m}$ 면적의 굴절률분포를 측정된 그림이다. x축 간격은 $2\mu\text{m}$, y축 간격은 $4\mu\text{m}$ 씩 이동하며 측정하였다. (a) 그림은 좌표별 굴절률을 3차원 형상으로 옮긴 것이고 아래 (b) 그림은 그 굴절률 분포에 대한 등고도형을 색깔별로 나타낸 것이다. 그림에서 단결정은 대체로 균일한 굴절률분포를 보였으며 등고선도에서 붉은 색 계열의 구역은 표면의 결함부위로 보여진다. 뚜렷이 구별되어 보이는 청색과 녹색부의 차이는 강탄성이나 강유전구역으로 보기는 어렵고 단지 결정의 연마시 생성된 표면의 모폴로지 차이나 결함에 의해 나타나는 영상으로 생각되어진다.

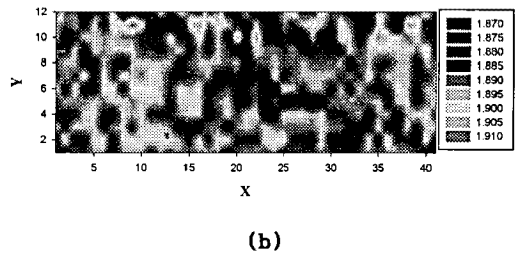
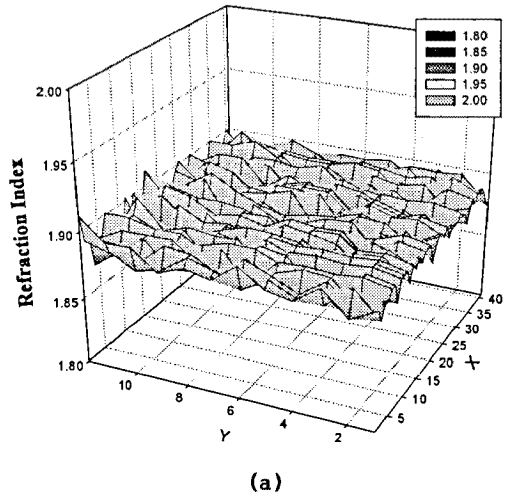


그림 7. GMO 단결정의 c-면에 대한 굴절률 분포.
 $400\mu\text{m} \times 100\mu\text{m}$.
Fig. 7. The distribution of refractive index for c-plate GMO. $400\mu\text{m} \times 100\mu\text{m}$.

4. 결 론

투명한 단결정의 브루스티각을 측정하여 굴절률을 구하는 장치를 제작하였으며 이를 사용하여 유전체 및 고체시료의 굴절률을 측정하였다. GMO 단결정의 경우 브루스티각은 62.11° 로 측정되었고 이때의 굴절률은 1.8895였다. $400\mu\text{m} \times 120\mu\text{m}$ 의 면에 대한 굴절률분포도를 그려보았고, 투명시료의 표면결함이나 macroscopic domain 등을 관측할 수 있었다. 나노소자 개발의 붐과 함께 새로운 광소자의 개발과 설계를 위해 본 장치는 다양한 응용이 기대되어진다.

감사의 글

본 연구는 2002학년도 경남대학교 학술논문게재연구비 지원으로 이루어졌음.

참고 문헌

- [1] H. J. Borchrtdt and P. E. Bierstedt, Appl. Phys. Lett., **8**, 50, 1966.
- [2] Wolfgang Jeitschko, Acta Cryst. **B28**, 60 (1972).
- [3] J. R. Barkly and W. Jeitschko, J. Appl. Phys. **44(3)**, 938 (1973).
- [4] E. T. Keve, S. C. Abrahans and J. L. Bernstein, J. Chem. Phys. **54**, 3185 (1971).
- [5] K. Aizu, A. Kumada, H. Yumoto, and S. Ashida, J. Phys. Soc. Jpn. **27**, 511 (1969).
- [6] V. Dvořák, Phys. Stat. Sol. **46(b)**, 763 (1971).
- [7] N. Yamamoto, K. Yagi and G. Honjo, Phys. Stat. Sol. **41(a)**, 523 (1977).
- [8] N. Yamamoto, K. Yagi and G. Honjo, Phys. Stat. Sol. **42(a)**, 257 (1977).
- [9] N. Yamamoto, K. Yagi and G. Honjo, Phys. Stat. Sol. **44(a)**, 147 (1977).
- [10] K. Aizu, A. Kimada, H. Yamadmoto and S. Ashida, J. Phys. Soc. Jpn., **27**, 511, 1969.
- [11] 熊田芳男, 응용물리, **38**, 833, 1969.
- [12] M. Hosoda, H. Kobayashi, N. Sakamoto, K. Sakai, and K. Takagi, Rev. Sci. Instrum. **67(12)**, 4224, 1996.
- [13] G. H. Meeten, Meas. Sci. Tech. **8**, 728, 1997.
- [14] G. Marshall, M. Dennin, and C. M. Knobler, Rev. Sci. Instru., **69(10)**, 3699, 1998.
- [15] E. Cojocar, Appl. Opt. **34(34)**, 7864, 1995.
- [16] A. Kumada, Ferroelectrics, **3**, 115, 1972.