

브릴루앙 산란 실험장치와 그 응용

이 석목, 박 주일

인하대학교 물리학과

인천광역시 남구 용현동 253 (우) 402-751

최근 본 대학교에 설치 운용되는 브릴루앙 산란 실험장치 및 응용범위를 소개하고, 그 실험장치를 이용하여 조사한 PbMoO_4 의 탄성특성의 결과에 대하여 논의한다.

I. 서론

브릴루앙 산란 (Brillouin scattering: BS)은 열적으로 여기된 장파장 (long wavelength)의 음향포논 (acoustic phonons)에 의한 가시광선의 비탄성산란을 뜻하며 70여년 전에 L. Brillouin^[1] 과 L. Mandelshtam^[2]의 각각에 의해 맨처음 시작되었다. 그 후 레이저의 발명과 분광기의 발달로 BS는 매질의 탄성특성 및 광탄성 특성들을 조사하는 우수한 실험방법으로 알려져 왔다.^[3] 이러한 음향포논의 파장은 가시광선의 파장과 거의 일치하는 수 백 nm에 해당되며 일명 탄성과 (elastic waves)라 불리우기도 한다. 음향포논이란 라만 산란 (Raman scattering: RS)에 의해 검출되는 광학포논 (optical phonons)과 대조되며, RS에서 진동수가 10 THz 이상인 광학포논을 검출하는 데 비해 BS에서는 1 - 150 GHz의 진동수를 갖는 음향포논들이 검출된다.

최근에는 금속의 음향포논을 통한 탄성특성 뿐만 아니라 스핀파동 (spin waves)을 통한 자기적 특성을 조사하는 데 탁월한 성능을 발휘하고 있다.^[4] 금속에서는 빛이 필연적으로 표면근처에서만 산란되기 때문에 주로 표면에 대한 여기상태를 연구하는 데 큰 도움을 주고있다. 더군다나 그 두께가 음향포논의 파장보다 얇은 박막에 대한 탄성특성에 대한 조사는 브릴루앙 산란 실험이 유일한 방법임이 여러 논문의 발표로부터 밝혀졌다.^[5]

본 연구에서 사용한 압전물질 PbMoO_4 는 최근 국내에서 키운 단결정 시료이며 광음향장치 (acousto-optic devices) 매질에 대한 응용에 탁월한 성능이 발표된 이래 결정체에 대한 연구가 활발히 진행되고 있다.^[6]

브릴루앙 산란을 이용한 덩치 (bulk) 매질의 탄

성특성에 대한 연구는 7년전 발표된 $\text{Na}^+ \beta''\text{-alumina}$ 의 Trigonal ($\bar{r}3m$)대칭구조^[7] 및 5년전에 발표된 $\text{Hf}_{1-x}\text{Zr}_x\text{S}_2$ 의 같은 Trigonal 대칭구조^[8]에 대한 조사가 가장 낮은 구조였으며 아직 PbMoO_4 의 대칭구조인 Tetragonal (4/m)에 대한 탄성특성에 대한 브릴루앙 산란 실험결과는 발표되지 않았다.

따라서, 브릴루앙 산란 실험장치에 대한 소개를 목적으로, 본 논문에서는 덩치음향포논에 대한 브릴루앙 산란실험의 이론과 실험장치를 각각 II 장과 III 장에서 소개한 후에 압전물질 PbMoO_4 에 대한 실험결과를 IV 장에서 논하고자 한다. 그 다음, V 장에서 결론으로 글을 맺고자한다.

II. 브릴루앙 산란의 이론적 배경

매질이 광학적으로 선형동방균질하고 유전상수가 ϵ 인 투명하다고 가정하자. 파수벡터가 q 이며 각진동수가 Ω 인 음향파는 국소적으로 매질을 변형시키며 그 변형은 국소적인 유전상수의 변형을 일으켜 그 변형된 유전상수때문에 파수벡터가 k_i 이고 각진동수가 ω_i 인 입사파는 산란하게 된다. 산란된 빛의 파수벡터 k_s 와 각진동수 ω_s 는 다음과 같다:

$$k_s - k_i = \pm q \quad (1)$$

$$\omega_s - \omega_i = \pm \Omega \quad (2)$$

여기서 + 부호는 포논의 흡수 (anti-Stokes 산란)를 그리고 - 부호는 포논의 생성 (Stokes 산란)을 가리키고 있으며 이러한 현상을 광탄성효과라 부른다. 그림 1은 위의 두가지 산란을 보여주고 있다. 아울러 음향파의 속도 v 가 광속 c 보다 무척 작기

($\approx 10^{-5}$) 때문에 대단히 정확한 근사적으로 $|k_s| = |k_i| = k$ 으로 취할 수 있으며 식 (1)은

$$2k \sin \frac{\theta}{2} = |q| \quad (3)$$

의 간단한 형태로 써어질 수 있다. 여기서 θ 는 입사파와 산란파사이의 각도로서 산란각이라고도 한다.

브릴루앙 산란실험에서 구하는 음향포논은 브릴루앙 영역 (Brillouin zone)에서 거의 원점에 위치하기 때문에 음향파의 속도 v 는 다음과 같이 구해질 수 있다:

$$v = \frac{Q}{q} \quad (4)$$

여기서 $q = |q|$ 이다. 따라서, 음향파의 파수벡터는 식 (1) 또는 (3)에 의해서 즉 산란실험의 기하학적 형태로부터 구할 수 있으며 음향파의 각진동수는 고도의 정밀한 분광기를 이용하여 구함에 따라 음향파의 속도를 실험적으로 결정할 수 있다.

매질의 단위날칸내의 입자수에 따라 광학포논의 기준모드의 수는 달라지지만 덩치 음향포논은 언제나 3 개의 기준모드 (1개의 종파와 2개의 횡파)가 존재한다. 이 둘 3 개의 모드에 대한 속도는 매질의 탄성계수 (elastic constants)로부터 구해지며 방향에 따라 일반적으로 달라진다.

탄성계수는 원래 4차원 텐서량이나 매질의 대칭 구조에 따라 최대 21 개의 독립적인 계수 (c_{ij})들로 이루어진 6×6 의 대칭행렬로 표시된다. 본 논문에서 사용된 PbMoO_4 와 같이 Trigonal (4/m)의 대칭구조를 갖는 매질은 모두 7 개의 독립적인 탄성계수 ($c_{11}, c_{33}, c_{12}, c_{13}, c_{44}, c_{66}, c_{16}$)를 갖고 있으며 이 모든 탄성계수들이 복합적으로 임의의 방향의 음향포논의 3 개의 기준모드의 속도를 결정하게 된다. 예를 들어, a-축으로 진행하는 종파의 음향포논의 속도는^[9]

$$v_L = \sqrt{\frac{c_{11} + c_{66} + \sqrt{(c_{11} - c_{66})^2 + 4c_{16}^2}}{2\rho}} \quad (5)$$

이며 두 횡파의 음향포논의 속도는 각각

$$v_{T1} = \sqrt{\frac{c_{11} + c_{66} - \sqrt{(c_{11} - c_{66})^2 + 4c_{16}^2}}{2\rho}} \quad (6)$$

$$v_{T2} = \sqrt{\frac{c_{44}}{\rho}} \quad (7)$$

으로 주어진다. 여기서 ρ 는 매질의 질량밀도이다.

결정축 뿐만 아니라 임의의 방향의 각 음향포논의 속도는 수치적으로 계산되어질 수 있다. 원래 각 음향포논의 속도는 탄성계수 뿐만 아니라 유전상수

와 압전상수에도 영향을 받지만 본 논문의 주제에 맞추어, 그리고 그 두 가지 계수들이 속도에 미치는 영향이 크지 않아, 이러한 항들은 생략하였다.

예전부터 사용된 초음파변환기를 이용한 방법은 시료를 결정축방향으로 표면을 준비해야하는 단점이 있는 반면 브릴루앙 산란 실험은 산란실험의 기하학적 형태를 임의의 방향으로 선택이 가능하기 때문에 앞의 어려움을 쉽게 극복할 수 있는 장점이 있다. 또한 초음파변환기를 사용할 때는 변환기를 실제 매질 표면에 부착시켜야하며 때로는 매질표면을 손상시키는 단점이 있으나 산란을 이용한 본 실험방법은 전혀 매질을 손상시키지 않는 비파괴적이라는 장점이 있다. 실제 방법은 IV장에서 설명할 것이다.

최종적으로, 브릴루앙 산란 실험으로 측정된 임의의 방향에 대한 각 기준모드의 속도를 이론치와 비교하여 그 차이를 최소화한다면 매질의 탄성계수를 역으로 결정할 수 있다. 더 나아가서, 매질의 탄성계수는 매질의 구조와 밀접한 관계가 있기 때문에 구조분석에 사용될 수도 있다.

III. 실험장치

브릴루앙 산란 실험의 주요장치는 이중 패브리-페로 간섭계 (tandem Fabry-Perot interferometer: TFPI)로 그림 2가 보여주는 것처럼 두 개의 패브리-페로 간섭계를 직렬로 연결하였으며 두 간섭계의 간격을 한 개의 압전변환기로 같이 변화게 하는 간섭계이다. 패브리-페로 간섭계는 그림 2에서와 같이 공동거리가 L 인 두 개의 평면경을 말한다. 간격이 입사광선의 파장의 반의 정수배가 될 때 간섭계는 입사한 빛을 모두 투과시키고 그 외에는 거의 투과시키지 않는 특성을 갖고있다.

그림 3(a)는 TFPI의 첫번째 간섭계의 전형적인 투과곡선을 보여주고 있다. 가로축은 공동거리의 변화 또는 진동수변이 (frequency shift)를 보여주고 있으며 세로축은 투과된 빛의 세기로서 로그값으로 주어졌다. 공동거리가 입사파의 반파장만큼 이동할 때 투과하는 진동수변이는 Free Spectral Range (FSR)이라 부르며 $\frac{c}{2L}$ 의 값과 같다. 그림 3(a)의

FSR 사이의 작은 신호들은 매질내의 음향포논에 의해 산란된 빛들을 가리고 있다. 공동거리가 반파장씩 변할 때 마다 같은 파장의 빛을 투과시키는 간섭계의 특성은 음향포논에 의해 산란된 빛의 정확한 진동수변이를 결정하는 데 어려움을 주고있다. 이러한 결점을 보완하기 위하여 같은 분해능을 유지하면서 FSR을 늘리는 방법으로 공동거리가 약간 다른

두 개의 간섭계를 직렬로 연결한 것이 바로 TFPI의 기본원리이다^[10]. 그림 3(b)는 두번째 간섭계의 투과곡선으로 그림 3(a)와 같은 그림이며, 두번째 간섭계의 공동거리가 첫번째의 것보다 약간 작음을 보여주고 있으며, 그림 3(c)는 앞의 두 투과곡선의 곱으로 TFPI의 일반적인 투과곡선을 보여주고 있으며 앞의 두 투과곡선에 비해 음향포논에 의한 빛의 진동수변이를 쉽게 식별할 수 있음을 보여주고 있다. 즉 FSR의 1/5되는 진동수변이가 음향포논의 진동수이다. 신호그림 3(c)의 진동수변이가 FSR인 위치에서의 신호를 일명 ghost 신호라 부르기도 하며 ghost 신호 양쪽의 작은 신호들은 음향포논에 의한 신호들의 ghost 신호에 해당된다.

일반적으로 한 페브리-페로 간섭계의 투과곡선의 최소치와 최대치의 비는 약 10^{-3} 정도이다. 그러나 음향포논에서 산란된 광선의 세기는 일반적으로 탄성산란된 빛의 세기에 비해 약 10^{-5} 정도이며 표면 음향포논에 의한 산란은 이보다 훨씬 더 작다. 따라서, 간섭계의 최소치와 최대치의 비를 증가시키기 위하여 같은 간섭계를 여러번 통과하는 여러겹통과(multi-pass) 이중 페브리-페로 간섭계를 사용하고 있다.

TFPI의 필요조건으로, 각 간섭계의 공동거리의 변화량 ΔL_1 과 ΔL_2 는 공동거리들간의 다음의 관계

$$\frac{L_1}{L_2} = \frac{\Delta L_1}{\Delta L_2} \quad (8)$$

을 만족^[10]해야 하며 이는 그림 2(a)에서 보는 바와 같이 두 간섭계가 각도 θ 만큼 벌어져 있어서 두 공동거리가 다음의 관계를 갖을 뿐만 아니라

$$L_1 = L_2 \cos \theta \quad (9)$$

공동거리의 변화량도 같이 변하도록 함으로서 얻어질 수 있다. 참고문헌 11에서는 TFPI의 각 변수에 대한 실제적인 한계와 스펙트럼에 미치는 영향을 실제의 스펙트럼을 이용하여 분석하였다.

IV장에서 논의할 PbMoO₄에 대한 브릴루앙 산란 실험은 실온에서 각 간섭계를 3번씩 통과한 Sandercock 형태의 3+3-pass TFPI를 이용하여 실행하였다. 그림 4는 실제의 실험장치의 개략도이며 Ar이온 레이저에서 얻은 10 mW의 단 파장 ($\lambda = 514.5$ nm)의 빛을 50 mm의 초점거리를 갖는 카메라 렌즈를 이용하여 시료표면에 집속하였다. 시료에서 산란된 빛중에서 같은 카메라 렌즈 (f/4.0)로 통과한 빛들만 모아 간섭계로 분석함으로써 180°의 후방산란을 피하였으며 이는 입사파의 파수벡터의 방향이 음향포논의 진행방향과 나란하도록 하였다. 따라서 음향포논의 방향에 대한 선택은 입사광선의 방

향으로 임의대로 결정할 수 있었다. 분석된 신호는 수냉식 photomultiplier tube (PMT)를 이용하여 검출하였다. 간섭계가 주사(scanning)할 때 탄성산란된 빛이 모두 투과할 때는 그 신호의 세기가 PMT가 감당하기 어려울 만큼 크기때문에 광음향변조기(acousto-optic modulator)를 이용하여 입사광선의 세기를 약 10^{-2} 정도로 줄이고 있다.

수 백번의 스펙트럼을 계속 더해줌으로서 신호대 잡음비를 증가시켰으며 그 과정중 실험장치는 평형을 계속 유지되도록 하였다. 각 스펙트럼들은 약 30분의 시간동안 누적되었다.

IV. PbMoO₄에 대한 실험결과 및 논의

압전물질인 단결정체 PbMoO₄^[12]의 탄성계수들을 결정하기 위한 브릴루앙 산란 실험방법으로는 먼저 결정체의 결정축을 알고 각 결정축을 따라 진행하는 음향포논 또는 탄성파의 속도를 측정할 수도 있지만 시료를 결정표면을 갖도록 준비하는 것도 어려울 뿐만 아니라 각 결정축방향의 음향포논의 속도를 측정한다해도 실제의 탄성계수를 결정하는 데 적지않은 어려움이 있다.

본 논문에서 취한 방법은 음향포논들의 속도들이 방향에 따르는 변화를 조사함으로써 시료의 결정축과 탄성계수를 동시에 수치적으로 결정하는 것이다.

사용된 시료는 한 표면의 수직인 방향이 c-축에 가깝도록 준비되었으며 시료 표면의 수직축을 중심으로 돌려가며 고정된 입사각 (70°)으로 브릴루앙 산란실험을 실행하였다. 그 결과 수직축과의 각도는 고정된 음향포논의 속도들의 a-축과의 각도와와의 함수관계를 조사하였다. 그림 5는 그 중 대표적인 브릴루앙 산란 스펙트럼을 보여주고 있다. 0 GHz의 신호는 매질로부터 탄성산란된 빛이며 그 세기가 너무 커서 잘렸으며 42 GHz부근의 이중신호는 탄성산란된 빛의 ghost 신호에 해당되며 FSR이 41.90 GHz임을 보여주고 있다. 스펙트럼은 0 GHz 양쪽으로 대칭성을 보여주고 있는데 이는 브릴루앙 산란 스펙트럼의 특성으로 Stokes 산란과 anti-Stokes 산란의 세기가 같음을 뜻하며 약간의 신호의 세기의 차이는 실험상의 오차일 뿐이다. 18, 19, 그리고 36 GHz 근방에 위치한 3 개의 신호는 PbMoO₄의 3 개의 음향포논에 의한 산란된 빛들로 판명되었다. 나머지 스펙트럼들도 모두 비슷한 형태들이었다.

그림 6는 각 스펙트럼에서 얻은 음향포논의 진동수를 음향포논의 방향과 a-축간의 각도와와의 함수관계로 표현한 것이다. a-축의 위치를 초기에 알 수 없기 때문에 각도들의 절대적인 의미를 부여할 수

없었으나 다음의 사실로부터 쉽게 판명될 수 있었다. 먼저 c-축이 시료 표면의 수직축과 나란하다면 음향포논의 진동수들은 a-축간의 각도에 따라 90°의 회전대칭성을 가져야한다⁹⁾, 왜냐하면 매질은 Tetragonal 대칭구조를 갖고 있기 때문이다. 그러나 실험결과는 90°의 회전대칭성보다는 180°의 반사대칭성을 보여주고 있다. 이는 c-축이 시료표면의 수직축과 일치하지 않음을 단적으로 나타내주고 있을 뿐만 아니라 반사대칭면이 a-축으로부터 29° 회전된 각도에 존재한다^{9,12)}는 사실로부터 a-축의 위치를 결정할 수 있게 되었다. 즉 그림 5의 가로축의 0°는 결정체의 a-축으로부터 약 29° 회전된 것을 의미하고 있다.

PbMoO₄의 탄성계수 7 개의 변수와 a-축과 c-축의 방향을 나타내는 2 개의 변수, 총 9 개의 변수를 변화시켜가며 이론치와 실험치간의 오차가 최소화하였다. 그렇게 해서 얻은 탄성계수는 표 1에 1971년에 발표된 값¹²⁾과 비교하였으며 그림 6의 실선은 이러한 탄성계수를 이용하여 구한 이론치들이다. 또한 그림 6의 가로축의 0°는 a-축으로부터 26.5° 회전되었으며 c-축은 표면의 수직방향으로부터 2.9° 기울어져있음을 알게 되었다.

	참 고 문 헌 ^[12] (GHz)	현 재 값 (GHz)
C ₁₁	109.2	85.2
C ₁₂	68.3	49.5
C ₄₄	26.7	28.6
C ₁₃	52.8	43.2
C ₃₃	91.7	99.1
C ₆₆	33.7	25.9
C ₁₆	13.6	16.2

표 1 본 연구에 사용된 단결정 PbMoO₄의 탄성계수와 참고문헌 값과 비교. 단위는 GPa (= 10⁹ N/m²)

앞의 결과를 얻기 위해서 참고문헌 [12]에 발표된 매질의 질량밀도와 단축결정의 굴절률을 그대로 사용하였으며 앞에서 언급한 바와 같이 유전상수 및 압전상수에 대한 고려는 생략하였다. 따라서 실제의 탄성계수의 값들은 표 1에서의 값과는 약간 차이가 있을 것이며 이에 대한 연구는 계속 진행중이다. 그러므로 참고문헌 값들에 대한 변화량은 생략하였다.

그림 6의 이론치와 실험치가 전반적으로 잘 일치

하는 것은 표 1의 7 개의 탄성계수 및 두 개의 기하학적 변수 값이 선행된 가정하에 만족할 만하다고 하겠다. 그러나 두 개의 기하학적 변수 값은 X-선 회절실험으로부터 확인할 수 있으며 이는 앞으로 할 과제중 하나이다.

표 1에 나타난 탄성계수의 변화량에 대한 물리적인 의미에 대한 분석은 추후 선행되어야 할 필연적인 과제로서 보다 나은 압전물질을 생성하는 데 도움이 될 것이다.

V. 결론

요약하면, 브릴루앙 산란 실험은 매질의 장파장의 음향포논 즉 탄성파의 속도를 측정 및 검출하는데 사용되는 방법으로서, 단지 단일 (single) 파장의 레이저 광선을 매질에 입사함으로써 조사가 가능한 비파괴적인 실험방법임을 압전물질 단결정의 PbMoO₄ 를 이용하여 증명하였다. 아울러, 시료를 처음부터 정확한 결정방향으로 준비하지 않아도 모든 탄성계수를 구할 수 있음을 보였다.

감사의 글

본 시료를 제공해주신 동의대학교 물리학과 김성철교수님과 유윤식교수님에게 감사드립니다. 이 연구는 1994년도 교육부 기초과학육성연구비 (과제번호: BSRI-94-2429)의 지원에 의해 수행되었으며 이에 감사드립니다.

참 고 문 헌

- 1 L. Brillouin, "Diffusion of light and of X-rays by a transparent homogeneous body," Ann. Phys. (Paris) 17, 88 (1922).
- 2 L.I. Mandelstam, Zh. Russ. Fiz. Khim. Ova. 58, 381 (1926).
- 3 G.B. Benedek and K. Fritsch, "Brillouin Scattering in Cubic Crystals", Phys. Rev. 149, 647 (1966).
- 4 M. Grimsditch, E. E. Fullerton and S. Kumar, "Interlayer coupling in Fe/Cr(211) trilayers: comparison of magnetization, SMOKE and Brillouin experiments," Bull. Am. Phys. Soc. 40, 273 (1995).
- 5 S. Lee, J.R. Dutcher, G.I. Stegeman, G. Dudá, G. Wegner and W. Knoll, "Superlattice model for the elastic properties of polymeric

- Langmuir-Blodgett Films," *Phys. Rev. Lett.* **70**, 2427 (1993).
- 6 D.A. Pinnow, L.G. Van Viter, A.W. Warner and W.A. Bonner, "Lead Molybdate: A Melt-grown Crystal with a High Figure of Merit for Acousto-Optic Device Applications," *Appl. Phys. Lett.* **15**, 83 (1969).
 - 7 S. Lee, B. Hillebrands, G.I. Stegeman, B. Dunn and L.A. Momoda, "Elastic Properties of $\text{Na}^+ \beta$ -alumina measured by Brillouin Spectroscopy," *Solid State Commun.* **70**, 15 (1988)
 - 8 J.M. Karanikas, R. Sooryakumar, C. Carlone and M. Aubin, "Elastic properties of trigonal laminar systems: Brillouin scattering study of $\text{Hf}_{1-x}\text{Zr}_x\text{S}_2$," *Phys. Rev. B* **41**, 1516 (1990).
 - 9 B.A. Auld, *Acoustic Fields and Waves in*
- 터 26.5° 회전된 방향을 가리킨다.
Solids Volume I and II (John Wiley and Sons, Inc. 1973).
- 10 J.R. Sandercock, "Trends in Brillouin Scattering: Studies of Opaque Materials, Supported Films, and Central Modes," *Light Scattering in Solids III*, edited by M. Cardona & G. Gentherolt (Springer-Verlag, Berlin, 1982).
 - 11 이석목, G.I. Stegeman, "이중 패브리-페로 간섭계에 대한 분광학적 분석방법," *한국광학회지* **5**, 231 (1994).
 - 12 G.A. Coquin, D.A. Pinnow, and A.W. Warner, "Physical Properties of Lead Molybdate Relevant to Acousto-Optic Device Applications," *J. Appl. Phys.* **42**, 2162 (1971).

Figure Captions:

그림 1. 음향포논에 의한 빛의 비탄성산란. (a) anti-Stokes (b) Stokes scattering. 각도 θ 는 산란각임

그림 2. 이중 패브리-페로 간섭계의 구성도. 두 패브리-페로 간섭계가 한 개의 압전변환기로 같이 구동되고있어 항상 식 (8)을 성립하고 있다.

그림 3. 계산된 패브리-페로 간섭계의 거울간격과 투과된 빛의 세기간의 함수관계. (a) 이중 패브리-페로 간섭계의 첫번째 간섭계의 투과곡선 (b) 두번째 간섭계의 투과곡선 (c) 두 투과곡선의 곱으로 이중 패브리-페로 간섭계의 투과곡선. FSR은 거울간격이 반파장만큼 변했을 때 투과된 빛의 진동수변이이다.

그림 4. 브릴루앙 산란 실험장치도. AOM: Acousto-optic modulator. FP: Fabry-Perot Interferometer.

그림 5. 압전물질 단결정체인 PbMoO_4 에 대한 브릴루앙 산란 스펙트럼. 입사각은 70° 이다.

그림 6. PbMoO_4 의 3 음향포논들의 진동수와 음향포논의 방향간의 함수관계. (○)들은 실험치들이며 실선은 표 1에 적힌 탄성계수들을 이용한 이론치들이다. 가로축의 0° 는 결정체의 a-축으로부

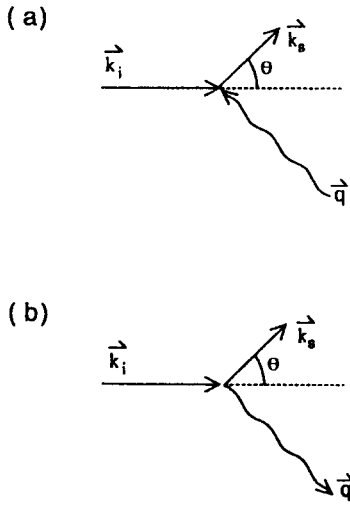


그림 1.

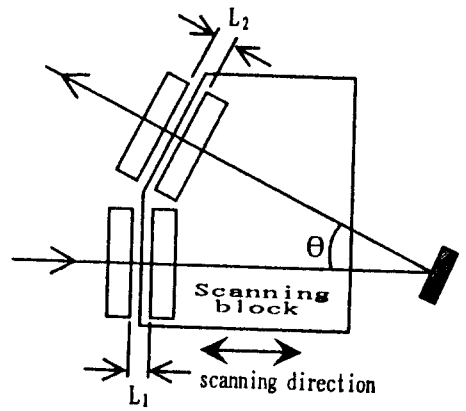


그림 2.

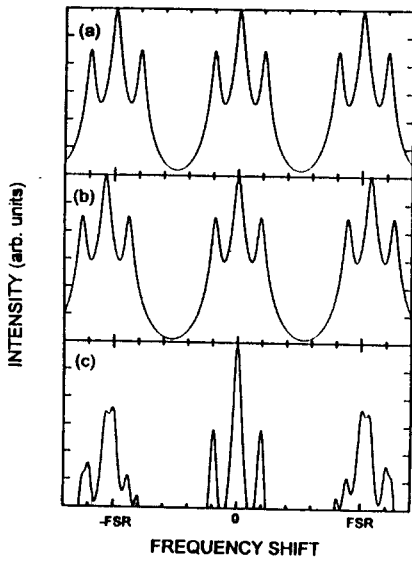


그림 3.

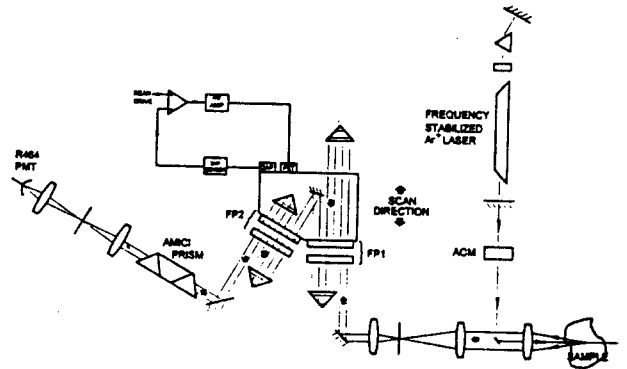


그림 4.

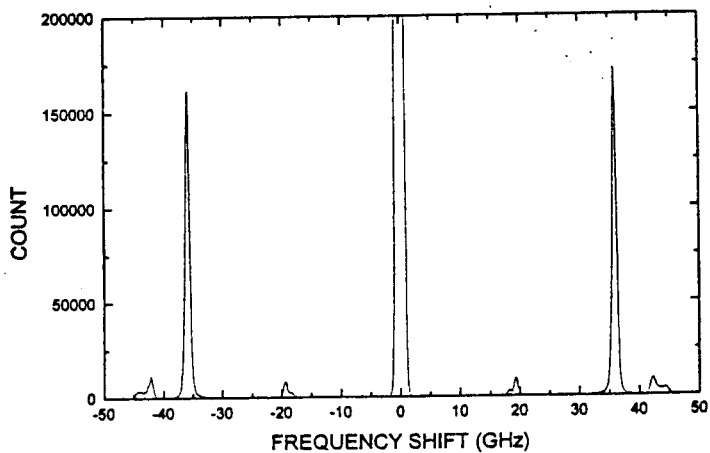


그림 5.

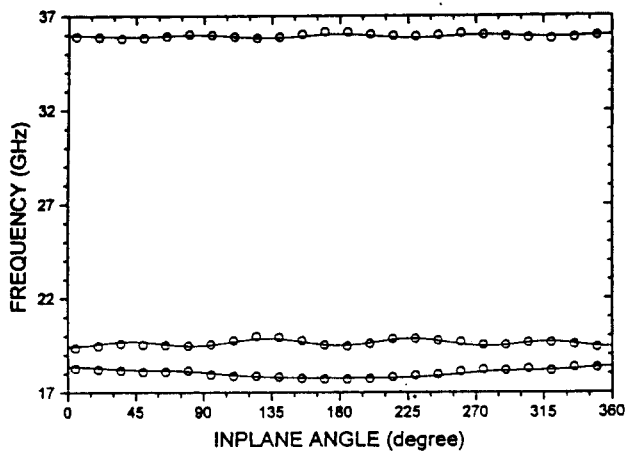


그림 6.