

RBS의 원리와 그 응용(I)

황정남 · 송종한
연세대학교 이과대학 물리학과

Principle and Applications of RBS(I)

Jung N. Whang, Jong H. Song
Department of Physics, Yon Sei University

1. 서 론

RBS(Rutherford Backscattering Spectrometry)는 MeV급 이온빔 환용분야 중에서 헬륨이온을 주로 사용하여 박막이나 소재 표면층의 두께, 결정구조와 결합, 원소 조성에 관한 정보를 제공하는 유용한 방법으로 알려져 있다. 고에너지(0.4~4 MeV) 헬륨 이온이 표적 물질의 원자핵과 탄성 충돌을 하게 되면 표적핵의 종류에 따라 후방 산란되는 입자의 에너지가 달라지게 된다. 이러한 탄성충돌 외에 진행 방향에 따른 에너지 손실 정도는 매질의 원소 조성과 침투깊이의 함수가 된다. 따라서 후방 산란되는 입자의 에너지와 계측된 헬륨이온의 갯수로 이루어진 스펙트럼을 분석함으로써 표적 표면의 여러가지 성질을 규명할 수 있으며 이러한 물리적 현상이 RBS분석법의 기초가 된다. 그림 1 과 그림 2 는 RBS의 개요도와 스펙트럼의 내용을 보여주

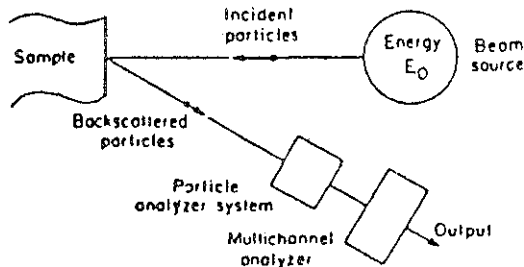


Fig. 1. Conceptual layout of a backscattering spectrometry system.

고 있다.

그림 3은 입사입자와 결정체 표적시료의 입사간에서 나타날 수 있는 상호작용을 나타낸 것으로서 RBS방법은 이 중에서 후방산란을 이용하여 분석하는 방법이다.

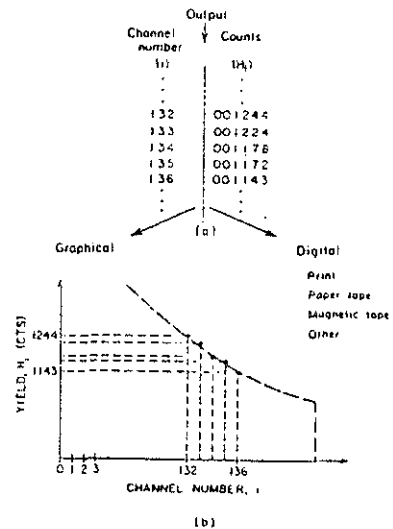


Fig. 2. Basic content of a backscattering spectrum and some methods of recording. (a) The ordinal number (left) identifies each channel, which contains a certain number of counts. (b) Various ways of recording a spectrum.

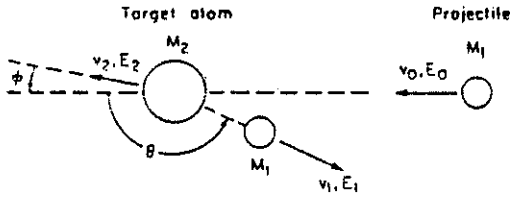


Fig. 3. Schematic representation of an elastic collision between a projectile of mass M_1 , velocity v_0 , and energy E_0 , and a target mass M_2 , which is initially at rest. After the collision, the projectile and the target mass have velocities and energies v_1, E_1, v_2 , and E_2 , respectively. The angles θ and ϕ are positive as shown. All quantities refer to a laboratory frame of reference.

1911년 Rutherford가 핵의 존재를 가설로 제안하고 1913년 Geiger와 Marsden이 Po-214 α 입자의 Au 박막에서의 탄성산란 현상¹⁾을 발견한 이래 RBS분석법의 표면분석에의 유용성은 잠재적으로 인정되어 왔다. 1960년대초 반도체 검출기 및 전자계측 장비가 실용화됨에 따라 분석기술과 활용분야가 계속 확대되어 오늘날에는 반도체뿐만 아니라 각종 재료의 표면 및 계면 분석 기술에 있어서 중요한 위치를 차지하게 되었다.

RBS분석의 특징으로는 이온 sputtering에 의한 원소층의 파괴가 수반되지 않으므로 SIMS(Secondary Ion Mass Spectrometry)나 AES(Auger Electron Spectroscopy) 등에 비해 상대적으로 비파괴 분석이 가능한 점²⁾, 깊이 방향의 원소 조성을 신속히 알아낸다는 점(소요시간 10~15분)과 거의 유일한 절대측정법이라는 점을 들 수 있다. 비교체를 요구하지 않은 절대측정성은 표면분석 기술을 연계 활용하는 경우 RBS분석법이 이정보로 사용될 수 있다는 점에서 특히 장점으로 지적되며 또한 같은 시료를 연속적으로 측정할 수 있기 때문에 재료의 동적 거동을 조사하는 데 특히 유용하다. 그리고 10^{-6} Torr 정도의 진공도이면 분석이 가능하므로 조작이 간편하고 시료교환을 빠른 시간내에 할 수 있으며 타 분석장치 처럼 고진공을 요하지 않는 장점이 있다.

RBS 분석법의 활용분야는 박막 분석, 실리콘 등의 반도체에 이온주입(Ion Implantation)된 불순물 분석, 금속 및 반도체 표면의 산화막 분석, 재료내의 원자 확산 연구, 표면 오염 분석, 금속 실리사이드 연구,

고분자 화합물 분석, IBM(Ion Beam Mixing)법에 의한 박막 합금의 형성 과정 연구 등 아주 광범위하다. 또한 단결정 시료에 대해서는 결정체 입자들이 배열되어 있는 방향으로 헬륨입자를 조사하면 조사된 입자가 격자 사이를 뚫고 보다 깊은 위치까지 도달할 수 있으므로 channeling 분석이 가능하고 이러한 분석 방법은 결정성, 결정내의 불순물 원자의 격자 위치나 격자 결함 구조, 나아가서 결정 계면층의 구조를 결정하는 데 이용되고 있다³⁾.

2. RBS의 기본적인 개념

1) Kinematic factor

정지 표적입자에 입사된 입자가 탄성충돌에 의해 산란되었을 때 충돌전의 에너지 E_0 에 대한 충돌후의 에너지 E_1 의 비를 kinematic factor, K라고 한다⁴⁾.

$$K = E_0 / E_1 \quad (1)$$

그림 3과 같은 모델에서 에너지 보존과 운동량 보존 법칙에 의하면 충돌 전후의 입사 입자의 속도의 비는 식(2)와 같이 나타낼 수가 있게 되며

$$\frac{v_1}{v_0} = \frac{\pm (M_2^2 - M_1^2 \sin^2 \theta)^{1/2} + M_1 \cos \theta}{M_1 + M_2} \quad (2)$$

이때 kinematic factor, K는 다음과 같이 표현된다.

$$K = \frac{[(M_2^2 - M_1^2 \sin^2 \theta)^{1/2} + M_1 \cos \theta]^2}{(M_1 + M_2)^2} \quad (3)$$

Kinematic factor, K는 입자간의 탄성충돌을 전제로 하는 인자이므로 입사에너지 E_0 에 비해 표적 원자들간의 결합에너지가 무시될 정도로 작아야 하고, 핵반응 혹은 공명산란 현상 등이 없어야 정확도가 높아진다.

2) 미분 산란단면적

산란 단면적으로 취급하는 부분은 두 입자간의 쿨롱 척력이 작용되는 부분으로써, 일반적으로 두 핵이 최대한으로 접근할 수 있는 거리로부터 Bohr 반경($a_0 = h/m_e e = 0.53 \text{ \AA}$)까지로 정의된다.

미분 산란단면적은 입사 입자가 표적 입자와 탄성충돌을 한 후 어떤 각도 θ 를 가지고 산란될 확률을 나타내는 변수로써 러더포드 공식에 의해 질량 중심

계에 대하여 다음과 같이 표시된다^{4,6,7}.

$$\left[\frac{d\sigma}{d\Omega} \right]_c = \left[\frac{Z_1 Z_2 e^2}{4E_c \sin^2(\theta_0/2)} \right]^2 \quad (4)$$

여기서 $d\Omega$ 는 미분 입체각, Z_1 은 입사 원자의 원자번호, Z_2 는 표적 원자의 원자번호 그리고 e 는 전자의 전하량이다. 이 식을 실험실계로 변환시키면 다음과 같다^{5,6}.

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \left(\frac{Z_1 Z_2 e^2}{4E} \right)^2 \frac{4}{\sin^4\theta} \frac{[1 - ((M_1/M_2) \sin\theta)^2]^{1/2} + \cos\theta}{[1 - ((M_1/M_2) \sin\theta)^2]^{1/2}} \quad (5)$$

여기서 E 는 충돌전 입사 입자의 에너지, M_1 은 입사 입자의 질량, M_2 는 표적 입자의 질량이다.

3) 산란 입자의 계측수

탄성산란에 있어서 정해진 입체각내의 계측확률을 나타내기 위해서는 다음과 같은 적분 산란단면적, Σ 로 기술되어야 한다.

$$\Sigma = \int_{\Omega} \left(\frac{d\sigma}{d\Omega} \right) d\Omega \quad (6)$$

RBS분석 시스템에 있어서 일반적으로 검출기의 입체각 Ω 는 매우 작으며 ($<10^{-2}$ str), 평균 미분 산란단면적을 식(7)과 같이 나타내는 것이 매우 유용하게 된다.

$$\sigma \equiv \frac{1}{\Omega} \int_{\Omega} \left(\frac{d\sigma}{d\Omega} \right) d\Omega \quad (7)$$

검출기의 입체각이 매우 작을 경우 σ 는 $(d\sigma/d\Omega)$ 와 같다고 볼 수 있으며, 이 경우 검출기에 검출된 입자의 총 갯수, A 는 다음과 같다.

$$A = \sigma \Omega Q N t \quad (8)$$

여기서 Q 는 입사 입자의 총 수, N 은 표적원소의 원자밀도 그리고 t 는 표적의 두께이다. 이 식으로부터 σ , Ω 그리고 입사 입자와 검출 입자의 수 A 를 알게 되면 표적물내의 면적당 원자 수를 계산할 수 있게 된다.

4) 에너지 손실과 저지 단면적(stopping cross section)

표적에 입사된 입자는 표적물에 침투하면서 표적물

을 이루는 원소의 전자 및 원자핵들과 끊임없이 충돌하게 되고 그로 인해 에너지를 잃게 된다. 이때 통과한 거리 Δx 동안 잃는 에너지 ΔE 의 크기는 입사 입자의 종류와 에너지, 표적의 원자밀도 및 구성 성분 등과 관계되는데 이러한 단위 길이당 에너지 손실, dE/dx 를 저지능(stopping power)이라 하며 다음과 같이 정의된다.

$$\lim_{\Delta x \rightarrow 0} \frac{\Delta E}{\Delta X} = \frac{dE}{dX} (E) \quad (8)$$

따라서 초기 에너지 E_0 를 지니고 표적의 표면적으로부터 x 만큼 들어 갔을 때의 입사 입자의 에너지, E 는 다음과 같이 표현된다.

$$E(x) = E_0 - \int_0^x \frac{dE}{dx} dx \quad (9)$$

식(9)에서 dE/dx 는 식(8)에서 보듯이 x 의 함수가 아니라 E 의 함수이다. 따라서 x 를 E 의 함수로 간주하면 다음의 식 (10)과 (11)과 같이 나타낼 수 있다.

$$dx = \frac{dx}{dE} (E) dE \quad (10)$$

$$x = \int_E^{E_0} \left(\frac{dx}{dE} \right) dE \quad (11)$$

일반적으로 dE/dx 대신에 ϵ 를 사용하며 저지단면적(stopping cross section)이라 한다. 저지 단면적, ϵ 는 식(12)와 같이 나타내어진다.

$$\epsilon = \frac{1}{N} \frac{dE}{dx} \quad (12)$$

저지 단면적의 유용성은 표적물마다 원소별 밀도가 다른 경우 효과적으로 나타난다. 원리적으로 입사 입자의 에너지 손실은 표적물을 이루는 원소의 갯수에 비례하게 되므로 두께에 따른 에너지 손실량을 밀도로 나누어 준 저지 단면적의 사용은 표적물을 이루는 원자들의 상태와 무관하게 일정한 에너지 손실값을 나타내어 주게 된다.

5) 표면조사 및 평균에너지 조사

그림4에 산란시의 기하학적 모형, 관련에너지 및 에너지 손실(dE/dx)를 E_0 및 $K_M E_0$ 로 나타내었으며

에너지변화 $\Delta E = [S]t$ 이다.

표면근처에서는 두께 t 가 무한소이고, 빔 진행구간을 따라 잃는 에너지 양이 작으므로

$$\left[S_0 \right] = \frac{K}{|\cos\theta_1|} \left. \frac{dE}{dx} \right|_{E_0} + \frac{1}{|\cos\theta_2|} \left. \frac{dE}{dx} \right|_{KE_0}$$

법선방향으로 입사한 경우 ($\theta_1 = 0^\circ, \theta_2 = 180 - \theta$)

$$\left[S_0 \right] = K \left. \frac{dE}{dx} \right|_{E_0} + \left. \frac{1}{|\cos\theta|} \frac{dE}{dx} \right|_{KE_0}$$

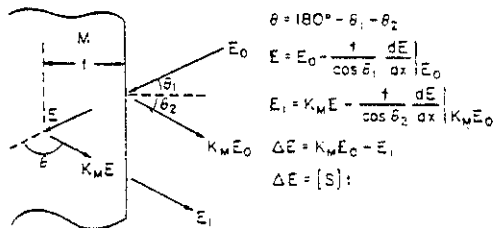
윗식에서 사용한 근사는 그림 5에 (dE/dx) 의 에너지 의존도를 나타내었으며, 에너지 E 와 KE 에 대한 (dE/dx) 의 값은 수평선으로 표시하였으며, 산란전 입사 경로와 산란후 탈출경로에 대한 입사입자의 에너지손실 (dE/dx) 의 실제값은 굵은선으로 나타내었다.

빔진행구간이 커지면 표면에너지 근사법은 오차를 수반하게 되므로 이 경우에는 구간의 처음과 끝의 에너지를 평균한 값을 사용한다.

$$\bar{E}_{in} = (E_0 + E) / 2 \quad \bar{E}_{out} = (E_1 + KE) / 2$$

$\theta_1 \approx \theta_2, K \approx 1$ 인 경우는 다음과 같다.

$$\bar{E}_{in} \approx E_0 - \Delta E / 4 \quad \bar{E}_{out} \approx E_1 + \Delta E / 4$$



a) Near-surface Depth Analysis, θ_1, θ_2 Coplanar

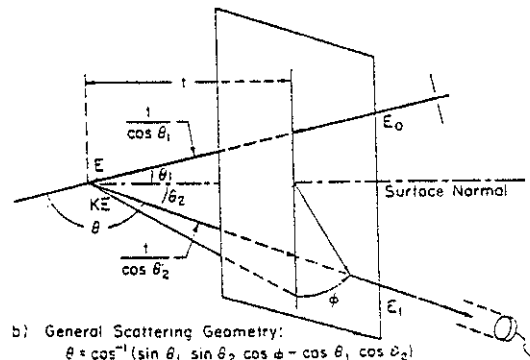


Figure 4, Scattering Geometry.

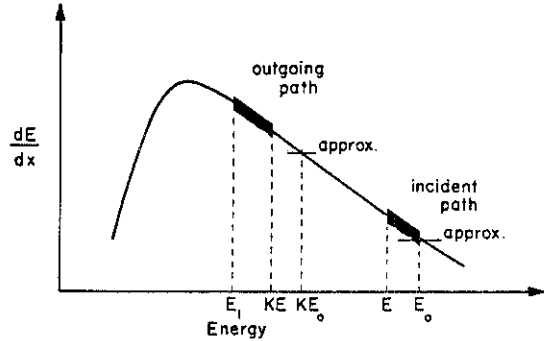


Figure 5. dE/dx values used in depth analysis.

6) Bragg's rule (Linear additivity rule)

큰 에너지로 입사된 입자가 표적물을 이루는 한 원자에 의하여 에너지를 잃는 양을 계산할 때 그 원자가 주위의 원자와 이루고 있는 결합에너지 값은 무시하게 된다. 즉 한번의 충돌시 고려되는 표적 원자의 수는 한개가 되고 이러한 개념으로부터 저지 단면적의 부가원칙 (principle of additivity of stopping cross section)이 유추될 수 있다. 다시말하면 여러 원자로 구성된 표적물에서의 에너지 손실량은 표적을 이루는 구성원소들의 무게비에 관계된다는 법칙이 성립하게 된다.

각 원자 A, B의 저지단면이 ϵ^A, ϵ^B 인 분자가 $A_m B_n$ 으로 존재하는 표적물에 있어서 이 표적물의 저지 단면적은 식(17)와 같이 나타낼 수 있다.

$$\epsilon^{AmBn} = m\epsilon^A + n\epsilon^B \quad (17)$$

이때 $A_m B_n$ 표적물의 부피밀도, 즉 단위 부피당 $A_m B_n$ 분자의 갯수를 N^{AmBn} 이라 하면 이 표적물의 비저지능 (specific energy loss)은 다음과 같이 나타낼 수 있다.

$$\frac{dE^{AmBn}}{dx} = N^{AmBn} \epsilon^{AmBn} \quad (18)$$

고 에너지 양성자의 경우 ($V \gg V_0$) 이 법칙은 약 1% 이내에서 정확히 맞게되고⁹⁾ 1~2 MeV 범위의 ⁴He의 경우 금속 합금에 있어서 매우 좋은 결과를 냈다는 보고도 있다.¹⁰⁾ 일반적으로 Bragg's rule은 10% 오차 이내에서 일치한다.

7) Bohr straggling

입사 입자가 표적물을 통과하게 되면 표적물내의 수많은 원자들과 충돌하면서 에너지를 잃게 되고 이같은

양자학적인 과정들은 통계적인 기록을 수반하게 된다. 그 결과로 최초의 단일 에너지를 지닌 입사 입자들은 두께, Δx 의 표적물을 통과하게 되면 더 이상 단일 에너지를 유지할 수가 없게 된다. 그림 6에 도식되어 있는 이러한 현상을 energy straggling이라 한다.

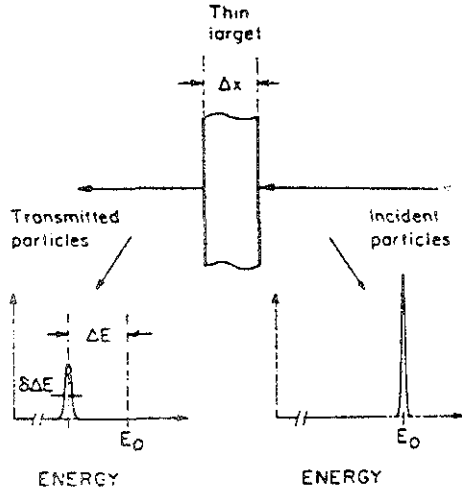


Fig. 6. Schematic illustration of energy straggling.

원자번호 Z_1 인 입사 입자를 조사시킬때 원자번호 Z_2 로 이루어진 두께 t 인 층에 있어서 energy straggling은 Bohr에 의해 최초로 유도되었으며 이때 Bohr straggling의 variance Ω_B^2 는 다음과 같다.

$$\Omega_B^2 = 4\pi(Z_1 e^2)^2 N Z_2 t \quad (19)$$

Bohr의 이론에서 살펴보면 energy straggling은 입사 입자와 표적 원소의 종류 및 갯수에 관계가 되며 입사 입자의 에너지에는 무관함을 알 수 있다.

8) 분해능

RBS 분석 방법으로 표면 분석을 하였을 때 전형적인 깊이 분해능은 약 100Å 정도이다. 시료 표면 근방의 깊이 분석의 분해능 Δx 는 검출기의 에너지 분해능 ΔE 에 대하여 다음과 같이 나타내어질 수 있다.

$$\Delta x = \frac{\Delta E}{K S_1 / \cos\theta_2 + S_2 / \cos\theta_2} \quad (20)$$

이 식에서 분해능 Δx 는 이온에 대한 저지능 및 실험의 기하학적 조건 (θ_1 , θ_2)에 의존함을 알 수 있다. 이 식으로부터 깊이 분석의 분해능을 향상시키는 좋은 방법으로 빔 방향에 대하여 시료를 기울여 입사 입자를 조사시키는 고안을 할 수 있게 된다. 또한 깊이 분석의

분해능은 에너지 손실 인자 $[S]$ 와도 관계가 되므로 $[S]$ 값을 최대한으로 올려주어 분해능을 향상시킬 수 있다. 이때는 원자 번호가 큰 입사 입자를 사용하는 것도 한 방법이나, 그로 말미암아 검출기의 에너지 분해능이 저하된다거나 energy straggling, 다중 산란, 입사 입자의 진행 방향 퍼짐 현상 등이 함께 커진다는 점을 의식해야 한다.

깊이 분석의 분해능에 관계되는 요인은 Connor 등에 의하여 다음과 같이 제안된 바 있다¹¹⁾.

$$\delta t \propto Z_1 (dE/dx)^{-0.77} t^{0.77} E^{-0.23} \quad (21)$$

시료의 원소 질량수에 따른 분해능에 관계되는 인자는 kinematic factor에 의한 영향이 크게 관련되며, 이로부터 $M_1 \gg M_2$ 이고 θ 가 180° 근처인 $\theta\pi - \delta$ 의 기하학적 조건에서는 검출기에 검출된 에너지 차이 ΔE_1 에 대하여 다음과 같은 관계식이 성립한다.

$$\Delta E_1 = E_0 (4 - \delta^2) (M_1/M^2) \Delta M_2 \quad (22)$$

이 식으로부터 RBS 스펙트럼상에서 밀접한 원소층 스펙트럼들의 분리가 보다 향상되게 하기 위한 조건을 다음과 같이 정리해 볼 수가 있게 된다.

① 초기의 입사 입자 에너지 E_0 를 높인다. 이 방법은 무거운 원소로 이루어진 시료를 분석하는데 유용하다.

② 질량수 M_2 가 큰 입자를 사용한다. 그러나 중이온을 계속적으로 검출하게 되는 경우 검출기의 성능이 급격히 저하되는 경향, 그리고 시료에 대한 방사선 상해가 상대적으로 크기 때문에 조사빔 전류를 제한해야 한다는 점이 약점이 될 수 있다. 또한 중이온을 입사 입자로 쓰는 경우 도달가능 깊이는 입자의 질량수 증가에 따라서 감소하므로 상대적으로 얇은 표면 분석만이 가능하다.

③ 검출기의 각도를 빔 방향에 대하여 거의 180° 에 가깝게 설치한다. 즉 δ 값을 작게 한다.

RBS 실험에 있어서 이상적인 러더포드 산란을 이용하기 위한 빔의 적정 에너지 범위는 α -입자의 경우 1~3 MeV이다. 그러나 이러한 경우에도 식(22)에서와 같이 에너지를 증가시킴에 따라서 질량수에 대한 분해능이 향상되기 때문에 3 MeV 이상의 에너지로 조사시키는 경우도 빈번하다.

분석 결과의 통계적 오차를 줄이기 위해서는 충분한

양의 계측수가 필요하게 된다. 또한 계측 시간을 단축시키기 위해서는 빔 전류를 증가시킬 필요가 있다. 그러나 이러한 경우는 펄스 중첩 등에 의한 스펙트럼 백그라운드의 증가와 계측불감 시간의 증가로 인한 보정을 고려해야 한다.

빔 전류가 매우 적은 경우에는 충분한 계측수를 얻기 위한 시간이 너무 길게 소요되며, 검출기의 입체각을 키우는 방법을 써서 보완을 한다 하여도 그로 인한 분해능의 저하는 피할 수 없는 문제가 된다. 또한 빔 전류가 1nA 이하가 되는 경우 일반적으로 전류 적분기의 측정 오차가 커져서 역시 정확한 실험을 수행할 수 없게 된다. 이외에 빔 전류 밀도의 결정시 유의할 점은 표적물의 방사선 상해에 관계되는 요인이며 이는 특히 RBS 분석 후 시료를 다른 목적으로 다시 사용할 필요가 있는 경우에 고려해야 한다. 이온 빔을 사용하는 표면 분석 방법에 있어서 RBS방법의 특징적인 잇점의 하나가 근본적으로 비파괴 분석 방법이라는 점은 앞에서 언급한 바와 같다. 그러나 빔 전류가 커지는 경우 표적물의 방사선 상해 문제는 피할 수가 없게 되고 입사 입자가 무거운 원소인 경우에 이 문제는 보다 더 심각하게 된다.

일반적으로 RBS분석에서 시료에 조사되는 빔 전류의 범위는 10~100 nA이다. 그러나 Micro-matter등의 정밀한 박막 표준 시료의 경우 5 nA정도로 빔 전류를 제한하여 측정해야 할 필요가 있다.

3. RBS 분석장치

그림 7은 RBS 분석장치의 개략도를 보여 주는 것으로 이온원으로부터 생성된 하전 입자는 Van de Graaff 가속기(혹은 Pelletron가속기)를 통과하여 MeV단위의 에너지를 갖게되며, 빔을 집속시키고 질량분석을 할 수 있는 사극집속전자석 및 질량분석용 전자석이 있으며 일정한 산란각을 유지시키고 빔크기를 작게 조절하기 위한 Collimator가 있다. 측정함에는 신호를 검출하는 표면장벽 검출기와 시료고정대가 있다. Data분석장비로 검출기에서 검출된 신호를 증폭하는 Preamplifier가 있으며, 컴퓨터로 하여금 data습득, 저장, 표시 및 해석과 같은 다양한 기능을 가능하게 해 주는 Multichannel Analyser(MCA)가 있다.

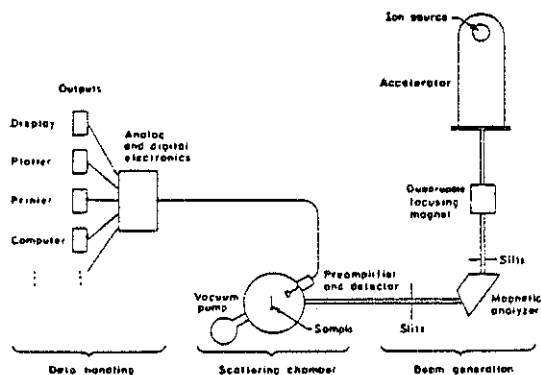


Fig. 7. Schematic diagram of a typical backscattering spectrometry system in use today.

참 고 문 헌

1. H. Geiger and E. Marsden, *Phil. Mag.*, 25, (1913) 606
2. F. Namavar and J. I. Budnick, *Nucl. Instr. and Meth.*, B15, (1896)285
3. W.K. Chu, F.W. Saris, C.A. Chang, et al., *Phys. Rev.*, B26, (1982)1999
4. W.K. Chu, J.W. Mayer and M.A. Nicolet, *Backscattering Spectrometry*, Academic Press, London(1978).
5. E. Rutherford, *Phil. Mag.*, 21, (1911)669
6. J.F. Ziegler, J.W. Mayer, B.M. Ullrich and W.K. Chu, *New Uses of Ion Accelerators*, Ed. J.F.Ziegler (Plenum Press, New York, P.73, 1975)
7. W.K. Chu, J.W. Mayer, M.A. Nicolet, T.M. Buck, G.Amsel and F.H. Eisen, *Thin Solid Films* 17 (1973)1
8. J.W. Mayer *Ion Beam Handbook for Material Analysis*, Academic Press (1977).
9. T.E Burlin, *Radiation Dosimetry*, Vol. I, Academic Press, New York (1968).
10. J.S.Y Feng, W.K. Chu and M.A. Nicolet, *Phys. Rev.*, B10 (1974)3781
11. D.J. O'Connor and T. Chunyu, *Nucl. Instr. and Meth.*, B36 (1986)178
12. *Ion Beam Surface Layer Analysis*, Eds J.W. Mayer

- and Z.F. Ziegler(American Elsevier Publ. Co., New York, 1974) also Thin Solid Films (1974) 19
13. *Application of Ion Beams to Metals*, Eds. S.T. Picraux, E.P. EerNisse and F.L. Vook(Plenum Press, New York, 1975)
14. *Ion Beam Surface Layer Analysis*, Eds. O. Meyer, G.Linker and F.Kappeler (Plenum Press, New York, 1976) Vol. 1 and 2