

## X-Ray Triple Crystal Diffraction Spectrometer의 제작과 그 응용

박영한 · 염효영 · 윤형근 · 민석기\* · 박용주\*

단국대학교 물리학과  
\*한국과학기술원

## X-Ray Triple Crystal Diffraction Spectrometer and Its Applications

Young-Han Park, Hyo-Young Yeom, Hyng-Guen Yoon,  
Suk-ki Min\* and Young Joo Park\*

Department of Physics, Dankook University, Cheonan 330-714, Korea

\*Semiconductor Materials, Korea Institute of Science and Technology, Seoul 130-650, Korea

### 요 약

고분해도의 X-선 산란을 위해 두 실험 방법이 개발됐다. 그 방법들은 (1) 2-결정 회절 스펙트rometer(DCD)설치와 (2) 3-결정 회절 스펙트로메터(TCD) 설치였다. Si(511)-시료(*hkl*)의 DCD 배열로 Si(333), Si(004), GaAs(004)의 rocking curve를 그렸다. 또한 단일체 단색 평행기와  $K_{\alpha 1}$  선선택기를 포함하는 Si(111)-Si( $\bar{1}\bar{1}\bar{1}$ )-Si(511)-sample(*hkl*)의 TCD배열로 Si(333), Si(004) 그리고 GaAs(004)의 rocking curve를 그렸다. DCD와 TCD에 의한 rocking curve의 FWHM의 차이가 논의됐다. DCD에 의한  $\text{In}_{0.037}\text{Ga}_{0.0963}\text{As}/\text{GaAs}$ 의 (004) 및 (115) 반사 토포그래프가 행해졌다.

### Abstract

Two experimental methods have been developed for high resolution measurement of x-ray scattering. The methods used were (1) an x-ray double crystal diffraction (DCD) spectrometer set-up and (2) an x-ray triple crystal diffraction (TCD) spectrometer set-up. With the DCD arrangement of Si(511)-sample(*hkl*), rocking curves have been plotted for Si(333), Si(004) and GaAs(004). Also, with the TCD arrangement of Si(111)-Si( $\bar{1}\bar{1}\bar{1}$ )-Si(511)-sample(*hkl*) including monolithic monocro-collimator and  $K_{\alpha 1}$  selector, rocking curves have been plotted for Si(333), Si(004) and GaAs(004). The results of FWHM by DCD and TCD set-up have been compared each other and discussed. The reflection topographs (004) and (115) in an  $\text{In}_{0.037}\text{Ga}_{0.0963}\text{As}/\text{GaAs}$  sample have been obtained by DCD set-up.

### 1. 서 론

X-선 발생장치에서 방출되는 X-선은 발산 각이 크고 파장의 범위가 넓은 연속 X-선이다. 이러한 X-선을 발산 각이 없는 평행의 그리고 단색의 특성 X-선만을 선택하기 위해 흔히 2-결정 회절분광기(double crystal diffraction spectrometer)<sup>1-3)</sup> 또는 3-결정 회절분광기(triple crystal diffraction spectrometer)<sup>4-8)</sup>를 만든다. 이러한 고 분해능의 분광기는 단결정의 rocking curve,<sup>9,10)</sup> topography,<sup>11-13)</sup> 탄

성상수,<sup>14-17)</sup> phonon spectra,<sup>18,19)</sup> 결정결함,<sup>5,20)</sup> Huang diffuse scattering,<sup>5,21-24)</sup> 격자상수 변화,<sup>25,26)</sup> 굽은 결정의 곡률 반지름 측정,<sup>27)</sup> X-선 구조인자 연구<sup>28)</sup> 등에 이용된다.

본 연구에서는 첫째 입사 X-선속을 평행하게 그리고  $K_{\alpha 1}$ 과  $K_{\alpha 2}$ 를 분리하여 단색으로 만들어 시료 결정의 rocking curve의 FWHM 측정의 기기오차를 최소화하고, 둘째 결정결함 연구를 위한 토포그래프 실험에서 높은 해상도의 2-결정 회절분광기와 3-결정 회절분광기를 제작하고 그 응용으로 Si와

GaAs 결정의 rocking curve 실험을 하고 장치에 따른 결과의 차이점을 논의하며  $\text{In}_{0.037}\text{Ga}_{0.0963}\text{As}/\text{GaAs}$ 결정의 2결정 토포그래프 실험을 수행한다.

## 2. 장치의 제작

발산각이 큰 연속 X-선을 평행 단색 특성 X-선으로 만들기 위해서 전위결합 밀도가  $10^2/\text{cm}^2$  보다 훨씬 적은 거의 완전결정에 가까운 Si 결정을 단색 평행기(monochro-collimator)를 만드는 데 사용하였다. Si 결정의 성장방위는 [111]이고 크기는 가로 4, 세로 2, 높이 3 cm였다. 결정 절단기로 이 결정의 가운데에 홈을 파서 단일체 단색 평행기(monolithic monochro-collimator)를 만들었다. 이 장치는 일명 수로형 단색 평행기(channel cut monochro-collimator)라고도 한다. 이 결정의 표면(111)을 회전면으로 사용하였다.

제 2결정은  $K_{\alpha 1}$ 의 선택과  $K_{\beta}$  및  $K_{\alpha 2}$ 의 제거, 높은 평행성 그리고 실험에서 시료결정에 입사하는 선속의 폭의 확장을 위하여 Si결정의 (511)면을 비대칭 회전면으로 사용하였다. 입방정계 결정의 (111)면과 (511)면 사이의 각도는  $38.9^\circ$ 인데, (111)표면을 (511)면과 반대 방향으로  $6^\circ$ 되게 절단하여 표면과 (511)면 사이의 각도를 약  $45^\circ$ 로 만들었다. Cu  $K_{\alpha 1}$ ,  $K_{\alpha 2}$ 에 대한 Bragg각은 각각  $14.222^\circ$ 와  $14.256^\circ$ 이고 Si(511)의 Bragg각은 각각  $47.477^\circ$ 와  $47.633^\circ$ 이다. 따라서 그림 1과 같이 장치를 배열하면 제 1결정에서 회전조건을 만족하여 (111)면으로부터 반사된  $K_{\alpha 1}$ ,  $K_{\alpha 2}$  선속은  $0.034^\circ$ 의 각도차가 생긴다. 이들 선속이 제 2결정에 입사할 때, 결정면(511)이  $K_{\alpha 1}$ 에 대해 회전조건을 만족하도록 조절하면,  $K_{\alpha 2}$ 는 결정면 (511)과  $47.443^\circ$ 를 이루므로,  $K_{\alpha 2}$ 에 대한 결정면 (511)의 Bragg각  $47.633^\circ$ 보다  $0.190^\circ$ 가 작게 된다.<sup>29)</sup> 따라서 제 2결정은  $K_{\alpha 1}$ 만 선택하고  $K_{\alpha 2}$ 와  $K_{\beta}$ 를 동시에 제거하게 된다. 제 2결정에 의한 비대칭 회전에서 결정의 표면에 대한 입사각과 반사각 등을 고려하여 선평의 확대율을 계산하면<sup>30)</sup> 그 확대율이 22.9배가 된다. 제 3결정은 시료결정이다.

우리가 제작한 3-결정 회전 분광기의 배열[그림 1참조]은 X-선 발생원—단일체 단색 평행기— $K_{\alpha 1}$  선택기(제 2결정)—시료결정 사이의 간격을 33-12-

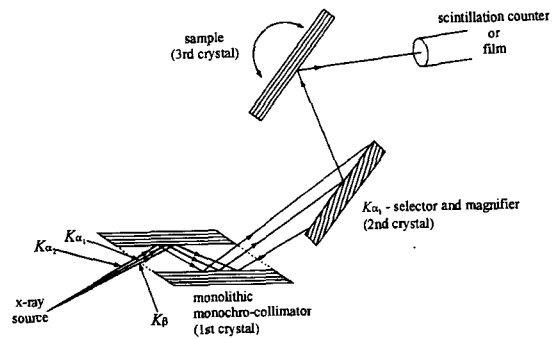


Fig. 1. Experimental arrangement of a triple crystal diffraction spectrometer.

20 cm로 하였다.

또한, 2-결정 회전 분광기는 3-결정 회전 분광기에서 단일체 단색 평행기를 빼고 제 2결정을 단색 평행기로 하여 배열 하였다. X-선 발생원—단색 평행기—시료결정 사이의 간격을 54-20 cm로 하였다.

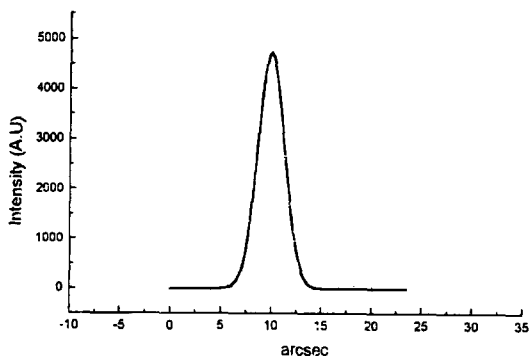
우리의 3-결정 회전 분광기에서 제 1, 2결정은 연직축에 관해 좌우 회전과 미동 조절이 가능한 돌개(rotator) 위에 부착된 결정 측각기(crystal goniometer)에 부착 했다. 제 3결정인 시료는 stepping motor로 연직축에 관해 분당 수 arcsec 회전을 조절할 수 있는 돌개 위에 부착된 결정 측각기에 부착 시켰다. 그림 1의 scintillation counter(SC) 또는 film은 rocking curve 실험 일때는 SC가 토포그래프 실험일 때는 film이 사용된다.

## 3. 실험

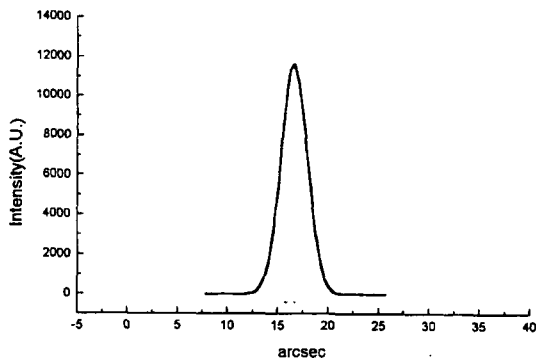
### 3-1. 2-결정법에 의한 rocking curve 실험

제 1결정은 Si(511)이고 제 2결정은 시료였다. 시료 1은 결정의 절단 표면이 (111)면인 Si 결정이었으며 배열은 Si(511)-Si(333), (+, -)비대칭이었다. X-선은 Cu- $K_{\alpha}$ , 20 kV, 10 mA, normal target (dimension 1 mm×10 mm) point focus로 하였고 제 2결정의 회전은 8 arcsec/min로 하였다. 그 rocking curve 실험 결과는 그림 2(a)와 같다.

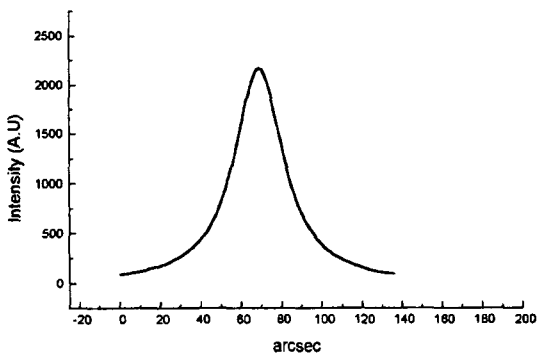
시료 2는 절단표면이 (001)인 Si 결정이었으며 배열은 Si(511)-Si(004), (+, -)비대칭이었다. 사용 X-선은 시료 1의 실험과 같았으며, 제 2결정의 회전은 32 arcsec/min로 하였다.



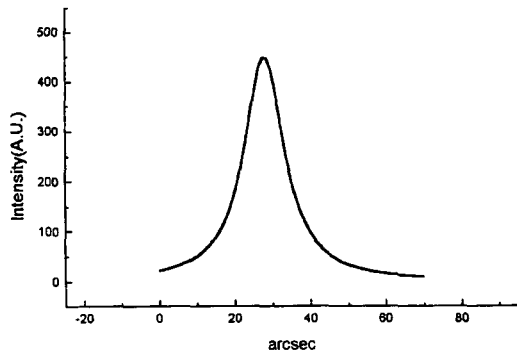
(a)



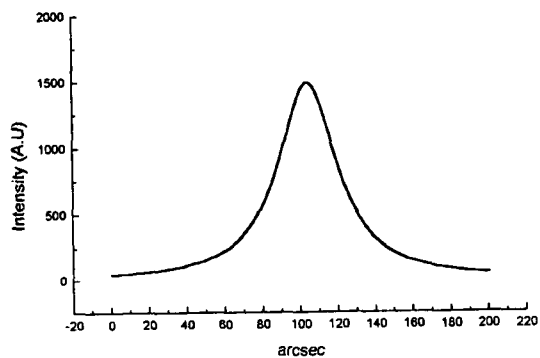
(a)



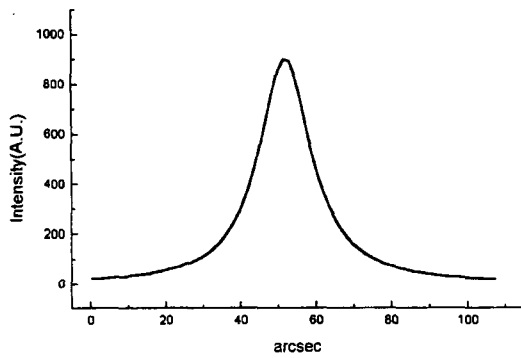
(b)



(b)



(c)



(c)

**Fig. 2. Experimental asymmetric (+, -) rocking curves by a double crystal diffraction spectrometer**  
 (a) Si(511)-Si(333), (b) Si(511)-Si(004), (c) Si(511)-GaAs(004).

**Fig. 3. Experimental asymmetric (+, -, -, +) rocking curves by a triple crystal diffraction spectrometer.**  
 Si(111)-Si(1-1-1)-Si(511)-sample; Si(333), Si(004) and GaAs(004) in (a), (b) and (c), respectively.

실험결과는 그림 2(b)와 같다.

시료 3은 결정의 절단면이 (001)인 GaAs였다. 결정의 배열은 Si(511)-GaAs(004), (+, -)비대칭이

었다. X-선은 Cu-K $\alpha$ , 25 kV, 10 mA, point focus로 하였다. 제 2결정의 회전은 32 arcsec/min으로 하

였다. 실험결과는 그림 2(c)와 같다.

**3-2. 3-결정법에 의한 rocking curve 실험**

이 실험을 위한 장치배열은 그림 1과 같다. 단일 체 단색 평행기의 Si(111)와  $(\bar{1}\bar{1}\bar{1})$ 면에서 회절한 X-선이 제 2결정인 Si(511)에서 회절하고, 이때  $K_{\alpha 2}$ 와  $K_{\beta}$ 가 제거되며 단색의 평행선속으로 선택된 선속이 시료인 제 3결정에 입사하게 하였다. 시료는 2-결정법에서 사용했던 시료들을 사용했다.

시료 1의 배열은 Si(111)-Si( $\bar{1}\bar{1}\bar{1}$ )-Si(511)-Si(333), (+, -, -, +) 비대칭으로 하였다. X-선은 Cu- $K_{\alpha 1}$ , 30 kV, 40 mA, normal target(dimension 1 mm×10 mm)의 point focus였다. 시료결정의 회전은 4 arcsec/min로 하였다. 실험 결과는 그림 3(a)와 같다.

시료 2의 배열은 Si(111)-Si( $\bar{1}\bar{1}\bar{1}$ )-Si(511)-Si(004), (+, -, -, +) 비대칭으로 하였다. X-선은 시료 1의 실험 때와 같았다. 시료결정의 회전은 16 arcsec/min이었다. 실험결과는 그림 3(b)와 같다.

시료 3의 배열은 Si(111)-Si( $\bar{1}\bar{1}\bar{1}$ )-Si(511)-GaAs(004), (+, -, -, +) 비대칭이었다. 사용 X-선은 시료 1, 2의 실험 때와 같았다. 시료결정의 회전은 16 arcsec/min이었다. 실험결과는 그림 3(c)와 같다.

**3-3. 토포그래프 실험**

이 실험은 2-결정법으로 수행되었다. 시료는 MBE를 이용하여 (001) GaAs 모재위에  $In_xGa_{1-x}$  As의 x가 0.037로 3 μm 성장시킨 것을 사용했다. 회절면은 에피층의 (004)와 (115)면들을 사용했다. X-선은 Cu- $K_{\alpha}$ , 50 kV, 120 mA, point focus였다. 노출시간은 각각 120 min였다. 시료결정의 각도 위치는 rocking curve에서 최대강도(Bragg각 위치)의

1/2인 낮은 각 위치 (low, 또는 “-”라고도 함)로 하였다. 실험결과는 그림과 같다.

**4. 결과 및 논의**

Rocking curve의 실험결과를 종합하면 표 1과 같다.

시료 1인 Si(333)면의 rocking curve는 이론값, DCD 방법에 의한 측정값, TCD 방법에 의한 측정값 사이에 큰 차이가 없다. 그 이유는 시료 결정의 완전도가 높기 때문이다.

시료 2인 Si(004)의 FWHM은 시료 1보다 크다. 그 이유는 시료 2의 결정 완전도가 낮기 때문이다. Si(511)-Si(004)는 비대칭 배열로 측정된 FWHM이 Si(111)-Si( $\bar{1}\bar{1}\bar{1}$ )-Si(511)-Si(004)배열로 측정된 것 보다 훨씬 큰 이유는 DCD배열에서  $K_{\alpha 2}$ 가 시료결정의 불완전으로 인한 회절조건을 만족하는 각도 범위를 넓히기 때문으로 본다.

시료 3인 GaAs(004)의 FWHM은 시료 1, 2보다 이론값도 크지만 결정성장 기술상 완전결정을 얻기가 힘들므로 큰 값을 갖는다. 더욱이 Si(511)-GaAs(004)비대칭 배열은  $K_{\alpha 2}$ 를 포함하므로 불완전 결정과의 회절조건을 만족하는 각도 범위가 크기 때문에, DCD배열로 측정된 GaAs(004)의 FWHM은  $K_{\alpha 2}$ 를 제거한 TCD 배열로 측정된 것보다 훨씬 크다고 생각된다.

그림 1의 배열은 제 2결정과 제 3결정의 배열이 비대칭 배열이므로 토포그래프 실험을 위해서는 이상적 배열로 생각된다. 그 이유는 제 2결정이  $K_{\alpha 2}$ 를 제거하며 제 3결정에 입사하는 X-선의 폭을 평행하면서도 크게 확대시켜주는 역할을 하기 때문이다. 그런데 제 3결정에 입사하는 X-선의 폭의 확대는

**Table 1. The comparing FWHM of Si and GaAs crystals measured by a double crystal diffractometer with a triple crystal diffractometer**

| Crystal | $d_{hkl}$<br>(Å) | FWHM (in arc-sec)                                     |                       |                       |
|---------|------------------|---|-----------------------|-----------------------|
|         |                  | Dynamically calculated value with $CuK_{\alpha}^{30}$ | Measured value by DCD | Measured value by TCD |
| Si      | $d_{333}=1.0411$ | 2.08  | 2.83                  | 2.60                  |
|         | $d_{004}=1.3424$ | 3.65  | 24.10                 | 12.10                 |
| GaAs    | $d_{004}=1.4134$ | 8.17  | 37.80                 | 16.70                 |

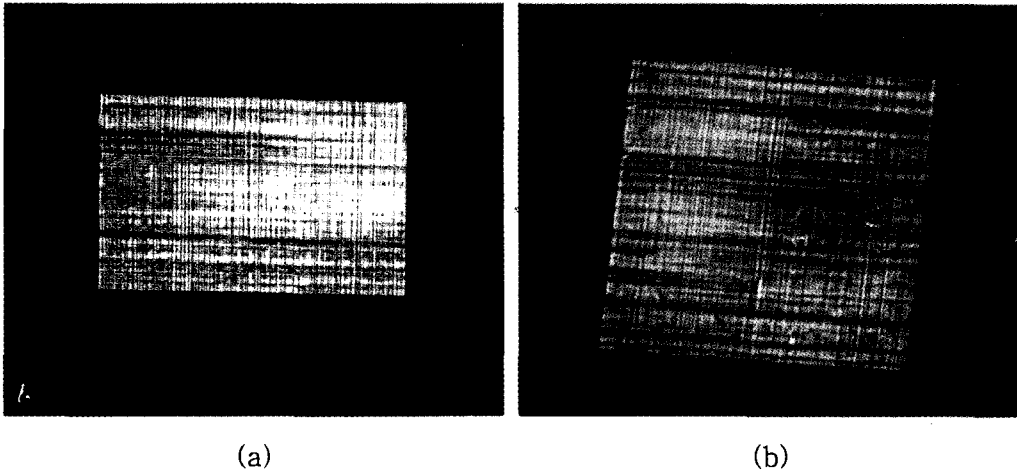


Fig. 4. Experimental topographs of  $\text{In}_{0.037}\text{Ga}_{0.963}\text{As}/\text{GaAs}(001)$  showing misfit dislocations. (a) (004) reflection. (b) (115) reflection.

단위면적당 입사 에너지의 감소를 의미한다. 2-결정법으로  $\text{In}_{0.037}\text{Ga}_{0.963}\text{As}/\text{GaAs}$ 의 (004)회절 토포그래프와 (115)회절토포그래프를 얻었지만 (그림 4 참조), 3-결정법으로는 실패했다. 그 원인은 실험에 사용한 X-선 발생장치의 출력이 3 kW 정도였기 때문이다. Rotating anode generator를 사용하면 좋은 결과가 얻어질 것으로 기대한다.

또한 rotating anode generator를 사용하고 chanel cut monochrometer에서 4번 반사후, 제 2결정 그리고 제 3결정(시료)에서 반사를 하도록 설계된 표준연구원 TCD로 GaAs(004)의 rocking curve를 실험하였다. 그 결과는 FWHM은  $\Delta\theta=16$  arc-sec로 우리의 결과와 거의 같았다. 그러나 생각해야 할 실험결과의 오차요인들은 남아있다. TCD 제작에서 사용한 결정들은 거의 완전결정에 가까운 뿐이지 완전결정은 아니기 때문이다.

실험결과의 오차를 보정하기 위하여, 시료중 전위결함 밀도가  $10^2$ 개/cm<sup>2</sup> 보다도 적은 Si(333)을 기준하여 다른 시료들의  $\Delta\theta$ 를 보정하는 방법을 모색해 보았다.

Si(333)의 rocking curve의 이론값에 대한 실험값의 비는  $\frac{(\Delta\theta)_{\text{exp.}}}{(\Delta\theta)_{\text{theo.}}}=1.34$  ( $\equiv C$ )이다. 이것을 보정상수로 하여 표 1의  $\Delta\theta=(\Delta\theta)_{\text{exp.}} - [(\Delta\theta)_{\text{theo.}}(C-1)]$ 이 된다. 따라서 결과를 보정하면, Si(004)의  $\Delta\theta=13.52$  arc-sec, GaAs(004)의  $\Delta\theta=12.98$  arc-sec로

보정된다.

## 5. 결 론

3-결정회절 스펙트로메터는 rocking curve의 FWHM 측정의 기기오차를 줄이고, 토포그래프의 해상력을 높인다. 결정의 완전도가 높은 Si(333) rocking curve의 실험결과를 동역학적 이론값과 비교해 본 결과 거의 일치하는 좋은 결과를 얻었다. 결정의 완전도가 낮은 결정에 대해서도 TCD배열에 의한 FWHM 측정은 기기오차를 크게 줄였다. Si(333)의 rocking curve폭을 기준하여 다른 시료들의  $\Delta\theta$ 의 보정을 고려해 보았다. 또한 3-결정 회절 스펙트로메터로 토포그래프 실험을 하기 위해서는 X-선의 출력이 큰 rotating anode generator를 사용하는 것이 바람직하다.

## 감사의 글

이 연구를 수행할 수 있도록 "1993년도 단국대학교 대학 연구비"를 지원해준 단국대학교에 감사드립니다.

## References

- 1) Lal, K. and Singh, B. P., *Solid State Commun.*,

- 22, 71 (1977).
- 2) Lal, K., Singh, B. P. and Verma, A. R., *Acta Cryst.*, **A35**, 286 (1979).
  - 3) Segmüller, A., *Adv. X-Ray Anal.*, **29**, 353 (1986).
  - 4) Eisenberger, P., Alexandropoulos, N. G. and Platzman, P. M., *Phys. Rev. Lett.*, **28**, 1519 (1972).
  - 5) Larson, B. C. and Schmatz, W., *Phys. Rev.*, **B 10**, 2307 (1974).
  - 6) Pick, M. A., Bickmann, K., Pofahl, E., Zwoil, K. and Wenzl, H., *J. Appl. Cryst.*, **10**, 450 (1977).
  - 7) Iida, A. and Kohra, K., *Phys. Status Solidi (a)* **51**, 533 (1979).
  - 8) Lamov, A. A., Zaumseil, P. and Winter, U., *Acta Cryst.*, **A41**, 223 (1985).
  - 9) Renninger, M., *Acta Cryst.*, **8**, 597 (1955).
  - 10) Speriosu, V. S. and Glass, H. L., "X-Ray Double-Crystal Analysis of Multiple Layer Epitaxial Gallium-Aluminum Arsenide Materials" in Application of X-Ray Topographic Methods to Materials Science, S. Weissmann, F. Balibar and J.-F. Petroff, Eds., Plenum Press, New York, p.413-420 (1984).
  - 11) Bonse, U. and Kappler, E., *Z. Naturforsch. Teil.*, **A13**, 348 (1958).
  - 12) Kohra, K., Hashizume, H. and Yoshimura, F., *JPN. J. Appl. Phys.*, **9**, 1029 (1970).
  - 13) Hashizume, H., Iida, A. and Kohra, K., *JPN. J. Appl. Phys.*, **14**, 1433 (1975).
  - 14) Ramachandran, G. N. and Wooster, W. A., *Acta Cryst.*, **4**, 431 (1951).
  - 15) Wooster, W. A., Diffuse X-ray Reflections from Crystals, Clarendon Press, Oxford (1962).
  - 16) Phatak, S. D., Srivastava, R. C. and Subbarao, E. C., *Acta Cryst.*, **A28**, 227 (1972).
  - 17) Chandra, S. and Hemkar, M. P., *Acta Cryst.*, **A29**, 130 (1973).
  - 18) Cole, H. and Warren, B. E., *J. Appl. Phys.*, **23**, 335 (1952).
  - 19) Walker, C. B., *Phys. Rev.*, **97**, 654 (1956).
  - 20) Spalt, H., Lohstoler, H. and Peisel, H., *Phys. Status Solidi (6)* **56**, 469 (1973).
  - 21) Dedrichs, P. H., *Phys. Rev.*, **B4**, 1041 (1971).
  - 22) Trinkaus, H., *Phys. Status Solidi*, **B51**, 307 (1972).
  - 23) Trinkaus, H., *Phys. Status Solidi*, **B54**, 209 (1972).
  - 24) Dedrichs, P. H., *J. Phys.*, **F3**, 471 (1973).
  - 25) Bonse, U., Kappler, E. and Schill, A., *Z. Phys.*, **178**, 221 (1964).
  - 26) Moyer, N. E. and Buschert, R. C., Radiation Effects in Semiconductors, Plenum Press, New York, p.444-450 (1968).
  - 27) Godwod, K., Nagy, A. T. and Rek, Z., *Phys. Status Solidi (a)* **34**, 705 (1976).
  - 28) Kikuta, S., *Phys. Status Solidi (b)* **45**, 333 (1971).
  - 29) 김영미, 김현미, 김광우, 염효영, 박영한, 민석기, 박용주, 새물리 **35**, 89 (1995).
  - 30) 박영한, 김광우, 민석기, 김현수, 새물리 **26**, 279 (1986).