

세라믹 표면 분석을 위한 반사전자현미경 (REM) 및 고에너지반사전자회절 (RHEED)

김 유 택
경기대학교 첨단산업공학부
ytkim@kyunggi.ac.kr

1. 서 론

전자현미경 발명 초기부터 연구되어온 반사전자현미경(REM : Reflection Electron Microscopy)과 고에너지 반사전자회절(RHEED : Reflection High Energy Electron Diffraction)은 세라믹재료, 특히 단결정의 표면분석을 위해 유용한 수단으로 여겨지고 있다.

Scheibner 등이 고안한 저에너지전자회절(LEED : Low Energy Electron Diffraction) 기법은 고체표면 구조를 연구하는데 매우 유용한 도구로 사용되어왔다.¹⁻³⁾ 한편, 고에너지전자회절(HEED : High Energy Electron Diffraction)기법이 창안된 후 얼마 되지 않아 도입된 고에너지반사전자회절 기법은 증착에 의해 형성된 산화물 박막, 금속 박막, 유기물이 흡착된 표면 등의 연구에 유용하게 사용되어왔다.⁴⁻⁶⁾

독립적인 분석장치에서만 얻을 수 있었던 고에너지반사전자회절상을 전자현미경상에서도 얻을 수 있게되면서 다양한 시편의 표면에 대한 연구가 이루어졌고 전자현미경에서 얻은 고에너지반사전자회절상을 이용해 고배율의 반사전자현미경상을 얻는데 성공하였다.⁷⁻⁹⁾ 이러한 이유로 고에너지반사전자회절의 연장선상에서 보다 발전된 기법으로 고려되고 있는 반사전자현미경은 특히 표면에 존재하는 각종 결함들을 높은 공간분해능(spatial resolution)으로 그리고 강한 명암대비(contrast)로 관찰할 수 있는 장점이 있다. 특히 반사전자현미경의 장점은 일반적인 현미경기법으로는 식별하기 어려운 원자한개 높이의 표면 스텝(step)이나 표면에 노출되어있는 또는 표면 가까이 존재하는 각종 전위(dislocation), 점결함(point defect) 등도 강한 명암대비로 관찰할 수 있

다는데 있다.^{10,11)}

투과전자현미경(TEM : Transmission Electron Microscopy)에서의 고분해능상에 대한 동역학적(dynamic) 계산이 확립되어 있는 것과는 달리 아직 완벽한 반사전자현미경상에 대한 동역학적 고찰은 완성되지 않았지만,¹²⁾ 반사전자현미경은 시편준비가 용이하고 표면의 실제영상(real space image)을 제공한다는 점 때문에 금속 및 세라믹 표면의 관찰에 제한적으로 사용되어지고 있다.¹³⁻¹⁵⁾ 물론 반사전자현미경과 고에너지반사전자회절이 재료공학에서 널리 사용되고 있지는 않지만, 나노기술(nano technology)이 각광 받고있는 현재의 연구 동향을 감안해 볼 때 앞으로 재료의 미세구조, 특히 표면 미세구조의 분석이 더욱 중요시 될 것으로 사료되므로 앞으로 반사전자현미경과 고에너지반사전자회절을 이용한 분석도 그 수요가 늘어날 것으로 예상된다.^{16,17)} 따라서

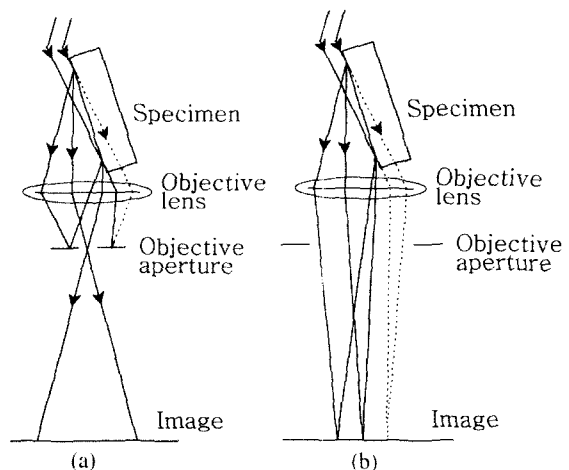


Fig. 1. Ray diagrams and specimen configuration of REM and RHEED. (a) REM, (b) RHEED.

본고에서는 반사전자현미경과 고에너지반사전자회절의 기본적인 이론과 실제 시편관찰을 통한 적용 예를 알아 보아 세라미스트들에게 반사전자현미경과 고에너지반사전자회절에 대해 조금 더 친숙해질 수 있는 기회를 제공하고자 하였다.

2. 반사전자현미경과 고에너지반사전자회절

반사전자현미경과 고에너지반사전자회절을 얻기 위해서는 Fig. 1에서와 같이 시편 표면에 전자빔을 낮은 각도로 입사시키고 표면으로부터 반사된 전자들을 이용하여 표면의 영상 또는 전자 회절을 얻어야 한다. Fig. 1a에서 보는바와 같이 반사전자현미경 상을 얻기 위한 시편은 박막만이 아닌 bulk 시편도 사용 가능하며, 관찰하고자 하는 시편의 표면을 전자빔의 진행방향과 거의 수평하게 위치시켜 전자를 반사시키고 후방초점면(back focal plane)에 얻어진 회절점 중 하나를 사용하여 반사된 상을 만들기 때문에 반사전자현미경상은 일종의 투과전자현미경에서의 암시야상이라고 할 수 있다. 하지만 투과전자현미경상과 다른 점은 전자빔이 시편에 아주 작은 각도로 입사되고 또 반사된 빛을 이용하여 영상을 만들기 때문에 반사전자현미경 상은 빔의 진행방향으로 심하게 찌그러져(foreshortened) 나타날 수밖에 없다. 전자빔 방향으로 상이 찌그러진 정도를 찌그러짐 인자(foreshortening factor)라고 일컬으며 이는 전자빔의 반사각도에 역비례 한다. 대개의 경우 반사전자현미경에서 상의 찌그러짐 인자는 20에서 40의 범위에 놓인다. 이러한 상의 찌그러짐 현상은 일반적으로 상의 해석을 어렵게 하는 인자가 되지만, 거꾸로 생각하면 일반 투과전자현미경상 보다 전자빔 방향으로 20~40배나 넓은 영역을 압축해서 볼 수 있다는 장점도 가지고 있다. 결국 반사전자현미경 상에는 2개의 가로방향과 세로방향의 가늠자(scale bar)를 가져야 한다.¹⁸⁾

고에너지반사전자회절도 투과전자현미경의 투과전자회절무늬(transmission electron diffraction pattern)와 유사하나 Fig. 1b에서 알 수 있듯이 회절무늬의 절반은 시편에 가려져 나타나지 않고 반사회절을 일으킨 쪽의 회절

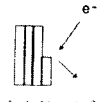
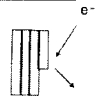
스텝의 형태	반사전자현미경 상	
	저초점(Under-focus)	과초점(Over-focus)
 올라가는 스텝	흰 색 ----- 검은색	검은색 ----- 흰 색
 내려가는 스텝	검은색 ----- 흰 색	흰 색 ----- 검은색

Fig. 2. Fresnel fringe contrast form an atomic step as a function of step sense and focusing condition.

무늬만을 얻을 수 있다. 또한 투과전자회절무늬에서는 회절점간의 간격이 일정하지만, 고에너지반사전자회절에서는 시편 표면내부에서의 굴절(refraction) 때문에 회절점들이 이론적인 위치에서 약간 벗어나게 된다.^{18,19)}

고에너지반사전자회절과 반사전자현미경의 장점 중 하나는 장비의 용이성이다. 두 기법 모두 이축 시편기울임 장치(double tilt stage)를 갖춘 투과전자현미경에서 어떠한 장치의 변경 없이 그대로 적용이 가능하다. 다만, 특별히 제작된 시편 홀더(holder)를 이용하여 시편의 표면이 전자빔에 평행하도록 만들어주면 된다. 물론 시편의 크기는 시편 홀더에 장착이 가능하고 전자빔이 시편 표면에 반사되어 현미경 광축을 따라 진행하는데 방해가 되지 않는 한도 내에서 어떠한 크기도 허용된다. 다만 전자빔방향으로 시편의 길이가 너무 길면 시편을 기울일 때 시편이 반사된 전자빔을 막게 되어 시편 기울임의 범위가 매우 좁아지게 되므로 너무 큰 시편은 피하는 것이 좋다.^{10,11,18)}

시편의 준비방법은 매우 간단하여 관찰하고자 하는 시편의 표면을 깨끗이 세척하는 것만으로 충분하다. 일반적으로 단결정의 경우 새롭게 벽개(cleavage)된 면을 관찰하며, 연마하는 경우에는 열적인 어닐링(annealing)을 하는 것이 바람직하다. 시편 준비에서 가장 기본적인 원칙은 생성된지 얼마 안된 표면을 가능하면 가공하지 않고 빠른 시간 내에 관찰해야 한다는 것이다. 그래야만 오염되지 않은 시편을 관찰할 수 있는 확율이 높아진다.^{11,18,20)}

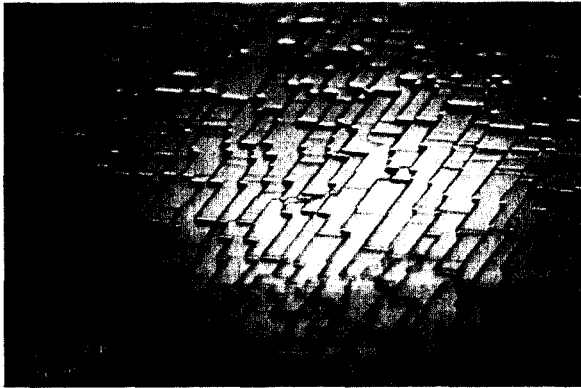


Fig. 3. An REM image of $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3(0001)$ basal surface showing that the out of focus contrast agrees with the Fig. 2. In the in-focus region, the down steps are darker than the up steps. Electron beam comes from top to bottom of the image.

3. 원자높이 크기의 스텝 상

Osakabe 등은 Fig. 2에서 보는바와 같이 스텝의 형태와 초점조건에 따라 정확한 Bragg 조건아래에서 Si(111) 표면 위에 존재하는 원자단위 스텝들의 상이 검은색 또는 흰색 Fresnel fringes로 나타난다는 것을 밝혔다. 이러한 명암대비는 스텝을 따라 생기는 격자의 국부적인 뒤틀림에 기인한다.¹⁰⁾ Fig. 3은 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3(0001)$ basal plane 으로부터 얻은 반사전자현미경사진으로서 Fig. 2에서 제시된 바에 의하면 사진의 위쪽으로부터 아래로 스텝이 올라가는 형태임을 알 수 있다. 또한 초점이 정확히 맞는 in-focus 위치에서는 phase object approximation에 의해 수평 스텝들의 명암대조가 매우 약한 것을 알 수 있다. 그렇다면, Fig. 2에서 볼 수 있는 여러 스텝들의 높이는 과연 측정가능한가? 대답은 상황에 따라서 달라질 수 있다. 만약 Fig. 4에서와 같이 스텝들이 나사전위(screw dislocation)에 의해 합쳐지는 곳이 발견되어 지고 나사전위 주위에 그림과 같이 원(loop)을 그리고 step의 개수를 세었을 때 홀수의 스텝이 발견된다면, 스텝한 개는 나사전위에 의해 흡수되었다는 결론을 내릴 수 있으며, 따라서 없어진 스텝의 높이는 나사전위의 Burger's vector의 절대값에 해당한다고 말할 수 있다.^{21,22)} 결론적으로 Fig. 4에서 보여주고 있는 모든 스텝들의 명암대비가 거의 같다고 가정할 때 Fig. 4의 모든 스텝들의 높이는 원자 한 개의 높이에 해당하는 것이라고 할

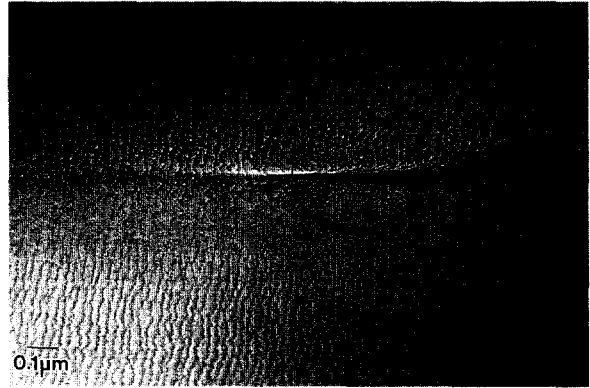


Fig. 4. A step convergence with a dislocation. A large atomically flat area is just next to the dislocation core. The number of steps around the loop is an odd number.

수 있다. 이렇게 스텝과 전위가 공존할 때는 경우에 따라서 스텝의 높이를 정확히 유추할 수 있으나, 그렇지 못한 경우는 정확한 스텝의 높이를 알 수 없다. 하지만, 명암대비에 따른 비교에 의해 스텝의 높이를 간접적으로 짐작할 수 있다.

4. Resonance

반사전자현미경 상을 얻기 위해 사용되는 고에너지반사전자회절무늬는 일반적인 고에너지반사전자회절과는 달리 굴절에 의한 영향을 강하게 받는다. 왜냐하면, 반사전자현미경상에서는 찌그러짐 인자 값을 낮추기 위해 일반적인 고에너지반사전자회절에서 보다 높은 입사각도를 사용하기 때문이다. 이 기법을 높은 각도 고에너지 반사전자회절(HARHEED : High Angle Reflection High Energy Electron Diffraction)법이라고도 하는데 이에 대한 이론적인 접근은 Cowley 등에 의해 이루어졌다.²³⁻²⁵⁾ 동력학적 그리고 정역학적 고찰로부터 시편내부로 입사된 전자빔은 시편에서 반사 또는 방출되지 않고 시편 내부포텐셜(inner potential)에 의해 갇혀서 시편 표면을 따라 평행하게 또는 거의 평행하게 진행할 수 있음을 알 수 있다. 이러한 resonance 효과는 아직 완전하게 이해되고 있지는 않지만, 실험결과를 검토해 볼 때 in-focus 조건에서 올라가는 또는 내려가는 스텝들에 대해 비대칭적인 명암효과를 초래할 수 있음을 보여준다. 또한 회절



Fig. 5. An REM image of $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3(0001)$ basal surface. The center area appeared dark due to resonance effect.

조건을 변화시킴에 의해 resonance를 일으키는 조건을 변화시켜 반사전자현미경상을 얻을 경우 Fig. 5에서와 같이 스텝에 의해 분리된 각 영역에서 서로 다른 명암을 얻을 수 있다. Fig. 5의 가운데 어두운 영역은 전자빔이 resonance 현상을 겪고있는 지역으로 전자빔의 대부분이 시편과 평행하게 진행하고 있기 때문에 어둡게 나타나고 있다.

5. 전위(dislocation)

반사전자현미경에서는 표면에 노출되어있는 전위를 강한 명암으로 관찰할 수 있다. 회절명암(diffraction contrast)에 의해 관찰될 수 있는 전위 주위의 격자 뒤틀림은 표면으로부터 매우 얇은 부위로만 국한되어있다. 따라서 반사전자현미경은 다른 관찰법과 비교할 때 표면에서의 전위 관찰에 유리한 점을 지닌다. 행 근사법(column approximation) 계산에 의하면 전위에 의한 격자 뒤틀림은 Fig. 6에서 보는바와 같이 흑백의 긴 띠로 나타나게 된다.²⁵⁾ 물론 스텝의 소멸이 없는 Fig. 6의 전위는 칼날전위(edge dislocation)이며, 스텝의 소멸을 동반하는 Fig. 4의 전위는 나선전위이다. 반사전자현미경 상에서 전위의 명암은 Burger's 벡터와 전위 방향벡터(direction vector of dislocation)에 의해 영향을 받는다. 일반적으로 전위의 종류에 관계없이 반사전자현미경상에 나타나는 전위의 영상은 전위주위의 스트레스 장(stress field)에 의해 생기는 강한 흑백의 띠를 형성하기 때문

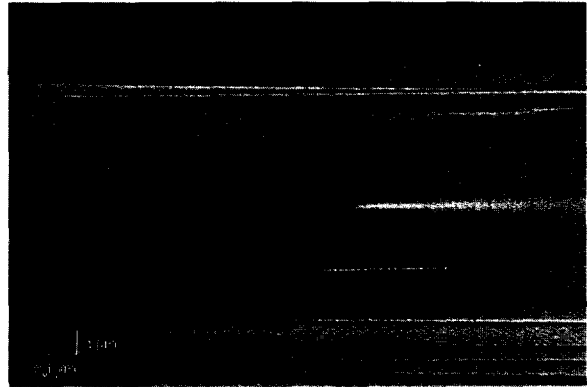


Fig. 6. An REM image of a pure edge dislocation on the $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3(0001)$ surface.

에 쉽게 눈에 띄지만, 표면에 또 다른 스트레스가 걸려 있어 전위에 의한 스트레스와 상쇄되는 경우 스트레스 장에 의한 명암은 사라지고 전위를 중심으로 얇고 짧은 흑백의 띠만이 나타나는 경우도 있다.

6. 표면 재배열(surface reconstruction)

투과전자현미경에서의 초격자(superlattice) 관찰과 유사하게 표면에서의 원자 재배열 현상을 반사전자현미경과 고에너지반사전자회절로 관찰할 수 있다.²¹⁾ Fig. 7a와 7b는 각각 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3(11\bar{2}0)$ 의 표면을 상압에서 높은 온도(1673K)로 가열하여 얻은 고에너지반사전자회절무늬와 그에 해당하는 반사전자현미경 상이다. Fig. 7a에서 보듯이 일반적인 고에너지반사전자회절점 사이에 작은 위성회절점(satellite diffraction spots)들을 관찰할 수 있다. 이는 초격자의 경우와 마찬가지로 표면위의 원자들이 장 범위 반복성을 가지며 원자재배열을 하고 있는 증거이다. 이들 위성회절점을 이용하여 얻은 반사전자현미경상을 Fig. 7b에서 보여주고 있으며 약 1.7 nm의 주기성을 지닌 4×1 표면재배열격자무늬(surface reconstruction fringes)를 뚜렷하게 관찰할 수 있다. 이와 같이 반사전자현미경을 이용하여 시편 표면의 고분해능 반사전자현미경상을 얻을 수도 있다. 또한 반사전자현미경을 탐침현미경(probe microscope)과 병행하여 사용함으로써 보다 정확한 시편 표면의 정보를 얻을 수도 있으며, in-situ 반사전자현미경의 관찰도 가능하다.²⁶⁻²⁸⁾

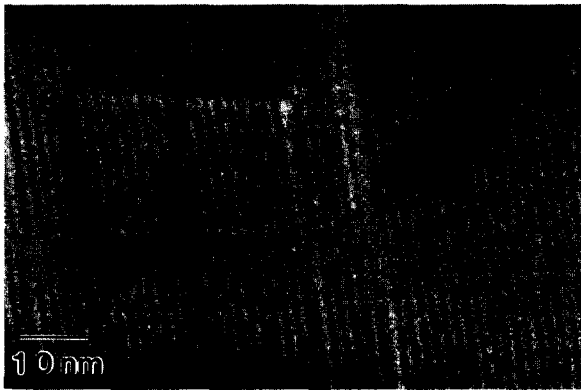


Fig. 7. A RHEED pattern and a corresponding REM image. (a) RHEED pattern of α -Al₂O₃(11 $\bar{2}$ 0) plane in the [100] azimuth. (b) REM image of the reconstructed α -Al₂O₃(11 $\bar{2}$ 0) surface.

7. 결 론

고에너지반사전자회절과 반사전자현미경은 세라믹 단결정 또는 금속 단결정의 표면을 관찰하는데 유용하게 사용될 수 있으며 매우 강한 명암을 지닌 상을 제공하기 때문에 표면의 결함 및 스텝들을 관찰하는데 이점을 가지고 있다. 표면의 평탄성 또는 방향성이 중요시되는 분야에서는 이들 기법을 도입하여 일상적인 품질검사에 적용할 수도 있다. 여러 가지 표면분석법과 함께 표면분석의 보조 수단으로서 고에너지반사전자회절과 반사전자현미경도 세라믹재료의 표면분석 시 많이 응용되어지길 기대한다.

참고 문헌

1. E. J. Scheibner, L. H. Germer, and C. D. Hartman, *Rev. Sci. Instrum.* **31**, 112 (1960).
2. J. J. Lander, J. Morrison and E. Unterwald, *Rev. Sci. Instrum.* **33**, 782 (1962).
3. L. H. Germer and C. H. Hartman, *Rev. Sci. Instrum.* **31**, 784 (1960).
4. A. Y. Cho, *J. Appl. Phys.* **42**, 2074 (1971).
5. L. Trepte, C. Menzel Kopp, and E. Menzel, *Surf. Sci.* **8**, 223 (1967).
6. J. F. Menadue, *Acta Cryst.* **A28**, 1 (1972).
7. J. M. Cowley, *Progr. Surface Sci.* **21**, 209 (1968).
8. Y. Tanishiro, K. Takayanagi, and K. Yagi, *J. Microscopy.* **142**, 211 (1986).
9. J. M. Cowley, *Appl. Phys. Lett.*, **15**, 58 (1969).
10. T. Hsu and L. M. Peng, *Ultramicroscopy*, **22**, 217 (1987).
11. T. Hsu and J. M. Cowley, *Ultramicroscopy*, **11**, 239 (1983).
12. J. M. McCoy and P. A. Maksym, *Surface Sci.*, **375**, 183 (1997).
13. T. Doi, M. Ichikawa, S. Kosoki, and H. Kakibayashi, *Surface Sci.*, **426**, 1 (1999).
14. T. Suzuki, H. Minoda, K. Yagi, and Y. Tanishiro, *Thin Solid Films* **343**, 423 (1999).
15. H. Minoda, S. Sakamoto, and K. Yagi, *Surface Sci.*, **372**, 1 (1997).
16. P. A. Maksym, *Surface Sci.*, **493**, 1 (2001).
17. T. Franke, P. Kreutzer, Th. Zacher, W. Naumann, and R. Anton, *J. of Crystal Growth*, **194**, 451 (1998).
18. T. Hsu, *Norelco Reporter*, **31**, 1 (1984).
19. J. M. Cowley and Z. C. Kang, *Ultramicroscopy*, **11**, 131 (1983).
20. A. Claverie, J. Beauvillain, J. Faure, C. Vieu, and B. Jouffrey, *Microscopy Research and Technique*, **20**, 352 (1992).
21. T. Hsu and Y. Kim, *Surface Sci. Lett.*, **243**, L63 (1991).
22. G. C. Ndubuisi, J. Liu, and J. M. Cowley, *Microscopy Research and Technique*, **20**, 439 (1992).
23. L. M. Peng and J. M. Cowley, *J. Electron Microscopy Technique*, **6**, 43 (1987).
24. L. M. Peng and J. M. Cowley, *Acta Cryst.*, **A42**, 545 (1986).
25. L. M. Peng and J. M. Cowley, *Micron and Microscopia Acta*, **18**, 179 (1987).
26. T. Suzuki, H. Minoda, Y. Tanishiro, K. Yagi, T. Sueyoshi, T. Sato, and M. Iwatsuki, *Surface Sci.*, **357-358**, 522 (1996).
27. H. Minoda, S. Sakamoto, and K. Yagi, *Surface Sci.* **372**, 1 (1997).
28. T. Franke, P. Kreutzer, Th. Zacher, W. Naumann, and R. Anton, *J. of Crystal Growth*, **193**, 451 (1998).



김유백

- 1981년 한양대학교 공과대학 공학사
- 1983년 한양대학교 대학원 공학석사
- 1991년 미국 유타대학교 공학박사
- 1992년 경기대학교 첨단산업공학부
- 현재 부교수
- 1998년 뉴질랜드 와이카토대학 교환교수