

## 하나로 수직형 중성자 반사율 측정장치

이정수† · 이창희 · 홍광표 · 최병훈 · 최영현 · 김영진 · 신관우\*

한국원자력연구소 하나로이용연구단

\*광주과학기술원 신소재공학과

(논문접수일 : 2005년 6월 20일)

### Vertical Neutron Reflectometer at HANARO

J.S. Lee†, C.H. Lee, K.P. Hong, B.H. Choi, Y.H. Choi, Y.J. Kim, K.W. Shin\*

*Korea Atomic Energy Research Institute, Daejeon, 305-600, Korea*

*\*Gwangju Institute of Science and Technology, Gwangju, 500-712, Korea*

(Received June 20, 2005)

#### 요 약

국내 유일의 연구용 원자로인 하나로에 중성자 반사율 측정장치를 개발 설치하였다. 하나로 중성자 반사율 측정장치는 수직형 시료 배치를 가지며 입사 중성자 빔의 파장은 2.459 Å이다. 원자로 출력 24 MW에서 금출방사화법을 이용하여 측정한 단색기 및 시료위치에서의 중성자속은 각각  $4.5 \times 10^9$  n/cm<sup>2</sup>/sec,  $6.64 \times 10^6$  n/cm<sup>2</sup>/sec 이었다. 또한 하나로 중성자 반사율 측정장치를 이용하여 d-PS, SiO<sub>2</sub> 등의 일부 기준 박막 시료에 대하여 반사율을 측정하고 구조 분석을 수행하였다. 장치 성능 평가 결과 장치 최소 반사율은  $\sim 10^{-6}$ , 측정 가능한 Q 영역은 0.003~0.3 Å<sup>-1</sup>이었다.

주제어 : 하나로, 중성자 반사율 측정장치, 최소반사율, 표면특성

#### Abstract

Neutron reflectometer has been installed at HANARO, research reactor in Korea. It has vertical sample geometry and the wavelength of incident neutron beam is 2.459 Å. Neutron fluxes at monochromator and sample position were  $4.5 \times 10^9$  n/cm<sup>2</sup>/sec,  $6.64 \times 10^6$  n/cm<sup>2</sup>/sec; those were measured by gold wire activation method. Also, some reference thin films such as d-PS, SiO<sub>2</sub> were measured and analyzed with HANARO neutron reflectometer. As result of the work, it was certified that minimum reflectivity and available Q range were  $10^{-6}$ , and 0.003~0.3 Å<sup>-1</sup> respectively.

**Key Words** : HANARO, Neutron Reflectometer, Minimum Reflectivity, Surface Characterization

#### 1. 서 론

중성자 reflectometry는 시료 표면에 스치는 입사 각도의 저각에서 발생하는 중성자의 거울 반사

(specular reflection)를 이용하는 것으로 중성자 반사율 측정장치(reflectometer)는 이를 구현하는 장치이다. 이 방법은 1981년에 Hayter에 의해 처음 제안된 이래 고분자, 유전체, 자성체 및 반도체 등

의 다양한 박막 재료의 표면 및 계면 구조 탐색에 가장 강력한 기술 중 하나로 대두되었다 [1]. 중성자 거울형 반사는 박막 표면에 수직 방향으로 산란 길이밀도(SLD)의 변화를 탐색함으로써 깊이 10~5,000 Å까지의 표면 구조에 대한 두께, 표면 거칠기, 계면면 거칠기 등에 대한 정보를 제공할 수 있게 한다.

중성자 반사율 측정의 장점은 중성자 자체의 기본적인 특성에 기인한다. 우선 중성자는 핵과 직접 반응하므로 이웃하는 원소에 대해서도 중성자 산란 길이 밀도가 크게 다를 수 있다 [2]. 즉, 중성자는 유기 및 생화학적인 재료들의 근간을 형성하는 수소, 탄소, 산소 및 질소 등의 가벼운 원소들에 의하여 강하게 산란되므로 연성 재료계의 연구에 유용하다. 또한 동위원소 간에도 중성자 산란길이 밀도의 차이가 크게 달라 적절한 동위원소를 치환하여 사용할 경우 물질의 화학적인 성질을 유지하면서 내부 계면간의 중성자 산란길이 밀도 분포를 선택적으로 평가할 수 있다. 예를 들어 수소와 중수소의 중성자 산란길이 밀도가 매우 다르므로 고분자 및 생체분자 등과 같은 수소 함량이 높은 물질 내의 계면 구조 연구에 유용하다. 중성자는 자기능을 가지고 있어 시료의 자기 구조를 측정할 수 있으므로 최근에 스핀밸브, 스핀트로닉스 등과 같은 기억 매체의 연구에 널리 이용되고 있으며 이는 중성자 만이 가질 수 있는 특성이라 할 수 있다. 또한 중성자는 높은 투과력을 가지고 있어 X 선과 달리 접근이 쉽지 않는 박막 내부의 깊은 계면 연구에 활용될 수 있으며 다양한 시료환경장치의 이용에 의한 물질의 상전이 연구가 가능하다.

현재 세계적으로 20기 이상의 중성자 반사율 측정장치가 개발되어 다양한 연구가 진행되고 있으며 지속적으로 새로운 성능의 다양한 장치 개발이 진행되고 있다 [3]. 최근 국내에서도 중합체, 반도체, 유전체 및 자성체 등의 다양한 분야에 대한 박막 제조 기술 및 분석연구가 널리 수행되고 있으며 이와 관련하여 중성자 reflectometry에 대한 기술 수요도 점차 증가하고 있는 추세이다. 이러한 국내의 연구 동향에 맞추어 국내 유일의 연구용 원자로인 하나로에 중성자 반사율 측정장치를 개발 설치하였다. 본 논문에서는 하나로 중성자 반사율

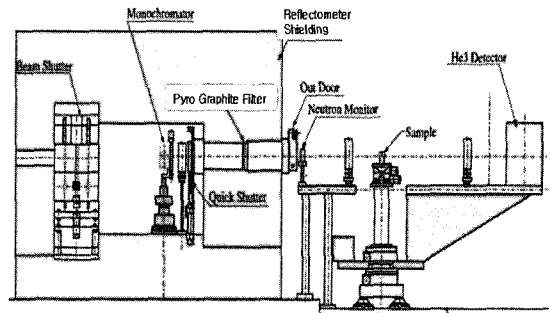


그림 1. 하나로 중성자 반사율 측정장치

측정장치의 구성 및 특성과 함께 이를 이용한 일부 박막 시료에 대한 측정 및 해석 결과를 기술하였다(그림 1).

## 2. 장치 기술

중성자 반사율 측정장치는 일반적으로 중성자 선원에서 나오는 중성자의 단색과장을 선택하는 단색기, 중성자 빔의 공간적 분산을 제한하는 집속시스템, 시료에 의해 반사하는 중성자를 측정하기 위한 검출시스템 및 장치 구동 시스템 등으로 구성된다(그림 2) [4].

중성자 반사율 측정장치를 위한 선원은 국내 유일의 연구용 원자로인 하나로이다 [5]. 한으로는 1995년 최초 임계에 도달한 이래 현재 열출력 30 MW로 운전 중에 있으며 최대 중성자속은  $5 \times 10^{14}$  n/cm<sup>2</sup>/sec이다. 하나로 중성자 반사율 측정장치는 앞서의 선원의 특성을 고려하여 단색기 및 필터를 이용하는 단일 파장 방식을 채용하였으며 시료의

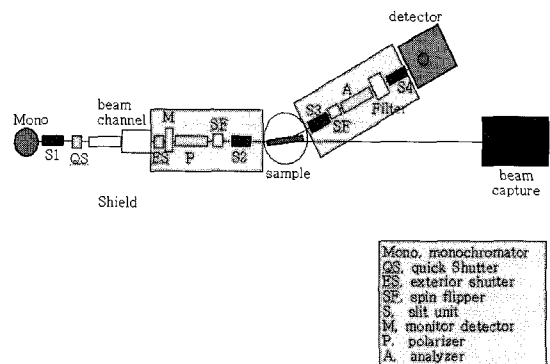


그림 2. 중성자 반사율 측정장치 개략도

표 1. 하나로 중성자 반사율 측정장치 특성

Reflection Plane	Vertical
Monochromator	PG(002), 0.4° mosaic
Wavelength, / $\Delta\lambda/\lambda$	2.459 Å, ~1.5%
Filter	PG(002), 3.5° mosaic
Q range	0.003 ~ 0.3 Å <sup>-1</sup>
Min. reflectivity	~10 <sup>-6</sup>
Flux at sample	6.64 × 10 <sup>6</sup> n/cm <sup>2</sup> /sec
Detector	He <sup>3</sup> single, 6 atm
Dimension	
· Nose-Monochromator	5,400 mm
· Monochromator-Sample	3,000 mm
· Sample-Detector	1,000~1,500 mm
· Slit1-Slit2	2,500 mm

반사면을 수직으로 하여 측정 시료 및 검출기는 수평방향으로 동작한다. 이러한 하나로 중성자 반사율 측정장치의 특성을 표 1에 기술하였다.

입사 중성자의 파장은 2.459 Å으로 50 mm(W) × 50 mm(H) × 2 mm(t) 제원의 PG(002) 단색기(Advanced Ceramic Co, ZYA, 0.4° mosaic)의 take-off angle,  $2\theta_M = 43^\circ$ 에 의하여 얻어진다. PG(002) 단색기의 특성에 따른 고차 반사( $\lambda/n$ ,  $n = 2, 3, \dots$ )에 의한 단색빔의 오염을 방지하기 위하여 50 mm(W) × 50 mm(H) × 50 mm(t) 제원의 PG(002) 필터(ZYH, 3.5° mosaic)를 이용한다.

빔 집속 시스템은 슬릿 및 콜리메터 시스템 등으로 구성된다. 슬릿 시스템은 시료 및 검출기에 입사하는 중성자 빔의 분포를 좌우 폭 방향으로 정밀 제어하기 위한 것으로 총 4개(S1~S2: 시료전면, S3~S4: 검출기전면)로 구성되며 각각 0.01 mm의 구동 정도를 갖는다(그림 3).

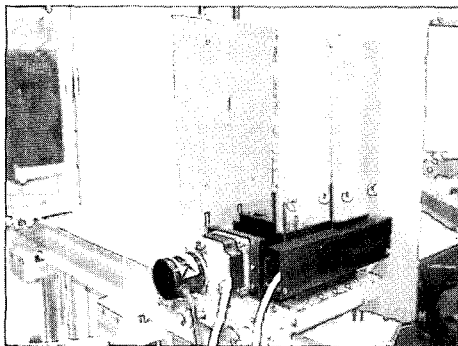


그림 3. 슬릿 시스템

이러한 슬릿 시스템의 차폐부는 100mm(W) × 200 mm(H) × 10 mm(t)의 제원으로 B<sub>4</sub>C(boron carbide) 분말에 에폭시를 혼합하여 성형한 후 측면을 정밀 기계 가공한 것이다. 그림 4는 시료 전면의 두 슬릿의 개방 폭이 0.5 mm 일 때 시료위치에서의 투과 중성자 빔을 2-D PSD를 이용하여 측정된 것으로 박막 시료의 측정에 적합한 정상적인 분포를 보임을 알 수 있다. 콜리메터 시스템은 차폐체 내부에서 외부로의 빔 인출시 빔 집속과 속중성자속(fast neutron flux) 및  $\gamma$ 선 등에 의한 background를 줄이기 위한 것이다. 이러한 콜리메터 시스템은 각각 철 및 B-PE(B, 5wt.%)로 제작하여 차폐체 측면의 43° 빔 채널 내부에 삽입 장치하였다.

장치 검출시스템은 측정 기준 설정을 위한 모니터 검출기(Eurisys, 6NH12.5/1F) 및 주검출기(Eurisys, 30NH15)로 구성된다. 모니터 검출기는 10 mm(dia) × 219 mm(L) 제원의 He<sup>3</sup> 단일 검출기로 8기압의 He<sup>3</sup> 및 2 기압의 Kr으로 충전되어 있다. 이러한 모니터 검출기는 차폐체 외부의 슬릿 1~2 사이에 위치하며 빔 통로를 제외한 부분은 모두 두께 0.5 mm의 카드뮴으로 덮여 정상적인 측정이 가능하다. 또한 주검출기는 25 mm(dia) × 255 mm(L) 제원의 He<sup>3</sup> 단일 검출기로 유효길이는 150 mm이며 He<sup>3</sup> 충전 압력은 6기압에 이른다. 주검출기는 B-PE, 고밀도 PE 및 철판 등으로 제작한 360 mm(W) × 360 mm(D) × 460 mm(H) 제원의 검출기 차폐체 내부에 설치되었으며 8 mm(W) × 50 mm(H)크기의 중성자 창이 있어 효율적인 시료 반사 빔의 측



그림 4. 슬릿 투과 빔 분포

정이 가능하다. 입사 및 반사 중성자는 모니터 및 주검출기 - 증폭기, 판별기(DEXTRAY ACHM7F) - 계수기(CTM-05/A 9945/C) 를 통한 일련의 시스템을 통하여 계수되며 이때 각 검출기의 작동전압은 각각 1,150 V(모니터), 1,250 V(주검출기) 이다.

반사율 측정 과정에서 시료 위치 조정 시스템은 시료 회전을 위한  $\theta$  테이블(Huber 430)과 검출기 회전을 위한  $2\theta$  테이블(Huber 440) 및 위치 정밀 조정을 위한 2-circle 고니오메터(Huber 5204.2) 등으로 구성하였다. 이들  $\theta$  및  $2\theta$  테이블은 동심축을 가지며 그 하단에 5기압의 압축공기 주입으로 전체 시스템을 부상할 수 있도록 하는 에어 패드를 부착함으로써 입사 빔에 대한 장치 회전 중심의 정렬이 용이하도록 하였다(그림 5).

하나로 중성자 반사율 측정장치의 장치 구동을 위한 구동부는 총 18개의 모터(2상, Oriental)로 구성되며 이들 각각은 자체 개발한 NMC-02H-4SRE 모터 컨트롤러에 연결하여 GUI(graphical user interface) 방식에 의하여 구동된다. NMC-02H-4SRE는 200~50,000 PPR(pulse per resolution) 및 0.7~6 A의 대전력 공급이 가능하여 고중량의 하중이 걸리는 시료대 등의 0.001°의 정밀 회전 구동이 가능하다. 또한 C# 프로그램을 이용하여 제작한 ICP (instrument control program)로 반사율 측정에 필요한 매뉴얼, 슬릿 고정 및 슬릿 가변 등의 다양한 스캔 모드를 두어 원활한 반사율상 측정이 이루어지도록 하였다(그림 6). 매뉴얼 스캔 모드는 반사

율상 측정시 시료위치의 정렬을 위한 것이며 슬릿 고정 스캔 모드는 반사율 측정 전과정을 통하여 시료 전면의 두개의 슬릿 1, 2의 폭을 일정한 값으로 고정하는 것이다. 앞서의 슬릿 고정 스캔 모드에서는 일반적으로 시료 임계각( $\theta_c$ ) 이하의 일부 구간에서 시료 입사 빔의 손실이 발생하는 경우가 있으므로 footprint 보정을 하여야 한다. 슬릿 가변 스캔 모드는 시료 측정 전과정을 통하여 일정한 시료 조사면적을 유지할 수 있도록 슬릿 1, 2의 폭을 가변 함으로써 앞서의 footprint 보정을 피할 수 있게 한다.

### 3. 하나로 반사율 측정장치를 이용한 실험 및 결과 고찰

하나로 중성자 반사율 측정장치의 설치 후 금줄 방사화법을 이용하여 평가한 단색기 및 시료 위치의 중성자속은 각각  $4.5 \times 10^9$  n/cm<sup>2</sup>/sec,  $6.64 \times 10^6$  n/cm<sup>2</sup>/sec 로 장치 설계 값과 거의 일치하였다 [6]. 이때 하나로 출력은 24 MW이며 시료 전면의 두 슬릿의 폭은 2.0 mm 이상으로 하였다. 이와 같이 설치 완료한 하나로 중성자 반사율 측정장치로 d-PS (deuterated polystyrene, 광주과기원), SiO<sub>2</sub>(한국표준연구원) 등의 일부 기준 박막의 반사율상을 측정하고 구조 분석을 수행하였다. d-PS 박막은 직경 3", 두께 5mm인 실리콘 웨이퍼 상부에 스핀 코팅한 것이다. 앞서 기술한 ICP 를 이용하여 d-PS 박



그림 5. 시료위치 조정 시스템

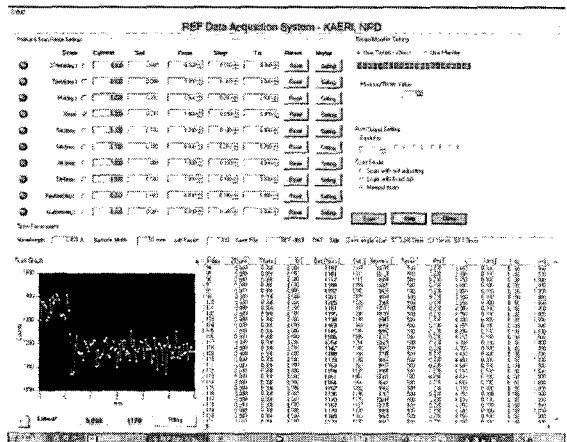


그림 6. 중성자 반사율 측정장치 ICP

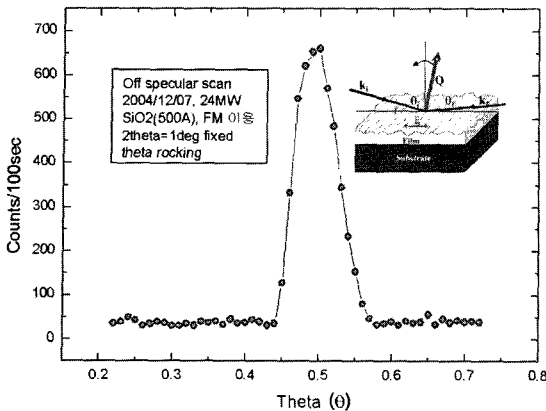


그림 7. 박막의 비거울형 반사 측정

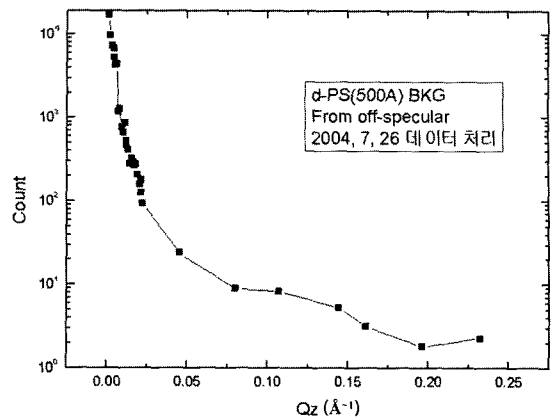


그림 8. 박막의 background 측정

막의 위치를 정렬하고 하나로 출력 30MW에서 반사율상을 측정하였다. 이때 슬릿의 폭을 전체 측정 Q 영역을 통하여 가변함으로써 footprint 보정을 방지하였다. 또한 전체 Q 영역을 5개의 측정 구간으로 나누고 측정시간을 달리함으로써 특히 반사율이 낮은 높은 Q 영역에서 효과적인 반사율 측정이 이루어지도록 하였다. 박막의 구조 해석을 위한 반사율 값은 다음과 같이 산정하였다. 우선 d-PS 박막의 초기 측정 데이터를 동일한 Q 위치에서 동시에 측정된 모니터 값으로 나누어  $R_r = I_D/I_M$ 을 구하였다. 또한 시료를 장전하지 않은 상황에서 앞서의 측정 조건(슬릿 가변, Q 영역 등)과 동일하게 슬릿 스캔을 수행하고, 검출기 및 모니터 값의 비  $R_s = I_D/I_M$ 를 구하였다. 이러한 두 값으로부터 반사율,  $R = R_r / R_s$ 을 구하였다. 이와 같이 측정된 반사율상은 정상적인 시료의 거울형 반사 이외에도 시료의 거칠기 및 장치 측정 조건에 따라 발생 가능한 비거울형 반사에 의한 background를 포함하고 있으므로 이를 보정해 주어야 한다. 이를 위하여 우선 검출기 위치를 일정한 Q 위치에 고정하고 시료를 rocking 하여 비거울형 반사상을 구하고 이 분포의 바닥값의 위치를 확인하였다(그림 7).

이러한 비거울형 반사상 분포의 중심으로 부터 바닥값까지의 각도 간격 만큼 시료 위치를 달리하여 background를 측정하였다(그림 8).

미국NIST의 반사율 데이터 전처리 프로그램, REFLRE를 이용하여 background를 보정하고 최종적으로 독일 HMI의 반사율 구조 해석 프로그램인

PARRATT32를 이용하여 d-PS 박막의 구조를 분석하였다 [7]. 이러한 해석 결과로부터 d-PS 박막의 두께는 449 Å 이고 표면의 거칠기는 약 7 Å 정도임을 알 수 있었다. 또한 실리콘 기판과 d-PS 박막 사이에 산화층이 존재하였으며 그 두께 및 거칠기는 각각 22 Å, 4.7 Å 이었다(그림 9). SiO<sub>2</sub> 박막은 직경 6", 두께 0.5 mm인 실리콘 웨이퍼의 표면에 때려내기(sputtering) 한 것으로 앞서와 같은 반사율 측정 및 해석 결과 두께 515 Å, 표면 거칠기는 ~ 1 Å 임을 확인하였다(그림 10). 이와 같이 하나로 중성자 반사율 측정장치를 이용하여 박막의 측정 및 해석이 정상적으로 수행됨을 확인하였다. 이들 결과로부터 장치 최소 반사율은  $10^{-6}$ 으로 장치 설계값과 일치하였으며 측정 가능한 Q 영역은  $0.003 \sim 0.3 \text{ \AA}^{-1}$ 으로 고분자, 유전체, 반도체 등 대부분의 박막 재료에 대한 특성 측정이 가능한 정도임을 확인하였다.

#### 4. 결 론

최근 국내 유일의 연구용 원자로인 하나로에 중성자 반사율 측정장치를 개발 설치하였다. 하나로 중성자 반사율 측정장치는 수직형 시료 배치를 가지며 입사 중성자 빔의 파장은 2.459 Å이다. 이러한 장치의 주요 구성요소를 기술하였으며 d-PS 및 SiO<sub>2</sub> 등의 일부 기준박막의 반사율을 측정하고 구조 분석을 수행함으로써 장치 성능을 평가하였다.

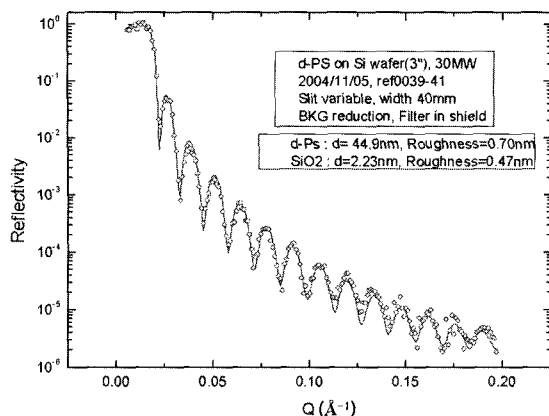


그림 9. d-PS 박막의 반사율 측정 및 해석

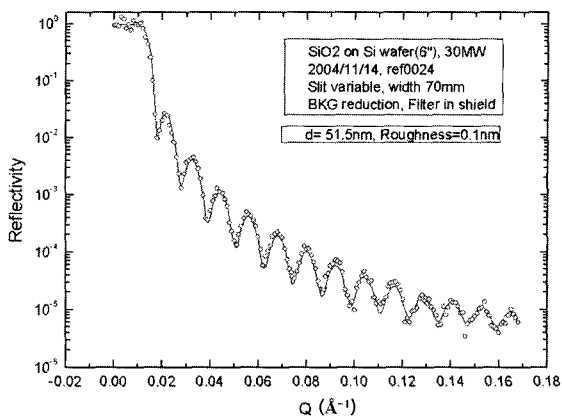


그림 10. SiO<sub>2</sub> 박막의 반사율 측정 및 해석

## 5. 감사의 글

본 연구는 과학기술부의 원자력연구개발 사업과 NRL에 의하여 수행되었음. 또한 본 연구에서 사용한 SiO<sub>2</sub> 박막은 한국 표준 과학 연구원의 광기술 표준부에서 제공하였으며 이에 감사드립니다.

## 참 고 문 헌

- [1] J .Penfold, Physica B **173**, 1 (1991).
- [2] G. E. Bacon, *Neutron Diffraction*, 3rd ed. (Clarendon Press, Oxford, 1975).
- [3] 신관우 외, 물리학과 첨단기술 **11**, 27 (2002).
- [4] T. P. Russell, Materials science reports **5**, 171 (1990).
- [5] 김학노 외, 물리학과 첨단기술 **11**, 3 (2002).
- [6] 이정수 외, 새물리 **46**, 52 (2003).
- [7] L. Nevot and P. Croce, Revue de physique appliqué **15**, 761 (1980).