

옥소 레이저 플라즈마에서 발생된 연 X-선을 이용한 필착 현미경 기술
(Contact Microscopy by Using Soft X-ray Radiation
from Iodine Laser Produced Plasma)

최병일 김동환 공홍진 이상수
한국과학기술원

Abstract

Laser plasma was generated by a 1GW iodine photodissociation laser($\lambda=1.315\mu\text{m}$, $E=12.7\text{J}$) whose output beam was focused on a molybdenum target surface. The experiment was conducted in the vacuum chamber under 10^{-5}Torr and several tens of laser shooting were necessary for sufficient exposure to the PBS resist. A specimen was put directly on the resist and located at a distance of 3cm from the X-ray source. The replicas of a mesh, spider's tread, a red blood cell were obtained by PBS resist and were analyzed by Nomarski and SEM. Two main effects of limitation in resolution, source size and Fresnel diffraction, are mentioned and compared with the experimental result. In this experiment, a resolution better than 1000A could be obtained.

1. 서 론

고출력 펄스 레이저를 금속 표적(solid target)에 집속시켜 발생시킨 플라즈마에서는 플라즈마 온도에 따라 가시광선에서부터 hard X-ray에 이르기까지 넓은 에너지 영역의 스펙트럼을 갖는 광자를 방출한다. 그 최대값을 갖는 파장은 레이저의 강도(intensity), 파장, 펄스 폭 및 집속된 금속 표면의 종류에 관계된다.

X-ray 광원으로서의 레이저 플라즈마는 여러가지의 독특한 성질이 있다. 첫째로는 실험실내에 설치 가능한 광원으로서 시간 평균된 강도(intensity)가 셀 뿐만 아니라 순간적인 강도 역시 가장 센 것들 중의 하나이다. 이와 같은 높은 강도와 레이저 펄스 폭 정도의 짧은 펄스 지속 시간의 특성은 시간에 의존하는 과정을 연구할 때 X-ray 탐침으로서 매우 유용하다. 두번째로 레이저 플라즈마 광원은 그 크기가 집속된 레이저의 초점 직경인 $100\mu\text{m}$ 내의

로 매우 작다. 이 특성이 X-ray 리소그라피(lithography)^[1]나 X-ray 마이크로스코피(microscopy)^[2]를 가능하게 하는 이유 중의 하나이다.

X-ray 마이크로스코피란 물과 단백질간에 현저한 흡수 차이를 보이는 water window($23\sim 44\text{\AA}$)라 불리는 영역의 soft X-ray($10\sim 100\text{\AA}$) 광원을 이용하여 살아있는 생물체의 영상을 광학현미경보다 더 높은 분해능으로 얻는 방법으로 1952년 Wolter가 그 원리를 처음으로 밝혀 냈다.^[3](그림1(b))

광학 현미경의 경우 그 광원이 가시광선으로 회절효과 때문에 파장 정도($\sim 0.5\mu\text{m}$) 이하의 분해능을 얻을 수 없다. 고분해능 현미경으로는 전자 현미경이 있지만 이것은 생물체를 사진 찍는 때는 적당하지 못하다. 왜냐하면 전자는 서로 다른 원자에 대해 대비(contrast)가 작고 흡수가 진 기기 때문에 생물체를 사진 찍을 때는 생물체를 말리거나(drying) 착색(staining)하거나 두꺼운 생물체($\sim 1\mu\text{m}$ 이상)는 단면을 잘라서 그 영상을 봐야하는 단점이 있기 때문이다. 이러한 처리를 거치게 되면 생물체의 원래 살아 있는 모양을 그대로 볼 수가 없게 된다.

Soft X-ray는 그 자체만으로도 우수한 특성이 있다. (그림1(b)) 파장이 짧을 뿐만 아니라 원자들간의 대비가 좋으며 시료나 resist에의 흡수가 적당하다. X-ray 리소그라피(lithography)나 X-ray 라디오그라피(radiography)^[4]의 경우 빛의 회절현상 때문에 광원의 파장이 짧을수록 높은 분해능을 얻을 수 있다. 그러나 hard X-ray 또는 더 높은 에너지의 광원은 서로 다른 원자들간의 대비(contrast)가 나쁘고, 얇으면서도 hard X-ray를 차단할 수 있는 적당한 흡수체가 적으며, 고분해능 사진 건판에 해당하는 X-ray resist에서의 흡수가 매우 적기 때문에 이용하기가 어렵다. 그러므로 이러한 용용을 가능케 할려면 soft X-ray를 강하게 방출하고 크기가 작은 광원이 필요하다.

최초의 성공적이라 할 만한 X-ray microscopy는 1971년 Cambridge 전자 가속기에서 나오는 SR 광원을 이용하여

광학적 장치없이 이루어진 것이다.^[5] Laser 플라즈마를 이용한 최초의 결과는 Ralph Feder 등이 혈소판(blood platelet)의 좋은 패턴을 얻은 것이다.^[6]

본 실험에서는 시료를 resist와 밀착 시켜 1:1 영상을 resist 위에 얻는 법(contact microscopy)을 썼는데 이 방법은 다른 방법보다 높은 분해능을 얻을 수 있다는 장점이 있다. 거미줄, 양과갑질, 적혈구등의 영상을 얻고 본 실험 조건에서 분해능에 미치는 영향을 고려하여 실험결과와 비교하였다.

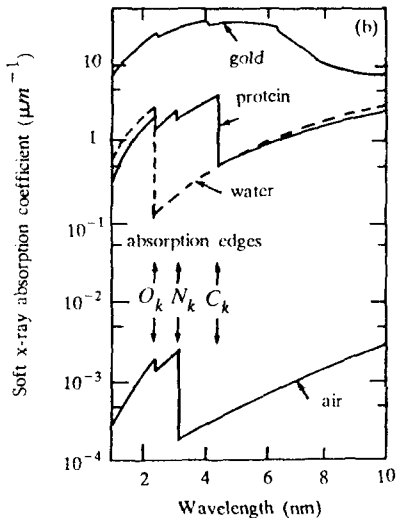
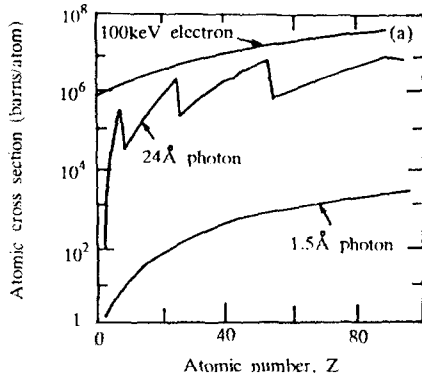


Fig 1 (a) The total cross section for the scattering of 100keV electron (upper curve), the photoelectric absorption of 24Å photons (middle curve), and the coherent scattering of 1.5Å photons versus atomic number. (b) The soft X-ray absorption coefficient of various material.

2. 실험 장치 및 방법

본 실험에 사용한 레이저는 Ar 방전관으로 광범위한 분해능에 옥스테이저로서 한개의 공진기와 세개의 증폭기로 구성되어있다. 최종 출력은 에너지 12.7J, 펄스폭 13.3nsec, 레이저 파장 1.315μm 이다.

Microscopy를 위한 진공 용기 내부는 그림 2 와 같다.

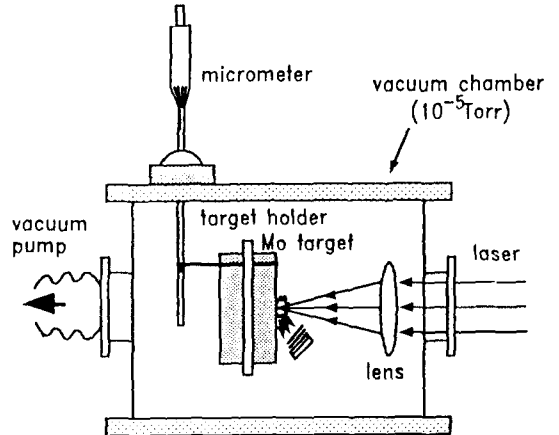


Fig 2 Schematic diagram of experimental setup.

플라즈마를 진공(10^{-5} Torr) 속에서 발생시키는 것은 air breakdown을 막고 X-ray의 평균 자유 행로(mean free path)를 길게 해주는 효과가 있다. 또한 플라즈마 팽창이 쉽게 됨으로 인해 보다 작은 광원의 크기를 얻을 수 있다. 집속은 초점거리 12cm인 렌즈를 썼는데 플라즈마가 발생되면서 많은 표적의 파편(target debris)들이 플라즈마로부터 방출되는데 이것들이 lens의 표면에 붙어 렌즈의 수과율을 약하게 하므로 lens를 자주 세척해 주어야 한다.

표적 물질은 몰리브덴(Mo)을 사용하였는데 Mo은 soft X-ray 영역에서 X-ray 변환 효율이 높고 X-ray 세기의 절대값도 다른 원자에 비해 높은 것들 중의 하나이다.^[7] 표적은 원기둥 모양이고 표적 지지대에 축이 고정되어 회전할 수 있도록 하였다. 지지대를 완전히 고정시켜 놓고 진공 장치 밖에서 micrometer로 회전시키면 항상 처음 맞춘 초점이 흐트러지지 않으면서 새로운 표면에 집속시킬 수 있다. 초점의 표적 표면에 한번 레이저가 집속되면 플라즈마 크기 만큼의 구멍이 생기는데 그 자리에 다시 집속시키면 처음보다 약한 플라즈마가 발생되고 따라서 X-ray도 약해진다.

초점으로부터 노광시킴 시료까지의 거리는 약 3cm 이상 멀리 떨어져 있어야 하는데 이보다 더 가까우면 플라즈마에서 나오는 파편의 효과가 심각하게 되고 또한 뜨거운 충격파가 filter 와 resist에 손상을 주게된다.

Resist는 PBS(poly(butene-1-sulfone))를 사용했는데 PBS와 함께 많이 쓰이는 X-ray resist인 PMMA(poly(methyl metacrylate))와 비교할 때 진성 분해능(intrinsic resolution)은 약간 나쁘지만 감도(sensitivity)가 좋다고 알려져 있다.¹⁸⁾

실험의 전체 과정을 표 1 에 정리 하였다. X-ray filter는 Al 박막을 이용했는데 그 투과도는 그림 3 과 같으며, X-ray filter로서의 역할을 충분히 수행하면서 최대한 많은 X-ray를 투과시키는 가장 경제적인 두께는 약 1000Å 입을 알 수 있다. Al 박막은 resist 위에 e-gun을 이용하여 약 1000Å 내외로 coating 하고 두께는 Tolanski 간섭계를 이용하여 측정하였다. Filter가 시료 뒤에 있게 되는데 UV와 가시광선 차단용으로는 시료 앞에 있는 경우와 같으나 표적 물질의 파편을 차단하는 목적으로는 사용할 수 없는 단점이 있다. Foil의 형태로는 이 정도 얇게 만들기 어렵기 때문에 이 방법을 썼다. Filter를 떼어낼 때 샘플체 시료도 함께 제거 되므로 contact microscopy에서 문체점 중의 하나인 샘플체 제거 문제를 쉽게 해결 할 수 있다.

시료가 될 샘플체는 resist와 filter 위에 완전히 접촉되도록 노력했다. Mesh의 경우 자석의 성질을 이용하여

Table 1 Experimental steps.

| | |
|------------------------------|--|
| Substrate Cleaning | --- HF : H ₂ O = 20 : 1 , acetone |
| Spin Coating | --- ~ 6000 rpm , ~ 1 μm |
| Prebaking | --- 60°C , 30 minutes |
| Filter (Al) | --- Al coating with E-gun ~ 0.1 μm |
| Sample preparation | --- contacting |
| Exposure | --- multi-exposure |
| Removal of Filter and Sample | --- etching with NaOH |
| Development | --- MEK:Iso Propanol=1:1 ~20 sec |
| Rinse | --- Iso Propanol~1 minutes |
| Post baking | --- 150°C , 30 minutes |
| Replica | |

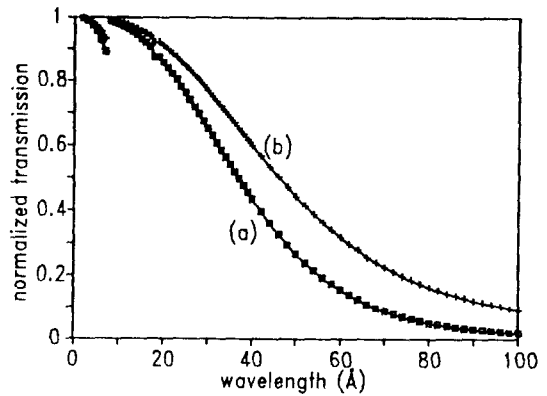


Fig 3 Transmittance of aluminium filter.

(a) 1300 Å (b) 800 Å

접촉시켰고 거미줄은 mesh 아래 넣어서 완전히 접촉이 되도록 하였다.

거미줄은 resolution을 시험하기 위한 것으로 그 두께는 문체가 되지않지만 샘플체의 경우 어느 정도의 배경(background)을 갖고 있기 때문에 resist를 감광시킬려면 더 많은 X-ray가 필요하다. 따라서 mesh나 거미줄의 경우는 20 번 샘플체의 경우는 50 번 노출시켰다. 적혈구를 보기 위해서는 피를 식염수에 적당량 섞어 옮겨놓아 섬유질을 걸러내면 된다. 배혈구는 적혈구보다 100 배 정도 수가 적기 때문에 함께 있어도 별로 문제가 되지 않는다. 노출이 끝난 시료는 먼저 NaOH 용액에 넣어 Al을 etching시키면 샘플체도 함께 제거된다.

Isopropanol 용액에 rinse하여 말린 다음 MEK : isopropanol = 1 : 1 용액에 20 초 동안 develop했다.

3. 결과 및 분석

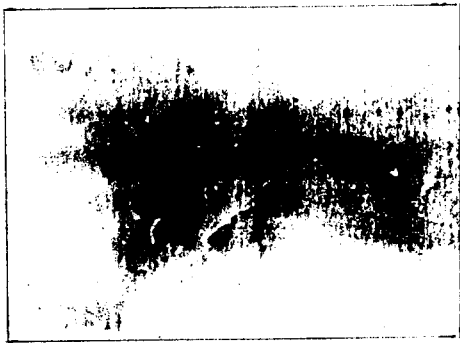
Post-baking까지 마친 replica는 Nomarski 위상현미경과 SEM(scanning electron microscopy)으로 확인하고 사진찍었다. 그림 4 (a)는 50μm 굵기의 그물망(mesh)의 영상이고 (b)는 거미줄로 실험한 replica로 분해능이 1000Å 이하 입을 보여 준다. 사진에서 거미줄 옆을 따라 검게 되어 있는 것이 있는데 이것은 그림자가 아니고 바닥에 남아 있는 resist가 갈라진 것으로 SEM 사진 찍을 때 생긴 현상이다. 그림 4 (c)는 적혈구의 replica로 원형의 모양이 그 영상이다. 내부구조는 보이지 않는데 적혈구는 핵이 없고 분자 단위의 부유 물질로 되어 있기 때문에 뚜렷한 구조가 없고 또 한가지 이유는 노출된 X-ray 량이 적어서 2μm 정도의 두께인 적혈구를 충분히 통과하지 못하기 때문이다.



(a)



(b)



(c)

Fig.4 (a) Normarski readout of the replica of mesh.(bar ; $50 \mu\text{m}$)
 (b) SEM readouts of the replica of spider's thread in PBS resist.(bar ; $1 \mu\text{m}$)
 (c) SEM readouts of the replica of red blood cell in PBS resist.(bar ; $1 \mu\text{m}$)

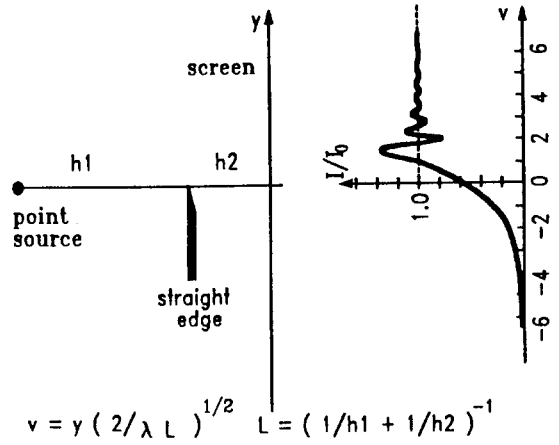
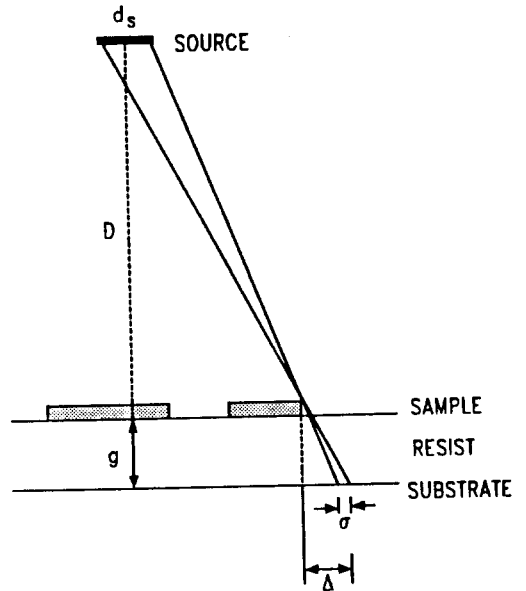


Fig 5 Fresnel diffraction by straight edge.
 Y-axis is the image of real scale.



$$\sigma = g \frac{d_s}{D} : \text{PENUMBRA BLUR}$$

$$\Delta = g \tan \theta : \text{RUN-OFF DISTORTION}$$

Fig 6 Penumbral blurring effect by source size and resist thickness.

레이저 플라즈마 광원을 이용한 contact microscopy에서 분해능을 저하시키는 주된 원인으로 두가지를 들 수가 있는데 그 하나는 빛의 성질에 의한 Fresnel 회절이고 다른 하나는 광원의 크기에 의해 기하학적으로 물체의 경계 부분의 상이 흐려지는 효과이다. 회절의 영향을 그림 5에서 설명 하였는데 파장 λ 는 88 eV의 전자온도를 갖는 플라즈마가 방출하는 연속 스펙트럼의 최대치에 해당하는 파장인 70\AA 으로하고 h_1 은 3cm, h_2 는 resist의 두께 정도인 $1\mu\text{m}$ 로 하고 회절 효과에 의한 경계 부분이 무디어지는 효과를 $v=1$ 로 하면 실제 크기인 y 값은 600\AA 이 된다.

두번째로 광원의 크기에 의한 효과를 그림 5-5에 나타내었다. 그림에서 Δ 는 기관 전체의 영상에 왜곡(distortion)을 주는 것으로 D 가 어느 정도 크고 기관의 크기가 작을 때 무시할 수 있다. 광원의 크기에 의해 경계 부분이 흐릿해지는 효과(penumbra blurring effect)를 추정해 보기위해 이미 측정된 광원의 크기 $d_s=544\mu\text{m}$ 와 $D=3\text{cm}$, $g=1\mu\text{m}$ 를 대입하면 이효과는 약 180\AA 으로 회절 효과보다 작다.

4. 결론

Mesh, 거미줄, 적혈구의 replica를 PBS resist로 얻었다. 거미줄의 replica로 약 1000\AA 이하의 분해능을 얻었는데, 본 실험조건에서 분해능에 미치는 영향을 광원의 크기에 의한 영향과 Fresnel 회절 효과를 고려하여 계산하면 600\AA 정도로 실험 결과가 이에 거의 다다름을 확인하였다.

원래 의도와는 다르게 살아 있지 않은 상태의 생물체로 실험을 하였는데 이는 생물체가 진공 용기속에 들어가야 하고 여러번 노출하는 동안 생물체가 움직이지 않아야 하기 때문이다. 이 문제를 해결하기 위해서는 한번 노출에 가능하도록 하여야 하는데 레이저의 출력을 높이거나 감도가 더 좋은 resist를 개발해야 하나 현실적으로는 어려움이 많으므로 grazing incidence를 하는 X-ray 반사경을 이용해 X-ray를 집속하는 방법이 필요하다. 또한, X-ray 필터의 적절한 선택으로 분해능에 큰 영향을 주는 자외선을 완전히 차단 하면서 soft X-ray는 많이 투과시키도록 하여야 할 것이다.

참고 문헌

1. B.Yaakobi, et al., Appl.Phys.Lett. 43, 686 (1983)
2. A.G.Michette, Rep. Prog. Phys. 51, 1525 (1988)
3. Wolter, et al., Annale der Physik 10, 94 (1952)
4. D. L. Matthews, et al., J. Appl. Phys. 54(8), Aug. (1983)
5. P. Horowitz, et al., Ann. N.Y. Acad. Sci. 306, 203 (1978)
6. Ralph Feder, et al., Science, 227, 63 (1984)
7. H. C. Gerritsen, et al., J. Appl. Phys. 59(7), 1 Apr. (1986)
8. L. F. Thompson, C. G. Willson and M. J. Bowden, "Introduction to Microlithography", ACS Symposium Series 219 (1983)