

나노 박막의 표면분석을 위한 열중성자 기반 수평형 반사율 장치의 몬테카를로 시뮬레이션

이종오 · 신관우* · 이정수* · 조상진* · 이창희* · 소지용*

광주과학기술원 신소재공학과, 광주 500-712

*한국원자력연구소 하나로이용연구단

(논문접수일 : 2005년 6월 20일)

Montecarlo Simulation of the thermal neutron reflectometer with horizontal sample geometry for surface characterization of nanostructured thin films

Chong Oh Lee, Kwanwoo Shin[†], Jeong Soo Lee*, Sang Jin Cho*, Chang Hee Lee* and Ji Yong So*

Gwangju Institute of Science and Technology, Gwangju 500-712, Republic of Korea

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

(Received June 20, 2005)

요 약

원자로의 중성자 빔을 사용하는 수평형 반사율 장치는 중성자 고유의 투과성 및 낮은 에너지의 비파괴성과 함께 시편을 수평으로 놓을 수 있는 장점을 가지고 수 나노미터 이내의 박막의 두께와 밀도를 측정하기 위하여 활용되는 새로운 장치이다. 원자력연구소에 열 중성자를 기반으로 개발을 추진하고 있으나, 아직 국내에 설치되어 있지 않아서 장치의 개념 및 최적화를 위한 시뮬레이션이 시급하다. 따라서 열중성자에 해당하는 2.5 Å를 기반으로 몬테카를로 시뮬레이션을 이용하는 MCSTAS를 이용하여 장치의 개념을 설계하였다. 단색기와 collimator, 그리고 초거울등의 설계 및 각 변수들은 설계의 목표인 최대 Flux를 갖는 중성자 빔 세기를 고려하여 결정하였다.

주제어 : 중성자, 수평형 반사율 장치, MCSTAS

Abstract

The horizontal reflectometer, which uses a neutron beam in the reactor, provides scientists a set of unique tools offering destruction-free investigation of biological membranes in the native-like environments in nano-meter scale. As an initial stage for the development of the first Korean neutron reflectometer with a horizontal sample geometry, we performed the instrumental simulation using MCSTAS, Monte Carlo Simulations of Triple Axis Spectrometers for neutron ray-tracing simulation. The results indicated that modeling of the overall instrument geometry based on the thermal neutron source with a wavelength of 2.55 Å at HANARO was successfully performed, and further the optimization of the individual components of the instrument, including the collimator, monochromators, filter and supermirror has been made.

Key Words : Neutron, Horizontal Reflectometer, MCSTAS

1. 서 론

최근 NT와 BT에 대한 관심이 높아지면서 1 ~ 100 nm이내의 나노박막을 이루는 구조체의 계면 특성 분석 및 박막의 밀도 분포를 측정하는 depth profiling 기술이 많은 관심을 끌고 있다. 정밀한 나노구조 측정장치 및 분석 기술은 개발된 다양한 나노소재의 특성을 이해하고, 궁극적으로 최적의 나노소자기술을 개발하는데 핵심적인 정보를 제공한다 [1].

다양한 나노박막 구조의 측정 장치중에서도 X-선과 중성자를 이용하는 반사율 장치(reflectometer, 혹은 reflection spectrometry)는 균일한 유기 및 고분자 박막이나 Langmuir 막과 같은 바이오/연성 구조, 그리고 액정이나 나노복합소재와 같은 다양한 나노박막으로 이루어진 계면에서의 구조적인 정보를 제공하는 매우 유용한 장치이다 [2]. 특히, 다른 depth profiling에 이용되는 SIMS (Secondary Ion Mass Spectrometry)나 RBS (Rutherford Back Scattering)와 달리, 측정과정에 의하여 beam damage가 없고, 샘플의 진공이 필요없는 유일한 나노 스케일의 분석 장비로서 생체 재료와 극미세 구조의 연구에 핵심장치로 주목 받고 있다 [3]. 특히, 유기소재 계면의 경우는 전자밀도에 의한 계면 contrast를 이용한 X-선과 달리, isotope를 이용한 계면 contrast가 가능한 중성자선이 매우 유용하며, 특히 액체와 같이 momentum transfer를 위하여 각을 바꿀 수 없는 계면구조의 측정이 가능하다. 중성자 수평형 반사율측정장치(neutron reflectometer with a horizontal sample geometry, REF-H)는 최근 많은 관심을 끌고 있는 바이오 계면 구조의 측정을 위하여 매우 유용한 장치이다. 특히, 시료의 표면을 수평으로 유지하며 중성자의 입사각과 반사각을 동시에 움직이기 때문에 액체와 기체, 액체와 고체 등 액체가 포함된 다양한 계면에서의 실시간 in situ 측정이 가능하다. 그러나 국내에는 아직 설치가 되어 있지 못하기 때문에, 아직 장치에 대한 구체적인 개념설계가 필수적이다. 따라서, 본 기술 note에서는 수평형 중성자 반사율 측정 장치로써 국내 유일의 중성자 시설인 하나로의 열중성자선을 기반으로 설치될 수 있는 REF-H의 설계를 위한 장치 시뮬레이

이션 연구의 결과를 설명하고 있다.

본 장치의 시뮬레이션에서 얻고자 하는 중요한 parameter는 널리 이용되고 있는 수직형 장치에 비하여 수평형장치가 갖고 있는 여러 가지 components의 특성과 밀접한 관련이 있다. 첫째는 샘플계면(x-y)에 수직한 방향(z)으로의 높은 분해능의 실현이다. 둘째는 샘플의 계면을 변화시키지 않고 입사한 중성자파의 momentum 변화 Q_z 을 변화시키기 위한 입사각의 변화를 구현하기 위한 reflection mirror(반사경) 설치를 위한 조건의 확립이다. 셋째는 생성된 열중성자를 2개의 단색기를 이용하여 비행방향을 제어하여 얻어지는 중성자 flux를 최대한 활용하기 위한 최적의 components (단색기, collimator, filter 등)의 배열 조건 및 크기등의 설계 조건을 얻는 것이다. 특히, 측정을 목표로 하는 액체 계면(liquid free surface)의 반사율 측정이 가능하게 하기 위해서는 최대 q_z -range에서의 total flux의 정보가 중요하게 다루어지고 있다.

현재 이 장비는 2003년 미국의 Brookhaven National Laboratory (BNL)에서 활용하던 H-9A Reflectometer가 국내로 이전됨에 따라서, 기존의 장비를 기본으로 하나로에 설치하기 위한 설계가 진행 중이다. 따라서 이 논문에서는 수평형 중성자 반사율 측정 장치의 설계 초기단계의 다양한 시뮬레이션과 이를 통한 예측을 통해 최적의 시스템을 설계하기 위한 논의를 소개하고자 한다.

2. 장치의 원리

입사된 파장은 다른 특성을 가진 두 물질이 만나는 계면을 지날 때, 그 계면에서 매질 내부로 투과된 양을 제외한 일정량을 반사시키게 된다 [4]. 계면이나 표면이 이론적으로 완전한 평면이라고 하면, 반사 파장은 입사각과 동일각을 이루며 되돌아 나오게 된다. 이때 반사율(reflectivity)은 입사선과 반사선의 절대 강도의 비로 표시되고, 중성자 측정 장치의 경우 일반적으로 $1 \sim 10^{-6}$ 범위의 반사율 측정이 가능하다. 그림 1에서 보여주는 것과 같이 z를 표면에 수직한 방향으로 놓고, x와 y를 표면에 평행하게 놓을 때, 입사 파동 벡터 k_i 와 반사 파동 벡터 k_r 의 벡터전이(wavevector transfer)를 q의 함

수, $Q_z = k_f - k_i$ 로 놓을 수 있다. 이 때 k_i 와 k_f 의 값은 입사각(α_i)과 반사각(α_f)의 변화에 의해서 조절될 수 있으므로, 이에 따른 파동벡터의 전이, q 의 함수로 그 변화량이 측정될 수 있다. 우리가 관심 있는 대칭 등각의 거울형 반사율은 α_i 와 α_f 를 등각으로 유지시키면서 변화시킬 때 변화하는 대상 물질 표면에 수직인 q 의 z 방향의 함수로 측정하게 되는 값이다. 이 때 q 의 z 방향 성분은 $q_z = 2\pi/\lambda(\sin\alpha_i + \alpha_f)$ 으로 정의되며, λ 는 사용되는 빔의 파장이다 [2]. 이때 정확한 두께 (d)의 정보가 각 계면에서 반사된 중성자빔의 상호 간섭에 의한 진동에 의하여 얻어지며, $\Delta d \cong 2\pi/\Delta q_z$ 에 의하여 얻어지므로, q_z 의 최대치를 얻도록 장치를 설계하는 것이 더 미세한 나노박막의 구조를 측정하는데 중요하다.

따라서 q_z 를 어떻게 변화시키는가에 의하여 반사율 측정 장치의 구조가 변화할 수 있으며, 그 연구목적에 따라 크기는 직접 입사각과 반사각을 변화시키거나, 혹은 빔의 방향은 고정된 채로 대상 표면과 검출기를 변화, 또는 다양한 파장을 변화시키고 대상표면은 고정시키는 방법 등이 사용된다. 본 연구에서 대상으로 하는 REF-H의 경우는 전자에 해당하며, 입사각과 반사각을 변화시킴에 따라 조절할 수 있는 q_z 의 변화 값에 따른 반사율을 측정함으로써 박막 표면의 극미세 구조를 측정하는 것이 이 장치의 기본 이론이다.

일반적으로 반사율 장치를 구성하는 많은 components과 해석적 계산으로 분해능/선속 등의 성능은 예측하기 어렵기 때문에, 건설시 최적화된 조건으로 건설하기 위하여 시뮬레이션은 필수적이다.

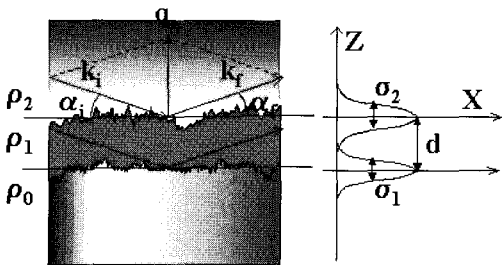


그림 1. 표면에 형성된 나노박막이 이루는 계면에서 파장의 파동벡터 전이함수 Q_z

본 연구에서는 MCSTAS (Monte Carlo Simulation of Triple Axis Spectrometer)를 사용하였다. 이 시뮬레이션 프로그램에 사용된 기본적인 parameter는 파장, 비행시간, 위치 및 probability등이며, 장치에 들어가는 각각의 광학 component를 지나갈 때 마다 변수들 값이 변하거나 사라지는 방식이 이용되었다 [5].

실제로 사용한 시뮬레이션과 수평형 반사율 측정 장치의 기본적인 component들은 다음 그림 2와 같으며, 각각의 component의 상대적 거리 및 시뮬레이션에 고려될 특징들은 다음의 표 1에 정리되었다. 또한, 시뮬레이션을 통해 얻은 결과들은 중성자빔의 크기와 세기, 파장 등을 고려하여 다음 components의 변수들을 결정하는데 활용한다.

우선 장치는 연구용 원자로인 선원의 특성을 고려하여 단색화 결정 및 필터를 이용하는 단일 파장 방식을 이용하였고, 시료의 반사면은 수직으로 하여 측정 시료 및 검출기를 수평방향으로 동작하도록 하였다. 입사 중성자의 파장은 Q_{min} 의 확장을 위하여 4Å 이상의 장파장을 이용하는 것이 효과적이나 현재 "하나로"에는 장파장의 중성자 이용을 가능하게 하는 냉 중성자 원이 없는 것을 고려하여 PG(002) 단색화결정으로 2.5Å의 중성자를 이용하였다. 다른 장치별 특성들은 BNL에서 도입되는 H-9A Reflectometer를 기본으로 활용하여 설계되었다.

3. 결과 및 고찰

수평형 반사율 측정 장치는 일반적으로 사용되는 수직형에 비하여 더 많은 components로 구성되

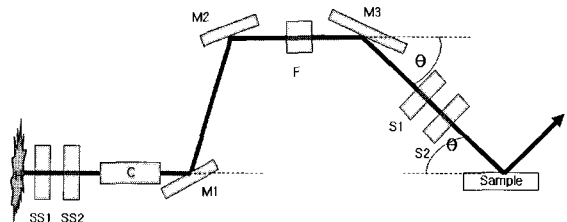


그림 2. 수평형 반사율 장치의 모식도

표 1. 반사율 장치 components의 세부내용

component	특징	위치 (기준)
Source(H)	Radius ; 0.1m Flux ; 4E13	0m (H)
Source Slit1 (SS1)	w × h = 6.2 × 12cm	1.5m (H)
Source Slit2 (SS2)	w × h = 8.6 × 18cm	3.425m (H)
Collimator (C)	w × h = 10 × 14cm divergence; 30 arc " Reflectivity ; 0.9 Length: 50cm	5.1m (H)
Monochromator1 (M1)	w × h = 6 × 4 cm h-mosaic; 24 arc " v- mosaic; 24 arc " 최대 reflectivity; 0.8 rotated (-45/2,0,90)	6.23m (H)
Monochromator2 (M2)	w × h = 4 × 6 cm h-mosaic; 24 arc " v- mosaic; 24 arc " 최대 reflectivity; 0.8 rotated (45/2,0,90)	0.311m (M1)
PG Filter (F)	w × h = 12 × 12 cm Length: 10cm	0.1m (M2)
Reflection Mirror (M3)	w × h = 12 × 30 cm critical scattering vector; 0.9 Å ⁻¹ width of supermirror cut-off; 0.3cm rotated (x,0,0)	1.2m (M2)
Slit1 (S1)	w × h = 8 × 6 cm	0.4m (M3)
Slit2 (S2)	w × h = 8 × 6 cm	1.0m (M3)

어 있고, 여기서 고려해야 되는 변수들은 최대 flux의 중성자 빔 크기와 세기, 파장 그리고 각 component들의 최적화된 변수 결정으로 요약 할 수 있다.

(source: H) 시뮬레이션에서 사용한 source는 320K의 thermal reactor source로서 그림 3의 빔의 수직되는 방향의 PSD(Position Sensitive detector) 검출기에 나타난 것과 같이 0.1m의 반경을 가진 원형이고, 중성자 빔의 세기는 4×10^{13} 로 주어졌다. 그림 2에 주어진 것과 같이 H로부터 1.5 m와 3.425 m 거리에 각각 SS1과 SS2로 주어진 source slit은 표 1에 주어진 것과 같은 실제 하나로 시스템을 모사하였다.

(Collimator: C) H로부터 5.1 m 떨어진 곳에는 collimator (C)가 위치한다. C는 입사된 중성자빔이 소스로부터 방사상으로 발산되는 빔을 진행방향으로 focus 시켜, 빔의 divergence를 조정할 수 있다. 본 REF-H의 경우, 샘플의 수직인 성분인 z 방향의 분해능이 중요하므로, 샘플과 수평으로 다량의 plate를 배향하여 샘플과 수평방향의 reduced angular divergence를 얻게 된다.

그림 4는 C를 사용하지 않았을 때의 divergence를 monitor한 결과로 x, y축 상에 각각 약 ±2°의 빔 분포를 보이고 있다. 이에 반해 그림 5는 h × w × l = 14 × 10 × 50 cm의 collimator를 사용하였는데, divergence가 빔의 넓이방향(x)으로 ±1.5° 그리고, z축방향으로 약 ±0.6°의 divergence 결과를 보여주고 있다. 다만 각 plate의 반사율을 90%로 주

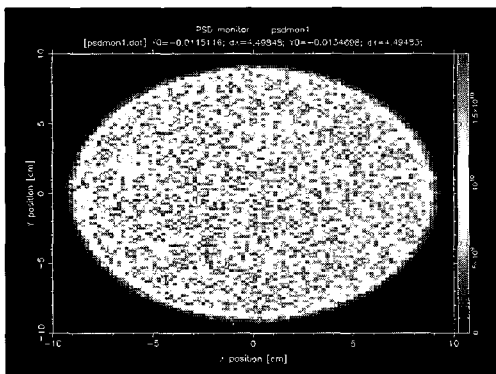


그림 3. 사용한 source의 PSD 측정결과

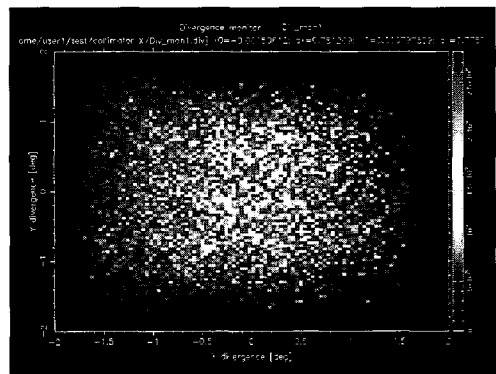


그림 4. Collimator를 사용하지 않은 빔의 divergence 결과

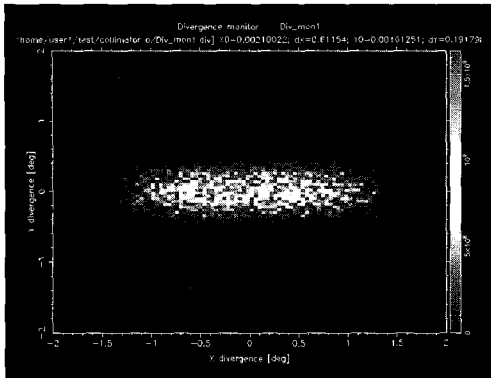


그림 5. Collimator를 사용하였을때 source 중성자 빔의 divergence 결과

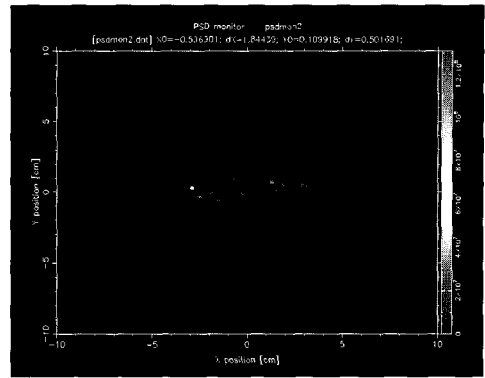


그림 7. M2에서 측정된 PSD결과

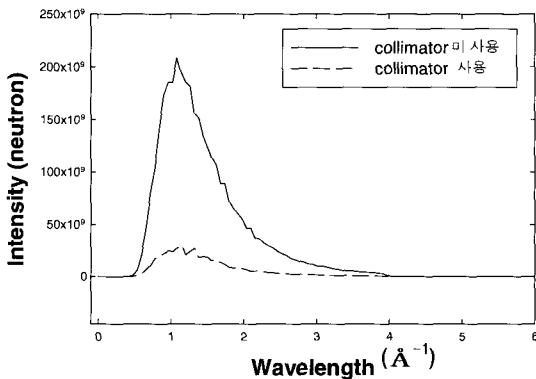


그림 6. Collimator 사용 여부에 따른, 중성자 빔의 파장에 따른 세기

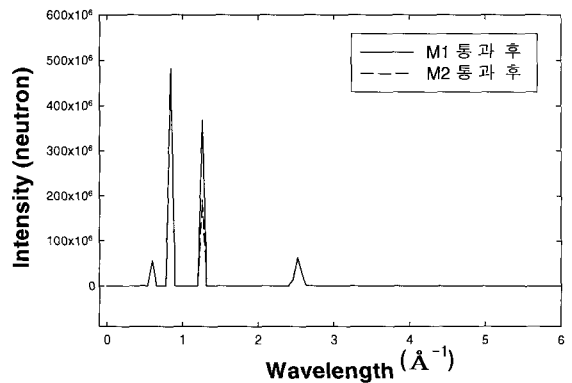


그림 8. M1과 M2를 투과한 빔의 파장분포

어졌을때, maximum 파장에서의 세기가 사용시 약 2×10^{11} 에서 미 사용시 약 2.0×10^{10} 으로 reduce되는 결과가 나타났다(그림 7). 이는 10배의 intensity의 약화를 초래하는 결과이나, 빔의 집속도를 고려할 때, 상대적인 장단점을 고려해야 할 부분이다.

(단색기, monochromator: M) 본 REF-H는 하나로에 기 설치된 차폐체를 통과하여 C에 의하여 집속된 중성자 빔을 꺼내기 위하여, 빔의 진행방향을 수평 이동시키기 위한 2개의 단색기(M)의 가설이 필수적이다. 이때 각각의 M을 거치면서, 빔의 방향의 변화와 동시에, 원하는 파장의 빔을 걸러내는 역할을 하고 있다. 따라서 본 simulation은 이러한 2개의 M의 설치를 기반으로 한다. 다만, 고가의 단색기는 경제적인 효율성을 고려를 필요가 있다. 따라서 각 M의 크기와 2개의 M을 지난 후에 중성자세기를

비교하여 최적의 조건을 선택하였다. 그림 6은 입사 빔에 대하여 22.5°의 각도로 기울어진 M1과 M2를 통과한 후의 빔의 PSD 결과이다. 사용되어진 단색기는 모두 24 arc min의 수직과 수평방향의 mosaicity를 갖고 있는 (002) Graphite가 사용되었다. 그림에서 M1과 M2에 의해서 단색된 중성자는 $w \times h = 8 \times 4$ cm로 집속된 결과를 보여주고 있다.

그림 8은 M1과 M2를 통과한후 파장의 분포를 보여주고 있다. REF-H에서 이용하고자 하는 2.5 Å대의 세기는 M1과 M2 전후에 거의 차이가 없으나, 2nd harmonic order 파장인, 1.27 Å는 M2에 의하여 많이 감소한 것을 알 수 있다. 또한 3rd와 4th order의 짧은 파장대의 고속 중성자도 많이 발생하고 있음을 알 수 있다. 표 2는 M1과 M2의 크기를 결정하기 위하여 다양한 크기에 따른 단색된 중성자 세기를 나타낸 것이다. 빔의 크기와 사용된 단

색기의 기하학적인 고려를 통해 M1의 경우 6 cm × 16 cm, M2의 경우 5 cm × 20 cm가 가장 높은 중성자 세기를 얻을 수 있으나, 실제 height 방향으로 활용되는 빔의 width는 REF-H의 각 slit에 의해 주어지는 분해능과 관련이 있으므로, 실제 활용도가 낮으며, width 또한 샘플의 사이즈가 10 cm 미만이며 divergence를 고려할 때, 각각 h × w = 4 cm × 6 cm가 사용될 경우에도 같은 order의 10⁷ 이상의 빔을 얻을 수 있음을 확인하였다.

나노박막의 구조측정을 위해서는 높은 q-range를 갖추어야 하는데, 이때 고속 중성자선은 차폐체를 통과하면서 background를 높이는 주요 원인인 동시에, 중성자 분광장치 주변의 radiation을 높이게 되므로 차폐체 내부에서 소거 시켜야 하기 때문에 필터(F)를 설치하여야 한다. M2를 투과한 빔에 Pyrolytic Graphite로 이루어진 10 cm 길이의 F를 설치하였으며, 고속 중성자선을 제거하였다.

(Reflection Mirror : M3) 앞서 M1과 M2는 입사된 중성자빔에 고정된 각도로 설치되어 수평방향으로 이동시키는 역할을 하는데 비하여 시료에 대한 입사각을 변화시키기 위해서는 전반사를 이용한 초거울로 만들어진 reflection mirror(M3)가 필요하다. 최대 q-range가 약 0.12 Å⁻¹로 가정할 때, 이 정도면 52 Å의 박막을 약 10%내외의 정확도를 가지

고 측정이 가능하며, 약 26 Å 이내의 두께의 분자도 모델링에 의한 분석이 가능하다. M2만을 가지고 입사각을 변화시켰을 때는, 활용 q-range는 이에 미치지 못하는 약 0.086 Å⁻¹ 정도로, 약 73 Å 두께의 박막 측정이 가능하다. 따라서 M3를 설치하였을 때 측정되는 capacity는 phospholipid 단분자막이 약 25 Å으로 가정할 때, 세포 이중막 구조의 측정이 가능하다고 할 수 있다. 그림 9는 M3의 입사각 (θ) 1.4°에서의 얻어진 1.2 × 10⁶을 갖는 파장의 세기이다. 이때 이용된 초거울(supermirror)은 w × h = 12 × 30 cm이 이용되었다. 미러에 의한 반사율은 낮은 q_c (=0.021 Å⁻¹) 영역에서는 0.99이며, critical q-range는 Bragg-angle을 형성하는 layer의 반복에 의하여 증가될 수 있다.

본 시뮬레이션에서는 3층의 반복 layer (m=3)를 이용하였다. 따라서 $m q_c = \frac{4\pi}{\lambda} \sin\theta_c$ 에 의해서 주어지는 critical angle θ_c는 0.72°의 미러에 대한 입사각의 변화가 가능하며, 이 각도의 두배가 샘플에 조사되는 입사각(θ)인 1.44°가 된다.

이러한 결과들을 바탕으로 얻어진 REF-H장치의 빔의 세기는 표 3과 같다. 각 중성자 components들이 결합되면서 초기 4.99 × 10¹¹의 source의 세기가, 최대 M3의 1.4°의 각도를 갖고 있는 경우, 1.2 × 10⁶의 결과를 갖게 된다. 이에 비해서, M2만을 이용할 경우, 1.1°가 최대 입사각도로 얻어져, 미러를 이용하는 경우 q-range를 최대로 높일 수 있는 것으로 나타났다.

표 2. M1과 M2의 크기에 따른 빔의 세기 (λ = 2.52 ~ 2.58 Å)

M1 size (h,w)	M2 size (h,w)	Intensity
(4,6) cm	(4,6) cm	3.77 × 10 ⁷
(4,6) cm	(4,20) cm	4.75 × 10 ⁷
(4,6) cm	(5,20) cm	1.78 × 10 ⁷
(5,16) cm	(4,6) cm	9.09 × 10 ⁶
(5,16) cm	(4,20) cm	5.15 × 10 ⁷
(5,16) cm	(5,20) cm	6.27 × 10 ⁷
(6,16) cm	(4,6) cm	1.99 × 10 ⁷
(6,16) cm	(4,20) cm	5.99 × 10 ⁷
(6,16) cm	(5,20) cm	9.78 × 10 ⁷

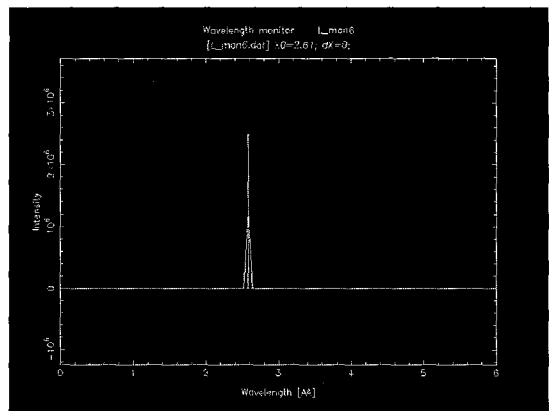


그림 9. M3의 입사각 (θ) 1.4°에서 빔 세기

표 3. 각 components에서의 빔 세기 결과

components	intensity ($\lambda=2.52 \sim 2.58 \text{ \AA}$)	
H	4.99×10^{11}	
SS1	2.04×10^{11}	
SS2	3.76×10^{10}	
C	미사용 2.01×10^{10} 사용 3.60×10^9	
M1	7.1×10^7	
M2	2.03×10^7	
S2	M3, $\Theta=1.4^\circ$ 1.2×10^6	M2, $\Theta=1.0^\circ$ 5.0×10^6

4. 결 론

원자로의 중성자 빔을 사용하는 수평형 반사율 장치는 중성자 고유의 투과성 및 낮은 에너지의 비파괴성과 함께 시편을 수평으로 놓을 수 있는 장점으로 수 나노미터 이내의 박막의 두께와 밀도를 측정하기 위하여 활용되는 새로운 장치이다. 현재 원자력연구소에 열중성자를 기반으로 개발을 추진하고 있으나, 아직 국내에 설치되어 있지 않아서 장치의 개념 및 최적화를 위한 시뮬레이션이 필요하며, 이를 바탕으로 한 장치의 건설을 추진하고 있다. 본 시뮬레이션은, 몬테카를로 시뮬레이션을 이용하는 MCSTAS를 이용하여 열중성자에 해

당하는 2.5 \AA 를 기반으로 중성자 산란의 물리적 진행과정을 각각의 장치의 components들의 특성(흡수, 산란, 각도)에 의하여 추적하고, 정확한 장치 성능과 geometry를 결정하였다. 이를 통하여 현재 열중성자 시설에서도 수 나노미터의 샘플을 측정할 수 있는 장치의 건설이 가능하다는 것을 얻어낼 수 있었다.

5. 감사의 글

이 논문은 과학기술부의 원자력연구개발과 21세기 프론티어연구의 ‘나노소재기술개발사업단’의 지원(과제번호:05K1501-01210)과 NRL 사업에 의하여 지원되었다.

참 고 문 헌

- [1] 신관우, 이정수, *Physics & High Technology* Feb/Jan, 27 (2002).
- [2] T. P. Russell, *Mat. Sci. Rep.* **5**, 171 (1990) and references therein.
- [3] 신관우, *Polymer Science and Technology* **15**, 6 (2004).
- [4] M. Born and E. Wolf, *Principle of Optics*, 7th Eds. (Cambridge University Press, London, 1999).
- [5] <http://neutron.risoe.dk>