

<연구논문>

Nuclear Microanalysis에 의한 텅스텐 표면의 산소 흡착조사

김명원* · 황정남

*충북대학교 물리학과, 연세대학교 물리학과
(1991년 11월 11일 접수)

Oxygen Coverage Measurement on Tungsten Surface by Nuclear Microanalysis

Myoung Won Kim* and C. N. Whang

*Department of Physics, Chungbuk National University, Cheongju 360-763
Department of Physics, Yonsei University, Seoul 120-749

(Received November 11, 1991)

요 약— 텅스텐 표면의 (110)면에 흡착된 산소량을 $^{18}\text{O}(\text{P}, \alpha)^{15}\text{N}$ 핵반응으로 직접 측정하여 미세분석 하였다. Van de Graaff 가속기로 양성자를 가속시켜 시료 표면 가까이 있는 원자와 충돌시켜 생성되는 α 입자를 측정함으로써 표면에 있는 미소량의 원소도 측정이 가능했다. α 입자의 수율은 oxygen exposure에 비례하였는데 coverage (θ)는 5 Langmuir에서 0.5가 되었고, 15 Langmuir에서 포화되었다.

Abstract— The microanalysis by the direct observation of $^{18}\text{O}(\text{P}, \alpha)^{15}\text{N}$ nuclear reactions on tungsten (110) surface are investigated using a 2MeV Van de Graaff accelerator. This method allows the determination of very small quantities of nuclei near the surface of samples. The yields increase with oxygen exposure. The oxygen coverage, θ , is 0.5 at 5 Langmuir and 1.0 at 15 Langmuir.

1. 서 론

고체의 표면에 일어나는 물리적 화학적 현상을 연구하는데 매우 소량의 원소들을 양적으로 측정하는 것이 중요하다. 왜냐하면 이것은 고체 표면에서의 기체의 흡착현상, 박막의 성장과정, 표면의 불순물 조사 등에 이용되기 때문이다. 동위원소를 이용한 추적기(Tracer) 실험은[1] 원자의 운반, 확산 및 흡착현상을 측정하는데 많은 도움을 준다.

핵 반응방법에 의한 소량의 물질을 미세분석하는[2, 3] 것은 이미 오래전에 시작되었다. 일반적으로 전자나 이온을 이용하여 물질표면의 원소를 양적으로 조사하는 것 보다는 핵 반응에 의한 방법이 더 직접적이다.

핵 반응을 일으키기 위해 메가 볼트 정도의 가속기가 있어야 하므로, 실험장치가 비싼 단점이 있어서 보편화 되지는 않았다. 여기서는 텅스텐 표면에 산소의 흡착과정을 산소의 동위원소인 ^{18}O 로 추적하였다.

2. 실험방법 및 장치

대전입자와 물질의 원자와의 충돌관계가 러더포드(Rutherford)[4] 산란식에 의해 주어진다. 입사 입자가 후방 산란되는 계수율(Counting rate)은[5]

$$Y = N_s \frac{d\sigma}{\delta\Omega} \Delta\Omega Q$$

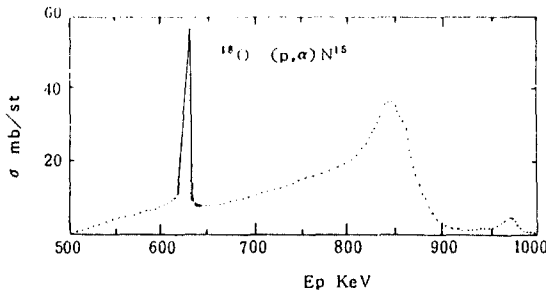


Fig. 1. Differential cross sections of the reactions used to analyse ^{18}O at 150° .

로 주어진다. 여기서 $d\sigma/d\Omega$ 는 관측방향 θ 에서의 미분산란단면적이며 $\Delta\Omega$ 는 검출기의 입체각이고 Q 는 입사 입자의 총수이다. N_s 는 표면에 있는 측정하고자 하는 물질의 원자수이다. 여기서는 텅스텐 표면에 흡착되어 있는 ^{18}O 의 수이다. 양성자와 ^{18}O 이 충돌하면 3.38 MeV의 알파입자가 방출된다.

입사 양성자의 에너지에 따른 미분산란단면적은 Fig. 1에 있다.

산란단면적을 구할 때 오차를[6] 줄이기 위해 핵반응 공명그래프에서 기울기가 완만한 부분을 골라 0.75 MeV의 양성자를 이용했다. 미분산란단면적을 계산하고 검출기의 입체각, 입사 양성자수 및 수율(yield)을 측정하므로써 텅스텐 표면에 덮여져 있는 산소의 수를 측정할 수 있다.

실험장치의 개략도는 Fig. 2에 있고, 각 부분을 간단히 설명하면 다음과 같다. 첫째, 양성자는 2 MeV 밴더 그래프 가속기로 [High Voltage Engineering Corp.] 수소를 이온화 시켜서 얻었다.

이 양성자는 자기 편향에 의해 단일에너지를 이온화 시켜서 얻었고 이 때의 FWHM(Full Width at Half Maximum)는 200 eV 이었다.

가속기와 초고진공 챔버사이에는 차동펌핑에 의해 10^{-8} Torr의 진공을 유지할 수 있었다. 이렇게 하므로써 실험중 초고진공 챔버를 1×10^{-10} Torr로 유지할 수 있었다. 검출기는[7] 실리콘 표면 장벽 검출기(Surface Barrier Detector)를 사용하였고 검출기의 측정각은 150° , 입체각은 0.00291 sr 이었다. 본 실험에서는 텅스텐 단결정을 이용하였으므로 채널효과가 일어나지 않도록 주의하였다.

또 탄성충돌에 의한 후방 산란입자 및 검출기 표면에 흡착된 탄소에 의해 발생하는 알파입자 등에

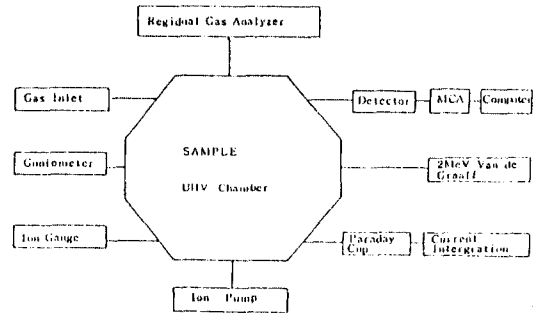


Fig. 2. Simplified block diagram of the experimental equipment set-up.

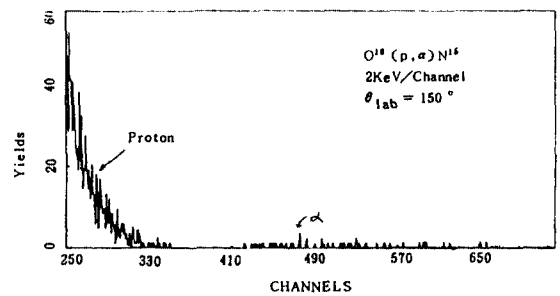


Fig. 3. A typical α particle spectrum of ^{18}O adsorbed on W(110) surface.

의한 바탕계수(Background Counting)를 줄이기 위해 108 μm 의 알루미늄 박막으로 검출기를 덮었다. 이 때 박막의 두께는 알파입자와 양성자의 에너지 손실을 [8] 고려하여 스펙트럼에 영향을 미치지 않도록 하였다. 본 실험에선 시료로서 텅스텐 결정물(110)면으로 잘라서 통상적인 방법에 의해 연마 하였다. 다음 산소하에서 2200 K 정도로 주기적으로 전기적 가열에 의해 불순물을 제거했다.

실험은 ^{18}O 을 IL단위로 넣은 다음 바로 후방 산란되는 알파입자의 스펙트럼을 얻고, 다음 데이터는 잔류 가스를 티타늄 펌프로 뽑아 낸 다음, 시료를 전기가열에 의해 깨끗이 한 후 다음 스펙트럼을 얻었다.

3. 결과 및 논의

Fig. 3은 대표적으로 얻은 후방산란되는 입자의 스펙트럼이다. 낮은 채널쪽의 입자는 텅스텐 원자와 충돌에 의해 산란된 양성자이고, 높은 채널쪽은 산소원자의 핵반응에 의해 생성된 알파입자이다. 모두

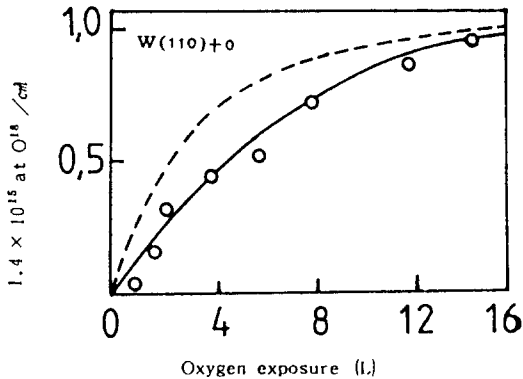


Fig. 4. Number of submonolayer ^{18}O particles on tungsten surface as function of exposure.

알루미늄 박막을 투과했기 때문에 에너지가 작았다. 에너지 손실율은 양성자보다 알파입자일 경우 더 커서 두 peak 사이에 에너지 간격은 좁아졌다. 산소의 흡입없이 텅스텐 표면에 의한 산란 스펙트럼은 양성자 peak만이 있는 random 스펙트럼 뿐이었다. 따라서 위쪽 부분은 핵반응에 의해 생긴 알파입자임을 확인할 수 있다. 수율은 매우 낮았다. 수율을 크게 하는 방법은 시료와 검출기 사이의 거리를 짧게 해서 입체각을 늘이고, 또 양성자를 증가시키면 된다.

이렇게 함으로써 수율을 증가시켜 오차를 줄일 수 있다. 그러나 입사 입자수를 많게 하면 시료를 파괴하므로 전체 입사입자수는 원자당 1개가 되도록 30 $\mu\text{Coulomb}$ 으로 하였다.

Fig. 4는 텅스텐 (110)면에 주입된 산소의 양에 따른 준 일분자층(submonolayer)에 있는 산소의 개수를 나타낸다. 이 때 노출단위는 IL(Langmuir)로 1×10^{-6} Torr-sec이다. 산소 노출량에 따른 텅스텐 표면에 있는 산소원자 수는 처음 5 L까지는 직선적으로 증가하다가 점점 느리게 15 L 근처에서 1원자층의 산소가 얹게 되는데, 이 관계는 그림에서 실선으로 표시되어 있다.

점선으로 표시된 그래프는 금속면에 기체가 흡착되는 정도를 θ 로 나타낸 것인데 θ 가 0.5일 때 산소가 일층분자의 반을 덮고 있음을 의미하며, 1이면 텅스텐 원자 한 개당 산소가 하나씩 흡착되어 있음을 의미한다. 기체가 흡착되는 과정에 관한 이론은 여러 가지가 있고, 금속마다 다른데 이것은 sticking coefficient가 시간 및 chemisorption 에너지, 온도, 압력 등의

복합적인 함수로 되어 있기 때문이다. 깨끗한 표면을 기체에 노출 시켰을 경우 non interacting gas라고 가정할 때 dilute phase model(DPM)을 적용하면, 기체가 표면에 흡착되는 정도(surface coverage)는 지수함수적으로 증가를 하고, θ 의 시간에 따른 기울기의 변화는 $(1-\theta)^2$ 의 경향을 나타낸다. 이 관계는 Fig. 4에 점선으로 표시되었다.

텅스텐 표면의 산소흡착도 지금까지 이와 같은 model로 설명하는데, 처음 10 L 동안 이 흡수 모델과 일치하지 않았다. 산소 주입에 따른 흡착정도가 모델과 다른 점은 실제적으로 산소가 결정의 전표면에 평균적으로 확산되기 위해서는 더 많은 산소가 필요함을 의미한다. LEED(low energy electron diffraction) 실험에 의하면 산소량에 따라 텅스텐 결정면은 θ 가 0.5일 때 $P(1 \times 1)[11]$ 에서 $P(2 \times 1)$ 으로 변하고 θ 가 0.75일 때 $P(2 \times 2)$ 로 되며 θ 는 1이 되면 다시 $P(1 \times 1)$ 으로 바뀐다.

LEED 실험은 테라스(terrace)[12] 크기의 표면원자들의 기하학적 대칭구조를 나타내어 준다. 반면 핵반응에 의한 실험은 양성자 입자살의 크기에 해당하는 mm^2 정도의 결정면적에 평균적으로 덮여져 있는 산소량을 정량적으로 나타내어 준다. 따라서 이 실험값은 텅스텐 결정면의 흡착율을 계산하는데 척도가 되리라 생각한다. 또한 이 방법은 다른 물질 구조 분석방법과 함께 원자의 흡착 및 확산과정을 연구하는데 커다란 영향을 미칠 것으로 기대된다.

끝으로 가속기의 이용 및 실험을 도와준 Montana State University의 M. Wortington과 R. J. Smith 교수에게 감사를 드린다.

참고문헌

1. G. Amsel, D. David, G. Beranger and P. Boist, *Rev. Phys. Appl.* **3**, 373 (1968).
2. G. Amsel and D. Samuel, *J. Phys. Chem. Solide* **23**, 1707 (1962).
3. R. W. Ollerhead, E. Almquist and J. A. Knehner, *J. Appl. Phys.*, **37**, 2240 (1966).
4. H. Goldstein, *Classical Mechanics*, Addison-Wesley, 2nd Ed., 1980.
5. W. K. Chu, J. W. Mayer and M. A. Nicolet, *Backscattering Spectrometry*, Academic Press, New York,

- 1978.
6. G. Amsel, J. P. Nadai and E. D. Dartemare, *Nucl. Inst. and Methods*, **92**, 481 (1941).
 7. G. Amsel, R. Bosshard and C. Zajde, *IEEE Trans. Nucl. Sic.*, **1**, 1 (1967).
 8. W. Wahling, *Handbuch der Physik*, Vol. 33, Springer Verlag, p.202.
 9. M. Strongin, J. Colbert, G. J. Dienes and D. O. Welch, *Phys. Rev.* **B26**, 2715 (1982).
 10. N. J. Dinardo, C. B. Blanchet and E. W. Plummer, *Surf. Sic.*, **140**, L229 (1984).
 11. M. Prutton, *Surface Physics*, Oxford, 2nd Ed., p. 46 (1983).
 12. M. G. Legally, T. M. Lu and G. C. Wang, *Ordering in Two Dimension*, North Holland, New York (1980).