

# 초고속 전자 현미경의 개발과 극복 과제

<http://dx.doi.org/10.5757/vacmac.2.1.17>

박두재

## Challenges in the development of the ultrafast electron microscope

Doo Jae Park

In this article, a historical and scientific review on the development of an ultrafast electron microscope is supplied, and the challenges in further improvement of time resolution under sub-picosecond or even sub-femtosecond scale is reviewed. By combining conventional scanning electron microscope and femtosecond laser technique, an ultrafast electron microscope was invented. To overcome its temporal resolution limit which originates from chromatic aberration and Coulomb repulsion between individual electrons, a generation of electron pulse via strong-field photoemission has been investigated thoroughly. Recent studies reveal that the field enhancement and field accumulation associated with the near-field formation at sharply etched metal nanoprobe enabled such field emission by ordinary femtosecond laser irradiation. Moreover, a considerable acceleration reaching 20 eV with near-infrared laser and up to 300 eV acceleration with mid-infrared laser was observed, and the possibility to control the amount of acceleration by varying the incident laser pulse intensity and wavelength. Such findings are noteworthy because of the possibility of realizing a sub-femtosecond, few nanometer imaging of nanostructured sample.in silicon as thermoelectric materials.

### 1. 초고속 전자 현미경의 개발

전자현미경의 높은 공간 분해능은 나노미터 크기의 시

료 표면의 관찰을 가능하게 한다. 따라서 반도체 공정 분야에서부터 생명과학 분야에 이르기까지 다양한 분야에서 필수적인 측정 장비로 인식되어 널리 활용되고 있다. 또한 최근에는 이러한 전자현미경에 추가적인 분석 기술을 가미함으로써, 단순한 측정뿐 아니라 시료의 전기적, 광학적 특성을 나노미터 단위의 분해능으로 분석하는 작업도 활발하게 이루어지고 있는 추세이다 [1].

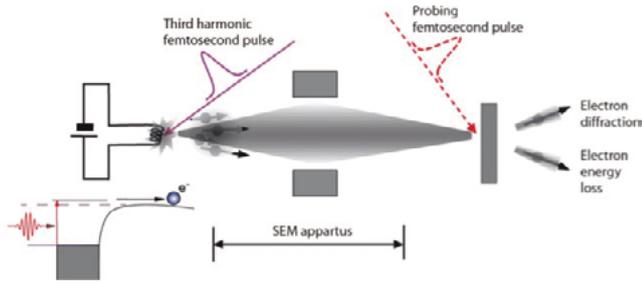
최근 나노 기술이 비약적으로 발달함에 따라, 다양한 새로운 나노물질들이 개발되고 있다. 특히 탄소나노튜브 및 그래핀과 같은 탄소 기반 나노물질, MoS<sub>2</sub> 등으로 대표되는 전이금속 산화물 기반 이차원 물질 및 페로브스카이트 등의 무기나노 구조체 등이 최근 각광받고 있으며, 초미세 전자소자, 수소저장물질, 광소자 및 광전지 등에 적용하기 위해 국내외 많은 연구기관들이 노력하고 있다. 따라서 이러한 물질들의 물리적, 화학적 특성을 분석하여 상기한 응용 분야에 적합한 물질 구조 및 제조 방법을 제시하는 것이 초미의 과제이다. 특히 이러한 물질 내부에서의 전자 에너지 전이 메커니즘, 여기된 전자의 수송 메커니즘, 구조적/화학적 결합 주위에서의 운반자의 에너지/모멘텀 변이 메커니즘 연구는 물질의 특성을 이해하고 성질을 개선하는 데 필수적이라 할 수 있다.

이에 따라 전자현미경의 높은 공간분해능에 더해 높은 시간분해능을 달성하려는 시도가 미국 및 독일의 몇몇 연구팀을 중심으로 이루어졌다. 특히 이러한 연구에서 선도적인 업적을 달성한 팀은 미국 Caltech의 A. H. Zewail

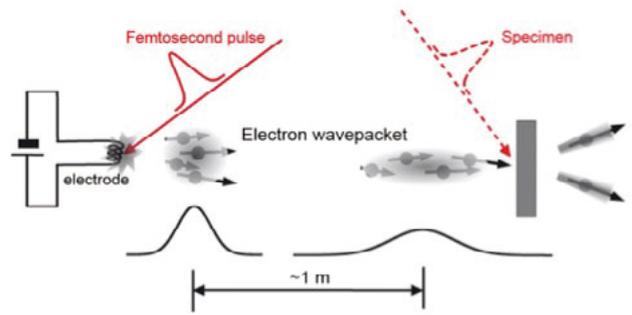


#### <저자 약력>

박두재 박사는 서울대학교 물리학과 김대식 교수의 지도하에 2008년 박사학위를 수여받았으며, 아주대학교 박사후 연구원, 독일 Carl-von Ossietzky University 박사후 연구원, 성균관대학교 연구교수 등의 경력을 거쳐 현재 한림대학교 전자물리학과 조교수로 재직중이다. 저자는 초고속 분광학, 테라파 분광학, 근접장 광학 현미경을 이용한 나노광학, 극초단 광전자학 등의 다양한 분야에서 연구를 수행하였으며, 관련 분야에서 꾸준히 연구를 진행중에 있다. (doojaepark@gmail.com)



[Fig. 1] A schematic diagram of ultrafast electron microscope.



[Fig. 2] A schematic diagram of the pulse broadening effect inside electron microscope apparatus due to chromatic aberration and Coulomb repulsion.

그룹이다. A. H. Zewail은 1999년에 펨토초 레이저를 이용한 화학 구조 분석에 대한 공로로 노벨상을 수상한 바 있는데, 이러한 펨토초 레이저 기술을 전자현미경에 접합하여 높은 시간 분해능을 달성하고자 하였다. 펨토초 레이저는 일반적인 연속형 레이저와 달리 수십~수백 펨토초 수준의 짧은 시간폭으로 레이저 펄스가 발진되므로, 높은 시간 분해능을 요구하는 물질의 동역학 분석에 광범위하게 활용된다. 동시에, 광에너지가 짧은 시간폭 안에 집중되므로 물질에 비선형 현상을 관측하는 데 유용하다. 이러한 특성으로 인하여, 전기장 유도 주사 전자현미경의 음극에 펨토초 레이저를 주사할 경우, 금속 내부의 전자는 비선형 여기현상에 의해 레이저로부터 높은 에너지를 흡수하여 자유전자의 형태로 방출된다. 이때 방출된 자유전자선속의 시간폭은 펨토초 레이저 펄스의 시간폭과 같을 것으로 기대할 수 있고, 따라서 이러한 전자선속을 기존의 전자현미경 기술을 통하여 시료에 조사한다면 높은 공간 분해능과 높은 시간 분해능을 동시에 달성할 수 있는 것이다.

이러한 아이디어는 대략 1997년 경 같은 그룹에 의해 현실화되었다 [2]. 이 연구에서 연구팀은 화학물질의 상태 변화를 약 수 피코초 정도의 분해능으로 분석할 수 있었으며, 꾸준한 개선을 통해 현재는 일반 전자현미경의 분해능에 필적하는 공간분해능과 수 피코초에 이르는 시간 분해능을 동시에 달성하고 있다 [3]. 또한 여타 다른 연구팀에서도 유사한 성과를 보고하고 있다 [4].

## 2. 기존 초고속 전자현미경의 한계와 극복

앞서 살펴 본 바와 같이, 펨토초 레이저 펄스에 의해 발생한 자유전자선속의 시간 선폭은 입사한 펨토초 레이저

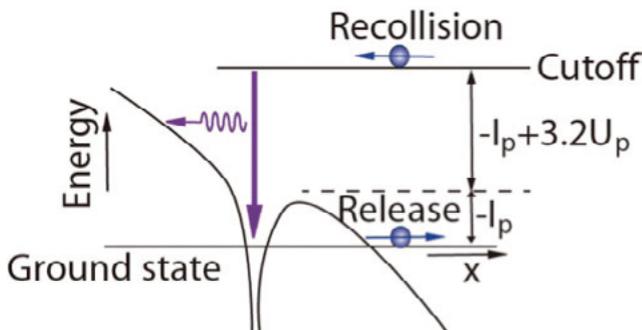
펄스와 동일할 것으로 기대해 왔으며, 이는 아무리 길어도 수백 펨토초 미만일 것이다. 그러나 실제로 달성 가능한 초고속 전자 현미경의 시간 선폭은 수 피코초 이상으로 입사한 레이저의 시간선폭과 비교했을 때 최소 10배 가량의 차이를 가진다. 이러한 시간 분해능 한계가 발생하는 이유는 1) 발생한 전자의 운동 에너지 상이에 의한 분산 효과 2) 전자 선속 내부의 전자들 상호간의 척력으로 인한 분산으로 밝혀졌다 [5]. 따라서 펨토초 레이저에 의한 자유 전자 발생 메커니즘에 대한 좀 더 미시적이고 물리학적 분석의 필요성이 대두되었으며, 이에 따라 다양한 기초 연구가 진행되었다.

레이저 입사에 의한 자유전자 발생 연구에 있어 선구적인 역할은 P. B. Corkum이 수행하였다. 그는 1989년 레이저에 의한 자유전자 발생 메커니즘이 Above-threshold ionization(ATI)이라고 불리는 전자의 다광자 흡수현상이라는 것을 밝혔으며, 이 메커니즘에 대한 이론적 기초를 다졌다 [6]. 이러한 예측을 기반을 많은 연구가 이루어졌으며 [7], 특히 나노 구조 주변의 전기장 증대 현상의 발견 [8,9,10]은 레이저 펄스의 전기장 효과를 극대화시킴으로써 이러한 연구의 활성화에 크게 기여하였다. 독일의 C. Lienau 연구팀은 최초로 나노 탐침에서 펨토초 레이저 펄스를 조사하여 자유전자 발생에 성공한 바 있으며 [11], 역시 독일의 P. Hommelhoff 팀 등은 이러한 방법으로 발생한 전자선속의 에너지 분석을 통해 전자 발생 메커니즘이 ATI 현상과 관련된 것임을 밝혔다 [12]. 이들의 연구 결과에 따르면 ATI 현상에 의해 발생한 전자는 상대적으로 넓은 전자 에너지 스펙트럼을 가지고 있으며, 분포는 고온 상태의 전자 에너지 분포와 유사하다. 이는 기존의 방법으로 발생한 전자 선속이 빠른 속도로 분산

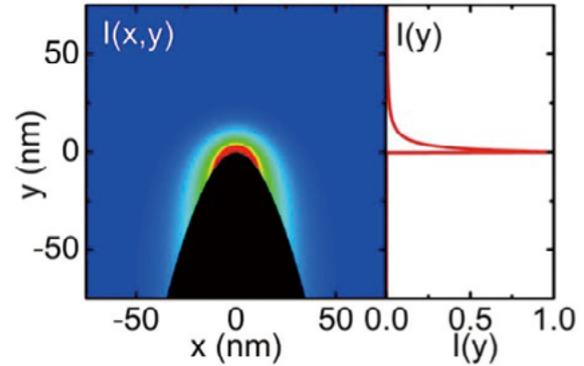
하여 수 피코초 이상의 시간 선폴을 가지는 현상을 잘 설명한다.

입사하는 레이저의 세기가 강해지면 ATI 현상이 아닌 strong-field tunneling 현상에 의해 자유전자가 방출될 수 있다. 이러한 현상은 이미 다단계 증폭 레이저 펄스를 이용한 high-harmonic generation, 아토초 스트리킹 등의 분야에서 잘 알려져 있다. 단원자 혹은 단분자로 이루어진 가스에 수 테라와트 혹은 그 이상의 휘도를 가지는 레이저 펄스를 조사할 경우, 진공 에너지 준위는 그림 3에서 볼 수 있는 바와 같이 극심한 변형을 겪게 되며, 원자 내부에 속박되어 있던 전자는 일정 확률로 양자적 터널링을 하게 된다 [13,14]. 이와 동시에 진공 에너지 준위는 입사하는 레이저 펄스에 의해 주어지는 전기장 진동에 맞추어 위아래로 진동하게 되고, 이러한 전기장 변화에 따라 방출된 전자는 가속되거나 감속되게 되어 소위 quiver motion을 하게 된다. 특히 높은 에너지로 되돌아오는 전자가 원자와 충돌하여 recombination을 하게 될 때, X선 영역에 해당하는 매우 강한 에너지를 가지는 빛이 발생하게 되는데, 이것을 high-harmonic generation이라 하며 (그림 3 참조), 이를 이용한 극한 시간 분해능을 달성하여 물질의 특성을 분석하는 것을 아토초 스트리킹이라고 한다.

이러한 strong-field tunneling 현상은 매우 높은 휘도의 레이저를 요구하므로, 당초 낮은 에너지만을 가지는 일반적인 펨토초 레이저로는 관찰이 불가능할 것으로 여겨졌다. 또한, 높은 휘도의 레이저를 고체상태의 물질에 조사할 경우 자유전자를 방출하기 앞서 고체 구조가 깨어지므로, 금속 등의 구조에서는 원천적으로 불가능하다고 생각해왔다. 그러나 C. Ropers 연구팀은 2010년 금속 나노 탐침에서 이러한 현상이 발생한다는 증거를 발견하였



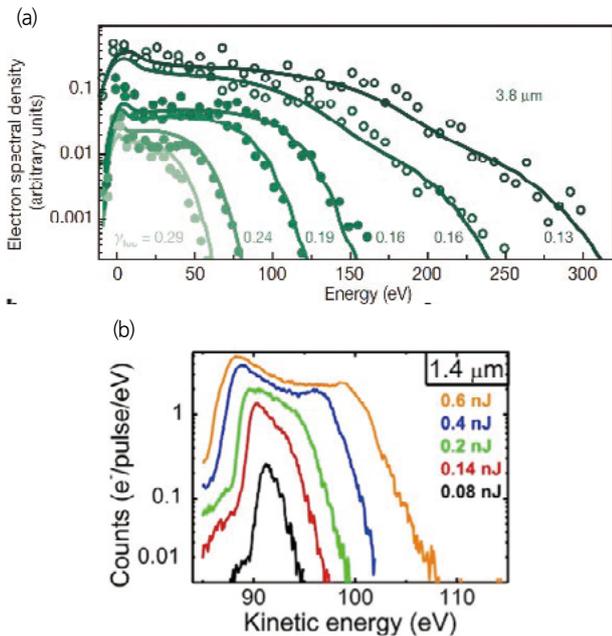
[Fig. 3] Vacuum level variation due to strong laser field and corresponding high-harmonic generation.



[Fig. 4] A simulation of electric field near metal nanotip apex. A strong field enhancement and field confinement is observed due to near-field excitation. Field decay length for 7 nm apex is measured as 2.7 nm.

다 [15].

이어서 같은 연구팀과 본 저자는 이러한 터널링은 강한 전자기장 증대 현상과 이와 관련된 근접장집속 현상의 결합으로 인해 가능하며, 뿐만 아니라 주목할 만한 전자 가속 또한 이루어짐을 밝혔다 [16,17]. 이 연구에 의하면, 전자 가속은 근적외선 레이저 펄스의 조사시 20 eV, 중/원적외선 레이저 조사시 300 eV에 달한다는 것이 밝혀졌는데, 이는 열적 분포의 한계인 5 eV 수준을 상회하는 수준이다. 또한 이러한 전자가속 정도는 입사하는 레이저의 세기와 파장을 변화시킴으로써 조절할 수 있다는 것 또한 밝혀졌다. 더 나아가, 본 저자의 연구에 의하면 나노 탐침 주변의 전자기 벡터장이 휘어진 정도를 이용하여 전자 방출 경로 또한 조절할 수 있다는 사실이 밝혀졌다 [17,18]. 이러한 연구성과들은 나노구조에서 터널링에 의한 광전자 방출이 가능하다는 최초의 발견일 뿐만 아니라, 이러한 자유전자선속의 에너지 조절이 가능하다는 것을 보여주었다는 점에서 큰 의의가 있다. 즉, 적절한 제어를 통해 전자 에너지 스펙트럼의 선폴을 매우 좁게 조절할 수 있으며, 결과적으로 기존 초고속 전자현미경 방법의 한계로 지적되었던 전자선속의 분산 효과를 최소화할 수 있는 가능성을 열었다는 것이다. 또한 더욱 놀라운 사실은 이러한 터널링 현상에 의해 방출되는 전자선속은 입사하는 레이저 펄스의 한 진동주기 이하, 즉 1 펨토초 정도의 시간 선폴을 가지고 방출된다고 예측할 수 있는데, 이러한 전자선속에 대한 적절한 제어가 이루어진다면 현재의 기술 수준의 1000분 1에 해당하는 놀라운 시간 분해능의 증대 효과를 기대할 수 있어서 원자 혹은 양자점 내부의 전자



[Fig. 5] Energy distributions of electron wavepacket emitted from gold nanotip with (a) mid-infrared pulse laser irradiation (3.8 μm, image from G. Herink et al.) (b) near-infrared irradiation (1.4 μm, image from D. J. Park et al.)

구름의 변화, photovoltaic 분자 내부에서의 전자 수송, 혹은 분자의 진동과 같은 현상을 마치 동영상을 감상하듯이 기록하여 분석할 수 있을 것으로 기대한다.

### 3. 국내 연구 동향과 앞으로의 전망

초고속 전자현미경은 우리나라에서는 다소 생경한 분야로, 많은 연구진이 연구에 참여하고 있지는 않으나 몇몇 주목할 만한 연구 성과를 내는 연구팀이 존재한다. 특히 한국과학기술원 (KAIST) 이호철 교수는 A. H. Zewail 그룹에서 연구한 바 있으며, 여기서 얻은 경험을 바탕으로 국내에서도 활발히 연구하여 괄목할 만한 연구 성과를 내고 있다 [19]. 그러나 나노구조에서의 strong-field tunneling을 이용한 전자원 개발과 관련한 연구는 국제적으로는 선술한 바와 같이 태동 단계이며, 국내에서는 아직 활발한 연구가 이루어지는 팀을 찾기 어려운 실정이다. 이러한 연구 분야가 가지는 높은 응용 가능성을 고려할 때, 국내 연구진들의 좀 더 적극적인 참여가 필요하다고 생각한다.

### References

- [1] J. K. Park, Y. H. Ahn, Ji-Yong Park, Soonil Lee and K. H. Park, *Nanotechnology* **21**, 115706 (2010).
- [2] J. Williamson, J. Cao, H. Ihee, H. Frey and A. Zewail, *Nature* **386**, 159 (1997).
- [3] E. Najafi, T. Scarborough, J. Tang and A. Zewail, *Science* **347**, 164(2015).
- [4] B. Siwick, J. Dwyer, R. Jordan and R. Miller, *Science* **302**, 1382 (2003).
- [5] P. Baum and A. Zewail, *Proc. Nat. Aca. Sci.* **103**, 16105 (2006).
- [6] P. B. Corkum, N. H. Burnett and F. Brunel, *Phys. Rev. Lett.* **62**, 1259 (1989).
- [7] G. G. Paulus, F. Grasbon and H. Walther, *Phys. Rev. A* **64**, 021401(R) (2001).
- [8] T. W. Ebbesen, H. J. Lezec, H. F. Ghaemi, T. Thio and P. A. Wolff, *Nature* **391**, 667 (1997).
- [9] D. S. Kim, S. C. Hohng, V. Malyarchuk, Y. C. Yoon, Y. H. Ahn, K. J. Yee, J. W. Park, J. Kim, Q. H. Park and C. Lienau, *Phys. Rev. Lett.* **91**, 143901 (2003).
- [10] D. J. Park, S. B. Choi, K. J. Ahn and D. S. Kim, *Phys. Rev. B* **77**, 115451 (2008).
- [11] C. Ropers, D. R. Solli, C. P. Schulz, C. Lienau and T. Elsaesser, *Phys. Rev. Lett.* **98**, 043907 (2007).
- [12] M. Schenck and P. Hommelhoff, *Phys. Rev. Lett.* **105**, 257601 (2010).
- [13] P. B. Corkum, *Phys. Rev. Lett.* **71**, 1994 (1993).
- [14] K. J. Schafer, B. Yang, L. F. DiMauro and K. C. Kulander, *Phys. Rev. Lett.* **70**, 1599 (1993).
- [15] R. Bormann, M. Gulde, A. Weismann, S. V. Yalunin and C. Ropers, *Phys. Rev. Lett.* **105**, 147601 (2010).
- [16] G. Herink, D. R. Solli, M. Gulde and C. Ropers, *Nature* **483**, 190 (2012).
- [17] D. J. Park, B. Piglosiewicz, S. Schmidt, H. Kollmann, M. Mascheck and C. Lienau, *Phys. Rev. Lett.* **109**, 244803 (2012).
- [18] D. J. Park, B. Piglosiewicz, S. Schmidt, H. Kollmann, M. Mascheck, P. Groß and C. Lienau, *Ann. Phys.* **525**, 135 (2013).
- [19] K. H. Kim, J. G. Kim, S. Nozawa, T. Sato, K. Y. Oang, T. W. Kim, H. Ki, J. Jo, S. Park, C. Song, T. Sato, K. Ogawa, T. Togashi, K. Tono, M. Yabashi, T. Ishikawa, J. Kim, R. Ryoo, J. Kim, H. Ihee and S. I. Adachi, *Nature* **518**, 385 (2015).