

전자현미경의 전자원

<http://dx.doi.org/10.5757/vacmag.2.2.24>

조복래

Electron sources for electron microscopes

Boklae Cho

The brightness of an electron source, along with the aberrations of an objective lens, determines the image resolution and beam current on samples, which are two important parameters for evaluating the performance of an electron microscope. Here we introduce thermal electron source, Schottky emitter and cold field electron emitter. Thermal electron source is the cheapest and stable electron source but it has the lowest brightness. Schottky emitter is 10000 times brighter than tungsten thermal electron source, but requires ultrahigh vacuum operating condition. Cold field electron emitter is 10 times brighter than Schottky emitters, but it is rather unstable and its operation requires most stringent vacuum condition, hindering its widespread use.

1. 열전자원

나노 및 서브 나노 미터 영역의 공간 분해능을 가진 전자 현미경 (Electron Microscope)은 순수 과학 및 반도체 제조 검사 및 분석 등의 제조 현장에서 널리 이용되고 있다. 전자현미경의 전자원으로서 열전자원 (열음극), 열전계 전자원 (쇼트키 에미터: Schottky emitter), 냉전계 전자원 (냉 음극, cold field electron emitter: CFE)가 사용되고 있다. 전자원의 개발은 미국 및 일본을 중심으로 전개되어왔다. 히비 캐소드 (Hibi cathode)라고도 불리는 Pointed cathode는 1960년대에 일본의 히비에 의해 발명

되어[1] 마루세 · 사카키[2] 및 Everhart[3]에 의해 체계적인 개발 연구가 수행되어 현재의 ZrO/W 쇼트키 에미터의 실용화로 계승되어 왔다. 또한 1970년대 Broers 의해 처음 전자빔 노광 장치에 탑재 된 LaB₆ 열전자원은 단결정을 통한 최적화가 카와이[4] 등에 의해 수행되어 현재는 전자빔 미세 가공 기용 전자원으로서뿐만 아니라 매우 광범위한 전자빔 이화학 기기에서 사용되고 있다. 이 절에서는 먼저 열전자원 대해 소개하고 다음 열전계 전자원에 대해 설명한다. 고온의 금속에서 열적으로 여기된 전자 (열전자)는 표면 포텐셜 장벽 (일 함수)를 넘어 물질 외부로 방출된다. 이 현상은 1880 년대에 Edison에 의해 발견되어 뒤늦게, Richardson에 의해 이론적으로 설명되었기 때문에 에디슨 효과 (또는 리처드슨 효과)라고 한다. 이때 방출 전류 밀도 J_0 (A / cm²)는 절대 온도 T, 일 함수 ϕ , 볼츠만 상수 k라 하면 다음 식으로 묘사된다.

$$J_0 = AT^2 \exp\left(-\frac{\phi}{kT}\right) \quad (1)$$

이 식 (1)은 Richardson-Dushman 식으로 알려져있다. 여기서 A는 리처드슨 상수라고 하며, $A = (4\pi mek^2 / h^3) = 120.4 \text{ A/cm}^2 \text{ deg}^2$ 상수이며, m과 e는 전자의 정지 질량과 전하량, h는 플랑크 상수이다. 일 함수 ϕ 의 온도 의존성과 $\phi = \phi_0 + \mu T$ 임을 고려하면 방출 전류 밀도의 식 (1)은 다음의 식 (2)로 바뀌어진다. 여기서, μ 는 10^{-5} 에서 10^{-3} 정도의 상수이다.



<저자 약력>

조복래 박사는 2000년 포항공과대학교에서 박사학위를 받았으며 와세다 대학 조수, 일본과학기술진흥기구 창의연구원, 히타치 하이테크놀로지를 거쳐 2012년부터 한국표준과학연구원에 책임연구원으로 재직중이다.

$$J_0 = AT^2 \exp\left(-\frac{\phi_0}{kT}\right) \cdot \exp\left(-\frac{\mu}{k}\right) \quad (2)$$

따라서 J_0/T^2 의 Log값을 $1/T$ 의 함수로 플롯하면 (Richardson plot), 그 직선의 기울기에서 일함수($T=0$ K에서의 work function ϕ_0)가 결정되며, 절편에서 $Ae^{-\mu/k}$ 가 구해진다.

실험에서 구해지는 절편값은 ① 전자파가 포텐셜 장벽에서 반사되는 효과. ② 불균일한 일함수 분포를 가진 방출 표면의 경우 낮은 값의 영역이 강조되는 효과 등의 영향을 받아 A에 비해 상당히 작은 값이 될 수 있다. 더불어 표면의 전계 F에 의해 일 함수가 $\Delta\phi = (e3F / 4\pi\epsilon_0)^{1/2}$ 만큼 감소하는 쇼트키 효과에 따라 실제 방출되는 전류 J_s 는 전계 F가 커짐에 따라 증가하며, 증가량은 다음 식(3)에 의해 표현된다. ϵ_0 을 진공 유전율이라 하면

$$J_s = J_0 \exp\left(\left(e^3 \cdot \frac{F}{4\pi\epsilon_0}\right)^{1/2} / kT\right) \quad (3)$$

이 수식은 터널 효과에 의한 전계 방출을 무시할 수 있는 비교적 약한 전계 조건에서 성립한다. 강한 전계 조건 하에서는 방출 전류에 터널 전류가 섞이며 이를 확장 쇼트키 영역이라 부른다.

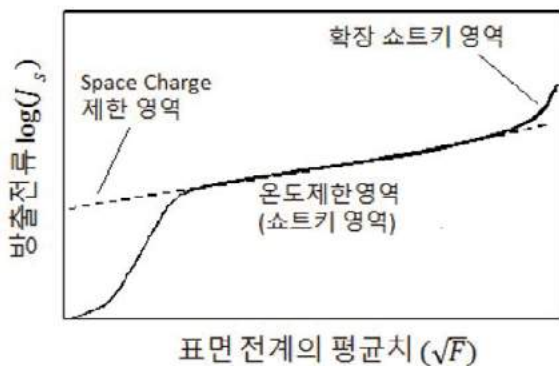
식 (3)에 따라 쇼트키 영역에서는 필라멘트 및 인출 전극 사이에 공간 전하, space charge, 가 없고, 방출 전류 J_s (F)은 온도에 따라 크게 제한되기 때문에 온도 제한 영역이라고도 한다. 반대로, 낮은 전계에서 전기장에 의해 제한되는 공간 전하 제한 영역이라는 영역에서 방출 전류 밀도 J는 Child-Langmuir 식 (4)에 따른다.

$$J = GF^{3/2} \quad (4)$$

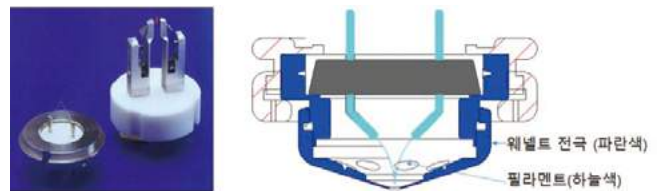
여기서 G는 전극의 기하학적 배치 등에 의해 결정 상수이다. 전자원의 온도 변화와 일 함수의 변화에 좌우되지 않는, 지극히 안정된 방출 전류를 실현하기 위해 이 공간 전하 제한 영역에서 전류를 방출시키는 방식이 vacuum tube에서 널리 사용되어 온 역사가 있다. 열전자원은 다른 전자원에 비해 휘도가 낮으며, 광원 크기가 크고 에너지 폭이 넓은 등 전자 현미경의 공간 분해능 향상 측면에서는 이점이 적지만, 비교적 나쁜 진공에서도 안정적으로 높은 전류를 방출 수 있어, 범용 SEM과 높은 안정성 빔 전류를 요구하는 전자선 리소그래피 장치와 저속 전자를 이용하는 표면 과학 기기 등에서 현재에도 그 수요가 적지 않다.

식 (1)에 따라 방출되는 열전자의 에너지분포의 폭은 이론적으로 $2.45kT$ 에서 주어지며 텅스텐 필라멘트의 작동 온도 ($2200K$)에서 $0.6eV$ 이고, LaB_6 ($1800K$ 에서 가동 온도)에서 $0.4eV$ 정도이다. 그러나 실제 열 음극 전자총에서 공간 전하 제한 영역에서 동작하기 때문에, 공간 전하에 의해 에너지 폭이 더 넓어져, $1.0eV$ 이상이 된다. 열음극이 동작하는 진공 상태에서의 잔류 기체는 전자 방출의 안정적인 동작과 전자원의 수명에 큰 영향을 미친다. 특히 산소와 물 분자가 고온의 음극 재료와 반응하면 증기압이 높은 산화물이 형성되므로 수명이 짧아진다. 이를 피하기 위해 10^{-5} Pa보다 낮은 압력의 진공이 안정한 전자 방출을 위해 필요하며, 이 진공 조건에서의 텅스텐 열음극의 수명은 200-300 시간이며, LaB_6 열음극의 수명은 3000-4000 시간 정도이다.

열전자원 일반적으로 웨넬트 전극이라 불리는 캡 모양의 전극을 열전자원 홀더에 장착하는 모듈 형태로 공급된다.



[Fig.1] Emission current as a function of average electric field on the emitter surface.



[Fig.2] LaB6 thermal electron source (Denka Inc.) and a tungsten filament electron source (Coxem Inc.).

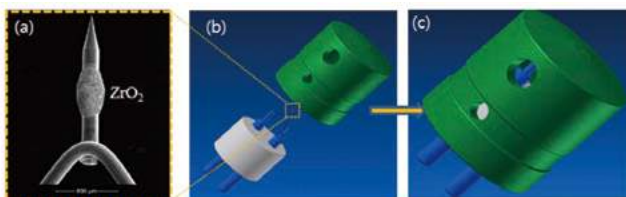
2. 열전계 전자원 (쇼트키 에미터; Schottky emitter)

냉음극형 전자원에 비해 열전계 전자원은 휘도와 전자의 에너지분포가 넓어 전자 현미경의 공간 분해능 향상에 불리하지만, 장시간 안정되게 전류를 방출하는 이유로 안정성이 요구되는 반도체 검사용 등의 많은 전자 현미경에 이용되고 있다. 열전계 전자원은 쇼트키 영역 또는 확장 쇼트키 영역에서 사용되기 때문에 쇼트키 에미터 (Schottky Emitter)로 불리고 있다. 공간 전하 제한 영역에서 동작하는 열음극과 달리 방출 표면의 일함수 변화, 온도 변화, 미세 형상 변화가 직접 방출 전류의 변화를 유도하기 때문에, 안정된 전류 방출을 위해서는 10^{-7} Pa 이하의 초고진공에서 동작시킬 필요가 있다.

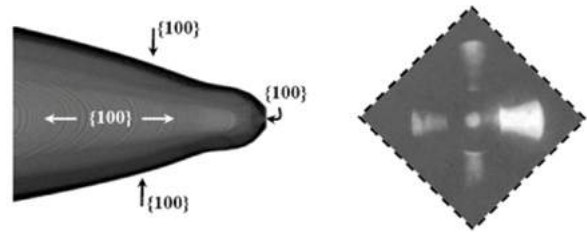
ZrO / W (100) 쇼트키 방출은 1970 - 80년대에 Swanson 그룹을 중심으로 개발이 진행되었으며 [5], 최근에도 Swanson 그룹[5-12] 과 Kruit 그룹[13, 14]이 전자원의 방출 특성을 상세히 보고하고 있다. 열전계 전자원은 텅스텐 필라멘트 루프의 끝 부분에 <100> 방위를 갖는 텅스텐 단결정 선을 스팟 용접하고 그 선 끝을 에칭을 통해 날카로운 탐침으로 만드는 방식으로 전자원을 제작한다. 필라멘트 끝에서 선경의 1 ~ 2 배 정도 떨어진 위치에 그림 3(a)와 같이 ZrH₂ 혹은 ZrO₂를 부착한다.

ZrH₂ 부착의 경우 10^{-5} Pa 정도의 산소 분압을 가진 진공에서 1800K 정도로 가열하면 ZrH₂이 분해하여 Zr과 산소와 반응하여 ZrO 복합체를 형성한다. 이 ZrO는 전자원 표면을 확산하며 전자원 끝에 도달하여 (100)면을 피복하고 그 일함수를 2.8eV까지 낮춘다. 마찬가지로, ZrO₂ 부착은 진공에서 가열 (1800K 정도)에 따라 ZrO 컴포지트가 발생하여 확산되고 끝을 피복한다.

ZrO 코팅된 (100)면에 강전계 (~1V / nm)를 가하고 고온 가열 (1800K 정도)하면 (100)면이 발달하고 확장한다. 그림 4는 탐침 끝에 형성된 넓은 (100)면이 보여준다. 낮은 일함수를 가진 측면의 (100)면에서도 전자빔이



[Fig. 3] ZrO/W(100) Schottky emitter.

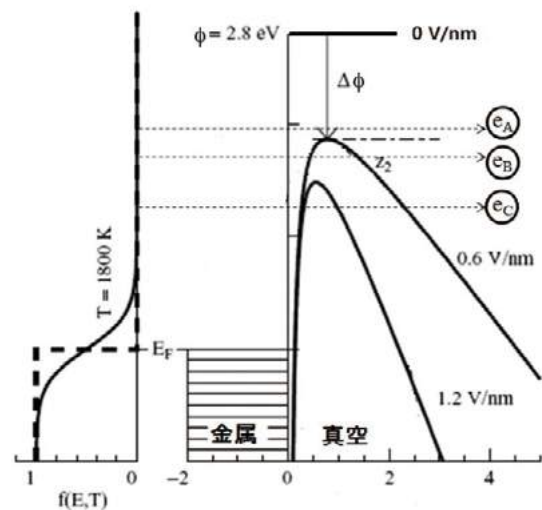


[Fig. 4] (a) SEM image of a Schottky emitter (b) emission pattern [6, 14].

매우 안정적으로 방출한다. 탐침 끝의 {100}면은 결정 기하학적으로 동일한 4 개의 (100) 측면에 둘러싸여 있기 때문에, 그림 4(b)와 같이 전자빔 방출 분포도 중심 밝은 점 주위로 네개의 밝은 선형 패턴이 배치되는 형태가 된다.

탐침 끝 온도가 1800K의 경우, 가열용 필라멘트는 탐침보다 100K 이상 온도가 높아, 필라멘트에서 전자 방출도 무시할 수 없게 된다. 이러한 여분의 전자 방출을 억제하기 위해 서프레서 (suppressor) 전극을 그림 3(b), (c)와 같이 가열용 루프에 씌우고 이에 마이너스 전위를 가하면 탐침 끝 이외에서 방출하는 전자빔의 방출이 억제된다. 한편, 단결정 끝은 서프레서 전극보다 약간 튀어나온 끝 (100)면에서만 전자가 방출되게 된다.

그림 5에서 전계값이 증가하여 1.2V / nm일때 같이 포텐셜 장벽의 높이가 낮아지고 폭도 좁아져 터널 효과로 방출하는 전자 eC 전류가 증가하여 식 (4)는 맞지 않게 된다. 터널 전류의 비율을 나타내는 척도 중 하나가 다음 식으로 표현 무차원 매개 변수 q이며,



[Fig. 5] Electric potential diagram of an electron emitter.

$$q = \frac{h(4\pi\epsilon_0 e)^{1/4} F^{3/4}}{2\pi^2 m^{1/2} k_b T} = 1.656 \times 10^{-4} \frac{F^{3/4}}{T} \quad (5)$$

여기서 F의 단위는 V / m이다. q = 0.5의 경우 터널 전류 방출 전류의 약 절반이다. q가 0.3 정도 이상이 되면 확장 쇼트키 모델이라는 다음 식

$$J_{ES} = J_s \frac{\pi q}{\sin(\pi q)} \quad (6)$$

에 의해 전류 밀도 JES가 주어진다. 그리고 다음 식

$$J_{ES}(E) = \frac{J_s \cdot q}{k_b T} \ln \left[1 + \exp \left(\frac{E - E_F - \phi + \Delta\phi}{q k_b T} \right) \right] \left[1 + \exp \left(\frac{E - E_F}{q k_b T} \right) \right]^{-1} \quad (7)$$

에서 전류 밀도의 에너지 분포 JES (E)이 주어진다. 이러한 JES와 JES(E)는 0 < q < 0.7 범위에서 유효하며 특히 q < 0.3에서는 정확하다.

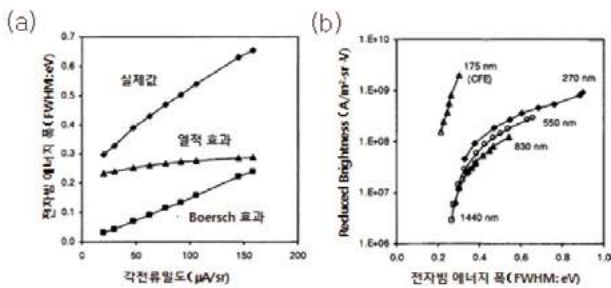
쇼트키 영역에서 사용하는 전자원에서 전류 밀도가 증가하면 공간 전하 효과 (space charge effect, 전자간 쿨롱 상호 작용)가 증가한다. 가속기 X 선관의 전자총처럼 수십 mA 이상의 대전류를 사용하는 경우 전자빔의 최소 스포트 지름, 구면 수차 등은 평균 전하 밀도로 정해진 공간 전하 효과에 의해 결정된다. 공간 전하효과는 방출 전류에 비례하여 커진다. 비교적 전류가 적은 쇼트키 에미터는 다음의 두 가지 효과가 주로 영향을 미친다 [15]. O₂, H₂O, N₂, CO 등의 잔류 기체가 방출 표면과 반응하면 방출 표면의 일함수를 증가시킨다. 또한 잔류 기체가 전자빔에 의해 이온화된 이온이나 전극에서 electron stimulated desorption에 의해 발생하는 이온이 전자원으로 가속되어 충돌하는 현상인 이온 충격은 전자원의 수명을 결정한다. 1800K의 고온 동작은 전자원 표면

에의 가스의 흡착을 낮출 뿐만 아니라 깨진 방출 표면을 annealing 하여 복구시키는 효과가 있지만, 물과 산소의 분압이 높은 경우 고온에서 물과 산소 분자가 표면과 반응을 하기 때문에 안정한 전자 방출을 방해한다. 따라서 물과 산소 분압을 10⁻⁹ Pa 이하로 할 필요가 있다. 전체 압력에서도 1x10⁻⁷ Pa 이하의 진공 환경이 바람직하다. 쇼트키 에미터 전자원의 수명은 돌발적인 방전에 의한 피해를 제외하고는 Zr의 공급 부족으로 결정된다. 1800K의 온도에서는 전형적인 평균 사용 시간은 6000-7000 시간이며, Zr을 충분히 부착시킨 경우 17000 시간을 초과 한 예도 있다.

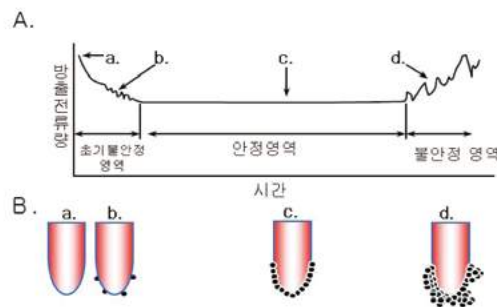
3. 냉전계 전자원 (냉음극, cold field emitter: CFE)

텅스텐 필라멘트 끝에 <310> 혹은 <111> 축 방향을 갖는 텅스텐 단결정 선을 스폿 용접하고 그 끝을 에칭하여 탐침화 시킨 후 음의 전위를 걸어 10⁹ V / m의 전계를 탐침 끝에 발생 시키면 열 전계 전자 원에 비해 10배 이상의 높은 휘도를 갖는 전자빔이 방출된다. 안정한 전자 방출에 10⁻⁸ Pa 대 이하의 초고진공이 필요하며, 10⁻⁹ Pa 이하의 극고진공 (extreme high vacuum) 에서는 더욱 안정적으로 동작한다.

상온에서 동작하는 냉전계 전자원 표면은 평소 대량의 가스 분자로 덮여 있고, 그 흡착 분자는 금속 표면상에서 항상 이동하며 그 부분의 일함수를 변동시킨다. 따라서 CFE 방출 전류의 변동폭은 보통 10 % 이상으로 전자 현미경의 이미지에 영향을 미치는 경우가 많다. 이를 피하기 위해 냉전계 전자원은 가동 직전에 2000 K 이상의 가열을 몇 초간 실시하여 표면에 가스 분자를 전부 탈리시



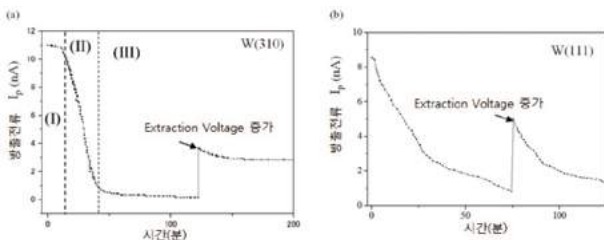
[Fig.6] (a) Electron beam energy width as a function of angular current density (b) beam brightness as a function of energy width.



[Fig.7] (a) Trace of a emission current from a CFE source (b) conceptual images of gas adsorption on the emitter surface.

키는, 소위 플래싱 (flashing)로 표면을 세척한다. 플래싱 직후부터 10^{-8} Pa 영역에서의 잔류 가스가 흡착하기 시작하며, 가스 흡착에 의한 일함수의 증가로 방출 전류는 수십 분간 계속 감소한다 (그림 7의 b 초기 불안정 영역). 냉전계 전자원 표면이 단분자층 정도의 가스 분자로 덮이면 방출 전류는 변동폭이 줄어들며, 이 안정 영역에서 전자 현미경의 이미지를 관찰한다 [그림 7(c)]. 그러나 가스 분자 흡착을 계속하기 때문에 10^{-8} Pa 대에서 10 시간 이상 사용하면 방출 전류는 증가하고 불안정하기 때문에 [그림 7(d)], 플래싱을 하여 상기 과정을 반복한다.

초기 불안정 영역에서 방출 전류가 감소하는 경향은 텅스텐 단결정 와이어의 축 방향에 따라 달라진다. <111> 방위의 단결정 선을 이용하여 냉전계 전자원을 만들 경우, 음극 끝 (111) 표면에서 방출 전류는 그림 8(b)와 같이 계속 감소한다. 그러나 애노드 등 전극의 철저한 탈 가스 처리를 수행하고 수소 이외의 가스가 음극 주변에 적으면 음극 끝 (310)면에서의 방출 전류는 그림 8(a)와 같이 방출 전류의 감쇠 속도가 느린 10 분 정도의 초기 안정 영역이 나타난다. 이 초기 안정 영역에서 방출 전류의 각전류 밀도는 안정 영역 [그림 7 c, 그림 8 III 영역]에 비해 3 배 이상 높기 때문에 밝고 해상도가 높은 전자 현미경 이미지를 얻을 수 있다. 냉전계 전자원의 전류의 감소 속도는 압력에 비례한다. 진공 기술의 발달 덕분에 최근 전자총의 압력을 10^{-10} Pa 영역의 극고진공 영역까지 낮출 수 있게 되어 휘도가 높은 초기 안정 영역 (그림 8의 I 영역)을 몇 시간 이상 연장시키고, 이 영역에서 전자 현미경 이미지를 관찰할 수 있게 되었다 [16-18]. 현재 압력 10^{-10} Pa 대의 극고진공 냉전계 전자원 전자총은 일본 히타치 및 JEOL의 전자 현미경 제품에 탑재되어 있다.



[Fig. 8] Trace of emission currents from (a) W(310) and (b) W(111) CFE emitter [16].

[Table.1] Properties of electron source for electron microscopes.

전자원	W 필라멘트	LaB6	쇼트키 전자원	CFE
휘도(A/cm ² /sr)	~10 ⁵	~10 ⁶	~10 ⁸	~10 ⁹
에너지폭(eV)	1~3	1~2	0.6	0.3
동작압력(Pa)	10 ⁻³	10 ⁻⁵	10 ⁻⁷	10 ⁻⁸
동작온도(K)	~2700	~1800	1700 ~ 1800	300
수명(시간)	40~100	200 ~ 1,000	>5,000	>10,000

References

[1] T.Hibi, J.Electron Microsc. 3, 15 (1955)
 [2] S.Maruse and Y.Sakaki, Optik, 15, 485 (1958).
 [3] T.Everhart, J.Appl.Phys., 38, 223 (1967).
 [4] 河合七雄 他 1978 ホウ化ラランタンに関する研究 (科学技術庁無機材質研究所報告書)
 [5] L. W. Swanson and G. A. Schwind, in Handbook of Charged Particle Optics, edited by J. Orloff (CRC, New York, 1997), Chap. 2, p. 77.
 [6] L. W. Swanson and G. A. Schwind, Handbook of Charged Particle Optics (CRC Press, Boca Raton, 2009), pp1-28.
 [7] Lynwood W. Swanson, Gregory A. Schwind, Sean M. Kellogg, and Kun Liu, J. Vac. Sci. Technol. B 30, 06F603 (2012).
 [8] A. S. Bahm, G. A. Schwind, and L. W. Swanson, J. Appl. Phys. 110, 054322 (2011).
 [9] K. Liu, G. A. Schwind, L. W. Swanson, and J. A. Campbell, J. Vac. Sci. Technol. B 28, C6C26 (2010).
 [10] A. S. Bahm, G. A. Schwind, and L. W. Swanson, J. Vac. Sci. Technol. B 26, 2080 (2008).
 [11] K. Liu, G. A. Schwind, and L. W. Swanson, J. Vac. Sci. Technol. B 27, 2547 (2009).
 [12] G. A. Schwind, G. Magera, and L. W. Swanson, J. Vac. Sci. Technol. B 24, 2897 (2006).
 [13] M. S. Bronsgeest and P. Kruit, Ultramicroscopy 110, 1243 (2010).
 [14] M. S. Bronsgeest, Physics of Schottky Electron Sources, Ph.D. thesis, Delft University, 2009.
 [15] G. H. Jansen, "Coulomb interactions in particle beams," in Advances in Electronics and Electron Physics, Supplement, edited by P. W. Hawkes (Academic, Boston, 1990), Suppl. 21. P.
 [16] Boklae Cho, Kokubo Shigeru, and Chuhei Oshima, Rev. Sci. Instrum. 84, 013305 (2013)
 [17] Yuji Kohno, Eiji Okunishi, Takeshi Tomita, Isamu Ishikawa, Toshikatsu Kaneyama, Yoshihiro Ohkura, Yukihito Kondo and Thomas Isabella, Microscopy and Analysis Nov, 59(2010).
 [18] K. Kasuya, S. Kokubo, S. Katagiri, and T. Ohshima, J. Vac. Sci. Technol. B 28, L55(2010).