

전자회절 Kikuchi Pattern의 전산모사와 그 응용

이원범 · 박찬로 · 박찬경 · 천창환*

Computer Simulation of Electron Diffraction Kikuchi Pattern and Its Applications

Won-Beom Lee, Chan-Rho Park, Chan-Gyung Park and Chang-Hwan Chun

(Received November 22, 1994)

ABSTRACT

A computer program has been developed to analyze easily the Kikuchi pattern which is useful in obtaining the crystallographic data of materials. This program can simulate the Kikuchi patterns for 14 Bravais lattice by using the matrix algebra. Convenient menu system was also added to enhance the applications of the program. That is, by varying the tilting angle, camera length (RADIUS) and S_{max} in the menu, various Kikuchi patterns can be obtained. The simulated patterns, then, can be compared with the experimentally-obtained Kikuchi pattern to examine validity of simulation.

Key words: Kikuchi pattern, Bravais lattice

서 론

전자현미경에 의한 재료의 분석에 있어 Kikuchi pattern은 많은 정보를 제공하며, 특히 재료의 결정학적 정보를 얻는데 필수적인 유용한 정보를 제공한다. 시편 내에서 전자는 탄성 또는 비탄성산란을 하는데, 전자의 탄성산란에 의해 생기는 spot pattern에서는 180° ambiguity가 존재하며, spot pattern으로 정대축을 결정할 때 최대 15° 정도의 오차가 발생한다. 그러나 전자의 비탄성산란에 의해 생기는 Kikuchi pattern에서는

180° ambiguity가 나타나지 않으며, Kikuchi pattern을 이용하면 정대축 및 그에 따른 결정학적 정보를 0.5° 오차 이내에서 정확히 구할 수 있다. 이러한 장점으로 Kikuchi pattern은 결정립간의 misorientation, 정대축의 계산, 특정 결정립에서의 경로분석(trace analysis) 등에 응용되고 있다.

그러나 Kikuchi pattern은 다양한 장점에도 불구하고 분석에 많은 시간이 소요되는 단점이 있다. 이 때문에 Kikuchi pattern을 보다 간편하게 분석하려는 시도가 있어왔고, 이에 따라 많은 컴퓨터 프로그램이 개발되었다. 1960년대말에 Levine(1967)은 cubic, HCP에 대한

포항공과대학교 재료금속공학과, *국방과학연구소 소재기술부분
Dept. of Materials Science and Engineering, Pohang University of Science and Technology
*Agency for Defence Development

Kikuchi map을 제시하였다. 그후 1970년대에서는 컴퓨터의 발달로 인해 보다 정확하고 빠른 수치계산이 가능해졌고, 이를 이용한 Kikuchi map을 작성하고자 하는 시도(Young *et al.*, 1972)가 있어왔다.

본 논문에서는 기존에 제시된 수치계산에 대한 원리를 이용하여, 특정한 결정구조(cubic, HCP)에 국한된 Kikuchi map이 아닌 일반적인 결정구조의 14 Bravais lattice에 적용되는 컴퓨터 프로그램을 직접 작성하는데 중점을 두었다. 그리고 on-line 분석과 사용자 편의를 도모하기 위해 사용 간편한 menu system을 도입하여 직접 변수를 변화시키며 Kikuchi map을 관찰할 수 있도록 하였다. 특히 프로그램의 언어는 구조적 언어인 C 언어를 사용함으로써 앞으로 계속적인 기능의 추가가 가능하고 프로그램의 이해도 쉽게 하였다.

이론적 배경

Kikuchi pattern은 비탄성 산란된 전자가 다시 Bragg 조건을 만족하는 조건에서 회절하여 Kikuchi cone을 형성하여 이루어진다. 이 프로그램은 이러한 원리에 근거하여 간단한 수학적 계산과 기하학적인 방법을 이용하였고, 그 순서와 입력 및 계산결과를 Fig. 1에 나타내었다.

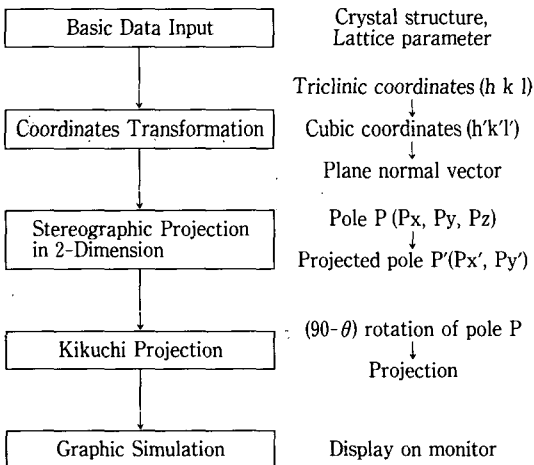


Fig. 1. Schematic diagram showing the simulation procedure of Kikuchi pattern.

1. Basic Data

프로그램을 14 Bravais lattice에 모두 적용하기 위해서는 결정구조, 격자상수, 정대축이 기본적으로 입력되어야 한다. 결정에 대한 기본적인 값이 입력되면 이 값을 기반으로 하여 일정한 가속전압(120kv)을 초기값으로 두고, 각각 pole에 대한 Bragg angle, 면거리 등을 계산하게 된다.

2. Coordinates Transformation

결정구조가 cubic인 경우에는 임의의 pole(hkl) 자체가 3차원 직각 좌표로 표시된다. 예를 들면 pole(1 2 3)은 각각 좌표에서 (1/14, 2/14, 3/14)로 나타나게 된다. 그러나 cubic을 제외한 다른 결정구조에서는 3차원적인 좌표가 cubic과 같이 나타나지 않는다. 즉 cubic에서는 한 격자점을 나타내기 위해서는 (h k l) 3개의 변수가 필요하나, triclinic인 경우에는 Fig. 2에서 보듯이 (h k l), α, β, γ 6개의 변수가 필요하다. 따라서 계산의 편의를 위해서는 임의의 결정구조의 pole을 cubic 좌표계로 변환하여 변수를 줄여야 한다. 즉 결정구조를 triclinic으로 가정할 때, triclinic의 모든 pole은 변환행렬을 이용하여 cubic 좌표계로 변환시켜야 한다. Fig. 2에서와 같이 triclinic의 pole P_t(h k l)이 있을 때, 이 pole의 좌표는 다음과 같은 변환행렬에 의해 cubic 좌표계로 변환 가능하다(Young *et al.*, 1972).

$$P_t = (h \ k \ l)$$

$$P_c = [L] P_t$$

$$[L] = \begin{pmatrix} l_{11}=a & l_{12}=b \cos \gamma & l_{13}=c \cos \beta \\ l_{21}=0 & l_{22}=b \sin \gamma & l_{23}=c (\cos \alpha - \cos \beta \cos \gamma) / \sin \gamma \\ l_{31}=0 & l_{32}=0 & l_{33}=(1+2 \cos \alpha \cos \beta \cos \gamma - \cos^2 \alpha - \cos^2 \beta - \cos^2 \gamma)^{1/2} / \sin \gamma \end{pmatrix}$$

여기서 P_t는 triclinic 좌표계에서의 pole을, P_c는 cubic 좌표계에서의 pole을 나타내고, [L]은 triclinic 좌표계를 cubic 좌표계로 변환시켜 주는 변환행렬을 나타낸다. 여기서 주의할 점은 위의 좌표변환은 triclinic에서의 방향에 대한 좌표변환이라는 것이고 pole은 결정면의 수선벡터(plane normal vector)라는 점이다. 그러므로 이 방향에 대한 좌표변환을 이용하여 실제 결정면 (h k l)에 대한 수선벡터를 구해야 한다. 역격자 벡터는 결정면에 대해 수선벡터로 정의되어 있으므로, 결

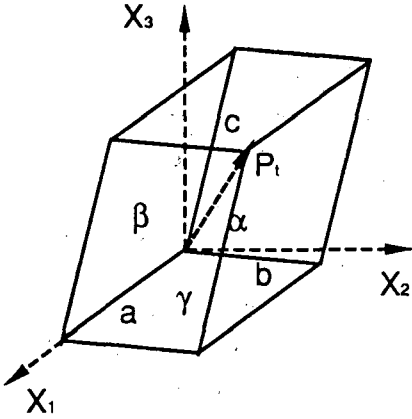


Fig. 2. Coordinate transformation from triclinic to cubic structure.

정면의 수선벡터는 역격자 벡터를 이용하여 구할 수 있다. 역격자 벡터의 정의를 이용하여 a, b, c에 대한 역격자 벡터 a*, b*, c*를 구하면 다음과 같은 값이 나온다.

$$a^* = \frac{(b \times c)}{a \cdot (b \times c)}$$

$$= \frac{1}{V} (l_{22}l_{33} - l_{23}l_{32} \quad l_{13}l_{32} - l_{12}l_{33} \quad l_{12}l_{23} - l_{13}l_{22})$$

$$b^* = \frac{1}{V} (l_{23}l_{32} - l_{22}l_{31} \quad l_{11}l_{33} - l_{13}l_{31} \quad l_{13}l_{21} - l_{11}l_{23})$$

$$c^* = \frac{1}{V} (l_{21}l_{32} - l_{22}l_{31} \quad l_{12}l_{31} - l_{11}l_{32} \quad l_{11}l_{22} - l_{12}l_{21})$$

이것을 정리하여 pole의 역격자 공간에서의 좌표변환을 나타내면 다음과 같다.

$$P_c^* = [Q]P_t$$

$$[Q] = \frac{1}{V} \begin{pmatrix} l_{22}l_{33} - l_{23}l_{32} & l_{13}l_{32} - l_{12}l_{33} & l_{12}l_{23} - l_{13}l_{22} \\ l_{23}l_{32} - l_{22}l_{31} & l_{11}l_{33} - l_{13}l_{31} & l_{13}l_{21} - l_{11}l_{23} \\ l_{21}l_{32} - l_{22}l_{31} & l_{12}l_{31} - l_{11}l_{32} & l_{11}l_{22} - l_{12}l_{21} \end{pmatrix}$$

여기서 $P_c^* (=ha^* + kb^* + lc^*)$ 는 역격자 공간(reciprocal space)에서의 cubic 좌표계의 pole 좌표이고, P는 실공간(real space)에서의 triclinic 좌표계의 pole (h k l)이다. 이 둘은 역격자 공간에서의 변환행렬 [Q]에 의해 서로 관련을 갖는다. 즉 pole의 좌표는 역격자 벡터의 정의와 변환행렬을 이용하여 3차원 직각좌표로 나타낼 수 있다.

위의 식에 의한 pole의 3차원 좌표는 X_1 방향이 [100], X_2 방향이 [010], X_3 방향이 [001]로 정의된 상

태에서의 좌표값이다. 그러나 X_1, X_2, X_3 이 이와는 다른 방향 벡터인 경우에, pole의 좌표는 회전된 값으로 변환되어야 한다. 이것을 임의의 X_1', X_2', X_3' 을 새로운 좌표축으로 둔다면 pole의 좌표값은 다음과 같이 된다.

$$P_n = [T] P_s$$

$$[T] = \begin{pmatrix} \frac{h_1}{\sqrt{h_1^2 + k_1^2 + l_1^2}} & \frac{k_1}{\sqrt{h_1^2 + k_1^2 + l_1^2}} & \frac{l_1}{\sqrt{h_1^2 + k_1^2 + l_1^2}} \\ \frac{h_2}{\sqrt{h_2^2 + k_2^2 + l_2^2}} & \frac{k_2}{\sqrt{h_2^2 + k_2^2 + l_2^2}} & \frac{l_2}{\sqrt{h_2^2 + k_2^2 + l_2^2}} \\ \frac{h_3}{\sqrt{h_3^2 + k_3^2 + l_3^2}} & \frac{k_3}{\sqrt{h_3^2 + k_3^2 + l_3^2}} & \frac{l_3}{\sqrt{h_3^2 + k_3^2 + l_3^2}} \end{pmatrix}$$

여기서 P_s 는 기본 좌표계의 pole이고, P_n 은 새로운 좌표계에서의 pole이며, [T]는 두 직각좌표계를 연결해주는 회전행렬이다. Pole을 회전시키는 이유는 다음과 같다. 계산된 좌표는 정대축이 [001]로 고정되어 있다. 그러나 Kikuchi map을 그리거나 Kikuchi pattern을 비교하는데 있어서 항상 정대축은 [001]로 고정이 될 수는 없고 임의의 값이 필요하게 된다. 즉 정대축을 [001]뿐만 아닌 임의의 axis로 정의하기 위함이다. 또한 다양한 투영도(stereographic projection)을 얻기 위해서도 이러한 계산은 필요하다.

3. Stereographic Projection in 2-Dimension

앞에서 구한 pole의 3차원 좌표를 그림으로 나타내기 위해서는 2차원으로 투영하는 것이 필요하다. 이러한 투영기법은 Fig. 3에서와 같이 기하학적인 방법에 의해 나타내어질 수 있다. Fig. 3에서처럼 pole의 위치와 투영구(projection sphere)를 나타낼 때, P(P_x, P_y, P_z)는 임의의 pole을 나타내고, γ 는 정대축(X_3 axis)과 pole간의 각도를 나타낸다. 투영구의 반지름을 r로 잡을 때 투영된 좌표 P'(P_x', P_y')는 다음과 같다.

$$P_x' = 2r \tan(\gamma/2) P_x / (P_x^2 + P_y^2)^{1/2}$$

$$P_y' = 2r \tan(\gamma/2) P_y / (P_x^2 + P_y^2)^{1/2}$$

$$\gamma = \cos^{-1} \{ P_z / (P_x^2 + P_y^2 + P_z^2)^{1/2} \}$$

Pole P는 결정면의 수선벡터이고, 투영된 좌표 P'은 결정면의 수선벡터에 대한 2차원적인 투영좌표이다. 그러므로 이 값은 투영도상에서의 pole 좌표가 된다. 결국 다양한 pole 값을 입력한 후 앞에서의 좌표값 계산을 이용함으로써 14 Bravais lattice에 대한 s 투영도를 나타

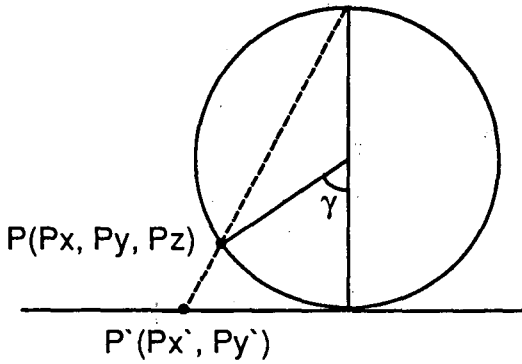


Fig. 3. Stereographic projection of the pole P.

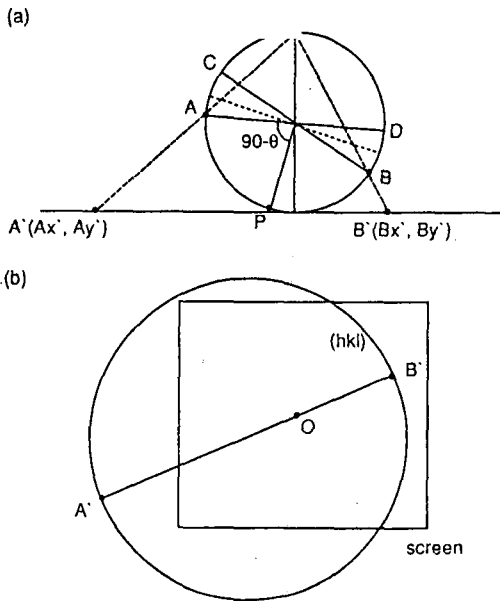


Fig. 4. Kikuchi projection of the plane P (hkl);
 (a) the relationship between projection sphere and plane,
 (b) Kikuchi line on the projection plane.

낼 수 있다.

이것을 기본으로 해서 다음에서는 Kikuchi projection을 살펴보기로 한다.

4. Kikuchi Projection

앞에서 구한 pole P의 좌표는 결정면 (h k l)에 대한

수선벡터이다. Kikuchi cone은 Fig. 4(a)에서 보듯이 임의의 pole P(hkl)에 대해 $(90^\circ - \theta)$ 에 위치한다. 또한 pole $(\bar{h}\bar{k}\bar{l})$ 은 pole P에서 $(90^\circ + \theta)$ 의 각도를 이룬다. 이 두 Kikuchi cone이 평면과 만나면서 Kikuchi line을 형성한다. 그러므로 Kikuchi cone과 투영구와 만나는 점 A, B를 평면상에 투영한 후에 이 두 점을 지름으로 하는 원을 그리면 기하학적으로 Kikuchi line을 그릴 수 있다. 점 A, B는 Fig. 4(a)에서 보듯이 pole P에서 회전행렬을 사용하여 $(90^\circ - \theta)$ 를 회전하면 구할 수 있다. 마찬가지로 점 C, D는 pole P에서 $(90^\circ + \theta)$ 를 회전하면 구할 수 있다. 이렇게 구한 A, B점을 앞의 투영 방법을 이용하여 투영된 좌표값을 구한다. 그렇게 하여 나타난 Kikuchi line이 Fig. 4(b)에 있다. 투영구는 직경이 2r이 되고 투영된 좌표 A', B'를 지름으로 하여 원을 그리면 결정면 (h k l)에 대한 Kikuchi line이 투영된다.

결과 및 고찰

1. Simulation 결과

임의의 결정면에 대한 pole의 좌표값이 위의 방법에 따라 계산되면 일반적으로 볼 수 있는 Kikuchi pattern이 얻어진다. 본 연구에서 제시한 프로그램을 실행하기 위해 기본적인 값들 1) 결정구조, 2) 격자 상수, 3) 정대축을 입력하였을 때 볼 수 있는 화면이 Fig. 5에 나타나 있다. Figure 5에 보여지듯이 Kikuchi pattern은 가속전압 120kV, circle radius 200, tilting angle 0° 의 초기값으로 주어진 상태에서 계산이 되고, 상황에 따라 부가적인 변수를 변화시키면 원하는 Kikuchi pattern을 얻을 수 있다.

실제 Kikuchi pattern에서는 stereographic triangle상에 정확한 정대축을 만족하기가 힘들다. 또한 TEM 관찰시에는 시편기울임(tilting)을 하면 정대축은 특정한 경로를 따라 이동하게 된다. 이러한 경로를 분석하기 위해서는 Kikuchi pattern을 시편기울임하는 기능을 추가하는 것이 도움이 된다. 이와같은 시편기울임은 Kikuchi projection에서 pole의 좌표를 회전행렬을 사용하여 좌표를 이동시킴으로써 구할 수 있다. Fig. 6(a)는 정대축 [001]일 때의 Kikuchi pattern을 나타낸 것이고, 이 Kikuchi pattern을 X축으로 15° , Y축으로 10° 시편기울임시킨 결과가 Fig. 6(b)에 나타나 있다. 이와같은 기능에 의해 다양한 정대축에서의 Kikuchi

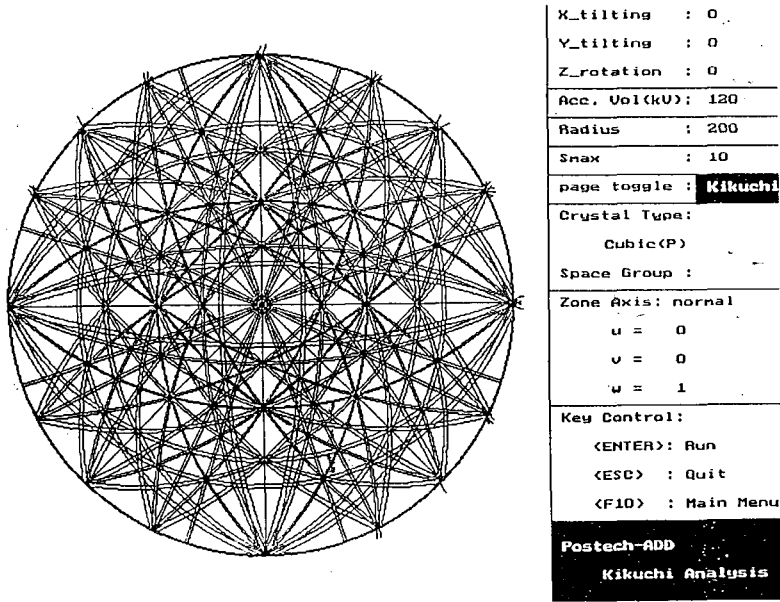


Fig. 5. Simulated Kikuchi pattern of [100] zone in simple cubic structure.

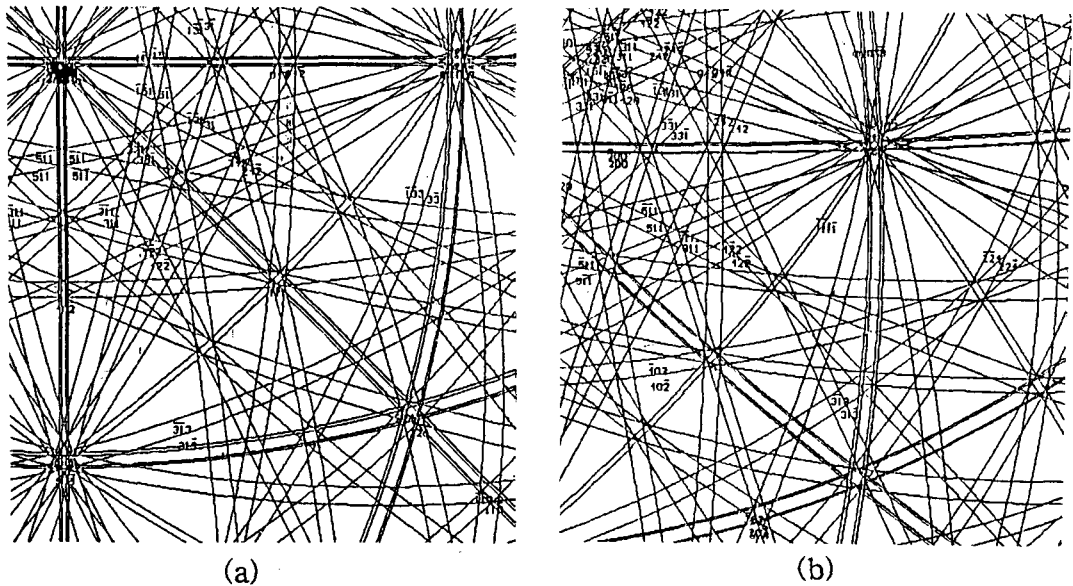


Fig. 6. Variation of the Kikuchi pattern in FCC crystal by tilting: (a) without tilting, (b) tilting by X-15° and Y-10°.

pattern을 얻을 수 있을 뿐만 아니라 정대축의 경로를 살펴볼 수 있다.

전자의 가속전압을 변화시키면 전자의 파장길이가 변

화하면서 kikuchi line간의 간격이 변화한다. 그러므로 더 높은 가속전압에 의한 Kikuchi pattern은 더 좁은 간격을 가지게 된다. 일반적으로 TEM에서는 가속전압이

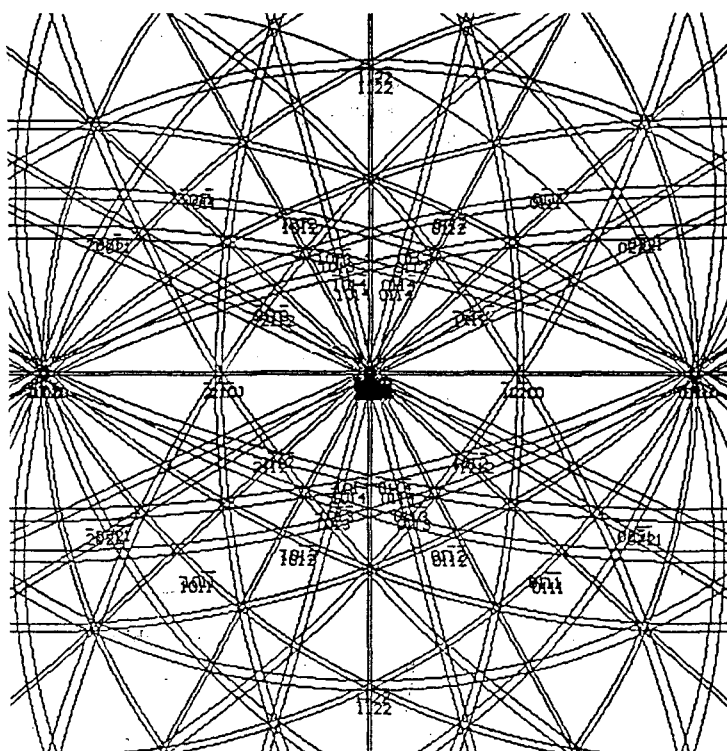


Fig. 8. Simulated Kikuchi pattern of (1120) zone axis in HCP structure.

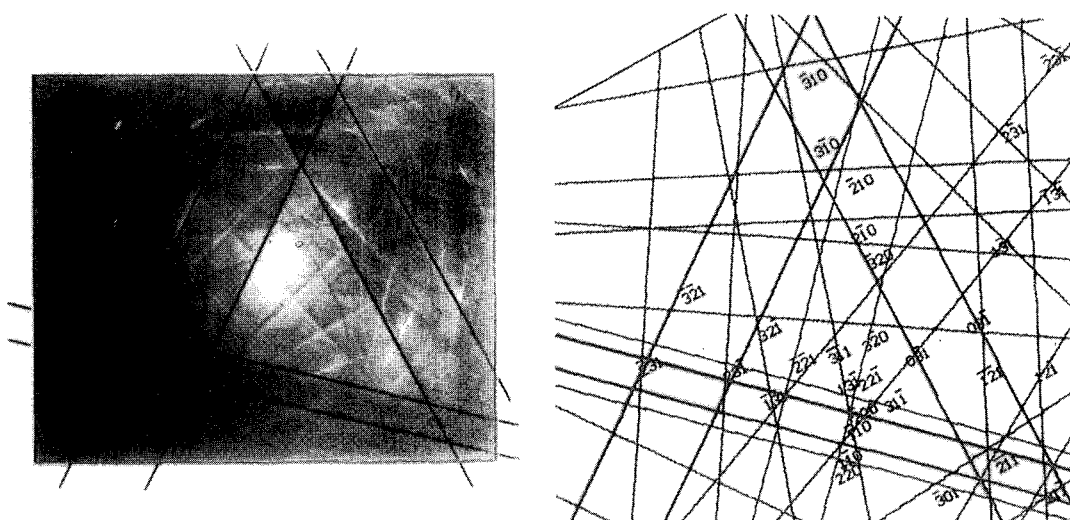


Fig. 9. Comparison of the electron Kikuchi pattern with the simulated pattern.

작업을 통한 효율성을 도모하고, 프로그램 내부의 이해가 쉬우며, 미비한 기능에 대한 앞으로의 추가적인 작업에 유리하다. 아직은 미비한 기능들이 많고 비효율적인 점도 보인다. 필요한 기능은 계속하여 독립적인 함수를 고안하여 menu에 부가하고, 좀더 효율적인 프로그램을 만드는 것이 앞으로의 주안점이다.

2. Kikuchi pattern의 응용

Kikuchi pattern은 역격자 공간을 매우 정확히 나타내기 때문에 전자회절에 의한 구조 분석에 있어 중요한 수단이 된다. 즉 시편의 결정구조를 분석하는데 있어서 spot pattern과는 달리 180° ambiguity가 존재하지 않으므로, Kikuchi pattern은 결정구조분석에 보다 나은 정보를 제공한다(Thomas *et al.*, 1979).

재료의 전자현미경 관찰시에 시편기울임을 하면 전자빔은 어떠한 경로를 따라 이동하게 되며, 이러한 전자빔의 이동은 회절패턴상의 변화를 일으킨다. 특히 Kikuchi pattern은 시편기울임에 따라 미세한 변화가 일어난다; 즉 시편기울임에 따른 전자빔의 경로를 Kikuchi map에서 확인함으로써 그 경로를 쉽게 확인할 수 있다. 또한 이러한 전자빔의 변화를 Cramer's rule을 이용하면 보다 정확한 정대축을 구할 수 있다.

Kikuchi pattern은 재료의 결합분석에 응용이 용이하다. 전위의 Burgers vector를 결정하는데는 $g \cdot b = 0$ 이라는 invisibility criterion이 사용된다. 이 원리에 따라 Kikuchi map상에서 시편기울임의 경로를 확인하면서 2개 비임 회절조건(two beam condition)을 만족하는 g vector를 적어도 2개 나타내면 쉽게 Burgers vector를 구할 수 있다(Levine *et al.*, 1966; Okamoto *et al.*, 1967).

결정립계는 두 결정립의 misorientation이라고 생각할 수 있다. 이러한 결정립간의 orientation relationship은 결정립계를 연구하는데 있어서 매우 기본적인 문제이다. 결정립을 비임 방향과 회절벡터를 이용하여 행렬로 나타내고, 이것을 두 결정립에 적용하면 두 결정립간의 회전축과 회전각도를 계산할 수 있다. 그럼으로써 결정립간의 misorientation을 결정할 수 있다(박찬로 등, 1992).

그 이외에 Kikuchi pattern은 상변태에 수반되는 미세구조의 변화를 확인하고, 전자의 과정을 보정하는데 응용할 수 있다(Thomas *et al.*, 1979).

결 론

재료의 결정학적 정보를 얻는데 유용한 Kikuchi pattern을 전산모사하는 컴퓨터 프로그램을 작성하였다. 그리고, 이 프로그램의 제작에 따른 결론과 그 특징은 다음과 같다.

1. 행렬과 역격자 벡터의 정의를 이용하여 계산된 Kikuchi projection은 14 Bravais lattice에 적용시킬 수 있었다.
2. 사용자 편의를 위해 직접적으로 변수를 변화시킬 수 있는 menu-system을 도입하였다.
3. 다양한 정대축을 대입하고, 또한 시편기울임을 사용함으로써 Kikuchi pattern의 변화를 살펴볼 수 있었고, 또한 정대축의 경로를 추적하는데 도움이 되었다.
4. Tilting angle, RADIUS, S_{max} 의 변수를 변화시킴으로써 다양한 Kikuchi pattern을 얻을 수 있고 그것을 실험결과와 비교할 수 있었다.
5. 프로그램 언어로는 C 언어를 사용하여 프로그램의 구조적인 이해와 앞으로의 기능추가에 편리를 도모하였다.

참 고 문 헌

- 박찬로, 박찬경, 장영원, 1992. Mo소성변형과 파괴에 미치는 입계전위거동의 영향. Proc. 제 6회 재료강도 Sympo. 261-273.
- Levine, E., Bell, W.L. and Thomas, G. 1966. Further applications of Kikuchi diffraction patterns; kikuchi maps. J. Appl. Phys. 37, 2141-2148.
- Okamoto, P.R., Levine, E. and Thomas, G. 1967. Kikuchi maps for hcp and bcc crystals. J. Appl. Phys. 38, 289-296.
- Thomas, G. and Goringe, M.J. 1979. Transmission electron microscopy of materials.
- Young, C.T. and Lytton, J.L. 1972. Computer generation and identification of Kikuchi projections. J. Appl. Phys. 43, 1408-1417.