

# HRTEM 영상 분석에 대한 IWFR 방법의 고찰 및 응용

김 황 수\*

경성대학교 이과대학 물리학과

## A Review of IWFR Method for HRTEM Image Analysis and Application

Hwang Su Kim\*

Department of Physics, Kyungsoong University, Busan 608-736, Korea

(Receive March 5, 2008; Accepted March 25, 2008)

### ABSTRACT

The iterative wave-function reconstruction (IWFR) method developed by Allen et al. (2004) was reviewed with concern for its applicability. The high resolution transmission electron microscopy (HRTEM) studies of the materials such as GaAs,  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$  and  $\text{Al}_2\text{CuMg}$  reported in the literature were utilized in this review. In this process the basis of validity, the limiting conditions and the information limit of this method were discussed. It was particularly noted that the phase contrast image of the exit plane wave evaluated from this method reveals not only  $C_s$ -corrected atomic resolution within information limit, but also strong tendency of contrast proportional to the magnitude of the atomic number of compositional atoms in a crystal.

**Keywords :** HRTEM, IWFR method, Exit-plane wave function reconstruction,  $\text{Al}_2\text{CuMg}$

### 서 론

HRTEM (High Resolution Transmission Electron Microscopy) 분야에서 최근 괄목 할만한 발전은 '구면수차( $C_s$ ) 조절 FEG-TEM (혹은  $C_s$ -Corrected FEG-TEM)'의 개발과(예: Lentzen, 2006) 소위 '상-문제 (Phase Problem)'를 해결하는 방법들의 실용화이다. 예로서 OEH (Off-Axis Electron Holography) 방법의 장치 개발(Reviw: Lehmann & Lichte, 2002)로 이를 이용해서 결정 밀 표면에서 전자 파동함수의 진폭 및 상 영상(Amplitude & Phase Contrast Images)들을 분리해

서 얻을 수 있다. 이와 관련된 또 다른 방법은 일련의 단계를 가진 비초점(defocus) 값에 대한 HRTEM 영상 데이터를 얻고 이로부터 통계적 *image processing* 의해 결정 밀 표면의 파동함수를 얻는 방법들이다. 이들 중 MAL(Maximum-likelihood) 혹은 EPWFR(Exit-Plane Wave Function Reconstruction) 방법(Coene et al., 1992, 1996; Chang & Kirkland, 2006)이 현재 상용화되어 이용되고 있다고 생각된다. 그러나 이 방법은 일련의 ~20개 단계의 비초점들에 대한 HRTEM 영상 데이터를 요하며 *image processing* 자체 또한 복잡한 수학적 구조를 갖고 있다.

최근에 Allen et al. (2004, 2006)은 이 MAL 방법에 비해

이 논문은 2008학년도 경성대학교 학술연구비지원에 의하여 연구되었음.

\* Correspondence should be addressed to Prof. Hwang-Su Kim, Department of Physics, Kyungsoong University, 110-1 Daeyon-dong, Namgu, Busan 608-736, Korea. Ph.: (051) 620-4621, Fax: (051) 628-6059, E-mail: jwa@ks.ac.kr

매우 간단한 IWFR (Iterative Wave-Function Reconstruction) 방법을 제안하였다. 이 방법은 다만 3개 내지 5개 정도(2개 정도도 가함) 단계를 가진 비초점 값에 대한 영상 데이터만을 요하며 컴퓨터 처리시간도 실시간으로 수행할 수 있다. 그러나 이 방법의 정당성에 대한 합리적 논거 및 적용범위의 조건들이 명료하게 논의되어 있지 않다고 사료된다. 그러므로 이 논문에서 이 방법의 세세한 고찰을 통해 이 방법의 타당성에 대한 이론적 근거를 밝히고 이에 따른 적용제한의 조건들도 탐색하고자 한다. 그리고 GaAs 및 YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7</sub>의 결정들을 택해 여러 값의 비초점 값들에 대한 이론적인 시뮬레이션 영상 데이터를 얻고 이를 이용 IWFR 방법을 다각도로 실험하여 그 유용성을 확인하고자 한다. 끝으로 고강도 Al-Cu-Mg 합금의 주요 석출입자인 S-상 입자(Al<sub>2</sub>CuMg)의 결정구조에 대한 보고된 HRTEM 실험 영상들(Majmel et al., 2004)에 대해 이 방법을 적용한 재 분석을 시도하여 보고, 새로운 결과를 도출할 수 있는지를 확인하고자 한다.

## 이론 및 방법

### 1. IWFR 방법

Allen et al. (2004, 2006)에 의해 발전시킨 IWFR 방법의 알고리즘을 요약하면 아래와 같다.

1) 각기 다른 비초점(defocus) 값들에 의한 N개(3 이상에서 5개 정도)의 HRTEM 영상들의  $I_n(\vec{X})$  디지털 데이터를 얻는다.  $\vec{X}$ 는 비초점  $\Delta f_n$  ( $n=1, N$ )을 가진 영상 평면에서 위치 벡터이다.

2)  $I_n(\vec{X})$ 의 파동함수  $\phi_n(\vec{X}) = \sqrt{I_n(\vec{X})} \exp[i\theta_n(\vec{X})]$ 로 놓을 때, 상(phase)의 초기 값들을 영으로 가정한다( $\theta_n(\vec{X})=0$ ).

3) 파동함수  $\phi_n(\vec{X})$ 를 푸리에 변환(FT: Fourier Transform)하고 이 변환 함수에 Contrast Transfer Function (CTF),  $T(g, \Delta f_n)$  및 Damping Envelope 함수(DEF),  $D(g, \Delta f_n)$ 로 나누어 g-회절 파의 진폭함수,

$$\phi_{n,0}(\vec{g}) = [FT\{\phi_n(\vec{X})\}]T(g, \Delta f_n)^{-1}D(g, \Delta f_n)^{-1} \quad (1)$$

를 얻는다.  $\phi_{n,0}(\vec{g})$ 은 구면 수차 계수 및 비초점 값들  $C_s = \Delta f_n = 0$ 인 조건에 대응되는 회절진폭을 의미한다. 그리고 각 항은 다음 식으로 주어진다.

$$T(g, \Delta f_n) = \exp[-i\chi(g, \Delta f_n)] \quad (1a)$$

$$\chi(g, \Delta f_n) = \pi\lambda\Delta f_n g^2 + 0.5\pi\lambda^3 C_s g^4 \quad (1b)$$

$$D(g, \Delta f_n) = \exp[-0.5(\pi\lambda g^2 \Delta_s)^2] \exp[-2\{\beta_s \pi g(\Delta f_n + \lambda^2 C_s g^2)\}^2] \quad (1c)$$

이들 식에서  $\lambda$ 는 입사 전자의 파장,  $\Delta_s$  와  $\beta_s$ 는 각각 초점거

리 요동과 빔 분산의 표준편차 값들이다. Allen et al. (2004, 2006)의 논문에서는 표준편차 대신 가우스 함수의 1/e 폭, 즉  $\Delta_e = \sqrt{2}\Delta_s$ ,  $\beta_e = \sqrt{2}\beta_s$ 로 이들 공식에 표현되어 있다. g 벡터는 입사 빔 방향의 수직인 회절 평면에서 역 격자 벡터를 나타낸다.

4) 다음은 (1)에서 얻은 N개의 진폭함수의 평균을 취한다.

$$\phi_{avg}(\vec{g}) = \frac{1}{N} \sum_{n=1}^N \phi_{n,0}(\vec{g}) \quad (2)$$

5) (2)식에 (1a)와 (1c)를 곱하고 역-푸리에 변환( $FT^{-1}$ )을 취해 파동함수  $\tilde{\phi}_n(\vec{X})$ 를 계산한다.

$$\begin{aligned} \tilde{\phi}_n(\vec{X}) &= [FT^{-1}\{\phi_{avg}(\vec{g})\}]T(g, \Delta f_n)D(g, \Delta f_n) \\ &= \sqrt{\tilde{I}_n(\vec{X})} \exp[i\tilde{\theta}_n(\vec{X})] \end{aligned} \quad (3)$$

6) (3)식에서 계산된 상(phase) 함수  $\tilde{\theta}_n(\vec{X})$ 를 2)단계의  $\theta_n(\vec{X})$ 로 치환하여 2)에서 5)단계를 파동함수 영상이 수렴할 때까지, 즉 전 단계와의 영상 차이가 거의 없을 때까지 반복과정을 수행한다.

7) 마지막 단계에서

$$\phi(\vec{X}) = FT^{-1}\{\phi_{avg}(\vec{g})\} \quad (4)$$

를 계산하여(이론적으로는) 현미경의 결함 즉 구면수차 등의 의한 영상 왜곡이 교정된 결정 및 표면에서의 파동함수(Exit Wave)를 얻는다.

이 방법 실험에서 실질적인 어려움은 입사 빔의 약간의 비정합성(incoherence), 시료의 흐름(drift)에 의한 비초점 값들의 부정확성 및 이에 따르는 HRTEM 영상들에 대해 영상 평면에서 위치좌표의 원점을 일치시키는 일등이 지적되고 있다(Allen et al., 2004, 2006).

### 2. IWFR 방법의 타당성에 대한 고찰

Allen et al. (2004, 2006)의 논문에서는 앞 절의 2)단계에서 파동함수의 초기 상(phase) 값을 영으로 가정한 타당한 이유와 함께 이 방법의 적용되는 조건 혹은 제한성의 명확한 논의가 생략되어 있다. 이를 고찰하기 위해서 파동함수,  $\phi_n(\vec{X})$  대신  $I_n(\vec{X}) = |\phi_n(\vec{X})|^2$ 의 푸리에 변환을 하여 보자. 그러면,

$$\begin{aligned} \tilde{\Phi}_n(\vec{H}) &= FT\{I_n(\vec{X})\} = \sum_g \tilde{\phi}_{g,n} \tilde{\phi}_{g-H,n}^* \\ \tilde{\Phi}_n(\vec{H}=0) &= \sum_g |\tilde{\phi}_{g,n}|^2 = |\phi_0|^2 + \sum_{g \neq 0} |\phi_{g,n} D(g, \Delta f_n)|^2 \\ \tilde{\Phi}_n(\vec{H} \neq 0) &= \tilde{\phi}_{H,n} \tilde{\phi}_{0,n}^* + \tilde{\phi}_{0,n} \tilde{\phi}_{-H,n}^* + \sum_{g \neq H \neq 0} \tilde{\phi}_{g,n} \tilde{\phi}_{g-H,n}^* \end{aligned} \quad (5)$$

를 얻는데 여기서  $\tilde{\phi}_{H,n} = \phi_{H,n} T(H, \Delta f_n) D(H, \Delta f_n)$ 이다. 그리고

$H$  및  $g$  모두 회절평면에서의 역 격자 벡터를 나타낸다. (5) 식을 CTF와 DEF로 나누면,

$$\Phi_n(\vec{H} \neq 0) = \phi_H \phi_0^* + \phi_0 \tilde{\phi}_{-H,n}^* [T(H, \Delta f_n)]^2 + [T(H, \Delta f_n) D(H, \Delta f_n)]^{-1} \sum_{g \neq H \neq 0} \tilde{\phi}_{g,n} \tilde{\phi}_{g-H,n}^* \quad (6)$$

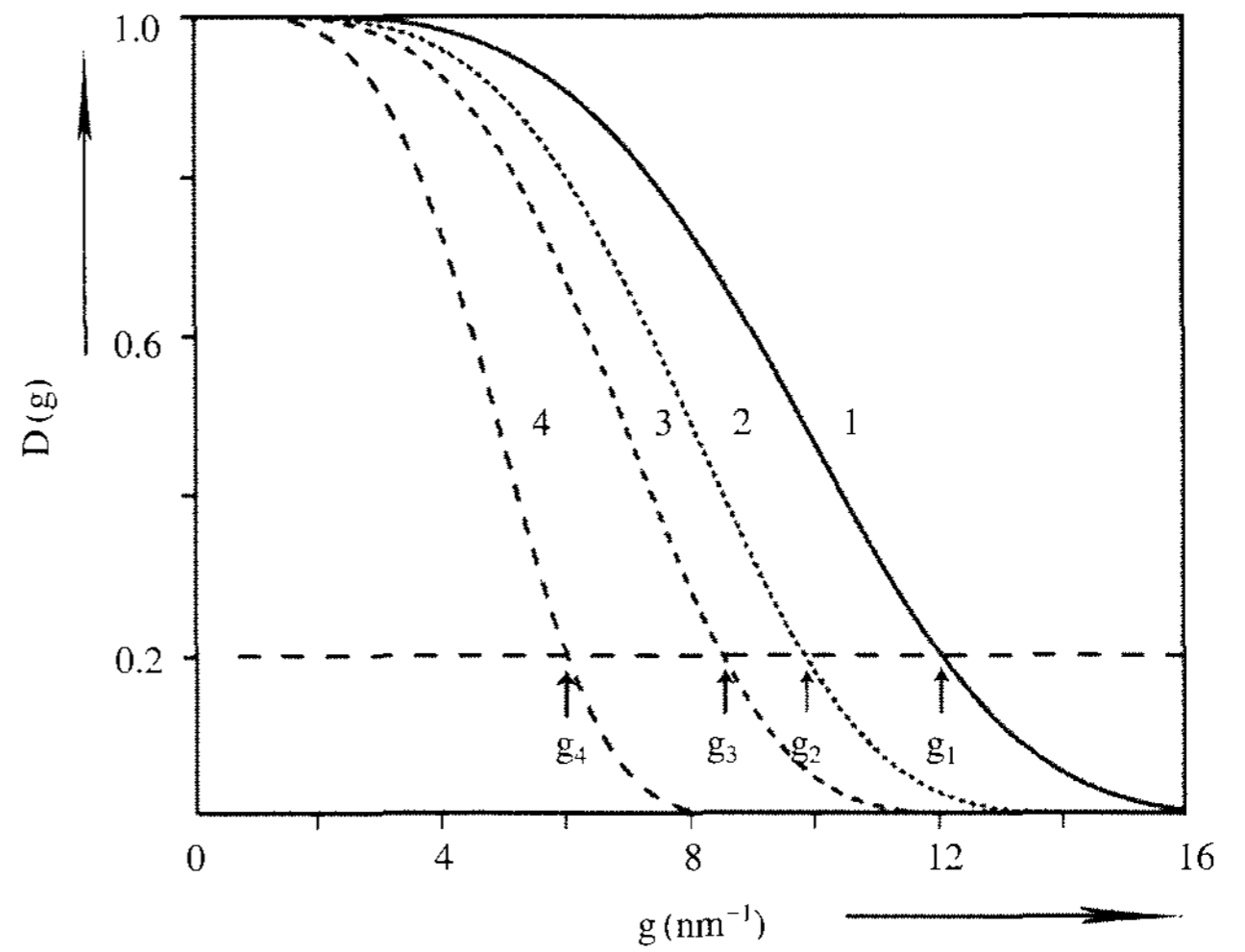
HRTEM 실험에서는 시료 두께가 10 nm 이하 정도를 취급하므로 이 조건하에서  $|\phi_g| \ll |\phi_0|$  이 성립한다. 또한 DEF가 일종의 O.A. (Objective Aperture) 역할을 함으로 최대  $g_{max} < 20 \text{ nm}^{-1}$  범위에서만 의미를 갖는다 (Table 1 참조). 이러한 조건들 하에 (6)식의 마지막 항들은 첫 번째 혹은 두 번째 항에 비해 무시 할 정도로 적다고 가정 할 수 있다. 그리고 (6)을  $N$ 에 대해 평균을 취하면 (6)의 두 번째 및 세 번째 항들에 CTF의 상(phase)값들이  $n$ 에 따른 각기 다른 값을 가지므로 일반적으로 서로 상쇄된다. 그러면 다음의 근사식을 갖게 된다.

$$\Phi_{avg}(\vec{H}) = \frac{1}{N} \sum_{n=1}^N \Phi_n(\vec{H}) \approx \phi_H \phi_0^* \quad (7)$$

이제 (7)의 역 푸리에 변환을 하면 (8)식이 얻어진다.

$$FT^{-1}\{\Phi_{avg}(\vec{H})\} = \phi_0^* \phi(\vec{X}) \quad (8)$$

이 결과는 IWFR 방법과 비교할 때 상수 항  $\phi_0^*$ 을 제외하고 (4)식과 같다. 이 상수 항은 단순히 영상 패턴에서 임의의 척도의 차이만 가지므로, 위의 과정을 통해서도(반복과정이 아님) IWFR 방법에 의한 것과 같은 결과를 이론적으로는 예측된다. 그러나 여러 경우에 대한 시뮬레이션을 통해 이 두 방법을 실험해 본 결과 IWFR 방법이 보다 안정적이고 낫은 결과가 주는 것으로 나타났다. 또 다른 시도로서 이 두 방법을 결합한 형태의 응용, 즉 IWFR의 알고리즘에서 첫 회에 한하여  $\sqrt{I_n(\vec{X})}$  대신 초기 상-함수를 입력할 필요가 없는  $I_n(\vec{X})$ 로 대체하여 보았지만 수 회 반복 후의 최종 결과에서 대체한 경우와 아니한 경우 사이에 거의 차이가 없었다. 그 이유는 다음의 수학적 성질을 살펴봄으로써 이해 될 수 있다. 우선  $I_n(\vec{X})$ 와  $\sqrt{I_n(\vec{X})}$ 의 영상 강도는 양(+)의 실수 함수들이기 때문에 두 함수의 패턴의 차이에서 강도의 최고와 최저치의 평면위치는 같고 다만 강도의 퍼짐이 달라진다. 따라서 이 두 함수의 각각에 대한 푸리에 변환의 패턴도 일반적으로 서로 상당한 유사성을 가질 것이 예상된다. 바로 이러한 수학적 성질이 IWFR 알고리즘의 2)단계에서 파동함수의 초기 상(phase) 값을 영으로 가정할 수 있는 타당한 근거로 보고 있다. 이 IWFR 방법에서 고려하여야 할 또 다른 중요한 문제는 이 알고리즘에 포함되는 최적의  $g$ 의 범위 즉  $g_{max}$ 를 결정하는 일이다. 왜냐하면 DEF의 값이  $g$ -값이 증가 함에 따라 빠르게 지수적으로 영으로 감소하고 이의 역은 무한 값으로 증가하기 때문이다. 여러 시뮬레이



**Fig. 1.** The graph of the damping envelope function,  $D(g)$  with  $C_s = \Delta f = 0$  for a 300 kv TEM. The curves 1, 2, 3 and 4 are for the  $\Delta_s = 2$  nm, 3 nm, 4 nm and 8 nm, respectively. The  $D(g) = 0.2$  is a set value as a cut off level giving the limit of  $g_{max}$  in IWFR algorithm, and the values of corresponding points:  $1/g_1$ ,  $1/g_2$ ,  $1/g_3$  and  $1/g_4$  are likely to be information limits in HRTEM images.

**Table 1.** The information limits in HRTEM images with the cut-off level of  $D(g) = 0.2$  in Fig. 1 [ $g_{max}$ :  $\text{nm}^{-1}$  ( $1/g_{max}$ : nm)]

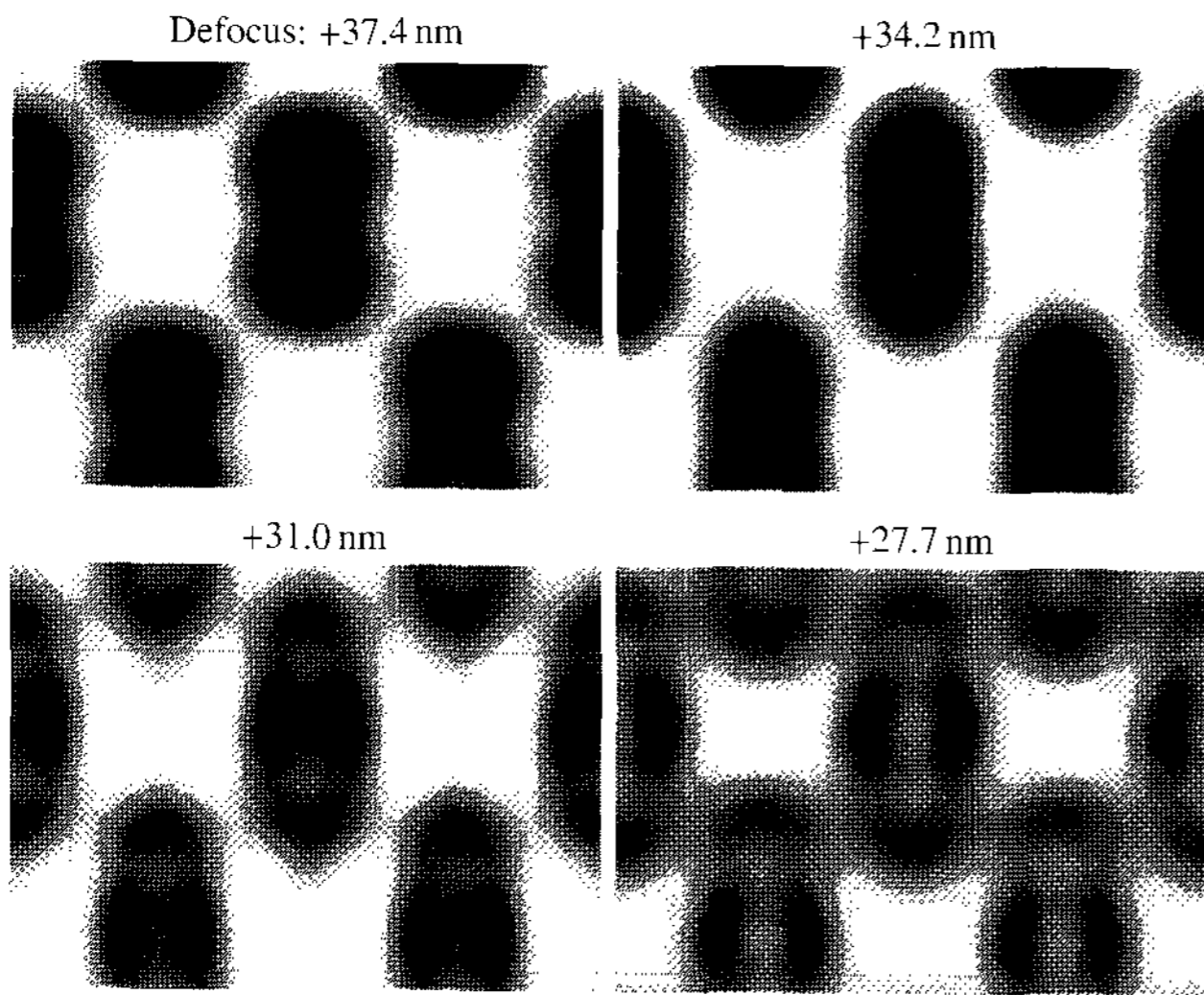
| E (kv) | $\Delta_s$  |             |             |            |
|--------|-------------|-------------|-------------|------------|
|        | 2 nm        | 3 nm        | 4 nm        | 8 nm       |
| 120    | 9.2 (0.11)  | 7.5 (0.13)  | 6.5 (0.15)  | 4.6 (0.22) |
| 200    | 10.7 (0.09) | 8.7 (0.11)  | 7.6 (0.13)  | 5.3 (0.19) |
| 300    | 12.1 (0.08) | 9.8 (0.10)  | 8.5 (0.12)  | 6.0 (0.17) |
| 400    | 13.2 (0.08) | 10.8 (0.09) | 9.3 (0.11)  | 6.6 (0.15) |
| 600    | 15.1 (0.07) | 12.3 (0.08) | 10.7 (0.09) | 7.5 (0.13) |
| 800    | 16.7 (0.06) | 13.6 (0.07) | 11.8 (0.08) | 8.3 (0.12) |
| 1250   | 19.7 (0.05) | 16.1 (0.06) | 13.9 (0.07) | 9.9 (0.10) |

션을 실험하여 본 결과  $D(g_{max}, \Delta f_n)$ 이 대체적으로 0.2 정도를 주는  $g_{max}$  이내 범위에서 안정적으로 알고리즘이 작동하는 것으로 나타났다. 그리고 이에 해당되는  $1/g_{max}$  값이 HRTEM 영상 구조의 유효한 정보한계 (information limit)를 결정한다고 볼 수 있다. 이 관계를 정량적으로 보여주는 것이 Fig. 1과 Table 1에 나타나 있다. Fig. 1은 300 kv TEM에 대해 문헌에서 나타난 여러  $\Delta_s$  값에 따른 DEF 그래프이고, Table 1에는 여러 가속전압의 TEM에 대해  $\Delta_s$ 에 따른 정보한계 수치 값들이 나열되어 있다.

## 결 과

### 1. GaAs에 대한 이론 실험

IWFR 방법의 이론적 실험을 하기 위한 결정시료로 GaAs



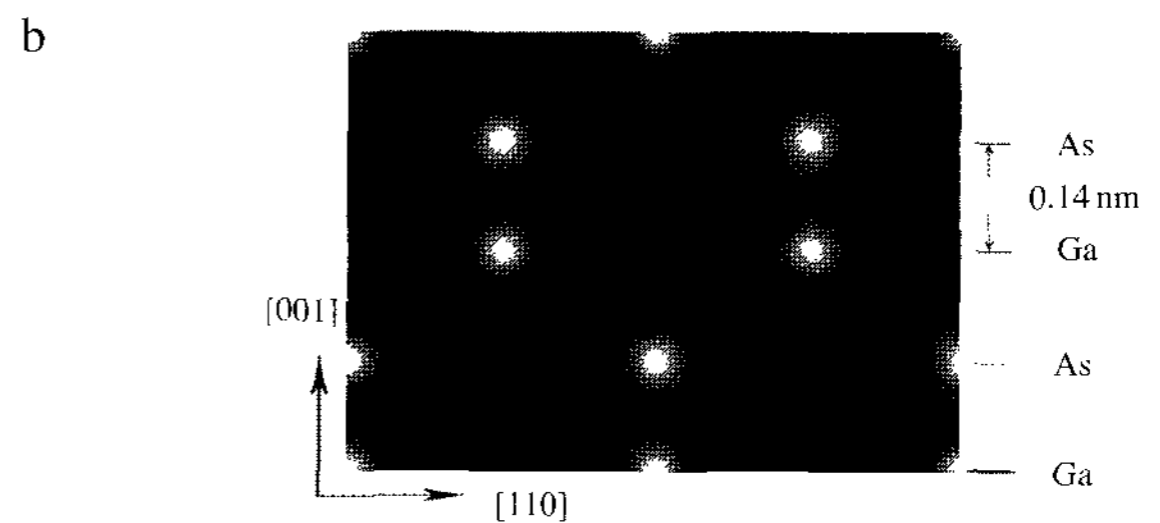
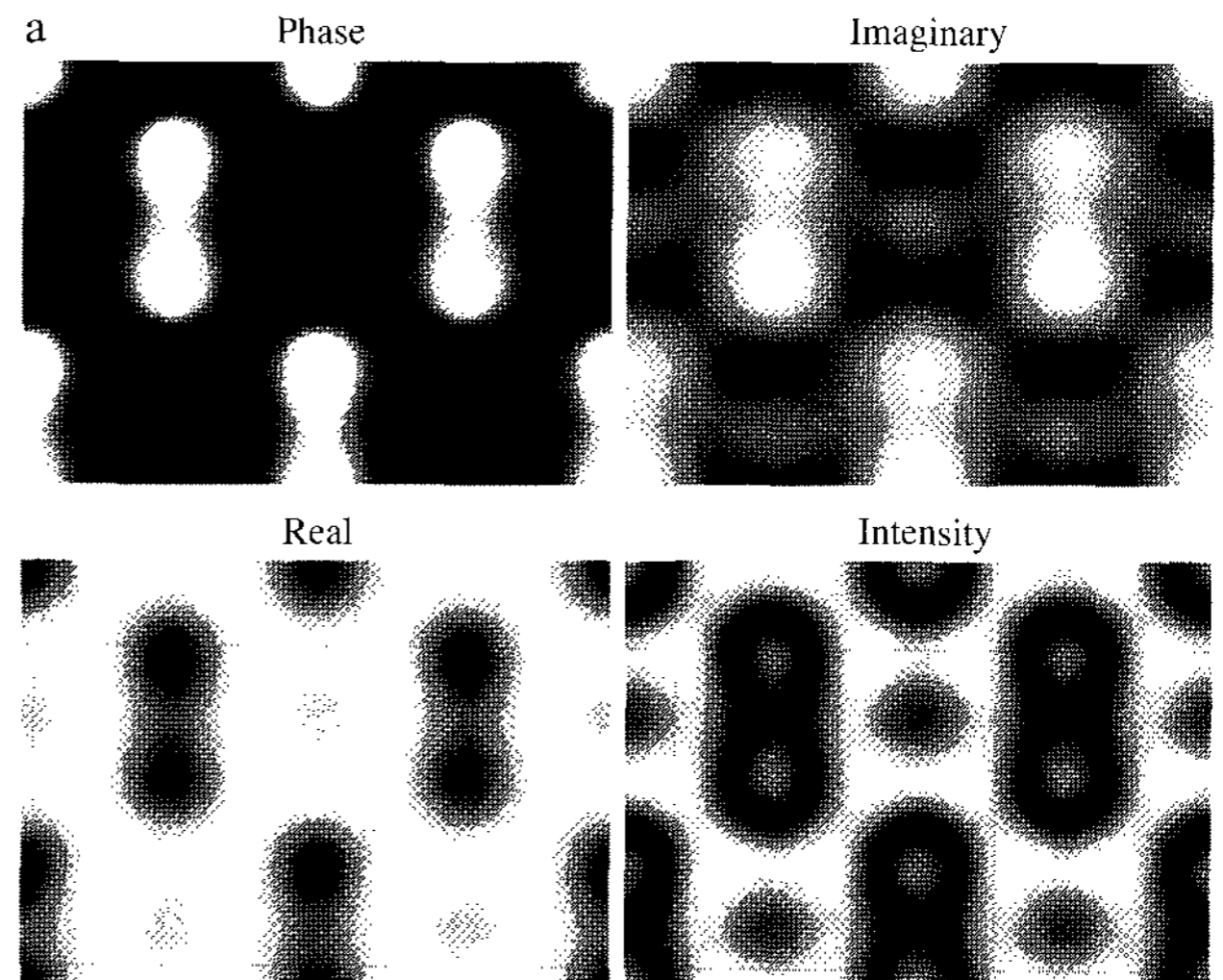
**Fig. 2.** Assembly of simulated images of GaAs viewed along the  $[-110]$  direction under the defocus values indicated on the top of figures for a unit cell. The thickness is 6 nm and  $C_s = -40 \mu\text{m}$ . For other detail parameters, see text.

( $a=0.564 \text{ nm DC}$ , Space Group:  $F\bar{4}3m$ )을 택했다. Tillmann et al. (2004)의 논문에서 ‘ $C_s$ -corrected Philips CM200 FEG ST’ TEM 성능실험으로 GaAs (110)의 시료에 대한 세세한 연구 결과를 발표하였다. 이 연구에는 일련의 20개 단계의 비초점 값에 대한 HRTEM 실험 영상 데이터로부터 EPWER 방법을 이용해서 얻어진 결정 밑 표면에서 전자 파동함수의 진폭 및 상의 명암대비 영상들도 포함되어 있다. 이 자료들을 가지고 IWFR 방법의 이론적 실험을 하기 위해 Tillmann et al. (2004)의 논문에 나타난 20개의 HRTEM 실험 영상들과 정확히 대응되는 영상들을 우선 시뮬레이션하여 실험영상들과 거의 같은  $I_n(\vec{X})$  ( $n=1, 20$ )의 이론적 데이터를 얻었다. 이 시뮬레이션에 입력된 데이터는 다음과 같다; 가속전압 200 kv,  $[-110]$ 축 방향의 시료두께  $t=6 \text{ nm}$ ,  $C_s=-40 \mu\text{m}$ ,  $\Delta_s=\Delta_c(6.4)/\sqrt{2}=4.5 \text{ nm}$ .  $\beta_s=\beta_c(0.2)/\sqrt{2}=0.14 \text{ mrad}$ . 그리고 비초점 값들은  $+37.4 \text{ nm}$ 부터  $-23.8 \text{ nm}$ 까지 단계적 값  $d(\Delta f)=-3.22 \pm 0.03 \text{ nm}$ 의 일정 차이를 갖는 총 20개이다. 이 값 중에는 최적의 비 초점 값  $\Delta f_{opt}=+11.6 \text{ nm}$ 도 포함되어 있다. 이 최적 값과  $C_s$ 는 아래 관계로부터 얻어졌다.

$$C_s = -\frac{64}{27} \frac{1}{\lambda^3 g_{\max}^4} \quad (9)$$

$$\Delta f_{opt} = \frac{16}{9} \frac{1}{\lambda g_{\max}^2} \quad (10)$$

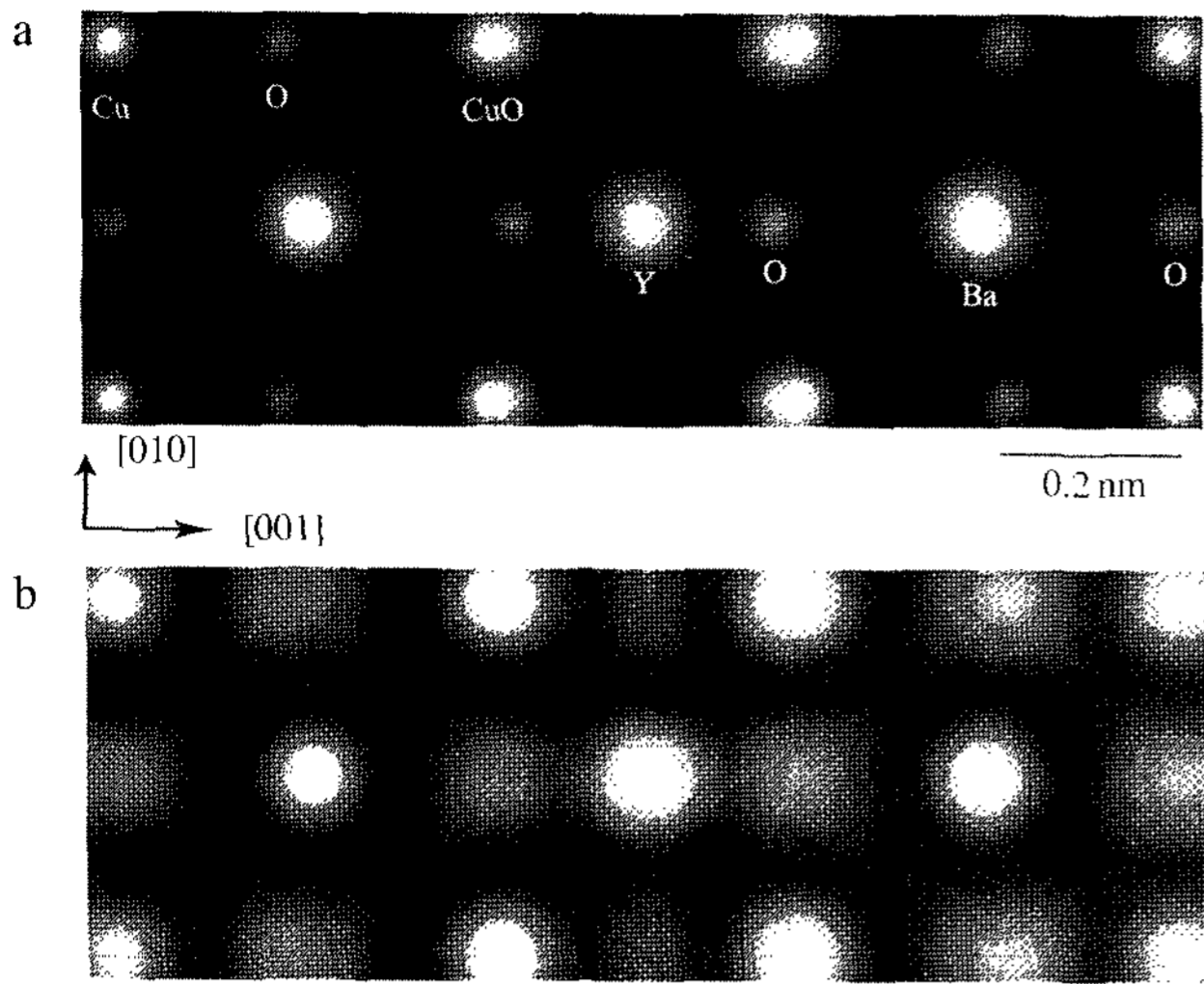
이 식에  $g_{\max}=7.8 \text{ nm}^{-1}$  (Information limit 0.13 nm: Table 1 참조),  $\lambda=2.51 \text{ pm}$  (200 kv)이 주어졌다. 이 20개의 데이터로부터  $N=20$  혹은 10, 5, 3, 2의 숫자대로 영상 데이터들을 임의의 선택하여 IWFR 알고리즘 (1)에서 (4)의 반복과정에 대



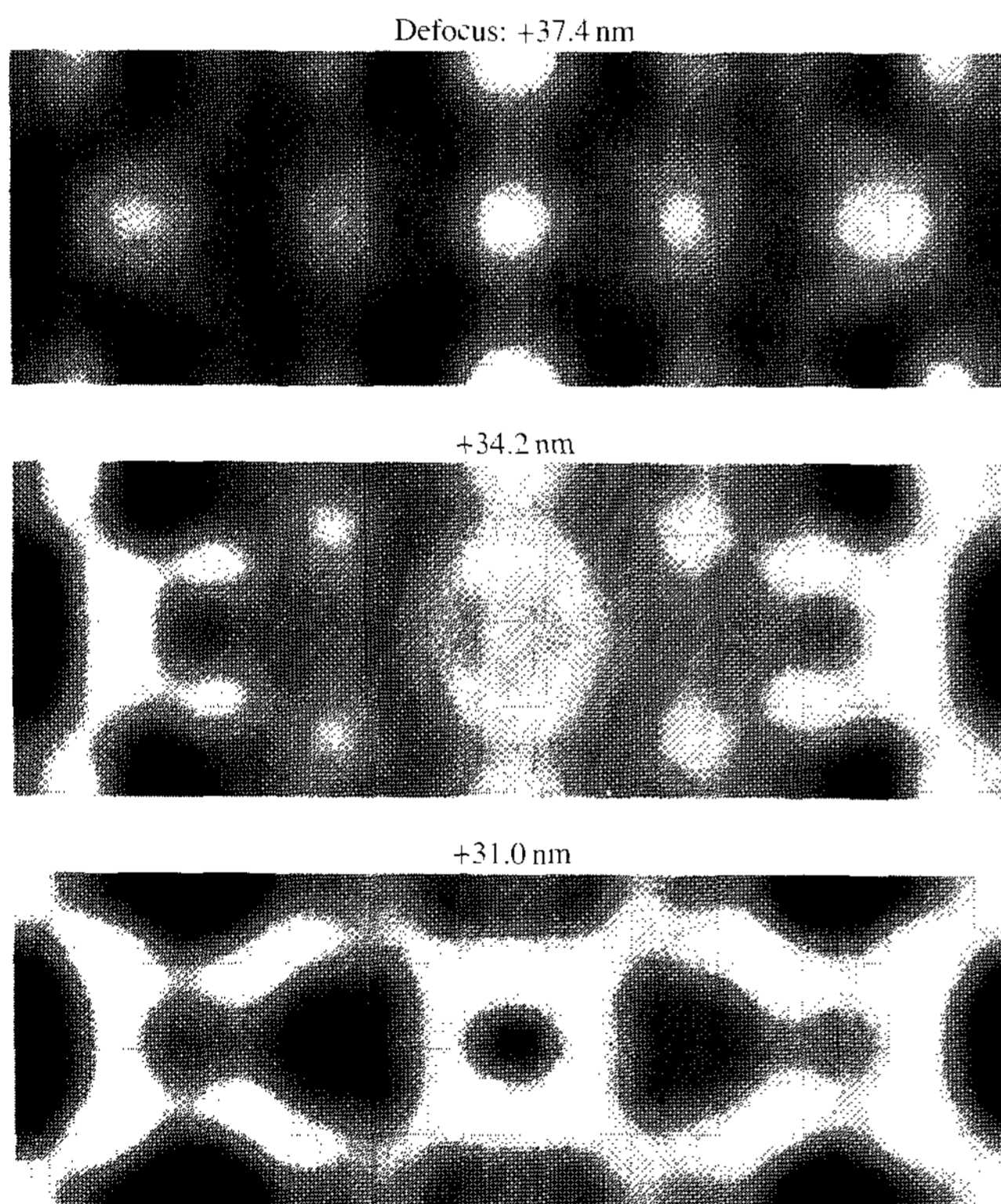
**Fig. 3.** a: the phase, the imaginary part, the real part and the intensity contrasts of the exit plane wave function,  $\varphi(\vec{X})$ , evaluated from the four image data in Fig. 2. b: the projected potential map of GaAs along  $[-110]$  direction with a unit cell.

입하여 결정 밑 표면에 파동함수에 해당되는  $\varphi(\vec{X})$ 를 얻었다. 그리고 이 함수의 절대자승인 강도  $I(\vec{X})$  (통상의 HRTEM 영상에 해당), 실수부, 허수부 그리고  $\ln[\varphi(\vec{X})]$ 의 허수부  $\theta(\vec{X})$ 의 상-영상 (Phase contrast image with  $-\pi$  to  $+\pi$ )의 패턴들을 면밀히 검토하였다. 물론 이 4개의 부분 영상들 중 오직 둘만 서로 독립적이지만 각기 특징적인 패턴을 보이므로 이들 모두를 비교하여 보는 것이 바람직하다고 보았다. 이 결과  $N=3$ 까지는  $\varphi(\vec{X})$ 의 영상들간의 차이는 거의 없고 다만  $N=2$ 개를 선택할 경우 약간의 질적 차이가 있었다. 물론 이것은 EPWER 방법이 20여 개의 영상 데이터가 필요한 반면 IWFR 방법은 3~5개 정도의 영상 데이터만을 요한다는 사실을 확인하는 것이다. Fig. 2는 20개 중 4개 ( $\Delta f=37.4 \text{ nm}$ ,  $34.2 \text{ nm}$ ,  $31.0 \text{ nm}$ ,  $27.7 \text{ nm}$ )의 시뮬레이션 영상들이고, Fig. 3은 이 4개의 영상 데이터로부터 얻은 결정 밑 표면의 해당되는 파동함수  $\varphi(\vec{X})$ 의 상(phase), 허수부, 실수부 및 강도  $I(\vec{X})$ 의 명암대비 영상들이다.

Fig. 3의 상-영상은 Tillmann et al. (2004)의 논문에 Fig. 2(b)의 상-영상과 거의 같다. 이러한 비교 결과들은 IWFR 방법의 효율성이 확실히 높다는 점을 입증한다고 볼 수 있



**Fig. 4.** a: the projected potential map of  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$  along  $[100]$  direction with a unit cell. It is noted that the dimension of figures is a little enlarged from the unit cell to contain enough the atomic positions. b: the simulated images for the experimental HRTEM image in [Jia et al. (2004), Fig. 9].



**Fig. 5.** Assembly of simulated images of  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$  viewed along the  $[100]$  direction under the defocus values indicated on the top of figures for a unit cell. The thickness is 3 nm and  $C_s = -40 \mu\text{m}$ . For other detail parameters, see text.

다. 그리고 분해된 Ga-As의 0.14 nm의 원자열간 거리는  $1/g_{\text{max}} = 0.13 \text{ nm}$  (information limit)보다 크다는 점을 유의할 필요가 있다. 여기서 반드시 언급하여야 할 흥미로운 점은 Fig. 3의 상-영상에서 Ga(원자번호: 31)와 As(33)의 원자위치에서 원소에 따른 영상 강도의 차이를 보여주는 사실이다. Tillmann et al. (2004)은 이 사실을 구면수차 계수의 비대칭성의 요인들(axial coma /threefold astigmatism)의 영향으로 설명하였으나 Ga 혹은 As의 동일 원자로 구성된 같은 결정구조에 대한 시뮬레이션 결과 강도의 차이가 없는 완전 대칭성을 보여주었다. 이 사실은 Fig. 3의 '상-영상'은 결정원자의 원자번호 값의 차이를 다소 증폭시킨 명암대비 강도를 보여주고 있다는 것을 의미한다. 그리고 이 현상은 아래  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$  및  $\text{Al}_2\text{CuMg}$ 의 경우에서도 볼 수 있다.

## 2. $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ 의 경우

Jia et al. (2004) 논문의 Fig. 9은 고온 초전도체인  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$  [( $a=0.3820 \text{ nm}$ ,  $b=0.3885 \text{ nm}$ ,  $c=1.168 \text{ nm}$ : Orthorhombic, Pmmm (No. 47) (Williams et al., 1988)]의  $[100]$  및  $[010]$  결정 축에 따라 배열된 원자열들의 간격이 충분히 분해된 HRTEM 영상들을 나타내고 있다. 이 실험 영상과 부합되는  $[100]$  방향의 단위 셀에 대한 시뮬레이션 영상이 Fig. 4b에 보이고 있다. 시뮬레이션에 입력된 파라미터들은: 가속전압 200 kv,  $C_s = -40 \mu\text{m}$ ,  $\Delta f = +12 \text{ nm}$ , 시료두께  $t = 3 \text{ nm}$ ,  $\Delta_s = 3 \text{ nm}$ ,  $\beta_s = 0.14 \text{ mrad}$ 이다. 여기서 우리의 관심은 만약 IWFR 방법 적용 실험이 수행되었다면 이로부터 유용한 새로운 정보를 더 얻을 수 있는지를 이론적으로 확인해 보는 일이다. 이를 위해 최소 3개의 각기 다른 비초점 값에 대한 HRTEM 영상 데이터를 얻을 필요가 있다. Fig. 5는 임의로 선택한 비초점 값: 37.4 nm, 34.2 nm, 31.0 nm에 대한 단위 셀의 HRTEM 시뮬레이션 영상들이다. 여기에 입력된 나머지 파라미터 값들은 Fig. 4b와 같다. 이들 영상들은 원자분해 영상 Fig. 4b와는 많은 차이가 있다. 이들 3개의 영상 데이터로부터 얻은 결정 밀 표면의 해당되는 파동함수  $\phi(\vec{X})$ 의 상-영상, 허수부, 실수부 및 강도  $I(\vec{X})$  영상들이 Fig. 6에 나타나 있다. 이 그림에서 특히 상-영상은  $[100]$ 축에 따른 원자열 간격이 분명히 분해된 상을 나타낼 뿐만 아니라 Fig. 4a의  $[100]$ 축으로 투영된 퍼텐셜과 같이 원자번호 (Y: 39, Ba: 56, Cu: 29, O: 8)에 대체로 비례하는 강도의 차이를 보여주고 있다. 그리고 실수부 영상은 산소를 제외한 나머지 원소들의 원자번호에 비례된 음영을 또한 보여주고 있다. 반면 특정한 최적의 비초점 값에서 얻은 HRTEM 영상 Fig. 4b는 산소에 대응되는 강도만 약할 뿐 나머지 원소에 대한 영상 강도는 비슷한 정도를 나타내고 있다. 물론 이 결과는 IWFR 방법에 의한 영상 분석을 할 경우 해당 실험으로부터 구체적인 결정구조 정보를 더 얻을 수 있음을 뜻

한다.

### 3. Al<sub>2</sub>CuMg의 결정구조

2000 계열의 고강도 Al-Cu-Mg 합금의 주요 석출 물인 S-상 결정 (Al<sub>2</sub>CuMg)의 구조 [ $a_s=0.400$  nm,  $b_s=0.923$  nm,  $c_s=0.714$  nm: Orthorhombic, Cmc<sub>2</sub>m (No. 63)]는 일찍이 Perlitz & Westgren (1943, PW 모델)에 의해 단결정에 대한 X-선 회절 실험으로 구한 바 있다. 그러나 다시 최근에 와서 Radmilovic et al. (1999), Kilaas & Radmilovic (2001), Majimel et al. (2004)는 합금내의 석출입자 상태에 대한 [100] zone 축에 대한 HRTEM 실험 분석으로부터 PW 모델에서 다만 Cu와 Mg의 원자위치가 교환된 새로운 모델을 제안 하였다(RaVel 모델) (Fig. 7 참조). 이후 이에 대한 이론적 연구(Wolverton, 2001) 및 Kim & Ringer (2005), Kim (2005)의

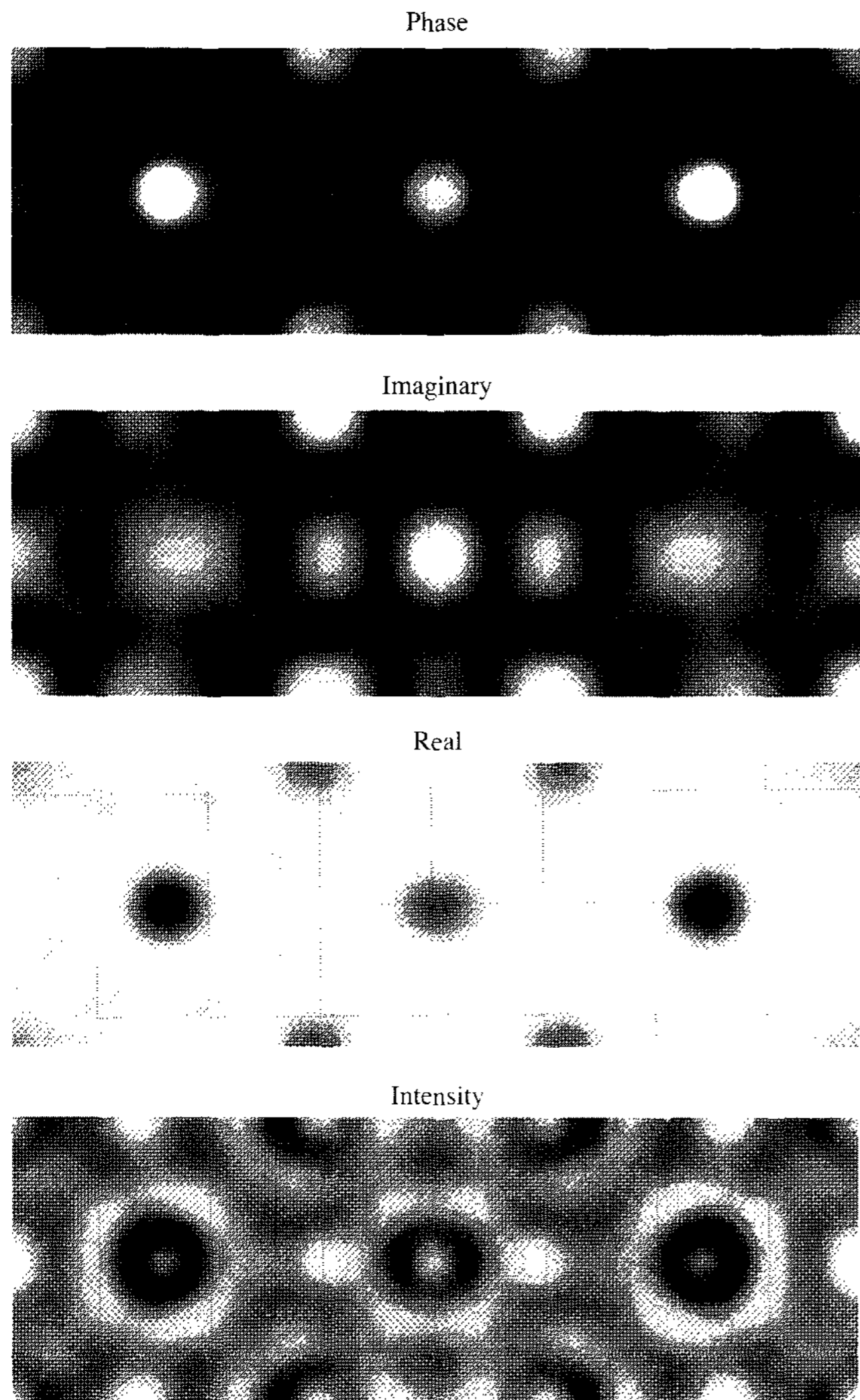


Fig. 6. The four contrast images of the wave function,  $\varphi(\vec{X})$ , evaluated from the three image data in Fig. 5.

이 석출입자에 대한 전자 회절 패턴 실험 결과는 RaVel 모델 보다는 PW 모델과 일치함을 보였다. 그러므로 현재 X-선 및 전자 회절 방법과 HRTEM 방법에 의해 구한 S-상의 결정구조 모델들이 서로 일치되어 있지 않은 상태이다. 그러나 이 새로운 모델의 제안은 전통적인 HRTEM 영상 분석에 의한 것이다. 그러므로 우리의 관심사는 HRTEM 영상 분석에 대해 IWFR 방법을 적용 할 경우 다른 결과를 도출할 수 있는지를 점검해 보는 것이다. 다행히 Majimel et al.

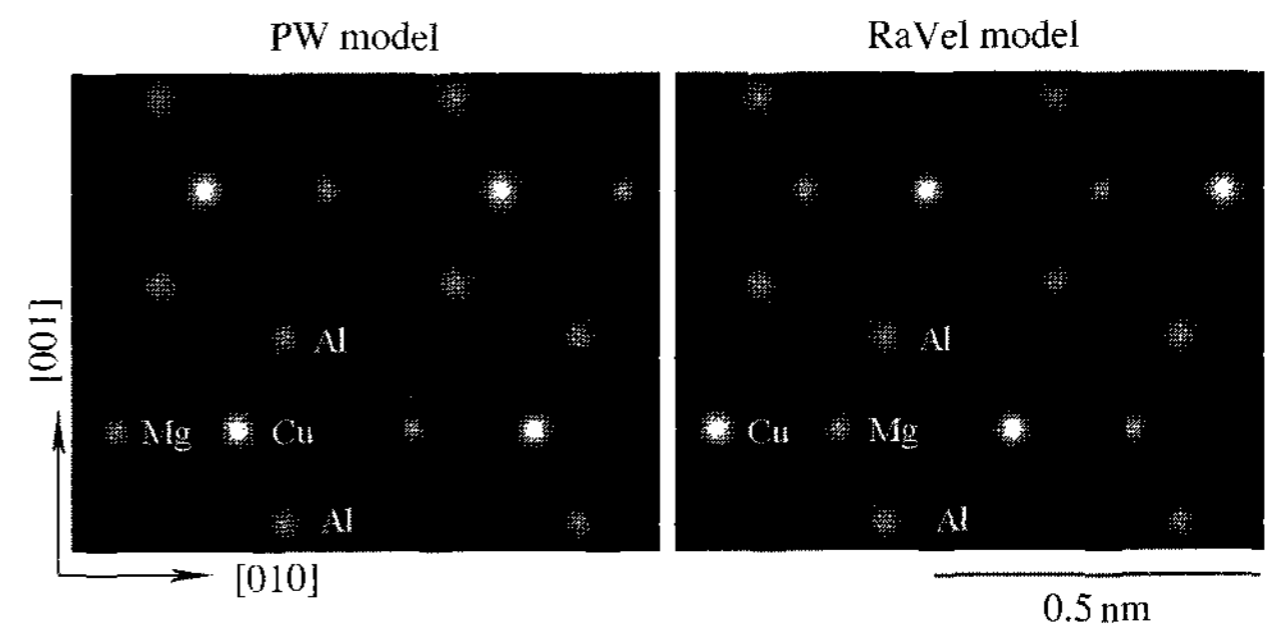


Fig. 7. The projected potential maps of Al<sub>2</sub>CuMg along [100] direction with a unit cell for the PW and RaVel models. The columns of Cu and Mg atoms are exchanged between the two models.

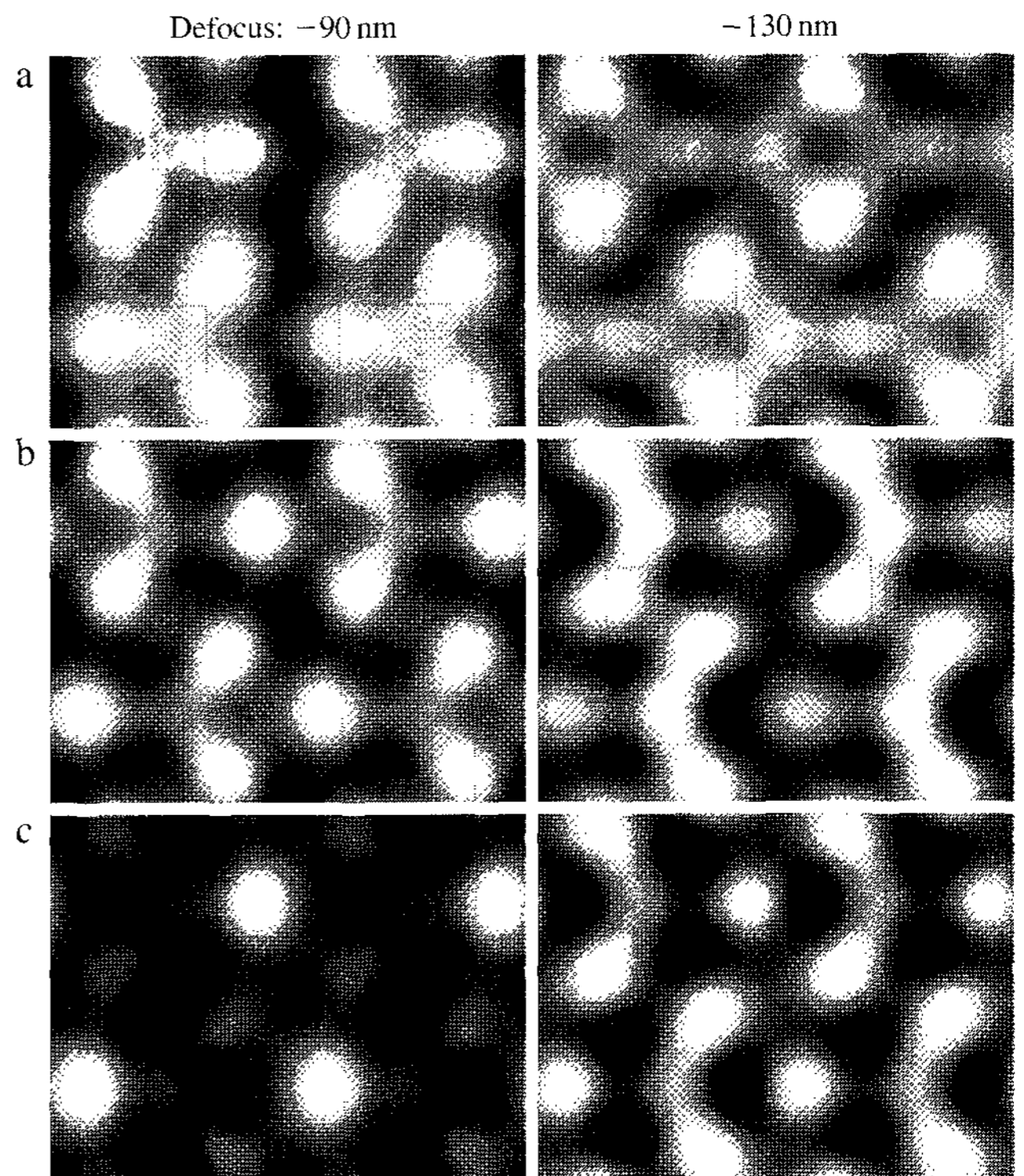
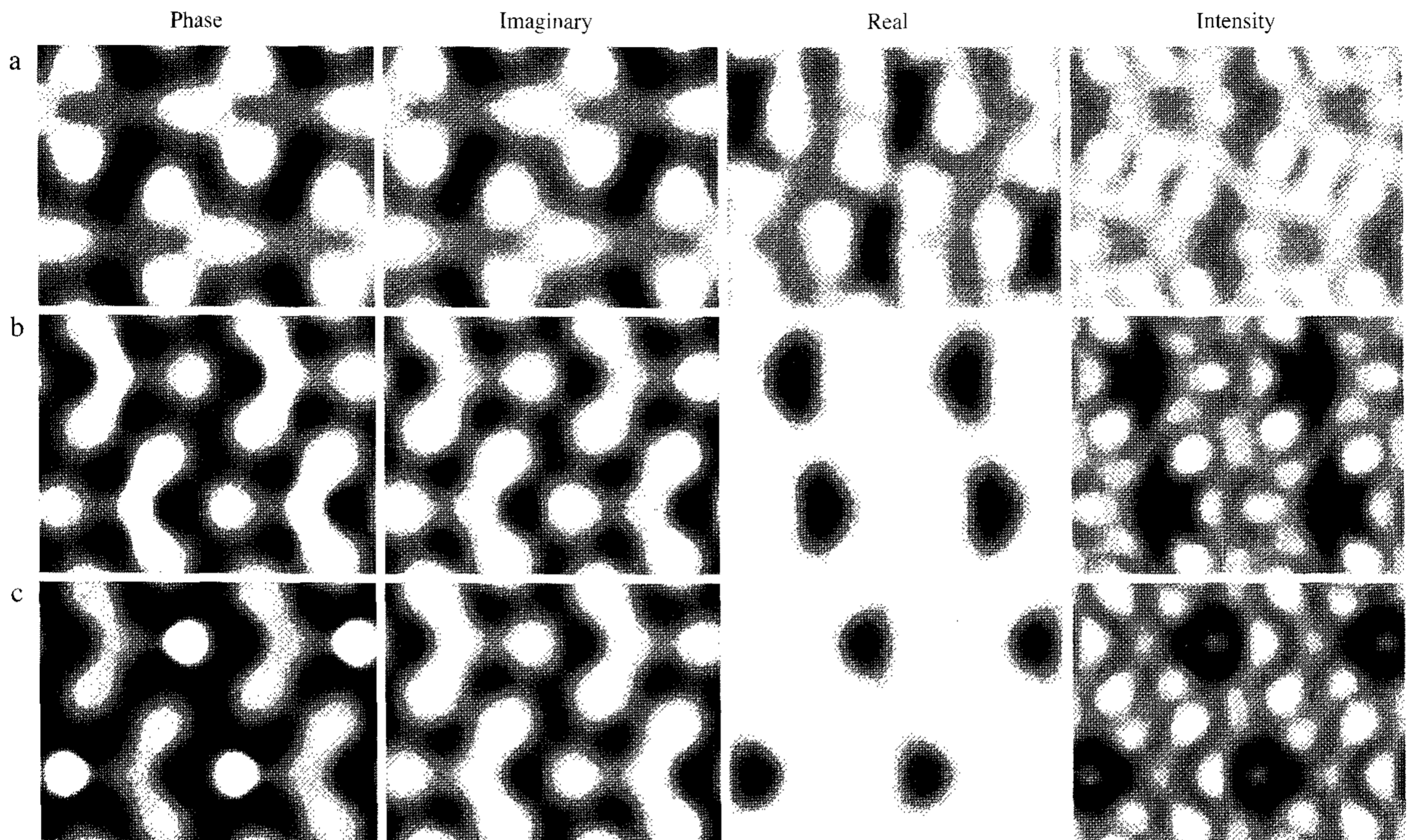


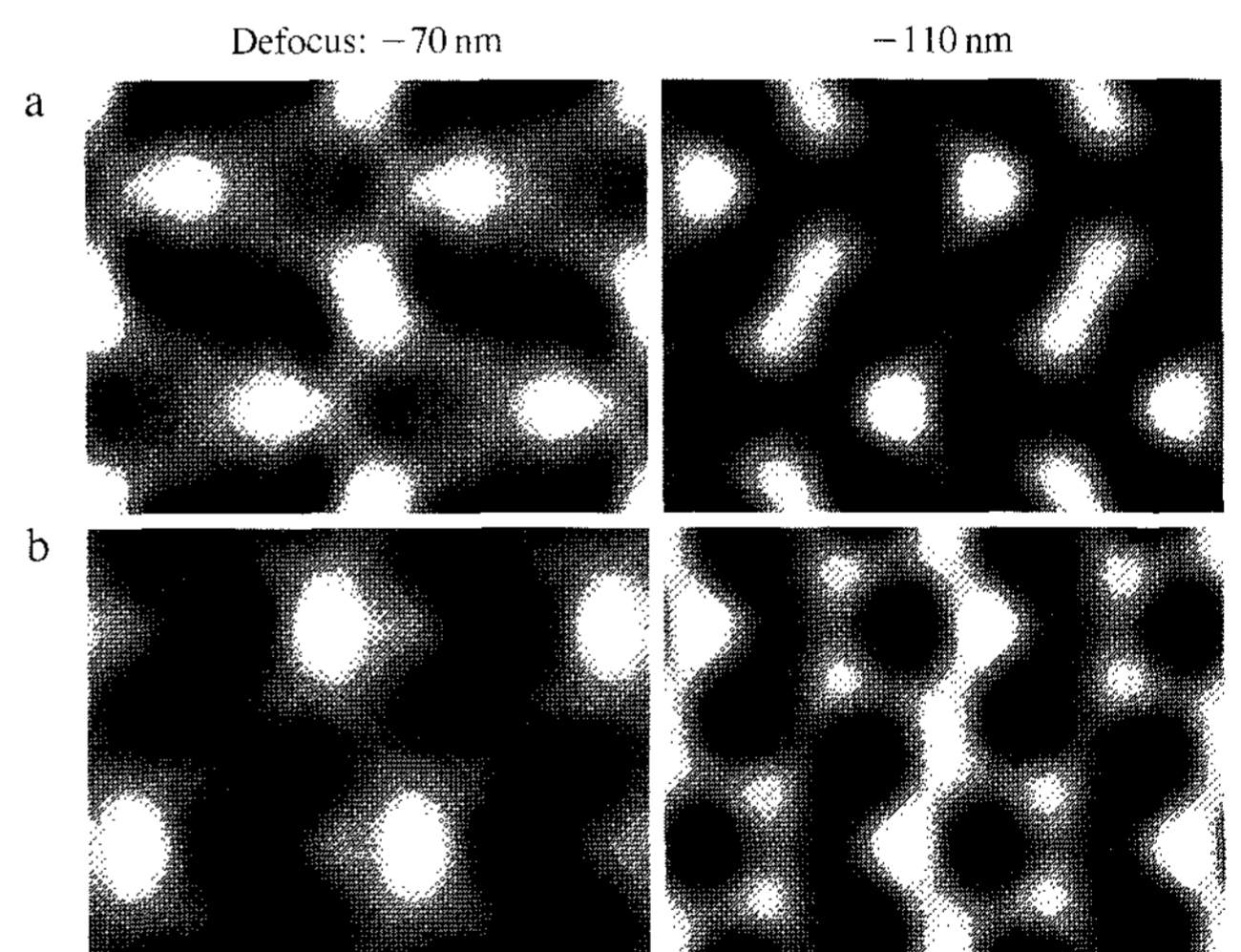
Fig. 8. a: the experimental HRTEM images of a unit cell viewed along the [100] direction after averaging for lattice symmetry with the original micrographs taken from Majimel et al. (2004). b and c: the corresponding simulated images with the PW model and the RaVel model respectively.



**Fig. 9.** a: the four contrast images of the exit wave function,  $\varphi(\vec{X})$ , evaluated from the two experimental images in Fig. 8a. b: the four contrasts of the  $\varphi(\vec{X})$  evaluated from the two simulated images of Fig. 8b with the PW model. c: for the RaVel model with Fig. 8c.

(2004)은 두 개의 다른 비 초점에 대한 HRTEM 영상들을 보여주고 있음으로 IWFR 방법 적용이 가능하다. 우리가 이 방법을 적용한 과정은 아래와 같다.

Majimel et al. (2004)의 Al-Cu-Mg 합금에 대한 HRTEM 실험에서 사용된 현미경은  $C_s=1.2$  mm를 가진 Philips CM30 ST이다. 우선 이 논문에 Fig. 9a 및 b (각각  $\Delta f=-90$  nm and  $-130$  nm)의 영상들로부터 단위 셀에 해당되는 부분을 취하여 디지털 데이터로 변환하고 그리고 격자 대칭성, 즉 원점에서 중심 대칭,  $[0\ 1/2\ 0]$  이동 대칭 및  $[0\ 0\ 1/2]/(001)$ 의 이동/거울 대칭들을 갖도록 평균을 취한 디지털 데이터를 얻었다. 이들 영상은 Fig. 8a에 나타나 있다. Fig. 8에 b와 c는 각각 PW 모델과 RaVel 모델에 대해 a의 실험 영상들과 최적으로 부합하는 시뮬레이션 영상들이다. 이 시뮬레이션에 입력된 파라미터들은 다음과 같다: 가속전압 300 kv, 시료두께  $t=8$  nm,  $\Delta_s=8$  nm,  $\beta_s=0.6$  mrad이다. 이들을 비교 검토할 때 비초점  $-90$  nm에서는 PW 모델이 그리고  $-130$  nm에서는 RaVel 모델이 실험영상과 보다 더 잘 부합되는 것으로 보인다. 그럼에도 불구하고 Majimel et al. (2004)은 이와 같은 전통적인 방법으로 세세한 비교를 한 후 RaVel 모델이 실험결과와 더 잘 부합된다고 판단했다(Fig. 8에 보이고 있는 시뮬레이션 영상은 Majimel et al. (2004)의 Fig. 9에 나타난 영상들과 다소 차이가 있다. 특히 RaVel 모델의 c의 경우( $\Delta f=-900$  nm) 약하게 나타난 강도가 그들의 영상



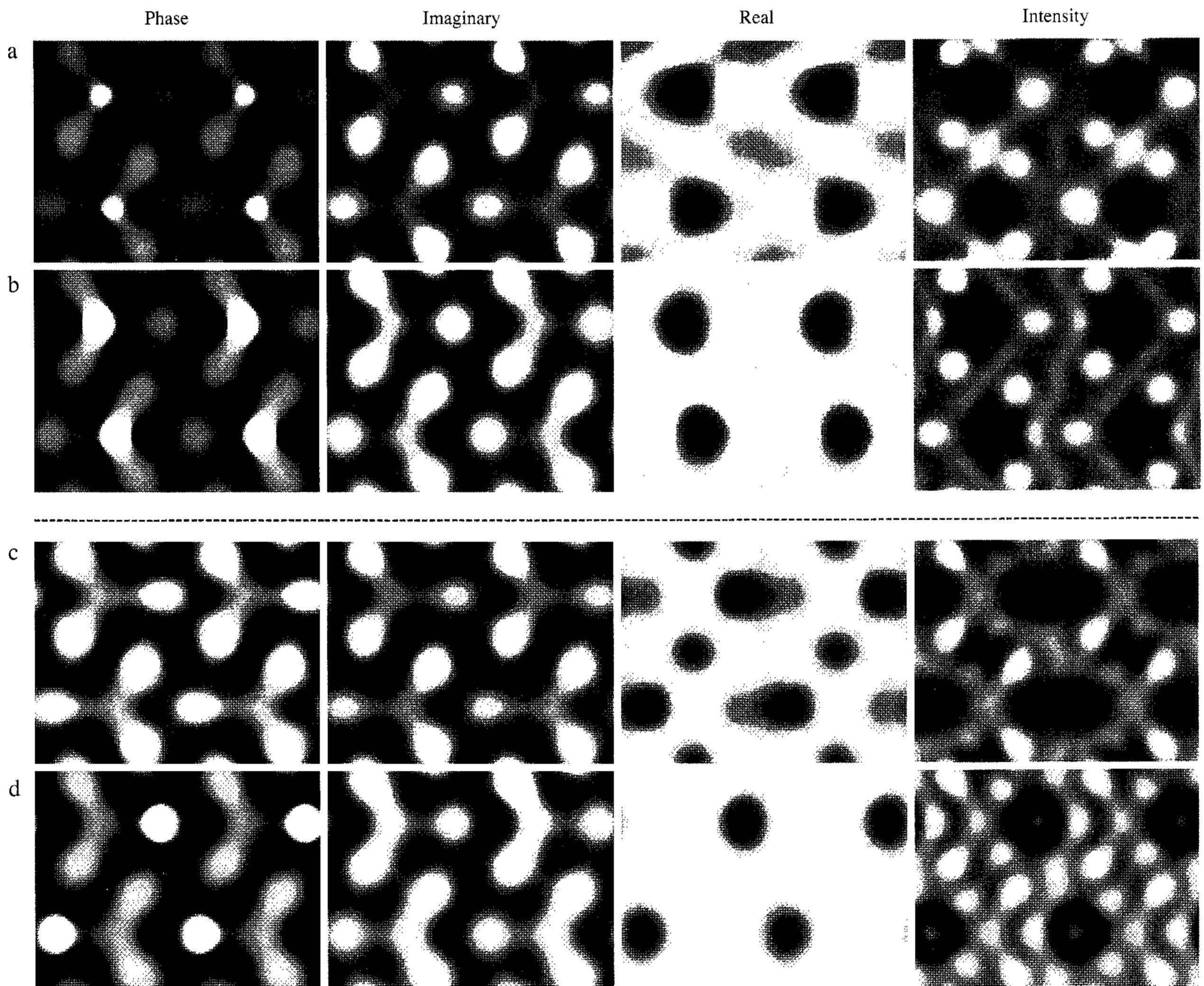
**Fig. 10.** a: the simulated images with the PW model, b: with the RaVel model under the defocus values indicated on the top of figures.

에서 다소 강하게 보인다).

Fig. 9a에는 앞서 얻은 두 개의 비 초점에 대한 디지털 영상들로부터 IWFR 방법 적용에 의해 얻은 파동 함수  $\varphi(\vec{X})$ 의 상(phase), 허수부, 실수부 및 강도  $I(\vec{X})$ 의 명암대비 영상들이 나타나 있다. 그리고 b와 c는 각각 PW 모델과 RaVel 모델에 의해 얻어진 대응되는 이론적 영상들이다. a와 b 및

a와 c의 영상들을 비교할 때 다만 상-영상에서 RaVel(c) 모델보다는 PW(b) 모델이 실험(a) 영상과 더 잘 부합되는 것으로 보이고, 허수부 영상에서는 두 모델이 비슷한 정도로 실험 영상과 일치하지만 실수부 및 강도 영상에서는 두 모델 모두 실험영상들과 잘 일치하지 않는다. 이와 같이 만족할 만한 일치를 보지 못하는 이유는 실험 영상 데이터 자체 문제인 것으로 사료된다. 왜냐하면 Majime et al. (2004)의 Fig. 9에서 전체적인 HRTEM 영상 패턴들이 격자 대칭성에서 다소 벗어나 있지만 우리는 여기서 완전 대칭성을 갖는 것으로 가정했다. 이러한 비대칭성은 결정 축 [100] 방향이 입사 빔 방향과 정확히 평행하지 않을 때 그리고/혹은 현미경의 비점 수차(astigmatism)가 정확히 조정되어 있지 않을 때 나타난다. 그 밖에 입사 빔이 평행성에서 다소 크게 벗

어나 비균질적일 때 이러한 비대칭성이 예측된다. 이러한 사실에도 불구하고 다음과 같은 분석을 더 시도하여 보았다. Fig. 10은 임의로 택한 비초점 값  $-70\text{ nm}$ 와  $-110\text{ nm}$ 에 대한 PW 모델(a) 및 RaVel 모델(b)에 대해 시뮬레이션한 또 다른 이론적 영상 데이터에 해당된다. 그리고 Fig. 11에 a는 실험영상 데이터(비초점 값:  $-90\text{ nm}$  및  $-130\text{ nm}$ )와 Fig. 10a의 데이터(PW 모델)를 가진 총  $N=4$ 에 대해 IWFR 방법을 적용해서 얻은 파동함수  $\varphi(\vec{X})$ 의 영상들이고 b는 대응되는 PW 모델에 대한 Fig. 8b와 Fig. 10a의 이론적 데이터( $N=4$ )에 의한  $\varphi(\vec{X})$ 의 영상들이다. 이들의 영상들(a와 b)을 비교할 때 만족할 만한 일치를 볼 수 있다. 반면 RaVel 모델에 대한 같은 과정의 영상들 c와 d는 상당한 불일치를 보고 있다. 이 결과는 실험 영상들이 본질적으로



**Fig. 11.** a: the four contrast images of the exit plane wave function evaluated from the two experimental images of Fig. 8a and the two simulated images of Fig. 10a for the PW model. b: the contrasts of the wave function from the two simulated images of Fig. 8b and the two images of Fig. 10a for the PW model. c: the contrasts of the wave function from the two experimental images of Fig. 8a and the two simulated images of Fig. 10b for the RaVel model. d: the contrasts of the wave function from the two simulated images of Fig. 8c and the two images of Fig. 10b for the RaVel model.



PW 모델에 의한 것임을 강하게 말해준다. 물론 위와 같은 분석은 다음과 같은 아이디어에 근거한다. 이 분석은 실험 데이터와 이론 데이터를 반반씩 입력해서 얻은 것과 순전히 이론 데이터만을 고려해서 얻은 것과의 비교이다. 만약 실험 데이터가 본질적으로 이론적 데이터를 얻은 모델과 같은 모델에 의한 것이면 결과에서 데이터들의 일치성이 건설적으로 나타날 것이고 다르면 서로 파괴적이어서 불일치를 가져올 것이라는 가정에 의한다. 결론적으로 같은 실험 데이터를 가지고 IEFR 방법을 적용한 확장 분석을 한 결과 S-상 입자( $Al_2CuMg$ )의 결정구조는 새로이 제안된 RaVel 모델 보다는 종래의 PW 모델과 더 잘 부합 되는 것으로 나타났고, 이는 X-선 및 전자 회절 실험 결과와도 일치한다. 끝으로 PW 모델에 대해 Cu-Al의 원자열 간격은 0.17 nm이고 Mg-Cu열 간격은 0.2 nm 정도이다(Fig. 7 참조). 그런데 이 실험에 경우 정보한계(information limit)는 0.17 nm (Table 1 참조)이다. 고로 Fig. 11의 a, b에 상-영상에서 Mg-Cu열 간격은 잘 분해된 반면 Cu-Al열의 경우 경계가 모호하다. 또한 Cu의 원자번호(29)가 Al(13)보다 2배 이상 높아 Cu의 원자 위치에서 강한 영상강도를 나타내고 있음을 주목할 필요가 있다. RaVel 모델에 경우 Cu와 Mg의 위치를 교환해서 판단하면 같은 결론을 얻는다.

## 고찰 및 결론

투과전자현미경의 구면수차에 영향을 받지 않은 결정 밀 표면에서 전자 파동함수를 얻는 기존의 방법인 EPWFR 방법과 비교해서 새로운 IWFR 방법은 확실히 수학적 간결성을 갖고 있다. 뿐만 아니라 3~5개 정도의 각기 다른 비 초점에 대한 영상 데이터만으로도 20개 정도를 필요로 하는 EPWFR 방법에 의한 파동함수의 영상과 거의 같은 동질의 영상을 얻을 수 있음이 GaAs의 예에서 다시 확인되었다. 그리고 '이론 및 방법'의 2절에서 이 IWFR 방법의 타당성의 이론적 근거, 적용되는 조건들 및 이 방법에서 얻어지는 결정구조의 정보한계들이 명확히 제시되어 있다. 즉 이 방법이 적용되는 조건들은 시료의 두께가 충분히 얇아서(10 nm 이하 정도) 산란 빔의 강도가 직접 투과되는 빔 강도보다 상당히 약하여야 한다. 그리고 TEM의 *Damping Envelopes*에 의해 손실된 산란 강도는 IWFR 방법에서 다만 부분적으로만 보완 되기 때문에 일정한 정보한계를 갖는다(Fig. 1 및 Table 1 참조). 이러한 조건에도 불구하고 두께가 10 nm 이하의 시료들을 취급하고 있는 HRTEM 연구 분야에서 이 방법은 대단히 유용하다. 그리고 위에서 논의된 정보한계도 실질적으로 이 방법의 유용성을 감소시키지는 않는다고 본다. 이 방법에 의해 구해지는 파동함수로부터 4개(상, 실수부, 허수부, 진폭 혹은 강도)의 영상 패턴을 갖게

되는데 이 중 2개만 독립적 패턴이다. 이중 상(phase) 영상과 실수부의 영상이 가장 중요하다. 상-영상은 정보한계 범위 내에서 구면수차에 의한 영상왜곡이 교정된 원자 분해상을 나타낼 뿐만 아니라 결정의 구성원소의 원자번호 값에 대체적으로 비례되는 명암대비 강도분포를 보여준다. 이에 대한 예가  $YBa_2Cu_3O_7$ 의 경우에서 잘 나타나고 있다. 실수부 영상은  $YBa_2Cu_3O_7$ 의 경우에서 보면 산소를 제외한 원소에 대해 원자번호 크기에 대체로 비례하는 음영의 강도를 보여주고 있다. 그러므로 실수부 영상은 상-영상을 해석하는데 보완적인 도움을 주는 중요성이 있다고 본다. 강도의 영상은 실제로  $C_s = \Delta f = 0$ 의 조건에서 얻어지는 통상적인 HRTEM 영상에 가깝기 때문에 역시 의미가 있다. 허수부 영상은 상-영상을 이해하고 올바르게 해석하는데 도움을

준다. 왜냐하면 상-영상이  $\tan\theta(x) = \frac{\text{Im}(\varphi(x))}{\text{Re}(\varphi(x))}$  관계식에서 얻어지는 것을 고려하면 이 영상이 원소의 원자번호에 대체로 비례하는 명암대비를 왜 보여주는지를 가늠하는데 허수부 영상이 필요하기 때문이다. 그러므로 4개의 영상 패턴 모두가 실은 올바른 종합적 판단을 하는데 필요하다고 본다. 이에 예가  $Al_2CuMg$ 의 결정구조 논의에서 볼 수 있다. 이 방법 적용으로 전통적 방법에 의한 HRTEM 영상분석으로부터 얻은 새로운 결정모델(RaVel)과는 달리 기존의 모델(PW)이 타당하다는 결론을 도출됨이 주목되어야 한다.

끝으로 IWFR 방법의 알고리즘은 초기 입력 데이터의 추정모델을 요하지 않음을 특히 주목할 필요가 있다. 또한 빔 분산( $\beta_s$ ) 및 초점 요동( $\Delta_s$ )의 표준편차의 정확한 값들을 요하지도 않는다. 이러한 장점으로 인해 결정 결함 및 합금의 알려지지 않은 석출물의 결정정보를 얻는데 이 방법은 대단히 유용하다고 결론지을 수 있다.

## 참고 문헌

- Allen LJ, McBride W, O'Leary NL, Oxley MP: Exit wave reconstruction at atomic resolution. *Ultramicroscopy* 100 : 91-104, 2004.
- Allen LJ, Oxley MP, Ishizuka K: Electron microscope Cs correction using iterative wave-function reconstruction. *Microscopy and Analysis* 20(4) : 5-7(AP), 2006.
- Chang LY, Kirkl AI: Comparisons of linear and nonlinear image restoration. *Microsc Microanal* 12 : 469-475, 2006.
- Coene W, Janssen G, Op de Beeck M, Van Dyck D: Phase retrieval through focus variation for ultra-resolution in field-emission transmission electron microscopy. *Phys Rev Lett* 69 : 3743-3746, 1992.
- Coene WMJ, Thust A, Op de Beeck M, Van Dyck D: Maximum-likelihood method for focus-variation image reconstruction in high resolution transmission microscopy. *Ultramicroscopy* 64:

- 109-135, 1996.
- Jia CL, Lentzen M, Urban K: High-resolution transmission electron microscopy using negative spherical aberration. *Microsc Microanal* 10 : 174-184, 2004.
- Kilaas R, Radmilovic V: Structure determination and structure refinement of  $\text{Al}_2\text{CuMg}$  precipitates by quantitative high-resolution electron microscopy. *Ultramicroscopy* 88 : 63-72, 2001.
- Kim HS: A study of the crystal structure of the fine S-phase precipitate in Al-Cu-Mg alloy by electron diffraction experiments. *Korean J. Electron Microscopy* 35(4) : 187-195, 2005. (Korean)
- Kim HS, Ringer SP: On the crystal structure of the S-phase precipitate in Al-Cu-Mg alloy. *Microsc Microanal* 11(Suppl 2) : 1688-1689, 2005.
- Lehmann M, Lichte H: Tutorial on off-axis electron holography. *Microsc Microanal* 8 : 447-466, 2002.
- Majmel J, Molenat G, Danoix F, Thuillier O, Blavette D, Lapasset G, Casanove M-J: High-resolution transmission electron microscopy and tomographic atom probe studies of hardening precipitation in Al-Cu-Mg alloy. *Phil Mag* 84 : 3263-3280, 2004.
- Perlitz H, Westgren A: The crystal structure of  $\text{Al}_2\text{CuMg}$ . *Arkiv Kemi Mineral Geol* B16(13) 1-5, 1943.
- Radmilovic V, Kilaas R, Dahmen U, Shiflet GJ: Structure and Morphology of S-Phase Precipitates in Aluminum. *Acta Mater.* 47 : 3987-3997, 1999.
- Tillmann K, Thust A, Urban K: Spherical aberration correction in tandem with exit-plane wave function reconstruction: interlocking tools for the atomic scale imaging of lattice defects in GaAs. *Microsc Microanal* 10 : 185-198, 2004.
- Williams A, Kwei GH, Von Dreele RB, Larson AC, Raistrick ID, Bish DL: Joint x-ray and neutron refinement of the structure of superconducting  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ : Precision structure, anisotropic thermal parameters, strain, and cation disorder. *Phys Rev B* 37 : 7960-7962, 1988.
- Wolverton C: Crystal structure and stability of complex precipitates in Al-Cu-Mg-(Si) and Al-Zn-Mg Alloys. *Acta Mater* 49 : 3129-42, 2001.

### < 국문 초록 >

Allen et al. (2004)에 의해 개발된 IWFR 방법에 대해서 응용성에 관심을 가지고 고찰되었다. 이 고찰에는 문헌에 보고된 GaAs,  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$  및  $\text{Al}_2\text{CuMg}$ 의 재료에 대한 HRTEM 연구물들이 이용되었다. 이 고찰 과정에서 이 방법의 타당성에 대한 이론적 근거, 제한조건 및 정보한계들을 명확히 제시되었다. IWFR 방법을 통해 얻은 결정 및 표면에 전자 파동함수의 상(phase)-영상은 구면수차에 의한 영상 왜곡이 교정된 정보한계 범위 내에서 원자분해상을 나타낼 뿐만 아니라 결정의 구성원자의 원자 번호에 대체적으로 비례하는 강도 분포를 나타내는 강한 경향이 있음이 특히 주목되었다.