

비교적 두꺼운 결정으로부터 얻은 일련의 비 초점 단계의 고전압 HRTEM 영상들에 대한 IWFR 분석의 유용성 실험

오 상 호, 김 윤 중, 김 황 수^{1,*}

한국기초과학지원연구원 전자현미경연구부

¹경성대학교 이과대학 물리학과

Experiment of Usefulness of IWFR Analysis for High Voltage HRTEM Images with a Series of Defocus Steps Obtained from a Relatively Thick Crystal

Sang Ho Oh, Youn Joong Kim and Hwang Su Kim^{1,*}

Division of Electron Microscopic Research, Korea Science Institute, Daejeon 305-333

¹Department of Physics, Kyungsoong University, Busan 608-736, Korea

(Received November 24, 2008; Accepted December 22, 2008)

ABSTRACT

In this paper we have examined the usefulness of IWFR (the iterative wave-function reconstruction) analysis for through-focal series of high-resolution images for a relative thick crystal. In the work we employed JEOL ARM 1300S, and observed the high-resolution images for a Si crystal at the two orientations of [01-1] and [11-2] having 30 nm and 35 nm thickness respectively. As a result of applying IWFR method on the images we found out that even for a thick crystal by the method we can retrieve the exit-surface wave function. However because of the strong dynamical scattering effect, the image pattern of the function reflects only qualitatively the atomic column structure of the crystal examined. Nevertheless it is no doubt that the pattern would give important clue for the crystal structure.

Keywords : JEOL ARM 1300S, IWFR analysis, HRTEM

서 론

HRTEM (High Resolution Transmission Electron Microscopy) 기법에서 항상 직면하는 문제는 현미경의 구조적 결함(구면수차 등)에 의해 고 분해 영상들이 (images) 왜곡되고 또 전기적 기계적 요동에 의해 명암대비 (contrast)가 현저히 감소된 상태로 관찰되는 점이다. 즉 관찰 영상이 시료

의 결정학적 구조와 일반적으로 바로 대응되지 않는다. 따라서 이런 제한을 개선시키는 노력의 결실로서 소프트웨어적 영상처리 기법이 개발되어 최근에 활발히 응용되고 있다. 이 기법들은 대체적으로 일련의 단계를 가진 비 초점 (defocus) 에서 얻은 HRTEM 영상 데이터로부터 시료 밀 표면의 복소수 파동함수 (complex exit-surface wave function)를 얻는 소프트웨어적 처리 방법들이다. 물론 이 파동함수는 이론적으로는 현미경에 의한 영상왜곡이 되기 이전에 함수를 의미한

본 연구는 한국기초과학지원연구원 장비확충개발사업의 단위사업인 요소기술 및 분석법 개발사업(N28078)의 재정 지원을 받아 수행하였습니다.

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

다. 이 기법에는 MAL (Maximum-likelihood; Chang & Kirkland, 2006)이 있고 이와 이론적으로 유사한 EPWFR (Exit-Plane Wave Function Reconstruction) 방법 (Coene et al., 1992, 1996)이 현재 상용화되어 있다. 최근 Tillmann et al. (2004)은 GaAs에 대한 연구에서 이 방법을 적용하였다. 이 방법은 일련의 ~20개 단계의 비 초점들에 대한 HRTEM 영상 데이터를 요한다. 또 다른 방법으로 Allen et al. (2004, 2006)의 IWFR (Iterative Wave-Function Reconstruction) 방법이 있고 이는 다만 4개 내지 6개 정도 단계를 가진 비 초점 값에 대한 영상 데이터만을 요하는 장점이 있다. 최근 Kim (2008)은 비교적 간단한 이 방법의 이론적 타당성 및 유용성에 대한 세세한 고찰을 보고한 바 있다. 그리고 이들 방법 실험에는 공통적으로 200~300 kV FEG-TEM이 주로 이용되었고 두께가 4 nm에서 10 nm 범위를 가진 결정 시료들이 사용되었다.

문제는 이러한 얇은 시료 즉 10 nm 이하의 얇고 균일한 두께를 그리고 이를 예측하며 시료에 표면손상을 주지 않으면서 연마를 할 수 있는 일반적인 표준공정은 실질적으로 없다는 사실이다. 보통 연마공정에서 당연히 이보다 두꺼운 부위를 얻을 확률이 훨씬 높다. 이런 두꺼운 시료에 대해 연마과정에서 일어나는 표면 손상의 두께는 상대적으로 무시될 수 있는 장점도 있지만 300 kV 정도를 가진 현미경에서는 선명한 고 분해 영상을 얻는 것이 어렵다. 그러나 고 전압(800~1,250 kV) 전자현미경에서는 빔의 높은 투과력으로 인해 30~40 nm의 두께를 가진 시료에 대해서도 선명한 영상이 얻어진다. 이점이 우리가 고 전압 전자현미경을 이용하는 이유 중에 하나이다. 다만 시료가 두꺼울 경우, 전자 빔과 시료 결정과의 동역학적 다중 산란에 의한 효과가 증대됨에 예상되고 이러한 경우에도 위에 언급된 영상 처리기법 특히 IWFR 방법이 응용될 수 있는지를 확인 해 보는 것은 충분히 가치 있다고 여겨진다. 이를 위해 이 논문에서 표준시료로 실리콘 결정을 선택하여, 고 전압 전자현미경을 이용 비교적 두꺼운 시료부위에 대한 일련의 비 초점 단계의 고 분해 영상들을 관찰하고 이로부터 IWFR 기법이 응용될 수 있는지 즉 IWFR의 유용성을 검토하고자 한다.

재료 및 방법

1. 실험

TEM 시편으로 <110> 방향의 수직인 실리콘 결정(Si: 0.543 nm, DC 결정구조)의 웨이퍼를 선택했다. 그리고 고 분해 영상관찰이 가능한 두께를 얻기 위해 표준 연마공정을 수행하였다. 전자현미경으로는 한국기초과학지원연구원

Table 1. KBSI-HVEM (JEM ARM 1300S: 1,250 kV) parameters for imaging and simulations

Wave-length of 1,250 KeV electron:	$\lambda=7.354 \times 10^{-4}$ nm
Chromatic aberration:	$C_c=0.41$ cm
Spherical aberration:	$C_s=0.26$ cm
Beam convergence:	$\beta_s=0.28$ mrad (0.5 mrad)*
Objective aperture cutoff:	$q_c=9.6$ nm ⁻¹ (9.017 nm ⁻¹)*
Defocus spread:	$\Delta_s=4.0$ nm (8 nm)*
Scherzer defocus:	$\Delta_f^s=-52$ nm

*parameters listed in the instrument manual.

의 JEOL ARM 1300S이 이용되었다. 영상 획득에 필요한 일반적인 제원은 Table 1에 수록되어 있다.

관찰은 우선 [01-1] zone축의 방위상태에서 30단계의 비 초점 값들에 대한 영상들을 CCD (charge-coupled device: 2048×2048 pixels: 26.2 nm×26.2 nm) 카메라에 기록하였다. 각 영상에 대해 1.5초의 간격과 1.5초의 기록시간이 주어졌고 약 +100 nm의 비 초점 값의 시작으로부터 -16 nm의 간격으로 감소되는 단계에 따른 30개의 영상을 얻었다. 이 단계적 비 초점 값들은 단순히 계기에 입력된 수치이며 실제로는 계기상에서도 초점 값이 변동됨을 주목하였다. 다음에 이 축에서 30도의 각도의 경사를 이루는 [11-2] 방위 축으로 시료회전을 하여 이 상태에서, 대략 0의 비 초점으로부터 단계적 비 초점 값 -12 nm이 주어진 20개의 영상들을 획득하였다. 역시 각 영상에 대해 1.5초 간격과 1.5 초의 기록시간이 주어졌다.

IWFR 기법 적용에는 다만 4~6개 정도의 영상들만 필요하므로 우리는 20~30개의 획득한 영상 중 최상의 영상들을 선택 할 수 있다. 선택기준으로 뚜렷한 명암대비 (contrast)를 보이면서 격자 이동 대칭성 (lattice translation symmetry)이 전체 영상 범위 (기록 범위: 26.2 nm×26.2 nm)에 걸쳐 잘 유지되어 있고 또한 이런 영상들이 연속적인 단계의 비 초점 값들로 이루어진 그룹을 택했을 때, [01-1] 축-방위의 경우 4개 정도이고 [11-2]의 경우 6개 정도이다. 이들은 대체적으로 비 초점 값이 대략 -50 nm에서 -100 nm의 범위에서 획득된 영상들이다. 이 범위는 첫 번째와 두 번째 Scherzer defocus값 범위에 해당되며 이 범위에서는 회절 산란 벡터의 크기 증가의 따른 상(phase) 변화가 완만하다 (Fig. 1 참조). 이들 영상들에는 시료연마 중 표면 손상 이된 층 막과 관찰도중 오염되는 산화 막에 의해 비 격자 주기성을 가진 배경 산란 강도가 포함되어 있다. CCD 카메라에 획득된 영상 중 일정 부분을 취해 이들을 표준 FT (Fourier Transform) 기법을 적용 비 격자 주기 배경 강도를 제거하고 격자 대칭성이 부과된 평균주기를 취한 영상처리를 하였다. 이들 원래의 관측 영상들과 이를 영상처리 (image processing)한 상들이 Fig. 2와 Fig. 5에 보여주고 있다.

2. CTF (phase contrast transfer function) 및 DEF (damping envelope function)

전자현미경의 구면수차 및 비점수차에 의한 상 변화 이론 관계식(CTF)과 입사 빔의 분산, 색수차와 이와 결합된 전기적 기계적 요동에 의한 상-퍼짐을 고려한 이론 관계식들(DEF)은 Spence (1981)의 책에 잘 정리되어 있으며 아래와 같다. 결정 밑 표면의 파동 진폭에 곱해지는 변환함수 $T(q, \Delta f)$ 는,

$$T(q, \Delta f) = P(q) \exp[-i\chi(q, \Delta f)] D(q, \Delta f) \quad (1)$$

여기서,

$$\chi(q, \Delta f) = \pi\lambda\Delta f q^2 + 0.5\pi\lambda^3 C_s q^4 + 0.5\pi\lambda C_a q^2 \cos 2\phi; \quad (2)$$

$$D(q, \Delta f) = \exp[-0.5(\pi\lambda q^2 \Delta_s)^2] \times \frac{2J_1(Q)}{Q}; \quad (3)$$

$$Q = 2\pi\beta_s q \Delta f + \lambda(\lambda C_s - i\pi\Delta_s^2) q^3 \quad (3)$$

$$\Delta_s = C_c \left[\frac{\sigma^2(V)}{V^2} + \frac{\sigma^2(I)}{I^2} + \frac{\sigma^2(E)}{E^2} \right]^{1/2} \quad (4)$$

이 식들에서 $q = \frac{\sin\theta}{\lambda}$ 이며 산란벡터의 크기를 나타내며 θ 는 산란 각이다. Δf 는 비 초점 값, λ 는 전자 빔의 파장, C_s 는 구면수차, C_c 는 색수차 계수이다. (1)의 첫 항 $P(q)$ 는 exit pupil function이고 O.A. (objective aperture) 내에서는 $1 (q < q_c)$ 이고 그 밖에서는 $0 (q > q_c)$ 의 값을 갖는다. 두 번째 항은 CTF이고 세 번째 항이 DEF이다. 그리고 (2)의 ϕ 는 비점수차 (atigmatism) 장-축과 산란 벡터와의 각이고 $J_1(Q)$ 는 제 일종의 Bessel 함수, (3)의 β_s 는 입사 빔의 수렴분산 각, (4)의 Δ_s 는 비 초점 분산을 나타내며 이 식의 2 번째 항들은 가속전압 (V), 대물렌즈 전류 (I) 요동 및 빔 에너지 (E)의 분산의 평균 표준 편차의 비율 관계식이다. Fig. 1은 $q(0 \sim 1.2 \text{ nm}^{-1})$ 와 $\Delta f(+100 \text{ nm} \sim -300 \text{ nm})$ 의 범위에 대한 $\sin \chi(q, \Delta f) D(q, \Delta f)$ 의 이차원 도형그림을 나타낸다 (단 $C_a=0$ 가 입력됨). 이 논문의 실험은 모두 이 범위 내에서 이루어졌다.

결 과

1. 비 초점 분산 표준편차 Δ_s 및 입사 빔의 수렴분산 표준편차 β_s 의 평가

IWFR 기법 영상처리는 본질적으로 (1)의 역 변환이므로 이 식에 입력되는 매개변수 값들을 가능한 한 정확히 알 필요가 있다. Table 1에 일반적인 정격 값들이 주어졌 있지만 Δ_s 및 β_s 값들은 실험환경의 영향을 받으므로 관찰된 영상들

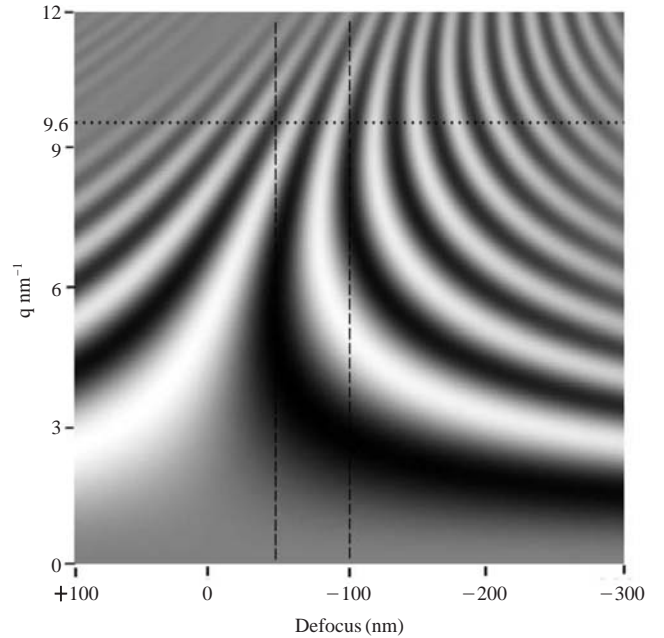


Fig. 1. The map of the phase contrast transfer function (imaginary part) of (1) in text modified by the damping envelopes, which is gray-scaled -1 as dark and +1 as bright. The parameters used in the map calculation is listed in Table 1. The two vertical lines are corresponding to near the first and the second Scherzer defocus values. $q_c=9.6 \text{ nm}^{-1}$ is the magnitude of the cut-off reciprocal lattice vector by the objective aperture inserted in imaging.

로부터 확인 교정을 할 필요가 있다. 왜냐하면 이들 변수와 (1)의 $P(q)$ 가 직접적으로 영상구조의 (일반적으로 이 구조는 결정구조와 직접 대응되지 않는다) 분해한계를 주기 때문이다. 이 $P(q)$ 의 q_c 의 정격 값은 9.017 nm^{-1} 이고 이에 의한 분해한계는 $1/q_c=0.111 \text{ nm}$ 이다. 그러나 Fig. 2b 및 Fig. 5e에서 관측된 분해한계 값은 각각 0.105 nm 및 0.108 nm 이다. 따라서 주어진 q_c 값은 $1/0.105=9.52 \text{ nm}^{-1}$ 보다 큰 값으로 교정되어야 한다. 이 실험에서는 $q_c=9.6 \text{ nm}^{-1}$ 로 놓았다. 이 값은 다만 정격 값과 6.5%의 차이 정도이다. 다음으로 영상의 퍼짐 (damping)의 정도를 보기 위해 주어진 값들 $\Delta_s=8 \text{ nm}$, $\beta_s=0.5 \text{ mrad}$ 와 Fig. 2b의 영상의 비 초점 값 $\Delta f=-69 \text{ nm}$ 를 (3)에 대입하였을 때, $D(9.6, -69)=0.23 \times 0.61=0.14$ 의 값을 얻게 된다. 이는 0.105 nm 의 분해에 기여하는 회절 강도 진폭이 약 1/7로 감소됨을 의미한다. 따라서 이 매개 변수 값에서는 0.105 nm 의 분해를 얻을 수 없다는 결론에 이른다. 그러나 Δ_s 와 β_s 를 각각 4 nm 과 0.28 mrad 로 조정하면 $D(9.6, -69)=0.70 \times 0.87=0.6$ 정도이고 $q_c=9.6 \text{ nm}^{-1}$ 근처의 크기를 갖는 회절 벡터들이 0.105 nm 의 분해된 영상을 주는데 충분히 기여 될 수 있다고 본다. 후에 이 값들은 Fig. 2와 Fig. 5에 보여주는 관측 영상과 시뮬레이션 영상과의 비교 분석으로부터 타당성이 확인되었고 이렇게 교정된 값들이 Table 1에 수록되어 있으며 Fig. 1에도 반영 되

었다.

이 결과는 (4)식에 의하면 현미경의 전기적 요동의 표준 편차가 정격 값보다 절반으로 줄어든 상태에서, 또한 빔의 수렴 분산 표준편차가 0.5에서 0.28 mrad로 빔의 정합도 (coherency)가 향상된 현미경 환경 상태에서 이 실험이 이루어졌다는 것을 뜻하며 이는 곧 정보분해한계 (information resolution limit)의 향상을 의미한다.

2. 영상 시뮬레이션 및 IWFR 분석

IWFR 분석에서 각 영상에 대한 가장 중요 변수인 비 초점 값을 가능한 한 정확하게 알아야 한다. 그러나 이 값을 정확히 아는 데는 어려움이 항상 따른다. 왜냐하면 우선 $\Delta f=0$ 에 해당되는 고 분해 영상을 관찰 중 직관적으로 알 수 없기 때문이다. 더욱이 일정 비 초점 단계 값과 일정 시간 간격을 자동 입력하여 일련의 영상들을 획득하는 과정에서 계기판에 나타나는 초점 값들이 입력한대로 규칙적으로 변하는 것이 아니라 자주 불규칙적인 변동 값을 나타남이 주목되었다. 이 원인이 현미경에 자기렌즈의 전자기적 특성에 의한 본질적인 것인지 아닌지는 현재 정확히 알지 못하고 있다. 이러한 변동은 FEG-CM300 현미경에 의한 실험에서도 보고된 바 있다 (Kisielowski et al., 2001). 그러나 이러한 문제점들이 이 실험의 목적 즉 IWFR 기법에 유용성 실험에는 근본적인 방해는 되지 않는다. 왜냐하면 이미 결정학적 데이터를 잘 알고 있는 실리콘 결정에 대한 영상을 얻었으므로 각 영상에 대한 시뮬레이션과 비교하여 최적으로 일치시킬 수 있는 비 초점 값을 정할 수 있기 때문이다. 아울러, 이 비교 과정으로부터 시료의 두께와 방향이 zone-축에서 벗어난 정도 및 비점 수차 데이터가 모두 정해 질 수 있다. 이런 과정을 통한 최종 결과의 시뮬레이션 영상들이 Fig. 2 및 Fig. 5에 각각 보여주고 있다. 그리고 이 시뮬레이션 계산에는 Howie-Whelan 방정식 (Kim, 2007 참조)이 사용되었다.

1) [01-1]축 방위에 경우

Fig. 2는 [01-1] 방위에 획득된 일련의 영상들이다. 우측 실험 영상들 중앙위치에는 단위 셀에 대한 최종 시뮬레이션 영상들을 보여주고 있다. 주위 실험영상과 잘 일치하고 있다고 보며 여기에 입력된 중요 데이터는 다음과 같다. 두께 $t=30$ nm, 시료의 입사 빔의 방향에 대한 방위는 [01-1]-zone축으로부터 $[-100]$ 방향으로 0.67 mrad 각으로 ($K_x=g(200)/4$ 해당) 경사되어 있고, 비점수차에 대해서는 계수 $C_a=15$ nm 및 장-축 [100]이 입력되었다. 이 비점수차 계수는 (2)식에 따르면 q^2 과 결합된 Δf 의 변동폭: 비점수차 $\pm 0.5C_a=\pm 7.5$ nm를 주는 것을 의미하며 이 값은 같은 현미경을 사용한 Kim et al. (2004) 실험에서 보고된 값 ± 4.5 nm와 비교된다. 위에서 언급한 경사방향이 실제로 정확히 $[-$

100] 방향으로 우연히 일치했다기 보다는 이 방향 성분만 우세하게 영상에 영향을 주고 비점수차도 [100]-축 방향성분만 우세하게 영상에 효과를 준다고 사료된다. 왜냐하면 여분의 다른 방향의 성분이 영상에 미치는 효과가 뚜렷이 나타나지 않음이 시뮬레이션에서 확인되었기 때문이다. 그리고 각 영상에 대한 일련의 비 초점 값들의 평균간격은 13 nm이고 이 값에서 최대 변동 9 nm임을 보여주고 있다. 이 값은 자동 입력된 비 초점 단계 값 16 nm와 대비된다. 이러한 변동폭은 Kisielowski et al. (2001) 논문에서 나타난 변동폭과도 대체로 일치한다.

Fig. 3은 Fig. 2의 우측의 4개의 영상 데이터로부터 IWFR 기법에 의해 얻은 결정 밀면의 파동 함수(exit-surface wave function: EWF)에 대응되는 영상들이다. 이 함수가 복소수 함수임으로 상(phase)-부분, 허수부분, 실수부분 및 강도에 해당되는 4개의 영상들을 얻을 수 있다. 이 중 두 개만 독립함수의 영상이지만 각 영상들의 특징이 있음으로 이들 모두를 분석하는 것이 바람직하다. 그리고 중앙에 단위 셀 영상들은 Fig. 2의 시뮬레이션 영상들에 의한 것이다. 따라서 Fig. 3에 영상들간의 일치 여부는 또 다른 실험영상과 대응되는 시뮬레이션과의 일치 정도를 나타낸다: 허수 부분의 영상에서는 매우 잘 일치한 반면 실수부분과 강도 영상들에서 일정 부분 다른 양상을 띄고 있고 상-부분의 영상에서는 전체적인 패턴에서는 일치하지만 세세한 배경 강도부분에서 명도의 차이를 보이고 있다. 즉 EWF 영상비교는 전통적인 실험영상과 시뮬레이션 영상 비교(Fig. 2의 우측 영상 비교 참조)에서 보다 더 분명한 차이점들이 나타난다. 이러한 차이를 주는 원인에는 이 시뮬레이션 영상에서 고려하지 않은 부분: 시료흐름(drift), 코마(coma), 3-중 비점수차(3-fold astigmatism) 등에 의한 것으로 볼 수 있다.

Fig. 3의 영상들이 결정 밀 표면의 파동함수(EWF)를 잘 나타내고 있는지를 확인 하기 위해 각기 다른 시료두께(30 nm ~ 8 nm)에 대해 EWF 패턴을 시뮬레이션 하였다. 이 결과가 Fig. 4에 보이고 있다. 이 패턴 시뮬레이션에는 현미경의 매개 변수 값들 $\Delta f=C_s=C_a=0$, $\Delta_s=4$ nm, $\beta_s=0.28$ mrad 이 입력되었고 시료의 경사방위도 위에서 제시된 값을 넣었다. Fig. 3의 단위 셀에 의한 이론영상과 일치하는 패턴은 $t=30$ nm의 a) 그림이지만 허수 및 실수부분 영상이 불일치를 보이고 있다. 이 원인은 IWFR 기법 적용에서 얻은 EWF에 대응되는 함수는 복소수 상수 항 $\phi_0^*(g=0)$ (Kim, 2008, (8)식 참조)이 곱해져 있기 때문인 것으로 밝혀졌다. 얇은 시료(weak phase object)에서는 $\phi_0^* \sim 1$ 이지만 두꺼운 시료에서는 이 복소수 항의 상(phase)이 큰 값을 갖는다. 상 및 강도 영상에서는 이 복소수 항이 본질적으로 영향을 주지 않지만 허수 및 실수부 영상에는 분명한 영향을 준다. 이점을 고려했을 때 Fig. 4a와 Fig. 3의 단위 셀에 대한 이론 영상과는 일치한다. 즉 두꺼운 시료에 경우에서도

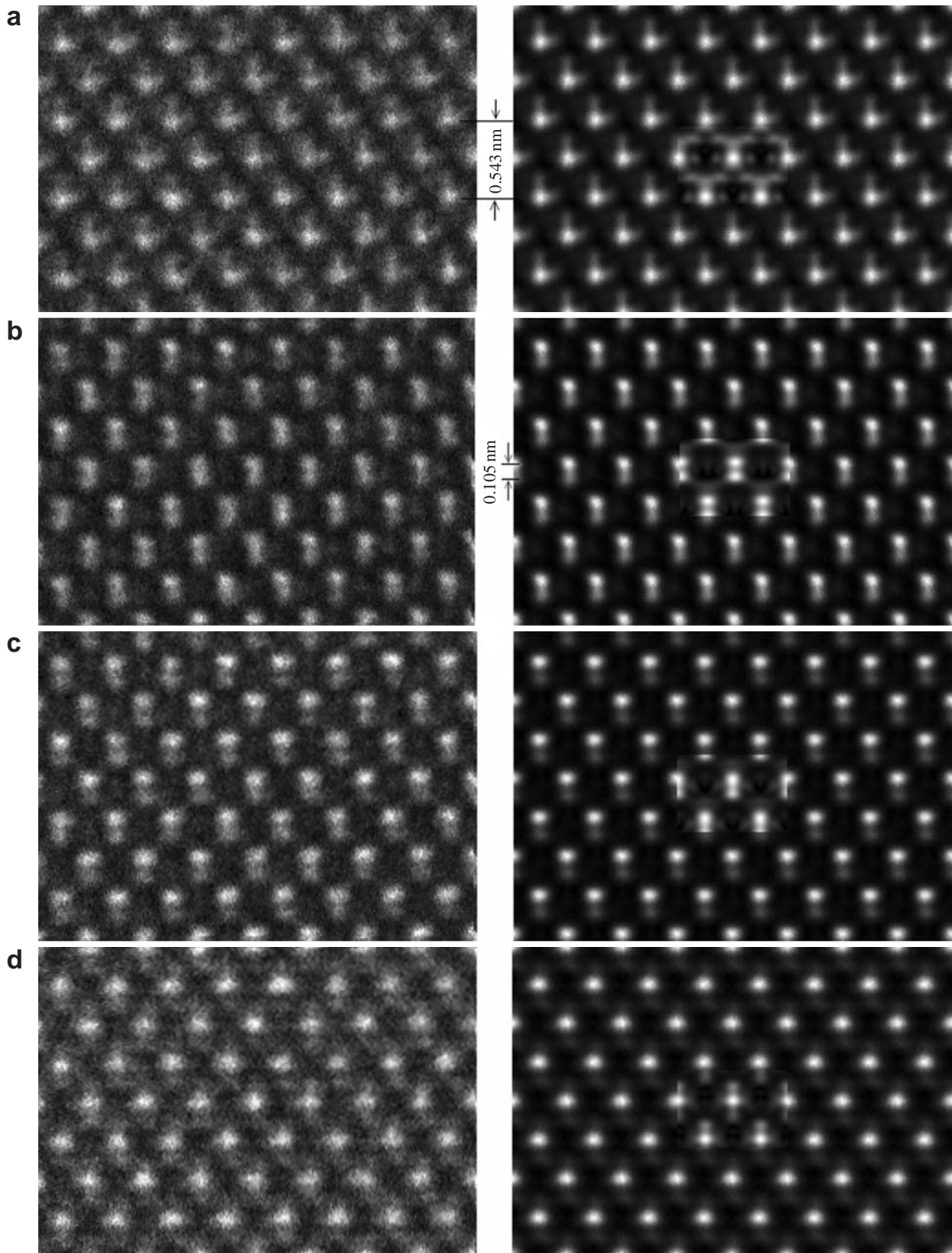


Fig. 2. The experimental images (left) of Si viewed along an [01-1] zone axis orientation at the each steps of defocus, a: $\Delta f = -47$ nm, b: -69 nm, c: -76 nm, d: -86 nm. The right images were processed with the left images by a non-periodic noise filtering and imposing lattice translation symmetry. The simulated cell images of final results are inserted in the middle of the right figures to show good matching.

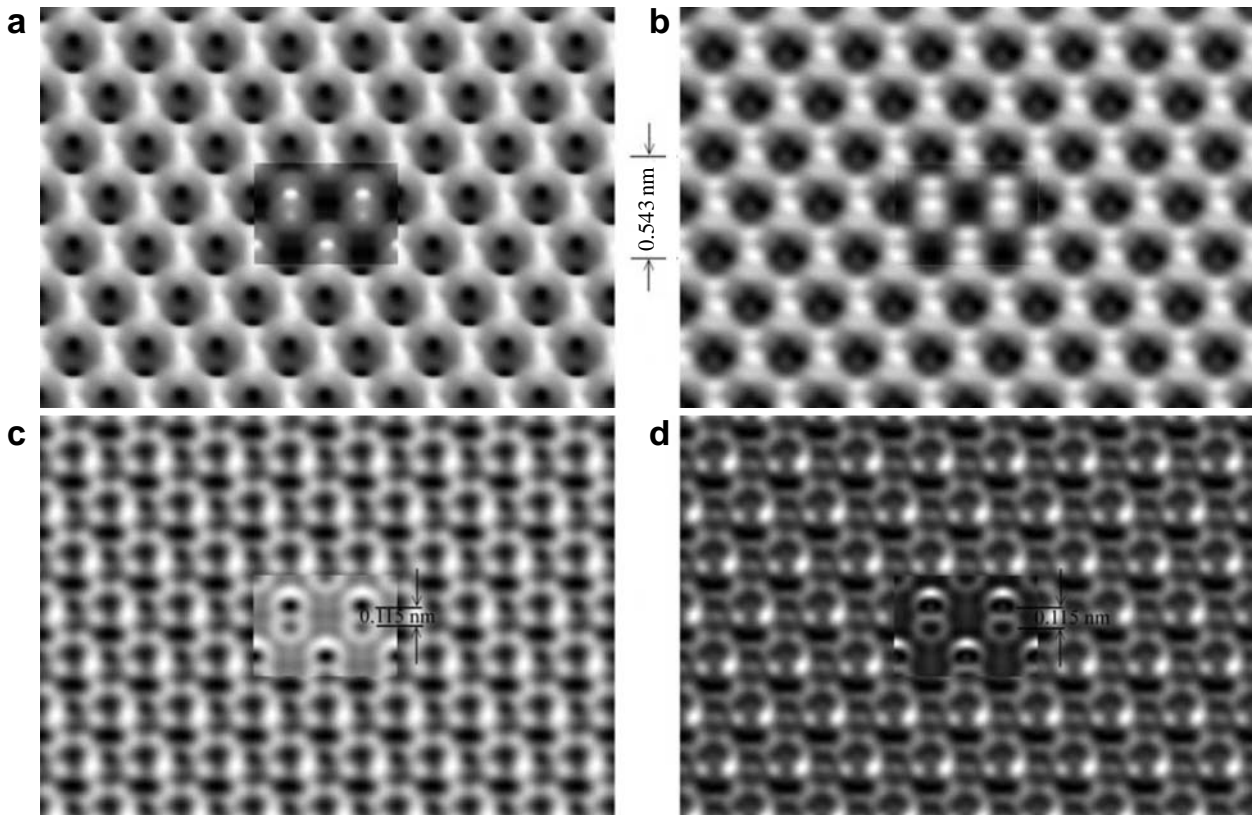


Fig. 3. The image contrasts of the exit wave function evaluated by IWFR method from the right four images in Fig. 2, and a: phase, b: imaginary, c: real, d: intensity of the wave respectively. The cell contrasts inserted in the middle were evaluated from the simulated cell images in Fig. 2. In the c and d, the separation of the two spots indicated as bar lines is 0.115 nm.

IWFR 기법 적용은 EWF 패턴을 얻을 수 있음을 뜻한다.

Fig. 4에서 두께가 증가하면 EWF 패턴은 e)의 아령모양 (dumbbell)의 원자 배열 도형 (electron density map)으로부터 벗어난 정도가 증가함을 볼 수 있다. 즉 $t=25$ nm에 해당하는 b) 그림에서는 명암이 반전되고, $t=30$ nm의 a)에서 재반전이 일어나고 있다. 이것은 이 영역에서는 두께에 따른 EWF의 산란 진폭이 민감하게 변화한다는 사실을 의미한다. 시료 방위의 경사 효과가 d)의 8 nm의 두께의 패턴에서는 투영된 결정 퍼텐셜을 거의 그대로 반영하고 있기 때문에 거의 볼 수 없지만 두꺼운 시료의 a) 패턴에서는 아령모양의 두 밝은 점들 (dumbbells)의 명도차이가 뚜렷하게 나타난다. 즉 입사 빔의 다중산란으로 인해 투영된 퍼텐셜과의 불일치 패턴이 나타나게 된다. 그리고 이들 점들이 사이에 간격이 원자배열 간격 0.136 nm에 d)에서는 그대로 나타나 있지만 a)에서는 0.115 nm로 줄어드는 것을 볼 수 있다. 이들 효과도 물론 시료두께가 증가함으로써 투영된 퍼텐셜의 패턴과는 무관하게 전자 빔의 다중산란 증대에 따른 파동의 진폭의 상 (phase) 변화가 일어나는 원인에 의한 것이다. 그럼에도 불구하고 전체적인 패턴은 원자배열의 패턴을 대체로 그대로 반영 유지되면서 주변의 명암 차이가 변화함을

볼 수 있다. 반면 고 분해 영상 자체인 Fig. 2에서는 밝은 점의 위치는 실은 원자가 없는 빈 공간에 해당되고 오히려 어두운 공간이 원자배열 위치 공간이다. 다시 말하면 시료의 전체적인 원자열 패턴을 나타내고 있는 Fig. 4의 a)와 근사적으로 일치하는 Fig. 3은 시료의 결정학적 정보를 얻는데 매우 중요함에 틀림없다.

2) [11-2]축 방위에 경우

Fig. 5는 [01-1] zone-축 방위로부터 30도 회전한 [11-2] 방위에서 얻은 영상들이다. 우측 영상들 중앙에 보이고 있는 단위 셀에 대한 영상은 시뮬레이션 한 것이며 주위 실험 영상들과 비교 할 때 잘 일치하고 있다고 판단된다. 이 시뮬레이션에 입력된 중요 데이터는 두께 $t=30/\cos(30^\circ)\approx 35$ nm, 시료의 입사 빔의 방향에 대한 방위는 [11-2]-zone축으로부터 $[-111]$ 방향으로 0.3 mrad 각으로 ($K_x=0.15$ g(-111) 해당) 경사되어 있고, 비점수차 계수 $C_a=15$ nm 및 장-축으로 $[-111]$ 이 입력되었다. 그리고 각 영상에 대한 일련의 비초점 값들의 평균간격은 10 nm이고 이 값에서 최대 변동은 2 nm임을 보여주고 있다. 이 값은 자동 입력된 비 초점 단계 값 12 nm와 대비된다.

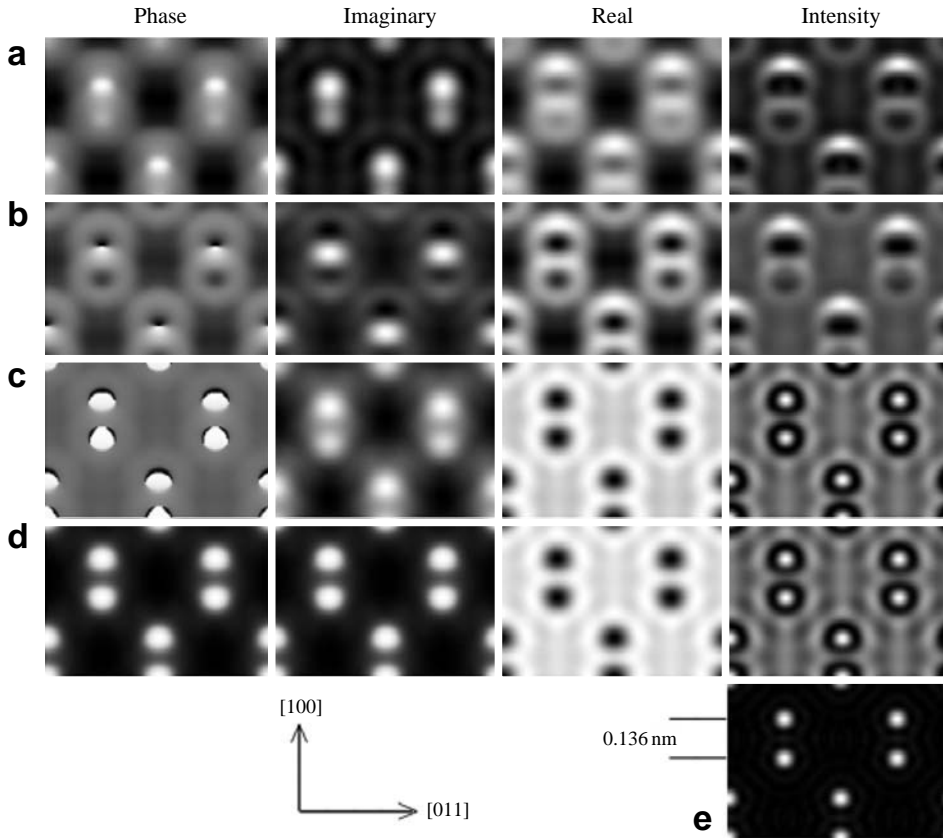


Fig. 4. The calculated contrast images of the exit waves with the same damping envelopes in Fig. 2 for the each thickness of specimen as a: 30 nm, b: 25 nm, c: 15 nm, d: 8 nm. e is the electron density map projected along [01-1] zone axis direction in a cell dimension.

Fig. 6은 Fig. 5의 우측의 6개의 영상 데이터로부터 IWFR 기법에 의해 얻은 결정 밀면의 파동 함수(EWF)에 대응되는 영상들이다. 그리고 중앙에 단위 셀 영상들은 Fig. 5의 시뮬레이션 영상들에 의한 것이다. 이 영상들과 실험 영상들에 의한 주위 영상들과는 모두 잘 일치한다고 생각된다.

Fig. 6의 영상들이 결정 밀 표면의 파동함수(EWF)를 잘 나타내고 있는지를 역시 확인 하기 위해 각기 다른 시료두께 (35~8 nm)에 대해 EWF 패턴을 시뮬레이션 한 결과가 Fig. 7에 보이고 있다. 시료의 경사방위는 위에서 제시된 같은 값을 넣었다. Fig. 6의 단위 셀에 의한 영상과 일치하는 패턴은 t=35 nm의 a) 그림이지만 강도 영상을 제외하고 다른 영상들의 명암이 반전되어 있고 이 중에서도 실수부분의 영상에서 다소 불일치를 보이고 있다. 이 원인은 앞에서 논의된 이유에 의한이다. 다만 상(phase)영상의 반전이 된 이유는 다음과 같다: 이 경우 영상강도 값이 $-\pi$ 에서 $+\pi$ 값을 취하게 되는데 상수 복소수 항의 phase가 더해지면 기준점이 이 경계선을 넘어 상이 단순 반전되는 효과를 가져오기 때문이다.

Fig. 7에서 두께가 증가하면 EWF 패턴은 e)의 아령모양(dumbbell)의 원자 배열 도형(electron density map)이 없어짐을 볼 수 있다. 두꺼운 시료의 a) 패턴에서는 아령모양의 두 밝은 점들(dumbbells 원자열 간격: 0.078 nm)이 d)에서는

막대 모양의 분해 양상으로 볼 수 있지만 a)에서는 전혀 분해되지 않은 원 모양으로 나타나 있다. 이들 효과는 물론 앞에서 논의 하였던 시료두께가 증가함으로써 전자 빔의 다중산란 증대에 따른 파동의 진폭의 상(phase) 변화가 일어나는 원인에 의한이다. 이 경우에서도 마찬가지로 전체적인 패턴은 원자배열의 분해 한계 내에서 그대로 반영 유지됨을 볼 수 있다. 반면 고 분해 영상 자체인 Fig. 5f에서 결보기 패턴은 Fig. 7e의 원자배열 패턴과 유사하지만 그러나 이는 (1)식에 의한 진폭의 상 변화에 기인한 왜곡된 영상임을 알 수 있다.

고 찰

고 전압 TEM(이 실험에서 1,250 kV)을 사용할 경우 비교적 두꺼운(30~35 nm) 결정에 대해서도 선명한 고 분해 영상을 얻는다. 그런데 이 현미경으로부터 획득한 일련의 비 초점 단계의(4~6개) 영상들에 대해 IWFR 기법을 적용했을 때 결정 밀 표면에 파동함수(EWF: exit-surface wave function)를 잘 얻을 수 있는지 또 이 파동함수로부터 의미 있는 결정구조의 단서를 얻을 수 있는지 알아보는 것이 이 실험에 관심사이다. 물론 얇은 결정(10 nm 이하)의 경우에

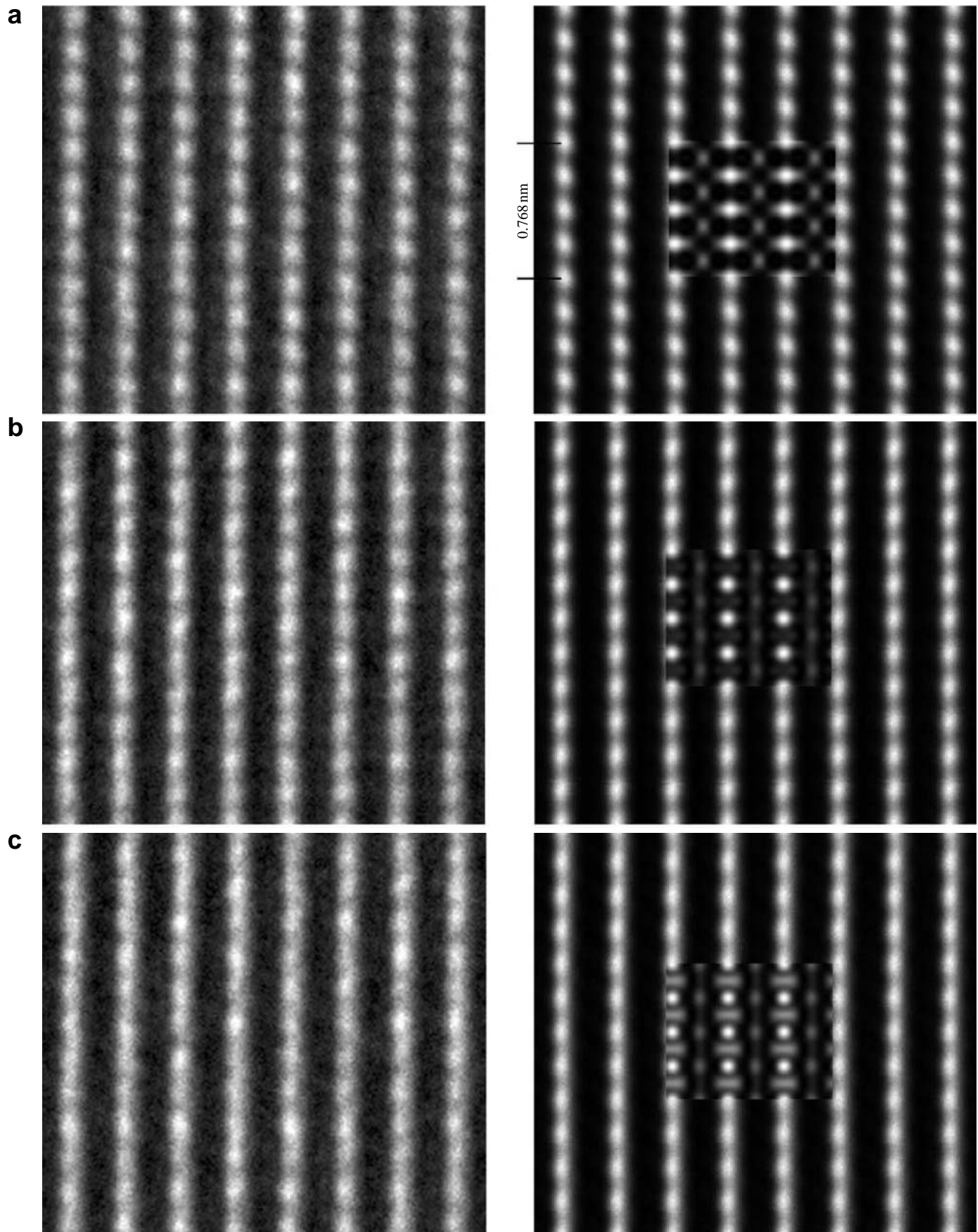


Fig. 5. The experimental images (left) of Si viewed along an [11-2] zone axis orientation at the each steps of defocus, a: $\Delta f = -45$ nm, b: -55 nm, c: -65 nm, d: -75 nm, e: -87 nm, f: -97 nm. The right images were processed with the left images by a non-periodic noise filtering and imposing lattice translation symmetry. The simulated cell images of final results are inserted in the middle of the right figures to show good matching.

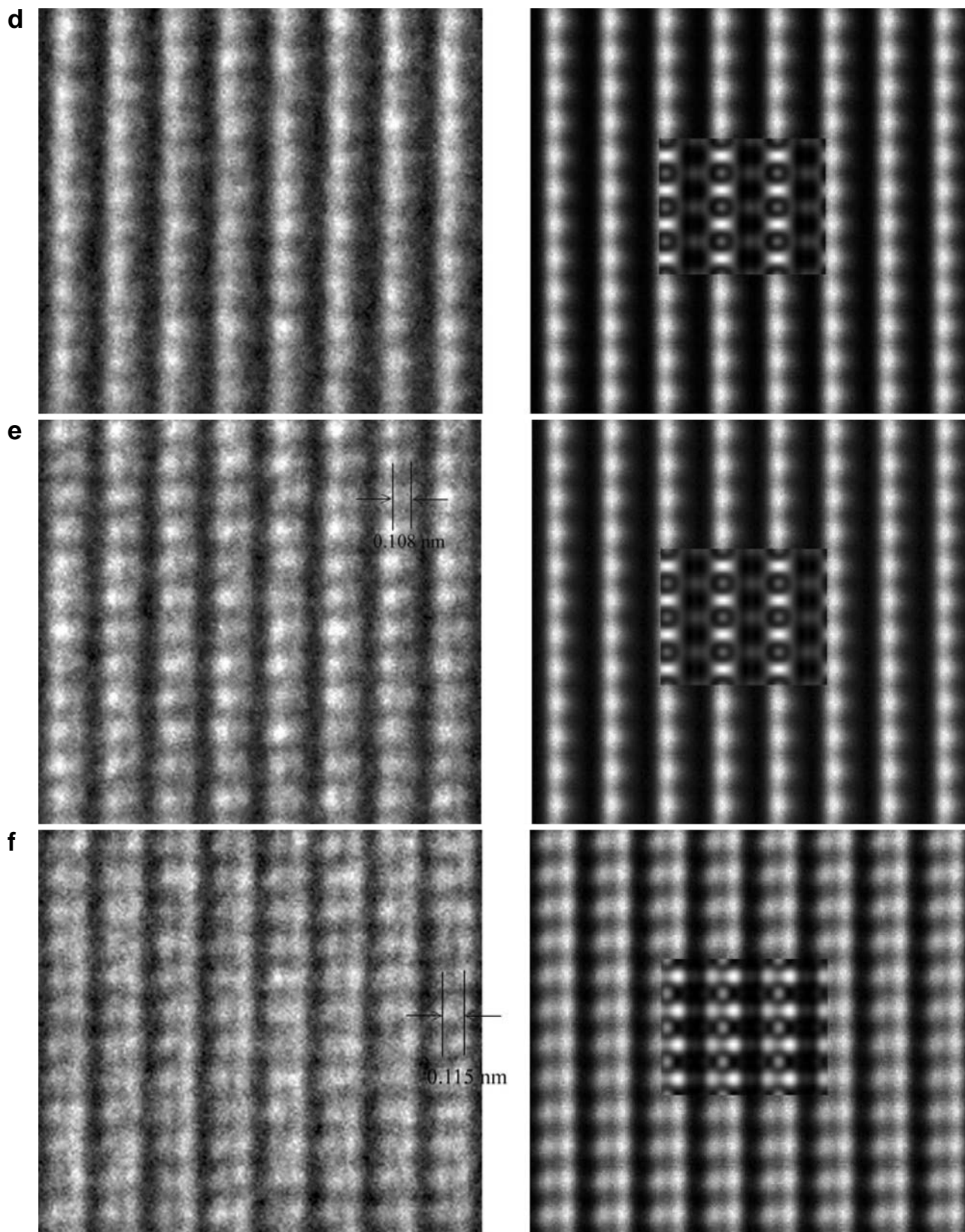


Fig. 5. Continued.

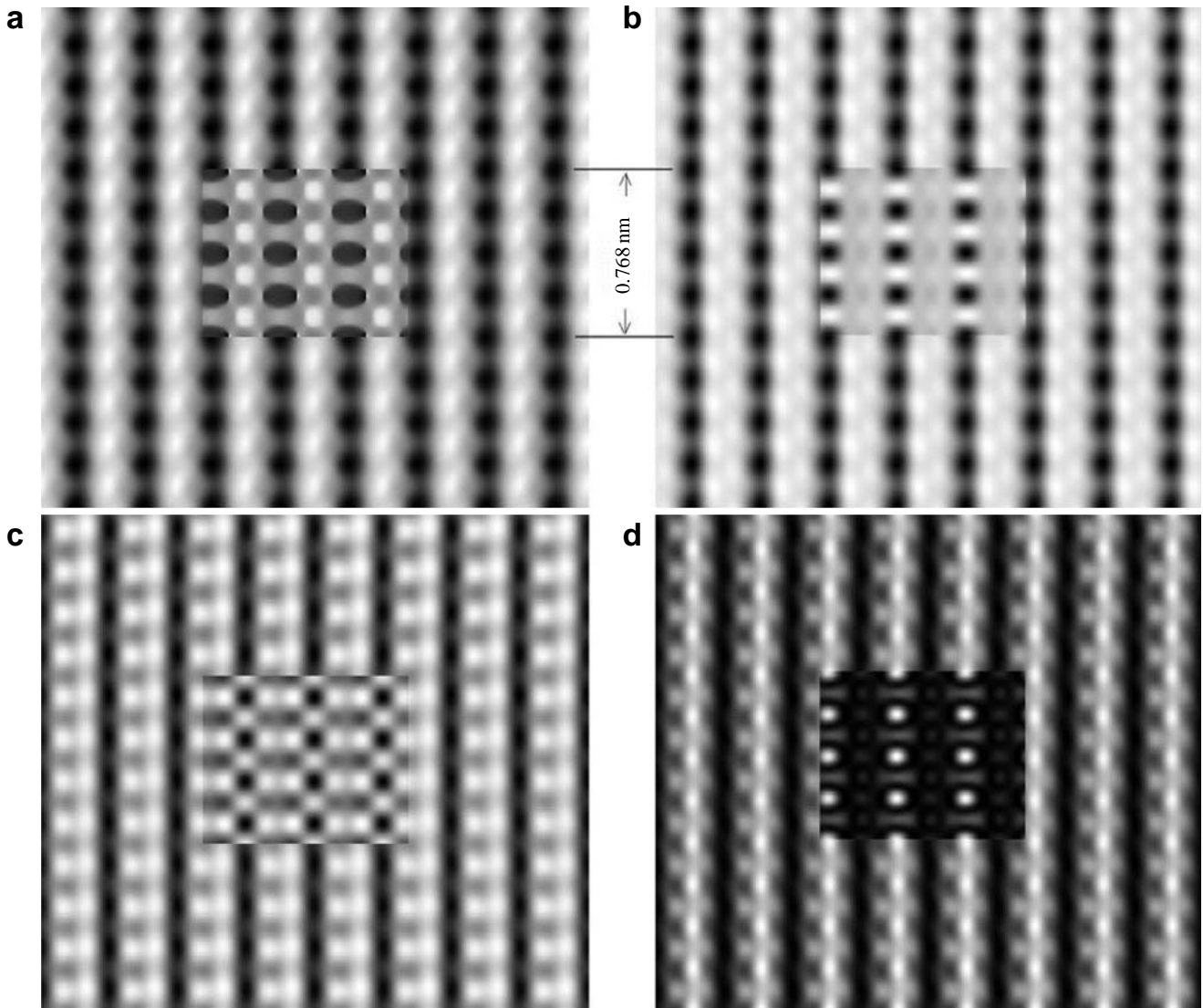


Fig. 6. The contrast images of the exit wave function evaluated by IWFR method from the right six images in Fig. 5, and a: phase, b: imaginary, c: real, d: intensity of the wave respectively. The cell contrasts in the middle were evaluated from the simulated cell images in Fig. 5.

서 얻은 EWF의 상(phase) 및 허수부 영상들은 결정의 zone 축으로 투영된 퍼텐셜을 그대로 잘 반영하고 있어 원자 배열 구조를 직관적으로 판단해 주게 된다(Allen et al. 2004; Kim, 2008). 그러나 시료가 두꺼울 경우에는 다중산란에 의한 효과는 무시할 수 없으므로 얇은 시료의 경우에서 보다는 다소 불확실한 결과를 예상할 수 있다. 실리콘 결정에 대한 이 실험의 결과 두꺼운 시료의 영상들로부터 IWFR 기법 적용으로 얻은 함수는 복소수 상수 항의 phase를 고려했을 때 EWF와 대체로 잘 일치함을 보였다. 이들 패턴과 zone 축으로 투영된 결정 퍼텐셜 영상과의 비교에서는 전반적인 패턴에서는 일치하나 본질적인 다중산란에 의한 효과로 인해 원래의 원자 배열 구조를 그대로 반영되기 보다는 감소된 분해를 보이는 평균적인 형태의 영상이 얻어짐을 알

았다. 그러므로 IWFR 분석으로부터 두꺼운 시료의 경우, 얇은 시료의 경우와는 달리 결정적인 결정학적 정보를 얻을 수는 없지만 매우 유용한 단서는 얻을 수는 있다고 본다.

고 분해 영상 실험에서 영상의 중요한 매개 변수 즉 비초점 값과 비점수차 데이터 등은 IWFR 기법에서는 가능한 정확히 알 필요가 있다. 물론 전통적인 영상 시뮬레이션에서도 반드시 필요한 변수 들이다. 그럼에도 불구하고 영상 관찰에서 이들 변수를 결정 하는 것이 쉬운 일이 아니다. 그러나 대개의 경우 즉 합금이나 반도체의 결함 정보를 알고자 하는 실험에서 모 결정의 결정학적 데이터는 잘 알려져 있으므로 이번 실험에서 한 바와 같이 시뮬레이션 작업을 통해 이들 변수를 정하는 일은 항상 가능하다. 일반적으로 이 문제에 대한 표준적인 해결 방법으로 시료 뒷면에

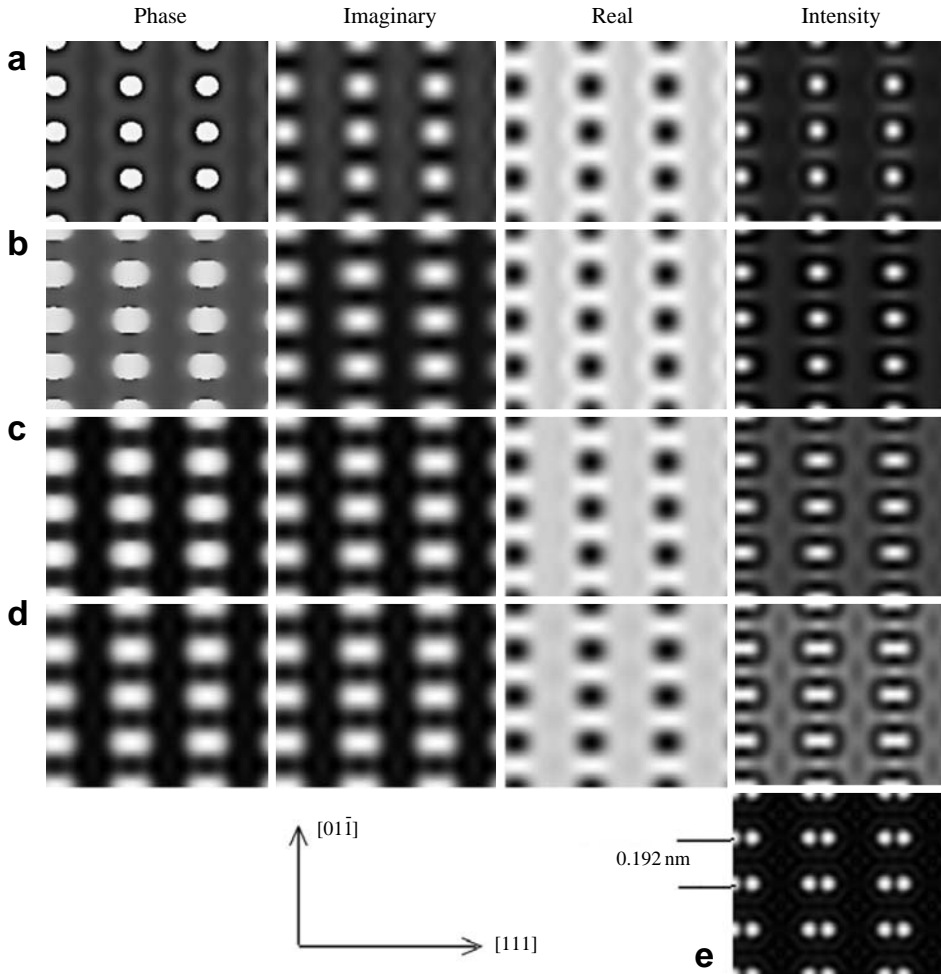


Fig. 7. The calculated contrast images of the exit waves with the same damping envelopes in Fig. 5 for the each thickness of specimen as a: 35 nm, b: 25 nm, c: 15 nm, d: 8 nm. e is the electron density map projected along [11-2] zone axis direction in a cell dimension.

1~2 nm의 비 정질 탄소 막을 입힌 후 얻어진 영상들에 대한 FT (Fourier Transformation)를 적용해서 초점 및 구면 수차 및 여러 비점 수차를 정할 수 있다(Kisielowski et al., 2001). 여기서 반드시 언급하여야 할 것은 IWFR 기법을 적용하기 위해서는 가능한 한 최상에 영상들이 필요하다. 이 실험에 경우 비 격자 주기 배경 강도 제거 및 격자 주기 대칭성을 부과한 영상처리 (image processing) 후의 영상들을 사용했다. 그러나 결함을 포함하는 결정시료에 경우 이 작업을 할 수 없다. 그러므로 이를 극복하기 위해 각각의 비 초점단계에 대해 5~10개의 동일 조건의 영상들을 얻어 이들을 합-평균을 취하는 통계적 영상처리를 할 필요가 있다고 본다. 최근 Voelkl et al. (2008)은 단일 조건의 50개의 영상들을 얻은 후 이들 영상들에 대한 시료흐름을 교정하고 합-평균을 수행하여 S/N (Signal/Noise) 비율과 영상의 질을 획기적으로 개선 (회색 음영의 단계를 증가시킴: dynamical range의 증가)한 결과가 보고되었다. 즉 실험적으로 이 방법의 유용성이 입증되었다고 본다.

끝으로 과거로부터 하여온 관측영상에 대한 시뮬레이션 영상과의 비교분석이 필요한 실험에서 단일 영상에 대해서

만 이를 수행할 경우 잘못된 모델에 대해서도 매개 변수 조정으로 관찰 영상과 유사한 영상을 얻을 수 있다. 즉 실험 결과의 오류를 가져 올 수 있다. 따라서 이를 피하기 위하여 일련의 4~6개의 영상에 대해 비교분석이 요구된다. 이와 함께 IWFR 분석을 병행하면 더욱 신뢰를 주는 실험 결과를 얻을 수 있다고 판단된다. 그 밖에 이 실험의 한 결과로서 JEOL ARM 1300S에 의한 고 분해 영상으로부터 얻을 수 있는 정보한계가 0.105 nm 정도임이 밝혀졌고, 더 나아가 IWFR 기법을 적용 할 경우 15 nm 이하의 두께 결정에 대해 이 한계가 0.07 nm까지 향상 될 것이 예측된다 (Kim, 2008 Table 1 참조). 앞으로의 실험에서 이 한계를 확인 해 보고자 한다.

결 론

30~35 nm의 비교적 두꺼운 시료에 대해서도 고 전압 (1,250 kV)의 투과 현미경에 의한 일련의 영상들로부터 IWFR 기법을 적용하면 결정 및 표면의 파동함수를 얻을

수 있음이 밝혀졌다. 이 파동함수는 다중 산란에 의한 효과가 분명히 내재해 있지만 시료의 원자열 구조의 패턴을 대체적으로는 잘 반영하고 있음으로 시료의 결정학적 정보를 얻는 데 매우 유용하다고 본다.

참 고 문 헌

- 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 C_s correction using iterative wave-function reconstruction. *Microscopy and Analysis* 52 : 5-7, 2006.
- Chang LY, Kirkland 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.
- Kim HS: A Review of IWFR method for HRTEM image analysis and application. *Korean J Microscopy* 38(1) : 63-72, 2008. (Korean)
- Kim HS: Effects of higher-order Laue zone reflections on HRTEM images for illumination along an off-zone axis of a crystal. *Korean J Electron Microscopy* 37(4): 259-269, 2007. (Korean)
- Kim JG, Kang SK, Kim WC, Kim YJ: Three-dimensional structure analysis of $\text{SmZn}_{0.67}\text{Sb}_2$ by transmission electron microscopy. *Korean J Electron Microscopy* 34(4) : 255-264, 2004. (Korean)
- Kisielowski C, Hetherington CJD, Wang YC, Kilaas R, O'Keefe MA, Thust A: Imaging columns of the light elements carbon, nitrogen and oxygen with sub angstrom resolution. *Ultramicroscopy* 89 : 243-263, 2001.
- Spence JCH: *Experimental high resolution electron microscopy*. Oxford Univ Press, Oxford, 1981
- 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.
- Voelkl E, Jiang B, Dai ZR, Bradley JP: Improving image quality and reducing drift problem via automated data acquisition and averaging in a C_s -corrected TEM. *Microscopy Today* 16(6) : 36-38, 2008.

< 국문초록 >

이 논문에서는 비교적 두꺼운 결정에 대한 일련의 고 분해 영상들에 대한 IWFR 분석의 유용성을 실험하였다. 이를 위해 JEOL ARM 1300S를 이용하여 실리콘 결정의 30 nm 두께의 [01-1] 방위와 35 nm 두께의 [11-2]에 대한 일련의 비 초점 단계의 고 분해 영상들을 관찰하였다. 이로부터 두꺼운 시료에 대해서도 IWFR 분석 결과로부터 결정 밀 표면의 파동함수를 얻을 수 있음이 밝혀졌다. 그러나 강한 동역학적 산란에 의한 효과 때문에, 이 함수의 영상패턴은 시료의 원자열 구조의 패턴을 다만 정성적으로만 반영하고 있다. 그럼에도 불구하고 이 패턴은 결정구조의 중요한 단서를 제공할 것임은 의심의 여지가 없다.