

## LACBED 패턴으로부터 전자빔의 파장 측정 방법

김 황 수  
경성대학교 이과대학 물리학과

### A Method to Determine the Wavelength of Electron Beam from LACBED Pattern

Hwang Su Kim  
Department of Physics, Kyungsung University, Namku, Busan 608-736  
(Received July 9, 2003; Accepted July 23, 2003)

#### ABSTRACT

The operating accelerating voltage in the electron microscopy may differ from the nominal voltage specified by the manufacture. Thus it is necessary, at least once, to determine the wavelength of electron beam for the nominal accelerating voltage. Particularly in QCBED technique, the wavelength of the incident electron beam on a specimen must be determined as accurately as possible.

In this paper we present a simple method to determine accurately the wavelength of electrons from LACBED patterns of a known crystalline materials, which is analogous to a method based on Kikuchi patterns reported previously. This method is to utilize three diffraction lines not belonging to the same zone, which nearly intersect at the same point. For an application of the method, the wavelength of electrons for the 200 kv nominal acceleration voltage of JEM2010 is determined to be 0.002496(3) nm ( $201.5 \pm 0.4$  kv) with an uncertainty of 0.12%.

**Key words** : Electron wavelength, LACBED, QCBED

#### 서 론

일반적으로 전자현미경의 계기상 정격 가속전압에 의한 전자 빔의 파장 계산 값과 실질적으로 시료에 입사 되는 전자빔의 파장과는 어느 정도의 차이가 있을 수 있다. 실험 특성상에 따라서는 이 차이는 매우

중요한 의미를 가질 수 있다. 따라서 적어도 한번은 새로운 전자현미경에 대해 전자빔의 파장 값을 정확하게 측정 할 필요가 있다. 최근 전자현미경 정밀화 발전에 따라 특히 QCBED (Quantitative Convergent Beam Electron Diffraction) 기법분야에서 시료 결정의 결정학적 인자 즉, 격자상수, 결정의 구조 인자 등을 정확하게 결정하는 논문들이 발표되고 있다. 그리고

이 논문은 2003학년도 경성대학교 특별과제연구비에 의하여 연구되었음.

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

Copyright © 2003 Korean Society of Electron Microscopy

이들 인자들 결정에는 우선적으로 전자빔 파장의 가능한 한 정확한 값을 알아야 한다. 이들 논문에서 사용한 파장 결정 방법은 대체로 실리콘 표준 시료에 대한 HOLZ (High Order Laue Zone) CBED 회절 패턴과 동력학적 이론 계산 패턴과의 비교 대조에 의한 것이다. 그들이 발표한 각각의 전자 현미경에 대해 결정된 파장 값에 대응되는 가속전압은 다음과 같다.

Saunders et al. (1995)은 Phillips EM420 TEM에 대해  $118.0 \pm 1$  kv (120 kv 정격전압), Tsuda & Tanaka (1999)는 J2010FEG TEM에 대해 100.7 kv (100 kv), Saunders et al. (1999)은 Hitachi HF2000 FEG-TEM에 대해  $198.2(2)$  (200 kv), Zuo (1998)는 Phillips CM200에 대해 196.7 kv (200 kv), Jiang & Spence (2002)은 Leo-912 TEM에 대해 119.6 kv (120 kv)를 발표하였다. 다른 한편 Hoier (1969)는 실리콘 표준 시료의 Kikuchi 회절선의 간단한 분석 계산으로부터 JEM-7 현미경에 대해  $94.2 \pm 0.1$  kv (100 kv)를 얻었다.

본 논문의 목적은 분석하고자 하는 일반적인 결정의 LACBED (Large Angle CBED) 패턴으로부터도 전자빔 파장을 회절이론의 복잡한 동력학적 계산 없이, 비교적 간단하게 결정 할 수 있는 방법을 제시 하는데 있다.

## 재료 및 방법

### 1. 방법 이론

방법 이론 자체는 Hoier (1969)가 채택한 방법과 같다. 그러나 이 방법 적용면에서 Kikuchi 패턴(전자빔과 결정과의 2차적 열적 산란에 의한 것)보다는 LACBED 패턴을 이용하는 것이 실질적인 면에서 파장 측정에 보다 적합하다. 전자빔의 파장을 구하는 방정식은 다음과 같다.

$$\mathbf{H}_i \cdot \mathbf{r}_i = 1/2\lambda |\mathbf{r}_i| |\mathbf{H}_i|^2, i=1, 2, 3 \quad (1)$$

그리고

$$|\mathbf{r}_i|^2 = x_i^2 + y_i^2 + z_i^2 = 1 \quad (2)$$

여기서  $\mathbf{H}_i$ 는 Bragg 법칙을 만족하는 하나의 회절 역 격자 벡터,  $-\mathbf{r}_i$ 는 전자빔 방향의 단위 벡터,  $\lambda$ 는 구

하려는 전자빔의 파장이다. 이 방정식은 Bragg법칙을 만족하는 각 회절 벡터의 기하학적인 삼각형으로부터 쉽게 얻어진다. LACBED 패턴에서는 높은 지수  $\mathbf{H}_i$ 에 대해 Bragg 회절은 Figs. 1, 2, 3에서 보여주듯이 선으로 나타난다. Fig. 1에서 중심부의 굵은 선은 회절 입사 빔에 해당하고 Bragg 회절에 의해 빔의 강도 결손이 일어나므로 Bright LACBED 패턴에서 검은 선으로 나타나는 반면, 회절된 빔은 이 검은 선과 평행한 밝은 선으로 나타나며 그림에서 점선으로 표시되어 있다(Figs. 2, 3은 negative prints이므로 이것이 반전되어 있다).

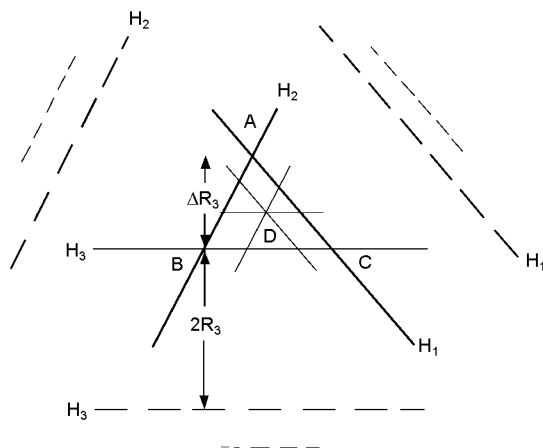
만약 같은 평면에 있지않은 3개의 역 격자 벡터  $\mathbf{H}_i$  선들이 Fig. 1의 D점에서와 같이 한 점에서 만나면 이 점에서 입사빔 방향의 단위 벡터는 이 3개의 회절벡터에 대해 동일하고 따라서 방정식(1)에서  $\mathbf{r}_i = \mathbf{r}_0$  ( $i=1, 2, 3$ )에 놓을 수 있다. 그러면 방정식 (1)과 (2)로부터 알려진 결정에 대해 전자빔의 파장  $\lambda$ 가 결정된다. 그리고 여기서 주목 할 것은 D점 부근의 국소적인 체계에서만 완전 결정이면 결정된 파장 값은 정확하다는 점이다. 따라서 완만한 결정 변형 장(strain field)을 갖고 있는 일반적인 시료 결정에 대해서도 국소적으로는 완전 결정으로 볼 수 있으므로, 이러한 일반 결정 시료를 이용해서도 상당히 정확하게 전자빔의 파장을 결정 할 수 있다.

방정식(1)과 (2)를 바로 적용하는 데는 3개의 회절 벡터가 정확하게 한 점에서 만나야 하는데 실질적으로 이러한 경우는 확률적으로 매우 적다. 따라서 3개의 벡터가 이루는 삼각형의 면적이 가능한 한 작은 경우를 택해 다음과 같이 수정된 근사식을 이용 파장을 결정 할 수밖에 없다. 가령 Fig. 1에서와 같이  $\Delta ABC$ 에서  $\mathbf{H}_3$ 에 대해서만 Bragg 회절의 입사 파장의 값을 가상적으로 변화시키면 이 벡터의 회절선이 정확하게 A점에서 만나게 할 수 있다. 그리고 이 가상 변환 파장은 다음 관계식을 갖는다.

$$\lambda_3 = \lambda + \Delta\lambda_3 \cong \lambda (1 + \Delta R_3/R_3) \quad (3)$$

여기서  $\Delta R_3/R_3$ 값은 관측된 LACBED 패턴에서 자로 직접 측정하여 얻어지는 값이다. 식(3)을 (1)에 대입하여  $\lambda$ 를 얻는 식을 풀어 쓰면,

$$h_1x + k_1y + l_1z = (h_1^2 + k_1^2 + l_1^2)/2$$



**Fig. 1.** Schematic drawing of a near triple intersection of diffraction lines at A, B and C as in a LACBED pattern. The  $\mathbf{H}_i$ ,  $i = 1, 2, 3$ , are the reciprocal lattice vectors not belonging to the same zone. The solid lines are for the transmitted diffracted lines and the dashed lines for the diffracted lines by  $\mathbf{H}_i$ . At a certain wavelength of the electron incident beam on a specimen, the three transmitted diffraction lines may meet at D. The  $R_3$  represents the magnitude of  $\mathbf{H}_3$ .

$$\begin{aligned} h_2x + k_2y + l_2z &= (h_2^2 + k_2^2 + l_2^2)/2 \\ h_3x + k_3y + l_3z &= (h_3^2 + k_3^2 + l_3^2)(1 + \Delta R_3/R_3)/2 \end{aligned} \quad (4)$$

그리고

$$\lambda = a_0/(x^2 + y^2 + z^2)^{1/2} \quad (5)$$

이 식에서  $(h_i, k_i, l_i)$ ,  $i = 1, 2, 3$ 는  $\mathbf{H}_i$ 를 나타내는 정수 값을 갖는 지수 값들.  $a_0$ 는 입방 결정의 격자상수. 연립방정식(4)로부터  $(x, y, z)$ 를 구한다음 (5)식에 대입 함으로서 파장  $\lambda$ 가 최종 구해진다. 물론 그림에서와 같이 삼각형의 다른 꼭지점 B와 C에 대해서도 순차적으로  $\Delta R_i/R_i$ ,  $i = 1, 2$ 를 측정 대입 함으로서 각각의 파장이 구해지고 이들 값에 평균을 취함으로써 결과에 대한 신뢰도를 더욱 높일 수 있다. 관계식(4)와 (5)는 입방 결정 구조에 대한 것이나 일반 결정 구조에 대해서도 쉽게 비슷한 전개식을 얻을 수 있다.

여기서 파장 값에 오차는 주로  $\Delta R_i/R_i$ 의 측정 오차와 회절선들이 이루는 삼각형 ABC영역이 완전 결정성에서 벗어난 정도에 따른다. 완전 결정에 가까운 표

준 실리콘과 같은 것이 아닌 시료를 이용 할 경우, 삼각형의 면적이 크면 클수록 후자에 의한 오차가 전자를 압도 할 것으로 예상된다.

또 다른 흥미 있는 방법은 Forwood & Clarebrough (1991)에 의한 것인데 그 방법은 다음과 같다. Fig. 1에서  $\mathbf{H}_1$  회절쌍의 중심선들은 또 다른 삼각형 A'B'C'를 이루고 이 삼각형 꼭지점에 만나는 두 선들의 수직 벡터는 결정의 회절 평면과 평행하며 Bragg 회절 각과 무관하다. 만약 꼭지점 A'와 B'에서 교차하는 회절선들의 각각의 수직 벡터들이 이루는 각을  $\theta$ 라 할 때 이 각은 일반적으로 작은 값이므로 다음 식이 성립한다.

$$\theta/\lambda \cong |A'-B'| |\mathbf{H}_1| / |H_1 - H_1| \quad (6)$$

이 식에서  $|A'-B'|$ 는 꼭지점 A'과 B'과의 측정거리,  $|H_1 - H_1|$ 는  $\mathbf{H}_1$  회절쌍의 평행선간의 측정거리이며,  $|\mathbf{H}_1|/|H_1 - H_1|$ 의 값은 주어진 결정에 대해  $i = 1, 2, \dots$ 의 모든 값에 대해 이론적으로는 같아야 한다. 실질적으로 관측되는 모든  $i$ 에 대해 측정 평균 값을 취하게 된다. 이 방법에 의한 파장 결정 값에 오차 요인은 전자 방법의 방법에 대해 위에 논의한 것과 본질적으로 같으나 실질적으로 회절 선들의 중앙선을 잇는 삼각형 A'B'C'를 작도하는 과정의 부정확도에서 오는 오차가 추가적으로 발생 될 것으로 예상된다.

## 2. LACBED 패턴 관찰 및 전자빔 파장 결정

순수 알루미늄 100  $\mu\text{m}$  두께의 박막을 TEM 조사가 가능하도록 3 mm 원판을 Twin Zet Polisher (TenuPol-5)로 과염소산 40% + 증류수 60%의 전해질 용액으로 20 v, 5°C에서 연마하였다. 알루미늄의 격자상수는 상온에서  $a_0 = 0.40497 \text{ nm}$  면심 입방 결정 구조이다 (Pearson, 1964). 사용된 투과식 전자현미경은 JEM2010 (HR pole piece, 부경국립대학교 공동실험실 실습관 소재 J2010TEM)이다. Fig. 2와 Fig. 3은 TEM 모드에서 관찰된 각각 약간씩 다른 영역의 LACBED 패턴들이다. Fig. 2는 시료를 빔의 수렴 점에서 위로 약 22  $\mu\text{m}$  올린 것이고 Fig. 3은 over focused 된 상태의 회절 패턴이다. 가속전압은 200 kv로 높았고 전자빔이 조사된 시료 면적의 직경은 약 750 nm, 두께는 220 nm, 빔 수

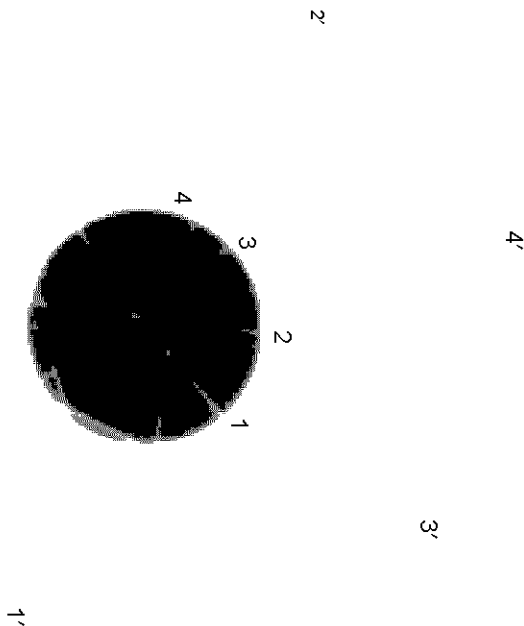


Fig. 2. The negative print of the over focused LACBED pattern of the specimen of Aluminum. For the numbered diffraction lines of  $H_i$  ( $i = 1, 4$ ), see text. This figure is enlarged by 3.125 times from the original photograph with the camera length 37.5 cm.

Table 1. The pairs (the transmitted and diffracted lines) of diffraction lines analyzed from the fig. 2

$H_i$	H	k	l
1-1'	-1	-5	-1
2-2'	-3	5	1
3-3'	6	-2	0
4-4'	5	3	1

Table 2. The ratio of  $\Delta R_i/R_i$  was estimated from the enlarged fig. 2 by 1.6 times with a photoshop software

$H_i$	h	k	l	$\Delta R_i/R_i$	$\lambda$ nm
1-1'	-1	-5	-1	-0.050	0.002500
2-2'	-3	5	1	-0.030	0.002501
3-3'	6	-2	0	-0.033	0.002494

Average : 0.002498 nm

럼 각은 2도 정도이고(이때 Condenser Aperture는 120  $\mu$ m), 수렴 빔의 직경은 10 nm 내외로 측정되었다.

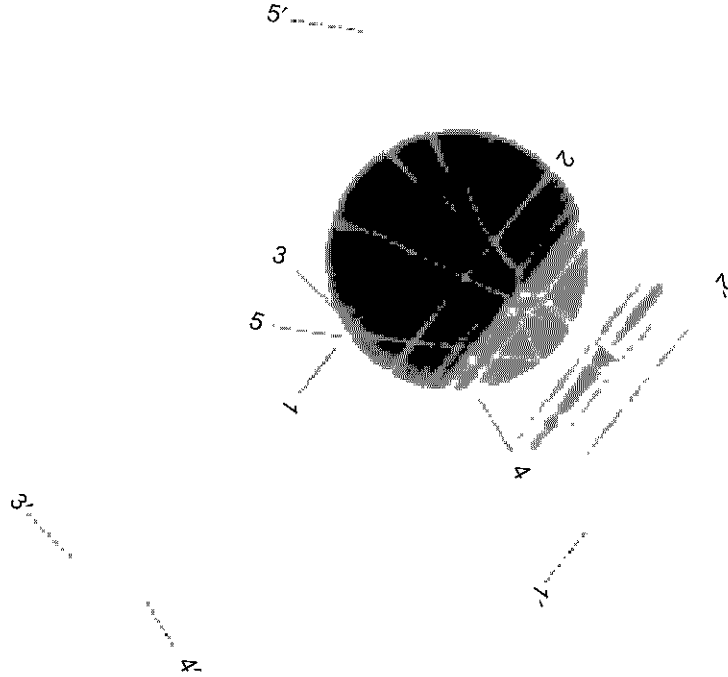
이들 패턴에는 어떤 회절선들이 규칙적인 다수의 줄 무늬로 갈라짐이 나타나는 것을 볼 수 있는데, 이것은 전형적인 어긋나기 결합에 의한 결정 변형에 의한 것이다(Chou et al., 1992; Tanaka et al., 1994; Kim, 2002).

Fig. 2의 회절 패턴 분석으로 부터 전자빔 파장 결정에 사용된 Bragg 회절쌍은 Table 1과 같다.

여기서 (1, 2, 3)의 회절선이 이루는 삼각형 넓이가 가장 작고 크기가 20 nm 내외인 것으로 측정되었다. 이들 3개의 회절쌍에 대해 방정식(4)와 (5)에 의해 계산된 전자빔의 파장이 아래 Table 2에 나타나 있다.

다음에 (1, 2, 4) 회절선의 이루는 삼각형의 크기 정도는 120 nm 내외이다. 이 3개의 회절 쌍에 대해 얻은 파장 값은 아래 Table 3과 같다.

삼각형 면적이 보다 작은 따라서 신뢰도가 더 높은 Table 2에서 얻은 값을 기준으로 Table 3의 파장 값이



**Fig. 3.** The negative print of the LACBED pattern of the specimen of Aluminum. The specimen is moved up by about 22 μm from the convergent beam point. For the numbered diffraction lines of  $H_i$  ( $i=1, 5$ ), see text. This figure is enlarged by 2.05 times from the original photograph with the camera length 54.1 cm.

**Table 3.** The ratio of  $\Delta R_i/R_i$  was estimated from the enlarged fig. 2 by 1.6 times with a photoshop software

$H_i$	h	k	l	$\Delta R_i/R_i$	$\lambda$ nm
1-1'	-1	-5	-1	+0.168	0.002491
2-2'	-3	5	1	+0.194	0.002497
4-4'	5	3	1	+0.213	0.002498

Average : 0.002495 nm

**Table 4.** The ratio of  $\Delta R_i/R_i$  was estimated from the enlarged fig. 3 by 1.4 times with a photoshop software.

$H_i$	h	k	l	$\Delta R_i/R_i$	$\lambda$ nm
1-1'	6	0	0	-0.106	0.002498
3-3'	-1	-7	-1	-0.061	0.002494
5-5'	-3	5	1	-0.065	0.002495

Average : 0.002496 nm

거의 같은 값을 얻었다는 의미는 이 두 삼각형 영역 범위의 결정이 변형이나 구부림 혹은 휘어짐이 거의 없는 완전 결정에 가까운 상태를 암시하고 있다.

Fig. 3의 LACBED 패턴에서는 (1, 3, 5)선들이 이루는 삼각형이 가장 작고 크기가 30 nm 정도로 측정되었다. 이로부터 얻은 파장 값은 아래 Table 4와 같다.

최종적으로 Table 2, 3, 4의 파장 값들의 통계적 평균치와 표준 편차 및 대응되는 가속전압은 아래와 같다.

다른 한편 (2, 3, 5)와 (2, 4, 5)의 각 회절선들이 이

**Table 5.** JEM 2010 (200 kv)

Electron wave length $\lambda$	Accelerating voltage E
0.002496 ± 0.000003 nm	201.5 ± 0.4 kv

루는 삼각형에 대해 산출된 파장은 위의 값보다 평균 0.36% 적었다. 단 여기서 (2-2')의 (hkl)=(400), (4-4')의 (hkl)=(-3-7-1)이다. 이 오차 원인으로서 Fig. 3에서 1-2의 간격이 1'-2'의 간격보다 6.6% 긴 것이 주

독되었다(완전 결정일 경우 이 두 간격은 같아야 한다). 이는 1-회절선 시료 영역을 기준으로 2-회절선 영역의 (200) 격자 평면이  $0.011^\circ$  기울어진 것(bending)임을 의미한다. 이것을 1-회절선(600)을 기준으로 보정하여 파장 값을 산출 했을 때, Table 5의 파장 값과 편차 범위에서 일치함을 얻었다.

## 결과 및 고찰

본 실험에서 측정된 J2010의 파장 값은 같은 기종(J2010 FEG TEM)의 현미경에 대해 Tsuda & Tanaka (1999)가 측정된 100.7 kv (100 kv)를 2배 했을 때의 값과 거의 일치한다. 이들이 사용한 방법은 실리콘 표준 시료의 정확한 [111] 축의 CBED 패턴을 동력학 회절 이론에 입각한 각 파장의 변화에 따른 컴퓨터 모의 패턴과 비교 대조함으로써 얻은 값이다. 그러나 본 실험에서의 방법은 그러한 복잡성 없이 단순히 LACBED 패턴의 기하학적 거리 측정에 의한 단순 수치 계산으로도-더욱이 완전 결정에 가까운 표준시료의 이용 없이도-비교적 정확한 파장을 측정할 수 있는 장점이 있다고 본다.

앞 절에서 지적된 이 방법에 의한 파장 결정에서 오차는 주의를 기울이면 줄일 수는 있지만 없앨 수는 없다. 이 문제는 가능한 한 많은 파장 측정 값의 데이터를 얻어 통계적 평균치를 얻고 작은 표준편차의 신뢰도를 구함으로써 극복될 수 있다고 본다. 물론 전자 빔의 파장 값의 한계는 현미경의 전압 안정도(수 볼트 내외)에 의해 제한된다. 통계적 처리가 가능한 많은 데이터를 얻는 문제해결은, 이 방법이 이용되는 LACBED 패턴을 얻는 기법의 다양성에서 찾을 수 있다. 즉 빔의 수렴 점으로부터 시료의 위치를 조절 함으로써 얻어지는 약간씩 다른 많은(Large Angle) CBED 패턴이 얻어질 수 있고 또 다른 양상을 띄는 defocused LACBED 패턴도 쉽게 얻어진다. 따라서 회절 벡터가 같은 평면에 있지 않은 3개의 회절빔이 교차되는 많은 삼각형을 쉽게 발견 할 수 있고, 이로부터 필요한 충분한 파장 측정의 데이터를 얻을 수 있다.

끝으로 이 방법은 결정 시료의 변형장의 지도(strain field map)나 격자상수의 결함에 의한 국지적 변화 후

은 온도 변화에 따른 변화도 측정 할 수 있는 좋은 수단이 될 수 있다고 사료된다.

## 참고 문헌

- Saunders M, Bird DM, Zaluzec NJ, Burgess WG, Preston AR, Humphreys CJ: Measurement of low-order structure factors for silicon from zone-axis CBED patterns. *Ultra-microscopy* 60 : 311-323, 1995.
- Tsuda K, Tanaka M: Refinement of Crystal Structure Parameters using Two-dimensional Energy-filtered CBED Patterns. *Acta Cryst A* 55 : 939-954, 1999.
- Saunders M, Fox AG, Midgley PA: Quantitative zone-axis convergent beam electron diffraction (CBED) studies of metals. I. Structure-factor measurements. *Acta Cryst A* 55: 471-479, 1999.
- Zuo JM: Quantitative Convergent Beam Electron Diffraction. *Materials Transaction, JIM*, 39 : 938-946, 1998.
- Jiang B, Spence JCH: Structure Factor Phase and Amplitude Measurement in AlN by QCBED. *Microsc Microanal* 8 (Suppl. 2) : 650-651CD, 2002.
- Høier R: A Method to Determine the Ratio between Lattice Parameter and Electron Wavelength from Kikuchi Line Inter sections. *Acta Cryst A* 25 : 516-518, 1969.
- Forwood CT, Clarebrough LM: *Electron Microscopy of Interfaces in Metals and Alloys*, pp. 71-72, Adam Hilger, 1991.
- Pearson WB: *Handbook of Lattice Spacing and Structure of Metals*. p. 124 (Table 7), Oxford, Pergamon Press, 1964.
- Kim HS: The Study of LACBED Patterns for a Dislocation Pair in Aluminum. The 34th Spring Meeting of the Korean Society of Electron Microscopy, pp. 61-64 (Abstract), Daejeon, 2003.
- Tanaka M, Terauchi M, Tsuda K: Convergent Beam Electron Diffraction III, pp. 178-179, JEOL Ltd. Publ., 1994.
- Chou CT, Preston AR, Steeds JW: Dislocation contrast in large angle convergent beam electron diffraction patterns. *Phil Mag A* 65 : 863-888, 1992.

## < 국문초록 >

일반적으로 전자현미경에 계기상 나타내는 가속전압에

의한 전자 빔의 파장은 실제로 시료 위에 입사되는 빔의 파장 값과는 다를 수 있다. 그러므로 적어도 한번은 계기 상 나타난 전압에 대한 파장 값을 측정할 필요가 있다. 특히 QCBED 기법에서는 가능한 한 정확한 파장 값의 결정이 요구된다.

본 논문에서는 알려진 결정시료의 LACBED 패턴들로부터 정확하게 이 파장을 측정하는 간단한 방법을 제시한다. 이 방법은 이미 보고된 Kikuchi 패턴을 이용하는

기법과 유사하게 LACBED 패턴에서 같은 평면에 있지 않은 3개의 회절벡터에 의한 회절선이 거의 같은 점을 교차할 경우를 이용한다. 이 방법 적용 실험 예로써 알루미늄 결정시료를 사용하여 JEM2010전자현미경의 계기 상 200 kv 가속전압에 대한 파장 값이 측정되었다. 측정된 파장과 대응되는 가속전압은  $0.002496(3)$  nm과  $201.5 \pm 0.4$  kv이며 파장 값은 0.12%의 불확실성을 갖고 있다.