

## LACBED 패턴으로부터 전자현미경 상에 대한 회절도형의 회전각을 측정하는 간단한 방법

김 황 수\*, 김 종 필<sup>1</sup>

경성대학교 이과대학 물리학과, <sup>1</sup>기초과학지원연구소 부산분소

### A Simple Method to Determination the Rotation Angle Between an Image and its Diffraction Pattern with LACBED Patterns

Hwang Su Kim\* and Jong Pil Kim<sup>1</sup>

Department of Physics, Kyungsung University, Namku, Busan 608-736, Korea

<sup>1</sup>Korea Basic Science Institute, Busan Branch, Kumjung-ku, Busan 609-735, Korea

(Received July 9, 2003; Accepted July 30, 2003)

#### ABSTRACT

When electron microscope images and selected area diffraction patterns of crystalline materials are being compared, it is important to know for the rotation of the diffraction pattern with respect to the image caused by the magnetic lens in the Electron Microscope. A well known method to determine this rotation is to use a test crystal of MoO<sub>3</sub>. But this method of determination of the rotation angle contains an uncertainty of 180°. Thus one has to devise another way to eliminate this uncertainty.

In this paper we present a new and simple method of determining this rotation without any complexity. The method involves a process of obtaining LACBED patterns of crystalline materials. For the J2010 electron microscope, the rotation is determined to be 180° and this angle remains unchanged for changing of the magnification and the camera length.

**Key words** : Image rotation, J2010, LACBED

#### 서 론

전자현미경은 자기렌즈로 구성되어 있으므로 전자빔에 의한 상 형성에서 빔의 진로가 회전되고 또 초점거리를 통과 할 때마다 상 전도가 일어난다. 따라서

결정의 상 모드(Image mode)에 의한 상과 회절 모드에 의한 회절 패턴은 본래의 결정학적인 일치성을 갖지 않고, 서로에 대해 회전된 상태로 나타난다. 그리고 이 회전 각은 확대 배율과 카메라 길이에 따라 변할 수 있다.

이러한 회전각을 알아야 할 중요한 이유는 결정 결

이 논문은 2002학년도 경성대학교 학술지원연구비에 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

합분석을 위해서는 다양한 회절 조건 하에 관찰이 필요한데, 이 회전각을 미리 인지함으로써 원하는 회절 조건을 원활히 만들 수 있다. 또한 관찰된 결합구조의 이론적 분석에서 반듯이 대응되는 회절조건을 알 필요가 있고, 이를 위해 일차적으로 현미경에 의한 상과 그 회절 패턴과의 회전각이 정확히 알려져 있어야 한다(Hirsch et al., 1977).

이 회전각을 측정하는 잘 알려진 방법은  $\text{MoO}_3$  (Orthorhombic,  $a = 0.396$ ,  $b = 1.386$ ,  $c = 0.370$  nm) 분말 결정의 기하학적 특성을 이용하는 것이다. 이 작은 결정은 주로  $c$ 축으로 길게 성장하고  $b$ 축의 수직인 얇은 판을 이루기 때문에 이 결정의 회절 패턴은  $b^*$ 축과 수직으로 나타난다. 그러므로 이 개별 결정의 상과 회절 패턴을 대조함으로써 회전 각을 측정 할 수 있다. 그러나  $c$ 축의 ±방향은 임의로 정해지는 것이므로 측정된 회전 각의  $180^\circ$  회전의 불확실성이 상존한다. 따라서 이 문제를 해결하기 위한 별도의 방법들이 제안되어 있다(예: Forwood & Clarebrough, 1991).

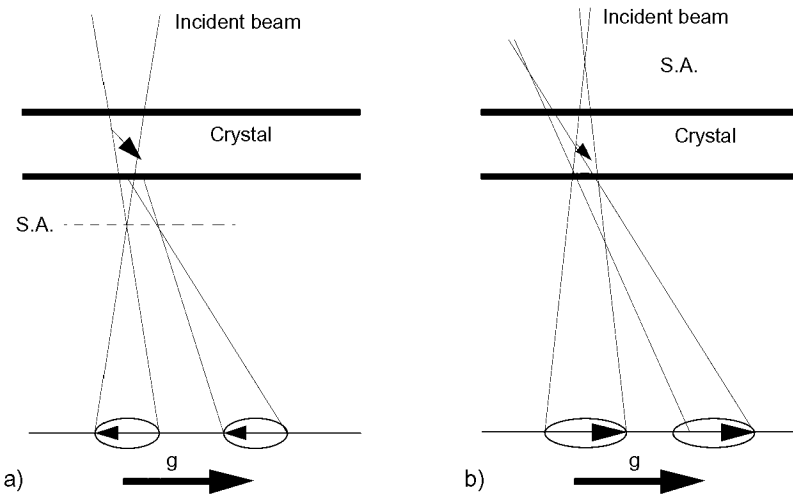
본 연구의 목적은 이러한 특정 결정의 사용 없이 바로 실험하고자 하는 결정시료의 LACBED (Large Angle Convergent Beam Electron Diffraction) 패턴을 얻는 과정으로부터 간단하고 분명하게 이 회전 각을

측정하는 방법을 제시하는데 있다. 그리고 이 측정의 중요성의 한 예로 코발트 결정의 적층 결합 분석에서 이 측정 결과의 이용을 보이고자 한다.

## 재료 및 방법

### 1. 측정 방법 이론

Fig. 1a, b는 LACBED 패턴을 얻는 개략도이다. 이것은 자기렌즈의 작용과는 무관한 전자빔의 회전이 전혀 없는 경우에 해당된다. Fig. 1a는 원주형 빔의 수렴 점에서 시료를 위로 올린 경우이고, 1b)의 경우는 시료를 수렴 점에서 아래로 내린 경우이다. 전자현미경에서 이 LACBED 패턴을 관찰할 때 SA MAG (Select Area Magnification) 모드에서 빔의 수렴 점을 최대한 줄인 다음 시료 결정을 수 내지 수십  $\mu\text{m}$  정도 올리면 S.A. 평면(Fig. 1a에서 점선 표시)에 회절 패턴과 비슷한 상이 나타난다. 그리고 이 상태에서 회절 모드로 전환하면 그림 아래에 표시된 바와 같은 LACBED 패턴이 관측된다. 이 두 사진 즉 상(image) 모드의 S.A. 평면에 나타난 유사 회절상과 LACBED 패턴을 비교할 때 자기렌즈에 의한 빔 회전이 없으면 역 격자  $g$

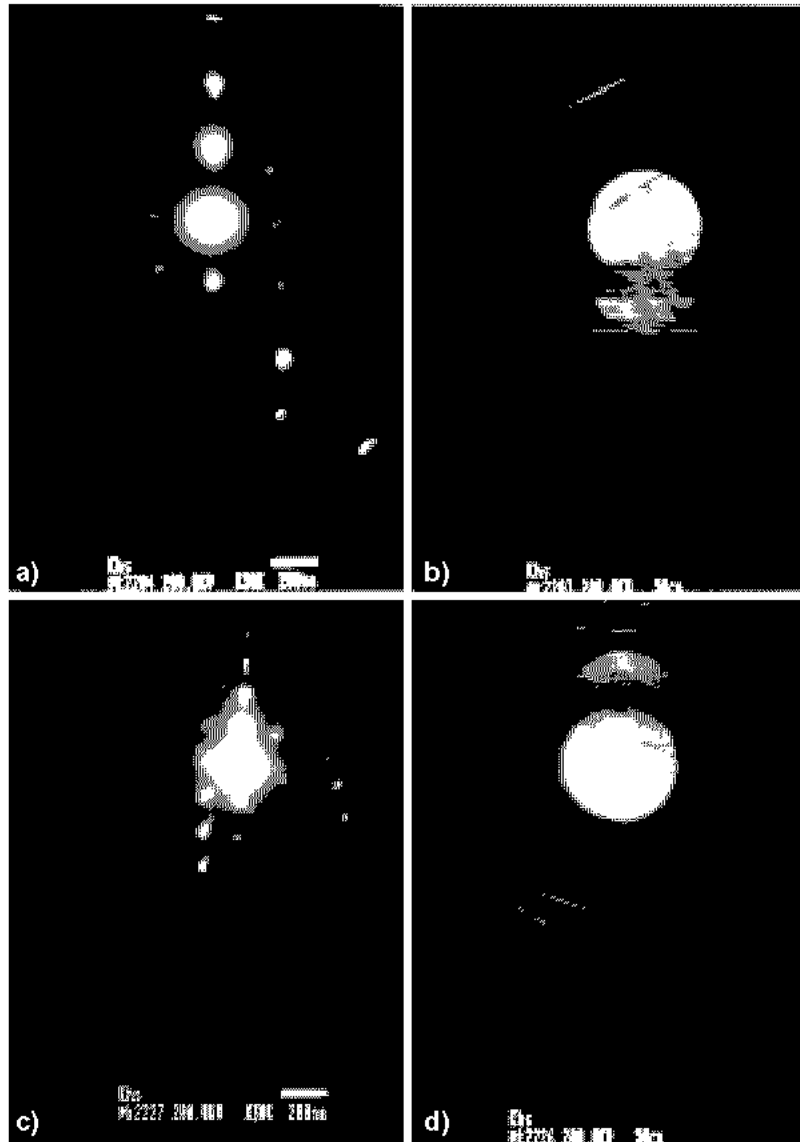


**Fig. 1.** A brief ray diagram of LACBED. The small arrows in the crystal and in circles in the below line are denoted a defects and its images of the LACBED pattern respectively. The  $g$  arrow is an indication of diffraction from the crystal. The dashed line at the S.A. means the selected area plane. The 1a) is for the case with the crystal moved up from the convergent point of the incident electron beam and the 1b) is for the opposite case.

방향은 일치한다. 반면 Fig. 1b인 경우 이 방향은 반전된다.

이 사실을 기준으로 실제 실험에서 S.A. 평면상의 나타난 유사 회절 상과 LACBED 패턴과 비교 대조함으로써 회전각이 명확하게 측정된다. 물론 이때 회

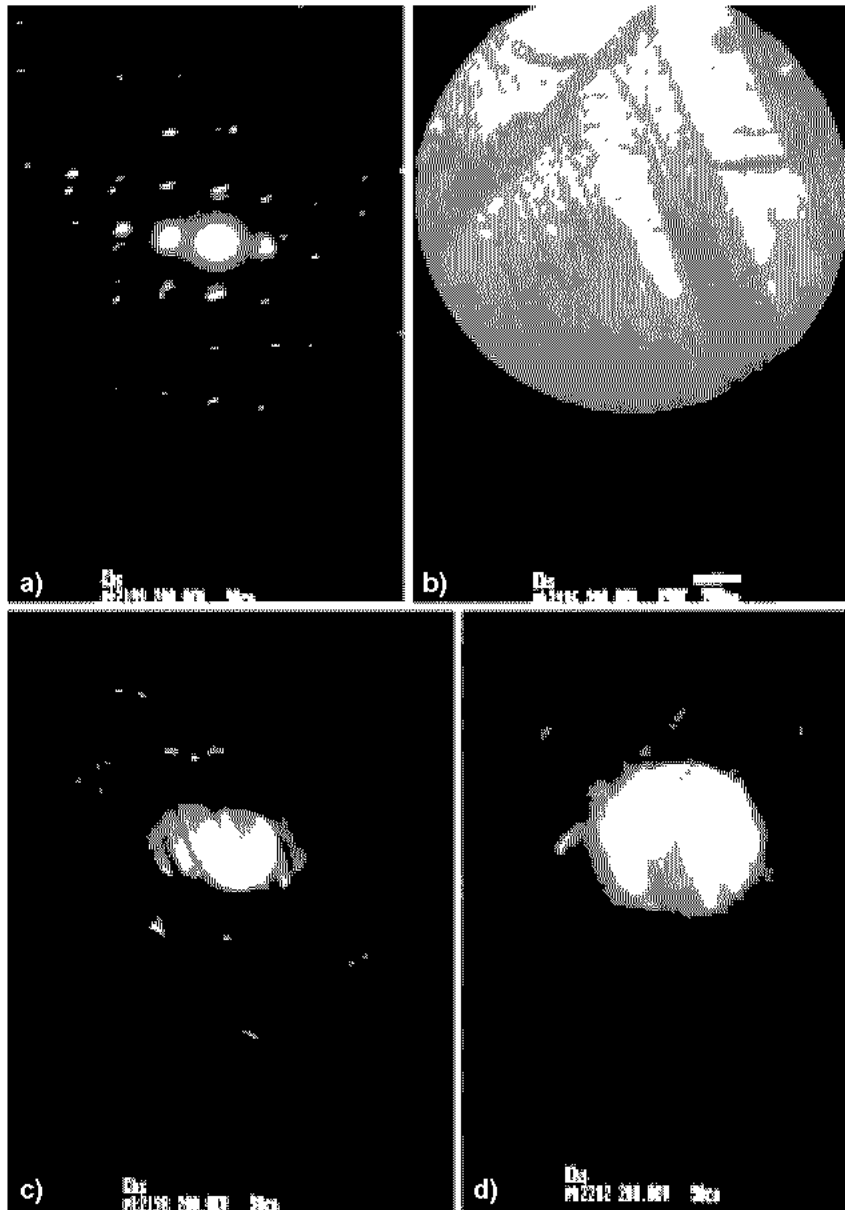
절 패턴의 강도 분포가 완전 비 대칭성을 갖도록 시료평면의 빔에 대한 경사를 조절 (tilting)하는 것이 중요하다. 그리고 시료의 결함(그림에서 화살표로 표시)은 LACBED 원판에 나타난 상(CBIM, Convergent Beam Image)은 1a)에서 반전되고 1b)에서는 일치한



**Fig. 2.** The LACBED patterns of the f.c.c. Cobalt containing stacking faults. The 2a) and 2b) are the diffraction like-image in the SA MAG mode (MAG: 30k) and the LACBED pattern respectively, where the specimen is moved up from the convergent beam point by about 20  $\mu\text{m}$ . The prominent row of the patterns is due to (200) diffracting plane. These figures are corresponded to Fig. 1a). The 2c) and 2d) are the case where the specimen is moved down by 14  $\mu\text{m}$ , and corresponded to Fig. 1b).

다. 여기서 언급하여야 할 것은 시료를 위나 아래로 움직이는 대신 수렴 점을 시료 아래로 조정 (under focus)하거나 위로 조정 (over focus) 하여도 기하학적으로 Fig. 1a, b를 각각 얻는데, 이럴 경우 CBIM은 시

료를 움직이는 것과 본질적으로 같지만 S.A. 평면에서 유사 회절 상은 시료를 위 아래로 움직이는 경우와는 달리 분명하게는 나타나지 않는다.



**Fig. 3.** The defocused LACBED patterns. The 3a) is the diffraction pattern of the f.c.c. Cobalt specimen containing complex stacking faults. The orientation is close to (001). The 3b) is the defocused image in the SA MAG mode (Mag.: 30k). The 3c) and 3d) are the over focused and the under focused LACBED patterns, respectively.

## 2. 측정 실험

이 실험을 위해 사용된 결정 시료는 약  $75\mu\text{m}$  두께의 순수 코발트 박막이다. 이 박막은 상온에서 격자상수는  $a=0.3544\text{ nm}$ , 면심입방구조 (f.c.c.)의 준안정 결정 상과  $a=0.251$ ,  $c=0.407\text{ nm}$ 의 육방 밀집구조 (h.c.p.) 상이 혼재해 있다 (Pearson, 1964). 이 박막을 현미경 조사가 되도록  $3\text{ mm}$  원판을 Twin Zet Polisher (TenuPol-5)로 과염산 용액 (6%  $\text{HClO}_4 + \text{Acetic Acid}$ )으로  $20\text{ v}$ ,  $4^\circ\text{C}$ 에서 연마하였다. 그리고 사용된 투과식 전자현미경은 JEM2010 (UHR/HR pole piece, 기초과학연구원 연구소 부산분소 소재 J2010 TEM, 부경국립대학교 공동실험 실습관 소재 J2010 TEM)이다. 이 현미경의 TEM 모드에서 최대한 줄인 수렴 빔의 직경은  $10\text{ nm}$  정도인 것으로 측정되었다 ( $\alpha$ -selector: TEM5-3). 그리고 이때 C.A. (Condenser Aperture)를 최대값인  $120\mu\text{m}$ 로 놓았을 때 빔의 수렴각은  $2^\circ$  정도이다. Fig. 2a는 이 조건에서 시료를 약  $20\mu\text{m}$  정도 올렸을 때  $g=(200)$ 의 유사 회절 패턴의 S.A. 상이다 (배율:  $30\text{ K}$ ). 그리고 2b)는 이 상태를 회절 모드로 전환 했을 때  $g=(200)$ 의 LACBED 패턴이다. 이 두 사진을 비교 대조했을 때 분명히 상에 대한 회절 패턴은  $180^\circ$  회전 되어있다. 이것이 바로 측정하려는 회전각이 된다. 왜냐하면 만약 회전이 없다면 Fig. 1a에 대한 논의로부터 이 두 사진의 회절 양상은 일치하여야 한다. Fig. 2c는 시료를 수렴 점 아래로 약  $14\mu\text{m}$  정도 내렸을 때 S.A. 상이고 2d)는 이의 LACBED 패턴이다 (Fig. 1b에 대응). 이 두 사진을 비교하였을 때, 회전이 없을 경우 패턴이 서로  $180^\circ$  반전되어야 하지만, 관측 결과로는 회절 패턴 양상이 서로 일치함으로 역시 회전각이  $180^\circ$  이어야 한다. 즉 Fig. 2a, b에 의한 것과 같은 결론을 얻는다. 다른 한편 Fig. 3a는 시료의 다른 부위에 대한 평행 빔의 정상적인 (001) 회절 패턴이고, 3b)는 원추형 빔이 시료에서 defocus 된 상태에 MAG 모드에서 코발트 f.c.c. 결정내 적층 결함 (stacking faults) 상이며, 3c)는 빔의 초점이 시료 위에 맞춘 상태에서 (over focus) 회절 모드로 전환된 LACBED 패턴이다. 이 패턴은 일종의 Fig. 3a의 defocus 된 회절 패턴이다. 분명히 원판내의 상은  $180^\circ$  회전되어 있다. 반면 3d)는 under focus 상태의 LACBED 패턴이고 상은 회전이 없는 상태로 나

타나 있다. 이러한 결과도 모두 J2010 현미경에서 상과 그 회절 패턴이  $180^\circ$  회전된다는 결론을 뒷받침 한다.

흥미로운 것은 J2010교본의 1-1쪽에 이 회전에 관해 다음과 같이 진술하고 있다.

*“Not only an image and diffraction pattern does not rotate when the magnification of camera length is changed, but the image and diffraction pattern correspond to each other in orientation.”*

이 문장의 해석에 따라서는 상과 그 회절 패턴의 회전이 없게 나타난다는 뜻으로 이해될 수 있으나, 본 실험 결과 분명히  $180^\circ$  회전됨이 판명되었다. 물론 배율과 카메라 길이 변화에 대해 회전각은 변화하지 않음은 확인되었다.

## 결과 및 고찰

코발트 결정내의 적층 결함 관찰에서 이 결함 상에 대한 회절 역 격자 벡터방향 결정이 결함 구조를 이해하는데 중요한 요인임을 보여주는 한 예를 보이고자 한다. Fig. 4는 J2010으로  $200\text{ kv}$ 에서 코발트의 (111) 회절 평면에 의한 회절 패턴이 우세한 회절 조건하의 관찰한 fcc 영역에 적층 결함 상들이다. 두께는 약  $200\text{ nm}$  정도이다. 4a)는 강빔 Dark Field상이다. 즉  $g=111$  회절 역 격자가 Bragg 회절 조건 상태에서  $g$  회절 빔에 의한 상이다. 4b)는 약빔 상으로  $4g$ -Bragg 회절조건에서  $g$  회절 빔의 상이고 이때  $g$ 의 Bragg 회절 조건에서 벗어난 정도 (deviation parameter),  $S_g = 0.09\text{ nm}^{-1}$ 이다. 4c)는  $g$ 의 Bragg 회절 조건 하에  $-g$ 의 회절 빔 상이다. 이때  $S_{-g} = -0.06\text{ nm}^{-1}$ 이 된다. 여기서 강조할 것은  $g$ -벡터 방향은 관찰된 필름상에서는 Fig. 4에서 표시된 방향과 정반대 방향이다. 이  $180^\circ$  회전이 순전히 현미경의 자기 렌즈에 의한 것임을 앞 절에서 밝혔다.

이 Fig. 4으로부터 적층 결함의 특징을 간단히 분석할 수 있는데 이 규칙 (Gevers & Amelinckx, 1963)은 다음과 같다. 적층 결함에 대한 강빔 Dark Field 상에서 결함이 고유 (intrinsic) 혹은 비고유 (extrinsic)인 경

우를 막론하고, Fig. 4a에서 보듯이 상의 양쪽 끝 부분에 회절 강도는 검거나 밝은 비 대칭성을 갖는다. 우선 낮은 지수 역 격자 벡터들을 A군: {200}, {222}, {400}과 B군: {111}, {220}, {400}으로 나누고 B군의 g-벡터들을 적층 결함상의 중심부에 놓았을 때, 벡터 방향이 상 가장자리의 검은 부분으로 향해 있으면 고유결함, 반대이면 비 고유 결함이다. A군의 g-벡터들에 대해서는 이와는 정반대이다. Fig. 4a에서 B군의  $g = 111$ 의 방향이 결함의 가장 자리가 검은 선으로 향해 있으므로 이 규칙을 따르면 A, B, C에 결함들은 고유 적층 결함들이다.

그러나 강빔상에서는 단순 고유/비고유 결함이 아닌 다층 복합 결함도 고유 혹은 비고유 결함의 상과 구별하기 어려운 비슷한 상을 보일 수가 있다. 이것을 구별하기 위해서는 체계적으로 약빔상을 관찰하여야 한다(Kim & Sheinin, 1997). A와 B중간의 결함도 Fig. 4a로만 판단할 경우 고유결함으로 해석할 수 있으나 4b)와 4c)의 약빔상에서는 A, B, C의 결함과는 달리 회절 강도의 급격한 변화를 나타낸다. 단순한 고유/비고유 결함인 경우 약빔상의  $S_g$ 의 절대치가 증가에 따라 회절 강도가 전체적으로 약해지는 반면, 다층 결함인 경우  $g$ 의  $\pm$ 방향과  $S_g$ 의 크기와 부호에 따라 전체 회절 강도의 변화 양상이 다르게 나타난다. A와 B사이의 결함이 그러한 한 좋은 예이다. 만약 Fig. 4에서  $g$ -방향을 관찰된 그대로의 방향 즉 반대 방향으로 놓으면 A, B, C의 결함이 비고유 결함으로 오판 될 수 있고, 이론적으로 고유결함이 에너지면에서 일어날 확률이 비고유 결함보다 크다는 잘 알려진 사실과도 반대되는 혼란스러운 분석 결과를 초래할 수 있다.

결론적으로 J2010에서 상과 그 회절 패턴의 회전각이  $180^\circ$  임은 의심의 여지가 없다. 그리고 이 측정방법은 관찰하고자 하는 결정시료를 가지고 해당 관찰 조건(예: 배율, 카메라 길이) 하에서 필요한 경우 상과 회절패턴의 회전각을 바로 쉽게 측정할 수 있으므로 매우 편리한 기법이다. 다만 이 기법이 이용되기 위해서는 해당 투과식 전자현미경이 LACBED 패턴을 관찰할 수 있는 성능을 가져야 한다. 원추형 빔을 최소직경이  $10 \sim 50 \text{ nm}$  정도를 만들 수 있는 기능을 가진 전자현미경이면 이 방법 이용이 충분히 가능하다고 본다. 그리고 비교적 최근의 투과식 전자현미경은 이러한 기

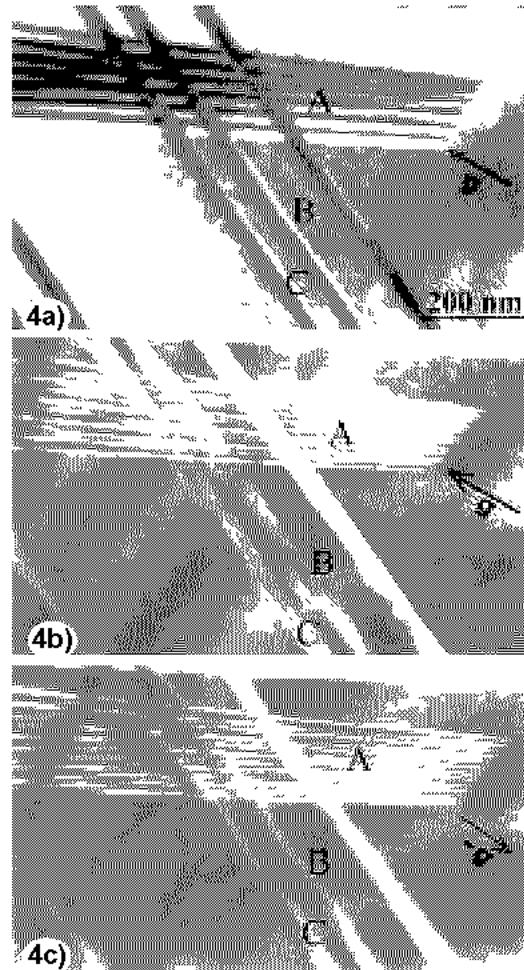


Fig. 4. The 4a) is the strong dark field image of stacking faults in the f.c.c. Cobalt. The reciprocal lattice vector under Bragg diffraction condition is the  $g = 111$ . The 4b) and 4c) are the weak beam images under the  $4g-$  Bragg and the  $g-$  Bragg diffraction conditions, respectively. But in the 4c) the  $-g$  diffraction spot is selected for the image. The faults at A, B and C are the intrinsic stacking faults. The magnification is  $30k \times 2.3$ .

능(spot size의 높은 지수를 가진)을 갖추었다고 본다.

## 참고 문헌

Hirsch PB, Howie A, Nicholson RB, Pashley DW, Whelan

- MJ: Electron Microscopy of Thin Crystals. pp. 12-15, 236, Krieger Publ, Huntington, New York, 1977.
- Forwood CT, Clarebrough LM: Electron Microscopy of Interfaces in Metals and Alloys. pp. 61-63, Adam Hilger, 1991.
- Pearson WB: Handbook of Lattice Spacing and Structure of Metals. pp. 124-125 (Table 7), Oxford, Pergamon Press, 1964.
- Gevers R, Art A, Amelinckx S: Electron Microscopic Images of Single and Intersecting Stacking Faults in Thick Foils. Phys Stat Sol 3 : 1563-1593, 1963.
- Kim HS, Sheinin SS: A Technique for Determining the Number of Adjacent Intrinsic Faults in Multi-Layered Stacking Fault Configurations Using Complementary Strong and Weak Beam Electron Microscope Images. Phys Stat Sol (a) 161 : 335-342, 1997.

### < 국문초록 >

투과식 전자현미경에서 상과 그 회절패턴은 현미경의 자기렌즈 작용에 의하여 상호 회전되어 나타난다. 이 회전각의 측정 결과는 결정 시료의 결함 관찰 분석에서 중요하다. 이 회전각 측정에 대해 잘 알려진 방법은  $\text{MoO}_3$ 의 분말 결정을 이용하는 것이다. 그러나 이 방법에는 측정된 각에 항상  $180^\circ$ 의 불확실성이 따른다. 따라서 이 불확실성을 제거하기 위한 또 다른 방안이 강구되어야 한다.

본 논문에서는 결정시료의 LACBED 패턴을 얻는 과정을 통해 간단하게 이 회전각을 측정하는 새로운 방법을 제시한다. 이 방법은 특정 결정을 필요로 하지 않는다. 이 방법을 통해 JEM 2010 TEM에서 상(image)과 그 회절패턴의 회전각은  $180^\circ$ 로 측정되었고, 이 각은 확대 배율이나 카메라 길이의 변화에도 변하지 않음이 관찰되었다.