

HRTEM에서 50 pm 이하 분해를 주는 결정 밀 표면 파동함수의 2차 도함수의 시뮬레이션 영상들

김 황 수*

경성대학교 이과대학 물리학과

Simulated Images of the Second Derivative of the Exit-plane Wavefunction Giving Sub-50 pm Resolutions in HRTEM

Hwang Su Kim*

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

(Received May 12, 2009; Accepted June 22, 2009)

ABSTRACT

In this paper we present sub-50 pm resolution images of atom columns simulated with the negative of the second derivative of the exit-plane wave function (EPW). The EPW can be retrieved from a focal series reconstruction in the (high resolution) transmission electron microscopy (HRTEM). The simulated images are for Si and InAs in [114] and [116] orientations, which give about sub-50 pm separations of atom columns. The theoretical reason for the validity of this method is given from analysis based on the kinematical diffraction theory, and the limitation for applicability of this method also is discussed.

Keywords : Exit-plane wave function, Sub-50 pm HRTEM images

서 론

고 분해 전자현미경 실험에서 기대하는 이상적인 목표는 시료의 원자배열구조가 잘 분해되는 영상을 얻는 일이다. 이와 같은 원자 분해 영상을 얻는 데 제한을 주는 요인들로는 현미경 자체의 구조적 결함 즉 구면수차(C_s), 입사전자 빔의 분산에 의한 부 정합도(incoherency: β_s), 색 수차(C_c) 및 전기적 기계적 요동(Δ_s)에 의한 영상의 왜곡 및 퍼짐들이다. 다행히 현재 C_s 가 교정되고 Δ_s 및 β_s 를 현저히 개선시킨 C_s -Corrected FEG-TEM 및 STEM들이 개발되어 이용되고 있다(예: Jia et al., 2004; Lentzen, 2006; Kisielowski et al., 2008).

또 다른 괄목할 만한 발전은 일련의 비 초점(defocus) 단계 값을 가진 20여 개의 HRTEM 영상 관측 데이터로부터 결정 밀 표면의 복소수 파동함수(exit-plane wavefunction: EPW)를 구하는 소프트웨어 프로그램이 개발되어 있는 점이다(Coene et al., 1992, 1996; Tillmann et al., 2004). 최근에 Allen et al.(2004, 2006)에 의해 β_s 및 Δ_s 의 값이 작을 경우에 적용되는 간단한 IWFR (Iterative Wave-Function Reconstruction) 알고리즘이 보고되어 있고 역시 널리 사용되고 있다고 본다. 이 방법은 다만 4~5개의 HRTEM 영상 데이터만을 요하는 장점이 있다. 이들 방법으로부터 얻은 파동함수(EPW)는 이론적으로는 현미경의 구조적 결함이 모두 교정된 즉 $C_s=\Delta_s=\beta_s=0$ 에 해당되는 것이지만 실질적으로는 Δ_s

이 논문은 2009학년도 경성대학교 학술연구비지원에 의하여 연구되었음.

* Correspondence should be addressed to Prof. Hwang Su Kim, Department of Physics, Kyungsoong University, Namgu, Busan 663-736, Korea. Ph.: (051) 663-4621, Fax: (051) 663-4609, E-mail: jwa@ks.ac.kr

에 대해서는 절반 정도만 개선된 영상이 얻어진다. 이 복소수 EPW는 진폭 및 위상(phase)에 대응되는 두 개의 독립된 영상정보를 제공함으로써 과거 통상적으로 얻어지는 강도(진폭자승) 영상 데이터에서보다 정확한 시료 분석을 할 수 있다. 투과현미경의 구조적 결함이 모두 제거되고 또한 시료의 두께가 충분히 얇아서 입사 전자와 결정과의 다중산란이 무시될 수 있는 이상적인 경우에서는 원자 크기(산란 단면적)가 궁극적인 원자 분해한계를 결정한다. 이에 대한 연구가 최근 O'Keefe et al. (2007, 2008)에 의해 이루어졌는데 요약하면 다음과 같다. 가령 실리콘의 경우 [116]-zone 축으로 투영된 가장 가까운 원자열 간격은 31 pm이다. 그러나 이에 대한 피크 형태의 투영된 결정 퍼텐셜 도형은 겨우 분해되는 양상을 보여주고 있다. 현재 HRTEM 영상관찰의 목표는 일반적으로 이 투영된 퍼텐셜 패턴에 가까운 영상을 얻는 것이므로, 이 영상이 퍼텐셜 도형의 분해한계를 넘을 수는 없다. 이 분해한계를 극복할 수 있는 방안으로 오래 전에 알려진 PCD(project charge density: Cowley & Moddie, 1960) 영상기법을 O'Keefe et al. (2007, 2008)은 최근 다시 제안하였다. 즉 충분히 얇은 시료에 대해 $C_s=0$ 및 작은 값의 비 초점하에 얻은 영상강도는 근사적으로 투영된 결정 퍼텐셜의 음(-)의 2차 도함수와 비례관계를 갖게 된다. 그런데 이 도함수의 음(-)의 값은 결정의(핵 전하를 포함하는) 전하밀도(PCD: Projected Charge Density)와 비례한다(Poisson's equation). 정리하면 영상강도가 투영된 퍼텐셜이 아니라 PCD와 비례관계식을 갖게 된다. 그리고 이 PCD의 피크 폭은 퍼텐셜의 피크 폭보다 65% 좁게 나타남을 주목했다. 따라서 분해능이 그 만큼 향상되고, 이 기법을 이용하면 50 pm 이하 분해 영상도 얻을 가능성이 있음을 그들은 암시했다.

그러나 저자의 계산 결과는 이와 같은 고 분해 영상 효과를 얻기 위해서는 시료두께가 극단적으로 얇아야 하고 이 조건하에서는 영상강도의 명암대비(contrast index)가 극히 낮게 나타난다. 그러므로 실질적으로 관찰 가능한 실험조건에 부합하지 않는다고 본다. 이 논문에서 그 이유를 밝히고 50 pm 이하 분해 영상을 효과적으로 얻는 가능한 다른 방법을 이론 탐색을 통해 제안하고자 한다.

이론 및 방법

이를 위해 우선 결정 및 표면의 파동함수(EPW)의 이론적 특성을 분석할 필요가 있다.

1. 결정 및 표면 파동 함수(EPW) 및 회절진폭

EPW는 Laue 조건(현미경 중심축 방향이 결정시료 박막 평면과 수직하고 결정방위-축(zone-축)과는 평행한 조건)에

서 일반적으로 다음 식으로 주어진다.

$$\psi(\mathbf{X}) = \sum_{\mathbf{g}} \phi_{\mathbf{g}}(t) \exp(2\pi i \mathbf{g} \cdot \mathbf{X}) \quad (1)$$

여기서 \mathbf{X} 는 두께 t 를 가진 결정 시료 밑 표면에 놓여있는 위치 벡터, \mathbf{g} 는 회절 패턴 평면의 역 격자 회절 벡터들이며 그들에 대한 합이 $\sum_{\mathbf{g}}$ 로 표현되어 있다. $\phi_{\mathbf{g}}(t)$ 는 \mathbf{X} -평면에서 \mathbf{g} -회절 빔의 진폭이다. 그리고 (1)의 \mathbf{X} 에 대한 2차 도함수는

$$\nabla^2 \psi(\mathbf{X}) = \sum_{\mathbf{g}} (2\pi i \mathbf{g})^2 \phi_{\mathbf{g}}(t) \exp(2\pi i \mathbf{g} \cdot \mathbf{X}) \quad (2)$$

로 주어진다. 수학적으로 $\psi(\mathbf{X})$ 및 $\nabla^2 \psi(\mathbf{X})$ 는 $\phi_{\mathbf{g}}(t)$ 와 $(2\pi i \mathbf{g})^2 \phi_{\mathbf{g}}(t)$ 의 역-Fourier 변환에 해당된다. 그리고 동역학적 회절이론에 의한 \mathbf{g} -회절 빔의 진폭 $\phi_{\mathbf{g}}(t)$ 는 다음 식과 같다(Hirsch et al., 1977).

$$\begin{aligned} \phi_{\mathbf{g}}(t) &= \sum_j C_0^{*(j)} C_{\mathbf{g}}^{(j)} \exp(2\pi i \gamma^{(j)} t) \\ &= \sum_j C_0^{*(j)} C_{\mathbf{g}}^{(j)} [\sum_{n=0}^{\infty} (2\pi i \gamma^{(j)} t)^n / n!] \end{aligned} \quad (3)$$

이 식에서 $C_{\mathbf{g}}^{(j)}$ 는 Bloch-wave $b^{(j)} = \sum_j C_{\mathbf{g}}^{(j)} \exp[2\pi i (\mathbf{k}^{(j)} + \mathbf{g}) \cdot \mathbf{r}]$ 의 계수, $\mathbf{k}^{(j)}$ 는 Bloch-wave 벡터, $\gamma^{(j)} = \mathbf{k}^{(j)} - \mathbf{K}$, \mathbf{K} 는 결정의 평균 퍼텐셜에 대해 보정된 입사전자의 파 벡터이다. \sum_j 는 $j=1$ 에서 N 까지 합이고 N 은 계산에서 고려되는 역-격자 벡터들의 총 수이다. (3)에서 다음 관계식이 Laue 조건하에 정확히 성립한다(Hirsch et al., 1977; Kim & Sheinin, 1993).

$$\begin{aligned} \sum_j C_0^{*(j)} C_{\mathbf{g}}^{(j)} &= \delta_{\mathbf{g},0} \quad \text{및} \quad \sum_j \gamma^{(j)} C_0^{*(j)} C_0^{(j)} = 0 \\ 2\pi \sum_j \gamma^{(j)} C_0^{*(j)} C_{\mathbf{g}}^{(j)} &= \sigma v_{\mathbf{g}} \quad \text{for } \mathbf{g} \neq 0 \end{aligned} \quad (4)$$

$\delta_{\mathbf{g},0}$ 는 $\mathbf{g}=0$ 에서 1이고 $\mathbf{g} \neq 0$ 이면 0 값이다. $v_{\mathbf{g}}$ 는 결정 퍼텐셜 $V(\mathbf{r}) = \sum_{\mathbf{g}} v_{\mathbf{g}} \exp(2\pi i \mathbf{g} \cdot \mathbf{r})$ 의 Fourier 계수이고 σ 는 전자산란 상수로 다음과 같다.

$$\sigma = 2\pi m e \lambda / h^2 = 2.088641 \lambda (1 + 1.956934 \times 10^{-3} E) \quad (5)$$

λ (nm)는 입사전자의 파장이고 E 는 kV로 나타내는 가속 전압을 나타낸다. σ 의 단위는 $[\text{Volt-nm}]^{-1}$ 이다. 예로 300 kV의 전압에 의한 가속된 전자의 파장 $\lambda = 0.001968$ nm에 대해서 $\sigma = 0.00652$ 의 값을 갖는다. Å 단위에서는 (5)에 10^{-2} 을 곱한 것으로 나타난다(Self et al., 1983). (4)의 관계식을 (3)의 급수 전개식에 대입 정리하면 아래와 같다.

$$\begin{aligned} \phi_0(t) &= 1 + \sum_j C_0^{*(j)} C_0^{(j)} [\sum_{n=2}^{\infty} (2\pi i \gamma^{(j)} t)^n / n!] \\ \phi_{\mathbf{g}}(t) &= i \sigma v_{\mathbf{g}} t + \sum_j C_0^{*(j)} C_{\mathbf{g}}^{(j)} [\sum_{n=2}^{\infty} (2\pi i \gamma^{(j)} t)^n / n!] \quad \text{for } \mathbf{g} \neq 0 \end{aligned} \quad (6)$$

2. 운동학적 회절이론에 의한 회절 빔의 진폭 및 EPW 근사식

운동학적 회절이론은 근사적 이론이긴 하지만 비교적 간단한 해석적 표현식을 갖기 때문에 EPW에 대해 정성적 분석을 하는 데 매우 유용하다. 이 식은 (3)식에서 $\gamma^{(j)} \sim 0$ 과

$\gamma^{(2)} \sim S_g$ 에 대응되는 Bloch-waves가 주로 회절진폭 값에 기여함을 주목함으로써 얻어진다. 여기서 $S_g = -g^2/2K \approx -\lambda g^2/2$ 의 값을 갖고 Bragg 회절조건에서 벗어난 정도 (deviation parameter)를 나타낸다. 위에 $\gamma^{(1)}$ 과 $\gamma^{(2)}$ 에 대응되는 Bloch-waves만 취하고 (3)에 대입하면 다음의 근사식을 얻는다.

$$\phi_g(t) \approx (\sum_{j=1,2} C_0^{*(j)} C_g^{(j)}) + C_0^{*(2)} C_g^{(2)} [\exp(2\pi i S_g t) - 1] \quad (7)$$

그리고 이 식에 (4)식 관계를 다시 적용하여 정리하면 잘 알려진 운동학적 회절 진폭식이 얻어진다(예: Spence, 1981).

$$\begin{aligned} \phi_0(t) &\approx 1 \\ \phi_g(t) &\approx i\sigma v_g [\sin(\pi S_g t)/\pi S_g] \exp(\pi i S_g t), \quad g \neq 0 \end{aligned} \quad (8)$$

(8)의 역-Fourier 변환에 의한 EPW의 식을 얻기 위해서는 (8)의 급수식 전개가 필요하다. (7)과 (4)식을 이용하면 아래 급수식이 얻어진다.

$$\begin{aligned} \phi_g(t) &\approx i\sigma v_g t [1 + \sum_{n=2} (2\pi i S_g t)^{n-1}/n!] \\ &= i\sigma v_g t [1 + \sum_{n=2} (-\pi i \lambda t g^2)^{n-1}/n!] \end{aligned} \quad (9)$$

(9)와 (6)식을 비교하면 첫 항만 정확히 일치한다. $n=2$ 항부터는 다만 근사적으로 대응된다. $\phi_0 \approx 1$ 를 포함하는 (9)의 $\phi_g(t)$ 에 대해 역-Fourier 변환을 취하면 다음과 같은 운동학적 회절이론에 의한 EPW 근사관계식을 얻는다.

$$\begin{aligned} \psi(\mathbf{X}) &\approx 1 + i\sigma t [V_p(\mathbf{X}) - v_0 + \sum_{n=2} (i\beta)^{n-1} \nabla^{2(n-1)} V_p(\mathbf{X})/n!] \\ &= 1 + i\sigma t [V_p(\mathbf{X}) - v_0 - 4\pi \sum_{n=2} (i\beta)^{n-1} \nabla^{2(n-2)} \rho_p(\mathbf{X})/n!] \end{aligned} \quad (10)$$

여기서 $\beta \equiv \lambda t/4\pi$. (10)식을 구하는데 (2)식과 Poisson 방정식에 의한 아래의 관계식이 이용되었다.

$$\begin{aligned} F^{-1}\{(2\pi i g)^{2n} v_g\} &= \nabla^{2n} V_p(\mathbf{X}) \\ \nabla^2 V_p(\mathbf{X}) &= -4\pi \rho_p(\mathbf{X}) \quad (\text{in Gaussian unit}) \end{aligned} \quad (11)$$

기호 $F^{-1}\{\}$ 는 역-Fourier 변환을 의미하고 $V_p(\mathbf{X})$ 와 $\rho_p(\mathbf{X})$ 는 각각 \mathbf{X} -평면에 투영된 결정 퍼텐셜과 (핵 전하를 포함하는) 전하밀도(PCD)를 나타낸다. $V_p(\mathbf{X})$ 의 단위는 volt이다. (10)의 함수를 실수부와 허수부로 나누어 수개 항들을 전개하면,

$$\begin{aligned} \psi(\mathbf{X}) &\approx [1 + 4\pi\sigma t (\beta \rho_p(\mathbf{X})/2! - \beta^3 \nabla^4 \rho_p(\mathbf{X})/4! + \dots)] + \\ &+ i\sigma t [V_p(\mathbf{X}) - v_0 + 4\pi (\beta^2 \nabla^2 \rho_p(\mathbf{X})/3! - \beta^4 \nabla^6 \rho_p(\mathbf{X})/5! + \dots)] \end{aligned} \quad (12)$$

그러면 (12)로 주어지는 EPW의 허수부의 첫째 항은 투영된 결정 퍼텐셜 영상을 나타내고 실수부의 2번째 항은 PCD 영상을 나타낸다. 나머지 항들은 결과적으로 이들 영상들의 분해능을 방해한다. 이 나머지 항들의 방해효과가 절대적으로 최소화되는 조건은 (9)식에서 2번째 항에 대한 3번째 항의 비율 $[(\pi \lambda t g^2)^2/3!]/[\pi \lambda t g^2/2!] \ll 1$: $(\pi \lambda t g^2 \ll 3)$ 이 만족되어야 한다. 이 조건이 만족될 경우 O'Keefe et al.

(2007, 2008)이 지적한 바와 같이 실수부의 PCD 영상피크의 폭이 허수부의 퍼텐셜 영상의 피크의 폭보다 65% 좁게 나타난다. 이는 실수부 영상이 허수부의 영상보다 더 잘 분해된 영상을 보임을 의미한다. 그러나 이 조건이 만족되기 위해서는 시료두께가 비 현실적으로 얇아야 한다. 예로서 50 pm 정도의 고 분해 영상을 원할 때 $g_{\max} = 20 \text{ nm}^{-1}$ 이내에 대응되는 모든 $\phi_g(t)$ 가 EPW를 얻는 데 기여되어야 한다. 300 kV-TEM (가속 전자의 파장: $\lambda = 0.001969 \text{ nm}$)를 이용하는 경우 $t \ll 3(\pi \lambda (g_{\max})^2) = 1.21 \text{ nm}$ 의 정도로 시료 두께가 얇아야 한다. 실질적인 실험조건에 대체로 부합되는 최소한의 시료두께 $t = 4 \text{ nm}$ 에 대해서는 $\pi \lambda t (g_{\max})^2 \approx 10$ 이고 이 값에 대해 (9)식에 n 차 항들의 절대치는 증가하면서 $n=10$ 에서 최대치 276 정도의 값에서 감소하기 시작하여 $n=22$ 이하에서부터 1보다 작아진다. 물론 이 수열은 절대수렴하고 항들의 부호가 교대로 변함으로 서로 상쇄되긴 하지만 이 모든 항들이 분명히 EPW에 수치적으로 의미 있게 기여한다. 또 다른 예로 Si의 [112]-zone 축에 대한 영상의 경우는 원자열에 가장 가까운 간격이 78.4 pm이고 이를 분해하는 영상에 기여되어야 하는 g 의 범위는 $g_{\max} = 12.8 \text{ nm}^{-1}$ 이다. 이때 $\pi \lambda t (g_{\max})^2 \approx 4$ 이고 $n=4$ 항까지 2.7 정도로 증가하다가 $n=7$ 항 이후부터 1보다 작아진다. 그럼에도 불구하고 (8)식을 이용한 위 조건에 대한 시뮬레이션 영상은 78.4 pm이 대체로 잘 분해된 패턴을 보였다. 이로부터 우리는 $n=4 \sim 5$ 항까지의 항들은 오히려 분해패턴에 기여하거나 적어도 방해하지는 않고 그 이후에 항들이 분해방해를 시작하는 것으로 추정할 수 있다. 이러한 이유를 확실하게 알아보기 위해 (9)식에 각 항에 대한 역-Fourier 변환을 취한 파동함수에 대해 영상 시뮬레이션을 하여보았다. n 이 증가함에 따라 피크 값이 (+/-)로 교대로 반전되고 원자열 피크 폭이 줄어들지만 $n=4 \sim 5$ 이후부터 이 피크 주변에 의미 없는 피크들이 점진적으로 나타남을 보였다. 즉 이 주변 피크들이 분명히 영상분해를 방해하게 된다.

3. EPW의 2차 도함수 영상의 분해능 향상

EPW 영상의 분해능은 (8)식을 분석함으로써 쉽게 알아볼 수 있다. g -회절진폭이 일차적으로 $\phi_g(t) \propto v_g/g^2$ 의 관계를 보이고 있다. 즉 g 의 값이 증가하면서 이상적인 $\phi_g(t) \propto v_g$ 관계로부터 벗어나 $\phi_g(t)$ 가 급격히 감소하게 된다. 그러므로 $1/g^2$ 인자가 영상 분해를 방해하는 주 요인으로 작용함을 알 수 있다. 이를 제거하는 방법은 매우 간단하다. 즉 EPW의 Fourier 변환으로 $\phi_g(t)$ 를 얻고 여기에 g^2 를 곱하여 역-Fourier 변환을 하면 제거된다. g^2 를 곱하여 역-Fourier 변환을 하는 과정은 (2)식과 같으므로 수학적으로 EPW의 음(-)의 2차 도함수를 취하는 것과 같다. 그리고 이 식은 아래와 같이 표현된다.

$$-\nabla^2\psi(\mathbf{X}) \approx 4\pi\sigma_t [-\beta^2\nabla^2\rho_p(\mathbf{X})/2! + \beta^3\nabla^6\rho_p(\mathbf{X})/4! - \dots] + i4\pi\sigma_t [\rho_p(\mathbf{X}) - \beta^2\nabla^4\rho_p(\mathbf{X})/3! + \beta^4\nabla^8\rho_p(\mathbf{X})/5! - \dots] \quad (13)$$

실리콘 표준시료의 [114] 및 [116] 방위 축에 대한 (13)의 영상 시뮬레이션 결과 기대한 바와 같이 획기적으로 분해능이 개선된 영상을 보이고 있음을 확인했다. 여기서 한가지 언급하여야 할 것은 (8)식에서 g^2 뿐만 아니라 v_g 이외에 다른 항들의 역의 값을 곱하면 이상적인 $\phi_g = v_g$ 의 관계를 회복하는 것이 이론적으로 가능하게 보인다. 그러나 실질적으로 이것이 가능하지 않은 이유는 첫째 (8)식은 운동학적 회절이론에 의한 근사식이라는 점과 결정적으로 문제가 되는 것은 시료두께 t 를 매우 정확하게 알아야 한다는 점이다. 약간의 t 의 변화는 (8)식에서 위상(phase)값을 변화시키기 때문에 전체 값이 급격히 변한다. 실험적으로 시료두께를 매우 정확하게는 알 수 없으므로 실질적으로 이상적인 $\phi_g = v_g$ 의 관계를 회복하는 것은 가능하지 않다.

흥미로운 것은 (13)의 2차 도함수, 즉 $\psi(\mathbf{X})$ 의 4차 도함수는 더욱 개선된 영상분해를 보이는 점이다. (13)은 가능한 한 $\phi_g(t) \propto v_g$ 관계회복에 의한 투영된 결정 퍼텐셜을 반영한다고 볼 수 있고 따라서 이의 2차 도함수 곧 $\psi(\mathbf{X})$ 의 4차 도함수는 PCD 영상에 가깝다고도 볼 수 있다. 계속해서 $\psi(\mathbf{X})$ 의 음(-)의 6차 도함수도 전체 분해상 패턴이 변화하지 않으면서 피크 폭이 계속해서 줄어들을 볼 수 있다. 그러나 이 이상의 도함수 영상은 주위에 여러 피크들이 점진적으로 커진 패턴을 보이고 있다. 이러한 양상은 영상의 피크 형태가 가우스 함수 ($f(x) = 1/(\sigma_s\sqrt{2\pi}) \cdot \exp(-x^2/2\sigma_s)$: σ_s 는 표준 편차) 형태와 유사성을 가지기 때문으로 보고 있다. 이것을 확인하고 또한 이러한 처리방법에 의한 분해능 향상 정도의 정량적 값을 알아보기 위해 일정 거리로 분리되어 있는 두 개의 가우스 함수들의 합인 그래프를 분석하여 보았다. 그 결과 두 함수의 피크들이 $2\sigma_s$ 로 분리되어 있으면 합의 함수는 하나의 피크를 이루어 전혀 분해되어 있지 않으며 적어도 $3\sigma_s$ 이상 떨어져 있어야 피크들 간격이 많이 줄어들지 않은 분리된 패턴을 볼 수 있었다. 반면 이의 음의 2차 도함수는 $1.5\sigma_s$ 이상 떨어져 있으면 폭이 줄어들어 분해되기 시작하였고 이 때 계속해서 4차 및 음의 6차 도함수를 취하면 거의 완전 분리된 폭이 매우 좁은 2개의 피크들을 볼 수 있었다. 그러므로 이러한 연속적인 도함수를 취하면 결과적으로 2배 가까이 피크들 분해능이 향상됨을 알 수 있었다. 물론 이러한 예측이 실험적으로 부합되기 위해서는 가능한 한 정확한 EPW를 얻어야 하고 이들 영상 피크들이 가우스 함수의 가까운 패턴을 가져야 한다.

4. PCD 영상관찰 조건에 대한 논평

PCD 영상관찰 기법에 대한 연구는 과거 Cowley and Mod-

die (1960)에 의해 이미 이루어졌다. 최근 50 pm 분해영상 기법으로 O'Keefe et al. (2007, 2008)가 다시 이 기법을 제안하였다. 이 기법의 첫째 조건은 시료가 충분히 얇아서 P.O. (phase object)로 취급될 수 있다고 가정하였다. 이 P.O.에 의한 산란된 전자의 파동함수는 다음으로 주어진다.

$$\psi(\mathbf{X}) \approx \exp[i\sigma_t V_p(\mathbf{X})] = 1 + i\sigma_t V_p(\mathbf{X}) - \{\sigma_t V_p(\mathbf{X})\}^2/2! + \dots \quad (14)$$

σ_t 는 적은 값이므로 $(\sigma_t)^2$ 이후에 항들은 무시된다. 그리고 (14)의 Fourier 변환에 의한 산란진폭 $\phi_g(t)$ 는

$$F\{\psi(\mathbf{X})\} = \phi_g(t) \approx \delta_{g,0} + (i\sigma_t)v_g \quad (15)$$

의 근사식을 갖는다. (15)식이 (8)내지 (9)식과 일치하기 위해서는 영상에 기여되는 모든 g 에 대해 $\pi\lambda t g^2 \ll 1$ 의 조건이 만족되어야 한다. 즉 이 조건이 만족되면 해당 시료를 P.O.로 취급될 수 있다. 둘째 조건은 현미경의 관찰조건으로 구면수차 계수 $C_s = 0$ 및 작은 비 초점 값(small Δf)하에 영상이 획득되어야 한다. 이 경우 CTF (phase contrast transfer function)는 아래와 같다.

$$T(\Delta f, g) = \exp(-i\pi\lambda\Delta f g^2) \approx 1 - i\pi\lambda\Delta f g^2 \quad (16)$$

(16)의 근사관계가 만족되기 위해서는 물론 $\pi\lambda\Delta f g^2 \ll 1$ 이 만족되어야 한다. 그러면 (15)에 (16)을 곱한 후 역-Fourier 변환을 취한 대응되는 파동함수는,

$$\psi(\mathbf{X}) = 1 + i\sigma_t V_p(\mathbf{X}) - \lambda\Delta f \sigma_t \nabla^2 V_p(\mathbf{X})/4\pi \quad (17)$$

이 된다. 그러면 관찰영상의 강도 I 는

$$I(\mathbf{X}) = |\psi(\mathbf{X})|^2 \approx 1 - \lambda\Delta f (\sigma_t) \nabla^2 V_p(\mathbf{X})/2\pi + (\sigma_t)^2 \text{ 항} \dots \approx 1 + 2\pi\lambda\Delta f (\sigma_t)\rho_p(\mathbf{X}) \quad (18)$$

이고, (18)식을 구하는 과정에서 $(\sigma_t)^2$ 항 이후는 모두 무시했고 Poisson 방정식 (11)이 이용되었다. 과거 1960년대에는 0.2 nm의 분해 정도에 만족 했으므로 이럴 경우 $g_{\max} = 1/0.2 \text{ nm}^{-1}$: $t < 3.2 \text{ nm}$, $|\Delta f| < 3.2 \text{ nm}$ 이면 위의 두 조건들이 만족된다. Spence (1981)의 책에 0.35 nm의 분해한계에 대해 이 기법에 유용성과 실험적 증명이 소개되어 있다. 이 한계에서는 $g_{\max} = 1/0.35 \text{ nm}^{-1}$: $t < 10 \text{ nm}$ 및 $|\Delta f| < 10 \text{ nm}$ 이 관찰 조건이 된다. 그러나 이 기법에 의한 50 pm의 분해의 PCD 영상을 얻기 위해서는, 가령 300 kV-TEM을 이용할 경우 적어도 $\pi\lambda t (g_{\max})^2 < 0.5$ 이어야 하고 $g_{\max} = 1/0.05 \text{ nm}^{-1}$ 임으로 시료두께 $t < 0.2 \text{ nm}$ 를 만족해야 한다. 즉 극단적으로 시료가 얇아야 한다. 또 다른 비 초점 값에 대한 조건에 대해 $|\pi\lambda\Delta f g^2| < 0.5$ 로 놓을 때 $|\Delta f| < 0.2 \text{ nm}$ 이 되어야 한다. 물론 이러한 관찰조건하에서는 명암대비 지수도 극히 낮아서 실질적인 관찰조건에는 부합되지 않는다. 결론적으로 PCD 기법은 0.2 nm 이상의 분해 영상을 기대할 때만 유용하다고

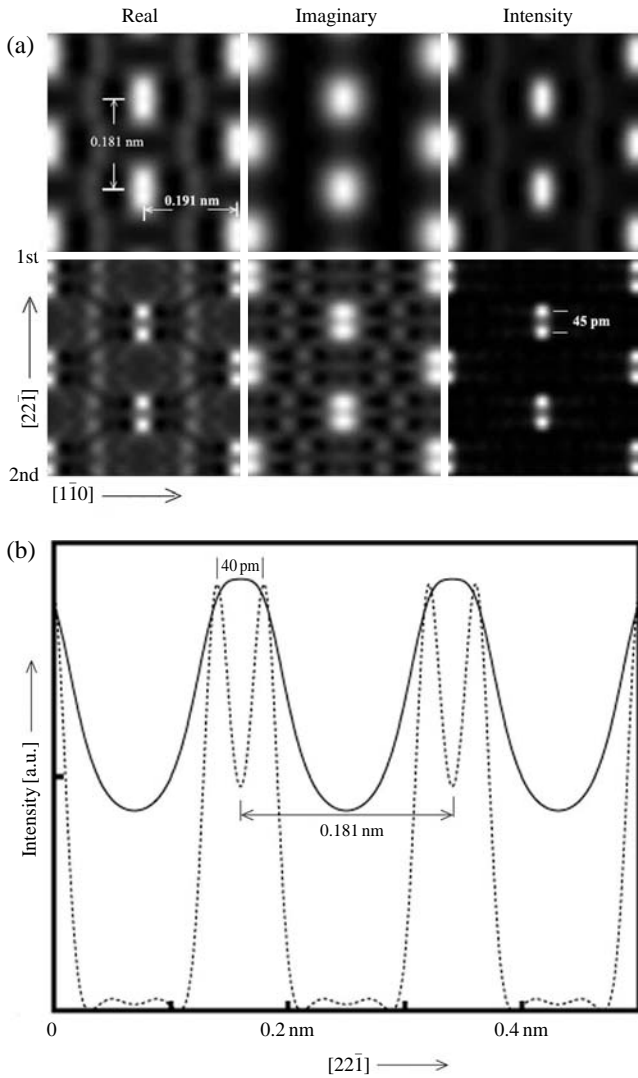


Fig. 1. a: simulated images of the exit-plane complex wave function for Si in [114] orientation (1st row) and the corresponding images of the negative of the second derivative of the function (2nd row). The contrasts of all images were adjusted as 1 to see clear images. b: the intensity line profiles along [22-1] direction in arbitrary unit (a.u.). The solid line is for the intensity image of the 1st row and the dotted line is for that in the 2nd row.

본다.

결 과

위의 이론 분석 및 예측은 근사적인 운동학적 회절 이론을 기초로 한 것이므로 이들 예측의 타당성을 동역학적 회절이론과 비교 검토하여 확인할 필요가 있다. 이 검토는 동역학적 이론식인 (3)식과 운동학적 이론식인 (8)식에 의한 HRTEM 영상 시뮬레이션 영상들의 비교 검토로 충분하다

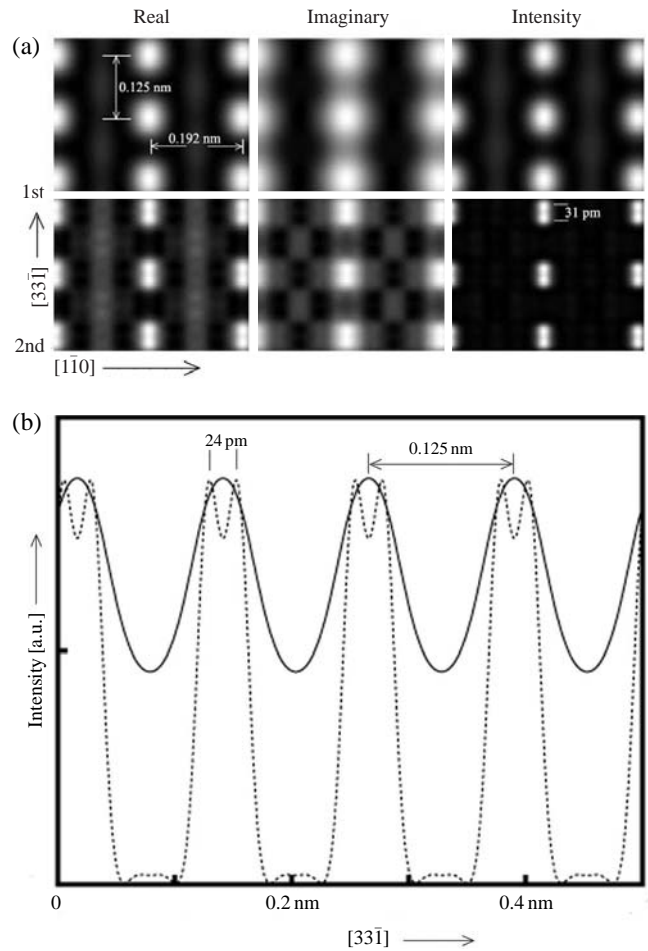


Fig. 2. The same legend as those in Fig. 1 except for [116] orientation.

고 본다. 이에 대한 적합한 시험시료로 반도체인 Si, InAs, ZnS 및 GaN를 선택했다. 이들 결정들은 [114] 및 [116] zone 축 방위에서 최단 원자열 간격이 50 pm 내지 30 pm을 가지므로 본 논문 목적에 부합된다. 그리고 시료두께 4 nm에 대해 300 kV-TEM 사용을 가정했다. 시뮬레이션 계산에는 [114] 방위 축에 대해서는 $g_{max}=39 \text{ nm}^{-1}$ 이내의 회절 빔들이, [116] 방위 축에 대해서는 $g_{max}=48 \text{ nm}^{-1}$ 이내의 회절 빔들이 모두 포함되었다. 그리고 (3)식에 의한 영상 시뮬레이션에는 Howie-Whelan 방정식(Hirsch et al., 1977)이 이용되었다. 비교 결과 (3)과 (8)식에 의한 시뮬레이션 영상들이 대체로 서로 잘 일치하였지만 예상과는 달리 (3)식에 의한 동역학적 회절 영상이 (8)식에 의한 운동학적 회절 영상보다 더 낮은 분해상을 보였다. 예로서 실리콘의 [112] zone 축 방위에 대해 (3)식에 의한 영상강도는 78.4 pm의 원자열 분해가 잘 나타나 있었지만 (8)식에 의한 것은 분해가 모호한 패턴을 보였다. 그 이유로는 (3) 및 (8)과 같은 (9)식에서 $n=5$ 이후에 항들이 (3)식에 의한 시뮬레이션 영상에는 Bloch-waves가 분산되어 일종의 퍼진 배경강도로 방해하는

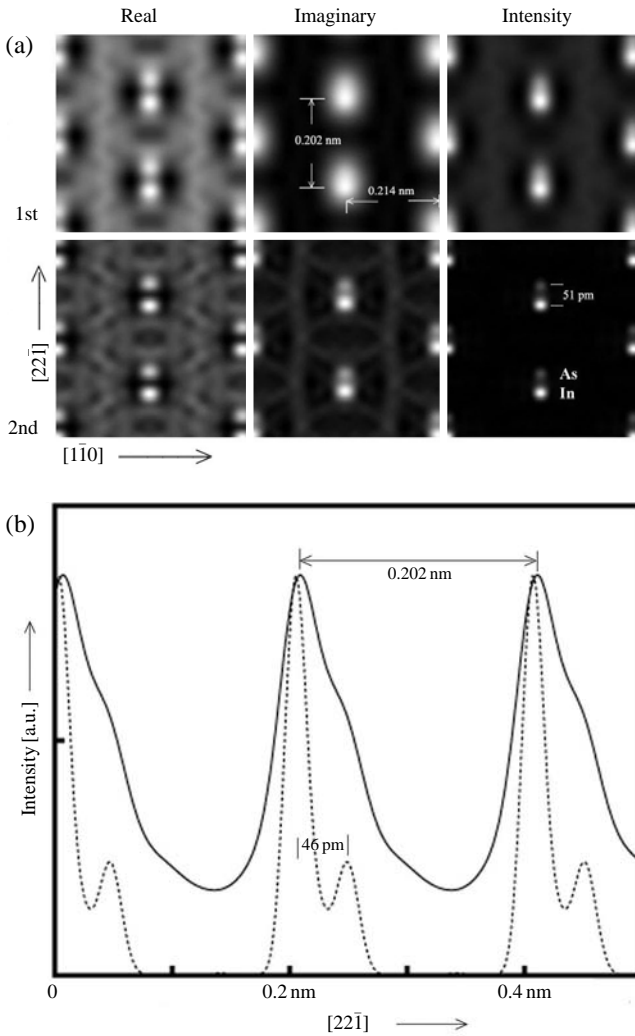


Fig. 3. a: simulated images of the exit-plane complex wave function for a InAs in [114] orientation (1st row) and for the negative of the second derivative of the function (2nd row). b: the intensity profiles along [22-1] direction.

반면 운동학적 이론에 의한 시뮬레이션에는 원자열 주변에서 피크 형태로 방해하기 때문인 것으로 사료된다.

Fig. 1은 Si ($a=0.543$ nm DC)의 [114] zone축에 대한 EPW의 실수부, 허수부 및 이들의 절대 자승인 강도의 시뮬레이션 영상들을 보여주고 있다. 그리고 Debye-Waller 인자는 상온에의 값 $B=0.467 \times 10^{-2} \text{ nm}^2$ 을 사용했다. 이 값은 상온에서 원자진동의 표준편차 폭 13 pm을 준다. 이 영상들은 대체로 실수부의 영상들이 허수부의 영상들보다 피크 폭들이 좁게 나타나 더 낫은 분해상을 보이고 있다. 이는 앞의 이론 분석에서 예측한 바와 정성적으로 잘 맞다고 볼 수 있다. (1)식에 의한 EPW의 첫째 줄 영상들에는 최단 원자열 간격 45 pm이 분해되지 않은 것을 볼 수 있는 반면, EPW의 음(-)의 2차 도함수에 의한 두 번째 줄의 영상들

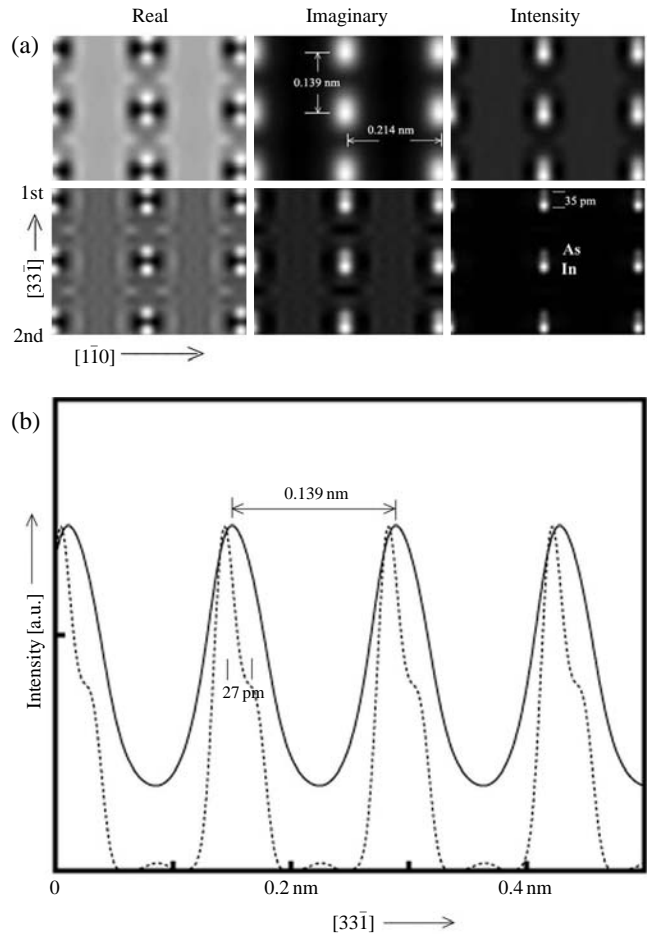


Fig. 4. The same legend as those in Fig. 3 except for [116] orientation.

은 분명히 피크들이 분해된 패턴을 보이고 있다. 이중 강도 영상에 대한 [22-1] 방향의 일차원 그래프인 b를 보면 완전 분해가 되지 않아서 피크 간격이 45 pm보다 적은 40 pm을 보이고 있다. 그러나 앞 절의 이론분석에서 논의한 바와 같이 EPW의 4차 도함수의 강도 영상은 Fig. 1에는 나타나 있지 않지만 피크들이 완전 분리된 패턴을 보이고 있었고 그 간격도 45 pm으로 측정되었다.

Fig. 2는 Si의 [116] zone 축 방위에 대한 것으로 최단 원자열 간격이 31 pm이다. (a)의 첫째 줄의 영상(EPW의 영상)들은 이 간격이 거의 분해되지 않음을 볼 수 있다. 그러나 EPW의 음의 2차 도함수 영상인 두 번째 줄의 영상에서는 원자열 피크들이 분해됨을 보인다. 이 강도영상의 일차원 그래프 b에서는 피크 폭 간격이 24 pm 정도로만 분리되어 있는 것을 알 수 있다. 그러나 EPW의 4차 도함수 영상 강도는 분명히 잘 분리된 패턴을 보였고 분리 간격도 31 pm로 나타났다.

InAs ($a=0.606$ nm Cubic)의 [114] zone 축 방위에 대한 영상 시뮬레이션이 Fig. 3에 보여주고 있다. 이 시뮬레이션에

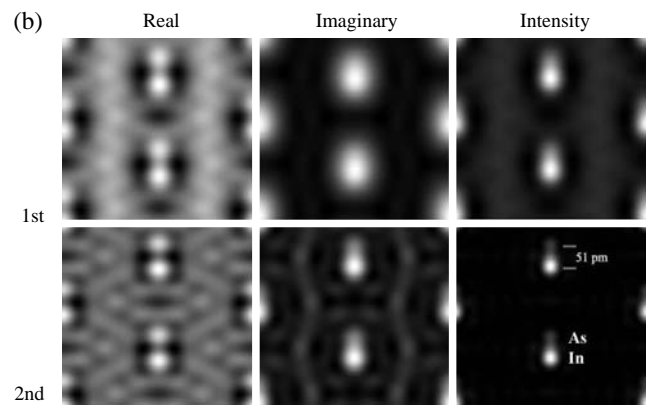
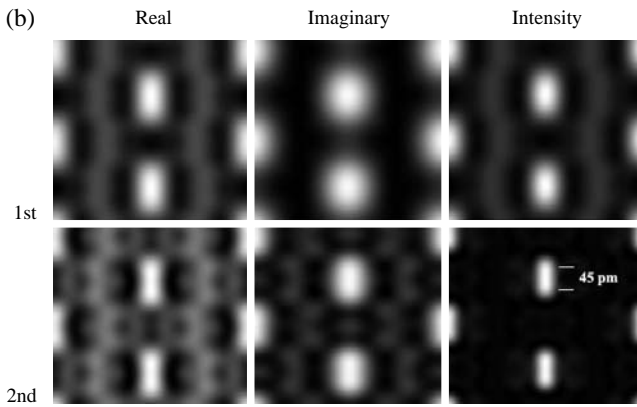
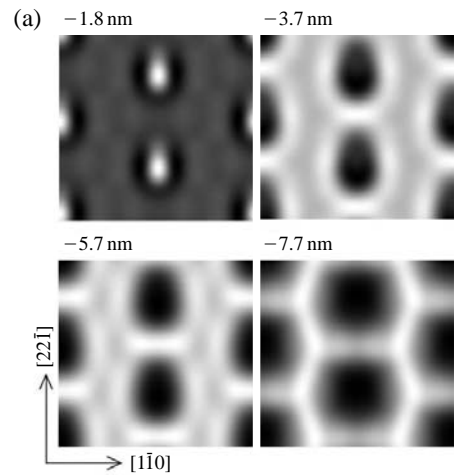
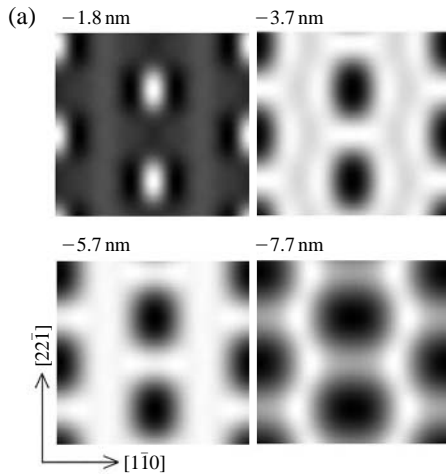


Fig. 5. a: simulated focal series images of a cell for silicon viewed along the [114] direction under a 300 kV TEM at $C_s=3\ \mu\text{m}$, $\Delta_s=0.8\ \text{nm}$ and $\beta_s=0.15\ \text{mrad}$. Defocus values are indicated on the top of figures. b: the images of the exit- plane wave constructed from the four images in a (1st row) and their second derivative images (2nd row).

Fig. 6. The same legend as those in Fig. 5 except for change of InAs.

는 Debye-Waller 인자는 상온에의 값 $B=0.5 \times 10^{-2}\ \text{nm}^2$ 사용했다. 이 방위 축에서 최단 원자열 간격은 51 pm이다. 이것이 분명히 분해된 영상은 역시 EPW의 음의 2차 도함수 영상인 a의 두 번째 줄 영상들이다. B에 강도의 그래프에서 피크 간격은 46 pm을 나타내고 있다. 그러나 EPW의 4차 도함수에 대한 시뮬레이션 영상들은 거의 완전히 분리된 패턴을 보였고 분리 간격도 51 pm로 측정되었다. 다만 In과 As의 원자 번호 비율이 49:33=1:0.67이지만 b 및 4차 도함수 영상에서 피크 크기의 비율은 1:0.28로 As의 피크가 상대적으로 낮게 나타났다.

Fig. 4는 InAs의 [116] zone 축에 대한 것으로 최단 원자열 간격은 35 pm이다. b의 일차원 그래프에서 보면 EPW의 음의 2차원 도함수의 영상에서조차 피크 분리가 불분명하게 나타나 있다. 그러나 4차원 도함수는 35 pm이 잘 분리된 패턴을 보였다. 이 때 피크치의 비율이 1:0.42로 [114]의 경우에서보다 증가하였다. 그 밖에 ZnS ($a=0.542\ \text{nm}$ Cu-

bic)에 대한 시뮬레이션 결과는 InAs의 경우와 유사한 패턴을 보였다. 이 화합물의 원자번호 비율은 30 (Zn): 16 (As)= 1:0.53로 InAs의 경우와 큰 차이가 없다. 그러나 원자번호 비율이 31 (Ga): N (7)=1:0.23인 GaN ($a=0.541\ \text{nm}$, ZnS 형태 구조)인 경우, [114] 및 [116] zone 축에 대한 시뮬레이션 영상에는 N의 원자열의 피크들이 나타나지 않았다. 반면 [112]-zone 축 방위인 경우 EPW의 강도 영상에서도 원자열 간격이 잘 분리되고 피크 값 비율이 1:0.19 정도를 보이는 패턴을 보였다. 그러나 Ga과 N의 원자열 위치가 최단 간격 78 pm보다 더 떨어진 86 pm로 분리되어 나타나는 문제점을 보였다.

이상의 결과들은 이상적인 전자현미경 조건 즉 $C_s=\Delta_s=\beta_s=0$ 를 가정하에서 얻은 것이다. 그러므로 실제로 현재 이용될 수 있는 TEM으로부터 실험적으로 50 pm 이하 분해 영상을 얻을 가능성이 있는지 확인할 필요가 있다. 현재 이를 확인하는 실험을 할 수 있는 최신 TEM 장비로는 Kisielowski et al. (2008)이 사용한 현미경으로 저자는 보고 있다. 이 장비는 FEI Titan 80-300 (scanning) TEM을 기반으로

한 C_s -Corrected 300 kV-FEG-TEM/STEM으로 $\Delta_s=0.8$ nm, $\beta_s=0.15$ mrad 정도의 안정성을 갖는 것으로 보고하고 있다. 이 장비를 이용한 가상 이론 실험 결과들이 Fig. 5와 Fig. 6에 보여주고 있다. Fig. 5a는 Si의 [114] zone 축 방위에 대해 $C_s=3$ μ m, 비 초점 -1.8 nm, -3.7 nm, -5.7 nm 및 -7.7 nm 단계에 대해 고 분해 시뮬레이션 영상들이다. 이들 영상들은 50 pm 이하에 분리를 갖는 원자열 상(image)이 전혀 분해되어 있지 않음을 볼 수 있다. 이 C_s 및 비 초점 값들은 Kisielowski et al. (2008)이 실제로 이 조건하에 Au의 나노 입자들의 고 분해 영상들을 관측한 데이터이다. b는 이들 영상 데이터로부터 Allen et al. (2004, 2006)의 방법에 의해 얻은 EPW의 실수부, 허수부 및 이들의 절대자승의 강도 영상들이다(첫째 줄). 그리고 이 EPW 함수의 음의 2차 도함수에 대한 영상들이 두 번째 줄에 보여주고 있다. 이들 영상들은 Fig. 1a와 대응되는 것으로 $\Delta_s=0.8$ nm, $\beta_s=0.15$ 에 의해 영상의 퍼짐이 일어나 분명한 45 pm 분해상은 볼 수 없다. 그러나 EPW의 4차 도함수의 강도 영상은 분명한 분해상을 보여주고는 있었지만 분리 간격이 49 pm으로 실제 간격 45 pm보다 더 분리되었다. 또한 주위에 의미 없는 피크 영상들이 약하지만 나타나 있었다. 이는 일련의 비 초점의 영상 데이터로부터 EPW를 재 구성한 과정에서 의미 없는 피크들이(즉 artificial peaks) 부가되어 생성되었기 때문으로 생각된다. 여기서 강조할 것은 일련의 영상 데이터로부터 재구성한 EPW는 이론적으로는 특정한 C_s 및 비 초점 값들과는 무관하다는 점이다. 위의 비 초점에 10배를 한 관찰 조건에 해당하는 영상 데이터로부터 얻은 EPW도 Fig. 5에서의 영상과 거의 같았다.

Fig. 6은 다만 시료를 InAs으로 바꾼 결과들의 영상이다. b의 두 번째 줄의 영상들은 원자열 간격이 45 pm인 Si 경우와는 달리 분명히 51 pm 원자열 분해상을 보이고 있다. 이것은 현재의 TEM 장비로도 위와 같은 실험절차를 거치면 50 pm 분해 정도의 영상 정보는 획득할 수 있다는 것을 의미한다. 같은 시료들에 대한 [116] zone 축 방위에 대해서는 $\Delta_s=0.4$ nm일 때만 Fig. 5와 비슷한 정도의 분해 영상을 볼 수 있었다.

고 찰

HRTEM 실험에서 50 pm 이하의 원자열 분해를 주는 영상을 얻을 가능성이 있는지를 우선적으로 탐색하였다. 그 결과 가능한 실험조건에 해당될 수 있는 시료 두께 $t=4$ nm에서는 분명한 50 pm 이하의 분해 영상을 얻는 것이 전통적인 방법으로는 가능하지 않음이 밝혀졌다(300 kV-TEM 사용 경우). 이것은 Figs. 1~6의 EPW(exit-plane wavefunc-

tion)의 절대자승인 강도 영상에서 쉽게 확인된다. 이 한계를 극복하고 효과적으로 50 pm 이하의 원자열 분해를 줄 수 있는 새로운 기법이 이 논문에서 연구되었다. 이 기법은 다음으로 요약된다.

1) 20여 개(4~5개도 가함)의 일련의 비 초점 단계의 통상적인 영상들을 획득한다.

2) 이 영상 데이터로부터 Coene 알고리즘(1996) 혹은 Allen의 알고리즘(2006)의 소프트웨어로 EPW를 얻는다. 이 방법은 이론적으로는 시료의 사전 결정정보를 요하지 않고 다만 현미경의 관찰 환경변수 즉 구면수차, 색수차 등의 정량적 지수 값만을 요한다.

3) 2)에서 얻은 EPW의 Fourier 변환을 하면 그 계수는 운동학적 회절 이론이 근사적으로 맞는 조건하에서 (8)식의 근사값과 같아진다. 여기에 g^2 을 곱하여 역-Fourier 변환을 취하면 EPW의 음(-)의 2차 도함수가 얻어진다. 이 함수의 영상들(실수부, 허수부 강도)은 분해능이 효과적으로 현저히 향상된 영상 패턴으로 변환된다. 왜냐하면 이 처리는 (8)식의 방해인자 분모 항 $S_g \propto g^2$ 을 제거하는 것과 같은 효과를 주기 때문이다. 이 결과는 Figs. 1~4의 a의 두 번째 줄(2nd) 영상에서, Figs. 5~6에서는 b의 두 번째 줄 영상에서 확인된다. 만약 g^4 을 곱하여 역-Fourier 변환을 취하면 EPW의 4차 도함수에 해당되고 이로부터 더욱 향상된 분해능을 가진 영상이 얻어진다. 이러한 처리는 분해능을 2배 가까이 향상시킨 결과를 주기 때문에 50 pm내지 30 pm의 분해 영상을 얻는 것도 가능해진다. 이 방법이 잘 적용되기 위해서는 운동학적 회절 이론이 근사적으로 잘 맞는 조건이 되어야 한다. 물론 시료두께가 얇을수록 이 조건에 더욱 가까워진다. 그리고 Si과 같은 반도체 화합물의 [114]나 [116]의 높은 지수를 갖는 zone 축 영상강도는 운동학적 회절이론에 의한 영상과 근접됨으로 높은 지수의 zone축 영상을 획득하는 것이 바람직하다. 끝으로 50 pm 이하의 분해 영상을 실제로 관찰하기 위해서는 물론 현미경의 전기적 기계적 안정성이 고도로 높아야 하고 색수차에 의한 초점거리의 편차가 300 kV-TEM인 경우, $\Delta_s < 0.8$ nm의 조건이 되어야 한다. 이 조건에 의한 50 pm 분해 영상을 주는 가상 이론 실험 결과가 Figs. 5~6에 보여주고 있다.

결 론

운동학적 회절이론이 근사적으로 맞는 조건하에 결정 밀도면 함수(exit-plane wavefunction)의 음의 2차 도함수 및 4차 도함수 영상 처리는 2배의 분해능 향상을 가져온다. 따라서 이 새로운 영상 처리 방법에 의해 50 pm 이하의 고 분해 영상을 효과적으로 얻는 것이 충분히 가능하다.

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 Cs correction using iterative wave-function reconstruction. *Microscopy and Analysis* 52 : 5-7, 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.
- Cowley JM, Moodie AF: Fourier images IV : The phase grating. *Proc Phys Soc* 76 : 378-384, 1960.
- Hirsch PB, Howie A, Nicholson RB, Pashley DW, Whelan MJ: *Electron microscopy of thin crystals*, Krieger Publ., Huntington (N.Y.), 1977.
- Jia CL, Lentzen M, Urban K: High-resolution transmission electron microscopy using negative spherical aberration. *Microsc Microanal* 10 : 174-184, 2004.
- Kim HS, Sheinin SS: On effects of exit and entrance surface inclination on structure images. *Ultramicroscopy* 51 : 109-116, 1993.
- Kisielowski C, Freitag B, Bischoff M, van Lin H, Lazar S, Knippels G, Tiemeijer P, van der Stam M, von Harrach S, Stekelenburg M, Haider M, Uhlemann S, Müller H, Hartel P, Kabius B, Miller D, Petrov I, Olson EA, Donchev T, Kenik EA, Lupini AR, Bentley J, Pennycook SJ, Anderson IM, Minor AM, Schmid AK, Duden T, Radmilovic V, Ramasse QM, Watanabe M, Erni R, Stach EA, Denes P, Dahmen U: Detector of single atoms and buried defects in three dimensions by aberration-corrected electron microscope with 0.5-Å information limit. *Microsc Microanal* 14 : 469-477, 2008.
- Lentzen M: Progress in aberration-corrected high-resolution transmission electron microscopy using hardware aberration correction. *Microsc Microanal* 12 : 191-205, 2006.
- O'Keefe MA, Allard LF, Blom DA: Tackling the size problem: seeing atoms smaller for better TEM resolution. *Microsc Microanal* 13 : 872-873, 2007.
- O'Keefe MA: Seeing atoms with aberration-corrected sub-Ångstrom electron microscopy. *Ultramicroscopy* 108 : 196-209, 2008.
- Self PG, O'Keefe MA, Buseck PR, Spargo AEC: practical computation of amplitudes and phases in electron diffraction. *Ultramicroscopy* 11 : 35-52, 1983.
- 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.

< 국문 초록 >

이 논문에서 50 pm 이하의 원자열 분해상을 효과적으로 보여주는 결정 밑 표면 파동함수(EPW)의 음(-)의 2차 도함수의 시뮬레이션 영상들이 나타나 있다. 그리고 해당 EPW는 HRTEM에서 일련의 비 초점 단계의 관찰 영상으로부터 얻을 수 있다. 이 논문에 나타난 시뮬레이션한 영상들은 대체로 50 pm 이하의 원자열 간격을 주는 Si와 InAs의 [114] 및 [116] 방위 축에 대한 것이다. 이 방법의 정당성에 대한 이론적 이유가 운동학적 회절 이론을 기초로 한 분석에서 주어졌다. 그리고 그 응용성의 한계도 논의되었다.