

KBSI-HVEM 대물렌즈의 구면수차 계수 측정

김 영 민, 심 호 식¹, 김 윤 중*
한국기초과학지원연구원 전자현미경연구부,
¹지올코리아(주) 기술지원본부

Measurement of Spherical Aberration Coefficient of the Objective Lens in KBSI-HVEM

Young-Min Kim, Hyo-Sik Shim¹ and Youn-Joong Kim*
Division of Electron Microscopic Research, Korea Basic Science Institute, 52 Eoeun-dong,
Yuseong-gu, Daejeon 305-333, Korea
¹Technical Support Division, JEOL Korea Ltd., 218-16 Nonhyun-dong, Gangnam-gu,
Seoul 135-010, Korea
(Received April 23, 2007; Accepted June 14, 2007)

ABSTRACT

Coefficient of spherical aberration of the objective lens in the KBSI-HVEM was evaluated by diffractogram method. Instrumental resolution was also discussed with this method. In order to improve the accuracy, digital processing and graphical curve fitting for intensity profile of diffractogram were employed. Experimental concerns where the optimal procedure of the measurement can be accomplished for this study were discussed. The spherical aberration coefficient (C_s) was estimated to be 2.628 ± 0.04 mm from this study, which was almost coincident with the value of the manufacture's suggestion ($C_s=2.65$ mm).

Keywords : Spherical aberration coefficient, C_s , Objective lens, High voltage electron microscope (HVEM)

서 론

전자선의 파장(λ)과 대물렌즈의 구면수차 계수(C_s)는 장비의 분해능을 결정하는 주요 요소이다(Spence, 2003). 한국기초과학지원연구원에 설치된 초고전압 투과전자현미경 (High Voltage Electron Microscope (HVEM))의 경우는 전자선의 파장을 매우 작게 만들어 물질의 원자 구조를 관찰하기 위해 필요한 높은

점 분해능을 획득한 경우로서 직접 분해 한계는 0.12 nm에 이른다. 이에 더하여 높은 가속전압을 사용하기 때문에 투과력이 높고 산란각이 작아 시료 두께의 제한을 완화하며 collection efficiency가 높은 장점이 있다. 본 HVEM의 경우 변온 및 변형을 위한 in-situ 실험과 경사각 조절을 극대화하기 위하여 대물렌즈의 pole-piece 간격을 약 10 mm로 크게 설계하였으며 상부 및 하부의 pole-piece 구조가 서로 다르다. 이에 따라 동급의 초고전압 투과전자현미경들보다 구면수차

* Correspondence should be addressed to Dr. Youn-Joong Kim, Division of Electron Microscopic Research, Korea Basic Science Institute, 52 Eoeun-dong, Yuseong-gu, Daejeon 305-333 Korea. Ph.: (042) 865-3596, FAX: (042) 865-3939, E-mail: y-jkim@kbsi.re.kr

Table 1. Characteristics of experimental methods for C_s measurement.

	BF/DF Displacement	Diffraction pattern
Accuracy	Less accurate ($\geq \pm 10\%$)	More accurate ($< \pm 10\%$)
Specimen	Thick specimen (Diffraction contrast) Observation of known zone-axis	Thin specimen (suitable for WPO, Phase contrast) Internal standards (Au, C, Ge, etc. ...)
Specimen conditions	Insensitive to radiation Large specimen: possible for reproducible measurement (ordinarily, larger than 400 nm)	Insensitive to radiation Know the planar spacing Use low index plane (larger spatial frequency to improve the accuracy)
Phase shift	Not related	Related
Dependency on focusing	Apply best Gaussian focusing	Not related to Gaussian focusing
Measurable parameter	C_s , Δf (not measured independently)	C_s , Δf (measured independently), resolution, astigmatism, specimen movement, ...

계수 값이 큰 단점이 있으나 장비의 활용 영역을 넓힐 수 있는 장점을 갖도록 구성하였다(KBSI, 2003).

구면수차 계수(C_s)는 장비의 성능을 평가하는 주요 파라메타로서 장비의 분해 한계에 대한 이해뿐만 아니라 획득한 고분해능 영상의 정량 분석과 자료 처리 및 보정을 위해 필요하다. 따라서 본 연구에서는 HVEM의 대물렌즈에 대한 구면수차 계수를 실험적으로 측정하였으며 측정 정밀도 향상을 위한 실질적인 고려 사항들을 고찰하였다. 그리고 본 장비의 구면수차 계수에 대한 이해를 위해 장비 제조사(JEOL, Ltd.)의 대물렌즈 설계 시 렌즈의 자장 분포를 고려하여 계산한 C_s 결과도 함께 고찰하였다.

재료 및 방법

1. 구면수차계수 C_s 의 실험적 측정 방법

일반적으로 전자현미경의 대물렌즈에 대한 구면수차 계수(C_s) 및 defocus (Δf)의 측정 방법은 명시야상(bright field, BF)/암시야상(dark field, DF) 변위를 측정하는 방법(Hall, 1949)과 WPO(Weak Phase Object) 가정에 합당한 C나 Ge와 같은 얇은 비정질 막에 대해 diffractogram을 얻고 투과파와 회절파간의 $n\pi/2$ 주기의 위상 변화를 측정하는 방법(Thon, 1965; Budinger et al., 1976; Krivanek, 1976; Park et al., 1996)이 있다. 또한 대물렌즈 디자인상에서 대물렌즈 내의 자장 분포 측정과 이론적 계산을 통해 구면수차 계수를 얻을

수 있는데(Reimer, 1993; Spence, 2003) 이는 실험자가 쉽게 측정할 수 있는 사항이 아니므로 보통 제조사가 제공을 하게 된다.

Table 1에 C_s 의 실험적 측정방법들에 대한 특징들을 비교하여 나타내었는데 BF/DF 변위 측정법은 1942년 Hillier와 Baker에 의해 제안된 이후 수십 년간 여러 연구자들에 의해 측정되었고 여러 개선된 방법들이 도출되었으나 그 측정 정밀도가 최소 $\pm 10\%$ 로 비교적 정밀한 측정방법은 아니다. 이는 후에 다시 언급되겠지만 비점보정이나 전압 측정 등 사전 장비의 광학적 정렬에 결점이 없는지에 대한 검증이 쉽지 않고 SADP(selected area diffraction pattern) 획득 시 나타나는 대물렌즈 조리개의 위치 오차 유발과 배울 및 파장 값에서의 측정 오차가 포함되고 Gaussian 초점을 맞출 때 나타나는 실험적 오차 등도 피할 수 없기 때문이다. 그러나 시편선택에서 보다 자유로우며 우리가 알고 있는 방위의 시편이라면 얼마든지 적용 가능하다. 측정오차를 줄이기 위해서는 Gaussian focusing과 장비의 광축 정렬에 대한 실험자의 전문성이 향상되어야 하며 여러 번의 반복 측정과 사전 정밀 측정된 장비 파라메타를 사용해야 한다.

Diffractogram을 이용한 측정방법은 1965년 Thon에 의해 제안된 방법으로 defocus의 변화에 따라 diffractogram 상에 나타나는 위상차를 측정함으로써 C_s 를 구하는 방법이다. 본 방법은 BF/DF 변위측정법에 비해 측정오차를 줄여줄 수 있고 Gaussian focusing과는 무관하게 임의의 defocus 하에서 C_s 를 측정할 수 있으

며 독립적으로 defocus 값 Δf 를 평가할 수 있다. 또한 측정 자료를 통해 장비의 광학적 정렬이 정확한지도 편리하게 평가할 수 있으며 신뢰성 있는 측정 횟수 또한 BF/DF 변위 측정법에 비해 크게 줄일 수 있다. 그리고 through focus series로 자료를 획득하면 장비의 분해능도 동시에 평가할 수 있다. 그러나 WPO 가정에 준한 얇은 비정질 시편이어야 하고 defocus 값이 증가할수록 spatial frequency 값이 작아지면서 diffractogram 상의 contrast 반전의 곡률이 증가하므로 저 지수(예를 들어, $n=1, 2$ 와 같은 low order일수록)에 대한 위상 변화 측정 오차는 증가하게 된다. 본 연구에서는 정밀도가 우수하고 장비의 광학적 성능을 종합적으로 평가할 수 있는 방법인 diffractogram 법을 활용하여 HVEM (JEM-ARM1300S, JEOL Ltd.)의 대물렌즈 구면수차 계수를 평가하였으며 장비 분해능도 동시에 평가하여 장비의 성능을 종합적으로 검증하였다. 실험적 측정 방법에 있어서 본 측정의 정밀도를 향상시킬 수 있는 고찰 사항들 또한 논의하였다.

Diffractogram을 이용한 C_s 의 측정 원리는 다음과 같다. WPO에 만족하는 얇은 비정질 시편에 대한 투과 빔과 회절 빔 사이에는 구면수차 계수(C_s)와 defocus (Δf)에 따라 위상차가 발생하게 되며, 이에 따라 contrast transfer function $B(q)$ 의 phase contrast에 영향을 준다. 비점 보정이나 전압 측 정렬이 보정된 정합 빔 조사 조건 하에서 시편에 대한 diffractogram 상의 강도를 결정하는 contrast transfer function $B(q)$ (Reimer, 1993)는

$$B(q) = \sin \chi(q) = \sin \left[\left(\frac{\pi}{2} \right) (-C_s \lambda^3 q^4 + 2\Delta f \lambda q^2) \right] \quad (1)$$

식(1)과 같이 표현된다. 여기서 λ 는 전자 파장이며 Δf 는 defocus 값이고 q 는 spatial frequency 값이다. 본 식을 보면 시편에 대한 최대 위상 및 최소 위상 contrast는 $\chi(q)$ 에 의해 결정되며 $\pi/2$ 주기에 따라 위상 contrast에 반전이 일어난다는 것을 알 수 있다. 즉,

$$\chi(q) = \begin{cases} \frac{n\pi}{2} & (n=\text{odd, maximum contrast}) \\ \frac{n\pi}{2} & (n=\text{even, minimum contrast}) \end{cases} \quad (2)$$

식(2)와 같이 diffractogram 상에서 phase contrast는 n 값에 따라서 최대 및 최소값을 갖게 되므로 식(1)과

(2)를 고려하면

$$\left[\left(\frac{\pi}{2} \right) (-C_s \lambda^3 q^4 + 2\Delta f \lambda q^2) \right] = \frac{n\pi}{2} \quad (3)$$

식(3)와 같이 정리할 수 있으며 이를 다시 정수 n 과 spatial frequency q 를 하나의 변수로 묶어 다시 정리하면,

$$\frac{n}{q^2} = -C_s \lambda^3 q^2 + 2\Delta f \lambda \quad (4)$$

식(4)와 같이 된다. 식(4)를 활용하여 diffractogram 상의 n 이 짝수가 되는 contrast 최소점에 대한 spatial frequency q 를 측정하던지 n 이 홀수가 되는 contrast 최대점에 대한 q 를 측정하면, 기울기가 $-C_s \cdot \lambda^3$ 이고 절편이 $2\Delta f \cdot \lambda$ 인 q^2 의 함수인 n/q^2 의 1차 선형 곡선을 얻을 수 있다. 따라서 식(4)의 1차 선형 방정식에 대한 graphical method를 적용하여 기울기와 절편을 구하게 되면 그 값으로부터 구면수차 계수(C_s)와 defocus (Δf)를 평가할 수 있게 된다. 본 방법 또한 BF/DF 변위 측정법과 같이 하나의 micrograph으로 구면수차 계수를 평가할 수 있지만 측정오차를 줄이기 위해선 through focus series로 측정하는 것이 바람직하며 측정 횟수를 여러 번 실시하는 것이 좋다. Through focus series로 측정할 때 focus 조절 knob의 step 수를 미리 기록해 두면 장비에서 조정 가능한 최소 focal step f (focus error) 또한 얻을 수 있고 overfocus에서 underfocus로 defocus (Δf) 변화에 따라 기록하여 Scherzer defocus 지점에 대한 diffractogram을 얻음으로서 장비의 분해능 또한 평가할 수 있다.

Fig. 1에 diffractogram을 이용한 구면수차 계수(C_s) 및 defocus (Δf)를 구하는 실험적 방법을 나타내었다. 먼저 고분해능 영상을 획득하기 전 장비의 광학적 정렬을 최선으로 실시하고 약 300,000배 이상의 배율에서 작업을 실시한다. 본 실험에서는 Ge 비정질 막 위에 올려진 Au 입자 시편을 이용하였고 Au 시편의 회절 면을 가지고 내부 표준으로 사용하였다. 필름으로 기록된 영상을 필름 전용 스캐너 (Sprint Scan 45, Polaroid Co.)를 이용하여 고해상도 디지털 파일로 변환시킨 후 DigitalMicrograph™ (Gatan Inc.)에서 배율보정을 실시하고 이미지에 대한 FFT (fast Fourier trans-

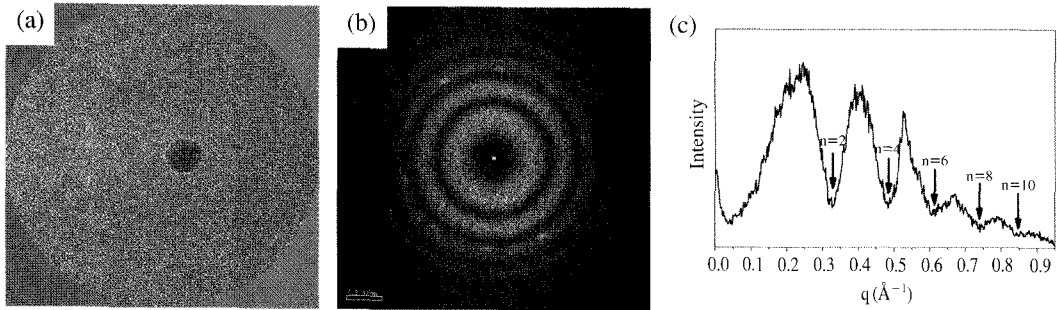


Fig. 1. Example of diffractogram acquired at certain defocus Δf for the measurement of C_s . (a) High-resolution image of amorphous Ge with Au particle. (b) The diffractogram of the high-resolution image obtained by FFT (fast Fourier transform). (c) Radial intensity distribution profile of the diffractogram. Even numbers of n denote the positions of contrast minima in the diffractogram.

form)를 하여 diffractogram을 획득하였다. 이때 FFT 영역은 대물렌즈 조리개와 같은 원형 영역을 선택하여 이미지 면에 대해 발생하는 불필요한 FFT 신호를 차단하여 주는 것이 좋다.

본 방법은 앞서 언급하였듯이 Gaussian focusing을 굳이 맞춰 줄 필요는 없다. 항상 Gaussian focus plane에서 어느 정도 defocus가 되어야 contrast의 최대/최소가 구분되는 환들이 나타나기 때문이다. 본 방법 역시 항상 광학적 정렬이 최상으로 조정되어야 한다. 만약 광학적 정렬이 불완전 할 경우에는 FFT를 통해 나타난 diffractogram으로 그 불완전성을 평가 할 수 있으며 조정이 가능하다. 그러나 2\AA 미만의 원자분해능을 구현하는 경우 보다 정밀한 구면수차 계수 측정을 위해선 diffractogram 상에서 판별할 수 없는 정렬 오차인 three-fold 비점수차 또한 고려할 필요가 있는데 해당 비점수차의 보정은 일부 최신의 imaging filter를 갖춘 현미경의 경우 소프트웨어 상에서 측정 및 보정이 가능하다.

Diffractogram법을 활용한 HVEM 대물렌즈에 대한 C_s 를 평가하기 위해 실험적으로 비점 수차는 40,000배 정도의 저배율에서 HV-GIF (High-Voltage Gatan Image Filter, Gatan Inc.)의 MS-CCD (Multi-scan Charge Coupled Device, $1K \times 1K$ pixels) 카메라 상에 형성된 비정질 Ge 박막 영상의 live FFT를 보면서 조정하였다. 비록 현미경의 관찰 배율은 낮을 지라도 HV-GIF가 post-column 방식의 이미지 필터이기 때문에 실제 관찰 배율은 현미경 관찰 배율의 약 19.2배가 되

고 이를 다시 LCD 스크린 상에서 볼 때는 약 4.7배가 더 확대되기 때문에 실제 비점을 보정하는 배율은 약 4 백만 배에 이르므로 조정에 대한 정밀도를 향상시킬 수 있다. HV-GIF를 이용한 대물렌즈 비점수차 보정 시 설정된 X와 Y축 Stigmator 설정 값을 기록해 둔 뒤 300,000배로 배율을 확대하고 해당 위치에서 보정 기록된 Stigmator 설정 값들로 조정하였다. 전압 측 정렬은 300,000배에서 비정질 Ge 박막 위에 놓인 Au 입자의 가속전압 변화에 따른 이미지의 비대칭적 변동을 약 20배 확대하여 관찰하는 TV-rate 카메라로 관찰하면서 최소화되도록 조정되었다. Au 입자의 영상은 diffractogram 변환 시 내부표준으로 사용되었다.

2. 구면수차계수 C_s 의 계산

전자기 렌즈 내 전자의 움직임은 렌즈 내에 형성되는 자계 $B_z(z)$ 에 의존하며 전자선의 궤도 방정식으로 아래의 식(5)와 같이 표현된다 (Reimer, 1993).

$$\frac{d^2r}{dz^2} = -\frac{e}{8mU^*} B_z^2(z)r \quad (5)$$

여기서, U^* 는 상대성 가속 전압을 나타내며 $B_z(z)$ 는 광축 방향 z 에 따른 렌즈 내 자속 밀도의 분포를 나타낸다. 전자의 궤도는 렌즈 내 자계 분포 $B_z(z)$ 에 의존하는데 이는 pole-piece의 모양에 의존하기 때문에 렌즈 설계가 자계 분포를 결정하게 되며 결국엔 장비의 분해능을 결정하게 된다. 일반적으로 상부 렌즈와 하

부 렌즈의 디자인을 동일하게 놓으면 렌즈 pole-piece 내 자계 분포는 벨 형태로 가질 수 있으며 이는 로 렌즈 함수로서 근사할 수 있어 아래의 식(6)과 같이 나타낼 수 있다.

$$B_z(z) = \frac{B_0}{1 + \left(\frac{z}{a}\right)^2} \quad (6)$$

여기서, B_0 는 벨 형 자계 내 자속 밀도의 최대치를 나타내며 z 는 광축 방향에서의 거리이고 a 는 z 에 대한 표준화 상수로서 자속 밀도의 반가 폭에 해당한다. 따라서 벨 형태의 자계를 통과하는 전자선의 궤도 방정식은 식(6)을 (5)에 대입하여 식(7)과 같이 표현할 수 있으며 이는 다시 삼각함수를 이용하여 좌표를 변환하게 되면 식(8)과 (9)로 바뀌게 된다.

$$\frac{d^2r}{dz^2} + \frac{eB_0^2}{8mU^*} \frac{r}{\left(1 + \left(\frac{z}{a}\right)^2\right)^2} = 0 \quad (7)$$

$$\frac{d^2r}{d\phi^2} + 2\cot\phi \frac{dr}{d\phi} + \frac{eB_0^2 a^2}{8mU^*} r = 0 \quad (8)$$

$$\frac{d^2r}{d\phi^2} + 2\cot\phi \frac{dr}{d\phi} + k^2 \cdot r = 0 \quad (9)$$

여기서 $k^2 = \frac{eB_0^2 a^2}{8mU^*}$ 로 두며 k 는 렌즈 상수로 정의한다.

벨 형태의 자계를 통과하는 전자의 궤도 방정식은 식(9)로 표현되며 이 이차미분방정식의 해는 식(10)의 형태로 나타난다(Reimer, 1993).

$$y(\phi) = C_1 \frac{\sin \omega \phi}{\sin \phi} + C_2 \frac{\cos \omega \phi}{\sin \phi} \quad (10)$$

여기서, $\omega = \sqrt{1+k^2}$ 이며 초기 조건을 고려하여 획득한 렌즈 pole-piece내 전자의 궤도 방정식은 아래 식(11)로 단순화된다. 평행 입사 빔에 대한 초기 조건은 $Z = -\infty$ 일 경우 $r=r_0$ 이거나 $y(\pi)=r_0/a$ 이고 $y'(\pi)=0$ 이 되어 C_2 계수가 0이 되는 조건들이다.

$$y(\phi) = -\frac{r_0}{a\omega} \frac{\sin \omega \phi}{\sin \phi} \quad (11)$$

전자의 궤도를 나타내는 상기 식(11)의 ω 값은 렌즈의

Table 2. Constants of magnetic field design for HVEM objective lens

Constant	Value
a (FWHM of magnetic field distribution)	0.00358 m
r_0 (generally the same as a)	0.00358 m
e (electron charge)	1.6×10^{-19} C
m_0 (electron mass)	9.2×10^{-31} kg
U^* (relativistic accelerating voltage)	2,778,750 V
B_0 (maximum of magnetic field density)	2.6 T
K	0.824
ω	1.3

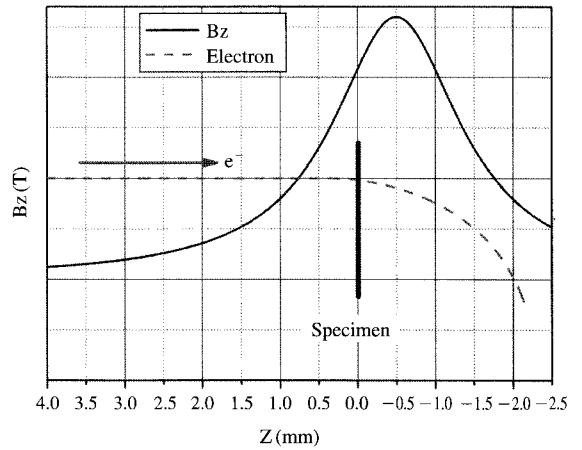


Fig. 2. Schematic diagram of calculated lens field distribution and electron trajectory between the pole-piece gap of HVEM objective lens.

강도를 나타내는 파라미터로 이 값의 변화에 따라 전자 궤도가 달라진다. 상기 식(11)과 Table 2에 나타낸 HVEM의 대물렌즈 pole-piece에서의 각 상수 값들을 활용하고 광축 상의 자속 밀도 분포가 식(6)과 같이 벨 형태의 자계 분포로 이루어졌다고 가정하면 자계 분포에 따른 전자의 궤도를 예측할 수 있는 그림을 Fig.2와 같이 그릴 수 있다.

Fig. 2에서 보면 전자선은 시료의 위치까지 평행하게 입사하다 약 0.5 mm를 지나면서 광축과 교차하기 시작하며 해당 위치에서 자속 밀도가 최대를 이룬다. 벨 형태의 자계 분포에서 자속 밀도가 최대가 되는 지점은 상부 및 하부 pole-piece의 중간 지점이다. 일반 전자현미경은 CO (condenser-objective) 조건이라 하여 자속 밀도가 최대가 되어 전자선이 작은 점으로

수렴하는 위치를 STEM이나 CBED 등의 사용 조건에 적용하나 HVEM의 대물렌즈 경우는 이러한 장비 조건에 해당하지 않으며 시료에 평행하게 입사하는 빔으로부터 고분해능 작업을 실시하므로 HVEM의 eucentric 위치($z=0$)는 pole-piece 간격의 중간 값으로부터 상부 pole-piece 쪽으로 약 0.5 mm 위에 위치하고 있다고 할 수 있다. 실제 HVEM의 경우는 대물렌즈의 상부 pole-piece와 하부 pole-piece의 구조가 다르기 때문에 정확한 구면수차 계수의 계산은 대물렌즈 pole-piece 영역을 미세한 사각 영역으로 분할하여 각 부분에 대한 투자율을 고려한 유한 요소법 계산으로 전자의 궤도를 보다 정확하게 예측하여야 가능하며 이는 제조사가 렌즈 설계 시에 실시하게 된다. 벨 형태의 자속 밀도 분포 속으로 전자가 통과할 때의 구면수차 계수는 아래 식(12)로 나타낸다(Jeol, unpublished data).

$$C_s = a \left(\frac{\pi k^2}{4\omega^3} - \frac{1}{8} \frac{4k^2 - 3}{4k^2 + 3} \sin \frac{2\pi}{\omega} \right) \text{cosec}^4 \frac{\pi}{\omega} \quad (12)$$

식(12)에 Table 2의 값들을 대입하면 구면수차 계수는 약 4.3 mm로 계산된다. 실질적으로 본 HVEM의 대물렌즈는 pole-piece 간격을 넓게 만들었기 때문에 이러한 렌즈 디자인 상에서 벨 형태의 자속 밀도 분포를 가정하면 상기와 같이 비교적 큰 구면수차 계수를 나타내게 되며 장비의 분해능을 제대로 구현할 수 없게 된다. 따라서 제조사 측에선 상부 및 하부 pole-piece 구조를 다르게 설계하였고 이러한 비대칭적인 자속 분포 하에서는 앞서 언급한 유한요소법에 의한 자체 분포를 계산하여 전자 경로를 예측하고 구면수차 계수를 구하게 된다. 여기서 제조사 측에서 제안하는 KBSI-HVEM의 대물렌즈 구면수차 계수는 2.65 mm이다.

결과 및 고찰

1. Resolution 및 Alignment 평가

Diffractiongram을 through focus series로 기록하면 구면수차계수(C_s)와 defocus (Δf) 값 뿐만 아니라 장비의 분해능 측정과 함께 two-fold 비점 수차까지의 광학적

정렬 상태를 확인할 수 있다. 따라서 overfocus에서 underfocus까지 defocus를 조정하여 영상을 기록하면 Scherzer defocus 지점(Scherzer, 1949)에서 장비의 분해능도 평가할 수 있고 각각의 focus 변화에 따른 투과 빔과 회절 빔 간의 위상차에 대한 측정 횟수가 많아지게 되므로 구면수차 계수의 측정을 보다 신뢰성 있게 수행할 수 있다. 단 한 가지 유의할 것은 diffractogram을 얻기 위해 defocus를 변화시킬 때 그 조정 범위는 약 ± 400 nm 이내여야 한다는 것이다. 왜냐하면 해당 범위 이상에서 얻은 diffractogram은 defocus 값의 측정 오차가 오히려 BF/DF 변위 측정법에 의해 평가된 경우보다 더 커지기 때문이다(Budinger et al., 1976). 본 실험에서도 전체 defocus의 조정 범위를 ± 400 nm 이내로 하였다. Through focus series는 Au 입자가 포함된 Ge 비정질 박막 시편을 장비의 하단에 설치된 TV-rate 카메라를 관찰하면서 Gaussian focus 지점을 찾은 뒤 임의의 overfocus 지점에서 underfocus 방향으로 초점 조절 knob을 일정한 클릭수로 돌려가면서 기록하였다.

Fig. 3(a)는 through focus series로 기록된 시편 영상 가운데 Scherzer defocus ($\Delta f = -52$ nm)에 해당하는 위치에서 얻은 Au 입자의 고분해능 영상이다. Fig. 3(b)는 (a) 영상에 대한 FFT 결과로 획득한 diffractogram이다. Fig. 3(b)에서 Au (222)면(면간거리 0.117 nm)에 해당하는 회절점이 관찰되는 것으로 볼 때 HVEM의 사양 분해능(Kim et al., 2006)을 잘 구현하고 있음을 확인할 수 있었다. Fig. 3(c)는 Au 입자의 고분해능 영상 부분만을 확대한 사진으로 굵은 실선으로 표시된 부분의 면간 거리가 Au (222)면을 나타내는 0.117 nm임을 알 수 있었다. 해당 면간 거리를 Fig. 3(d)에 나타낸 바와 같이 diffractogram 상에서 Au (222)면에 해당하는 spatial frequency 지점을 defocus 변화에 따른 phase shift를 측정하기 위한 기준으로 삼았다. Fig. 3(b)에서 보듯이 diffractogram이 최대 분해능 위치에서도 대칭적으로 나타난 것으로 볼 때 적어도 two-fold 비점 수차까지는 장비의 광학적 정렬 상태가 최선으로 조정되었으며 관찰 중에 시편 유동이 거의 없이 안정한 상태를 유지하고 있음을 확인할 수 있었다.

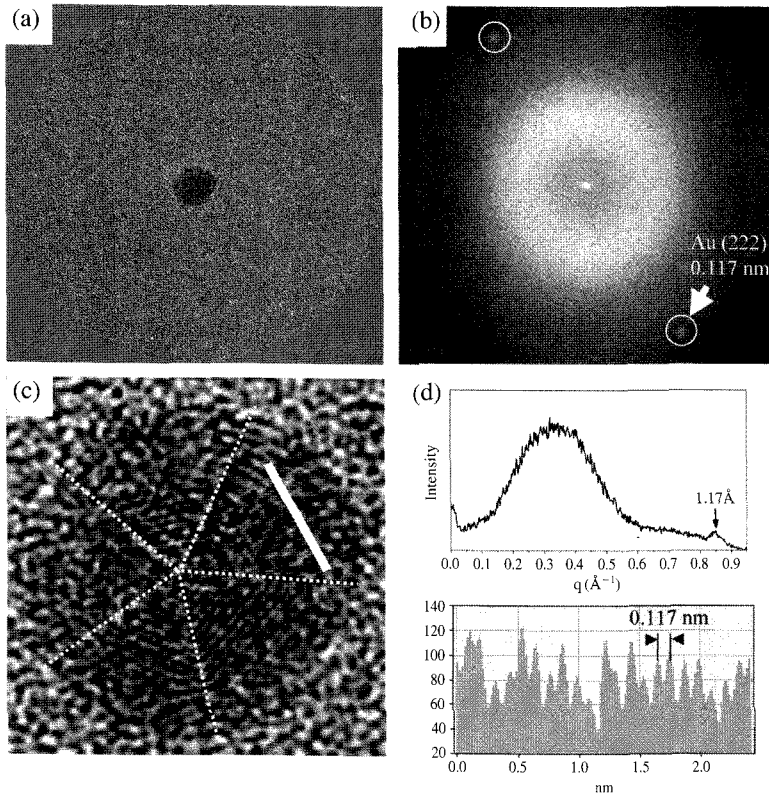


Fig. 3. Assessment of instrumental resolution and optical alignment from the diffractogram method. (a) High-resolution image of Au particle on Ge thin film. (b) The diffractogram of the high-resolution image obtained by FFT. (c) Enlarged high-resolution image of Au particle. (d) The upper part: intensity profiles of the diffractogram (b), the lower part: lattice fringe profile corresponding to the Au (222) plane ($d=0.117$ nm) as marked in (c) by strong white line.

2. 대물렌즈의 구면수차 계수 C_s 의 측정

KBSI-HVEM 대물렌즈의 구면수차 계수를 평가하기 위하여 비정질 Ge 박막의 고분해능 영상을 Scherzer defocus를 지나 underfocus 방향으로 임의의 defocus 값에서 through focus series로 기록하였다(Fig. 4). 여기서 내부 표준으로 Au 입자를 사용하였다. 각각의 고분해능 영상들에 대한 diffractogram들을 영상의 FFT 변환에 의해 획득하였고 투과 빔을 원점으로 방사 방향의 spatial frequency q 의 증가에 따른 intensity 분포 그래프를 그렸다. Intensity 분포 그래프는 Gatan사에서 제공하는 DigitalMicrograph™ (DM) 프로그램의 플러그인용 script 파일인 'radial intensity distribution.s' 파일을 활용하여 손쉽게 구할 수 있다(DMSD).

본 script 파일은 직교좌표계의 전자 강도 분포를 극좌표로 변환하고 영상의 중앙에서 방사방향으로 미세한 segment들로 나눈 뒤 이들의 평균 선형 강도분포를 그래프로 나타내게 해 준다. 따라서 본 기능을 사용하면 직교좌표계에서 임의로 선을 그어서 intensity 분포 그래프를 얻어 내는 방식을 사용할 때 유발되는 측정 오차를 제거 할 수 있다. 최종적으로 획득한 intensity 분포 그래프에서 각각 나타나는 피크들을 Gaussian curve fitting으로 분리하고 각 피크들의 tail들이 만나는 점들에 대한 spatial frequency q 값을 측정하였다. 해당 지점들은 식(4)의 n 값이 짝수가 되어 contrast가 최소가 되는 위치들이다. Contrast가 최소가 되는 q 값의 측정에 있어서 높은 frequency 영역에서는 피크 intensity가 매우 낮아서 curve fitting 시 측정오차가

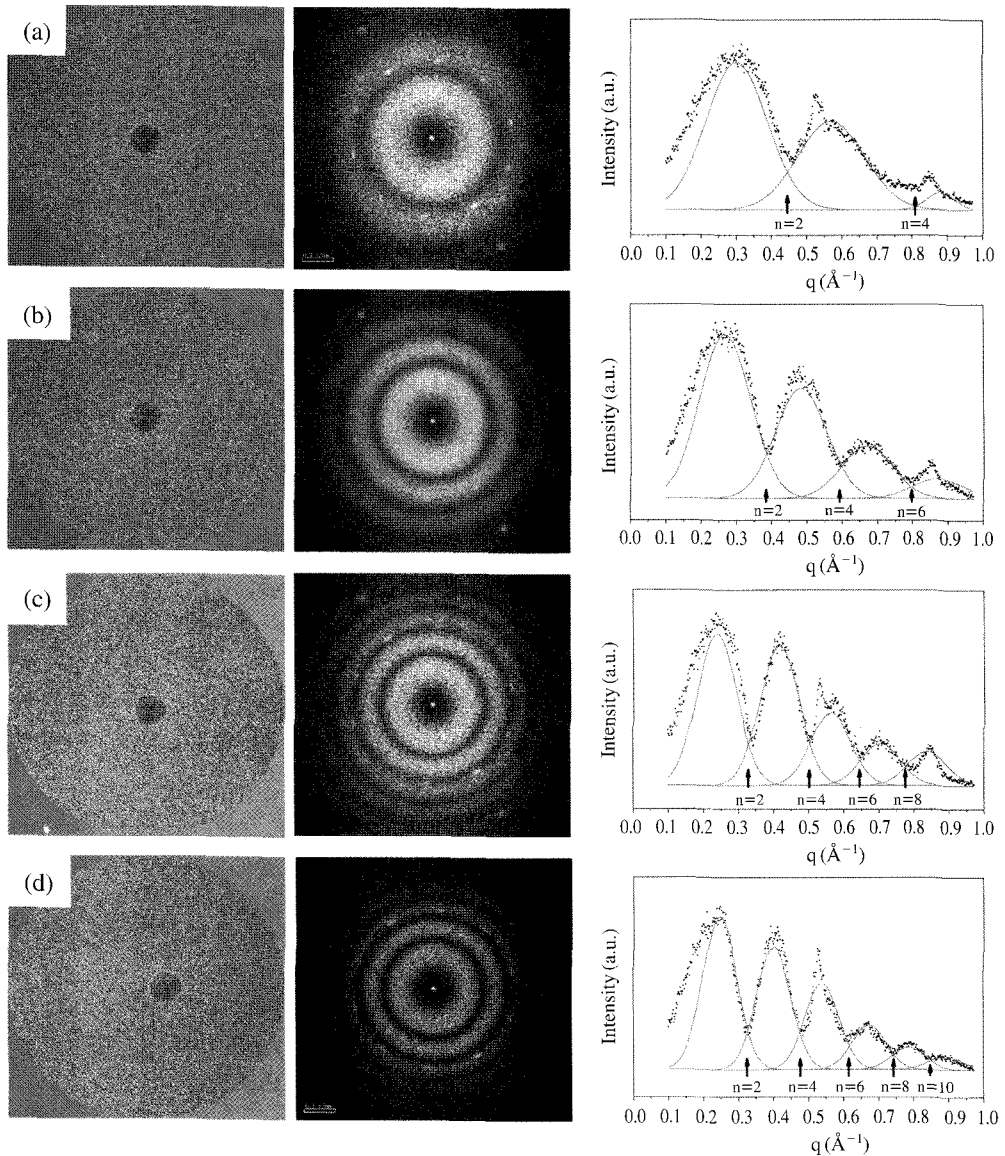


Fig. 4. High-resolution images ((a), (b), (c), and (d)) of amorphous Ge thin film acquired at certain values of underfocus. Au particle was used for internal standard. The diffractogram of the high-resolution image and its radial intensity distribution profile stand in a row in each case. In the radial intensity distribution profile of each diffractogram, the fitting result by Gaussian method enabled to accurately determine the spatial frequencies q which correspond to the positions of intensity maxima and minima.

유발될 수 있으니 주의하여야 한다. 본 실험에서는 높은 spatial frequency 영역에서 contrast가 최소가 되는 q 의 측정 시 첫 번째 회절환의 피크 intensity를 기준으로 상대적인 피크 intensity의 비를 고려하여 curve

fitting 시 설정하는 반가 폭을 조정하였다. 여기서 Fig. 4에 나타난 intensity 분포 그래프들에 대한 curve fitting 결과를 보면 첫 번째 회절 환에 대한 curve fitting 시엔 항상 low scattering angle 영역에 해당하는 피크

Table 3. Experimental values of n/q^2 (y-axis) as a function of q^2 (x-axis) for plotting the diffractogram analysis graph. The spatial frequencies q at the intensity minima (n =even) were measured at each diffractogram shown in Fig. 4.

Diffractogram	n	X	Y
		q^2 (nm ⁻²)	n/q^2 (nm ²)
a	2	21.62	0.09
	4	50.69	0.07
b	2	14.75	0.14
	4	35.08	0.11
	6	63.44	0.09
c	2	10.77	0.19
	4	25.27	0.16
	6	41.53	0.14
	8	60.17	0.13
d	2	10.74	0.19
	4	22.67	0.18
	6	38.06	0.16
	8	55.13	0.14
	10	72.52	0.12

의 중심에서 왼쪽 부분에 fitting gap이 크게 나타나는 것을 볼 수 있는데 이는 전자 빔과 시료와의 비탄성 산란 상호작용의 영향 때문에 나타나는 강도 분포로 사료된다. 구면수차 계수를 측정하기 위해서는 피크의 최대점과 최소점에 해당하는 spatial frequency q 를 정밀하게 결정하는 것이 중요한데 이는 측정 시에 발생하는 작은 오차들이 식(4)를 활용한 선형회귀 분석으로 구면수차 계수를 구할 때에는 제공으로 확대되어 나타나기 때문이다.

Fig. 4의 intensity 분포 그래프로부터 측정된 n 이 짝수가 되는 spatial frequency q 값들을 가지고 식(4)에 나타낸 바와 같이 q^2 의 함수로서 n/q^2 가 구해지는 1차 선형 방정식의 형태로 그리기 위해 각각의 값들을 Table 3과 같이 정리 하였다. Defocus의 변화에 따라 측정된 차수별 q 값들을 도시하면 Fig. 5와 같이 diffractogram 분석 그래프를 얻을 수 있다. Underfocus의 증가에 따라 회절환들이 점점 많아지게 되고 이에 따라 n 이 짝수가 되는 q 값들도 많이 측정할 수 있으나 앞서 말했듯이 defocus가 ± 400 nm를 넘게 되면 오히려 BF/DF 변위법으로 측정한 경우보다 측정오차가 커지게 되므로 해당 범위 이내에서 defocus 변화를 지정하여야 한다. 식(4)을 활용하여 선형 회귀 분석에 의

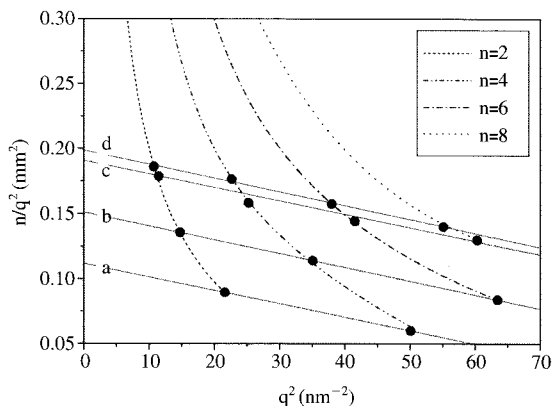


Fig. 5. The diffractogram analysis for determining the spherical aberration coefficient of the objective lens in KBSI-HVEM.

Table 4. The results of spherical aberration coefficient C_s and defocus Δf estimated from the linear regression analysis as shown in Fig. 5.

Diffractogram	Slope ($-C_s \cdot \lambda^3$)	C_s (mm)	Intercept ($2\Delta f \cdot \lambda$)	Δf (nm)
a	-1.04×10^{-3}	2.61	112×10^{-3}	76.1
b	-1.06×10^{-3}	2.66	151×10^{-3}	102.7
c	-1.03×10^{-3}	2.58	191×10^{-3}	129.7
d	-1.06×10^{-3}	2.66	199×10^{-3}	135.1
Mean value of C_s (mm)		2.628 ± 0.04		

한 기울기($-C_s \cdot \lambda^3$)와 절편($2\Delta f \cdot \lambda$)을 구하는 데는 약 -135 nm까지 기록된 자료들만을 활용하였다. 그 이상의 underfocus에서 기록된 자료는 선형 회귀 오차가 5% 이상 나기 때문에 구면수차 계수를 측정하는데 활용할 수 없었기 때문이다. 선형 회귀 오차 5% 이내의 q 값들을 측정할 수 있는 자료는 Fig. 4에 나타낸 바와 같이 (a)에서 (d)까지 4개의 diffractogram 이었으며 이에 대해 식(4)을 활용한 선형 회귀 곡선은 Fig. 5에 나타내었다. Table 4에 식(4)에 의한 선형 회귀 분석 결과 얻어진 기울기($-C_s \cdot \lambda^3$)와 절편($2\Delta f \cdot \lambda$) 값들을 나타내었으며 해당 값들로부터 계산된 KBSI-HVEM 대물렌즈의 C_s 는 2.628 ± 0.04 mm가 된다. 이 값은 제조사의 실제 값 2.65 mm와 유사한 값이다.

상기와 같이 diffractogram 법에 의해 실험적으로 구면수차 계수를 평가하기 위해선 아래에 열거된 측정 오차요인들을 최소화하여야 한다.

- (1) 정확하게 알려지지 않은 가속전압(전자 파장의 오차)
- (2) 보정되지 않은 측정 배율 적용
- (3) 보정되지 않은 비점 수차와 전압 측 정렬
- (4) 너무 큰 빔 수렴각
- (5) Diffractogram에서 intensity의 최소점과 최대점 위치 측정 오차
- (6) 시편 유동

분석 시 적용된 가속전압의 보정은 표준 시편을 활용하여 이미 잘 알려진 Debye-Scherrer 관계식인 $\lambda = R \cdot d_{hkl}/L$ 을 이용하여 실시 할 수 있으나 digital voltmeter와 oscilloscope를 이용한 직접 측정이 더 신뢰할 만하다. 현미경 관찰 배율 보정은 사전에 이미 실행되어야 하며 저배율에선 grating 표준 시편을 사용하고 고배율에선 알고 있는 먼간거리를 가진 표준시편을 사용하면 된다. 광학적 정렬 오차는 two-fold 비점 수 차까지는 diffractogram 상으로 쉽게 판별할 수 있으므로 diffractogram이 대칭적이 되도록 비점 보정을 실시하고 전압 측 정렬은 가급적 300,000배 이상의 고 배율에서 TV rate 카메라를 활용하여 약 10 nm정도의 나노 입자를 관찰하면서 미세하게 조정하는 것이 좋다. 또한 paraxial 근사에 적용하기 위하여 정합 평행 조사 조건의 빔이 되도록 가급적 작은 수렴각을 사용 하여야 한다. 필름으로 획득한 diffractogram 상에서 $n\pi/2$ 위상차를 나타내는 각각의 회절 환들의 n 에 따른 spatial frequency q 에 대한 측정은 마이크로메타와 같은 정밀 측정도구를 이용하는 것보다 이미지를 고해 상도로 디지털화하고 배율보정을 실시 한 뒤, 전자현 미경 관련 소프트웨어를 이용하여 intensity 분포 그래 프를 획득하고 각 피크들을 Gaussian curve fitting으로 분리한 뒤 각 피크들의 최대점(n 이 홀수)이나 피크 tail의 교차점(n 이 짝수)을 측정하면 보다 정확하게 q 를 측정할 수 있다. 관찰 초기 발생하는 빔에 의한 시 편 유동은 저배율에서 약 10~30분 동안 충분히 빔 showering을 실시하면 거의 여제할 수 있다.

결 론

본 초고전압 투과전자현미경의 구면수차 계수(C_s)

는 제조사의 렌즈 설계 사양으로 2.65 mm이다. 점 분해능을 구하는 식 $d_s = 0.67 \cdot C_s^{1/4} \lambda^{3/4}$ (O'Keefe, 1992)에 의해 $C_s = 2.65$ mm일 경우 점 분해능은 1.2 Å이 된다. 본 실험에서도 Scherzer defocus ($\Delta f = -52$ nm) 위치에서 0.117 nm의 먼간거리를 갖는 Au (222)면을 충분히 분해하여 장비의 사양 분해능을 만족하고 있음을 알 수 있었다. 본 실험에서는 대물렌즈의 구면수차 계수 측정에 대한 이해를 돕기 위해 대물렌즈의 pole-piece 구조를 대칭적으로 보고 벨 형태의 자장 분포 내에 있는 전자선의 궤도를 고려하여 구면수차 계수를 구하는 방법을 함께 고찰하였으며 실험적으로 측정된 KBSI-HVEM 대물렌즈의 구면수차 계수는 diffractogram법에 의해 선형 회귀 오차 5% 범위 내에서 2.628 ± 0.04 mm로 구할 수 있었고 측정 정밀도 향상을 위한 방안들을 고찰하였다. 이 값은 실제 비대칭적으로 pole-piece 구조가 설계된 KBSI-HVEM 대물렌즈의 제조사 사양값과 거의 일치하는 값이다.

사 사

본 연구는 과학기술부가 주관하는 첨단 연구 분석 장비(요소기술) 개발사업의 단위사업인 정밀 시편이동 요소기술 개발 과제(PG6067)의 지원을 받아 수행하였습니다.

참 고 문 헌

- Budinger TF, Glaeser RM: Measurement of focus and spherical aberration of an electron microscope objective lens. *Ultramicroscopy* 2 : 31-41, 1976.
- DM: Digital micrograph version 3.0 manufactured by Gatan. The demonstration program can be downloaded at www.gatan.com and provide full functions except for saving the data.
- DMSD: Digital micrograph script database, http://www.felmi-zfe.tugraz.at/dm_scripts/dmscript1.html
- Hall CE: Method of measuring spherical aberration of an electron microscope objective. *J Appl Phys* 20 : 631-632, 1949.

Hillier J, Baker RF: The observation of crystalline reflections in electron microscope images. *Phys Rev* 61 : 722-723, 1942.

JEOL: Numerical Calculations of Lens Parameters (C_s , C_e , f_o , Z_o) in the Magnetic field of $B(z)$ along the Z-axis. Unpublished data.

KBSI: Installation of an Ultra-High Voltage Transmission Electron Microscope. Ministry of Science and Technology. 98-FA-01-01-A-01, 2003.

Krivanek OL: A method for determining the coefficient of spherical aberration from a single electron micrograph. *Optik* 45 : 97-101, 1976.

Kim YM, Jeong JM, Kim JG, Kim YJ, Lim YS: Image processing of atomic resolution transmission electron microscope images. *J Korean Phys Soc* 48 : 250-255, 2006.

O'Keefe MA: "Resolution" in high-resolution electron microscopy. *Ultramicroscopy* 47 : 282-297, 1992.

Park GS, Shindo D: Evaluation of a spherical aberration constant of the objective lens of HVEM at Tohoku University. *J Electron Microsc* 45 : 152-158, 1996.

Reimer L: *Transmission electron microscopy*. 3rd Edition:

26-33, 224-239, 1993.

Scherzer O: The theoretical resolution limit of the electron microscope. *J Appl Phys* 20 : 20-29, 1949.

Spence JCH: *High-resolution electron microscopy*. 3rd Edition: 15-47, 89-96, 2003.

Thon F, Z. *Naturforsch*. 20a: 154, 1965.

< 국문초록 >

Diffractiongram 법을 이용하여 한국기초과학지원연구원에 설치된 초고전압 투과전자현미경(KBSI-HVEM)의 대물렌즈에 대한 구면수차 계수와 분해능을 측정하였다. 측정 정밀도 향상을 위해 획득한 diffractiongram을 디지털 처리하였고 각 intensity 분포 그래프를 graphical curve fitting으로 정밀하게 분리하였다. 정밀 측정을 위한 실험적 고려 사항들을 고찰하였고 최적 실험 조건 도출을 위한 방안들을 본 실험을 통해 제안하였다. 실험적으로 측정된 대물렌즈의 구면수차 계수는 2.628 ± 0.04 mm였으며 이 값은 제조사에서 대물렌즈 설계 시 제안한 $C_s = 2.65$ mm와 거의 일치하는 값이었다.