

Experimentelle Physik

**Bestimmung von  
Übertragungsfunktionen  
zur quantitativen Auswertung von  
Elementverteilungsbildern**

Inaugural-Dissertation  
zur Erlangung des Doktorgrades  
der Naturwissenschaften im Fachbereich Physik  
der Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät  
der Westfälischen Wilhelms-Universität Münster

vorgelegt von  
**Rainer Knippelmeyer**  
aus Hamm  
Mai 2000

Dekan:	Prof. Dr. W. Lange
Erster Gutachter:	Prof. Dr. H. Kohl
Zweiter Gutachter:	Prof. Dr. E. Nembach
Tag der mündlichen Prüfungen:	27. u. 28.06.2000
Tag der Promotion:	28.06.2000



# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2</b>	<b>Quantitative Auswertung von Elementverteilungsbildern</b>	<b>4</b>
2.1	Energieverlustspektren . . . . .	4
2.2	Elementverteilungsbilder . . . . .	8
2.3	Lineare Abbildungstheorie . . . . .	11
<b>3</b>	<b>Relativistische Berechnung der inelastischen Übertragungsfunktion</b>	<b>16</b>
3.1	Propagation der Elektronen durch das Mikroskop . . . . .	18
3.2	Das relativistische Streumatrixelement in erster Bornscher Näherung . . . . .	22
3.3	Einfluß der relativistischen Effekte auf die Intensitätsverteilung in der Bildebene . . . . .	25
3.4	Auswertung der Matrixelemente mit der Dipolnäherung . . . . .	26
3.5	Ergebnisse . . . . .	27
<b>4</b>	<b>Theorie zur experimentellen Bestimmung der inelastischen Übertragungsfunktion</b>	<b>36</b>
4.1	Zusammenhang von Diffraktogramm, inelastischer Übertragungsfunktion und Zwei-Teilchen-Strukturfaktor . . . . .	37

4.2	Elastisch gefilterte Beugung und Abbildung . . . . .	40
4.2.1	Die Transmissionsfunktion . . . . .	42
4.2.2	Intensität im Feinbereichs-Beugungsbild . . . . .	44
4.2.3	Phasenkontrast . . . . .	45
<b>5</b>	<b>Experimente zur elastischen Kontrastübertragungsfunktion</b>	<b>51</b>
5.1	Experimentelle Gegebenheiten . . . . .	52
5.1.1	Herstellung der Proben . . . . .	52
5.1.2	Die Probendicke . . . . .	53
5.1.3	Die verwendeten Mikroskope . . . . .	54
5.2	Bestimmung der Phasenkontrastübertragungsfunktion . . . . .	55
5.2.1	Zusätzliche experimentelle Einflüsse in Diffraktogrammen von Phasenkontrastabbildungen . . . . .	56
5.2.2	Bestimmung des Zwei-Teilchen-Strukturfaktors aus Beugungsdiagrammen . . . . .	66
5.3	Bestimmung der Abbildungsparameter . . . . .	68
5.4	Ergebnisse . . . . .	71
5.4.1	Stigmatische Diffraktogramme . . . . .	71
5.4.2	Astigmatische Diffraktogramme . . . . .	79
5.5	Abweichungen von der WPO-Näherung . . . . .	86
<b>6</b>	<b>Experimente zur inelastischen Übertragungsfunktion</b>	<b>89</b>
6.1	Bestimmung der inelastischen Übertragungsfunktion . . . . .	89
6.1.1	Die inelastisch gefilterten Aufnahmen . . . . .	91
6.1.2	Untergrund und Einhüllende in Diffraktogrammen von inelastisch gefilterten Aufnahmen . . . . .	94

6.1.3	Bestimmung des Strukturfaktors bei kleinen Streuwinkeln . . . . .	95
6.2	Ergebnisse . . . . .	98
6.2.1	Vergleich von Diffraktogramm und Strukturfaktor . . . . .	99
6.2.2	Abhängigkeit der inelastischen Übertragungsfunktion von Abbildungsparametern . . . . .	104
<b>7</b>	<b>Anwendung des aus inelastischen Diffraktogrammen bestimmten Strukturfaktors</b>	<b>110</b>
7.1	Verteilung des Sauerstoffs in den Kohlenstoffolien . . . . .	110
7.1.1	Struktursensitiver Kontrast . . . . .	111
7.1.2	Die Größe der Inhomogenitäten . . . . .	116
7.2	Intensität bei kleinen Raumfrequenzen im elastischen Phasenkontrastdiffraktogramm . . . . .	119
7.2.1	Die Näherung des „Schwachen Objektes“ . . . . .	119
7.2.2	Experimentelle Bestimmung des Imaginärteils der atomaren Streuamplitude . . . . .	122
<b>8</b>	<b>Untersuchung der Germaniumentmischung bei der Oxidation von Silizium-Germanium-Halbleiterschichten</b>	<b>127</b>
8.1	Silizium-Germanium-Halbleiter . . . . .	127
8.2	Elementverteilungsbilder thermisch und elektrochemisch oxidierteter SiGe-Schichten . . . . .	128
8.3	Diskussion . . . . .	131
<b>9</b>	<b>Zusammenfassung und Ausblick</b>	<b>132</b>
<b>A</b>	<b>Berechnung der ITF in Dipolnäherung</b>	<b>135</b>
A.1	Die Energieintegration . . . . .	137

A.2 Die Dipolnäherung . . . . .	138
<b>B Bestimmung des Zentrums von Beugungsdiagrammen amorpher Substanzen</b>	<b>145</b>
<b>C Anpassung des Nullstellenverlaufs in der astigmatischen Intensitätsmatrix</b>	<b>152</b>





# Kapitel 1

## Einleitung

Ein Transmissionselektronenmikroskop mit abbildendem Energiefilter erlaubt es, Bilder aufzunehmen, zu denen nur Elektronen mit einer ganz bestimmten Energie beitragen. Verwendet man nur solche Elektronen, die durch Anregung der inneren Schale eines bestimmten Probenelements inelastisch gestreut wurden, so erhält man nach Abzug eines elementunspezifischen Untergrundes ein sogenanntes Elementverteilungsbild. Dieses gibt zweidimensional die Verteilung des ausgewählten Elementes in der Probe wieder. Die Intensität im Elementverteilungsbild ist gleichzeitig ein Maß für die lokale Flächenteilchendichte des Elementes.

Dieser einfache Zusammenhang gilt jedoch nicht im Falle hochaufgelöster Elementverteilungsbilder, bei denen Bilddetails unterhalb einer Größe von 10 nm interpretiert werden sollen. Bei diesen macht sich der Einfluß des Abbildungsvorgangs und die Charakteristik des unelastischen Steuprozesses im Intensitätsverlauf bemerkbar. Es müssen daher begleitende Rechnungen ausgeführt werden, um auf der Basis der Intensität in hochaufgelösten Elementverteilungsbildern zu quantitativen Aussagen über die Probenzusammensetzung zu gelangen.

Einen einfachen Ansatz zur Simulation der Intensität in Elementverteilungsbildern dünner Proben stellt die lineare Abbildungstheorie dar. Die Einflüsse des Abbildungsvorgangs im Mikroskop und des inelastischen Steuprozesses

ses finden dabei Eingang in die sogenannte inelastische Übertragungsfunktion (ITF), die den Zusammenhang zwischen dem Eingangssignal, d.h. der tatsächlichen Elementverteilung, und dem Ausgangssignal, also der Intensität im Elementverteilungsbild, herstellt.

In der vorliegenden Arbeit soll theoretisch wie experimentell der Zusammenhang zwischen der Intensität in hochaufgelösten Elementverteilungsbildern und der Atomverteilung auf der Basis des Übertragungsfunktionsmodells untersucht werden. Insbesondere soll die unelastische Übertragungsfunktion (ITF) bestimmt werden. Diese wurde auf nichtrelativistischer Grundlage bereits berechnet. Da jedoch zunehmend auch Mikroskope mit höheren Beschleunigungsspannungen ( $\geq 200\text{kV}$ ) mit abbildendem Energiefilter ausgerüstet werden, wurde die ITF im ersten Teil der Arbeit auf relativistischer Grundlage neu berechnet: Nach einer kurzen Einleitung zur energiegefilterten Abbildung in Kapitel 2 sind die Rechnungen und deren Ergebnisse ausführlich in Kapitel 3 dargestellt.

Im zweiten Teil der Arbeit (Kapitel 4-6) wird die theoretisch berechnete ITF auf der Basis der sogenannten „Thonschen Diffraktogramm-Methode“ experimentell überprüft: Im Anschluß an die Besprechung der dazu notwendigen Theorie in Kapitel 4 sind in Kapitel 5 die Ergebnisse von Vorversuchen mit elastisch gefilterten Phasenkontrastaufnahmen <sup>1</sup> zusammengefaßt, in denen die experimentelle Methodik entwickelt wurde. Diese wird in Kapitel 6 zur Bestimmung der inelastischen Übertragungsfunktion modifiziert. Es wird gezeigt, daß aus Diffraktogrammen von Elementverteilungsbildern partielle Strukturfaktoren ermittelt werden können.

---

<sup>1</sup>Wie in der elektronenmikroskopischen Literatur üblich, findet man in dieser Arbeit die Adjektive elastisch bzw. unelastisch des öfteren im Zusammenhang mit Meßmethoden oder Aufnahmeverfahren (z.B. elastisch gefilterte Beugung, elastisch gefilterte Phasenkontrastaufnahmen). Dies ist jeweils so zu verstehen, daß bei den so bezeichneten Verfahren durch Selektion mittels eines Energiefilters ausschließlich elastisch bzw. unelastisch gestreute Elektronen verwendet werden. Steht ein solches Adjektiv vor einer Größe (z.B. unelastische Übertragungsfunktion), so heißt das, daß die Größe sich auf ein Verfahren bezieht, welches jeweils nur unelastisch oder elastisch gestreute Elektronen benutzt.

Im dritten und letzten Teil der Arbeit werden die im Laufe der Arbeit gewonnenen methodischen Erkenntnisse angewandt: In Kapitel 7 werden die aus inelastischen Abbildungen ermittelten Strukturfaktoren zur Bestimmung einiger Eigenschaften aufgedampfter amorpher Folien verwendet. In Kapitel 8 diskutieren wir am Beispiel der Oxidation von Silizium-Germanium-Halbleiterschichten die Untersuchung von Entmischung und Diffusion mit Hilfe quantitativ ausgewerteter Elementverteilungsbilder.

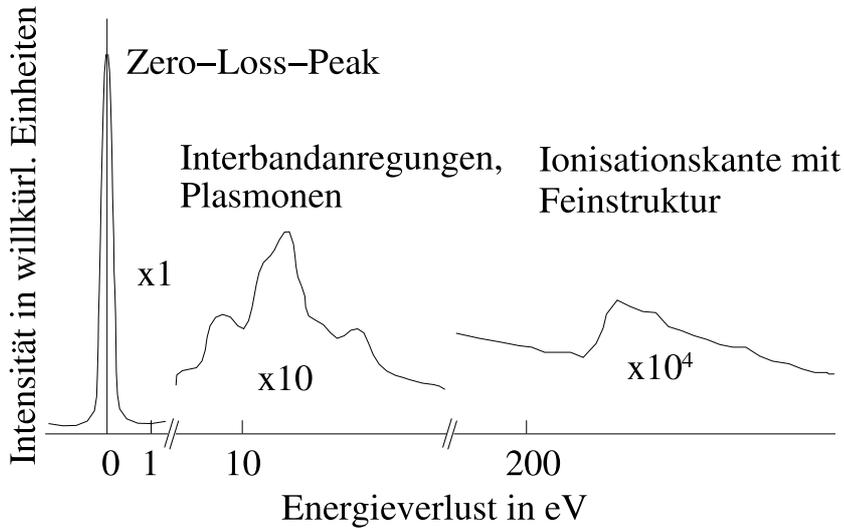
# Kapitel 2

## Quantitative Auswertung von Elementverteilungsbildern

Transmissionselektronenmikroskope, die mit einem Energiefilter ausgestattet sind, ermöglichen die Nutzung von inelastisch gestreuten Elektronen zur chemischen Analyse. So können nicht nur Elemente in sehr kleinen Proben-  
volumina identifiziert, sondern auch deren Mengenanteil in der untersuchten Probenstelle bestimmt werden.

### 2.1 Energieverlustspektren

Zur Aufnahme eines Elektronen-Energieverlustspektrums (EELS) bestrahlt man einen kleinen Probenbereich mit Elektronen. Mit Hilfe des Energiefilters werden die in diesem Bereich gestreuten Elektronen sortiert nach der von ihnen bei der Streuung verlorenen Energie aufgetragen. Abbildung (2.1) zeigt ein typisches Elektronenenergieverlustspektrum. Man erkennt deutlich den sogenannten Zero-Loss-Peak, der auf die elastisch gestreuten sowie die ungestreuten Elektronen zurückzuführen ist. Darüber hinaus befinden sich in diesem Bereich die thermisch-diffus gestreuten Elektronen. Die Strukturen bei niedrigen Energieverlusten rühren vor allem von Plasmonen sowie



**Abbildung 2.1:** Abbildung eines typischen Energieverlustspektrums mit (von niedrigen Energieverlusten zu höheren) Zero-Loss-Peak, Plasmonenverlusten und charakteristischen Ionisationskanten.

Interbandanregungen in der Probe her. Zu höheren Energieverlusten sind die Ionisationskanten zu erkennen, die auf die Ionisation innerer Schalen von einzelnen Probenatomen zurückzuführen sind. Die Energieverluste, bei denen die Kanten liegen, sind jeweils für eine ganz bestimmte Atomsorte charakteristisch. Das Interesse gilt sowohl der Struktur dieser Kanten, aus der man Rückschlüsse über die Umgebung der zur Kante gehörenden Atomsorte im Festkörper ziehen kann, als auch der Fläche unter den Kanten. Nach Abzug des Untergrunds kann man aus dem Integral unter der Kante die Konzentration des entsprechenden Elementes im durchstrahlten Probevolumen bestimmen. Der Untergrund stammt vornehmlich von den Ausläufern der Ionisationskanten bei niedrigeren Energieverlusten oder im Bereich niedriger Energieverluste von den Plasmonen. Am häufigsten wird zum Abzug des Untergrundes  $I_{Bg}$  beim Energieverlust  $E$  ein Potenzansatz

$$I_{Bg}(E) = AE^{-r} \quad (2.1)$$

gewählt, wobei die Parameter  $A$  und  $r$  durch Regression aus dem Verlauf der Intensität im Spektrum vor der fraglichen Kante bestimmt werden. Insbesondere im Bereich sehr niedriger Energieverluste kommen aber auch oft andere Untergrundabzugsverfahren (z.B. [28]) zum Einsatz. Die nach Abzug des Untergrundes isolierte Kantenfläche ist proportional zur Anzahl der Elektronen, die an Atomen, für die die Kante charakteristisch ist, unelastisch gestreut wurden. Es gilt

$$I_a = I_0 n_a \sigma_a(\delta E_a, \theta_A) \eta , \quad (2.2)$$

wenn  $I_a$  die Anzahl der detektierten Elektronen unter der Kante der Atomsorte  $a$  nach Untergrundabzug,  $n_a$  die Flächenteilchendichte der Atome im durchstrahlten Volumen,  $I_0$  die Anzahl der einfallenden Elektronen und  $\eta$  die Effizienz des Detektors bedeutet;  $\sigma_a(\delta E_a, \theta_A)$  ist der entsprechende Wirkungsquerschnitt. Der Wirkungsquerschnitt  $\sigma_a(\delta E_a, \theta_A)$  ist ein Maß für die Wahrscheinlichkeit, daß ein Streuprozeß unter Anregung einer bestimmten inneren Schale des Elementes  $a$  stattfindet, der dabei erlittene Energieverlust im Energiefenster  $\delta E_a$  liegt und daß das gestreute Elektron den Detektor erreicht. Das heißt, daß es in einen Winkel gestreut wird, so daß es von der Aperturblende mit dem Halbwinkel  $\theta_A$  noch erfaßt wird. Mathematisch geschrieben bedeutet das

$$\sigma_a(\delta E_a, \theta_A) = \int_{E_w - \delta E_a/2}^{E_w + \delta E_a/2} \int_{\theta_A} \left( \frac{d^2 \sigma_a}{d\Omega dE} \right) d\Omega dE . \quad (2.3)$$

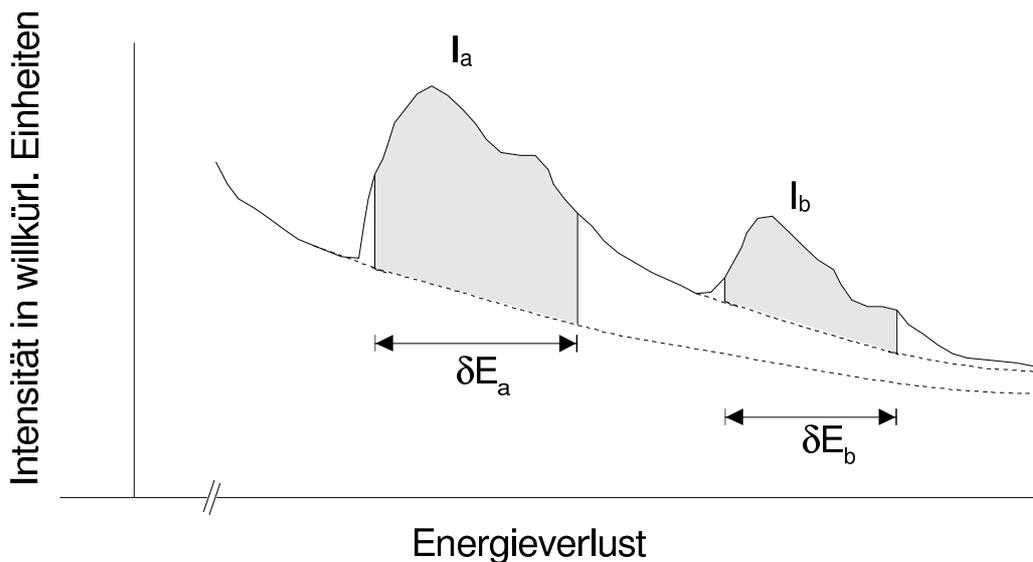
$\frac{d^2 \sigma_a}{d\Omega dE}$  bezeichnet man als doppelt differentiellen Wirkungsquerschnitt der Atomsorte  $a$ . Dieser gibt die Wahrscheinlichkeit für einen Streuprozeß mit einem Energieverlust im Intervall  $[E, E + dE]$  und Streuung in das Raumwinkelement  $d\Omega$  an.

Der in Gl. (2.2) wiedergegebene einfache Zusammenhang gilt jedoch nur für Spektren aus Probenbereichen, die so dünn sind, daß die inelastisch-inelastische Mehrfachstreuung vernachlässigt werden kann. Stammt das Spektrum aus einem dickeren Probenbereich, so daß diese Annahme nicht erfüllt ist, so muß das Spektrum zuvor durch Entfaltung mit der Intensität im

Spektrum bei niedrigen Energieverlusten aufbereitet werden [15]. Die quantitative Analyse kann dann an den so bearbeiteten Spektren dicker Proben wie an Spektren ausreichend dünner Proben vorgenommen werden. Begnügt man sich mit der Bestimmung von Konzentrationsverhältnissen statt absoluter Werte, so erhält man die einfachere Relation

$$\frac{N_a}{N_b} = \frac{I_a \sigma_b(\delta E_b, \theta_A)}{I_b \sigma_a(\delta E_a, \theta_A)}, \quad (2.4)$$

wobei  $N_a$  und  $N_b$  für die Anzahl der Atome von zwei im bestrahlten Probenbereich vorhandenen Elementen und  $I_a$  und  $I_b$  für die Flächen unter den entsprechenden Kanten (vgl. Abb. 2.2) im Energieverlustspektrum stehen.



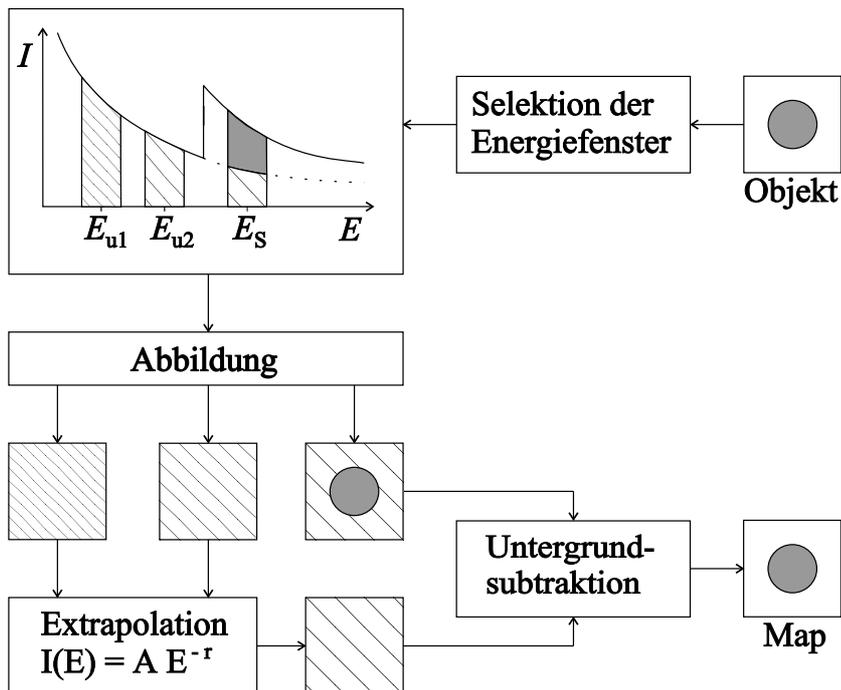
**Abbildung 2.2:** Illustration der für die quantitative Analyse benötigten Größen. Der extrapolierte Untergrund ist gestrichelt dargestellt.

Die Wirkungsquerschnitte für EELS kann man sowohl theoretisch berechnen, als auch experimentell bestimmen. Letzteres kann geschehen, indem man das Verfahren der Verhältnisbestimmung entsprechend Gleichung (2.4) auf bekannte Konzentrationsverhältnisse anwendet. Dazu muß jedoch einer der

beiden Querschnitte schon bekannt sein.

## 2.2 Elementverteilungsbilder

Ein wesentlicher Aspekt der Elektronenmikroskopie ist es, Meßdaten in bildhafter Form, das heißt im zweidimensionalen Zusammenhang bereitzustellen. Abbildende Energiefilter ermöglichen dies auch im Bereich der Analyse mit inelastisch gestreuten Elektronen. So können beim Mikroskop mit abbildendem Energiefilter gezielt nur solche Elektronen verwendet werden, die einen ganz bestimmten Energieverlust erlitten haben. Bei einer idealen geometrischen Abbildung entspricht jeder Abbildungspunkt (Pixel) einem bestimmten Probenbereich. Durch Verwendung eines abbildenden Energiefilters kann nun parallel für ein ganzes Bild jedem solchen Probenbereich in Abhängigkeit vom Energieverlust eine ganz bestimmte inelastisch gestreute Intensität zugeordnet werden. Für ein Energiefenster  $[E_w + \delta E/2, E_w - \delta E/2]$ , ist die Intensität in einem Bildpunkt die gleiche, wie das Integral über dieses Energiefenster in einem Energieverlustspektrum, welches von dem zum Bildpunkt gehörenden Probenbereich aufgenommen wird. Um zu einem Elementverteilungsbild zu gelangen, dessen Intensität in jedem Pixel der lokalen Konzentration des entsprechenden Elementes in der Probe entspricht, ist es lediglich erforderlich, ein Bild mit einem Energiefenster auf einer Ionisationskante des betreffenden Elementes aufzunehmen, und den im vorherigen Abschnitt gekennzeichneten Untergrund unter der betreffenden Ionisationskante in jedem Pixel abzuziehen. Die gebräuchlichste Methode dazu ist die in Abb. (2.3) dargestellte Dreifenster-Methode. Sie basiert auf dem in Gl. (2.1) angegebenen Potenzgesetz. Die Parameter  $A$  und  $r$  werden für jedes Pixel aus zwei weiteren energiegefilterten Bildern mit Energiefestern vor der betreffenden Ionisationskante bestimmt. Die Bestimmung von absoluten oder relativen Elementkonzentrationen kann dann wieder nach den im vorherigen Abschnitt angegebenen Formeln erfolgen. Zu beachten ist hierbei, daß im Falle der Elementvertei-



**Abbildung 2.3:** Anschauliche Darstellung der sogenannten Drei-Fenster-Methode, welche am häufigsten zur Aufnahme von Elementverteilungsbildern verwendet wird. Es werden drei Bilder aufgenommen, ein Bild auf der Ionisationskante beim Energieverlust  $E_s$  und zwei Bilder vor der Ionisationskante bei den Energieverlusten  $E_{u1}$  und  $E_{u2}$ . Zur Bestimmung der Elementverteilung wird aus den Vorkantenbildern auf der Basis des Potenzgesetzes  $I(E) = A E^{-r}$  der Untergrund beim Energieverlust  $E_s$  berechnet und von dem auf der Ionisationskante aufgenommenen Bild abgezogen.

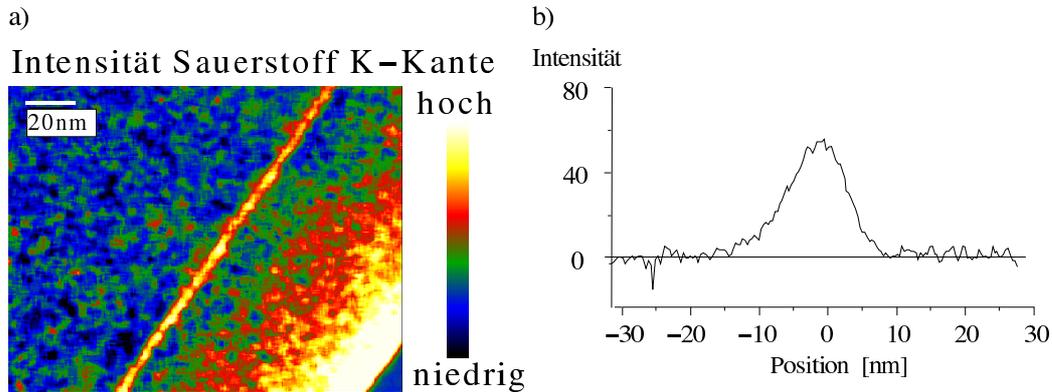
lungsbilder die inelastisch-inelastische Mehrfachstreuung nicht, wie im Falle der Spektren, durch Entfaltung herausgerechnet werden kann. Daher können nur Elementverteilungsbilder quantifiziert werden, die von Probenbereichen stammen, die deutlich dünner sind als die mittlere freie Weglänge der Elektronen bezüglich der inelastischen Plasmonenstreuung. Erfahrungsgemäß wird die Quantifizierung ungenau, wenn die Probenstelle dicker ist als die Hälfte der mittleren freien Weglänge der inelastischen Streuprozesse [69].

Während unter dem Begriff der „quantitativen Auswertung“ im Bereich der Mikroanalyse meist die Bestimmung von Elementverhältnissen und Element-

konzentrationen verstanden wird, ist der Begriff in der hochauflösenden Elektronenmikroskopie anders belegt. Unter „quantitativer Elektronenmikroskopie“ versteht man dort die exakte Bestimmung von Längen- und Abstandsinformation, im engeren Sinne das Feststellen von Atompositionen durch Vergleich der Intensitäten von simulierten und experimentell gewonnenen Hochauflösungsbildern. Für Elementverteilungsbilder umfaßt der Begriff der „quantitativen Auswertung“ nun beide oben diskutierten Aspekte. Aus ihnen können gleichzeitig sowohl Konzentrations- als auch Längen- und Abstandsinformationen entnommen werden. Zwar reicht die Auflösung im Gegensatz zur elastischen Hochauflösung nicht zur Trennung atomarer Säulen, doch erhält man beispielsweise bei einer Probe mit kleinen Ausscheidungen neben der Konzentration eines bestimmten Elements in den Ausscheidungen auch noch die Größe des Bereichs, in dem das Element vorhanden ist, und den Abstand der betreffenden Ausscheidungen voneinander. Ein anderes Beispiel ist die Bestimmung von Schichtdicken einer bestimmten Elementlage in Viel-lagensystemen.

Die Näherung der idealen geometrischen Abbildung ist bei Elementverteilungsbildern jedoch nur im Falle niedriger Vergrößerungen angebracht. In letzter Zeit erlauben verbesserte Energiefilter und Elektronenquellen zunehmend auch die Aufnahme hoch aufgelöster Elementverteilungsbilder. Bei hohen Auflösungen machen sich zunehmend Einflüsse des Abbildungsvorganges im Mikroskop und die Charakteristik des inelastischen Streuprozesses bemerkbar. Diese führen vor allem zu einer Verwaschung der Intensität an Grenzflächen oder Kanten, aber auch zu subtileren Intensitätsverschiebungen gegenüber dem tatsächlichen Konzentrationsverlauf.

Abb. 2.4b zeigt ein aus dem experimentellen Sauerstoffelementverteilungsbild in Abb. 2.4a gewonnenes Intensitätsprofil quer zu der dort erkennbaren vergrabenen Siliziumdioxidschicht. Es stellt sich die Frage, ob der weiche Abfall der Intensität auf beiden Seiten des zur Oxidschicht gehörenden Signals auf eine Diffusion des Sauerstoffs in das umgebende Silizium zurückzuführen ist, oder ob das Signal vielmehr durch den Abbildungsvorgang verwaschen wurde.



**Abbildung 2.4:** In a) ist das Falschfarbenbild des Elementverteilungsbildes einer in Silizium vergrabenen Oxidschicht dargestellt, welches mit der Drei-Fenster-Methode unter Verwendung der Sauerstoff-K-Kante erstellt wurde. Die Teilabbildung b) zeigt einen aus a) entnommenen Linescan senkrecht zum Verlauf der dort erkennbaren vergrabenen Oxidschicht.

Weder die Breite der Schicht noch die tatsächliche Sauerstoffkonzentration kann direkt aus dem Elementverteilungsbild entnommen werden. Um ausgehend von hochaufgelösten Elementverteilungsbildern wie Abb. 2.4a Aussagen über den Konzentrationsverlauf eines bestimmten Elementes machen zu können, wollen wir uns im Folgenden mit den Einflüssen des Abbildungsprozesses auf den Intensitätsverlauf in Elementverteilungsbildern beschäftigen.

## 2.3 Lineare Abbildungstheorie

Ein mathematisch einfacher Zusammenhang zwischen der Atomverteilung und der Intensität in Elementverteilungsbildern ergibt sich für den Fall dünner Proben, bei denen man die Mehrfachstreuung vernachlässigen kann. Elektronen, die durch Anregung innerer Schalen von zwei an unterschiedlichen Positionen befindlichen Atomen inelastisch gestreut wurden, sind nicht mehr interferenzfähig [40]. Dies liegt daran, daß die inneren Schalen zweier verschiedener Atome im allgemeinen voneinander getrennte, einem einzelnen Atom zuordenbare Zustände und daher orthogonal zueinander sind. Be-

schreibt man die Probe näherungsweise als eine Ansammlung freier Atome, so erhält man die totale Intensität  $j(\vec{\rho}_B)$  in einem Elementverteilungsbild des in der Probe enthaltenen Elementes  $a$  durch zweidimensionale inkohärente Summation der Intensität  $j_a(\vec{\rho}_B)$ , die sich in einem Elementverteilungsbild eines einzelnen Atomes des Elementes  $a$  ergibt.

Um Beziehungen zu erhalten, die von Vergrößerung und Bildinversion unabhängig sind, wird im folgenden die Bildkoordinate  $\vec{\rho}_B$  mit der inversen Vergrößerung  $1/M$  auf die Größenverhältnisse im Objekt zurückskaliert und außerdem das Bildkoordinatensystem an der optischen Achse punktgespiegelt. Man kann dann für die Angabe der Bildkoordinate  $\vec{\rho}_B$  auch direkt die Objektkoordinate  $\vec{\rho}$  verwenden. Die tatsächlichen Größenverhältnisse erhält man zurück, indem man in den zum Bild gehörigen Größen  $\vec{\rho} = -(1/M)\vec{\rho}_B$  substituiert.

Nimmt man an, daß sich die Atome der Sorte  $a$  an den Positionen  $\vec{\rho}_{i_a}$  befinden und wählt zur Abbildung ein Energiefenster  $E \pm \frac{\delta E}{2}$ , welches eine Reihe atomarer Anregungen des Elements  $a$  umfaßt, so ergibt sich die Intensität im Elementverteilungsbild als

$$j(\vec{\rho}) = \sum_{i_a} j_a(\vec{\rho} - \vec{\rho}_{i_a}). \quad (2.5)$$

Diese Summe kann als Faltung der Einzelatomintensitäten mit der in Richtung der optischen Achse projizierten Atomverteilung des Elementes  $a$

$$\bar{n}_a(\vec{\rho}) = \int_{\text{Probendicke}} dz \sum_{i_a} \delta(\vec{r} - \vec{r}_i) = \sum_{i_a} \delta(\vec{\rho} - \vec{\rho}_{i_a}) \quad (2.6)$$

in der Form

$$j(\vec{\rho}) = \int \bar{n}_a(\vec{\rho}') j_a(\vec{\rho} - \vec{\rho}') d^2 \vec{\rho}' \quad (2.7)$$

ausgedrückt werden. Die Position im Objekt  $\vec{r}$  hängt mit der Koordinate in der Objektebene  $\vec{\rho}$  durch  $\vec{r} = (\vec{\rho}, z)$  zusammen. Der Summenindex  $i_a$  drückt aus, daß die Summe nur über die Positionen der Atome der Atomsorte  $a$  läuft. Nach dem Faltungstheorem gilt für die Fouriertransformierten der Komponenten von Gl. (2.7)

$$\hat{j}(\vec{u}) = \hat{j}_a(\vec{u}) \hat{n}_a(\vec{u}), \quad (2.8)$$

wobei

$$\hat{j}(\vec{u}) = \int d^2\vec{\rho} j(\vec{\rho}) e^{i2\pi\vec{u}\vec{\rho}}$$

die Fouriertransformierte von  $j(\vec{\rho})$  und

$$\hat{j}_a(\vec{u}) = \int d^2\vec{\rho} j_a(\vec{\rho}) e^{i2\pi\vec{u}\vec{\rho}}$$

beziehungsweise

$$\hat{n}_a(\vec{u}) = \int d^2\vec{\rho} \bar{n}_a(\vec{\rho}) e^{i2\pi\vec{u}\vec{\rho}}$$

die von  $j_a(\vec{\rho})$  und  $\bar{n}_a(\vec{\rho})$  wiedergeben. Der Vektor  $\vec{u}$  ist die Raumfrequenz, die mit der zugehörigen Objektperiode  $d$  im Zusammenhang  $u = 1/d$  steht<sup>1</sup>. Wie später gezeigt wird, hat bei Verwendung einer Aperturblende die Fouriertransformierte der Intensitätsverteilung eines einzelnen Atoms  $\hat{j}_a(\vec{u})$  eine begrenzte Bandbreite. Es ist daher einfach, die Intensitätsverteilung eines Elementverteilungsbildes durch eine inverse numerische Fouriertransformation aus der Darstellung im Fourierraum zu berechnen.

Das Integral der Intensitätsverteilung  $j_a(\vec{\rho})$  im Elementverteilungsbild eines einzelnen Atoms über die gesamte Bildebene ist gleich dem einfallenden Elektronenstrom  $j_0$  multipliziert mit dem Wirkungsquerschnitt  $\sigma_a(\delta E, \theta_A)$  für die Energiefensterbreite  $\delta E$  und den Objektivaperturhalbwinkel  $\theta_A$ . Wir definieren die inelastische Übertragungsfunktion ITF( $\vec{u}$ ) als

$$\text{ITF}(\vec{u}) = \frac{\hat{j}_a(\vec{u})}{j_0\sigma(\delta E, \theta_A)} \quad (2.9)$$

welche daher bei einer Raumfrequenz  $u = 0$  auf eins normiert ist. Sie enthält sowohl den Einfluß der inelastischen Streuung wie auch den des Abbildungsvorganges im Mikroskop auf die Intensitäten im Elementverteilungsbild. Streng genommen ist die Übertragungsfunktion auch von der betrachteten Atomsorte abhängig, so daß wir eigentlich die Formulierung  $\text{ITF}_a(\vec{u})$

---

<sup>1</sup>Diese Konvention zur Angabe der Raumfrequenz wird im Folgenden durchgehend verwendet. Daneben wird an einigen wenigen Stellen, an welchen dadurch die Diskussion erleichtert wird, die Raumfrequenz mit Hilfe der Größe  $\vec{\omega} = \vec{u}/\lambda$  angegeben.  $\vec{\omega}$  hat die Dimension eines Winkels.

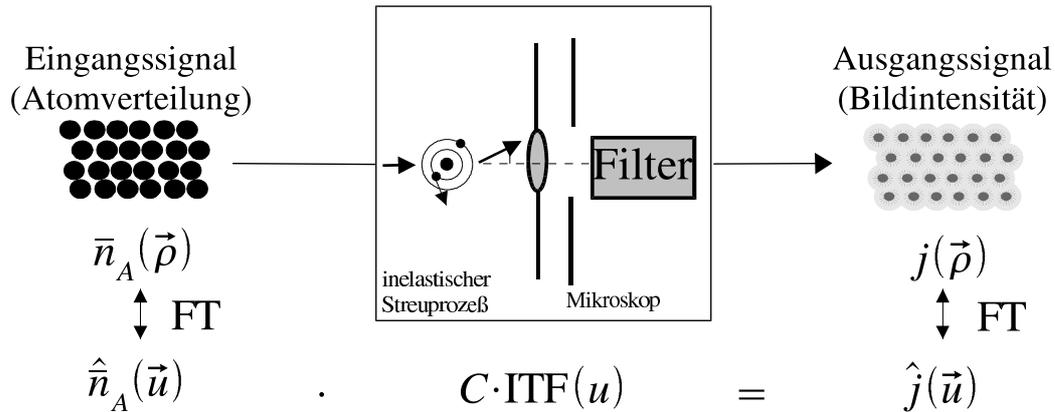
wählen müßten. Für in der Praxis zur Aufnahme von Elementverteilungsbildern in Ruhbild-Transmissionselektronenmikroskopen verwendete Abbildungsparameter haben Berger und Kohl [3] gezeigt, daß Rechnungen, die die Elektronenkonfiguration spezieller Atome berücksichtigen, im wesentlichen die gleichen Ergebnisse liefern wie Rechnungen auf der Basis der Dipolnäherung. In Dipolnäherung geht die Elementabhängigkeit in  $\text{ITF}(\vec{u})$  nur über den Energieverlust ein. Entsprechend hängt  $\text{ITF}(\vec{u})$  in guter Näherung nur von den verwendeten Abbildungsparametern ab, zu denen bei der Abbildung mit inelastisch gestreuten Elektronen auch der ausgewählte Energieverlust gehört. Da Atome im Ensemble mittel kugelsymmetrisch sind, ist bei korrigiertem Astigmatismus  $\text{ITF}(\vec{u})$  rotationssymmetrisch, also nur vom Betrag der Raumfrequenz abhängig. Für die Fouriertransformierte der Intensität in einem Elementverteilungsbild einer Probe mit der Atomverteilung  $\bar{n}_A(\vec{\rho})$  erhält man also abschließend

$$\hat{j}(\vec{u}) = C \text{ITF}(u) \hat{n}_a(\vec{u}), \quad (2.10)$$

wobei  $C = j_0 \sigma(\delta E, \theta_A)$  der Normierungsfaktor der inelastischen Übertragungsfunktion ist. Der Einfluß der Probenstruktur auf die Bildintensität ist in dieser Beschreibung vom Einfluß des Gerätes und des Streuprozesses vollständig getrennt. Das Problem der Simulation der Intensitätsverteilung in einem Elementverteilungsbild reduziert sich damit auf die Berechnung der inelastischen Übertragungsfunktion  $\text{ITF}(u)$ , sofern man die Zusammensetzung der Probe und damit deren projizierte Atomverteilung  $\bar{n}_a(\vec{\rho})$  kennt.

Wie in Abb. 2.5 verdeutlicht, wird in der in diesem Kapitel eingeführten Herangehensweise das Mikroskop zusammen mit dem inelastischen Streuprozess an einem Atom als informationsverarbeitendes System mit der Übertragungsfunktion  $\text{ITF}(u)$  beschrieben. Dieses System erhält als Eingangssignal die projizierte Atomverteilung  $\bar{n}_a(\vec{\rho})$  und liefert daraufhin als Ausgangssignal die Intensitätsverteilung  $j(\vec{\rho})$ .

Da im Zusammenhang mit der Bedeutung von  $\text{ITF}(u)$  gelegentlich Mißverständnisse auftreten, wird an dieser Stelle darauf hingewiesen, daß die inelastische Übertragungsfunktion nicht mit der Streuintensität zu verwech-



**Abbildung 2.5:** Anschauliche Darstellung des Zusammenhangs zwischen Eingangssignal (projizierte Atomverteilung  $\bar{n}_a(\vec{\rho})$ ) und Ausgangssignal (Intensitätsverteilung  $j(\vec{\rho})$  im Elementverteilungsbild) über die inelastische Übertragungsfunktion  $\text{ITF}(u)$  bei Beschreibung der Elementabbildung im Rahmen einer linearen Abbildungstheorie.  $C = j_0 \sigma(\delta E, \theta_A)$  ist der Normierungsfaktor der inelastischen Übertragungsfunktion.

seln ist, die man in einem inelastisch gefilterten Beugungsbild einer amorphen Probe erhält. Diese ist im Gegensatz zu dem Ausdruck in Gl. (2.9) direkt proportional zum winkeldifferentiellen Wirkungsquerschnitt des betrachteten Elements.

## Kapitel 3

# Relativistische Berechnung der inelastischen Übertragungsfunktion

Berger und Kohl [3, 4] haben, basierend auf einem nichtrelativistischen Ansatz, umfangreiche Berechnungen zu Intensitäten und Signal-Rausch-Verhältnissen in Elementverteilungsbildern angestellt. In letzter Zeit werden jedoch zunehmend Mikroskope mit sehr hohen Beschleunigungsspannungen ( $\geq 200\text{kV}$ ) und abbildenden Energiefiltern eingesetzt. In solchen Mikroskopen treffen die Elektronen mit relativistischen Geschwindigkeiten auf die Probe. Wegen der kurzen Wellenlängen der einfallenden Elektronen und der inzwischen kommerziell verfügbaren Polschuhe mit sphärischen Aberrationskoeffizienten  $C_s$  von zum Teil deutlich unter einem Millimeter, erlauben gerade diese Mikroskope, hochaufgelöste Elementverteilungsbilder aufzunehmen. Deshalb schien es uns erforderlich, die bestehenden Rechnungen auf der Basis eines relativistischen Ansatzes zu überprüfen. Hierbei ist zwischen zwei Arten von relativistischen Effekten zu unterscheiden:

- Bei relativistischen Energien des einfallenden Elektrons sind dessen relativistische Massenzunahme und die nicht mehr klassische Beziehung

zwischen kinetischer Energie und Geschwindigkeit zu berücksichtigen. Diese Effekte der relativistischen Kinematik führen im Vergleich zu den nichtrelativistischen Formeln zu geänderten skalaren Vorfaktoren sowohl im Ausdruck für die Bildintensität als auch in dem für den Wirkungsquerschnitt. Die gemäß Gl. (2.9) bei  $u = 0$  auf eins normierte inelastische Übertragungsfunktion wird durch diese Effekte daher nicht beeinflusst. Außerdem ist zur Berücksichtigung dieser Effekte eine vollrelativistische Herleitung nicht erforderlich. Stattdessen lassen sich die nichtrelativistischen Ausdrücke „kinematisch korrigieren“, indem man einfach die relativistisch korrekten Ausdrücke für Masse und kinetische Energie in die nichtrelativistischen Formeln substituiert [15].

- Zur Berücksichtigung der „magnetischen Wechselwirkung“ und der „Retardierung“ ist dagegen eine vollständig relativistische Herleitung erforderlich, da diese relativistischen Effekte durch ein geändertes Wechselwirkungspotential die Streucharakteristik des Objekts beeinflussen. Unter Retardierung wird die Verzögerung der Wechselwirkung zwischen dem einfallenden Elektron und dem beim Streuprozess angeregten Atomelektron bei hohen Geschwindigkeiten des einfallenden Elektrons verstanden. Dieser Effekt kommt dadurch zustande, daß die Ausbreitungsgeschwindigkeit des Wechselwirkungspotentials selbst nicht mehr als sehr groß gegen die Geschwindigkeit der wechselwirkenden Teilchen angesehen werden kann. Außerdem sind geladene Teilchen immer von einem Magnetfeld umgeben, dessen Stärke mit der Geschwindigkeit der Teilchen zunimmt, was bei relativistischen Geschwindigkeiten zu einer zusätzlichen Wechselwirkungskomponente, der „magnetischen Wechselwirkung“ führt. Diese selbst ist natürlich auch wieder retardiert.

Um nach Gl. (2.9) einen Ausdruck für die relativistische inelastische Übertragungsfunktion zu erhalten, wird nun die Intensitätsverteilung im Elementverteilungsbild eines einzelnen Atoms relativistisch korrekt hergeleitet. Diese

Ableitung kann in zwei Schritte unterteilt werden:

Im ersten wird die inelastische Streuung der einfallenden Elektronen im Objekt behandelt. Danach wird die Propagation der gestreuten Elektronenwellen durch das Mikroskop und dessen optische Elemente berechnet.

Im ersten Schritt erhält man einen Ausdruck für die gestreute Elektronenwelle, im zweiten einen Zusammenhang zwischen deren Wellenamplitude und der Intensität in der Bildebene. Daher sind die beiden Rechenkomponenten unabhängig voneinander. Dies führt hier zu einer wesentlichen Erleichterung, da sich magnetische Wechselwirkung und Retardierung nur auf den Streuprozess auswirken. Für die anschließende Propagation der Elektronen durch das Mikroskop spielen dagegen nur kinematisch relativistische Effekte eine Rolle. Daher kann wie oben erläutert für diesen Teil der Rechnung das nichtrelativistische Ergebnis verwendet werden. Eine ausführliche Behandlung der Propagation inelastisch gestreuter Elektronen durch die optischen Elemente des Mikroskops findet sich in [3]. Im Folgenden soll kurz das Prinzip dieser Herleitung verdeutlicht werden. Anschließend werden einige Eigenschaften des relativistischen Matrixelements und die Einflüsse der relativistischen Anteile auf die Struktur des Ausdrucks für die Bildintensität besprochen. Die ausführliche Herleitung des relativistischen Matrixelements in Dipolnäherung erfolgt im Anhang.

### **3.1 Propagation der Elektronen durch das Mikroskop**

Das im folgenden beschriebene Verfahren ist nicht spezifisch für den hier diskutierten Fall. Intensitäten in der Lichtoptik oder für elastisch gestreute Elektronen lassen sich auf gleiche Weise berechnen [20]. Grundlage ist das Kirchhoffsche Beugungsintegral in Fresnelscher Näherung oder kurz Fresnel-

Integral

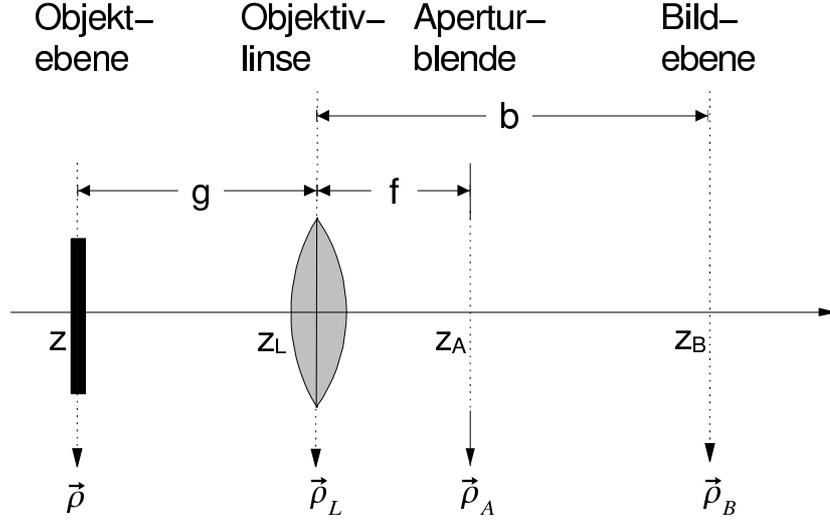
$$\Psi(\vec{r}') = \frac{\exp\{ik(z' - z)\}}{i\lambda(z' - z)} \int \underbrace{\Psi_e(\vec{r})T(\vec{\rho})}_{\Psi_T(\vec{\rho})} \cdot \exp\left\{i\frac{k}{2(z' - z)}(\vec{\rho}' - \vec{\rho})^2\right\} d^2\vec{\rho}. \quad (3.1)$$

Es ermöglicht die Berechnung der Wellenamplitude  $\Psi(\vec{r}')$  einer Welle mit dem Wellenvektor  $\vec{k} = 2\pi/\lambda$  und der Wellenlänge  $\lambda$ , die sich durch die Propagation einer Welle  $\Psi_e(\vec{r})$  durch ein optisches Element oder ein Objekt mit der Transmissionsfunktion  $T(\vec{\rho})$  im Abstand  $z' - z$  hinter diesem ergibt. Die gestrichelten Koordinaten beschreiben die Ebene, in der die Wellenamplitude berechnet werden soll, die ungestrichelten die Ebene, in der sich das optische Element befindet. Die  $z$ -Koordinatenachse liegt in Richtung der optischen Achse, die  $x$ - und  $y$ -Achse senkrecht dazu.  $\Psi_T(\vec{\rho})$  ist die Wellenamplitude direkt hinter dem optischen Element. Mit dieser Ersetzung gilt Gl. (3.1) auch dann, wenn das Objekt nicht durch eine Transmissionsfunktion beschrieben werden kann. Das Fresnel-Integral in Gl. (3.1) ist eine Näherung des Kirchhoffschen Beugungsintegrals für Abstände  $z' - z$ , die sehr viel größer sind als der beleuchtete Bereich, d.h. der Bereich der zu betrachtenden Abstände in der  $x$ - $y$ - und der  $x'$ - $y'$ -Ebene. Gl. (3.1) liefert damit eine angemessene Beschreibung der Propagation von Elektronenwellen im Mikroskop.

In Abb. 3.1 sind die wichtigsten optischen Elemente eines Elektronenmikroskops angegeben. Die Linsensysteme können auf die Objektivlinse reduziert werden, da wegen deren hoher Vergrößerung ( $M_{\text{Obj}} > 20$ ) die Fehler nachfolgender Linsensysteme vernachlässigt werden können. Die Wellenamplitude in der Bildebene kann nun durch sukzessive Anwendung von Gl. (3.1) aus der Wellenamplitude direkt hinter dem Objekt berechnet werden. Dabei verwendet man für die Objektivlinse mit der Brennweite  $f$  die Transmissionsfunktion

$$T_L(\vec{\rho}_L) = \exp\left\{-i\frac{k}{2f}\vec{\rho}_L^2\right\}. \quad (3.2)$$

Der Vektor  $\vec{\rho}_L$  ist ein zweidimensionaler Vektor senkrecht zur optischen Achse in der Linsenebene. Die Linsenfehler der Objektivlinse werden in der Trans-



**Abbildung 3.1:** Die für die Berechnung der Bildintensitäten wichtigen optischen Elemente mit der im Folgenden verwendeten Bezeichnung der entsprechenden Ebenen.

missionsfunktion der Aperturblende

$$T_A(\vec{\rho}_A) = A(\vec{\theta}) \exp(-i\gamma(\vec{\theta}, E)) \quad (3.3)$$

durch den vom Streuwinkel  $\vec{\theta} = \vec{\rho}_a/f$  und von der Energie der Elektronen abhängigen Phasenterm

$$\gamma(\theta, E) = k \left( C_s \frac{\theta^4}{4} - \Delta f \frac{\theta^2}{2} - C_c \frac{E_w - E}{2E_i} \theta^2 \right) \quad (3.4)$$

berücksichtigt. Sein Einfluß wird durch die sphärische Aberration  $C_s$ , den Defokus  $\Delta f$  und die chromatische Aberration  $C_c$  bestimmt. In Gl. (3.4) wurde davon ausgegangen, daß die Elektronen die Linse mit der Energie  $E_i - (E - E_w)$  durchqueren. Dabei ist  $E$  der Energieverlust und  $E_i$  die Anfangsenergie. Bei der elastischen Abbildung ist  $E_w = 0$ , bei der inelastischen Abbildung wird zur Änderung des betrachteten Energieverlustes in der Regel die Beschleunigungsspannung variiert.  $E_w$  ist dann der Wert, um den die Hochspannung variiert wurde, in der Regel der Energieverlust in der Mitte des gesetzten Energiefensters.  $E_0$  bezeichnet die Ruheenergie des Elektrons. Die Phasenschiebung  $\gamma(\vec{\theta}, E)$  ist vom Azimuth des Streuwinkelvektors

$\vec{\theta}$  unabhängig, wenn der zweizählige Astigmatismus korrigiert ist und Fehler höherer Ordnung vernachlässigbar sind.

Den Einfluß der Aperturblende in der hinteren Brennebene der Objektivlinse beschreibt die Öffnungsfunktion

$$A(\theta) = \begin{cases} 1 & \text{für } |\theta| \leq \theta_A \\ 0 & \text{sonst} \end{cases},$$

mit dem Aperturhalbwinkel  $\theta_A$ .

Nehmen wir zunächst der Einfachheit halber an, es würden nur Elektronen zur Abbildung verwendet, die das Objekt von einem Zustand  $|n\rangle$  in einen Zustand  $|m\rangle$  angeregt haben und dabei selbst vom Ausgangszustand  $|\vec{k}_i\rangle$ , der einer ebenen Welle mit dem Wellenvektor  $k_i$  entspricht, in den Zustand  $|\vec{k}_f\rangle = |\vec{k}_i - \vec{q}\rangle$  gestreut wurden. Der Vektor  $\vec{q}$  ist der Streuvektor. Die Gesamtenergie der einlaufenden ebenen Welle ist  $E_{i,\text{ges}} = \sqrt{m_0^2 c^4 + \hbar^2 k_i^2 c^2}$ , die der auslaufenden  $E_{f,\text{ges}} = E_{i,\text{ges}} - E = \sqrt{m_0^2 c^4 + \hbar^2 k_f^2 c^2}$ .  $m_0$  ist die Ruhemasse des Elektrons. Das zu dieser Anregung gehörige Streumatrixelement sei  $T_{nm}(\vec{q})$ . Dann erhält man als Ausdruck für die Stromdichte in der Bildebene [3, 35]

$$j_{nm}(\vec{\rho}) = j_0 \frac{k_f}{k_i} \frac{E_{i,\text{ges}} E_{f,\text{ges}}}{4\pi^2 \hbar^4 c^4} \frac{1}{\lambda_f} \cdot \left| \int T_{nm}(\vec{q}) A(\theta) \exp\{-i\gamma(\theta, E)\} \exp\{ik_f \vec{\theta} \vec{\rho}\} d^2 \vec{\theta} \right|^2. \quad (3.5)$$

Wie oben besprochen ist auch hier die Bildkoordinate  $\vec{\rho}$  sowie die Stromdichte auf die Verhältnisse in der Objektebene zurückbezogen.  $\lambda_f$  ist die Wellenlänge des gestreuten Elektrons. Für nichtrelativistische Energien des einfallenden Elektrons erhält man mit  $E_{i,\text{ges}} \approx E_{f,\text{ges}} \approx m_0 c^2 = E_0$  das nichtrelativistische Ergebnis in [3]. Zur Simulation realer Elementverteilungsbilder müssen die Beiträge zur Stromdichte aller Anregungen, die im für das Elementverteilungsbild gewählten Energiefenster  $[E_w - \frac{\delta E}{2}, E_w + \frac{\delta E}{2}]$  liegen, aufsummiert werden. Für die Berücksichtigung konvergenter Beleuchtung wird der Ausdruck in Gl. (3.5) außerdem inkohärent über alle Einfallswinkel, die kleiner als der halbe Öffnungswinkel der Beleuchtungsapertur  $\Theta_D$  sind, gemittelt.

Wir erhalten so für die Stromdichte in einem Elementverteilungsbild

$$j(\vec{\rho}) = j_0 \frac{k_f}{k_i} \frac{E_{i,\text{ges}} E_{f,\text{ges}}}{4\pi^2 \hbar^4 c^4} \frac{1}{\lambda_f^2} \sum_m \int_{E_w - \frac{\delta E}{2}}^{E_w + \frac{\delta E}{2}} dE \delta(E - (E_m - E_n)) \int d^2\vec{\Theta} B(\Theta) \left| \int T_{nm}(\vec{q}) A(\theta) \exp\{-i\gamma(\theta, E)\} \exp\{ik_f \vec{\theta} \vec{\rho}\} d^2\vec{\theta} \right|^2, \quad (3.6)$$

mit der Beleuchtungsaperturfunktion

$$B(\Theta) = \begin{cases} \frac{1}{\pi\Theta_D^2} & \text{for } \Theta \leq \Theta_D \\ 0 & \text{for } \Theta > \Theta_D \end{cases}. \quad (3.7)$$

### 3.2 Das relativistische Streumatrixelement in erster Bornscher Näherung

Unter Bornscher Näherung versteht man die Näherung des Streumatrixelements in erster Ordnung des Wechselwirkungspotentials. Sie ist gültig, wenn die Energie des gestreuten Teilchens sehr viel größer ist, als die des Wechselwirkungspotentials und entspricht der Beschreibung der Streuung in Form eines Einfachstreuungsprozesses, bei dem anschließende Umordnungsprozesse innerhalb des Atoms keinen Einfluß auf das gestreute Teilchen ausüben. Das Wechselwirkungspotential besteht bei der inelastischen Streuung im nichtrelativistischen Fall lediglich aus dem Potential der statischen Coulombwechselwirkung zwischen den einfallenden und den Atomelektronen. In der relativistischen Behandlung ist zusätzlich die magnetische Wechselwirkung zwischen den beiden bewegten Elektronen zu berücksichtigen sowie die endliche Ausbreitungsgeschwindigkeit der Wechselwirkungspotentiale. Das relativistische Matrixelement ergibt sich damit zu

$$T_{nm} = \langle \vec{k}_f, m | \phi + A | \vec{k}_i, n \rangle \quad (3.8)$$

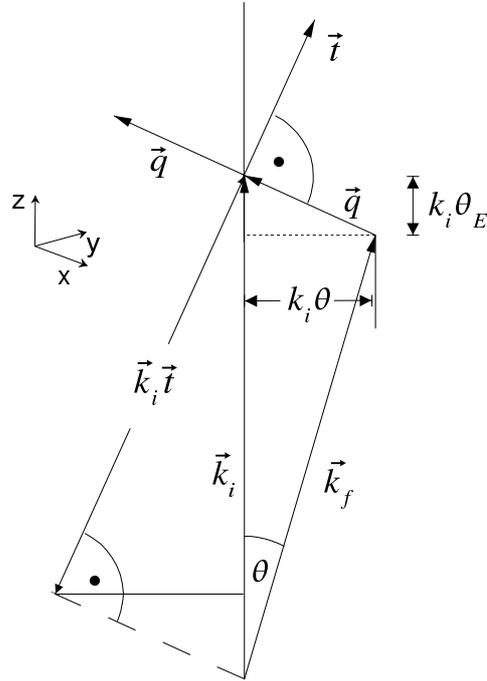
mit den quantenmechanischen Operatoren  $\phi$  und  $A$  für Coulomb- und Vektorpotential.  $|\vec{k}_i, n \rangle$  und  $|\vec{k}_f, m \rangle$  sind die Produktzustände für das System aus einfallendem Elektron und Atomelektron lange vor und nach der Streuung. Bei Verwendung der Coulombbeziehung für das Wechselwirkungspotential

ist  $\phi$  gleich dem Operator für ein sich instantan ausbreitendes statisches Coulombpotential und damit gleich dem nichtrelativistischen Wechselwirkungspotential. Das Vektorpotential  $A$  enthält alle relativistischen Korrekturen, das heißt, den Einfluß der retardierten magnetischen Wechselwirkung wie auch den der Retardierung des Coulombpotentials. Dies erleichtert in der späteren Diskussion den Vergleich zwischen relativistischen und nichtrelativistischen Ergebnissen. In [35] wird ausführlich gezeigt, wie das Matrixelement in Gl. (3.8) durch Verwendung von ebenen Dirac-Wellen für das schnelle Elektron vor und nach der Streuung sowie durch Integration über die Position des einfallenden Elektrons in die weiter auswertbare Form

$$T_{nm}(\vec{q}) = \frac{e^2}{\epsilon_0} \left[ \frac{1}{q^2} \langle m | e^{i\vec{q}\vec{x}} | n \rangle - \frac{\vec{t}\vec{\beta}}{q^2 - \left(\frac{E}{\hbar c}\right)^2} \langle m | e^{i\vec{q}\vec{x}} \vec{t}\vec{\alpha} | n \rangle \right] \quad (3.9)$$

gebracht werden kann. Der Vektor  $\vec{x}$  gibt die Position des Atomelektrons an. Wie in Abb. 3.2 verdeutlicht, ist  $\vec{t}$  ein zum Streuvektor  $\vec{q}$  senkrechter Einheitsvektor in der Ebene, welche durch die Wellenvektoren  $\vec{k}_i$  und  $\vec{k}_f$  des einfallenden Elektrons vor und nach der Streuung aufgespannt wird. Das Vorzeichen von  $\vec{t}$  ist nicht von Bedeutung, da der Vektor in dem zweiten Term in Gl. (3.9) zweimal multiplikativ vorkommt. Der Vektor  $\vec{\beta}$  ist der Geschwindigkeitsvektor des einfallenden Elektrons normiert auf die Lichtgeschwindigkeit  $c$ . Der Vektor  $\vec{\alpha}$  ist ein Symbol für den dreidimensionalen Vektor aus Diracschen  $\alpha$ -Matrizen und wird oft als Geschwindigkeitsoperator bezeichnet, obwohl dies nicht ganz richtig ist, da er nur die Eigenwerte  $c$  und  $-c$  annehmen kann. Der erste Term in Gl. (3.9) enthält den Anteil der in Richtung des einfallenden Elektrons wirkenden, also den longitudinalen Anteil der Wechselwirkung, und entspricht, abgesehen von der relativistischen Kinematik, dem nichtrelativistischen Matrixelement. Der zweite Term beschreibt den transversalen Anteil der Wechselwirkung. Seine Bedeutung ist anschaulich interpretierbar als ein zwischen den beiden an der Streuung beteiligten Elektronen ausgetauschtes virtuelles Photon. Der Vektor  $\vec{t}$  kann in diesem Bild mit dessen Polarisationsvektor identifiziert werden.

Für die weitere Auswertung sind die zueinander orthogonalen Auswahlregeln



**Abbildung 3.2:** Die wichtigsten Größen zur Beschreibung des inelastischen Streuprozesses. Der Einfachheit halber wurde von parallel zur optischen Achse (z-Achse) einfallenden Elektronen ausgegangen. Dabei ist  $\vec{k}_i$  der Wellenvektor des einfallenden Elektrons,  $\vec{k}_f$  der des gestreuten.  $\vec{q} = \vec{k}_i - \vec{k}_f$  ist der Streuvektor.  $\vec{t}$  ist der Polarisationsvektor des virtuellen Photons. Er liegt senkrecht zu  $\vec{q}$  in der von  $\vec{k}_i$  und  $\vec{k}_f$  aufgespannten Streuebene.  $\theta$  ist der Streuwinkel,  $\theta_E = \frac{E}{E_i} \frac{(E_i + E_0)}{(E_i + 2E_0)}$  der sogenannte charakteristische Streuwinkel.

der beiden Matrixelemente in Gl. (3.9) von Bedeutung. Der Operator  $e^{i\vec{q}\vec{x}}$  ist gerade im Hinblick auf Spiegelungen an einer zu  $\vec{q}$  parallelen Ebene. Dagegen ist  $\vec{\alpha} \vec{t}$  wegen  $\vec{t}\vec{q} = 0$  gegenüber einer solchen Operation ungerade [17]. Der erste Term ist also nur für Zustände  $|n\rangle$ ,  $|m\rangle$  mit gleicher Parität gegenüber der obigen Symmetrieoperation ungleich 0, der zweite Term nur für Zustände ungleicher Parität. Der Wirkungsquerschnitt ist proportional zum Betragsquadrat von  $T_{nm}$ . Die orthogonalen Auswahlregeln der beiden Terme in Gl. (3.9) führen dazu, daß im Wirkungsquerschnitt keine gemischten Terme zwischen longitudinalem und transversalem Anteil auftreten. Der Wirkungsquerschnitt setzt sich additiv aus den beiden Anteilen der Wechselwirkung

zusammen; diese interferieren nicht. Dies ist im Ausdruck für die Stromdichte in der Bildebene anders, worauf wir im folgenden Abschnitt näher eingehen werden. Auf der Basis des hier für das Matrixelement verwendeten relativistischen Ansatzes wurden von uns bereits inelastische Wirkungsquerschnitte berechnet [35]. Für diese ergab sich eine gute Übereinstimmung mit experimentellen Ergebnissen [36, 44].

### 3.3 Einfluß der relativistischen Effekte auf die Intensitätsverteilung in der Bildebene

Um den Einfluß der relativistischen Effekte auf die Intensitätsverteilung in der Bildebene zu diskutieren, ist es sinnvoll, den Ausdruck für die Stromdichte in der Bildebene in Gl.(3.6) zunächst auf seine wesentlichen Bestandteile zu reduzieren. Dazu entledigen wir uns der Vorfaktoren durch Verwendung eines proportionalen Zusammenhangs anstelle eines Gleichheitszeichens. Wir vernachlässigen Linsenfehler, indem wir  $\gamma(\theta, E) = 0$  setzen, gehen von axialer paralleler Beleuchtung und einer unendlich großen Aperturbende aus. Außerdem setzen wir das Streumatrixelement  $T_{nm}(\vec{q})$  in der Form von Gl. (3.8) ein. Wir erhalten dann

$$j(\vec{\rho}) \propto \left| \int \langle \vec{k}_f, m | \phi + A | \vec{k}_i, n \rangle e^{i\vec{q}\vec{\rho}} d^2\vec{q} \right|^2 \quad (3.10)$$

als Ausdruck für die Stromdichte in der Bildebene. Schreibt man das Betragsquadrat als Produkt des Arguments und dessen Komplex-Konjugiertem, kann man auch hier den rein nichtrelativistischen Beitrag von den relativistischen Korrekturen trennen. Man erhält

$$\begin{aligned} j(\vec{\rho}) \propto & \left[ \int \langle \vec{k}_f, m | \phi | \vec{k}_i, n \rangle e^{i\vec{q}\vec{\rho}} d^2\vec{q} \right]^2 \\ & + \left[ \int \int \langle \vec{k}_f, m | \phi | \vec{k}_i, n \rangle^* \langle \vec{k}_f', m | A | \vec{k}_i, n \rangle e^{i(\vec{q}' - \vec{q})\vec{\rho}} d^2\vec{q} d^2\vec{q}' \right. \\ & \left. + \int \int \langle \vec{k}_f, m | A | \vec{k}_i, n \rangle^* \langle \vec{k}_f', m | \phi | \vec{k}_i, n \rangle e^{i(\vec{q}' - \vec{q})\vec{\rho}} d^2\vec{q} d^2\vec{q}' \right] \end{aligned}$$

$$+ \left| \int \langle \vec{k}_f, m | A | \vec{k}_i, n \rangle e^{i\vec{q}\vec{r}} d^2\vec{q} \right|^2. \quad (3.11)$$

Dabei ist  $\vec{q}' = \vec{k}_i - \vec{k}_f'$  der Streuvektor für den Übergang des einfallenden Elektrons vom Zustand  $|\vec{k}_i\rangle$  in den Zustand  $|\vec{k}_f'\rangle$ . In der ersten Zeile von Gl. (3.11) findet sich der rein nichtrelativistische Beitrag zur Stromdichte in der Bildebene. Die letzte Zeile enthält den rein relativistischen Anteil. Im Gegensatz zum Wirkungsquerschnitt tragen zur Stromdichte jedoch auch gemischte Terme bei, da die Auswahlregeln der in diesen vorkommenden Matrixelementen wegen  $\vec{q}'\vec{t} \neq 0$  und  $\vec{t}'\vec{q} \neq 0$  nicht vollständig orthogonal sind. Diese Interferenzterme der durch den relativistischen und den nichtrelativistischen Beitrag zur Wechselwirkung gestreuten Elektronen sind in der zweiten und dritten Zeile von Gl. (3.11) wiedergegeben. Integriert man Gl. (3.11) über die gesamte Bildebene, so verschwinden sie. Sie haben also keine Auswirkungen auf den Wirkungsquerschnitt, sondern führen lediglich zu Intensitätsverschiebungen in der Bildebene.

### 3.4 Auswertung der Matrixelemente mit der Dipolnäherung

Um quantitative Resultate zu erhalten, muß das Matrixelement aus Gl. (3.9) weiter ausgewertet werden. Im Falle kleiner Streuwinkel kann die Exponentialfunktion in den Matrixelementen in der Form

$$e^{i\vec{q}\vec{x}} = 1 + i\vec{q}\vec{x} + \dots \quad (3.12)$$

entwickelt werden, da in diesem Falle der Betrag des Streuvektors  $\vec{q}$  sehr viel kleiner ist als der reziproke Radius der betrachteten inneren Schale. Es gilt also für alle  $\vec{x}$ , für die die Integrale in Gl. (3.11) einen nicht vernachlässigbaren Beitrag liefern

$$|\vec{q}| \ll \frac{1}{|\vec{x}|} \quad \Rightarrow \quad \vec{x}\vec{q} \ll 1. \quad (3.13)$$

Unter Dipolnaherung versteht man nun die Naherung, die nur den ersten nicht verschwindenden Beitrag der Entwicklung verwendet. In [3] haben Berger und Kohl fur den nichtrelativistischen Fall Resultate in Zentralfeldnaherung mit exaktem Operator im Matrixelement mit solchen aus der Dipolnaherung verglichen. Im Bereich der zur Aufnahme von Elementverteilungsbildern in Ruhbild-Elektronenmikroskopen ublicherweise verwendeten Parameter traten nur vernachlassigbare Unterschiede auf. In diesem Parameterbereich ist die Dipolnaherung daher zur Berechnung von Bildintensitaten ausreichend genau. In Dipolnaherung erhalten die Matrixelemente in Gl. (3.9) die Form

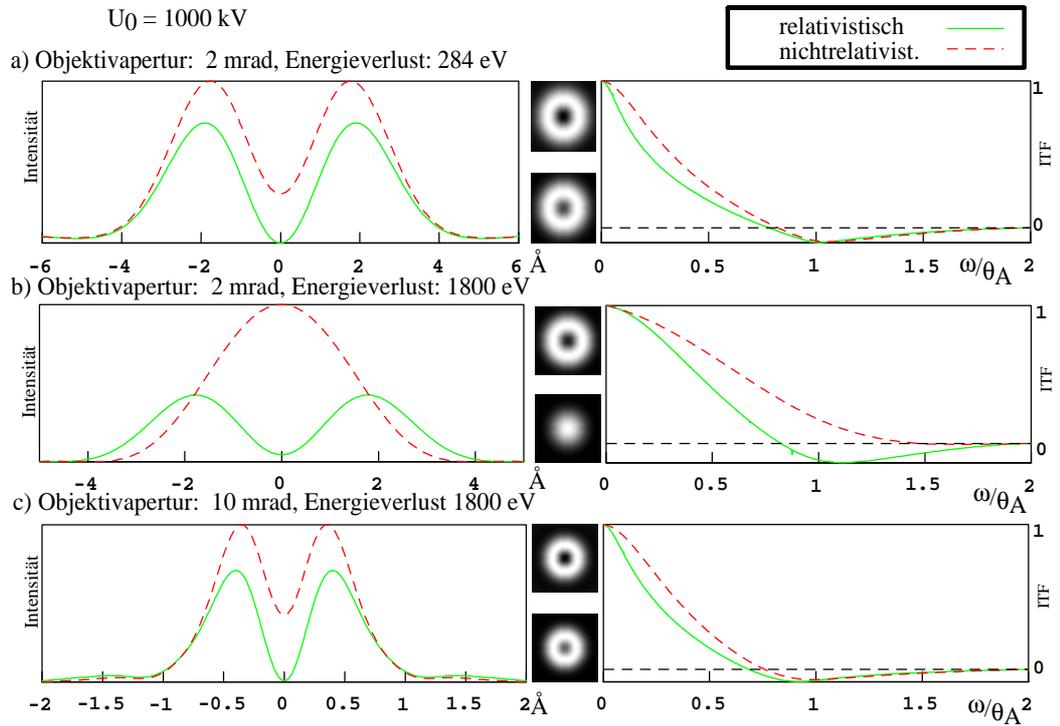
$$\langle m | e^{i\vec{q}\vec{x}} | n \rangle \approx \underbrace{\langle m | 1 | n \rangle}_0 + i\vec{q} \langle m | \vec{x} | n \rangle \quad (3.14)$$

$$\langle m | e^{i\vec{q}\vec{x}} \vec{t}\vec{\alpha} | n \rangle \approx \vec{t} \langle m | \vec{\alpha} | n \rangle. \quad (3.15)$$

Die Berechnung der inelastischen Ubertragungsfunktion auf der Basis der Dipolnaherung ist im Detail in Anhang A dokumentiert.

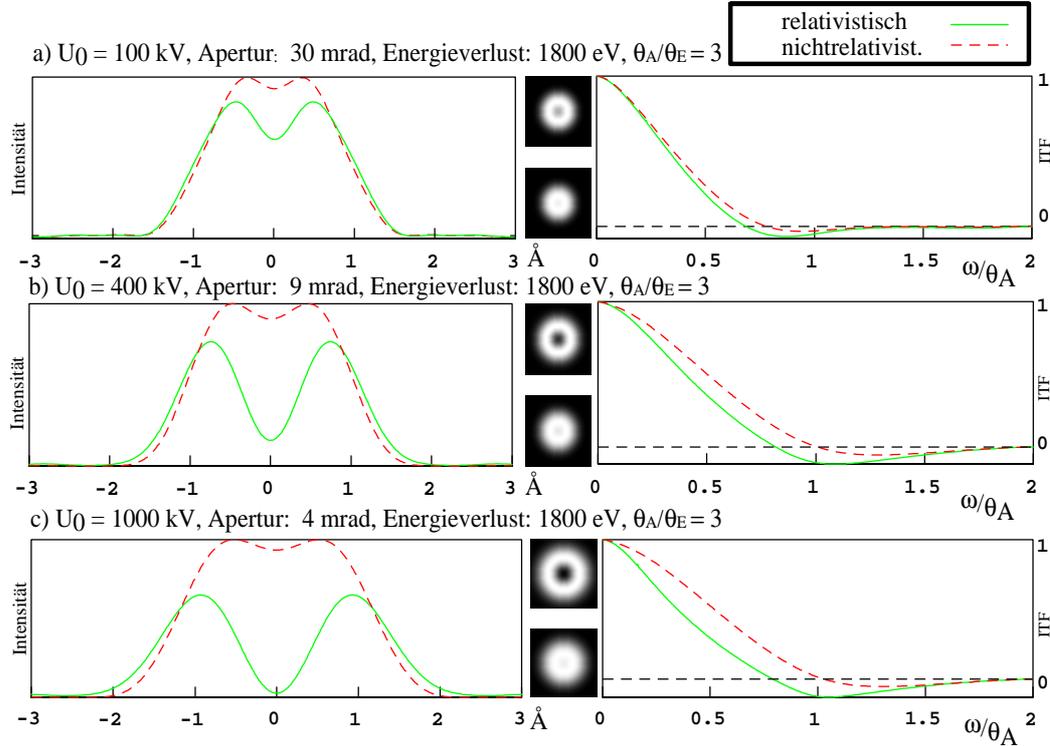
### 3.5 Ergebnisse

Fur einen Uberblick werden zunachst die Ergebnisse fur ideale Linsen, also fur  $\gamma(\theta, E) = 0$  diskutiert. In Abb. 3.3 werden relativistische und nichtrelativistische Ergebnisse fur die Intensitatsverteilung im Elementverteilungsbild eines einzelnen Atoms sowie die entsprechenden Ubertragungsfunktionen ITF fur eine Beschleunigungsspannung von 1000 kV verglichen. Wie zu erwarten unterscheiden sich fur eine solch hohe Beschleunigungsspannung die relativistischen und nichtrelativistischen Resultate erheblich. Die Abweichungen sind von Energieverlust und Aperturwinkel abhangig. Uberschenderweise ergeben sich jedoch auch schon bei wesentlich niedrigeren Beschleunigungsspannungen deutliche Unterschiede in den Ergebnissen der relativistischen und der nichtrelativistischen Rechnungen, wie in Abb. 3.4 fur eine Beschleunigungsspannung von 100 kV erkennbar ist. Da relativistisch berechnete inelastische



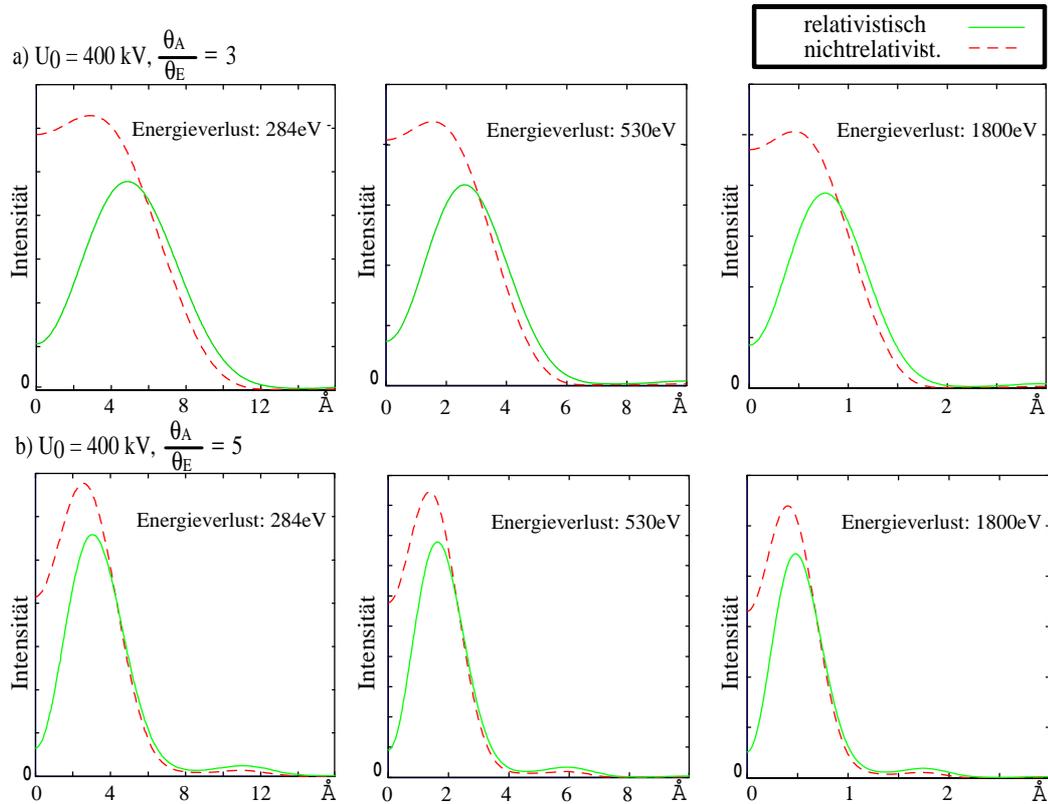
**Abbildung 3.3:** Vergleich zwischen berechneten relativistischen und nichtrelativistischen Intensitätsprofilen im Elementverteilungsbild eines einzelnen Atoms sowie entsprechende Übertragungsfunktionen für ideale Linsen und vernachlässigbare Energiefensterbreite. Bei den Intensitätsprofilen befindet sich die optische Achse im Zentrum. Die Längenangaben sind auf das Objekt zurückbezogen. Die Werte für die Raumfrequenzen  $\omega = u\lambda$  bei den inelastischen Übertragungsfunktionen sind auf den halben Öffnungswinkel  $\theta_A$  der Objektivaperturblende bezogen. Die in der Mitte befindlichen Abbildungen sind Dichteplots der Intensitätsprofile (oben relativistisch, unten nichtrelativistisch). Für alle Rechnungen wurde eine Beschleunigungsspannung von 1000 kV verwendet. Zwischen den Abbildungen wurde der Energieverlust (a,b) beziehungsweise der Aperturwinkel (b,c) variiert.

Wirkungsquerschnitte für solche Beschleunigungsspannungen und ähnliche experimentelle Parameter lediglich im Bereich von ein bis zwei Prozent von nichtrelativistischen abweichen, ist dieses Resultat zumindest auf den ersten Blick völlig unerwartet. Die relativistisch berechneten Intensitätsprofile von Bildern einzelner Atome weichen auf zwei verschiedene Arten von nichtrelativistisch berechneten ab. Zum einen sind die relativistischen Profile gegenüber den nichtrelativistischen verbreitert. Die nichtrelativistischen Rech-



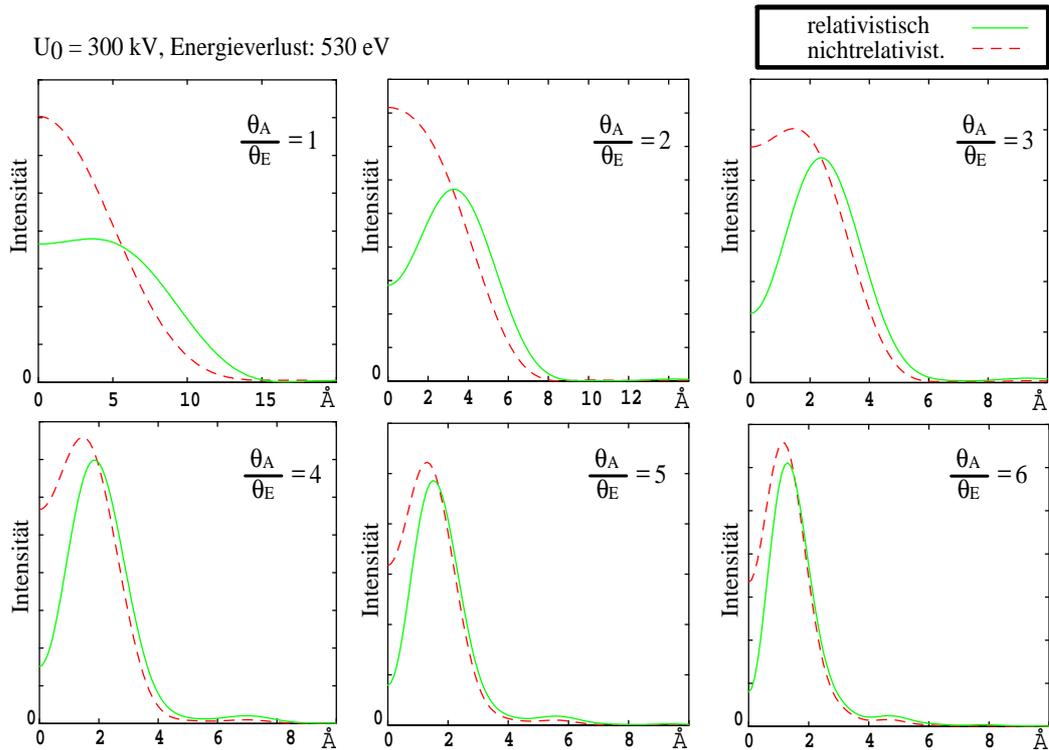
**Abbildung 3.4:** Vergleich zwischen berechneten relativistischen und nichtrelativistischen Intensitätsprofilen im Elementverteilungsbild eines einzelnen Atoms sowie entsprechende Übertragungsfunktionen für verschiedene Beschleunigungsspannungen bei konstantem Verhältnis zwischen halbem Aperturöffnungswinkel  $\theta_A$  und charakteristischem Streuwinkel  $\theta_E$ . Die anderen Parameter sind in der Unterschrift von Abb. 3.3 beschrieben.

nungen ergeben also zu optimistische Ergebnisse für die Auflösungsgrenze in Elementverteilungsbildern. Zum anderen wird von den nichtrelativistischen Rechnungen der Verlauf der Profile in der Nähe der optischen Achse (also bei  $\vec{\rho} = 0$ ) nicht richtig vorhergesagt. Diese Details können zu Artefakten in hochaufgelösten Elementverteilungsbildern führen, die von nichtrelativistischen Rechnungen nicht erklärt werden können (s.u.). Die Abweichungen der ersten Art sind hauptsächlich auf die Terme in der letzten Zeile von Gl. (3.11) zurückzuführen, während die Effekte des zweiten Typs ihren Ursprung in den Interferenztermen (Zeilen zwei und drei in Gl. (3.11)) haben. Da die Interferenzterme im Ausdruck für den Wirkungsquerschnitt nicht auftauchen, können die Abweichungen der zweiten Art erheblich sein, auch wenn die



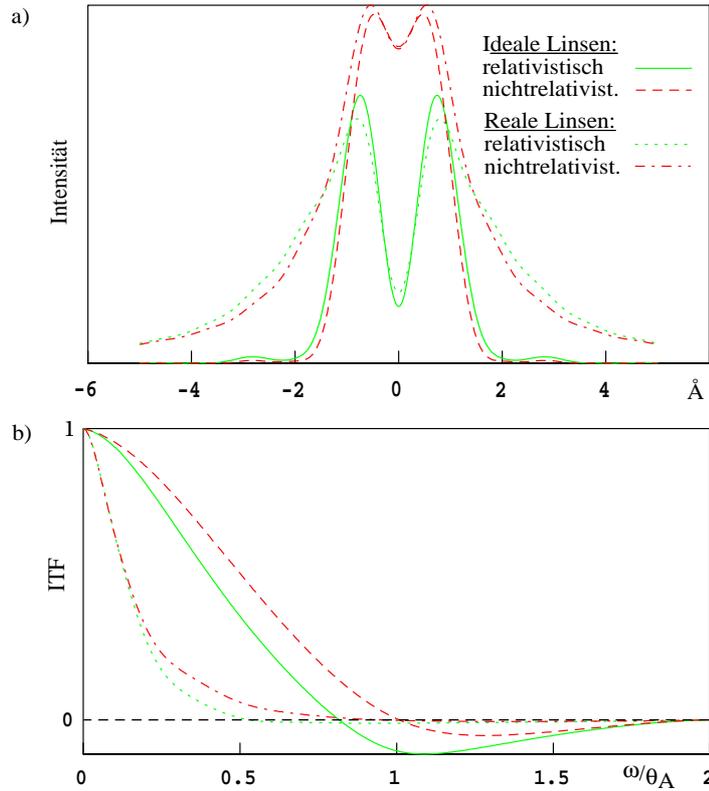
**Abbildung 3.5:** Intensitätsverteilungen im Elementverteilungsbild eines einzelnen Atoms für eine Beschleunigungsspannung von 400kV, verschiedene Objektivaperturwinkel und Energieverluste aber jeweils konstante Verhältnisse zwischen Objektivaperturwinkel und charakteristischem Streuwinkel (a:  $\theta_A/\theta_E = 3$ , b:  $\theta_A/\theta_E = 5$ ). Es wurden ideale Linsen angenommen.

Unterschiede zwischen relativistischem und nichtrelativistischem Wirkungsquerschnitt noch vernachlässigbar sind. Zur weiteren Untersuchung haben wir in Abb. 3.5a und 3.5b Intensitätsprofile für eine Beschleunigungsspannung von 400 kV und verschiedene Energieverluste und Aperturwinkel aufgetragen. Dabei wurde jedoch das Verhältnis von charakteristischem Streuwinkel  $\theta_E$  und Aperturwinkel  $\theta_A$  jeweils konstant gehalten. Man erkennt, daß die Breite der Profile zwar von niedrigen zu hohen Energieverlusten abnimmt, daß jedoch die Form sowohl im relativistischen wie auch im nichtrelativistischen Fall die gleiche bleibt. In Abb. 3.4 kann man erkennen, daß die Form der nichtrelativistischen Profile bei konstantem Verhältnis  $\theta_A/\theta_E$  auch



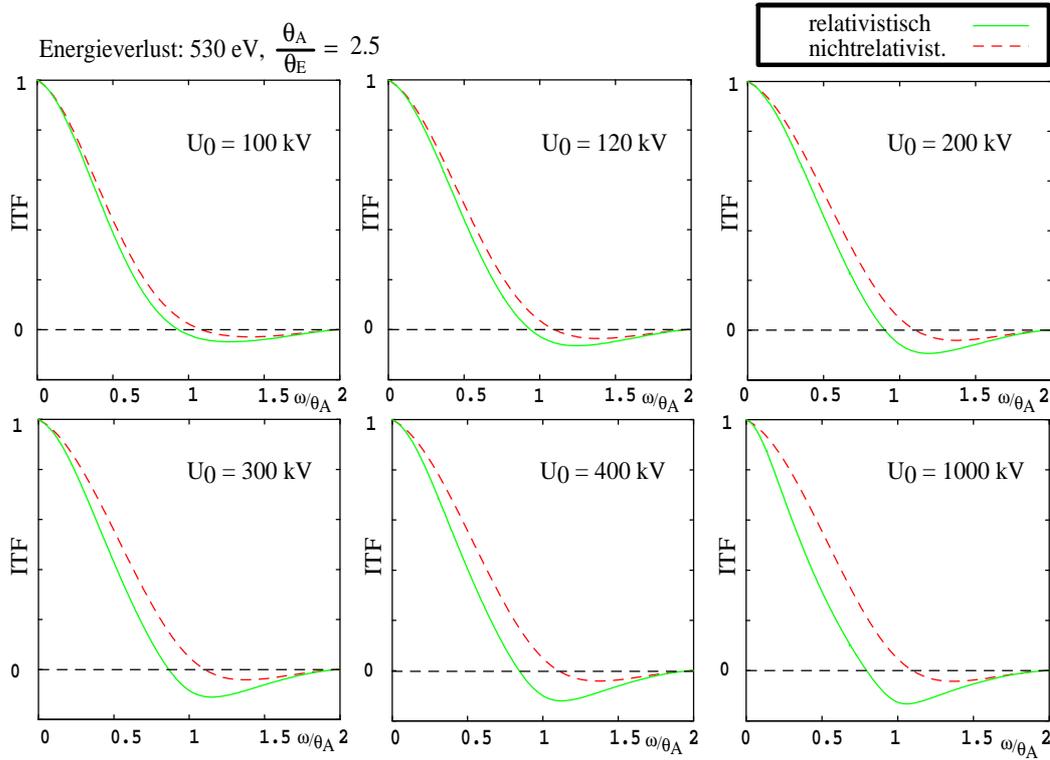
**Abbildung 3.6:** Abhängigkeit der relativistischen Effekte vom Aperturwinkel. Die Abbildungen zeigen relativistische und nichtrelativistisch berechnete Intensitätsprofile im Bild eines einzelnen Atoms bei einer Beschleunigungsspannung von 300kV, dem Zentrum des Energiefensters bei 530eV und verschiedene Aperturwinkel zwischen ein und sechs mal dem charakteristischen Streuwinkel  $\theta_E$ . Für die Linsenfehlerkonstanten wurden die Werte  $C_s = 0,6\text{mm}$  und  $C_c = 1,3\text{mm}$  verwendet, was einem Mikroskop des Typs Jeol 3010 entspricht. Es wurde ein Defokus von null und eine Energiefensterbreite von 10eV angenommen.

nicht von der Beschleunigungsspannung abhängig ist. Dies ist für die relativistisch berechneten Profile jedoch offensichtlich nicht der Fall. Als Folge dieser Feststellung können wir die Unterschiede in der Energieverlust- und Aperturwinkelabhängigkeit zwischen relativistisch und nichtrelativistischen Intensitätsprofilen auf der Basis des Verhältnisses  $\theta_A/\theta_E$  diskutieren. Dazu sind in Abb. 3.6 für die sehr gebräuchliche Beschleunigungsspannung von 300 kV und für den Fall des Energieverlustes der Sauerstoff K-Kante bei 530eV relativistische und nichtrelativistische Intensitätsprofile für  $\theta_A/\theta_E$  zwischen eins und sechs aufgetragen. Dabei wurden, um einen realistischen Eindruck zu ver-



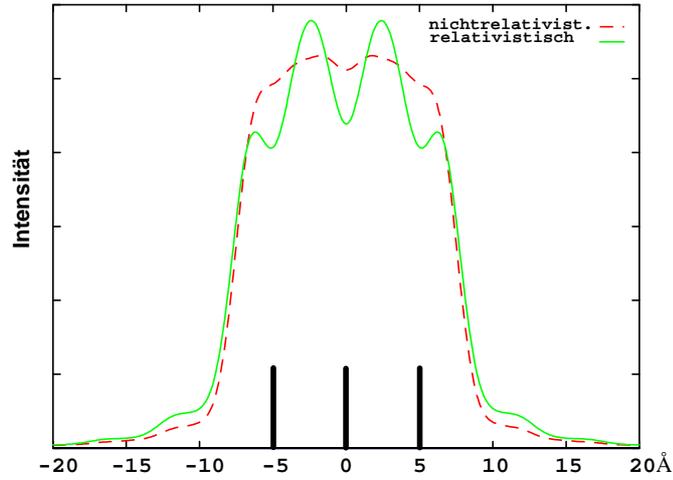
**Abbildung 3.7:** Vergleich zwischen relativistischen und nichtrelativistischen Intensitätsprofilen (a) und inelastischen Übertragungsfunktionen (b) für den Fall fehlerfreier, das heißt „idealer“, Linsen und solchen mit starken sphärischen und chromatischen Aberrationen ( $C_s = 2,3$  mm,  $C_c = 3,4$  mm, Energiefenster: 30eV, „Reale Linsen“). Es wurde eine Beschleunigungsspannung von 400kV, ein Energieverlust von 1800eV und ein Objektivaperturhalbwinkel von 9mrad verwendet.

mitteln, Linsenfehler für ein zur Aufnahme hochaufgelöster Bilder geeignetes Mikroskop berücksichtigt. Besonders im Bereich kleiner Verhältnisse  $\theta_A/\theta_E$  ergeben sich ausgeprägte Abweichungen zwischen relativistisch und nichtrelativistisch berechneten Intensitätsprofilen. Während die relativistischen Rechnungen in den Bildern einzelner Atome ein Minimum auf der optischen Achse sogar noch für Aperturwinkel vorhersagen, die gleich dem charakteristischen Streuwinkel sind, zeigen die nichtrelativistischen Profile ein solches Minimum nur für Verhältnisse  $\theta_A/\theta_E \geq 3$ . Die beiden Diagramme in Abb. 3.7



**Abbildung 3.8:** Abhängigkeit der relativistischen Effekte in der inelastischen Übertragungsfunktion von der Beschleunigungsspannung. Es wurden Beschleunigungsspannungen von 100kV bis 1000kV, sowie ein Energieverlust von 530eV und ein Aperturwinkel von 2,5 mal dem charakteristischen Streuwinkel  $\theta_E$  verwendet. Für die Linsenfehler wurden die gleichen Werte wie in Abb. 3.6 verwendet.

zeigen den Einfluß sehr großer sphärischer  $C_s = 2,3\text{mm}$  und chromatischer  $C_c = 3,4\text{mm}$  Linsenfehler auf relativistisch und nichtrelativistisch berechnete Intensitätsprofile und Übertragungsfunktionen. Zwar ist in beiden Fällen das Bildsignal für reale Linsen verwaschener, die Unterschiede zwischen nichtrelativistischen und relativistischen Ergebnissen besonders im Falle der Bildintensität bleiben jedoch erheblich. In Abb. 3.8 wird die Abhängigkeit der inelastischen Übertragungsfunktion von der Beschleunigungsspannung demonstriert. Auch hier wurden moderate Linsenfehler berücksichtigt. Man erkennt, daß spätestens bei Beschleunigungsspannungen von 200-300 kV die Berücksichtigung relativistischer Effekte zur quantitativen Interpretation von Elementverteilungsbildern notwendig ist.



**Abbildung 3.9:** Linescan aus einem Elementverteilungsbild senkrecht zu drei Sauerstofflagen mit einem Abstand von jeweils  $5\text{\AA}$ . Die relativistische Simulation zeigt Artefakte zwischen den Sauerstofflagen, während die nichtrelativistische Simulation nahezu keine Struktur innerhalb des sauerstoffreichen Bereichs aufweist. Der Linescan wurde für ein Mikroskop mit einer Beschleunigungsspannung von  $400\text{kV}$  und für einen Aperturwinkel von  $3,5\text{mrad}$  berechnet. Zur Abbildung wurde die Sauerstoff-K-Kante bei  $530\text{eV}$  und ein Energiefenster von  $20\text{eV}$  verwendet. Als weitere Parameter wurden  $C_s = 1,3\text{mm}$ ,  $C_c = 1,8\text{mm}$  und ein Defokus von  $10\text{nm}$  verwendet.

Abschließend soll an dem simulierten Intensitätsprofil eines hochaufgelösten Elementverteilungsbildes die praktische Relevanz relativistischer Effekte bei der Interpretation hochaufgelöster Elementverteilungsbilder demonstriert werden. In Abb. 3.9 wurde eine Struktur angenommen, die aus drei sich im Abstand von  $5\text{\AA}$  befindlichen Sauerstoffebenen besteht. Dabei könnte es sich zum Beispiel um ein Modell für einen Kristalldefekt in Form einer Sauerstoffanreicherung in benachbarten Netzebenen handeln. Ein ähnliches Modell in Form einer Bor-Abreicherung in benachbarten Netzebenen wurde von Freitag [19] zur Interpretation von Kontrasten vorgeschlagen, welche er in hochaufgelösten Elementverteilungsbildern von chrom- und wolframdotiertem  $\text{TiB}_2$  beobachtete. Das in Abb. 3.9 gezeigte, relativistisch berechnete Intensitätsprofil senkrecht zu den Ebenen in einem Sauerstoff-Elementverteilungsbild zeigt ausgeprägte Intensitätsmaxima zwischen den

Sauerstoffebenen, während die nichtrelativistische Rechnung eine relativ homogene Intensitätsverteilung ergibt. Diese Artefakte sind im wesentlichen auf die Interferenzterme in Gl. (3.11) zurückzuführen und treten daher schon bei vergleichsweise niedrigen Beschleunigungsspannungen auf. Eine direkte Interpretation der Intensitätsverteilung als Verteilung des Sauerstoffs würde ebenso wie eine Interpretation auf der Basis einer nichtrelativistischen Simulation zu einem falschen Ergebnis führen. Die Anreicherung des Sauerstoffs würde sich demnach zwischen den realen Sauerstoffmaxima befinden. Die relativistischen Effekte können also auch qualitativ bei der Auswertung hochaufgelöster Elementverteilungsbilder von Bedeutung sein. An dieser Stelle muß jedoch betont werden, daß wir bei den hier besprochenen einfachen Simulationen auf Basis der inelastischen Übertragungsfunktion den Einfluß der inelastisch-elastischen Mehrfachstreuung außer acht gelassen haben. Da besonders für schwere Elemente die Wahrscheinlichkeit elastischer Streuung deutlich größer ist als die inelastischer Streuung, hat die inelastisch-elastische Mehrfachstreuung in jedem Fall einen mit der Probendicke zunehmenden Einfluß auf die Intensität in Elementverteilungsbildern. Strenggenommen sind die hier präsentierten einfachen Simulationen nur für solche Experimente gültig, bei denen die Aperturblende und die Orientierung der Probe so gewählt sind, daß Bragg-reflektierte Elektronen nicht zur Abbildung beitragen. Dies macht es jedoch unmöglich, Netzebenenabstände aufzulösen. Abb. 3.9 sollte daher als Beispiel angesehen werden, welches einen Eindruck davon vermittelt, das durch relativistische Effekte in Elementverteilungsbildern Artefakte hervorgerufen werden können, die von den nichtrelativistischen Simulationen nicht erklärt werden können. Der relativistische Ansatz sollte daher in Rechnungen wie [79] eingebaut werden, welche den Einfluß dynamischer Beugung berücksichtigen.

# Kapitel 4

## Theorie zur experimentellen Bestimmung der inelastischen Übertragungsfunktion

In diesem die Kapitel 4 - 6 umfassenden Teil der vorliegenden Arbeit werden unsere Experimente zur Bestimmung der inelastischen Übertragungsfunktion auf der Basis von „Thonschen Diffraktogrammen“ dokumentiert. So bezeichnet man die Betragsquadrate der Fouriertransformierten von Abbildungen amorpher Folien [82].

Dieses erste Kapitel ist der Erarbeitung der zur Durchführung dieser Methode notwendigen Theorie gewidmet. Es wird insbesondere gezeigt, daß zur Bestimmung der Übertragungsfunktion der Zwei-Teilchen-Strukturfaktor bekannt sein muß. In einem theoretischen Exkurs zur elastischen Abbildung wird demonstriert, wie dieser aus der Intensität im elastisch gefilterten Beugungsbild oder aus elastischen Phasenkontrastaufnahmen unabhängig bestimmt werden kann. Es wird außerdem gezeigt, daß die elastische Phasenkontrastübertragungsfunktion CTF zwischen Struktur und Kontrast in einer Phasenkontrastabbildung einen ganz ähnlichen Zusammenhang herstellt, wie die inelastische Übertragungsfunktion ITF zwischen Struktur und Intensität im Elementverteilungsbild (Gl. (2.10)).

Dies nutzen wir im anschließenden Kapitel 5, indem wir in Vorversuchen zur Bestimmung der elastischen Phasenkontrastübertragungsfunktion CTF die Methodik zur Bestimmung der inelastischen Übertragungsfunktion entwickeln. In Kapitel 6 werden die so gewonnenen Erkenntnisse schließlich in entsprechende Experimente zur Bestimmung der ITF übertragen.

## 4.1 Zusammenhang von Diffraktogramm, inelastischer Übertragungsfunktion und Zwei-Teilchen-Strukturfaktor

Eine Idee zur Bestimmung der inelastischen Übertragungsfunktion ist direkt aus Abb. 2.5 zu entnehmen. Dort ist angegeben, wie man bei bekanntem Eingangssignal, das heißt bei bekannter projizierter Atomverteilung  $\bar{n}_a(\vec{\rho})$  des Elementes  $a$ , und bekannter Übertragungsfunktion  $\text{ITF}(u)$ , das Ausgangssignal, das heißt die Bildintensität  $j(\vec{\rho})$  berechnen kann. Kennt man umgekehrt bei einer gegebenen Probe durch unabhängige Messungen Ausgangs- und Eingangssignal, so sollte man die inelastische Übertragungsfunktion prinzipiell über den Zusammenhang

$$\text{ITF}(\vec{u}) = \frac{1}{C} \frac{\hat{j}(\vec{u})}{\hat{\bar{n}}_a(\vec{u})} \quad (4.1)$$

bestimmen können.  $C = j_0 \sigma(\delta E, \theta_A)$  ist der Normierungsfaktor der inelastischen Übertragungsfunktion, der so gewählt ist, daß  $\text{ITF}(0) = 1$  gilt.

Experimentell ist die Bestimmung der inelastischen Übertragungsfunktion auf diese Weise jedoch nicht direkt realisierbar, da die unabhängige Kenntnis des Eingangssignals wegen

$$\begin{aligned} \hat{\bar{n}}_a(\vec{u}) &= \int d^2\vec{\rho} \bar{n}_a(\vec{\rho}) e^{i2\pi\vec{u}\vec{\rho}} \\ &= \sum_{i_a} e^{i2\pi\vec{u}\vec{\rho}_i} \end{aligned} \quad (4.2)$$

erfordert, daß man durch ein Verfahren alle Atomposition  $r_i$  der Atomsorte  $a$  in der gegebenen Probe ermitteln könnte. Dazu ist jedoch kein Experiment

denkbar.

Dieses Problem wird vermieden, wenn man das Betragsquadrat von Gl. (4.1) zur Bestimmung der Übertragungsfunktion  $\text{ITF}(\vec{u})$  verwendet

$$|\text{ITF}(\vec{u})|^2 = \frac{1}{C^2} \frac{|\hat{j}(\vec{u})|^2}{|\hat{n}_a(\vec{u})|^2}. \quad (4.3)$$

Das Betragsquadrat der Fouriertransformierten der Bildintensität  $|\hat{j}(\vec{u})|^2$  im Elementverteilungsbild bezeichnet man als Diffraktogramm. Das Betragsquadrat der Fouriertransformierten der projizierten Atomverteilung entspricht bis auf Normierungskonstanten dem sogenannten projizierten partiellen Zwei-Teilchen-Struktur-Faktor der Atomsorte  $a$

$$\bar{S}_{aa}(\vec{u}) = \frac{1}{Nc_a^2} |\hat{n}_a(\vec{u})|^2 = \frac{1}{Nc_a^2} \sum_{j_a} \sum_{i_a} e^{i2\pi\vec{u}(\vec{\rho}_i - \vec{\rho}_j)}. \quad (4.4)$$

Er ist wegen der Doppelsumme nur von der statistischen Verteilung der Abstände jeweils zweier Atome des Elementes  $a$  abhängig. Im Falle isotroper Proben ist er gleich dem dreidimensionalen partiellen Zwei-Teilchen-Strukturfaktor  $S_{aa}(\vec{u})$ .  $N$  ist die Gesamtanzahl der Atome in dem in der Aufnahme abgebildeten Probenbereich,  $c_a$  der Anteil der Atomsorte  $a$ . Besteht das Testobjekt ausschließlich aus dem Element  $a$ , d.h.  $c_a = 1$ , so ist  $S_{aa}(\vec{u})$  identisch mit dem Zwei-Teilchen-Strukturfaktor  $S_2(\vec{u})$ <sup>1</sup>

$$S(\vec{u}) = S_2(\vec{u}) = \frac{1}{N} |\hat{n}(\vec{u})|^2 = \frac{1}{N} \sum_j \sum_i e^{i2\pi\vec{u}(\vec{\rho}_i - \vec{\rho}_j)} \quad (4.5)$$

der Probe. Die Summenindizes laufen in diesem Fall über alle Atome in der Probe und Gl. (4.3) wird in diesem Fall zu

$$|\text{ITF}(\vec{u})|^2 = \frac{1}{NC^2} \frac{|\hat{j}(\vec{u})|^2}{S(\vec{u})}. \quad (4.6)$$

---

<sup>1</sup>Da der Zwei-Teilchen-Strukturfaktor  $S_2(\vec{u})$  im Folgenden noch häufiger vorkommt, verwenden wir der Einfachheit halber dafür die Bezeichnung  $S(\vec{u})$  und sprechen, wie in der elektronenmikroskopischen Literatur (z.B. [70]) üblich, vom *Strukturfaktor*.

Zur Bestimmung der Übertragungsfunktion auf der Basis dieses Zusammenhangs ist es notwendig, eine Probe zu verwenden, bei der möglichst über den ganzen Bereich der zu bestimmenden Übertragungsfunktion der Zwei-Teilchen-Strukturfaktor

$$S(\vec{u}) > 0 \quad (4.7)$$

ist. Da der Strukturfaktor kristalliner Proben scharfe Maxima aufweist, zwischen denen er nahezu verschwindet, scheiden solche Präparate von vornherein aus. Am einfachsten wäre die Verwendung ideal amorpher Substanzen, die als Verteilung nahezu punktförmiger, wechselwirkungsfreier und daher rein statistisch verteilter Atome beschrieben werden können und für die daher gilt

$$\begin{aligned} S(\vec{u}) &= \frac{1}{N} \sum_j 1 + \underbrace{\sum_j \sum_{i \neq j} e^{i2\pi\vec{u}(\vec{\rho}_i - \vec{\rho}_j)}}_{\approx 0} \\ &\approx 1. \end{aligned} \quad (4.8)$$

In diesem Fall ist nach Gl. (4.6) die Intensität im inelastischen Diffraktogramm direkt proportional zum Betragsquadrat der inelastischen Übertragungsfunktion. Ideal amorphe Substanzen sind zum Beispiel stark verdünnte Gase. Diese sind einer Untersuchung mit Hilfe von Elementverteilungsbildern nicht zugänglich. Praktisch realisierbar ist die Verwendung dünner amorpher Folien als Testobjekte. Deren Strukturfaktor sollte über einen weiten Bereich von Raumfrequenzen  $u$  ebenfalls weitgehend homogen sein. Für reale amorphe Proben verschwindet der zweite Term in Gl. (4.8) jedoch nicht [87] sondern sorgt für eine Modulation in Abhängigkeit von der Raumfrequenz  $u$ . Um mit Hilfe von Gl. (4.6) die inelastische Übertragungsfunktion zu bestimmen, ist es folglich notwendig, den Zwei-Teilchen-Strukturfaktor  $S(\vec{u})$  der amorphen Probe auf unabhängige Weise zu messen. Eine Möglichkeit dazu bildet die Untersuchung der Probe mit elastisch gestreuten Elektronen. Im folgenden Exkurs soll gezeigt werden, wie der Zwei-Teilchen-Strukturfaktor mit der Intensität in elastischen Phasenkontrastaufnahmen und dem elastischen Beugungsbild von dünnen Proben zusammenhängt.

## 4.2 Elastisch gefilterte Beugung und Abbildung

Die Theorie der elastischen Abbildung ist schon länger bekannt. Die in der Literatur gegebenen Gleichungen unterscheiden sich jedoch oft wegen leicht unterschiedlicher Definitionen in Vorzeichen beziehungsweise in der Nomenklatur. Angesichts unseres quantitativen Vorhabens schien es uns daher sinnvoll, die von uns verwendete Schreibweise sowie die verwendeten Näherungen in einem kurzen Exkurs darzustellen.

Für die folgende Diskussion benötigen wir die Intensität der elastisch gestreuten Elektronen in der Bildebene und in der hinteren Brennebene der Objektivlinse, welche im Beugungsmodus abgebildet wird. Die Berechnung dieser Intensitäten kann auf gleiche Weise erfolgen, wie dies in Abschnitt 3.1 für den Fall inelastisch gestreuter Elektronen besprochen wurde. Ausgehend von der Wellenfunktion  $\Psi_T(\vec{\rho}')$  direkt hinter der Probe erhält man die Wellenfunktion in der Bildebene durch mehrfache Anwendung des Fresnel-Integrals in Gl. (3.1) und durch Multiplikation mit den in Gl. (3.2) und Gl. (3.3) gegebenen Transmissionsfunktionen der Objektivlinse  $T_L(\vec{\rho}_L)$  und der Aperturblende  $T_A(\vec{\rho}_A)$ . Bei der folgenden Diskussion legen wir die z-Achse des Koordinatensystems in Richtung der optischen Achse. Die Bezeichnung der Koordinaten in den für den Abbildungsprozess wichtigen Ebenen sind in Abb. 3.1 gegeben. Wie schon bei der Behandlung der inelastischen Abbildung ist die Bildkoordinate  $\vec{\rho}_B$  auf die Größenverhältnisse im Objekt zurückbezogen. Für die Wellenamplitude in der hinteren Brennebene  $\Psi_A(\vec{u})$  erhält man, abgesehen von Phasenfaktoren, die Fouriertransformierte der Wellenamplitude  $\Psi_T(\vec{\rho})$  direkt hinter dem Objekt. Wir verwenden deshalb, und um spätere Vergleiche zu erleichtern, für die Angabe der Koordinaten in der hinteren Brennebene im Folgenden die Raumfrequenz  $\vec{u} = \frac{\vec{\rho}_A}{f\lambda} = \frac{\vec{\theta}}{\lambda}$ . Für die Intensität im Beugungsbild ergibt sich also

$$j_A(\vec{u}) = |\Psi_A(\vec{u})|^2 = \frac{1}{\lambda^2 f^2} \left| \int d^2\vec{\rho} \Psi_T(\vec{\rho}) e^{-i2\pi\vec{u}\vec{\rho}} \right|^2. \quad (4.9)$$

Dabei ist  $\lambda$  die Wellenlänge des einfallenden Elektrons,  $f$  die Brennweite der Linse und  $\vec{\theta}$  der Streuwinkel. Durch die Vektorschreibweise kann auch dessen Azimuth angegeben werden. Die Wellenamplitude  $\Psi_B(\vec{\rho}_B)$  in der Bildebene entspricht bis auf Phasenfaktoren der Fourier-Rücktransformation der Wellenamplitude in der hinteren Brennebene. Folglich ist die Intensität in der Bildebene gegeben durch

$$\begin{aligned} j_B(\vec{\rho}_B) &= |\Psi_B(\vec{\rho}_B)|^2 \\ &= \frac{1}{\lambda^4} \left| \int d^2\vec{\theta} \int d^2\vec{\rho} \Psi_T(\vec{\rho}) e^{ik\vec{\theta}(\vec{\rho}_B - \vec{\rho})} T_A(\vec{\rho}_A) \right|^2. \end{aligned} \quad (4.10)$$

Inbesondere ergibt sich für die ideale Abbildung, das heißt, wenn  $T_A(\vec{\rho}_A) = 1$

$$j_B(\vec{\rho}_B) = |\Psi_T(\vec{\rho})|^2. \quad (4.11)$$

Schwache Streuer können im elastischen Fall ebenfalls durch eine Transmissionsfunktion  $T(\vec{\rho})$  beschrieben werden. Mit der Wellenamplitude  $\Psi_e(\vec{\rho})$  direkt vor dem Objekt erhält man dann

$$\Psi_T(\vec{\rho}) = \Psi_e(\vec{\rho})T(\vec{\rho}). \quad (4.12)$$

Eine monoenergetische, parallele, im Winkel  $\Theta$  zur optischen Achse einfallende Elektronenwelle läßt sich durch ihren Wellenvektor  $\vec{k}_i$  charakterisieren, der in Kleinwinkelnäherung die Form

$$\vec{k}_i = k [\vec{e}_z - \vec{\Theta}] \quad (4.13)$$

annimmt. Für den Wellenvektor nach der Streuung erhält man entsprechend

$$\vec{k}_f = k [\vec{e}_z + \vec{\theta}]. \quad (4.14)$$

In der Objektebene, die wir der Einfachheit halber so legen, daß dort  $z = 0$  gilt, ist dann die Wellenamplitude des einfallenden Elektrons durch

$$\Psi_e(\vec{\rho}) = e^{i\vec{k}_i\vec{r}} = e^{-ik\vec{\Theta}\vec{\rho}} \quad (4.15)$$

gegeben. Für den elastischen Streuvektor  $\vec{q}_0 = \vec{k}_i - \vec{k}_f$  erhält man

$$\vec{q}_0 = -k(\vec{\Theta} + \vec{\theta}) := -k\vec{\Omega}. \quad (4.16)$$

Wir verwenden hier die Bezeichnung  $\vec{q}_0$  für den elastischen Streuvektor, um eine Verwechslung mit dem inelastischen Streuvektor  $\vec{q}$  auszuschließen. Im Rahmen der hier diskutierten Kleinwinkelnäherung ist  $\vec{q}_0$  senkrecht zur optischen Achse. Für eine genaue Diskussion der Kohärenz der Streuwellen oder für dickere Proben muß über die hier angegebene Darstellung hinaus in den Vektoren  $\vec{k}_i$ ,  $\vec{k}_f$  und  $\vec{q}_0$  auch die zweite Ordnung in den Winkeln  $\Theta$  und  $\theta$  mitgenommen werden [18].

### 4.2.1 Die Transmissionsfunktion

Ist die kinetische Energie des einfallenden Elektrons sehr viel größer als der Betrag des Objektpotentials, kann man die halbklassische Hochenergienäherung [70] zur Berechnung der Transmissionsfunktion des Objektes verwenden. Durch die hohe Differenz zwischen Beschleunigungsenergie und Objektpotential durchquert das Elektron die Probe nahezu gerade. Im Bereich des Objektpotentials wird das einfallende Elektron zusätzlich beschleunigt und seine Wellenlänge verkürzt sich. Als Konsequenz ist die Welle hinter dem Objekt gegenüber derjenigen vor dem Objekt um die Phase  $\varphi(\vec{\rho})$  verschoben. Die Phasenschiebung ist proportional zum projizierten Objektpotential  $\bar{V}(\vec{\rho})$ . Entsprechend erhält man für die Transmissionsfunktion

$$\begin{aligned}
 T(\vec{\rho}) &= \exp(i\varphi(\vec{\rho})) \\
 &= \exp\left(-\frac{i}{\hbar v} \int_{-\infty}^{\infty} V(\vec{r}) dz\right) \\
 &= \exp\left(-\frac{i}{\hbar v} \bar{V}(\vec{\rho})\right), \tag{4.17}
 \end{aligned}$$

wobei  $v$  die Geschwindigkeit des einfallenden Elektrons angibt. Die Probe stellt sich in der Hochenergienäherung als ein reines Phasenobjekt dar.

#### Schwache Phasenobjekte

Dünne Proben leichter Elemente sind sogenannte schwache Phasenobjekte. Bei ihnen ist die durch das Objektpotential hervorgerufene Phasenschiebung

sehr klein

$$|\varphi(\vec{\rho})| \ll 1. \quad (4.18)$$

In diesem Fall kann zusätzlich die Exponentialfunktion in Gl. (4.17) entwickelt werden. Eine Näherung, die die Phasenschiebung lediglich in erster Ordnung mitnimmt

$$T(\vec{\rho}) = 1 + i\varphi(\vec{\rho}) \quad (4.19)$$

bezeichnet man als „Schwache-Phasenobjekt-Näherung“ oder auch als „WPO-Näherung“ mit dem englischen Akronym für Weak Phase Object. Die beiden Summanden der Transmissionsfunktion kann man anschaulich als den gestreuten und den ungestreuten Anteil der einfallenden Elektronenwelle interpretieren.

Wir benötigen im Folgenden die zweidimensionale Fouriertransformierte von  $\varphi(\vec{\rho})$ . Wegen dessen Proportionalität zum projizierten Potential (Gl. (4.17)), erhält man dafür

$$\begin{aligned} \hat{\varphi}(\vec{u}) &= -\frac{1}{\hbar v} \int \bar{V}(\vec{\rho}) e^{i2\pi\vec{u}\vec{\rho}} d^2\vec{\rho} \\ &= -\frac{1}{\hbar v} \int \int V(\vec{\rho}, z) e^{i2\pi\vec{u}\vec{\rho}} d^2\vec{\rho} dz \\ &= -\frac{1}{\hbar v} FT^3\{V\}(\vec{u}). \end{aligned} \quad (4.20)$$

Die zweidimensionale Fouriertransformierte des projizierten Potentials in einer Ebene senkrecht zur optischen Achse ist also gleich der dreidimensionalen Fouriertransformierten des Potentials. Vernachlässigen wir Bindungseffekte, können wir das Probenpotential aus dem Potential freier Atome zusammensetzen. Ist die Probe nur aus Atomen der Sorte  $a$  zusammengesetzt, so erhält man mit der projizierten Atomverteilung aus Gl. (2.6) und dem projizierten Einzelatompotential  $\bar{V}_A(\vec{\rho})$  für das projizierte Probenpotential

$$\bar{V}(\vec{\rho}) = \int \bar{n}_a(\vec{\rho}') \bar{V}_a(\vec{\rho} - \vec{\rho}') d^2\vec{\rho}'. \quad (4.21)$$

Für die Fouriertransformierte der Phasenschiebung erhalten wir damit

$$\hat{\varphi}(\vec{u}) = \lambda \hat{\bar{n}}_a(\vec{u}) f_a(u), \quad (4.22)$$

mit dem Atomformfaktor der Atomsorte  $a$

$$f_a(u) = -\frac{m}{2\pi\hbar^2} FT^3\{V_a\}(u). \quad (4.23)$$

Der Atomformfaktor kann aus Tabellenwerken [46] entnommen werden. Außerdem wurden zum Beispiel von Bird und King [7] und Weickenmeier und Kohl [83] Inter- beziehungsweise Extrapolationsformeln für die tabellierten Werte angegeben.

### 4.2.2 Intensität im Feinbereichs-Beugungsbild

Für die Aufnahme eines Feinbereichs-Beugungsbildes verwendet man axiale parallele Beleuchtung, d.h. es gilt  $\Theta = 0$ . Den zu untersuchenden Objektbereich wählt man mit Hilfe der Feinbereichs- oder Selektorblende aus. Diese befindet sich normalerweise in der ersten Zwischenbildebene des Mikroskops. Wegen des Einflusses der Objektivlinsenfehler ist der durch die Feinbereichsblende selektierbare Bereich in Abhängigkeit vom betrachteten Streuwinkelbereich nach unten begrenzt [70]. Mit Gl. (4.9) für die Intensität in der hinteren Brennebene und der Transmissionfunktion des schwachen Phasenobjektes erhält man für die Verteilung der elastischen Intensität im Beugungsbild

$$j_A(\vec{u}) \propto \left[ j_{A,U}(\vec{u}) + \text{const} \cdot |\hat{\varphi}(\vec{u})|^2 \right]. \quad (4.24)$$

Der erste Summand in Gl. (4.24) entspricht der Intensität der die Probe ungestreut durchquerenden Elektronen. Bei exakt paralleler Beleuchtung formen diese einen scharfen Peak im Zentrum des Beugungsbildes. Da jedoch eine solche Beleuchtung über den gesamten ausgewählten Objektbereich niemals ganz realisierbar ist, ergeben die ungestreuten Elektronen im Bereich sehr kleiner Streuwinkel im Beugungsbild einen Untergrund mit dem Profil der Eingangswinkelverteilung. Auf diesen werden wir bei den Experimenten zur Bestimmung der inelastischen Übertragungsfunktion noch zu sprechen kommen.

Vernachlässigen wir diesen Untergrund, erhalten wir schließlich mit Gl. (4.22), Gl. (4.24) und Gl. (4.5) für die Intensitätsverteilung im Beugungsbild dünner Proben

$$j_A(\vec{u}) \propto |f_a(u)|^2 S(\vec{u}). \quad (4.25)$$

Es ist also möglich, den als Referenz für die Bestimmung der inelastischen Übertragungsfunktion benötigten Zwei-Teilchen-Strukturfaktor  $S(\vec{u})$  dünner amorpher Folien aus dem elastischen Feinbereichsbeugungsdiagramm zu ermitteln. Eine andere Möglichkeit, diesen zu bestimmen, bietet der Kontrast in elastisch gefilterten Phasenkontrastaufnahmen, was im Folgenden diskutiert wird.

### 4.2.3 Phasenkontrast

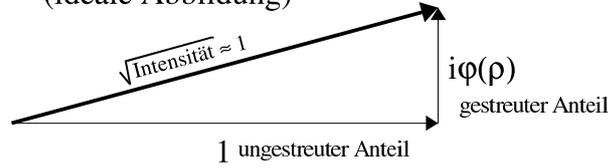
Die Intensität im Bild eines ideal abgebildeten reinen Phasenobjekts ist proportional zur Intensität der einfallenden Elektronenwelle

$$j_B(\vec{\rho}_B) \propto |\Psi_e(\vec{\rho})|^2, \quad (4.26)$$

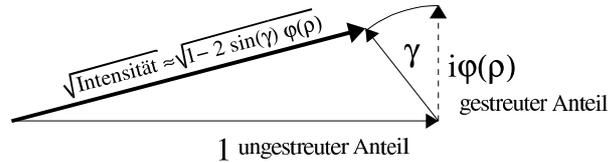
was man leicht erkennt, wenn man Gl. (4.12) mit Gl. (4.17) in die Gleichung für die ideale Abbildung Gl. (4.11) einsetzt. Auf diese Weise enthält man also im Bild keinerlei Information über die Probe. Dies liegt daran, daß bei der idealen Abbildung die gestreuten und ungestreuten Anteile der Elektronenwelle in der Bildebene nur jeweils getrennt miteinander interferieren. Die gestreuten Wellenanteile, die an einer bestimmten Bildkoordinate  $\vec{\rho}_B$  miteinander zur Interferenz kommen, stammen aber von derselben Probenstelle  $\vec{\rho}$  und haben damit also die gleiche Objektphasenschiebung erfahren. Eine Möglichkeit, die Phasenverschiebung durch die Probe im Bild sichtbar zu machen, bietet die sogenannte Phasenkontrastabbildung. Wie in Abb. 4.1 ersichtlich, verschiebt man dazu den gestreuten Anteil der Elektronenwelle um eine zusätzliche Phase  $\gamma$ , wodurch es in der Bildebene zur Interferenz zwischen gestreutem und ungestreutem Anteil der Elektronenwelle kommt.

## Intensität im Bild

a) ohne zusätzliche Phasenschiebung  
(ideale Abbildung)



a) mit zusätzlicher Phasenschiebung  $\gamma$   
(Phasenkontrast)



**Abbildung 4.1:** Prinzip des Phasenkontrastes für ein schwaches Phasenobjekt. Für die einfallende Welle direkt vor dem Objekt gelte der Einfachheit halber  $\Psi_e = 1$ . Gestreuter und ungestreuter Anteil der Elektronenwelle sind gemäß Gl. (4.19) für das schwache Phasenobjekt in einem komplexen Koordinatensystem dargestellt. Bei der idealen Abbildung ist die Intensität im Bild genauso groß wie die Intensität nur des ungestreuten Anteils der Elektronenwelle. Die Objektphase  $\varphi(\vec{\rho})$  hat daher auf die Intensität im Bild keinen Einfluß. Zur Erzielung von Phasenkontrast verdreht man nur den gestreuten Anteil der Welle um eine zusätzliche Phase  $\gamma$ , wodurch die Intensität im Bild linear in  $\varphi(\vec{\rho})$  variiert. Optimal ist ein  $\gamma$  von  $\pi/2$  oder  $-\pi/2$ . Der in  $\varphi(\vec{\rho})$  lineare Term ist Folge der Interferenz der ungestreuten Welle mit der gestreuten.

Dadurch wird in jeder Bildkoordinate die Phasenverschiebung des gestreuten Wellenanteils relativ zur ungestreuten Welle gemessen. Bei der praktischen Realisierung macht man sich zunutze, daß die gestreuten Elektronen über den gesamten Bereich der hinteren Brennebene verteilt sind, während die ungestreuten ein scharfes Maximum auf der optischen Achse haben. Dann führt man in der hinteren Brennebene eine Phasenplatte ein, die nur den Elektronenwellen außerhalb der optischen Achse, also nur dem gestreuten Wellenanteil, eine Phasenverschiebung  $\gamma(\theta)$  vermittelt. In der Elektronenmikroskopie erhält man eine solche Phasenschiebung quasi automatisch durch den Linsenfehlerphasenterm  $\gamma(\theta, E)$ , welcher in Gl. (3.4) gegeben ist.

Aus Intensitätsgründen verwendet man für Phasenkontrastaufnahmen im allgemeinen schwach konvergente Beleuchtung. Außerdem weist die Beleuchtung in Abhängigkeit von der verwendeten Elektronenquelle eine endliche Energiebreite zwischen 0,5 und 2 eV auf, die wegen der Energieabhängigkeit des Linsenfehlerterms  $\gamma(\theta, E)$  berücksichtigt werden muß. Zur realistischen Intensitätsberechnung wird daher die Intensität in Gl. (4.10), die sich für monoenergetische parallele Beleuchtung ergibt, über die Energie- und Winkelverteilung  $p(E)$  und  $D(\Theta)$  der auf die Probe treffenden Elektronen gemittelt. Mit den Gleichungen (4.10), (4.12), (4.15) und (4.16) erhält man für die Intensität im Bild

$$j_B(\vec{\rho}_B) = \frac{1}{\lambda^4} \int dE p(E) \int d^2\vec{\Theta} D(\Theta) \cdot \left| \int d^2\vec{\rho} \int d^2\vec{\theta} T(\vec{\rho}) e^{-ik\vec{\Omega}\vec{\rho}} A(\vec{\theta}) e^{-i\gamma(\theta, E)} e^{ik\vec{\theta}\vec{\rho}_B} \right|^2. \quad (4.27)$$

Wir setzen nun die Transmissionsfunktion des schwachen Phasenobjekts aus Gl. (4.19) ein und nehmen aus dem Betragsquadrat nur die Terme linearer Ordnung in  $\varphi(\vec{\rho})$  mit. Außerdem verwenden wir, daß der Linsenfehlerterm  $\gamma(\theta, E)$  punktsymmetrisch im Winkel  $\theta$  und außerdem  $\varphi(\vec{\rho})$  reell ist. Für die Energieverteilung verwenden wir eine Gaußverteilung mit der Halbwertsbreite  $\delta E$

$$p(E) = \frac{\sqrt{\ln(2)}}{\sqrt{\pi} (\delta E/2)} e^{-\ln 2 \left(\frac{E}{\delta E/2}\right)^2}. \quad (4.28)$$

In diesem Fall können wir die Energieintegration analytisch ausführen. Realistischer wäre die Verwendung einer asymmetrischen Verteilung, die dem oberhalb der Austrittsenergie des elektronenemittierenden Materials liegenden Teil der Fermi-Dirac-Verteilung entspräche, doch hat diese Asymmetrie auf die Intensitätsverteilung nur geringe Auswirkungen [70]. Definieren wir nun den Kontrast wie in der Lichtoptik als

$$C(\vec{\rho}_B) = \frac{j_B(\vec{\rho}_B) - j_0}{j_0}, \quad (4.29)$$

wobei  $j_B(\vec{\rho}_B)$  die Intensitätsverteilung im Bild mit Probe und  $j_0$  die homogene Intensitätsverteilung im Bild ohne Probe ist, so erhalten wir aus Gl.

(4.27) für diesen im Bild eines schwachen Phasenobjekts

$$C(\vec{\rho}_B) = - \int \text{CTF}_{\text{ges}}(\vec{u}) \hat{\varphi}(u) e^{-i2\pi\vec{u}\vec{\rho}_B} d^2\vec{u} \quad (4.30)$$

mit

$$\begin{aligned} \text{CTF}_{\text{ges}}(\vec{u}) = & -2 \int D(\Theta) A(|\lambda\vec{u} - \vec{\Theta}|) A(\Theta) e^{-\left[ C_s \frac{\delta E}{8\sqrt{\ln 2} E_i} k((\lambda\vec{u} - \vec{\Theta})^2 - \Theta^2) \right]^2} \\ & \sin(\gamma(\lambda\vec{u} - \vec{\Theta}) - \gamma(\vec{\Theta})) d^2\vec{\Theta} \end{aligned} \quad (4.31)$$

und

$$\gamma(\vec{\theta}) = k \left( C_s \frac{\theta^4}{4} - \Delta f \frac{\theta^2}{2} \right). \quad (4.32)$$

$\text{CTF}_{\text{ges}}(\vec{u})$  ist die allgemeinste Form der Übertragungsfunktion für die Abbildung mit dem Phasenkontrastverfahren. Als „Phasenkontrastübertragungsfunktion“ wird in der Literatur aber der Ausdruck

$$\text{CTF}(u) = -2 \sin(\gamma(u\lambda)) = -2 \sin \left( k \left( C_s \frac{(u\lambda)^4}{4} - \Delta f \frac{(u\lambda)^2}{2} \right) \right) \quad (4.33)$$

bezeichnet, der sich im Falle paralleler, monoenergetischer Beleuchtung ergibt. Der Ausdruck für  $\text{CTF}_{\text{ges}}(\vec{u})$  läßt sich im Falle schwach konvergenter Beleuchtung weiter analytisch vereinfachen, wenn man die Exponenten in Gl. (4.31) in erster Ordnung nach  $\Theta$  entwickelt. Im Falle eines defokussierten Kondensors<sup>2</sup> kann man die Winkelverteilung der Beleuchtung durch eine Gaußverteilung

$$D(\vec{\Theta}) = \sqrt{\frac{\ln 2}{\pi \alpha^2}} e^{-\ln 2 \left( \frac{\Theta}{\alpha} \right)^2} \quad (4.34)$$

mit der *halben* Halbwertsbreite  $\alpha$  nähern [43]. Die Übertragungsfunktion für reale Beleuchtungsbedingungen  $\text{CTF}_{\text{ges}}(\vec{u})$  läßt sich dann als Produkt der

---

<sup>2</sup>Bei Phasenkontrastaufnahmen arbeitet man in der Regel mit möglichst paralleler Beleuchtung, das heißt mit defokussiertem Kondensator. Bei der inelastischen Abbildung ist aus Intensitätsgründen die Beleuchtung meist stark konvergent, der Kondensator also eher fokussiert. In diesem Falle wird die Winkelverteilung der einfallenden Elektronen am besten durch eine Top-Hat-Verteilung (Gl. (3.7)) beschrieben. Aus diesem Grund haben wir für die beiden Beleuchtungsarten auch unterschiedliche Bezeichnungen zur Angabe des Konvergenzwinkels (inelastische Abbildung  $\Theta_D$ , Phasenkontrastaufnahmen  $\alpha$ ) gewählt.

„Phasenkontrastübertragungsfunktion“  $\text{CTF}(u)$  und der Einhüllenden  $E_\alpha(u)$  und  $E_c(u)$  schreiben

$$\text{CTF}_{\text{ges}}(u) = E_c(u)E_\alpha(u)\text{CTF}(u). \quad (4.35)$$

Die Einhüllenden

$$E_c(u) = \exp\left(-\pi^2 \left[ C_c \frac{\delta E}{4\sqrt{\ln 2} E_i} \lambda u^2 \right]^2\right), \quad (4.36)$$

und

$$E_\alpha(u) = \exp\left(-\pi^2 \frac{\alpha^2}{\ln 2} [C_s \lambda^2 u^3 - \Delta f u]^2\right) \quad (4.37)$$

beschreiben den Einfluß der partiellen Kohärenz infolge der konvergenten ( $E_\alpha(u)$ ) und nicht monoenergetischen ( $E_c(u)$ ) Beleuchtung [43]. Es bleibt noch hinzuzufügen, daß die Einhüllende  $E_c(u)$  in der Realität nicht nur durch die Energiebreite des einfallenden Elektronenstrahls determiniert ist, sondern auch durch Schwankungen der Linsenströme  $I$  und der Hochspannung  $U$ . Dies kann man berücksichtigen, wenn man  $\delta E$  in Gl. (4.36) ersetzt durch die effektive Energiebreite  $\delta E_{\text{eff}}$

$$\frac{\delta E_{\text{eff}}}{E_i} \rightarrow \sqrt{\left(\frac{\delta E}{E_i}\right)^2 + \left(\frac{\delta U}{U}\right)^2 + \left(2\frac{\delta I}{I}\right)^2}, \quad (4.38)$$

wobei  $\delta I$  und  $\delta U$  die Halbwertsbreiten der Strom- und Spannungsschwankungen sind [70]. Es hat sich eingebürgert, die effektive Energiebreite in Form der sogenannten „Defokusbreite“  $\delta f$  anzugeben. In der Literatur wird die Defokusbreite uneinheitlich z.T. auf die Halbwertsbreite, z.T. auf die Standardabweichung der effektiven Energiebreite bezogen. Gebräuchlicher scheint die Verwendung der Standardabweichung zu sein. Man erhält dann, da wir bis jetzt Halbwertsbreiten verwendet haben

$$\delta f = C_c \frac{1}{2\sqrt{2 \ln 2}} \left( \frac{\delta E_{\text{eff}}}{E_i} \right). \quad (4.39)$$

Die chromatische Einhüllende lautet dann

$$E_c(u) = e^{-\frac{1}{2}\pi^2 (\delta f \lambda u^2)^2}. \quad (4.40)$$

Für die Fouriertransformierte des Kontrastes im Phasenkontrastbild ergibt sich aus Gl. (4.30) der Ausdruck

$$\hat{C}(\vec{u}) = \lambda f_a(\vec{u}) \underbrace{E_c(u) E_\alpha(u) \text{CTF}(\vec{u})}_{\text{CTF}_{\text{ges}(u)}} \hat{n}_a(\vec{u}), \quad (4.41)$$

wobei wir für die Fouriertransformierte der Objektphasenschiebung  $\hat{\varphi}(u)$  die Formulierung aus Gl. (4.22) verwendet haben, welche gilt, wenn die Probe nur aus Atomen des Elements  $a$  zusammengesetzt ist.

Die Struktur dieses Ausdrucks entspricht genau der, die wir in Gl. (2.10) für die fouriertransformierte Intensität im Elementverteilungsbild gefunden hatten. Im Gegensatz zum inelastischen Fall beschreibt die Übertragungsfunktion  $\text{CTF}_{\text{ges}}$  aber nur den Einfluß des Abbildungsvorgangs im Mikroskop. Der Einfluß des Streuprozesses kann im elastischen Fall zusätzlich in Form des Atomformfaktors  $f_a(\vec{u})$  absepariert werden. Im inelastischen Fall ist der Streuprozess dagegen integraler Bestandteil der Übertragungsfunktion. Es sei hier darauf hingewiesen, daß die Struktur der Ausdrücke für die Intensität im Elementverteilungsbild und den Kontrast in einer Phasenkontrastaufnahme nur im Falle einer einelementigen Probe übereinstimmen. Besteht die Probe aus mehreren Elementen, wird im Elementverteilungsbild nur die Verteilung einer Atomsorte abgebildet. Die elastische Abbildung gibt dagegen die gesamte mit den jeweiligen Atomformfaktoren gewichtete Atomverteilung wieder. Das Diffraktogramm einer Phasenkontrastaufnahme

$$|\hat{C}(\vec{u})|^2 = \lambda^2 N |\text{CTF}_{\text{ges}(u)}|^2 |f_a(u)|^2 S(\vec{u}) \quad (4.42)$$

ist wieder proportional zum Zwei-Teilchen-Strukturfaktor  $S(\vec{u})$ . Daher können wir neben den vorher besprochenen Beugungsbildern auch Phasenkontrastaufnahmen als Referenz für die Bestimmung unserer inelastischen Übertragungsfunktion nutzen.

# Kapitel 5

## Experimente zur elastischen Kontrastübertragungsfunktion

Die Beschäftigung mit elastisch gefilterten Phasenkontrastaufnahmen erfüllt an dieser Stelle zwei Funktionen:

Da die Zusammenhänge zwischen Struktur und Bildinformation für Elementverteilungsbilder, Gl. (2.10), und elastisch gefilterte Phasenkontrastaufnahmen, Gl. (4.41), ähnlich sind, soll hier einerseits die Methodik für die Bestimmung der inelastischen Übertragungsfunktion entwickelt werden. Die elastischen Aufnahmen sind wegen der meist besseren Signal-Rausch-Verhältnisse leichter handhabbar. Von Möbus [53, 55] wurde bereits gezeigt, daß eine Bestimmung der CTF oder einzelner Einhüllender der CTF mit Hilfe der Thonschen Diffraktogrammmethodik möglich ist.

Andererseits kann der Intensitätsverlauf in Diffraktogrammen von Phasenkontrastaufnahmen als Referenz für die Messung der inelastischen Übertragungsfunktion verwendet werden.

## 5.1 Experimentelle Gegebenheiten

Im Folgenden werden die für die Experimente verwendeten Geräte angegeben und die Herstellung der Proben beschrieben. Die hierzu gemachten Angaben gelten sowohl für die in diesem Kapitel geschilderten Experimente zur Phasenkontrastübertragungsfunktion wie auch für die im folgenden Kapitel behandelte Bestimmung der inelastischen Übertragungsfunktion.

### 5.1.1 Herstellung der Proben

Für unsere Experimente zur Bestimmung der Übertragungsfunktionen wurden amorphe Folien von Kohlenstoff, Silizium und Germanium verwendet. Von den Elementen der vierten Hauptgruppe erhält man Folien mit amorphen Eigenschaften leicht in einer Hochvakuumbedampfungsanlage. Die Folien wurden jeweils bei einem Druck von  $10^{-3}$  Pa auf mit Ethanol gereinigte Glasobjektträger aufgedampft und anschließend in destilliertem Wasser auf feinmaschige Kupferträgernetzchen abgeflottet. Zur Variation der Probendicke wurden der Abstand zwischen Aufdampfmaterial und Glasobjektträger sowie die Menge des verdampften Materials variiert.

Als Material zur Herstellung der Kohlenstofffolien verwendeten wir Kohleelektroden, durch die ein hoher Strom geleitet wurde und gingen vor, wie in [68] für die Herstellung von Kohlenstoffträgerfolien beschrieben. Für die Herstellung der Silizium- und Germaniumfolien wurden jeweils kleine Kristallbruchstücke aus einem aufheizbaren Wolframschiffchen abgedampft. Es wurde kein Pulver verwendet, da die beiden Materialien in Pulverform schon lange vor Erreichen der Schmelztemperatur aus dem Wolframschiffchen „springen“.

Vor dem Aufdampfen von Germanium und Silizium wurde der Objektträger mit dem wasserlöslichen „Graham’schen Salz“ (Natriumpolyphosphat) vorbedampft, da sich die sehr dünnen Folien sonst beim Abflotten nur schlecht vom Objektträger lösten. Mittels energiedispersiver Röntgenanalyse (EDX) wurde sichergestellt, daß sich nicht auch Wolfram aus dem aufgeheizten

Schiffchen auf den Objektträgern niedergeschlagen hatte.

Nach dem Abflotten auf Kupfernetzchen wurde ein Teil der Folien zu Eichzwecken zusätzlich mit Gold bedampft. Mit einem zweiten Kupfernetzchen wurde ein Teil der Probe abgeschattet, um auch goldfreie Bereiche zu erhalten. Die verdampfte Goldmenge und der Abstand vom Objektträger zum Wolframschiffchen wurde so gewählt, daß sich auf den Folien jeweils eine Verteilung von zwei bis drei Nanometer großen Goldinseln bildete [33].

### 5.1.2 Die Probendicke

Eine Beschreibung der Bildintensität mit Hilfe von Übertragungsfunktionen ist sowohl für inelastische wie auch für Phasenkontrastaufnahmen nur für sehr dünne Proben möglich. Ziel der Probenherstellung war es daher, möglichst dünne Folien zu erhalten. Ein kritischer Schritt ist dabei das Abflotten der Proben von den Glasobjektträgern. Bei zu dünnen Proben löst sich der aufgedampfte Film nicht vom Objektträger oder „zerbröselte“ beim Abflotten auf der Wasseroberfläche und kann nicht auf ein Kupfernetzchen übertragen werden. Beim Silizium gelang es uns nicht, Folien mit weniger als ca. 12 nm Dicke herzustellen. Beim Germanium lag die Untergrenze bei ca. 5 nm, beim Kohlenstoff lag die minimale Dicke noch darunter. Zur Dickenbestimmung wurden zwei Verfahren verwendet:

Bei der Transmissionsmessung [70] vergleicht man die durch die Probe und die Aperturblende mit dem Halbwinkel  $\theta_A$  transmittierte Intensität  $j_t(\theta_A)$  mit der Ausgangsintensität  $j_0$ . Die Ausgangsintensität wird aus der Intensität in der Bildebene nach Entfernen der Probe aus dem Strahlengang gemessen. Für nicht zu dicke amorphe Proben fällt die transmittierte Intensität exponentiell mit linear zunehmender Probendicke  $t$  ab

$$\frac{j_t(\theta_A)}{j_0} = e^{-t/x_k(\theta_A)}. \quad (5.1)$$

Formeln zu einer näherungsweisen Bestimmung der sogenannten „Kontrastdicke“  $x_k(\theta_A)$  findet man bei Reimer [70].

Das  $t/\Lambda$ -Verfahren [16] beruht darauf, daß der Anteil der elastisch gestreuten Elektronen  $j_e(\theta_A)$  an der gesamten transmittierten Intensität  $j_t(\theta_A)$  exponentiell abnimmt, wenn die Probendicke linear zunimmt

$$\frac{j_e(\theta_A)}{j_t(\theta_A)} = e^{-t/\Lambda(\theta_A)}. \quad (5.2)$$

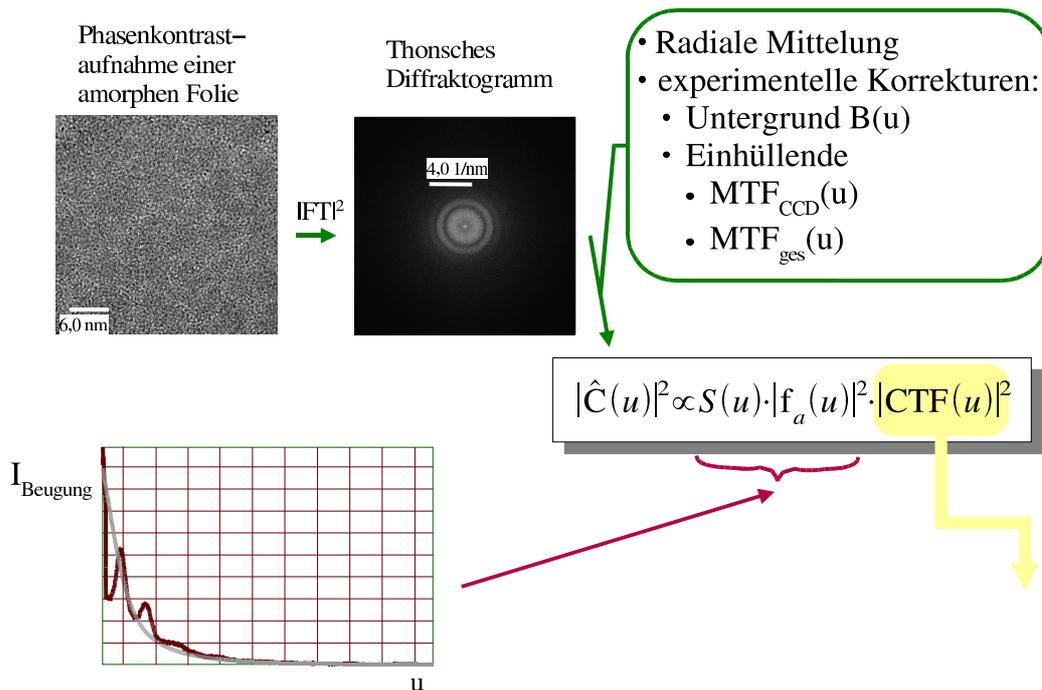
Einen Wert für die mittlere freie Weglänge  $\Lambda(\theta_A)$  bezüglich aller inelastischen Streuprozesse erhält man z.B. mit der von Egerton und Chang [16] angegebenen Faustformel. Die Genauigkeit beider Verfahren sind mit  $\pm(20 - 30)\%$  anzugeben.

### 5.1.3 Die verwendeten Mikroskope

Unsere im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Messungen wurden hauptsächlich an einem Leo 902 mit Castaing-Henry-Filter bei einer Beschleunigungsspannung von 80 kV und an einem Jeol 3010, welches mit einem Gatan Imaging Filter ausgerüstet ist, bei einer Beschleunigungsspannung von 300 kV durchgeführt. Die Geräte wurden jeweils mit ihrer Maximalspannung betrieben. Wir können uns daher im Folgenden zur Identifikation des verwendeten Gerätes auf die Angabe der Beschleunigungsspannung beschränken. Da die von uns aufgenommenen Bilder später digital weiterverarbeitet werden sollten, wurden ausschließlich die an beiden Geräten vorhandenen Slow-Scan CCD-Kameras zur Aufnahme verwendet. Beide Kameras haben 1024x1024 Bildpixel mit einer Abmessung von jeweils  $24 \times 24 \mu\text{m}^2$ , die wahlweise auch zusammenschaltet werden können (Binning). Die Kamera am Leo 902 ist mit einem YAG-Szintillator ausgestattet, während die Kamera am Jeol 3010 wegen der höheren Beschleunigungsspannung Phosphor als Szintillatormaterial nutzt.

## 5.2 Bestimmung der Phasenkontrastübertragungsfunktion

Das grundsätzliche Vorgehen zur Bestimmung der Phasenkontrastübertragungsfunktion ist in Abb. 5.1 zusammengefaßt. Das Diffraktogramm der



**Abbildung 5.1:** Prinzip der Bestimmung der Phasenkontrastübertragungsfunktion aus den Diffraktogrammen amorpher Folien unter Nutzung der Intensität im elastisch gefilterten Beugungsdiagramm. Die im Kasten aufgelisteten experimentellen Korrekturen werden im folgenden Abschnitt ausführlich diskutiert.

Phasenkontrastaufnahme einer dünnen amorphen Folie wird mit einer numerischen Fast-Fourier-Transformation berechnet. Wegen der Isotropie des Strukturfaktors der amorphen Folie und der CTF kann zur Verbesserung des Signal-Rausch-Verhältnisses eine radiale Mittelung durchgeführt werden. Bevor zur Bestimmung der CTF gemäß Gl. (4.42) durch die Intensität im Beugungsbild dividiert wird, müssen noch einige experimentelle Korrekturen der Diffraktogrammintensität vorgenommen werden. Diese Korrekturen

werden im folgenden ausführlich besprochen.

### 5.2.1 Zusätzliche experimentelle Einflüsse in Diffraktogrammen von Phasenkontrastabbildungen

In die bisher abgeleiteten Beziehungen fanden einige experimentelle Gegebenheiten noch keinen Eingang. So wurden insbesondere der Detektionsprozeß, aber auch experimentelle Unzulänglichkeiten, wie Vibrationen, Probendrift oder eine Neigung der verwendeten Folie vernachlässigt. Letztere führen vor allem zu einer Dämpfung der radial gemittelten Diffraktogrammintensität bei höheren Raumfrequenzen. Ihr Einfluß kann daher durch Hüllkurven berücksichtigt werden. Daneben führen einige dieser experimentellen Unzulänglichkeiten wegen ihrer Anisotropie auch zu einem Untergrund in der radial gemittelten Diffraktogrammintensität, der jedoch bei experimenteller Sorgfalt so klein gehalten werden kann, daß er vernachlässigbar ist. Der Einfluß der für die Aufnahmen verwendeten CCD-Kameras läßt sich durch eine Modulationsübertragungsfunktion beschreiben.

Daneben führt die Zählstatistik, das sogenannte Schrotrauschen, bei der Detektion der Elektronen zu einem Untergrund  $B(u)$  in den radial gemittelten Diffraktogrammen. Verwendet man für die Einhüllende durch experimentelle Unzulänglichkeiten wie Vibration, Probendrift und Folienneigung die Bezeichnung  $MTF_{\text{err}}(u)$  und für die der CCD-Kamera  $MTF_{\text{CCD}}(u)$ , so erhält man als vollständigen Ausdruck für die Intensität im rotationsgemittelten Diffraktogramm der elastisch gefilterten Phasenkontrastaufnahme einer dünnen amorphen Folie [54]

$$\begin{aligned}
 |\hat{C}_{\text{exp}}(u)|^2 &= \left( B(u) + Y \cdot MTF_{\text{CCD}}(u)^2 \right. \\
 &\quad \left. \cdot MTF_{\text{err}}(u)^2 \cdot |\hat{C}_{\text{theo}}(u)|^2 \right) \\
 |\hat{C}_{\text{theo}}(u)|^2 &= N \lambda^2 |f_a(u)|^2 \cdot S(u) \cdot \text{CTF}_{\text{ges}}(u)^2 \\
 \text{CTF}_{\text{ges}}(u)^2 &= E_c(u)^2 E_\alpha(u)^2 \text{CTF}(u)^2 \\
 \text{CTF}(u)^2 &= 4 \sin[\gamma(u\lambda)]^2.
 \end{aligned} \tag{5.3}$$

Dabei wird die Gültigkeit der in Abschnitt 4.2.1 diskutierten schwachen Phasenobjektnäherung sowie eine schwach konvergente Beleuchtung vorausgesetzt, so daß die Beschreibung der partiellen räumlichen Kohärenz durch  $E_\alpha(u)$  zulässig ist.  $Y$  ist ein Skalierungsfaktor.

Für die Bestimmung von  $\text{CTF}(u)$  bei aus dem Beugungsbild bekanntem  $S(u)$  müssen jeweils alle anderen in Gl. (5.3) vorkommenden Größen bekannt sein. Dabei ist es nicht nötig, alle Größen, insbesondere die Einhüllenden, einzeln zu kennen. Wir können Gl. (5.3) in die einfachere Form

$$|\hat{C}_{\text{exp}}(u)|^2 = \left( B(u) + Y \cdot \text{MTF}_{\text{CCD}}(u) \right)^2 \cdot \text{MTF}_{\text{ges}}(u)^2 \cdot |f_a(u)|^2 \cdot S(u) \cdot \text{CTF}(u)^2 \quad (5.4)$$

umschreiben. Die „gesamte Modulationsübertragungsfunktion“

$$\text{MTF}_{\text{ges}}(u)^2 = N \lambda^2 \text{MTF}_{\text{err}}(u)^2 \cdot E_c(u)^2 \cdot E_\alpha(u)^2 \quad (5.5)$$

enthält damit alle in Gl. (5.3) vorkommenden Einhüllenden mit Ausnahme von  $\text{MTF}_{\text{CCD}}$ . Diese wurde aus drei Gründen nicht mit in die  $\text{MTF}_{\text{ges}}$  einbezogen. Erstens ist sie als einzige der Einhüllenden von der Vergrößerung abhängig. Zweitens gibt es Methoden, sie unabhängig zu bestimmen. Schließlich ist  $\text{MTF}_{\text{CCD}}$  die einzige unter den hier berücksichtigten Einhüllenden, die auch bei der Bestimmung der inelastischen Übertragungsfunktion von Bedeutung ist. In den folgenden Abschnitten wird die Bestimmung der Einhüllenden  $\text{MTF}_{\text{CCD}}$  und  $\text{MTF}_{\text{ges}}$  sowie des Untergrundbeitrages  $B(u)$  besprochen.

### **Bestimmung der MTF der CCD-Kamera**

In den zur Aufnahme verwendeten CCD-Kameras werden die Elektronen nicht direkt detektiert, sondern fallen zunächst auf einen Szintillator, wo sie in einem gewissen Volumen durch unelastische Streuprozesse Photonen auslösen. Diese werden über eine Faseroptik auf einen CCD-Chip fokussiert, in welchem sie Elektronen-Loch-Paare erzeugen. Durch den Aufbau des CCD-Chips werden die erzeugten Ladungsträger bis zum nächsten Auslesevorgang

gesammelt. Der CCD-Chip ist in Pixel aufgeteilt. Idealerweise ist die in einem Pixel registrierte Intensität proportional zur auf die entsprechende Szintillatorfläche einfallende Elektronenintensität. Von einem einzelnen Elektron werden im Szintillator Photonen aber in einem Bereich ausgelöst, dessen Projektion auf die Chip-Oberfläche in der Regel größer ist als die Fläche eines Pixels. Ein einzelnes auf den Szintillator treffendes Elektron führt daher zwar zu einem Intensitätsmaximum in einem Pixel, es wird jedoch auch Intensität in dessen Nachbarn registriert. Dieses als „Übersprechen“ bekannte Phänomen führt zu einer Dämpfung der Fouriertransformierten der detektierten Intensität bei hohen Raumfrequenzen.

Bei den Verfahren zur Bestimmung der MTF einer CCD-Kamera unterscheidet man zwischen stochastischen und deterministischen Methoden. Bei den deterministischen Methoden beleuchtet man die Kamera mit einer bekannten Intensitätsverteilung und erhält  $MTF_{\text{CCD}}$  dann aus dem Vergleich dieser bekannten Intensitätsverteilung mit dem von der Kamera detektierten Signal. Bei der sogenannten Kantenmethode (z.B. [11, 84]) wird dazu die Verschmierung einer auf die CCD-Kamera abgebildeten Intensitätsstufe verwendet.

Die sogenannten stochastischen Methoden (z.B. [75]) machen von der Annahme Gebrauch, daß bei homogen beleuchtetem und idealem, das heißt bei einem einfallenden Elektron nur in jeweils genau einen CCD-Pixel Photonen emittierenden Szintillator, die Anzahlen der in zwei verschiedenen Pixeln registrierten Elektronen unabhängige poissonverteilte Zufallsvariablen sind. Das entsprechende Fourierspektrum entspricht dann näherungsweise dem Spektrum von weißem Rauschen, das heißt, der Betrag der Fouriertransformierten ist für alle Raumfrequenzen konstant. Beim realen Szintillator ist durch das Übersprechen in benachbarte Pixel die Intensität in benachbarten Pixeln jedoch korreliert, was zur Dämpfung des Spektrums bei hohen Raumfrequenzen führt. Die Dämpfungsfunktion des Spektrums liefert im Rahmen dieser Überlegungen sofort  $MTF_{\text{CCD}}$ .

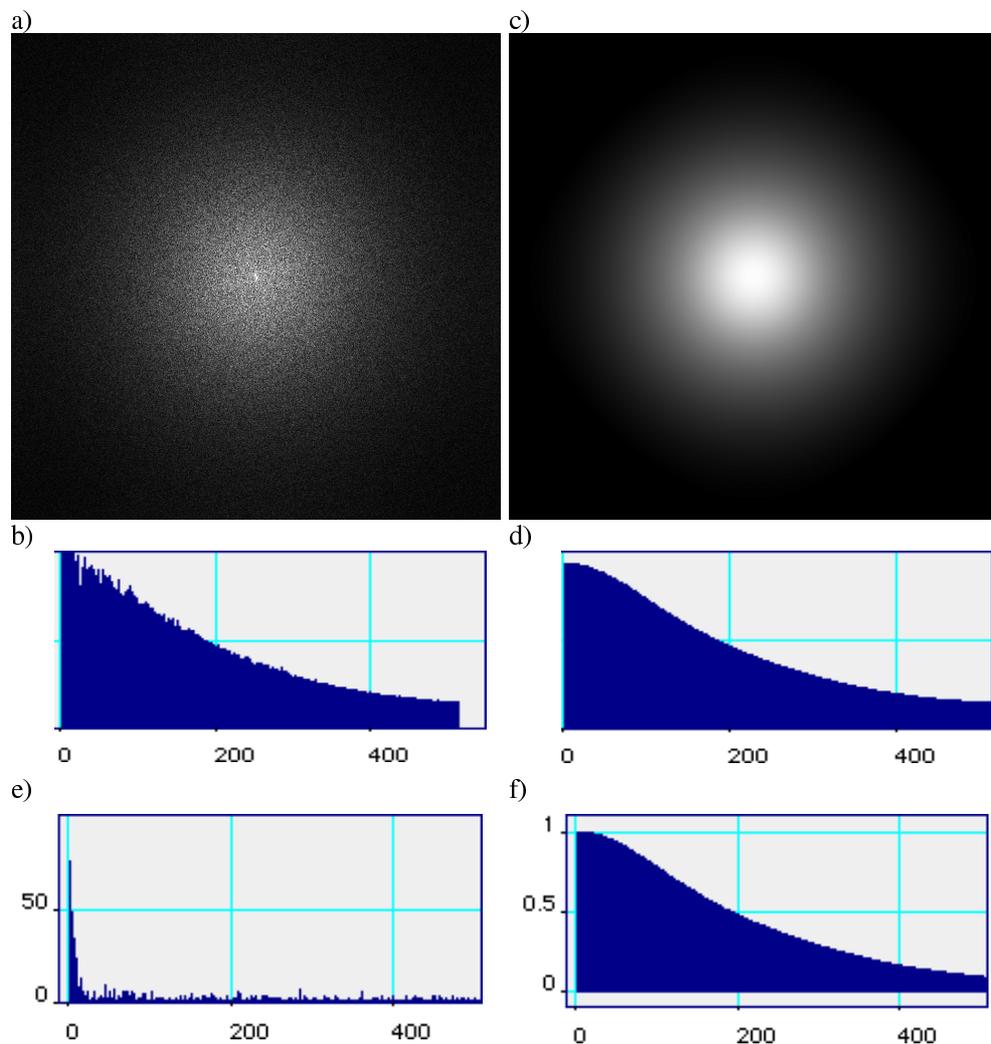
Hülk [32] hat für drei verschiedene CCD-Kameras, die an Mikroskopen mit Beschleunigungsspannungen zwischen 80 und 120 kV montiert waren, ge-

zeigt, daß sich eine gute Übereinstimmung zwischen deterministisch und stochastisch bestimmten Modulationsübertragungsfunktionen ergibt. Eine MTF-Bestimmung mit der stochastischen Methode ist wesentlich einfacher durchzuführen, als mit der deterministischen. Deshalb wurden die in dieser Arbeit zur Auswertung verwendeten Kamera-MTFs nach dem Verfahren von Hülk und Daberkov [31] bestimmt, welches eine Modifikation der de'Ruijterschen Methode darstellt. Die Weiterentwicklung dieses Verfahrens besteht darin, daß es die Bestimmung einer aliasingkorrigierten [47]  $MTF_{\text{CCD}}$  ermöglicht. Das Vorgehen und eine Fehlerabschätzung bei diesem Verfahren ist in Abbildung 5.2 gegeben.

Neuere Arbeiten von Meyer und Kirkland [51, 52] zeigen jedoch sowohl theoretisch als auch experimentell, daß es einen prinzipiellen Unterschied zwischen der Übertragung von Signal und Rauschen bei den zur Elektronendetektion verwendeten CCD-Kameras gibt. Deshalb muß zwischen einer  $NTF_{\text{CCD}}$  (Noise Transfer Function), die sich als Ergebnis bei Anwendung der stochastischen Methode ergibt und der tatsächlichen  $MTF_{\text{CCD}}$ , welche die Signalübertragung beschreibt und die nur mit einer deterministischen Methode bestimmt werden kann, unterschieden werden.

Die von Meyer bestimmten NTFs sind bei der Nyquistfrequenz des Detektors zum Teil um den Faktor vier höher als die entsprechenden MTFs. Solche großen Differenzen ergeben sich vor allem für höhere Beschleunigungsspannungen ( $\geq 200\text{kV}$ ), wodurch die in [32] für Beschleunigungsspannungen um  $100\text{kV}$  gefundene gute Übereinstimmung zwischen den Ergebnissen von stochastischer und deterministischer Methode erklärbar ist. Die von uns für das mit  $80\text{ kV}$  betriebene Leo 902 bestimmte  $MTF_{\text{CCD}}$  wird daher durch die Erkenntnisse Meyers nicht berührt, zumal diese Kamera von Hülk zusätzlich mit der deterministischen Kanten-Methode charakterisiert wurde.

Anders sieht dies für das bei  $300\text{ kV}$  betriebene Jeol 3010 aus, insbesondere auch deshalb, weil die Rechnungen Meyers [51] für Phosphorzintillatoren besonders große Unterschiede zwischen Kamera-MTF und -NTF ergeben. Es ist jedoch wegen der Konstruktion des an das Jeol angeflanschten



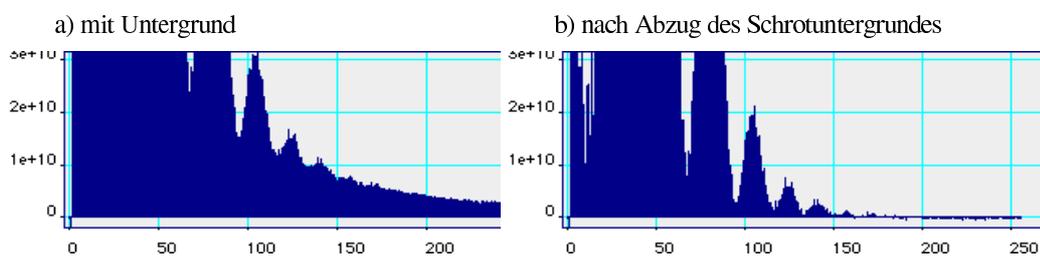
**Abbildung 5.2:** Bestimmung von  $MTF_{\text{CCD}}$  für die CCD-Kamera (Gatan MSC 794IF mit Phosphor-Detektor) am Jeol 3010 mit Hilfe des Verfahrens nach Hülk und Daberkov [31]. Mit mehreren Gauß-Funktionen wird eine Modell- $MTF_{\text{CCD}}$  konstruiert, und die sich daraus ergebende  $MTF_{\text{CCD}}$  mit Einfluß von Aliasing berechnet (c, d). Durch Variation der Parameter der Gauß-Funktionen wird die simulierte  $MTF_{\text{CCD}}$  an den Betrag eines Fouriertransformierten Leerbildes (a, b) angepaßt. Teilabbildung f) zeigt das Ergebnis für  $MTF_{\text{CCD}}$ , welches sich ergibt, wenn ohne Binning gearbeitet wird und e) die nach dem Anpassungsprozess verbleibenden prozentualen Abweichungen in einem Linescan. Die Raumfrequenz ist jeweils in Bildpixeln angegeben. 512 Pixel auf der Raumfrequenzachse entsprechen der Nyquistfrequenz.

GIFs, in dem sich die CCD-Kamera befindet, nicht ohne weiteres möglich, die  $MTF_{\text{CCD}}$  auf deterministische Weise zu bestimmen. Wir haben daher auch für die Auswertung der am Jeol 3010 aufgenommenen Bilder die nach dem Verfahren von Hülk und Daberkov [31] bestimmte  $MTF_{\text{CCD}}$  verwendet, und haben durch die Wahl der experimentellen Parameter dafür Sorge getragen, daß sich die uns interessierende Intensität jeweils in einem Diffraktogrammbereich befand, in denen die Unterschiede zwischen  $MTF_{\text{CCD}}$  und  $NTF_{\text{CCD}}$  keine große Rolle spielen: Die größten Differenzen zwischen  $MTF$  und  $NTF$  treten gemäß Meyer in der Gegend der Nyquist-Frequenz des Detektors auf. Die von uns ausgewerteten Diffraktogrammintensitäten wurden fast ausnahmslos aus Bildern entnommen, bei denen durch Zusammenfassung von Pixeln (Binning) die virtuelle Pixelgröße viermal so groß war wie die tatsächliche CCD-Pixelgröße. Dies erhöht die  $MTF$  des Kamerasystems. Wir haben die Vergrößerungen so gewählt, daß der Bereich der Diffraktogramme, in denen sich Intensität fand, in der Regel weit unterhalb der Nyquist-Frequenz des Detektors endete. Dies gilt insbesondere für die später zu besprechende Intensität in Diffraktogrammen inelastisch gefilterter Bilder. Fehler bei der Bestimmung der  $MTF_{\text{CCD}}$  können für elastische Bilder zum Teil durch die im nächsten Abschnitt besprochene  $MTF_{\text{ges}}$  ausgeglichen werden. Aufgrund dieser Argumente kann davon ausgegangen werden, daß die von uns für das Jeol 3010 bestimmte  $MTF_{\text{CCD}}$  im Rahmen der Genauigkeit der anderen Größen und für den Bereich im Diffraktogramm, dessen Intensität im Folgenden für die Auswertung verwendet wird, eine sehr gute Näherung der tatsächlichen  $MTF_{\text{CCD}}$  darstellt.

Grundsätzliche Aussagen und Erkenntnisse wurden trotzdem, insbesondere was die später diskutierten Intensitäten in inelastischen Diffraktogrammen angeht, immer am Leo 902 überprüft, bei dem die Gültigkeit der von uns verwendeten  $MTF_{\text{CCD}}$  aus den oben genannten Gründen nicht zweifelhaft ist.

## Der Untergrund $B(u)$

Im Gegensatz zu dem in Gl. (4.42) theoretisch vorhergesagten Verlauf der Intensität in Diffraktogrammen von Phasenkontrastaufnahmen schwacher Phasenobjekte finden sich in radial gemittelten Diffraktogrammen experimenteller Aufnahmen keine Nullstellen sondern lediglich Intensitätsminima. Die durch die CTF modulierte Intensität liegt, wie in Abb. 5.3 erkennbar, auf einem hohen Untergrund. Dieser Untergrund ist hauptsächlich auf die Zähl-



**Abbildung 5.3:** Radial gemitteltes Diffraktogramm einer Kohlenstoffolie. Man erkennt in a) deutlich den Untergrundbeitrag  $B(u)$ . Durch Abzug der Intensität des skalierten radial gemittelten Diffraktogramms eines homogen ausgeleuchteten Bildes ohne Objekt kann dieser nahezu vollständig entfernt werden.

statistik bei der Detektion der Elektronen zurückzuführen.

Bei Möbus [53] wird dieser Untergrund durch eine Interpolation der Minima beseitigt. Dies setzt jedoch schon die Gültigkeit der Theorie und die Gültigkeit der WPO-Näherung voraus, da hier verwendet wird, daß die Minima wirklich Nullstellen sind. Wir diskutieren im Folgenden eine Untergrundsubtraktion, bei der diese Annahme nicht nötig ist. Nur der Untergrundbeitrag, der sich durch das Poisson-Rauschen des im Detektor registrierten Signals ergibt, wird als „störender Untergrund“ verstanden und abgezogen. Alle anderen Untergrundbeiträge sollen erhalten bleiben, da sie zum durch den Abbildungsprozeß erzeugten Signal gehören. Dies ermöglicht eine Kontrolle, ob die Minima wirklich Nullstellen sind, und damit eine Überprüfung der zugrundeliegenden Theorie. Außerdem erhält man so auch den Untergrund im Bereich vor der ersten Nullstelle, wo eine einfache Extrapolation der Minima sehr ungenaue Ergebnisse liefern würde.

Eine exakte Untergrundabzugsmethode ergibt sich sofort aus elementaren statistischen Überlegungen. Sei  $s(\vec{\rho})$  der Erwartungswert der auf den Detektor fallenden Intensität und  $\hat{s}(\vec{u})$  die Fouriertransformierte des Erwartungswertes. Für Erwartungswert  $E(\vec{u})$  und Varianz  $V(\vec{u})$  der Fouriertransformierten eines vom Detektor registrierten Bildes erhalten wir dann nach Meyer [51]

$$\begin{aligned} E(\vec{u}) &= \hat{s}(\vec{u}) \cdot \text{MTF}_{\text{CCD}}(u) \\ V(\vec{u}) &= \hat{s}(0) \cdot \text{NTF}_{\text{CCD}}(u), \end{aligned} \quad (5.6)$$

unter der Voraussetzung, daß die Anzahl der in einzelnen Detektorpixeln registrierten Elektronen poissonverteilt ist. Die Intensität unter einem bestimmten Azimuth in einem einzelnen stigmatischen Diffraktogramm einer isotropen Probe läßt sich somit schreiben als

$$|\hat{C}_{\text{exp}}(u)|^2 = |E(u) + N(u)|^2, \quad (5.7)$$

wobei  $N(u)$  die Rauschkomponente in der Fouriertransformierten ist. Deren Erwartungswert  $\langle N(u) \rangle$  ist null, während für ihre Varianz

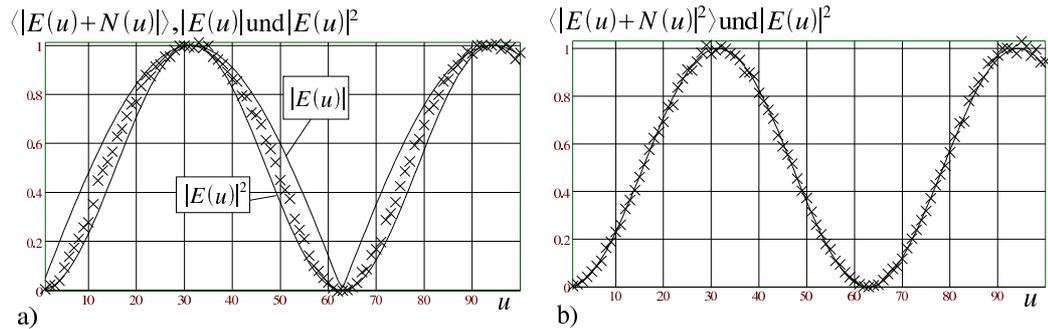
$$\text{var}\{N(u)\} = \langle |N(u)|^2 \rangle = V(u) \quad (5.8)$$

gilt. Die Varianz des Erwartungswertes  $E(u)$  ist natürlich null. Eine Radiale Mittelung entspricht nun einer Mittelung über mehrere Experimente. Wir erhalten für das radial gemittelte Profil des Diffraktogramms

$$\begin{aligned} \langle |\hat{C}_{\text{exp}}(u)|^2 \rangle &= \langle |E(u) + N(u)|^2 \rangle \\ &= \langle \text{Re}\{E(u) + N(u)\}^2 \rangle + \langle \text{Im}\{E(u) + N(u)\}^2 \rangle \\ &= \text{Re}\{E(u)\}^2 + \langle \text{Re}\{N(u)\}^2 \rangle \\ &\quad + \text{Im}\{E(u)\}^2 + \langle \text{Im}\{N(u)\}^2 \rangle \\ &= |E(u)|^2 + \langle |N(u)|^2 \rangle \\ &= |E(u)|^2 + V(u), \end{aligned} \quad (5.9)$$

da  $\langle E(u)N(u) \rangle = 0$ . Man kann also den Untergrund, der sich in einem radial gemittelten Diffraktogramm infolge der Zählstatistik bei der Detektion

ergibt, vollständig vom Erwartungswert abtrennen. Dies funktioniert jedoch nur, wenn man die radiale Mittelung tatsächlich über das Betragsquadrat der Fouriertransformierten ausführt. Mittelt man dagegen über den Betrag der Fouriertransformierten wie in [54], wird das Signal verfälscht und eine Subtraktion des Untergrundes ist nicht möglich, wie in Abb. 5.4 verdeutlicht.



**Abbildung 5.4:** Demonstration der Fehler durch radiale Mittelung des Betrages anstelle des Betragsquadrates. In a) wurde der Mittelwert des Betrages, in b) der Mittelwert des Betragsquadrates eines verrauschten sinusförmigen Signals berechnet und der Untergrund durch Interpolation der Minima abgezogen (kreuzförmige Markierungen). Zum Vergleich sind als durchgezogene Kurven in a) sowohl der Betrag als auch das Betragsquadrat des sinusförmigen Ausgangssignals eingetragen, in b) lediglich das Betragsquadrat des Signals. In b) erkennt man die gute Übereinstimmung zwischen rekonstruiertem Signal und Ausgangssignal nach der Mittelung. In a) reproduziert dagegen das gemittelte und untergrundkorrigierte Signal nicht das Ausgangssignal.

Nimmt man ein Bild mit homogener Beleuchtung des Detektors auf, so ist in dessen Fouriertransformierter  $E(u) = 0$  für  $u \neq 0$ . Aus der radial gemittelten Diffraktogrammintensität eines solchen Leerbildes erhält man somit direkt  $V(u)$ .  $V(u)$  ist gemäß Gl. (5.6) proportional zur Gesamtintensität im Ausgangsbild. Daher muß man zur Untergrundkorrektur entweder ein Leerbild verwenden, welches die gleiche Gesamtintensität hat, wie das zu korrigierende Bild, oder die Intensität im Leerbild mit dem Verhältnis der Intensitäten skalieren. Zur Bestimmung des Untergrundes sollte über mehrere Leerbilder gemittelt werden. Das Ergebnis eines auf diese Weise durchgeführten Untergrundabzugs ist in Abb. 5.3b dokumentiert.

Vor einem möglichen Fehler im Zusammenhang mit dem Untergrundbeitrag

sei an dieser Stelle gewarnt. Möchte man die Intensitäten in zwei verschiedenen radial gemittelten Diffraktogrammen vergleichen, ist es verführerisch, eine Skalierung über den Untergrundbeitrag vorzunehmen. Dies ist jedoch grundlegend falsch, da der Untergrundbeitrag im Diffraktogramm linear mit der im Bild vorhandenen Gesamtintensität anwächst, während der Erwartungswert des Signals im Diffraktogramm mit dem Quadrat der Intensität zunimmt.

Das diskutierte Verfahren zum Untergrundabzug ist ohne Modifikation auch für inelastische Diffraktogramme nutzbar.

### **Bestimmung der $MTF_{\text{ges}}$**

Die in Gl. (5.5) definierte  $MTF_{\text{ges}}$  faßt eine Reihe von Einhüllenden zusammen, die einzeln gar nicht oder nur sehr schwer bestimmbar sind. Geht man davon aus, daß die bisher entwickelte Theorie richtig ist, so erhält man  $MTF_{\text{ges}}$  einfach durch Interpolation der Maxima, nach einer Korrektur des Untergrundes, der Kamera-MTF  $MTF_{\text{CCD}}$ , des Atomformfaktors und des Zwei-Teilchen-Strukturfaktors. Dabei muß allerdings darauf geachtet werden, daß  $MTF_{\text{ges}}$  durch die Defokus-Abhängigkeit von  $E_{\alpha}$  ebenfalls vom Defokus abhängig ist. Um später aus dem Diffraktogramm einer unbekannt Probe den Strukturfaktor zu bestimmen, sollte  $MTF_{\text{ges}}$  auf diese Weise z.B. durch eine auf dem gleichen Netzchen befestigte Referenzfolie mit ungefähr gleicher Dicke bestimmt werden, da in  $MTF_{\text{ges}}$  Terme (wie z.B. Vibrationsterme) enthalten sind, die zeitlichen Schwankungen unterliegen können, bzw. von der Verwendung eines speziellen Probenhalters abhängen können.

Diese Terme spielen aber nur bei der Arbeit an der Informationsgrenze eine nicht vernachlässigbare Rolle. Den größten Anteil an der Dämpfung durch  $MTF_{\text{ges}}$  sollten daher die im Theorieteil abgeleiteten Einhüllenden infolge der nur partiell kohärenten Beleuchtung haben. Dies kann man überprüfen, indem man versucht, die Höhe der Maxima in Diffraktogrammen einer Defokusserie mit den theoretischen Ausdrücken in Gl. (4.36) und Gl. (4.37) für die Einhüllenden  $E_{\alpha}(u)$  und  $E_c(u)$  anzufitten.

Eine einfache Möglichkeit, die Defokusabhängigkeit der Einhüllenden sichtbar zu machen, besteht in der Aufnahme astigmatischer Diffraktogramme, welche man durch Dejustieren der Stigmatoren am Mikroskop erhält. Der zweizählige Astigmatismus führt zu einer Variation des Defokus mit dem Cosinus des Azimuthwinkels. Für den Defokus unter einem bestimmten Azimuthwinkel  $\vartheta$  erhält man so

$$\Delta f(\vartheta) = \frac{\Delta f_{\max} + \Delta f_{\min}}{2} + \frac{\Delta f_{\max} - \Delta f_{\min}}{2} \cos 2(\vartheta - \vartheta_0), \quad (5.10)$$

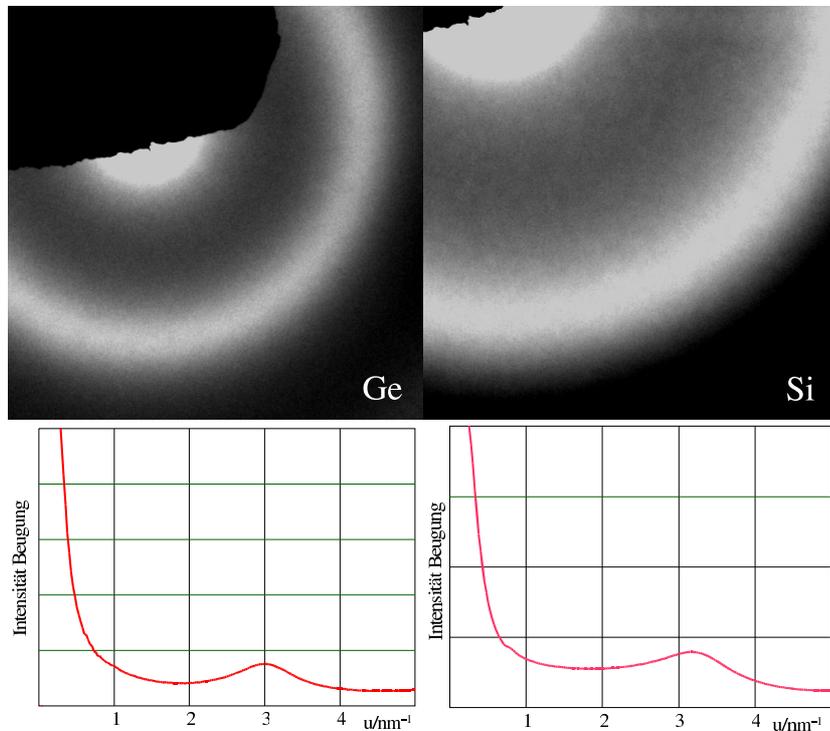
wobei unter dem Winkel  $\vartheta_0$  der maximale Defokus  $\Delta f_{\max}$  erreicht wird. In astigmatischen Diffraktogrammen ist es wegen der Azimuthabhängigkeit nicht möglich, radial zu mitteln. In einem einzelnen radialen Profil unter einem bestimmten Azimuthwinkel ist das Signal daher sehr verrauscht. Man kann sich hier aber mit einer leichten Tiefpaßfilterung [53] vor der Berechnung der Fouriertransformation oder mit einem Mittelwertfilter im Diffraktogramm helfen. Zum Anfitten der Einhüllenden kann jedoch meist auch das unbearbeitete astigmatische Diffraktogramm verwendet werden.

### 5.2.2 Bestimmung des Zwei-Teilchen-Strukturfaktors aus Beugungsdiagrammen

Wie aus Gl. (4.25) ersichtlich, ist die Intensität im elastisch gefilterten Beugungsdiagramm dünner Proben proportional zum Zwei-Teilchen-Strukturfaktor  $S(u)$  und zum Betragsquadrat des Atomformfaktors  $f_a(u)$ . Wegen der Isotropie der amorphen Proben ist auch das Beugungsdiagramm radialsymmetrisch, wir können also auch im Beugungsdiagramm die Intensität radial mitteln. Da im Ausdruck für die Intensität im Diffraktogramm in Gl. (5.4) sowohl der Strukturfaktor als auch der Atomformfaktor vorkommen, kann man das Diffraktogramm nach der Korrektur des Untergrundes  $B(u)$  und der MTF der CCD-Kamera direkt durch die Intensität im Beugungsbild teilen, ohne den Atomformfaktor getrennt kennen zu müssen.

Zur genauen relativen Skalierung der Raumfrequenzen in Diffraktogramm

und Beugungsdiagramm haben wir bei der Arbeit mit sehr hochaufgelösten Diffraktogrammen die (111)-Reflexe von auf die Folien aufgedampften Gold-



**Abbildung 5.5:** Elastisch gefilterte Beugungsbilder von amorphem Germanium (links) und Silizium mit den dazugehörigen radial gemittelten Linescans (unten). Für die Aufnahme des hier gezeigten Silizium-Beugungsbildes wurde eine größere Beugungslänge verwendet, als für die Aufnahme des Beugungsbildes von Germanium.

Inseln verwendet. Man nimmt dann die zu verarbeitenden Bilder und Beugungsbilder in unmittelbarer Nachbarschaft zu einem Probenbereich auf, auf dem sich Goldinseln befinden. Nach der Aufnahme von Bild- und Beugungsbild werden in diesem Bereich Kontrollbilder aufgenommen, anhand derer die Skalierung der zu verarbeitenden Bilder erfolgt. Durch die räumliche Distanz zwischen den Bereichen mit und ohne Gold-Inseln bleibt ein Restfehler, da sich durch eine Neigung der Folie die genaue  $z$ -Position der Folie in den beiden Bereichen unterscheiden kann. Die Reproduzierbarkeit der von uns so vorgenommenen Skalierung war aber auf unter 1% genau, während sich

gegenüber einer Standardkalibrierung Fehler von 5-10% ergeben.

Die Beugungsbilder der amorphen Folien wurden an beiden Geräten ebenfalls mit Hilfe der CCD-Kamera aufgezeichnet. Die Zentrumsbestimmung und radiale Mittelung im Beugungsbild erfolgte anschließend mit Hilfe eines im Anhang B beschriebenen Programms zum größten Teil automatisch. Am Leo 902 besteht außerdem die Möglichkeit, das Beugungsbild mit Hilfe von hinter dem Projektiv angebrachter Scan-Spulen über einen Photomultiplier zu rastern. Diese Technik liefert jedoch im allgemeinen stärker verrauschte Intensitäten, da hier nur ein einzelner Linescan aus dem Beugungsbild verwendet wird.

Abb. 5.5 zeigt die am Jeol 3010 aufgenommenen Beugungsbilder einer 5nm dicken Germanium- und einer 12nm dicken Siliziumfolie und deren radial gemittelten Profile, so wie sie zum Herausrechnen des Strukturanteils aus Phasenkontrastdiffraktogrammen verwendet wurden. Der Profilverlauf im Bereich kleiner Raumfrequenzen wurde in beiden Fällen aus einem anderen Beugungsdiagramm mit größerer Beugungslänge bestimmt und später in die Profile eingefügt. Dieses Vorgehen ist notwendig, da sich der Strahlstopper (große schwarze Fläche in den Beugungsbildern) zum Ausblenden des Beugungsdiagrammzentrums beim Jeol wegen der 20fachen Nachvergrößerung des GIF nicht sehr fein einstellen läßt.

### 5.3 Bestimmung der Abbildungsparameter

Die in Gl. (4.33) theoretisch vorhergesagte Phasenkontrastübertragungsfunktion ist von der sphärischen Aberrationskonstante der Objektivlinse  $C_s$  und dem Defokus  $\Delta f$  abhängig. Dazu kommt die Abhängigkeit der Einhüllenden vom Konvergenzwinkel  $\alpha$  und der Energiebreite  $\delta E$  sowie der chromatischen Aberration  $C_c$ . Zum Vergleich zwischen Theorie und Experiment sind wir daher folgendermaßen vorgegangen: Durch Variation der oben genannten Parameter haben wir für eine Reihe von Experimenten jeweils einen Parametersatz gesucht, für den die experimentell gefundene Intensität im Rah-

men der zuvor entwickelten Theorie möglichst gut reproduziert wird. Dabei wurde natürlich die Gültigkeit der im Theorieteil gemachten Näherungen, insbesondere der des schwachen Phasenobjektes, vorausgesetzt. Die Parameteranpassung erfolgte mit Hilfe eines genetischen Algorithmus, der in einem Teil des Parameterraums auf der Basis eines Abweichungsmaßes die minimale Abweichung zwischen theoretischer Kurve und experimenteller Intensität fand. Anschließend wurden einige der durch Anpassung ermittelten Parameter mit solchen verglichen, die mit unabhängigen Methoden bestimmt wurden. In den experimentellen Intensitäten gefundene Abweichungen zur Näherung des schwachen Phasenobjektes werden im letzten Abschnitt dieses Kapitels diskutiert. Die zur unabhängigen Parameterbestimmung verwendeten Methoden sind im Folgenden kurz skizziert.

### **Energiebreite**

Die Energiebreite  $\delta E$  kann relativ schnell aus der Halbwertsbreite des Zero-Loss-Peaks im Energieverlustspektrum bestimmt werden, wenn sich keine Probe im Strahlengang befindet.

### **Konvergenzwinkel**

Der Konvergenzwinkel  $\alpha$  ist von der Anregung der Kondensorlinsen und der verwendeten Kondensorblende abhängig. Er kann prinzipiell für jede einzelne Aufnahme aus der Halbwertsbreite des Peaks der ungestreuten Elektronen aus einem Beugungsdiagramm ohne Probe bestimmt werden, für welches ansonsten die gleichen Mikroskopeinstellungen wie für das Phasenkontrastbild verwendet werden. Das Verfahren hat den Nachteil, daß bei der Aufnahme des Beugungsbildes Szintillator und CCD-Chip punktuell sehr stark bestrahlt werden. Dies führt zu einem Nachleuchten des Szintillators und auf dem CCD-Chip „gefangenen“ Ladungen an den bestrahlten Stellen, was bei anschließender Aufnahme von Bildern Artefakte zur Folge hat. Außerdem muß das Maximum des Beugungsbildes noch ohne Übersättigung des Detektors

aufgenommen werden können. Dies ist jedoch in der Praxis unter Beibehaltung der Beleuchtungseinstellungen für die Phasenkontrastaufnahme meist nicht möglich. Wir haben deshalb mit konvergenter Beugung an einem Siliziumkristall nach dem in [85] angegebenen Verfahren die Konvergenzwinkel für eine Reihe von Kondensoraperturen und Linsenanregungen bestimmt und daraus dann für eine konkrete Aufnahme das jeweils verwendete  $\alpha$  abgeschätzt.

### Sphärische Aberration

Zur Bestimmung von  $C_s$  gibt es ebenfalls unabhängige Meßverfahren, welche die Verschiebung von Bildbereichen bei gekippter Beleuchtung infolge des sphärischen Linsenfehlers nutzen, z.B. [41]. Verfahren dieser Art führen zu sehr genauen Ergebnissen [80], jedoch ist dazu ein großer Aufwand erforderlich. Kleine Ungenauigkeiten bei der sphärischen Aberrationskonstante machen sich in  $\text{CTF}(u)$  aber wegen der  $u^4$ -Abhängigkeit des  $C_s$ -Terms in  $\gamma(u\lambda)$  (Gl. (4.32)) erst bei sehr hohen Raumfrequenzen bemerkbar. Im Rahmen einer Diplomarbeit [81] sind die  $C_s$ -Werte der von uns verwendeten Mikroskope vor kurzer Zeit mit Hilfe der von Krivanek [42] vorgeschlagenen Methode bestimmt worden. Das Verfahren setzt die Gültigkeit der WPO-Näherung

	Jeol 3010	Leo 902
$C_s^{\text{Hersteller}}/\text{mm}$	0,6	2,2
$C_s^{\text{exp}}/\text{mm}$	$0,62 \pm 0,15$	$3,87 \pm 0,56$

**Tabelle 5.1:** Die für die von uns verwendeten Geräte im Rahmen von [81] bestimmten sphärischen Aberrationskonstanten.

voraus. Es werden ohne vorherige Korrektur der Diffraktogrammintensität die Positionen der Minima und Maxima im experimentellen Diffraktogramm mit den nach Gl. (4.33) theoretisch zu erwartenden Positionen der Minima und Maxima verglichen, woraus man Werte für den Defokus und die sphärische Aberration erhält. Die aus einzelnen Aufnahmen bestimmten  $C_s$ -Werte

sind jedoch sehr ungenau [81] und daher in der Regel unbrauchbar. Der in Tabelle 5.1 angegebene Mittelwert einer großen Anzahl von ausgewerteten Diffraktogrammen lag jedoch für das Jeol 3010 in der Nähe des vom Hersteller angegebenen Wertes. Dagegen konnte beim Leo 902 die Herstellerangabe nicht einmal ansatzweise reproduziert werden. Diese große Abweichung scheint trotz der großen Fehlerbreite des in [81] verwendeten Verfahrens zumindest zum Teil gerätebedingt.

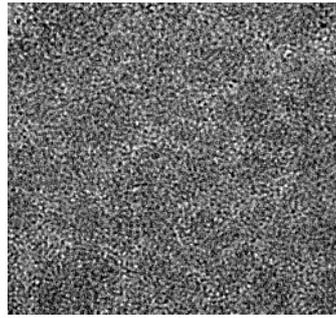
## 5.4 Ergebnisse

Die Versuche zur Bestimmung der elastischen Phasenkontrastübertragungsfunktion werden im folgenden für stigmatische und astigmatische Diffraktogramme getrennt vorgestellt. Die stigmatischen Diffraktogramme eignen sich vor allem zur Überprüfung des theoretisch vorhergesagten Verlaufs der Phasenkontrastübertragungsfunktion für jeweils einen bestimmten Defokus. Dagegen erlauben die astigmatischen Diffraktogramme die von der Theorie vorhergesagte Abhängigkeit der Nullstellen der CTF vom Defokus auf einfache Weise zu kontrollieren. Daneben kann man aus Ihnen relativ schnell den Verlauf der Einhüllenden bestimmen. Wir beschränken uns auf die Diskussion der am Jeol 3010 aufgenommenen Bilderserien.

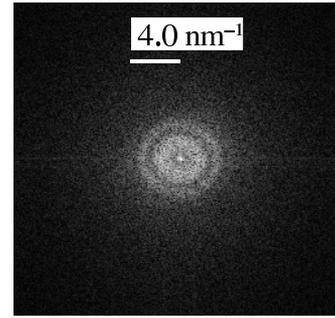
### 5.4.1 Stigmatische Diffraktogramme

Die komplette Bearbeitung eines stigmatischen Diffraktogramms zur Bestimmung der Phasenkontrastübertragungsfunktion ist in Abb. 5.6 dargestellt. Es wurde ein hochaufgelöstes Phasenkontrastbild einer ca. 5nm dicken amorphen Germaniumfolie aufgenommen (a). Eine Verstärkungs- und Dunkelstromkorrektur wird von der verwendeten Kamerasoftware automatisch durchgeführt. Es ist jedoch darauf zu achten, daß die notwendigen Korrekturbilder in kürzeren Abständen neu aufgenommen werden. Die Aufnahme wird numerisch fouriertransformiert und das Betragsquadrat bestimmt (b). Zur weiteren Verar-

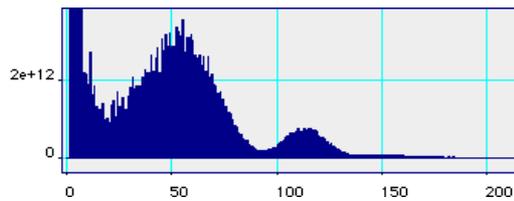
a) Phasenkontrastbild (Ge, 39x39nm<sup>2</sup>)



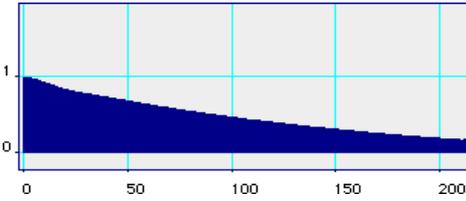
b) Diffraktogramm



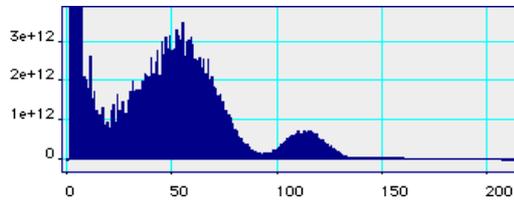
c) radial gemittelt (100 Pixel  $\cong$  2,45 nm<sup>-1</sup>)



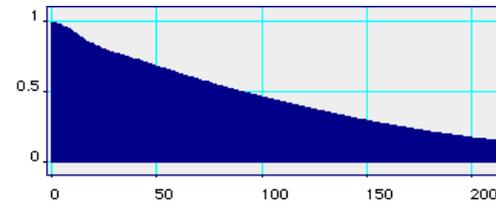
d) Untergrund (Schrotrauschen) B(u)



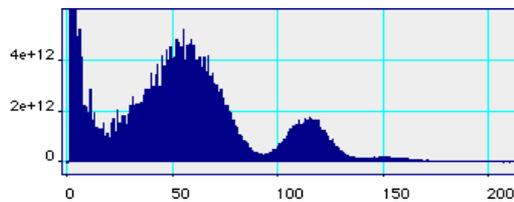
e) Untergrund abgezogen



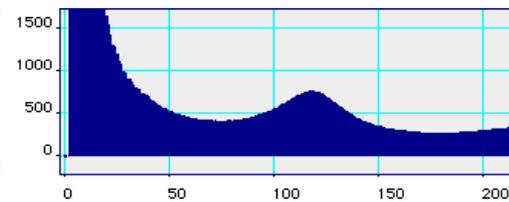
f) (MTF<sub>CCD</sub>)<sup>2</sup>



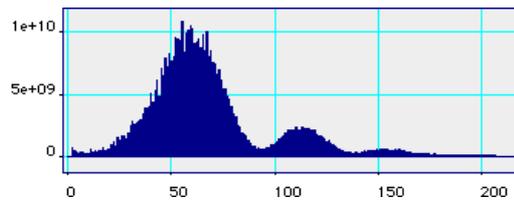
g) mit MTF<sub>CCD</sub> korrigiert



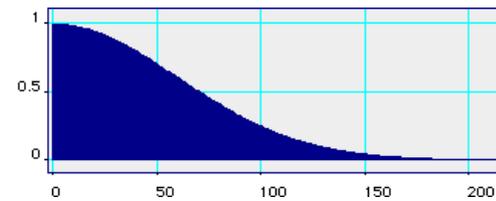
h) radiale Intensität im Ge-Beugungsbild



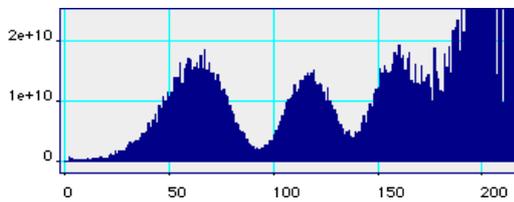
i) mit Intensität im Beugungsbild korrigiert



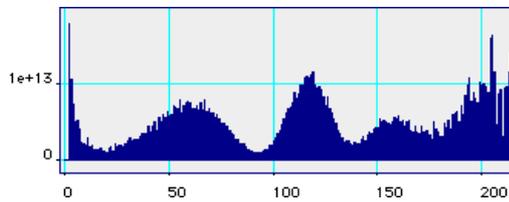
j) (MTF<sub>ges</sub>)<sup>2</sup>



k) Ergebnis (ICTF(u))<sup>2</sup>



l) o. Beugungskorrektur (ICTF(u) f<sub>Ge</sub>(u))<sup>2</sup> S(u)



**Abbildung 5.6:** Bestimmung der CTF aus einem stigmatischen Diffraktogramm. Die Angabe der Raumfrequenz erfolgt in c) bis l) in Pixel, wobei 100 Pixel einer Raumfrequenz von 2,45 nm<sup>-1</sup> entsprechen. Weitere Erläuterungen finden sich im Text.

beitung verwendet man den radialen Mittelwert des errechneten Diffraktogramms (c).

Gemäß Gl. (5.4) besteht der erste Korrekturschritt nun im Abzug des Schrotuntergrundes (d), der zuvor aus dem radial gemittelten Diffraktogramm eines Leerbildes bestimmt wurde. Die Skalierung des Untergrundbeitrages erfolgt in dem Bereich hoher Raumfrequenzen des Foliendiffraktogramms in dem sich keine Modulationen mehr befinden. Die Genauigkeit des Untergrundabzuges kann in (e) dadurch beurteilt werden, inwiefern die Intensitäten sich in diesem Bereich des Foliendiffraktogramms zu Null ergeben.

Anschließend wird das Diffraktogramm durch das Quadrat der zuvor bestimmten Kamera-MTF (f) und durch das auf der Raumfrequenzachse passend skalierte, radial gemittelte Beugungsdiagramm (h) geteilt. Die verbleibende Einhüllende  $MTF_{ges}(u)$  (j) wurde aus dem Verlauf der Maxima bestimmt. In diesem Fall konnte diese durch eine Funktion der Form

$$MTF_{ges}(u) \propto \exp(-const \cdot u^2) \quad (5.11)$$

angenähert werden. Diese Näherung ist zulässig, da für den verwendeten Konvergenzwinkel  $\alpha$  von ca. 0,5 mrad bei nicht zu kleinen Defoki die Einhüllende  $E_\alpha(u)$  den Verlauf von  $MTF_{ges}$  bestimmt.  $E_\alpha(u)$  weist unter den gegebenen Bedingungen über einen großen Raumfrequenzbereich die in Gl. (5.11) gegebene Charakteristik auf.

In Abb. 5.6k) ist schließlich das experimentelle Ergebnis für das Betragsquadrat  $|CTF(u)|^2$  der Phasenkontrastübertragungsfunktion angegeben. Die letzte Teilabbildung (Abb. 5.6l) zeigt das Ergebnis für  $|CTF(u)|^2$ , welches sich ergäbe, wenn keine Korrektur mit dem Strukturfaktor  $S(u)$  und dem Atomformfaktor durchgeführt wird. Der Intensitätsverlauf bezeugt eindrucksvoll, daß die Beschreibung der verwendeten amorphen Folien als ideal amorph (d.h.  $S(u) = const$ , Gl. (4.8)) für die genaue Bestimmung der Übertragungsfunktion nicht ausreicht. Schon rein qualitativ erkennt man in (l) deutliche Abweichungen von dem in Gl. (4.33) gegebenen theoretischen Verlauf der Phasenkontrastübertragungsfunktion besonders durch die variierenden Höhen der Maxima und durch den Intensitätsverlauf bei sehr kleinen Raum-

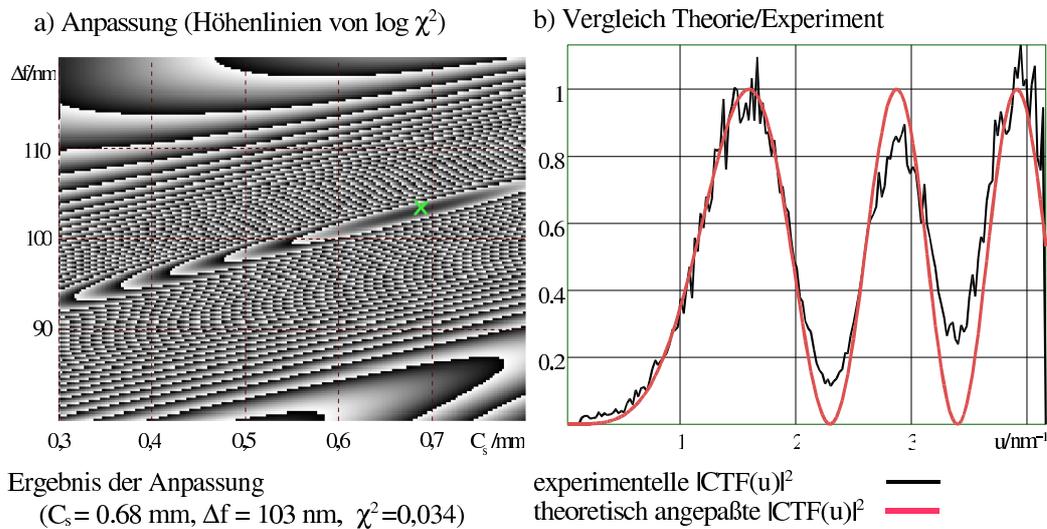
frequenzen.

### Anpassung einzelner stigmatischer Diffraktogramme

Unser experimentelles Ergebnis aus Abb. 5.6k) wird in Abb. 5.7 b) mit dem theoretischen Verlauf der Phasenkontrastübertragungsfunktion nach Gl. (4.33) verglichen. Die Abbildungsparameter, in diesem Fall die sphärische Aberration  $C_s$  und der Defokus  $\Delta f$ , wurden durch Anpassung der theoretischen Intensität an die experimentelle Intensität bestimmt. Die Anpassung erfolgte mit Hilfe eines genetischen Algorithmus durch Minimierung des Abweichungsmaßes

$$\chi^2 = \frac{\sum_i (I_{\text{exp}}(u_i) - Y \cdot I_{\text{theo}}(u_i))^2}{\sum_i (I_{\text{exp}}(u_i))^2}, \quad (5.12)$$

wobei  $I_{\text{exp}}(u)$  und  $I_{\text{theo}}(u)$  die zu vergleichenden experimentellen und theoretischen Intensitäten sind. Der Skalierungsfaktor  $Y$  wurde in die Optimierung miteinbezogen. Der für  $C_s$  bestimmte Wert von 0,68mm liegt in der Nähe der vom Hersteller angegebenen und der in [81] bestimmten Werte (vgl. Tabelle 5.1). In Abb. 5.7 a) ist der Verlauf des Abweichungsmaßes  $\chi^2$  für das in Abb. 5.7 b) angegebene experimentelle Diffraktogramm gegen  $C_s$  und  $\Delta f$  aufgetragen. Man erkennt das relativ scharfe Minimum für den Defokus, während der minimale Bereich in  $C_s$ -Richtung wesentlich flacher verläuft. Dies liegt daran, daß ein einzelnes bei einem bestimmten Defokus aufgenommenes stigmatisches Diffraktogramm in dem beschränkten Raumfrequenzbereich, in dem Intensität vorhanden ist, durch die  $u^4$ -Abhängigkeit des  $C_s$ -Terms in der Linsenfehlerphasenschiebung nur wenig empfindlich gegenüber der sphärischen Aberration  $C_s$  ist. Eine größere Genauigkeit bei der Bestimmung von  $C_s$  aus Diffraktogrammen erhält man daher an Geräten, die mit Feldemissionskathoden ausgerüstet sind. Bei diesen haben die emittierten Elektronen eine wesentlich höhere temporäre Kohärenz. Außerdem können wegen der höheren Strahlstromstärke kleinere Konvergenzwinkel verwendet werden. Man erhält daher auch noch bei höheren Raumfrequenzen Intensität in Diffraktogrammen von Phasenkontrastaufnahmen.

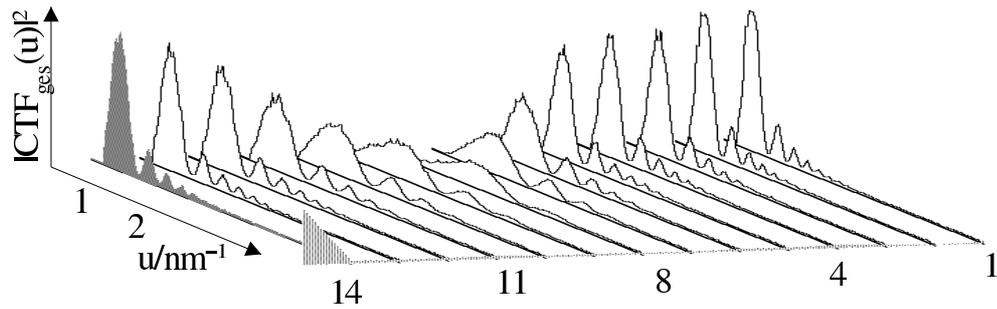


**Abbildung 5.7:** Vergleich zwischen Theorie und Experiment für ein einzelnes stigmatesches Diffraktogramm, aufgenommen am Jeol 3010. Die gefundene Minimale Abweichung zwischen Theorie und Experiment variiert allerdings stark mit der genauen Höhenskalierung der theoretischen CTF. Es ist deshalb sinnvoll, auch die Skalierung mit in die Anpassung einzubeziehen. In Teilabbildung b) wurden die Intensitätsmaxima der theoretischen CTF jeweils auf 1 normiert.

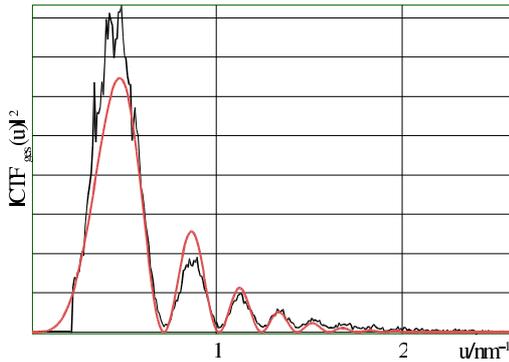
Im experimentell bestimmten Betragsquadrat der Phasenkontrastübertragungsfunktion (Abb. 5.6k) sind zwischen den Maxima keine Nullstellen sondern lediglich Minima zu erkennen. Die Intensität in den Minima steigt außerdem mit der Raumfrequenz, bei der sich das jeweilige Minimum befindet, an. Dieser Anstieg ist darauf zurückzuführen, daß der kleine nach dem Untergrundabzug (Abb. 5.6e) verbleibende, im wesentlichen durch Rauschen bedingte konstante Restuntergrund durch die Korrekturen mit den verschiedenen Modulationsübertragungsfunktionen zu hohen Raumfrequenzen hin angehoben wird.

### Anpassung der Diffraktogramme von Defokusserien

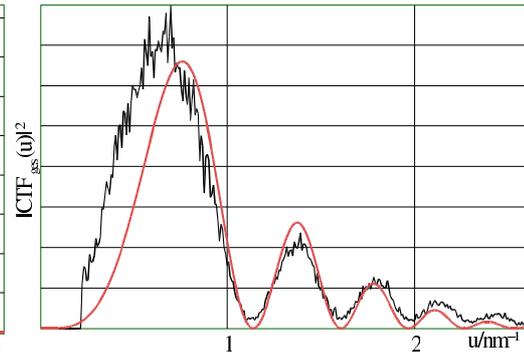
Ein erweiterter Vergleich zwischen Theorie und Experiment ist in den Abbildungen 5.8 und 5.9 gezeigt. Hier wurde auch der Verlauf der  $\text{MTF}_{\text{ges}}(u)$  in den Anpassungsprozess mit einbezogen. Um der Defokusabhängigkeit der



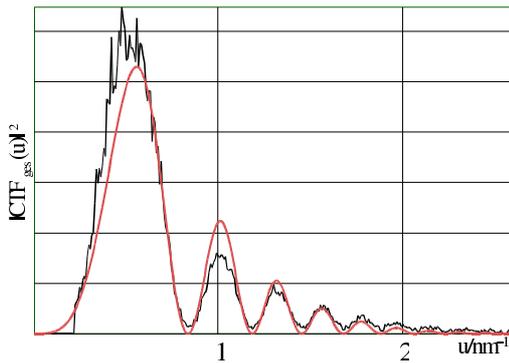
1)  $\Delta f = 986 \pm 5 \text{ nm}$



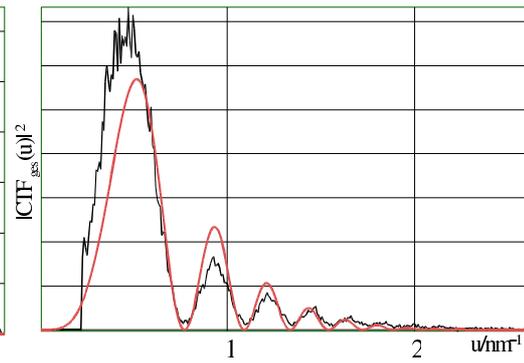
11)  $\Delta f = -389 \pm 5 \text{ nm}$



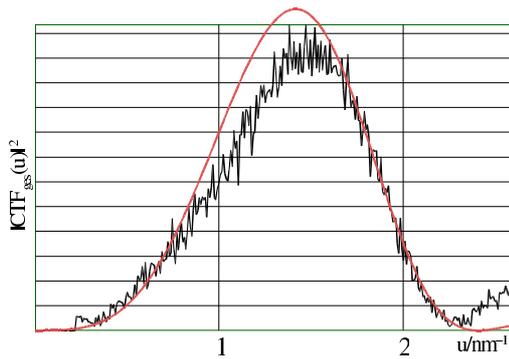
4)  $\Delta f = 722 \pm 5 \text{ nm}$



14)  $\Delta f = -851 \pm 5 \text{ nm}$



8)  $\Delta f = 94 \pm 5 \text{ nm}$



Jeol 3010, 300kV

M= 200000, 10eV elastische Filterung

Probe: Silizium, Dicke ca. 12 nm

experimentelle Intensität: —

theoretischer Verlauf: —

Ergebnisse der Anpassung:

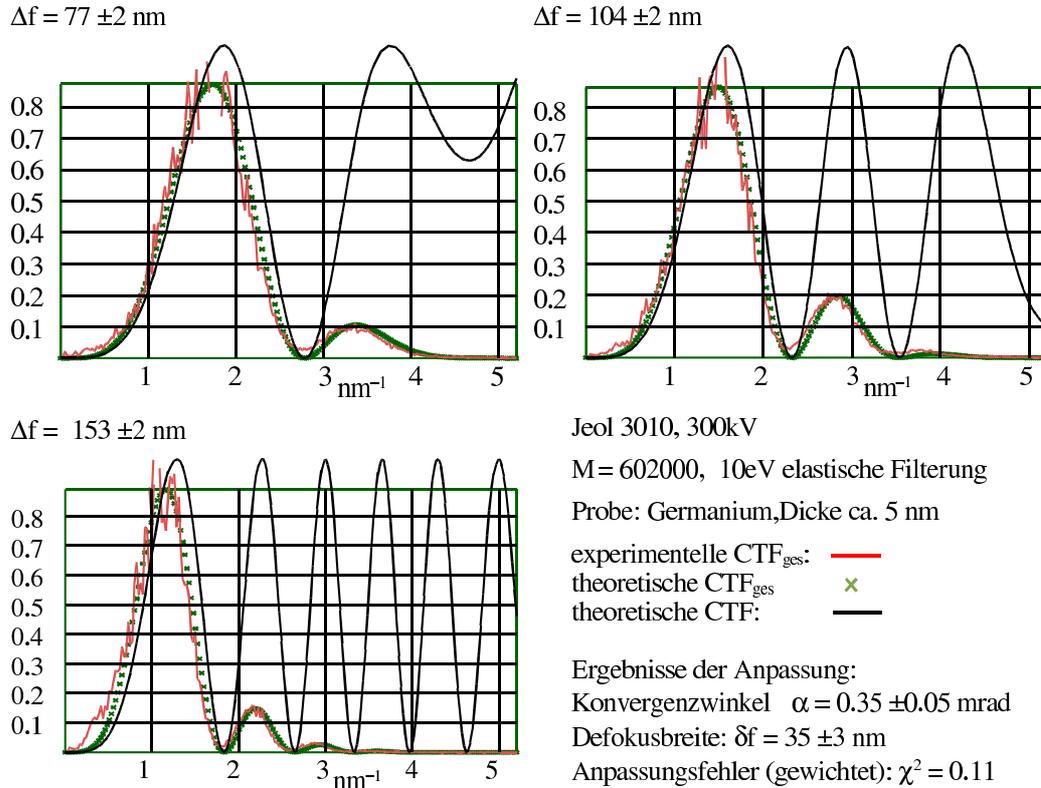
Konvergenzwinkel  $\alpha = 0.16 \pm 0.02 \text{ mrad}$

Defokusbreite:  $\delta f = 30 \pm 3 \text{ nm}$

Fitparameter  $\rho = 0.156 \pm 0.05 \text{ nm}$

Anpassungsfehler (gewichtet):  $\chi^2 = 0.20$

**Abbildung 5.8:** Vergleich zwischen Theorie und Experiment für stigmatische Diffraktogramme von Phasenkontrastaufnahmen einer Siliziumfolie bei 200000facher Vergrößerung.



**Abbildung 5.9:** Vergleich zwischen Theorie und Experiment für stigmatische Diffraktogramme von Phasenkontrastaufnahmen einer Germaniumfolie bei 600000facher Vergrößerung.

in  $MTF_{ges}(u)$  enthaltenen Einhüllenden  $E_{\alpha}(u)$  Rechnung zu tragen, wurden in diesem Falle mehrere stigmatische Diffraktogramme einer Defokusreihe gleichzeitig angepaßt. Die experimentellen Diffraktogramme wurden im wesentlichen auf die Weise vorbereitet wie in Abb. 5.6 gezeigt, jedoch wurde keine Korrektur der  $MTF_{ges}(u)$  vorgenommen. Minimiert wurde das gegenüber Gl. (5.12) leicht modifizierte

$$\chi^2 = \frac{\sum_i \left[ (I_{exp}(u_i) - I_{theo}(u_i)) / MTF_{ges}^2(u_i) \right]^2}{\sum_i (I_{exp}(u_i) / MTF_{ges}^2(u_i))^2}. \quad (5.13)$$

Da in diesem Fall die Intensität in den Maxima von  $I_{theo}$  und  $I_{exp}$  hin zu hohen Raumfrequenzen abfällt, muß mit  $MTF_{ges}(u)$  gewichtet werden. Nur so wird eine gute Anpassung auch bei hohen Raumfrequenzen erreicht. Meß-

werte für  $I_{\text{exp}}(u)$ , die 5% der Maximalintensität unterschreiten, wurden nicht für die Berechnung von  $\chi^2$  berücksichtigt.

Die Defoki der einzelnen stigmatischen Diffraktogramme wurden als unabhängige Optimierungsparameter betrachtet. Dies war nötig, da sich herausstellte, daß sich wegen einer unregelmäßigen Defokusdrift bzw. Vibrationen des Probenhalters bei den relativ hochaufgelösten Phasenkontrastaufnahmen nicht immer gleichmäßige Defokusabstände zwischen den einzelnen Bildern ergaben. Der Wert für die sphärische Aberration  $C_s$  wurde nicht mit in die Anpassung mit einbezogen, da dies eine erheblich langsamere Konvergenz des Anpassungsprozesses zur Folge hatte. Stattdessen haben wir den vom Hersteller angegebenen Wert  $C_s = 0,6$  mm verwendet.

Zunächst sind wir davon ausgegangen, daß  $\text{MTF}_{\text{ges}}(u)$  vollständig durch den Verlauf der beiden in der Theorie hergeleiteten Einhüllenden  $E_c(u)$  und  $E_a(u)$  bestimmt ist, der Beitrag  $\text{MTF}_{\text{err}}(u)$  durch experimentelle Unzulänglichkeiten also vernachlässigbar ist. Unter dieser Voraussetzung konnte der theoretische Kurvenverlauf sehr gut an die in Abb. 5.9 gezeigten experimentellen Diffraktogramme der Phasenkontrastaufnahmen von Germaniumfolien angepaßt werden. Diese wurden mit einem Binning Faktor von 2 (Zusammenfassen von jeweils 2x2 realen Detektorpixeln zu einem virtuellen) aufgenommen. Die Anpassung von Diffraktogrammserien, bei denen kein Binning verwendet wurde und die, wie die in Abb. 5.8 gezeigte Serie, Intensität bis nahe an die Nyquistfrequenz des CCD-Detektors aufwiesen, gelang dagegen nur bei Verwendung der zusätzlichen Fitfunktion

$$\text{MTF}_{\text{err}}(u) = \exp(-\pi\rho u). \quad (5.14)$$

Man erkennt in Abb. 5.8 aber trotz der Verwendung dieser Funktion schon rein qualitativ deutlichere Abweichungen als für die in Abb. 5.9 gezeigten, mit Binning 2 aufgenommenen Germaniumdiffraktogramme. Diese Abweichungen betreffen aber ausschließlich den Verlauf der Einhüllenden, während die Oszillationen der CTF richtig wiedergegeben werden. Der bei der Anpassung für  $\rho$  ermittelte Wert ist in Abb. 5.8 angegeben. Der exponentielle Term in Gl. (5.14) ist möglicherweise auf den von uns im Abschnitt 5.2.1 dis-

kutierten Fehler, der sich bei der Bestimmung von  $\text{MTF}_{\text{CCD}}$  auf der Basis einer stochastischen Methode ergibt, zurückzuführen. Diese Vermutung wird dadurch gestützt, daß sich bei den von Meyer [52] publizierten Messungen an einem Phosphorzintillator und bei einer Beschleunigungsspannung von 400kV für das Verhältnis zwischen  $\text{MTF}_{\text{CCD}}(u)/\text{NTF}_{\text{CCD}}(u)$  ungefähr eine Funktion mit der in Gl. (5.14) gegebenen Charakteristik ergibt.

Der bei der Anpassung bestimmte Wert für den Konvergenzwinkel  $\alpha$  liegt im Falle der in Abb. 5.9 gezeigten Diffraktogramme im Bereich des auf unabhängige Weise bestimmten Wertes von  $\alpha \approx 0,3 - 0,4$  mrad. Dieser wurde wie in Abschnitt 5.3 beschrieben ermittelt. Denselben Wert hatten wir so auch für die Diffraktogramme in Abb. 5.8 bestimmt. Die Anpassung liefert hier mit  $\alpha = 0,16$  mrad einen zu kleinen Wert.

Eine Abschätzung der zu erwartenden Defokusbreite  $\delta f$  auf der Basis von Gl. (4.39) mit der aus dem Energieverlustspektrum bestimmten Halbwertsbreite  $\delta E \approx 1 - 1,5 eV$  des Zero-Loss-Peaks und den Herstellerangaben [34] für die Stabilität der Hochspannung ( $\sigma(U)/U = 2 \cdot 10^{-6}$ ,  $\sigma$  bezeichnet hier die Standardabweichung) und der Linsenströme ( $\sigma(I)/I = 1 \cdot 10^{-6}$ ) ergibt einen Wert von  $\delta f \approx 6 - 7$  nm. Die durch die Anpassung erhaltenen Werte sind um den Faktor 3 - 4 größer. Das gleiche ergibt sich auch aus den im folgenden Abschnitt zu besprechenden astigmatischen Diffraktogrammen. Diese große Abweichung kann nicht ausschließlich durch Fehler infolge einer möglicherweise nicht optimalen Anpassung der theoretischen an die experimentellen Kurven zurückgeführt werden. Es sollte überprüft werden, ob die vom Hersteller angegebenen Stabilitätswerte wirklich erreicht werden und ob störende Vibrationen vorliegen, die eine solch starke Dämpfung der Diffraktogramme zur Folge haben.

## 5.4.2 Astigmatische Diffraktogramme

Astigmatische Diffraktogramme wurden von Yoshida et al. [86] verwendet, um die Einhüllenden  $E_c(u)$  und  $E_\alpha(u)$  abzuschätzen. Möbus [53, 54]

hat ein verfeinertes Verfahren zur genauen Bestimmung der chromatischen Einhüllenden  $E_c(u)$  angegeben und Näherungswerte für die sphärische Aberrationskonstante  $C_s$  aus astigmatischen Diffraktogrammen erhalten. Das von ihm zur  $C_s$ -Bestimmung verwendete Verfahren hat jedoch den Nachteil, daß es Schätzwerte für die Parameter der Einhüllenden  $E_c(u)$  und  $E_\alpha(u)$  benötigt und daher letztlich von der Bestimmung der Einhüllenden abhängig ist. Wir werden dagegen im Folgenden ein Verfahren zur  $C_s$ -Bestimmung aus astigmatischen Diffraktogrammen angeben, welches die Kenntnis der Einhüllenden nicht voraussetzt und die Bestimmung von  $C_s$  mit relativ guter Genauigkeit gestattet. Die Einhüllendenparameter bestimmen wir wie im Falle der stigmatischen Diffraktogramme durch Anpassung der theoretischen an die experimentelle Diffraktogrammintensität.

Die Auswertung astigmatischer Diffraktogramme ist in den Abbildungen 5.10 und 5.11 für unterschiedlich große Defokusbereiche und für Bilder von Silizium- und Germaniumfolien dargestellt. Vor der weiteren Auswertung wurden die Diffraktogrammintensitäten (jeweils Teilabbildung a) unter Nutzung des in Gl. (5.10) gegebenen Zusammenhangs in eine kartesische Intensitätsmatrix  $I_{\text{astigm}}(\Delta f_i, u_j)$  transformiert (Teilabbildungen b), deren Spalten der Raumfrequenzachse und deren Zeilen der Defokusachse entsprechen. Fehlende Intensitätswerte in der Matrix wurden aus den im Diffraktogramm benachbarten Werten bilinear interpoliert. Wie bei den zuvor besprochenen stigmatischen Diffraktogrammen wurde zuvor der Untergrund durch das Schrotrauschen  $B(u)$  abgezogen und der Intensitätsverlauf mit der  $\text{MTF}_{\text{CCD}}(u)$  und der Intensität im elastisch gefilterten Beugungsdiagramm korrigiert. Nach Vornahme dieser Korrekturen sollte der Intensitätsverlauf in der astigmatischen Intensitätsmatrix  $I_{\text{astigm}}(\Delta f_i, u_j)$  gemäß Gl. (5.4) abgesehen von einem Skalierungsfaktor einer Defokusserie des Produkts aus dem Quadrat der Phasenkontrastübertragungsfunktion  $\text{CTF}(u)$  und dem Quadrat der  $\text{MTF}_{\text{ges}}(u)$  entsprechen.

Durch die Symmetrie der astigmatischen Diffraktogramme erhält man aus einem Diffraktogramm vier Intensitätsmatrizen, die zur Verbesserung des

Signal-Rausch-Verhältnisses aufsummiert werden. Die Eichung der Defokusachse ist zunächst nicht bekannt sondern Ergebnis der nun folgenden Auswertung. Diese kann in zwei Schritte unterteilt werden. In einem ersten wird lediglich der Nullstellenverlauf untersucht, woraus sich die Defokuseichung und ein Wert für die sphärische Aberrationskonstante  $C_s$  ergibt. Danach werden die Parameter der Einhüllenden durch Anpassung im wesentlichen wie bei der Auswertung der stigmatischen Diffraktogrammserien bestimmt. Dadurch, daß im ersten Schritt der Nullstellenverlauf extrahiert und nur dieser angepaßt wird, benötigt das von uns beschriebene Verfahren zur  $C_s$ -Bestimmung im Gegensatz zu dem bei Möbus [54] angegebenen keine Schätzwerte für die Parameter der Einhüllenden  $E_c(u)$  und  $E_\alpha(u)$ .

### Anpassung des Nullstellenverlaufs

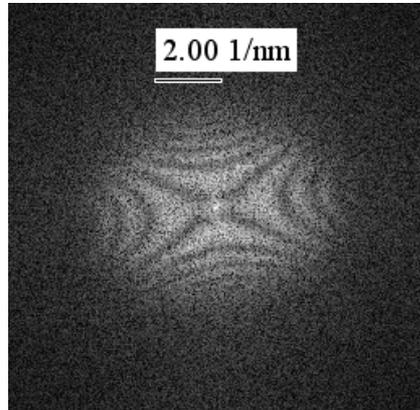
In den kartesisch transformierten astigmatischen Diffraktogrammen 5.10b und 5.11b erkennt man den Nullstellenverlauf der Übertragungsfunktion in Abhängigkeit von Defokus und Raumfrequenz. Um den Nullstellenverlauf aus stigmatischen Diffraktogrammen ähnlich gut entnehmen zu können, müßte man eine große Anzahl solcher Diffraktogramme mit kleinen Defokusabständen aufnehmen und hätte dazu noch das Problem unregelmäßiger Fokusdrift.

Für Linsen ohne sphärische Aberration, d.h.  $C_s = 0$  würde man in der Intensitätsmatrix  $I_{\text{astigm}}(\Delta f_i, u_j)$  einen Nullstellenverlauf erhalten, der achsensymmetrisch zum Nulldefokus ist. Insbesondere läge die nullte Nullstelle, das heißt die Nullstelle, für die das Argument des Sinus in Gl.(4.33) für die Phasenkontrastübertragungsfunktion verschwindet, unabhängig von der Raumfrequenz bei  $\Delta f = 0$ . Für  $C_s \neq 0$  ergibt sich dagegen für diese Nullstelle der von der Raumfrequenz abhängige Verlauf

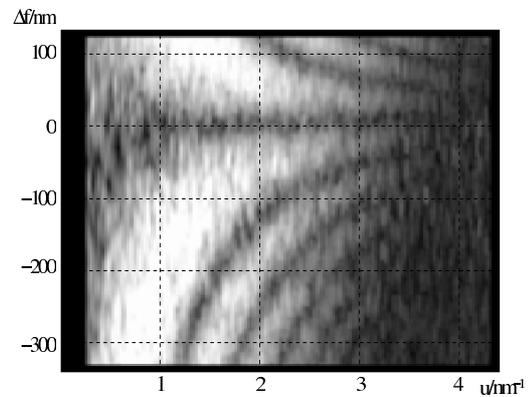
$$\Delta f_0(u) = \frac{\lambda^2}{2} C_s u^2, \quad (5.15)$$

welcher zur direkten Bestimmung von  $C_s$  aus einem astigmatischen Diffraktogramm verwendet werden kann. Dazu muß jedoch die Eichung der Defo-

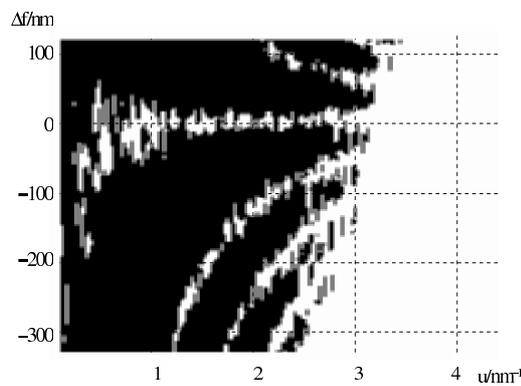
a) Astigmatisches Diffraktogramm (Silizium)



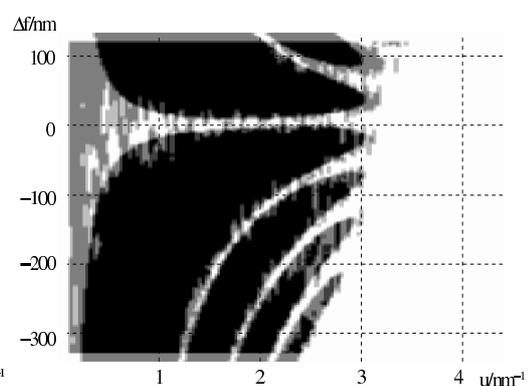
b) konvertiert in kartesisches Koordinatensystem



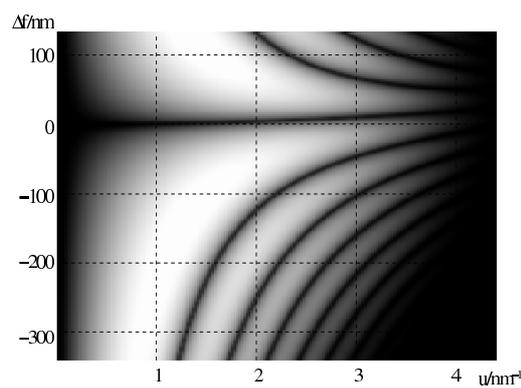
c) Nullstellenverlauf (per Schwellwert)



d) Nullstellenverlauf anpassen =>  $C_s$ ,  $\Delta f_{\min}$ ,  $\Delta f_{\max}$



e) Einhüllende anpassen



Jeol 3010, 300 kV

$M = 602000$ , 5eV-elastische Filterung

Probe: Silizium, Dicke ca. 12 nm

Ergebnisse:

Nullstellenanpassung:

$C_s = 0,63 \pm 0,1\text{mm}$ ,

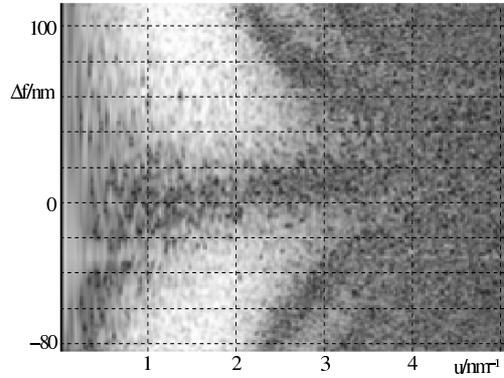
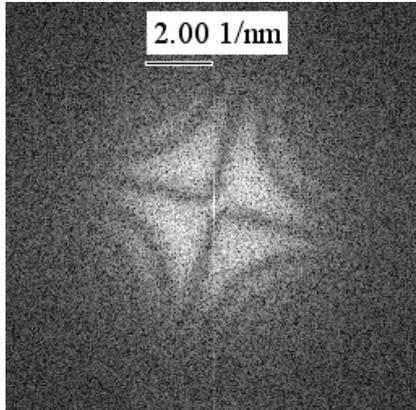
$\Delta f_{\min} = -340 \pm 5\text{nm}$ ,  $\Delta f_{\max} = 134 \pm 5\text{nm}$

Einhüllende:

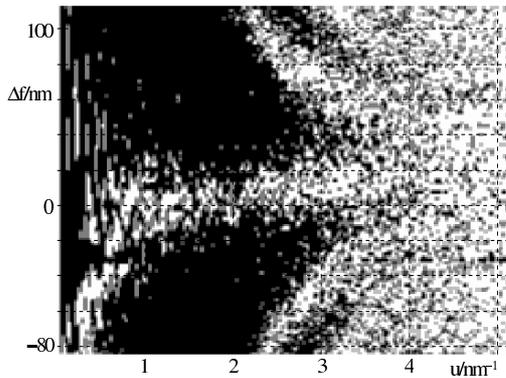
$\alpha = 0,35 \pm 0,03\text{mrad}$ ,  $\delta f = 28 \pm 5\text{nm}$

**Abbildung 5.10:** Auswertung astigmatischer Diffraktogramme am Beispiel von Silizium. Weitere Erläuterungen finden sich im Text.

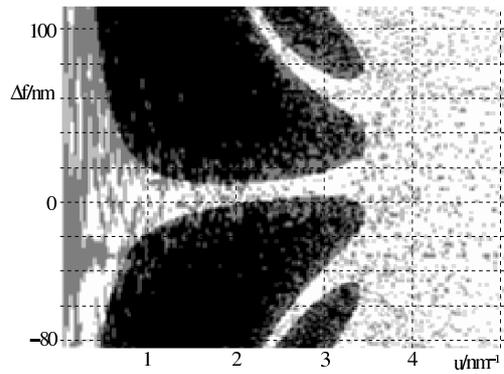
a) Astigmatisches Diffraktogramm (Germanium) b) konvertiert in kartesisches Koordinatensystem



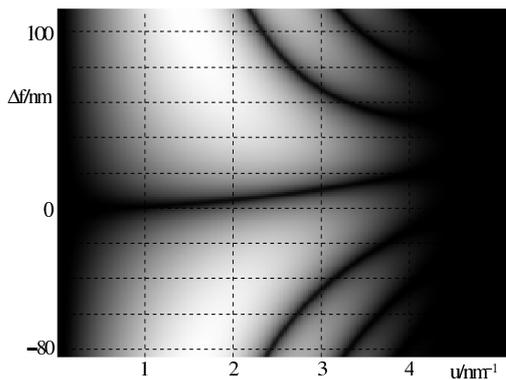
c) Nullstellenverlauf (per Schwellwert)



d) Nullstellenverlauf anpassen  $\Rightarrow C_s, \Delta f_{\min}, \Delta f_{\max}$



e) Einhüllende anpassen



Jeol 3010, 300 kV

$M = 602000$ , 10eV- elastische Filterung

Probe: Germanium, Dicke ca. 5 nm

Ergebnisse:

Nullstellenanpassung:

$C_s = 0,61 \pm 0,03 \text{ mm}$ ,

$\Delta f_{\min} = -84 \pm 3 \text{ nm}$ ,  $\Delta f_{\max} = 113 \pm 3 \text{ nm}$

Einhüllende:

$\alpha = 0,35 \pm 0,03 \text{ mrad}$ ,  $\delta f = 31 \pm 5 \text{ nm}$

**Abbildung 5.11:** Auswertung astigmatischer Diffraktogramme am Beispiel von Germanium. Weitere Erläuterungen finden sich im Text.

kusachse bekannt sein. Eine parallele Bestimmung von  $C_s$  und der Defokuseichung kann durch Anpassung des theoretischen Nullstellenverlaufs an den in der Intensitätsmatrix  $I_{\text{astigm}}(\Delta f_i, u_j)$  gefundenen Verlauf erreicht werden. Wir haben auch diese Anpassung rechnergesteuert durchgeführt. Das von uns verwendete Verfahren zur Anpassung der Nullstellen ist im Anhang C beschrieben. Die Teilabbildungen 5.10c und 5.11c zeigen den aus der experimentellen Intensitätsmatrix extrahierten Nullstellenverlauf und 5.10d sowie 5.11d das Ergebnis der Anpassung des Nullstellenverlaufs.

Zur Bestimmung der sphärischen Aberrationskonstante aus dem Nullstellenverlauf im astigmatischen Diffraktogramm sollte der Defokusbereich, welchen das astigmatische Diffraktogramm enthält, einige Bedingungen erfüllen:

- Der Defokusbereich sollte den vollständigen Verlauf der 0. Nullstelle enthalten, da diese gemäß Gl.(5.15) sehr empfindlich gegenüber  $C_s$  ist.
- Neben dieser sollten auch noch mehrere andere Nullstellen enthalten sein, welche die Defokuseichung ermöglichen.
- Der überstrichene Defokusbereich sollte nicht zu groß sein, damit die Steigung der 0. Nullstelle im kartesisch transformierten astigmatischen Diffraktogramm noch signifikant ist.

Diese Bedingungen werden vom in Abb. (5.11) gegebenen Diffraktogramm erfüllt. Der aus diesem Diffraktogramm durch Anpassung bestimmte Wert für  $C_s$  von  $0,61 \pm 0,03 \text{ mm}$  liegt erfreulicherweise auch sehr nahe an den in Tabelle 5.1 angegebenen Werten für das Jeol 3010. Der Wert wurde aus dem Mittelwert mehrerer Anpassungsläufe bestimmt, die unter Variation des Schwellwertes (s. Anhang C) zur Extraktion der Nullstellen durchgeführt wurden. So wurde sichergestellt, daß die genaue Wahl des Schwellwertes keinen Einfluß auf die Bestimmung des Wertes für  $C_s$  hat. Der Fehler für den  $C_s$ -Wert ergibt sich dann aus der Schwankungsbreite der verschiedenen Meßwerte. Das in Abb. 5.10 gezeigte Diffraktogramm enthält für die genaue Bestimmung von  $C_s$  einen zu großen Defokusbereich. Trotzdem ergibt sich hier als

Mittelwert mehrerer Anpassungsläufe fast der gleiche  $C_s$ -Wert wie für das Diffraktogramm in Abb. 5.11. Allerdings weichen die Meßwerte bei Variation des Schwellwertes stärker voneinander ab.

Die auf diese Weise aus astigmatischen Diffraktogrammen bestimmten Werte für  $C_s$  erreichen zwar nicht die Genauigkeit, wie sie mit Methoden wie z.B. der in [80] beschriebenen erreicht werden. Der für die Bestimmung von  $C_s$  aus astigmatischen Diffraktogrammen notwendige Aufwand ist jedoch ungleich geringer. Auf jeden Fall ist die hier geschilderte Methode der Bestimmung von  $C_s$  aus einem einzelnen stigmatischen Diffraktogramm vorzuziehen. Es sei jedoch besonders im Hinblick auf die in Abschnitt 5.5 noch zu führende Diskussion darauf hingewiesen, daß die Methode die Gültigkeit der WPO-Näherung auch bei hohen Raumfrequenzen voraussetzt.

### **Anpassung der Einhüllenden**

Zur Bestimmung der Einhüllendenparameter  $\alpha$  und  $\delta f$  haben wir anschließend die experimentelle Intensitätsmatrix an die theoretisch zu erwartende Intensität  $\text{CTF}_{\text{ges}}$  angepaßt. Bei der Anpassung wird wie im Abschnitt über die Anpassung stigmatischer Diffraktogrammserien vorgegangen. Es wird wiederum davon ausgegangen, daß die gesamte Einhüllende lediglich durch  $E_\alpha(u)$  und  $E_c(u)$  bestimmt wird. Wir haben nicht das von Möbus [53, 54] vorgeschlagene *Doppelscanverfahren* benutzt, da es lediglich die chromatische Einhüllende  $E_c(u)$  liefert und sich bei diesem Verfahren bei den von uns verwendeten Beschleunigungsspannungen Probleme mit der dabei notwendigen Tiefpaßfilterung der Diffraktogrammintensitäten ergeben [56]. Die Abbildungen 5.10e und 5.11e zeigen die den experimentellen Intensitätsmatrizen (Teilabbildungen b) angepaßten theoretischen Intensitätsverläufe. Man erkennt (zumindest qualitativ) die gute Übereinstimmung.

Die durch die Anpassung bestimmten Werte für  $\alpha$  und  $\delta f$  bestätigen die für die stigmatischen Diffraktogramme erzielten Ergebnisse. Während die unabhängig ermittelten Meßwerte für  $\alpha$  (in beiden Fällen  $\alpha \approx 0,4 - 0,5$  mrad) gut mit den aus der Anpassung ermittelten Werten übereinstimmen, ist die

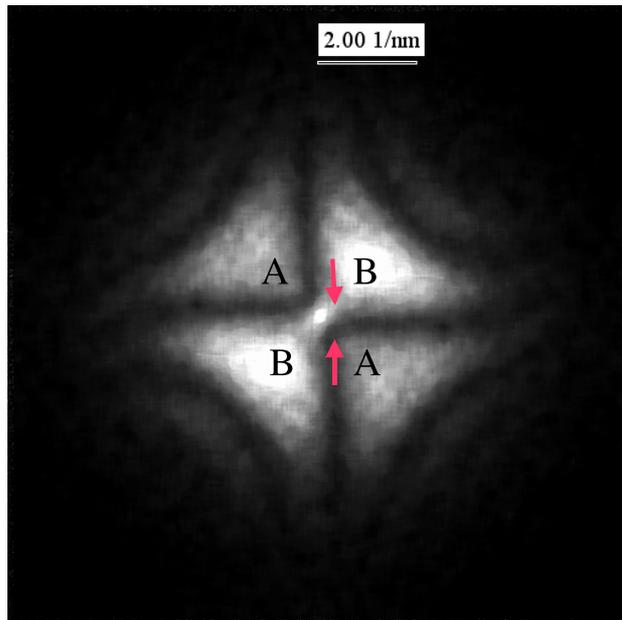
aus den Diffraktogrammen bestimmte Defokusbreite deutlich größer, als die theoretische Abschätzung (s. Abschnitt 5.4.1) erwarten läßt. Dies bestätigt die Ergebnisse aus der Anpassung der stigmatischen Diffraktogramme.

## 5.5 Abweichungen von der WPO-Näherung

Bei unseren Vergleichen zwischen Theorie und Experiment haben wir bisher immer die Gültigkeit der WPO-Näherung vorausgesetzt und im großen und ganzen eine gute Übereinstimmung gefunden. Gibson [22] fand in Multi-Slice-Simulationen von Phasenkontrast-Diffraktogrammen amorpher Folien, daß schon bei relativ geringen Probendicken (5 – 12 nm) bei hohen Raumfrequenzen ( $u > 3\text{nm}^{-1}$ ) die Lage der Nullstellen im Diffraktogramm nicht mehr richtig durch die schwache Phasenobjektnäherung beschrieben wird. Ebenso fand er einen mit der Raumfrequenz ansteigenden Untergrund, also nur noch Minima anstelle von Nullstellen in den Diffraktogrammen. Nach Gibson tritt dieser Effekt besonders bei Mikroskopen mit mittleren Beschleunigungsspannungen (200 - 300 kV) mit hoher Auflösung auf, während er zu höheren Beschleunigungsspannungen hin abnimmt.

Der Nachweis der sehr kleinen Verschiebungen der Nullstellen ist mit dem von uns durchgeführten Vergleich zwischen Theorie und Praxis nicht möglich. Dazu müßte der  $C_s$ -Wert des Mikroskops auf unabhängige Weise sehr genau bekannt sein. Bei der von uns durchgeführten Auswertung würden sich kleinere Verschiebungen in einem falschen Wert für die sphärische Aberrationskonstante niederschlagen. Da der von uns aus astigmatischen Diffraktogrammen bestimmte  $C_s$ -Wert aber sehr nahe an dem vom Hersteller angegebenen liegt, kann die Verschiebung der Nullstellen zumindestens als sehr klein abgeschätzt werden.

Einen Untergrund bei hohen Raumfrequenzen haben wir in unseren Experimenten nicht gefunden, obwohl die Dicke der unter anderem von uns untersuchten Silizium-Folien mit ca. 12 nm der maximalen von Gibson simulierten entsprach. In der Arbeit von Baik [2] finden sich simulierte Diffraktogramme,



**Abbildung 5.12:** Demonstration der Abhängigkeit des Intensitätsverlaufs bei kleinen Raumwinkeln vom Vorzeichen des Defokus  $\Delta f$  am Beispiel eines astigmatischen Diffraktogramms einer Germaniumfolie. Der Kontrast wurde aus Darstellungsgründen deutlich verstärkt. Im Bereich A ist  $\Delta f$  negativ (Überfokus), in Bereich B ist  $\Delta f$  positiv (Unterfokus).

für die der gleiche Parametersatz wie bei Gibson [22], aber ein anderes Multi-Slice-Programm verwendet wurde. Dort finden sich zwar die Verschiebungen der Nullstellen, nicht aber der von Gibson gefundene Untergrund. Es ist daher nicht ausgeschlossen, daß der Untergrund in [22] auf kleine numerische Fehler des von Gibson verwendeten Multi-Slice-Programms zurückzuführen ist.

Deutliche Abweichungen von den Vorhersagen der WPO-Näherung ergaben sich im Bereich sehr kleiner Raumfrequenzen. Diese haben auf unsere bisherigen Auswertungen keinen Einfluß, da sich die Abweichungen nur in Diffraktogrammen erkennen lassen, die noch nicht mit dem Zwei-Teilchen-Strukturfaktor  $S(u)$  korrigiert wurden, z.B. in Abbildung 5.6c. Während die Phasenkontrastübertragungsfunktion Gl. (4.33) im Bereich zwischen deren

erstem Extremum und der Raumfrequenz  $u = 0$  einen kontinuierlichen Abfall der Intensität im Diffraktogramm mit abnehmender Raumfrequenz erzwingen sollte, steigt die Intensität in den experimentellen Diffraktogrammen nach Durchlauf eines Minimums wieder an und hat bei einer Raumfrequenz von  $u = 0$  einen ausgeprägten Peak. Dividiert man durch den aus dem Beugungsbild bestimmten Zwei-Teilchen-Strukturfaktor, so scheint der Intensitätsverlauf wieder gut mit dem von der WPO-Näherung vorhergesagten übereinzustimmen (Abb. 5.6k). Außerdem ist der Intensitätsverlauf in den unkorrigierten experimentellen Diffraktogrammen im Bereich sehr kleiner Raumfrequenzen für unter- und überfokussierte Objektivlinse unterschiedlich, wie man sehr gut an dem astigmatischen Diffraktogramm in Abb. 5.12 erkennen kann. Aus Darstellungsgründen wurde hier der Kontrast stark angehoben. In den beiden überfokussierten Sektoren (A), findet sich eine deutliche Intensitätslücke zwischen dem ersten Maximum der Übertragungsfunktion und dem Peak im Zentrum. In den unterfokussierten Sektoren (B) findet sich im gleichen Raumfrequenzbereich durchgängig Intensität.

Zu einer quantitativen Untersuchung dieses Effekts ist das bisher verwendete Verfahren zur Bestimmung des Zwei-Teilchen-Strukturfaktors nicht genau genug, da wir den Untergrund aus ungestreuten Elektronen im Beugungsbild vernachlässigt haben, welcher sich im Bereich kleiner Streuwinkel bzw. Raumfrequenzen bemerkbar macht. Im folgenden Teil dieser Arbeit wird sich unter anderem ergeben, wie man den Zwei-Teilchen-Strukturfaktor  $S(u)$  in diesem Bereich aus inelastisch gefilterten Bildern sehr genau bestimmen kann. Eine quantitative Diskussion des beschriebenen Effektes werden wir daher an späterer Stelle (Abschnitt 7.2.1) führen.

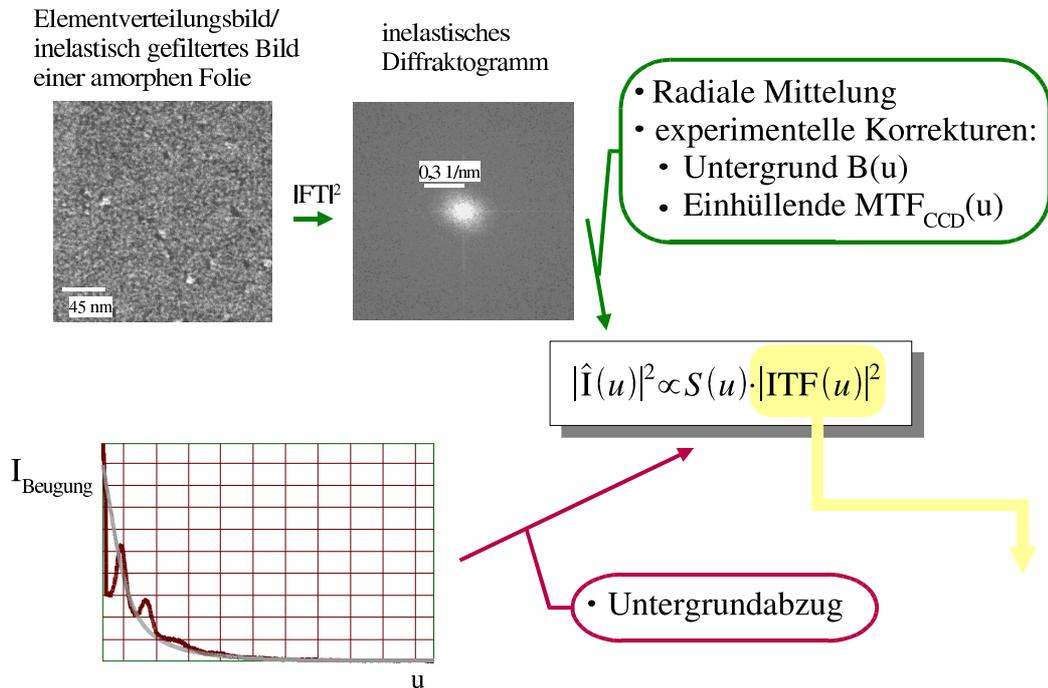
# Kapitel 6

## Experimente zur inelastischen Übertragungsfunktion

In diesem Kapitel werden nun die bei den Experimenten zur Phasenkontrastübertragungsfunktion gewonnenen Erfahrungen zur Bestimmung der inelastischen Übertragungsfunktion umgesetzt. Neben der Bestimmung der ITF im eigentlichen Sinne geht es dabei vor allem darum, experimentell zu überprüfen, ob die lineare Abbildungstheorie die Intensität in Elementverteilungsbildern dünner Präparate richtig beschreibt. Ein entsprechender experimenteller Beweis dafür fehlt bisher. Die Aufnahme und Auswertung der inelastisch gefilterten Bilder wird im folgenden Abschnitt erläutert. Danach kommen wir zu den Ergebnissen.

### 6.1 Bestimmung der inelastischen Übertragungsfunktion

Die wesentlichen Schritte zur Bestimmung der ITF aus Elementverteilungsbildern amorpher Folien sind in Abb. (6.1) gezeigt. Die meisten sind schon aus dem vorangegangenen Kapitel zur CTF bekannt.



**Abbildung 6.1:** Bestimmung der inelastischen Übertragungsfunktion aus den Diffraktogrammen amorpher Folien unter Verwendung der Intensität im elastisch gefilterten Beugungsdiagramm. Der Raumfrequenzbereich, in dem sich Intensität in den Diffraktogrammen inelastisch gefilterter Aufnahmen findet, ist wesentlich kleiner als bei den Diffraktogrammen elastischer Phasenkontrastaufnahmen. In diesem Bereich muß bei der Bestimmung des Strukturfaktors  $S(u)$  aus dem elastisch gefilterten Beugungsdiagramm der Untergrund durch ungestreute Elektronen berücksichtigt werden.

Zunächst wird ein Elementverteilungsbild aufgenommen, dessen Diffraktogramm berechnet und radial gemittelt. Danach werden die aus der Beschäftigung mit Phasenkontrastaufnahmen bekannten experimentellen Korrekturen durchgeführt. Zur Bestimmung der inelastischen Übertragungsfunktion wird das Ergebnis gemäß Gl. (4.6) mit dem aus einem elastisch gefilterten Beugungsdiagramm bestimmten Strukturfaktor  $S(u)$  verglichen. Wir werden nun auf einige dieser Schritte etwas näher eingehen und dabei besonders die Unterschiede, die sich im Vergleich zur Bestimmung der Phasenkontrastübertragungsfunktion ergeben, ansprechen. Zunächst wird detailliert die Aufnahme der inelastisch gefilterten Bilder diskutiert. Nach einem kurzen Abschnitt

zu den experimentellen Korrekturen der Diffraktogramme besprechen wir schließlich die Bestimmung des Strukturfaktors aus elastisch gefilterten Beugungsdiagrammen bei kleinen Streuwinkeln bzw. Raumfrequenzen.

### 6.1.1 Die inelastisch gefilterten Aufnahmen

Für unsere Experimente zur inelastischen Übertragungsfunktion haben wir amorphe Silizium- und Kohlenstoffolien verwendet. Die Präparation der Folien wurde ebenso wie die verwendeten Mikroskope bereits ausführlich in Abschnitt 5.1 beschrieben.

Ein generelles Problem bei der Aufnahme von Elementverteilungsbildern sind die kleinen inelastischen Wirkungsquerschnitte. Es muß daher mit hohen Strahlströmen und langen Belichtungszeiten gearbeitet werden. Die maximale Belichtungszeit ist jedoch durch die CCD-Kamera, der maximale Strahlstrom durch die Kathode und die maximale Gesamtdosis durch in der Probe auftretende Strahlenschäden begrenzt. Daher sind die Intensitäten in inelastisch gefilterten Bildern im Vergleich zu elastischen Bildern meist gering. Im Elementverteilungsbild wird die Intensität durch den Untergrundabzug z.B. bei Anwendung der in Abb. 2.3 dargestellten Drei-Fenster-Methode zusätzlich verringert. Bei unseren Untersuchungen ist dieses Problem besonders ausgeprägt, da wir sehr dünne Proben verwenden und außerdem die Fouriertransformierten der Elementverteilungsbilder weiter verarbeiten wollen. Deren Intensität ist abhängig von der Intensitäts*variation* im Elementverteilungsbild und nicht von der Gesamtintensität.

Für Proben, die nur aus einem Element bestehen, stammt die Intensität im Energieverlustspektrum bei einem beliebigen Energieverlust oberhalb der Plasmonen von den Anregungen einer inneren Schale dieses Elements. Ein inelastisch gefiltertes Bild eines solchen Präparats liefert daher direkt die Elementverteilung. Für Folien, die nur aus einem Element bestehen, können wir also die Diffraktogramme zur Bestimmung der ITF direkt aus einzelnen inelastischen Bildern bei einem beliebigen Energieverlust berechnen. Neben der

Tatsache, daß keine Intensität durch einen Untergrundabzug verloren geht, hat dies auch den Vorteil, daß man nicht daran gebunden ist, Bilder direkt hinter Ionisationskanten aufnehmen zu müssen. Stattdessen können beliebige Energieverluste für die Aufnahmen verwendet werden und somit die Energieverlustabhängigkeit der ITF untersucht werden.

Bei der Auswertung ist jedoch zu beachten, daß die von uns für die theoretische Berechnung der ITF verwendete Dipolnäherung strenggenommen nur im Bereich hinter einer Ionisationskante eine gute Näherung darstellt. Mit zunehmender Entfernung von der Ionisationskante wirken sich jedoch mehr und mehr auch Multipolanregungen höherer Ordnung aus. Vernachlässigen wir diesen Umstand zunächst, ergibt sich ein weiteres Problem daraus, daß keine der von uns hergestellten Proben tatsächlich nur aus einem Element besteht. Die Siliziumfolien enthalten einen durch Oxidation mit der Zeit zunehmenden Anteil an Sauerstoff. Dies erkennt man schon an der Farbe der Folien. Direkt nach dem Aufdampfen sind sie leicht gelblich, nach ca. einem Tag an Luft sind die sehr dünnen Folien dagegen farblos. Bei sehr frischen Folien betrug der aus einem Energieverlustspektrum bestimmte Sauerstoffanteil 5-10 at%. Überraschend war dagegen ein im Energieverlustspektrum gefundener Anteil von gleichmäßig etwa  $6 \pm 1$  at% Sauerstoff in den amorphen Kohlenstofffilmen. Dieser Anteil ist auch in ganz frischen Präparaten zu finden und scheint sich im Laufe der Zeit nicht wesentlich zu ändern. Der Sauerstoff muß also schon beim Aufdampfvorgang in die Folien gelangen. Dies ist jedoch kein spezielles Problem der von uns hergestellten Kohlenstofffolien. Auch in Abbildungen der Spektren von aufgedampften Kohlenstofffolien anderer Autoren z.B. in [70] und [71] findet sich eine Sauerstoffkante, deren Verhältnis zur Kohlenstoffkante in der Größenordnung dem von uns gefundenen Verhältnis entspricht. Das Problem des Sauerstoffs in den Kohlenstofffolien werden wir in Abschnitt 7.1 noch einmal aufgreifen.

Im Rahmen der in Abschnitt 2.3 eingeführten linearen Abbildungstheorie läßt sich die Intensität in einem beim Energieverlust  $E$  oberhalb der Plasmonenenergie inelastisch gefilterten Bild einer aus zwei Elementen  $a$  und  $b$

bestehenden Probe in der Form

$$\begin{aligned}
j_{E,\theta_A}(\vec{\rho}) &= C_a(E, \theta_A) \cdot \text{FT}^{-1}\{\text{ITF}_{a,\theta_A}\}(\vec{\rho}) * \bar{n}_a(\vec{\rho}) + \\
&\quad + C_b(E, \theta_A) \cdot \text{FT}^{-1}\{\text{ITF}_{b,\theta_A}\}(\vec{\rho}) * \bar{n}_b(\vec{\rho}) \\
&\approx \text{FT}^{-1}\{\text{ITF}_{E,\theta_A}\}(\vec{\rho}) \\
&\quad * [C_a(E, \theta_A)\bar{n}_a(\vec{\rho}) + C_b(E, \theta_A)\bar{n}_b(\vec{\rho})]
\end{aligned} \tag{6.1}$$

schreiben, da die inelastische Übertragungsfunktion in Dipolnäherung nur über den Energieverlust vom Element abhängig ist. Die Gewichtungsfaktoren  $C_a(E, \theta_A)$  und  $C_b(E, \theta_A)$  sind jeweils proportional zur Summe der Wirkungsquerschnitte aller Anregungen der Elemente  $a$  bzw.  $b$ , die in dem zur Aufnahme verwendeten Energieverlustbereich liegen. Der Winkel  $\theta_A$  gibt den Aperturhalbwinkel an. Die Intensität in dem entsprechenden radial gemittelten inelastischen Diffraktogramm<sup>1</sup> ist dann

$$\begin{aligned}
|\hat{j}_{E,\theta_A}(u)|^2 &= N |\text{ITF}_{E,\theta_A}|^2 \cdot [c_a^2 C_a(E, \theta_A)^2 S_{aa}(u) + \\
&\quad + 2 c_a c_b C_a(E, \theta_A) C_b(E, \theta_A) \text{Re}\{S_{ab}(u)\} \\
&\quad + c_b^2 C_b(E, \theta_A)^2 S_{bb}(u)],
\end{aligned} \tag{6.2}$$

mit den partiellen Strukturfaktoren

$$S_{aa}(\vec{u}) = \frac{1}{N c_a^2} \sum_{j_a} \sum_{k_a} e^{i2\pi\vec{u}(\vec{\rho}_k - \vec{\rho}_j)}, \quad S_{bb}(\vec{u}) = \frac{1}{N c_b^2} \sum_{j_b} \sum_{k_b} e^{i2\pi\vec{u}(\vec{\rho}_k - \vec{\rho}_j)} \tag{6.3}$$

und

$$S_{ab}(\vec{u}) = \frac{1}{N c_a c_b} \sum_{j_a} \sum_{k_b} e^{i2\pi\vec{u}(\vec{\rho}_k - \vec{\rho}_j)}. \tag{6.4}$$

Wegen der Isotropie der amorphen Folien sind letztere nur vom Betrag der Raumfrequenz abhängig.  $N$  bezeichnet die Anzahl der Atome im Bereich der Aufnahme,  $c_a$  und  $c_b$  die Anteile der Elemente  $a$  und  $b$ . Man erkennt an den Gleichungen (6.1) und (6.2), daß der Schluß, der Sauerstoff in den amorphen Folien spiele wegen seiner geringen Konzentration  $c_O$  in den Diffraktogrammen inelastisch gefilterter Bilder keine Rolle, nicht in jedem Fall korrekt ist.

---

<sup>1</sup>Das Diffraktogramm eines inelastisch gefilterten Bildes bezeichnen wir hier und im Folgenden als „inelastisches Diffraktogramm“.

Ist z.B.  $C_O(E, \theta_A)$  für einen bestimmten Energieverlust  $E$  wesentlich größer als  $C_{Si}(E, \theta_A)$  bzw.  $C_C(E, \theta_A)$ , so kann die Sauerstoffverteilung einen erheblichen Einfluß auf die Intensität im jeweiligen inelastisch gefilterten Bild bzw. in dem entsprechenden Diffraktogramm haben. Das gleiche gilt, wenn z.B. der partielle Strukturfaktor  $S_{CC}(u)$  bei einer bestimmten Raumfrequenz  $u$  deutlich kleiner ist als  $S_{CO}(u)$  oder  $S_{OO}(u)$ . Im zum Vergleich verwendeten elastisch gefilterten Beugungsbild ist die Intensität der *gestreuten* Elektronen dagegen durch

$$j_{A,\text{gestr}}(u) \propto N \left[ c_a^2 |f_a(u)|^2 S_{aa}(u) + 2c_a c_b \text{Re}\{f_a(u) f_b^*(u) S_{ab}(u)\} + c_b^2 |f_b(u)|^2 S_{bb}(u) \right] \quad (6.5)$$

gegeben. Im elastischen Beugungsbild einer Probe, die aus zwei Elementen besteht, sind die partiellen Struktur Faktoren also anders gewichtet als in entsprechenden Diffraktogrammen inelastisch gefilterter Bilder. Diesen Aspekt müssen wir beim Vergleich der Intensitäten in den Diffraktogrammen inelastisch gefilterter Bilder mit der Intensität im Beugungsdiagramm berücksichtigen.

### 6.1.2 Untergrund und Einhüllende in Diffraktogrammen von inelastisch gefilterten Aufnahmen

Nach der Aufnahme werden die Diffraktogramme der inelastisch gefilterten Bilder berechnet und radial gemittelt. Die experimentelle Intensität im radial gemittelten Diffraktogramm steht mit der in Gl. (4.6) gegebenen theoretischen in der Beziehung

$$|\hat{j}_{\text{exp}}(u)|^2 = \text{MTF}_{\text{CCD}}^2(u) |\hat{j}_{\text{theo}}(u)|^2 + B(u). \quad (6.6)$$

Die Bestimmung und Korrektur der Modulationsübertragungsfunktion der CCD-Kamera  $\text{MTF}_{\text{CCD}}^2(u)$  und des Untergrundes  $B(u)$  (durch das Schrottrauschen) erfolgt ebenso wie bei der Auswertung der Phasenkontrastaufnahmen und wurde bereits in Abschnitt 5.2.1 ausführlich besprochen. Die

bei der Diskussion der Bestimmung der CTF in  $\text{MTF}_{\text{err}}^2(u)$  zusammengefaßten Einhüllenden durch leichte Probenverkipfung oder Vibrationen spielen wegen der geringeren Auflösungen für inelastische Aufnahmen keine Rolle.

### 6.1.3 Bestimmung des Strukturfaktors bei kleinen Streuwinkeln

Die Intensität in einem Feinbereichsbeugungsdiagramm einer amorphen monoatomaren Folie ist nach Gl. (4.24) außer auf der optischen Achse proportional zum Zwei-Teilchen-Strukturfaktor  $S(u)$ , wenn man exakt parallele Beleuchtung verwendet. Unter praktischen Bedingungen ist die Beleuchtung immer leicht konvergent, wodurch man im Beugungsdiagramm im Bereich kleiner Streuwinkel einen Untergrund  $j_{A,U}(u)$  aus ungestreuten Elektronen erhält

$$j_A(u) = j_{A,U}(u) + \text{const} \cdot S(u) \left| \hat{f}_a(u) \right|^2. \quad (6.7)$$

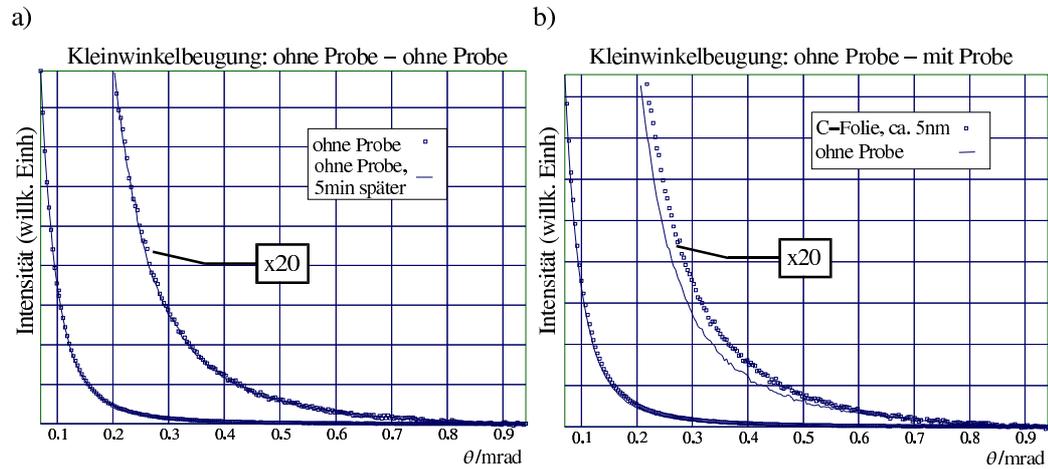
In den Diffraktogrammen inelastisch gefilterter Aufnahmen findet sich Intensität lediglich bei sehr kleinen Raumfrequenzen ( $< 0,5 \text{ nm}^{-1}$ ). In diesem Bereich ist der Untergrundbeitrag  $j_{A,U}(u)$  so hoch, daß er bei der Bestimmung des Strukturfaktors nicht vernachlässigt werden kann. Das Intensitätsprofil der ungestreuten Elektronen entspricht der Winkelverteilung des einfallenden Strahls. Man kann das Profil von  $j_{A,U}(u)$  daher aus einem Beugungsdiagramm ohne Probe im Strahlengang  $j_{A,0}(u)$  bestimmen

$$j_{A,U}(u) = T \cdot j_{A,0}(u). \quad (6.8)$$

Die Skalierungskonstante  $T$  kann jedoch nicht exakt ermittelt werden. Sie gibt den Anteil der Elektronen an, die die Probe ungestreut durchqueren und nimmt daher mit linear zunehmender Probendicke  $t$  exponentiell ab. Vernachlässigt man die genau in Vorwärtsrichtung elastisch *gestreuten* Elektronen, so erhält man  $T$  aber in guter Näherung durch

$$T = \frac{j_{A,U}(0)}{j_{A,0}(0)} \approx \frac{j_A(0)}{j_{A,0}(0)}, \quad (6.9)$$

also durch den Quotienten zwischen der maximalen Intensität im Beugungsbild mit und ohne Probe. Eine solche Messung ist direkt jedoch nicht möglich, da wegen der sehr stark gepeakten Intensität im Beugungsbild beim Streu-



**Abbildung 6.2:** Profile von Beugungsdiagrammen mit und ohne Probe im Kleinwinkelbereich zur Demonstration des Untergrundes durch ungestreute Elektronen. Um die Genauigkeit des Untergrundabzuges zu überprüfen, wurden in a) die radial gemittelten Intensitäten von zwei im Abstand von einigen Minuten aufgenommenen Beugungsbildern ohne Probe miteinander verglichen. Während diese beiden Profile gut übereinstimmen, erkennt man in b einen deutlichen Unterschied zur Intensität im Beugungsbild einer ca. 5 nm dicken Kohlenstoffolie. Die Beugungsdiagramme wurden mit dem Leo 902 ( $\lambda = 4,18$  pm) mit einer Kameralänge von 6,50 m aufgenommen. Der verwendete Konvergenzwinkel, bestimmt aus der Halbwertsbreite der Intensität im Beugungsdiagramm, betrug 0,03 mrad. Für b) ist  $T = 0,93$ .

winkel  $\theta = 0$  minimale Verschiebungen der Beugungsbilder mit und ohne Probe zu unterschiedlichen Pixelanschnitten auf der CCD-Kamera und damit zu großen Fehlern bei der Bestimmung von  $T$  führen. Um eine Näherung für  $T$  zu erhalten, haben wir daher den Verlauf des Verhältnisses von Beugungsbild mit und ohne Probe zum Streuwinkel  $\theta = 0$  extrapoliert. Diese Technik setzt voraus, daß man die Intensität in den Beugungsbildern mit und ohne Probe bis nahe an  $\theta = 0$  aufzeichnet. Dafür ist ein Detektor mit großem Dynamikumfang erforderlich. Der Dynamikbereich der zur Aufnahme verwendeten CCD-Kamera kann erweitert werden, indem man Beugungsbil-

der mit gestaffelten Belichtungszeiten aufnimmt und die Intensitäten in den gesättigten Bereichen der Bilder längerer Belichtungszeiten mit den skalierten Intensitäten aus den Bildern mit kürzerer Belichtungszeit ersetzt.

Eine andere Möglichkeit zur Bestimmung von  $T$  entspringt aus der Überlegung, daß  $T$  dem Intensitätsverhältnis einer hypothetischen Transmissionsmessung (s. Abschnitt 5.1.2) mit elastischer Filterung und der Aperturblende  $\theta_A \rightarrow 0$  entspricht. Bestimmt man stattdessen den Wert für  $T(\theta_{A,0})$  mit einer möglichst kleinen Aperturblende  $\theta_{A,0}$ , so kann man durch Extrapolation einer in [70] gegebenen Näherungsformel für die Abhängigkeit der Transmission von der Aperturblende in Richtung  $\theta_A = 0$  ebenfalls einen Näherungswert für  $T \approx T(0)$  erhalten. Dieser Wert stimmt in der Regel ( $\pm 0,01$ ) mit dem überein, den man nach dem weiter oben beschriebenen Verfahren für  $T$  erhält.

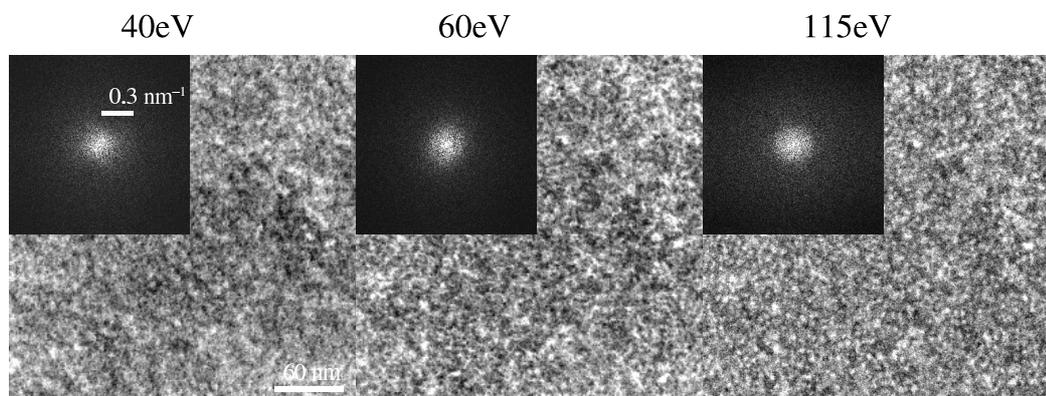
Bei den von uns verwendeten großen Kameralängen tritt bisweilen während einer Aufnahme oder zwischen zwei Aufnahmen eine Strahldrift von einigen Pixeln auf. Fehler durch die Strahldrift wurden dadurch ausgeschlossen, daß wir jeweils zwei Beugungsdiagramme ohne Probe aufnahmen, eines vor der Aufnahme des Beugungsdiagramms mit Probe, eines danach. In Abb. 6.2a sind die Intensitäten in zwei solchen Beugungsdiagrammen ohne Probe miteinander verglichen. Es ergibt sich eine gute Übereinstimmung. In Abb. 6.2b ist dagegen die Differenz zwischen Beugungsdiagramm mit und ohne Probe erkennbar. Es dürfte jedoch deutlich werden, daß wegen des im Vergleich zu dieser Differenz sehr hohen Untergrundes und wegen des nicht exakt bestimmbareren Wertes für  $T$  nur eine beschränkte Genauigkeit bei der Bestimmung von  $S(u)$  aus dem elastischen Beugungsdiagramm erreicht werden kann.

Erleichtert wird die Bestimmung des Strukturfaktors lediglich dadurch, daß die Atomformfaktoren in dem Raumfrequenzbereich, in dem sich in den inelastischen Diffraktogrammen Intensität befindet, nahezu konstant sind (Punkstreuernäherung). Die nach Abzug des Untergrundes verbleibende Intensität liefert also direkt den Strukturfaktor für kleine Winkel

$$S(u) \approx \text{const} (j_A(u) - T \cdot j_{A,0}(u)). \quad (6.10)$$

## 6.2 Ergebnisse

In Abb. (6.3) erkennt man drei bei unterschiedlichen Energieverlusten aufgenommene inelastisch gefilterte Bilder einer amorphen Siliziumfolie nebst der entsprechenden inelastischen Diffraktogramme. Das Bild mit der Bezeichnung 115 eV wurde auf der bei 100 eV beginnenden Silizium-L-Kante aufgenommen. Die Bilder zeigen deutliche Intensitätsvariationen, deren kleinste Periode in der Größenordnung 2–3 nm liegt. In den Diffraktogrammen ist bis



**Abbildung 6.3:** Inelastisch gefilterte Bilder einer ca. 12 nm dicken Siliziumfolie. Die angegebenen Energieverluste geben die Mitte des 10 eV breiten Energiefensters an. Bei höheren Energieverlusten wurden längere Belichtungszeiten verwendet. Man erkennt deutlich die inhomogene Intensität in den Bildern. Die kleinste erkennbare Intensitätsvariation hat eine Periode von 2 – 3 nm. In die Bilder eingesetzt sind die entsprechenden Diffraktogramme. Es ist in allen Diffraktogrammen Intensität bis ca.  $0,4\text{nm}^{-1}$  vorhanden.

ca.  $0,4\text{nm}^{-1}$  Intensität vorhanden. Vom Zentrum der Diffraktogramme fällt die Intensität zu höheren Raumfrequenzen steil ab. In früheren Arbeiten [25] wurde dieser steile Abfall dem Einfluß der ITF zugeschrieben. Dies geschah auf der Basis der Annahme, die aufgedampften Folien seien ideal amorph (vgl. 4.8), wodurch die Intensität im Diffraktogramm genau den Verlauf der ITF hätte. In dieser Beschreibung sind die in Abb. 6.3 zu beobachtenden Intensitätsschwankungen als auf den Abbildungsprozess zurückzuführende Artefakte zu interpretieren. In [25] ging es allerdings nicht um eine quantitative Untersuchung der Diffraktogrammintensität, sondern um Auflösungsmessun-

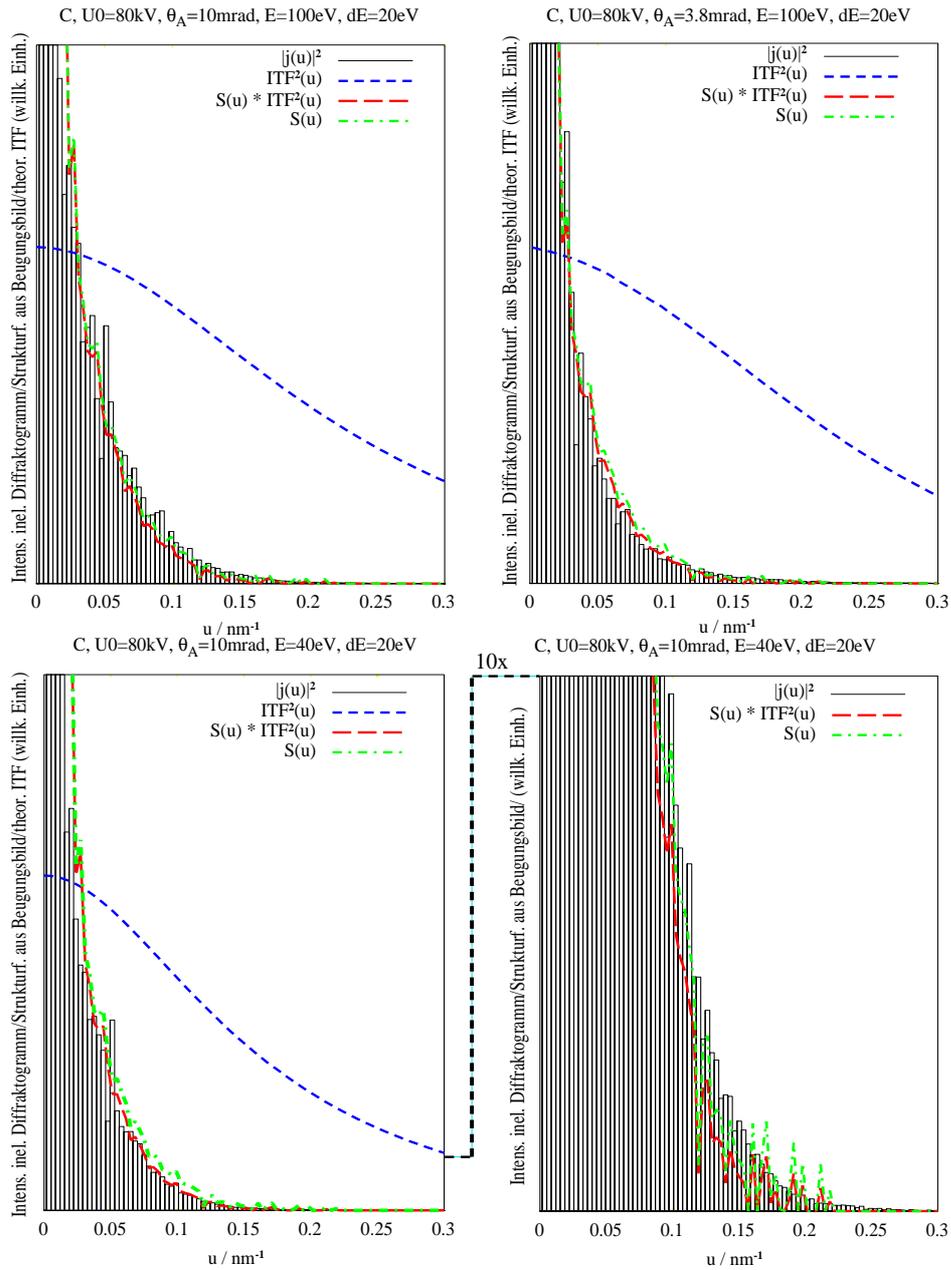
gen, für die nur die Größe des Diffraktogrammbereichs, in dem Intensität vorhanden ist, von Interesse ist. Die Variation dieses Bereiches bei Änderung von Abbildungsparametern ergab jedoch [24, 25] Diskrepanzen zum aus theoretischen Rechnungen zur ITF zu erwartenden Verhalten.

### 6.2.1 Vergleich von Diffraktogramm und Strukturfaktor

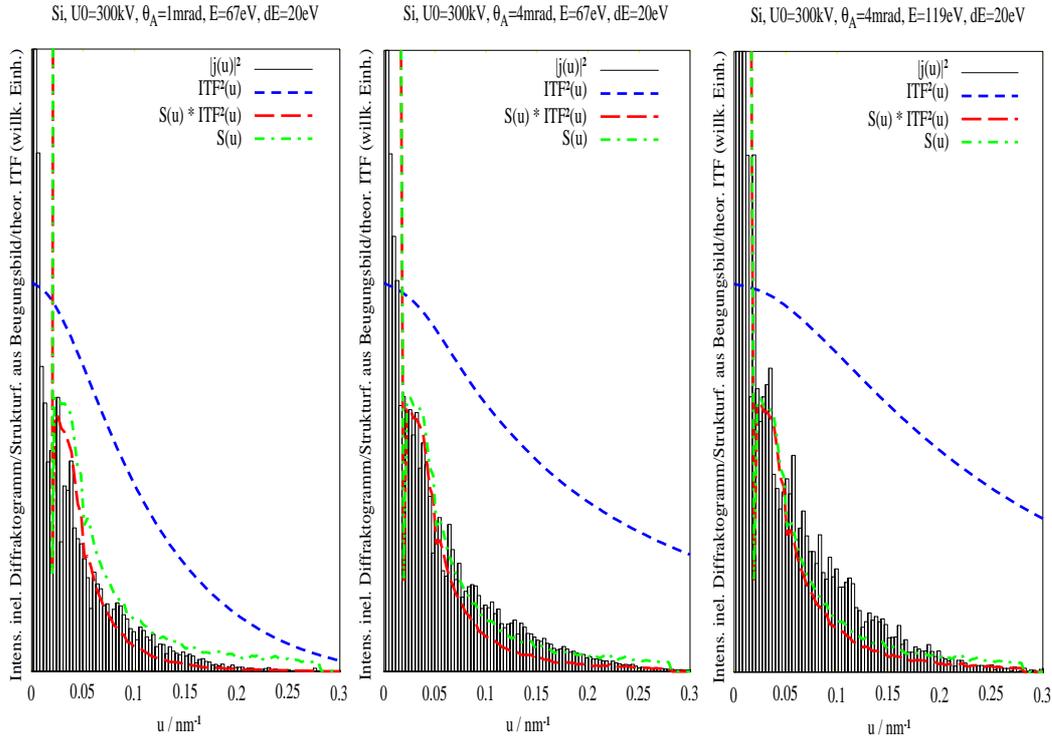
Unseren Messungen zufolge ist für den starken Abfall der Intensität in inelastisch gefilterten Diffraktogrammen nahezu ausschließlich der Strukturfaktor verantwortlich. Dies erkennt man deutlich in den Abbildungen 6.4 und 6.5, wo die Intensität in radial gemittelten inelastischen Diffraktogrammen  $|\hat{j}(u)|^2$  von Kohlenstoff (Abb. 6.4) und Silizium (Abb. 6.5) mit dem aus dem elastischen Beugungsbild bestimmten Strukturfaktor  $S(u)$  verglichen ist. Die Diffraktogrammintensitäten sind gemäß Abschnitt 6.1.2 untergrundkorrigiert und wurden durch das Quadrat der Kamera-MTF dividiert. In Abb. 6.4 wurden inelastische Diffraktogramme und Strukturfaktor von derselben Probenstelle mit demselben Mikroskop bestimmt.<sup>2</sup> Um jeglichen sonstigen Einfluß des Gerätes auszuschließen, wurden Strukturfaktor und inelastisches Diffraktogramm in Abb. 6.5 an verschiedenen Geräten (und folglich auch unterschiedlichen Probenstellen) gemessen. Man erkennt in beiden Abbildungen eine recht gute Übereinstimmung zwischen Diffraktogrammintensität  $|\hat{j}(u)|^2$  und Strukturfaktor  $S(u)$ . Die Variation von Aperturblende und Energieverlust hat dagegen nur wenig Einfluß auf den Verlauf der Diffraktogrammintensität. Der Abfall der theoretisch berechneten inelastischen Übertragungsfunktion ist zu flach, um den Verlauf der Diffraktogrammintensität alleine erklären zu können.

---

<sup>2</sup>Die Größe des zur Aufnahme des Beugungsbildes verwendeten Probenbereichs unterscheidet sich immer ein wenig von der des Bereiches, der für die Intensität im inelastischen Diffraktogramm verantwortlich ist. Für das inelastische Diffraktogramm ist der auf die CCD-Kamera fallende Bildbereich ausschlaggebend, für das Beugungsbild wird der Probenbereich mit der Selektorblende ausgewählt.



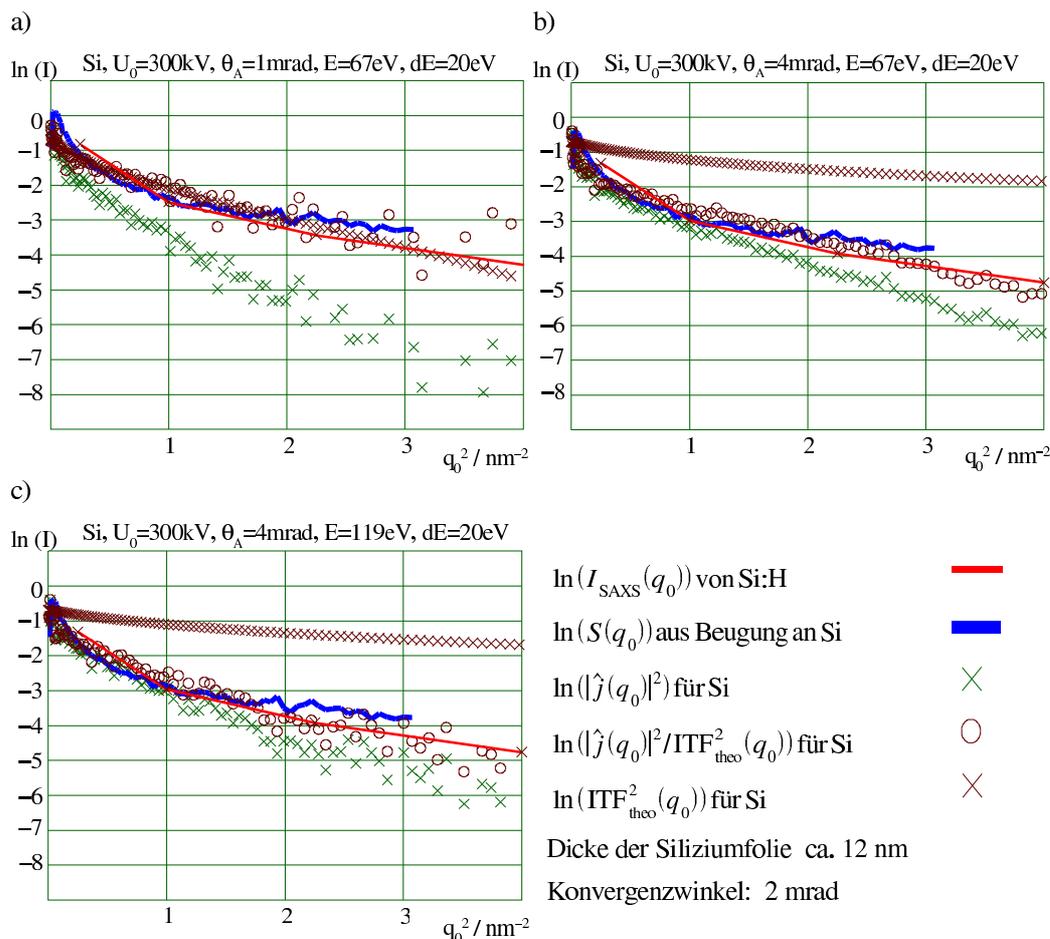
**Abbildung 6.4:** Vergleich der Intensität in radial gemittelten Diffraktogrammen inelastisch gefilterter Aufnahmen ( $|j(u)|^2$ ) einer zuvor leicht strahlengeschädigten amorphen Kohlenstoffolie ( $t \approx 5\text{nm}$ ) mit der theoretischen inelastischen Übertragungsfunktion  $\text{ITF}(u)$  und dem aus Kleinwinkelbeugungsbildern bestimmten Zwei-Teilchen-Strukturfaktor  $S(u)$ . Bei der Aufnahme der inelastisch gefilterten Bilder wurden der Aperturwinkel und der Energieverlust variiert. Die Beugungsbilder wurden kurz nach den inelastischen Bildern von annähernd dem gleichen Probenbereich aufgenommen. Das Diagramm rechts unten ist gegenüber dem links unten zehnfach vergrößert.



**Abbildung 6.5:** Vergleich der Intensität in radial gemittelten Diffraktogrammen inelastisch gefilterter Aufnahmen (dunkle Balken,  $|\hat{j}(u)|^2$ ) einer amorphen Siliziumfolie ( $t \approx 12\text{nm}$ ) mit der theoretischen inelastischen Übertragungsfunktion  $\text{ITF}(u)$  und dem aus Kleinwinkelbeugungsbildern bestimmten Zwei-Teilchen-Strukturfaktor  $S(u)$ . Bei der Aufnahme der inelastisch gefilterten Aufnahmen wurden der Aperturwinkel und der Energieverlust variiert. Die Beugungsbilder wurden am Leo 902, die inelastisch gefilterten Aufnahmen am Jeol 3010 erstellt.

Der starke Abfall des Strukturfaktors aufgedampfter amorpher Silizium-Folien ist seit langem aus der Kleinwinkelröntgenbeugung bekannt [78]. Der Abfall setzt sich demnach bis ca.  $u = 0,5 - 0,7\text{nm}^{-1}$  fort, wo er in den ideal-amorph-artigen, d.h. mehr oder weniger flachen Teil des Strukturfaktors übergeht. Für diesen Verlauf des Strukturfaktors werden Fehlstellen im amorphen Netzwerk verantwortlich gemacht [8], [48]. Jüngere Untersuchungen deuten aber darauf hin, daß aufgedampfte amorphe Folien auch eine mikrogranulare Struktur in einer Größenordnung von ca. 2 nm aufweisen, welche zusätzlich zum Strukturfaktor bei kleinen Raumfrequenzen beiträgt [23].

Unsere quantitativen Untersuchungen zeigen, daß der diskutierte Abfall des Strukturfaktors auch in inelastisch gefilterten Bildern beobachtet werden kann. Damit ist gemäß Gleichung (4.6) gleichzeitig der experimentelle Beweis erbracht, daß sich die Intensität in inelastisch gefilterten Bildern zumindest sehr dünner amorpher Proben im Rahmen einer linearen Abbildungstheorie beschreiben läßt. Strukturfaktoren im Bereich kleiner Raumfrequenzen können also auch direkt aus inelastischen Diffraktogrammen bestimmt werden. Insbesondere sollte es daher möglich sein, aus Diffraktogrammen von Elementverteilungsbildern direkt partielle Strukturfaktoren zu erhalten. Diese können sonst nur aufwendig durch Isotopensubstitution aus Neutronenstreuexperimenten (SANS) [76] oder durch Ausnutzung der anomalen Dispersion bei der Röntgen-Kleinwinkelstreuung (ASAXS) [30] ermittelt werden. Es stellt sich aber die Frage nach dem Einfluß der inelastischen Übertragungsfunktion. Wegen des vergleichsweise starken Abfalls des Strukturfaktors ist ihre Bedeutung bei der linearen Auftragung in den Abbildungen 6.5 und 6.4 nicht einzuschätzen. In Abb. 6.6 haben wir daher die inelastische Diffraktogrammintensität  $|\hat{j}(u)|^2$ , den Strukturfaktor  $S(u)$  sowie das Quadrat der theoretisch berechneten ITF logarithmisch über  $q_0^2$  aufgetragen. Eine solche Auftragung ( $\ln S$  gegen  $q_0^2$ ) bezeichnet man als Guinier-Plot [26]. Man beachte, daß gemäß der üblicherweise für Guinier-Plots gewählten Darstellung die Länge des elastischen Streuvektors  $q_0 = 2\pi u$  zur Angabe der Raumfrequenz verwendet wurde. Zusätzlich ist in die Diagramme die mit der theoretisch berechneten ITF korrigierte Diffraktogrammintensität und die zum Strukturfaktor proportionale Intensität  $I_{\text{SAXS}}$  aus einem Kleinwinkelröntgenbeugungsexperiment [1] an Folien aus hydrogeniertem amorphem Silizium (Si:H) eingetragen. Diese wurden durch Glimmentladung in Silan hergestellt. Der Strukturfaktor solcher Folien entspricht im Kleinwinkelbereich demjenigen von im Hochvakuum aufgedampften amorphen Siliziumfolien [1, 59]. Die Röntgenbeugungsintensität und der Strukturfaktor wurden gegenüber der Diffraktogrammintensität jeweils willkürlich skaliert, um einen Vergleich der Steigung bei höheren Raumfrequenzen zu ermöglichen.



**Abbildung 6.6:** Guinier-Plots [26] der Intensität in radial gemittelten inelastischen Diffraktogrammen ( $|\hat{j}(q_0)|^2$ ) einer amorphen Siliziumfolie ( $t \approx 12\text{nm}$ ), der theoretischen inelastischen Übertragungsfunktion  $\text{ITF}(q_0)$  und dem aus Kleinwinkelbeugungsbildern bestimmten Zwei-Teilchen-Strukturfaktor  $S(q_0)$ . Bei der Aufnahme der inelastisch gefilterten Aufnahmen wurden der Aperturwinkel und der Energieverlust variiert. Zusätzlich ist die mit der theoretischen  $\text{ITF}(q_0)$  korrigierte Diffraktogrammintensität und die Kleinwinkelröntgenbeugungsintensität  $I_{\text{SAXS}}(q_0)$  einer äquivalenten Si:H-Folie eingetragen. Die Beugungsbilder wurden am Leo 902, die inelastisch gefilterten Aufnahmen am Jeol 3010 erstellt. Die SAXS-Intensität von Si:H wurde aus [1] entnommen. Achtung: Gemäß der Konvention für Guinier-Plots wurde zur Angabe der Raumfrequenz auf der Ordinate die Länge des elastischen Streuvektors  $q_0 = 2\pi u$  verwendet.

In dieser Auftragung ist der Einfluß der ITF deutlich an der Variation der Steigung der unkorrigierten Diffraktogrammintensität bei Verwendung unterschiedlicher Abbildungsparameter zu erkennen. Die Tatsache, daß die Stei-

gung der mit der theoretischen ITF korrigierten Diffraktogrammintensität ( $|\hat{j}(q_0)|^2 / \text{ITF}_{\text{theo}}^2(q_0)$ ) unabhängig von den gewählten Abbildungsparametern ist und in etwa die Steigung der beiden zum Vergleich angegebenen Struktur-faktoren ( $S(q_0)$  und  $I_{\text{SAXS}}$ ) wiedergibt, deutet außerdem auf die Richtigkeit der theoretisch berechneten ITF. Besonders deutlich ist der Einfluß der ITF bei Vergleich von Abb. 6.6a) mit den anderen beiden Teilabbildungen. Die für Abb. 6.6a) verwendete Aperturblende  $\theta = 1\text{mrad}$  würde für Strukturbe-stimmungen sicherlich nicht verwendet. Sie eignet sich aber vorzüglich zur Demonstration des Einflusses der ITF.

Die leichten Unterschiede in der Steigung der mit der ITF korrigierten Dif-fraktogrammintensität zu  $I_{\text{SAXS}}$  sind nicht verwunderlich, da es sich um eine andere Probe handelt.

Die Fehlerquellen bei der Bestimmung des Struktur-faktors mit elastischer Beugung wurden in Abschnitt 6.1.3 bereits ausführlich erläutert. Kleinere Fehler bei der Bestimmung der Transmissionskonstanten  $T$  machen sich im Struktur-faktor besonders bei höheren Raumfrequenzen bemerkbar, da der Strukturanteil im Bereich kleiner Winkel wesentlich stärker abfällt als der Un-tergrund. Dazu kommen Abweichungen durch den Sauerstoffanteil in den Fo-lien (vgl. Abschnitt 6.1.1). Wegen dieser Ungenauigkeiten ist es nicht möglich, die inelastische Übertragungsfunktion direkt über die Division der inelasti-schen Diffraktogrammintensität durch den Struktur-faktor zu erhalten, wie von Gl. (4.6) suggeriert.

### 6.2.2 Abhängigkeit der inelastischen Übertragungs-funktion von Abbildungsparametern

Die Parameterabhängigkeit der ITF können wir aber auch untersuchen, ohne den Struktur-faktor kennen zu müssen. Bildet man das Verhältnis zweier in-elastischer Diffraktogramme, die für unterschiedliche Energieverluste  $E_1, E_2$  bzw. Aperturhalbwinkel  $\theta_{A,1}, \theta_{A,2}$  aber von derselben Probenstelle ermittelt wurden, so erhält man für eine Folie, die nur aus einem Element besteht

gemäß Gl. (4.6)

$$\frac{|\hat{j}_{E_1, \theta_{A,1}}(u)|^2}{|\hat{j}_{E_2, \theta_{A,2}}(u)|^2} = \text{const} \cdot \frac{\text{ITF}_{E_1, \theta_{A,1}}^2(u)}{\text{ITF}_{E_2, \theta_{A,2}}^2(u)}. \quad (6.11)$$

Neben dem Strukturfaktor kürzen sich bei der Verhältnisbildung auch eventuelle Fehler bei der Bestimmung der  $\text{MTF}_{\text{CCD}}(u)$  heraus.

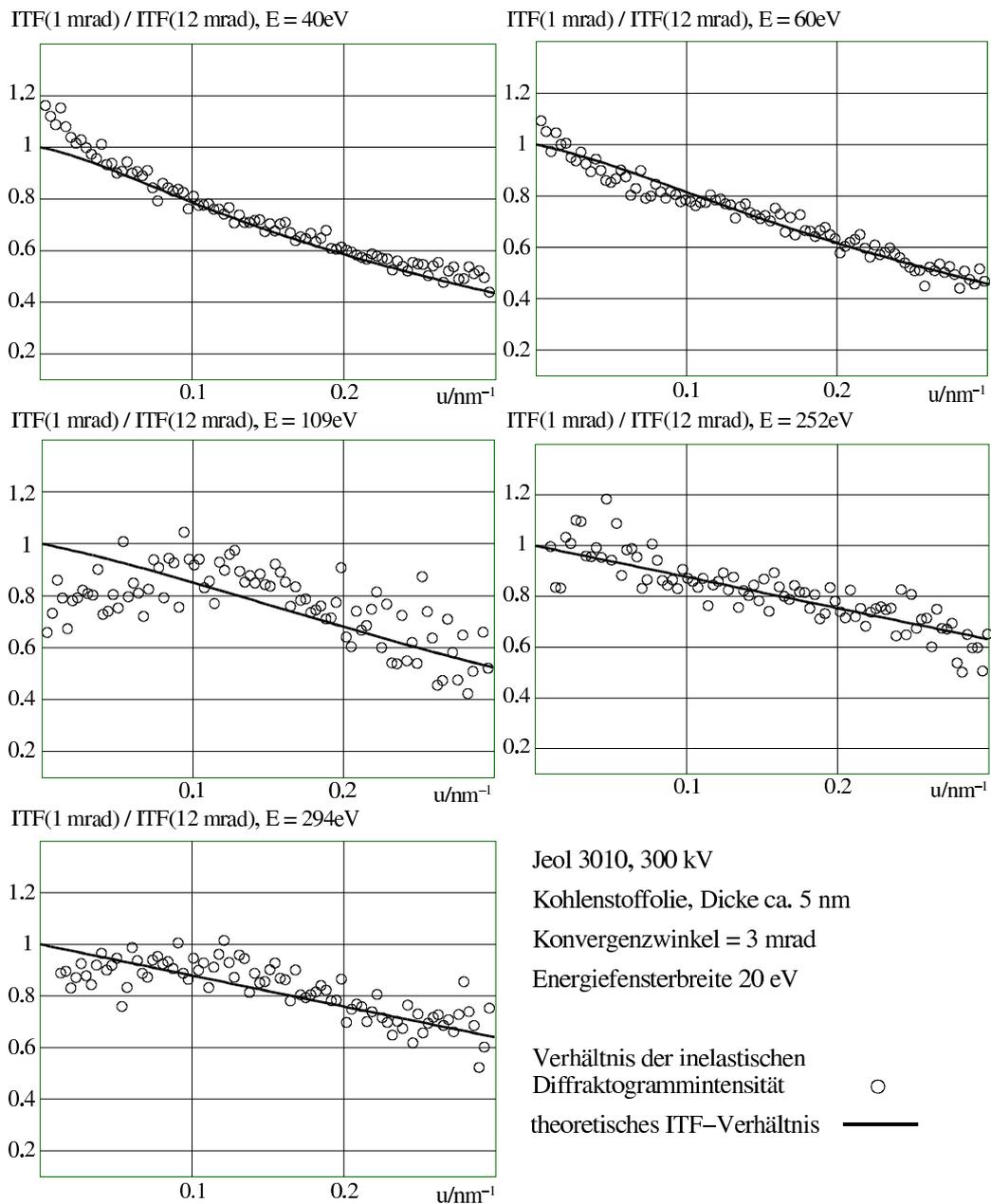
Wie in Abschnitt 6.1.1 ausführlich besprochen, enthalten die von uns verwendeten Folien aber einen mehr oder weniger großen Anteil an Sauerstoff. In diesem Fall gilt Gl. (6.11) wegen der Energie- und Winkelabhängigkeit der Koeffizienten  $C_a(E, \theta_A)$  und  $C_b(E, \theta_A)$  der Elemente  $a$  und  $b$  in Gl. (6.2) nur dann, wenn zumindestens näherungsweise die Relation

$$\frac{C_a(E_1, \theta_{A,1})}{C_b(E_1, \theta_{A,1})} = \frac{C_a(E_2, \theta_{A,2})}{C_b(E_2, \theta_{A,2})} \quad (6.12)$$

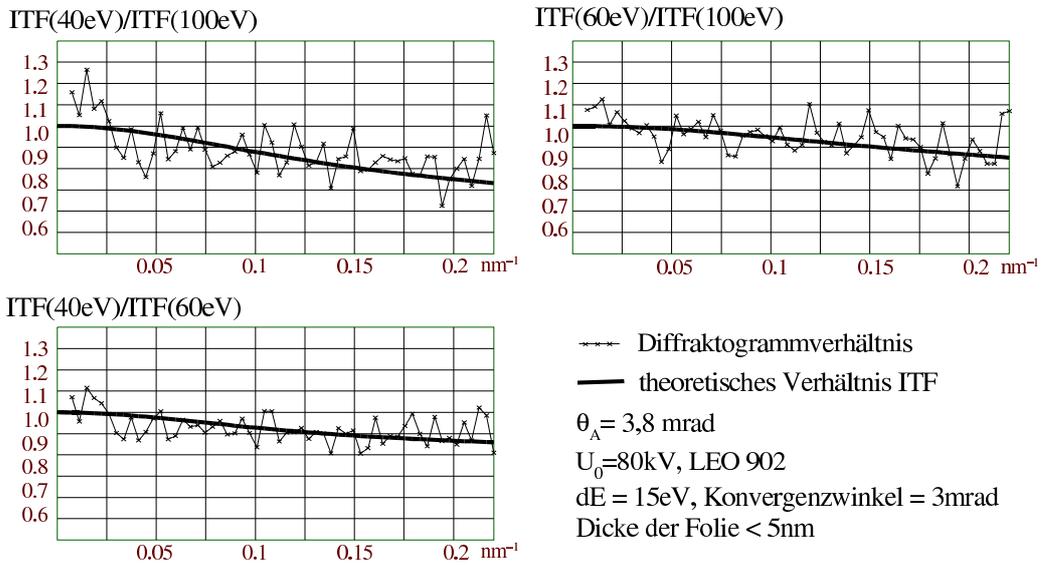
erfüllt ist. Wird nur der Aperturwinkel variiert, d.h.  $E_1 = E_2$ , ist Gl. (6.12) in der Regel zumindestens näherungsweise richtig (in Dipolnäherung ist dies immer erfüllt). Bei Variation des Energieverlustes ist Gl. (6.12) dagegen nur bei nahe beieinanderliegenden Energieverlusten erfüllt. Insbesondere dürfen keine Verhältnisse gebildet werden, wenn eine Ionisationskante überschritten wird oder in Bildern mit verschiedenen Energieverlusten große Kontraständerungen zu erkennen sind.

In den Abb. 6.7ff. ist die Wurzel aus Diffraktogrammverhältnissen mit den Quotienten der entsprechenden theoretisch berechneten Übertragungsfunktionen verglichen. In Abb. 6.7 wurden für die beiden ins Verhältnis gesetzten Diffraktogramme zwei unterschiedliche Aperturblenden benutzt ( $\theta_{A,1} = 1\text{mrad}$ ,  $\theta_{A,2} = 12\text{mrad}$ ,  $E_1 = E_2$ ). Bei Verwendung der sehr kleinen Aperturblende von 1 mrad, welche nur am Jeol 3010 zur Verfügung stand, dämpft die inelastische Übertragungsfunktion die Diffraktogrammintensität sehr viel stärker als bei Verwendung der Aperturblende mit 12 mrad. Daher fallen die Verhältnisse mit zunehmender Raumfrequenz steil ab.

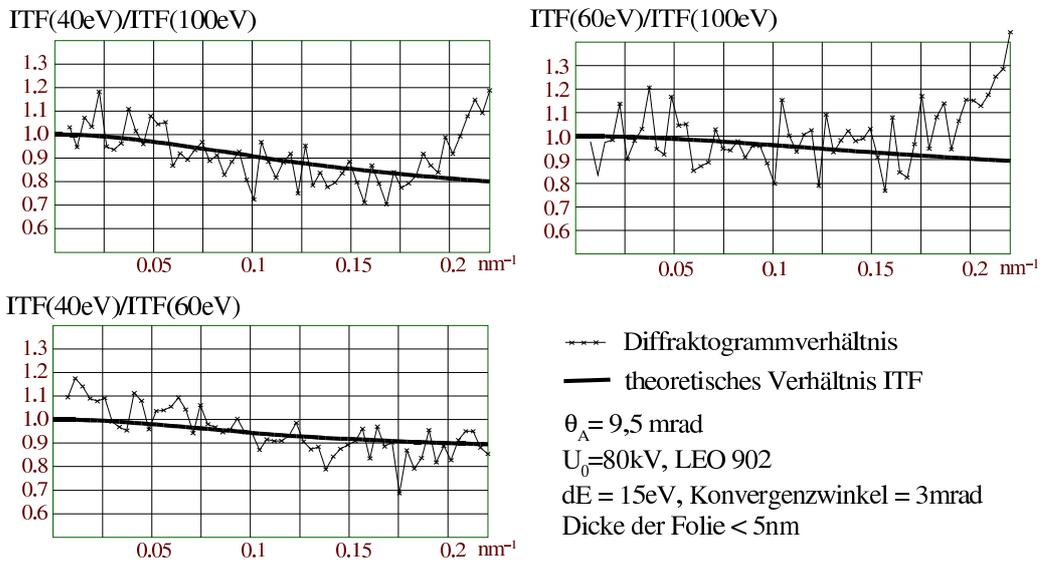
Der Theorie entsprechend ist der Verlauf der experimentellen Diffraktogrammverhältnisse in den Abbildungen 6.8-6.10 sehr viel flacher. Hier



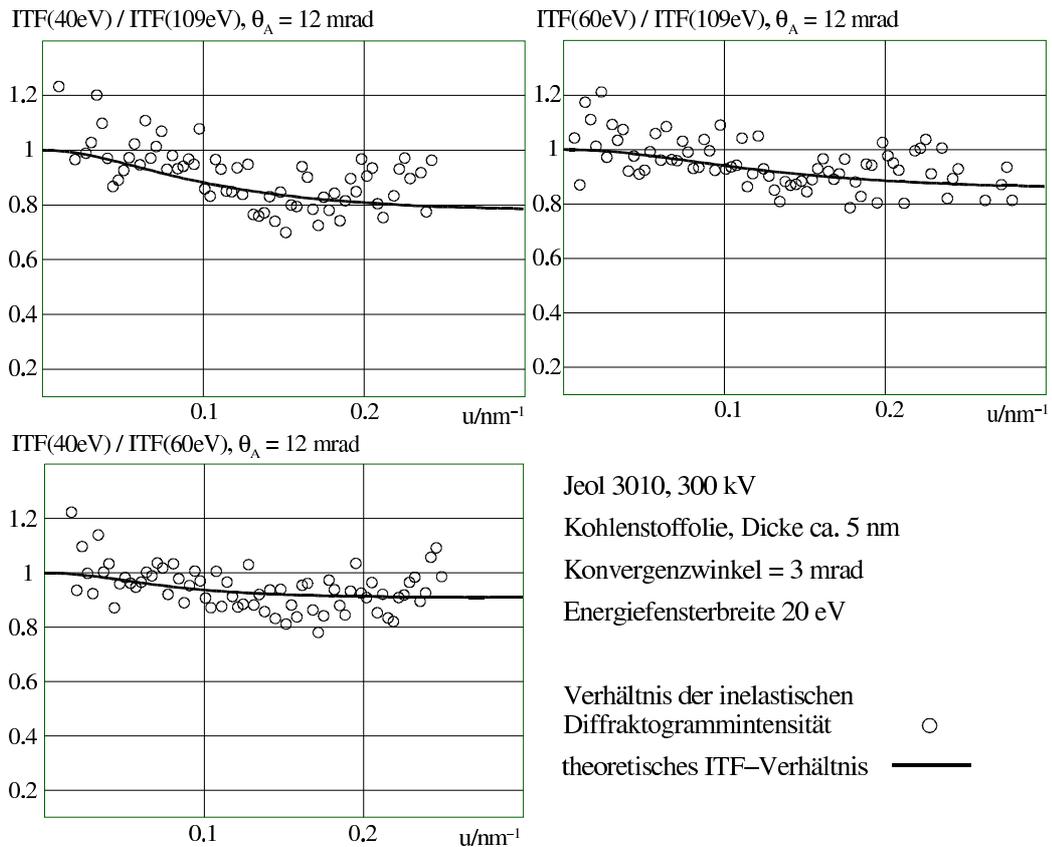
**Abbildung 6.7:** Verhältnisse der Wurzel der Intensität in Diffraktogrammen dünner amorpher Kohlenstoffolien im Vergleich zu entsprechenden theoretisch berechneten Verhältnissen der inelastischen Übertragungsfunktion. Es wurde jeweils das Verhältnis für die beiden Aperturwinkel  $\theta_A = 1$  mrad zu  $\theta_A = 12$  mrad für verschiedene Energieverluste bestimmt.



**Abbildung 6.8:** Verhältnisse der Wurzel der Intensität in Diffraktogrammen dünner amorpher Kohlenstofffolien im Vergleich zu entsprechenden theoretisch berechneten Verhältnissen der inelastischen Übertragungsfunktion. Variiert wurde jeweils der Energieverlust. Die Aperturblende mit dem Halbwinkel  $\theta_A = 9,5 \text{ mrad}$  wurde konstant gehalten.



**Abbildung 6.9:** Verhältnisse der Wurzel der Intensität in Diffraktogrammen dünner amorpher Kohlenstofffolien im Vergleich zu entsprechenden theoretisch berechneten Verhältnissen der inelastischen Übertragungsfunktion. Variiert wurde jeweils der Energieverlust. Die Aperturblende mit dem Halbwinkel  $\theta_A = 3,8 \text{ mrad}$  wurde konstant gehalten.



**Abbildung 6.10:** Verhältnisse der Wurzel der Intensität in Diffraktogrammen dünner amorpher Kohlenstoffolien im Vergleich zu entsprechenden theoretisch berechneten Verhältnissen der inelastischen Übertragungsfunktion. Variiert wurde jeweils der Energieverlust. Die Aperturblende mit dem Halbwinkel  $\theta_A = 12$  mrad wurde konstant gehalten.

wurden für die Verhältnisbildung Diffraktogramme und Übertragungsfunktionen mit jeweils unterschiedlichen Energieverlusten verwendet ( $E_1 \neq E_2$ ). Abb. 6.8 zeigt die Verhältnisse für  $\theta_{A,1} = \theta_{A,2} = 3,8$  mrad, Abb. 6.9 für  $\theta_{A,1} = \theta_{A,2} = 9,5$  mrad. Die Bilder, aus denen wir die Diffraktogramme berechnet haben, wurden am Leo 902 aufgenommen. Entsprechende Diffraktogrammverhältnisse für am Jeol 3010 aufgenommene Bilder zeigt Abb. 6.10.

Trotz der meist verrauschten experimentellen Ergebnisse für die Verhältnisse kann man insgesamt sagen, daß der Verlauf der Diffraktogrammverhältnisse im wesentlichen dem Verhältnis der theoretisch berechneten Übertra-

gungsfunktionen entspricht. Insbesondere können wir die von der Theorie vorhergesagten wesentlichen Tendenzen in der Parameterabhängigkeit der Übertragungsfunktion, also die Zunahme des Übertragungsbereiches bei Verwendung größerer Aperturblenden und höherer Energieverluste, für den verfügbaren kleinen Raumfrequenzbereich bestätigen. Letzterer reicht mit den von uns verwendeten Folien bis maximal etwa  $0,3 - 0,5 \text{ nm}^{-1}$ , abhängig von der bei einem bestimmten Energieverlust maximal verfügbaren Intensität im Bild. Es gelingt daher zum Beispiel nicht, den Einfluß relativistischer Effekte auf die Übertragungsfunktion zu untersuchen, welche sich gemäß der theoretischen Berechnungen erst im Bereich höherer Raumfrequenzen wesentlich bemerkbar machen.

# Kapitel 7

## Anwendung des aus inelastischen Diffraktogrammen bestimmten Strukturfaktors

Im vorangegangenen Kapitel haben wir gezeigt, daß Strukturfaktor bzw. partielle Strukturfaktoren aus inelastischen Bildern bzw. Elementverteilungsbildern bestimmt werden können. Diese Erkenntnis wollen wir im Folgenden anwenden, um einige Informationen über die Eigenschaften der verwendeten amorphen Folien zu erhalten.

### 7.1 Verteilung des Sauerstoffs in den Kohlenstoffolien

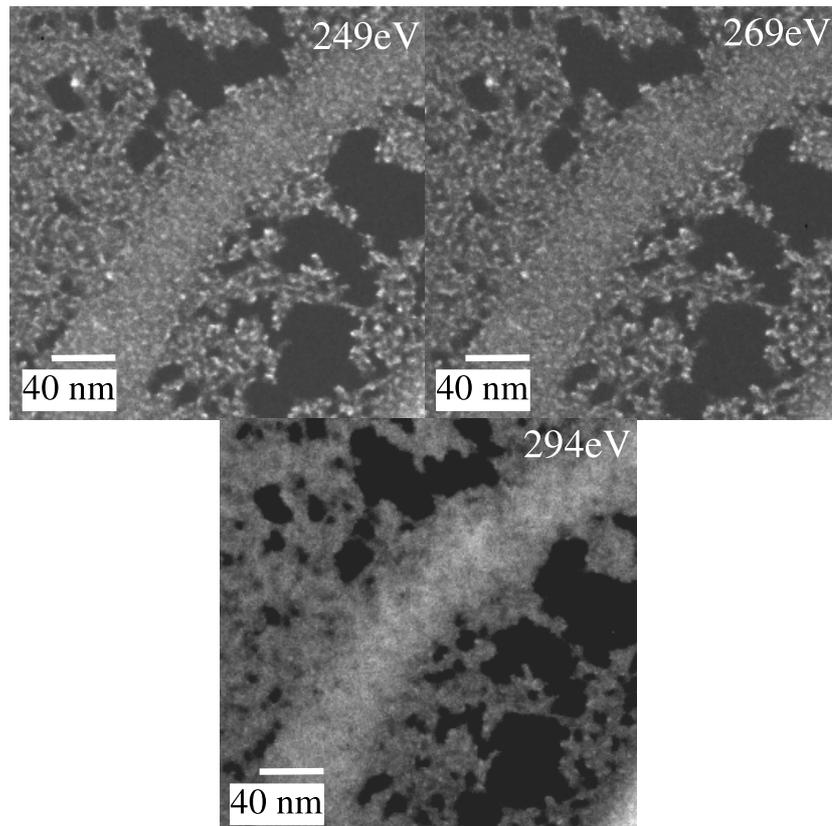
Unser Interesse wurde besonders von dem mysteriösen konstanten Sauerstoffanteil in den Kohlenstoffolien angezogen. Bei den Siliziumfolien ist relativ klar, daß durch den Luftsauerstoff eine Oxidation zu Siliziumdioxid stattfindet, was auch an der Farbänderung der Folien zu erkennen ist. Die Konstanz des Sauerstoffanteils deutet beim Kohlenstoff darauf hin, daß keine

Reaktion mit dem Luftsauerstoff stattfindet. Der Sauerstoff muß also schon beim Aufdampfprozeß in die Folien gelangen. Die von uns zur Erzeugung der Kohlenstoffolien verwendeten Kohlestäbe werden durch Sintern aus einer organischen Paste mit hohem Kohlenstoffanteil hergestellt. Dabei entstehen makroskopische Hohlräume, die Gas, z.B.  $\text{CO}_2$ , enthalten [72]. Beim Aufdampfvorgang gelangt dieses Gas in den Rezipienten, was sich auch durch einen zeitweisen Zusammenbruch des Vakuums bemerkbar macht. Daneben entstehen Kohlenoxide auch durch Reaktionen des Kohlenstoffs mit dem im Rezipienten befindlichen Restgas.

Um Informationen über die Sauerstoffverteilung in den Folien zu erhalten, liegt es nach den Erkenntnissen des letzten Kapitels nahe, mit der Drei-Fenster-Methode ein Sauerstoffelementverteilungsbild zu berechnen und anschließend aus dem Diffraktogramm den Strukturfaktor zu bestimmen. Die Intensität der im Spektrum enthaltenen Sauerstoff-K-Kante bei 532 eV ist aber zu gering, um diese Möglichkeit wirklich praktizieren zu können.

### 7.1.1 Struktursensitiver Kontrast

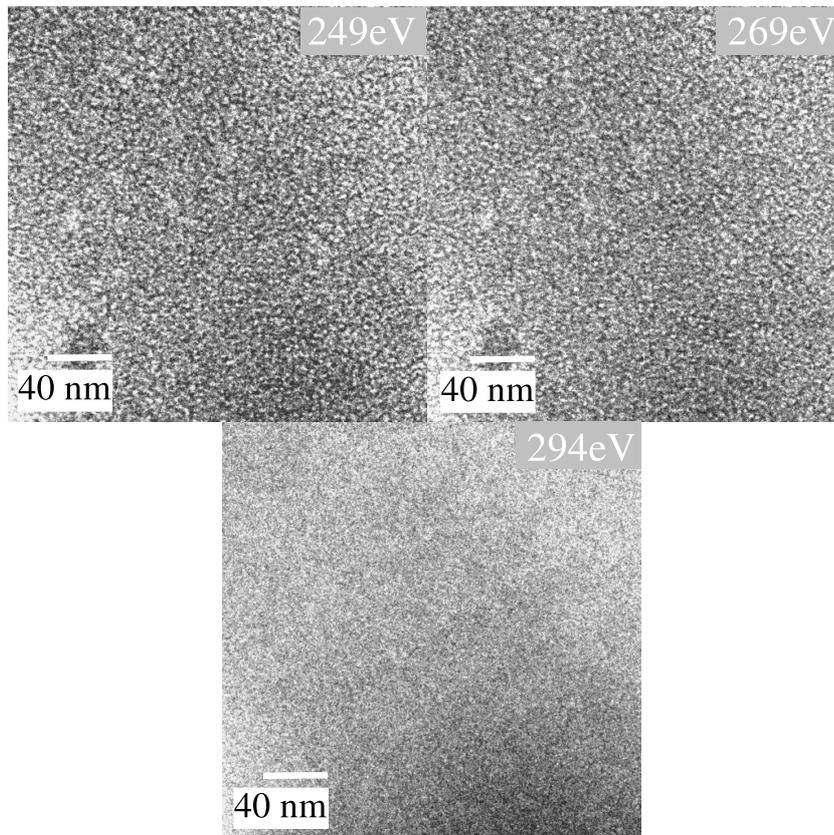
Wir haben stattdessen den sogenannten „Struktursensitiven Kontrast“ [69] genutzt, den man in einem inelastisch gefilterten Bild mit einem Energiefenster direkt unterhalb der Kohlenstoffkante erhält. In diesem Energieverlustbereich ist der Beitrag der Kohlenstoffverteilung zum inelastischen Bild sehr gering und die Intensitätsverteilung wird durch andere in der Probe befindliche Elemente dominiert. In Abb. 7.1 ist dies an einem Kontaminationsring auf einer stark strahlengeschädigten Kohlenstoffolie demonstriert. In dem Bild auf der Kohlenstoffkante ( $E=294\text{eV}$ ) leuchtet der hauptsächlich aus Kohlenstoff bestehende Kontaminationsring hell auf, dagegen dominieren in den Vorkantenbildern andere Kontraste. In dem inelastischen Bild bei 294eV weist die Helligkeitsverteilung eine sehr weiche Modulation auf, die von der Dickenverteilung des Kohlenstoffes herrührt. Dagegen lassen sich in den Vorkantenbildern starke Intensitätsschwankungen mit vergleichsweise



**Abbildung 7.1:** Demonstration des „Struktursensitiven Kontrastes“ am Beispiel eines Kontaminationsringes auf einer stark strahlengeschädigten amorphen Kohlenstoffolie. Im Bild auf der Kohlenstoffkante ( $E=294\text{eV}$ ) leuchtet der Kontaminationsring hell auf, während in den Vorkantenbildern andere Kontraste dominieren.

kurzer Periode erkennen. Diese liegen auf einer sehr gleichmäßigen Intensität im Bereich der Kohlenstoffolie, welche nicht mit den im Bild auf der Kante erkennbaren Dickenänderungen variiert. Da wir weder mit EDX noch mit EELS ein anderes Fremdelement als Sauerstoff in den Kohlenstoffolien identifizieren konnten, müssen wir davon ausgehen, daß die Intensitätsverteilung in den Vorkantenbildern hauptsächlich durch die Sauerstoffverteilung bestimmt wird.

In Abb. 7.2 ist eine inelastisch gefilterte Bilderserie einer frischen Kohlenstoffolie wiedergegeben. Diese war ca. 15 nm dick, um genügend Intensität in den

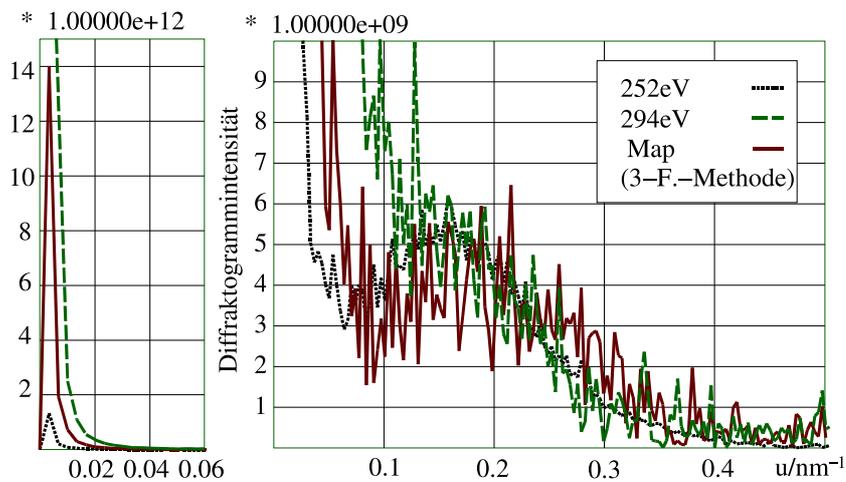


**Abbildung 7.2:** Energiegefilterte Bilderserie einer amorphen Kohlenstoffolie bei verschiedenen Energieverlusten. In den Vorkantenbildern lassen sich Intensitätsfluktuationen mit einer Periode von ca. 2-3 nm erkennen. Im Bild auf der Kohlenstoffkante scheint die Intensität dagegen weitgehend homogen. Das Bild auf der Kohlenstoffkante weist eine wesentlich höhere Gesamtintensität auf als die Vorkantenbilder.

inelastischen Bildern zu erhalten. Außerdem haben wir eine Aperturblende von 12mrad und einen Konvergenzwinkel von 6mrad gewählt. Die Untersuchungen wurden am Jeol 3010 durchgeführt. Die Vorkantenbilder lassen Intensitätsfluktuationen mit einer Periode von ca. 2-3nm erkennen. Das Bild auf der Kohlenstoffkante weist dagegen eine weitgehend homogene Intensität auf, die wesentlich größer ist als die der Vorkantenbilder.

Da wir im vorangegangenen Kapitel zeigen konnten, daß der Verlauf der Diffraktogrammintensität im wesentlichen durch die Struktur bestimmt wird,

sind auch die im Bild erkennbaren Strukturen als Objekteigenschaft interpretierbar. Sie stellen kein Artefakt durch den Abbildungsprozeß dar. Lediglich ihre im Bild erkennbare Größe und Form wird durch den Verlauf der ITF beeinflusst. Der Intensitätsverlauf in den Vorkantenbildern deutet also darauf hin, daß zumindest ein Teil des Sauerstoffs in kleinen lokalen Anhäufungen, welche den hellen Bereichen in den Vorkantenbildern entsprechen, in der Probe vorliegt.



**Abbildung 7.3:** Radial gemittelte Diffraktogramme des Bildes auf der Kohlenstoff K-Kante, aufgenommen bei einem Energieverlust von 294eV, eines Vorkantenbildes, aufgenommen bei einem Energieverlust von 254 eV, und eines mit der Drei-Fenster-Methode berechneten Elementverteilungsbildes. Zum Abzug des Untergrundes wurde das Potenzgesetz in Gl. (2.1) verwendet. Die angegebene Intensitätsskala ist willkürlich. Die Diffraktogramme wurden gegeneinander so skaliert, daß die Höhe des lokalen Maximums bei ca.  $0,15\text{nm}^{-1}$  in allen drei Kurven übereinstimmt. Mit anderer Achsenskalierung ist links zusätzlich der Bereich sehr kleiner Winkel dargestellt, wobei die relative Skalierung der Diffraktogramme aus dem Diagramm rechts beibehalten wurde. Die Diffraktogrammintensitäten sind untergrundkorrigiert und wurden durch das Quadrat der MTF der CCD-Kamera sowie die den experimentellen Parametern angemessene theoretische ITF dividiert.

In Abb. 7.3 sind die radial gemittelten Diffraktogramme des Vorkantenbildes bei  $E = 249\text{ eV}$ , des Bildes auf der Kohlenstoffkante und des mit Hilfe der Drei-Fenster-Methode berechneten Kohlenstoff-Elementverteilungsbildes

eingetragen. Der Verlauf der Intensität in allen drei Diffraktogrammen ist für Raumfrequenzen oberhalb von  $0,15\text{nm}^{-1}$  nahezu identisch und reicht bis ca.  $0,45\text{nm}^{-1}$ . Die in diesem Bereich in allen drei Diffraktogrammen vorhandenen Details korrespondieren mit den in den Vorkantenbildern von Abb. 7.2 erkennbaren feinen Intensitätsvariationen. Solche Intensitätsvariationen müssen also auch in dem Bild auf der Kohlenstoff-K-Kante und in dem des Elementverteilungsbildes vorhanden sein. Sie sind dort aber kaum erkennbar, da die langreichweitigen Intensitätsfluktuationen in diesen Bildern eine wesentlich größere Amplitude haben (man vergleiche das Verhältnis des Peaks für  $u < 0,01\text{nm}^{-1}$  mit dem lokalen Diffraktogrammmaximum bei  $0,15\text{nm}^{-1}$ ). Besonders im Elementverteilungsbild ist die Intensität außerdem sehr verwascht. Im Diffraktogramm treten die entsprechenden Strukturen dagegen klar hervor, da bei einer Fouriertransformation Intensitätsvariationen mit gleicher Periodenlänge aufsummiert werden, wodurch für regelmäßige Muster das Signal-Rausch-Verhältnis im Diffraktogramm wesentlich besser ist als im Bild.

Durch die Korrektur mit der ITF ist die Diffraktogrammintensität des Elementverteilungsbildes proportional zum partiellen Strukturfaktor  $S_{CC}$  (Gl. 4.4) des Kohlenstoffs in der untersuchten Folie. Die Diffraktogrammintensität des Vorkantenbildes entspricht zwar nicht genau dem partiellen Strukturfaktor  $S_{OO}$  des Sauerstoffs, wird aber gemäß obiger Überlegungen von diesem dominiert. Die partiellen Strukturfaktoren von Sauerstoff und Kohlenstoff scheinen also im Raumfrequenzbereich  $u > 0,15\text{nm}^{-1}$  im wesentlichen gleich zu sein und sich im Raumfrequenzbereich  $u < 0,1\text{nm}^{-1}$  zu unterscheiden. Abgesehen vom Verlauf der Diffraktogrammintensität des Elementverteilungsbildes kann man dies auch aus dem Umstand schließen, daß die (ITF-korrigierte) Diffraktogrammintensität sich im Raumfrequenzbereich  $u > 0,15\text{nm}^{-1}$  für Energieverluste von 40eV bis 350eV nicht wesentlich ändert. Dagegen ist der genaue Verlauf der Intensität im Bereich  $u < 0,1\text{nm}^{-1}$  vom Energieverlust abhängig. Der Verlauf der Intensität in diesem Diffraktogrammbereich entspricht für Energieverluste im Bereich 40 bis 120 eV dem Verlauf der Diffrak-

togrammintensität oberhalb der Kohlenstoffkante. Für bei Energieverlusten zwischen 120eV und der Kohlenstoffkante aufgenommene Bilder wird der Peak in der Nähe von  $u = 0$  dagegen mit steigendem Energieverlust zusehends kleiner und nähert sich dem Intensitätsverlauf im Diffraktogramm des Bildes vor der Kohlenstoffkante. Der Anstieg der Intensität mit abnehmender Raumfrequenz im Bereich von  $u < 0,1\text{nm}^{-1}$  ist stark von der Probe (z.B. Probendicke) und der Probenstelle abhängig.

In hydrogeniertem amorphem Silizium befindet sich der größte Teil des Wasserstoffs in molekularer Form ( $\text{H}_2$ ) in den Fehlstellen des amorphen Netzwerks [27]. Eine entsprechende Anordnung des Sauerstoffs in den Fehlstellen des amorphen Kohlenstoffs würde auch die von uns beobachteten Diffraktogrammintensitäten erklären. Es ist zum Beispiel denkbar, daß die sich während des Aufdampfvorganges im Rezipienten befindenden  $\text{O}_2$ -,  $\text{CO}_2$ - und CO-Moleküle in sich bildenden Hohlräumen quasi gefangen werden: Der Intensitätsverlauf im Raumfrequenzbereich  $u > 0,15\text{nm}^{-1}$  wäre in diesem Falle gleich, da der Strukturfaktor einer Ansammlung von Teilchen (Sauerstoff in den Fehlstellen des Kohlenstoffs) für  $u > 0$  dem Strukturfaktor der gleichen Ansammlung von Leerräumen (Fehlstellen des Kohlenstoffs) in einem homogenen Medium entspricht. Da die Kohlenstoffolie außerhalb der Fehlstellen, in denen sich in unserem Modell der Sauerstoff befindet, jedoch nicht vollständig homogen ist, sondern langreichweitige Dichte- und vor allem Dickenunterschiede aufweist, steigt der partielle Strukturfaktor des Kohlenstoffs für  $u < 0,1\text{nm}^{-1}$  mit abnehmender Raumfrequenz wesentlich steiler an als der des Sauerstoffs.

### 7.1.2 Die Größe der Inhomogenitäten

Der Verlauf des Strukturfaktors im Bereich kleiner Raumfrequenzen ist auf mesoskopische Inhomogenitäten der Atomdichte zurückzuführen. Diese Inhomogenitäten können genauso wie Teilchen in einem homogenen Medium behandelt werden. Den Strukturfaktor einer Ansammlung identischer Inho-

mogenitäten kann man folglich als Produkt aus dem Betragsquadrat des Formfaktors  $f_{Ih}(u)$  einer einzelnen Inhomogenität und einer Funktion  $S_{Ih}(u)$  schreiben, welche mit der Abstandsverteilung der Inhomogenitäten zusammenhängt [26]

$$S(u) = |f_{Ih}(u)|^2 \cdot S_{Ih}(u). \quad (7.1)$$

Im Falle einer sehr geringen Dichte von Inhomogenitäten, wodurch der mittlere Abstand zur nächst benachbarten Inhomogenität sehr viel größer ist als deren Radius, ist  $S_{Ih}(u) \approx \text{const.}$

Im Falle sphärischer Teilchen bzw. Inhomogenitäten gilt für das Betragsquadrat des Formfaktors näherungsweise [26]

$$|f_{Ih}(u)|^2 \propto e^{-R_0^2(4\pi^2 u^2)/3} = e^{-R_0^2 q_0^2/3}. \quad (7.2)$$

Dabei bezeichnet man  $R_0$  als Gyrationradius, welcher mit dem Partikelradius  $r$  im Zusammenhang  $R_0^2 = 0,6 r^2$  steht. Für sphärische Partikel bzw. Inhomogenitäten mit geringer Dichte erwartet man daher, daß sich in den in Abschnitt 6.2 eingeführten Guinier-Plots, bei denen der natürliche Logarithmus der zum Strukturfaktor proportionalen Intensität gegen das Quadrat des elastischen Streuvektors  $q_0$  aufgetragen wird, eine Gerade ergibt, aus deren Steigung man den Gyrationradius ablesen kann. Sind in der Probe Inhomogenitäten verschiedener Größe vorhanden, so liefert der Gyrationradius in der Regel die ungefähre Größe der Gruppe von Teilchen, die in der Probe den größten Volumenanteil einnehmen [26].

Für den Fall einer geringen Inhomogenitätendichte erwartet man generell einen monoton fallenden Strukturfaktor. Ein lokales Maximum, wie es in den radial gemittelten Diffraktogrammen in Abb. 7.3 erkennbar ist, deutet immer daraufhin, daß die Verteilungsfunktion  $S_{Ih}(u)$  berücksichtigt werden muß. Das Maximum korrespondiert mit dem mittleren Abstand benachbarter Inhomogenitäten, auch wenn dieser wegen der Dämpfung durch den Formfaktor  $f_{Ih}(u)$  nicht direkt aus der Maximumsposition bestimmt werden kann. Innerhalb größerer Fehlergrenzen kann jedoch die ungefähre Größe der Inhomogenitäten trotzdem aus der Steigung in einem Guinier-Plot entnommen

werden [26]. Auf diese Weise haben wir für die Fehlstellen im Kohlenstoff-Netzwerk bzw. die Sauerstoff-Einlagerungen, die nach der oben aufgestellten Hypothese einander entsprechen, einen Gyrationradius von  $R_0 = 1,4\text{nm}$  bestimmt, was einem Radius  $r$  von ca.  $1,8\text{nm}$  entspricht. Wir haben keine Fehlergrenzen angegeben, da die berechneten Radien aus obengenannten Gründen ohnehin nur als Abschätzung anzusehen sind. Aus den in Abb. 6.6 gezeigten Guinier-Plots erhält man für die dort verwendeten Siliziumfolien einen geringfügig größeren Gyrationradius von  $R_0 = 1,6\text{nm}$ , was einem Teilchenradius  $r$  von ca.  $2\text{nm}$  entspricht.

In [78] wurde mit Kleinwinkelröntgenbeugung nachgewiesen, daß die Größe und Anzahl von Fehlstellen in amorphen Proben keine Materialeigenschaft ist, sondern stark von dem zur Herstellung verwendeten Verfahren abhängt. Insofern ist es nicht ungewöhnlich, daß wir im Falle der Kohlenstoff- und Siliziumfolien ähnliche Gyrationradien für die Inhomogenitäten feststellen konnten. In gesputterten und elektrochemisch hergestellten Silizium- und Germaniumfolien ist die Größe und Dichte der Fehlstellen wesentlich geringer als in aufgedampften Folien [78]. Entsprechend ist der Abfall des Strukturfaktors bei kleinen Raumfrequenzen für diese Proben wesentlich flacher als im Falle von aufgedampften Folien. Im Hinblick auf die genaue Vermessung inelastischer Übertragungsfunktionen könnte es daher interessant sein, unsere Versuche mit auf andere Weise hergestellten amorphen Folien zu wiederholen. Fraglich ist dabei jedoch, ob angesichts der geringeren Inhomogenitätendichte in diesen Materialien im Bereich kleiner Raumfrequenzen ein ausreichendes Signal-Rausch-Verhältnis im Diffraktogramm erreicht werden kann.

## 7.2 Intensität bei kleinen Raumfrequenzen im elastischen Phasenkontrastdiffraktogramm

Wir hatten in Abschnitt 5.5 darauf hingewiesen, daß in experimentellen elastischen Phasenkontrastdiffraktogrammen bei sehr kleinen Raumfrequenzen Abweichungen gegenüber der schwachen Phasenobjektnäherung auftreten. Durch die Erkenntnisse aus dem vorangegangenen Kapitel sind wir nun in der Lage, den Strukturfaktor  $S(u)$  im Bereich kleiner Raumfrequenzen sehr genau aus inelastisch gefilterten Aufnahmen zu bestimmen. Als Verallgemeinerung der WPO-Näherung wollen wir nun zunächst die sogenannte „Schwache-Objekt“ oder WO(weak object)-Näherung [29] einführen, auf deren Basis wir die im Experiment gefundenen Details bei kleinen Raumfrequenzen theoretisch erklären werden.

### 7.2.1 Die Näherung des „Schwachen Objektes“

In dieser Näherung läßt man zu, daß die Transmissionsfunktion nicht nur durch eine imaginäre Komponente wie in Gl. (4.19) sondern auch in ihrem Realteil von eins abweicht

$$\begin{aligned}\tilde{T}(\vec{\rho}) &= 1 + i\varphi(\vec{\rho}) - \epsilon(\vec{\rho}) \\ &= 1 + i \underbrace{[\varphi(\vec{\rho}) + i\epsilon(\vec{\rho})]}_{\tilde{\varphi}(\vec{\rho})}.\end{aligned}\quad (7.3)$$

Für den gegenüber Gl. (4.19) zusätzlichen Term  $\epsilon(\vec{\rho})$  sind zwei Ursachen verantwortlich. Zum einen ist hier die sogenannte „Absorption“ zu nennen. Dieser Terminus hat sich in der elektronenmikroskopischen Literatur eingebürgert, auch wenn er nicht vollständig den Sachverhalt trifft. Tatsächlich werden im eigentlichen Sinne des Wortes praktisch keinerlei Elektronen von den hier behandelten sehr dünnen Folien absorbiert. Als „absorbiert“ sieht

man dagegen alle Elektronen an, die nicht zur elastischen Bildintensität beitragen, also alle inelastisch gestreuten Elektronen. Daneben tragen zu  $\epsilon(\vec{\rho})$  die Terme quadratischer Ordnung in  $\varphi(\vec{\rho})$  aus der Entwicklung der Exponentialfunktion in Gl. (4.17) bei. Diesen Anteil bezeichnen wir im folgenden als „elastischen Beitrag“ zu  $\epsilon(\vec{\rho})$ . Wir nehmen nun zunächst an, daß der Term  $\epsilon(\vec{\rho})$  genauso wie  $\varphi(\vec{\rho})$  (s. Gl. (4.21)) linear in der projizierten Atomverteilung  $\bar{n}_a(\vec{\rho})$  ist. Diese Annahme wird für die von uns verwendeten dünnen amorphen Proben weiter unten gerechtfertigt. Im Rahmen dieser Annahme gilt für die Fouriertransformierte von  $\tilde{\varphi}(\vec{\rho})$

$$\hat{\tilde{\varphi}}(\vec{u}) = \lambda \hat{n}_a(\vec{u}) f_{a,\eta}(\vec{u}), \quad (7.4)$$

also der gleiche Zusammenhang mit dem Atomformfaktor wie in WPO-Näherung, allerdings mit dem Unterschied, daß jetzt der Atomformfaktor

$$\begin{aligned} f_{a,\eta}(\vec{u}) &= |f_{a,\eta}(\vec{u})| e^{i\eta(u)} \\ &\approx f_a(\vec{u}) e^{i\eta(u)} \end{aligned} \quad (7.5)$$

eine komplexe Größe ist. Die Näherung in Gl. 7.5 gilt für kleine  $\eta$ . Werte für den absorptiven Beitrag zum Imaginärteil des Atomformfaktors erhält man mit den in [83] bzw. [7] beschriebenen Programmen. Der elastische Beitrag zu  $\eta(u)$  ist in [46] für eine Beschleunigungsspannung von 50 kV tabelliert. Werte für beliebige Beschleunigungsspannungen und Elemente erhält man bequem mit einem im Umfang von [71] enthaltenen Programm (WKB), welches die Berechnung von atomaren Formfaktoren in Hochenergie-Näherung gestattet. Für sehr kleine Winkel erhält man den Imaginärteil der elastischen Streuamplitude außerdem über das optische Theorem aus dem totalen (d.h. elastischen und inelastischen) Wirkungsquerschnitt  $\sigma_{\text{tot}}$ [74]

$$\text{Im}\{f_{a,\eta}(0)\} = \frac{k}{4\pi} \sigma_{\text{tot}}. \quad (7.6)$$

Die beiden oben genannten Beiträge zu  $\eta(u)$  sind im Experiment nicht zu unterscheiden. Beide nehmen mit ansteigender Raumfrequenz monoton zu. Zur Berechnung des Kontrastes im Bild ersetzen wir nun in Gl. (4.27)  $T(\vec{\rho})$

durch  $\tilde{T}(\rho)$  aus Gl. (7.3) für das schwache Objekt. Man erhält dann für kleine  $\eta(u)$ , unter Verwendung von Gl. (7.4) für die Fouriertransformierte von  $\tilde{\varphi}(\vec{\rho})$  und mit dem komplexen Atomformfaktor aus Gl. (7.5) für die Fouriertransformierte des Kontrastes

$$\hat{C}(\vec{u}) = \lambda f_a(u) \underbrace{E_c(u) E_a(u) \text{CTF}_\eta(u)}_{\text{CTF}_{\eta, \text{ges}(u)}} \hat{n}_A(\vec{u}), \quad (7.7)$$

also von der Struktur her den gleichen Ausdruck wie für das schwache Phasenobjekt (Gl. (4.41)). Im Unterschied zum schwachen Phasenobjekt enthält das Argument des Sinus in der gemischten Phasen-Amplituden-Kontrastübertragungsfunktion jedoch die Phase  $\eta(u)$

$$\text{CTF}_\eta(u) = -2 \sin[\gamma(\lambda u) - \eta(u)]. \quad (7.8)$$

Da  $\eta(0) > 0$  ist, ergibt sich eine endliche Übertragung also auch bei einer Raumfrequenz  $u = 0$ . Vor dem ersten Maximum von  $|\sin(\gamma(\lambda u) - \eta(u))|$  hat  $\text{CTF}_\eta$  nur bei überfokussierter Linse eine Nullstelle, da nur in diesem Fall  $\gamma(\lambda u) > 0$  ist.

Bevor wir nun zum Vergleich zwischen Theorie und Experiment für die Diffraktogrammintensität im Kleinwinkelbereich kommen, sei noch einmal die oben gemachte Voraussetzung der linearen Abhängigkeit des Termes  $\epsilon(\rho)$  von der Atomverteilung  $\bar{n}_a(\vec{\rho})$  diskutiert, welche es ermöglichte, einfach den komplexen Atomformfaktor für den reellen zu substituieren. Im allgemeinen Fall ist diese Voraussetzung sicherlich nicht erfüllt, da zu  $\epsilon(\rho)$  Terme zweiter Ordnung im projizierten Probenpotential beitragen, was gemäß Gl. (4.21) zu einem Beitrag quadratischer Ordnung in der Atomverteilung führt

$$\bar{V}^2(\vec{\rho}) = \left[ \int \bar{n}_a(\vec{\rho}') \bar{V}_a(\vec{\rho} - \vec{\rho}') d^2 \vec{\rho}' \right]^2. \quad (7.9)$$

Dieser Term ist dann linear in der Atomverteilung, wenn kein Überlapp zwischen den Atompotentialen vorhanden ist. Diese Voraussetzung ist für einen Festkörper normalerweise nicht erfüllt. Das projizierte Potential einer sehr dünnen amorphen Folie läßt sich aber in einen vom Ort unabhängigen konstanten Term, welcher dem mittleren projizierten Potential entspricht, und

einen vom Ort abhängigen Term zerlegen. Der vom Ort unabhängige Term spielt für die Kontrastberechnung keine Rolle. Der vom Ort abhängige Term fluktuiert mit einer Amplitude von einer oder wenigen projizierten Atompotentialen. In diesem Fall sind die Terme zweiter Ordnung im projizierten Probenpotential näherungsweise linear von der projizierten Atomverteilung abhängig [10].

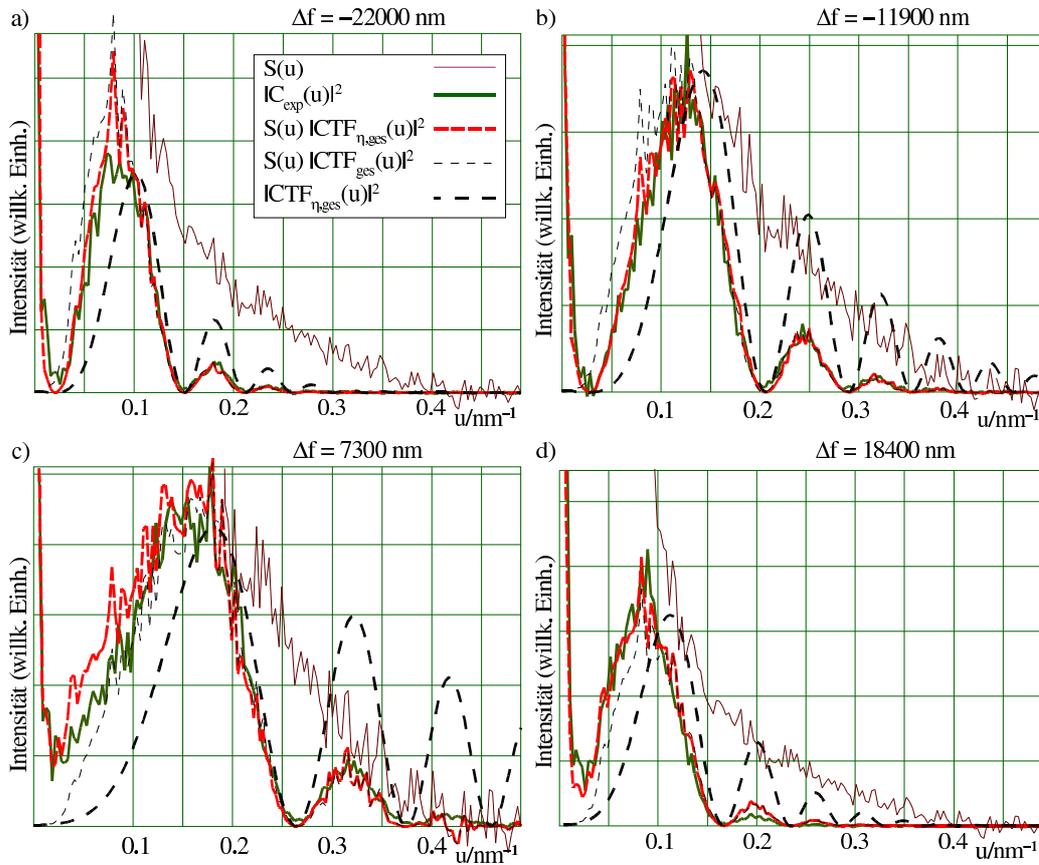
### 7.2.2 Experimentelle Bestimmung des Imaginärteils der atomaren Streuamplitude

In den Abbildungen 7.4 und 7.5 haben wir den Intensitätsverlauf in Phasenkontrastdiffraktogrammen von amorphem Silizium und Kohlenstoff mit dem Produkt aus dem entsprechenden Strukturfaktor und dem Quadrat von Übertragungsfunktionen in WPO- und WO-Näherung verglichen. Die Diffraktogramme sind untergrundkorrigiert und wurden durch  $\text{MTF}_{\text{CCD}}(u)^2$  dividiert. Der Strukturfaktor wurde aus dem Diffraktogramm eines beim Energieverlust  $E = 60$  eV inelastisch gefilterten Bildes bestimmt, welches direkt nach den Phasenkontrastbildern aufgenommen wurde. Zur Bestimmung des Strukturfaktors haben wir den Schrotuntergrund  $B(u)$  abgezogen und die Intensität mit der  $\text{MTF}_{\text{CCD}}(u)$  und der passenden ITF korrigiert.

In dem kleinen betrachteten Raumwinkelbereich  $u < 0,5\text{nm}^{-1}$  ist in den gesamten Übertragungsfunktionen  $\text{CTF}_{\text{ges}}(u)$  bzw.  $\text{CTF}_{\eta,\text{ges}}(u)$  von den Einhüllenden nur  $E_\alpha(u)$  infolge der Strahlkonvergenz  $\alpha$  von Bedeutung. Es gilt also für die gesamten Phasenkontrastübertragungsfunktionen des schwachen Phasenobjekts  $\text{CTF}_{\text{ges}}$  und des schwachen Objekts  $\text{CTF}_{\eta,\text{ges}}$

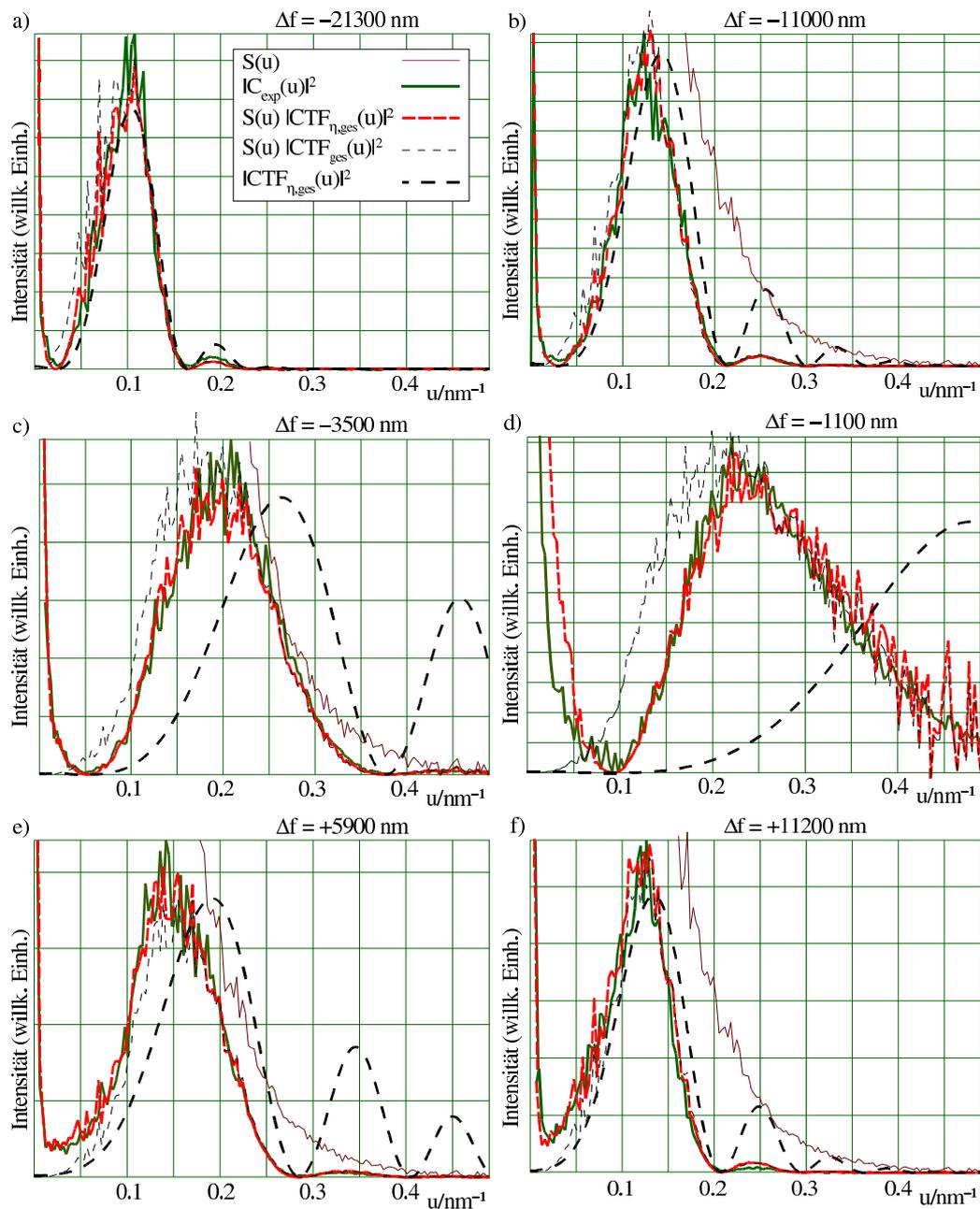
$$\begin{aligned}\text{CTF}_{\text{ges}}(u) &= E_\alpha(u) \text{CTF}(u) \\ \text{CTF}_{\eta,\text{ges}}(u) &= E_\alpha(u) \text{CTF}_\eta(u).\end{aligned}\tag{7.10}$$

Die Defoki der elastischen Diffraktogramme wurden aus deren Nullstellen bestimmt. Anschließend wurden die Produkte  $S(u) \cdot |\text{CTF}_{\text{ges}}(u)|^2$  bzw.  $S(u) \cdot |\text{CTF}_{\eta,\text{ges}}(u)|^2$  durch Variation von  $\alpha$ ,  $\eta$  und der Skalierung an die



**Abbildung 7.4:** Radial gemittelte Diffraktogramme von Phasenkontrastaufnahmen einer amorphen Siliziumfolie bei verschiedenen Defoki  $\Delta f$ . Im Vergleich dazu wurde der aus einem mit  $E = 60$  eV inelastisch gefilterten Bild bestimmte Strukturfaktor  $S(u)$ , sowie dessen Produkt mit dem Betragsquadrat der gesamten Kontrastübertragungsfunktion  $|\text{CTF}_{\eta,\text{ges}}(u)|^2$  bzw.  $|\text{CTF}_{\text{ges}}(u)|^2$  in schwacher Objekt- bzw. schwacher Phasenobjektnäherung eingetragen. Das zur Bestimmung des Strukturfaktors verwendete Bild wurde direkt nach den Phasenkontrastaufnahmen erstellt. Unter den Einhüllenden in der gesamten Phasenkontrastübertragungsfunktion ist nur  $E_{\alpha}(u)$  infolge der Strahlkonvergenz  $\alpha$  von Bedeutung. Die in den Abbildungen erkennbare Übereinstimmung wurde mit  $\alpha = 0,05$  mrad und  $\eta = 0,06$  rad erzielt. In den Grafiken ist außerdem  $|\text{CTF}_{\eta,\text{ges}}(u)|^2$  ohne Multiplikation mit dem Strukturfaktor eingetragen. Die Experimente wurden am Jeol 3010 bei einer Beschleunigungsspannung von 300kV durchgeführt.

experimentellen Intensitäten der Phasenkontrastdiffraktogramme angepaßt. Wir können davon ausgehen, daß  $\eta$  im Bereich der hier diskutierten Raumfrequenzen konstant ist. Wenn im folgenden von „Theorie“ die Rede ist, sind



**Abbildung 7.5:** Radial gemittelte Diffraktogramme von Phasenkontrastaufnahmen einer amorphen Kohlenstoffolie bei verschiedenen Defoki  $\Delta f$ . Es gilt sonst das Gleiche wie für Abb. 7.4, allerdings wurde hier  $\alpha = 0,08 \text{ mrad}$  und  $\eta = 0,06 \text{ rad}$  verwendet.

damit die Produkte mit den Übertragungsfunktionen im Unterschied zur experimentellen Diffraktogrammintensität gemeint.

Die bei der Anpassung erreichte Übereinstimmung zwischen der experimentellen Diffraktogrammintensität und der theoretischen Intensität in schwacher-Objekt-Näherung ist frappierend. Oberhalb des ersten Maximums der Übertragungsfunktionen wird die Diffraktogrammintensität jedoch auch in schwacher Phasenobjektnäherung sehr gut wiedergegeben. In diesem Bereich ist kein Unterschied zwischen den in WPO- und WO-Näherung berechneten Graphen zu erkennen. Dies liegt an den kleinen Werten für  $\eta$  von in beiden Fällen  $0,06 \pm 0,01 \text{ rad}$ , die wir aus dem Anpassungsprozeß ermitteln konnten, wodurch jenseits des ersten Maximums  $\eta \ll \gamma(u)$  gilt. Im Bereich vor dem ersten Maximum der Übertragungsfunktionen wird die Diffraktogrammintensität und insbesondere deren Abhängigkeit vom Vorzeichen des Defokus dagegen nur in der Näherung des schwachen Objektes richtig beschrieben.

Da die für die theoretischen Kurven verwendeten Strukturfaktoren aus inelastischen Bildern gewonnen wurden, ist die in diesem Kapitel gefundene Übereinstimmung zwischen Theorie und Experiment auch eine weitere Bestätigung für den Zusammenhang zwischen Strukturfaktor und Intensität in inelastischen Diffraktogrammen.

	Si	C
$\eta_{\text{exp}}$	$0,06 \pm 0,01 \text{ rad}$	$0,06 \pm 0,01 \text{ rad}$
$\eta_{\text{WKB}}$	$0,044 \text{ rad}$	$0,025 \text{ rad}$

**Tabelle 7.1:** Vergleich der durch Anpassung der Diffraktogrammintensitäten bestimmten Werte  $\eta_{\text{exp}}$  mit Werten  $\eta_{\text{WKB}}$ , berechnet mit dem Programm WKB aus [71], für 300kV und einen Streuwinkel von 0,05 mrad.

Die von uns experimentell gefundenen Werte für  $\eta$  sind in der Tabelle 7.1 mit Werten für  $\eta$ , die mit dem Programm WKB [71] berechnet wurden, verglichen. Bei diesem Vergleich ist jedoch zu berücksichtigen, daß der absorptive Anteil am Imaginärteil der Streuamplitude in den Ergebnissen des Program-

mes WKB nicht enthalten ist.

Einen Wert für  $\eta_{\text{ges}}$ , in dem sowohl der inelastische als auch der elastische Beitrag zum Imaginärteil der Streuamplitude berücksichtigt wird, kann man näherungsweise mit dem in Gl. (7.6) gegebenen optischen Theorem berechnen, wenn man den absorptiven Beitrag zu  $\eta_{\text{ges}}$  mit der Faustformel [70]

$$\frac{\sigma_{\text{tot,inel}}}{\sigma_{\text{tot,el}}} \approx \frac{20}{Z}, \quad (7.11)$$

für das Verhältnis zwischen totalem inelastischem und elastischem Wirkungsquerschnitt abschätzt. Dabei ist  $Z$  die Kernladungszahl des untersuchten Elementes. Man erhält dann näherungsweise

$$\eta_{\text{ges}} \approx (1 + 20/Z)\eta_{\text{WKB}}. \quad (7.12)$$

Auf diese Weise ermittelt man für Silizium und für Kohlenstoff  $\eta_{\text{ges}} \approx 0,10 - 0,11$  rad. Die in Tabelle 7.1 gegebenen, durch Anpassung ermittelten Werte  $\eta_{\text{exp}}$  sind demnach kleiner als die theoretisch abgeschätzten, haben aber zumindest die gleiche Größenordnung wie diese. Um die Abweichungen zwischen Theorie und Experiment näher zu untersuchen, wird es nötig sein, die Anpassungen für verschiedene Materialien und Beschleunigungsspannungen durchzuführen, sowie den Einfluß der Probendicke (wg. der nur näherungsweise Linearität von  $\eta(\vec{\rho})$  in der Atomverteilung) zu überprüfen.

# Kapitel 8

## Untersuchung der Germaniumentmischung bei der Oxidation von Silizium- Germanium-Halbleiterschichten

Abschließend diskutieren wir auf der Basis quantitativ ausgewerteter Elementverteilungsbilder zwei verschiedene Verfahren zur Oxidation von Silizium-Germanium-Halbleiterschichten .

### 8.1 Silizium-Germanium-Halbleiter

Für die Mikroelektronik sind Silizium-Germanium-Schichten und SiGe-Si-Heterostrukturen von besonderem Interesse, da bei diesen Materialien ein Einstellen der Bandlücke auf den jeweiligen Verwendungszweck möglich ist (Bandgap-Engineering). Die Fortschritte der letzten Jahren bei der Herstellung epitaktischer SiGe-Schichten lassen inzwischen an einen Einsatz dieser Materialien in großer Stückzahl denken. Die meisten der für Silizium-Halbleiter entwickelten Techniken können auch zur Bearbeitung von SiGe-

Halbleitern verwendet werden. Problematisch sind jedoch alle Prozesse, die eine hohe Temperatur ( $> 600 - 700^\circ\text{C}$ ) erfordern [38]. Werden die Si/Ge-Schichten solchen Temperaturen ausgesetzt, führt dies zur teilweisen Entmischung der SiGe-Schicht.

Die anodische Oxidation [62], [65] ist ein Verfahren, bei dem hohe Temperaturen vermieden werden können. Das Material wird hierbei bis auf maximal  $450^\circ\text{C}$  aufgeheizt [64]. Dagegen sind beim Standardverfahren zur Oxidation von Siliziumhalbleitern, der schnellen thermischen Oxidation (Rapid Thermal Oxidation, RTO), Temperaturen von ca.  $1000^\circ\text{C}$  erforderlich.

Um die Auswirkungen auf die Struktur der SiGe-Schicht zu untersuchen, haben wir für beide Verfahren Elementverteilungsbilder oxidierter SiGe-Schichten aufgenommen und quantitativ ausgewertet.

## 8.2 Elementverteilungsbilder thermisch und elektrochemisch oxidierter SiGe-Schichten

Die anodisch oxidierten Proben wurden in einer  $0,04\text{mol KNO}_3/0,3\% \text{H}_2\text{O}/\text{Ethylen-Glykol-Lösung}$  bei Raumtemperatur hergestellt. Anschließend wurden sie getrocknet und bei  $450^\circ\text{C}$  getempert. Die thermische Oxidation wurde trocken durch Aufheizen mit einer Lampe auf  $1000^\circ\text{C}$  durchgeführt. Danach wurden die Proben querschnittspräpariert, auf  $30\mu\text{m}$  geschliffen, poliert und anschließend ionengedünnt. Die Untersuchungen wurden am Jeol 3010 bei einer Beschleunigungsspannung von  $300\text{ kV}$  durchgeführt. Zur Aufnahme der Elementverteilungsbilder haben wir die Drei-Fenster-Methode (Abb. 2.3) eingesetzt. Dabei haben wir nur Probenbereiche verwendet, die dünner waren als die halbe mittlere freie Weglänge der inelastischen Streuung. Dies wurde mit der  $t/\Lambda$ -Methode sichergestellt.

Besteht eine Probe aus einer Anzahl von  $n$  Elementen, und hat man zu jedem dieser Elemente ein Elementverteilungsbild  $I_i(\vec{\rho})$  aufgenommen, so erhält

man gemäß Gl. (2.4) die relative Konzentration  $c_j(\vec{\rho})$  des Elementes  $j$  in Atomprozent durch

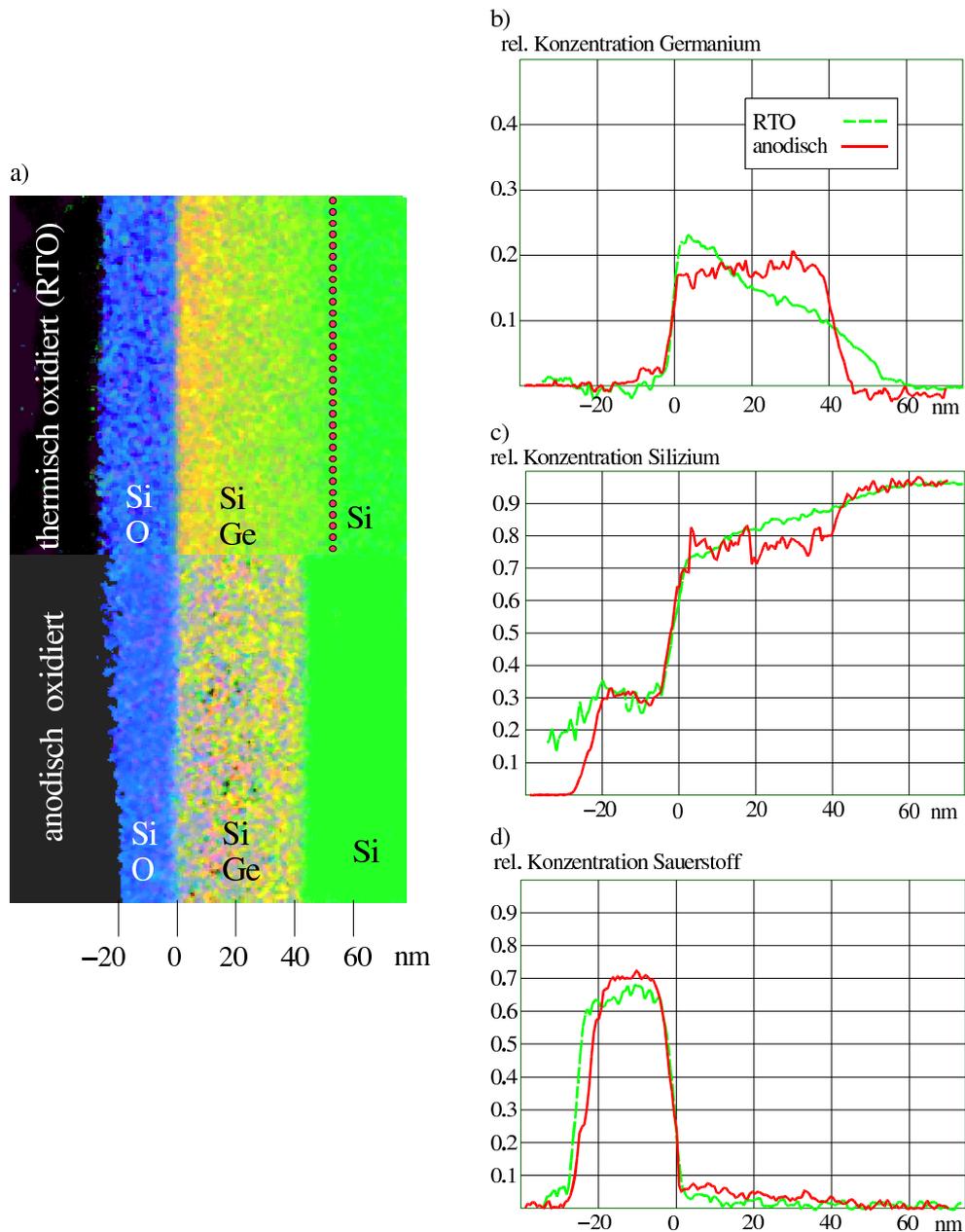
$$c_j(\vec{\rho}) = \frac{I_j(\vec{\rho})}{\sigma_j(\theta_A, \delta E_j)} \frac{1}{\sum_{i=1}^n \frac{I_i(\vec{\rho})}{\sigma_i(\theta_A, \delta E_i)}}, \quad (8.1)$$

wobei  $\sigma_i(\theta_A, \delta E_i)$  den Wirkungsquerschnitt des Elementes  $i$  angibt. Zur Quantifizierung haben wir die in [60] berechneten relativistischen Wirkungsquerschnitte verwendet.

In Abb. 8.1a sind für die beiden zu untersuchenden Verfahren farbcodiert die Sauerstoff-, Germanium- und Silizium-Elementverteilungsbilder einer oxidierten  $\text{Si}_{0,8}\text{Ge}_{0,2}$ -Schicht dargestellt, die epitaktisch auf Silizium (100) aufgewachsen ist. Zur Aufnahme der Elementverteilungsbilder von Germanium wurde die L-Kante bei 1219eV ( $\delta E = 30\text{eV}$ ), für Sauerstoff die K-Kante bei 532eV ( $\delta E = 30\text{eV}$ ) und für Silizium die L-Kante bei 100eV ( $\delta E = 15\text{eV}$ ) verwendet. Der Halbwinkel der Aperturblende betrug jeweils  $\theta_A = 12\text{mrad}$ . Für die gewählten Parameter haben wir die inelastische Übertragungsfunktion berechnet. Diese hat eine Verschmierung der Intensität im Bereich von ca. 1-2 nm zur Folge. Für die im Folgenden diskutierten Längendimensionen können wir den Einfluß der ITF daher vernachlässigen.

Während die Intensität im Germaniumverteilungsbild der anodisch oxidierten SiGe-Probe sowohl zur Oxidschicht als auch zum Siliziumsubstrat scharf begrenzt ist, nimmt die Intensität im Germaniumelementverteilungsbild der thermisch oxidierten Probe von der Oxidschicht zum Substrat kontinuierlich ab. Nach der thermischen Oxidation findet sich Germanium auch im Bereich des Siliziumsubstrats. Die Grenze, bis zu der Germanium detektiert wird, ist in Abb. 8.1a durch eine Reihe roter Punkte markiert.

In den senkrecht zum Schichtsystem aus den Elementverteilungsbildern bestimmten Linienprofilen in den Abbildungen 8.1b-d erkennt man außerdem, daß die Germanium-Konzentration an der Grenzfläche zum Oxid für die thermisch oxidierte Probe leicht höher ist als für die anodisch oxidierte. Der Verlauf der Siliziumkonzentration ist dem Verlauf der Germaniumkonzentration komplementär: Für die thermisch oxidierte Probe nimmt die Siliziumkonzentration



**Abbildung 8.1:** RGB-Mischung (a) der Elementverteilungsbilder von Sauerstoff (blau), Germanium (rot) und Silizium (grün) einer thermisch(RTO)- und einer anodisch oxidierten SiGe-Halbleiterschicht auf Siliziumsubstrat (Achtung: RGB-Mischung von rot und grün ergibt gelb). Die entsprechenden Konzentrationsprofile senkrecht zum Schichtverlauf sind in den Teilabbildungen b,c und d dargestellt. In allen Teilabbildungen liegt jeweils von rechts nach links das Siliziumsubstrat, die SiGe-Schicht und das Oxid. Die roten Punkte im Bild der thermisch oxidierten Probe zeigen die Grenze, bis zu der Germanium-Diffusion in das Silizium-Substrat zu erkennen ist. Als Nullpunkt der x-Achse haben wir jeweils die Grenzfläche zwischen SiGe und Oxid gewählt. Der Konzentrationsverlauf in den Linienprofilen ist der Mittelwert aus einem Bereich von ca. 50nm parallel zum Schichtverlauf.

tration von der Oxidschicht in Richtung Siliziumsubstrat kontinuierlich zu. Bei der anodisch oxidierten Probe ist der Übergang zwischen SiGe-Schicht und Silizium-Substrat dagegen deutlich erkennbar. Im Bereich des Oxides konnten wir in beiden Proben kein Germanium nachweisen.

### 8.3 Diskussion

Durch die hohe Temperatur von 1000°C findet bei der thermischen Oxidation eine Entmischung der SiGe-Schicht statt. Ein Teil des entmischten Germaniums reichert sich an der Grenzschicht zum Oxid an, ein Teil diffundiert bis zu 15 nm tief in das Silizium-Substrat. Die Anreicherung des Germaniums an der Oxidschicht wurde für die thermisch oxidierten Proben bereits mit Auger-Tiefenprofilen nachgewiesen [63]. Dagegen war bisher nicht bekannt, daß Germanium auch tief in das Siliziumsubstrat eindiffundiert. Diese Erkenntnis ist jedoch eine Erklärung für die in elektronenmikroskopischen Hellfeldbildern der thermisch-oxidierten Proben erkennbaren Versetzungs-kontraste im Silizium-Substrat. Diese sind bei den anodisch oxidierten Proben nicht vorhanden.

Unsere Messungen zeigen klar, daß die anodische Oxidation für SiGe-Schichten angemessener ist als thermische Oxidationsverfahren. Die Germanium-Verteilung in der SiGe-Schicht wird durch die anodische Oxidation und das anschließende Tempern bei 450°C nicht wesentlich geändert. Dies erklärt die mit Photolumineszenz-Messungen nachgewiesenen besseren elektronischen Eigenschaften der anodisch oxidierten SiGe-Schichten [66].

# Kapitel 9

## Zusammenfassung und Ausblick

In dieser Arbeit wurden methodische Untersuchungen im Hinblick auf die quantitative Auswertung hochaufgelöster Elementverteilungsbilder durchgeführt. Basis der Diskussion bildete die lineare Abbildungstheorie. In dieser wird der Einfluß des Gerätes und des inelastischen Streuprozesses durch die inelastische Übertragungsfunktion (ITF) berücksichtigt.

Im ersten Teil der Arbeit wurden die inelastischen Übertragungsfunktionen unter besonderer Berücksichtigung relativistischer Effekte wie der magnetischen Wechselwirkung und der Retardierung theoretisch berechnet. Es ergab sich überraschenderweise, daß die relativistischen Effekte schon bei Beschleunigungsspannungen in der Gegend von 100kV deutliche Intensitätsverschiebungen in der Bildebene zur Folge haben. Da relativistisch und nichtrelativistisch berechnete Wirkungsquerschnitte sich bei entsprechenden Elektronenenergien lediglich um ein bis zwei Prozent unterscheiden, war dies nicht zu erwarten. Die Differenzen infolge der relativistischen Effekte nehmen erwartungsgemäß mit steigender Beschleunigungsspannung zu und sind abhängig von Aperturwinkel und Energieverlust. Die größten Abweichungen ergeben sich bei Verwendung von Aperturwinkeln unterhalb des dreifachen charakteristischen Streuwinkels.

Im zweiten Teil der Arbeit ging es darum, experimentell zu überprüfen, ob die Beschreibung der Elementverteilungsbilder dünner Proben im Rahmen

einer linearen Abbildungstheorie zulässig ist. Daneben sollten die berechneten Übertragungsfunktionen experimentell verifiziert werden. Dazu wurden Diffraktogramme von inelastisch gefilterten Bildern aufgedampfter amorpher Folien mit dem aus Kleinwinkelbeugungsdiagrammen bestimmten Strukturfaktor verglichen. Diese Versuche wurden durch umfangreiche analoge Experimente zur elastischen Phasenkontrastübertragungsfunktion vorbereitet. Dabei haben wir Methoden für die Korrektur der experimentellen Diffraktogrammintensitäten entwickelt und die Durchführbarkeit unseres Vorhabens gezeigt. Daneben wurden einige Parameter der verwendeten Geräte ermittelt.

Bei der Übertragung auf die Bestimmung der inelastischen Übertragungsfunktion ergab sich die Schwierigkeit, daß Diffraktogramme von inelastisch gefilterten Bildern der durch Aufdampfen hergestellten Silizium- und Kohlenstoffolien nur in einem sehr beschränkten Raumfrequenzbereich ( $< 0,5\text{nm}^{-1}$ ) Intensität aufweisen und daß die Intensität in diesem Bereich in Richtung höherer Raumfrequenzen steil abfällt. Wir konnten nachweisen, daß dieser steile Abfall im wesentlichen den Abfall des Strukturfaktors der durch Aufdampfen hergestellten Folien wiedergibt und nicht, wie von anderen Autoren vermutet, alleine den Verlauf der Übertragungsfunktion. Damit gelang erstmals der direkte Nachweis der Gültigkeit der linearen Abbildungstheorie zur Beschreibung der Intensität inelastisch gefilterter Bilder. Die direkte und vollständige Messung der Übertragungsfunktionen war mit den verwendeten Folien jedoch nicht möglich, da die Messung des im Beugungsbild auf einem hohen Untergrund aus ungestreuten Elektronen liegenden steil abfallenden Strukturfaktors nicht mit der erforderlichen Genauigkeit gelang. Wir konnten aber die von der Theorie vorhergesagte Abhängigkeit der inelastischen Übertragungsfunktion von Energieverlust und Aperturwinkel bestätigen, indem wir die Verhältnisse der Diffraktogrammintensitäten von mit verschiedenen Parametern aufgenommenen inelastischen Bildern berechneten.

Als wichtigste Konsequenz unserer Experimente ergibt sich, daß aus den Diffraktogrammen von Elementverteilungsbildern direkt partielle Struktur-

faktoren bestimmt werden können. Diese Erkenntnis haben wir verwendet, um zu zeigen, daß im Bereich kleiner Raumwinkel die zur Beschreibung von Phasenkontrastaufnahmen dünner amorpher Folien üblicherweise verwendete Schwache-Phasenobjekt-Näherung nicht ausreichend ist. Stattdessen muß dort die sogenannte Schwache-Objekt-Näherung verwendet werden. Darauf aufbauend wurde ein Verfahren zur direkten experimentellen Bestimmung des Verhältnisses von Imaginär- und Realteil des atomaren Formfaktors im Bereich kleiner Raumfrequenzen vorgeschlagen und seine Durchführbarkeit am Beispiel von Silizium und Kohlenstoff gezeigt.

Partielle Strukturfaktoren können bisher nur aufwendig in Neutronenstreuexperimenten oder unter Nutzung der anomalen Dispersion aus der Röntgenkleinwinkelstreuung bestimmt werden. Die Möglichkeit, sie an einfach verfügbaren energiefilternden Elektronenmikroskopen bestimmen zu können, eröffnet neue Perspektiven zur quantitativen Charakterisierung von Entmischungsprozessen. Dies gilt insbesondere für Materialien, die nicht in den zur Durchführung der anderen Methoden erforderlichen großen Probendicken zur Verfügung stehen.

# Anhang A

## Berechnung der ITF in Dipolnaherung

Im Folgenden wird gezeigt, wie die durch Gl. (2.9) definierte inelastische Ubertragungsfunktion mit Hilfe des Ausdrucks fur die Stromdichte in Gl. (3.6) und des Matrixelements in Gl. (3.9) konkret berechnet werden kann. Dazu werden die zu berechnenden Integrale so weit wie moglich analytisch aufgelost. Fur die Berechnung des Matrixelements wird anschlieend die Dipolnaherung verwendet. Wegen der Winkelintegrationen im Ausdruck fur die Ubertragungsfunktion wird in diesem Anhang fur die Angabe der Raumfrequenz die Schreibweise  $\omega = \lambda u$  verwendet.

Durch Einsetzen von Gl. (3.6) in Gl. (2.9), erhalt man

$$\begin{aligned} \text{ITF} \left( u = \frac{\omega}{\lambda} \right) &= \frac{1}{\sigma(\Theta_D, \theta_A, \delta E)} \frac{1}{\lambda^2} \alpha^2 \frac{4k^2}{\beta^2} \int_{E_w - \frac{\delta E}{2}}^{E_w + \frac{\delta E}{2}} dE \int d^2 \vec{\Theta} B(\Theta) \int d^2 \vec{\rho} \int d^2 \vec{\theta} \\ &\cdot \int d^2 \vec{\theta}' S(\vec{q}, \vec{q}', E) e^{i[\gamma(\theta', E) - \gamma(\theta, E)]} \\ &\cdot e^{ik(\vec{\omega} + \vec{\theta} - \vec{\theta}') \cdot \vec{\rho}} A(\theta) A(\theta') \end{aligned} \quad (\text{A.1})$$

fur die inelastische Ubertragungsfunktion.  $\sigma(\Theta_D, \theta_A, \delta E)$  ist der partielle, uber Beleuchtungsapertur  $\Theta_D$ , Objektivapertur  $\theta_A$  und Energiefenster  $\delta E$

integrierte Wirkungsquerschnitt [39, 36]. Die Abhängigkeit des Wirkungsquerschnittes von der Beleuchtungskonvergenz wurde in den einführenden Kapiteln dieser Arbeit der Einfachheit halber nicht explizit erwähnt. Wird die Übertragungsfunktion für konvergente Beleuchtung berechnet, muß der Konvergenzwinkel natürlich auch bei dem zur Normierung verwendeten Wirkungsquerschnitt berücksichtigt werden.  $S(\vec{q}, \vec{q}', E)$  ist die Summe über alle erlaubten Anregungen

$$S(\vec{q}, \vec{q}', E) = \frac{\epsilon_0^2}{e^4} \sum_m T_{nm}^*(\vec{q}') T_{nm}(\vec{q}) \delta(E - (E_m - E_n)), \quad (\text{A.2})$$

und darin  $T_{nm}(\vec{q})$  das in Gl. (3.8) angegebene relativistische Matrixelement. Im Vergleich zu Gl. (3.6) wurde in Gl. (A.2) der Faktor  $e^4/\epsilon_0^2$  vor die Integrale gezogen. Dadurch und mit den zusätzlichen Näherungen  $E_{i,\text{ges}} \approx E_{f,\text{ges}}$  für die relativistischen Gesamtenergien sowie  $k := |\vec{k}_i| \approx |\vec{k}_f|$  für die Streuvektoren erhält man in der obigen Gleichung den typischen relativistischen Vorfaktor  $\alpha^2 \frac{4k^2}{\beta^2}$  wie er auch im Ausdruck für den Wirkungsquerschnitt vorkommt [17]. Die Näherungen sind gerechtfertigt, da die bei der Aufnahme von Elementverteilungsbildern verwendeten Energieverluste stets sehr viel kleiner als die Beschleunigungsspannungen sind. Es gilt außerdem  $k = 2\pi/\lambda$ .  $\vec{\beta} = \frac{\vec{v}_i}{c}$  ist der auf die Lichtgeschwindigkeit  $c$  normierte Geschwindigkeitsvektor des einfallenden Elektrons und  $\alpha = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\hbar c} \approx \frac{1}{137}$  die Feinstrukturkonstante. Eine Verwechslung mit dem Geschwindigkeitsoperator  $\vec{\alpha}$  dürfte ausgeschlossen sein.

Es empfiehlt sich, zur weiteren Auswertung in Gl. (A.1) zunächst die Integration über die Bildebene anzuführen, da

$$\int d^2\vec{\rho} e^{ik(\vec{\omega} + \vec{\theta} - \vec{\theta}')\vec{\rho}} = \frac{4\pi^2}{k^2} \delta(\vec{\omega} + \vec{\theta} - \vec{\theta}'). \quad (\text{A.3})$$

Durch analytische Integration über  $\vec{\theta}'$  erhält man wegen der  $\delta$ -Funktion

$$\vec{\theta}' = \vec{\theta} + \vec{\omega}. \quad (\text{A.4})$$

Man substituiert daher

$$\vec{\tau} = \vec{\theta} + \vec{\omega}/2, \text{ bzw. } \vec{\theta}' = \vec{\tau} + \vec{\omega}/2 \quad \text{und} \quad \vec{\theta} = \vec{\tau} - \vec{\omega}/2. \quad (\text{A.5})$$

Legt man nun das Koordinatensystem so, daß  $\vec{\omega} = (-\omega, 0)$  gilt, so erkennt man, daß wegen des Produkts

$$A(\vec{\tau} - \vec{\omega}/2) A(\vec{\tau} + \vec{\omega}/2) \quad (\text{A.6})$$

das Integrationsgebiet von  $\vec{\tau}$  die Schnittfläche zweier um  $\omega$  in  $\tau_x$ -Richtung verschobener Kreise umfaßt. ITF( $\omega$ ) hat also eine beschränkte Bandbreite, das heißt

$$\text{ITF}(\omega \geq 2\theta_A) = 0. \quad (\text{A.7})$$

## A.1 Die Energieintegration

Auch die Energieintegration in Gl. (A.1) kann nun noch erledigt werden, wenn man die Energieverlustabhängigkeit von  $\vec{q}$  innerhalb des Energiefensters vernachlässigt. Dazu entwickelt man  $S(\vec{q}, \vec{q}', E)$  nach Potenzen von  $(E - E_w)$

$$S(\vec{q}, \vec{q}', E) = \sum_{\mu=0}^{\infty} S_{\mu}(\vec{q}, \vec{q}', E_w) (E - E_w)^{\mu}. \quad (\text{A.8})$$

Die einzelnen Terme der Entwicklung können dann analytisch integriert werden. Der Linsenfehlerterm in Gl. (A.1) lautet mit den oben eingeführten Substitutionen

$$\begin{aligned} \gamma(\theta' = \vec{\tau} + \vec{\omega}/2, E) - \gamma(\theta = \vec{\tau} - \vec{\omega}/2, E) = \\ -k \left[ \frac{C_s}{4} (-\omega^3 \tau_x - 4\omega \tau^2 \tau_x) + \Delta f \omega \tau_x + C_c \frac{E_w - E}{E_i} \omega \tau_x \right], \end{aligned} \quad (\text{A.9})$$

wobei wegen der Wahl des Koordinatensystems

$$\tau_x = \omega \cos(\varphi) \quad (\text{A.10})$$

gilt und  $\varphi$  der von  $\vec{\omega}$  und  $\vec{\tau}$  eingeschlossene Winkel ist. Das Energieintegral ergibt dann

$$\begin{aligned} \int_{E_w - \delta E/2}^{E_w + \delta E/2} (E - E_w)^{\mu} \exp [i (\gamma(\theta', E) - \gamma(\theta, E))] = \\ \left( \frac{\delta E}{2} \right)^{\mu+1} i^{\mu} Z_{\mu} \left( k \frac{C_c}{2} \frac{\delta E}{E_i} \omega \tau_x \right) \exp [i (\gamma(\theta') - \gamma(\theta))] \end{aligned} \quad (\text{A.11})$$

mit

$$\gamma(\vec{\theta}' = \vec{\tau} + \vec{\omega}/2) - \gamma(\vec{\theta} = \vec{\tau} - \vec{\omega}/2) = -k \left[ \frac{C_s}{4} (-\omega^3 \tau_x - 4\omega \tau^2 \tau_x) + \Delta f \omega \tau_x \right] \quad (\text{A.12})$$

sowie

$$Z_\mu(x) = \frac{d^\mu}{dx^\mu} \left( \frac{\sin x}{x} \right). \quad (\text{A.13})$$

Damit vereinfacht sich Gl. (A.1) schließlich zu

$$\begin{aligned} \text{ITF} \left( u = \frac{\omega}{\lambda} \right) &= \frac{1}{\sigma(\Theta_D, \theta_A, \delta E)} \sum_\mu \left( \frac{\delta E}{2} \right)^{\mu+1} i^\mu Z_\mu \left( k \frac{C_c \delta E}{2 E_i} \omega \tau_x \right) \\ &\cdot \alpha^2 \frac{4k^2}{\beta^2} \frac{1}{\lambda^2} \int d^2 \vec{\Theta} B(\Theta) \int d^2 \vec{\tau} S_\mu(\vec{q}, \vec{q}', E) \\ &\cdot e^{i[\gamma(\vec{\tau}-\vec{\omega}/2) - \gamma(\vec{\tau}+\vec{\omega}/2)]} A(\vec{\tau} - \vec{\omega}/2) A(\vec{\tau} + \vec{\omega}/2). \quad (\text{A.14}) \end{aligned}$$

Bei allen in dieser Arbeit vorgestellten Ergebnissen wurde nur der Term für  $\mu = 0$  verwendet, was die Angabe eines von der speziellen Ionisationskante unabhängigen Ergebnisses für  $\text{ITF}(\omega)$  ermöglicht. Dieses Vorgehen ist durch die meist sehr schwache Energieabhängigkeit von  $S(\vec{q}, \vec{q}', E)$  in den zur Aufnahme von Elementverteilungsbildern verwendeten Energiefenstern gerechtfertigt.

## A.2 Die Dipolnäherung

Die Dirac-Gleichung eines einzelnen Atoms kann mit der Diracschen Wellenfunktion  $\Psi$  für ein Atomelektron und dem Diracschen Hamiltonoperator  $H_{\text{Atom}}$  in der Form

$$i\hbar \frac{\delta \Psi}{\delta t} = H_{\text{Atom}} \Psi \quad (\text{A.15})$$

geschrieben werden. Mit dem Vektor  $\vec{x}$ , der die Position des Atomelektrons angibt, gilt dann die Relation

$$\frac{1}{i\hbar c} [\vec{x}, H_{\text{Atom}}] = \vec{\alpha} \quad (\text{A.16})$$

für den Vektor aus Dirac-Matrizen  $\vec{\alpha}$ . Folglich kann das Dipolmatrixelement in Gl. (3.15) umgeschrieben werden in

$$\begin{aligned} \vec{t} \langle m | \vec{\alpha} | n \rangle &= \frac{1}{i\hbar c} \langle m | [\vec{x}, H_{\text{Atom}}] | n \rangle \\ &= -\frac{1}{i\hbar c} \underbrace{(E_m - E_n)}_E \vec{t} \langle m | \vec{x} | n \rangle. \end{aligned} \quad (\text{A.17})$$

Mit dieser, sowie Gl. (3.14) und Gl. (3.9) erhält man für das Matrixelement in Bornscher und Dipolnäherung

$$T_{nm}(\vec{q}) = i \frac{e^2}{\epsilon_0} \underbrace{\left[ \frac{1}{\vec{q}^2} \vec{q} - \frac{\vec{t} \vec{\beta}}{\vec{q}^2 - \left(\frac{E}{\hbar c}\right)^2} \frac{E}{\hbar c} \vec{t} \right]}_{\vec{K}} \langle m | \vec{x} | n \rangle \quad (\text{A.18})$$

beziehungsweise

$$T_{nm}(\vec{q}') = i \frac{e^2}{\epsilon_0} \underbrace{\left[ \frac{1}{\vec{q}'^2} \vec{q}' - \frac{\vec{t}' \vec{\beta}}{\vec{q}'^2 - \left(\frac{E'}{\hbar c}\right)^2} \frac{E'}{\hbar c} \vec{t}' \right]}_{\vec{K}'} \langle m | \vec{x} | n \rangle. \quad (\text{A.19})$$

Im Folgenden werden für die vektoriellen Ausdrücke in  $T_{nm}(\vec{q})$  und  $T_{nm}(\vec{q}')$  wie angedeutet die Abkürzungen  $\vec{K}$  und  $\vec{K}'$  verwendet. Wir vernachlässigen Spin-Effekte und relativistische Effekte innerhalb des Atoms. Unter der Annahme, daß sich die Atomelektronen im nahezu kugelsymmetrischen elektrostatischen Potential des Atoms bewegen, kann man ihre Wellenfunktionen durch ein Produkt aus Kugelflächenfunktionen und einer Radialfunktion angeben. Der Ruhezustand eines Atomelektrons sei durch die drei Quantenzahlen  $n, \ell$  und  $m$  charakterisiert. Bei der Streuung werde es in einen Zustand im Kontinuum angeregt, der mit  $E', \ell'$  und  $m'$  beschrieben werden kann. Dabei ist  $E'$  die Energie des angeregten Elektrons. Wir können also in Gl. (A.18) und Gl. (A.19) Anfangs- und Endzustand in der Form

$$\begin{aligned} |n\rangle &\rightarrow |n, \ell, m\rangle \\ |m\rangle &\rightarrow |E', \ell', m'\rangle \end{aligned} \quad (\text{A.20})$$

substituieren. Da der Anfangszustand im allgemeinen entartet ist, müssen wir abgesehen von der Summierung über die angeregten Zustände, auch über die Anfangszustände mitteln. Zur Summation über alle möglichen Endzustände wird neben der Summation über  $\ell'$  und  $m'$  auch das Integral über die Energie  $E'$  des angeregten Elektrons berechnet. Außerdem führen wir an dieser Stelle die Besetzungszahl  $N_{n\ell}$  ein. Man erhält dann für Gl. (A.2)

$$S(\vec{q}, \vec{q}', E) = \frac{\epsilon_0^2 N_{n\ell}}{e^4 2\ell + 1} \sum_{m=-\ell}^{\ell} \sum_{\ell'=0}^{\infty} \sum_{m'=-\ell'}^{\ell'} \int dE' \delta(E - (E' - E_n)) T_{n,\ell,m,E',\ell',m'}^*(\vec{q}') T_{n,\ell,m,E',\ell',m'}(\vec{q}) \quad (\text{A.21})$$

bzw. in Dipolnäherung

$$S(\vec{q}, \vec{q}', E) = \frac{N_{n\ell}}{2\ell + 1} \sum_{\ell'=0}^{\infty} \int dE' \delta(E - (E' - E_n)) \sum_{m=-\ell}^{\ell} \sum_{m'=-\ell'}^{\ell'} \langle n', \ell', m', |\vec{K}' \vec{x}| E, \ell, m \rangle^* \langle n', \ell', m', |\vec{K} \vec{x}| E, \ell, m \rangle. \quad (\text{A.22})$$

Auf der Basis elementarer quantenmechanischer Prinzipien und unter der Annahme von Kugelsymmetrie wird in [40] gezeigt, daß für Summen, wie sie in Gl. (A.22) vorkommen, die Relation

$$\sum_{M,M'} \langle n', J', M', |\vec{K}' \vec{x}| n, J, M \rangle^* \langle n', J', M', |\vec{K} \vec{x}| n, J, M \rangle = \frac{\vec{K}' \vec{K}}{3} |\langle n', J' || z || n, J \rangle|^2 \quad (\text{A.23})$$

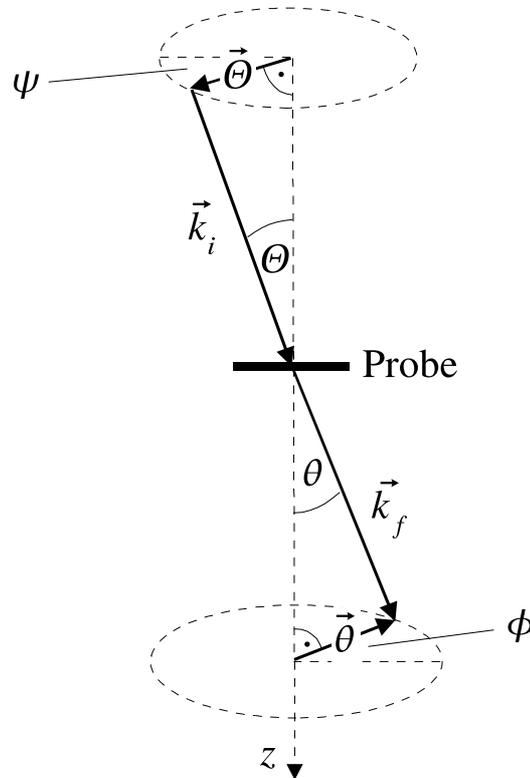
gilt. Damit erhält man

$$S(\vec{q}, \vec{q}', E) = \vec{K}' \vec{K} \underbrace{\frac{N_{n\ell}}{3(2\ell + 1)} \sum_{\ell'=0}^{\infty} \int dE' \delta(E - (E' - E_n)) |\langle E', \ell' || \vec{x} || n, \ell \rangle|^2}_{C(E)}. \quad (\text{A.24})$$

Diese Form ermöglicht es, in  $S(\vec{q}, \vec{q}', E)$  den winkelabhängigen Anteil  $\vec{K}' \vec{K}$  von dem Faktor  $C(E)$  zu trennen. Letzterer ist ein elementabhängiges Maß für die Anregungsstärke und proportional zur optischen Oszillatorstärke. Daher erhält man Werte für  $C(E)$  nach entsprechender Umrechnung aus Tabellenwerken. An dieser Stelle nutzen wir aus, daß  $C(E)$  nicht vom Streuwinkel

abhängt. Die Energieabhängigkeit von  $C(E)$  wird durch die bei der Energieintegration vorgenommene Entwicklung berücksichtigt.  $C(E)$  hat in Gl. (A.24) also die Bedeutung eines skalaren Koeffizienten. Zur Berechnung der normierten Übertragungsfunktion gemäß Gl. (2.9) ist die Kenntnis absoluter Werte für  $C(E)$  nicht erforderlich.

Um die Integrale über die Winkel  $\theta$ ,  $\theta'$  und  $\Theta$  in Gl. (A.14) auszurechnen, muß  $\vec{k}\vec{k}'$  in Abhängigkeit von diesen Winkeln ausgedrückt werden. Dazu wählen wir das Koordinatensystem für den Streuprozess so, daß die  $z$ -Achse in Richtung der optischen Achse liegt. Ein Elektron treffe wie in Abbildung



**Abbildung A.1:** Zusammenhang der Wellenvektoren des schnellen Elektrons vor  $\vec{k}_i$  und nach  $\vec{k}_f$  der Streuung mit den Vektoren  $\vec{\Theta}$  und  $\vec{\theta}$ , welche den Neigungswinkel des Elektrons zur optischen Achse vor und nach der Streuung sowie dessen Azimuth  $\psi$  bzw.  $\phi$  angeben.

A.1 dargestellt unter dem Winkel  $\Theta$  zur optischen Achse mit dem Azimuth  $\psi$  auf die Probe und werde anschließend mit dem im Vergleich zu seiner ki-

netischen Energie kleinen Energieverlust  $E$  in den Winkel  $\theta$  zur optischen Achse unter dem Azimuth  $\phi$  gestreut. Mit den Vektoren

$$\vec{\theta} = \theta \begin{pmatrix} \cos \phi \\ \sin \phi \end{pmatrix} \quad \text{und} \quad \vec{\Theta} = \Theta \begin{pmatrix} \cos \psi \\ \sin \psi \end{pmatrix} \quad (\text{A.25})$$

kann dann der Streuvektor für kleine Winkel  $\Theta$  und  $\theta$  in der Form

$$\vec{q} = k \begin{pmatrix} -\theta \cos \phi - \Theta \cos \psi \\ -\theta \sin \phi - \Theta \sin \psi \\ \theta_E \end{pmatrix} \quad (\text{A.26})$$

geschrieben werden. Entsprechend gilt

$$\vec{q}' = k \begin{pmatrix} -\theta' \cos \phi' - \Theta \cos \psi \\ -\theta' \sin \phi' - \Theta \sin \psi \\ \theta_E \end{pmatrix}. \quad (\text{A.27})$$

Der Winkel  $\theta_E$  ist der sogenannte charakteristische Streuwinkel, für den im relativistischen Fall die Beziehung

$$\theta_E = \frac{E}{E_i} \frac{(E_i + E_0)}{(E_i + 2E_0)} \quad (\text{A.28})$$

mit der kinetischen Energie des einfallenden Elektrons  $E_i$  und seiner Ruheenergie  $E_0 = m_0 c^2$  gilt. Für die Aufnahme von Elementverteilungsbildern verwendet man generell kleine ( $\ll 50\text{mrad}$ ) Objektiv- und Beleuchtungsa-perturwinkel. In diesem Fall können  $\vec{t}$  und  $\vec{t}'$  in der Form

$$\vec{t} = \frac{1}{\sqrt{(\Theta^2 + \theta^2 + 2\Theta\theta \cos(\psi - \phi)) (\theta_E^2 + \Theta^2 + \theta^2 + 2\Theta\theta \cos(\psi - \phi))}} \begin{pmatrix} \theta_E (\theta \cos \phi + \Theta \cos \psi) \\ \theta_E (\theta \sin \phi + \Theta \sin \psi) \\ \Theta^2 + \theta^2 + 2\Theta\theta \cos(\psi - \phi) \end{pmatrix}$$

und

$$\vec{t}' = \frac{1}{\sqrt{(\Theta^2 + \theta'^2 + 2\Theta\theta' \cos(\psi - \phi')) (\theta_E^2 + \Theta^2 + \theta'^2 + 2\Theta\theta' \cos(\psi - \phi'))}} \begin{pmatrix} \theta_E (\theta' \cos \phi' + \Theta \cos \psi) \\ \theta_E (\theta' \sin \phi' + \Theta \sin \psi) \\ \Theta^2 + \theta'^2 + 2\Theta\theta' \cos(\psi - \phi') \end{pmatrix}$$

geschrieben werden. Der auf die Lichtgeschwindigkeit  $c$  normierte Geschwindigkeitsvektor des einfallenden Elektrons wird mit  $\vec{\beta} = \frac{\vec{v}_i}{c}$  bezeichnet. Er kann für kleine Einfallswinkel zur optischen Achse in der Form

$$\vec{\beta} = \beta \begin{pmatrix} -\Theta \cos \psi \\ -\Theta \sin \psi \\ 1 \end{pmatrix} \quad (\text{A.29})$$

geschrieben werden. Den Energieverlust drückt man durch

$$\frac{E}{\hbar c} = k\theta_E\beta \quad (\text{A.30})$$

aus. Dann erhält man für  $S(\vec{q}, \vec{q}', E)$

$$\begin{aligned} S(\vec{q}, \vec{q}', E) &= C(E) \frac{1}{k^2} \left( \theta_E^2 + \theta'^2 + \Theta^2 + 2\theta'\Theta \cos(\psi - \phi') \right)^{-1} \\ &\cdot \left( \theta_E^2 + \theta^2 + \Theta^2 + 2\theta\Theta \cos(\psi - \phi) \right)^{-1} \\ &\cdot [A2(\vec{q}, \vec{q}', E) - AB(\vec{q}, \vec{q}', E) + B2(\vec{q}, \vec{q}', E)], \quad (\text{A.31}) \end{aligned}$$

wobei

$$\begin{aligned} A2(\vec{q}, \vec{q}', E) &= \theta_E^2 + \Theta^2 + \theta'\Theta \cos(\psi - \phi') + \theta\Theta \cos(\psi - \phi) \\ &+ \theta\theta' \cos(\phi - \phi') \end{aligned} \quad (\text{A.32})$$

$$\begin{aligned} AB(\vec{q}, \vec{q}', E) &= \beta^2 \theta_E^2 \\ &\cdot \left[ \frac{\theta^2 + \Theta^2 + 2\theta\Theta \cos(\psi - \phi) - \theta_E(\theta\Theta \cos(\psi - \phi) + \Theta^2)}{\theta^2 + \Theta^2 + 2\theta\Theta \cos(\psi - \phi)} \right. \\ &\cdot \frac{\theta^2 - \theta'\Theta \cos(\psi - \phi') + \theta\Theta \cos(\psi - \phi) - \theta\theta' \cos(\phi - \phi')}{\theta_E^2(1 - \beta^2) + \theta^2 + \Theta^2 + 2\theta\Theta \cos(\psi - \phi)} \\ &+ \frac{\theta'^2 + \Theta^2 + 2\theta'\Theta \cos(\psi - \phi') - \theta_E(\theta'\Theta \cos(\psi - \phi') + \Theta^2)}{\theta'^2 + \Theta^2 + 2\theta'\Theta \cos(\psi - \phi')} \\ &\cdot \left. \frac{\theta'^2 - \theta\Theta \cos(\psi - \phi) + \theta'\Theta \cos(\psi - \phi') - \theta\theta' \cos(\phi - \phi')}{\theta_E^2(1 - \beta^2) + \theta'^2 + \Theta^2 + 2\theta'\Theta \cos(\psi - \phi')} \right] \quad (\text{A.33}) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
B2(\vec{q}, \vec{q}', E) &= \beta^4 \theta_E^2 \\
&\cdot \frac{\theta^2 + \Theta^2 + 2\theta\Theta \cos(\psi - \phi) - \theta_E (\theta\Theta \cos(\psi - \phi) + \Theta^2)}{\theta^2 + \Theta^2 + 2\theta\Theta \cos(\psi - \phi)} \\
&\cdot \frac{\theta'^2 + \Theta^2 + 2\theta'\Theta \cos(\psi - \phi') - \theta_E (\theta'\Theta \cos(\psi - \phi') + \Theta^2)}{\theta'^2 + \Theta^2 + 2\theta'\Theta \cos(\psi - \phi')} \\
&\cdot \left( \theta_E^2 (1 - \beta^2) + \theta^2 + \Theta^2 + 2\theta\Theta \cos(\psi - \phi) \right)^{-1} \\
&\cdot \left( \theta_E^2 (1 - \beta^2) + \theta'^2 + \Theta^2 + 2\theta'\Theta \cos(\psi - \phi') \right)^{-1} \\
&\cdot \left[ (\theta'^2 + \Theta^2 + 2\theta'\Theta \cos(\psi - \phi')) (\theta^2 + \Theta^2 + 2\theta\Theta \cos(\psi - \phi)) \right. \\
&+ \left. \theta_E^2 (\Theta^2 + \theta\Theta \cos(\psi - \phi) + \theta'\Theta \cos(\psi - \phi') + \theta\theta' \cos(\phi - \phi')) \right]. \tag{A.34}
\end{aligned}$$

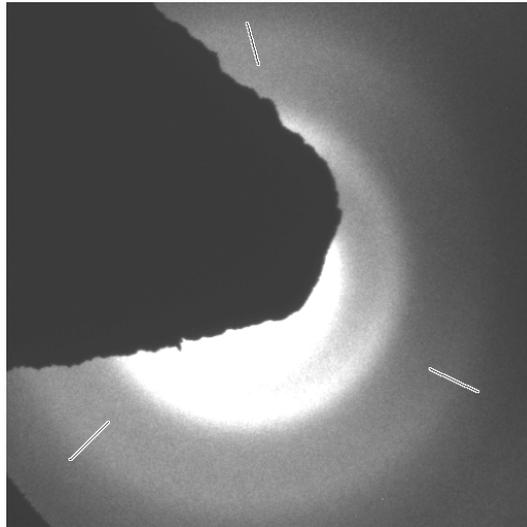
Der Einfachheit halber wurden hier die Beziehungen in Abhängigkeit von  $\theta$ ,  $\theta'$  und  $\Theta$  angegeben. Zur weiteren Auswertung müssen diese Größen noch durch die Beziehungen in Gl. (A.4) ff. ausgedrückt werden.

Der Term  $A2(\vec{q}, \vec{q}', E)$  entspricht der ersten Zeile in Gl. (3.11),  $AB(\vec{q}, \vec{q}', E)$  der zweiten und dritten Zeile und  $B2(\vec{q}, \vec{q}', E)$  der letzten. Entsprechend verschwindet  $AB(\vec{q}, \vec{q}', E)$  im Falle von  $\vec{q} = \vec{q}'$ , das heißt für  $\theta = \theta'$  und  $\phi = \phi'$ , wie schon in der Diskussion von Gl. (3.11) erwähnt wurde. In [73] zeigte Rose, wie die Integration in Gl. (A.1) über den Einfallswinkel  $\Theta$  für den nicht-relativistischen Ausdruck, das heißt für den Ausdruck  $A2(\vec{q}, \vec{q}', E)$  analytisch ausgeführt werden kann. Für die hier angegebenen zusätzlichen Ausdrücke  $AB(\vec{q}, \vec{q}', E)$  und  $B2(\vec{q}, \vec{q}', E)$  scheint dies hier jedoch nicht möglich zu sein. Die in Gl. (A.14) noch verbleibenden Integrale über  $\vec{\Theta}$  und  $\vec{\tau}$  müssen daher numerisch ausgewertet werden.

## Anhang B

# Bestimmung des Zentrums von Beugungsdiagrammen amorpher Substanzen

In dieser Arbeit war an mehreren Stellen die radiale Intensitätsverteilung in Beugungsdiagrammen amorpher Stoffe von Interesse. Will man diese aus einem auf CCD-Kamera oder Photoplatte aufgenommenen Beugungsdiagramm bestimmen, muß zunächst dessen Zentrum bekannt sein oder bestimmt werden. Im zentralen Bereich des Beugungsdiagramms ist die Intensität in der Regel um einige Größenordnungen höher als im Rest des Beugungsbildes. Daher ist dieser Teil des aufgenommenen Beugungsbildes in der Regel übersättigt oder die in diesen Bereich fallenden Elektronen werden, um Beschädigungen des Detektors zu vermeiden, mittels eines „Strahlstoppers“ daran gehindert, auf den Szintillator zu treffen. Im Falle der im Zentrum übersättigten Aufnahme kann oft unter der Annahme homogener Ausleuchtung und bei gut justiertem Mikroskop das Zentrum des gesättigten Bereiches als Mittelpunkt des Beugungsdiagramms verwendet werden. Ist dagegen das Zentrum durch einen „Strahlstopper“ verdeckt, so muß die Zentrumsbestimmung aus den in Beugungsdiagrammen amorpher oder polykristalliner Substanzen vorhandenen Debye-Scherrer-Ringen erfolgen. Im Rahmen dieser



**Abbildung B.1:** Der Anwender muß zu Beginn den Bereich auf einem Debye-Scherrer-Ring markieren, der vom Programm zur Mittelpunktbestimmung verwendet werden soll.

Arbeit wurde ein Programm in der Skript-Sprache der Bildverarbeitungssoftware „Digital-Micrograph“ entwickelt, welches die im wesentlichen automatisierte Bestimmung des Zentrums eines in digitaler Form vorliegenden Beugungsdiagramms gestattet. Das Verfahren erreicht eine Genauigkeit von etwa einem Pixel, wenn die Intensitäten im zur Bestimmung verwendeten Debye-Scherrer-Ring nicht zu verrauscht sind und sich das Zentrum des Beugungsdiagrammes innerhalb des aufgenommenen Bildes befindet. Der hierzu entwickelte Algorithmus soll im Folgenden kurz vorgestellt werden, um ihn für ähnlich gelagerte Probleme verfügbar zu machen oder seine Implementation in andere Programmiersprachen zu ermöglichen.

Die Zentrumsbestimmung erfolgt in zwei Schritten. Als Eingabe des Anwenders werden zu Anfang wie in Abb. B.1 ersichtlich drei Linienmarkierungen im Beugungsdiagramm erwartet, welche auf demselben Debye-Scherrer-Ring liegen, und die zu Anfang eine erste Schätzung des Ringzentrums gestatten. Die Linien sollten möglichst senkrecht zum Ringumfang verlaufen, insbesondere muß dessen Maximum geschnitten werden.

Im ersten Schritt bestimmt das Programm nun die Positionen der Maxima

von Linescans, die entlang der vorgegebenen Linienmarkierungen berechnet werden. Um Fehler durch eine verrauschte Intensitätsverteilung zu vermindern, wird zur Maximumbestimmung mittels einer bilinearen Interpolation auch die zum Linescan benachbarte Bildintensität berücksichtigt. Sind  $(x_1, y_1)$ ,  $(x_2, y_2)$  und  $(x_3, y_3)$  die Koordinaten der so gefunden Ringmaxima, erhält man eine erste Schätzung des Kreiscentrums  $(x_c, y_c)$  über den Zusammenhang

$$\begin{pmatrix} x_c \\ y_c \end{pmatrix} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} x_1 + x_2 \\ y_1 + y_2 \end{pmatrix} + \lambda \begin{pmatrix} y_2 - y_1 \\ x_1 - x_2 \end{pmatrix} \quad (\text{B.1})$$

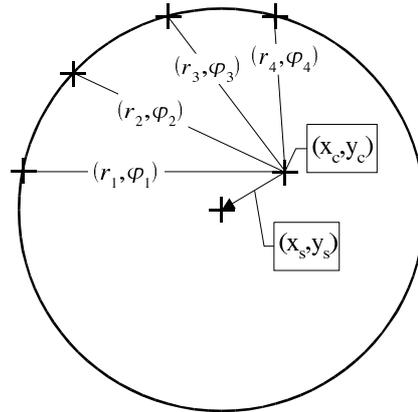
mit

$$\lambda = \frac{1}{2} \frac{(x_3^2 - x_2^2) + (y_3^2 - y_2^2) - (x_1 + x_2)(x_3 - x_2) - (y_1 + y_2)(y_3 - y_2)}{(y_2 - y_1)(x_3 - x_2) + (y_3 - y_2)(x_1 - x_2)}, \quad (\text{B.2})$$

welcher sich ergibt, wenn man mit Hilfe der vorgegebenen Koordinaten den Schnittpunkt der Mittelsenkrechten zweier Kreissekanten berechnet. Der angegebene Zusammenhang ist zwar genau, wenn sich die drei Punkte wirklich auf einem Kreis um den Mittelpunkt befinden, doch wird diese Voraussetzung durch die Meßwerte für die drei Punkte meist nicht erfüllt. Dieser erste Durchlauf führt daher meist nur zu einer sehr ungenauen Abschätzung des Mittelpunkts.

Im zweiten Durchlauf werden daher zur Bestimmung des Mittelpunktes eine größere Anzahl von Meßwerten herangezogen. Unter verschiedenen Azimuthwinkeln  $\varphi_i$  wird, wie in Abb. B.2 dargestellt, jeweils der dazugehörige Abstand  $r_i$  des Maximums auf dem vom Anwender ausgewählten Debye-Scherrer-Ring zum näherungsweise ermittelten Kreiszentrum  $(x_c, y_c)$  bestimmt. Die so ermittelten Meßwerte  $r_i$  sind bis auf Meßfehler bei der Bestimmung des Maximums konstant und unabhängig vom Azimuth, wenn  $x_c, y_c$  der tatsächliche Mittelpunkt des Beugungsdiagramms ist. Wenn dagegen der tatsächliche Mittelpunkt gegenüber  $(x_c, y_c)$  verschoben ist, so variieren die Meßwerte  $r_i$  in Abhängigkeit vom Azimuth  $\varphi_i$ . Der Mittelpunkt des Beugungsdiagrammes liege bei  $(x_c + x_s, y_c + y_s)$ . Sei

$$r_0 = |(x_1 - x_c, y_1 - y_c)| = |(x_2 - x_c, y_2 - y_c)| = |(x_3 - x_c, y_3 - y_c)| \quad (\text{B.3})$$



**Abbildung B.2:** Schematische Erläuterung des Verfahrens der Kreisregression. Durch Bestimmung der Abstände vom vorläufig abgeschätzten Kreismittelpunkt  $(x_c, y_c)$  zum Kreisrand unter verschiedenen Azimuthwinkeln  $\varphi_i$  wird der Verschiebungsvektor  $(x_s, y_s)$  zum tatsächlichen Kreismittelpunkt bestimmt. (Die Länge des Verschiebungsvektors ist im Vergleich zum Kreisradius übertrieben dargestellt. Das Verfahren funktioniert in einem Schritt nur für kleine Verschiebungen  $|(x_s, y_s)| < r/10$ .)

der im ersten Durchlauf bestimmte Radius des Ringmaximums und

$$r = r_0 + \delta r \quad (\text{B.4})$$

der tatsächliche Radius des Ringmaximums. Ist die Fehlabschätzung  $(x_s, y_s)$  des Mittelpunktes klein, so kann das Quadrat des Abstandes von  $(x_c, y_c)$  zum Ringmaximum unter dem Azimuth  $\varphi_i$  in  $x_s, y_s$  und  $\delta r$  linear genähert werden

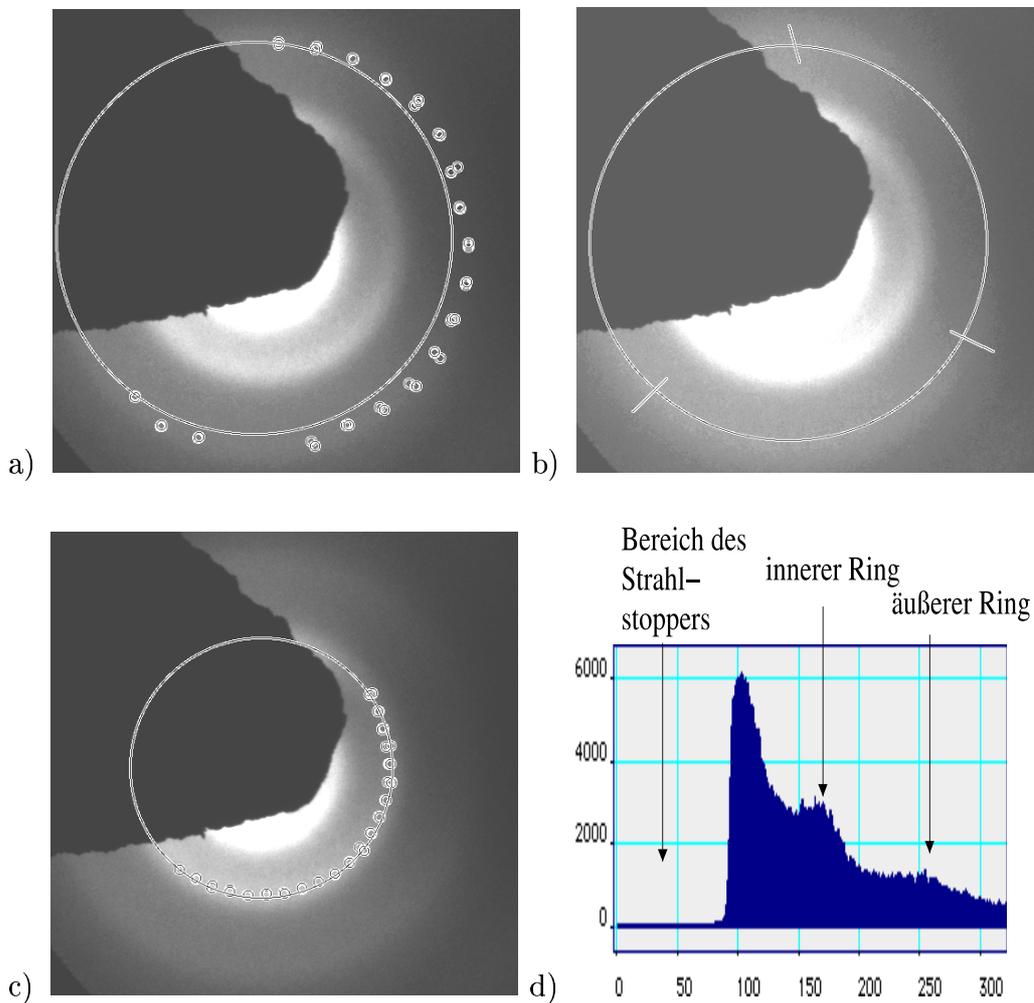
$$r^2(\varphi_i) \approx r_0^2 + 2r_0x_s \cos \varphi_i + 2r_0y_s \sin \varphi_i + 2r_0\delta r. \quad (\text{B.5})$$

Hat man  $n$  Meßwerte  $r_i$  unter verschiedenen Azimuthwinkeln  $\varphi_i$  bestimmt, so erhält man die Fehlabschätzungen  $x_s$  und  $y_s$  der Mittelpunktskoordinate sowie die Fehlabschätzung des Radius  $\delta r$  in Form einer Regressionsanalyse durch Minimierung des Polynoms

$$\chi^2 = \sum_{i=1}^n [r_i^2 - r^2(\varphi_i)]^2 \quad (\text{B.6})$$

in den Variablen  $x_s, y_s$  und  $\delta r$ . Vereinbart man die Abkürzungen

$$R2 = \langle r_i^2 \rangle, \quad C = \langle \cos \varphi_i \rangle, \quad C2 = \langle \cos^2 \varphi_i \rangle,$$



**Abbildung B.3:** Mittelpunktbestimmung mit „Zentrum“. Abbildung a) zeigt das Beugungsdiagramm aus Abb. B.1 mit einem großen Kreis um den nach der Drei-Punkte-Methode gefundenen Mittelpunkt sowie kleinen Kreisen um die für die Kreisregression verwendeten Ringmaximum-Meßwerte. Der große Kreis in b) hat als Zentrum das mit der Kreisregression gefundene Zentrum. c) zeigt die Meßwerte für die Kreisregression auf einem kleineren Debye-Scherrer-Ring im selben Beugungsdiagramm. Als erste Mittelpunktschätzung wurde hier der in b) bestimmte Mittelpunkt verwendet. Die kalkulierten Verschiebungen betragen in x-Richtung ein, in y-Richtung weniger als ein Pixel. Die Zentrumsbestimmung funktionierte also selbst auf dem äußeren Debye-Scherrer-Ring, obwohl dieser, wie in d) erkennbar, in einem einzelnen Linescan kein scharfes Maximum erkennen läßt.

$$\begin{aligned}
S &= \langle \sin \varphi_i \rangle, & S2 &= \langle \sin^2 \varphi_i \rangle, & CS &= \langle \cos \varphi_i \sin \varphi_i \rangle, \\
RC &= \langle r_i^2 \cos \varphi_i \rangle & RS &= \langle r_i^2 \sin \varphi_i \rangle & & (B.7)
\end{aligned}$$

für die Mittelwerte und

$$Z = 2r_0(-2 \cdot C \cdot CS \cdot S + C^2 \cdot S2 + CS^2 + S^2 \cdot C2 - C2 \cdot S2), \quad (B.8)$$

so erhält man für die Fehlabschätzungen

$$\begin{aligned}
x_s &= (-RC \cdot S2 + CS \cdot RS - R2 \cdot CS \cdot S + S^2 \cdot RC \\
&\quad - S \cdot C \cdot RS + R2 \cdot C \cdot S2)/Z \\
y_s &= -(-C^2 \cdot RS + C2 \cdot RS + C \cdot CS \cdot R2 + CS \cdot RC \\
&\quad - CS \cdot RC - S \cdot C2 \cdot R2)/Z \\
\delta r &= -(r_0^2 \cdot S2 \cdot C^2 - 2 \cdot C \cdot r_0^2 \cdot CS \cdot S - C \cdot RC \cdot S2 \\
&\quad + C \cdot CS \cdot RS - S \cdot C2 \cdot RS + C2 \cdot R2 \cdot S2 - r_0^2 \cdot C2 \cdot S2 \\
&\quad + CS \cdot S \cdot RC + r_0^2 \cdot CS^2 \\
&\quad + r_0^2 \cdot S^2 \cdot C2 - CS^2 \cdot R2)/Z. & (B.9)
\end{aligned}$$

Meßwerte  $r_i$ , die zu weit vom Abstand  $r_{i+n}, r_{i-n}$  der Nachbarmesswerte abweichen, sollten vor der Berechnung von  $x_s$ ,  $y_s$  und  $\delta r$  aus der Meßwerttabelle entfernt werden. Die beschränkte Gültigkeit von Gl. (B.5) stellt in der Praxis kein Hindernis dar, da man die Regression iterieren kann. Das Ergebnis konvergiert zum tatsächlichen Mittelpunkt, sofern das vorgegebene Beugungsdiagramm nicht zu sehr verwaschen ist, die Schätzung des Mittelpunkts im ersten Durchlauf nicht mehr als etwa ein Viertel des Radius des gewählten Debye-Scherrer-Ringes von dem tatsächlichen Mittelpunkt entfernt ist und sofern der im Bild vorhandene Kreisabschnitt nicht zu klein ist. Das Verfahren lieferte bei uns gute Ergebnisse, wenn etwas mehr als ein Viertel des Debye-Scherrer-Ringes im Bild vorhanden war. Ist mehr als die Hälfte des Ringes im aufgenommenen Bild zu sehen, erreicht das Verfahren unter normalen Bedingungen eine Genauigkeit von  $\pm 1$  Pixel, was auf die übliche manuelle Weise durch Anpassen eines Kreises an ein Ringmaximum wohl nur

schwer zu erreichen sein dürfte. Abb. B.3 zeigt die Bestimmung des Mittelpunktes durch das Programm „Zentrum“ an dem schon in Abb. B.1 gezeigten Beugungsbild. Es wurde bewußt ein Beugungsdiagramm mit azimuthal leicht inhomogener Beleuchtung gewählt, um zu demonstrieren, daß das Programm auch in diesem Falle das Zentrum richtig findet.

# Anhang C

## Anpassung des Nullstellenverlaufs in der astigmatischen Intensitätsmatrix

In diesem Teil des Anhangs wird die Auswertung des Nullstellenverlaufs in astigmatischen Diffraktogrammen besprochen. Zur rechnergesteuerten Anpassung des theoretischen Nullstellenverlaufs an den experimentellen muß der Verlauf der Nullstellen aus der in Abschnitt 5.4.2 eingeführten astigmatischen Intensitätsmatrix  $I_{\text{astigm}}(\Delta f_i, u_j)$  „extrahiert“ werden und ein Bewertungskriterium für die Güte der Übereinstimmung zwischen theoretischem und experimentellen Nullstellenverlauf angegeben werden. Zur Anpassung wird anschließend dieses Bewertungskriterium maximiert.

Die Extraktion der Nullstellen durch eine Suche der Minima in  $I_{\text{astigm}}(\Delta f_i, u_j)$  erwies sich wegen der stark verrauschten Intensität in den astigmatischen Diffraktogrammen als unpraktikabel. Stattdessen haben wir die Extraktion des „Nullstellenverlaufs“ durch Setzen einer raumfrequenzabhängigen Schwelle  $\ell(u)$  in der Intensitätsmatrix  $I_{\text{astigm}}(\Delta f_i, u_j)$  vorgenom-

men. Man erhält so die „Nullstellenmatrix“ (Abb. 5.10c und 5.11c)

$$N_{\text{astigm}}(\Delta f_i, u_j) = \begin{cases} 1 & \text{für } I_{\text{astigm}}(\Delta f_i, u_j) < \ell(u_j) \\ 0 & \text{sonst} \end{cases} \quad (\text{C.1})$$

Durch die Schwellsetzung weist die Nullstellenmatrix  $N_{\text{astigm}}(\Delta f_i, u_j)$  natürlich auch in einem gewissen Bereich um die Nullstellen herum Intensität auf. Da die Intensität in  $I_{\text{astigm}}(\Delta f_i, u_j)$  stark verrauscht ist, liegen die nichtverschwindenden Matrixelemente aber um so dichter, je näher sie sich an einer Nullstelle befinden. Die Raumfrequenzabhängigkeit der Schwelle  $\ell(u_j)$  muß wegen des starken Abfalls der Intensität im Diffraktogramm hin zu hohen Raumfrequenzen zugelassen werden. Es erwies sich als sinnvoll, die Höhe der Schwelle in der Form

$$\ell(u_j) = c \cdot \langle I_{\text{astigm}}(u_j) \rangle \quad (\text{C.2})$$

anzusetzen, wobei  $0,01 < c < 0,05$  eine Konstante und  $\langle I_{\text{astigm}}(u) \rangle$  den Mittelwert einer Spalte der Intensitätsmatrix  $I_{\text{astigm}}(\Delta f_i, u_j)$  darstellt.

Sei  $\text{CTF}_{\text{astigm}}(\Delta f_i, u_j)$  eine Matrix, in der wie in der experimentellen Intensitätsmatrix die Werte für die theoretische Phasenkontrastübertragungsfunktion in Gl. (4.33) in Abhängigkeit von Defokus und Raumfrequenz enthalten sind. Außerdem sei

$$N_{\text{CTF}}(\Delta f_i, u_j) = \begin{cases} 1 & \text{für } |\text{CTF}_{\text{astigm}}(\Delta f_i, u_j)|^2 < c \\ 0 & \text{sonst} \end{cases} \quad (\text{C.3})$$

die theoretische Nullstellenmatrix und

$$W_{\text{CTF}}(\Delta f, u) = (|\text{CTF}_{\text{astigm}}(\Delta f, u)|^2 + 0,001)^{-1/2} \quad (\text{C.4})$$

eine Gewichtungsfunktion, die um so größer ist, je näher die Koordinate  $(\Delta f, u)$  an der Nullstelle der theoretischen CTF liegt. Eine Anpassung von theoretischen und experimentellem Nullstellenverlauf erreicht man durch Maximierung der Größe

$$F(\Delta f_{\text{min}}, \Delta f_{\text{max}}, C_s) = \frac{\sum_i \sum_j N_{\text{astigm}}(\Delta f_i, u_j) \cdot N_{\text{CTF}}(\Delta f_i, u_j) \cdot W_{\text{CTF}}(\Delta f_i, u_j)}{\sqrt{\sum_i \sum_j N_{\text{astigm}}^2(\Delta f_i, u_j)} \cdot \sqrt{\sum_i \sum_j N_{\text{CTF}}^2(\Delta f_i, u_j)} \cdot W_{\text{CTF}}^2(\Delta f_i, u_j)}, \quad (\text{C.5})$$

welche der linearen Korrelation [61] von  $N_{\text{astigm}}(\Delta f_i, u_j)$  und  $\{N_{\text{CTF}}(\Delta f_i, u_j) \cdot W_{\text{CTF}}(\Delta f_i, u_j)\}$  entspricht. Vernachlässigt man zunächst die Gewichtungsfunktion  $W_{\text{CTF}}(\Delta f_i, u_j)$ , so ist  $F(\Delta f_{\text{min}}, \Delta f_{\text{max}}, C_s)$  anschaulich gesprochen die normierte Summe aller Übereinstimmungen zwischen der theoretischen und der experimentellen Nullstellenmatrix, also ein Maß für die relative Übereinstimmung. Da der nichtverschwindende Bereich besonders in der theoretischen Nullstellenmatrix durch die Schwellsetzung eine gewisse Breite aufweist, wird durch Multiplikation mit der Gewichtungsmatrix erreicht, daß Übereinstimmungen umso höher bewertet werden, je näher sie an der tatsächlichen Nullstelle liegen.

Um die Abhängigkeit des Ergebnisses der Anpassung von der Wahl der vorzugebenden Schwellwerte auszuschließen, wurde die Optimierung jeweils für verschiedene Schwellparameter durchgeführt. Die Streuung der Werte wurde bei den Ergebnissen als Fehlergrenze angegeben.

# Literaturverzeichnis

- [1] D'Antonio, P. und J. H. Konnert: Small-Angle-Scattering Evidence of Voids in Hydrogenated Amorphous Silicon. *Phys. Rev. Lett.* **43** (1979) 1161-1163
- [2] Baik, H.S., T. Epicier und E. van Cappellen: Quantitative analysis of HRTEM images from amorphous materials. I: About the estimation of  $C_s$  and  $\delta f$  from HRTEM diffractograms. *Eur. Phys. J. AP* **4** (1998) 11-26
- [3] Berger, A. und H. Kohl: *Elemental mapping using an imaging energy filter: image formation and resolution limits*. *Microsc. Microanal. Microstruct.* **3** (1992) 159 - 174
- [4] Berger, A. und H. Kohl: *Optimum imaging parameters for elemental mapping in an energy filtering transmission electron microscope*. *Optik* **92** (1993) 175 - 193
- [5] Berger, A.: *Abbildung von Elementverteilungen mit hoher Auflösung im Transmissions-Elektronenmikroskop*. Dissertation D 17, TH Darmstadt 1993
- [6] Bethe, H.: *Zur Theorie des Durchgangs schneller Korpuskularstrahlen durch Materie*. *Ann. Phys.* **5** (1930) 325
- [7] Bird, D.M. und Q.A. King: *Absorptive form factors for high-energy electron diffraction*. *Acta Cryst. A* **46** (1990) 202

- [8] Biswas, R., I. Kwon, A. M. Bouchard, C. M. Soukoulis und G. S. Grest: *Intense small wave-vector scattering from voids in amorphous silicon: A theoretical simulation*. Phys. Rev. B **39** (1989) 5101-5106
- [9] Bjorken, J.D. und S.D. Drell: *Relativistische Quantenmechanik*. B.I.-Hochschultaschenbücher, Band 98, Mannheim 1966
- [10] Cowley, J.M.: *Diffraction Physics*. North-Holland, Amsterdam, 1975
- [11] Daberkow, I., K.-H. Herrmann, L. Liu und W.D. Rau: *Performance of electron image converters with YAG single-crystal screen and CCD detector*. Ultramicroscopy **38** (1991) 215-223
- [12] Darwin, C. G.: *The Wave Equations of the Electron*. Proc. Roy. Soc. **118** (1928) 654-680
- [13] Davydov, A. S.: *Quantenmechanik*. 8. Aufl., Johann Ambrosius Barth, Leipzig, 1992
- [14] Egerton, R.F.: *K-Shell Ionization Cross-Sections for use in Microanalysis*. Ultramicroscopy **4** (1979) 169-179
- [15] Egerton, R.F.: *Electron energy-loss spectroscopy in the electron microscope*. Plenum, New York, 1986
- [16] Egerton, R. F. und S.C. Cheng: *Measurement of Local Thickness by Electron Energy Loss Spectroscopy*. Ultramicroscopy **21** (1987) 231-244
- [17] Fano, U.: *Differential Inelastic Scattering of Relativistic Charged Particles*. Phys. Rev. **102** (1956) 385-387
- [18] Fertig, J und H.Rose: *A Reflection on Partial Coherence in Electron Microscopy*. Ultramicroscopy **2** (1977) 269-279.
- [19] Freitag, B. und W. Mader: *Element specific imaging with high lateral resolution: an experimental study on layer structures*. J. Microsc. **194** (1998) 42-57.

- [20] Goodman, J.W.: *Introduction to Fourier-Optics*, McGraw-Hill, New-York, 1968
- [21] Gjønnes, J.: *Quantitative Treatment of Multiple Scattering Effect in Continuous Electron Diffraction Curves*, Acta Cryst. **12** (1959) 976-980
- [22] Gibson, J. M.: *Breakdown of the weak-phase object approximation in amorphous objects and measurements of high-resolution electron optical parameters*, Ultramicroscopy **56** (1994) 26-31
- [23] Gibson, J. M. und M. M. J. Treacy: *Diminished Medium-Range Order Observed in Annealed Amorphous Germanium*, Phys. Rev. Let. **78** (1997) 1074-1077
- [24] Golla, U. und H. Kohl: *Theoretical and Experimental Investigations of Resolution and Detection Limits in Energy-Filtering Electron Microscopy*. Micron **28** 397-406
- [25] Golla, U.: *Untersuchung von Auflösungs- und Nachweisgrenzen in Elementverteilungsbildern*, Dissertation, Universität Münster, 1998
- [26] Guinier, A. und G. Fournet: *Small-Angle Scattering of X-Rays*. Wiley, New-York, 1955
- [27] Guy, C. A., A. C. Wright, R. N. Sinclair, R. J. Stewart und F. Jansen: *A small angle neutron scattering (SANS) study of hydrogen in hydrogenated amorphous silicon*. J. Non-Cryst. Solids **196** (1996) 260-266.
- [28] Haking, A.: *Ein neues Untergrundsubtraktionsverfahren zur Bestimmung von Elementverteilungen in biologischen Proben mit einem energiefilternden Transmissionselektronenmikroskop*, Dissertation, Universität Münster, 1998
- [29] Hanszen, K. J.: *The Optical Transfer Theory of the Electron Microscope: fundamental principles and applications*. Adv. Opt. Electr. Micr. **4** (1971) 1-84

- [30] Hoyt, J. J., O. Lyon, J. P. Simon, B. Clark, B. E. C. Davis und D. de Fontaine: The Determination of Partial Structure Functions in an Al-Zn-Ag Alloy. *Solid State Commun.* **57** (1986) 155-158
- [31] Hülk, C. und I. Daberkow.: *Easy methods for accurate characterization of CCD cameras*. Proc. 14th Int. Congr. Electr. Micr. 1998 (Cancun) Vol. I, 189
- [32] Hülk, C.: *Charakterisierung von CCD-Kamerasystemen in der Transmissionselektronenmikroskopie und deren Einsatz bei der Erstellung von Elementverteilungsbildern*, Dissertation Westfälische Wilhelms-Universität Münster, 1998
- [33] Jacholke, T.: *Bestimmung des Auflösungsvermögens eines Rasterelektronenmikroskops an inselförmigen Aufdampfschichten mittels digitaler Fourier-Transformation*, Diplomarbeit, Münster, 1994
- [34] Jeol Ltd., Transmission Electron Microscope Specifications JEM-3010,UHR, [www.jeol.com](http://www.jeol.com)
- [35] Knippelmeyer, R.: *Relativistische Betrachtung der unelastischen Streuung von Elektronen für Anwendungen in der Transmissionselektronenmikroskopie*. Diplomarbeit, Westfälische Wilhelms-Universität Münster, 1996
- [36] Knippelmeyer, R., P. Wahlbring und H. Kohl: *Relativistic ionisation cross-sections for use in microanalysis*. *Ultramicroscopy*, **68** (1997), 25-41
- [37] Knippelmeyer, R. und H. Kohl: *Relativistic calculations of intensity distributions in elemental maps using contrast transfer functions*. *J. Microsc.* **194** (1999), 30-41
- [38] König, U. und J. Hersener: *Needs of Low Thermal Budget Processing in SiGe Technology*. *Solid State Phenom.* **47-48** (1996) 17-32

- [39] Kohl, H.: *A Simple Procedure for Evaluating Effective Scattering Cross-Sections in STEM*. *Ultramicroscopy* **16** (1985) 265-268
- [40] Kohl, H. und H. Rose: *Theory of Image Formation by Inelastically Scattered Electrons in the Electron Microscope*. *Adv. Electron. El. Phys.* **65** (1985) 173-227
- [41] Koster, A.J. und A. F. de Jong.: *Measurement of the spherical aberration coefficient of TEMs by beam-tilt-induced image displacement*. *Ultramicroscopy* **38** (1991) 235-240
- [42] Krivanek, O.L.: *A Method for Determining the Coefficient of Spherical Aberration from A Single Electron Micrograph*, *Optik* **45** (1976) 97-101
- [43] Krivanek, O.L.: *Practical High-Resolution Electron Microscopy* in *High Resolution Transmission Electron Microscopy and Associated Techniques*, eds. P. Buseck, J. Cowley, L. Eyring, Oxford University Press, Oxford 1988.
- [44] Kurata, H., P. Wahlbring, S. Isoda und T. Kobayashi.: *Importance of Relativistic Effect on Inelastic Scattering Cross-sections for Quantitative Microanalysis*. *Micron* **28** (1997) 381-388
- [45] Landau, L. D. und E. M. Lifschitz: *Quantenmechanik*. Lehrbuch der Theoretischen Physik, Band III. Akademie-Verlag Berlin 1979
- [46] Lonsdale, K. (ed.): *International Tables for X-ray crystallography* Kynoch, Birmingham, 1968, Vol. III
- [47] Lüke, H.D.: *Signalübertragung*. Springer, Berlin, 1990
- [48] Mahan, A. H., Williamson, D. L., B. P. Nelson und R. S. Crandall: *Characterization of microvoids in device-quality hydrogenated amorphous silicon by small angle x-ray scattering and infrared measurements*. *Phys. Rev. B* **40** (1989) 12024-12027

- [49] Mandl, F. und G. Shaw: *Quantenfeldtheorie*. Aula, Wiesbaden, 1993
- [50] Mayer-Kuckuk, T.: *Atomphysik*. Teubner, Stuttgart, 1994
- [51] Meyer, R. R. und A. Kirkland.: *The effects of electron and photon scattering on signal and noise transfer properties of scintillators in CCD cameras used for electron detection*. *Ultramicroscopy*, **75** (1998) 23-33
- [52] Meyer, R. R. und A. Kirkland.: *Characterisation of the signal and noise transfer of CCD cameras for electron detection*. submitted to *Microsc. Res. Techniq.* , 1999
- [53] Möbus, G. und M. Rühle: *A new procedure for the determination of the chromatic contrast transfer envelope of electron microscopes*. *Optik* **93** (1993) 108-118
- [54] Möbus, G: *Optimierung der digitalen Kontrastauswertung hochauflösender elektronenmikroskopischer Aufnahmen innerer Grenzflächen*. Dissertation, Max-Planck-Institut für Metallforschung, 1994
- [55] Möbus, G., F. Phillip, T. Gemming, R. Schweinfest und M. Rühle: *Quantitative diffractometry at 0.1nm resolution for testing lenses and recording media of a high-voltage atomic resolution microscope*. *J. Electron Microsc.* **46** (1997) 381-395
- [56] Möbus, G.: *persönliche Mitteilung*
- [57] Møller, Chr.: *Zur Theorie des Durchgangs schneller Elektronen durch Materie*. *Ann. d. Phys.* [5] **14** (1932) 531-585
- [58] Paasche, F., H. Olbrich, U. Schestag, P. Lamparter, S. Steeb: *On the Investigation of the Structure of Amorphous Substances by Means of Electron Diffraction* *Z. Naturforsch.* **37a** (1982) 1139-1146
- [59] Postol, T. A., M. F. Charles, R. T. Kampwirth, I. K. Schuller und W. B. Yelon: *Structure of Amorphous Silicon and Silicon Hydrides*. *Phys. Rev. Lett.* **45** (1980) 648-652

- [60] Pokroppa, F: *Berechnung von relativistischen Wirkungsquerschnitten im Rahmen des Zentralfeldmodells für Anwendungen in der Elektronenenergieverlustspektroskopie*. Diplomarbeit, Universität Münster, 1999
- [61] Press, W. H., B. P. Flannery, S. A. Teukolsky und W. T. Vetterling: *Numerical Recipes - The Art of Scientific Computing*. Cambridge, Cambridge, 1986
- [62] Rappich, J., A. Schoepke, N.V. Abrosimov und W. Fuessel: *Anodic Passivation of P-SiGe(100) Single Crystals*. *Elektrochem. Soc. Proc.* **97-21** (1997) 358-365
- [63] Rappich, J., I. Sieber, A. Schöpke, W. Füssel, M. Glück und J. Hersener: *Influence of a silicon cap on SiGe passivation by anodic oxidation*. *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.* **451** (1997) 215-220
- [64] Rappich, J.: *Smoothing, Passivation and Re-passivation of Silicon Surfaces by Anodic Oxidation: A Low Thermal Budget Process*. *Microelectron. Reliab.* **274** (2000), im Druck.
- [65] Rappich, J.: *Anodic passivation of SiGe*. *Microelectron. Reliab.* **274** (2000), im Druck.
- [66] Rappich, J., I. Sieber und R. Knippelmeyer: *Enhanced passivation of SiGe by anodic oxidation*, eingereicht bei *J. Appl. Phys.*
- [67] Reimer, L., Rennekamp, R., Ross-Messemer, M., Fromm, I. und Krahl, D.: *Energieverlustspektroskopie und Energiefilterung in der Transmissions-Elektronenmikroskopie*. Skript, Universität Münster, 1993
- [68] Reimer, L.: *Elektronenmikroskopische Untersuchungs- und Präparationsmethoden*. Springer, Berlin, 1967

- [69] Reimer, Ludwig: *Electron Spectroscopic Imaging* in Ludwig Reimer (ed.) Energy-Filtering Transmission Electron Microscopy, Springer Series in Optical Sciences **71**, Springer, Berlin, 1995
- [70] Reimer, Ludwig: *Transmission Electron Microscopy, Physics of Image Formation and Microanalysis*, Springer Series in Optical Sciences **36**, Springer, Berlin, 1997
- [71] Reimer, Ludwig: *SEM/TEM Hypertext - Per Mausklick (fast) alles über Elektronenmikroskopie*, Münster, 1999
- [72] Reimer, L.: *persönliche Mitteilung*
- [73] Rose, H.: *Image formation by inelastically scattered electrons in electron microscopy*. Optik, **45** (1976) 139-158 und 187-208
- [74] Rose, H.: *Nonstandard imaging methods in electron microscopy*. Ultramicroscopy **2** (1977) 251-267
- [75] de Ruijter, W.J., J.K. Weiss: *Methods to measure properties of slow-scan CCD cameras for electron detection*. Rev. Sci. Instrum. **63** (1992) 4314-4321
- [76] Schaal, M., P. Lamparter und S. Steeb: *Concentration- and Density-Fluctuations with amorphous  $Ni_{36}Nb_{37}$  by Means of Neutron Scattering at Small Momentum Transfer (SANS)* Z. Naturf. **43a** (1988) 1061 - 1064
- [77] Schorsch, P.: *Berechnung von Wirkungsquerschnitten für die Elektronen-Energieverlust-Spektroskopie*. Diplomarbeit TH Darmstadt 1991
- [78] Shevchik, N. J. und W. Paul: *Voids in amorphous semiconductors*. J. Non-Cryst. Solids **16** (1974) 55-71
- [79] Stallknecht, P. und H. Kohl: *Computation and interpretation of contrast in crystal lattice images formed by inelastically scattered electrons in a transmission electron microscope*. Ultramicroscopy **66** (1996) 261-275

- [80] Steinecker, A und W. Mader: *Precise measurement of lens aberrations by means of beam-tilt series*, Posterbeitrag, International Workshop on Prospects and Future Needs of High-Resolution Electron Microscopy
- [81] Thesing, A.: *Möglichkeiten zur Bestimmung von Linsenfehlern und Strukturfaktoren in der Transmissionselektronenmikroskopie*. Diplomarbeit, Westfälische Wilhelms-Universität Münster, Physikalisches Institut, 1999
- [82] Thon, F.: *Zur Defokussierungsabhängigkeit des Phasenkontrastes bei der elektronenmikroskopischen Abbildung*. Z. Naturforsch. **21a** (1966) 476-478
- [83] Weickenmeier, A und H. Kohl: *Computation of absorptive form factors for high-energy electron diffraction*. Acta Cryst. **A47** (1991) 590-597
- [84] Weickenmeier, A.L., W. Nüchter und J. Mayer: *Quantitative characterization of point-spread function and detection quantum efficiency for a YAG scintillator slow-scan CCD camera*. Optik **99** (1995) 147-154
- [85] Williams, D. B. und C. B. Carter: *Transmission Electron Microscopy*. Plenum Press, New York, 1996
- [86] Yoshida, H., A. Oshita und H. Tomita: *Determination of spatial and temporal coherence functions from a single astigmatic image*. Jpn. J. Appl. Phys. **20** (1981) 2427-2429
- [87] Ziman, J. M.: *Models of disorder - The theoretical physics of homogeneously disordered systems*, Cambridge University Press, Cambridge, 1979

## Danksagung

Herrn Prof. Dr. H. Kohl danke ich für die Anregung zu dieser Arbeit, für sein förderndes Interesse und die Möglichkeit der Anfertigung dieser Dissertation in seiner Arbeitsgruppe.

Allen Mitgliedern der elektronenmikroskopischen Abteilung danke ich für die gewährte Unterstützung und die angenehme Atmosphäre. Besonders möchte ich mich bei den Herren Andreas Thesing, Ingo Müller, Dr. Christoph Hülk und Dr. Norbert Overbeck für zahlreiche fruchtbare Diskussionen und Anregungen bedanken. Trotz zum Teil konträrer Ansichten ;-) gilt mein Dank Herrn Karl-Heinz Krämer wegen der guten Zusammenarbeit bei der EDV-Organisation. Herrn Markus Silder möchte ich für die Unterstützung bei der Probenpräparation danken.

Bei Herrn Dr. J. Rappich vom Hahn-Meitner-Institut in Berlin bedanke ich mich für die Bereitstellung der oxidierten Silizium-Germanium-Halbleiter und bei Frau I. Sieber vom selben Institut für die Querschnittspräparation eines Teils dieser Proben. Den Herren W. Brunner und Dr. J. Zweck danke ich für die Einführung in die quantitative Auswertung der Beugungsdiagramme amorpher Materialien und den Herren Dres. Ahmed Charai und Wahib Saikaly für eine Einladung nach Marseille mit der Möglichkeit, Messungen am dortigen 200kV Gerät durchzuführen. Herrn Dr. G. Möbus vom Department of Materials der Universität Oxford bin ich wegen zahlreicher Tips und Hinweise zur Auswertung elastischer Diffraktogramme sehr dankbar.

Bei der Deutschen Forschungsgemeinschaft möchte ich mich für die finanzielle Unterstützung der in der Arbeit dargelegten Forschungsarbeiten bedanken.

Meinen Eltern danke ich für die wohlwollende Unterstützung meines Studiums in allen seinen Teilen.

Mein ganz besonderer Dank gilt meiner Frau Jana, die stets und überall bereit ist, mir den Rücken freizuhalten, selbst in Situationen, in denen sie selbst eines „freien Rückens“ bedarf und einfach dafür, daß sie da ist. Für das Verbreiten stets guter Laune möchte ich außerdem Nikolas, Emma und Floppy danken.