

Andreas Thesing

Bestimmung von Phasen komplexer  
Atomstreuamplituden und von  
partiellen Zwei-Teilchen-  
Strukturfaktoren amorpher Proben

2005



Experimentelle Physik

Bestimmung von Phasen komplexer  
Atomstreuamplituden und von  
partiellen Zwei-Teilchen-  
Strukturfaktoren amorpher Proben

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

vorgelegt von  
Andreas Thesing  
aus Heiden  
–2005–

Dekan: Prof. Dr. G. Münster  
Erster Gutachter: Prof. Dr. H. Kohl  
Zweiter Gutachter: Prof. Dr. G. Schmitz  
Tag der mündlichen Prüfung(en): 20.12. und 21.12.2005  
Tag der Promotion: 21.12.2005





Ich wage eine Prognose: Es könnte so oder so ausgehen...

Rowan Atkinson (geb. 1955), brit. Komiker



Für meinen Vater und meine Mutter.



# Inhaltsverzeichnis

<b>1 Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2 Elastisch gefilterte Abbildung im Transmissionselektronenmikroskop</b>	<b>4</b>
2.1 Bildentstehung im Elektronenmikroskop . . . . .	4
2.2 Schwaches-Phasenobjekt-Näherung (WPO) . . . . .	9
2.3 Schwaches-Objekt-Näherung (WO) und Verletzung der WPO-Näherung	14
2.4 Einfluss der Phasenableitung $\eta'(u)$ auf die Einhüllende im Diffraktogramm . . . . .	17
2.5 Zusätzliche experimentelle Einflüsse . . . . .	19
2.6 Bestimmung der Phase $\eta(u)$ komplexer Atomstreuamplituden und Bestimmung von Zwei-Teilchen-Strukturfaktoren . . . . .	21
<b>3 Analytische Elektronenmikroskopie</b>	<b>32</b>
3.1 Energieverlustspektroskopie . . . . .	32
3.2 Elementverteilungsbilder . . . . .	36
3.3 Lineare Abbildungstheorie und inelastische Übertragungsfunktion . .	41
3.4 Zusätzliche experimentelle Einflüsse . . . . .	44
3.5 Bestimmung des Zwei-Teilchen-Strukturfaktors aus inelastisch gefilterten Diffraktogrammen . . . . .	45

3.6 Bestimmung partieller Zwei-Teilchen-Strukturfaktoren mit Hilfe von inelastisch gefilterten Diffraktogrammen und Elementverteilungsbildern	46
<b>4 Experimentelle Bedingungen und Probencharakterisierung</b>	<b>51</b>
4.1 Präparation der Proben	51
4.2 Verfahren zur Bestimmung der Schichtdicke	52
4.3 Experimentelle Bedingungen	54
<b>5 Resultate für die Phasen komplexer Atomstreuamplituden</b>	<b>57</b>
5.1 Ergebnisse für Kohlenstoff	57
5.2 Ergebnisse für Silizium	66
5.3 Ergebnisse für Germanium	71
5.4 Diskussion und Vergleich der Phasenergebnisse der untersuchten amor- phen Proben	77
<b>6 Experimentelle Ergebnisse für den Zusatzparameter</b>	<b>86</b>
6.1 Einfluss des Zusatzparameters in Kontrast-Transfer-Charakteristiken	86
6.2 Vergleich der Ergebnisse für den Zusatzparameter und die Phasena- bleitung	89
<b>7 Experimentelle Ergebnisse für die Zwei-Teilchen-Strukturfaktoren</b>	<b>100</b>
7.1 Ergebnisse für Kohlenstoff	100
7.2 Ergebnisse für Silizium	106
7.3 Ergebnisse für Germanium	110
7.4 Diskussion der Ergebnisse der Zwei-Teilchen- Strukturfaktoren für die untersuchten amorphen Proben	113
<b>8 Ergebnisse für die partiellen Zwei-Teilchen-Strukturfaktoren O- bzw. C-haltiger amorpher Si- und Ge-Folien</b>	<b>120</b>

<b>9 Besondere experimentelle Beobachtungen und Besonderheiten</b>	<b>137</b>
<b>10 Zusammenfassung</b>	<b>148</b>
<b>Anhang</b>	<b>152</b>
<b>A Konvergenzhalbwinkelgleichung mit Hilfe amorpher Proben</b>	<b>152</b>
<b>B Verlauf der mittleren Bildintensität in Abhängigkeit von Defokus und Kondensorlinsenanregung: Bestimmung der Crossoverbreite</b>	<b>169</b>
<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>187</b>



# Kapitel 1

## Einleitung

Ein Transmissionselektronenmikroskop, das mit einem abbildenden Energiefilter ausgestattet ist, ermöglicht die Aufzeichnung von Bildern, zu denen nur Elektronen eines bestimmten Energiebereiches beitragen. Selektiert man mit dem Energiespalt im Filter nur Elektronen, die beim Durchgang durch die Probe keinen Energieverlust erlitten haben, erhält man ein elastisch gefiltertes Bild der Probe. Lässt man durch geeignete Einstellung des Energiespalts im Filter nur Elektronen zur Bildaufzeichnung beitragen, die bei Anregung einer inneren Schale eines bestimmten Elements inelastisch gestreut wurden, so erhält man eine inelastisch gefilterte Aufnahme. Eine anschließende Subtraktion eines elementunspezifischen Untergrundes ergibt ein Elementverteilungsbild, dessen Intensität Informationen über die Flächenteilchendichte des betreffenden Elements in der Probe enthält.

In dieser Arbeit werden beide Abbildungstechniken zur Untersuchung dünner amorpher Kohlenstoff-, Silizium- und Germaniumproben sowie zur Untersuchung von dünnen amorphen oxidierten Proben aus Silizium und Germanium eingesetzt, wobei letztere auch Kohlenstoff beinhalten. Für die quantitative Auswertung der elastisch und inelastisch gefilterten Aufnahmen ist die theoretische Betrachtung der beiden Abbildungsprozesse notwendig. Beschreibt man den elastischen Abbildungsprozess dünner amorpher Proben, die aus einem Element bestehen, mit Hilfe der Schwaches-Objekt-Näherung, wird die entsprechende Atomstreuamplitude eine komplexe Größe und das Diffraktogramm zu einer elastisch gefilterten Aufnahme besteht aus einem probenabhängigen Faktor, der sich aus dem Zwei-Teilchen-Strukturfaktor und der

Atomstreuamplitude zusammensetzt, und einem geräteabhängigen Faktor, der durch eine Übertragungsfunktion wiedergegeben wird. Diese hängt anders als im Falle der Schwaches-*Phasenobjekt*-Näherung nicht nur von Geräteparametern, sondern auch von einer probenabhängigen Phase  $\eta$  ab, die als Phase der komplexen Atomstreuamplitude angesehen werden kann.

Der inelastische Abbildungsprozess lässt sich mit einer linearen Abbildungstheorie beschreiben, wenn Mehrfachstreuung vernachlässigt werden kann. Dies sollte für dünne amorphe Filme mit einer Schichtdicke von ca. 5 bis 30 nm, die hier untersucht wurden, der Fall sein. Das Diffraktogramm einer inelastisch gefilterten Aufnahme einer Probe, die aus nur einem Element besteht, enthält das Produkt aus dem Zwei-Teilchen-Strukturfaktor des Elementes und dem Betragsquadrat der inelastischen Übertragungsfunktion (*ITF*). Diese beschreibt nicht nur den Geräteeinfluss bei der Abbildung, sondern enthält auch den Einfluss des inelastischen Streuprozesses.

Ziel dieser Arbeit ist die raumfrequenzabhängige Bestimmung von Phasen komplexer Atomstreuamplituden und von Zwei-Teilchen-Strukturfaktoren dünner amorpher Kohlenstoff-, Silizium- und Germaniumproben sowie die Untersuchung des Einflusses der Phasenableitung  $\eta'(u)$  auf die Einhüllende elastisch gefilterter Diffraktogramme. Zur Ermittlung der Phase und ihrer Ableitung werden Fokusreihen elastisch gefilterter Bilder der Präparate mit einer Slow-Scan-CCD-Kamera aufgezeichnet. Daraus werden mit digitaler Bildbearbeitung die Diffraktogramme berechnet und ausgewertet. Für die Ermittlung des Zwei-Teilchen-Strukturfaktors werden ebenfalls diese Diffraktogramme der elastisch gefilterten Bilder herangezogen. Als zweite unabhängige Bestimmungsmethode werden Diffraktogramme von inelastisch gefilterten Aufnahmen bzw. von Elementverteilungsbildern und relativistische Berechnungen der inelastischen Übertragungsfunktion verwendet. Beide Ergebnisse für den Zwei-Teilchen-Strukturfaktor werden miteinander verglichen.

In dieser Arbeit werden auch oxidierte amorphe Silizium- und Germaniumfilme untersucht, wobei in den Germaniumproben auch Kohlenstoff enthalten ist. Zur Probencharakterisierung sollen die partiellen Zwei-Teilchen-Strukturfaktoren der in der Probe enthaltenen Elemente bestimmt werden. Dies geschieht mit Hilfe von Diffraktogrammen von Elementverteilungsbildern der betreffenden Elemente und mit relativistischen Berechnungen der inelastischen Übertragungsfunktion.

Da für die Berechnung der inelastischen Übertragungsfunktion die Kenntnis der eingesetzten Abbildungsparameter nötig ist, muss auch der verwendete Konvergenzhalbwinkel, der die Einstrahlcharakteristik der Elektronen auf die Probe beschreibt, bekannt sein. Oft geschieht dies mit Hilfe einer Konvergenzhalbwinkeleichung, die den Konvergenzhalbwinkel als Funktion der Kondensorlinsenanregung wiedergibt. Häufig wird diese durchgeführt, indem Experimente mit konvergenter Beugung an einkristallinen Präparaten ausgewertet werden. In dieser Arbeit sollen im Anhang neue Methoden vorgestellt werden, die diese Konvergenzhalbwinkeleichung unter Verwendung der hier untersuchten dünnen amorphen Folien ermöglichen.

Ein weiteres Ziel dieser Arbeit ist die Erklärung einer im Rahmen dieser Arbeit gemachten Beobachtung, nach der die mittlere Intensität von Einzelbildern in Fokusreihen eine Abhängigkeit vom Defokus aufweist, obwohl alle Bilder mit der gleichen Belichtungszeit aufgezeichnet wurden. Die Art dieser Defokusabhängigkeit wird dabei von der Kondensorlinsenanregung bestimmt. Außer einer Erklärung dieser Beobachtung im Anhang dieser Arbeit soll dort eine Methode vorgestellt werden, wie dieser Effekt zur Charakterisierung des Crossovers oberhalb der Objektivlinse genutzt und sein Durchmesser ermittelt bzw. abgeschätzt werden kann.

## Kapitel 2

# Elastisch gefilterte Abbildung im Transmissionselektronenmikroskop

### 2.1 Bildentstehung im Elektronenmikroskop

Um den Abbildungsprozess in einem Mikroskop zu beschreiben, verwendet man das Kirchhoff'sche Beugungsintegral in Fresnel'scher Näherung [15]. Es erlaubt die Berechnung der Wellenpropagation zwischen den abbildungsrelevanten Ebenen im Mikroskop sowohl im Falle der Abbildung mit Hilfe elastisch oder inelastisch gestreuter Elektronen, als auch für die Lichoptik.

Abbildung 2.1 zeigt schematisch die wesentlichen optischen Elemente im Mikroskop. Die z-Achse beschreibt die optische Achse,  $g$  die Gegenstandsweite,  $f$  die Brennweite der Objektivlinse und  $b$  die Bildweite. Die Ortskoordinaten der abbildungsrelevanten Ebenen sind wie folgt aufgeschlüsselt:  $\vec{\rho} = (x, y)$  bezeichnet die Objektebenenkoordinaten,  $\vec{\rho}_L = (x_L, y_L)$  die Objektivlinsenebenenkoordinaten,  $\vec{\rho}_A = (x_A, y_A)$  die Aperturlblendenebenenkoordinaten und  $\vec{\rho}_B = (x_B, y_B)$  die Bildebenenkoordinaten. Objekt, Objektivlinse und Aperturlblende werden durch eine sogenannte Transmissionsfunktion beschrieben. Mit ihr lässt sich die Wellenfunktion direkt hinter der betreffenden abbildungsrelevanten Ebene berechnen, wenn die Wellenfunktion direkt vor dieser Ebene bekannt ist.

Sei  $\Psi_e(\vec{\rho})$  die einfallende Welle auf das Objekt, dem die Transmissionsfunktion  $T(\vec{\rho})$

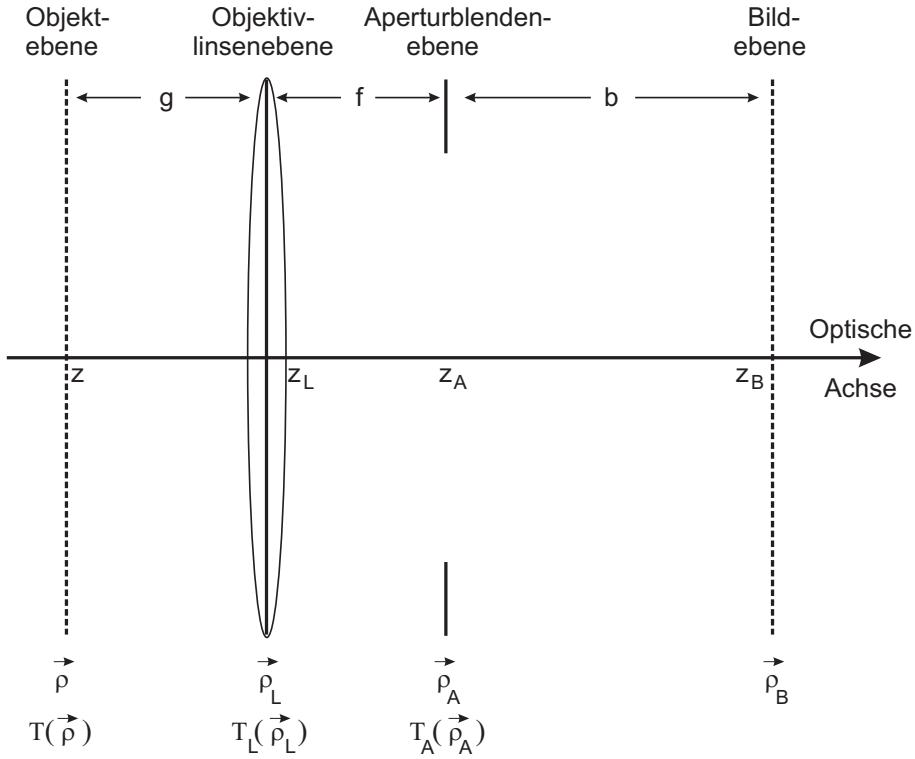


Abbildung 2.1: Schematische Anordnung der abbildungsrelevanten Ebenen im Transmissionselektronenmikroskop und Bezeichnung ihrer Ortskoordinaten und Transmissionsfunktionen.

zugeordnet ist. Dann ist die durch das Objekt transmittierte Wellenfunktion  $\Psi_T(\vec{\rho})$

$$\Psi_T(\vec{\rho}) = T(\vec{\rho}) \cdot \Psi_e(\vec{r}), \quad (2.1)$$

mit  $\vec{r} = (\rho, z)$ . Die Transmissionsfunktion  $T(\vec{\rho})$  der Probe ist in der Regel unbekannt. Um trotzdem die Bildintensität im Elektronenmikroskop berechnen zu können, werden in den folgenden Unterkapiteln zwei mathematische Ansätze für diese Funktion vorgestellt.

Die Objektivlinse mit der Brennweite  $f$  wird durch die Transmissionsfunktion

$$T_L(\vec{\rho}_L) = e^{-i\frac{k}{2f}(\vec{\rho}_L)^2} \quad (2.2)$$

beschrieben. Dabei ist  $k = 2\pi/\lambda$  der Betrag des Wellenvektors der auf die Linse einfallenden Welle mit der Wellenlänge  $\lambda$ . Die Transmissionsfunktion der Apertur-

blende ist gegeben durch

$$T_A(\vec{\rho}_A) = A(\vec{u}) \cdot e^{-i\chi(\vec{u}, E)} \quad (2.3)$$

und berücksichtigt die Linsenfehler der Objektivlinse, die in der Phase  $\chi(\vec{u}, E)$  auftreten. Der Vektor  $\vec{u} = \vec{\rho}_A / (\lambda \cdot f) = \vec{\vartheta}/\lambda$  ist die Raumfrequenz,  $\vec{\vartheta}$  der Streuwinkel, bei dem durch die Vektorschreibweise auch sein Azimuth angegeben wird,  $E$  der Energieverlust der Elektronen und  $A(\vec{u})$  beschreibt den Einfluss der Aperturblende in der hinteren Brennebene der Objektivlinse mit

$$A(u) = \begin{cases} 1 & : \text{für } u \leq \frac{\vartheta_A}{\lambda} \\ 0 & : \text{sonst} \end{cases}; \quad (2.4)$$

$\vartheta_A$  kennzeichnet dabei den Aperturhalbwinkel. Die Phase  $\chi(u, E)$  wird durch den Ausdruck

$$\chi(u, E) = \frac{1}{2}\pi C_s \lambda^3 u^4 - \pi \Delta f \lambda u^2 - \pi \lambda C_c \frac{E_w - E}{E_i} u^2 \quad (2.5)$$

wiedergegeben [27]. Die Linsenfehler werden durch die sphärische Aberrationskonstante  $C_s$  und die chromatische Aberrationskonstante  $C_c$  charakterisiert. Der Defokus  $\Delta f$  ist hier für den Unterfokus positiv definiert.  $E_i$  ist die Anfangsenergie der Elektronen,  $E$  deren Energieverlust.  $E_w$  ist ein Energiewert der nur für die inelastische Abbildung relevant ist: In dem Fall wird ein Energiespalt in die energiedispersiven Ebene des Mikroskops eingefahren und zur Einstellung des gewünschten Energieverlustes in der Regel die Hochspannung um den Betrag  $E_w$  variiert. Im allgemeinen ist  $E_w$  der Energieverlust in der Mitte des durch den Spalt gesetzten Energiefensters. Für die elastische Abbildung ist  $E_w$  also 0 eV. In Gleichung (2.5) wurde vorausgesetzt, dass der zweizählige Astigmatismus korrigiert ist und sonstige Fehler höherer Ordnung vernachlässigbar sind.

Mit den nun bekannten Transmissionsfunktionen und mit einem Ansatz für die Transmissionsfunktion  $T(\vec{\rho})$  für das Objekt kann man mit Hilfe des Kirchhoff'schen Beugungsintegrals in Fresnel'scher Näherung, das oft auch Fresnel-Integral genannt wird, die Ausbreitung der Welle im Elektronenmikroskop berechnen [15]

$$\Psi(\vec{r}') = \frac{e^{i \cdot \vec{k} \cdot (z' - z)}}{i \lambda (z' - z)} \int \Psi_e(\vec{r}) \cdot T(\vec{\rho}) \cdot e^{i \frac{k}{2(z' - z)} (\vec{\rho}' - \vec{\rho})^2} d^2 \vec{\rho}, \quad (2.6)$$

mit  $\vec{r}' = (\rho', z')$ .  $\Psi(\vec{r}')$  ist hier nun die Welle, die sich durch Wellenpropagation im Abstand  $z' - z$  hinter dem optischen Element mit der Transmissionsfunktion  $T(\rho')$  ergibt, wenn auf dieses eine einfallende Welle  $\Psi_e$  mit dem Wellenvektor  $\vec{k} = 2\pi/\lambda$  und der Wellenlänge  $\lambda$  fällt. Die Ortskoordinaten des optischen Elements sind hier durch  $\vec{r}$  gekennzeichnet. Zur Berechnung der Wellenfunktion in der Bildebene wendet man zunächst Gleichung (2.6) an, um aus der Wellenfunktion  $\Psi_T(\rho')$  aus Gleichung (2.1) direkt hinter dem Objekt die Wellenfunktion direkt vor der Objektivlinse zu bestimmen. Durch eine anschließende sukzessive Anwendung von Gleichung (2.6) erhält man dann die Wellenfunktion in der Bildebene.

Bei der Berücksichtigung der auflösungsbegrenzenden Linsenfehler wie der sphärischen und chromatischen Aberration des abbildenden Linsensystems reicht dabei nach [48] die Betrachtung der Objektivlinse aus, denn wegen ihrer Vergrößerung von  $M_{Obj} = 20 - 50$  kann man die entsprechenden Linsenfehler der sich anschließenden Linsensysteme vernachlässigen. Im Falle, dass sich das betrachtete Objekt nicht durch eine Transmissionsfunktion  $T(\rho')$  beschreiben lässt, kann das Verfahren der sukzessiven Anwendung von Gleichung (2.6) trotzdem dann eingesetzt werden, wenn man im ersten Berechnungsschritt den Ausdruck für die Wellenfunktion  $\Psi_e(\vec{r})T(\rho')$  direkt hinter der Probe aus Gleichung (2.6) gemäß Gleichung (2.1) durch  $\Psi_T(\rho')$  ersetzt.

Nach obigem Verfahren ergibt sich dann für die Intensität im Beugungsbild, das sich in der hinteren Brennebene des Objektivs befindet [27]

$$|\Psi_A(\vec{u})|^2 = \frac{1}{\lambda^2 f^2} \left| \int \Psi_T(\rho') \cdot e^{-2\pi i \cdot \vec{u} \cdot \rho'} d^2 \rho' \right|^2 \quad (2.7)$$

und  $\Psi_A(\vec{u})$  ist bis auf Phasenfaktoren die Fouriertransformierte der Wellenfunktion  $\Psi_T(\rho')$  direkt hinter dem Objekt.

Unter Verwendung von  $\vec{u} = \vec{\vartheta}/\lambda = \vec{\rho}_A/(\lambda \cdot f)$  mit dem Streuwinkel  $\vec{\vartheta}$  ergibt sich dann bei monoenergetischer paralleler Beleuchtung für die Intensität in der Bildebene

$$|\Psi_B(\vec{\rho}_B)|^2 = \frac{1}{\lambda^4} \left| \int \int \Psi_T(\rho') \cdot e^{i \cdot k \cdot \vec{\vartheta} \cdot (\vec{\rho}_B - \rho')} \cdot T_A(\vec{\vartheta}) d^2 \vec{\vartheta} d^2 \rho' \right|^2, \quad (2.8)$$

dabei bezieht sich die Bildkoordinate  $\vec{\rho}_B$  auf die Größenverhältnisse im Objekt, d.h. in dieser Gleichung wurde die Bildkoordinate  $\vec{\rho}_B$  mit der inversen Vergrößerung

$1/M$  auf die Größenverhältnisse im Objekt skaliert und eine Punktspiegelung des Koordinatensystems an der optischen Achse durchgeführt. Dies führt dazu, dass diese sowie die folgenden Relationen von der Vergrößerung und der Bildinversion unabhängig sind. Man kann die Ausdrücke wieder auf die realen Größenverhältnisse zurückführen, indem man die Substitution  $\vec{\rho}_B \rightarrow -\vec{\rho}_B/M$  anwendet.

Da jedoch die Elektronenquelle im Elektronenmikroskop eine endliche Energiebreite hat, muss dies aufgrund der Energieabhängigkeit der Phasenverschiebung  $\chi(\vartheta, E)$  durch die Linsenfehler nach Gleichung (2.5) berücksichtigt werden. Dies geschieht hier durch Beschreibung der Energieverteilung durch eine Gaußfunktion mit der Halbwertsbreite  $\delta E$  [27]

$$p(E) = \frac{\sqrt{\ln 2}}{\sqrt{\pi} \cdot \frac{\delta E}{2}} \cdot e^{-\ln 2 \left( \frac{E}{\delta E/2} \right)^2}. \quad (2.9)$$

Unter realistischen experimentellen Bedingungen in der Elektronenmikroskopie ist die Beleuchtung für Phasenkontrastaufnahmen bzw. elastisch gefilterte Aufnahmen in der Regel schwach konvergent. In diesem Fall kann die Beleuchtungswinkelverteilung näherungsweise durch eine Gaußverteilung beschrieben werden [33]. Setzen wir hierfür

$$D(\vec{\Theta}) = \sqrt{\frac{\ln 2}{\pi \alpha^2}} \cdot e^{-\ln 2 \left( \frac{\Theta}{\alpha} \right)^2} \quad (2.10)$$

mit der halben Halbwertsbreite bzw. dem Konvergenzhalbwinkel  $\alpha$  und dem Beleuchtungswinkel  $\Theta$  ein, kann man die Bildintensität unter realen Abbildungsbedingungen gemäß

$$\begin{aligned} |\Psi_B(\vec{\rho}_B)|^2 &= \frac{1}{\lambda^4} \int p(E) dE \int D(\vec{\Theta}) d^2\Theta \cdot \\ &\quad \left| \int \int T(\vec{\rho}) e^{-i \cdot k \cdot (\vec{\Theta} + \vec{\vartheta}) \cdot \vec{\rho}} A(\vec{\vartheta}) e^{-i \cdot \chi(\vartheta, E)} e^{i \cdot k \cdot \vec{\vartheta} \cdot \vec{\rho}_B} d^2 \vec{\rho} d^2 \vec{\vartheta} \right|^2 \end{aligned} \quad (2.11)$$

ermitteln [27]. Für eine weitere Berechnung soll nun ein Ansatz für die Transmissionsfunktion des Objekts eingesetzt werden. In dieser Arbeit werden in den folgenden Unterkapiteln zwei Ansätze besprochen.

## 2.2 Schwaches-Phasenobjekt-Näherung (WPO)

Zur Berechnung der Transmissionsfunktion kann die Hochenergiennäherung verwendet werden, wenn die kinetische Energie des einfallenden Elektrons viel größer ist als der Betrag des Objektpotentials  $V(\vec{r})$  [48]. Das Elektron mit der Anfangsgeschwindigkeit  $v$  durchquert das Potential fast unabgelenkt, seine Wellenlänge verkleinert sich allerdings im Bereich des Objektpotentials, da es dort beschleunigt wird. So kommt es zu einer zusätzlichen Phasenschiebung [25, 27]

$$\varphi(\vec{\rho}) = \frac{2\pi me\lambda}{h^2} \int V(\vec{r}) dz = \frac{2\pi me\lambda}{h^2} \bar{V}(\vec{\rho}) \quad (2.12)$$

mit dem in  $z$ -Richtung projizierten Objektpotential  $\bar{V}(\vec{\rho})$ , der Elementarladung  $e$ , der Planck-Konstante  $h$  und der relativistischen Masse  $m$ . Die Transmissionsfunktion ergibt sich dann zu

$$T(\vec{\rho}) = e^{i \cdot \varphi(\vec{\rho})} = e^{\frac{2\pi i \cdot me\lambda}{h^2} \bar{V}(\vec{\rho})}. \quad (2.13)$$

In der Hochenergiennäherung wirkt die Probe also als reines Phasenobjekt.

Bei dünnen Proben leichter Elemente hat man es mit sogenannten schwachen Phasenobjekten zu tun, bei denen die Phasenschiebung durch das Objektpotential sehr klein ist

$$|\varphi(\vec{\rho})| \ll 1. \quad (2.14)$$

In diesem Falle kann die Transmissionsfunktion aus Gleichung (2.13) entwickelt werden. Dabei spricht man von einer „Schwaches-Phasenobjekt-Näherung“, wenn man bei der Entwicklung der Transmissionsfunktion nur die Phasenschiebung bis zur ersten Ordnung berücksichtigt [25]

$$T(\vec{\rho}) \approx 1 + i \cdot \varphi(\vec{\rho}). \quad (2.15)$$

Oft spricht man in diesem Zusammenhang auch von der **WPO**-Näherung, welche die Abkürzung für den englischen Namen dieser Objektart beinhaltet (WPO = weak phase object). In einer anschaulichen Interpretation der Gleichung (2.15) steht der erste Summand für den ungestreuten, der zweite für den gestreuten Anteil der einfallenden Elektronenwelle.

Zur Bestimmung der Bildintensität setzen wir nun die Transmissionsfunktion des

schwachen Phasenobjekts nach Gleichung (2.15) in Gleichung (2.11) ein. Bei der Bestimmung des in Gleichung (2.11) enthaltenen Betragsquadrats werden hier nur Terme linearer Ordnung in  $\varphi(\vec{\rho})$  berücksichtigt. Auch die Punktsymmetrie des Linsenfehlerterms  $\chi(\vartheta, E)$  bezüglich des Winkels  $\vartheta$  wird ausgenutzt, sowie der Sachverhalt, dass  $\varphi(\vec{\rho})$  hier reell ist.

Führen wir zur Beschreibung der Verhältnisse in der Bildebene nun den Kontrast

$$C(\vec{\rho}_B) = \frac{|\Psi_B(\vec{\rho}_B)|^2 - I_0}{I_0} \quad (2.16)$$

mit der homogenen Intensitätsverteilung  $I_0$  im Bild ohne Probe ein, so erhält man aus Gleichung (2.11) für den Kontrast [27]

$$C(\vec{\rho}_B) = - \int CTF_{tot}(\vec{u}) \hat{\varphi}(\vec{u}) \cdot e^{-2\pi i \cdot \vec{u} \cdot \vec{\rho}_B} d^2 \vec{u} \quad (2.17)$$

mit der Übertragungsfunktion  $CTF_{tot}(\vec{u})$  für reale Beleuchtungsbedingungen bei der Phasenkontrastabbildung und mit der Fouriertransformation

$$\hat{\varphi}(\vec{u}) = \int \varphi(\vec{\rho}) \cdot e^{2\pi i \cdot \vec{u} \cdot \vec{\rho}} d^2 \vec{\rho} \quad (2.18)$$

der Phasenschiebung  $\varphi(\vec{\rho})$ . Unter den in Kapitel 2.1 angegebenen Bedingungen lässt sich die Phasenkontrastübertragungsfunktion für reale Beleuchtungsbedingungen als

$$CTF_{tot}(u) = -2E_c(u) E_\alpha(u) A(u) \sin \gamma(u) \quad (2.19)$$

formulieren, mit dem Phasenterm

$$\gamma(u) = \frac{\pi}{2} C_s \lambda^3 u^4 - \pi \Delta f \lambda u^2 \quad (2.20)$$

und den Einhüllenden

$$E_c(u) = e^{\left\{ -\pi^2 \left[ C_c \frac{\delta E}{4\sqrt{\ln 2} E_i} \lambda u^2 \right]^2 \right\}} \quad (2.21)$$

und

$$E_\alpha(u) = e^{\left\{ -\pi^2 \frac{\alpha^2}{\ln 2} \left[ C_s \lambda^2 u^3 - \Delta f u \right]^2 \right\}} \quad (2.22)$$

[33].  $E_\alpha(u)$  beschreibt dabei den Einfluss der partiellen Kohärenz aufgrund der schwach konvergenten Beleuchtung mit dem Konvergenzhalbwinkel  $\alpha$  und  $E_c(u)$  den Einfluss der partiellen Kohärenz aufgrund der Energiebreite der einfallenden

Elektronen. Im letzten Falle sind bei realen experimentellen Bedingungen eigentlich noch Schwankungen der Linsenströme  $I$  und der Hochspannung  $U$  in der Einhüllenden  $E_c(u)$  zu berücksichtigen. Dies kann geschehen, indem man  $\delta E$  aus Gleichung (2.21) durch die effektive Energiebreite  $\delta E_{\text{eff}}$  ersetzt und das Verhältnis  $\delta E_{\text{eff}}/E_i$  in derselben Gleichung durch

$$\sqrt{\left(\frac{\delta E}{E_i}\right)^2 + \left(\frac{\delta U}{U}\right)^2 + \left(\frac{2\delta I}{I}\right)^2} \quad (2.23)$$

mit den Halbwertsbreiten  $\delta I$  und  $\delta U$  für die Strom- bzw. Spannungsschwankungen substituiert [48].

Zur weiteren Bestimmung des Kontrastes in Gleichung (2.17) ist also ein Ansatz für die Phasenschiebung  $\varphi(\vec{\rho})$  notwendig, die ihrerseits nach Gleichung (2.12) aus dem projizierten Objektpotential besteht. Eine einfache Methode, das projizierte Objektpotential  $\bar{V}(\vec{\rho})$  zu erhalten, ist eine Superposition der Potentiale aller Atome, die zur Bildintensität beitragen [25]

$$\bar{V}(\vec{\rho}) = \sum_{j=1}^N \bar{V}_j(\vec{\rho} - \vec{\rho}_j). \quad (2.24)$$

Die projizierten Ortskoordinaten eines Atoms  $j$  sind dabei durch den Vektor  $\vec{\rho}_j = (x_j, y_j)$  und das dazugehörige projizierte Potential des Atoms durch  $\bar{V}_j(\vec{\rho})$  gegeben. Bei diesem Ansatz werden durch den Einsatz der Potentiale freier Atome allerdings Bindungseffekte vernachlässigt. Das projizierte Objektpotential einer Probe, die nur aus Atomen eines Elements  $a$  besteht, lässt sich dann mit einer Faltung, die durch \* gekennzeichnet wird, darstellen als

$$\bar{V}(\vec{\rho}) = \bar{n}_a(\vec{\rho}) * \bar{V}_a(\vec{\rho}), \quad (2.25)$$

mit dem projizierten Potential  $\bar{V}_a(\vec{\rho})$  des Einzelatoms und der in Richtung der optischen Achse projizierten Atomverteilung des Elements  $a$

$$\bar{n}_a(\vec{\rho}) = \int_{\text{Probendicke}} \sum_{i_a} \delta(\vec{r} - \vec{r}_{i_a}) dz = \sum_{i_a} \delta(\vec{\rho} - \vec{\rho}_{i_a}), \quad (2.26)$$

wobei der Vektor  $\vec{r}_{i_a} = (\vec{\rho}_{i_a}, z_{i_a}) = (x_{i_a}, y_{i_a}, z_{i_a})$  die Ortskoordinate der Atome angibt. Gemäß Gleichung (2.12) gilt somit für die Phasenschiebung

$$\varphi(\vec{\rho}) = \bar{n}_a(\vec{\rho}) * \frac{2\pi me\lambda}{h^2} \bar{V}_a(\vec{\rho}). \quad (2.27)$$

Führen wir die Phasenschiebung  $\varphi_a(\vec{\rho})$  durch ein Einzelatom ein, so ist in diesem Fall

$$\varphi_a(\vec{\rho}) = \frac{2\pi me\lambda}{h^2} \bar{V}_a(\vec{\rho}) \quad (2.28)$$

und es gilt

$$\varphi(\vec{\rho}) = \bar{n}_a(\vec{\rho}) * \varphi_a(\vec{\rho}). \quad (2.29)$$

Die Fouriertransformation der Phasenschiebung  $\varphi(\vec{\rho})$  lässt sich nach Anwendung des Theorems für Faltung und Multiplikation [35] somit berechnen zu

$$\hat{\varphi}(\vec{u}) = \hat{\bar{n}}_a(\vec{u}) \cdot \hat{\varphi}_a(\vec{u}), \quad (2.30)$$

mit der Fouriertransformation der projizierten Atomverteilung  $\hat{\bar{n}}_a(\vec{u})$  und der Fouriertransformation der Phasenverschiebung durch ein Einzelatom  $\hat{\varphi}_a(\vec{u})$

$$\hat{\bar{n}}_a(\vec{u}) = \int \bar{n}_a(\vec{\rho}) \cdot e^{2\pi i \cdot \vec{u} \cdot \vec{\rho}} d^2 \vec{\rho} = \sum_{i_a}^N e^{2\pi i \cdot \vec{u} \cdot \vec{\rho}_{i_a}} \quad (2.31)$$

$$\hat{\varphi}_a(\vec{u}) = \frac{2\pi me\lambda}{h^2} \hat{\bar{V}}_a(\vec{u}). \quad (2.32)$$

Dabei steht  $\hat{\bar{V}}_a(\vec{u})$  für die Fouriertransformation des projizierten Potentials  $\bar{V}_a(\vec{\rho})$  des Einzelatoms. Zur weiteren Berechnung führen wir nun die Atomstreuamplitude ein [25]

$$f_a(\vec{q}) = \frac{2\pi m_0 e}{h^2} \int V_a(\vec{r}) e^{2\pi i \cdot \vec{q} \cdot \vec{r}} d^3 r. \quad (2.33)$$

$V_a(\vec{r})$  steht für das dreidimensionale Potential eines Atoms des Elements  $a$ ,  $\vec{q}$  für die Differenz des einfallenden und des gestreuten Wellenvektors und  $m_0$  für die Ruhemasse des Elektrons. Für die Fouriertransformation der Phasenschiebung  $\varphi$  ergibt sich somit [25]

$$\begin{aligned} \hat{\varphi}(\vec{u}) &= \lambda \frac{m}{m_0} f_a(\vec{u}, q_z = 0) \hat{\bar{n}}_a(\vec{u}) \\ &= \lambda \frac{m}{m_0} f_a(\vec{u}, q_z = 0) \sum_j^N e^{2\pi i \cdot \vec{u} \cdot \vec{\rho}_j}. \end{aligned} \quad (2.34)$$

Für die Fouriertransformation der Phasenschiebung durch ein Einzelatom bei  $\vec{\rho}_j = 0$  würde somit aus dieser Gleichung

$$\hat{\varphi}_a(\vec{u}) = \lambda \frac{m}{m_0} f_a(\vec{u}, q_z = 0) \quad (2.35)$$

resultieren.

Setzen wir nun Gleichung (2.34) zur Bestimmung des Kontrastes in Gleichung (2.17) ein und bestimmen das Betragsquadrat der Fouriertransformation  $\hat{C}(\vec{u})$  des Kontrastes, so erhält man für dünne amorphe Proben, die aus einem Element  $a$  bestehen [27, 30]

$$|\hat{C}(\vec{u})|^2 = \text{cons} \cdot |f_a(u)|^2 \cdot |\hat{n}_a(\vec{u})|^2 \cdot |CTF_{tot}(u)|^2. \quad (2.36)$$

Das Betragsquadrat der Fouriertransformation des Kontrastes nennt man auch Diffraktogramm. Die Konstante  $\text{cons}$  aus Gleichung (2.36) beinhaltet das Quadrat  $\lambda^2$  der Wellenlänge, die Anzahl  $N$  der Atome, die zum Bild beitragen, die Ruhemasse  $m_0$  des Elektrons und seine relativistische Masse. Führen wir nun den Zwei-Teilchen-Strukturfaktor

$$S(\vec{u}) = \frac{1}{N} |\hat{n}_a(\vec{u})|^2 = \frac{1}{N} \sum_{k=1}^N \sum_{j=1}^N e^{2\pi i \cdot \vec{u} \cdot (\vec{\rho}_j - \vec{\rho}_k)} \quad (2.37)$$

ein, wobei  $N$  die Anzahl der Atome ist, die zum Bild beitragen, und betrachten dünne amorphe isotrope Proben, so bekommt der Ausdruck für das Diffraktogramm die Form

$$|\hat{C}(u)|^2 = \text{const} \cdot |f_a(u)|^2 \cdot S(u) \cdot |CTF_{tot}(u)|^2. \quad (2.38)$$

In der Konstante  $\text{const}$  ist nun  $N$  enthalten.

Bei der quantitativen Analyse von Aufnahmen zu dünnen amorphen Folien werden diese häufig mit der oben dargestellten WPO-Näherung beschrieben. Es wurde jedoch in [3] und [13] gezeigt, dass bei hohen Raumfrequenzen die Beschreibung dieser Proben als schwache Phasenobjekte ungeeignet ist. Dies gilt sogar für Filme, die aus leichten chemischen Elementen bestehen. Sogar bei kleinen Raumfrequenzen wurden in [27, 29, 30] in Diffraktogrammen zu elastisch gefilterten Aufnahmen dünner amorpher Kohlenstoff- und Siliziumproben Merkmale festgestellt, die der WPO-Näherung widersprechen. Sie konnten dort aber erklärt werden, indem zur Beschreibung des elastischen Abbildungsprozesses die Schwaches-Objekt-Näherung [18] verwendet wurde. Diese soll im folgenden Abschnitt erläutert werden und soll auch die Basis für die quantitative Diffraktogrammauswertung für diese Arbeit sein.

## 2.3 Schwaches-Objekt-Näherung (WO) und Verletzung der WPO-Näherung

Für dieses Unterkapitel betrachten wir zunächst die Streuung am Einzelatom. Die Transmissionsfunktion für ein Objekt bestehend aus einem Einzelatom ist in der Hochenergienäherung nach den Gleichungen (2.12) und (2.13)

$$T_a(\vec{\rho}) = e^{i\varphi_a(\vec{\rho})} \quad (2.39)$$

mit der Phase

$$\varphi_a(\vec{\rho}) = \frac{2\pi me\lambda}{h^2} \bar{V}_a(\vec{\rho}). \quad (2.40)$$

Außer für sehr leichte Atome ist die Annahme  $\varphi_a \ll 1$ , die für die WPO-Näherung gemacht wurde, nicht gerechtfertigt [8].

Berücksichtigen wir einen Absorptionsbeitrag in Form der Funktion  $\mu(\vec{\rho})$ , so hat die Transmissionsfunktion des Objekts die allgemeine Form

$$T^{WO}(\vec{\rho}) = e^{-\mu(\vec{\rho})} \cdot e^{i\varphi(\vec{\rho})}. \quad (2.41)$$

Übertragen wir dies wieder auf den Fall der Streuung am Einzelatom, so lautet die dazu gehörige Transmissionsfunktion

$$T_a^{WO}(\vec{\rho}) = e^{-\mu_a(\vec{\rho})} \cdot e^{i\varphi_a(\vec{\rho})}. \quad (2.42)$$

Sie kann dann in der Schwaches-Objekt-Näherung [18], die auch **WO**-Näherung genannt wird, wobei die Abkürzung für den englischen Ausdruck „weak object“ steht, für nicht zu große  $\mu_a(\vec{\rho})$ , deren Bedeutung in Anschluss an Gleichung (2.44) noch genauer erklärt wird, und nicht zu große  $\varphi_a(\vec{\rho})$  in folgender Form entwickelt werden

$$\begin{aligned} T_a^{WO}(\vec{\rho}) &= 1 + i \cdot \varphi_a(\vec{\rho}) - \mu_a(\vec{\rho}) - \epsilon_a(\vec{\rho}) + \dots \\ &\approx 1 + i \cdot (\varphi_a(\vec{\rho}) + i \cdot \mu_a(\vec{\rho}) + i \cdot \epsilon_a(\vec{\rho})) \\ &\approx 1 + i \cdot \tilde{\varphi}_a^{WO}(\vec{\rho}), \end{aligned} \quad (2.43)$$

mit der Definition

$$\tilde{\varphi}_a^{WO}(\vec{\rho}) = \varphi_a(\vec{\rho}) + i \cdot (\mu_a(\vec{\rho}) + \epsilon_a(\vec{\rho})). \quad (2.44)$$

$\epsilon_a(\vec{\rho})$  enthält dabei die Terme quadratischer und höherer geradzahliger Ordnung in  $\varphi_a(\vec{\rho})$ , die bei der Entwicklung der Transmissionsfunktion  $T_a^{WO}(\vec{\rho})$  entstehen und die im Falle der WPO-Näherung vernachlässigt wurden. Diesen Beitrag zur Phase  $\tilde{\varphi}_a^{WO}(\vec{\rho})$  aus Gleichung (2.44) wollen wir im folgenden „elastischen Beitrag“ nennen. Die Funktion  $\mu_a(\vec{\rho})$  beschreibt den Absorptionsbeitrag. Der einzige nennenswerte Absorptionsbeitrag eines Einzelatoms zu der zu  $\mu(\vec{\rho})$  analogen Funktion  $\mu_a(\vec{\rho})$  hat seine Ursache in der Anregung von Atomelektronen [8]. Inelastisch gestreute Elektronen, die eine solche Anregung hervorgerufen haben, können durch einen abbildenden Energiefilter von den elastisch gestreuten Elektronen getrennt werden, so dass im Falle der elastisch gefilterten Abbildung inelastische Streuprozesse einen effektiven Absorptionsbeitrag liefern, der in  $\mu_a(\vec{\rho})$  enthalten ist.

Der erste Summand in Gleichung (2.43) repräsentiert den ungestreuten, der zweite Summand den gestreuten Anteil der einfallenden Elektronenwelle. Die Phase  $\tilde{\varphi}_a^{WO}(\vec{\rho})$ , die diesen Streuwellenanteil charakterisiert, ist eine komplexe Größe. Formuliert man nun im Vergleich zu Gleichung (2.35) die Fouriertransformation  $\hat{\tilde{\varphi}}_a^{WO}(\vec{u})$  dieser Phase als

$$\hat{\tilde{\varphi}}_a^{WO}(\vec{u}) = \lambda \frac{m}{m_0} f_{a,\eta}(\vec{u}, q_z = 0), \quad (2.45)$$

so erkennt man, dass auch die Atomstreuamplitude  $f_{a,\eta}(\vec{u}, q_z = 0)$  in diesem Fall eine komplexe Größe ist [30]. Man kann sie für kleine Phasen  $\eta(\vec{u})$  ausdrücken als

$$\begin{aligned} f_{a,\eta}(\vec{u}) &= |f_{a,\eta}(\vec{u})| e^{i \cdot \eta(\vec{u})} \\ &\approx f_a(\vec{u}) e^{i \cdot \eta(\vec{u})}. \end{aligned} \quad (2.46)$$

In dieser Beziehung steht  $f_a(\vec{u})$  für die sich aus der Born'schen Näherung ergebende Atomstreuamplitude, die eine reelle Größe ist.

Wir wollen nun die WO-Näherung und die resultierenden Erkenntnisse aus der Betrachtung der Einzelatomstreuung auf die gesamte Probe anwenden. Analog zu den obigen Überlegungen gilt dann für die Transmissionsfunktion des gesamten Objekts aus Gleichung (2.41) nach der Entwicklung

$$\begin{aligned} T^{WO}(\vec{\rho}) &= e^{-\mu(\vec{\rho})} \cdot e^{i \cdot \varphi(\vec{\rho})} \\ &\approx 1 + i \cdot \tilde{\varphi}_a^{WO}(\vec{\rho}), \end{aligned} \quad (2.47)$$

mit der komplexen Phasenschiebung durch die Probe

$$\tilde{\varphi}^{WO}(\vec{\rho}) = \varphi(\vec{\rho}) + i \cdot (\mu(\vec{\rho}) + \epsilon(\vec{\rho})). \quad (2.48)$$

Der Absorptionsbeitrag  $\mu(\vec{\rho})$  ist auf die für  $\mu_a(\vec{\rho})$  als Ursache angegebenen inelastischen Streuprozesse zurückzuführen, denn bei den im Rahmen dieser Arbeit untersuchten dünnen amorphen Filmen werden keine Elektronen im eigentlichen Sinne absorbiert.  $\epsilon(\vec{\rho})$  beinhaltet die Terme quadratischer und höherer geradzahliger Ordnung in  $\varphi(\vec{\rho})$ . Es soll an dieser Stelle darauf hingewiesen werden, dass im Falle vernachlässigbarer Absorption mit  $\mu(\vec{\rho}) = 0$  die Probe ein Phasenobjekt ist, aber in der WO-Näherung noch immer der elastische Beitrag  $\epsilon(\vec{\rho})$  berücksichtigt wird.

Da nach obiger Definition zu  $\epsilon(\vec{\rho})$  Terme quadratischer und höherer geradzahliger Ordnung in  $\varphi(\vec{\rho})$  beitragen, tragen als Konsequenz zu  $\epsilon(\vec{\rho})$  Terme zweiter Ordnung im projizierten Probenpotential bei, so dass dies nach Gleichung (2.25) einen Beitrag quadratischer Ordnung in der projizierten Atomverteilung  $\bar{n}_a(\vec{\rho})$  liefern würde [27]

$$\bar{V}^2(\vec{\rho}) = \left[ \int \bar{n}_a(\vec{\rho}') \bar{V}_a(\vec{\rho} - \vec{\rho}') d^2\vec{\rho}' \right]^2. \quad (2.49)$$

Liegt aber kein Überlapp zwischen den Atompotentialen vor, ist der Term linear in der projizierten Atomverteilung. Dies gilt im allgemeinen nicht für einen Festkörper. Für sehr dünne amorphe Filme lässt sich das projizierte Potential in einen ortsunabhängigen konstanten und einen ortsabhängigen Term zerlegen. Ersterer entspricht dem mittleren projizierten Potential und ist für die Berechnung des Kontrastes unerheblich. Der ortsabhängige Term fluktuiert mit einer Amplitude von einer oder wenigen projizierten Atompotentialen. Die Terme zweiter Ordnung im projizierten Probenpotential  $\bar{V}(\vec{\rho})$  sind so näherungsweise linear von der projizierten Atomverteilung abhängig [27].

Bei der Betrachtung von Gleichung (2.48) können wir also sowohl die Linearität von  $\epsilon(\vec{\rho})$  in der projizierten Atomverteilung  $\bar{n}_a(\vec{\rho})$  annehmen, als auch nach Gleichung (2.29) die Linearität der Phase  $\varphi(\vec{\rho})$  in  $\bar{n}_a(\vec{\rho})$ . Für die Fouriertransformation von  $\tilde{\varphi}^{WO}(\vec{\rho})$  gilt dann analog zu [27]

$$\hat{\tilde{\varphi}}^{WO}(\vec{u}) = \lambda \frac{m}{m_0} \cdot \hat{\bar{n}}_a(\vec{u}) \cdot f_{a,\eta}(\vec{u}, q_z = 0). \quad (2.50)$$

Unter diesen Bedingungen ergibt sich für das Diffraktogramm einer elastisch ge-filterten Abbildung eines amorphen isotropen schwachen Objekts für kleine  $\eta(u)$  [18, 29, 30, 38]

$$\left| \hat{C}(u) \right|^2 = \text{const} \cdot |f_a(u)|^2 \cdot S(u) \cdot \left| CTF_{tot}^{WO}(u) \right|^2 \quad (2.51)$$

mit der elastischen Phasen-Amplituden-Kontrast-Übertragungsfunktion

$$CTF_{tot}^{WO}(u) = -E_c(u) \cdot E_\alpha(u) \cdot A(u) \cdot 2 \cdot \sin W(u) \quad (2.52)$$

und der Phase

$$W(u) = \gamma(u) - \eta(u) = \frac{\pi}{2} C_s \lambda^3 u^4 - \pi \Delta f \lambda u^2 - \eta(u). \quad (2.53)$$

Die Übertragungsfunktion  $CTF_{tot}^{WO}(u)$  ist also im Falle der WO-Näherung nicht nur von Geräteparametern, sondern auch von der probenabhängigen Phase  $\eta(u)$  abhängig. Dies ist ein Unterschied zur Kontrast-Übertragungsfunktion in der WPO-Näherung. Aufgrund der im vorigen Abschnitt erwähnten in [3, 13, 27, 30] beobachteten Verletzung der WPO-Näherung für dünne amorphe Proben, ist die WO-Näherung die Grundlage für die Diffraktogrammauswertung in dieser Arbeit. Mit dieser ließ sich die experimentelle Diffraktogrammintensität in [27, 30] reproduzieren.

## 2.4 Einfluss der Phasenableitung $\eta'(u)$ auf die Einhüllende im Diffraktogramm

Wie die experimentelle Auswertung von Diffraktogrammen unter Anwendung der WO-Näherung in Kapitel 6.1 noch zeigen wird, lassen sich mit dem Ausdruck für die Einhüllende  $E_\alpha(u)$  aus Gleichung (2.22) die experimentellen Diffraktogrammintensitäten nicht vollständig reproduzieren, sondern es gibt Abweichungen zwischen dem theoretischen und experimentellen Verlauf. So soll in diesem Abschnitt basierend auf der WO-Näherung der Ausdruck für  $E_\alpha(u)$  neu berechnet werden.

In [48] wird der Einfluss der Einhüllenden  $E_\alpha(u)$  auf die Bildintensität im Phasenobjekt über

$$E_\alpha(u) = e^{\left\{ -\frac{|\nabla W(u)|^2 \cdot \alpha^2}{4\lambda^2 \cdot \ln 2} \right\}} \quad (2.54)$$

beschrieben, wobei eine Gaußverteilung für die Einfallswinkelverteilung der Elektronen angenommen wird und  $\nabla$  für den Gradienten steht.  $W(u)$  ist bei korrigiertem Astigmatismus dabei gegeben durch die Phase  $\gamma(u)$  aus Gleichung (2.20)

$$W(u) = \gamma(u) = \frac{\pi}{2} C_s \lambda^3 u^4 - \pi \Delta f \lambda u^2. \quad (2.55)$$

Somit ist sie dann nur eine radialsymmetrische Funktion. Für diesen Fall lässt sich Gleichung (2.54) umschreiben in

$$E_\alpha(u) = e^{\left\{ -\frac{|W'(u)|^2 \cdot \alpha^2}{4\lambda^2 \cdot \ln 2} \right\}} \quad (2.56)$$

mit der Ableitung  $W'(u)$  von  $W(u)$

$$W'(u) = \gamma'(u) = 2\pi C_s \lambda^3 u^3 - 2\pi \Delta f \lambda u. \quad (2.57)$$

Dies führt zu dem Ausdruck aus Gleichung (2.22) für  $E_\alpha(u)$ .

Betrachten wir nun schwache Objekte unter Verwendung der WO-Näherung und fassen wir bei der Beschreibung der Transmissionsfunktion nach Gleichung (2.47) und (2.48) in Kapitel 2.3 den Absorptionsbeitrag, den elastischen Beitrag und die Phasenverschiebung bei der Elektronenstreuung am Objekt durch die Angabe einer komplexen Phase  $\tilde{\varphi}^{WO}(\vec{\rho})$  zusammen, so ergibt sich für die Phasenverschiebung  $W(u)$  der Ausdruck nach Gleichung (2.53) unter Annahme einer radialsymmetrischen Phase  $\eta(u)$  und für die Ableitung

$$W'(u) = \gamma'(u) - \eta'(u) = 2\pi C_s \lambda^3 u^3 - 2\pi \Delta f \lambda u - \eta'(u). \quad (2.58)$$

Setzt man dies in die Gleichung (2.56) zur Berechnung der Einhüllenden  $E_\alpha(u)$  ein, so enthält diese dann die Phasenableitung  $\eta'(u)$ . Definiert man einen Zusatzparameter  $\eta_z(u)$  über

$$\eta'(u) = 2\pi \lambda \eta_z(u), \quad (2.59)$$

so ergibt sich für  $E_\alpha(u)$

$$E_\alpha(u) = e^{-\pi^2 \frac{\alpha^2}{\ln 2} \{C_s \lambda^2 u^3 - \Delta f \cdot u - \eta_z(u)\}^2}. \quad (2.60)$$

In Gleichung (2.52) muss dann also die Einhüllende  $E_\alpha(u)$  durch Gleichung (2.60) anstelle von Gleichung (2.22) beschrieben werden.

## 2.5 Zusätzliche experimentelle Einflüsse

Bisher wurde bei der Beschreibung des elastischen Abbildungsprozesses in Gleichung (2.38) unter Verwendung der WPO-Näherung und in Gleichung (2.51) unter Verwendung der WO-Näherung der Detektionsprozess nicht berücksichtigt. Dieser beeinflusst die experimentelle Diffraktogrammintensität hauptsächlich in folgender Weise: Zum einen führt das Schrotrauschen zu einem Untergrund  $B(u)$  in den radial gemittelten Diffraktogrammen, zum anderen verursacht die Elektronenstreuung im Detektor eine Modulationstransferfunktion  $MTF_{CCD}(u)$ . Diese wirkt sich als Einhüllende in den Diffraktogrammintensitäten aus.

Die Modulationstransferfunktion  $MTF_{CCD}(u)$  wurde wie in [22] und [27] beschrieben für beide CCD-Kameras an den verwendeten Transmissionselektronenmikroskopien nach der Methode von Hülk und Daberkow bestimmt [23]. Für weitere Informationen zu diesem Thema sei auf [22] verwiesen.

Berücksichtigt man den Untergrund  $B(u)$  und die Modulationstransferfunktion des verwendeten Detektors, ergibt sich für das experimentelle elastisch gefilterte radial gemittelte Diffraktogramm [30]

$$|\hat{C}_{exp}(u)|^2 = B(u) + Y \cdot MTF_{CCD}^2(u) \cdot |\hat{C}_{theo}(u)|^2 \quad (2.61)$$

mit den theoretischen Diffraktogrammintensitäten

$$|\hat{C}_{theo}(u)|^2 = const |f_a(u)|^2 S(u) 4A^2(u) |E_c(u)|^2 |E_\alpha(u)|^2 \sin^2 \{\gamma(u) - \eta(u)\} \quad (2.62)$$

gemäß Gleichung (2.51) unter Verwendung der WO-Näherung. Dabei ist  $Y$  ein Skalierungsfaktor.

Auf die Bestimmung des Rauschens  $B(u)$  soll hier kurz eingegangen werden. In [37] wird der Untergrund im elastischen Diffraktogramm durch eine Interpolation der Minima berechnet. Dabei ist dort das Diffraktogramm als Betrag der Fouriertransformation der Bildintensität definiert.

In dieser Arbeit wird genau wie in [27, 30] nur der Teil des Untergrundes aufgrund des Poissonrauschen des im Detektor registrierten Signals als „störender Untergrund“ verstanden. Die anderen Untergrundbeiträge sollen erhalten bleiben, weil sie zum Signal gehören, das durch den Abbildungsprozess hervorgerufen wird. In diesem Fall ist

die in dieser Arbeit eingesetzte Definition des Diffraktogramms über das Betragsquadrat des Kontrastes vorteilhaft, wie folgende Untergrundabzugsmethode nach [27] zeigen soll, die auf statistischen Überlegungen beruht. Dabei setzen wir voraus, dass die Anzahl von Elektronen, die in einem einzelnen Detektorpixel registriert wird, der Poissonverteilung genügt. Sei  $E(\vec{u})$  der Erwartungswert und  $V(\vec{u})$  die Varianz der Fourier-Transformation eines vom Detektor registrierten Bildes, dann lässt sich die Intensität in einem experimentellen elastischen Diffraktogramm einer isotropen Probe unter einem bestimmten Azimuth schreiben als [27]

$$\left| \hat{C}_{exp}(u) \right|^2 = |E(u) + N(u)|^2, \quad (2.63)$$

bzw. es gilt

$$\hat{C}_{exp}(u) = E(u) + N(u), \quad (2.64)$$

wobei  $N(u)$  die Rauschkomponente der Fouriertransformation des vom Detektor registrierten Bildes ist. Der Erwartungswert  $\langle N(u) \rangle$  ist 0, die Varianz

$$var\{N(u)\} = \langle |N(u)|^2 \rangle = V(u). \quad (2.65)$$

Da  $\langle E(u) N(u) \rangle = 0$  ist, ergibt sich für die radial gemittelte Diffraktogrammintensität nach [27]

$$\begin{aligned} \langle |\hat{C}_{exp}(u)|^2 \rangle &= \langle |E(u) + N(u)|^2 \rangle \\ &= |E(u)|^2 + \langle |N(u)|^2 \rangle \\ &= |E(u)|^2 + V(u). \end{aligned} \quad (2.66)$$

Aus einem radial gemittelten Diffraktogramm  $\langle |\hat{C}_{Leer}(u)|^2 \rangle$  eines Bildes, bei dem der Detektor homogen beleuchtet wurde, d. h. bei dem die Probe aus dem Strahlengang entfernt wurde, erhält man abgesehen von einem Skalierungsfaktor den Untergrund  $V(u)$  eines experimentellen Diffraktogramms, da die Fouriertransformation eines solchen Bildes für  $u \neq 0$  mit ihrem Erwartungswert  $E_{Leer}(u) = 0$  (für  $u \neq 0$ ) beschrieben werden kann mit

$$\begin{aligned} \hat{C}_{Leer}(u) &= E_{Leer}(u) + N(u) \\ &= N(u) \\ \Rightarrow \langle |\hat{C}_{Leer}(u)|^2 \rangle &= \langle |N(u)|^2 \rangle. \end{aligned} \quad (2.67)$$

Zur Untergrundkorrektur muss bei dieser Beschreibung ein Bild ohne Probe verwendet und das dazugehörige radial gemittelte Diffraktogramm  $\langle |\hat{C}_{Leer}(u)|^2 \rangle$  berechnet werden. Danach vergleicht man im modulationsfreien Raumfrequenzbereich des zu korrigierenden radial gemittelten Diffraktogramms  $\langle |\hat{C}_{exp}(u)|^2 \rangle$  die Intensitäten der beiden radial gemittelten Diffraktogramme  $\langle |\hat{C}_{exp}(u)|^2 \rangle$  und  $\langle |\hat{C}_{Leer}(u)|^2 \rangle$  und ermittelt in diesem Bereich den Skalierungsfaktor, mit dem  $\langle |\hat{C}_{Leer}(u)|^2 \rangle$  multipliziert werden muss, um die Intensitäten in den beiden Diffraktogrammen anzugeleichen. Nach dem Angleich der Intensitäten kann die Untergrundkorrektur von  $\langle |\hat{C}_{exp}(u)|^2 \rangle$  erfolgen. Man sollte für diese Methode zur Untergrundkorrektur mehrere Bilder aufzeichnen, bei denen die Probe aus dem Strahlengang entfernt wurde, und man sollte deren Mittelwert-Bild bestimmen, aus dem dann das Diffraktogramm  $|\hat{C}_{Leer}(u)|^2$  bestimmt werden kann.

Dieses Untergrundkorrekturverfahren funktioniert nur, wenn eine radiale Mittelung des *Betragsquadrates* der Fouriertransformation erfolgt. Wird eine Mittelung des Betrags der Fouriertransformation durchgeführt, wird das Signal verfälscht und eine Untergrundsubtraktion ist nicht möglich [27, 30].

## 2.6 Bestimmung der Phase $\eta(u)$ komplexer Atomstreuamplituden und Bestimmung von Zwei-Teilchen-Strukturfaktoren

Wesentliche Ziele dieser Arbeit sind die experimentelle Bestimmung der Phase  $\eta(u)$  komplexer Atomstreuamplituden in Abhängigkeit von der Raumfrequenz und die Bestimmung von Zwei-Teilchen-Strukturfaktoren  $S(u)$ . Zusätzlich soll der Einfluss der Phasenableitung  $\eta'(u)$  in der Einhüllenden von Diffraktogrammen experimentell untersucht werden.

Die Ursache für die komplexe Atomstreuamplitude liegen in dem elastischen Beitrag  $\epsilon(\vec{\rho})$  und dem Absorptionsbeitrag  $\mu(\vec{\rho})$  aus Gleichung (2.48) wie sie in Abschnitt 2.3 diskutiert wurden. Nach [4] und [55] erhält man Resultate für den Absorptionsbeitrag zum Imaginärteil der Atomstreuamplitude. Für den elastischen Beitrag

zu  $\eta(u)$  können für beliebige Beschleunigungsspannungen Resultate mit einem Programm berechnet werden, das auf L. Reimers Hypertext-CD [49] vorhanden ist und atomare Formfaktoren im Rahmen der Hochenergienäherung berechnet. Dabei wird die WKB-Methode (Wentzel, Kramer, Brillouin) bei Beschreibung des Streupotentials über das Muffin-Tin-Modell benutzt [48, 49]. Für sehr kleine Winkel kann der Imaginärteil der elastischen Streuamplitude  $f(u)$  auch über das optische Theorem aus dem totalen Wirkungsquerschnitt berechnet werden [51]

$$\text{Im}(f(0)) = \frac{k}{4\pi} (\sigma_{el} + \sigma_{in}). \quad (2.68)$$

Dabei ist  $k$  der Betrag des Wellenvektors und  $\sigma_{el}$  und  $\sigma_{in}$  der elastische bzw. inelastische Wirkungsquerschnitt. Absorptionsbeitrag und elastischer Beitrag zur Phase  $\eta(u)$  sind experimentell nicht unterscheidbar und sie nehmen mit steigender Raumfrequenz monoton zu [27, 38]. Komplexe Streuamplituden werden auch in [43, 58] berechnet.

In [27, 29, 30] wurde unter Annahme einer konstanten Phase  $\eta$  der experimentelle Diffraktogrammverlauf bei kleinen Raumfrequenzen  $u < 0,5 \text{ nm}^{-1}$  durch eine Anpassung der Funktion

$$|\hat{C}(u)|^2 = \text{const} |f_a(u)|^2 S(u) \cdot 4A^2(u) E_c^2(u) E_\alpha^2(u) \sin^2 \{\gamma(u) - \eta\} \quad (2.69)$$

nach Gleichung (2.51) bis (2.53) durch eine Variation der Parameter  $\eta$ ,  $\alpha$  und einen Skalierungsfaktor für dünne amorphe Proben aus Kohlenstoff und Silizium reproduziert. Dabei wurde der experimentell bestimmte Zwei-Teilchen-Strukturfaktor  $S(u)$  eingesetzt, der aus berechneten relativistischen inelastischen Übertragungsfunktionen (ITF) und inelastischen Diffraktogrammen nach einem Verfahren bestimmt wurde, das noch in Kapitel 3.5 erläutert wird. Außerdem wurde  $E_c(u)$  für den kleinen betrachteten Raumfrequenzbereich als vernachlässigbar im Vergleich zu  $E_\alpha(u)$  angenommen. Durch diese Anpassung ergaben sich Resultate für eine als konstant angenommene Phase  $\eta$ .

Eine andere Methode, die mittlere Phase  $\eta$ , also eine konstante Phase, zu bestimmen, wurde von Typke und Radermacher vorgestellt [53], nach der  $\eta$  aus der Position von zwei Nullstellen im Diffraktogramm bestimmt wurde, wobei eine davon in der Regel die Nullstelle 0-ter Ordnung sein sollte, da deren Lage am stärksten durch eine Phase

$\eta \neq 0$  beeinflusst wird im Vergleich zu einer Beschreibung des Objekts als schwaches *Phasenobjekt* mit  $\eta = 0$ . Die Diffraktogramme stammten dabei von Aufnahmen von Fokusreihen bei leichtem Astigmatismus. Nach dieser Methode wurde die mittlere Phase für folgende Objekte bestimmt, die aus schweren und leichten Elementen zusammengesetzt waren: Kohlenstoff-Platin-Folien, sowie Proben mit Biomolekülen und  $\text{UO}_2 (\text{C}_2\text{H}_3\text{O}_2)_2$  (Uranylacetat) bzw.  $\text{UO}_2 (\text{CHO}_2)_2$  (Uranylformiat).

Nun soll in dieser Arbeit die Phase  $\eta(u)$  komplexer Atomstreuamplituden aber in Abhängigkeit von der Raumfrequenz  $u$  experimentell ermittelt werden. Die Methode, die dies ermöglichen soll, ist in Abbildung 2.2 schematisch dargestellt und basiert auf der Untersuchung von Kontrast-Transfer-Charakteristiken, die z. B. von Möbus [37, 38] zur Bestimmung der chromatischen Hüllkurve verwendet wurden. In einer Kontrast-Transfer-Charakteristik ist die horizontale Achse die Raumfrequenzachse und die vertikale Achse die Defokusachse. Innerhalb dieser Koordinatenachsen sind dann Grauwerte eingetragen, die den Diffraktogrammintensitäten gemäß Gleichung (2.51) bis (2.53) entsprechen. Der Intensitätsverlauf in einer Spalte stellt dann eine Kontrastfokusreihe bei einer festen Raumfrequenz dar.

Um die Kontrast-Transfer-Charakteristik zu berechnen, wurden unter unterschiedlichen Defokuswerten mit regelmäßigen Defokusabstufungen bei konstanter Belichtungszeit pro Bild elastisch gefilterte Aufnahmen dünner amorpher Proben aufgezeichnet, deren mittlere Bildintensitäten auf 1 normiert wurden. Selbst bei konstanter Belichtungszeit pro Bild war diese Normierung notwendig, da eine messbare Abhängigkeit der mittleren Bildintensität in Abhängigkeit vom Defokus festgestellt wurde, deren Ursache im Anhang B qualitativ und quantitativ erklärt wird. Aus den intensitätsnormierten Aufnahmen wurden die Diffraktogramme berechnet und radial gemittelt. Diese wurden bezüglich des Untergrundes nach dem Verfahren in Kapitel 2.5 korrigiert. Den Defokus  $\Delta f$  jedes Bildes erhielt man nach der Methode von Krivanek [32, 33], nach der  $\Delta f$  aus der Lage der Extremstellen im Diffraktogramm berechnet werden kann. Um keine Verfälschung des Ergebnisses für  $\Delta f$  aufgrund des Einflusses der Einhüllenden  $E_\alpha(u)$  und  $E_c(u)$  im Diffraktogramm zu erhalten, sollte man zur Defokusbestimmung nach Möglichkeit nur die Lage der Nullstellen im Diffraktogramm bei einer derartigen Defokusbestimmung verwenden und das erste Maximum im Diffraktogramm aufgrund des  $\sin^2 \gamma(u)$ -Terms nicht benutzen [52].

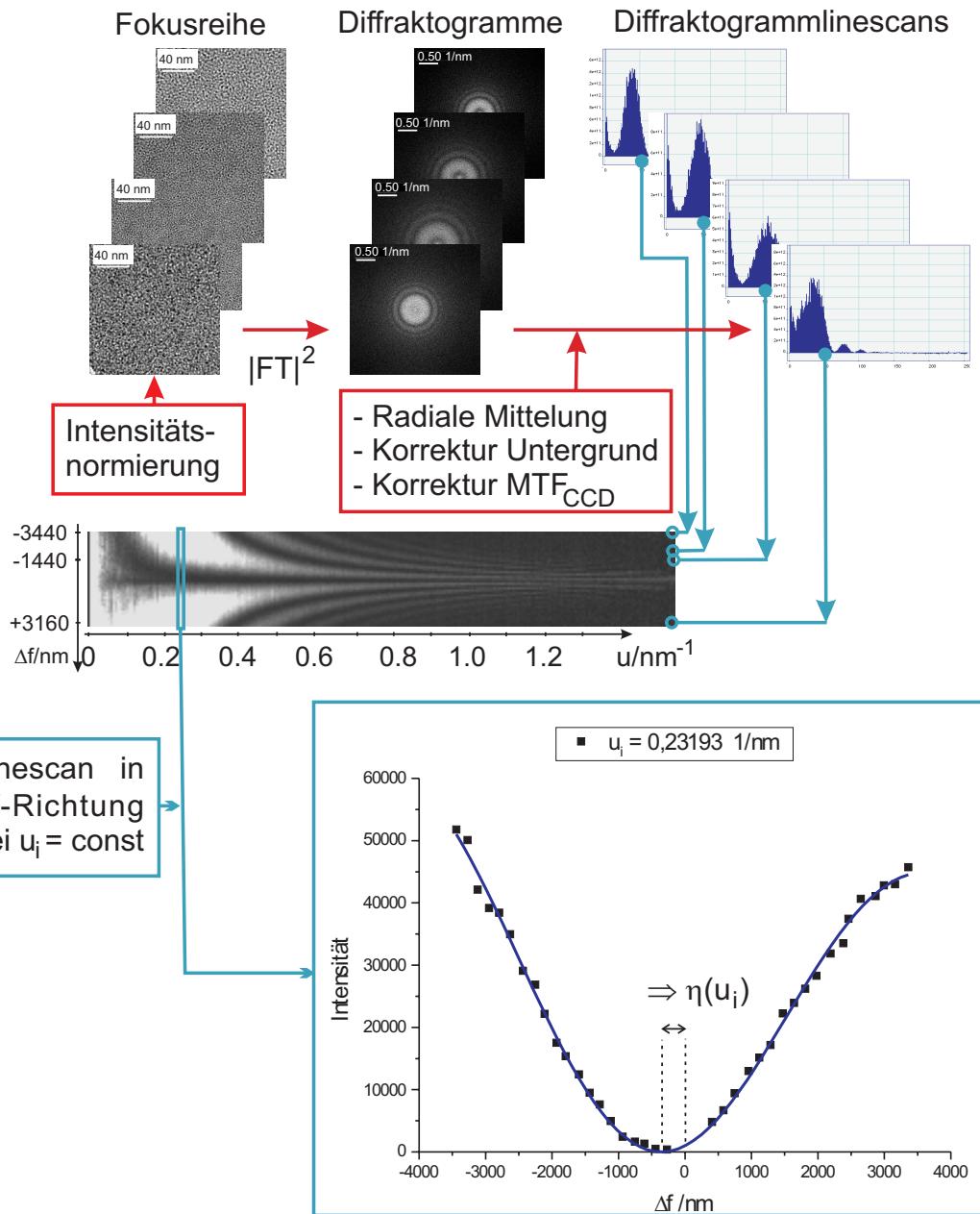


Abbildung 2.2: Schematische Darstellung der Methode zur Bestimmung der Phase  $\eta(u)$  unter Verwendung von Kontrast-Transfer-Charakteristiken am Beispiel einer am JEOL JEM 3010 mit einer Beschleunigungsspannung von 297 kV untersuchten amorphen Germaniumprobe. Erläuterungen: siehe Text.

Auch die Korrektur bezüglich der Modulationstransferfunktion  $MTF_{CCD}(u)$  der CCD-Kamera wurde durchgeführt, so dass die derart bearbeiteten Diffraktogramme zur Kontrast-Transfer-Charakteristik zusammengesetzt werden konnten.

Bei der Untersuchung der dünnen Kohlenstoff-, Silizium- und Germanium-Proben konzentrieren wir uns auf Raumfrequenzen  $< 1,0 \text{ nm}^{-1}$ . Innerhalb dieses Raumfrequenzbereichs nehmen wir den Betrag der Atomstreuamplitude als konstant an und können den Einfluss von  $E_c(u)$  im Vergleich zu den von  $E_\alpha(u)$  vernachlässigen. So kann man den Intensitätsverlauf der Kontrast-Transfer-Charakteristik bei fester Raumfrequenz  $u_i$  unter diesen Bedingungen bei Anwendung der Gleichungen (2.51) bis (2.53) und (2.59) bis (2.60) schreiben als

$$\left| \hat{C}(\Delta f) \right|_{u_i}^2 = K_{u_i} \cdot |E_\alpha(\Delta f, \eta_z(u_i))|_{u_i}^2 \cdot \sin^2 \left\{ \frac{1}{2} \pi C_s \lambda^3 u_i^4 - \pi \Delta f \lambda u_i^2 - \eta(u_i) \right\} \quad (2.70)$$

mit  $K_{u_i} = \text{const} \cdot S(u_i)$  und  $\eta_z(u_i) = \eta'(u_i) / (2\pi\lambda)$ . Die Wellenlänge  $\lambda$  ist sowohl für das JEOL JEM 3010 mit einer Beschleunigungsspannung von 297 kV, als auch für das Zeiss EM 902 mit einer Beschleunigungsspannung von 80 kV bekannt (siehe Kapitel 4.3). Für die sphärischen Aberrationskonstanten gelten die Angaben aus Kapitel 4.3.

Die Bestimmung der Phase  $\eta(u)$  erfolgte nun für jede (diskrete) Raumfrequenz der digital aufgezeichneten Daten mit Hilfe eines Least-Squares-Fits aus der dazu gehörigen Spalte der Kontrast-Transfer-Charakteristik, die einem Linescan in Defokus-Richtung bzw. einem „Defokus-Linescan“ entspricht. Dabei werden für die Anpassung die Parameter  $\eta(u_i)$ ,  $K_{u_i}$  und  $\eta_z(u_i)$  variiert. Der Konvergenzhalswinkel  $\alpha$  wurde im Vorfeld dieser Anpassung mit Methoden bestimmt, die im Abschnitt A des Anhangs erläutert werden. Für die Least-Squares-Fit-Auswertung wurden die Programme Origin 7G bzw. 6.1 verwendet.

Zu beachten ist, dass die Variable  $K_{u_i}$  proportional zum Zwei-Teilchen-Strukturfaktor an der Raumfrequenz  $u_i$  und  $\eta_z(u_i)$  im Falle radialsymmetrischer Phasen  $\eta(u)$  proportional zur Phasenableitung  $\eta'(u_i)$  an dieser Raumfrequenz ist. Die Untersuchungsmethode anhand von Kontrast-Transfer-Charakteristiken und Least-Squares-Fits sollte somit bei der Analyse von dünnen amorphen Proben, die aus einem Element bestehen, sowohl Ergebnisse für den Verlauf der Phase  $\eta(u)$  als auch für den des Zwei-Teilchen-Strukturfaktors  $S(u)$  und der Phasenableitung  $\eta'(u)$  in Ab-

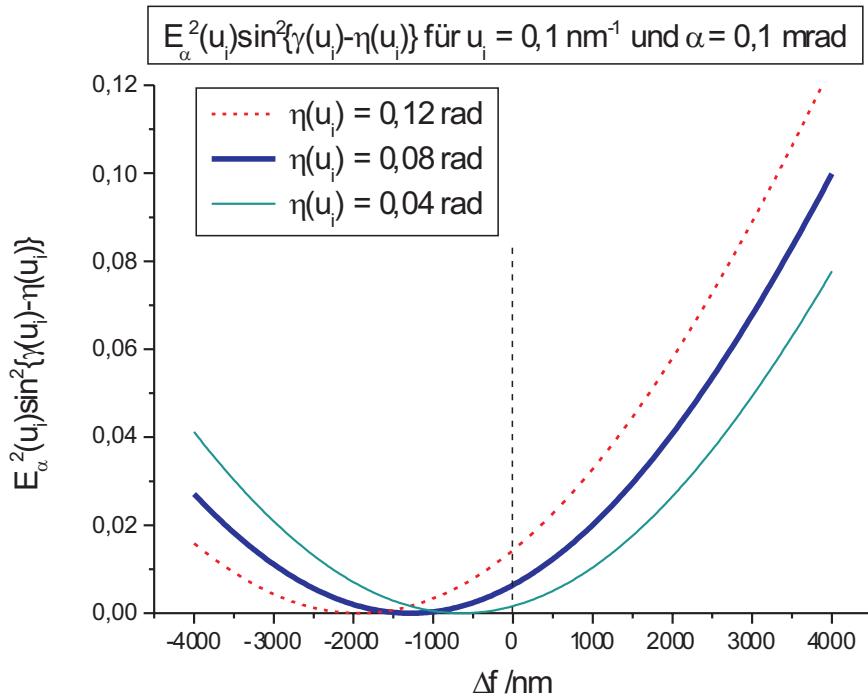


Abbildung 2.3: Simulation von  $E_\alpha^2(u_i) \sin^2(\gamma(u_i) - \eta(u_i))$  bei fester Raumfrequenz  $u_i = 0,1 \text{ nm}^{-1}$ , festem Konvergenzhalfwinkel  $\alpha = 0,1 \text{ mrad}$  und bei  $\eta'(u_i) = 0 \text{ rad} \cdot \text{nm}$  unter Variation von  $\eta(u_i)$  bei einer Beschleunigungsspannung von 297 kV und einer sphärischen Aberrationskonstante  $C_s = 0,62 \text{ mm}$ .

hängigkeit von der Raumfrequenz liefern.

Der Einfluss kleiner Phasen  $\eta$  auf den Intensitätsverlauf in Kontrast-Transfer-Charakteristiken bei fester Raumfrequenz  $u_i$  soll in Abbildung 2.3 und 2.4 verdeutlicht werden. Abbildung 2.3 zeigt für das JEOL JEM 3010 mit einer Beschleunigungsspannung von 297 kV und einer sphärischen Aberrationskonstante  $C_s = 0,62 \text{ mm}$  eine Simulation des Produkts  $E_\alpha^2(u_i) \sin^2(\gamma(u_i) - \eta(u_i))$  bei einer Raumfrequenz  $u_i = 0,1 \text{ nm}^{-1}$  und einem Konvergenzhalfwinkel  $\alpha$  von 0,1 mrad in Abhängigkeit von drei unterschiedlichen Werten  $\eta(u_i)$ . Mit steigendem  $\eta$  verschiebt sich im Kurvenverlauf die Nullstelle 0-ter Ordnung, die auftritt, wenn das Argument im Sinus-Term von Gleichung (2.70) Null wird und gleichzeitig dadurch die erste Nullstelle

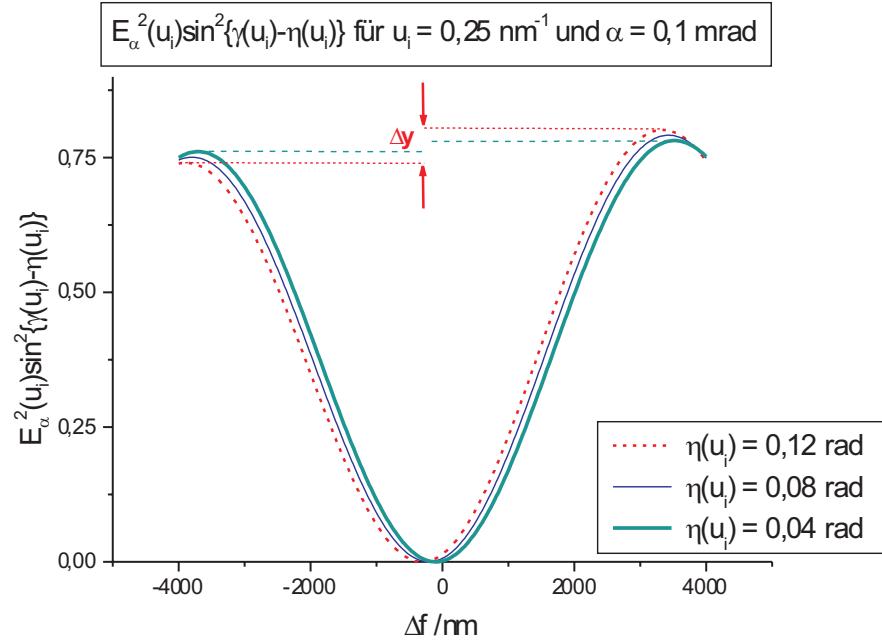


Abbildung 2.4: Simulation von  $E_\alpha^2(u_i) \sin^2(\gamma(u_i) - \eta(u_i))$  bei fester Raumfrequenz  $u_i = 0,25 \text{ nm}^{-1}$ , festem Konvergenzhalfwinkel  $\alpha = 0,1 \text{ mrad}$  und bei  $\eta'(u_i) = 0 \text{ rad} \cdot \text{nm}$  unter Variation von  $\eta(u_i)$  bei einer Beschleunigungsspannung von 297 kV und einer sphärischen Aberrationskonstante  $C_s = 0,62 \text{ mm}$ .

neben dem Zentrum eines Diffraktogramms beschrieben wird, in Richtung negativer Defokuswerte, während der Schnittpunkt der Kurve mit der vertikalen Achse  $\Delta f = 0 \text{ nm}$  sich zu höheren Werten verschiebt. Auch die Nullstellen höherer Ordnung verschieben sich leicht auf der Defokusachse bei Veränderung von  $\eta$ , was allerdings in Abbildung 2.3 aufgrund des dort gewählten Defokusbereichs nicht demonstriert werden kann.

Abbildung 2.4 zeigt eine Simulation des Produkts  $E_\alpha^2(u_i) \sin^2(\gamma(u_i) - \eta(u_i))$  bei einer konstanten Raumfrequenz von  $u_i = 0,25 \text{ nm}^{-1}$  und bei festem Konvergenzhalfwinkel  $\alpha = 0,1 \text{ mrad}$  in Abhängigkeit von drei unterschiedlichen Werten für  $\eta$ . Man erkennt, dass die Höhe der beiden zur Nullstelle 0-ter Ordnung benachbarten Maxima unterschiedlich ist. Dieser Höhenunterschied  $\Delta y$  wird in Abbildung 2.4 bei

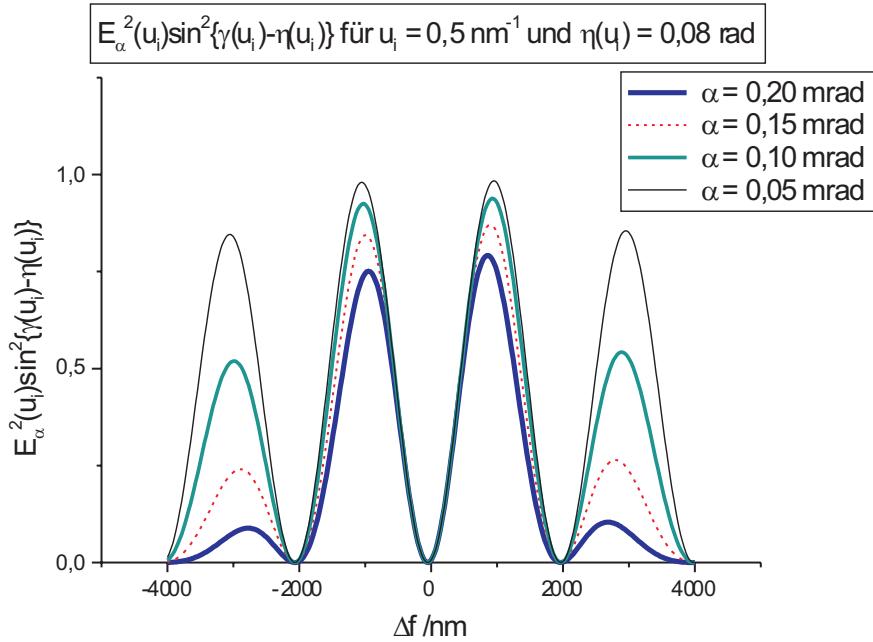


Abbildung 2.5: Simulation von  $E_\alpha^2(u_i) \sin^2(\gamma(u_i) - \eta(u_i))$  bei fester Phase  $\eta(u_i) = 0,08 \text{ rad}$  mit  $\eta'(u_i) = 0 \text{ rad} \cdot \text{nm}$  und bei fester Raumfrequenz  $u_i = 0,5 \text{ nm}^{-1}$  unter Variation des Konvergenzhalfwinkels  $\alpha$  bei einer Beschleunigungsspannung von 297 kV und einer sphärischen Aberrationskonstante  $C_s = 0,62 \text{ mm}$ .

Beschreibung der Einhüllenden  $E_\alpha(u)$  mit Gleichung (2.60) bei  $\eta'(u_i) = 0 \text{ rad} \cdot \text{nm}$  mit steigendem  $\eta$  größer.

Wenn wir nun diese zur Nullstelle 0-ter Ordnung benachbarten Maxima in Abbildung 2.5 ansehen, in der das Produkt  $E_\alpha^2(u_i) \sin^2(\gamma(u_i) - \eta(u_i))$  für eine Raumfrequenz  $u_i = 0,5 \text{ nm}^{-1}$  und für  $\eta(u_i) = 0,08 \text{ rad}$  in Abhängigkeit vom verwendeten Konvergenzhalfwinkel dargestellt ist, so fällt auf, dass dieser Höhenunterschied mit steigendem  $\alpha$  zunimmt. Das heißt, dass bei höheren  $\alpha$  der Einfluss von  $\eta(u)$  bei der Auswertung der Kontrast-Transfer-Charakteristiken bemerkbarer ist und die Phase  $\eta(u)$  somit für höhere  $\alpha$  genauer zu bestimmen wäre. Zur Bestimmung von  $\eta(u)$  ist somit ein möglichst großer Konvergenzhalfwinkel  $\alpha$  zu wählen, wobei beachtet werden muss, dass die Beschreibung des Einflusses von  $\alpha$  über die Einhüllende  $E_\alpha(u)$

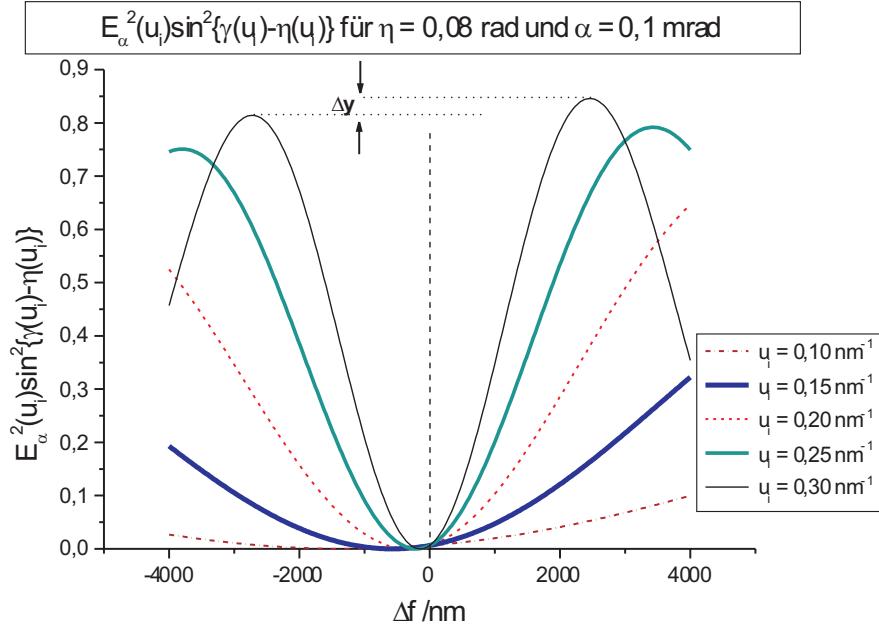


Abbildung 2.6: Simulation von  $E_\alpha^2(u_i) \sin^2(\gamma(u_i) - \eta(u_i))$  bei fester Phase  $\eta(u_i) = 0,08 \text{ rad}$  mit  $\eta'(u_i) = 0 \text{ rad} \cdot \text{nm}$  und bei festem Konvergenzhalfwinkel  $\alpha = 0,1 \text{ mrad}$  unter Variation der Raumfrequenz  $u_i$  bei einer Beschleunigungsspannung von 297 kV und einer sphärischen Aberrationskonstante  $C_s = 0,62 \text{ mm}$ .

nach Gleichung (2.22) bzw. (2.60) nur für kleine Konvergenzhalfwinkel gültig ist. Aus diesem Grund haben wir uns bei der Bestimmung von  $\eta(u)$  auf Konvergenzhalfwinkel  $\alpha < 0,2 \text{ mrad}$  beschränkt.

Für große Konvergenzhalfwinkel muss eine andere Beschreibung für die Einhüllende gewählt werden, die sich auf die partielle Konvergenz aufgrund der konvergenten Beleuchtung bezieht. So lässt sich die Einhüllende im Falle einer voll fokussierten Beleuchtung, bei der der Crossover auf der Probe abgebildet wird, z. B. mit Hilfe einer scharf begrenzten „Top-Hat“-Beleuchtungswinkelverteilung berechnen [33]. Außerdem wird die Dämpfung der Diffraktogrammintensitäten mit steigendem  $\alpha$  größer, so dass dann die Anzahl der sichtbaren Maxima und Nullstellen im Diffraktogramm sinkt. Bei einer geringen Anzahl von sichtbaren Extremstellen ist eine Defokusbe-

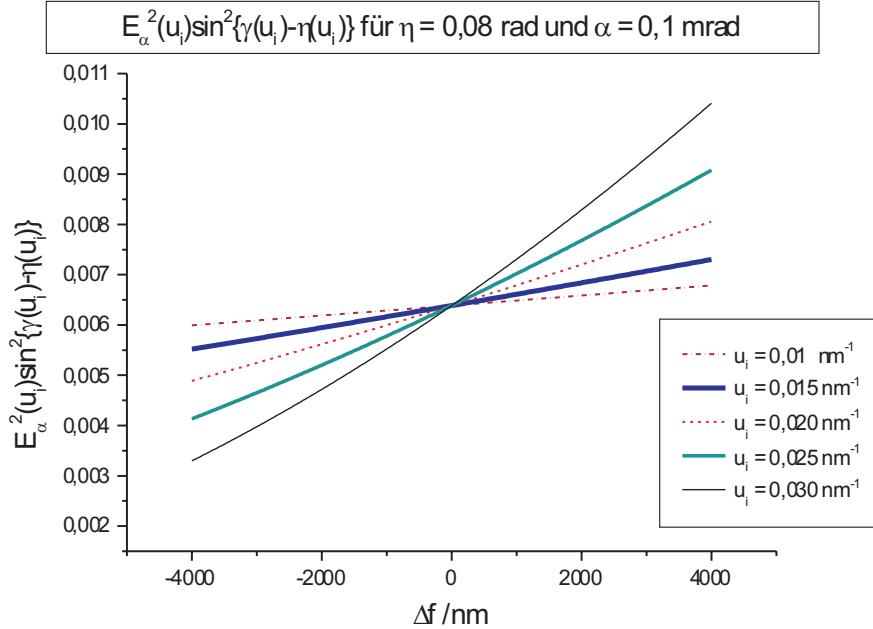


Abbildung 2.7: Simulation von  $E_\alpha^2(u_i) \sin^2(\gamma(u_i) - \eta(u_i))$  bei fester Phase  $\eta(u_i) = 0,08$  rad mit  $\eta'(u_i) = 0$  rad · nm und bei festem Konvergenzhalbwinkel  $\alpha = 0,1$  mrad unter Variation der Raumfrequenz  $u_i$  bei einer Beschleunigungsspannung von 297 kV und einer sphärischen Aberrationskonstante  $C_s = 0,62$  mm.

stimmung nach der hier verwendeten Methode von Krivanek [32, 33] schwierig und ungenau oder gar unmöglich.

Nehmen wir die Bilder, aus denen die Diffraktogramme und die Kontrast-Transfer-Charakteristik berechnet werden, innerhalb eines Defokusbereichs von  $-4000 \text{ nm} \leq \Delta f \leq 4000 \text{ nm}$  auf, und betrachten wir Linescans der zugehörigen Kontrast-Transfer-Charakteristiken bei fester Raumfrequenz  $u_i$ , so ist die Anzahl der auftretenden Maxima und Nullstellen in diesen Linescans von der Raumfrequenz  $u_i$  abhängig. Die Simulation aus Abbildung 2.5 gibt einen Eindruck, wie am JEOL JEM 3010 bei Raumfrequenzen in der Größenordnung  $0,5 \text{ nm}^{-1}$  der Intensitätsverlauf in einem solchen Linescan innerhalb des oben gewählten Defokusbereichs aussieht.

Der Vollständigkeit halber sind in Abbildung 2.6 und 2.7 die zu erwartenden Verläu-

fe in diesen Linescans durch Simulationen des Produkts  $E_\alpha^2(u_i) \sin^2(\gamma(u_i) - \eta(u_i))$  für  $\eta = 0,08$  rad und einen Konvergenzhalbwinkel  $\alpha$  von 0,1 mrad für Raumfrequenzbereiche  $0,10 \text{ nm}^{-1} \leq u_i \leq 0,30 \text{ nm}^{-1}$  (Abbildung 2.6) und  $0,01 \text{ nm}^{-1} \leq u_i \leq 0,03 \text{ nm}^{-1}$  (Abbildung 2.7) angegeben. Bei sehr kleinen Raumfrequenzen aus Abbildung 2.7 erscheint der Linescan bei konstanter Raumfrequenz in dem dargestellten Defokusbereich  $-4000 \text{ nm} \leq \Delta f \leq 4000 \text{ nm}$  der Kontrast-Transfer-Charakteristik als ein näherungsweiser linearer Intensitätsverlauf.

Die experimentellen Ergebnisse, die im Rahmen dieser Arbeit durch die in diesem Abschnitt beschriebene Methode für die Phase  $\eta(u)$ , den Zwei-Teilchen-Strukturfaktor und die Phasenableitung  $\eta'(u)$  gewonnen wurden, werden in den Kapiteln 5 bis 7 vorgestellt. Da die auf diese Weise erzielten Resultate für den Zwei-Teilchen-Strukturfaktor mit den Ergebnissen verglichen werden sollen, die eine davon unabhängige Methode mit Hilfe inelastisch gefilterter Bilder liefert, soll diese Methode und die dazugehörige Abbildungstheorie zunächst im folgenden Kapitel beschrieben werden.

# Kapitel 3

## Analytische Elektronenmikroskopie

### 3.1 Energieverlustspektroskopie

In einem Elektronenmikroskop, das mit einem abbildenden Energiefilter ausgestattet ist, lassen sich die in der Probe inelastisch gestreuten Elektronen zur chemischen Analyse der Probe verwenden. In einem Elektronenenergieverlustspektrum (EELS = engl.: electron energy loss spectrum) werden die Elektronen nach der Streuung und Transmission durch die Probe in Abhangigkeit ihres beim Streuprozess erlittenen Energieverlustes registriert. In Abbildung 3.1 ist ein typisches Beispiel fur ein EEL-Spektrum zu sehen.

Ein Elektronenenergieverlustspektrum lasst sich prinzipiell in drei Bereiche einteilen [11, 27, 40, 46, 56]. Der erste Teil besteht aus dem so genannten Zero-Loss-Peak, der durch die ungestreuten und elastisch gestreuten Elektronen verursacht wird.

Der zweite wird „Low-Loss“-Bereich genannt und erstreckt sich bis zu Energieverlusten von ca. 50 eV. Sein Verlauf hat seine Ursache in der Anregung kollektiver Schwingungen des quasifreien Elektronengases und wird durch Plasmonenanregungen und Interbandanregungen bestimmt.

Der dritte Bereich gehort den hoheren Energieverlusten und ist durch charakteristische Ionisationskanten gekennzeichnet. Sie entstehen durch Elektronen, die an der Elektronenhulle von Atomen gestreut werden und dabei Hullen elektronen aus einer inneren Schale in einen freien Zustand oder in das Kontinuum oberhalb des

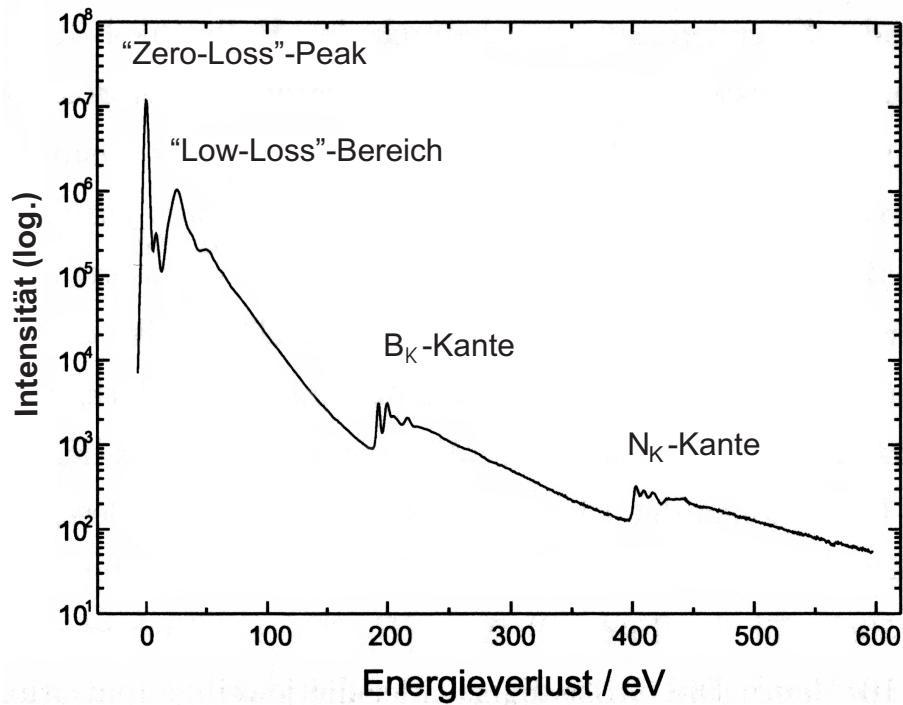


Abbildung 3.1: Elektronenenergieverlustspektrum einer Probe mit h-BN-Partikeln [40].

Fermi niveaus anregen. Eine Identifizierung der im bestrahlten Probenbereich enthaltenen chemischen Elemente ist anhand des charakteristischen Energieverlustes des Ionisationskantenansatzes bzw. der Schwellenenergie und anhand der Kantenform möglich. Die Feinstruktur dieser Kanten liefert Informationen über die auftretenden Bindungszustände und die Struktur der lokalen Umgebung der betreffenden Elemente. Detaillierte Informationen zur Feinstruktur findet man in [20].

Eine quantitative Analyse eines EEL-Spektrums ist in Form einer Konzentrationsbestimmung mit Hilfe der charakteristischen Ionisationskanten möglich. Dazu muss allerdings von der Ionisationskante des betreffenden Elements ein Untergrund abgezogen werden. Dieser ergibt sich entweder aus den Ausläufern von Ionisationskanten, die ihren Ansatz bei niedrigeren Energieverlusten haben, oder für den Fall, dass die zu analysierende Ionisationskante im Bereich niedriger Energieverluste liegt, aus Ausläufern von Plasmonen.

Als Untergrundmodell wird in den meisten Fällen ein Potenzansatz der Form

$$I_U(E) = A \cdot E^{-r} \quad (3.1)$$

gewählt [11, 46], wobei  $E$  für den Energieverlust steht. Die Parameter  $A$  und  $r$  werden durch Regression aus dem Intensitätsverlauf des Vorkantenbereichs der zu analysierenden Ionisationskante ermittelt. Dieses Untergrundmodell ist aber nicht immer über den gesamten Energieverlustbereich geeignet, denn im Bereich niedriger Energieverluste kann es zu Fehlern bei der Untergrundberechnung führen. In diesem Bereich werden oft andere Modelle zur Untergrundkorrektur verwendet.

Zieht man den Untergrund von der betrachteten Ionisationskante eines Elements  $a$  ab, so gilt für die Intensität unterhalb dieser Kante innerhalb eines ausgewählten Energiefensters  $[E_a, E_a + \Delta E_a]$  [10]

$$I_a(E_a, \Delta E_a, \vartheta_a) = I_0 n_a \sigma_a(E_a, \Delta E_a, \vartheta_a), \quad (3.2)$$

wobei  $n_a$  die Flächenteilchendichte der Atome  $a$  im bestrahlten Volumen der Probe,  $I_0$  die Anzahl der einfallenden Elektronen und  $\sigma_a(E_a, \Delta E_a, \vartheta_a)$  der Wirkungsquerschnitt für die betrachtete Innerschalenanregung ist, bei der der Energieverlust des gestreuten Elektrons innerhalb des Energieverlustintervalls  $[E_a, E_a + \Delta E_a]$  liegt und der Streuwinkel des Elektrons so klein ist, dass er die Kontrastaperturbelnde mit dem Halbwinkel  $\vartheta_a$  noch passiert. Der Wirkungsquerschnitt lässt sich berechnen über

$$\sigma_a(E_a, \Delta E_a, \vartheta_a) = \int_{E_a}^{E_a + \Delta E_a} \int_{\vartheta_a} \frac{d^2 \sigma_a}{d\Omega dE} d\Omega dE. \quad (3.3)$$

Der doppelt differentielle Wirkungsquerschnitt  $\frac{d^2 \sigma_a}{d\Omega dE}$  der Atomsorte  $a$  ist ein Maß für die Wahrscheinlichkeit, dass ein Streuprozess mit einem Energieverlust des Elektrons innerhalb eines Energieverlustintervalls  $[E, E + dE]$  und eine Streuung in das Raumwinkelement  $d\Omega$  stattfindet.

Gleichung (3.2) ist für die quantitative Auswertung des Spektrums nur gültig, wenn inelastisch-inelastische Mehrfachstreuungen vernachlässigt werden können, die Probe also dünn genug ist. Ist die Probe zu dick, muss zuerst das Spektrum durch eine Entfaltung mit der Spektrumintensität bei niedrigen Energieverlusten bearbeitet werden [11, 27]. Für die Bestimmung von  $I_0$  muss berücksichtigt werden, dass für

typische Proben in der Transmissionselektronenmikroskopie durch elastische Streuprozesse ein Teil der Elektronen von der Kontrastaperturblende mit dem Halbwinkel  $\vartheta_a$  abgefangen werden und sich somit die Intensität  $I_a(E_a, \Delta E_a, \vartheta_a)$  in Gleichung (3.2) verringert [10, 11]. Unter der Annahme, dass dieser von der Blende abgefangene Elektronenanteil sowohl für den Fall, dass eine Innerschalenanregung stattgefunden hat, als auch für den Fall, dass keine stattgefunden hat, gleich ist, gilt

$$I_a(E_a, \Delta E_a, \vartheta_a) \approx I_0(\vartheta_a) n_a \sigma_a(E_a, \Delta E_a, \vartheta_a), \quad (3.4)$$

wobei  $I_0(\vartheta_a)$  für die gemessene Intensität innerhalb des Zero-Loss-Peaks im EEL-Spektrum steht [11].

Ist Vielfachstreuung nicht vernachlässigbar, so verlagert sich ein Teil der Intensität der charakteristischen Ionisationskante im EEL-Spektrum außerhalb des gewählten Energieverlustintervalls  $[E_a, E_a + \Delta E_a]$ . Ist dieser Effekt nicht durch eine Entfaltung des Spektrums korrigiert worden, so kann eine Anwendung von Gleichung (3.4) zu verfälschten Ergebnissen bei der quantitativen Auswertung führen. Geht man näherungsweise davon aus, dass die Wahrscheinlichkeit einer inelastischen Streuung außerhalb des Energieverlustintervalls innerhalb der Ionisationskante im EEL-Spektrum die gleiche ist, wie die Wahrscheinlichkeit einer Streuung im Low-Loss-Bereich über einen Energieverlust  $\Delta E_a$  hinaus, so kann man in Gleichung (3.4)  $I_0(\vartheta_a)$  durch die bis zum Energieverlust  $\Delta E_a$  integrierte Intensität  $I(\Delta E_a, \vartheta_a)$  im Low-Loss-Bereich des EEL-Spektrums ersetzen [10, 11]

$$I_a(E_a, \Delta E_a, \vartheta_a) \approx I(\Delta E_a, \vartheta_a) n_a \sigma_a(E_a, \Delta E_a, \vartheta_a). \quad (3.5)$$

In vielen Fällen reichen relative Konzentrationsangaben der in der Probe enthaltenen Elemente zur Charakterisierung des Präparats aus. Eine Ermittlung von Konzentrationsverhältnissen kann über [11]

$$\frac{N_a}{N_b} = \frac{I_a}{I_b} \frac{\sigma_b(E_b, \Delta E_b, \vartheta_a)}{\sigma_a(E_a, \Delta E_a, \vartheta_a)} \quad (3.6)$$

erfolgen.  $N_a$  und  $N_b$  kennzeichnen die Anzahl der Atome  $a$  bzw.  $b$  im bestrahlten Probenbereich,  $\sigma_a$  und  $\sigma_b$  die betreffenden Wirkungsquerschnitte für die betrachteten Innerschalenanregungen und  $I_a$  und  $I_b$  stehen für die Intensitäten unter den

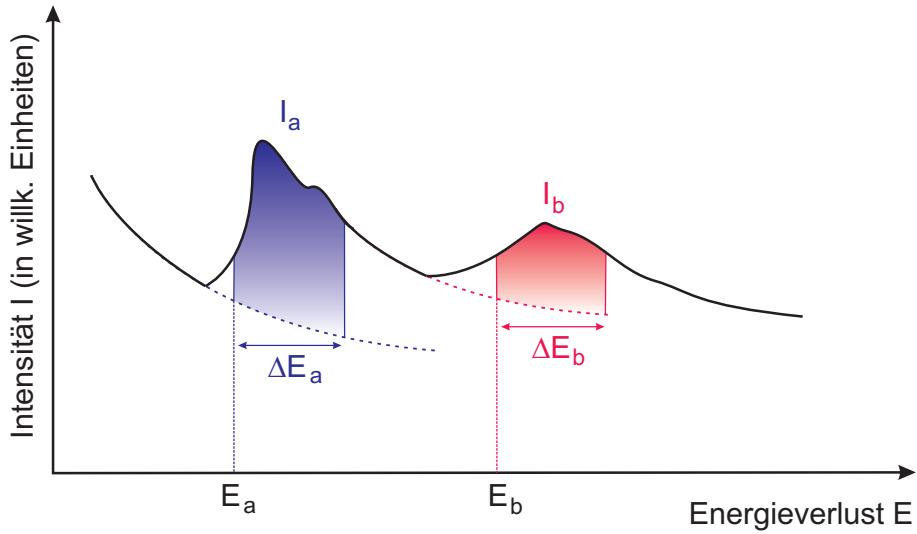


Abbildung 3.2: Schematische Illustration eines Spektrumausschnitts mit zwei zu analysierenden Ionisationskanten der Elemente  $a$  und  $b$  und schematische Darstellung der Parameter aus Gleichung (3.6).

Kantenverläufen im Spektrum innerhalb der betrachteten Energieverlustintervalle  $[E_a, E_a + \Delta E_a]$  bzw.  $[E_b, E_b + \Delta E_b]$ , die bei Verwendung einer Kontrastaperturblende mit dem Halbwinkel  $\vartheta_a$  gemessen wurden. Zur Erklärung dieser Parameter soll Abbildung 3.2 dienen.

## 3.2 Elementverteilungsbilder

Mit einem abbildendem Energiefilter im Transmissionselektronenmikroskop ist auch eine ortsaufgelöste chemische Analyse von Präparaten möglich. Dazu werden nur Elektronen zur Abbildung selektiert, die inelastisch in der Probe gestreut wurden und einen bestimmten Energieverlust erlitten haben, der innerhalb eines Energieverlustintervalls  $[E_w - \Delta E/2, E_w + \Delta E/2]$  liegt. Dies geschieht durch Einführung eines Energiespalts in die vom abbildenden Energiefilter erzeugte energiedispersive Ebene im Elektronenmikroskop, der dann das Energieverlustintervall mit der Energiebreite  $\Delta E$  und einem Zentrum beim Energieverlust  $E_w$  definiert. Für die Aufzeichnung solcher Bilder wird eine Slow-Scan-CCD-Kamera verwendet, so dass das Elementver-

teilungsbild, das eine ortsaufgelöste projizierte zweidimensionale Information über die Verteilung eines bestimmten Elements im abgebildeten Probenbereich liefern soll, durch digitale Bildbearbeitung aus den Bilddaten berechnet werden kann. Eine detaillierte Beschreibung der Theorie zur elektronenspektroskopischen Abbildung bzw. der Erstellung von Elementverteilungsbildern findet man in [11, 40, 47, 48]. In diesem Kapitel sollen nur die wesentlichen Punkte erläutert werden.

Nimmt man wie oben beschrieben ein Bild auf, in dem nur Elektronen mit einem Energieverlust innerhalb des Energieverlustintervalls  $[E_w - \Delta E/2, E_w + \Delta E/2]$  beigetragen haben, so ist die Intensität in einem Pixel des Bildes proportional zu der innerhalb des Intervalls  $[E_w - \Delta E/2, E_w + \Delta E/2]$  aufintegrierten Intensität in einem EEL-Spektrum des Probenbereichs, der dem betreffenden Bildpunkt entspricht. Um nun ein Elementverteilungsbild mit der Intensität  $I_S$  zu erhalten, muss man ein Bild des Präparats mit Hilfe inelastisch gestreuter Elektronen aufnehmen, deren Energieverluste innerhalb einer Ionisationskante des gesuchten Elements liegen. Dieses Bild nennen wir hier „elementsensitives Bild“ mit der Intensität  $I_{\text{Bild}}$ . Nun muss der Untergrund  $I_U$ , auf den im vorigen Abschnitt eingegangen wurde, für jeden Bildpunkt berechnet werden und Punkt für Punkt subtrahiert werden

$$I_S = I_{\text{Bild}} - I_U. \quad (3.7)$$

Häufig werden dafür zwei weitere inelastisch gefilterte Bilder aufgenommen, bei denen die Energieverluste der Elektronen im Vorkantenbereich der Ionisationskante des gesuchten Elements liegen. Aus diesen sogenannten Vorkantenbildern wird nach einer Driftkorrektur der beteiligten Bilder der spektrale Verlauf des Untergrundes pixelweise in der Regel durch das in Gleichung (3.1) gegebene Potenzgesetz ermittelt, indem durch Regression die Parameter  $A$  und  $r$  in jedem Pixel bestimmt werden, und anschließend dieser Untergrundverlauf in den Kantenbereich extrapoliert. Nach Abzug des Untergrundes vom elementsensitiven Bild erhält man das Elementverteilungsbild. Die so beschriebene Methode heißt „Drei-Fenster-Methode“. Zur besseren Untergrundkorrektur werden oft auch mehr als zwei Vorkantenbilder aufgezeichnet [40]. Abbildung 3.3 zeigt die oben beschriebene Methode zur elektronenspektroskopischen Abbildung mit Hilfe von drei Vorkantenbildern. Dies stellt also eine „Vier-Fenster-Methode“ dar. In der Abbildung haben die Vorkantenbilder einen

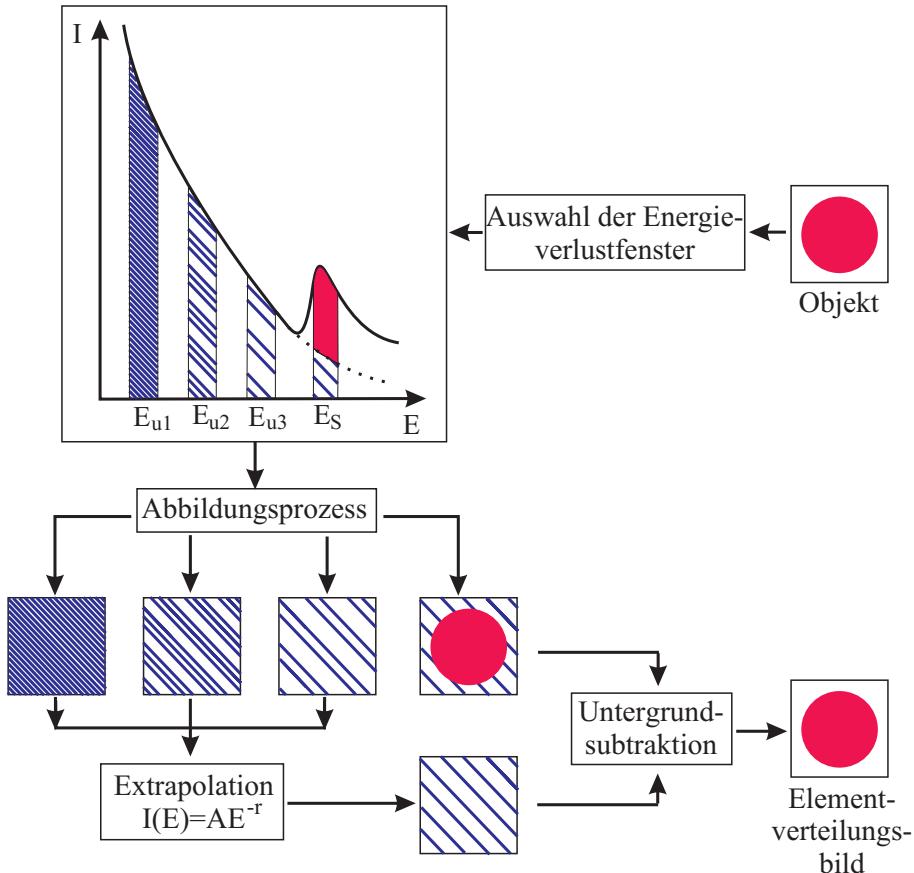


Abbildung 3.3: Schematische Darstellung der Erstellung von Elementverteilungsbildern aus drei Vorkantenbildern und einem elementsensitiven Bild. Die Vorkantenbilder werden bei den Energieverlusten  $E_{u1}$ ,  $E_{u2}$  und  $E_{u3}$  aufgenommen, das elementsensitive Bild bei einem Energieverlust  $E_S$  innerhalb der Ionisationskante des gesuchten Elements.

äquidistanten Abstand. Nach [16, 17] kann die Anordnung der Vorkantenbilder zur Steigerung der Qualität der Elementverteilungsbilder von diesem äquidistanten Abstandsmodell abweichen.

Bei der Regression zur Bestimmung der Parameter  $A$  und  $r$  für den Untergrundverlauf wird die Methode der kleinsten Fehlerquadrate verwendet. Zur genauen Erläuterung der Vorgehensweise und der Hintergründe dieser Untergrundbestimmung und der Signal- und Rauschthematik sei hier auf [40, 42, 54] verwiesen. Eine Bestimmung von absoluten und relativen Elementkonzentrationen ist basierend auf

Gleichungen (3.6) und (3.4) aus Kapitel 3.1 nach dem Untergrundabzug möglich, jedoch kann bei Elementverteilungsbildern anders als bei EEL-Spektren der Einfluss der inelastisch-inelastischen Mehrfachstreuung durch eine Entfaltung der Bilderserie nicht korrigiert werden [40].

Bei der Interpretation von Elementverteilungsbildern ist nicht nur das Bildsignal, sondern auch das Rauschen in den Bildpunkten von Interesse, da bei einem zu hohen Rauschanteil der Nachweis des Elements in einem Bildpunkt eventuell nicht mehr gesichert ist. Das Rauschen hat zwei Ursachen:

- Den Teilchencharakter der Elektronen und die damit verbundene Statistik bei der Detektion von Elektronen; bei der Beschreibung der Varianzen der Elektronenstatistik wird eine Poissonverteilung angenommen;
- Detektorrauschen.

Betrachtet man nun die gesamte detektierte Intensität  $I_{\text{Bild}}$  aus Gleichung (3.7) in einem Energiekanal über der Ionisationsenergie einer charakteristischen Ionisationskante und den ersten Rauschanteil, gilt für die dadurch resultierende Unsicherheit

$$\sigma_{I_{\text{Bild}}} = \sqrt{I_{\text{Bild}}}. \quad (3.8)$$

Dies ist allerdings nicht der einzige Beitrag zum erstgenannten Rauschanteil. Der Extrapolationsfehler bei der Untergrundkorrektur im Kantenbereich muss hinzu gezählt werden und wird hier mit  $\sigma_{\text{ext}}$  bezeichnet.

Der zweite Rauschanteil entsteht durch den Detektionsprozess der Elektronen mit der CCD-Kamera. Dabei wird beim Auftreffen der Elektronen auf einen Szintillator ein Photonensignal erzeugt und die Photonen durch eine Faserplatte auf den CCD-Chip abgebildet [40]. Die dann entstehenden Elektron-Loch-Paare sind ein Maß für die Bestrahlungsintensität. Bei diesem gesamten Detektionsprozess tritt Rauschen auf, das grob in zwei Kategorien eingeteilt werden kann: Konvertierungsrauschen und einen Rauschanteil, der durch die Ansteuerung und das Auslesen des CCD-Chips entsteht. Für eine umfassende Beschreibung des Detektionsprozesses sei hier auf [22] hingewiesen.

Ein Maß für die Sicherheit des Nachweises eines Elements ist das Signal-zu-Rausch-Verhältnis  $SRV$  im Elementverteilungsbild. Dieses wird für jeden Bildpunkt berechnet, indem das Verhältnis des Elementverteilungsbildsignals  $I_S$  zur Unsicherheit  $R$  dieses Signals gebildet wird. Nehmen wir eine Poissonverteilung für die detektierten Intensitäten an und gehen wir von einer statistischen Unabhängigkeit der experimentell detektierten Intensitäten und des berechneten Untergrundes aus, so ergibt sich für das Signal-zu-Rausch-Verhältnis unter Berücksichtigung des ersten Rauschanteils aufgrund der statistischen Eigenschaften der Streuprozesse [40]

$$SRV = \frac{I_S}{R} = \frac{I_S}{\sqrt{\sigma_{I_{\text{Bild}}}^2 + \sigma_{\text{ext}}^2}} = \frac{I_S}{\sqrt{I_S + I_U + \sigma_{\text{ext}}^2}}. \quad (3.9)$$

Wird der zweite Rauschanteil aufgrund des Detektionsrauschen mit einbezogen, so gilt

$$SRV = \sqrt{DQE} \cdot \frac{I_S}{\sqrt{I_S + I_U + \sigma_{\text{ext}}^2}}. \quad (3.10)$$

Die DQE ist die sogenannte „Detection Quantum Efficiency“ und ein Maß für das Detektionsrauschen. Sie ist für ein lineares System als

$$DQE = \frac{SRV_{\text{nach Detektor}}^2}{SRV_{\text{vor Detektor}}^2} \leq 1, \quad (3.11)$$

definiert, wobei  $SRV_{\text{nach Detektor}}$  für das Signal-zu-Rausch-Verhältnis bezüglich des betreffenden Pixels am Detektorausgang steht und  $SRV_{\text{vor Detektor}}$  für das Signal-zu-Rausch-Verhältnis bezüglich des betreffenden Pixels am Detektoreingang [22].

Das  $SRV$  ist ein Maß für die Sicherheit eines Elementnachweises. Als Nachweiskriterium wird häufig das sogenannte Rosekriterium

$$SRV \geq 3 \dots 5 \quad (3.12)$$

eingesetzt [40, 50], das für den lichtoptischen Fall ermittelt wurde. Überträgt man es auf die Elektronenmikroskopie, gilt ein Element in einem Pixel des Elementverteilungsbildes als nachgewiesen, wenn es dort ein  $SRV \geq 5$  aufweist. Hat man Vorkenntnisse über das untersuchte Präparat in der Form, dass das Vorkommen eines Elementes gesichert ist, so gilt in einem Pixel des betreffenden Elementverteilungsbildes dieses Element schon bei einem  $SRV \geq 3$  als nachgewiesen. In dem

Rosekriterium aus Gleichung (3.12) werden die Pixel als unabhängig voneinander angenommen. Jedoch kann in Elementverteilungsbildern bei geeigneter Vergrößerung das charakteristische Signal zu den Probenstellen, die das gesuchte Element enthalten, auf mehrere benachbarte Pixel verteilt sein, so dass die in benachbarten Pixeln gemessenen Signale nicht mehr unabhängig voneinander sind. In [40] wurden unterschiedliche Klassifikationsmethoden in 2-dimensionalen Häufigkeitsverteilungen angewandt, in denen die Intensitäten des Elementverteilungsbildes gegen das Rauschen pro Pixel aufgetragen wurden und in denen sich Pixel des Elementverteilungsbildes und des dazugehörigen *SRV*-Bildes mit ähnlichen Signal-Rausch-Kombinationen zu Clusteranordnungen gruppierten. So wurde gezeigt, dass bei einer derartigen Analyse von Elementverteilungsbildern auch bei einem mittleren *SRV* um 3 in den Signalbereichen eine gute Klassifizierung in diesen Bildern möglich ist. Ein mittleres *SRV* um 3 innerhalb benachbarter Pixel kann als Elementnachweis somit ausreichend sein. Dementsprechend kann nach [40] eine Segmentierung von Elementverteilungsbildern basierend auf dem Rosekriterium aus Gleichung (3.12) aufgrund der dort angenommenen Unabhängigkeit der Pixel zu Fehlklassifizierungen führen.

Elementverteilungsbilder liefern ortsaufgelöste chemische Informationen über die Probe. Im Falle hochauflöster Elementverteilungsbilder sind die Einflüsse des Abbildungsprozesses im Transmissionselektronenmikroskop und die Charakteristik des inelastischen Streuprozesses immer mehr zu erkennen [27]. Sie machen sich z. B. durch Intensitätsverwaschung an Grenzflächen oder Intensitätsverschiebungen bemerkbar. Der Einfluss des Abbildungsprozesses auf die Intensitätsverläufe in Elementverteilungsbildern soll im folgenden Abschnitt erläutert werden.

### 3.3 Lineare Abbildungstheorie und inelastische Übertragungsfunktion

Kann Mehrfachstreuung vernachlässigt werden, so kann die Intensität in inelastisch gefilterten Bildern und Elementverteilungsbildern im Rahmen einer linearen Abbildungstheorie beschrieben werden [26, 31]. Werden innere Schalen zweier Atome durch inelastische Streuung von Elektronen angeregt, so sind diese Elektronen nicht

interferenzfähig [27, 31]. Dies liegt darin begründet, dass die inneren Schalen der zwei verschiedenen Atome in der Regel durch Zustände beschrieben sind, die voneinander getrennt sind und jeweils einem einzelnen Atom zugeordnet werden können. Deshalb sind die gestreuten Elektronen inkohärent zueinander und eine Interferenz der Elektronen ist nicht möglich.

Wenn man die Probe näherungsweise als eine Anordnung freier Atome ansieht, so ergibt sich die Gesamtintensität im Elementverteilungsbild der Probe bezüglich des Elements  $a$  aus der zweidimensionalen inkohärenten Summation von  $I_a(\vec{\rho}_B)$ , wobei  $I_a(\vec{\rho}_B)$  die Intensität in einem Elementverteilungsbild eines Einzelatoms des Elements  $a$  und  $\vec{\rho}_B = (x_B, y_B)$  der Ortsvektor im Bild ist.

Genau wie in Kapitel 2, in dem der elastische Abbildungsprozess besprochen wurde, beziehen wir hier die Ortskoordinate  $\vec{\rho}_B$  auf die Größenverhältnisse im Objekt, wie es im Anschluss an Gleichung (2.8) erläutert wurde. Deshalb kann auch die Objektkoordinate  $\vec{\rho}$  anstelle der Bildkoordinate verwendet werden und die Aussagen werden unabhängig von Vergrößerung und Bildinversion.

Wir gehen nun von einer Probe aus, die Atome des Elements  $a$  an den Positionen  $\vec{\rho}_{i_a} = (x_{i_a}, y_{i_a})$  enthält und deren in Richtung der optischen Achse projizierte Atomverteilung  $\bar{n}_a(\vec{\rho})$  gemäß Gleichung (2.26)

$$\bar{n}_a(\vec{\rho}) = \sum_{i_a} \delta(\vec{\rho} - \vec{\rho}_{i_a}) \quad (3.13)$$

ist. Nimmt man nun ein Elementverteilungsbild auf, in dem nur Elektronen eines Energieverlustes  $[E - \Delta E/2, E + \Delta E/2]$  beitragen, die durch Innenschalenanregung des Elements  $a$  inelastisch gestreut wurden, gilt für die Intensität im Elementverteilungsbild

$$\begin{aligned} I(\vec{\rho}) &= \sum_{i_a} I_a(\vec{\rho} - \vec{\rho}_{i_a}) \\ &= \int \bar{n}_a(\vec{\rho}') \cdot I_a(\vec{\rho} - \vec{\rho}') d^2 \vec{\rho}', \end{aligned} \quad (3.14)$$

es liegt also eine Faltung der Intensität  $I_a(\vec{\rho})$  eines Elementverteilungsbildes eines Einzelatoms mit der projizierten Atomverteilung vor. Für die Fouriertransformation  $\hat{I}(\vec{u})$  der Intensität im Elementverteilungsbild, lässt sich dann schreiben

$$\hat{I}(\vec{u}) = \hat{I}_a(\vec{u}) \cdot \hat{\bar{n}}_a(\vec{u}), \quad (3.15)$$

mit der Fouriertransformation  $\hat{n}_a(\vec{u})$  der projizierten Atomverteilung gemäß Gleichung (2.31) und der Fouriertransformation  $\hat{I}_a(\vec{u})$  des Elementverteilungsbildes des Einzelatoms

$$\hat{I}_a(\vec{u}) = \int I_a(\vec{\rho}) \cdot e^{2\pi i \cdot \vec{u} \cdot \vec{\rho}} d^2 \vec{\rho}. \quad (3.16)$$

Integriert man die Intensität  $I_a(\vec{\rho})$  im Elementverteilungsbild des Einzelatoms über die gesamte Bildebene, so erhält man das gleiche Ergebnis wie bei der Multiplikation des einfallenden Elektronenstroms  $I_0$  mit dem Wirkungsquerschnitt  $\sigma_a(E, \Delta E, \vartheta_a)$  bezüglich des Zentrums  $E$  und der Breite  $\Delta E$  des Energieverlustfensters und des Objektivaperturhalbwinkels  $\vartheta_a$ . Die inelastische Übertragungsfunktion  $ITF(\vec{u})$  ist nun als

$$ITF(\vec{u}) = \frac{\hat{I}_a(\vec{u})}{I_0 \sigma_a(E, \Delta E, \vartheta_a)} \quad (3.17)$$

definiert [27]. Sie ist bei der Raumfrequenz  $u = 0 \text{ nm}^{-1}$  auf eins normiert und beschreibt den Einfluss des Abbildungsprozesses im Mikroskop sowie des inelastischen Streuprozesses auf die Elementverteilungsbildintensität. Eigentlich besteht eine Abhängigkeit der  $ITF$  von dem betrachteten Element. Berger und Kohl [6] zeigten aber, dass für die meisten Elemente im Rahmen der in der energiefilternden Transmissionselektronenmikroskopie in der Praxis verwendeten experimentellen Parameter eine Berechnung der inelastischen Übertragungsfunktion basierend auf der Dipol-Näherung genau genug ist und im wesentlichen gleiche Ergebnisse liefert wie eine Berechnung, die die Elektronenkonfiguration spezieller Atome berücksichtigt. Die Elementabhängigkeit in der inelastischen Übertragungsfunktion  $ITF(\vec{u})$  geht bei der Berechnung basierend auf der Dipol-Näherung nur über den Energieverlust ein. Daher hängt in guter Näherung  $ITF(\vec{u})$  nur von den verwendeten Abbildungsparametern bei der inelastischen Abbildung ab, wie Beschleunigungsspannung, Konvergenz- und Akzeptanzhalbwinkel, ausgewählter Energieverlust  $E$  und gewählte Energiensterbreite  $\Delta E$ . Auch Linsenfehler gehen in die Berechnung ein. Im Falle eines korrigierten Astigmatismus ist  $ITF(\vec{u})$  nur vom Betrag  $|\vec{u}| = u$  der Raumfrequenz abhängig, da freie Atome im Ensemblemittel kugelsymmetrisch sind und die inelastische Übertragungsfunktion dann rotationssymmetrisch sein muss.

Somit erhält man für die Fouriertransformation der Elementverteilungsbildintensität

einer Probe bezüglich des Elements  $a$  [27]

$$\hat{I}(\vec{u}) = C \cdot ITF(u) \cdot \hat{n}_a(\vec{u}) \quad (3.18)$$

mit dem Normierungsfaktor  $C = I_0\sigma_a(E, \Delta E, \vartheta_a)$ . Der Einfluss des Gerätes und des Streuprozesses auf die Intensität im Elementverteilungsbild ist hier also vom Einfluss der Probenstruktur abgekoppelt.

Für das Diffraktogramm eines Elementverteilungsbildes bezüglich des Elements  $a$  ergibt sich dann für amorphe isotrope Proben [30]

$$|\hat{I}(u)|^2 = konst \cdot S_{aa}(u) \cdot |ITF(u)|^2 \quad (3.19)$$

mit dem partiellen Zwei-Teilchen-Strukturfaktor (vgl. Gleichung (2.37)) [27]

$$S_{aa}(\vec{u}) = \frac{1}{Nc_a^2} |\hat{n}_a(\vec{u})|^2 \quad (3.20)$$

und der Konstante  $konst$ , welche die Gesamtzahl  $N$  der im abgebildeten Probenbereich enthaltenen Atome und den Anteil  $c_a$  der Atomsorte  $a$  enthält. Besteht die Probe nur aus einem Element  $a$ , so ist  $c_a = 1$  und der partielle Zwei-Teilchen-Strukturfaktor gleich dem Zwei-Teilchen-Strukturfaktor  $S(u)$  aus Gleichung (2.38). Das Diffraktogramm  $|\hat{I}(u)|^2$  nennen wir im weiteren Verlauf dieser Arbeit inelastisch gefiltertes bzw. inelastisches Diffraktogramm.

### 3.4 Zusätzliche experimentelle Einflüsse

Bisher wurde bei der Beschreibung des inelastischen Abbildungsprozesses in Gleichung (3.19) der Untergrund  $B(u)$  durch das Schrotrauschen und die Modulationstransferfunktion  $MTF_{CCD}(u)$  der CCD-Kamera für das radial gemittelte Diffraktogramm nicht berücksichtigt. Bezieht man sie in die Darstellung des experimentellen inelastisch gefilterten Diffraktogramms mit ein, so erhält man

$$|\hat{I}_{exp}(u)|^2 = B(u) + Y \cdot MTF_{CCD}^2(u) \cdot |\hat{I}_{theo}(u)|^2 \quad (3.21)$$

mit der theoretischen Diffraktogrammintensität gemäß Gleichung (3.19)

$$|\hat{I}_{theo}(u)|^2 = konst \cdot S_{aa}(u) \cdot |ITF(u)|^2. \quad (3.22)$$

$Y$  ist ein Skalierungsfaktor. Trotz gleicher Notation für das Rauschen  $B(u)$  und den Skalierungsfaktor  $Y$  in Gleichung (2.61) aus Kapitel 2.5 und in Gleichung (3.21) sind diese Größen im elastischen Fall natürlich unabhängig von denen im inelastischen Fall. Für die Bestimmung des Rauschens  $B(u)$  und der Übertragungsfunktion  $MTF_{CCD}(u)$  der CCD-Kamera wird auf Kapitel 2.5 verwiesen.

### 3.5 Bestimmung des Zwei-Teilchen-Strukturfaktors aus inelastisch gefilterten Diffraktogrammen

Berechnet man das Diffraktogramm aus einem Elementverteilungsbild einer dünnen amorphen Folie bezüglich des Elements  $a$  und korrigiert das Diffraktogramm bezüglich des Untergrundes  $B(u)$  und der Modulationstransferfunktion  $MTF_{CCD}(u)$  der CCD-Kamera nach dem in Kapitel 2.5 beschriebenen Verfahren, so erhält man nach den Gleichungen (3.21) und (3.19)

$$\left| \hat{I}_{exp}(u) \right|^2 = Y \cdot konst \cdot S_{aa}(u) |ITF(u)|^2. \quad (3.23)$$

Die in den vorigen Abschnitten beschriebenen Faktoren  $Y$  und  $konst$  sind Konstanten, so dass man den partiellen Zwei-Teilchen-Strukturfaktor  $S_{aa}(u)$  bis auf einen Skalierungsfaktor durch die Division des experimentellen Diffraktogramms durch das Betragsquadrat der inelastischen Übertragungsfunktion  $ITF$  bestimmen kann [27, 28, 30]

$$S_{aa}(u) \propto \frac{\left| \hat{I}_{exp}(u) \right|^2}{|ITF(u)|^2}. \quad (3.24)$$

Die relativistische Übertragungsfunktion  $ITF$  wird mit einem Computerprogramm nach [26] berechnet. Besteht die Probe nur aus dem Element  $a$ , so ist es nicht nötig, ein Bild bei Energieverlusten einer charakteristischen Ionisationskante aufzunehmen, danach Vorkantenbilder aufzuzeichnen und eine anschließende Untergrundsubtraktion durchzuführen und so ein Elementverteilungsbild zu berechnen. In einem inelastisch gefilterten Bild bei einem Energieverlustintervall oberhalb der Plasmonenergieverluste und dem dazugehörigen Diffraktogramm hat in diesem Fall die inelastische Streuung ihren Ursprung in der Streuung an der gleichen Atomsorte. So

reicht im Falle der Untersuchung von dünnen Proben, die nur aus einem Element  $a$  bestehen, ein inelastisch gefiltertes Diffraktogramm aus, um aus ihm nach Gleichung (3.24) den partiellen Zwei-Teilchen-Strukturfaktor zu ermitteln, der in diesem Fall gleich dem Zwei-Teilchen-Strukturfaktor  $S(u)$  ist.

Diese Methode wurde zur Bestimmung von Zwei-Teilchen-Strukturfaktoren dünner amorpher Proben aus Kohlenstoff und Silizium in [27, 28, 29] eingesetzt. Sie kann auch benutzt werden, um Proben, die aus mehreren Elementen bestehen, hinsichtlich ihrer partiellen Zwei-Teilchen-Strukturfaktoren zu untersuchen. Darauf soll im folgenden Abschnitt eingegangen werden.

### 3.6 Bestimmung partieller Zwei-Teilchen-Strukturfaktoren mit Hilfe von inelastisch gefilterten Diffraktogrammen und Elementverteilungsbildern

Betrachtet man eine isotrope amorphe Probe, die aus zwei Elementen  $a$  und  $b$  besteht, so ergibt sich mit Hilfe der linearen Abbildungstheorie aus Kapitel 3.3 für das radial gemittelte Diffraktogramm eines bei einem Energieverlustintervall  $[E - \Delta E/2, E + \Delta E/2]$  oberhalb der Plasmonenenergieverluste inelastisch gefilterten Bildes [27]

$$\begin{aligned} |\hat{I}_{E,\Delta E,\vartheta_a}(u)|^2 &= N \cdot |ITF_{E,\Delta E,\vartheta_a}(u)|^2 \cdot \left[ c_a^2 C_a^2(E, \Delta E, \vartheta_a) S_{aa}(u) + \right. \\ &\quad 2 \cdot c_a c_b C_a(E, \Delta E, \vartheta_a) C_b(E, \Delta E, \vartheta_a) \operatorname{Re}\{S_{ab}(u)\} + \\ &\quad \left. c_b^2 C_b^2(E, \Delta E, \vartheta_a) S_{bb}(u) \right] \end{aligned} \quad (3.25)$$

mit den partiellen Zwei-Teilchen-Strukturfaktoren

$$S_{aa}(\vec{u}) = \frac{1}{N c_a^2} \sum_{j_a} \sum_{k_a} e^{2\pi i \cdot \vec{u} \cdot (\vec{\rho}_{k_a} - \vec{\rho}_{j_a})} \quad (3.26)$$

$$= \frac{1}{N c_a^2} \left| \hat{\tilde{n}}_a(\vec{u}) \right|^2, \quad (3.27)$$

$$S_{bb}(\vec{u}) = \frac{1}{N c_b^2} \sum_{j_b} \sum_{k_b} e^{2\pi i \cdot \vec{u} \cdot (\vec{\rho}_{k_b} - \vec{\rho}_{j_b})} \quad (3.28)$$

$$= \frac{1}{N c_b^2} \left| \hat{\tilde{n}}_b(\vec{u}) \right|^2, \quad (3.29)$$

$$S_{ab}(\vec{u}) = \frac{1}{Nc_a c_b} \sum_{j_a} \sum_{k_b} e^{2\pi i \cdot \vec{u} (\vec{\rho}_{k_b} - \vec{\rho}_{j_a})}, \quad (3.30)$$

der Anzahl  $N$  der Atome im abgebildeten Probenbereich und den Anteilen  $c_a$  und  $c_b$  der in der Probe enthaltenen Elemente  $a$  und  $b$ . Der Aperturhalbwinkel ist durch  $\vartheta_a$  gegeben und die Faktoren  $C_a(E, \Delta E, \vartheta_a)$  und  $C_b(E, \Delta E, \vartheta_a)$  (vgl. Definition für den Normierungsfaktor  $C$  im Anschluss an Gleichung (3.18)) sind proportional zur Summe der Wirkungsquerschnitte aller Anregungen der Elemente  $a$  bzw.  $b$ , die in dem Energieverlustintervall  $[E - \Delta E/2, E + \Delta E/2]$  liegen, das zur Bildaufzeichnung verwendet wurde. Die Indizes  $j_a$ ,  $k_a$  und  $j_b$ ,  $k_b$  weisen darauf hin, dass bei der Summation über die Variablen  $j_a$  und  $k_a$  nur Atome der Sorte  $a$  bzw. bei der Summation über die Variablen  $j_b$  und  $k_b$  nur Atome der Sorte  $b$  berücksichtigt werden. Gleichung (3.25) zeigt, dass im Falle kleiner Konzentrationen  $c_b$  der Beitrag der Atomsorte  $b$  in einem inelastisch gefilterten Diffraktogramm bzw. einem inelastisch gefilterten Bild nicht unbedingt vernachlässigt werden kann [27]. Der Einfluss des Elements  $b$  kann in diesem Fall groß sein, wenn für das zur Abbildung verwendete Energieverlustintervall der Faktor  $C_b(E, \Delta E, \vartheta_a)$  viel größer ist als  $C_a(E, \Delta E, \vartheta_a)$  oder wenn für einen bestimmten Raumfrequenzbereich  $S_{bb}(u)$  oder  $S_{ab}(u)$  viel größer sind als  $S_{aa}(u)$ .

Zur Bestimmung der partiellen Zwei-Teilchen-Strukturfaktoren  $S_{aa}(u)$ ,  $S_{bb}(u)$  und  $S_{ab}(u)$ , die z. B. bei der Charakterisierung der Entmischung bei dünnen amorphen Proben von Interesse sind, kann man wieder für dünne amorphen Folien die relativistischen inelastischen Übertragungsfunktionen [26, 27] einsetzen. Finden sich im Elektronenenergieverlustspektrum Ionisationskanten bezüglich der Elemente  $a$  und  $b$ , die energetisch weit genug voneinander entfernt und so positioniert sind, dass man für die Aufnahme von Elementverteilungsbildern bezüglich der Elemente  $a$  und  $b$  nach der in Abschnitt 3.2 vorgestellten Drei- oder Vier-Fenster-Methode oder nach einem anderen Untergrundkorrekturverfahren in angemessener Weise den Untergrund zur Berechnung dieser Bilder korrigieren kann, so ist im Diffraktogramm des Elementverteilungsbildes bezüglich des Elements  $a$   $C_b(E, \Delta E, \vartheta_a)$  in diesem Fall Null und analog im Diffraktogramm des Elementverteilungsbildes bezüglich des Elements  $b$   $C_a(E, \Delta E, \vartheta_a)$  Null. Man erhält also sowohl für das Element  $a$ , als auch für das Element  $b$  Beziehungen nach Gleichung (3.24), woraus

man nach Einsatz der berechneten inelastischen Übertragungsfunktion bezüglich des zur Abbildung benutzten Energieverlustintervalls die partiellen Zwei-Teilchen-Strukturfaktoren  $S_{aa}(u)$  und  $S_{bb}(u)$  erhält.

Mit dem Ausdruck für die projizierte Atomverteilung einer bestimmten Atomsorte nach Gleichung (2.31) kann man den partiellen Zwei-Teilchen-Strukturfaktor  $S_{ab}(\vec{u})$  aus Gleichung (3.30) umschreiben als

$$S_{ab}(\vec{u}) = \frac{1}{N c_a c_b} \hat{n}_b(\vec{u}) \cdot \hat{n}_a^*(\vec{u}), \quad (3.31)$$

wobei \* das komplex Konjugierte einer Größe anzeigt. Nach Gleichung (3.18) erhält man für die Fouriertransformation eines Elementverteilungsbildes bezüglich des Elements  $a$

$$\hat{I}_{E_a, \delta E_a, \vartheta_a}(\vec{u}) \propto ITF_{E_a, \delta E_a, \vartheta_a}(u) \cdot \hat{n}_a(\vec{u}), \quad (3.32)$$

wobei das zur Berechnung des Elementverteilungsbildes nötige elementsensitive Bild mit Hilfe von Elektronen mit Energieverlusten innerhalb des Energieverlustintervalls  $[E_a - \delta E_a/2, E_a + \delta E_a/2]$  aufgezeichnet wurde. Für die Fouriertransformation eines Elementverteilungsbildes bezüglich des Elements  $b$  gilt analog

$$\hat{I}_{E_b, \delta E_b, \vartheta_a}(\vec{u}) \propto ITF_{E_b, \delta E_b, \vartheta_a}(u) \cdot \hat{n}_b(\vec{u}). \quad (3.33)$$

Das für das Elementverteilungsbild benötigte elementsensitive Bild wurde mit Elektronen aufgenommen, deren Energieverluste innerhalb des Energieverlustintervalls  $[E_b - \delta E_b/2, E_b + \delta E_b/2]$  lagen.

Nach der Definition der inelastischen Übertragungsfunktion  $ITF$  nach Gleichung (3.17) ist diese proportional zur Fouriertransformation des Elementverteilungsbildes des Einzelatoms. Da die Fouriertransformation des Elementverteilungsbildes des Einzelatoms aufgrund der Radialsymmetrie des Einzelatomelementverteilungsbildes reell ist, muss auch die  $ITF$  reell sein und nach Gleichung (3.31) - (3.33) gilt

$$S_{ab}(\vec{u}) \propto \frac{\hat{I}_{E_b, \delta E_b, \vartheta_a}(\vec{u}) \cdot \hat{I}_{E_a, \delta E_a, \vartheta_a}^*(\vec{u})}{ITF_{E_b, \delta E_b, \vartheta_a}(u) \cdot ITF_{E_a, \delta E_a, \vartheta_a}(u)}. \quad (3.34)$$

Man kann also gemäß Gleichung (3.34) den partiellen Zwei-Teilchen-Strukturfaktor  $S_{ab}(\vec{u})$  aus dem Produkt der Fouriertransformation des Elementverteilungsbildes

bezüglich des Elements  $b$  und dem komplex Konjugierten der Fouriertransformation des Elementverteilungsbildes bezüglich des Elements  $a$  unter Berücksichtigung der beiden beteiligten inelastischen Übertragungsfunktionen  $ITF_{E_b, \delta E_b, \vartheta_a}(u)$  und  $ITF_{E_a, \delta E_a, \vartheta_a}(u)$  bis auf einen Skalierungsfaktor erhalten. Dabei ist zu beachten, dass nach Durchführung der Multiplikation von  $\hat{I}_{E_b, \delta E_b, \vartheta_a}(\vec{u})$  und  $\hat{I}_{E_a, \delta E_a, \vartheta_a}^*(\vec{u})$  in Gleichung (3.34) zunächst der Untergrund  $B(u)$  nach der im Abschnitt 2.5 bzw. 3.4 erklärten Methode korrigiert werden muss, bevor durch das Produkt der inelastischen Übertragungsfunktion  $ITF_{E_b, \delta E_b, \vartheta_a}(u)$  und  $ITF_{E_a, \delta E_a, \vartheta_a}(u)$  dividiert wird. Dazu wird hier der Betrag des Produkts  $|\hat{I}_{E_b, \delta E_b, \vartheta_a}(\vec{u}) \cdot \hat{I}_{E_a, \delta E_a, \vartheta_a}^*(\vec{u})|$  berechnet, radial gemittelt und in dessen modulationsfreien Raumfrequenzbereich die Intensität des radial gemittelten Diffraktogramms eines Bildes ohne Probe an die Intensität von  $|\hat{I}_{E_b, \delta E_b, \vartheta_a}(u) \cdot \hat{I}_{E_a, \delta E_a, \vartheta_a}^*(u)|$  anskaliert bzw. angeglichen. Anschließend wird dieses Diffraktogramm zum Bild ohne Probe von  $|\hat{I}_{E_b, \delta E_b, \vartheta_a}(u) \cdot \hat{I}_{E_a, \delta E_a, \vartheta_a}^*(u)|$  subtrahiert. Danach kann der Einfluss der Modulationstransferfunktion  $MTF_{CCD}(u)$  der CCD-Kamera nach Abschnitt 2.5 korrigiert werden, indem das untergrundkorrigierte Produkt  $|\hat{I}_{E_b, \delta E_b, \vartheta_a}(u) \cdot \hat{I}_{E_a, \delta E_a, \vartheta_a}^*(u)|$  durch das Betragsquadrat  $|MTF_{CCD}(u)|^2$  dividiert wird. Nach dieser Methode erhält man dann aus Gleichung (3.34) den Betrag  $|S_{ab}(u)|$  des partiellen Zwei-Teilchen-Strukturfaktors  $S_{ab}(u)$ .

Ein Problem bei der Methode zur Bestimmung partieller Zwei-Teilchen-Strukturfaktoren mit Hilfe von Elementverteilungsbildern sind die geringen inelastischen Wirkungsquerschnitte. Um trotzdem in diesen Bildern hohe Intensitäten zu erhalten, die ja nach der Untergrundkorrektur noch vermindert werden, muss bei der Aufnahme der Bilder mit hohen Belichtungszeiten und/oder hohen Strahlströmen gearbeitet werden. Die Belichtungszeit wird allerdings in der Regel durch die CCD-Kamera begrenzt, der Strahlstrom durch die Kathode. Des weiteren darf der Strahlstrom nicht so hoch sein, dass während der Belichtung Strahlenschäden in den amorphen Proben auftreten. Aufgrund dieser Problematik ist im allgemeinen die Intensität in inelastisch gefilterten Aufnahmen geringer als in elastisch gefilterten.

Um die inelastische Übertragungsfunktion  $ITF$  zu bestimmen, die bei der in diesem und vorigem Abschnitt beschriebenen Methode zur Bestimmung von partiellen Zwei-Teilchen-Strukturfaktoren bzw. von Zwei-Teilchen-Strukturfaktoren nötig ist, müssen die Abbildungsparameter bekannt sein, d. h. auch der Konvergenzhalbwinkel.

Dafür wird oft eine Konvergenzhalbwinkeleichung verwendet, in der die Abhängigkeit des Konvergenzhalbwinkels von der Kondensorlinsenanregung bestimmt wird. Im Anhang A sollen neue Methoden vorgestellt werden, mit der diese Eichung am JEOL JEM 3010 mit Hilfe der hier untersuchten dünnen amorphen Filme durchgeführt wurde.

## Kapitel 4

# Experimentelle Bedingungen und Probенcharakterisierung

### 4.1 Präparation der Proben

Die amorphen Proben aus Kohlenstoff, Silizium und Germanium wurden in einer Hochvakuumbedampfungsanlage hergestellt. Dazu wurden zunächst Glasobjektträger mit Aceton und Ethanol gereinigt und dann bei einem Vakuum von ca.  $0,7 - 1,0 \cdot 10^{-5}$  mbar mit dem gewünschten Material bedampft. Die so entstandenen dünnen Filme wurden danach in destilliertem Wasser auf feinmaschige Kupfernetze (300 mesh bzw. 400 mesh) abgeflottet.

Zur Präparation der Kohlenstofffilme wurde beim Bedampfungsprozess durch Kohleelektroden ein hoher Strom geleitet. Eine Darstellung des Verfahrens findet man in [44]. Bei der Herstellung von Germanium- und Siliziumfilmen wurden zunächst die Glasobjektträger mit wasserlöslichem Graham'schen Salz (Natriumpolyphosphat) bedampft, indem man dieses Material in ein aufheizbares Wolframschiffchen legte und danach eine Verdampfung des Materials durch Aufheizung des Schiffchens erreichte. Danach wurden kleine Kristallstücke aus Silizium bzw. Germanium aus einem aufheizbaren Wolframschiffchen verdampft. Als Verdampfungsmaterial wurden Kristalle gewählt, da beim Verdampfungsversuch von Silizium- bzw. Germaniumpulver dieses vor Erreichen der Schmelztemperatur aus dem Wolframschiffchen springt

[27]. Die oben geschilderte Bedämpfung der Glasobjektträger mit wasserlöslichem Graham'schen Salz dient dazu, dass sich der Silizium- bzw. Germaniumfilm beim Abflotten in destilliertem Wasser besser ablöst.

Nach Abflotten der Folien auf Kupfernetzchen mussten diese getrocknet werden. Dafür wurden hier zwei Methoden verwendet. Bei der ersten wurden die beschichteten Kupfernetzchen auf gelochtem Filterpapier gelegt, das vorher mit destilliertem Wasser befeuchtet wurde. Da bei der Verwendung von trockenem Filterpapier durch die Adhäsionskräfte der Probenfilm oft an vielen Stellen reißt oder sogar komplett zerstört wird, wurde hier nasses Filterpapier verwendet und die Netze wurden so auf die Löcher im Filterpapier gelegt, dass ein Großteil der Netzfläche keinen Kontakt zum Filterpapier hatte, um den Schädigungseffekt durch die Adhäsionskräfte weiter zu verringern. Trotz dieser Vorkehrungen konnten oft Risse in den benetzten Probenmaschen aufgrund oben genannter Ursache nicht verhindert werden, wenn die Proben sehr dünn (Schichtdicke ca.  $\leq 5 \text{ nm}$ ) waren, so dass dann nur wenige befilzte Netzmaschen ohne Risse auf der Probe zu finden waren.

Um trotzdem sehr dünne Proben präparieren zu können, die auf dem Kupfernetz noch zahlreiche Maschen mit unbeschädigter Benetzung aufweisen, wurde bei den meisten der in dieser Arbeit analysierten Proben nach folgendem Muster vorgegangen: Das Abflotten des Probenfilms auf Kupfernetze erfolgte mit einer Pinzette, die direkt nach dem Abflotten in eine spezielle Halterung so eingeklemmt wurde, dass die Probe nicht von der Pinzette fallen konnte. Die Halterung mit den so eingeklemmten Proben wurde dann unter eine Lampe gestellt, so dass die Folien dann sehr schnell innerhalb von ca. 5 - 10 Minuten trocknen konnten. Mit dieser Technik konnten sehr dünne Filme auf Kupfernetzen in einem besseren Zustand und in viel kürzerer Zeit präpariert werden als bei der Verwendung von nassem Filterpapier.

## 4.2 Verfahren zur Bestimmung der Schichtdicke

Für die Schichtdickenbestimmung wurden zwei Methoden eingesetzt. Die erste ist die so genannte Log-Ratio- oder  $t/\Lambda$ -Methode und ist bei Egerton [9, 11] detailliert beschrieben. Können die inelastischen Streuprozesse als unabhängige Ereignisse an-

gesehen werden, so gilt für die Schichtdicke  $t$

$$\frac{t}{\Lambda} = \ln \frac{I_t}{I_0}, \quad (4.1)$$

wobei  $I_t$  die gesamte durch die Probe transmittierte Intensität (also die gesamte integrierte Intensität in einem aufgenommenen EEL-Spektrum) und  $I_0$  die Intensität unterhalb des Zero-Loss-Peaks im EEL-Spektrum ist. Die Variable  $\Lambda$  ist hier die mittlere freie Weglänge der Elektronen bezüglich aller inelastischen Streuprozesse. Diese hängt von der Energie der einfallenden Elektronen  $E_0$ , vom benutzten Akzeptanzhalbwinkel  $\vartheta_a$  und vom Probenmaterial ab. Für dünne Proben mit  $t/\Lambda < 0,1$  könnten Oberflächenanregungen von Bedeutung sein und könnten zu überhöhten Werten für die Schichtdicke führen.

Die mittlere freie Weglänge kann mit Hilfe der Formel [9, 11]

$$\Lambda = \frac{106 \cdot F \frac{E_0}{E_m}}{\ln \left( 2 \cdot \vartheta_a \frac{E_0}{E_m} \right)} \quad (4.2)$$

und des relativistischen Faktors

$$F = \frac{1 + \frac{E_0}{1022}}{\left( 1 + \frac{E_0}{511} \right)^2} \quad (4.3)$$

abgeschätzt werden. Hier ist für  $E_0$  die Anfangsenergie der Elektronen in der Einheit keV und der mittlere Energieverlust der Elektronen  $E_m$  in der Einheit eV einzusetzen, wobei tabellierte Werte von  $E_m$  für bestimmte Materialien in [11] zu finden sind oder  $E_m$  durch eine in [9, 11] angegebene Faustformel berechnet werden kann. Der Akzeptanzhalbwinkel  $\vartheta_a$  ist in Gleichung (4.2) in der Einheit mrad einzusetzen. Nach einer derartigen Rechnung erhält man mit Hilfe dieser Gleichung  $\Lambda$  in der Einheit nm, so dass sich dann gemäß Gleichung (4.1) die Schichtdicke ermitteln lässt. Es sei an dieser Stelle darauf hingewiesen, dass Gleichung (4.2) auf der Dipol-Näherung basiert und nur gültig ist für  $\vartheta_a \ll \sqrt{E/E_0}$ .

Man kann basierend auf diesem Verfahren eine zweidimensionale Darstellung der lokalen Schichtdicke des abgebildeten Probenbereichs (eine sogenannte „Thickness-Map“) erhalten, indem man von der untersuchten Probenstelle ein elastisch gefiltertes Bild und ein ungefiltertes Bild mit der CCD-Kamera aufnimmt. Die Intensität

im elastisch gefilterten Bild entspricht für nicht zu große Energiespaltbreiten  $\Delta E$  dabei  $I_0$  aus Gleichung (4.1) und die Intensität im ungefilterten Bild  $I_t$ . So kann man für jeden Pixel gemäß Gleichung (4.1) nach einer eventuell nötigen Driftkorrektur der beiden Bilder die lokale Schichtdicke  $t$  bestimmen und somit eine Thickness-Map der untersuchten Probenstelle erstellen. Diese Thickness-Map-Methode wurde für die hier analysierten Proben eingesetzt. Dabei wurde in den meisten Fällen mit einer Energiespaltbreite  $\Delta E$  von 10 eV bei der elastischen Filterung gearbeitet, in einigen Fällen mit Energiespaltbreiten von 20 - 22 eV.

Die zweite hier angewandte Methode zur Bestimmung der Schichtdicke ist die so genannte Transmissionsmessung [48]. Ist  $I_0$  die Intensität der einfallenden Elektronen und  $I_t(\vartheta_a)$  die durch die Probe und durch die Kontrastaperturblende mit dem Halbwinkel  $\vartheta_a$  transmittierte Intensität, so gilt für nicht zu dicke amorphe Proben

$$\frac{I_t(\vartheta_a)}{I_0} = e^{-t/x_k(\vartheta_a)}. \quad (4.4)$$

Die Variable  $x_k(\vartheta_a)$  steht für die Kontrastdicke. Angaben für eine näherungsweise Ermittlung von  $x_k(\vartheta_a)$  sind in [48] zu finden. Man misst also in der Bildebene die Intensität  $I_t(\vartheta_a)$  und danach die auf die Probe einfallende Intensität, indem man die Probe aus dem Strahlengang entfernt. Nach Gleichung (4.4) kann dann die Schichtdicke bestimmt werden.

Beide hier beschriebenen Methoden zur Bestimmung der Schichtdicke beinhalten Messunsicherheiten von ca.  $\pm 20$  bis 30 % [9, 27].

### 4.3 Experimentelle Bedingungen

Für die Experimente in dieser Arbeit wurden zwei Transmissionselektronenmikroskope verwendet:

- Das JEOL JEM 3010 mit einer Beschleunigungsspannung von 297 kV und einem Gatan Imaging Filter (Post-Column-Filter) als abbildenden Energiefilter;
- Das Zeiss EM 902 mit einer Beschleunigungsspannung von 80 kV und einem Castaing-Henry-Filter.

Die Wellenlängen  $\lambda$  der Elektronen lassen sich unter Berücksichtigung relativistischer Effekte aus der Beziehung für die relativistische Gesamtenergie des Elektrons

$$E_{ges} = \sqrt{p^2 c^2 + m_0^2 c^4} \quad (4.5)$$

mit der Lichtgeschwindigkeit  $c$ , der Ruhemasse  $m_0$  des Elektrons, dem Impuls des Elektrons  $p = \hbar k$  ( $\hbar = 1,0546 \cdot 10^{-34}$  Js) und mit dem Betrag des Wellenvektors  $k = 2\pi/\lambda$  berechnen. Bei einer Beschleunigungsspannung  $U$  und der Elementarladung  $e = 1,6022 \cdot 10^{-19}$  C ergibt sich  $\lambda$

$$\lambda = 2\pi\hbar \frac{c}{e} \left( \sqrt{U(U + 1,022 \cdot 10^6 V)} \right)^{-1}. \quad (4.6)$$

Die Resultate für die Wellenlängen der beiden Elektronenmikroskope sind dann

$$\lambda = 1,983 \text{ pm (JEOL JEM 3010)} \quad (4.7)$$

$$\lambda = 4,180 \text{ pm (Zeiss EM 902).} \quad (4.8)$$

Zur digitalen Bildaufzeichnung wurden bei beiden Transmissionselektronenmikroskopen eine Slow-Scan-CCD-Kamera mit  $1024 \times 1024$  Bildpunkten mit einer Einzelpixelausdehnung von  $24 \mu\text{m} \times 24 \mu\text{m}$  verwendet. Über ein Binning-Verfahren konnten die Pixel auch zusammengefasst werden (zu  $512 \times 512$  Pixeln bei Binning 2 usw.). Die CCD-Kamera am Zeiss EM 902 verfügt über einen YAG-Szintillator. Da das JEOL JEM 3010 eine höhere Beschleunigungsspannung besitzt als das Zeiss EM 902 und deshalb die Photonenausbeute bei Anwendung eines YAG-Szintillators dementsprechend geringer wäre, ist die CCD-Kamera am JEOL JEM 3010 mit einem Phosphorszintillator ausgestattet.

Die Untersuchung der Proben basiert sowohl bei der elastischen Abbildung als auch bei der inelastischen Abbildung auf der Analyse von Diffraktogrammen. Da nach der Korrektur des Astigmatismus bei der Untersuchung von isotropen dünnen amorphen Filmen bei nicht vorhandener oder vernachlässigbarer Drift die Diffraktogrammintensität unabhängig vom Azimuthwinkel sein sollte (siehe Gleichungen (2.38), (2.51) und (3.19)), wurden die Diffraktogrammintensitäten radial gemittelt, um das Verhältnis vom Signal zum Rauschen im Vergleich zu einem einfachen Linescan im Diffraktogramm zu verbessern.

Um eine Übersetzung zwischen Kanal im Diffraktogramm und der dazugehörigen Raumfrequenz zu haben, kann der Zusammenhang [52]

$$\frac{1}{M} \text{ Kanäle} \doteq 40,69 \cdot 10^{-9} \frac{1}{\text{nm}} \quad (4.9)$$

verwendet werden, der sich für Kameras mit oben beschriebenen Eigenschaften ergibt.  $M$  ist dabei die Vergrößerung in der Kameraebene, für die die Kalibrierungsmessungen für beide Mikroskope aus [52] verwendet wurden.

Für eine quantitative Diffraktogrammauswertung muss auch die sphärische Aberration bekannt sein. Für das JEOL JEM 3010 wurde nach [27] und [52] die sphärische Aberrationskonstante  $C_s$  zu 0,61 bis 0,62 mm bestimmt, was mit der Herstellerangabe von 0,6 mm gut übereinstimmt. Dabei beruht das in [27] vorgestellte Verfahren zur Messung von  $C_s$  auf einen Anpassungsprozess astigmatischer Diffraktogramme amorpher Folien, die bezüglich des Rauschens und der Modulationstransferfunktion  $MTF_{CCD}(u)$  nach den in Kapitel 2.5 beschriebenen Methoden korrigiert wurden. Außerdem wird eine Korrektur der Atomstreuamplitude und des Zwei-Teilchen-Strukturfaktors mit Hilfe eines elastisch gefilterten Beugungsdiagramms durchgeführt. Eine Besonderheit dieses Verfahrens ist eine Anpassung des Nullstellenverlaufs im astigmatischen Diffraktogramm.

In [52] wurde die sphärische Aberrationskonstante  $C_s$  des JEOL JEM 3010 über eine Untersuchung dünner amorpher Folien anhand von Nullstellen und Maxima in ihren Diffraktogrammen nach der Methode von Krivanek [32, 33] bestimmt. Es sei darauf hingewiesen, dass sowohl die Messmethode von [27] als auch von [32, 33] zur Messung von  $C_s$  auf der WPO-Näherung beruhen.

Auch die sphärische Aberrationskonstante  $C_s$  des Zeiss EM 902 wurde in [52] nach der Methode von [32, 33] gemessen. Jedoch war die Messunsicherheit aus den in [52] diskutierten Gründen relativ groß, so dass in dieser Arbeit für die Analyse der Diffraktogramme der am Zeiss EM 902 aufgenommenen Bilder die Herstellerangabe von  $C_s = 2,2$  mm eingesetzt wurde.

## Kapitel 5

# Resultate für die Phasen komplexer Atomstreuamplituden

### 5.1 Ergebnisse für Kohlenstoff

Für die in diesem Abschnitt vorgestellten Ergebnisse wurden dünne amorphe Kohlenstofffolien untersucht, die nach der in Abschnitt 4.1 beschrieben Methode präpariert wurden. Abbildung 5.1 a) zeigt eine elastisch gefilterte Aufnahme eines solchen Kohlenstofffilms bei einer Vergrößerung von 150000 und Abbildung 5.1 b) das dazu gehörige Diffraktogramm. Die Aufnahme erfolgte am JEOL JEM 3010 bei einer Beschleunigungsspannung von 297 kV, einer Defokussierung  $\Delta f$  von -980 nm und einer Energiespaltbreite von 10 eV.

In Abbildung 5.2 a - c) sind die experimentellen Ergebnisse für die Phasen  $\eta(u)$  komplexer Atomstreuamplituden bei einer Beschleunigungsspannung von 297 kV für Kohlenstofffilme leicht unterschiedlicher Schichtdicken dargestellt, die sich bei der Untersuchung von Kontrast-Transfer-Charakteristiken nach dem in Kapitel 2.6 beschriebenen Verfahren ergaben. Die Aufnahmen zu den in Abbildung 5.2 dargestellten Ergebnissen stammen von unterschiedlichen Probenstellen derselben Probe. Die gemessenen Schichtdicken  $t$  an den unterschiedlichen Probenstellen betrugen 16, 19 bzw. 20 nm. Durch die Messpunkte für  $\eta(u)$ , die ab einer Raumfrequenz von ca.  $0,4 \text{ nm}^{-1}$  und insbesondere in Abbildung 5.2 b) relativ stark streuen, wurden

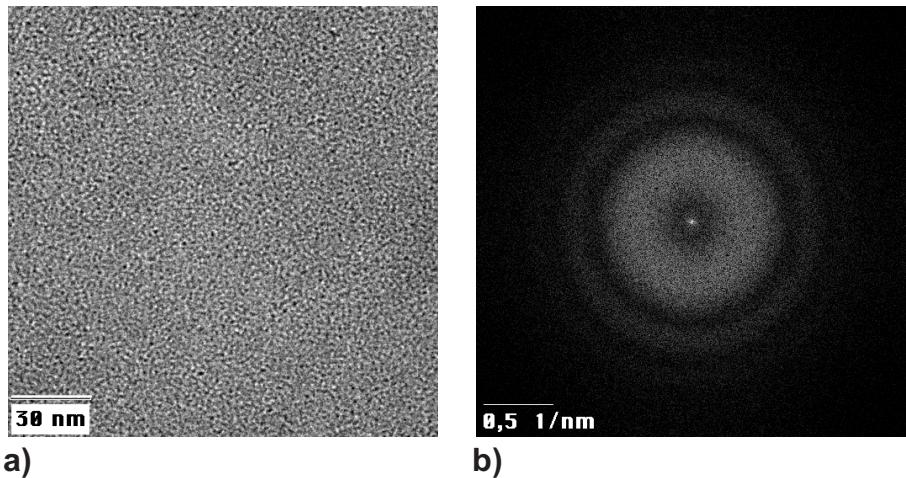


Abbildung 5.1: a) Elastisch gefilterte Aufnahme einer Kohlenstofffolie bei einem Defokus  $\Delta f$  von -980 nm, einer Energiespaltbreite  $\Delta E$  von 10 eV, einer Vergrößerung von 150000 und einer Beschleunigungsspannung von 297 kV; b) Diffraktogramm zu a).

geglättete Kurven nach dem Verfahren des gleitenden Durchschnitts gelegt. In einer Gesamtübersicht sind die geglätteten Verläufe von  $\eta(u)$  der drei Probenstellen in Abbildung 5.2 d) und e) zu sehen, wobei in Abbildung 5.2 e) doppelt geglättete Verläufe nach der Methode des gleitenden Durchschnitts dargestellt sind.

Alle drei Probenstellen weisen eine mit steigender Raumfrequenz fallende Phase  $\eta(u)$  auf, die von Oszillationen überlagert ist und die im Raumfrequenzbereich  $0 \text{ nm}^{-1} < u < 0,65 \text{ nm}^{-1}$  drei Maxima aufweist. Diese sind hier mit den Buchstaben „A“, „B“ und „C“ gekennzeichnet und liegen für alle drei Probenstellen in den gleichen Raumfrequenzbereichen. Die Maxima der experimentell bestimmten Phasen liegen zwischen 0,04 und 0,05 rad und der oszillierenden Struktur der Phase  $\eta(u)$  lässt sich eine Periodizität von ca.  $0,17$  bis  $0,2 \text{ nm}^{-1}$  zuordnen. Letztere ist also zu klein, als dass die Oszillationen ihren Ursprung in atomaren Effekten haben könnten.

Über das erste Maximum bei ca.  $0,15 \text{ nm}^{-1}$  hinaus bis zu einer Raumfrequenz von ca.  $0,28 \text{ nm}^{-1}$ , bei der das erste Minimum der gemessenen Phase  $\eta(u)$  zu finden ist, stimmen alle drei Ergebnisse in Abbildung 5.2 d) sehr gut überein. In dem sich anschließenden Raumfrequenzbereich bis zum nächsten Minimum bei einer Raumfrequenz  $u$  von ca.  $0,45 \text{ nm}^{-1}$  stimmen die gemessenen Phasen zu den Folien mit den

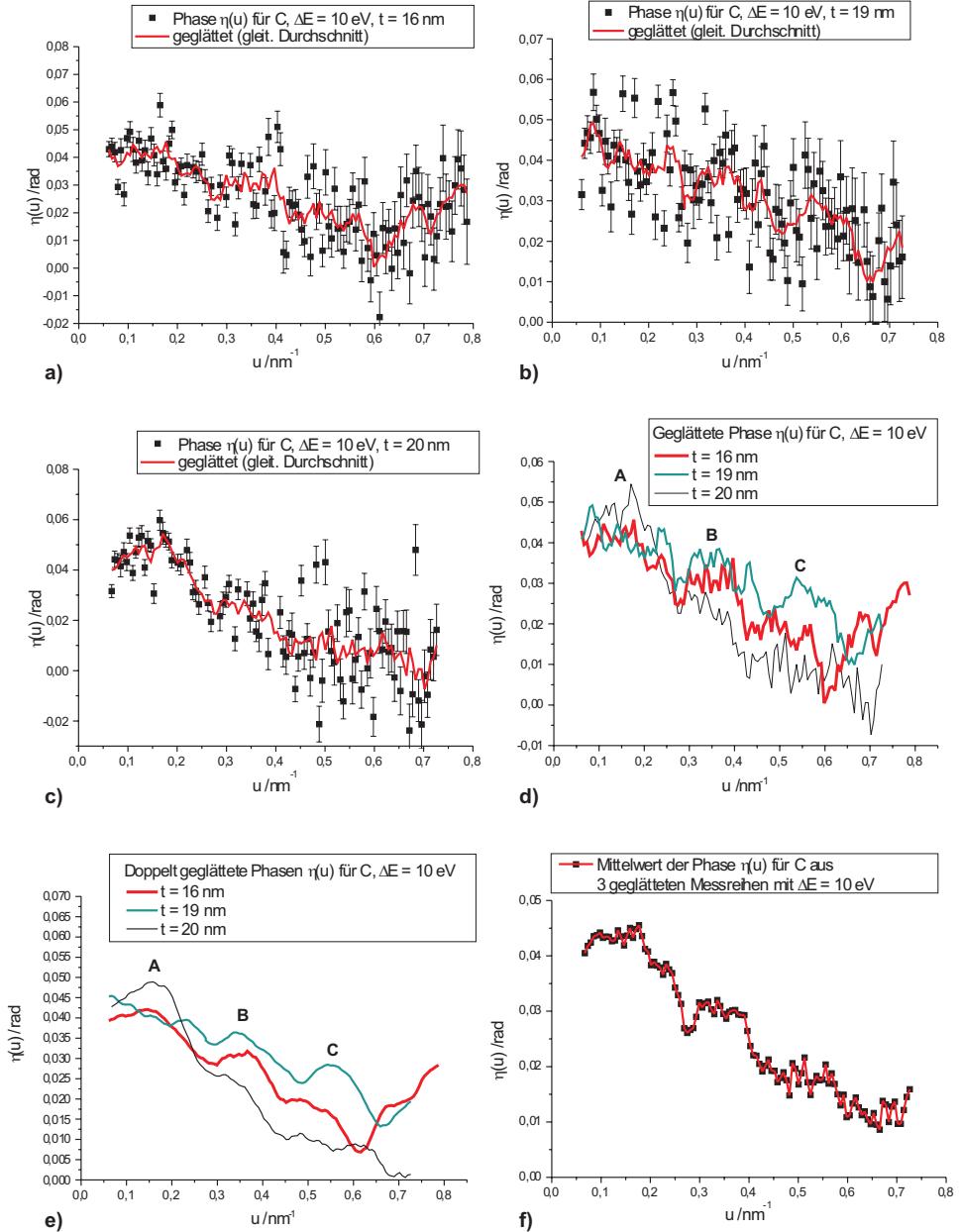


Abbildung 5.2: Experimentell bestimmte Phasen  $\eta(u)$  für Kohlenstofffolien der Schichtdicke  $t$  aus der Analyse von elastisch gefilterten Kontrast-Transfer-Charakteristiken (Energiespalbrente  $\Delta E = 10$  eV) bei 297 kV: a)  $t = 16$  nm; b)  $t = 19$  nm; c)  $t = 20$  nm; d) Geglättete experimentelle Phasenverläufe  $\eta(u)$  aus a - c); e) Übersicht der doppelt geglätteten experimentellen Phasenverläufe  $\eta(u)$ ; f) Mittelwertkurve für die Phase  $\eta(u)$  aus den drei geglätteten Einzelkurven aus d).

Schichtdicken 16 nm (rot) und 19 nm (grün) ebenfalls sehr gut überein, während der Abfall von  $\eta(u)$  mit steigender Raumfrequenz  $u$  für den 20 nm dicken Kohlenstofffilm (schwarz) stärker ist, aber auch dieser Phasenverlauf im gleichen Raumfrequenzbereich ein lokales Maximum aufweist. In dem folgenden Raumfrequenzbereich bis  $0,65 \text{ nm}^{-1}$  zeigen alle drei gemessenen Phasen ein weiteres lokales Maximum „C“ bei ca.  $0,55 \text{ nm}^{-1}$ . Dieses ist allerdings in dem Ergebnis für die Kohlenstofffolie mit der Schichtdicke von 20 nm schwächer ausgeprägt, wie man besonders deutlich in Abbildung 5.2 e) sehen kann.

In den Ergebnissen für  $\eta(u)$  ist in Abbildung 5.2 a - c) eine mit der Raumfrequenz wachsende Breite der Fehlerbalken zu beobachten, die ab ca.  $0,5 \text{ nm}^{-1}$  relativ groß wird. Dies liegt daran, dass die Empfindlichkeit der Diffraktogrammintensität bezüglich  $\eta(u)$  in den Gleichungen (2.51) - (2.53) mit steigender Raumfrequenz wegen der dann starken Dominanz des  $C_S$ - und des  $\Delta f$ -Terms abnimmt. Trotz der Unterschiede in den Höhen der Phasenverläufe bei den höheren Raumfrequenzen ab ca.  $0,5 \text{ nm}^{-1}$  widersprechen sich also die Phasenergebnisse aufgrund dieser großen Messunsicherheiten nicht. Insgesamt stimmen die gemessenen Phasenverläufe für Kohlenstoff in ihrem prinzipiellen Verlauf überein, sie unterscheiden sich nur in einer unterschiedlichen Stärke des Abfalls mit steigender Raumfrequenz  $u$ . Da die Ergebnisse nur von unterschiedlichen Probenstellen derselben Probe stammen und die Abbildungsparameter gleich gewählt wurden, kann dies auf lokale Unterschiede der Probe zurückzuführen sein, wie z. B. der Schichtdicke. Die Schichtdicke variiert in den drei Fällen aber nur sehr leicht. Außerdem ist kein systematischer Zusammenhang zwischen Stärke des Phasenabfalls und Schichtdicke in den Ergebnissen zu erkennen, da die experimentelle Phase zu der Folie mit  $t = 16 \text{ nm}$  zwar einen schwächeren Abfall zeigt, als die Phase zur Kohlenstofffolie mit  $t = 20 \text{ nm}$ , aber einen stärkeren als die Phase zur Folie mit  $t = 19 \text{ nm}$ . So könnte ein probenstellenabhängiger Dickegradient für den mit steigender Raumfrequenz unterschiedlich starken Phasenabfall verantwortlich sein. Bezuglich der Ursachendiskussion sei hier auf den Abschnitt 5.4 verwiesen.

Aufgrund der erwähnten Streuung der Messwerte für  $\eta(u)$  in Abbildung 5.2 a - c) und aufgrund der Tatsache, dass die gemessenen Schichtdicken von 16 nm, 19 nm und 20 nm für die Probenstellen desselben Präparats im Rahmen der in Kapitel

4.2 genannten Messunsicherheit von 20 % übereinstimmen und wegen der obigen Beobachtung, dass die Verläufe von  $\eta(u)$  ähnlich sind, wurde die Mittelwertkurve für  $\eta(u)$  aus den drei geglätteten Einzelergebnissen aus Abbildung 5.2 d) bestimmt. Das Ergebnis ist in Abbildung 5.2 f) zu sehen. Die drei Maxima „A“ - „C“ aus den anderen Teilabbildungen sind nun noch deutlicher zu erkennen und der Phasenverlauf ist wesentlich glatter als die geglätteten Phasen aus den Einzelmessungen in Abbildung 5.2 d). In dem Raumfrequenzbereich von  $0,09 \text{ nm}^{-1} < u < 0,69 \text{ nm}^{-1}$  fällt die gemessene Phase in Abbildung 5.2 f) von ca. 0,045 rad bis auf ca. 0,010 rad ab.

Abbildung 5.3 a - b) zeigt die Ergebnisse für die Phase  $\eta(u)$  für Kohlenstoff aus der Analyse von Kontrast-Transfer-Charakteristiken bei der elastisch gefilterten Untersuchung von zwei Kohlenstofffolien unterschiedlicher Dicke bei einer Beschleunigungsspannung von 80 kV am Zeiss EM 902. In Abbildung 5.3 c) sind die beiden Phasenverläufe nach einer Glättung nach der Methode des gleitenden Durchschnitts zum direkten Vergleich in einer Einzelgraphik dargestellt. Die Energiespaltbreiten bei der elastischen Filterung der Aufnahmen betrug 21 eV in Abbildung 5.3 a) und 22 eV in Abbildung 5.3 b). Während bei der Phase  $\eta(u)$  für eine 18 nm dicke Folie (Abbildung 5.3 a) zunächst ein langsamer Abfall von ca. 0,09 rad bis zu 0,04 rad im Raumfrequenzintervall  $0 \text{ nm}^{-1} < u < 0,64 \text{ nm}^{-1}$  und danach ein steiler Abfall bis ca. -0,09 rad gemessen wurde, weist die gemessene Phase für die 22 nm dicke Folie (Abbildung 5.3 b) zwei leichte verrauschte lokale Maxima der Höhe von ca. 0,09 - 0,10 rad bei einer Raumfrequenz von ca.  $0,15 \text{ nm}^{-1}$  und in einem Raumfrequenzbereich von  $0,4 - 0,6 \text{ nm}^{-1}$  auf. Ab einer Raumfrequenz von ca.  $0,6 \text{ nm}^{-1}$  beginnt auch bei dieser Folie ein deutlich erkennbarer Abfall der Phase mit steigender Raumfrequenz, in dessen Verlauf zwei lokale Maxima bei ca.  $0,75 \text{ nm}^{-1}$  und  $0,82 \text{ nm}^{-1}$  liegen. Die beiden gemessenen Phasenverläufe stimmen in dem Raumfrequenzbereich  $0,05 \text{ nm}^{-1} < u < 0,33 \text{ nm}^{-1}$  sehr gut überein, danach unterscheiden sie sich deutlich.

In beiden Ergebnissen für  $\eta(u)$  ist analog zu Abbildung 5.2 a - c) eine mit der Raumfrequenz wachsende Breite der Fehlerbalken zu erkennen, die ab ca.  $0,5 \text{ nm}^{-1}$  relativ groß wird. Dies ist darauf zurückzuführen, dass die Empfindlichkeit der Diffraktogrammintensität bezüglich  $\eta(u)$  in den Gleichungen (2.51) - (2.53) mit steigender

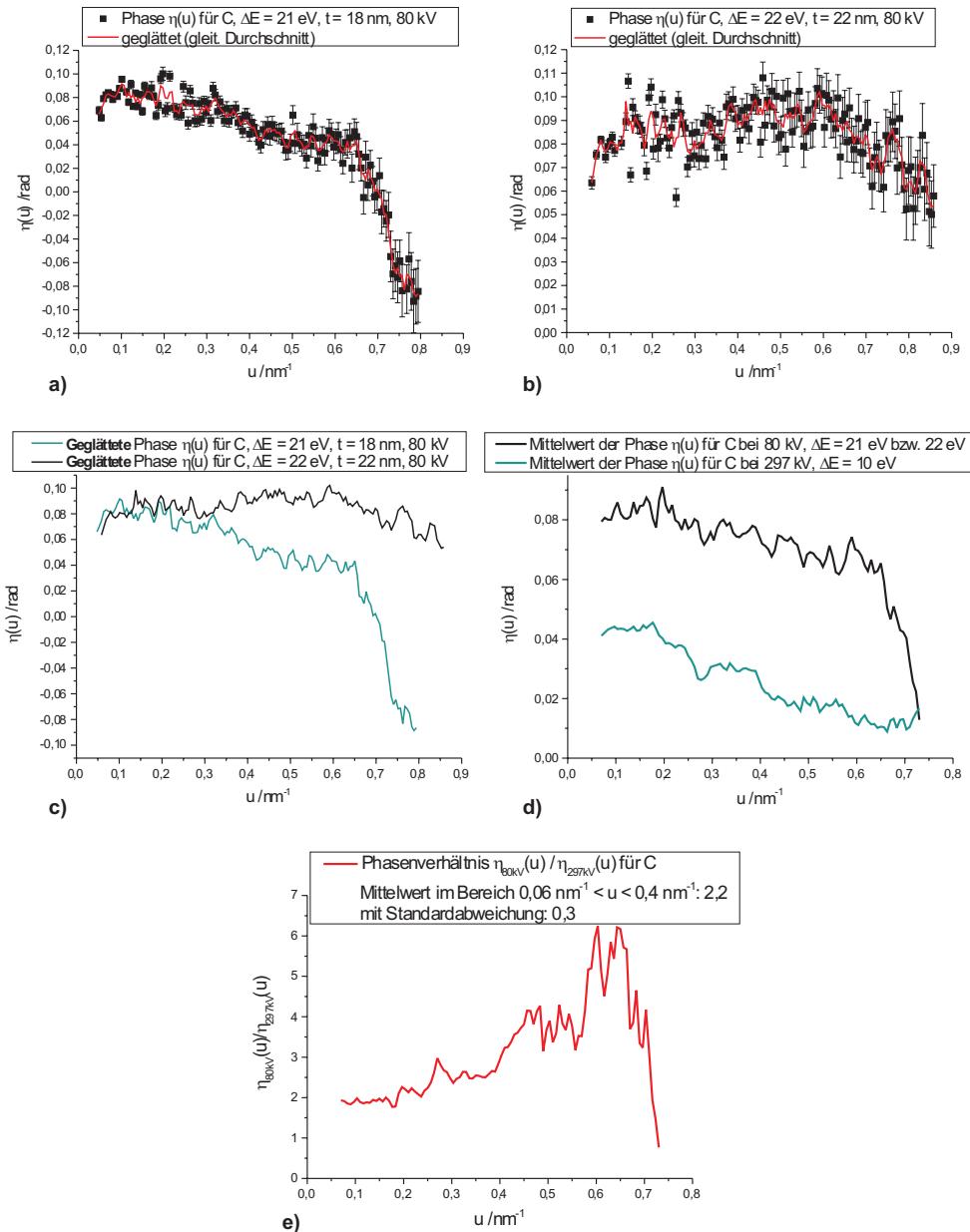


Abbildung 5.3: a - c) Experimentell ermittelte Phasen  $\eta(u)$  für Kohlenstoffproben der Schichtdicke  $t$  bei 80 kV und bei elastischer Filterung (Energiespaltbreite  $\Delta E = 21$  eV bzw. 22 eV); d) Mittelwertkurven der geglätteten experimentellen Phasen  $\eta(u)$  für Kohlenstoff für 297 kV und 80 kV im Vergleich; e) Phasenverhältnis  $\eta_{80\text{kV}}(u)/\eta_{297\text{kV}}(u)$  aus den in d) dargestellten Resultaten.

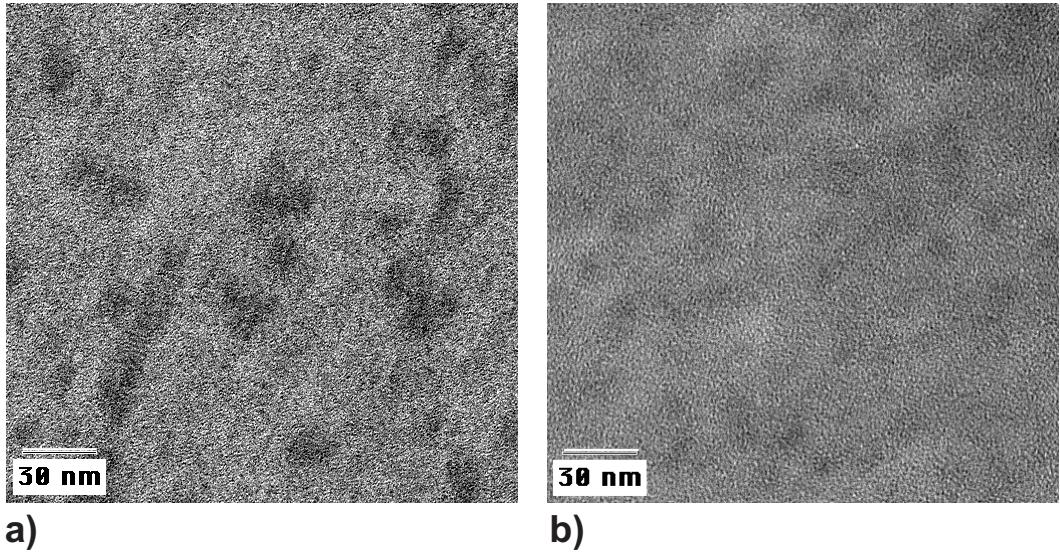


Abbildung 5.4: Thickness-Maps von Kohlenstoffproben bei einer Beschleunigungsspannung von 80 kV als Maß für die zweidimensionale ortsabhängige Schichtdicke in Einheiten der mittleren freien Weglänge für a) dieselbe Probenstelle wie in Abbildung 5.3 a), b) dieselbe Probenstelle wie in Abbildung 5.3 b). Die mittlere freie Weglänge  $\Lambda$  nach Gleichung 4.2 betrug in beiden Fällen 83,4 nm. Die Kontrastgrenzen wurden in Einheiten der mittleren freien Weglänge  $\Lambda$  so gewählt, dass der Dynamikumfang in beiden Fällen analog war, d. h. bei einer mittleren Intensität von  $\bar{I}_{t/\Lambda}$  in der jeweiligen Thickness-Map war die untere Kontrastgrenze  $\bar{I}_{t/\Lambda} - 0,1$  und die obere Kontrastgrenze  $\bar{I}_{t/\Lambda} + 0,1$ .

Raumfrequenz aufgrund der dann starken Dominanz des  $C_S$ - und des  $\Delta f$ -Terms abnimmt.

Zu den Phasenergebnissen aus Abbildung 5.3 a - c) sind in Abbildung 5.4 die zugehörigen Thickness-Maps dargestellt, die nach dem in Kapitel 4.2 beschriebenen Verfahren erstellt wurden und deren Kontrastgrenzen in der Darstellung so gewählt wurden, dass beide einen analogen Dynamikumfang haben (siehe Erklärung zu Abbildung 5.4). Die beiden Thickness-Maps unterscheiden sich deutlich voneinander. In der Map a) sind wesentlich dunklere Flecken mit einer Ausdehnung von ca. 10 nm zu erkennen als in der Thickness-Map b). Je dunkler ein Bereich einer Thickness-Map ist, desto dünner ist die Probe dort oder die Dichte ist dort kleiner. Das heißt, dass die Probe aus Abbildung 5.4 a) deutlich größere Schwankungen in der Proben-

dicke oder Dichte besitzt als die Probe aus Abbildung 5.4 b). Die Auswertung der Thickness-Maps ergab die mittleren Schichtdicken  $t_1 = 18 \text{ nm} \pm 4 \text{ nm}$  für Abbildung 5.4 a) und  $t_2 = 22 \text{ nm} \pm 2 \text{ nm}$  für Abbildung 5.4 b). Die Fehlerangaben haben ihren Ursprung in der Standardabweichung bei der Mittelung über die Pixel der jeweiligen Thickness-Map. Deshalb ist zu diesen Angaben noch die in Kapitel 4.2 erwähnte Messunsicherheit von 20 - 30 % hinzuzurechnen.

In Abbildung 5.3 d - e) werden die experimentellen Phasenergebnisse für Kohlenstoff für beide im Rahmen dieser Arbeit eingesetzten Beschleunigungsspannungen von 297 kV und 80 kV verglichen, für die sich die Wellenlängen nach Gleichung (4.6) zu  $\lambda_{297\text{kV}} = 1,983 \text{ pm}$  und  $\lambda_{80\text{kV}} = 4,180 \text{ pm}$  berechnen lassen. Das Verhältnis  $\lambda_{80\text{kV}}/\lambda_{297\text{kV}}$  liegt demnach bei 2,1. Für den Vergleich der Phasenergebnisse bei diesen Wellenlängen bzw. Beschleunigungsspannungen wurde in Abbildung 5.3 d) die Mittelwertkurve der geglätteten Phasen bei einer Beschleunigungsspannung von 80 kV aus Abbildung 5.3 c) berechnet. Außerdem ist dort die in Abbildung 5.2 f) dargestellte Mittelwertkurve aus den drei geglätteten Phasenergebnissen für 297 kV eingezeichnet. Für Abbildung 5.3 e) wurde die Division dieser beiden Mittelwertkurven für  $\eta(u)$  berechnet. Dieses Phasenverhältnis weist in dem Raumfrequenzbereich  $0 \text{ nm}^{-1} < u < 0,4 \text{ nm}^{-1}$  einen einigermaßen konstanten Verlauf auf, danach kann man starke Schwankungen beobachten. Eine Mittelung des Phasenverhältnisses in dem Raumfrequenzbereich  $0,06 \text{ nm}^{-1} < u < 0,4 \text{ nm}^{-1}$  liefert einen Wert von  $2,2 \pm 0,3$ .

Um diese experimentellen Phasenergebnisse für beide Beschleunigungsspannungen mit theoretischen Ergebnissen zu vergleichen, wurden mit einem Programm von L. Reimers Hypertext-CD [49], das die Berechnung komplexer elastischer Streuamplituden in Abhängigkeit vom Streuwinkel nach der WKB-Methode (Wentzel, Kramer, Brillouin) unter Verwendung eines Muffin-Tin-Modells für beliebige Beschleunigungsspannungen ermöglicht, die Phasen dieser elastischen Streuamplituden in Abhängigkeit vom Steuwinkel für Kohlenstoff berechnet. Nach Umrechnung der Streuwinkel in Raumfrequenzen wurden diese Ergebnisse in Abbildung 5.5 a) in Abhängigkeit von der Raumfrequenz  $u$  aufgetragen. Um diese theoretisch berechneten Phasen von den experimentellen zu unterscheiden, werden die theoretischen Phasen im Verlauf dieser Arbeit mit  $\eta_{\text{WKB}}(u)$  bezeichnet. Abbildung 5.5 b) zeigt das sich

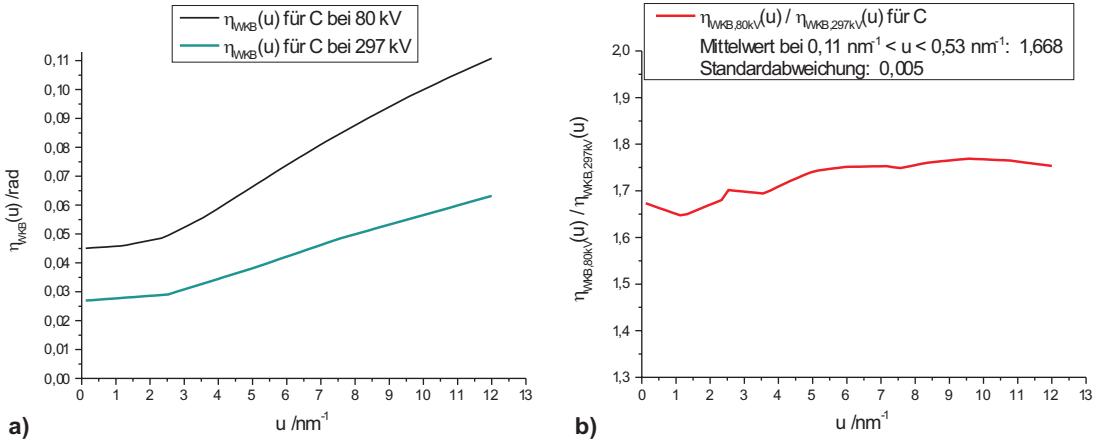


Abbildung 5.5: a) Mit dem Programm aus [49] mit der WKB-Methode unter Anwendung eines Muffin-Tin-Modells berechnete Phasen  $\eta_{WKB}(u)$  für Kohlenstoff bei Beschleunigungsspannungen von 297 kV und 80 kV; b) Verhältnis  $\eta_{WKB,80kV}(u) / \eta_{WKB,297kV}(u)$  der in a) dargestellten Resultate.

aus den theoretischen Berechnungen ergebende Phasenverhältnis für die beiden Beschleunigungsspannungen.

In Abbildung 5.5 a) ist zu erkennen, dass die theoretischen Phasenverläufe zunächst sehr langsam und ab einer Raumfrequenz von ca.  $2,5 \text{ nm}^{-1}$  stark mit wachsender Raumfrequenz ansteigen. In dem durch unsere Messungen abgedeckten Bereich kleiner Raumfrequenzen  $0 \text{ nm}^{-1} < u < 1,0 \text{ nm}^{-1}$  müsste nach diesen Rechnungen der Phasenverlauf näherungsweise konstant sein oder eine schwache Steigung aufweisen, was unseren Messergebnissen widerspricht. Das berechnete Phasenverhältnis in Abbildung 5.5 b) zeigt eine leichte Abhängigkeit von der Raumfrequenz, bewegt sich aber im Raumfrequenzbereich  $0 \text{ nm}^{-1} < u < 12,0 \text{ nm}^{-1}$  zwischen ca. 1,64 und 1,77 und variiert somit nicht besonders stark. Eine Mittelung dieses theoretischen Phasenverhältnisses im Raumfrequenzbereich  $0,11 \text{ nm}^{-1} < u < 0,53 \text{ nm}^{-1}$  ergibt einen Wert von ca. 1,668 mit einer Standardabweichung von 0,005. Somit liegt das experimentelle Phasenverhältnis aus Abbildung 5.3 e) von  $2,2 \pm 0,3$  auch im Rahmen der Messunsicherheiten über den theoretischen Wert. Für eine genauere Diskussion des Vergleichs zwischen den experimentellen und theoretischen Ergebnissen wird hier

auf Kapitel 5.4 verwiesen, da für diese Diskussion vorher die Streuphasenergebnisse für Silizium und Germanium vorgestellt werden sollen.

## 5.2 Ergebnisse für Silizium

Für diesen Abschnitt wurden dünne amorphe Filme aus Silizium durch Aufdampfprozesse gemäß Kapitel 4.1 hergestellt und elastisch gefilterte Fokusreihen aufgenommen, aus denen die Kontrast-Transfer-Charakteristiken berechnet und ausgewertet wurden. Abbildung 5.6 a) zeigt eine elastisch gefilterte Aufnahme eines Siliziumfilms bei einer Energiespaltbreite  $\Delta E = 10 \text{ eV}$ , einer Defokussierung  $\Delta f$  von -960 nm, einer Vergrößerung von ca. 150000 und einer Beschleunigungsspannung von 297 kV. In Abbildung 5.6 b) ist das dazu gehörige Diffraktogramm zu sehen.

Abbildung 5.7 zeigt die experimentellen Ergebnisse für die Phasen  $\eta(u)$  komplexer Atomstreuamplituden, die aus der Auswertung nach Kapitel 2.6 resultieren, für Siliziumfolien unterschiedlicher Schichtdicken. Außer in Abbildung 5.7 a) für eine 8 nm dicke Folie und bis zu einem gewissen Grad in Abbildung 5.7 b) für eine 10 nm dicke Folie sind genau wie bei den Ergebnissen für Kohlenstoff starke Schwan-

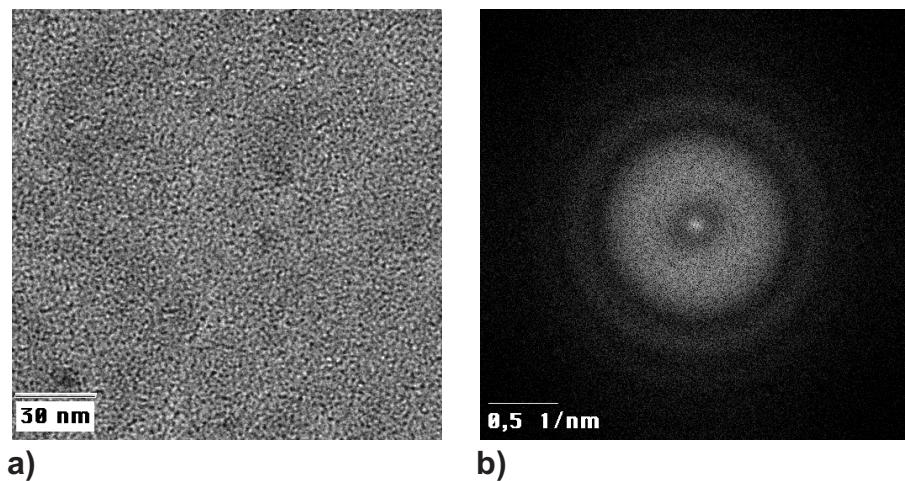


Abbildung 5.6: a) Elastisch gefilterte Aufnahme einer Siliziumfolie bei einem Defokus  $\Delta f$  von -960 nm, einer Energiespaltbreite  $\Delta E$  von 10 eV, einer Vergrößerung von 150000 und einer Beschleunigungsspannung von 297 kV; b) Diffraktogramm zu a).

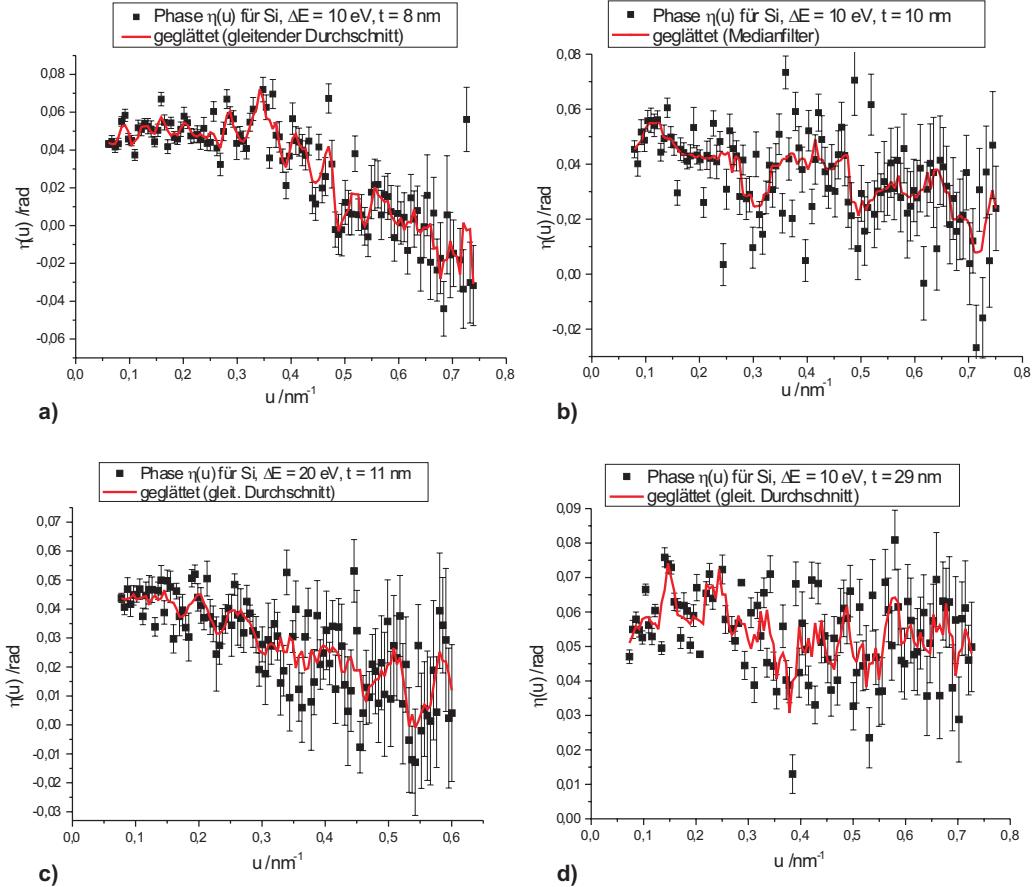


Abbildung 5.7: Experimentell bestimmte Phasen  $\eta(u)$  für Silizium aus der Analyse von elastisch gefilterten Kontrast-Transfer-Charakteristiken bei 297 kV: a) bei einer Schichtdicke  $t = 8 \text{ nm}$ ; b) bei  $t = 10 \text{ nm}$ ; c) bei  $t = 11 \text{ nm}$ ; d) bei  $t = 29 \text{ nm}$ . Die Energiespaltpbreite  $\Delta E$  bei der elastischen Filterung betrug in a), b), d) 10 eV, in c) 20 eV. In a), c), d) wurde durch die Messpunkte eine nach dem gleitenden Durchschnitt berechnete Glättungskurve gelegt, während in b) die Glättungskurve mit dem Medianfilter berechnet wurde.

kungen in  $\eta(u)$  ab einer Raumfrequenz von ca.  $0.4 \text{ nm}^{-1}$  zu beobachten. Deshalb wurde durch die Messpunkte eine Glättungskurve gelegt. Die Fehlerbalken für  $\eta(u)$  werden ab einer Raumfrequenz von ca.  $0.4 \text{ nm}^{-1}$  relativ groß, was wieder auf den mit der Raumfrequenz ansteigenden Einfluss des  $C_S$ - und des  $\Delta f$ -Terms in den Gleichungen (2.51) - (2.53) und der damit verbundenen schwächer werdenden Emp-

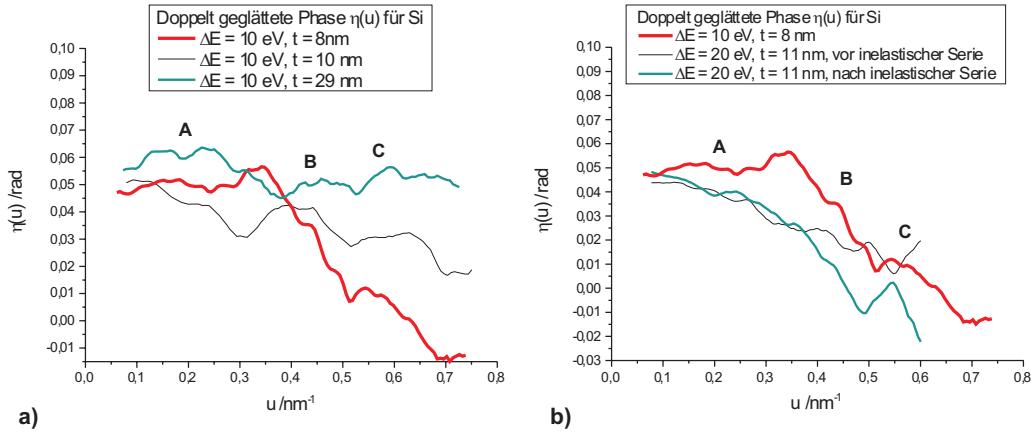


Abbildung 5.8: Experimentell bestimmte doppelt geglättete Phasen  $\eta(u)$  für Silizium aus der Auswertung von elastisch gefilterten Kontrast-Transfer-Charakteristiken bei 297 kV: a) doppelt geglättete  $\eta(u)$  für Folien der Schichtdicken 8, 10 und 29 nm bei einer verwendeten Energiespaltbreite  $\Delta E = 10 \text{ eV}$ ; b) doppelt geglättete  $\eta(u)$  für Folien der Schichtdicken 8 und 11 nm bei einer verwendeten Energiespaltbreite  $\Delta E = 10$  bzw.  $20 \text{ eV}$ ; das Ergebnis für den 8 nm dicken Film ist auch in a) dargestellt; die Ergebnisse für die 11 nm dicke Folie beziehen sich auf die gleiche Probenstelle und resultieren aus der Analyse zweier elastisch gefilterter Kontrast-Transfer-Charakteristiken, zwischen denen zeitlich eine inelastisch gefilterte Bilderserie aufgezeichnet wurde.

findlichkeit bezüglich  $\eta(u)$  zurückzuführen ist. Die Phasen weisen in Abbildung 5.7 a) und c) schwache Oszillationen und einen mit steigender Raumfrequenz stark fallenden Charakter auf, während in b) und d) die Oszillationen stärker und der Abfall schwächer ausgeprägt sind.

Da die Phasenergebnisse in Abbildung 5.7 trotz Glättung zum Teil noch relativ verrauscht sind, wurde eine zweite Glättung nach dem Verfahren des gleitenden Durchschnitts durchgeführt. Abbildung 5.8 a - b) zeigt diese doppelt geglätteten Phasen  $\eta(u)$  aus der Analyse der Kontrast-Transfer-Charakteristiken für Silizium-filme unterschiedlicher Dicken. Dabei ist zum besseren Vergleich der beiden Abbildungen a) und b) die Ergebniskurve für die 8 nm dicke Folie in beiden Abbildungen dargestellt. Ein für Silizium eindeutiger Phasenverlauf ist aus den Abbildungen 5.8 a) und b) nicht zu erkennen, vielmehr gibt es zwei prinzipielle Verlaufsarten und

das Ergebnis zu dem 8 nm dicken Film bildet eine Art Kompromiss zwischen diesen Verläufen. Die erste Verlaufsart weist in Abbildung 5.8 a) relativ breite Oszillationen mit drei Maxima auf, die mit „A“, „B“ und „C“ gekennzeichnet sind und für die Folien der Schichtdicken von 10 und 29 nm ca. bei den Raumfrequenzen  $0,18 \text{ nm}^{-1}$ ,  $0,42 \text{ nm}^{-1}$  und  $0,6 \text{ nm}^{-1}$  liegen, also eine grobe Periodizität von  $0,2 \text{ nm}^{-1}$  aufweisen. Das Phasenergebnis zum 8 nm dicken Film weist ein breiteres erstes Maximum „A“ auf als die anderen beiden Ergebnisse und zeigt auch das Maximum „C“, jedoch fällt die Phase von ca. 0,05 rad ausgehend in Richtung steigender Raumfrequenzen wesentlich steiler ab. Das Maximum „B“ fehlt in dieser Kurve bzw. fällt sehr schmal und schwach ausgeprägt aus.

Die zweite Verlaufsart für die Phase  $\eta(u)$  ist in Abbildung 5.8 b) dargestellt. Neben dem schon in a) gezeigten Messergebnis für die 8 nm dicke Folie, sind hier zwei Resultate für  $\eta(u)$  zu sehen, die durch einen sehr starken Abfall mit steigender Raumfrequenz charakterisiert sind und maximal zwei der in Abbildung 5.8 a) gekennzeichneten Maxima „A“, „B“ oder „C“ besitzen.

Dabei stammen die letzteren Phasenresultate aus der Analyse zweier Kontrast-Transfer-Charakteristiken basierend auf zwei unterschiedlichen elastisch mit einer Energiespaltbreite  $\Delta E = 20 \text{ eV}$  gefilterten Fokusreihen, die von der gleichen Probenstelle einer Schichtdicke von 11 nm aufgenommen wurden. Zwischen der Aufzeichnung der beiden elastisch gefilterten Fokusreihen wurde eine inelastisch gefilterte Bilderserie aufgenommen, aus der mit Hilfe der relativistischen inelastischen Übertragungsfunktion basierend auf Abschnitt 3.5 der Zwei-Teilchen-Strukturfaktor bestimmt werden sollte. Für diese inelastisch gefilterte Bilderserie musste aufgrund der kleinen Wirkungsquerschnitte für die inelastische Streuung der Konvergenzwinkel für die Beleuchtung stark vergrößert und die Stromdichte auf die Probe erhöht werden, um noch mit moderaten Belichtungszeiten arbeiten zu können. Dies kann zu Strahlenschädigungen und zu einer Kontamination der Probe z. B. in Form von Kohlenstoffablagerungen geführt haben. Das bedeutet, dass sich die chemischen Eigenschaften und die Struktur der Probe nach intensiver Bestrahlung verändert haben können. Vergleicht man nun die beiden Kurven für  $\eta(u)$  zu der 11 nm dicken Probenstelle, so stimmen sie im Raumfrequenzbereich  $0 \text{ nm}^{-1} < u < 0,38 \text{ nm}^{-1}$  gut überein, danach fällt die gemessene Phase  $\eta(u)$ , die aus der Analyse der elastisch

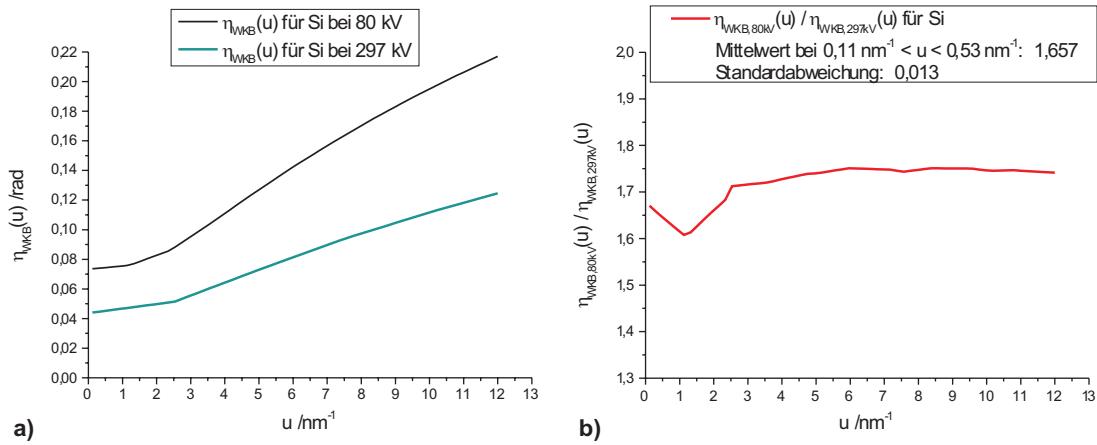


Abbildung 5.9: a) Mit dem Programm aus [49] mit der WKB-Methode unter Anwendung eines Muffin-Tin-Modells berechnete Phasen  $\eta_{WKB}(u)$  für Silizium bei Beschleunigungsspannungen von 297 kV und 80 kV; b) Verhältnis  $\eta_{WKB,80\text{kV}}(u) / \eta_{WKB,297\text{kV}}(u)$  der in a) dargestellten Resultate.

gefilterten Aufnahmen nach der inelastischen Bilderserie resultiert, deutlich steiler mit steigender Raumfrequenz ab. Dies könnte an einer möglichen Strahlenschädigung oder Kontamination aufgrund der vorigen intensiven Bestrahlung liegen.

Analog zum Kapitel 5.1 sollen die experimentellen Phasenverläufe für Silizium mit den theoretischen verglichen werden, die sich basierend auf der WKB-Methode unter Verwendung eines Muffin-Tin-Modells mit dem Programm aus [49] ergeben. Die theoretischen Ergebnisse sind für die Beschleunigungsspannungen 297 kV und 80 kV in Abbildung 5.9 a) zu sehen. Im Gegensatz zum experimentellen Verlauf wird dort im durch die Messung abgedeckten Bereich kleiner Raumfrequenzen  $u < 1,0 \text{ nm}^{-1}$  ein näherungsweise konstanter Verlauf und danach eine Zunahme der Phase mit steigender Raumfrequenz beobachtet. Nur das Ergebnis für die 29 nm dicke Siliziumfolie aus Abbildung 5.8 a) könnte abgesehen von den dort zu beobachtenden Oszillationen im Rahmen der Messunsicherheiten einigermaßen zum theoretischen Phasenverlauf passen, da es nur einen sehr schwachen Abfall mit steigender Raumfrequenz aufweist.

Abbildung 5.9 b) zeigt der Vollständigkeit halber das theoretische Phasenverhäl-

nis, das sich aus den Ergebnissen aus Abbildung 5.9 a) ergibt. Auch dieses zeigt eine schwache Abhängigkeit von der Raumfrequenz und schwankt zwischen Werten von ca. 1,60 und 1,75. Eine Mittelung im Raumfrequenzbereich  $0,11 \text{ nm}^{-1} < u < 0,53 \text{ nm}^{-1}$  ergibt für das Phasenverhältnis  $\eta_{\text{WKB},80\text{kV}}(u) / \eta_{\text{WKB},297\text{kV}}(u)$  einen Wert von 1,657 mit einer Standardabweichung von 0,013.

### 5.3 Ergebnisse für Germanium

Für die in diesem Kapitel vorgestellten Ergebnisse wurden dünne amorphe Germaniumfolien untersucht, die nach der in Abschnitt 4.1 beschrieben Methode präpariert wurden. Abbildung 5.10 a) zeigt eine elastisch gefilterte Aufnahme einer Germaniumprobe bei einer Vergrößerung von 150000 und Abbildung 5.10 b) das dazu gehörige Diffraktogramm. Die Aufnahme erfolgte am JEOL JEM 3010 bei einer Beschleunigungsspannung von 297 kV, einer Defokussierung  $\Delta f$  von  $-990 \text{ nm}$  und einer Energiespaltbreite von 10 eV.

In Abbildung 5.11 a - b) sind Messergebnisse für die Phase  $\eta(u)$ , die nach Kapitel 2.6 ermittelt wurden, für Germaniumproben der Schichtdicken 6 und 8 nm bei ei-

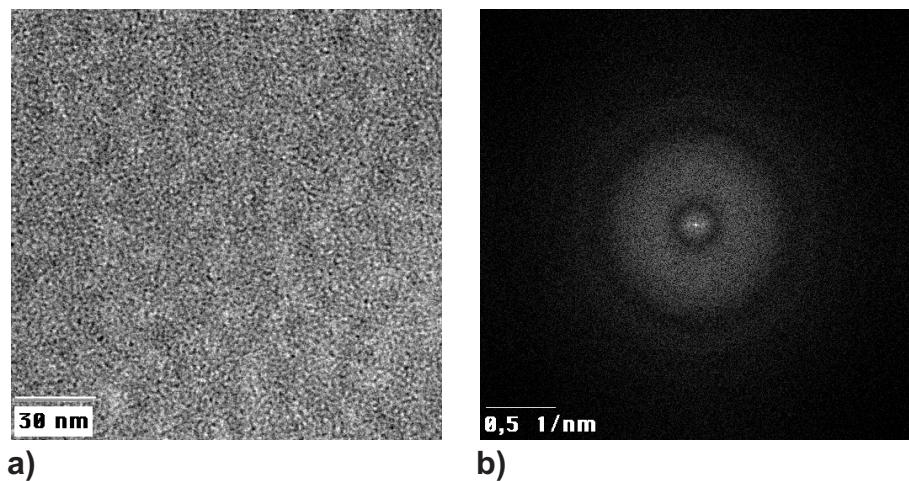


Abbildung 5.10: a) Elastisch gefilterte Aufnahme einer Germaniumfolie bei einem Defokus  $\Delta f$  von  $-990 \text{ nm}$ , einer Energiespaltbreite  $\Delta E$  von 10 eV, einer Vergrößerung von 150000 und einer Beschleunigungsspannung von 297 kV; b) Diffraktogramm zu a).

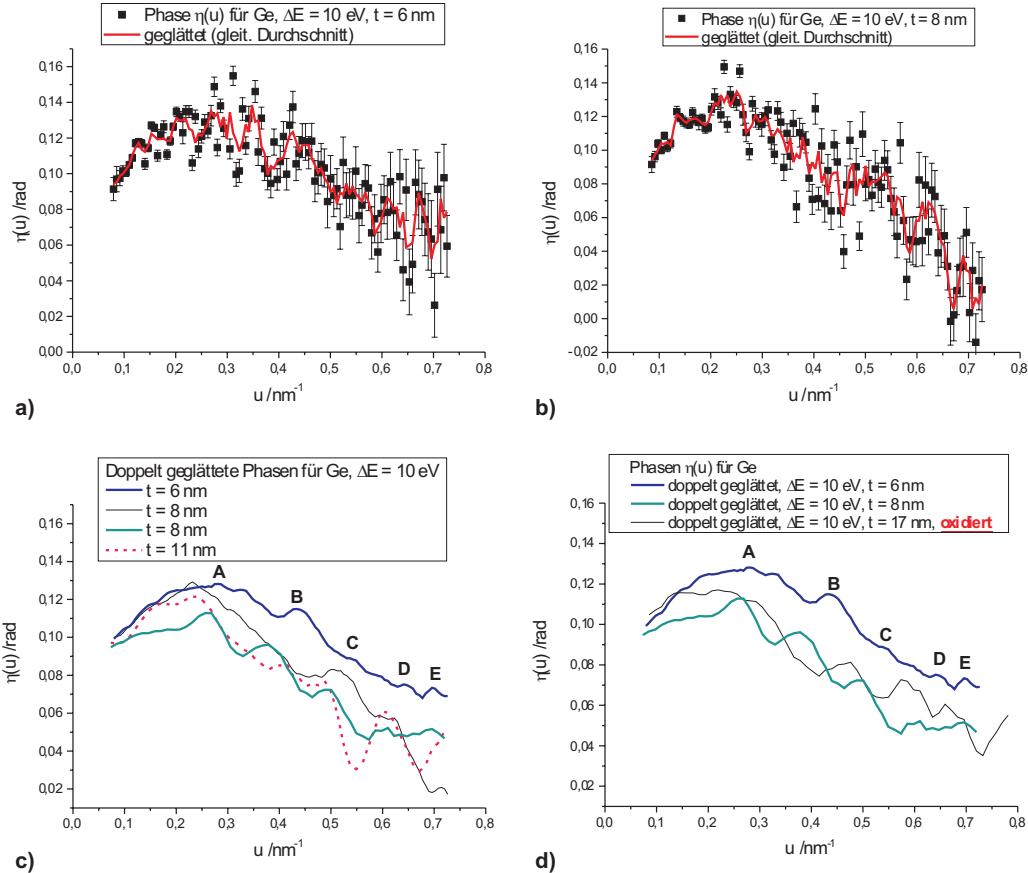


Abbildung 5.11: Experimentell bestimmte Phasen  $\eta(u)$  für Germanium bei 297 kV aus der Auswertung von elastisch gefilterten Kontrast-Transfer-Charakteristiken (Energiespaltbreite  $\Delta E = 10 \text{ eV}$ ): a) Phase  $\eta(u)$  bei einer Schichtdicke  $t = 6 \text{ nm}$ ; b) Phase  $\eta(u)$  bei  $t = 8 \text{ nm}$ ; c) doppelt geglättete Phasen  $\eta(u)$  für Folien mit  $t = 6 \text{ nm}$ ,  $8 \text{ nm}$  und  $11 \text{ nm}$ ; d) doppelt geglättete Phase  $\eta(u)$  für eine  $17 \text{ nm}$  dicke oxidierte Germaniumfolie im Vergleich zu  $\eta(u)$  für Filme der Schichtdicken 6 und  $8 \text{ nm}$  aus c).

ner Beschleunigungsspannung von 297 kV dargestellt. Die Messwerte streuen nicht so stark wie bei Kohlenstoff und Silizium, jedoch steigt erwartungsgemäß der Betrag der Fehlerbalken für  $\eta(u)$  auch hier mit steigender Raumfrequenz an, wobei dafür die gleichen Gründe anzuführen sind wie schon im Falle des Kohlenstoffs und des Siliziums. Durch die Messwerte wurde eine Glättungskurve basierend auf dem

gleitenden Durchschnitt gelegt. Beide Kurven in Abbildung 5.11 a - b) fangen bei kleinen Raumfrequenzen bei einer Phase von ca. 0,09 rad an und weisen im Bereich um  $0,2 \text{ nm}^{-1}$  -  $0,3 \text{ nm}^{-1}$  ein breites lokales Maximum auf.

Die Messergebnisse für die Phase  $\eta(u)$  für die untersuchten Germaniumproben wurden nach dem Verfahren des gleitenden Durchschnitts für die Abbildung 5.11 c - d) doppelt geglättet, in der die entsprechenden Resultate zu sehen sind. Während sich die Ergebnisse für die Schichtdicken von 6 - 11 nm auf Proben beziehen, die entweder direkt nach der Präparation in das Elektronenmikroskop eingeschleust und somit unter Vakuum gehalten wurden oder spätestens ca. 40 Stunden später, ist in Abbildung 5.11 d) das Messergebnis für die Phase  $\eta(u)$  für eine 17 nm dicke Germaniumprobe dargestellt, die an Luft zumindest an der Oberfläche oxidierte. Deshalb wird diese in Abbildung 5.11 d) als oxidiert bezeichnet. Dort sind zur besseren Übersicht zum Vergleich dieser Folie mit den anderen aus Abbildung 5.11 c) auch zwei Phasenergebnisse aus Abbildung 5.11 c) eingetragen.

Die Phasen in den Abbildungen 5.11 c - d) beginnen alle bei einer Raumfrequenz von ca.  $0,07 \text{ nm}^{-1}$  mit einem Phasenwert von ca. 0,095 bis 0,1 rad und weisen alle nach Erreichen des lokalen Maximums „A“ einen mit steigender Raumfrequenz abfallenden Verlauf mit Oszillationen auf. Bis auf die dünne schwarze Kurve zu der 8 nm dicken Folie in Abbildung 5.11 c) und die Kurve zu der oxidierten Folie sind die lokalen Maxima der anderen Phasenverläufe ungefähr in den gleichen Raumfrequenzbereichen zu finden und weisen teilweise nur leichte Verschiebungen zueinander auf. So liegen die lokalen Maxima dort ungefähr bei  $0,22 - 0,28 \text{ nm}^{-1}$ ,  $0,38 - 0,44 \text{ nm}^{-1}$ ,  $0,5 - 0,55 \text{ nm}^{-1}$ ,  $0,6 - 0,64 \text{ nm}^{-1}$  und  $0,7 - 0,73 \text{ nm}^{-1}$  und wurden mit den Buchstaben „A“ - „E“ markiert. Diese groben Periodizitäten liegen also in der Größenordnung von  $0,1 - 0,16 \text{ nm}^{-1}$  und sind kleiner als die, die bei Kohlenstoff und Silizium beobachtet wurden. Die 8 nm dicke Folie, die in Abbildung 5.11 c) durch die dünne schwarze Linie repräsentiert wird, scheint das lokale Maximum „B“ nicht zu besitzen und auch der gemessene Phasenverlauf für die oxidierte Probe in Abbildung 5.11 d) weist nur vier lokale Maxima auf, wobei hier die Besonderheit ist, dass die letzten drei Maxima dort aufgrund ihrer im Vergleich zu den anderen Kurven verschobenen Lage nicht eindeutig den Markierungen „B“ - „E“ zugeordnet werden können.

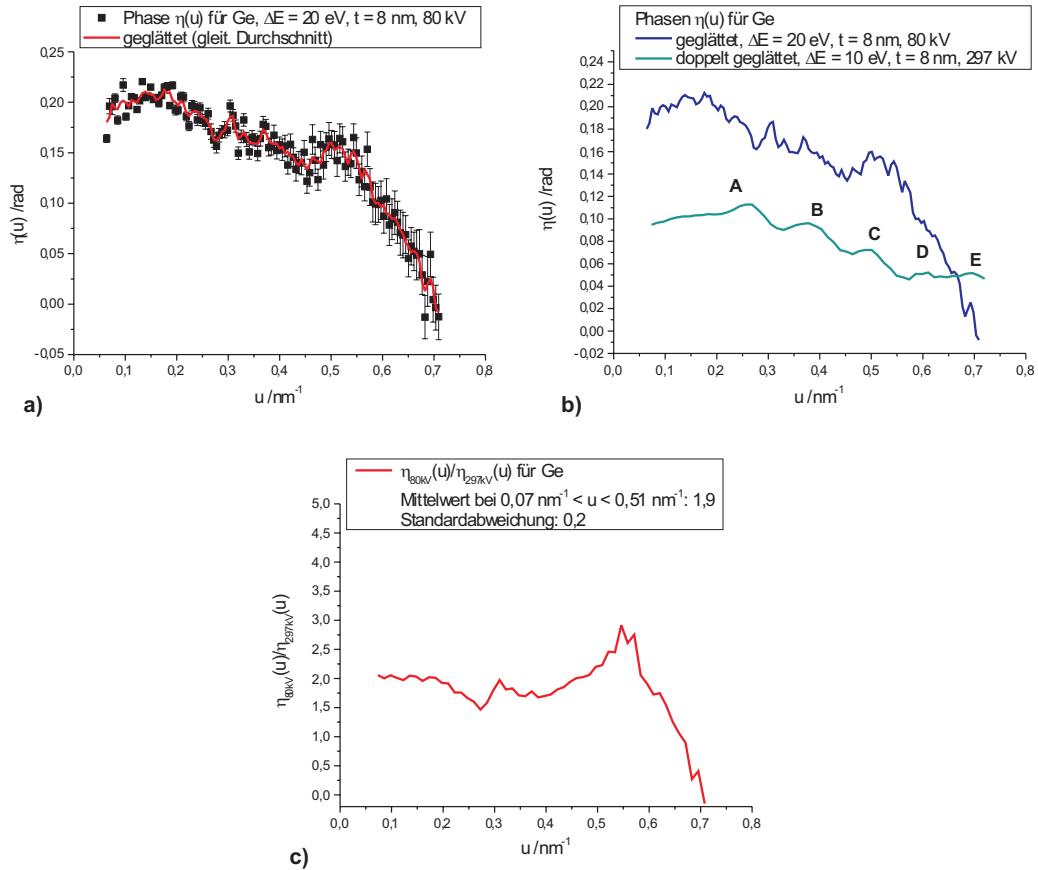


Abbildung 5.12: a) Experimentelles Ergebnis für die Phase  $\eta(u)$  für einen Germaniumfilm der Schichtdicke  $t = 8 \text{ nm}$  bei  $80 \text{ kV}$  und bei elastischer Filterung mit einer Energiespaltbreite  $\Delta E$  von  $20 \text{ eV}$ ; b) Vergleich der geglätteten Phasen  $\eta(u)$  für Folien der Schichtdicke  $t = 8 \text{ nm}$  für die Beschleunigungsspannungen  $297 \text{ kV}$  und  $80 \text{ kV}$ ; c) Phasenverhältnis  $\eta_{80\text{kV}}(u) / \eta_{297\text{kV}}(u)$  aus den in b) dargestellten Ergebnissen.

Die Phasen in Abbildung 5.11 c - d) zeigen mit Ausnahme der zur  $6 \text{ nm}$  dicken Folie gehörenden Kurve bis zu  $0,65 \text{ nm}^{-1}$  einen ähnlich steilen Abfall mit steigender Raumfrequenz. Das Messergebnis der Phase für den  $6 \text{ nm}$  dicken Germaniumfilm fällt etwas schwächer ab. Als mögliche Ursachen für die Unterschiede in den Phasenabfällen und den Oszillationen können unterschiedliche Sauerstoff- und Kohlenstoffanteile in den Proben, sowie unterschiedliche Dickegradienten angeführt werden, worauf in der Diskussion in Kapitel 5.4 eingegangen werden soll.

Das Messergebnis für die Phase  $\eta(u)$  für Germanium am Zeiss EM 902 bei einer Beschleunigungsspannung von 80 kV ist in Abbildung 5.12 a) zu sehen. Die Messpunkte für die Phase streuen kaum und auch hier sind Oszillationen und ein Abfall mit steigender Raumfrequenz zu beobachten. Durch die Messwerte wurde eine Glättungskurve nach dem Verfahren des gleitenden Durchschnitts gelegt. Diese einfach geglättete Phasenkurve zur Beschleunigungsspannung von 80 kV wird in Abbildung 5.12 b) mit der doppelt geglätteten Phase einer anderen ebenfalls 8 nm dicken Folie bei 297 kV verglichen, die auch in Abbildung 5.11 c) und d) zu sehen ist. Das lokale Maximum „A“ in den Phasenergebnissen ist bei 80 kV deutlicher ausgeprägt als bei 297 kV und in Richtung kleinerer Raumfrequenzen verschoben. Maximum „B“, „C“ und „E“ liegen bei beiden Phasen ungefähr bei den gleichen Raumfrequenzen, allerdings ist hier das Maximum „E“ bei 297 kV schwächer ausgeprägt. Vergleicht man das Phasenergebnis für 80 kV an dieser Stelle mit den anderen Phasenresultaten für 297 kV aus Abbildung 5.11 c), so erkennt man, dass diese bezüglich eines kleinen aber scharf ausgeprägten lokalen Maximums „E“ prinzipiell übereinstimmen. Bis zu einer Raumfrequenz von ca.  $0,52 \text{ nm}^{-1}$  passen die Phasenergebnisse der beiden Beschleunigungsspannungen in Abbildung 5.12 b) bezüglich der Oszillationen und des Abfalls mit steigender Raumfrequenz prinzipiell zueinander. Danach fällt die Phase  $\eta(u)$  für 80 kV wesentlich stärker ab und zeigt kein eindeutiges lokales Maximum „D“. Gründe für Abweichungen und Abfälle in Phasenverläufen werden in Kapitel 5.4 diskutiert.

Für Abbildung 5.12 c) wurde die Division der Phasenergebnisse zu den beiden Beschleunigungsspannungen 80 kV und 297 kV aus Abbildung 5.12 b) berechnet. Im Raumfrequenzbereich  $0 \text{ nm}^{-1} < u < 0,5 \text{ nm}^{-1}$  verläuft dieses Phasenverhältnis relativ konstant. Danach sind starke Schwankungen zu beobachten. Eine Mittelung des Phasenverhältnisses  $\eta_{80\text{kV}}(u) / \eta_{297\text{kV}}(u)$  in dem Raumfrequenzbereich  $0 \text{ nm}^{-1} < u < 0,51 \text{ nm}^{-1}$  liefert einen Wert von  $1,9 \pm 0,2$ .

Auch in diesem Abschnitt werden analog zu den Kapiteln 5.1 und 5.2 die experimentell ermittelten Phasen  $\eta(u)$  für Germanium mit den theoretischen  $\eta_{\text{WKB}}(u)$  verglichen, die sich mit der WKB-Methode unter Verwendung eines Muffin-Tin-Modells mit dem Programm aus [49] berechnen lassen. Abbildung 5.13 a) zeigt diese theoretischen Ergebnisse, die vom prinzipiellen Verlauf denen des Kohlenstoffs

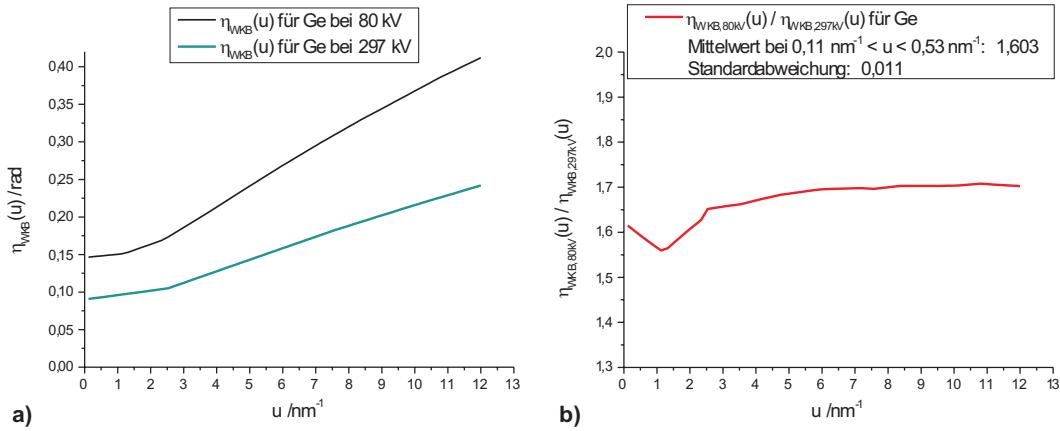


Abbildung 5.13: a) Mit dem Programm aus [49] mit der WKB-Methode unter Verwendung eines Muffin-Tin-Modells berechnete Phasen  $\eta_{WKB}(u)$  für Germanium bei Beschleunigungsspannungen von 297 kV und 80 kV; b) Verhältnis  $\eta_{WKB,80kV}(u) / \eta_{WKB,297kV}(u)$  der in a) dargestellten Resultate.

und des Siliziums aus Abbildung 5.5 a) bzw. 5.9 a) ähneln und zunächst einen sehr schwachen und ab einer Raumfrequenz von ca.  $2 \text{ nm}^{-1}$  einen sehr deutlichen Anstieg mit wachsender Raumfrequenz aufweisen, was im Widerspruch zu den hier vorgestellten experimentellen Messungen steht.

Abbildung 5.13 b) stellt das Phasenverhältnis dar, das sich aus den theoretisch berechneten Phasen  $\eta_{WKB}(u)$  aus Abbildung 5.13 a) ergibt. Auch hier ist eine leichte Abhängigkeit des Kurvenverlaufs von der Raumfrequenz zu erkennen, der in der Abbildung Werte zwischen ca. 1,5 und 1,7 annimmt. Eine Mittelung im Raumfrequenzbereich  $0,11 \text{ nm}^{-1} < u < 0,53 \text{ nm}^{-1}$  ergibt für das Phasenverhältnis  $\eta_{WKB,80kV}(u) / \eta_{WKB,297kV}(u)$  einen Wert von 1,603 mit einer Standardabweichung von 0,011. Also liegt das gemittelte experimentelle Phasenverhältnis aus Abbildung 5.12 c) mit  $1,9 \pm 0,2$  auch im Rahmen der Messunsicherheiten knapp über den analogen theoretischen Wert.

Die Ergebnisse für die Phase  $\eta(u)$  für Kohlenstoff, Silizium und Germanium aus den Kapiteln 5.1 - 5.3 werden im folgenden Abschnitt verglichen und vor allem bezüglich der Ursache des gemessenen Abfalls mit steigender Raumfrequenz diskutiert.

## 5.4 Diskussion und Vergleich der Phasenergebnisse der untersuchten amorphen Proben

Die Unterschiede in den Messergebnissen der Phase  $\eta(u)$  für die unterschiedlichen amorphen Folien aus Kohlenstoff, Silizium und Germanium zeigen sich nicht nur beim direkten Vergleich der Phasenverläufe sondern auch schon indirekt in den Diffraktogrammen der elastisch gefilterten Aufnahmen. Zu diesem Zweck sind in Abbildung 5.14 Diffraktogramme zu elastisch gefilterten Aufnahmen dieser Proben zu sehen, die alle bei einer Energiespaltbreite von  $\Delta E = 10 \text{ eV}$ , einer Vergrößerung von 150000, einer Beschleunigungsspannung von 297 kV und nahezu bei gleichem Defokus aufgenommen wurden. Zusätzlich zu der Kohlenstoff-, Silizium und Germaniumprobe wurde in Abbildung 5.14 d) auch eine verunreinigte Siliziumprobe aufgenommen, bei der in EDX-Untersuchungen Wolfram nachgewiesen wurde. Dieses Verfahren zur Aufzeichnung und Analyse von charakteristischer Röntgenstrahlung wird in der internationalen Literatur „EDS“ abgekürzt (englisch: energy-dispersive spectrometry). Eine ausführliche Beschreibung zu diesem Thema findet man bei [41, 48, 56]. Die Energien der charakteristischen Röntgenstrahlung für die unterschiedlichen Elemente sind in [5] tabelliert, die Wellenlängen in [5, 34].

Vor Berechnung der Diffraktogramme wurden die Intensitäten der dazu gehörigen Bilder auf 1 normiert. Die Kontrastgrenzen sind in der Darstellung in Abbildung 5.14 bei allen Diffraktogrammen gleich. Abbildung 5.15 zeigt bei verändertem Kontrast Quadranten dieser rotationssymmetrischen Diffraktogramme aus Abbildung 5.14 in einer Gegenüberstellung. Die Kontrastgrenzen bei der Darstellung sind auch in Abbildung 5.15 für jeden Quadranten gleich.

Die Unterschiede in den Diffraktogrammen in Abbildung 5.14 sind in den Zentralbereichen bei kleinen Raumfrequenzen zu erkennen. Kohlenstoff hat ein recht schmales Maximum im Zentrum. Bei Silizium ist es etwas breiter. Deutlich sind die Unterschiede zwischen den Diffraktogrammen von Kohlenstoff und Silizium im Vergleich zu Germanium. In dessen Diffraktogramm ist das Zentralmaximum sehr breit und scheint scharf von dem ersten benachbarten dunklen Ring begrenzt zu sein, der der ersten Nullstelle im Diffraktogramm entspricht und für die hier wegen  $\Delta f < 0$

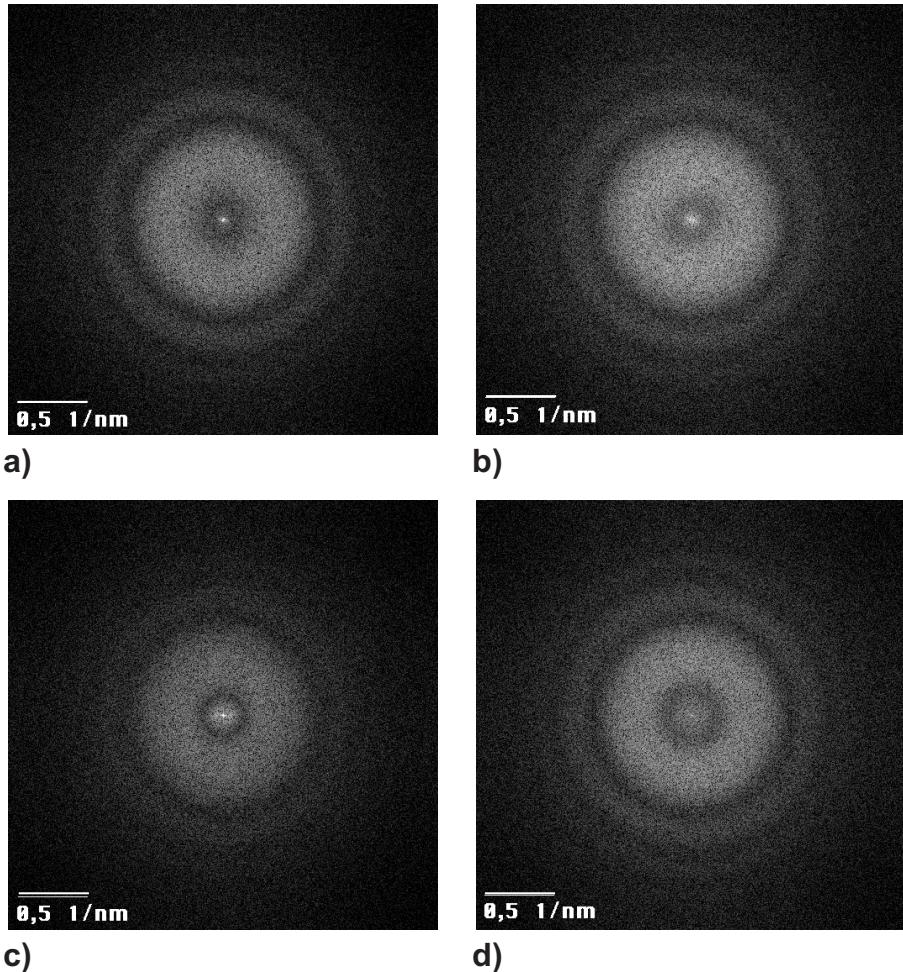


Abbildung 5.14: Diffraktogramme zu elastisch gefilterten Aufnahmen bei einer Energiespaltebreite  $\Delta E = 10 \text{ eV}$ , einer Vergrößerung von 150000, einer Beschleunigungsspannung von 297 kV und nahezu den gleichen Defokuswerten (Überfokus) für die in dieser Arbeit bezüglich der Phase  $\eta(u)$  untersuchten amorphen Proben: a) Kohlenstoff, Defokus  $\Delta f = -980 \text{ nm}$ ; b) Silizium, Defokus  $\Delta f = -960 \text{ nm}$ ; c) Germanium, Defokus  $\Delta f = -990 \text{ nm}$ ; d) mit Wolfram verunreinigte Siliziumprobe, Defokus  $\Delta f = -990 \text{ nm}$ .

und dem gemessenen  $\eta(u) > 0$  die Beziehung  $\sin\{\gamma(u) - \eta(u)\} = 0$  gilt (siehe Gleichungen (2.51) bis (2.53)). Diese Nullstelle wird in dieser Arbeit Nullstelle 0-ter Ordnung genannt. Das breitere Maximum bei Germanium wird durch die im Vergleich zu Kohlenstoff und Silizium größere Phase  $\eta(u)$  verursacht. Die Ergebnisse der Phasenuntersuchung nach Kapitel 2.6 für die mit Wolfram verunreinigte

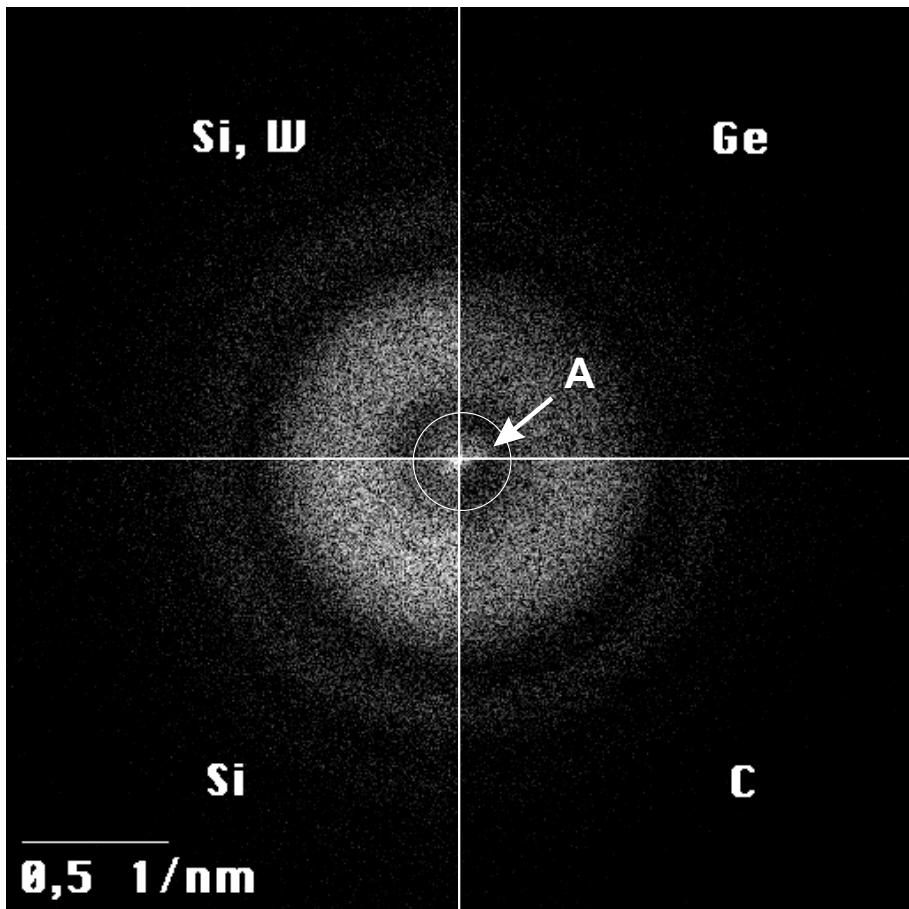


Abbildung 5.15: Gegenüberstellung von Quadranten der radialsymmetrischen Diffraktogramme aus Abbildung 5.14. „Si,W“ steht als Abkürzung für die mit Wolfram verunreinigte Siliziumprobe. Germanium, Silizium und Kohlenstoff sind durch Ge, Si bzw. C gekennzeichnet. Im Vergleich zu Abbildung 5.14 wurde hier der Kontrast etwas geändert, allerdings in jedem Quadranten in gleicher Weise.

Siliziumprobe sind in dieser Arbeit nicht aufgeführt, in diesem Kontext muss aber erwähnt werden, dass die gemessene Phase nach Erreichen eines lokalen Maximums auch einen deutlichen Abfall mit steigender Raumfrequenz aufwies. Bei einer Beschleunigungsspannung von 297 kV lag das Maximum der Phase dieser Probe bei ca. 0,2 rad. Diese Phase  $\eta(u)$  ist also von allen hier gemessenen Materialien am größten. Dementsprechend ist in Abbildung 5.14 d) im Vergleich zu den anderen Teilabbildungen auch das breiteste Zentralmaximum im dazugehörigen Diffrakto-

	C	Si	Ge
Maxima von $\eta(u)$ /rad bei 297 kV	0,04 - 0,05	0,050 - 0,065	0,11 - 0,14
Maxima von $\eta(u)$ /rad bei 80 kV	0,09 - 0,10	-	0,21
$\eta_{80\text{kV}}(u) / \eta_{297\text{kV}}(u)$	$2,2 \pm 0,3$	-	$1,9 \pm 0,2$
$\eta_{\text{WKB},297\text{kV}}$ /rad	0,027	0,044	0,092
$\eta_{\text{WKB},80\text{kV}}$ /rad	0,045	0,074	0,147
$\eta_{\text{WKB},80\text{kV}}(u) / \eta_{\text{WKB},297\text{kV}}(u)$	$1,668 \pm 0,005$	$1,657 \pm 0,013$	$1,603 \pm 0,011$
$\eta$ /rad nach [27, 30] bei 297 kV	$0,06 \pm 0,01$	$0,06 \pm 0,01$	-

Tabelle 5.1: Ergebnisse aus den Abschnitten 5.1 bis 5.3 für die Maxima der experimentell bestimmten Phasen  $\eta(u)$ , die theoretisch mit Hilfe der WKB-Methode bestimmten Phasen sowie die experimentellen und theoretischen Phasenverhältnisse bezüglich der Beschleunigungsspannungen 297 kV und 80 kV der untersuchten Proben aus Kohlenstoff, Silizium und Germanium in einer Ge- genüberstellung. Zum Vergleich sind auch Phasenergebnisse aus den Arbeiten [27, 30] aufgelistet, in denen die Phase  $\eta$  als konstant angenommen wurde.

gramm erkennbar.

Der Vergleich dieser Diffraktogramme soll in Abbildung 5.15 vereinfacht werden. Die Unterschiede sind in der mit „A“ markierten Region im Zentralbereich sichtbar. Die weiße kreisförmige Linie verläuft durch die Nullstelle 0-ter Ordnung im Diffraktogramm der mit Wolfram verunreinigten Siliziumprobe. Sie ist durch die Mitte des dunklen Bereichs neben dem Zentrum gegeben. Man kann gut erkennen, dass die Nullstellen 0-ter Ordnung in den Diffraktogrammen zu Kohlenstoff und Silizium innerhalb dieser kreisförmigen Linie liegen und somit also die dazu gehörigen Phasen  $\eta(u)$  in diesem Raumfrequenzbereich kleiner sein müssen als beim mit Wolfram verunreinigten Siliziumfilm. Außerdem verläuft die kreisförmige Linie nicht durch die Mitte des dunklen Nullstellenbereichs 0-ter Ordnung von Germanium, sondern liegt eher dort im Rand Richtung höherer Raumfrequenzen, was auch andeutet, dass die Phase  $\eta(u)$  von Germanium in diesem Raumfrequenzbereich kleiner als die vom Silizium-Wolfram-Präparat ist. Dieser Sachverhalt spiegelt sich auch in den Breiten der Zentralmaxima in den Diffraktogrammquadranten wieder: Die Breite des Zentralmaximums nimmt von Kohlenstoff über Silizium bis hin zum Germanium und zu der mit Wolfram verunreinigten Siliziumprobe zu (vgl. Abbildung 5.14).

In Tabelle 5.1 sind die Informationen über die beobachteten Maximalwerte der experimentell gemessenen Phasen  $\eta(u)$  zusammengefasst, wobei diese als grobe Richtlinie dienen, da es probenabhängige Schwankungen in den Maxima der Phasen für die untersuchten Materialien gab. Tabelle 5.1 zeigt auch die unter den in Kapitel 5.1 bis 5.3 beschriebenen Rahmenbedingungen erzielten Ergebnisse für das gemittelte Phasenverhältnis  $\eta_{80\text{kV}}(u) / \eta_{297\text{kV}}(u)$  bei den eingesetzten Beschleunigungsspannungen von 80 und 297 kV. Des weiteren sind in der Tabelle die sich aus den WKB-Rechnungen ergebenden Phasenwerte  $\eta_{\text{WKB}}$  für Raumfrequenzen  $u < 1,0 \text{ nm}^{-1}$  aufgelistet, die nach den Abbildungen 5.5, 5.9 und 5.13 in dem Bereich näherungsweise konstant sind. Auch die im Raumfrequenzbereich  $0,11 \text{ nm}^{-1} < u < 0,53 \text{ nm}^{-1}$  gemittelten theoretischen Phasenverhältnisse  $\eta_{\text{WKB},80\text{kV}}(u) / \eta_{\text{WKB},297\text{kV}}(u)$ , die sich aus den WKB-Rechnungen ergeben und in Kapitel 5.1 bis 5.3 vorgestellt wurden, sind in Tabelle 5.1 aufgelistet. Die entsprechenden Kurvenverläufe für Kohlenstoff, Silizium und Germanium werden zudem noch in Abbildung 5.16 verglichen, in der zu erkennen ist, dass die Kurve für Germanium im Vergleich zu Kohlenstoff und Silizium im ganzen dargestellten Raumfrequenzbereich niedrigere Werte annimmt.

Es ist deutlich anhand von Tabelle 5.1 zu erkennen, dass die in dieser Arbeit bestimmten experimentellen Phasen größer sind als die entsprechenden theoretischen Phasen, die sich aus dem Programm von [49] mit der WKB-Berechnung unter Anwendung eines Muffin-Tin-Modells ergeben. Das kann daran liegen, dass die theoretischen Berechnungen auf der Kalkulation elastischer Streuamplituden beruhen, es aber zu der Phase  $\eta(u)$  außer den elastischen Beitrag auch einen Absorptionsbeitrag gibt (siehe Kapitel 2.3). Die Größenordnungen der experimentell bestimmten Phasen  $\eta(u)$  passen allerdings zu denen der theoretisch bestimmten.

In Tabelle 5.1 ist auch zu sehen, dass die experimentell bestimmten Phasenverhältnisse  $\eta_{80\text{kV}}(u) / \eta_{297\text{kV}}(u)$  auch leicht größer sind als die theoretisch berechneten  $\eta_{\text{WKB},80\text{kV}}(u) / \eta_{\text{WKB},297\text{kV}}(u)$ . Dies ist auch darauf zurückzuführen, dass die theoretischen Rechnungen auf der Kalkulation der elastischen Streuamplituden basierten und somit der Absorptionsbeitrag zur Phase  $\eta(u)$  nicht berücksichtigt wurde. Da dieser Absorptionsbeitrag bei einer Beschleunigungsspannung von 297 kV niedriger sein müsste als bei einer kleineren Beschleunigungsspannung von 80 kV, ergeben sich als Konsequenz höhere experimentelle Phasenverhältnisse im Vergleich zu den

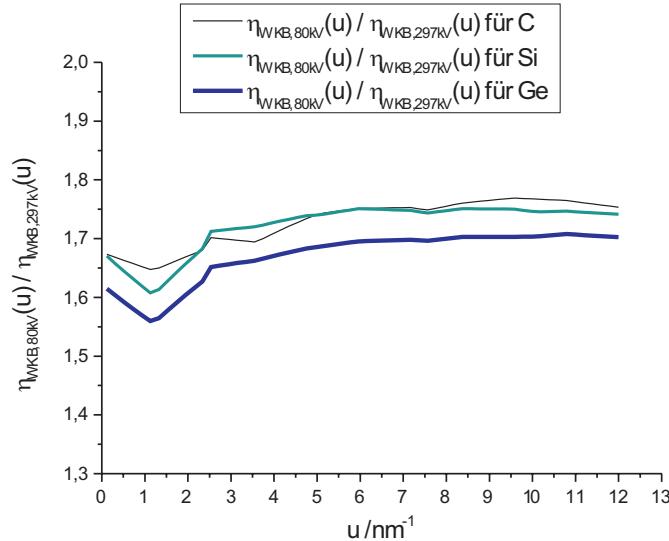


Abbildung 5.16: Theoretische Phasenverhältnisse  $\eta_{\text{WKB},80\text{kV}}(u) / \eta_{\text{WKB},297\text{kV}}(u)$  für Kohlenstoff, Silizium und Germanium aus Abbildung 5.5, 5.9 und 5.13 in einer Gesamtübersicht.

hier präsentierten theoretischen Ergebnissen, bei denen die Berücksichtigung dieses Beitrags fehlt.

Nach [48] gibt es folgenden Zusammenhang zwischen dem totalen inelastischen Wirkungsquerschnitt  $\sigma_{in}$ , dem totalen elastischen Wirkungsquerschnitt  $\sigma_{el}$  und der Ordnungszahl  $Z$

$$\frac{\sigma_{in}}{\sigma_{el}} \simeq \frac{20}{Z}. \quad (5.1)$$

Von Kohlenstoff nach Germanium nimmt wegen der steigenden Ordnungszahl  $Z$  der Anteil der elastischen Streuung an den gesamten Streuprozessen (elastisch **und** inelastisch) zu und dementsprechend der Anteil der inelastischen Streuung ab. Im Falle des Germaniums ist  $\sigma_{el}$  größer als  $\sigma_{in}$ . Folglich muss von Kohlenstoff nach Germanium aufgrund der steigenden Ordnungszahl auch der inelastische Beitrag zur komplexen Phasenschiebung durch die Probe im Vergleich zum elastischen abnehmen bzw. der inelastische Beitrag zur Phase  $\eta(u)$  im Vergleich zum elastischen abnehmen. Deshalb wirkt sich bei den theoretisch berechneten Phasenverhältnissen  $\eta_{\text{WKB},80\text{kV}}(u) / \eta_{\text{WKB},297\text{kV}}(u)$  eine Vernachlässigung des inelastischen Beitrags bei

Germanium nicht so stark aus wie im Falle des Kohlenstoffs und des Siliziums. Dies wird durch die Beobachtungen aus Tabelle 5.1 bestätigt, nach der die Abweichung des experimentell bestimmten Phasenverhältnisses  $\eta_{80\text{kV}}(u) / \eta_{297\text{kV}}(u)$  vom theoretischen  $\eta_{\text{WKB},80\text{kV}}(u) / \eta_{\text{WKB},297\text{kV}}(u)$  im Falle des Germaniums nicht so groß ist wie bei Kohlenstoff.

In Tabelle 5.1 werden auch die experimentellen Ergebnisse für die Phase  $\eta(u)$  für Kohlenstoff und Silizium bei einer Beschleunigungsspannung von 297 kV mit denen verglichen, die in den Arbeiten [27, 30] für dieselbe Beschleunigungsspannung veröffentlicht sind. Dabei wurde in [27, 30] ein konstanter Phasenverlauf angenommen und die Phase aus der Anpassung von Diffraktogrammintensitäten bestimmt. Ein Vergleich unserer experimentellen Daten bezüglich der Phase  $\eta(u)$  mit denen aus diesen Arbeiten in Tabelle 5.1 liefert eine gute Übereinstimmung.

Die in den obigen Abschnitten 5.1 bis 5.3 experimentell gemessenen Phasen weisen in der Regel einen deutlichen Abfall mit steigender Raumfrequenz auf, der von Oszillationen überlagert ist, was im Widerspruch zu den theoretischen Phasenverläufen steht, deren Kalkulation mit dem Programm von [49] auf der Berechnung von elastischen komplexen Atomstreuamplituden mit der WKB-Methode unter Einsatz eines Muffin-Tin-Modells beruht. Diese sind bei kleinen Raumfrequenzen näherungsweise konstant und zeigen bei höheren Raumfrequenzen einen Anstieg der Phase mit wachsender Raumfrequenz. Außerdem nehmen nach [27, 38] Absorptionsbeitrag und elastischer Beitrag zur Phase  $\eta(u)$  mit steigender Raumfrequenz monoton zu. Bezüglich der in den obigen Abschnitten gemessenen Oszillationen in den Phasenverläufen nimmt Silizium eine Sonderstellung ein, denn nicht in jeder Siliziumprobe wurden diese Oszillationen beobachtet. Außerdem sind diesbezüglich die Messergebnisse bei 80 kV für Kohlenstoff zu erwähnen, in denen die Oszillationen schwach oder kaum ausgeprägt sind. Die in den Phasenergebnissen beobachteten Oszillationen lassen sich mit groben Periodizitäten beschreiben. Diese betragen  $0,17 - 0,2 \text{ nm}^{-1}$  für Kohlenstoff, ca.  $0,2 \text{ nm}^{-1}$  für Silizium und  $0,1 - 0,16 \text{ nm}^{-1}$  für Germanium. Sie sind damit zu klein und dementsprechend die damit korrespondierenden Dimensionen im Ortsraum zu groß, als dass sie ihren Ursprung in atomaren Effekten haben könnten. In [27] wurden bei Kohlenstoffproben, die auf gleicher Weise aus gleichem Material hergestellt wurden wie unsere Kohlenstoffpräparate aus Kapitel 5.1, Sauerstoffein-

schlüsse festgestellt. Auch schloss man bei der Untersuchung von amorphen Siliziumproben in [2, 7, 27, 36] auf Fehlstellen im amorphen Netzwerk. Darauf deuten auch Ergebnisse für die Zwei-Teilchen-Strukturfaktoren hin, die in Kapitel 7 vorgestellt und in Abschnitt 7.4 noch diskutiert werden. Waren also Fehlstellen oder Sauerstoff- oder Wassereinschlüsse in den hier untersuchten amorphen Proben vorhanden, ist dies gleichbedeutend mit einem Dichtegradienten bzw. auch Dickegradienten in der Probe.

Geht man davon aus, dass Sauerstoffeinschlüsse in den Kohlenstofffilmen vorhanden sind und die komplexe Atomstreuamplitude von Sauerstoff aufgrund der leicht höheren Ordnungszahl auch eine leicht höhere Phase als die von Atomstreuamplituden von Kohlenstoff haben sollte, können diese Einschlüsse auch die Ursache für die gemessenen Oszillationen der Phase sein. Ähnlich kann man für den Fall argumentieren, wenn z. B. Einlagerungen oder Ablagerungen aus Sauerstoff- oder Kohlenstoffverbindungen in den Silizium- oder Germaniumproben vorhanden sind.

Ursachen für den hier gemessenen Phasenabfall mit steigender Raumfrequenz könnten ein Dicke- oder Dichtegradient und Kontamination oder eine Anlagerung von Verunreinigungen sein. Für einen Einfluss von Strahlenschädigung oder Kontamination auf die Phase  $\eta(u)$  spricht Abbildung 5.8 b), in der u. a. Phasenergebnisse für die gleiche Siliziumprobenstelle nach unterschiedlich intensiver und unterschiedlich langer Bestrahlung verglichen werden und in der die Phase nach längerer Bestrahlung der Probe einen stärkeren Abfall mit steigender Raumfrequenz zeigt. Kohlenstoff in einer möglichen Kontaminationsschicht hätte eine niedrigere Ordnungszahl als Silizium, und man würde deshalb erwarten, dass im Mittel eine aus diesen beiden Materialien bestehende Probe durch eine niedrigere Phase  $\eta(u)$  charakterisiert werden würde als eine reine Siliziumprobe. Auch eine Oxidation des Siliziums könnte die mittlere Phase  $\eta$  aufgrund der kleineren Ordnungszahl des Sauerstoffs verringern. In Abbildung 5.8 b) kann auch ein Massenverlust infolge von Strahlenschädigung als mögliche Ursache für den unterschiedlich starken Abfall der Phase angeführt werden.

Die Abweichungen zwischen theoretisch bestimmter und experimentell gemessener Phase  $\eta(u)$  in Form des Abfalls und der beobachteten Oszillationen könnten eventuell auch darauf hindeuten, dass die Näherung aus Kapitel 2.3, nach der die Phase

$\hat{\varphi}^{WO}(\vec{\rho})$  linear in der projizierten Atomverteilung  $\bar{n}_a(\vec{\rho})$  ist, nicht erfüllt ist und die aus dieser Näherung resultierende Gleichung (2.50) in diesem Fall dann nicht korrekt wäre.

## Kapitel 6

# Experimentelle Ergebnisse für den Zusatzparameter

### 6.1 Einfluss des Zusatzparameters in Kontrast-Transfer-Charakteristiken

Nach dem in Kapitel 2.6 beschriebenen Verfahren wurde hier zur Bestimmung der Phase  $\eta(u)$ , des Zwei-Teilchen-Strukturfaktors und der Phasenableitung  $\eta'(u)$  die Funktion aus Gleichung (2.70) über einen Least-Squares-Fit an Linescans („Defokus-Linescans“) aus den Kontrast-Transfer-Charakteristiken dünner amorpher Proben angepasst. Dabei fiel auf, dass bei Setzen des Parameters  $\eta_z(u_i)$  aus Gleichung (2.59) auf Null, d. h. Vernachlässigung der Phasenableitung  $\eta'(u_i)$  in der Einhüllenden  $E_\alpha(u)$  in Gleichung (2.60) bzw. (2.70), für bestimmte diskrete Raumfrequenzen  $u_i$  diese Anpassung eine gute Übereinstimmung zwischen der theoretischen Intensität aus Gleichung (2.70) bzw. Gleichung (2.51) bis (2.53) und den experimentellen Linescan-Intensitäten lieferten, bei anderen Raumfrequenzen  $u_i$  aus der selben Kontrast-Transfer-Charakteristik aber keine befriedigende Übereinstimmung mit Hilfe des Least-Squares-Fits zu erzielen war. Dies soll anhand von Abbildung 6.1 demonstriert werden.

Dort sind in Abbildung a) und b) die experimentellen Linescan-Intensitäten aus einer Kontrast-Transfer-Charakteristik einer dünnen amorphen Siliziumprobe bei ei-

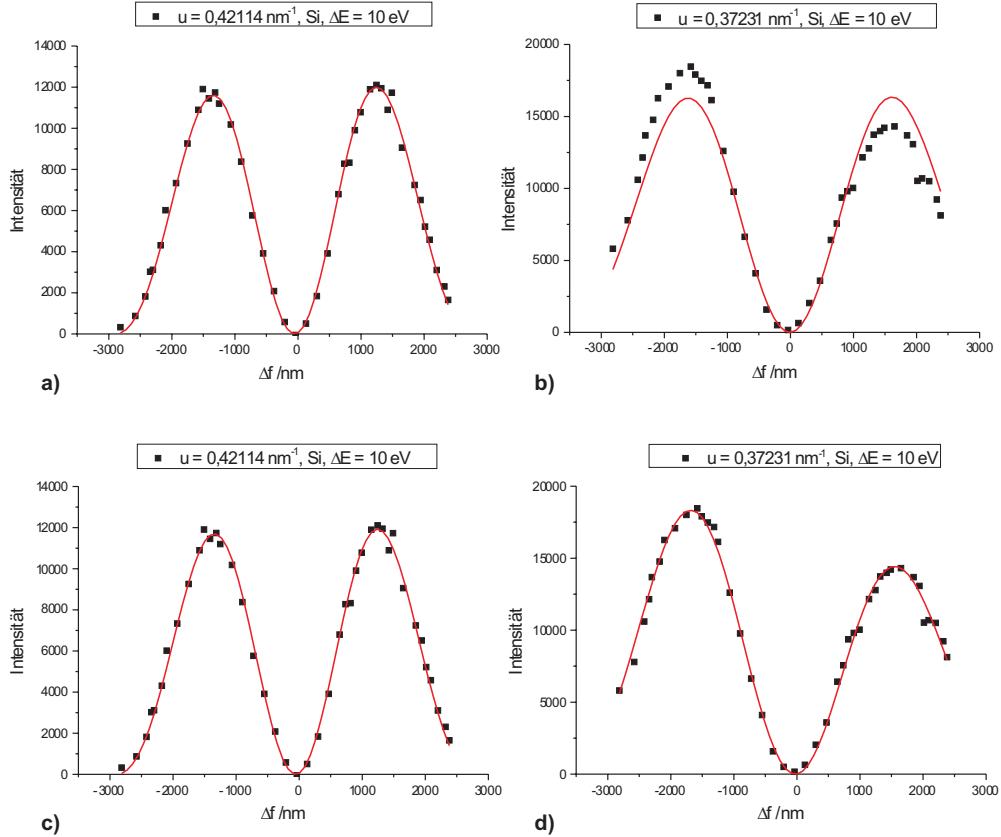


Abbildung 6.1: Least-Squares-Fits aus der Anpassung an Linescans aus einer Kontrast-Transfer-Charakteristik einer amorphen Silizium-Folie: a) ohne Verwendung des Zusatzparameters  $\eta_z$  bei einer Raumfrequenz  $u_i = 0,42114 \text{ nm}^{-1}$ ; b) ohne Verwendung des Zusatzparameters  $\eta_z$  bei  $u_i = 0,37231 \text{ nm}^{-1}$ ; c) bei Verwendung des Zusatzparameters  $\eta_z$  bei  $u_i = 0,42114 \text{ nm}^{-1}$ ; d) bei Verwendung des Zusatzparameters  $\eta_z$  bei  $u_i = 0,37231 \text{ nm}^{-1}$ ; für weitere Erklärungen siehe Text. Die Bilder, aus denen die Kontrast-Transfer-Charakteristik berechnet wurde, wurden am JEOL JEM 3010 mit einer Beschleunigungsspannung von 297 kV, einem Konvergenzhalfwinkel  $\alpha = 0,15$  mrad und bei elastischer Filterung mit einer Energiespaltbreite  $\Delta E = 10 \text{ eV}$  aufgenommen.

ner Raumfrequenz  $u_i = 0,42114 \text{ nm}^{-1}$  bzw.  $u_i = 0,37231 \text{ nm}^{-1}$  als schwarze Punkte gezeigt. Die Kontrast-Transfer-Charakteristik stammt aus elastisch gefilterten Aufnahmen am JEOL JEM 3010 mit einer Beschleunigungsspannung von 297 kV, die mit einer Energiespaltbreite  $\Delta E$  von 10 eV und einem Konvergenzhalfwinkel von 0,15 mrad aufgezeichnet wurden. Die theoretischen Kurven nach Gleichung (2.70)

bzw. Gleichung (2.51) bis (2.53) aus der Least-Squares-Fit-Anpassung bei Setzen von  $\eta_z(u_i)$  auf Null sind als rote Kurven in Abbildung 6.1 a - b) eingezeichnet. Auffällig ist die Übereinstimmung zwischen Theorie und Experiment in Abbildung 6.1 a), während in b) der Höhenunterschied zwischen den zur Nullstelle 0-ter Ordnung benachbarten Maxima durch die theoretische Kurve nicht richtig wiedergegeben wird. Als Ursache für diese Abweichung zwischen Theorie und Experiment scheidet ein eventuell falsch subtrahierter Untergrund in den Einzeldiffraktogrammen aus, denn jeder Messpunkt in einem (Defokus-)Linescan bei konstanter Raumfrequenz  $u_i$  in der Kontrast-Transfer-Charakteristik stammt von einem unabhängigen Einzeldiffraktogramm. Ein in den einzelnen Diffraktogrammen falsch subtrahierter Untergrund müsste sich dann in den Linescans in statistischen oder unregelmäßigen Schwankungen der Messpunkte um den theoretisch angefitteten Kurvenverlauf äußern, was aber in Abbildung 6.1 b) und den anderen Messungen nicht der Fall ist. Dort ist der durch die Messpunkte definierte Verlauf sogar recht glatt. Als weitere Begründung dafür, dass ein eventuell in den Diffraktogrammen falsch subtrahierter Untergrund nicht die Ursache für die Abweichung des experimentellen und theoretischen Kurvenverlaufs in Linescans wie in Abbildung 6.1 b) sein kann, ist Abbildung 6.1 a), denn bei einem falsch abgezogenen Untergrund dürfte es dann in derselben Kontrast-Transfer-Charakteristik bei keiner festen Raumfrequenz  $u_i$  eine gute Übereinstimmung zwischen Theorie und Experiment geben. Dies ist in Abbildung 6.1 a) aber bei  $u_i = 0,42114 \text{ nm}^{-1}$  im Gegensatz zum Beispiel mit  $u_i = 0,37231 \text{ nm}^{-1}$  aus Abbildung 6.1 b) der Fall.

Auch ein während der Aufnahmezeit der Fokusreihe fallender oder schwankender Kathodenstrom kann nicht die Ursache für die Abweichung zwischen Theorie und Experiment in Abbildung 6.1 b) sein, denn die mittleren Bildintensitäten der bei gleicher Belichtungszeit aufgezeichneten Bilder wurden aufgrund einer Defokusabhängigkeit in der mittleren Bildintensität auf 1 normiert. Auf die Defokusabhängigkeit der mittleren Bildintensität wird im Anhang B eingegangen. Außerdem ist auch hier anzuführen, dass im Falle, dass ein fallender oder schwankender Kathodenstrom oder Intensitätsschwankungen im allgemeinen für die in Abbildung 6.1 b) beobachteten Unregelmäßigkeiten zwischen Theorie und Experiment verantwortlich gemacht werden könnten, nicht in derselben Kontrast-Transfer-Charakteristik bei

einer anderen Raumfrequenz eine sehr gute Übereinstimmung zwischen Theorie und Experiment erreicht werden könnte, was aber z. B. in Abbildung 6.1 a) der Fall ist. Da der Höhenunterschied zwischen den zur Nullstelle 0-ter Ordnung benachbarten Maxima also bei bestimmten Raumfrequenzen nach Gleichung (2.70) bzw. Gleichung (2.51) bis (2.53) bei Vernachlässigung des Zusatzparameters  $\eta_z(u_i)$  richtig beschrieben wird und bei anderen Raumfrequenzen nicht, ist diese Abweichung zwischen Theorie und Experiment also scheinbar abhängig von der Probe und der Raumfrequenz.

In Abbildung 6.1 c) sind dieselben experimentellen Messpunkte aus demselben Linescan der Kontrast-Transfer-Charakteristik bei der Raumfrequenz  $u_i = 0,42114 \text{ nm}^{-1}$  eingetragen wie in a), in Abbildung 6.1 d) die Messpunkte aus demselben Linescan derselben Kontrast-Transfer-Charakteristik bei der Raumfrequenz  $u_i = 0,37231 \text{ nm}^{-1}$  wie in b). Die roten Kurven sind über einen Least-Squares-Fit angepasste Funktionen nach Gleichung (2.70) unter Berücksichtigung des Zusatzparameters  $\eta_z(u_i)$  bzw. der Phasenableitung  $\eta'(u)$  in der Einhüllenden  $E_\alpha(u)$ . Man erkennt, dass nun sowohl in Abbildung 6.1 c) bei  $u_i = 0,42114 \text{ nm}^{-1}$ , als auch in Abbildung 6.1 d) bei  $u_i = 0,37231 \text{ nm}^{-1}$  die durch die Anpassung erhaltenen theoretischen Kurven sehr gut mit den experimentellen Verläufen der Linescans aus den Kontrast-Transfer-Charakteristiken übereinstimmen. Dies bestätigt also unseren Ansatz, dass die Phasenableitung  $\eta'(u)$  in der Einhüllenden  $E_\alpha(u)$  berücksichtigt werden und für die Beschreibung dieser Einhüllenden Gleichung (2.22) durch Gleichung (2.60) ersetzt werden muss.

## 6.2 Vergleich der Ergebnisse für den Zusatzparameter und die Phasenableitung

In diesem Kapitel werden Messergebnisse für den Zusatzparameter  $\eta_z(u)$  diskutiert, der durch die Parametervariation in einem Least-Squares-Fit-Verfahren aus der Analyse der elastisch gefilterten Kontrast-Transfer-Charakteristiken bei der Bestimmung der Phase  $\eta(u)$  und des Zwei-Teilchen-Strukturfaktors  $S(u)$  nach Kapitel 2.6 mitbestimmt wurde. Nach den Ausführungen in Kapitel 2.4 vermuten wir zwischen der

Ableitung  $\eta' (u)$  der Phase  $\eta (u)$  und den Zusatzparameter  $\eta_z (u)$  den Zusammenhang

$$\eta' (u) = 2\pi\lambda \cdot \eta_z (u). \quad (6.1)$$

Der bei den Bestimmungen der obigen Phasen  $\eta (u)$  ermittelte Zusatzparameter  $\eta_z (u)$  wurde deshalb gemäß Gleichung (6.1) umgerechnet und somit das experimentelle Ergebnis  $\eta'_{Par} (u)$  für die Ableitung der Phase bestimmt, die in diesem Abschnitt aufgrund von Gleichung (6.1) „experimentelle Phasenableitung“ genannt wird. Die Berechtigung dafür und der damit zusammenhängende vermutete Zusammenhang aus Gleichung (6.1) soll in diesem Abschnitt überprüft werden.

Abbildung 6.2 a) und b) zeigen die experimentellen Ergebnisse  $\eta'_{Par} (u)$  für eine Kohlenstoff- bzw. eine an Luft oxidierte Germaniumprobe bei einer Beschleunigungsspannung von 80 kV bzw. 297 kV. Durch die Messpunkte wurden geglättete Kurven nach dem Verfahren des gleitenden Durchschnitts gelegt, die dann in Abbildung 6.2 c) und d) mit den entsprechenden Messergebnissen der Phase  $\eta (u)$  verglichen werden, die sich nach der Methode aus Kapitel 2.6 ergaben. Die experimentellen Ableitungen aus Abbildung 6.2 fallen rapide mit steigender Raumfrequenz und erreichen bei einer Raumfrequenz von ca.  $0,2 \text{ nm}^{-1}$  bzw.  $0,3 \text{ nm}^{-1}$  negative Werte. Danach weisen die Ableitungen Oszillationen und Schwankungen auf. Was die Interpretation der experimentellen Phasenableitungen  $\eta'_{Par} (u)$  erschwert, ist ihr auffälliges Rauschen, das sie trotz einer Glättung beinhalten.

Um ohne das Problem des Rauschens in  $\eta'_{Par} (u)$  zunächst einen qualitativen Überblick zu bekommen, wie gut die experimentelle Phasenableitung  $\eta'_{Par} (u)$  das Phasenverhalten beschreibt, sind in den Abbildungen 6.2 c) und d) zum einen die geglätteten experimentellen Phasen  $\eta (u)$  der jeweiligen Proben aus Abbildung 6.2 a) und b) eingetragen, zum anderen die geglätteten experimentellen Ableitungen  $\eta'_{Par} (u)$ . Die gestrichelten Linien in den Abbildungen 6.2 c) und d), sollen den Zusammenhang zwischen lokalem Phasenmaximum bzw. Phasenminimum auf der einen Seite und Nulldurchgang der experimentellen Phasenableitung auf der anderen Seite verdeutlichen. Im Bereich kleiner Raumfrequenzen steigen in beiden Abbildungen die Phasen an bis sie ungefähr die mit „A“ markierte Linie erreichen, während in diesem Raumfrequenzbereich die Phasenableitungen positive Werte annehmen. Bis zum Erreichen der mit „B“ markierten Linie ändert sich im groben die Phase nicht, sondern

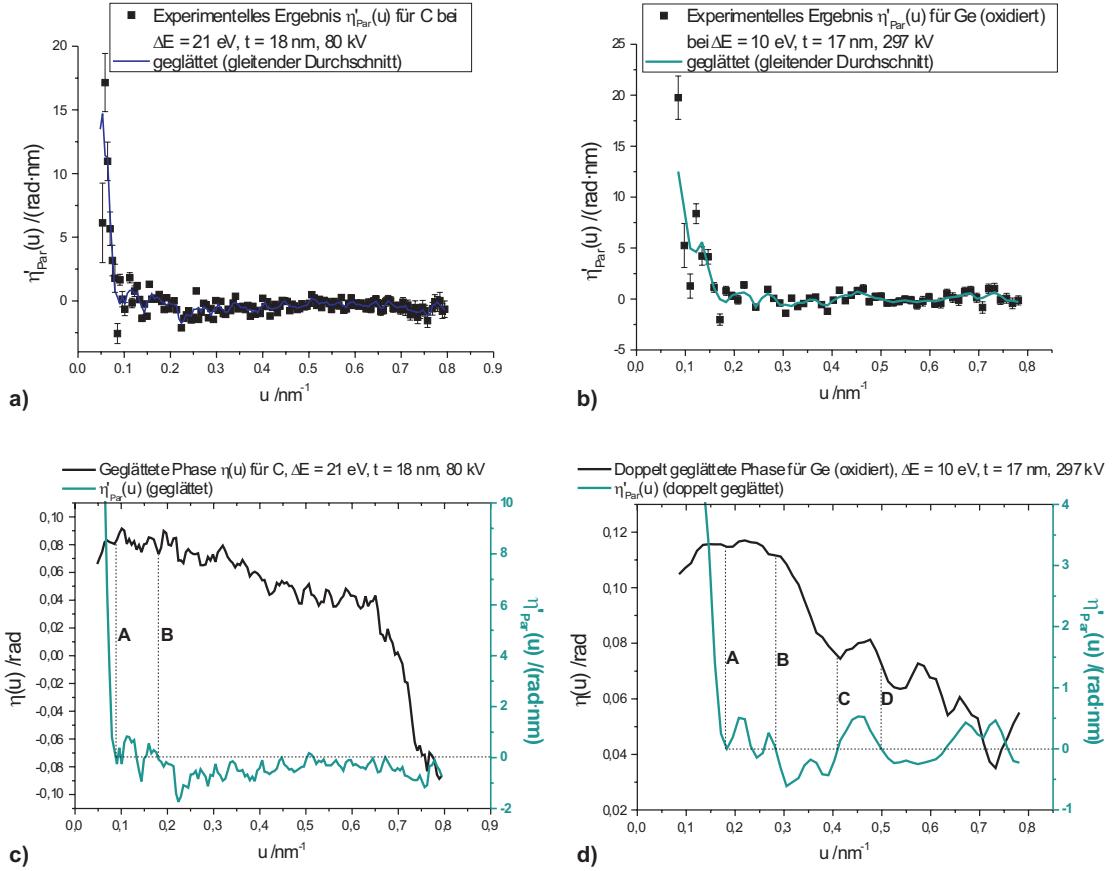


Abbildung 6.2: Ergebnisse für die mit dem Zusatzparameter  $\eta_z(u)$  experimentell bestimmten Phasenableitungen  $\eta'_{Par}(u)$ : a) von einer 18 nm dicken Kohlenstoffprobe bei 80 kV bei elastischer Filterung mit einer Energiespaltbreite  $\Delta E = 21 \text{ eV}$ ; b) von einer 17 nm dicken oxidierten Germaniumprobe bei 297 kV bei elastischer Filterung mit einer Energiespaltbreite  $\Delta E = 10 \text{ eV}$ ; c) Vergleich der in a) eingetragenen geglätteten experimentellen Phasenableitung mit dem entsprechenden experimentellen Resultat für die Phase  $\eta(u)$  für Kohlenstoff; d) Vergleich der aus den Daten aus b) resultierenden doppelt geglätteten experimentellen Phasenableitung mit dem entsprechenden experimentellen Resultat für die Phase  $\eta(u)$  für die oxidierte Germaniumprobe.

durchläuft ihr lokales Maximum. Gleichzeitig nehmen dort die Phasenableitungen schwankende Werte um Null an. Im Falle des Kohlenstoffs in Abbildung 6.2 c) nimmt dann die Phase in Richtung höherer Raumfrequenzen prinzipiell kontinuierlich ab, während die Phasenableitung negative Werte annimmt. Die Phase des oxidierten

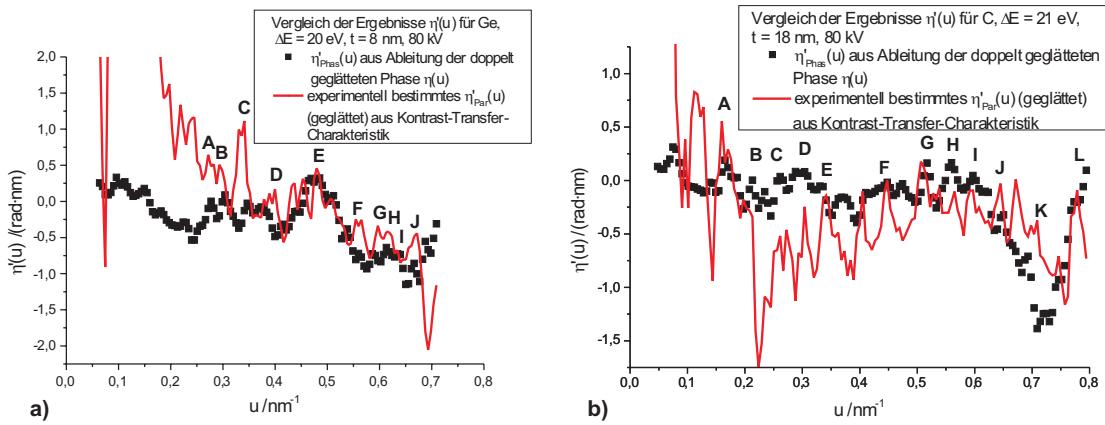


Abbildung 6.3: Ergebnisse für die mit dem Zusatzparameter  $\eta_z(u)$  experimentell bestimmten geglätteten Phasenableitungen  $\eta'_{\text{Par}}(u)$  und Resultate für die aus den experimentellen doppelt geglätteten Phasen  $\eta(u)$  berechneten Phasenableitungen  $\eta'_{\text{Phas}}(u)$  für Germanium und Kohlenstoff bei 80 kV: a) Ergebnisse für eine 8 nm dicke amorphe Germaniumfolie bei einer verwendeten Energiespaltbreite  $\Delta E = 20 \text{ eV}$  bei der elastischen Filterung; b) Ergebnisse für eine 18 nm dicke amorphe Kohlenstofffolie bei einer verwendeten Energiespaltbreite  $\Delta E = 21 \text{ eV}$  bei der elastischen Filterung.

Germaniums in Abbildung 6.2 d) erreicht an der mit „C“ markierten Linie ein lokales Minimum, die Phasenableitung nimmt ungefähr an dieser Linie einen Wert von Null an und erreicht danach positive Werte bis hin zur mit „D“ gekennzeichneten Linie, wo sie einen Nulldurchgang besitzt, der im Großen zu dem nächsten lokalen Maximum der experimentellen Phase passt, allerdings von der Lage dieses lokalen Maximums eine leichte Abweichung besitzt. Qualitativ wird also der Zusammenhang zwischen Phase  $\eta(u)$  und Ableitung  $\eta'(u)$  durch die experimentellen Phasenableitungen  $\eta'_{\text{Par}}(u)$  zumindest bis zu einer Raumfrequenz von ca.  $0,5$  bis  $0,6 \text{ nm}^{-1}$  richtig beschrieben, vor allem was den Nulldurchgang der Phasenableitung betrifft.

Abbildung 6.3 a) zeigt den Vergleich zwischen der geglätteten experimentellen Phasenableitung  $\eta'_{\text{Par}}(u)$ , die aus den Ergebnissen des Zusatzparameters bestimmt wurde, und der Phasenableitung  $\eta'_{\text{Phas}}(u)$  für eine 8 nm dicke amorphe Germaniumfolie bei einer Beschleunigungsspannung von 80 kV. Die Phasenableitung  $\eta'_{\text{Phas}}(u)$  wurde dabei hier wie auch in den anderen in diesem Abschnitt dargestellten Fällen

len durch Ableitung der zugehörigen doppelt geglätteten experimentell bestimmten Phase  $\eta(u)$  berechnet. Im Raumfrequenzbereich  $0,06 \text{ nm}^{-1} < u < 0,25 \text{ nm}^{-1}$  ist die Abweichung zwischen  $\eta'_{Par}(u)$  und  $\eta'_{Phas}(u)$  sehr groß. Die Ursache dafür ist aber wohl eher in einer schwachen Abhängigkeit der Intensität der Kontrast-Transfer-Charakteristik gemäß Gleichung (2.70) vom Zusatzparameter  $\eta_z(u)$  im in den Untersuchungen verwendeten Defokusbereich von ca.  $-3500 \text{ nm} < u < 3500 \text{ nm}$  innerhalb des Raumfrequenzbereiches  $0,06 \text{ nm}^{-1} < u < 0,2 \text{ nm}^{-1}$  zu suchen. Dies soll am Ende dieses Abschnitts dokumentiert und erläutert werden. Die im anschließenden Raumfrequenzbereich in  $\eta'_{Phas}(u)$  auftretenden lokalen Maxima sind mit den Buchstaben „A“ - „J“ markiert. Diese sind in der aus dem Zusatzparameter resultierenden Phasenableitung  $\eta'_{Par}(u)$  an nahezu den gleichen Stellen trotz des auch hier vorhandenen Rauschens wiederzufinden. Die größten Abweichungen in dieser Anordnung der Maxima sind dabei durch die große Höhe des Peaks „C“ in  $\eta'_{Par}(u)$  und in einer leichten Verschiebung des Maximums „F“ von  $\eta'_{Par}(u)$  in Richtung höherer Raumfrequenzen gegeben. Die nächste bemerkenswerte Abweichung tritt dann erst ab einer Raumfrequenz von ca.  $0,68 \text{ nm}^{-1}$  hinter dem lokalen Maximum „J“ ein. Trotz des Rauschens in  $\eta'_{Par}(u)$  und der oben beschriebenen Art der Abweichungen zwischen der aus der experimentellen Phase  $\eta(u)$  berechneten und der aus dem Zusatzparameter bestimmten Phasenableitung ist das Maß der Übereinstimmung dieser beiden Resultate im Raumfrequenzbereich  $0,25 \text{ nm}^{-1} < u < 0,70 \text{ nm}^{-1}$  so groß, dass dieses Ergebnis und das schon in Abbildung 6.2 gezeigte Ergebnis die Vermutung aus den Gleichungen (6.1) und (2.60) stützen.

Auch Abbildung 6.3 b) soll einen Hinweis in diese Richtung geben, in der die geglättete experimentelle aus dem Zusatzparameter erhaltene Phasenableitung  $\eta'_{Par}(u)$  mit der experimentellen Phasenableitung  $\eta'_{Phas}(u)$ , die aus der Ableitung der gemessenen Phase  $\eta(u)$  resultiert, für eine 18 nm dicke Kohlenstofffolie bei einer Beschleunigungsspannung von 80 kV verglichen wird. Hier ist der Bereich kleiner Raumfrequenzen  $0,06 \text{ nm}^{-1} < u < 0,15 \text{ nm}^{-1}$  aus oben erwähnten Gründen durch Abweichungen der beiden Resultate charakterisiert. Im Bereich  $0,2 \text{ nm}^{-1} < u < 0,4 \text{ nm}^{-1}$  zeigt die aus dem Zusatzparameter bestimmte Phasenableitung  $\eta'_{Par}(u)$  am Anfang einen starken Ausreißer in Richtung negativer Werte und tendiert innerhalb dieses Raumfrequenzbereiches generell zu niedrigeren Werten als die Phasenableitung  $\eta'_{Phas}(u)$ .

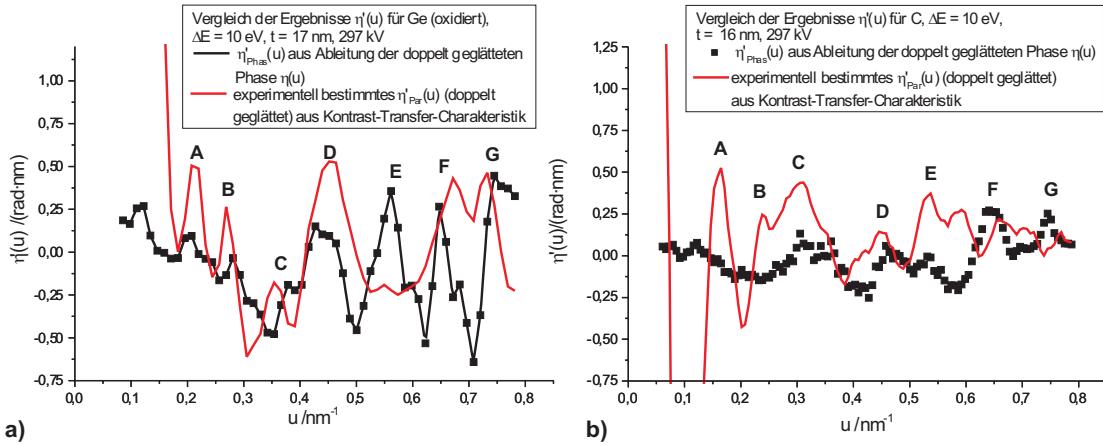


Abbildung 6.4: Ergebnisse für die mit dem Zusatzparameter  $\eta_z(u)$  experimentell bestimmten Phasenableitungen  $\eta'_{\text{Par}}(u)$  und Resultate für die aus den experimentellen doppelt geglätteten Phasen  $\eta(u)$  berechneten Phasenableitungen  $\eta'_{\text{Phas}}(u)$  für eine oxidierte Germaniumfolie und einen Kohlenstofffilm bei 297 kV: a) Ergebnisse für eine 17 nm dicke amorphe oxidierte Germaniumfolie bei einer verwendeten Energiespaltbreite  $\Delta E = 10 \text{ eV}$  bei der elastischen Filterung; b) Ergebnisse für eine 16 nm dicke amorphe Kohlenstofffolie bei einer verwendeten Energiespaltbreite  $\Delta E = 10 \text{ eV}$  bei der elastischen Filterung; in a) und b) wurde  $\eta'_{\text{Par}}(u)$  nach dem Verfahren des gleitenden Durchschnitts doppelt geglättet.

Trotzdem sind die in  $\eta'_{\text{Phas}}(u)$  markierten lokalen Maxima „A“ - „L“ auch in der Phasenableitung  $\eta'_{\text{Par}}(u)$  nahezu an den gleichen Stellen zu lokalisieren. Trotz des Rauschens in  $\eta'_{\text{Par}}(u)$  ist die Übereinstimmung zwischen den beiden experimentellen Ableitungen  $\eta'_{\text{Par}}(u)$  und  $\eta'_{\text{Phas}}(u)$  im Bereich  $0,5 \text{ nm}^{-1} < u < 0,8 \text{ nm}^{-1}$  hoch, besonders was das lokale Minimum zwischen den lokalen Maxima „K“ und „L“ angeht, auch wenn dieses in  $\eta'_{\text{Par}}(u)$  etwas in Richtung hoher Raumfrequenzen verschoben ist.

Bisher haben wir nur bei einer Beschleunigungsspannung von 80 kV die aus dem Zusatzparameter bestimmte Phasenableitung  $\eta'_{\text{Par}}(u)$  mit der aus der gemessenen Phase berechneten  $\eta'_{\text{Phas}}(u)$  verglichen. In Abbildung 6.4 a) wird dies bei 297 kV für eine oxidierte 17 nm dicke amorphe Germaniumfolie, in Abbildung 6.4 b) für eine 16 nm dicke amorphe Kohlenstofffolie getan. Für den Raumfrequenzbereich  $0,06 \text{ nm}^{-1} < u < 0,2 \text{ nm}^{-1}$  zeigen sich wieder große Abweichungen zwischen den

Ableitungsergebnissen  $\eta'_{Phas}(u)$  und  $\eta'_{Par}(u)$ , deren Ursache schon erwähnt und am Ende dieses Abschnitts noch näher erläutert werden soll. In Abbildung 6.4 a) ist für den anschließenden Raumfrequenzbereich  $0,2 \text{ nm}^{-1} < u < 0,8 \text{ nm}^{-1}$  die Übereinstimmung zwischen  $\eta'_{Par}(u)$  und  $\eta'_{Phas}(u)$  bezüglich der Lage der Extremstellen gut. In den Höhen der lokalen Extrema gibt es an einigen Stellen relativ große Unterschiede, was sich in einem zu hohen Maximum „D“, einem zu niedrigen Maximum „E“, einem zu niedrigen lokalen Minimum zwischen den Maxima „F“ und „G“ und einem anschließenden zu starken Abfall mit wachsender Raumfrequenz in der Ableitung  $\eta'_{Par}(u)$  zeigt.

Die Phasenableitungen  $\eta'_{Par}(u)$  und  $\eta'_{Phas}(u)$  weisen in Abbildung 6.4 b) erst Gemeinsamkeiten ab einer Raumfrequenz von ca.  $0,25 \text{ nm}^{-1}$  und dem mit „C“ gekennzeichneten lokalen Maximum auf. Dieses ist in  $\eta'_{Par}(u)$  zwar höher als in  $\eta'_{Phas}(u)$ , liegt aber ungefähr an der gleichen Stelle und besitzt dort eine ähnliche Breite. Auch die lokalen Maxima „D“ - „G“ finden sich an ungefähr den gleichen Stellen in beiden Ergebnissen. Unterschiede finden sich bei  $\eta'_{Par}(u)$  in einem im Vergleich zu  $\eta'_{Phas}(u)$  zu hohen Peak „E“ und in zwei Maxima, die in  $\eta'_{Phas}(u)$  nicht vorhanden sind und die sich zwischen „E“ und „F“ und zwischen „F“ und „G“ befinden. Was bei der Beurteilung der Güte der Übereinstimmung und der Stärke der erwähnten Abweichungen berücksichtigt werden sollte, ist der Umstand, dass es in Abbildung 6.4 b) um sehr kleine Ableitungen geht, die im Raumfrequenzbereich  $> 0,2 \text{ nm}^{-1}$  größtenteils in einem Intervall  $-0,25 \text{ rad} \cdot \text{nm} < u < 0,5 \text{ rad} \cdot \text{nm}$  liegen.

An dieser Stelle soll erörtert werden, warum bei unseren Experimenten bei kleinen Raumfrequenzen von ca.  $0,06 \text{ nm}^{-1} < u < 0,2 \text{ nm}^{-1}$  große Abweichungen zwischen  $\eta'_{Phas}(u)$  und  $\eta'_{Par}(u)$  auftreten. Für die Erstellung der Kontrast-Transfer-Charakteristiken wurden Fokusreihen der amorphen Filme aufgenommen, bei denen die Defokuswerte  $\Delta f$  der Einzelbilder in der Regel innerhalb eines Intervalls  $-3500 \text{ nm} < \Delta f < 3500 \text{ nm}$  lagen. Im Falle der Untersuchungen bei 80 kV war das Intervall teilweise sogar kleiner, da dort ein kleinerer Defokusschritt zwischen den Einzelbildern gewählt wurde als bei 297 kV. Bei kleinen Raumfrequenzen mit ca.  $u < 0,2 \text{ nm}^{-1}$  sind in Linescans zu Kontrast-Transfer-Charakteristiken dann innerhalb derartiger Defokusintervalle noch keine vollständig ausgeprägten Maxima zu sehen, so dass in diesen Fällen innerhalb dieser Defokusbereiche die Abhän-

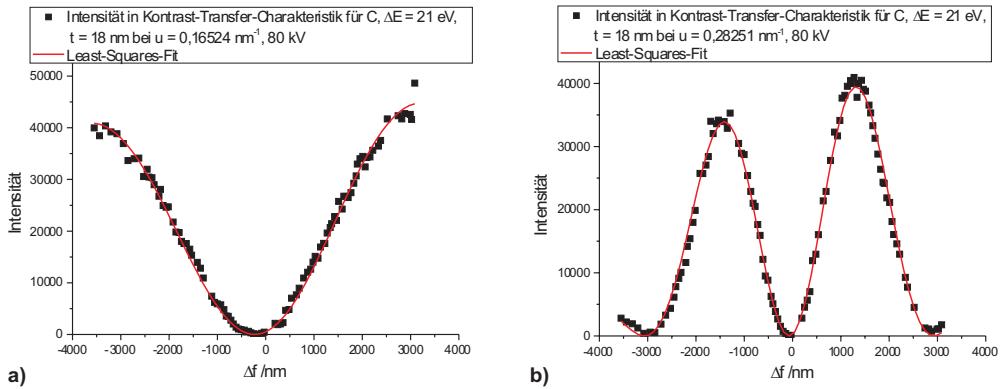


Abbildung 6.5: Intensitäten in Least-Squares-Fits und Linescans zu einer Kontrast-Transfer-Charakteristik einer ca. 18 nm dicken Kohlenstoffprobe bei einer Beschleunigungsspannung von 80 kV und einer verwendeten Energiespaltbreite  $\Delta E = 21 \text{ eV}$  bei der elastischen Filterung: a) bei einer Raumfrequenz  $u = 0,16524 \text{ nm}^{-1}$  mit den Parametern  $\eta(u_i) = 0,082 \text{ rad} \pm 0,004 \text{ rad}$ ,  $K_{u_i} = 75100 \pm 400$ ,  $\eta_z(u_i) = 8,46 \pm 6,53$  aus der Anpassung nach Gleichung (2.70); b) bei einer Raumfrequenz  $u = 0,28251 \text{ nm}^{-1}$  mit den Parametern  $\eta(u_i) = 0,075 \text{ rad} \pm 0,005 \text{ rad}$ ,  $K_{u_i} = 46100 \pm 300$ ,  $\eta_z(u_i) = -50,62 \pm 5,06$  aus der Anpassung nach Gleichung (2.70). Der Konvergenzhalbwinkel in a) und b) war  $\alpha = 0,22 \text{ mrad}$ .

gigkeit der Kontrast-Transfer-Charakteristik nach Gleichung (2.70) bezüglich des Parameters  $\eta_z(u)$ , der ja nach Gleichung (2.60) in der Einhüllenden  $E_\alpha(u)$  steckt, nur schwach ist. Für eine Bestimmung der Einhüllenden wäre die Sichtbarkeit der Maxima von großer Bedeutung. Abbildung 6.5 zeigt zwei Linescans und die dazu gehörigen Least-Squares-Fits für eine Kontrast-Transfer-Charakteristik einer Kohlenstoffprobe bei 80 kV und Abbildung 6.6 zwei Linescans und die dazu gehörigen Least-Squares-Fits einer Kontrast-Transfer-Charakteristik für eine Kohlenstoffprobe bei 297 kV. In den Abbildungen 6.5 a) und 6.6 a), die sich auf Raumfrequenzen von  $0,16524 \text{ nm}^{-1}$  bzw.  $0,21973 \text{ nm}^{-1}$  beziehen, ist noch kein vollständiges Maximum in der Intensität zu sehen und deshalb ist die Abhängigkeit der Intensitäten vom Zusatzparameter  $\eta_z(u)$  in der Einhüllenden, aus dem ja die experimentelle Phasenableitung  $\eta'_{Par}(u)$  berechnet wird, sehr schwach. Dadurch ist in dem Raumfrequenzbereich  $0 \text{ nm}^{-1} < u < 0,2 \text{ nm}^{-1}$  die derartige Bestimmung des Parameters  $\eta_z(u)$  und der damit verbundenen experimentellen Ableitung  $\eta'_{Par}(u)$  ungenau, solange man

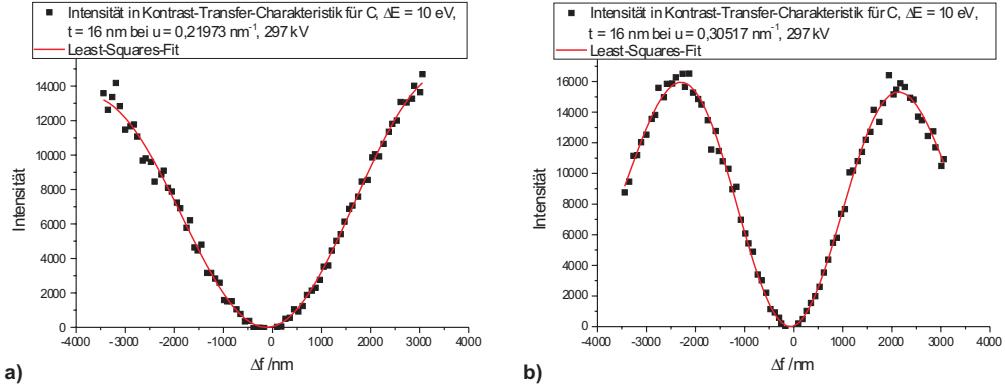


Abbildung 6.6: Intensitäten in Least-Squares-Fits und Linescans zu einer Kontrast-Transfer-Charakteristik einer 16 nm dicken amorphen Kohlenstofffolie bei einer Beschleunigungsspannung von 297 kV und einer verwendeten Energiespaltbreite  $\Delta E = 10 \text{ eV}$  bei der elastischen Filterung: a) bei einer Raumfrequenz  $u = 0,21973 \text{ nm}^{-1}$  mit den Parametern  $\eta(u_i) = 0,037 \text{ rad} \pm 0,004 \text{ rad}$ ,  $K_{u_i} = 30400 \pm 200$ ,  $\eta_z(u_i) = -12,4 \pm 10,3$  aus der Anpassung nach Gleichung (2.70); b) bei einer Raumfrequenz  $u = 0,30517 \text{ nm}^{-1}$  mit den Parametern  $\eta(u_i) = 0,041 \text{ rad} \pm 0,004 \text{ rad}$ ,  $K_{u_i} = 24700 \pm 100$ ,  $\eta_z(u_i) = 40,2 \pm 4,8$  aus der Anpassung nach Gleichung (2.70). Der Konvergenzhalbwinkel in a) und b) war  $\alpha = 0,17 \text{ mrad}$ .

nicht für die Aufzeichnung der Fokusreihe zur Berechnung der Kontrast-Transfer-Charakteristik einen größeren Defokusbereich wählt. Lässt man die hier gewählte Fokusschrittweite, die je nach Experiment 50 nm bis 90 nm betrug, bei einer Vergrößerung des abgedeckten Defokusbereichs konstant, so werden mehr Einzelbilder aufgenommen als vorher und es wird die Bestrahlungsdauer der Probe während der Fokusreihenaufnahme erhöht und die Wahrscheinlichkeit für eine Kontaminationsbildung oder eine Strahlenschädigung der Probe während der Aufnahme erhöht sich, was zu Unsicherheiten in den Messungen von  $\eta(u)$  und  $\eta'_{Par}(u)$  führen kann.

Die Abbildungen 6.5 b) und 6.6 b) zeigen Linescans zu Kontrast-Transfer-Charakteristiken bei einer Raumfrequenz von  $0,28251 \text{ nm}^{-1}$  bzw.  $0,30517 \text{ nm}^{-1}$  und die dazu gehörigen Least-Squares-Fits. Es sind dort jeweils zwei lokale Maxima in den Intensitäten zu sehen, so dass der Einfluss der Einhüllenden  $E_\alpha(u)$  und somit auch der Einfluss des Zusatzparameters  $\eta_z(u)$  messbar ist. Dementsprechend sind hier genauere Werte für die experimentelle Phasenableitung  $\eta'_{Par}(u)$  zu erwarten.

Bezieht man diese Fehlerdiskussion für Raumfrequenzen von ca.  $u < 0,2 \text{ nm}^{-1}$  in die Beurteilung der Ergebnisse für die experimentelle Phasenableitung  $\eta'_{Par}(u)$  mit ein, so zeigen die in diesem Abschnitt vorgestellten Ergebnisse für beide Beschleunigungsspannungen von 297 kV und 80 kV ein erkennbares Maß an Übereinstimmung zwischen den experimentellen Phasenableitungen  $\eta'_{Par}(u)$ , die aus dem Zusatzparameter bestimmt wurde, und  $\eta'_{Phas}(u)$ , die aus der Ableitung der gemessenen Phase stammt, während die Abweichungen bei  $u < 0,2 \text{ nm}^{-1}$  durch obigen Sachverhalt erklärt werden können. Dies kann als Indiz dafür angesehen werden, dass die Vermutung, die Phasenableitung  $\eta'(u)$  stecke über den Zusammenhang aus Gleichung (2.59) bzw. (6.1) in der Einhüllenden  $E_\alpha(u)$  nach Gleichung (2.60), richtig ist. Als experimenteller Beweis reichen diese Ergebnisse allerdings noch nicht aus, da das Rauschen in  $\eta'_{Par}(u)$  Probleme bereitet und bei den Ergebnissen für Silizium bei 297 kV keine zufriedenstellende Übereinstimmung zwischen  $\eta'_{Par}(u)$  und  $\eta'_{Phas}(u)$  beobachtet wurde.

Der Grund dafür sowie für das Rauschen in  $\eta'_{Par}(u)$  kann in einer Strahlenschädigung der Probe oder einer Kontaminationsbildung während der Aufzeichnung der elastisch gefilterten Fokusreihen liegen, aus denen die Kontrast-Transfer-Charakteristiken berechnet wurden. Kürzere Belichtungszeiten pro Bild als 1 s, die hier in der Regel benutzt wurde, würden die Unsicherheiten in den Einzeldiffraktogrammintensitäten erhöhen und würden die Parameterbestimmung bei der Anwendung des Least-Squares-Fit-Verfahrens auf die Kontrast-Transfer-Charakteristik ungenauer machen. Für die experimentelle Beweisführung für Gleichung (6.1) und die These, dass die Phasenableitung  $\eta'(u)$  nach Gleichung (2.60) in der Einhüllenden  $E_\alpha(u)$  zu finden ist, wäre es für die Zukunft sinnvoll, eine amorphe möglichst strahlunempfindliche Probe, die größere Phasen  $\eta(u)$  besitzt als z. B. die hier untersuchten Germaniumproben, nach dem hier in dieser Arbeit vorgestellten Verfahren zu untersuchen. Die gewünschte Probe könnte also aus einer Mischung bestehen, die Elemente höherer Ordnungszahl enthält. Durch eine relative Strahlunempfindlichkeit kann die Belichtungszeit der Probe erhöht werden, so dass die Anzahl der Einzelbilder in der Fokusserie und somit der durch die Messung abgedeckte Defokusbereich größer wäre. Eine Vergrößerung des Defokusbereiches im Vergleich zu dem hier verwendeten Bereich von ca.  $-3500 \text{ nm} < \Delta f < 3500 \text{ nm}$  würde dazu führen, dass in den

Kontrast-Transfer-Charakteristiken zumindest bis zu einer gewissen Grenze auch bei Raumfrequenzen  $u < 0,2 \text{ nm}^{-1}$  der Einfluss des Parameters  $\eta_z(u)$  messbar wäre. Eine große Phase  $\eta(u)$  hätte den Vorteil, dass die relativen Messunsicherheiten für diese Phase kleiner sind als z. B. bei Kohlenstoff und Silizium und möglicherweise eine zuverlässigere geglättete Kurve durch die Messwerte gelegt werden kann. Die Phasenableitung  $\eta'_{Phas}(u)$  kann dann sicherer aus diesen experimentellen Phasen ermittelt werden. Beide Faktoren würden die Zuverlässigkeit eines Vergleichs zwischen  $\eta'_{Par}(u)$  und  $\eta'_{Phas}(u)$  erhöhen.

Ein weiteres Fazit aus den oben dargestellten Ergebnissen für die experimentelle Phasenableitung ist, dass die dort zu erkennenden Oszillationen zwischen positiven und negativen Werten in  $\eta'_{Par}(u)$  und die Tendenz von  $\eta'_{Par}(u)$ , negative Werte bei höheren Raumfrequenzen einzunehmen, die Beobachtungen bei den experimentellen Phasenergebnissen  $\eta(u)$  aus Kapitel 5.1 - 5.3 stützen, in denen in der Regel ein Abfall mit wachsender Raumfrequenz zu sehen ist, der von Oszillationen überlagert ist.

## Kapitel 7

# Experimentelle Ergebnisse für die Zwei-Teilchen-Strukturfaktoren

Die in den Abschnitten 7.1 bis 7.3 dieses Kapitels vorgestellten Ergebnisse der Zwei-Teilchen-Strukturfaktoren von amorphen Kohlenstoff-, Silizium- und Germaniumproben beziehen sich auf dieselben Probenstellen wie die Phasenresultate der jeweiligen Proben aus den Kapiteln 5.1 bis 5.3. Es wurden für die Bestimmung der Zwei-Teilchen-Strukturfaktoren  $S(u)$  sowohl elastische Kontrast-Transfer-Charakteristiken nach der Methode aus Kapitel 2.6 ausgewertet, als auch Diffraktogramme von inelastisch gefilterten Aufnahmen und von Elementverteilungsbildern nach dem Verfahren aus Abschnitt 3.5 bzw. 3.6. Eine Diskussion der Messergebnisse wird in Kapitel 7.4 vorgenommen.

### 7.1 Ergebnisse für Kohlenstoff

In Abbildung 7.1 sind die Ergebnisse des Zwei-Teilchen-Strukturfaktors für dieselben Probenstellen derselben Kohlenstofffolie wie in Abbildung 5.2 dargestellt. Die schwarzen Kurven aus Abbildung 7.1 a - c) stammen aus der Analyse der Kontrast-Transfer-Charakteristiken gemäß Kapitel 2.6. Die grünen Kurven aus Abbildung 7.1 a - c) resultieren aus der Auswertung von inelastisch gefilterten Aufnahmen bzw. Elementverteilungsbildern der jeweilig selben Probenstelle mit Hilfe der relativisti-

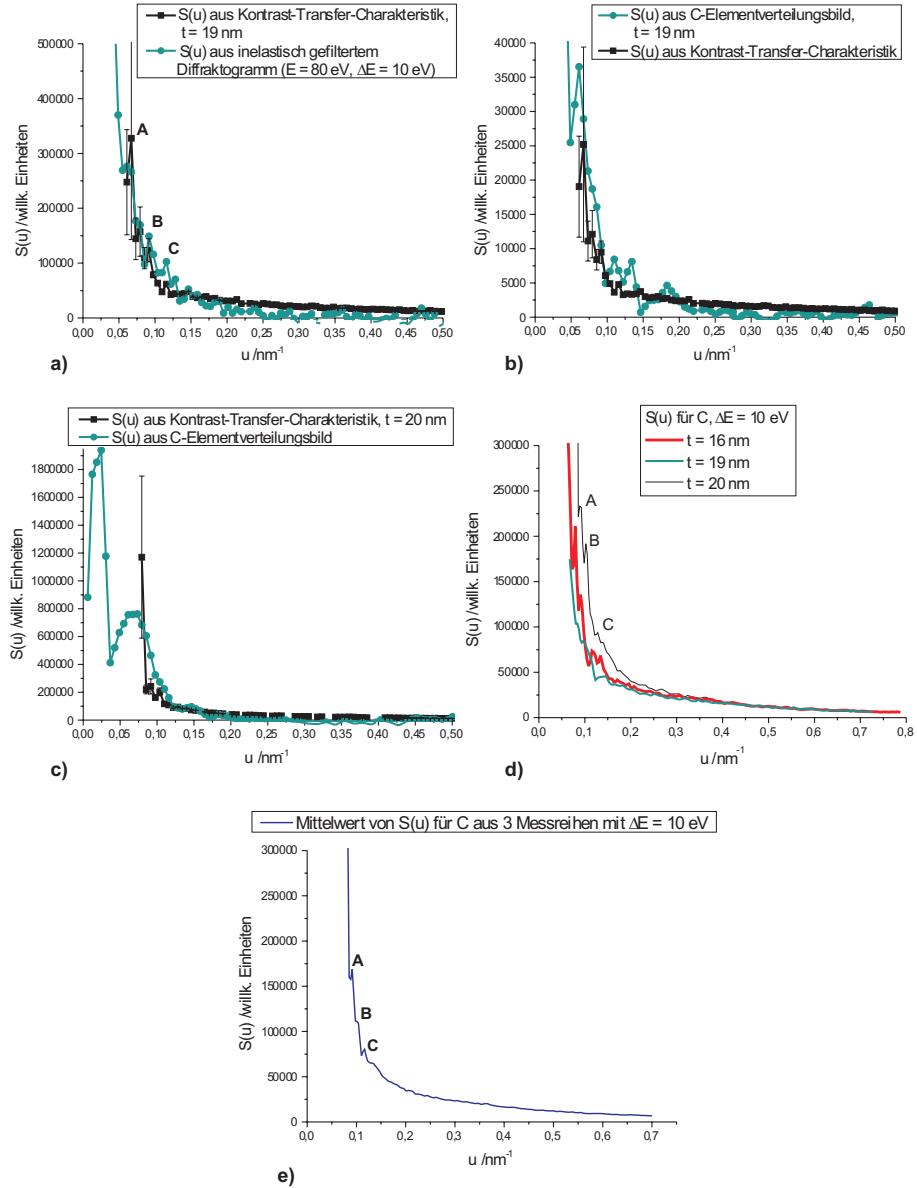


Abbildung 7.1: Ergebnisse für den Zwei-Teilchen-Strukturfaktor  $S(u)$  für Probenstellen der Schichtdicke  $t$  einer Kohlenstofffolie bei 297 kV: a - c) Vergleich von  $S(u)$  aus der Kontrast-Transfer-Charakteristik (schwarz) mit  $S(u)$  aus der Auswertung eines inelastisch gefilterten Diffraktogramms (a) bzw. eines Diffraktogramms des Kohlenstoffverteilungsbildes (b - c) (grün); d)  $S(u)$  aus den Kontrast-Transfer-Charakteristiken für die Probenstellen mit  $t = 16 \text{ nm}$ ,  $19 \text{ nm}$  und  $20 \text{ nm}$ ; e) Mittelwertkurve für  $S(u)$  aus den Einzelmessungen aus d). Für a - e) wurden alle elastisch und inelastisch gefilterten Bilderserien mit einer Energiespaltbreite  $\Delta E = 10 \text{ eV}$  aufgenommen.

schen inelastischen Übertragungsfunktion  $ITF$  nach Abschnitt 3.5 bzw. 3.6, wobei die inelastisch gefilterten Aufnahmen direkt nach der elastisch gefilterten Fokusreihe aufgezeichnet wurden. In Abbildung 7.1 a) wurde zur Bestimmung des Zwei-Teilchen-Strukturfaktors nach dieser Methode ein einzelnes Diffraktogramm aus einer inelastisch gefilterten Aufnahme bei einem Energieverlust  $E = 80 \text{ eV}$  und einer Energiespaltbreite  $\Delta E = 10 \text{ eV}$  verwendet und gemäß Gleichung (3.24) durch das Betragsquadrat der relativistischen inelastischen Übertragungsfunktion dividiert. Abbildung 7.1 b) bezieht sich auf dieselbe Probenstelle wie Abbildung 7.1 a). Hier wird allerdings der Zwei-Teilchen-Strukturfaktor, der sich aus der Analyse der Kontrast-Transfer-Charakteristik ergibt, mit dem Ergebnis des Zwei-Teilchen-Strukturfaktors verglichen, der aus der Diffraktogrammauswertung des Kohlenstoff-Elementverteilungsbildes gemäß Abschnitt 3.5 bzw. 3.6 stammt. Dazu wurde das bezüglich des Untergrundes und  $MTF_{CCD}(u)$  korrigierte Diffraktogramm des Elementverteilungsbildes durch das Betragsquadrat der relativistischen inelastischen Übertragungsfunktion dividiert.

Für die Bestimmung des Kohlenstoff-Elementverteilungsbildes gemäß Kapitel 3.2 wurden drei Vorkantenbilder bei den Energieverlusten 220 eV, 245 eV, 270 eV und das Signalbild bei einem Energieverlust von 300 eV bei einer Energiespaltbreite von 20 eV aufgenommen, da Kohlenstoff im Elektronen-Energieverlustspektrum bei ca. 284 eV die K-Ionisationskante aufweist [1, 45]. Sowohl in Abbildung 7.1 a), als auch in Abbildung 7.1 b) stimmen die Ergebnisse für den Zwei-Teilchen-Strukturfaktor aus der Kontrast-Transfer-Charakteristik und aus den inelastischen Aufnahmen sehr gut überein. Die mit „A“, „B“ und „C“ gekennzeichneten lokalen Maxima in Abbildung 7.1 a) sind dort in beiden Kurven zu sehen und auch das Maximum bei einer Raumfrequenz von ca.  $0,06 \text{ nm}^{-1}$  ist in Abbildung 7.1 b) in beiden Verläufen der Messungen für  $S(u)$  enthalten.

Die Übereinstimmungen der auf unterschiedliche Arten bestimmten Resultate für  $S(u)$  bestätigen, dass es im Falle der Zwei-Teilchen-Strukturfaktorbestimmung mit Hilfe der relativistischen inelastischen Übertragungsfunktion gemäß Kapitel 3.5 gerechtfertigt ist, für Proben, die nur aus einem Element bestehen, nur ein einzelnes Diffraktogramm einer inelastisch gefilterten Aufnahme zu verwenden; die Berechnung von Elementverteilungsbildern aus mehreren aufgezeichneten inelastisch gefil-

terten Bildern ist also in diesem Fall nicht unbedingt notwendig.

Abbildung 7.1 c) zeigt den Vergleich der Ergebnisse für  $S(u)$  aus der Kontrast-Transfer-Charakteristik und aus der Auswertung des Diffraktogramms des Elementverteilungsbildes für die Probenstelle der Schichtdicke  $t = 20 \text{ nm}$ . Dabei waren die Parameter für die Bildaufzeichnung zur Bestimmung des Elementverteilungsbildes die gleichen wie im Falle der Probenstelle mit  $t = 19 \text{ nm}$ . Auch hier zeigen die beiden Ergebnisse für  $S(u)$  eine gute Übereinstimmung, wobei allerdings der erste Messpunkt bezüglich  $S(u)$  aus der Kontrast-Transfer-Charakteristik bei einer Raumfrequenz von ca.  $0,06 \text{ nm}^{-1}$  eine recht große Messunsicherheit aufweist. Auf die Ursache für derartige Messunsicherheiten bei sehr kleinen Raumfrequenzen  $u < 0,06 \text{ nm}^{-1}$  wird in Kapitel 7.4 eingegangen.

In Abbildung 7.1 d) werden die Ergebnisse für den Zwei-Teilchen-Strukturfaktor  $S(u)$  aus den Kontrast-Transfer-Charakteristiken für die Probenstellen unterschiedlicher Schichtdicken  $t$  verglichen. Die drei Kurven zeigen eine gute Übereinstimmung, sowohl bezüglich des Abfalls von  $S(u)$  mit steigender Raumfrequenz, als auch bezüglich der Lage der auftretenden lokalen Maxima, die hier mit den Buchstaben „A“, „B“ und „C“ markiert wurden. Die Maxima „A“ und „B“ sind beim Ergebnis von  $S(u)$  für die Schichtdicke  $t = 19 \text{ nm}$  nicht so stark ausgeprägt wie im Falle der anderen beiden Probenstellen, sind jedoch noch deutlich zu erkennen. Das Maximum „C“ ist im Falle  $t = 19 \text{ nm}$  gut erkennbar, jedoch ist dort die Doppelspitze nicht zu erkennen und es ist gegenüber dem Maximum „C“ der anderen beiden Ergebnisse leicht in Richtung höherer Raumfrequenzen verschoben. Dies könnte an lokalen leichten Unterschieden in der Probe oder an Strahlenschädigungen als Folge der während der Fokusreihenaufnahme andauernden Bestrahlung liegen. Betreffend des Maximums „C“ zeigen die Ergebnisse für  $t = 16 \text{ nm}$  und  $t = 20 \text{ nm}$  beide eine Doppelspitze und stimmen gut überein. Die gute Übereinstimmung der Resultate für den Zwei-Teilchen-Strukturfaktor der hier verwendeten Kohlenstofffolien ist ein Indiz dafür, dass die Analyse der Kontrast-Transfer-Charakteristik gemäß Kapitel 2.6 reproduzierbare Ergebnisse für  $S(u)$  liefert.

Wegen der obigen Beobachtung, dass die Verläufe von  $S(u)$  aus Abbildung 7.1 d) sehr ähnlich sind und aufgrund der Tatsache, dass die gemessenen Schichtdicken von 16 nm, 19 nm und 20 nm für die Probenstellen derselben Folie im Rahmen der in

Kapitel 4.2 genannten Messunsicherheit von 20 % übereinstimmen, wurde die Mittelwertkurve für  $S(u)$  aus den Einzelergebnissen aus Abbildung 7.1 d) berechnet. Das Resultat ist in Abbildung 7.1 e) zu sehen. Die beiden lokalen Maxima bzw. Merkmale „A“ und „B“ und das Doppelmaximum „C“ sind in dem gemittelten Ergebnis für den Zwei-Teilchen-Strukturfaktor klar sichtbar. Dabei ist das Maximum „A“ besonders deutlich, während die Kante „B“ und die zweite Spitze des Doppelmaximums „C“ etwas abgeschwächt sind. Die lokalen Maxima bzw. Merkmale „A“ bis „C“ treten bei Raumfrequenzen von ca.  $0,09 \text{ nm}^{-1}$  bis  $0,14 \text{ nm}^{-1}$  auf.

Abbildung 7.2 a - c) zeigt die zu den Phasenergebnissen aus Abbildung 5.3 korrespondierenden Ergebnisse für den Zwei-Teilchen-Strukturfaktor für Kohlenstoff bei der elastisch gefilterten Untersuchung der Kohlenstofffolien bei einer Beschleunigungsspannung von 80 kV am Zeiss EM 902. Die Energiespaltbreiten bei der elastischen Filterung der Aufnahmen betrug 21 eV in Abbildung 7.2 a) und 22 eV in Abbildung 7.2 b). Die lokalen Maxima bzw. Abfolgen von benachbarten Maxima sind mit den Buchstaben „A“ - „D“ gekennzeichnet. Die 18 nm dicke Kohlenstofffolie weist in dem Ergebnis für  $S(u)$  lokale Maxima bei ca.  $0,06 \text{ nm}^{-1}$  („A“),  $0,08 \text{ nm}^{-1}$  („B“) und  $0,1 \text{ nm}^{-1}$  („C“) und eine Gruppe von lokalen Maxima zwischen  $0,12 \text{ nm}^{-1}$  und  $0,19 \text{ nm}^{-1}$  („D“) auf. Auch für die 22 nm dicke Folie wird ein Zwei-Teilchen-Strukturfaktor in Abbildung 7.2 b) gemessen, der ein lokales Maximum bei  $0,1 \text{ nm}^{-1}$  und danach folgende weitere lokale Maxima besitzt.

Abbildung 7.2 c) zeigt die in den Abbildungen 7.2 a) und b) dargestellten Messergebnisse der Zwei-Teilchen-Strukturfaktoren für Kohlenstoff bei einer Beschleunigungsspannung von 80 kV im direkten Vergleich. Das lokale Maximum „A“ bei einer Raumfrequenz von ca.  $0,08 \text{ nm}^{-1}$  ist nur bei der 18 nm dicken Folie zu sehen. Das lokale Maximum „B“ bei ca.  $0,1 \text{ nm}^{-1}$  und die Anordnungen von lokalen Maxima bzw. Merkmalen „C“ und „D“ haben beide Folien gemeinsam, wenn auch die Kante „C“ bei der 22 nm dicken Folie schwach ausgeprägt und verwaschen ist. Bis auf das schmale lokale Maximum „A“ stimmen also beide Ergebnisse für  $S(u)$  sehr gut überein.

Abbildung 7.2 d) vergleicht die Einzelergebnisse des Zwei-Teilchen-Strukturfaktors  $S(u)$  für Kohlenstoff bei den Beschleunigungsspannungen 297 kV und 80 kV für eine 18 nm und eine 20 nm dicke Folie, die also im Rahmen der dargelegten Messunsi-

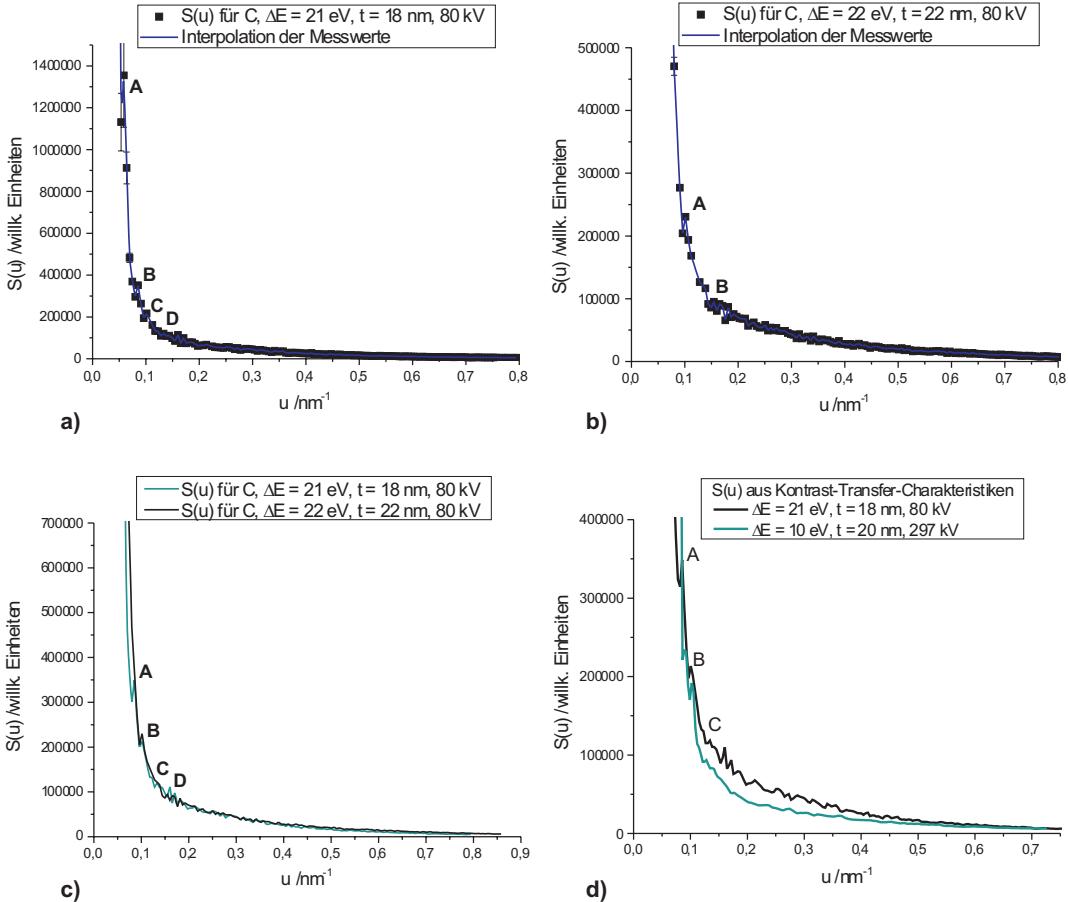


Abbildung 7.2: a - c) Aus den Kontrast-Transfer-Charakteristiken am Zeiss EM 902 mit einer Beschleunigungsspannung von 80 kV bestimmte Zwei-Teilchen-Strukturfaktoren  $S(u)$  für Kohlenstofffolien der Schichtdicke  $t$  bei elastischer Filterung mit einer Energiespaltbreite  $\Delta E$ : a) für  $t = 18 \text{ nm}$  und  $\Delta E = 21 \text{ eV}$ ; b) für  $t = 22 \text{ nm}$  und  $\Delta E = 22 \text{ eV}$ ; c) Ergebnisse aus a) und b) im direkten Vergleich; d) Vergleich der Ergebnisse von  $S(u)$  für Kohlenstoff für die Beschleunigungsspannungen 297 kV und 80 kV aus der Auswertung der Kontrast-Transfer-Charakteristiken für eine 18 nm und eine 20 nm dicke Folie.

cherheiten für die Schichtdicke aus Kapitel 4.2 ungefähr gleich dick sind. Das lokale Maximum „A“ in  $S(u)$  scheint bei 297 kV im Vergleich zu 80 kV leicht in Richtung höherer Raumfrequenzen verschoben. Die Lage des lokalen Maximums „B“ ist beiden Ergebnissen gemein sowie die Lage und Form der Anordnung von lokalen

Maxima „C“, die bis zu einer Raumfrequenz von ca.  $0,14 \text{ nm}^{-1}$  reichen. Obwohl der Abfall von  $S(u)$  bei 80 kV für  $0,1 \text{ nm}^{-1} < u < 0,5 \text{ nm}^{-1}$  etwas schwächer ist als der bei 297 kV, stimmen die beiden Kurven gut überein.

## 7.2 Ergebnisse für Silizium

Die zu den Phasenresultaten aus Abbildung 5.7 gehörenden Ergebnisse für die Zwei-Teilchen-Strukturfaktoren  $S(u)$  zu denselben Probenstellen der Siliziumfolien sind in Abbildung 7.3 dargestellt. Dabei werden in Abbildung a) und b) die Ergebnisse aus den Kontrast-Transfer-Charakteristiken mit denen verglichen, die sich aus der Auswertung inelastisch gefilterter Diffraktogramme mit Hilfe der relativistischen inelastischen Übertragungsfunktion  $ITF$  nach Abschnitt 3.5 bzw. 3.6 ergaben, wobei die inelastisch gefilterten Aufnahmen direkt nach der elastisch gefilterten Fokusreihe aufgezeichnet wurden.

Abbildung 7.3 c) zeigt das Ergebnis für  $S(u)$  aus der Analyse der Kontrast-Transfer-Charakteristik für einen 11 nm dicken Siliziumfilm. Für Abbildung 7.3 d) wurde  $S(u)$  auf drei Arten bestimmt: aus der Kontrast-Transfer-Charakteristik (rot), aus dem Diffraktogramm eines Silizium-Elementverteilungsbildes und der  $ITF$  nach Abschnitt 3.5 bzw. 3.6 (schwarz) und aus dem Diffraktogramm einer einzelnen inelastisch gefilterten Aufnahme und der  $ITF$  (grün). Das Silizium-Elementverteilungsbild wurde dabei nach der in Kapitel 3.2 beschriebenen Methode berechnet, für die drei inelastisch gefilterte Bilder mit einer Energiespaltbreite  $\Delta E = 10 \text{ eV}$  bei den Energieverlusten 75 eV, 90 eV und 135 eV aufgezeichnet wurden. Dabei wurde mit Hilfe der ersten zwei Bilder der Untergrund bestimmt, während das dritte Bild als elementsensitives Bild dient, da Silizium bei ca. 99 eV die L-Ionisationskante im Elektronen-Energieverlustspektrum aufweist und diese nach einer Untergrundkorrektur im Spektrum bei ca. 133 eV ein Maximum zeigt [45].

Die Übereinstimmung zwischen den Ergebnissen für  $S(u)$  aus den Kontrast-Transfer-Charakteristiken und den inelastisch gefilterten Aufnahmen in Abbildung 7.3 a) und b) ist sehr gut. In Abbildung 7.3 d) passen die Ergebnisse für  $S(u)$  aus der Kontrast-Transfer-Charakteristik und dem einzelnen inelastisch gefilterten Diffraktogramm gut zueinander. Im Raumfrequenzbereich  $0 \text{ nm}^{-1} < u < 0,1 \text{ nm}^{-1}$  weist das Er-

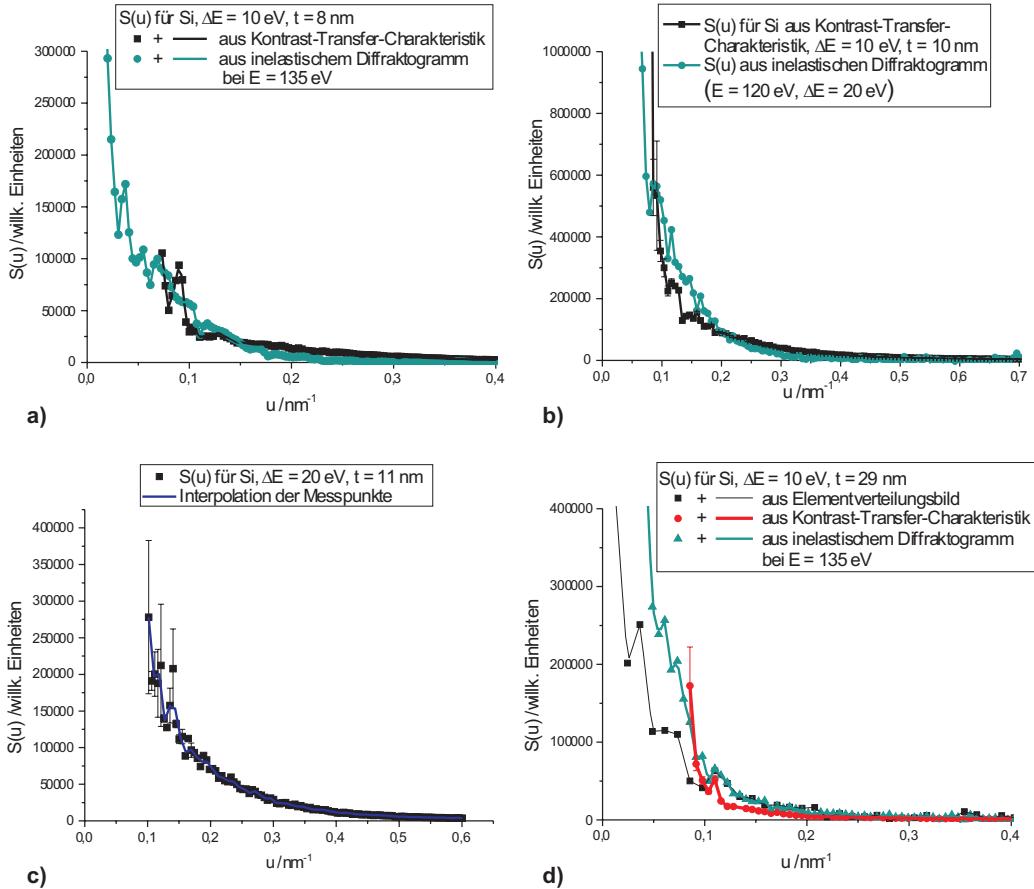


Abbildung 7.3: Experimentelle Ergebnisse für den Zwei-Teilchen-Strukturfaktor  $S(u)$  für amorphe Siliziumproben unterschiedlicher Schichtdicken  $t$  bei 297 kV: a) Vergleich von  $S(u)$  aus der Analyse der Kontrast-Transfer-Charakteristik (schwarz) mit  $S(u)$  aus der Auswertung eines inelastisch gefilterten Diffraktogramms bei einem Energieverlust  $E$  von 135 eV (grün) für  $t = 8 \text{ nm}$ ; b) Vergleich von  $S(u)$  aus der Analyse der Kontrast-Transfer-Charakteristik (schwarz) mit  $S(u)$  aus der Auswertung eines inelastisch gefilterten Diffraktogramms bei einem Energieverlust  $E = 120 \text{ eV}$  (grün) für  $t = 10 \text{ nm}$ ; c)  $S(u)$  aus der Analyse der Kontrast-Transfer-Charakteristik zur Folie mit  $t = 11 \text{ nm}$ ; d) Vergleich von drei Ergebnissen für  $S(u)$  für eine 29 nm dicke Folie aus der Auswertung der Kontrast-Transfer-Charakteristik (rot), des Silizium-Elementverteilungsbildes (schwarz) und eines einzelnen inelastisch gefilterten Diffraktogramms bei einem Energieverlust  $E = 135 \text{ eV}$  (grün). In a - d) kennzeichnet  $\Delta E$  die Energiespaltbreite, mit der die elastisch gefilterten Fokusreihen für die Kontrast-Transfer-Charakteristiken bzw. die inelastisch gefilterten Bilder aufgezeichnet wurden.

gebnis, das sich aus der Auswertung des Elementverteilungsbildes ergibt, einen mit steigender Raumfrequenz fallenden Verlauf auf, der im Vergleich zu den anderen beiden Ergebniskurven zwar ähnlich stark, jedoch leicht in Richtung kleiner Raumfrequenzen verschoben zu sein scheint. Für Raumfrequenzen  $u > 0,1 \text{ nm}^{-1}$  liegt der Verlauf von  $S(u)$  jedoch fast genau auf der Ergebniskurve, die sich aus der Auswertung des inelastischen Einzeldiffraktogramms ergibt und passt auch sehr gut zu dem Resultat aus der Kontrast-Transfer-Charakteristik, inklusive des Peaks bei einer Raumfrequenz von ca.  $0,11 \text{ nm}^{-1}$ .

Der erwähnte Unterschied im Raumfrequenzbereich  $0 \text{ nm}^{-1} < u < 0,1 \text{ nm}^{-1}$  könnte in einer Oxidation der Proben begründet sein, die bei Silizium bei Kontakt mit Luft an der Oberfläche auf jeden Fall eintritt. Im Elementverteilungsbild wird aufgrund der Untergrundkorrektur gemäß Kapitel 3.2 das reine Siliziumsignal wiedergegeben, was bei einer inelastisch gefilterten Aufnahme bei 135 eV nicht der Fall sein muss: zwar liegt die K-Ionisationskante für Sauerstoff im EEL-Spektrum mit ca. 532 eV [45] oberhalb der Energieverluste der hier für die Auswertung aufgezeichneten inelastisch gefilterten Bilder, jedoch werden die niederenergetischen Plasmonenverluste auch durch den in der Probe enthaltenen Sauerstoff beeinflusst. In dem hier verwendeten Energieverlustbereich um 135 eV für das elementsensitive Bild für Silizium ist der Einfluss der Plasmonpeaks noch messbar. Dieser wurde in dem inelastisch gefilterten Einzelbild, aus dem das Diffraktogramm und in Abbildung 7.3 d) mit Hilfe der relativistischen inelastischen Übertragungsfunktion der Zwei-Teilchen-Strukturfaktor bestimmt wurde, nicht berücksichtigt. Deswegen kommt im Raumfrequenzbereich  $0 \text{ nm}^{-1} < u < 0,1 \text{ nm}^{-1}$ , in dem Unterschiede zwischen den Ergebnissen für  $S(u)$  zu erkennen sind, dem Resultat aus der Auswertung des Silizium-Elementverteilungsbildes die größte Verlässlichkeit zu.

Abbildung 7.4 a) zeigt die aus der Auswertung der Kontrast-Transfer-Charakteristiken stammenden Ergebnisse für den Zwei-Teilchen-Strukturfaktor  $S(u)$  für die in Abbildung 5.8 bezüglich der Phase  $\eta(u)$  untersuchten Siliziumproben. Bezuglich des Verlaufes von  $S(u)$  stimmen diese Ergebnisse sehr gut überein, obwohl die korrespondierenden Messergebnisse für die Phase  $\eta(u)$  in Abbildung 5.8 teilweise Unterschiede aufwiesen. Der Vollständigkeit halber sei hier darauf hingewiesen, dass das Ergebnis für  $S(u)$  für die 29 nm dicke Folie in Abbildung 7.4 mit einem Skalie-

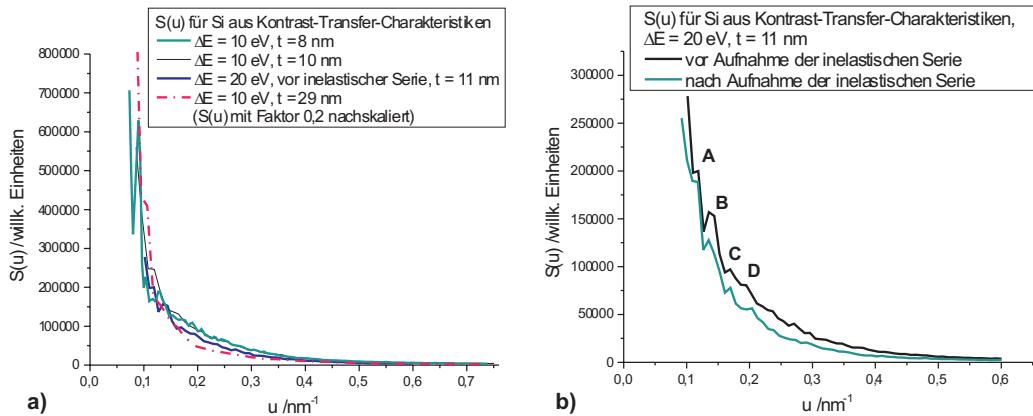


Abbildung 7.4: Experimentelle Ergebnisse für die Zwei-Teilchen-Strukturfaktoren  $S(u)$  für amorphe Siliziumproben aus der Auswertung von elastisch gefilterten Kontrast-Transfer-Charakteristiken bei 297 kV: a) für die Folien der Schichtdicke 8 nm, 10 nm, 11 nm und 29 nm, auf die sich die Phasenergebnisse aus Abbildung 5.8 beziehen; das Ergebnis zum 29 nm dicken Film wurde mit dem Faktor 0,2 für diese Darstellung multipliziert; b) Vergleich der Ergebnisse für  $S(u)$  zu den korrespondierenden Phasenergebnissen aus Abbildung 5.8 b) für die 11 nm dicke Siliziumfolie; die Ergebnisse für diese Folie beziehen sich auf die gleiche Probenstelle, und resultieren aus der Analyse zweier elastisch gefilterter Kontrast-Transfer-Charakteristiken, zwischen denen zeitlich eine inelastisch gefilterte Bilderserie aufgezeichnet wurde. Das Ergebnis für  $S(u)$  aus den Daten vor Aufnahme der inelastisch gefilterten Serie ist zum besseren Vergleich hier sowohl in a) als auch in b) dargestellt.  $\Delta E$  kennzeichnet die Energiespaltbreite, die zur elastischen Filterung bei den Fokusreihenaufnahmen verwendet wurde.

rungsfaktor von 0,2 multipliziert wurde.

In Abbildung 7.4 b) werden die Ergebnisse für  $S(u)$  für den 11 nm dicken Film verglichen, die aus der Analyse der zwei unterschiedlichen elastisch gefilterten Fokusreihen von der gleichen Probenstelle stammen, wobei zwischen der Aufzeichnung

der beiden Fokusreihen die Probe durch eine Aufnahme inelastisch gefilterter Bilder starker Elektronenbestrahlung ausgesetzt war. Zwar fällt das Resultat für  $S(u)$ , das zu der zeitlich später aufgenommenen Fokusreihe gehört, mit steigender Raumfrequenz ein wenig stärker ab, jedoch stimmen beide Ergebnisse sowohl im prinzipiellen Verlauf als auch bezüglich ihrer lokalen Maxima, die hier mit „A“, „B“, „C“ und „D“ gekennzeichnet sind und die im Raumfrequenzbereich  $0,1 \text{ nm}^{-1} < u < 0,2 \text{ nm}^{-1}$  liegen, gut überein. Im Gegensatz dazu wurde bei den dazu gehörigen Phasenergebnissen aus Abbildung 5.8 b) ein leichter Unterschied bezüglich des Abfalls der Phase mit steigender Raumfrequenz festgestellt.

### 7.3 Ergebnisse für Germanium

Abbildung 7.5 a - b) zeigt die Ergebnisse für den Zwei-Teilchen-Strukturfaktor  $S(u)$  zu denselben Probenstellen der Germaniumfilme wie in Abbildung 5.11 a) bzw. b). Dabei wird in jeder Teilabbildung das Ergebnis für  $S(u)$ , das aus der Analyse der jeweiligen Kontrast-Transfer-Charakteristik resultiert, mit dem verglichen, das nach Kapitel 3.5 von der Untersuchung eines einzelnen inelastisch gefilterten Diffraktogramms stammt. Die Aufnahmen, aus dem das jeweilige Diffraktogramm berechnet wurde, wurden bei einem Energieverlust von 120 eV mit einer Energiespaltbreite von 10 eV aufgezeichnet, da eine Nebenkante - die  $M_{2,3}$ -Kante - von Germanium im EEL-Spektrum bei 121 eV liegt [1].

Vergleicht man nun in Abbildung 7.5 a) und b) die auf zwei unterschiedliche Arten bestimmten Ergebnisse für den Zwei-Teilchen-Strukturfaktor  $S(u)$ , so liegen in beiden Abbildungen die beiden jeweiligen Ergebniskurven fast direkt aufeinander und stimmen sehr gut überein. Abbildung 7.5 c) zeigt die Ergebnisse für  $S(u)$  von amorphen Germaniumfolien unterschiedlicher Dicke sowie einer an Luft oxidierten Germaniumfolie. Alle Ergebnisse aus Abbildung 7.5 c) stammen aus der Auswertung von elastisch gefilterten Kontrast-Transfer-Charakteristiken und beziehen sich auf die Phasenergebnisse aus Abbildung 5.11 c) und d). Die Messergebnisse für  $S(u)$  für die beiden 8 nm dicken Folien stimmen relativ gut überein. Ab einer Raumfrequenz von ca.  $0,17 \text{ nm}^{-1}$  passen sie auch relativ gut zu dem Ergebnis des 6 nm dicken Germaniumfilms, der im Raumfrequenzbereich  $0 \text{ nm}^{-1} < u < 0,17 \text{ nm}^{-1}$  allerdings

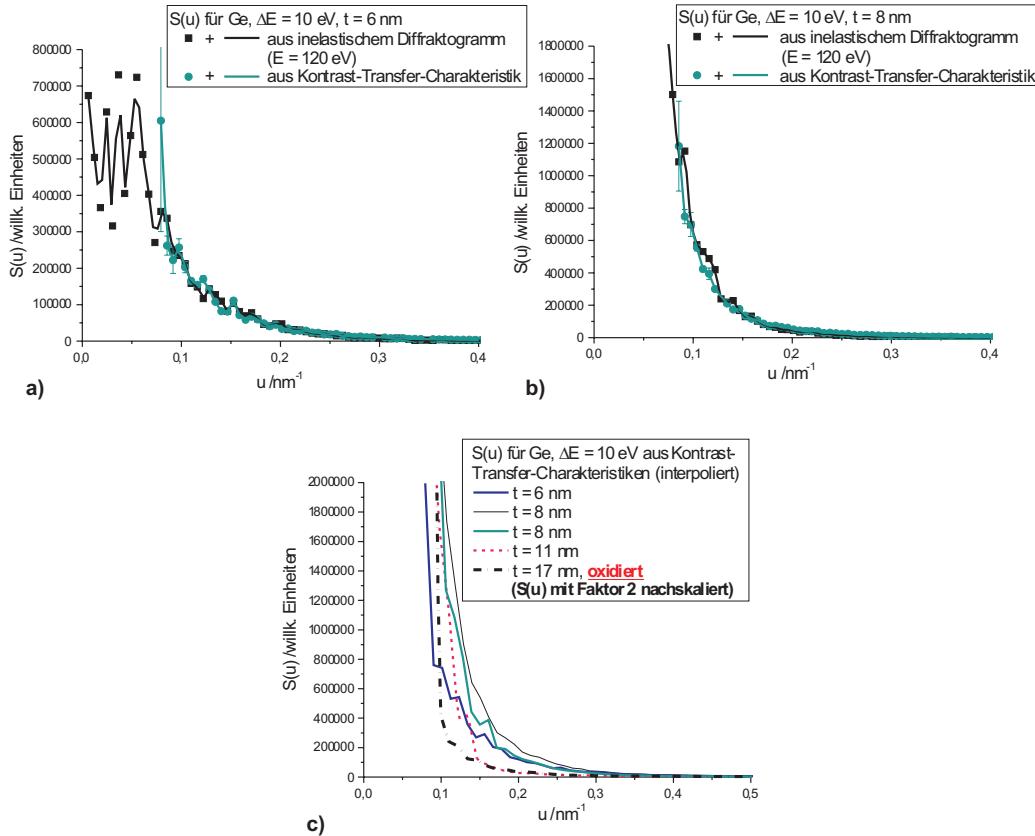


Abbildung 7.5: Experimentelle Resultate für den Zwei-Teilchen-Strukturfaktor  $S(u)$  für amorphe Germaniumfolien bei 297 kV aus der Analyse von elastisch gefilterten Kontrast-Transfer-Charakteristiken (Energiespaltbreite  $\Delta E = 10 \text{ eV}$ ) bzw. aus der Auswertung eines einzelnen inelastisch gefilterten Diffraktogramms bei einem Energieverlust von 120 eV mit einer Energiespaltbreite  $\Delta E$  von 10 eV: a) für die Probe mit  $t = 6 \text{ nm}$  aus Abbildung 5.11 a); b) für die Probe mit  $t = 8 \text{ nm}$  aus Abbildung 5.11 b); c)  $S(u)$  für die Folien der Schichtdicken 6, 8 und 11 nm sowie für die oxidierte Germaniumprobe mit einer Schichtdicke von 17 nm, auf die sich die Phasenergebnisse aus Abbildung 5.11 c) und d) beziehen.

einen mit steigender Raumfrequenz steileren Abfall zeigt. Das Messergebnis für die 11 nm dicke Folie fällt mit dem noch steileren Abfall über den gemessenen Raumfrequenzbereich etwas aus dem Rahmen, während die oxidierte Folie, deren Ergebnis für  $S(u)$  in Abbildung 7.5 c) mit dem multiplikativen Faktor von 2 nachskaliert

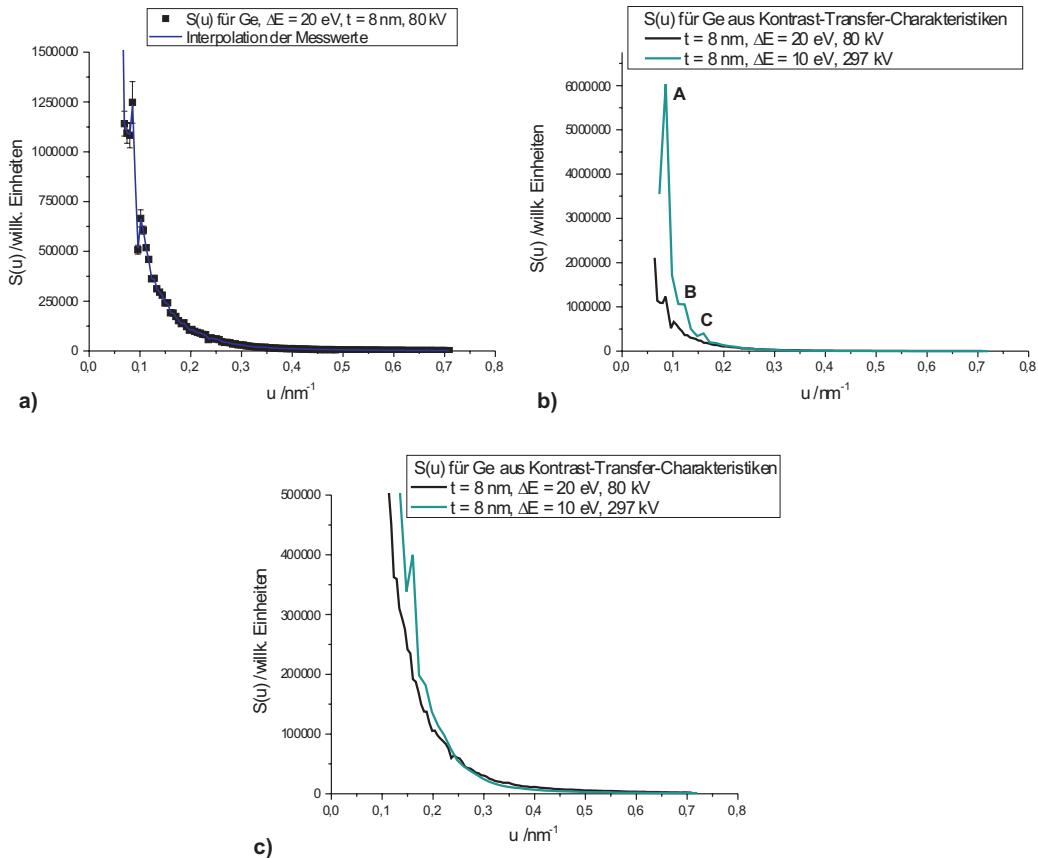


Abbildung 7.6: a) Experimentelles Ergebnis für den Zwei-Teilchen-Strukturfaktor  $S(u)$  für eine 8 nm dicke Germaniumfolie bei einer Beschleunigungsspannung von 80 kV; b) Vergleich der Ergebnisse von  $S(u)$  für 8 nm dicke Germaniumfilme bei 297 kV und 80 kV; c) dieselben Resultate aus b) mit anderer Skalierung der  $S(u)$ -Achse. Die Ergebnisse aus a - c) stammen aus der Auswertung von Kontrast-Transfer-Charakteristiken elastisch gefilterter Fokusreihen, wobei die jeweils eingesetzte Energiespaltbreite in den Einzelabbildungen mit  $\Delta E$  gekennzeichnet ist.

wurde, den stärksten Abfall bezüglich  $S(u)$  mit steigender Raumfrequenz aufweist und am stärksten von den anderen Messkurven abweicht. Diese Folie wird noch in Kapitel 8 bezüglich der partiellen Zwei-Teilchen-Strukturfaktoren von Germanium, Sauerstoff und Kohlenstoff untersucht. Die dünnen Folien mit 6 bis 8 nm Schichtdicke zeigen also im Vergleich zu den dickeren Folien mit 11 nm und 17 nm die bessere Übereinstimmung. Eine Diskussion über die Ursachen von Unterschieden in

den gemessenen Zwei-Teilchen-Strukturfaktoren in Abbildung 7.5 c) wird in Kapitel 7.4 geführt.

Das Messergebnis für den Zwei-Teilchen-Strukturfaktor  $S(u)$  für Germanium am Zeiss EM 902 bei einer Beschleunigungsspannung von 80 kV ist in Abbildung 7.6 a) zu sehen. Auf dieselbe Probenstelle bezieht sich das Phasenergebnis aus Abbildung 5.12. In den Abbildungen 7.6 b) und c) werden die Ergebnisse für den Zwei-Teilchen-Strukturfaktor  $S(u)$ , die aus der Auswertung von Kontrast-Transfer-Charakteristiken stammen, für 8 nm dicke Germaniumproben für die beiden Beschleunigungsspannungen 297 kV und 80 kV miteinander verglichen. Dabei sind in Abbildung 7.6 c) die gleichen Ergebnisse wie in Abbildung 7.6 b) dargestellt, allerdings bei anderer Skalierung der  $S(u)$ -Achse, um beide Resultate für  $S(u)$  in einem größeren Raumfrequenzbereich vergleichen zu können. In Abbildung 7.6 b) ist erkennbar, dass das Ergebnis für  $S(u)$  bei 297 kV im Raumfrequenzbereich  $0 \text{ nm}^{-1} < u < 0,15 \text{ nm}^{-1}$  stärker mit steigender Raumfrequenz abfällt. Beide Ergebnisse weisen allerdings die lokalen Maxima „A“ und „B“ bei Raumfrequenzen von ca.  $0,08 \text{ nm}^{-1}$  und  $0,11 \text{ nm}^{-1}$  auf. Das lokale Maximum „C“ bei  $0,17 \text{ nm}^{-1}$  ist in den Abbildungen 7.6 b) und c) nur bei dem Ergebnis für  $S(u)$  bei 297 kV, nicht jedoch bei dem Ergebnis für 80 kV erkennbar. Beide Resultate für den Zwei-Teilchen-Strukturfaktor stimmen aber abgesehen von diesem lokalen Maximum ab einer Raumfrequenz von ca.  $0,15 \text{ nm}^{-1}$  in ihrem Verlauf gut überein.

## 7.4 Diskussion der Ergebnisse der Zwei-Teilchen-Strukturfaktoren für die untersuchten amorphen Proben

Die Untersuchung der Germaniumproben am JEOL JEM 3010 fand zwar an frisch präparierten Proben statt, die nach dem in Kapitel 4.1 beschriebenen Verfahren hergestellt wurden, jedoch war in den EEL-Spektren immer die K-Ionisationskante des Sauerstoffs zu erkennen, so dass eine Oxidation nicht zu vermeiden war. Auch wurde ein von Probe zu Probe variierender Kohlenstoffanteil in den EEL-Spektren

gefunden. Da diese zeitlich nach den elastisch und inelastisch gefilterten Bilderserien aufgenommen wurden, kann dieser Kohlenstoffanteil durch Bildung einer Kontaminationsschicht während der Bestrahlung der Proben entstanden sein. Er könnte aber auch bei der Herstellung der Proben beim Aufdampfprozess durch kohlenstoffhaltige Restgase im Rezipienten verursacht worden sein, da das Vakuum im Rezipienten u. a. durch eine Öldiffusionspumpe erzeugt wird. Jedoch ist nach [21] amorphes Germanium, das man durch Aufdampfen auf gekühlte Flächen oder durch Abschrecken einer Germaniumschmelze erhalten kann, ohne Einbindung von Sauerstoff oder anderen Atomen nicht beständig. Wie in der kristallisierten Phase ist im allgemeinen jedes Germaniumatom von vier anderen tetraedisch umgeben. Diese Tetraederverknüpfung ist allerdings unregelmäßig. Dies hat zur Folge, dass in der amorphen Phase freie Valenzen vorhanden sind, weil sich nur in einer geordneten Struktur alle Valenzen gegenseitig absättigen können. Somit ist die amorphe Phase nur beständig, wenn diese Valenzen durch Sauerstoff oder andere Atome abgesättigt sind. Nach [21] transformiert sich eine abgeschreckte, glasig erstarnte Schmelze aus extrem gereinigtem Germanium nach gewisser Zeit plötzlich unter starker Wärmebildung in kristallisiertes Germanium und ist dementsprechend instabil. Man kann also schließen, dass man auch durch ein anderes Probenpräparationsverfahren keine stabilen reinen amorphen Germaniumfolien für diese Arbeit hätte produzieren können.

Überträgt man die Schlussfolgerung aus den in Kapitel 7.2 in Abbildung 7.3 d) diskutierten Abweichungen zwischen den Ergebnissen für  $S(u)$  im Raumfrequenzbereich  $0 \text{ nm}^{-1} < u < 0,1 \text{ nm}^{-1}$ , die wahrscheinlich durch Plasmonausläufer der in der Probe enthaltenen Elemente verursacht wurden, auf die Diskussion der Ergebnisse für Germanium, so würde zunächst aufgrund der vorhandenen Sauerstoff- und Kohlenstoffanteile in diesen Proben die Aufnahme eines Germanium-Elementverteilungsbildes zur Bestimmung des partiellen Zwei-Teilchen-Strukturfaktors  $S(u)$  für Germanium nach Kapitel 3.6 sinnvoller erscheinen als die Bestimmung von  $S(u)$  aus einem einzelnen inelastisch gefilterten Diffraktogramm nach Kapitel 3.5. Da jedoch die M-Kante von Germanium im EEL-Spektrum schon bei 29 eV beginnt und die L-Kante erst bei 1217 eV anfängt [1, 45], ist dies nicht möglich, da einerseits der Untergrundabzug bei Verwendung der M-Kante für das Elementverteilungsbild gemäß Kapitel 3.2 problematisch wäre und andererseits die Verwendung der L-Kante für

das Elementverteilungsbild aufgrund der kleinen Wirkungsquerschnitte für die inelastische Streuung bei Energieverlusten  $> 1000$  eV zu extrem hohen Belichtungszeiten pro Einzelbild führen würde. Deshalb wurde für die Zwei-Teilchen-Strukturfaktor-Bestimmung für die amorphen Germaniumproben bei Anwendung der Analyse inelastisch gefilterter Bilder nach Kapitel 3.5 bzw. 3.6 ein inelastisch gefiltertes Bild bei einem Energieverlust von 120 eV mit einer Energiefensterbreite von 10 eV gewählt. Da ein derartiges Bild in einem Energieverlustbereich liegt, der innerhalb der M-Ionisationskante des Germaniums liegt und die  $M_{2,3}$ -Kante beinhaltet sowie einen deutlichen Abstand von den Plasmonpeaks besitzt, und die untersuchten Germaniumproben zum größten Teil aus Germanium bestehen, betrachten wir die aus dem Diffraktogramm eines derartigen Bildes berechnete Intensitätsverteilung und somit die korrespondierenden Ergebnisse aus Abbildung 7.5 als Maß für den (partiellen) Zwei-Teilchen-Strukturfaktor für Germanium.

Für Differenzen zwischen Einzelresultaten von  $S(u)$  aus der Analyse von Kontrast-Transfer-Charakteristiken für unterschiedliche Germaniumproben, die in Abbildung 7.5 c) beobachtet werden können, kommen als Ursachen unterschiedliche Sauerstoff- und Kohlenstoffanteile in den Germaniumfolien sowie unterschiedliche Dickegradianten in Frage. Im Falle von Sauerstoff- und Kohlenstoffanteilen besteht der Zwei-Teilchen-Strukturfaktor  $S(u)$  in Gleichung (2.51) bei den hier untersuchten Proben nicht allein aus dem partiellen Zwei-Teilchen-Strukturfaktor von Germanium, sondern aus einem Term, der die partiellen Zwei-Teilchen-Strukturfaktoren aller in der Probe enthaltenen Elemente (hier Germanium, Kohlenstoff, Sauerstoff) gemäß den Gleichungen (3.26) bis (3.30) beinhaltet.

In den obigen Kapiteln 7.1 bis 7.3 wurde in den Resultaten für den Zwei-Teilchen-Strukturfaktor in amorphen Kohlenstoff-, Silizium- und Germaniumproben ein starker Abfall mit steigender Raumfrequenz in einem sehr breiten Raumfrequenzbereich festgestellt. Auch in [27] wurde bei der Untersuchung von auf gleicher Weise aus gleichem Material hergestellten Kohlenstofffolien und für aufgedampfte Siliziumproben ein ähnlich starker Abfall im Zwei-Teilchen-Strukturfaktor beobachtet, der aus inelastisch gefilterten Bildern und der relativistischen inelastischen Übertragungsfunktion bestimmt wurde. Der Grund für den starken Abfall des Zwei-Teilchen-Strukturfaktors in Kapitel 7.1 bis 7.3 für die aufgedampften Kohlenstoff-, Silizium-

und Germaniumfolien ist wohl der gleiche wie der Grund für den in [27] diskutierten Abfall des Zwei-Teilchen-Strukturfaktors für aufgedampfte Siliziumfolien und den in [2, 7, 36] beschriebenen Abfall in den Kleinwinkelröntgenbeugungsintensitäten, die für amorphes Silizium gemessen wurden. In diesen Arbeiten wurden Fehlstellen im amorphen Netzwerk als Ursache für den Abfall angeführt. Dieser reicht bis zu einem Raumfrequenzbereich von  $0,5 - 0,7 \text{ nm}^{-1}$  und geht dann in einen einigermaßen flachen Bereich für  $S(u)$  über, der also einem ideal-amorphen Charakter entsprechen würde [27]. Diese Beobachtung deckt sich mit den Ergebnissen für den Zwei-Teilchen-Strukturfaktor dieser Arbeit aus den Kapiteln 7.1 bis 7.3.

In vielen Ergebnissen für den Zwei-Teilchen-Strukturfaktor bezüglich der amorphen Kohlenstoff-, Silizium- und Germaniumpräparate aus den Kapiteln 7.1 bis 7.3 sind lokale Maxima zu erkennen. In [27] wird für auf gleiche Weise aus gleichem Material präparierte Kohlenstofffolien ebenfalls von einem lokalen Maximum in dem Zwei-Teilchen-Strukturfaktor berichtet, das dort bei einer Raumfrequenz von ca.  $0,15 \text{ nm}^{-1}$  liegt. Das Auftreten dieses lokalen Maximums in  $S(u)$ , für dessen Untersuchung man inelastisch gefilterte Bilder vor der Kohlenstoff K-Ionisationskante und auf derselben aufnahm und den struktursensitiven Kontrast analysierte, wird dort für die untersuchten aufgedampften Kohlenstofffolien auf Inhomogenitäten aufgrund von Sauerstoffeinschlüssen zurückgeführt. Die Ursache für die Sauerstoffeinschlüsse ist in den Kohlestäben zu suchen, die für die Herstellung der Kohlenstofffilme durch Aufdampfen gemäß Kapitel 4.1 verwendet werden. Die Stäbe werden durch Sintern aus einer organischen Paste mit hohem Kohlenstoffanteil produziert. Es bilden sich makroskopische Hohlräume mit Gaseinschlüssen aus, z. B. aus  $\text{CO}_2$  [27]. Während des Aufdampfprozesses wird das Gas in den Rezipienten freigesetzt und wird als Einlagerung in dem sich bildenden Kohlenstofffilm eingeschlossen. Kohlenoxide können sich auch als Folge der Reaktion von Kohlenstoff mit dem im Rezipienten befindlichen Restgas bilden.

Geht man davon aus, dass sich  $\text{O}_2$ -,  $\text{CO}_2$ - und  $\text{CO}$ -Moleküle, die sich während des Aufdampfvorgangs im Rezipienten befinden, in entstehenden Hohlräumen im Kohlenstoff bzw. Silizium oder Germanium einschließen lassen, so entspricht der Zwei-Teilchen-Strukturfaktor einer Anordnung eingeschlossener Teilchen für Raumfrequenzen  $u > 0 \text{ nm}^{-1}$  demjenigen der gleichen Anordnung der entsprechenden

Hohlräume in einem homogenem Medium [27]. In [27] werden die Inhomogenitäten aufgrund der Sauerstoffeinschlüsse in den Kohlenstofffolien wie Teilchen in einem homogenen Medium behandelt und der „Zwei-Teilchen-Strukturfaktor“  $S(u)$  einer Anordnung identischer Inhomogenitäten geschrieben als

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

Dabei ist  $f_{\text{Inhomog}}(u)$  der Formfaktor einer einzelnen Inhomogenität und  $S_{\text{Inhomog}}(u)$  eine Funktion zur Beschreibung der Abstandsverteilung dieser Inhomogenitäten. Das in [27] beobachtete Maximum des partiellen Zwei-Teilchen-Strukturfaktors für die amorphen Kohlenstoffproben bei  $u = 0,15 \text{ nm}^{-1}$  wird dem mittleren Abstand benachbarter Inhomogenitäten und somit der Funktion  $S_{\text{Inhomog}}(u)$  zugeschrieben. Dieser ist aber wegen des Abfalls von  $f_{\text{Inhomog}}(u)$  in Gleichung (7.1) nicht direkt aus der Position dieses lokalen Maximums abzulesen. Für den Radius der Sauerstoffeinschlüsse bzw. der dadurch verursachten Inhomogenitäten in der Kohlenstofffolie wurde in [27] ein Wert von 1,8 nm abgeschätzt.

Überträgt man diese Informationen auf die Messergebnisse dieser Arbeit für den Zwei-Teilchen-Strukturfaktor der Kohlenstoff-, Silizium- und Germaniumproben aus Kapitel 7.1 bis 7.3, so könnten die beobachteten lokalen Maxima in den gemessenen Zwei-Teilchen-Strukturfaktoren also ein Maß für die Abstandsverteilung von Inhomogenitäten aufgrund von Sauerstoffeinschlüssen oder Hohlräumen sein. Auch Unregelmäßigkeiten in der Schichtdicke oder der Dichte oder Oberflächenrauigkeiten könnten mögliche Ursachen sein. Da diese lokalen Maxima in  $S(u)$  in den Abbildungen 7.2 d) und 7.6 b) in der Regel bei beiden hier eingesetzten Beschleunigungs- spannungen die gleiche Lage und sogar im Falle des Kohlenstoffs nahezu identische Formen und Ausprägungen haben (siehe Abbildung 7.2 d), sind sie nicht auf Abbildungs- oder anderweitige Artefakte sondern auf die Probenstruktur zurückzuführen.

Die Ursachen für den sehr starken Abfall des Zwei-Teilchen-Strukturfaktors im Bereich sehr kleiner Raumfrequenzen  $u < 0,06 \text{ nm}^{-1}$ , der auch hier in den Kapiteln 7.1 bis 7.3 beobachtet wird, sind hingegen wahrscheinlich langreichweitige Dichte- und Dickeunterschiede in den Probenbereichen außerhalb der Sauerstoffeinschlüsse bzw. anderer Einschlüsse oder Hohlräume, d. h. dass die Proben auch in den Be-

reichen nicht homogen sind. Dies wird durch Untersuchungen aus [27] für amorphe Kohlenstoffproben gestützt, die auf der gleichen Weise hergestellt wurden, wie die Kohlenstoffproben in dieser Arbeit, denn dort wurde mit Hilfe des struktursensitiven Kontrasts und mit Hilfe von inelastisch gefilterten Abbildungen festgestellt, dass sich die partiellen Zwei-Teilchen-Strukturfaktoren von Kohlenstoff und Sauerstoff für Raumfrequenzen  $u < 0,1 \text{ nm}^{-1}$  in diesen Proben unterschieden.

Der Grund für langreichweite Dickeunterschiede bei den in dieser Arbeit präparierten Proben, die dann für einen sehr starken Abfall von  $S(u)$  bei sehr kleinen Raumfrequenzen  $u < 0,06 \text{ nm}^{-1}$  bzw.  $0,1 \text{ nm}^{-1}$  oder für lokale Maxima in diesem Bereich sorgen können, könnten Oberflächenrauigkeiten sein, die durch Adhäsionskräfte beim Abflotten der Probe von der Wasseroberfläche oder beim Kontakt der Folie mit nassem Filterpapier verursacht worden sein können. In den Fällen, in denen vor der Verdampfung des Probenmaterials der Glasobjektträger mit Graham'schen Salz bedampft wurde (siehe Kapitel 4.1), kann auch eine raue Schicht des Graham'schen Salzes der Grund für Oberflächenrauigkeiten in der Probe sein.

Die Ursache für große Messunsicherheiten im Bereich sehr kleiner Raumfrequenzen  $0 \text{ nm}^{-1} < u < 0,06 \text{ nm}^{-1}$  für die Ergebnisse von  $S(u)$  aus der Auswertung von Kontrast-Transfer-Charakteristiken sind beobachtete Unregelmäßigkeiten zwischen dem theoretischen Intensitätsverlauf in einer Kontrast-Transfer-Charakteristik gemäß Gleichung (2.70) und den experimentell gemessenen Intensitäten in diesem Bereich. Auf diese wird in Kapitel 9 eingegangen und sie sind der erste Grund dafür, warum in dieser Arbeit in dem Raumfrequenzbereich  $0 \text{ nm}^{-1} < u < 0,06 \text{ nm}^{-1}$  weder Messpunkte für  $S(u)$  aus der Analyse der Kontrast-Transfer-Charakteristiken noch für  $\eta(u)$  und  $\eta'(u)$  dargestellt werden. Der zweite Grund liegt in einer Kombination aus dem bei der Messung abgedeckten Defokusbereich, der bei den hier aufgenommenen Fokusreihen in der Regel bei ca.  $-3500 \text{ nm} < \Delta f < 3500 \text{ nm}$  lag, und der Mitberücksichtigung des Zusatzparameters  $\eta_z$  bzw. der Phasenableitung  $\eta'(u)$  in der Einhüllenden  $E_\alpha(u)$  in Gleichung (2.60). Bei einem derartigen Defokusbereich sind bei kleinen Raumfrequenzen  $u < 0,06 \text{ nm}^{-1}$  Intensitätsverläufe zu erwarten, wie in der Simulation aus Abbildung 2.7 gezeigt. Die von der Phase  $\eta$  mitbeeinflusste Verschiebung des Nulldurchgangs der Intensität ist zwar deutlich zu erkennen, der Nulldurchgang selbst ist aber nicht direkt sichtbar bzw. in diesem Fall

nicht messbar. Da hier gemäß Kapitel 2.6 nach Gleichung (2.70) außer den Parametern  $\eta(u_i)$  und  $K_{u_i}$  noch  $\eta_z(u_i)$  variiert wird, führt dies bei derartigen Verhältnissen dann bei  $u < 0,06 \text{ nm}^{-1}$  zu großen Unsicherheiten bei der Bestimmung der Größen  $\eta(u)$ ,  $S(u)$  und  $\eta_z(u)$ . Für  $u < 0,06 \text{ nm}^{-1}$  liefert in dieser Arbeit also nur die Methode mit Hilfe von Elementverteilungsbildern aus Kapitel 3.6 bzw. das Verfahren mit Hilfe von inelastisch gefilterten Einzeldiffraktogrammen Ergebnisse für  $S(u)$ . Man kann angesichts der Übereinstimmungen der auf zwei unabhängige Weisen bestimmten Resultate für den Zwei-Teilchen-Strukturfaktor  $S(u)$  für Kohlenstoff, Silizium und Germanium in den obigen Kapiteln 7.1 bis 7.3 sagen, dass zum einen beide Methoden zur Bestimmung des Zwei-Teilchen-Strukturfaktors aus der Kontrast-Transfer-Charakteristik und aus der Auswertung inelastisch gefilterter Aufnahmen reproduzierbare Ergebnisse liefern und sich zum anderen diese beiden Verfahren ergänzen: aus den Kontrast-Transfer-Charakteristiken erhält man Ergebnisse für  $S(u)$  für Raumfrequenzen  $u > 0,06 \text{ nm}^{-1}$ , während die Auswertung von Diffraktogrammen von inelastisch gefilterten Bildern oder Elementverteilungsbildern Ergebnisse innerhalb von Raumfrequenzen  $0 \text{ nm}^{-1} < u < 0,4 \text{ nm}^{-1}$  liefert. Aufgrund der relativ kleinen Wirkungsquerschnitte für die inelastische Streuung und den damit verbundenen längeren Belichtungszeiten pro Bild ist es schwierig, aus der letzteren Methode Resultate bei höheren Raumfrequenzen zu erhalten. Besteht die Probe nur aus einem Element, ist dann die Methode der  $S(u)$ -Bestimmung mit Hilfe der Kontrast-Transfer-Charakteristik von Vorteil, die in dieser Arbeit unter den hier verwendeten experimentellen Bedingungen Informationen bis ca.  $0,8 \text{ nm}^{-1}$  liefert. Die Tatsache, dass diese Methode für beide hier eingesetzten Beschleunigungsspannungen von 297 kV und 80 kV gut übereinstimmende Resultate zeigte (siehe z. B. Abbildung 7.2 d), spricht zusätzlich für die Reproduzierbarkeit der Ergebnisse bei Anwendung dieser Methode.

## Kapitel 8

# Ergebnisse für die partiellen Zwei-Teilchen-Strukturfaktoren O- bzw. C-haltiger amorpher Si- und Ge-Folien

In diesem Kapitel geht es um die Bestimmung von partiellen Zwei-Teilchen-Strukturfaktoren amorpher an Atmosphäre oxidierte Silizium- und Germaniumproben, wobei letztere auch Kohlenstoff enthalten. Dabei werden Elementverteilungsbilder dieser Proben gemäß Kapitel 3.2 aufgenommen und diese mit Hilfe der relativistischen inelastischen Übertragungsfunktion (*ITF*) nach Kapitel 3.6 ausgewertet, um die partiellen Zwei-Teilchen-Strukturfaktoren der in der Probe enthaltenen Elemente zu erhalten. Eine Ausnahme bildet hier das Element Germanium: für die Bestimmung des partiellen Zwei-Teilchen-Strukturfaktors des Elementes Germanium musste die Auswertung anhand eines inelastisch gefilterten Einzeldiffraktogramms bei einem Energieverlust von 120 eV mit Hilfe der relativistischen inelastischen Übertragungsfunktion nach Kapitel 3.5 erfolgen, da Germanium im EEL-Spektrum eine *M*-Ionisationskante bei ca. 29 eV und eine *L*-Ionisationskante bei ca. 1217 eV [45] aufweist. Die *M*-Ionisationskante beginnt also bei einem so kleinen Energieverlust und der dazugehörige Vorkantenbereich ist so klein, dass für ein Elementverteilungs-

bild keine korrekte Untergrundkorrektur durchgeführt werden kann, wenn der Energieverlust für das elementsensitive Bild innerhalb dieser Ionisationskante liegt. Die *L*-Ionisationskante andererseits ist für die Aufnahme eines Elementverteilungsbildes ungeeignet, da die dazu gehörigen Energieverluste, bei denen die nötigen Bilder aufgezeichnet werden müssen, so groß sind, dass die Belichtungszeit pro Bild deutlich über 120 s lang sein müsste, um ein gutes Signal-zu-Rausch-Verhältnis im Elementverteilungsbild zu erhalten. Ein Problem wäre dabei allerdings schon im Einzelbild die wahrscheinlich große Drift während der Aufnahme der Bilder. So wurde für die Analyse des Germaniumsignals ein inelastisch gefiltertes Einzelbild bei einem Energieverlust von 120 eV und einer Energiespaltbreite von 10 eV aufgenommen, so dass die Energieverluste der zum Bild beitragenden Elektronen also innerhalb der Ge-*M*-Ionisationskante lagen. Aus diesem Bild wurde dann das dazu gehörige Diffraktogramm berechnet, aus dem der partielle Zwei-Teilchen-Strukturfaktor für Germanium ermittelt wurde.

Abbildung 8.1 zeigt das elastisch gefilterte Bild sowie das Silizium- und das Sauerstoff-Elementverteilungsbild einer amorphen Siliziumprobe bei 297 kV, die gemäß Kapitel 4.1 durch Aufdampfen präpariert wurde und an Luft oxidierte. Eine Analyse eines EEL-Spektrums dieser Probe nach Kapitel 3.1 ergab für das mittlere Verhältnis  $n_{Si}/n_O$  der Flächenteilchendichten  $n_{Si}$  für Silizium und  $n_O$  für Sauerstoff

$$\frac{n_{Si}}{n_O} = 1,15. \quad (8.1)$$

Für die Bestimmung der Flächenteilchendichten nach Kapitel 3.1 ist die Berechnung der Wirkungsquerschnitte für die betrachtete Innerschalenanregung notwendig. So wurden die Rechnungen sowohl mit dem Hartree-Slater-Modell als auch mit dem Wasserstoff-Modell durchgeführt und das Verhältnis der Flächenteilchendichten in Gleichung (8.1) aus der Mittelung der jeweiligen Einzelergebnisse ermittelt. Da die Unsicherheiten der Wirkungsquerschnitte in der Größenordnung von 10 % liegen, beträgt also die Messunsicherheit für  $n_{Si}/n_O$  in Gleichung (8.1) etwa 20 %.

Da Silizium an der Oberfläche eine Passivierungsschicht aus  $SiO_2$  bildet [21], zeigt das erhaltene Flächenteilchendichte-Verhältnis  $n_{Si}/n_O$  von 1,15, dass die Probe trotz eines relativen Fehlers in  $n_{Si}/n_O$  von ca. 20 % und trotz der dünnen Schichtdicke von ca. 8 nm nicht komplett oxidiert sein kann, sondern ein unoxidiertes Inneres

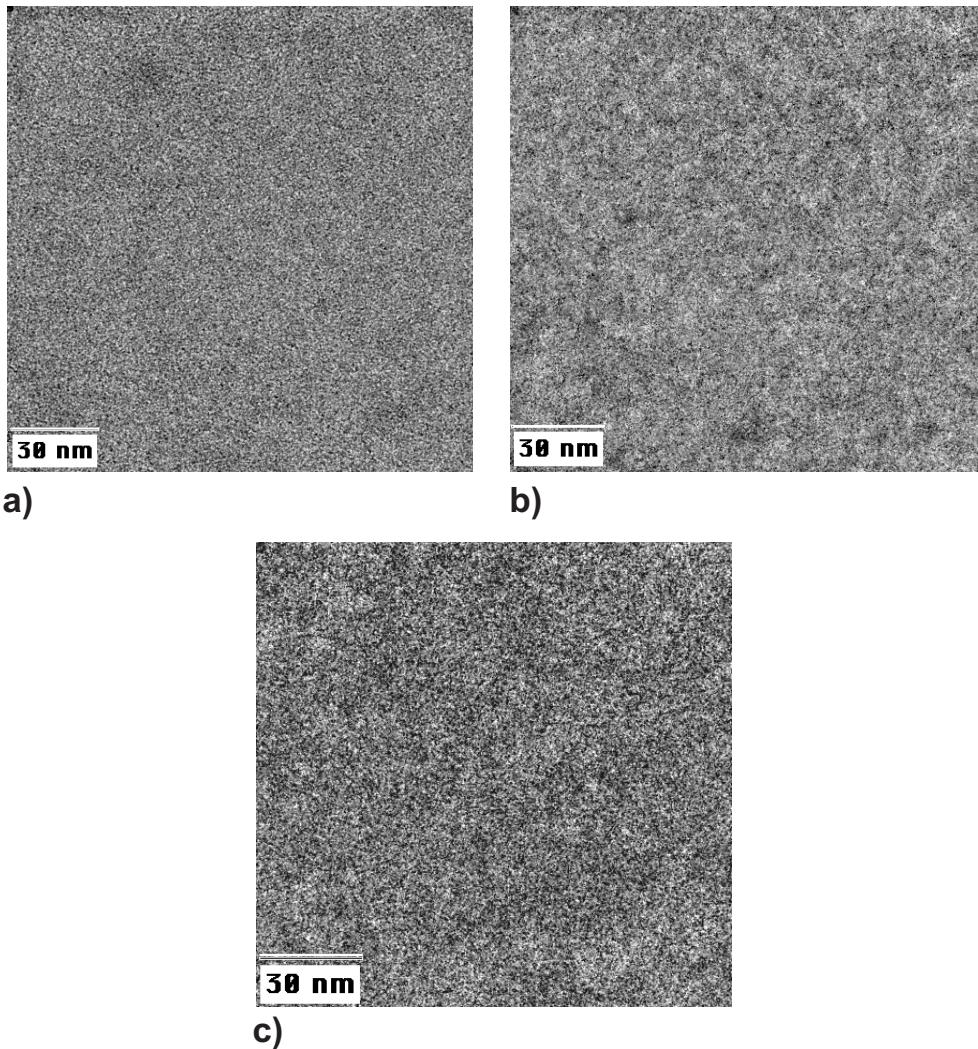


Abbildung 8.1: a) Elastisch mit einer Energiespaltbreite  $\Delta E = 10$  eV gefiltertes Bild einer ca. 8 nm dicken an Atmosphäre oxidierten amorphen Siliziumfolie bei einem Defokus  $\Delta f = -250$  nm; b) Silizium-Elementverteilungsbild der gleichen Probenstelle wie in a); für die Berechnung dieses Bildes wurden die Vorkantenbilder bei den Energieverlusten 75 eV und 90 eV und das elementsensitive Bild bei einem Energieverlust von 135 eV mit jeweils einer Energiespaltbreite  $\Delta E = 10$  eV aufgenommen; c) Sauerstoff-Elementverteilungsbild der gleichen Probenstelle wie in a) und b); für die Berechnung dieses Bildes wurden die Vorkantenbilder bei den Energieverlusten 440 eV, 475 eV und 510 eV und das elementsensitive Bild bei einem Energieverlust von 550 eV mit jeweils einer Energiespaltbreite  $\Delta E = 30$  eV aufgezeichnet. Die Bilder aus a) - c) wurden bei einer Vergrößerung von 150000 und einer Kontrastaperturblende mit einem Halbwinkel  $\vartheta_a = 12$  mrad am JEOL JEM 3010 mit einer Beschleunigungsspannung von 297 kV aufgenommen.

hat, denn ansonsten hätte man ein Flächenteilchendichte-Verhältnis von ca. 0,5 erhalten müssen. Nur wenn eine Oxidation des Siliziums zu SiO stattgefunden hätte, würde das gefundene Verhältnis aus Gleichung (8.1) im Rahmen der Messunsicherheiten auf eine vollständige Oxidation der Probe hindeuten. Nach [21, 39] ist SiO aber bei Raumtemperatur instabil bzw. nur als Gas bei sehr hohen Temperaturen existenzfähig und es findet bei Raumtemperatur eine Disproportionierung von SiO in SiO<sub>2</sub> und Si statt, so dass wir bei dieser Probe von einer Oxidation zu SiO<sub>2</sub> an der Oberfläche ausgehen können.

Ziel war es nun, die partiellen Zwei-Teilchen-Strukturfaktoren  $S_{Si, Si}(u)$  für Silizium,  $S_{O, O}(u)$  für Sauerstoff sowie den Betrag  $|S_{Si, O}(u)|$  des partiellen Zwei-Teilchen-Strukturfaktors  $S_{Si, O}(u)$  zu bestimmen, wobei letzterer ein Maß für die Abstandsverteilung der Silizium- von den Sauerstoffatomen ist. Die Ergebnisse dieser partiellen Zwei-Teilchen-Strukturfaktoren sind in Abbildung 8.2 zu sehen. In Abbildung 8.2 a) wurden die Intensitätsskalen der Messkurven so angepasst, dass sie für Raumfrequenzen  $u \rightarrow 0 \text{ nm}^{-1}$  die gleiche Intensität aufweisen, also ca. auf  $u = 0 \text{ nm}^{-1}$  normiert sind. Die lokalen Maxima „A“ - „D“ sind in allen drei partiellen Zwei-Teilchen-Strukturfaktoren an den gleichen Stellen vorhanden, die Kurven sind also korreliert, was mit der Oxidation des Siliziums an der Atmosphäre zu begründen ist. Auffällig ist jedoch, dass das Maximum „A“ bei ca.  $0,05 \text{ nm}^{-1}$  in  $S_{Si, Si}(u)$  viel stärker ausgeprägt ist als in  $S_{O, O}(u)$  und dass außerdem  $S_{O, O}(u)$  kurz hinter dem Maximum „A“ und deutlich vor „B“ eine Kante „S“ bei ca.  $0,07 \text{ nm}^{-1}$  aufweist, die  $S_{Si, Si}(u)$  nicht besitzt. In  $|S_{Si, O}(u)|$  ist das Maximum „A“ verwaschener und breiter als bei  $S_{Si, Si}(u)$ . Aufgrund dieser Verwaschung ist nicht erkennbar, ob  $|S_{Si, O}(u)|$  auch die Kante „S“ besitzt, die in  $S_{O, O}(u)$  zu sehen ist.

Den viel höheren Peak „A“ in  $S_{Si, Si}(u)$  im Vergleich zu  $S_{O, O}(u)$  und  $|S_{Si, O}(u)|$  lässt sich dadurch erklären, dass es mehrere Arten von Fehlstellen im amorphen Siliziumnetzwerk gibt: Hohlräume und sauerstoffhaltige Einschlüsse. Hohlräume im nicht-oxidierten Inneren der Probe können sich als Peak in  $S_{Si, Si}(u)$  äußern, aber  $S_{Si, O}(u)$  weniger stark beeinflussen und  $S_{O, O}(u)$  gar nicht. Hohlräume im oxidierten Silizium oder sauerstoffhaltige Einschlüsse in der Probe würden sich in allen drei partiellen Zwei-Teilchen-Strukturfaktoren bemerkbar machen.

Die Kante „S“ bei  $0,07 \text{ nm}^{-1}$ , die Strukturen von ca. 14 nm im Ortsraum entspricht

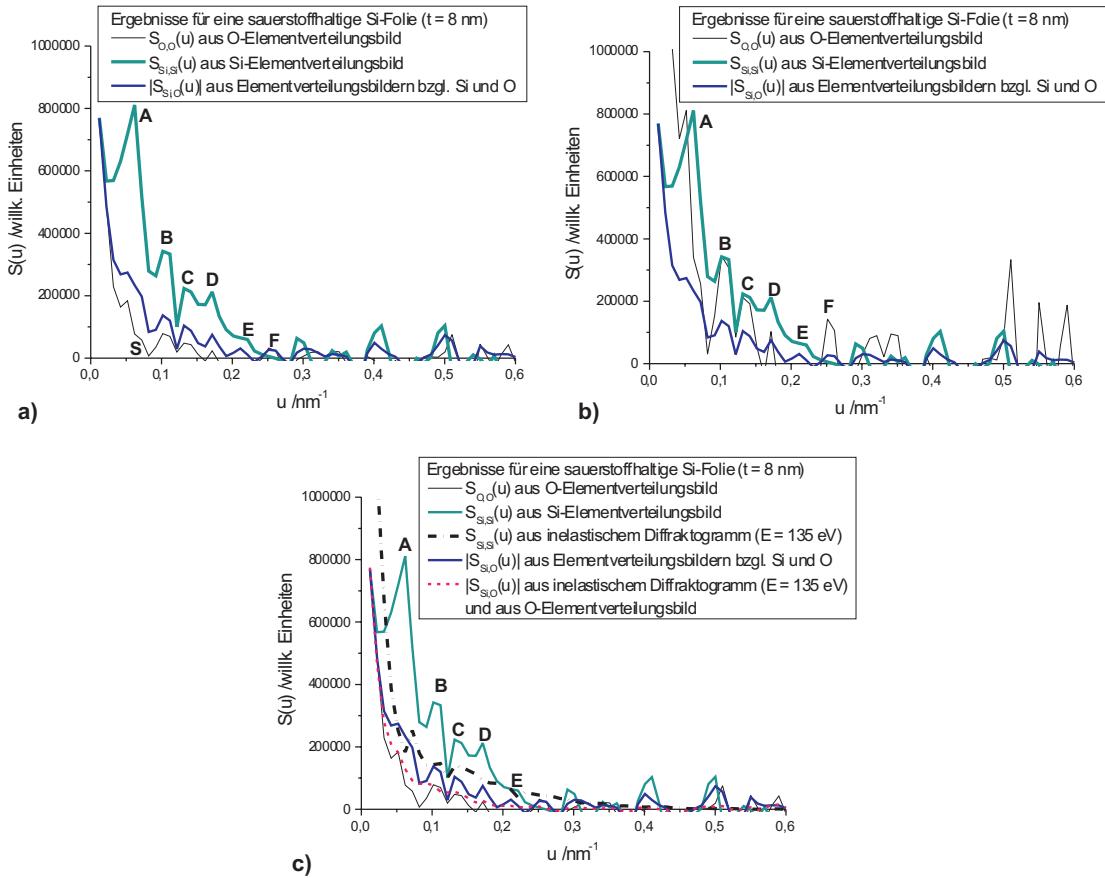


Abbildung 8.2: Ergebnisse der partiellen Zwei-Teilchen-Strukturfaktoren  $S_{Si,Si}(u)$  für Silizium,  $S_{O,O}(u)$  für Sauerstoff und Resultat  $|S_{Si,O}(u)|$  der amorphen ca. 8 nm dicken an Atmosphäre oxidierten Siliziumfolie aus Abbildung 8.1: a) Ergebnisse aus der Analyse von Elementverteilungsbildern mit Hilfe der ITF - die Intensitätsskala der Messkurven wurden so angepasst, dass diese für Raumfrequenzen  $u \rightarrow 0 \text{ nm}^{-1}$  die gleiche Intensität aufweisen; b) gleiche Ergebnisse wie in a) mit dem Unterschied, dass hier  $S_{O,O}(u)$  so skaliert wurde, dass die Höhen der lokalen Maxima „A“ - „C“ mit denen von  $S_{Si,Si}(u)$  übereinstimmen; c) Vergleich der aus Elementverteilungsbildern gewonnenen Ergebnisse aus a) mit den Resultaten  $S_{Si,Si}(u)$  und  $|S_{Si,O}(u)|$ , zu deren Bestimmung ein inelastisch gefiltertes Einzeldiffraktogramm bei einem Energieverlust von 135 eV verwendet wurde. Dabei ist das dazugehörige  $|S_{Si,O}(u)|$  genau wie die Ergebnisse aus a) so skaliert, dass die Intensitäten für  $u \rightarrow 0 \text{ nm}^{-1}$  übereinstimmen, während die Skalierung von dem aus dem inelastisch gefilterten Einzeldiffraktogramm bestimmten  $S_{Si,Si}(u)$  zur besseren Übersicht über die Ergebnisse willkürlich ist.

und die in  $S_{O,O}(u)$ , aber nicht in  $S_{Si,Si}(u)$  zu finden ist, lässt auf eine ungleichmäßige Oxidation der Probe oder eine inhomogene Flächenteilchendichte des Sauerstoffs schließen. So wirkt sich eine Oxidation des Siliziums auf die Abstandsverteilung der Siliziumatome untereinander bei dem in Abbildung 8.2 abgedeckten Raumfrequenzbereich nicht oder nur kaum aus. Ist die Oxidation der Probe aber ungleichmäßig oder die Flächenteilchendichte des Sauerstoffs inhomogen und gehorcht sie einer gewissen Verteilung, so beeinflusst diese  $S_{O,O}(u)$  und  $S_{Si,O}(u)$  und kann je nach Sachlage zu der hier gemessenen Kante „S“ bei  $0,07 \text{ nm}^{-1}$  führen. Diese ungleichmäßige Oxidation bzw. inhomogene Sauerstoff-Flächenteilchendichte kann eventuell durch eine raue Oberfläche erklärt werden. Diese Rauigkeit könnte beim Abfrollen der Probe vom Glasobjekträger in destilliertem Wasser entstanden sein (siehe Kapitel 4.1) und speziell bei dieser Probe auch durch Adhäsionskräfte beim anschließenden Ablegen der Probe auf nasses Filterpapier, denn bei diesem Präparat wurde diese Trocknungsmethode verwendet und nicht das Trocknen unter einer Lampe. Eine andere Ursache kann darin liegen, dass zur Probenpräparation der Glasobjekträger zuerst mit Graham'schen Salz und danach mit Silizium bedampft wurde. Mit großer Wahrscheinlichkeit war die Salzschicht nicht glatt, so dass darin die Rauigkeit des darauf liegenden Siliziumfilms begründet liegt. Gibt es auf der Probe aufgrund der Rauigkeit nun dünne Vorsprünge, die eine große Kontaktfläche mit der umgebenden Luft haben und in einer 2-dimensionalen Querschnittsprojektion beidseitig der Luft zugänglich sind, so werden diese fast komplett oxidiert. Bestrahlt man die Probe nun in z-Richtung (Richtung der optischen Achse) mit Elektronen, so ist die entsprechende Flächenteilchendichte des Sauerstoffs in der Probe ungleichmäßig. Abbildung 8.3 soll diesen Prozess schematisch erläutern. Dort ist eine oxidierte Probenoberfläche gezeigt. Durch die Rauigkeit in der Oberfläche „sehen“ Elektronen auf den Strahlen 1 und 3 nur eine Sauerstoffeinheit, Elektronen auf Strahl 5 zwei und auf Strahl 4 drei. Die meisten Sauerstoffeinheiten werden von Elektronen auf den Strahlen 6 und 2 „gesehen“. In diesen Fällen handelt es sich dann um vier bzw. fünf Sauerstoffeinheiten. Die Flächenteilchendichte des Sauerstoffs wäre im Falle einer Probe, wie sie in Abbildung 8.3 dargestellt ist, ungleichmäßig und dies könnte abhängig von der Oberflächenstruktur zu Peaks bei kleinen Raumfrequenzen in dem partiellen Zwei-Teilchen-Strukturfaktor  $S_{O,O}(u)$  führen.

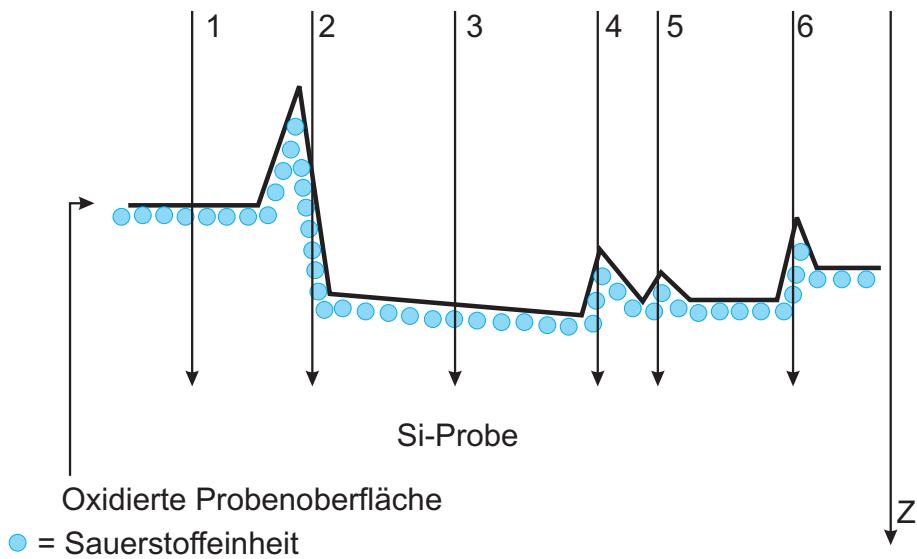


Abbildung 8.3: Schematische Darstellung einer an Atmosphäre oxidierten rauen Oberfläche eines Siliziumfilms, der dann in z-Projektion eine ungleichmäßige Flächenteilchendichte bezüglich Sauerstoff besitzt. Die in der Abbildung verzeichneten Sauerstoffeinheiten kennzeichnen oxidierte Probenbereiche.

Eine ungleichmäßige Oxidation einer Probe würde bedeuten, dass in Abbildung 8.3 ortsabhängig unterschiedlich viele Lagen von Sauerstoffeinheiten zu finden wären, was ebenfalls zu einer ungleichmäßigen Sauerstoff-Flächenteilchendichte führen würde und somit den gleichen Effekt bewirken kann. An dieser Stelle muss erwähnt werden, dass auch die Flächenteilchendichte des Siliziums ungleichmäßig ist, wenn die Oberfläche Strukturen wie in Abbildung 8.3 besitzt. Da die Dimension dieser Oberflächenrauigkeiten in Richtung der optischen Achse im Vergleich zur Gesamtdicke der Siliziumprobe kleiner ist, als im Vergleich zur  $\text{SiO}_2$ -Schichtdicke an der Oberfläche, in der sich ja außerdem zwei Sauerstoffatome pro Siliziumatom befinden, wirken sich die Oberflächenrauigkeiten in  $S_{O,O}(u)$  und  $S_{Si,O}(u)$  stärker aus als in  $S_{Si, Si}(u)$ .

Es ist in Abbildung 8.2 a) auch sehr deutlich zu sehen, dass  $S_{O,O}(u)$  mit wachsender Raumfrequenz viel stärker abfällt als  $S_{Si, Si}(u)$ . In dem durch die Messung abgedeckten Raumfrequenzbereich tendiert also die Sauerstoffverteilung stärker zu kleinen Raumfrequenzen und somit die Sauerstoffatomabstandsverteilung zu größe-

ren Abständen. Dies stützt auch die oben begründete Vermutung, dass es Oberflächenrauigkeiten gibt oder die Oxidation der Probe an der Oberfläche ungleichmäßig ist was die Sauerstoff-Flächenteilchendichte angeht. Außerdem kann man aus diesem Abfall von  $S_{O,O}(u)$  zusammen mit dem gemessenen Verhältnis der Flächenteilchendichten  $n_{Si}/n_O = 1,15 \pm 20\%$  auch auf die chemische Art der Oxidation schließen, denn unabhängig von der chemischen Begründung, warum keine vollständig oxidierte SiO-Probe vorliegen kann, ist dieser im Vergleich zu  $S_{Si,Si}(u)$  viel stärkere Abfall von  $S_{O,O}(u)$  ebenfalls ein Indiz dafür, dass eine Oxidation in Form von  $\text{SiO}_2$  an den Oberflächen stattgefunden hat. Läge nämlich ein komplett oxidiertes SiO-Film vor, müssten die gemessenen partiellen Zwei-Teilchen-Strukturfaktoren  $S_{Si,Si}(u)$  und  $S_{O,O}(u)$  in Abbildung 8.2 a) ziemlich genau aufeinander liegen, was sie aber nicht tun.

Bei der Darstellung der Messergebnisse für die partiellen Zwei-Teilchen-Strukturfaktoren und der Diskussionsführung, ob eine komplett erfolgte Oxidation der Probe zu SiO erfolgt sein kann, ist auch die Variante möglich,  $S_{Si,Si}(u)$  und  $S_{O,O}(u)$  so zu skalieren, dass die Kurven in den Höhen ihrer Maxima „A“ - „C“ übereinstimmen, wie es in Abbildung 8.2 b) der Fall ist. Würde man sich zunächst auf den Raumfrequenzbereich  $0,05 \text{ nm}^{-1} < u < 0,2 \text{ nm}^{-1}$  beschränken, könnte man die beiden Kurven dort als prinzipiell gut übereinstimmend betrachten, was angesichts eines Messwertes von  $n_{Si}/n_O = 1,15 \pm 20\%$  die These einer vollständigen Oxidation der Probe zu SiO scheinbar stützen würde. Dann blieben allerdings die unterschiedlichen Höhen in den lokalen Intensitätsminima zu erklären. Betrachtet man nun aber den Bereich kleiner Raumfrequenzen  $0 \text{ nm}^{-1} < u < 0,05 \text{ nm}^{-1}$ , so erkennt man, dass in Richtung kleiner Raumfrequenzen  $S_{O,O}(u)$  einen viel größeren Anstieg besitzt als  $S_{Si,Si}(u)$ . Dieser Raumfrequenzbereich würde Objektstrukturen  $> 20 \text{ nm}$  entsprechen. Bei einer Annahme einer vollständigen Oxidation des Siliziumfilms zu SiO könnte dieses Phänomen, dass Sauerstoff eine viel größere Tendenz zur Bildung von Strukturen mit Abständen von über 20 nm hätte als Silizium, nicht erklärt werden. Unsere Resultate für die partiellen Zwei-Teilchen-Strukturfaktoren  $S_{Si,Si}(u)$ ,  $S_{O,O}(u)$  und für  $|S_{Si,O}(u)|$  und das experimentell bestimmte mittlere Verhältnis der Flächenteilchendichten lassen für die hier untersuchte ca. 8 nm dicke Siliziumfolie folgende Schlüsse zu:

- Die Oxidation der Probe an der Atmosphäre zu  $\text{SiO}_2$  ist nicht vollständig;
- neben sauerstoffhaltigen Einschlüssen oder Hohlräumen im oxidierten Silizium muss es noch Hohlräume im nicht-oxidierten Inneren der Siliziumprobe geben, die keine sauerstoffhaltigen Einschlüsse enthalten;
- die Probe ist nicht gleichmäßig oxidiert oder/und sie besitzt Oberflächenrauigkeiten mit Strukturen von ca. 14 nm, die wahrscheinlich auf den Abflossungsprozess und die hier gewählte Trocknungsmethode bei der Probenpräparation und eine raue Schicht des Graham'schen Salzes zurückzuführen sind, das zum besseren Abfetten zeitlich vor dem Silizium aufgedampft wurde.

Bisher haben wir uns in diesem Abschnitt auf Ergebnisse konzentriert, die auf der Auswertung von Elementverteilungsbildern mit Hilfe der relativistischen inelastischen Übertragungsfunktion basierten. Diese sollen jetzt mit Ergebnissen verglichen werden, die aus der Analyse von inelastisch gefilterten Einzeldiffraktogrammen stammen. Dazu sind in Abbildung 8.2 c) die Ergebnisse von  $S_{\text{Si},\text{Si}}(u)$ ,  $S_{\text{O},\text{O}}(u)$  und  $|S_{\text{Si},\text{O}}(u)|$  aus Abbildung 8.2 a) den Resultaten von  $S_{\text{Si},\text{Si}}(u)$  und  $|S_{\text{Si},\text{O}}(u)|$  gegenübergestellt, für deren Bestimmung ein inelastisch gefiltertes Einzeldiffraktogramm bei einem Energieverlust von 135 eV und einer Energiespaltbreite von 10 eV benutzt wurde. Da nach [45] Silizium im EEL-Spektrum einen  $L$ -Ionisationskantenansatz bei 99 eV hat, liegen die zum Diffraktogramm beigetragenen Elektronen also innerhalb des Energieverlustbereiches der Ionisationskante. Auch wenn das aus dem Einzeldiffraktogramm stammende Ergebnis für  $S_{\text{Si},\text{Si}}(u)$  zur besseren Übersicht nicht so skaliert wurde, dass es bei Raumfrequenzen  $u \rightarrow 0 \text{ nm}^{-1}$  gleiche Intensitäten aufweist, wie die anderen partiellen Zwei-Teilchen-Strukturfaktoren, so ist ein Abfall mit wachsender Raumfrequenz zu erkennen, der sehr dem von  $S_{\text{O},\text{O}}(u)$  ähnelt und viel stärker ist als beim aus dem Silizium-Elementverteilungsbild ermittelten  $S_{\text{Si},\text{Si}}(u)$ . Außerdem ist das Maximum „A“ des aus dem Einzeldiffraktogramm berechneten  $S_{\text{Si},\text{Si}}(u)$  leicht in Richtung höherer Raumfrequenzen verschoben. Es liegt in etwa an der Position, wo wir die Kante in  $S_{\text{O},\text{O}}(u)$  sehen, die wir in obiger Diskussion auf eine unregelmäßige Oxidation bzw. eine inhomogene Sauerstoff-Flächenteilchendichte aufgrund von Oberflächenrauigkeiten zurückgeführt haben. Bezuglich der Lage der

lokalen Maxima „B“ und „C“ gibt es zwischen den beiden Ergebniskurven für  $S_{Si,Si}(u)$  keine oder kaum Unterschiede, allerdings sind die Maxima in dem aus dem Einzeldiffraktogramm stammenden Resultat schwächer ausgeprägt. Eine schwächere Ausprägung von lokalen Maxima ist auch in dem Ergebnis  $S_{Si,O}(u)$  aus der Analyse des inelastisch gefilterten Einzeldiffraktogramms im Vergleich zu dem Resultat aus Abbildung 8.2 a) zu beobachten.

Der Grund für diese Abweichungen liegt wohl darin, dass das inelastisch gefilterte Einzeldiffraktogramm mit einem Energieverlust von 135 eV zwar innerhalb der  $L$ -Ionisationskante des Siliziums, aber noch zu nah am Energieverlustbereich der Plasmonen liegt, so dass sich ohne eine Untergrundkorrektur des inelastisch gefilterten Bildes bei 135 eV nach Kapitel 3.2 und der damit verbundenen Berechnung eines Elementverteilungsbildes ein Plasmoneneinfluss auf das Ergebnis für den partiellen Zwei-Teilchen-Strukturfaktor ergibt. Da hier aufgrund der Oberflächenoxidation Sauerstoff in der Probe vorhanden ist, bedeutet ein Plasmoneneinfluss auch einen noch vorhandenen Einfluss des Sauerstoffs auf die Intensität des inelastisch gefilterten Bildes bei 135 eV. Eine Bestimmung des partiellen Zwei-Teilchen-Strukturfaktors sollte also nicht aus einem inelastisch gefilterten Einzelbild, sondern nach Möglichkeit aus einem Elementverteilungsbild erfolgen, es sei denn, die Probe besteht nur aus einem Element.

Abbildung 8.4 zeigt Aufnahmen, die am JEOL JEM 3010 mit einer Beschleunigungsspannung von 297 kV von einer ca. 17 nm dicken amorphen Germaniumprobe gemacht wurden. In Abbildung 8.4 a) ist das elastisch gefilterte Bild bei einer verwendeten Energiespaltbreite  $\Delta E = 10$  eV zu sehen. Das Präparat wurde entsprechend zu Kapitel 4.1 durch Aufdampfen hergestellt und es fand eine anschliessende Oxidation an Luft statt. Wie stark diese Oxidation ist und ob eine Oxidation zu  $GeO_2$  oder  $GeO$  an der Oberfläche stattgefunden hat, ist an dieser Stelle nicht zu sagen, denn nach [21] hält sich kompaktes Germanium an Luft unverändert und über die Stabilität der Oxid-Verbindungen des Germaniums sagt [39] aus, dass zweiwertige Germaniumverbindungen ( $Ge(II)$ -Verbindungen) relativ instabil sind, während jedoch nach [21]  $GeO$  im Unterschied zum schon in diesem Kapitel erwähnten  $SiO$  recht beständig ist. Nun ist aber außerdem nach der schon in Kapitel 7.4 geführten Diskussion nach [21] amorphes Germanium nur beständig, wenn sich die freien Valen-

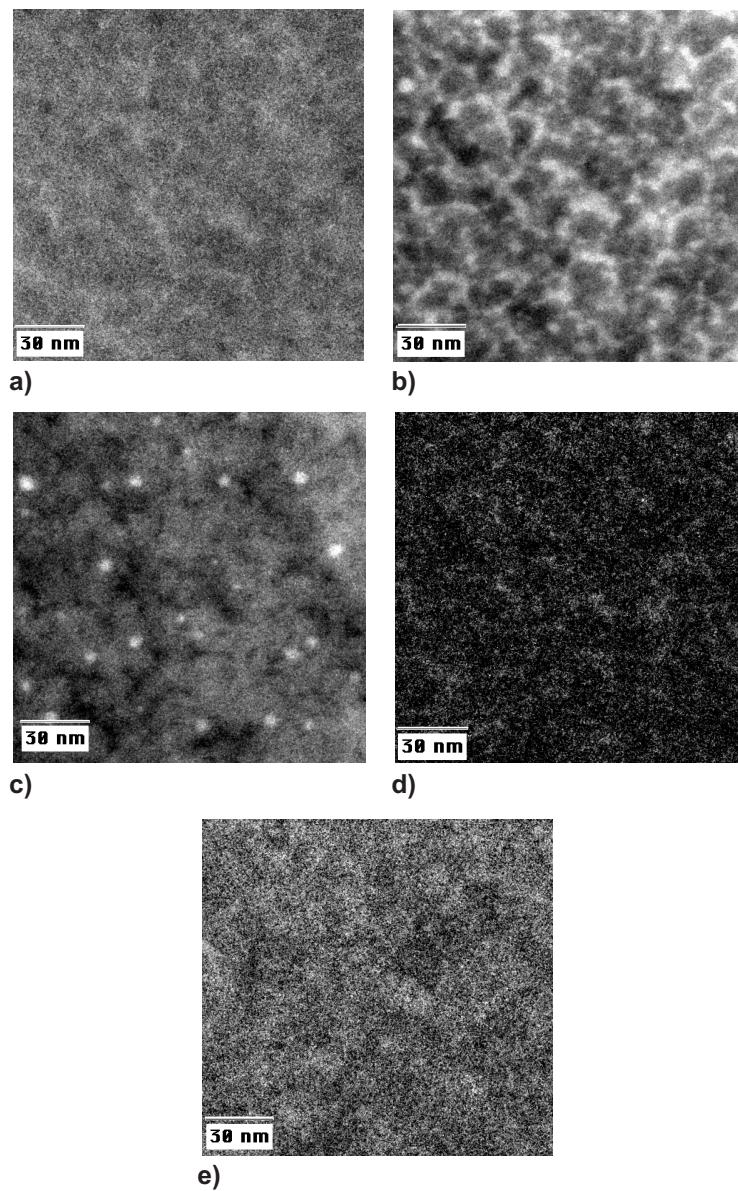


Abbildung 8.4: a) Elastisch mit einer Energiespaltbreite  $\Delta E = 10 \text{ eV}$  gefiltertes Bild einer ca. 17 nm dicken an Atmosphäre oxidierten amorphen Germaniumfolie bei einem Defokus  $\Delta f = 20 \text{ nm}$ ; b - c) inelastisch gefilterte Bilder der gleichen Probenstelle wie in a) bei einem Energieverlust von 60 eV (b) bzw. 120 eV (c) und einer Energiespaltbreite  $\Delta E = 10 \text{ eV}$ ; d) Kohlenstoff-Elementverteilungsbild der gleichen Probenstelle wie in a) - c); e) Sauerstoff-Elementverteilungsbild der gleichen Probenstelle wie in a) - d). Die Vergrößerung der Bilder aus a) - e) beträgt 150000 und sie wurden am JEOL JEM 3010 mit einer Beschleunigungsspannung von 297 kV und einer Kontrastaperturblende mit einem Halbwinkel  $\vartheta_a = 12 \text{ mrad}$  aufgenommen.

zen in der amorphen Phase durch Sauerstoff oder andere Atome absättigen. Deshalb war auch hier das Ziel, die partiellen Zwei-Teilchen-Strukturfaktoren  $S_{Ge,Ge}(u)$  für Germanium,  $S_{O,O}(u)$  für Sauerstoff und den Betrag  $|S_{Ge,O}(u)|$  des Zwei-Teilchen-Strukturfaktors  $S_{Ge,O}(u)$  für die Germanium-Sauerstoff-Verteilung zu bestimmen. Außerdem wurde hier auch die Existenz von Kohlenstoff überprüft und der partielle Zwei-Teilchen-Strukturfaktor  $S_{C,C}(u)$  sowie  $|S_{C,O}(u)|$  ermittelt.

Für die Bestimmung all dieser partiellen Zwei-Teilchen-Strukturfaktoren wurden Elementverteilungsbilder von Kohlenstoff (Abbildung 8.4 d) und Sauerstoff (Abbildung 8.4 e) aufgenommen. Für die Berechnung des Kohlenstoff-Elementverteilungsbildes wurden drei Vorkantenbilder bei den Energieverlusten 220 eV, 245 eV und 270 eV, sowie ein elementsensitives Bild bei einem Energieverlust von 300 eV unter Verwendung einer Energiespaltbreite  $\Delta E$  von 20 eV aufgezeichnet. Für das Sauerstoff-Elementverteilungsbild wurden bei einer Energiespaltbreite  $\Delta E$  von 30 eV drei Vorkantenbilder bei den Energieverlusten 440 eV, 475 eV und 510 eV, sowie ein elementsensitives Bild bei einem Energieverlust von 550 eV aufgenommen. Die Elementverteilungsbilder wurden aus diesen Daten gemäß Kapitel 3.2 berechnet.

Aus zu Beginn dieses Abschnitts genannten Gründen, mussten wir zur Bestimmung des partiellen Zwei-Teilchen-Strukturfaktors  $S_{Ge,Ge}(u)$  und von  $|S_{Ge,O}(u)|$  auf die Auswertung eines inelastisch gefilterten Einzeldiffraktogramms bei einem Energieverlust von 120 eV und einer Energiespaltbreite  $\Delta E = 10$  eV zurückgreifen. Die dazugehörige Aufnahme ist in Abbildung 8.4 c) zu sehen. Vergleicht man diese Aufnahme mit der aus Abbildung 8.4 b), die ein inelastisch gefiltertes Bild bei einem Energieverlust von 60 eV bei einer verwendeten Energiespaltbreite  $\Delta E = 10$  eV zeigt, fallen Unterschiede auf, obwohl zu beiden Bilder nur Elektronen mit Energieverlusten beigetragen haben, die innerhalb der  $M$ -Ionisationskante des Germaniums im EEL-Spektrum liegen, die nach [45] bei ca. 29 eV beginnt. Die Ursache für diese Unterschiede liegt wohl in dem schon in diesem Abschnitt für die oxidierte Siliziumprobe diskutierten Plasmoneneinfluss auf die Bildintensität bei diesen Energieverlusten. Diese Stärke des Plasmoneneinflusses auf die inelastische Bildintensität hängt vom verwendeten Energieverlust ab. Da man bei einem Energieverlust von 120 eV den größeren energetischen Abstand zu den Plasmonenergieverlusten hat und außerdem bei einer verwendeten Energiensterbreite von 10 eV auch Elektronen detektiert,

die im EEL-Spektrum zur  $M_{2,3}$ -Nebenkante des Germaniums beitragen, die bei 121 eV beginnt [12], wurde das inelastisch gefilterte Bild bei diesem Energieverlust als Basis für die Berechnung von  $S_{Ge,Ge}(u)$  und  $|S_{Ge,O}(u)|$  eingesetzt. Allerdings muss man sich bei der Interpretation dieser beiden derart bestimmten partiellen Zwei-Teilchen-Strukturfaktoren der Problematik des Plasmoneneinflusses und der hier damit verbundenen Störung durch die anderen in der Probe enthaltenen Elemente bewusst sein, auch wenn deren Ionisationskanten im EEL-Spektrum bei dieser Probe erst bei Energien von über 200 eV liegen.

Bei der Betrachtung des als Maß für die Germaniumverteilung angesehenen inelastisch gefilterten Bildes bei 120 eV in Abbildung 8.4 c) fallen kleine Strukturen auf, die als Partikel einer Größe von 2 bis 6 nm erscheinen. Da es in [14] Hinweise auf granulare Strukturen der Größenordnung von ungefähr 2 nm in aufgedampften Filmen aus Germanium gibt, können diese Strukturen aus Abbildung 8.4 c) auf Germaniumcluster zurückzuführen sein, die in Abbildung 8.4 b) wegen stärkeren Intensitätsüberlagerungen aufgrund von Plasmoneffekten kaum zu erkennen sind. Das mittlere Signal-zu-Rausch-Verhältnis (SRV) im Kohlenstoff-Elementverteilungsbild in Abbildung 8.4 d) beträgt 0,8, während das mittlere SRV im Sauerstoff-Elementverteilungsbild bei 3,9 liegt. Da bezüglich des Kohlenstoff-Elementverteilungsbildes allerdings in einigen Pixeln ein  $SRV > 5$  nachgewiesen wurde, gilt nach dem Rose-Kriterium die Existenz des Kohlenstoffs in diesen Bildpunkten als gesichert. Das über das Gesamtbild gemittelte SRV ist mit 0,8 aber so klein, dass nur von einer kleinen Konzentration des Kohlenstoffs in der Probe ausgegangen werden kann. Die Ursache ist wahrscheinlich eine Kontamination während der Probenbestrahlung. Das hohe mittlere SRV von 3,9 bezüglich des Sauerstoff-Elementverteilungsbildes überrascht nicht, da eine Oxidation der Probe an Luft stattgefunden hat.

In Abbildung 8.5 sind die Ergebnisse für die partiellen Zwei-Teilchen-Strukturfaktoren der in Abbildung 8.4 gezeigten amorphen an Atmosphäre oxidierten Germaniumfolie dokumentiert. Auffällig an diesen Resultaten ist, dass alle partiellen Zwei-Teilchen-Strukturfaktoren das Maximum „A“ aufweisen außer  $S_{Ge,Ge}(u)$ , und dass bei  $S_{C,C}(u)$  dieses Maximum leicht in Richtung kleiner Raumfrequenzen verschoben ist. Dort liegt es bei ca.  $0,04 \text{ nm}^{-1}$ , während es bei  $S_{O,O}(u)$ ,  $|S_{Ge,O}(u)|$  und  $|S_{C,O}(u)|$  bei ungefähr  $0,05 \text{ nm}^{-1}$  zu finden ist. Eine Korrelation zwischen der

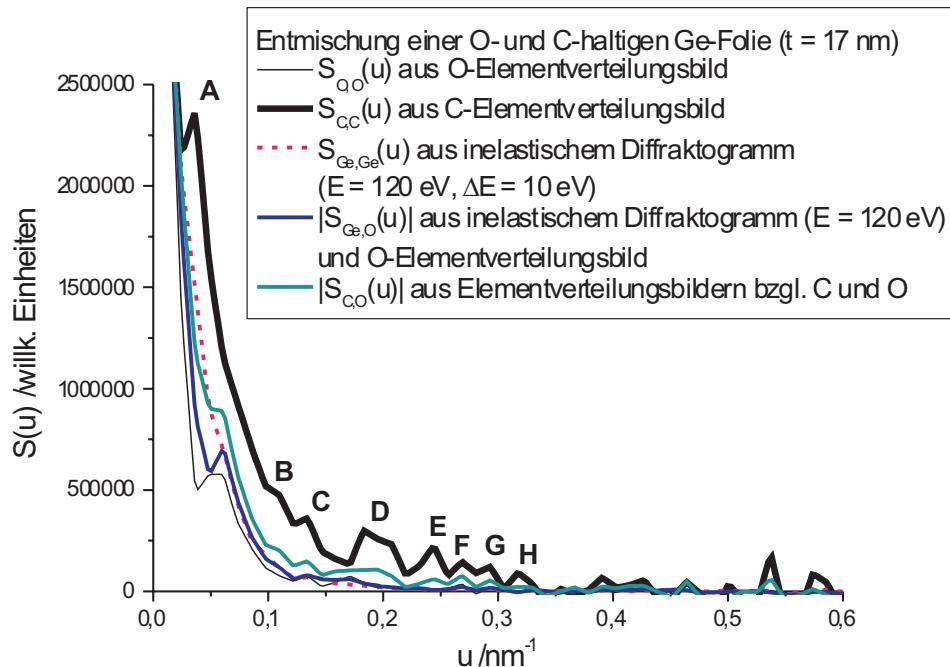


Abbildung 8.5: Ergebnisse der partiellen Zwei-Teilchen-Strukturfaktoren  $S_{Ge,Ge}(u)$  für Germanium,  $S_{O,O}(u)$  für Sauerstoff,  $S_{C,C}(u)$  für Kohlenstoff und Resultate  $|S_{Ge,O}(u)|$  und  $|S_{C,O}(u)|$  für die amorphe ca. 17 nm dicke an Atmosphäre oxidierte Germaniumfolie aus Abbildung 8.4. Die Intensitätsskala der Messkurven wurden so angepasst, dass diese für Raumfrequenzen  $u \rightarrow 0 \text{ nm}^{-1}$  die gleiche Intensität aufweisen.

Kohlenstoff- und der Sauerstoffverteilung ist also deutlich zu erkennen, denn auch bezüglich der Merkmale „C“ und „D“ gibt es prinzipiell Gemeinsamkeiten zwischen den partiellen Zwei-Teilchen-Strukturfaktoren  $S_{C,C}(u)$ ,  $S_{O,O}(u)$  und dem Betrag  $|S_{C,O}(u)|$ . Diese zwischen Kohlenstoff und Sauerstoff bestehende Korrelation und das Fehlen des Peaks „A“ bei ca.  $0,05 \text{ nm}^{-1}$  nur in  $S_{Ge,Ge}(u)$  kann auch in dieser Probe mit einer rauen Oberfläche erklärt werden, die durch eine zeitlich vor Germanium aufgedampfte raue Schicht des Graham'schen Salzes oder das Abflotten der Probe vom Glasobjekträger nach dem Aufdampfprozess und der anschließenden Trocknung auf nassem Filterpapier entsprechend Kapitel 4.1 entstanden sein.

können, denn auch bei dieser Probe erfolgte die Trocknung auf nassem Filterpapier und nicht durch eine Lampe. Geht man davon aus, dass die Probe aufgrund einer Oberflächenoxidation den größten Teil der Sauerstoffatome in einer Oberflächengrenzschicht besitzt, so kann man analog wie bei der oxidierten Siliziumfolie Abbildung 8.3 zur Erklärung dafür nutzen, dass die Sauerstoff-Flächenteilchendichte aufgrund der Oberflächenrauigkeit unregelmäßig ist und abhängig von der Oberflächenstruktur einen Peak wie „A“ in Abbildung 8.5 in  $S_{O,O}(u)$  verursachen kann. Wenn die Dimension dieser Oberflächenrauigkeiten in Richtung der optischen Achse im Vergleich zur mittleren Probendicke des Germaniums klein ist, würde dieser Effekt auf die Germanium-Flächenteilchendichte relativ gesehen sich kaum auswirken und in  $S_{Ge,Ge}(u)$  wäre dieser Peak kaum erkennbar oder nicht vorhanden. Dass nun Kohlenstoff in  $S_{C,C}(u)$  genau wie  $S_{O,O}(u)$  das Maximum „A“ zeigt, liegt wahrscheinlich darin begründet, dass Kohlenstoff während der Bestrahlung der Probe in Form einer Kontaminationsschicht sich auf die Filmoberfläche niedergeschlagen hat. Nun kann man zur schematischen Erklärung wieder Abbildung 8.3 verwenden und sich oberhalb der dort dargestellten sauerstoffhaltigen Schicht auf der Probe eine kohlenstoffhaltige Schicht vorstellen. Die Flächenteilchendichte des Kohlenstoffs in z-Projektion wäre ähnlich ungleichmäßig wie die im Falle des Sauerstoffs. Das lokale Maximum „A“ bei  $0,05 \text{ nm}^{-1}$  würde bei einer Verbindung mit Oberflächenrauigkeiten Strukturen von ca. 20 nm in der Oberfläche entsprechen.

Eine ungleichmäßige Oxidation einer glatten Probe als Ursache für das lokale Maximum „A“ in  $S_{O,O}(u)$  ist wohl auszuschließen, da dann die Korrelation mit  $S_{C,C}(u)$  bezüglich dieses Peaks nicht erklärt werden könnte. Als weitere Begründung für die Korrelation dieser Art zwischen Kohlenstoff und Sauerstoff wäre eine Ablagerung von Kontamination während der Bestrahlung der Probe in Form von Partikelverteilungen einer kohlen- und sauerstoffhaltigen Verbindung.

Vergleicht man die partiellen Zwei-Teilchen-Strukturfaktoren bezüglich ihres Abfalls mit wachsender Raumfrequenz, so ist er bei  $S_{Ge,Ge}(u)$ ,  $S_{O,O}(u)$ ,  $|S_{Ge,O}(u)|$  und  $|S_{C,O}(u)|$  sehr stark und in diesen Fällen ähnlich, bei  $S_{C,C}(u)$  ist er nur etwas schwächer. Da ein derartiger Abfall in  $S(u)$  in [2, 7, 27, 36] auf Fehlstellen im amorphen Netzwerk zurückgeführt wird, können in unserem Fall CO<sub>2</sub>- oder CO-haltige Einschlüsse im amorphen Präparat die Ursache für dieses Verhalten der partiellen

Zwei-Teilchen-Strukturfaktoren sein. Dass der Abfall von  $S_{Ge,Ge}(u)$  vergleichbar mit dem von  $S_{O,O}(u)$  ist, könnte allerdings auch daran liegen, dass  $S_{Ge,Ge}(u)$  aus einem inelastisch gefilterten Einzeldiffraktogramm bei einem Energieverlust von 120 eV bestimmt werden musste und somit aufgrund von Plasmonenausläufern auch indirekt Sauerstoff die Diffraktogrammintensität beeinflusst hat. Deshalb ist bei der Interpretation von  $S_{Ge,Ge}(u)$  an dieser Stelle Vorsicht geboten. Die Tatsache, dass  $S_{Ge,Ge}(u)$  im Gegensatz zu  $S_{O,O}(u)$  und den anderen partiellen Zwei-Teilchen-Strukturfaktoren den Peak „A“ bei einer Raumfrequenz von ca.  $0,05 \text{ nm}^{-1}$  nicht aufweist, kann ein Indiz dafür sein, dass das inelastisch gefilterte Bild bei 120 eV trotz der relativen Nähe der Energieverluste der zum Bild beitragenden Elektronen zu den Plasmonenergieverlusten tatsächlich hauptsächlich von der Germaniumverteilung beeinflusst wird. In diesem Falle würde das die Verlässlichkeit des aus dem Diffraktogramm dieses Bildes berechneten partiellen Zwei-Teilchen-Strukturfaktors  $S_{Ge,Ge}(u)$  erhöhen. Die Ergebnisse der partiellen Zwei-Teilchen-Strukturfaktoren lassen folgende Deutung für die ca. 17 nm dicke Germaniumprobe aus Abbildung 8.4 zu:

- Die Probe besitzt wahrscheinlich Oberflächenrauigkeiten mit Strukturen der Längenskala von ca. 20 nm, die voraussichtlich durch eine zeitlich vor dem Germanium aufgedampfte raue Schicht des Graham'schen Salzes und den Abflottungsprozess sowie die hier gewählte Trocknungsmethode bei der Probenpräparation verursacht wurden; alternativ oder zusätzlich können sich Partikelansammlungen aus kohlen- und sauerstoffhaltigen Verbindungen als Kontamination auf der Probe während der Bestrahlung gebildet haben;
- die Probe ist zumindest an der Oberfläche oxidiert und auf der Oberfläche kann sich eine kohlenstoffhaltige Kontaminationsschicht während der Bestrahlung gebildet haben;
- es befinden sich wahrscheinlich  $\text{CO}_2$ - oder CO-haltige Einschlüsse in der amorphen Probe.

Die in diesem Abschnitt vorgestellten Untersuchungen von amorphen an Atmosphäre oxidierten dünnen und teilweise kohlenstoffhaltigen Proben aus Silizium und

Germanium deuten darauf hin, dass die Bestimmung von partiellen Zwei-Teilchen-Strukturfaktoren aus Diffraktogrammen von Elementverteilungsbildern unter Zu-hilfenahme der relativistischen inelastischen Übertragungsfunktion nach Kapitel 3.6 möglich ist. Dabei wurden hier die partiellen Zwei-Teilchen-Strukturfaktoren  $S_{Si, Si}(u)$  bzw.  $S_{Ge, Ge}(u)$  sowie  $S_{O, O}(u)$ ,  $S_{C, C}(u)$  und auch die Beträge derjenigen partiellen Zwei-Teilchen-Strukturfaktoren bestimmt, die die Verteilung zweier unterschiedlicher in der Probe enthaltenen Elemente zueinander beschreiben. Dies ist ein weiterer Schritt zur Beurteilung dieser Analysetechnik nach den in [26, 27, 28, 29, 30] durchgeführten Arbeiten zu diesem Thema. Diese umfassen die Berechnung der relativistischen inelastischen Übertragungsfunktion, deren experimentelle Bestätigung durch Untersuchung von amorphen Silizium- und Kohlenstofffilmen, deren Gebrauch zur Zwei-Teilchen-Strukturfaktor-Bestimmung in Silizium- und Kohlenstoffproben und die Untersuchung der Sauerstoffeinschlüsse in amorphen Kohlenstofffilmen. Für die letztere Untersuchung wurde dabei der partielle Zwei-Teilchen-Strukturfaktor  $S_{C, C}(u)$  aus einem Kohlenstoff-Elementverteilungsbild ermittelt und der „Struktur-sensitive Kontrast“ verwendet.

Aus den hier diskutierten Messungen für die oxidierte Siliziumfolie lässt sich auch erkennen, dass zur Bestimmung von partiellen Zwei-Teilchen-Strukturfaktoren in Proben, die aus mehreren Elementen bestehen, inelastisch gefilterte Einzeldiffraktogramme nur bedingt geeignet sind. Im Falle der Bestimmung von  $S_{Ge, Ge}(u)$  und  $|S_{Ge, O}(u)|$  gab es aufgrund obiger Ausführungen leider keine andere Möglichkeit, als ein inelastisch gefiltertes Einzeldiffraktogramm bei einem Energieverlust von 120 eV zu verwenden und als Maß für die germaniumsensitive Struktur der Probe anzusehen.

## Kapitel 9

# Besondere experimentelle Beobachtungen und Besonderheiten

Wie in Kapitel 7 erwähnt, war es bei der Bestimmung der Phase  $\eta(u)$  komplexer Atomstreuamplituden und der damit verbundenen Bestimmung der Zwei-Teilchen-Strukturfaktoren  $S(u)$  und der Phasenableitung  $\eta'(u)$  nach der in Abschnitt 2.6 vorgestellten Methode nicht möglich, Ergebnisse für Raumfrequenzen  $u < 0,06 \text{ nm}^{-1}$  zu erhalten. Die elastisch gefilterten Fokusreihen, aus denen die Kontrast-Transfer-Charakteristiken berechnet wurden, deckten in der Regel einen Defokusbereich von  $-3500 \text{ nm} < \Delta f < 3500 \text{ nm}$  ab. Somit würde man gemäß Gleichung (2.70) für feste Raumfrequenzen  $u < 0,06 \text{ nm}^{-1}$  Linescans in den Kontrast-Transfer-Charakteristiken erwarten, die einen Verlauf wie die Simulationen aus Abbildung 2.7 zeigen. In dem dort abgedeckten Defokusbereich  $-4000 \text{ nm} < \Delta f < 4000 \text{ nm}$  sind die Intensitätsverläufe näherungsweise linear. In den experimentellen Linescans bei konstanten Raumfrequenzen  $u < 0,06 \text{ nm}^{-1}$  in den Kontrast-Transfer-Charakteristiken war in der Regel diese Linearität gestört, so dass eine Bestimmung von  $\eta(u)$ ,  $\eta'(u)$  und  $S(u)$  nach der Methode aus Kapitel 2.6 für diese kleinen Raumfrequenzen nicht oder nur mit großen Messunsicherheiten möglich war. Diese Abweichungen zwischen Theorie und Experiment sollen im folgenden für die unterschiedlichen untersuchten Proben dokumentiert werden.

Abbildung 9.1 zeigt Linescans bei konstanten Raumfrequenzen  $u < 0,02 \text{ nm}^{-1}$  in einer elastisch gefilterten Kontrast-Transfer-Charakteristik einer 13 nm dicken amor-

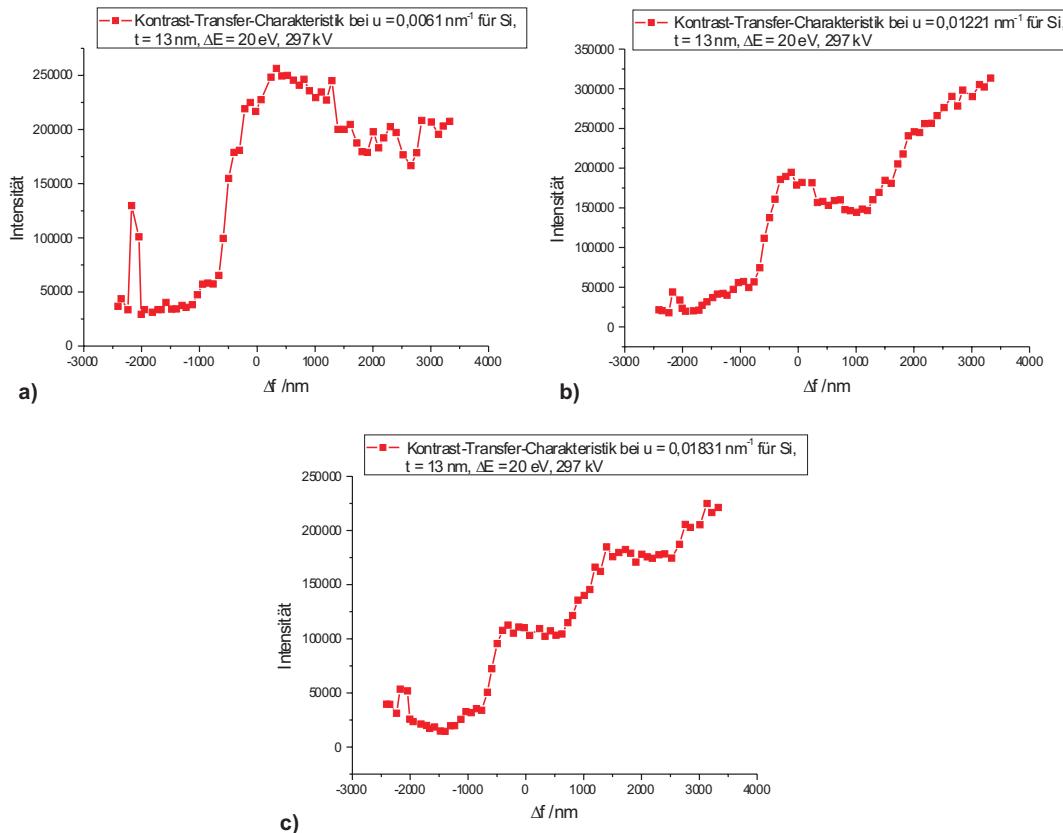


Abbildung 9.1: Linescans bei kleinen konstanten Raumfrequenzen in einer elastisch gefilterten Kontrast-Transfer-Charakteristik einer 13 nm dicken amorphen Siliziumfolie bei einer verwendeten Energiespaltbreite  $\Delta E = 20 \text{ eV}$ : a) bei einer Raumfrequenz  $u = 0,0061 \text{ nm}^{-1}$ ; b) bei  $u = 0,01221 \text{ nm}^{-1}$ ; c) bei  $u = 0,01831 \text{ nm}^{-1}$ . Die Fokusreihe für die Kontrast-Transfer-Charakteristik wurde am JEOL JEM 3010 mit einer Beschleunigungsspannung von 297 kV aufgenommen.

phen Siliziumfolie bei einer Beschleunigungsspannung von 297 kV, in der die Abweichung des experimentellen Intensitätsverlaufs vom theoretisch erwarteten näherungsweise linearen Verlauf deutlich erkennbar ist. Es sind Oszillationen erkennbar, die sich mit dem linearen Verlauf überlagern und deren Höhe mit wachsender Raumfrequenz von Abbildung 9.1 a) nach c) abnimmt, deren Anzahl aber offenbar zunimmt.

In Abbildung 9.2 sind für amorphe Kohlenstofffilme unterschiedlicher Schichtdicke

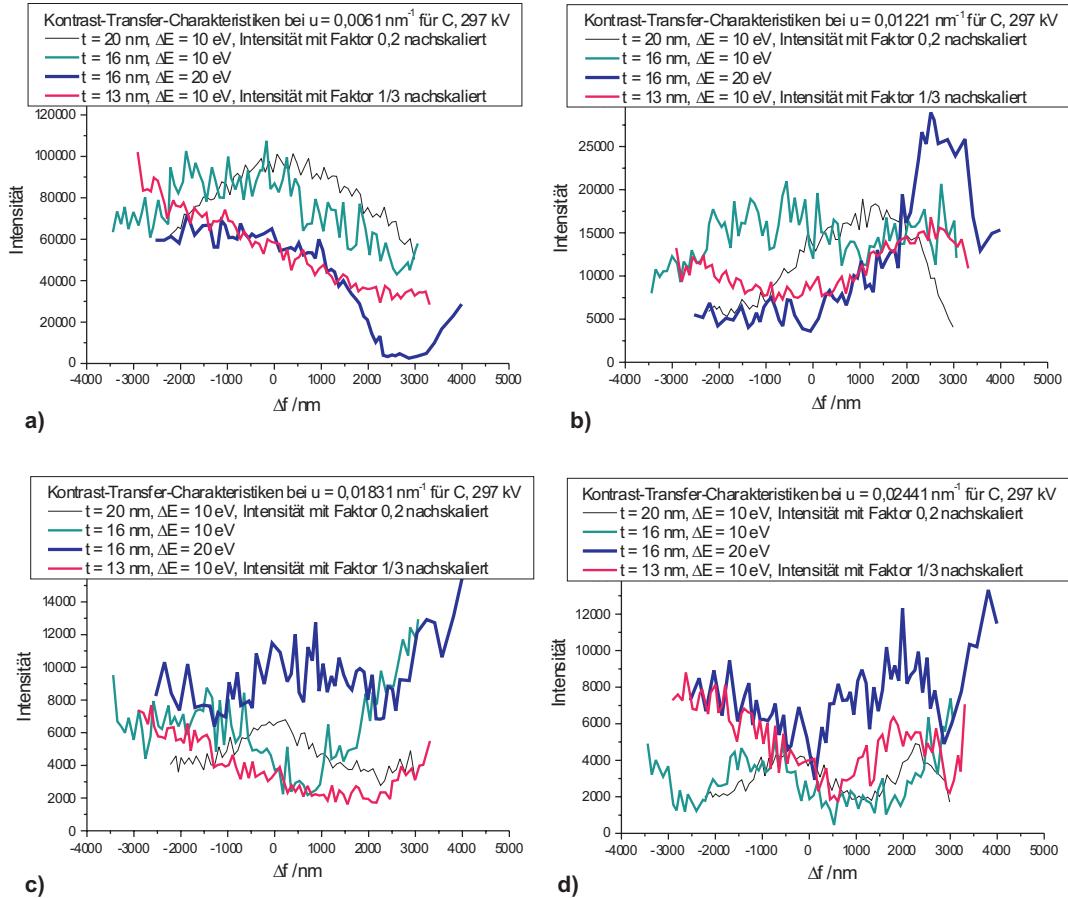


Abbildung 9.2: Linescans bei kleinen konstanten Raumfrequenzen in elastisch gefilterten Kontrast-Transfer-Charakteristiken von amorphen Kohlenstofffolien unterschiedlicher Schichtdicke  $t$  bei einer verwendeten Energiespaltbreite  $\Delta E$ : a) bei einer Raumfrequenz  $u = 0,0061 \text{ nm}^{-1}$ ; b) bei  $u = 0,01221 \text{ nm}^{-1}$ ; c) bei  $u = 0,01831 \text{ nm}^{-1}$ ; d) bei  $u = 0,02441 \text{ nm}^{-1}$ . Die Fokusreihen für die Kontrast-Transfer-Charakteristiken wurden am JEOL JEM 3010 mit einer Beschleunigungsspannung von 297 kV aufgenommen. Für die 20 nm und die 13 nm dicke Folie wurden die Linescanintensitäten mit einem Faktor 0,2 bzw. 1/3 nachskaliert.

Linescans von elastisch gefilterten Kontrast-Transfer-Charakteristiken bei konstanten Raumfrequenzen  $u < 0,03 \text{ nm}^{-1}$  bei einer Beschleunigungsspannung von 297 kV zu sehen. Auch dort sind Abweichungen vom erwarteten näherungsweise linearen Verlauf in Form von Oszillationen zu sehen. Die Höhe der Oszillationen nimmt

auch hier mit steigender Raumfrequenz von Abbildung 9.2 a) nach d) ab, während gleichzeitig die Anzahl dieser Oszillationen zunimmt, denn während in Abbildung 9.2 a) sich im Prinzip ein breites lokales Maximum in der Intensität ausbildet, sind in Abbildung 9.2 d) zwei bis drei lokale Maxima zu sehen. Außer in Abbildung 9.2 c) gibt es eine relativ deutliche Übereinstimmung zwischen den Linescanintensitätsverläufen der 13 nm dicken Folie und dem 16 nm dicken Film, bei dem die Untersuchung mit einer Energiespaltbreite  $\Delta E = 20 \text{ eV}$  durchgeführt wurde. Die Messungen für die 20 und 16 nm dicken Folien bei einer elastischen Filterung mit  $\Delta E = 10 \text{ eV}$  stimmen in Abbildung 9.2 a) und d) gut überein. Trotz der paarweisen Übereinstimmungen der Linescanintensitäten ist keine generelle Übereinstimmung bei allen vier Folien bei diesen Raumfrequenzen zu beobachten. Dies kann mit den unterschiedlichen Schichtdicken und mit Dickegradienten zusammenhängen. Jedoch ist überhaupt die Ursache für diese Oszillationen in den Abbildungen 9.2 und 9.1 unklar.

Abbildung 9.3 zeigt die Verhältnisse der Linescans in elastisch gefilterten Kontrast-Transfer-Charakteristiken bei konstanter sehr kleiner Raumfrequenz für untersuchte amorphe Germaniumfolien unterschiedlicher Dicke bei einer Beschleunigungsspannung von 297 kV. Abgesehen von Höhenunterschieden in den Kurven, passen die Linescanintensitäten für die unterschiedlichen Proben von Abbildung 9.3 b - d) was den Intensitätsverlauf mit lokalen Maxima und Minima angeht gut zueinander. Die größten Abweichungen der Linescans untereinander gibt es in Abbildung 9.3 a), in der sie in der Regel nur ein lokales Minimum zeigen. In Abbildung 9.3 c) und d) bei höheren Raumfrequenzen sind neben dem lokalen Minimum, das in allen Messkurven in diesen beiden Abbildungen sowie in Abbildung 9.3 b) ungefähr bei  $\Delta f = 0 \text{ nm}$  liegt, zwei verrauschte lokale Maxima sichtbar. Der Abstand dieser beiden lokalen Maxima scheint aber mit wachsender Raumfrequenz von Abbildung 9.3 b) nach d) abzunehmen. Angesichts der qualitativen Übereinstimmungen der Linescanintensitäten in Abbildung 9.3 b) - d) scheint der bei Raumfrequenzen  $u < 0,06 \text{ nm}^{-1}$  beobachtete Effekt der theoretisch nicht vorhergesagten Oszillationen in diesen Intensitäten für die Germaniumfolien bei einer Beschleunigungsspannung von 297 kV reproduzierbar zu sein.

Bisher haben wir nur in diesem Abschnitt Kontrast-Transfer-Charakteristiken be-

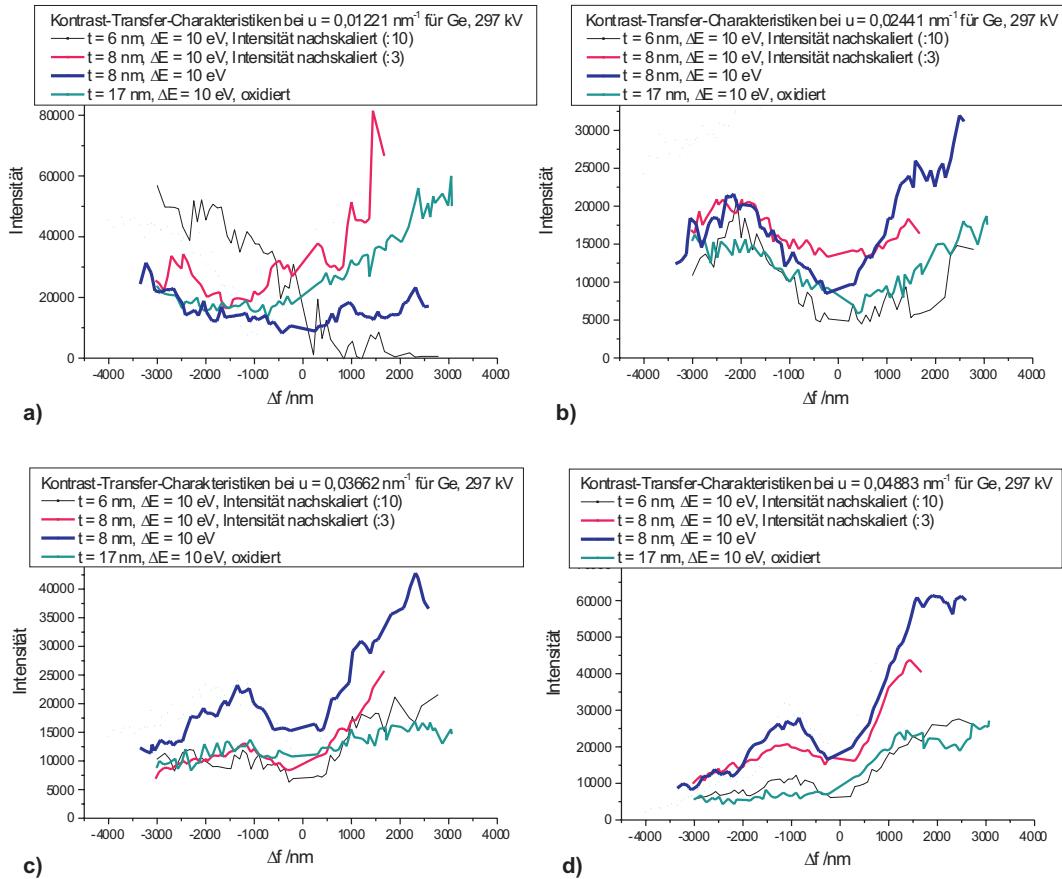


Abbildung 9.3: Linescans bei kleinen konstanten Raumfrequenzen in elastisch gefilterten Kontrast-Transfer-Charakteristiken von amorphen Germaniumfolien unterschiedlicher Schichtdicke  $t$  bei einer verwendeten Energiespaltbreite  $\Delta E = 10 \text{ eV}$ : a) bei einer Raumfrequenz  $u = 0,01221 \text{ nm}^{-1}$ ; b) bei  $u = 0,02441 \text{ nm}^{-1}$ ; c) bei  $u = 0,03662 \text{ nm}^{-1}$ ; d) bei  $u = 0,04883 \text{ nm}^{-1}$ . Die Fokusreihen für die Kontrast-Transfer-Charakteristiken wurden am JEOL JEM 3010 mit einer Beschleunigungsspannung von 297 kV aufgenommen. Für die 6 nm und die mit roter Farbe repräsentierte 8 nm dicke Folie wurden die Linescanintensitäten mit einem Faktor 0,1 bzw. 1/3 nachskaliert. Bei der 17 nm dicken Folie fand eine Oxidation an Atmosphäre statt. Diese Folie wurde genauer in Kapitel 8 untersucht.

trachtet, die aus elastisch gefilterten Fokusreihen bei einer Beschleunigungsspannung von 297 kV bestimmt wurden. Die Abweichungen vom theoretisch erwarteten näherungsweise linearen Intensitätsverlauf in Linescans dieser Kontrast-Transfer-Charakteristiken bei konstanten Raumfrequenzen  $u < 0,06 \text{ nm}^{-1}$  sind allerdings

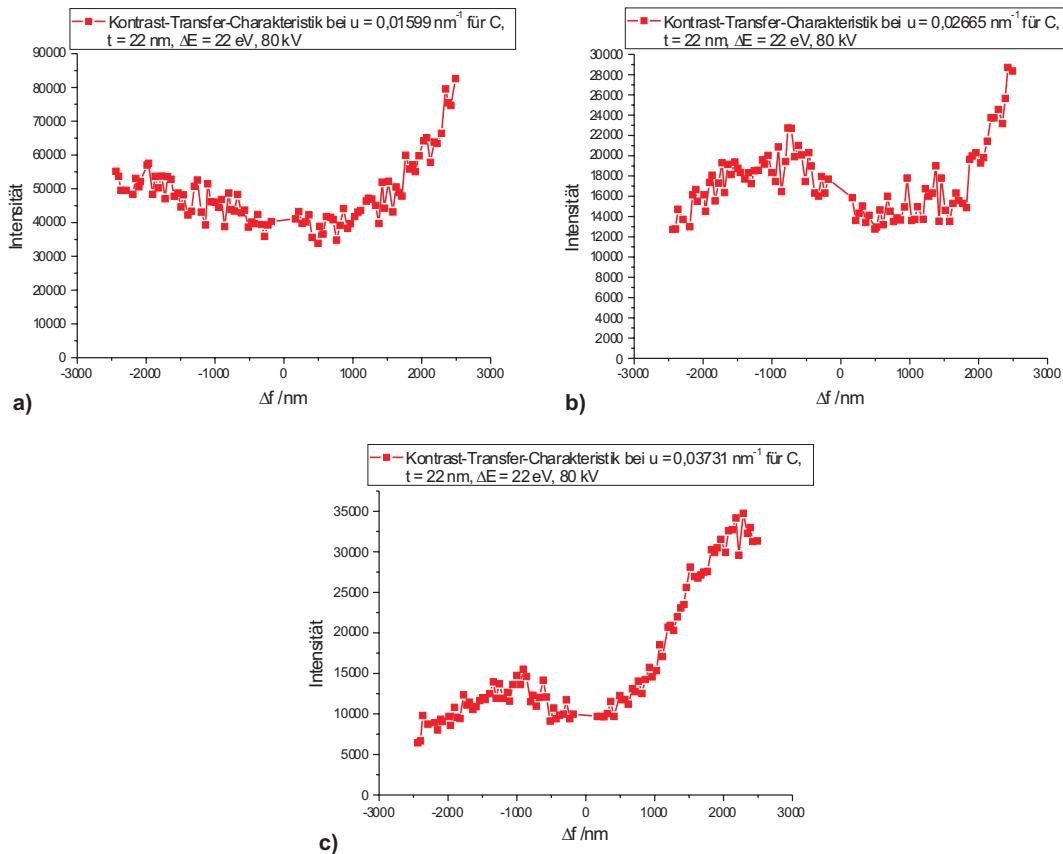


Abbildung 9.4: Linescans bei kleinen konstanten Raumfrequenzen in einer elastisch gefilterten Kontrast-Transfer-Charakteristik einer 22 nm dicken amorphen Kohlenstofffolie bei einer verwendeten Energiespaltbreite  $\Delta E = 22 \text{ eV}$ : a) bei einer Raumfrequenz  $u = 0,01599 \text{ nm}^{-1}$ ; b) bei einer Raumfrequenz  $u = 0,02665 \text{ nm}^{-1}$ ; c) bei  $u = 0,03731 \text{ nm}^{-1}$ . Die Fokusreihe für die Kontrast-Transfer-Charakteristik wurde am Zeiss EM 902 mit einer Beschleunigungsspannung von 80 kV aufgenommen.

auch bei einer Beschleunigungsspannung von 80 kV zu beobachten, was in Abbildung 9.4 für eine amorphe Kohlenstoffprobe und in Abbildung 9.5 für eine amorphe Germaniumfolie anhand der dort dargestellten Linescanintensitäten aus Kontrast-Transfer-Charakteristiken zu erkennen ist. Auch diese Abbildungen deuten darauf hin, dass die Anzahl der Oszillationen mit wachsender Raumfrequenz zunimmt bzw. der Abstand zwischen den lokalen Maxima abnimmt.

Eine eventuell falsch durchgeführte Untergrundkorrektur der Einzeldiffraktogram-

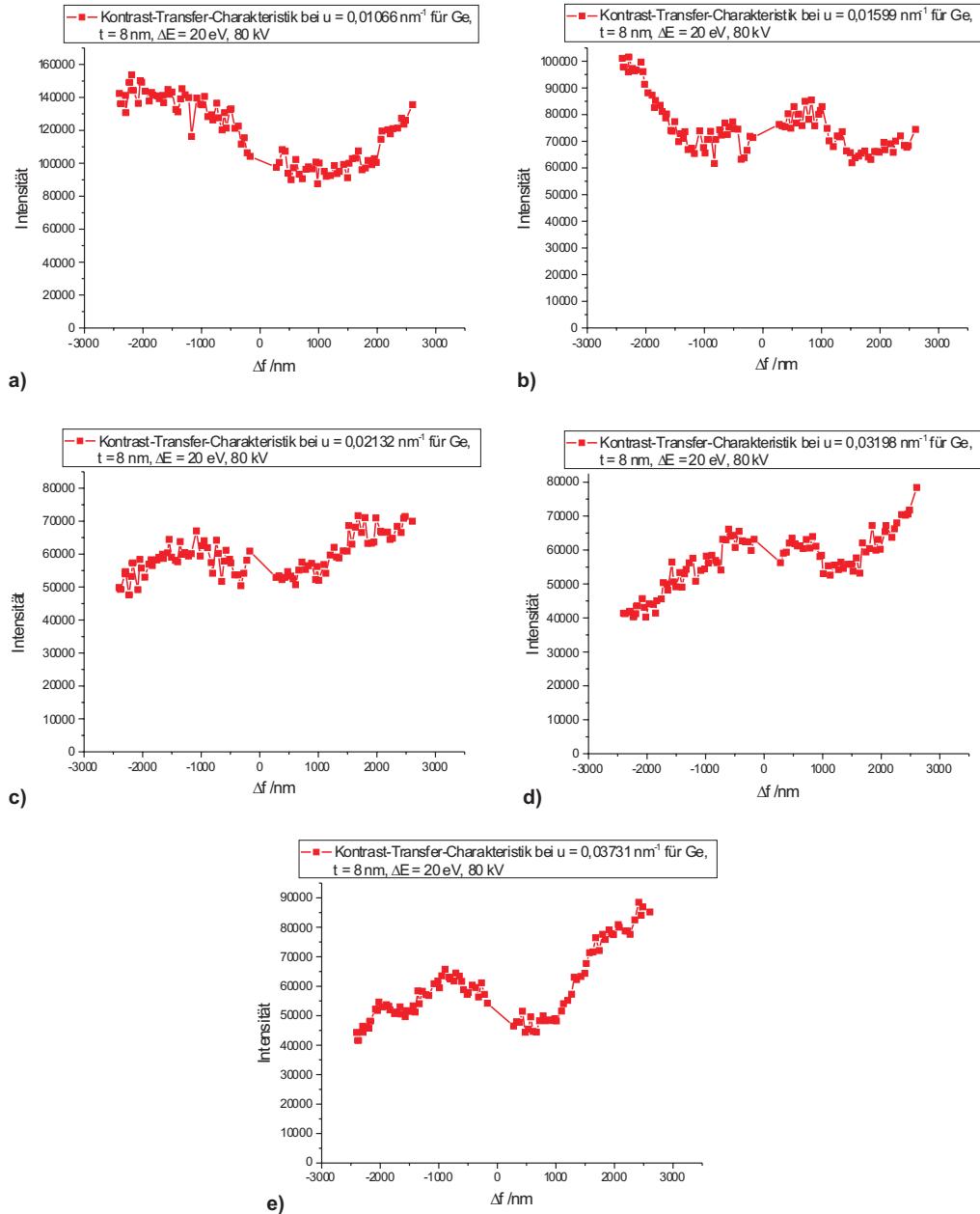


Abbildung 9.5: Linescans bei kleinen konstanten Raumfrequenzen  $u$  in einer elastisch gefilterten Kontrast-Transfer-Charakteristik einer 8 nm dicken amorphen Germaniumfolie bei einer verwendeten Energiespaltbreite  $\Delta E = 20 \text{ eV}$ : a) bei  $u = 0,01066 \text{ nm}^{-1}$ ; b) bei  $u = 0,01599 \text{ nm}^{-1}$ ; c) bei  $u = 0,02132 \text{ nm}^{-1}$ ; d) bei  $u = 0,03198 \text{ nm}^{-1}$ ; e) bei  $u = 0,03731 \text{ nm}^{-1}$ . Die Fokusreihe für die Kontrast-Transfer-Charakteristik wurde am Zeiss EM 902 bei 80 kV aufgenommen.

me, aus denen die Kontrast-Transfer-Charakteristik zusammengesetzt ist, scheidet aus, da dies nicht die Oszillationen auf der Defokus-Achse in den Linescanintensitäten erklären würde und auch nicht deren mit der Raumfrequenz zunehmende Anzahl. Da jeder Messpunkt in den bisher in Abbildung 9.1 - 9.5 gezeigten Linescans einem Einzeldiffraktogramm zuzuschreiben ist, würde man nämlich eher statistische Schwankungen um den theoretisch vorhergesagten näherungsweisen linearen Verlauf bei sehr kleinen Raumfrequenzen (vgl. Abbildung 2.7) innerhalb des hier abgedeckten Defokusbereichs erwarten, wenn ein falscher Untergrundabzug in den Einzeldiffrakogrammen durchgeführt worden wäre. Abbildung 9.6 soll Sicherheit darüber geben, dass eine eventuell falsche Untergrundkorrektur in den Diffraktogrammen als Ursache für die hier diskutierten Abweichungen zwischen experimentellem und theoretischem Verlauf bei kleinen Raumfrequenzen  $u < 0,06 \text{ nm}^{-1}$  in den Kontrast-Transfer-Charakteristiken ausgeschlossen werden kann. In dieser Abbildung sind Linescans bei konstanten kleinen Raumfrequenzen  $u < 0,062 \text{ nm}^{-1}$  in einer elastisch gefilterten Kontrast-Transfer-Charakteristik für eine 8 nm dicke amorphe Germaniumprobe gezeigt, in der die Einzeldiffraktogramme nicht bezüglich des Untergrundes  $B(u)$  und der Modulationstransferfunktion  $MTF_{CCD}(u)$  der CCD-Kamera gemäß Kapitel 2.5 korrigiert wurden. Die Abweichungen zwischen dem theoretisch erwarteten näherungsweise linearen Intensitätsverhalten und den experimentellen Verläufen in den Linescans in Form von Oszillationen in Abhängigkeit vom Defokus sind in Abbildung 9.6 auch ohne die Untergrundkorrektur in den Diffraktogrammen deutlich zu erkennen. Da ein Diffraktogramm gemäß Gleichung (2.61) erst dann bezüglich der Modulationsübertragungsfunktion  $MTF_{CCD}(u)$  korrigiert werden kann, wenn die Untergrundkorrektur durchgeführt worden ist, konnten die Linescans in Abbildung 9.6 auch nicht bezüglich der Modulationsübertragungsfunktion  $MTF_{CCD}(u)$  korrigiert werden. Weil  $MTF_{CCD}(u)$  aber nicht vom Defokus abhängig ist, ändert dies nichts an der Diskussion bezüglich des Ausscheidens eines eventuell fehlerhaften Untergrundabzugs in den Einzeldiffrakogrammen als Ursache für die Oszillationen in den Linescans in Abhängigkeit vom Defokus.

Die in Abbildung 9.6 a) - d) dargestellten experimentellen Linescans in einer Kontrast-Transfer-Charakteristik, deren Einzeldiffraktogramme nicht bezüglich des Untergrundes und  $MTF_{CCD}(u)$  korrigiert wurden, entsprechen den in Abbildung 9.3 ge-

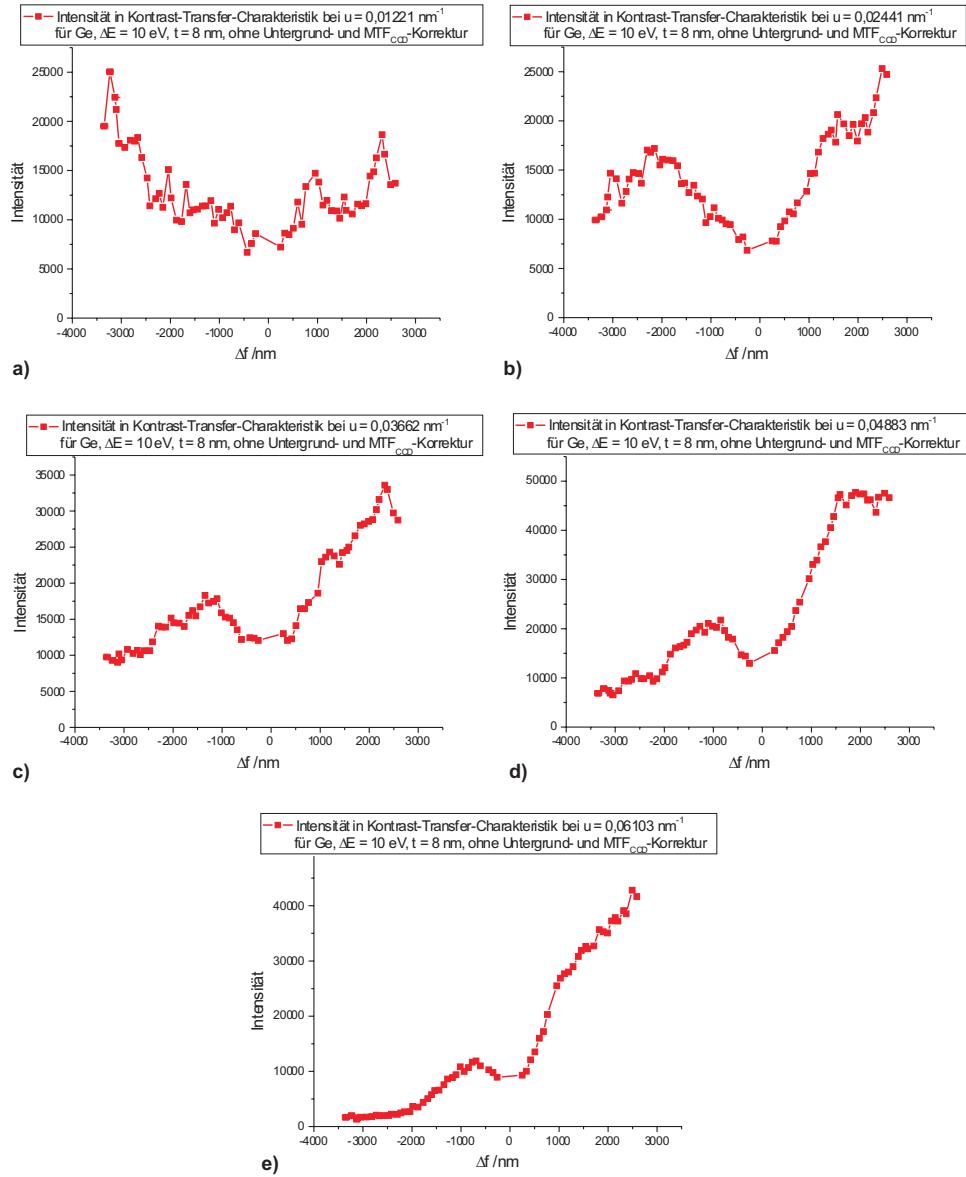


Abbildung 9.6: Linescans bei kleinen konstanten Raumfrequenzen  $u$  in einer elastisch gefilterten Kontrast-Transfer-Charakteristik einer 8 nm dicken amorphen Germaniumfolie, wobei die Einzeldiffraktogramme sowohl bezüglich des Untergrundes als auch bezüglich der Modulationsübertragungsfunktion  $MTF_{CCD}(u)$  nicht korrigiert wurden: a) bei einer Raumfrequenz  $u = 0,01221 \text{ nm}^{-1}$ ; b) bei  $u = 0,02441 \text{ nm}^{-1}$ ; c) bei  $u = 0,03662 \text{ nm}^{-1}$ ; d) bei  $u = 0,04883 \text{ nm}^{-1}$ ; e) bei  $u = 0,06103 \text{ nm}^{-1}$ . Die Fokusreihe für die Kontrast-Transfer-Charakteristik wurde am JEOL JEM 3010 bei einer Energiespaltbreite  $\Delta E = 10 \text{ eV}$  und bei 297 kV aufgenommen.

zeigten blau dargestellten Linescans der 8 nm dicken Germaniumfolie, in denen die Korrektur bezüglich des Rauschens und  $MTF_{CCD}$  durchgeführt wurde. Dass trotz einer in Abbildung 9.6 nicht erfolgten Untergrundkorrektur die dortigen Linescan-intensitäten im Vergleich zu denen aus Abbildung 9.3 für diese Germaniumfolie niedriger sind, hat ihre Ursache darin, dass in Abbildung 9.6 auch die Korrektur bezüglich  $MTF_{CCD}(u)$  nicht durchgeführt wurde und somit dort die Intenstität anders skaliert ist. Die korrespondierenden Linescans in den Abbildungen 9.3 und 9.6 zeigen bezüglich der Oszillationen und der Abweichung zwischen theoretischem und experimentellem Verlauf das gleiche Verhalten, so dass eine eventuell fehlerhaft durchgeführte Untergrundkorrektur der Einzeldiffraktogramme nicht die Ursache für diese Abweichung zwischen Theorie und Experiment sein kann.

Für eine weitere Ursachenforschung sind wohl weitere Experimente mit dünnen amorphen Proben nötig, deren Fokusreihen einen größeren Defokusbereich abdecken als ca.  $-3500 \text{ nm} \leq \Delta f \leq 3500 \text{ nm}$ . Das Verhalten der hier beobachteten und mit den theoretischen Erwartungen nicht vereinbaren Oszillationen bei Raumfrequenzen  $u < 0,06 \text{ nm}^{-1}$  könnte dann besser untersucht werden, was z. B. die Zunahme der Oszillationen und die Verkleinerung ihrer Abstände und ihrer Höhe mit steigender Raumfrequenz angeht, die sich hier in den Messungen herauskristallisierten. Auch sollten Messungen mit Proben unterschiedlicher Schichtdicke durchgeführt werden, denn die Lage und Art dieser Oszillationen war nur zum Teil innerhalb der Experimente zu einem bestimmten Element reproduzierbar. Wie die in diesem Kapitel gezeigten Abbildungen demonstrieren, gab es innerhalb von Proben eines bestimmten Elementes auch Unterschiede im Verhalten der Oszillationen. Dies könnte auf einen Dickegradienten oder auf unterschiedliche Probeneigenschaften, z. B. in Form von probenstellenabhängigen Einschlüssen oder Fehlstellen im amorphen Netzwerk, zurückzuführen sein.

In dieser Arbeit wurden elastisch gefilterte Fokusreihen amorpher dünner Filme untersucht. In Zukunft kann experimentell überprüft werden, ob im Falle ungefilterter Fokusreihen die Oszillationen bei kleinen Raumfrequenzen in Linescans in Kontrast-Transfer-Charakteristiken beeinflusst werden, z. B. in ihrer Höhe, um den Einfluss der inelastischen Streuung auf den hier beobachteten Effekt zu testen.

Bei Raumfrequenzen  $u > 0,06 \text{ nm}^{-1}$  waren die in diesem Abschnitt beschriebenen

Abweichungen zwischen Theorie und Experiment in Form der überlagerten Oszillationen in der Regel nicht mehr vorhanden oder kaum messbar.

## Kapitel 10

### Zusammenfassung

Ziel dieser Arbeit war die Untersuchung dünner amorpher Filme hinsichtlich der Phase komplexer Atomstreuamplituden und des Zwei-Teilchen-Strukturfaktors sowie die Bestimmung partieller Zwei-Teilchen-Strukturfaktoren dünner amorpher sauerstoff- bzw. kohlenstoffhaltiger Proben bezüglich der im Präparat enthaltenen Elemente.

Zur Bestimmung der Phase  $\eta(u)$  komplexer Atomstreuamplituden wurden elastisch gefilterte Fokusreihen dünner amorpher Proben bei Beschleunigungsspannungen von 297 kV und 80 kV aufgezeichnet, die dazu gehörigen Diffraktogramme und Kontrast-Transfer-Charakteristiken berechnet und diese mit Hilfe einer Least-Squares-Fit-Anpassung basierend auf der WO-Näherung ausgewertet. Auf diese Weise wurden Proben aus Kohlenstoff, Silizium und Germanium untersucht. Die experimentellen Ergebnisse dieser Phasen  $\eta(u)$  wiesen bis auf wenige Ausnahmen innerhalb des durch die Messung abgedeckten Raumfrequenzbreichs von ca.  $0,06 \text{ nm}^{-1} < u < 0,8 \text{ nm}^{-1}$  einen Abfall mit steigender Raumfrequenz auf, der von Oszillationen überlagert wurde.

Die beobachteten Oszillationen in  $\eta(u)$  lassen sich mit groben Periodizitäten beschreiben, die je nach Probenart zwischen  $0,1 - 0,2 \text{ nm}^{-1}$  liegen. Somit sind diese zu klein, als dass sie durch atomare Effekte hervorgerufen sein könnten. Die hier experimentell gemessenen Phasenverläufe  $\eta(u)$  passen nicht zu theoretischen Rechnungen, die auf der Berechnung komplexer elastischer Streuamplituden unter Anwendung der WKB-Methode basieren und wonach die Phase in dem in dieser Arbeit untersuchten

Raumfrequenzbereich einigermaßen konstant sein und bei höheren Raumfrequenzen ansteigen sollte. Einige Messergebnisse dieser Arbeit weisen darauf hin, dass eine Strahlenschädigung oder eine Kontamination den in dieser Arbeit gemessenen Phasenabfall beeinflusst oder verursacht haben könnten. Außerdem können in diesem Zusammenhang ein Dickegradient, eine Anlagerung von Verunreinigungen, Fehlstellen im amorphen Netzwerk oder eine ortsabhängige Dichte in der Probe als mögliche Gründe für den Abfall und die Oszillationen der gemessenen Phase angeführt werden.

Die Methode zur Bestimmung der Phase komplexer Atomstreuamplituden ergab auch Resultate für einen Zusatzparameter  $\eta_z(u)$ . Nach theoretischen Überlegungen, denen auch die WO-Näherung zugrunde liegt, ist er in der Einhüllenden aufgrund der schwach konvergenten Beleuchtung im elastischen Diffraktogramm enthalten und ist proportional zur Phasenableitung  $\eta'(u)$ . Die Existenz dieses Zusatzparameters wird in den Experimenten in dieser Arbeit dadurch bestätigt, dass die Intensität in experimentellen elastisch gefilterten Kontrast-Transfer-Charakteristiken mit Hilfe dieses Parameters in Least-Squares-Anpassungen wesentlich besser reproduziert werden konnte. Die aus diesem experimentell erhaltenen Zusatzparameter  $\eta_z(u)$  bestimmten Phasenableitungen  $\eta'_{Par}(u)$  wurden mit den Ableitungen  $\eta'_{Phas}(u)$  verglichen, die sich aus der Ableitung der experimentellen doppelt geglätteten Phasen  $\eta(u)$  ergaben.

Die Vergleiche von  $\eta'_{Par}(u)$  mit  $\eta'_{Phas}(u)$  und den Messergebnissen von  $\eta(u)$  deuten trotz Rauschens in den gemessenen Phasenableitungen und Phasen darauf hin, dass der Zusatzparameter  $\eta_z(u)$  tatsächlich proportional zur Ableitung der Phase  $\eta(u)$  ist und sie tatsächlich in der Einhüllenden aufgrund der schwach konvergenten Beleuchtung im elastischen Diffraktogramm steckt. Für Raumfrequenzen  $u < 0,20 \text{ nm}^{-1}$  ist der Einfluss der Einhüllenden aufgrund der schwach konvergenten Beleuchtung in den Diffraktogrammen aber so schwach, dass bei diesen Raumfrequenzen keine zuverlässigen Messungen von  $\eta'_{Par}(u)$  erzielt wurden.

Die Methode zur Ermittlung der Phase komplexer Atomstreuamplituden aus Kontrast-Transfer-Charakteristiken lieferte zusätzlich Ergebnisse für den Zwei-Teilchen-Strukturfaktor für amorphe Proben, die aus einem Element bestehen. Diese Resultate wurden mit denen aus der Auswertung von inelastisch gefilterten Aufnahmen

und Elementverteilungsbildern mit Hilfe der relativistischen inelastischen Übertragungsfunktion (*ITF*) verglichen. In der Regel stimmten diese auf zwei unabhängige Arten bestimmten Ergebnisse gut im sich überschneidenden Raumfrequenzbereich überein und zeigten einen mit steigender Raumfrequenz fallenden Zwei-Teilchen-Strukturfaktor, in dem auch teilweise Anordnungen von kleinen lokalen Maxima beobachtet wurden. Die Resultate für den Zwei-Teilchen-Strukturfaktor passten außerdem für die beiden eingesetzten Beschleunigungsspannungen von 297 kV und 80 kV ebenfalls gut zueinander. Für den Abfall mit steigender Raumfrequenz sind wahrscheinlich Fehlstellen im amorphen Netzwerk bzw. Materialeinschlüsse verantwortlich. Besteht die Probe nur aus einem Element, so ergänzen sich die beiden Methoden zur Bestimmung des Zwei-Teilchen-Strukturfaktors, da aus dem Diffraktogramm des Elementverteilungsbildes oder inelastisch gefilterten Einzeldiffraktogramms oft kaum Informationen für Raumfrequenzen  $u > 0,4 \text{ nm}^{-1}$  zu erhalten waren, während bei der Analyse von elastisch gefilterten Kontrast-Transfer-Charakteristiken Ergebnisse für Raumfrequenzen  $0,06 \text{ nm}^{-1} < u < 1,0 \text{ nm}^{-1}$  erzielt wurden. Letztere Methode lieferte in der Regel keine Informationen für  $u < 0,06 \text{ nm}^{-1}$ , da dort Abweichungen zwischen dem experimentellen und dem theoretischen Intensitätsverlauf in Kontrast-Transfer-Charakteristiken beobachtet wurden.

Für eine oxidierte amorphe Siliziumfolie und eine amorphe sauerstoff- und kohlenstoffhaltige Germaniumfolie wurden sowohl die partiellen Zwei-Teilchen-Strukturfaktoren für Atompaare des jeweiligen gleichen Elements als auch der Betrag der partiellen Zwei-Teilchen-Strukturfaktoren für Atompaare von unterschiedlichen in der Probe enthaltenen Elementen bestimmt, indem Diffraktogramme von Elementverteilungsbildern und inelastisch gefilterten Bildern unter Anwendung relativistischer *ITFs* ausgewertet wurden. Die Analyse der Siliziumfolie ergab dabei, dass die Oxidation der Probe nicht vollständig war und dass neben sauerstoffhaltigen Einschlüssen oder Hohlräumen im oxidierten Probenbereich auch Hohlräume im nicht-oxidierten Inneren der Probe vorhanden sind, die kein Sauerstoff enthalten. Auch kann man schließen, dass das untersuchte Siliziumpräparat Oberflächenrauigkeiten mit Strukturen von ca. 14 nm aufweist oder entsprechend ungleichmäßig oxidiert ist.

Diese Oberflächenrauigkeiten können auch der untersuchten kohlenstoffhaltigen und

an der Oberfläche oxidierten Germaniumprobe zugeordnet werden, wo die Rauigkeiten Strukturen in der Größenordnung von ca. 20 nm aufweisen. Alternativ oder zusätzlich zu diesen Oberflächenstrukturen können sich Partikelansammlungen aus kohlenstoff- und sauerstoffhaltigen Verbindungen als Kontamination auf der Probe abgelagert haben. Außerdem deuten die Ergebnisse der partiellen Zwei-Teilchen-Strukturfaktoren darauf hin, dass wahrscheinlich CO<sub>2</sub>- oder CO-haltige Einschlüsse im Präparat vorhanden sind.

Bei den elastisch gefilterten Fokusreihen der dünnen amorphen Proben fiel in dieser Arbeit trotz gleicher Belichtungszeit pro Bild innerhalb einer Serie eine Abhängigkeit der mittleren Bildintensität vom Defokus  $\Delta f$  auf, die im Anhang diskutiert wurde. Diese zeigte innerhalb des in diesen Messungen abgedeckten Defokusbereichs und für die hier benutzten kleinen Konvergenzhalbwinkel  $\leq 0,17$  mrad einen näherungsweise linearen Verlauf, dessen Steigung sowohl vom Vorzeichen als auch betragsmäßig von der Kondensorlinsenanregung abhängig war. Dieses Verhalten konnte in Abschnitt B im Anhang dieser Arbeit sowohl qualitativ als auch quantitativ erklärt bzw. reproduziert werden. Des Weiteren wurde die Möglichkeit aufgezeigt, wie dieser Effekt zur Bestimmung der Gegenstandsweite des Crossovers bezogen auf die Objektivlinse und zur Abschätzung des Crossoverdurchmessers vor der Objektivlinse genutzt werden kann. Die Defokusabhängigkeit der mittleren Bildintensität in Fokusreihen trotz gleicher Belichtungszeit pro Bild macht deutlich, dass für die Berechnung von Kontrast-Transfer-Charakteristiken aus diesen Fokusreihen vorher immer eine Intensitätsnormierung der Einzelbilder notwendig ist.

Zusätzlich wurden in dieser Arbeit zwei Verfahren entwickelt und im Anhang vorgestellt, die eine Konvergenzhalbwinkelgleichung für ein Transmissionselektronenmikroskop mit Hilfe elastisch gefilterter Fokusreihen amorpher Proben und mit Hilfe von Stromdichtemessungen ermöglicht.

## Anhang A

# Konvergenzhalbwinkelgleichung mit Hilfe amorpher Proben

Die Eichung des Konvergenzhalbwinkels  $\alpha$  wird oft mittels konvergenter Beugung an Kristallen durchgeführt [56], da der Gesamtkonvergenzwinkel  $2\alpha$  proportional zur Breite  $a$  der Beugungsscheibchen im Beugungsbild ist. Bestimmt man aus dem Beugungsbild diese Breite  $a$  und den Abstand  $b$  des Mittelpunktes des Beugungsscheibchens der Gitterebene mit den Miller-Indizes  $\{hkl\}$  und dem Braggwinkel  $\vartheta_B$  zum Mittelpunkt des Beugungsscheibchens des  $\{000\}$ -Strahls, so lässt sich  $\alpha$  berechnen zu

$$2\alpha = 2\vartheta_B \frac{a}{b}. \quad (\text{A.1})$$

Die hier untersuchten Proben waren amorph, nicht kristallin. Um anhand von Aufnahmen dieser amorphen Folien die Bestimmung von Konvergenzhalbwinkeln zu ermöglichen, wurden Methoden entwickelt, die hier vorgestellt werden. Die erste Methode basiert auf der WPO-Näherung. Für ein elastisches Diffraktogramm einer dünnen amorphen Probe, die nur aus einem Element besteht, gilt in diesem Fall nach Gleichung (2.19) und (2.38)

$$\left| \hat{C}(u) \right|^2 = \text{const} \cdot |f_a(u)|^2 S(u) \cdot 4A^2(u) |E_c(u)|^2 |E_\alpha(u)|^2 \cdot \sin^2 \gamma(u), \quad (\text{A.2})$$

dabei betrachten wir zunächst den Fall schwach konvergenter Beleuchtung, also kleiner  $\alpha$ , so dass wir zur Beschreibung der Einhüllenden  $E_\alpha(u)$  und  $E_c(u)$  von Gleichung (2.22) und (2.21) ausgehen. Nimmt man von der gleichen Probenstelle bei

unterschiedlichen Defokuswerten  $\Delta f_1$  und  $\Delta f_2$  und ansonsten gleichen Aufnahmebedingungen elastisch gefilterte bzw. elastische Bilder auf, so gilt für die dazu gehörigen experimentellen Diffraktogramme  $|\hat{C}_{exp}(u, \Delta f_1)|^2$  und  $|\hat{C}_{exp}(u, \Delta f_2)|^2$  nach Subtraktion des Untergrundes  $B(u)$  gemäß Kapitel 2.5

$$\frac{|\hat{C}_{exp}(u, \Delta f_1)|^2}{|\hat{C}_{exp}(u, \Delta f_2)|^2} = \frac{E_\alpha^2(u, \Delta f_1)}{E_\alpha^2(u, \Delta f_2)} \cdot \frac{\sin^2 \gamma(u, \Delta f_1)}{\sin^2 \gamma(u, \Delta f_2)}. \quad (\text{A.3})$$

Durch die Division der beiden Diffraktogramme kürzen sich der Zwei-Teilchen-Strukturfaktor, das Betragsquadrat der Atomstreuamplitude und der Einhüllenden  $E_c(u)$  sowie das Quadrat der Modulationstransferfunktion  $MTF_{CCD}(u)$  heraus. Einsetzen von Gleichung (2.22) in Gleichung (A.3) ergibt

$$\frac{|\hat{C}_{exp}(u, \Delta f_1)|^2}{|\hat{C}_{exp}(u, \Delta f_2)|^2} = \frac{\sin^2 \gamma(u, \Delta f_1)}{\sin^2 \gamma(u, \Delta f_2)} \cdot e^{-2\pi^2 \frac{\alpha^2}{\ln 2} \{A(u, \Delta f_1, \Delta f_2) + P(u, \Delta f_1, \Delta f_2)\}}, \quad (\text{A.4})$$

mit den Funktionen

$$A(u, \Delta f_1, \Delta f_2) = 2C_s \lambda^2 u^4 (\Delta f_2 - \Delta f_1), \quad (\text{A.5})$$

$$P(u, \Delta f_1, \Delta f_2) = (\Delta f_1^2 - \Delta f_2^2) u^2. \quad (\text{A.6})$$

Daraus folgt

$$\frac{P(u, \Delta f_1, \Delta f_2)}{A(u, \Delta f_1, \Delta f_2)} = \frac{\Delta f_1 + \Delta f_2}{2C_s \lambda^2 u^2}. \quad (\text{A.7})$$

Sind die Aufnahmen bei höheren Defokuswerten aufgezeichnet, deren Beträge sich deutlich voneinander unterscheiden, und konzentriert man sich auf kleine Raumfrequenzen, so kann man unter diesen Bedingungen aus Gleichung (A.7) schließen, dass der Term  $A(u, \Delta f_1, \Delta f_2)$  gegenüber  $P(u, \Delta f_1, \Delta f_2)$  vernachlässigt werden kann. Es folgt daraus

$$\frac{|\hat{C}_{exp}(u, \Delta f_1)|^2}{|\hat{C}_{exp}(u, \Delta f_2)|^2} \approx \frac{\sin^2 \gamma(u, \Delta f_1)}{\sin^2 \gamma(u, \Delta f_2)} \cdot e^{-2\pi^2 \frac{\alpha^2}{\ln 2} (\Delta f_1^2 - \Delta f_2^2) u^2}. \quad (\text{A.8})$$

Wir wollen nun mit Gleichung (A.8) solche Diffraktogramme koppeln, deren Defokusbeträge  $|\Delta f_1|$  und  $|\Delta f_2|$  so im Verhältnis stehen, dass bei einer Raumfrequenz

$u_{opt}$  sowohl  $\sin^2 \gamma(u_{opt}, \Delta f_1)$  als auch  $\sin^2 \gamma(u_{opt}, \Delta f_2)$  gleich 1 sind, also ein Maximum aufweisen. Für diese Raumfrequenz  $u_{opt}$  muss nach Einsatz von Gleichung (2.20)

$$\begin{aligned} \frac{1}{2}\pi C_s \lambda^3 u^4 - \pi \lambda \Delta f u^2 &= n \frac{\pi}{2} \\ \Rightarrow C_s \lambda^3 u^4 - 2\lambda \Delta f u^2 &= n \end{aligned} \quad (\text{A.9})$$

mit  $\Delta f = \Delta f_1$  bzw.  $\Delta f_2$  und einer ungeraden natürlichen Zahl  $n$  gelten. Da wir höhere Defokuswerte und kleine Raumfrequenzen betrachten, vernachlässigen wir den von  $C_s$  abhängigen Term aus Gleichung (A.9) und man findet unter dieser Bedingung

$$u_{opt} \approx \sqrt{\frac{|n_1|}{2\lambda |\Delta f_1|}} = \sqrt{\frac{|n_2|}{2\lambda |\Delta f_2|}}. \quad (\text{A.10})$$

Dabei sind  $n_1$  und  $n_2$  die Nummerierungsfaktoren  $n$  für die beiden Diffraktogramme gemäß Gleichung (A.9).

Setzt man Gleichung (A.10) in Gleichung (A.8) ein, so erhält man die Beziehung

$$\alpha \approx \sqrt{\frac{\lambda \ln 2}{\pi^2 (|n_1| \cdot |\Delta f_1| - |n_2| \cdot |\Delta f_2|)} \cdot \ln \left( \frac{|\hat{C}_{exp}(u_{opt}, \Delta f_1)|^2}{|\hat{C}_{exp}(u_{opt}, \Delta f_2)|^2} \right)}, \quad (\text{A.11})$$

zur Bestimmung des Konvergenzhalbwinkels  $\alpha$ , die das Verhältnis der beiden Diffraktogramme an der Raumfrequenz  $u_{opt}$  enthält.

Diese Raumfrequenz  $u_{opt}$  fällt aufgrund des Einflusses der Einhüllenden  $E_\alpha(u)$  und  $E_c(u)$  nicht in jedem Fall mit der Raumfrequenz zusammen, bei der im Diffraktogramm ein lokales Maximum beobachtet wird, vor allem dann nicht, wenn es sich um das erste lokale Maximum aufgrund des  $\sin^2 \gamma(u)$ -Terms handelt [52]. So ist  $u_{opt}$  vor allem für dieses erste Maximum nicht direkt aus dem Diffraktogramm zu entnehmen, sondern man muss  $u_{opt}$  nach Gleichung (A.10) berechnen. Dazu ist allerdings die Kenntnis des Defokus  $\Delta f$  notwendig, der nach Krivanek [33] wiederum aus der Lage der Extremstellen im Diffraktogramm berechnet werden kann. Um keine Verfälschung des Ergebnisses aufgrund des oben genannten Einflusses der Einhüllenden zu erhalten, sollte man zur Defokusbestimmung nach Möglichkeit nur die Lage der Nullstellen im Diffraktogramm bei einer derartigen Defokusbestimmung verwenden

Diffrakto-gramm 2 mit $\Delta f_2$	Diffraktogramm 1 mit $\Delta f_1$			
	$ n_1  = 1$	$ n_1  = 3$	$ n_1  = 5$	$ n_1  = 7$
$ n_2  = 1$	-	$ \Delta f_2  = \frac{1}{3}  \Delta f_1 $	$ \Delta f_2  = \frac{1}{5}  \Delta f_1 $	$ \Delta f_2  = \frac{1}{7}  \Delta f_1 $
$ n_2  = 3$	$ \Delta f_2  = 3  \Delta f_1 $	-	$ \Delta f_2  = \frac{3}{5}  \Delta f_1 $	$ \Delta f_2  = \frac{3}{7}  \Delta f_1 $
$ n_2  = 5$	$ \Delta f_2  = 5  \Delta f_1 $	$ \Delta f_2  = \frac{5}{3}  \Delta f_1 $	-	$ \Delta f_2  = \frac{5}{7}  \Delta f_1 $
$ n_2  = 7$	$ \Delta f_2  = 7  \Delta f_1 $	$ \Delta f_2  = \frac{7}{3}  \Delta f_1 $	$ \Delta f_2  = \frac{7}{5}  \Delta f_1 $	-

Tabelle A.1: Bedingungen für die Defokuswerte  $\Delta f_1$  und  $\Delta f_2$  bei der Kopplung von Diffraktogrammen an der Raumfrequenz  $u_{opt}$  nach Gleichung (A.10) am Beispiel  $|n_1|, |n_2| \leq 7$ . Die mit „ - “ markierten Stellen bedeuten  $|\Delta f_1| = |\Delta f_2|$  und sind für die Methode zur Bestimmung des Konvergenzhalbwinkels  $\alpha$  irrelevant.

und das erste Maximum im Diffraktogramm aufgrund des  $\sin^2 \gamma(u)$ -Terms nicht benutzen [52].

Nach erfolgter Bestimmung des Defokus kann dann  $u_{opt}$  ermittelt und  $\alpha$  nach Gleichung (A.11) aus dem Diffraktogrammverhältnis an der Raumfrequenz  $u_{opt}$  bestimmt werden, falls die Defokuswerte  $\Delta f_1$  und  $\Delta f_2$  die Bedingung

$$\sqrt{\frac{|n_1|}{2\lambda |\Delta f_1|}} = \sqrt{\frac{|n_2|}{2\lambda |\Delta f_2|}} \quad (\text{A.12})$$

aus Gleichung (A.10) erfüllen. Diese Bedingung ist in tabellarischer Form für die Fälle  $|n_1|, |n_2| \leq 7$  in Tabelle A.1 dargestellt. Eine graphische Veranschaulichung des Zusammenhangs zwischen den Defokuswerten und den zu koppelnden Maxima der  $\sin^2 \gamma(u)$ -Terme der Diffraktogramme zeigt Abbildung A.1 am Beispiel  $\Delta f_1 = 4000$  nm für  $C_s = 0,62$  mm und eine Beschleunigungsspannung von 297 kV.

Der  $\sin^2 \gamma(u)$ -Term des ersten Diffraktogramms  $|\hat{C}_{exp}(u, \Delta f_1)|^2$  mit einem Defokus  $\Delta f_1 = 4000$  nm ist in Abbildung A.1 a) dargestellt. Abbildungen A.1 b - c) zeigen eine violette, eine grüne und eine blaue Kurve, die jeweils den  $\sin^2 \gamma(u)$ -Term des potentiellen zweiten Diffraktogramms mit einem Defokus  $\Delta f_i$  darstellen, das sich an den Raumfrequenzen  $u_{opt}$ , die mit einem Pfeil der jeweiligen Kurvenfarbe markiert sind, nach Gleichung (A.10) mit dem ersten Diffraktogramm koppeln lässt, um den Konvergenzhalbwinkel  $\alpha$  nach Gleichung (A.11) zu bestimmen. Dabei sind

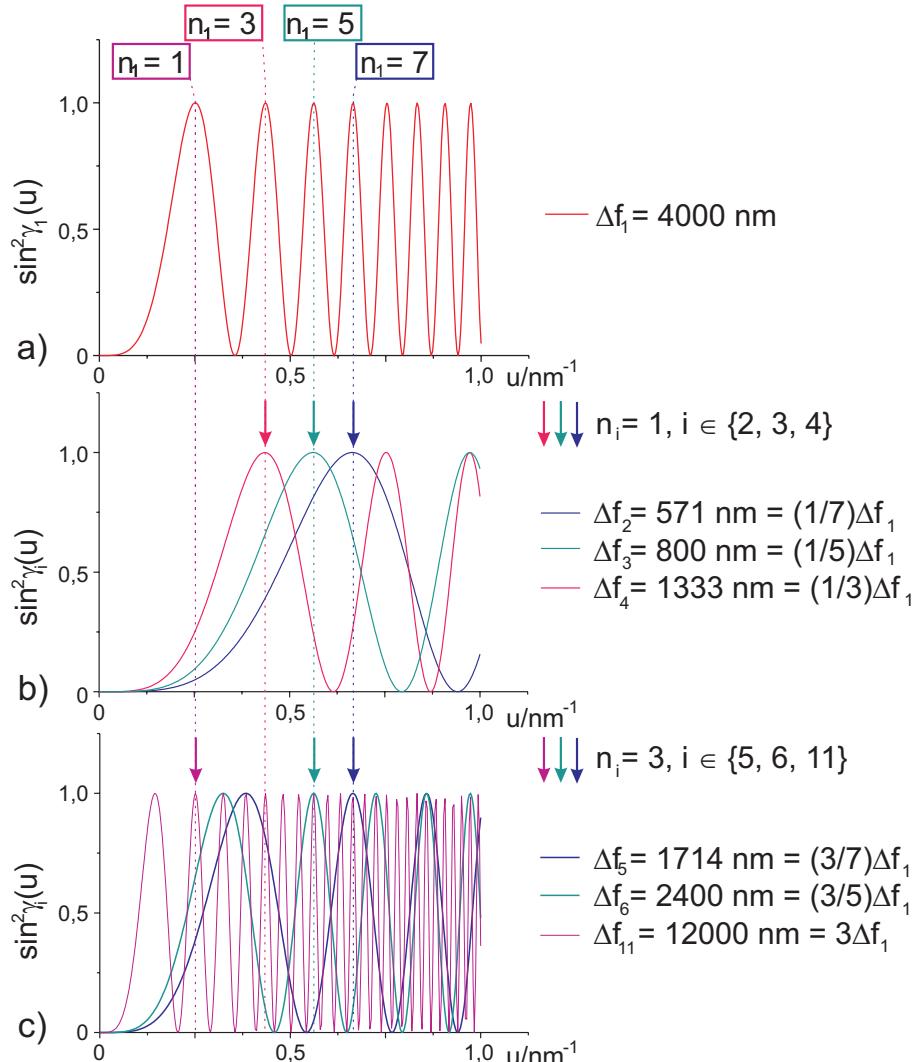


Abbildung A.1: Graphische Veranschaulichung des Zusammenhangs zwischen den Defokuswerten und den zu koppelnden Maxima der Diffraktogramme am Beispiel  $\Delta f_1 = 4000 \text{ nm}$  bei einer Beschleunigungsspannung von 297 kV und einer sphärischen Aberrationskonstante  $C_s = 0,62 \text{ mm}$ . Erläuterungen: siehe Text.

in Abbildung A.1 zur besseren Übersicht nicht alle Kopplungsmöglichkeiten mit einem Pfeil markiert. So kann man z. B. das erste Maximum mit dem Index  $n_1 = 1$  des ersten Diffraktogramms mit dem zweiten Maximum eines Diffraktogramms mit  $\Delta f_{11} = 12000 \text{ nm}$  und dem Index  $n_{11} = 3$  (Abbildung A.1 c) koppeln. Eine andere

Möglichkeit wäre die Kopplung des dritten Maximums mit dem Index  $n_1 = 5$  des ersten Diffraktogramms (Abbildung A.1 a) mit dem ersten Maximum mit dem Index  $n_3 = 1$  eines Diffraktogramms mit  $\Delta f_3 = 800 \text{ nm}$  (Abbildung A.1 b) usw.

Um nun eine Konvergenzhalbwinkelgleichung zunächst für kleine  $\alpha$ , also für schwach konvergente Beleuchtung, durchzuführen, haben wir für unterschiedliche Kondensorlinsenanregungen Fokusreihen in einem Defokusbereich von ca. -3500 nm bis 3500 nm in Schritten von ca. 80 nm aufgenommen und haben daraus nach einer Intensitätsnormierung die Diffraktogramme berechnet, die dann gemäß Kapitel 2.5 bezüglich des Untergrundes durch Schrotrauschen und der Modulationstransferfunktion  $MTF_{CCD}(u)$  der CCD-Kamera korrigiert wurden. Dabei war der zuletzt genannte Schritt der Korrektur bezüglich  $MTF_{CCD}(u)$  bei dieser Methode eigentlich nicht nötig, da durch die Division zweier untergrundkorrigierter Diffraktogramme der gleichen Probenstelle nach Gleichung (A.3) bzw. (A.11) sowohl der Einfluss von  $MTF_{CCD}(u)$  als auch der Probeneinfluss durch den Zwei-Teilchen-Strukturfaktor  $S(u)$  und die Atomstreuamplitude verschwindet. Da die Diffraktogramme der Fokusreihen aber noch für eine zweite Methode zur Konvergenzhalbwinkelgleichung und zur Bestimmung der Phase  $\eta(u)$  komplexer Atomstreuamplituden und des Zwei-Teilchen-Strukturfaktors verwendet wurden, wurde hier auch die Korrektur bezüglich  $MTF_{CCD}(u)$  vorgenommen. Nach der Korrektur der Diffraktogramme wurden nach der Methode von Krivanek [32, 33] und bei oben beschriebener Vorgehensweise die Defokuswerte der Diffraktogramme bestimmt.

Nimmt man eine Fokusreihe in dem oben beschriebenen Defokusbereich mit diesen oder noch feineren Defokusschritten auf, so ergeben sich aus dem dazu gehörigen Diffraktogramm und der Kopplungsbedingung nach Gleichung (A.10) bzw. (A.12) eine Vielzahl von Kopplungsmöglichkeiten von zwei Diffraktogrammen an einer Raumfrequenz  $u_{opt}$ . So kann bei der Auswertung einer Fokusreihe über die aus Gleichung (A.11) resultierenden Ergebnisse für den Konvergenzhalbwinkel  $\alpha$  gemittelt werden. Diese Mittelung ist sinnvoll, da bei Verwendung nur eines Ergebnisses für  $\alpha$  aus der Kopplung von zwei Diffraktogrammen besonders bei höheren Maxima des  $\sin^2 \gamma(u)$ -Terms (also z. B. bei  $n_1 \neq n_2$  mit  $n_1 > 3$  oder  $n_1 > 3$  und  $n_2 > 3$ ) dieses Resultat durch Rauschen in den Diffraktogrammen verzerrt werden kann.

Voraussetzung für eine Vielzahl von Kopplungsmöglichkeiten nach obiger Bedingung

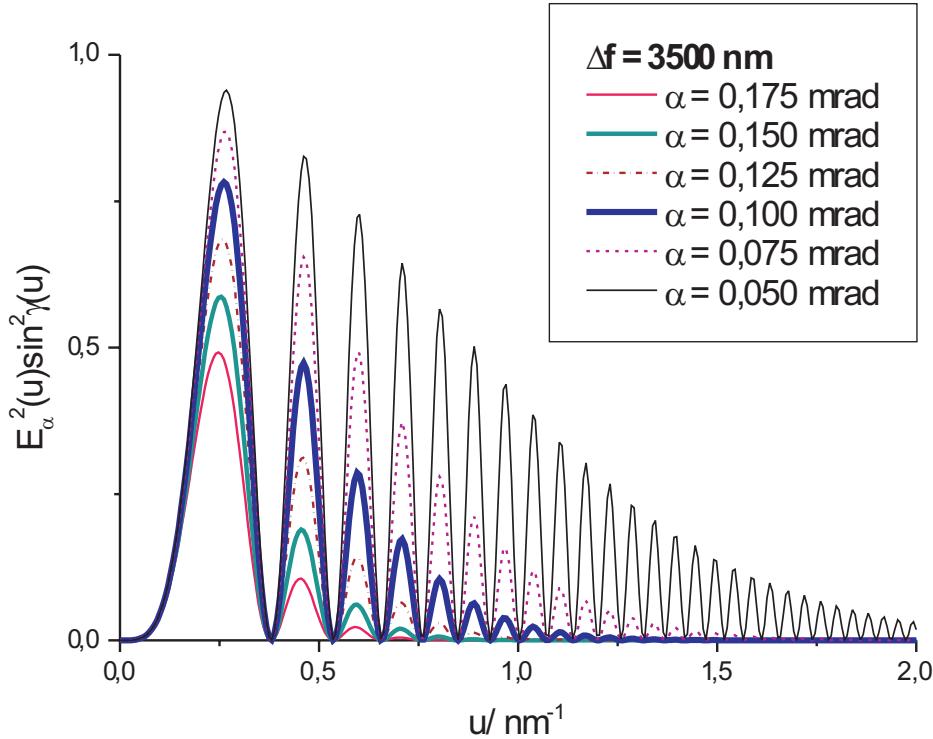


Abbildung A.2: Simulation der Dämpfung des  $\sin^2 \gamma(u)$ -Terms durch  $E_\alpha(u)$  am Beispiel  $\Delta f = 3500 \text{ nm}$ ,  $C_s = 0,62 \text{ mm}$  und einer Beschleunigungsspannung von 297 kV.

ist, dass mindestens drei Maxima in den Diffraktogrammen sichtbar sind. Dies ist neben der Tatsache, dass Gleichung (A.11) nur für schwach konvergente Beleuchtung gilt, der zweite Grund dafür, dass Gleichung (A.11) nur für kleine  $\alpha$  eingesetzt werden kann, da die Einhüllende  $E_\alpha(u)$  die Diffraktogrammintensität mit steigendem  $\alpha$  immer mehr dämpft. Abbildung A.2 zeigt das Produkt  $E_\alpha^2(u) \cdot \sin^2 \gamma(u)$  bei einem Defokus  $\Delta f = 3500 \text{ nm}$ , einer sphärischen Aberrationskonstante  $C_s = 0,62 \text{ mm}$  und einer Beschleunigungsspannung von 297 kV für unterschiedliche  $\alpha$ . Dort ist deutlich zu sehen, dass für  $\alpha = 0,175 \text{ mrad}$  gerade noch das dritte Maximum zu sehen ist. In Abbildung A.2 sind  $MTF_{CCD}(u)$  und die Einhüllende  $E_c(u)$  nicht berücksichtigt worden; diese Funktionen haben ebenfalls einen dämpfenden Einfluss

auf die Diffraktogrammintensität.

Bei einem Konvergenzhalbwinkel von ungefähr  $\alpha > 0,2 \text{ mrad}$  sind also nur in experimentellen Diffraktogrammen aus einem relativ kleinen Defokusbereich mindestens drei Maxima zu erkennen. Dies reduziert dann auch die Kopplungsmöglichkeiten von Diffraktogrammen nach Gleichung (A.11) zur Bestimmung des Konvergenzhalbwinkels  $\alpha$  und dessen Messgenauigkeit.

Um auch Messergebnisse für  $\alpha \geq 0,2 \text{ mrad}$  zu erhalten, wird ausgenutzt, dass der Richtstrahlwert  $\beta$  im Transmissionselektronenmikroskop auf der optischen Achse (unterhalb der Anode) konstant bleibt [48]

$$\beta = \frac{j}{\pi\alpha^2}. \quad (\text{A.13})$$

Die Größe  $j$  kennzeichnet die Stromdichte. Nach Entfernung der Probe aus dem Strahlengang können wir also für Kondensorlinsenanregungen mit dazu gehörigen  $\alpha < 0,2 \text{ mrad}$ , für die wir nach Gleichung (A.11) den Konvergenzhalbwinkel  $\alpha$  bestimmt haben, die Stromdichte am Transmissionselektronenmikroskop messen und dann nach Gleichung (A.13) den Richtstrahlwert  $\beta$  ermitteln. Misst man danach bei Kondensorlinsenanregungen, für die  $\alpha \geq 0,2 \text{ mrad}$  sein muss, die Stromdichte  $j$ , so kann man aus Gleichung (A.13) für diese Linsenanregung mit Hilfe des nun bekannten Richtstrahlwerts  $\beta$  den Konvergenzhalbwinkel  $\alpha$  berechnen und die Konvergenzhalbwinkelgleichung abschließen. Zur schematischen Veranschaulichung der Methode zur Bestimmung einer gesamten Konvergenzhalbwinkelgleichung dient Abbildung A.3. Am JEOL JEM 3010 wurde die Konvergenzhalbwinkelgleichung nach obigem Verfahren unter Verwendung einer Kondensorblende mit einem Durchmesser von  $120 \mu\text{m}$  bei einer Einstellung auf *Spot-Size* 2 und  $\alpha$ -*Angle* 3 durchgeführt. Dabei ist die *Spot-Size* ein Maß für die Breite des Elektronenstrahls bei fokussiertem Kondensor, während der  $\alpha$ -*Angle* ein Maß für den Linsenstrom durch die so genannte Kondensor-Minilinse oder kurz CM-Linse (engl.: condenser minilens) ist, die sich zwischen der Kondensorblende und der Probe befindet [24].

Oberhalb der Kondensorblende befinden sich drei Kondensorlinsen, wobei der Linsenstrom durch die dritte dieser Kondensorlinsen durch den Benutzer des Mikroskops durch Betätigung des *Brightness*-Knopfes variiert werden kann. Die Fokussierungseinstellung bzw. Bestrahlungsintensitätseinstellung mit Hilfe dieses Kopfes

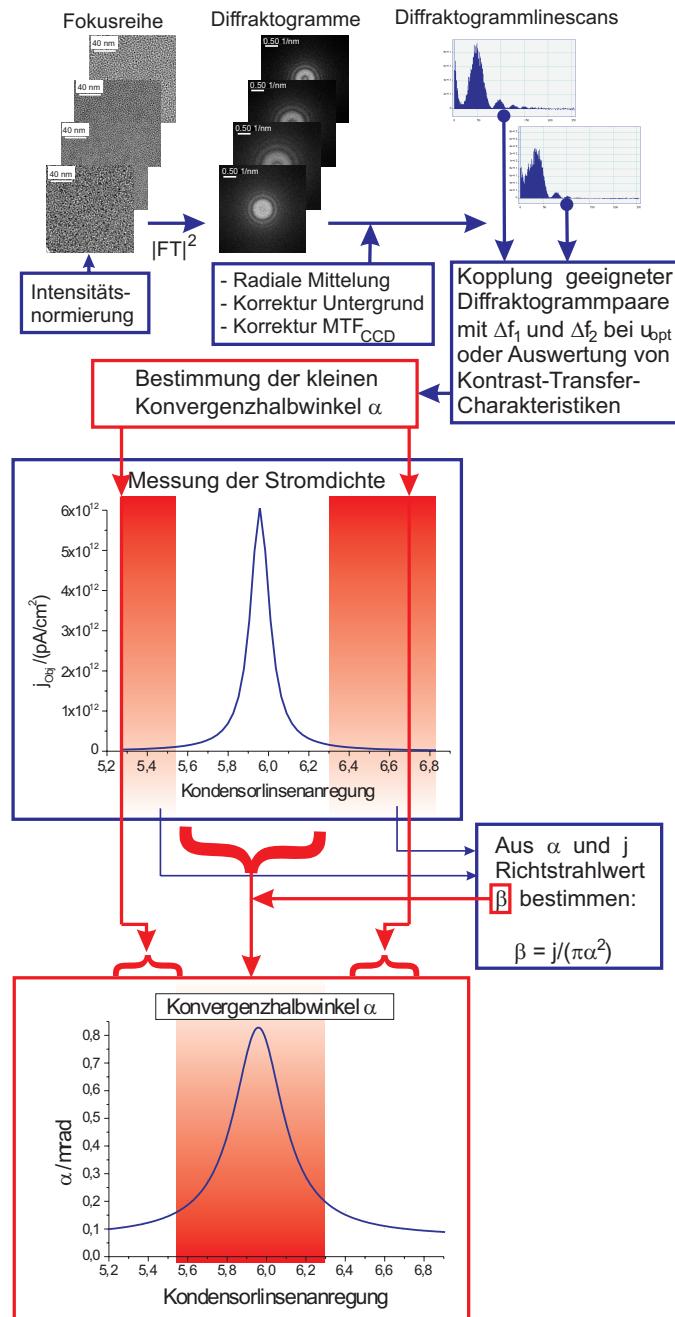


Abbildung A.3: Schematische Veranschaulichung der Methode zur Konvergenzhalfwinkeleichung mit Hilfe der Kopplung von Diffraktogrammen dünner amorpher Proben nach Gleichung (A.11) und mit Hilfe der Stromdichtemessung.

wird also durch diese Linse des Kondensorlinsensystems bestimmt und so wurde die Konvergenzhalbwinkelgleichung in Abhängigkeit ihrer Linsenanregung bestimmt. Ein Maß für diese Linsenanregung ist die am Display des Mikroskops abrufbare Angabe *Cond3*, die die Spannung an dem Kontrollpunkt für die Linsenspannungsversorgung der dritten Kondensorlinse beschreibt. Analoge Angaben zu den Kontrollpunkten der anderen Linsen sind ebenfalls abrufbar.

Die Stromdichtemessungen erfolgten mit dem im JEOL JEM 3010 integrierten kleinen Leucht- bzw. Szintillationsschirm bei einer am Display angezeigten Vergrößerung  $M$  von 80000. Dabei wird der auf den Schirm treffende Elektronenstrom aufgefangen und zur Strommessung weitergeleitet. Es wurde bei der Messung darauf geachtet, dass nur solche Kondensorlinsenanregungen (*Cond3*) nach dieser Methode geeicht wurden, bei denen dieser kleine Leuchtschirm komplett vom Elektronenstrahl beleuchtet wurde. Zur Berechnung der Stromdichte  $j$  bezogen auf die Objektebene musste die gemessene Stromdichte durch das Quadrat der verwendeten Vergrößerung dividiert werden. Nun stammt die Vergrößerungsangabe von 80000 von der Mikroskopanzeige und die Vergrößerungseichung am JEOL JEM 3010 wurde von [52] bezüglich der CCD-Kameraebene durchgeführt, nicht aber für die Leuchtschirmebene. Verwendet man also die Mikroskopanzeige  $M = 80000$  zur Berechnung der Stromdichte bezogen auf die Objektebene, ist diese nicht ganz korrekt, falls die Mikroskopanzeige nicht genau ist. Es soll an dieser Stelle geklärt werden, ob die so erhaltene Ungenauigkeit in  $j$  auch zu einer Ungenauigkeit des Konvergenzhalbwinkels  $\alpha$  führt.

Bestimmen wir aus der Kopplung zweier Diffraktogramme nach Gleichung (A.11) Konvergenzhalbwinkel  $\alpha_{\text{Kopplung}} < 0,2 \text{ mrad}$  und messen die dazu gehörigen Stromdichten  $j_{\text{Kopplung}}$ , so lässt sich der aus diesen Messungen resultierende Richtstrahlwert  $\beta_{\text{mess}}$  nach Gleichung (A.13) bestimmen zu

$$\beta_{\text{mess}} = \frac{j_{\text{Kopplung}}}{\pi \alpha_{\text{Kopplung}}^2}. \quad (\text{A.14})$$

Setzen wir diesen Richtstrahlwert zur Berechnung der höheren Konvergenzhalbwinkel  $\alpha \geq 0,2 \text{ mrad}$  unter Einbeziehung der dazu gehörigen Stromdichten  $j$  ein, so gilt aufgrund der Konstanz des Richtstrahlwertes auf der optischen Achse gemäß

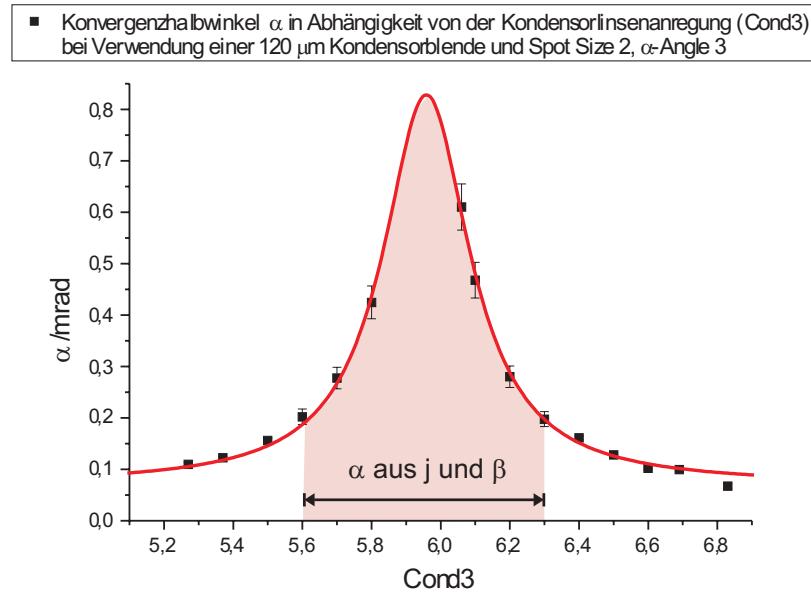


Abbildung A.4: Konvergenzhalbwinkel  $\alpha$  in Abhängigkeit von der Kondensorlinsenanregung Cond3 beim JEOL JEM 3010 mit einer Beschleunigungsspannung von 297 kV unter Verwendung einer Kondensorblende mit einem Durchmesser von  $120 \mu\text{m}$  und bei Einstellung des Mikroskops auf *Spot-Size* 2 und  $\alpha$ -Angle 3. Durch die Messpunkte wurde mit Hilfe eines Least-Squares-Fits eine Lorentzfunktion gelegt (siehe Gleichung (A.16)) mit den Ergebnissen:  $y_0 = 0,070 \pm 0,007$ ,  $x_c = 5,959 \pm 0,003$ ,  $w = 0,307 \pm 0,022$  und  $A = 0,366 \pm 0,011$ . In dem rot markierten Bereich  $5,6 \leq \text{Cond3} \leq 6,3$  wurde  $\alpha$  aus der gemessenen Stromdichte und dem gemessenen Richtstrahlwert  $\beta$  bestimmt (siehe Text). Dies entspricht Konvergenzhalbwinkeln  $\alpha \geq 0,20 \text{ mrad}$ .

Gleichung (A.13)

$$\alpha = \sqrt{\frac{j}{j_{\text{Kopplung}}}} \cdot \alpha_{\text{Kopplung}} = \sqrt{\frac{j}{\pi \beta_{\text{mess}}}}. \quad (\text{A.15})$$

Der Fehler, den wir durch die Verwendung einer ungenauen Vergrößerungsangabe in der Messung der Stromdichte  $j$  bzw.  $j_{\text{Kopplung}}$  in der Objektebene machen, kürzt sich also in Gleichung (A.15) heraus, so dass die Resultate für den Konvergenzhalbwinkel davon unbeeinflusst bleiben. Der Messfehler bezüglich der Stromdichte beeinflusst lediglich nach Gleichung (A.14) das Messergebnis für den Richtstrahlwert.

Das Ergebnis für die Konvergenzhalbwinkelgleichung am JEOL JEM 3010 unter Ver-

wendung einer Kondensorblende mit einem Durchmesser von  $120 \mu\text{m}$  und bei Einstellung auf *Spot-Size* 2 und  $\alpha$ -*Angle* 3 nach der in diesem Kapitel beschriebenen Methode zeigt Abbildung A.4. Als Maß für die Kondensorlinsenanregung dient die oben erwähnte und am Mikroskopdisplay abrufbare Angabe Cond3. An die Messpunkte wurde ein Lorentzprofil

$$y = y_0 + \frac{2A}{\pi} \cdot \frac{w}{4(x - x_c)^2 + w^2} \quad (\text{A.16})$$

mit  $x = \text{Cond3}$  und  $y = \alpha/\text{mrad}$  unter Anwendung eines Least-Squares-Fits angepasst. In dem Kondensorlinsenanregungsbereich von  $5,8 < \text{Cond3} < 6,08$  ist die Eichung etwas unsicher, denn dort liegen keine Messwerte für den Konvergenzhalbwinkel vor. Das liegt daran, dass dort keine Messwerte für die Stromdichte erzielt werden konnten, weil der Leuchtschirm zur Stromdichtemessung in diesen Fällen nicht komplett beleuchtet war. Es ist deshalb nicht auszuschließen, dass in diesem Bereich der Kondensorlinsenanregung das Lorentzprofil die Konvergenzhalbwinkel zu niedrig angibt.

Die oben beschriebene Methode zur Ermittlung der Konvergenzhalbwinkelgleichung besteht also aus drei Teilen: Im ersten Schritt werden aus untergrundkorrigierten Diffraktogrammen aus einer Fokusreihe zu einer Probenstelle einer dünnen amorphen Folie bei schwach konvergenter Beleuchtung aus einer Kopplung von Diffraktogrammen nach Gleichung (A.11) die kleinen Konvergenzhalbwinkel zu den dazu gehörigen Kondensorlinsenanregungen bestimmt. Im zweiten Schritt werden zu den gleichen Kondensorlinsenanregungen nach Entfernung der Probe aus dem Strahlengang die dazu gehörigen Objektstromdichten bestimmt, aus diesen Daten nach Gleichung (A.13) der Richtstrahlwert ermittelt sowie Objektstromdichten für Kondensorlinsenanregungen gemessen, die für hohe Konvergenzhalbwinkel  $\alpha \geq 0,20 \text{ mrad}$  sorgen. Die Bestimmung dieser Winkel erfolgt im dritten Schritt aus dem Richtstrahlwert und den jeweiligen Objektstromdichten nach Gleichung (A.15).

Auch die zweite Methode zur Konvergenzhalbwinkelgleichung, die hier vorgestellt werden soll, besteht aus drei Teilen, wobei der erste Schritt ebenfalls aus der Bestimmung von untergrundkorrigierten Diffraktogrammen einer Fokusreihe zu einer Probenstelle einer dünnen amorphen Folie bei schwach konvergenter Beleuchtung

besteht, aus der die kleinen Konvergenzhalbwinkel bestimmt werden sollen. Hier werden diese Winkel allerdings mit Hilfe von Kontrast-Transfer-Charakteristiken ermittelt, die aus den Diffraktogrammen der Fokusreihe gemäß Kapitel 2.6 berechnet werden. Die Diffraktogramme wurden hier vorher bezüglich der Modulationstransferfunktion  $MTF_{CCD}(u)$  der CCD-Kamera nach Korrektur des Untergrundes gemäß Kapitel 2.5 korrigiert.

Zur Bestimmung von  $\alpha$  sollten zunächst Linescans in Kontrast-Transfer-Charakteristiken bei Raumfrequenzen  $u_i$  ausgewertet werden, in dem über den experimentell erfassten Defokusbereich die Abhängigkeit von  $E_\alpha(u)$  vom Defokus messbar ist, was z. B. beim JEOL JEM 3010 erst ab Raumfrequenzen von ca.  $u > 0,3 \text{ nm}^{-1}$  innerhalb eines Defokusbereichs von ca.  $-4000 \text{ nm} \leq \Delta f \leq 4000 \text{ nm}$  der Fall ist (vgl Abbildung 2.6). Führt man nun für feste Raumfrequenzen  $u_i$  in einem Bereich von ca.  $0,3 \text{ nm}^{-1} \leq u_i \leq 1,0 \text{ nm}^{-1}$  Least-Squares-Fits anhand Gleichung (2.70) nach Kapitel 2.6 unter Variation der Parameter  $\eta(u_i)$ ,  $K_{u_i}$  und  $\eta_z(u_i)$  durch und bezieht  $\alpha$  in die Liste der zu variierenden Parameter ein, so können die Konvergenzhalbwinkel  $\alpha$  bei schwach konvergenter Beleuchtung bestimmt werden. Der zweite und der dritte Schritt zur Konvergenzhalbwinkelberechnung ist identisch mit Schritt 2 und 3 der oben beschriebenen Methode aus der Kopplung von Diffraktogrammen: Aus den ermittelten kleinen Konvergenzhalbwinkeln und den dazu gehörigen gemessenen Objektstromdichten wird nach Gleichung (A.13) der Richtstrahlwert bestimmt. Dieser und die gemessenen Objektstromdichten für die höheren Konvergenzhalbwinkel liefern gemäß Gleichung (A.15) Resultate für diese Winkel.

Ein Unterschied dieser Methode im Vergleich zum Verfahren mit gekoppelten Diffraktogrammen an einer Raumfrequenz  $u_{opt}$  nach Gleichung (A.10) und (A.11) ist, dass sie auf der WO-Näherung beruht und nicht auf der WPO-Näherung.

In Abbildung A.5 a) wird das Ergebnis der Konvergenzhalbwinkelberechnung nach diesem Verfahren gezeigt und in Abbildung A.5 b) mit dem Ergebnis aus der Methode der Diffraktogrammkopplung aus Abbildung A.4 verglichen. Beide Eichkurven für  $\alpha$  liegen dicht beieinander und stimmen gut überein, was sich auch an der guten Übereinstimmung der entsprechenden Parameterergebnisse aus den Least-Squares-Fit-Anpassungen des Lorentzprofils nach Gleichung (A.16) zeigt, die für beide Messreihen durchgeführt wurde. Die Parameterergebnisse sind in den Abbil-

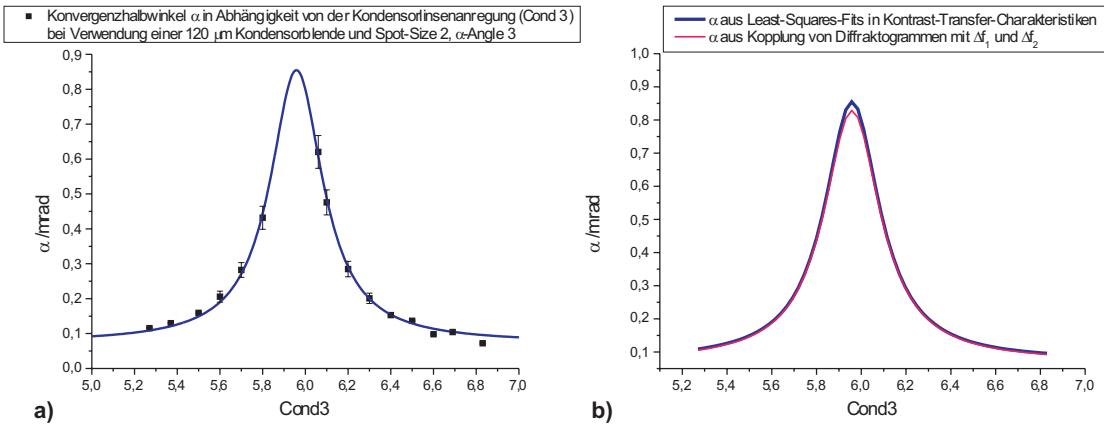


Abbildung A.5: a) Konvergenzhalfwinkel  $\alpha$  in Abhängigkeit von der Kondensorlinsenanregung Cond3 beim JEOL JEM 3010 mit einer Beschleunigungsspannung von 297 kV unter Verwendung einer Kondensorblende mit einem Durchmesser von 120  $\mu\text{m}$  und bei Einstellung des Mikroskops auf *Spot-Size* 2 und  $\alpha$ -Angle 3 unter Anwendung von Kontrast-Transfer-Charakteristiken. Durch die Messpunkte wurde mit Hilfe eines Least-Squares-Fits eine Lorentzfunktion gelegt (siehe Gleichung (A.16)) mit den Ergebnissen:  $y_0 = 0,073 \pm 0,007$ ,  $x_c = 5,958 \pm 0,003$ ,  $w = 0,301 \pm 0,022$  und  $A = 0,369 \pm 0,011$ . b) Vergleich der Ergebnisse für den Konvergenzhalfwinkel  $\alpha$  in Abhängigkeit von der Kondensorlinsenanregung für unterschiedliche Methoden: Methode der Kopplung zweier Diffraktogramme gemäß Gleichung (A.11) aus Abbildung A.4 (rot), Methode unter Verwendung von Kontrast-Transfer-Charakteristiken aus Abb. a) (blau). Im Bereich  $5,6 \leq \text{Cond3} \leq 6,3$  wurde  $\alpha$  aus der gemessenen Stromdichte und dem gemessenen Richtstrahlwert  $\beta$  bestimmt (siehe Text).

dungsunterschriften der jeweiligen Abbildungen A.4 und A.5 aufgeführt. Das Maximum der Kurvenverläufe für  $\alpha$  liegt in beiden Fällen bei  $\text{Cond3} = 5,96$ . Dies deckt sich mit den experimentellen Beobachtungen, wonach der kleinste Strahlquerschnitt (Crossover) auf dem Leuchtschirm bei einer Kondensorlinsenanregung von  $\text{Cond3} = 5,96$  auftrat. Beide Eichkurven für  $\alpha$  unterscheiden sich nur leicht in der Höhe des Maximums. Auch bezüglich der Methode unter Verwendung von Kontrast-Transfer-Charakteristiken ist zu erwähnen, dass im Bereich der Kondensorlinsenanregung  $5,8 < \text{Cond3} < 6,08$  keine Messwerte für die Konvergenzhalfwinkel bestimmt werden konnten, da in diesen Fällen der Leuchtschirm zur Messung der Objektstromdichte nicht komplett beleuchtet wurde, so dass auch keine Objektstromdichten in

diesem Bereich gemessen werden konnten. Das Lorentzprofil gibt im Bereich dieser Kondensorlinsenanregungen möglicherweise zu niedrige Werte für den Konvergenzhalbwinkel an.

Tabelle A.2 zeigt die Ergebnisse der Konvergenzhalbwinkeleichung für das JEOL JEM 3010 mit einer Beschleunigungsspannung von 297 kV unter Verwendung einer Kondensorblende mit einem Durchmesser von  $120 \mu\text{m}$  und bei einer Einstellung auf *Spot-Size* 2 und  $\alpha$ -*Angle* 3. Die Tabelle resultiert aus der Auswertung von Kontrast-Transfer-Charakteristiken elastisch gefilterter dünner amorpher Proben mit Hilfe von Least-Squares-Fits. Ihre enthaltenen Messdaten sind nahezu identisch mit der Konvergenzhalbwinkeleichung, die sich aus der Anwendung des Verfahrens der Kopplung von Diffraktogrammen ergibt (siehe Abbildung A.5). Deshalb wird hier aus Platzgründen nur die Eichkurve nach der Least-Squares-Fit-Methode angegeben.

Der nach Gleichung (A.13) aus den kleinen Konvergenzhalbwinkeln und den Objektstromdichten berechnete Richtstrahlwert lag bei  $\beta = (1,2 \pm 0,1) \cdot 10^6 \text{ A}/(\text{cm}^2 \text{sr})$ . Dieser Wert ist allerdings insofern etwas unsicher, als bei der Berechnung der Objektstromdichte die Vergrößerung in der Ebene des kleinen Leuchtschirms quadratisch eingeht und für diese nur die am Mikroskop angezeigte Vergrößerung eingesetzt werden konnte. Die Methode der Kopplung zweier Diffraktogramme kann auch für isotrope amorphe Proben, die aus mehreren Elementen bestehen eingesetzt werden, da nach Gleichung (2.17) bis (2.22) und Gleichung (2.34) für das Diffraktogramm in WPO-Näherung

$$|\hat{C}(u, \Delta f)|^2 = |\hat{\varphi}(u)|^2 \cdot 4A^2(u) E_c^2(u) E_\alpha^2(u, \Delta f) \sin^2 \gamma(u, \Delta f) \quad (\text{A.17})$$

gilt und sich bei der Division der Diffraktogramme in Gleichung (A.11) an der Raumfrequenz  $u_{opt}$  der probenabhängige Teil  $|\hat{\varphi}(u)|^2$  herauskürzt.

Auch die Methode zur Bestimmung von  $\alpha$  aus Kontrast-Transfer-Charakteristiken ist für isotrope amorphe Proben, die aus mehreren Elementen bestehen, anwendbar, da sich hier das Diffraktogramm basierend auf der WO-Näherung darstellen lässt als

$$|\hat{C}(u, \Delta f)|^2 = |\hat{\varphi}(u)|^2 \cdot 4A^2(u) E_c^2(u) E_\alpha^2(u, \Delta f) \sin^2 \{\gamma(u, \Delta f) - \eta(u)\}, \quad (\text{A.18})$$

<b>Cond3</b>	$\alpha/\text{mrad}$	<b>Cond3</b>	$\alpha/\text{mrad}$	<b>Cond3</b>	$\alpha/\text{mrad}$
5,27	0,10892	5,79881	0,44109	6,32763	0,18436
5,29644	0,11167	5,82525	0,51172	6,35407	0,17183
5,32288	0,11476	5,85169	0,59355	6,38051	0,16123
5,34932	0,11822	5,87814	0,68212	6,40695	0,15219
5,37576	0,12213	5,90458	0,76672	6,43339	0,14443
5,4022	0,12655	5,93102	0,83036	6,45983	0,13774
5,42864	0,13159	5,95746	0,85523	6,48627	0,13192
5,45508	0,13736	5,9839	0,83313	6,51271	0,12684
5,48153	0,144	6,01034	0,77139	6,53915	0,12238
5,50797	0,15168	6,03678	0,68753	6,56559	0,11844
5,53441	0,16063	6,06322	0,59883	6,59203	0,11496
5,56085	0,17113	6,08966	0,5164	6,61847	0,11185
5,58729	0,18353	6,1161	0,44505	6,64492	0,10908
5,61373	0,19829	6,14254	0,38557	6,67136	0,10659
5,64017	0,21598	6,16898	0,33689	6,6978	0,10434
5,66661	0,23734	6,19542	0,29729	6,72424	0,10232
5,69305	0,26333	6,22186	0,26508	6,75068	0,10048
5,71949	0,29514	6,24831	0,23878	6,77712	0,09882
5,74593	0,33424	6,27475	0,21716	6,80356	0,0973
5,77237	0,38232	6,30119	0,19928	6,83	0,09591

Tabelle A.2: Konvergenzhalbwinkelgleichung in Abhängigkeit von der Kondensorlinsenanregung Cond3 für das JEOL JEM 3010 unter Verwendung einer Kondensorblende mit einem Durchmesser von  $120 \mu\text{m}$  und bei einer Einstellung auf *Spot-Size 2* und  $\alpha - \text{Angle } 3$ .

wobei hier dann die Phase  $\eta(u)$  nicht einer einzelnen Atomsorte zugesprochen werden kann, wenn die Probe aus mehreren Elementen besteht. Zur Bestimmung von  $\alpha$  aus Linescans in Kontrast-Transfer-Charakteristiken bei festen Raumfrequenzen  $u_i$  mit  $0,3 \text{ nm}^{-1} \leq u_i \leq 1,0 \text{ nm}^{-1}$  wird nun mit Hilfe von Least-Squares-Fits Gleichung (2.70) durch die Variation der Parameter  $\alpha$ ,  $\eta(u_i)$ ,  $K_{u_i}$  und  $\eta_z(u_i)$  an die experimentellen Intensitäten der Linescans angepasst, wobei nun unter Berücksichtigung von Gleichung (A.18)  $K_{u_i}$  definiert ist als

$$K_{u_i} = \text{konst} \cdot |\hat{\varphi}(u_i)|^2.$$

## Anhang B

# Verlauf der mittleren Bildintensität in Abhängigkeit von Defokus und Kondensorlinsenanregung: Bestimmung der Crossoverbreite

In diesem Abschnitt soll eine Beobachtung dokumentiert werden, die bei der Analyse der Fokusreihen der dünnen amorphen Proben auftrat: Die mittlere Bildintensität weist in den einzelnen Bildern trotz gleicher Belichtungszeit pro Bild eine Abhängigkeit vom Defokus  $\Delta f$  auf, die ihrerseits davon abhängt, ob mit unterfokussiertem oder überfokussiertem Kondensor gearbeitet wurde. Es sollen hier sowohl die Ursache für diesen Effekt, als auch eine mögliche Nutzung desselben zur Charakterisierung des Crossovers oberhalb der Objektivlinse erläutert werden. Die in diesem Kapitel vorgestellten Messergebnisse beziehen sich auf das JEOL JEM 3010 bei einer Beschleunigungsspannung von 297 kV mit den Einstellungen *Spot-Size* 2 und  $\alpha$ -*Angle* 3. Zur Erklärung dieser Größen wird auf den Anhang A verwiesen.

Abbildung B.1 a - e) zeigt die Abhängigkeit der mittleren Bildintensität vom Defokus  $\Delta f$  der Einzelbilder aus elastisch gefilterten Fokusreihen amorpher dünner Folien aus Kohlenstoff bzw. Silizium für unterschiedliche Kondensorlinsenanregungen. Dabei wurde eine Energiespaltbreite  $\Delta E$  von 10 eV bzw. 20 eV und eine Kon-

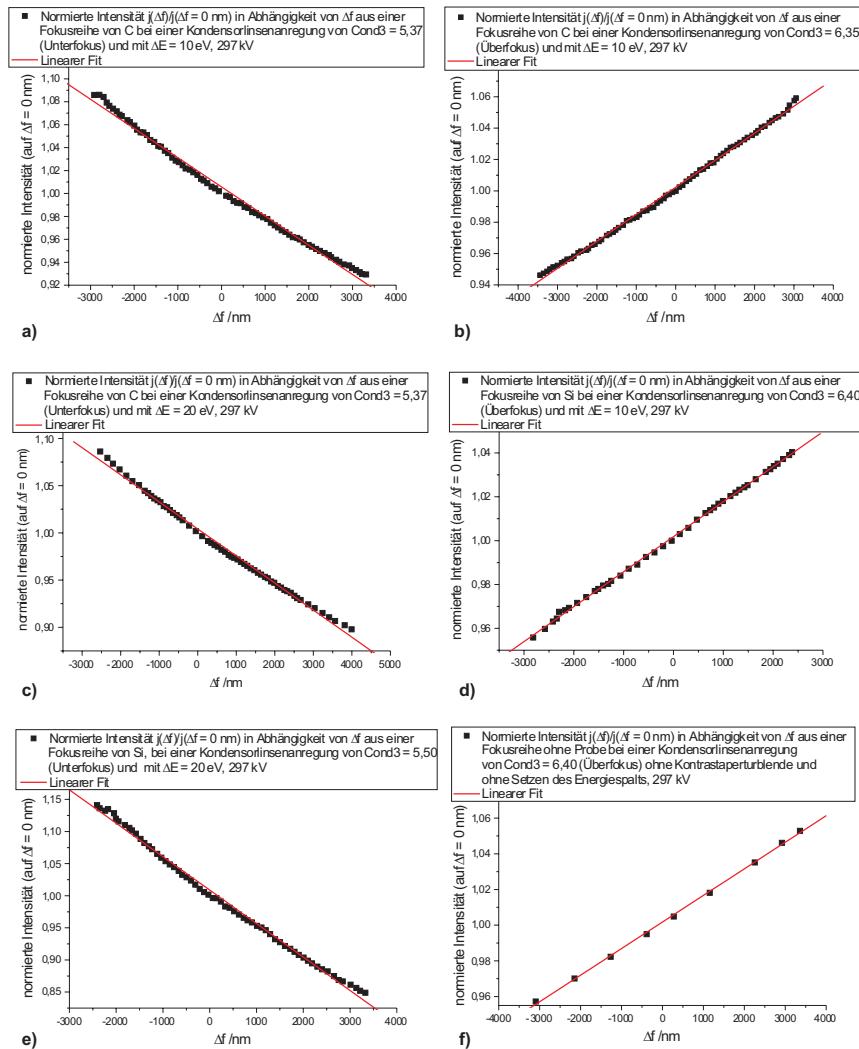


Abbildung B.1: Normierte mittlere Bildintensität  $j(\Delta f)/j(\Delta f = 0 \text{ nm})$  in Abhängigkeit vom Defokus  $\Delta f$  der Einzelbilder aus Fokusreihen amorpher dünner Folien aus Kohlenstoff (C) bzw. Silizium (Si) (Abb. a - e) oder ohne Probe (Abb. f) für unterschiedliche Kondensorlinsenanregungen (Cond3); der Kondensor ist unterfokussiert bei  $\text{Cond3} < 5,96$  und überfokussiert bei  $\text{Cond3} > 5,96$ ; durch die Messpunkte wurde ein linearer Fit ( $y = A + B \cdot \Delta f$ ) gelegt: a)  $\text{Cond3} = 5,37$ ,  $A = 1,006$ ,  $B = -2,547 \cdot 10^{-5} \text{ nm}$ ; b)  $\text{Cond3} = 6,35$ ,  $A = 1,002$ ,  $B = 1,725 \cdot 10^{-5} \text{ nm}$ ; c)  $\text{Cond3} = 5,37$ ,  $A = 1,004$ ,  $B = -2,865 \cdot 10^{-5} \text{ nm}$ ; d)  $\text{Cond3} = 6,40$ ,  $A = 1,002$ ,  $B = 1,596 \cdot 10^{-5} \text{ nm}$ ; e)  $\text{Cond3} = 5,50$ ,  $A = 1,009$ ,  $B = -5,207 \cdot 10^{-5} \text{ nm}$ ; f)  $\text{Cond3} = 6,40$ ,  $A = 1,002$ ,  $B = 1,490 \cdot 10^{-5} \text{ nm}$ . Die Fokusreihen wurden am JEOL JEM 3010 aufgenommen. Zur Berechnung der Defokuswerte  $\Delta f$  für die Bilderserie f) ohne Probe: siehe Text.

trastaperturblende mit einem Halbwinkel  $\vartheta_a = 12 \text{ mrad}$  eingesetzt. Zur Änderung der Kondensorlinsenanregung wird nur der Linsenstrom der dritten Kondensorlinse variiert. Als Maß für diese Kondensorlinsenanregung dient die Angabe Cond3, die am Mikroskopdisplay abrufbar ist. Sowohl auf Cond3 als auch auf den Kondensoraufbau wird im Anhang A näher eingegangen. Der Kondensor ist für Werte  $\text{Cond3} < 5,96$  unterfokussiert und für Werte  $\text{Cond3} > 5,96$  überfokussiert; nach den Ergebnissen aus dem Anhang A ist der Crossover auf dem Leuchtschirm bzw. in der Abbildungsebene bei  $\text{Cond3} = 5,96$  zu beobachten, was einem fokussierten Kondensor entspricht. Die mittleren Bildintensitäten  $j$ , die als Messpunkte in den einzelnen Messgraphen aus Abbildung B.1 zu erkennen sind, wurden in dieser Abbildung auf die Intensität  $j(\Delta f = 0 \text{ nm})$  des Bildes normiert, das mit einem Defokus  $\Delta f = 0 \text{ nm}$  aufgenommen wurde. Dadurch können die Intensitätsverläufe für die unterschiedlichen Fokusreihen besser miteinander verglichen werden. Auf die Methode zur Bestimmung der Defokuswerte  $\Delta f$  der Einzelbilder wurde in Kapitel 2.6 eingegangen. So konnte den relativen Defokusangaben am Display des Elektronenmikroskops der reale Defokuswert zugeordnet werden, also eine Defokusschrittakalibrierung erfolgen. Nach dieser ergab sich am JEOL JEM 3010 z. B. bei einer Vergrößerung von 150000 in der CCD-Kameraebene, dass ein Defokusschritt von 1 nm am Mikroskopdisplay einem realen Defokusschritt von ca. 0,85 nm entspricht. Mit Hilfe dieser Defokusschritteichung und den relativen Defokusschrittangaben am Mikroskopdisplay konnte nach einer Entfernung der Probe aus dem Strahlengang auch den Einzelbildern einer Fokusreihe ohne Probe ein Defokuswert  $\Delta f$  zugeordnet werden. Das Ergebnis des Intensitätsverlaufs dieser Fokusreihe in Abhängigkeit vom Defokus, bei dem auch auf den Einsatz einer Kontrastaperturblende und des Energiespalts verzichtet wurde, ist in Abbildung B.1 f) zu sehen. Diese Messreihe ohne Probe, Energiespalt und Kontrastaperturblende soll zeigen, dass die Intensitätsabhängigkeit vom Defokus nicht auf Probeneffekte und nicht auf eventuell vorhandene Störeffekte im Energiefilter oder Aufladungseffekte auf der Kontrastaperturblende aufgrund von Kontamination zurückzuführen ist.

Die Größe  $j(\Delta f)/j(\Delta f = 0 \text{ nm})$  wird in diesem Abschnitt normierte mittlere Bildintensität genannt. Abbildung B.1 zeigt eine Abhängigkeit der normierten mittleren Bildintensität vom Defokus. Um diese Problematik bei der Berechnung von

Kontrast-Transfer-Charakteristiken aus Fokusreihen nach Kapitel 2.6 zu umgehen, wurde bei der Berechnung von Kontrast-Transfer-Charakteristiken in dieser Arbeit die mittlere Intensität der Einzelbilder auf 1 normiert.

Die mittleren Intensitäten innerhalb einer Fokusreihe zeigen in den Abbildungen B.1 a - f) in dem durch die Messungen abgedeckten Defokusbereich von  $-3500 \text{ nm} < \Delta f < 3500 \text{ nm}$  und für die benutzten Kondensorlinsenanregungen mit Konvergenzhalbwinkeln  $\leq 0,17 \text{ mrad}$  ein näherungsweise lineares Verhalten bezüglich des Defokus. Auffällig ist, dass die Steigung in den Graphen im Falle eines unterfokussierten Kondensors negativ und im Falle eines überfokussierten Kondensors positiv ist.

Dieser von der Kondensorlinsenanregung bestimmte Intensitätsverlauf der Einzelbilder in Abhängigkeit von ihrem Defokus soll anhand der Abbildungen B.2 und B.3 erklärt werden.

Abbildungen B.2 und B.3 zeigen den schematischen Strahlengang im Transmissionselektronenmikroskop bei der Abbildung mit überfokussiertem bzw. unterfokussiertem Kondensor für jeweils zwei unterschiedliche Anregungen der Objektivlinse: der schwarz dargestellte Strahlengang unterhalb des Objektivs beschreibt die Abbildung mit einer Brennweite  $f$  der Objektivlinse, der grün eingezeichnete Strahlengang stellt die Abbildung mit einer Brennweite  $f + \Delta f$  dar, wobei hier der Defokus  $\Delta f$  negativ gewählt ist. Bei der schematischen Betrachtung und bei den folgenden Überlegungen zur Erklärung der oben geschilderten Beobachtung machen wir eine Näherung, indem wir von „dünnen Linsen“ ausgehen. In der Elektronenmikroskopie sind in der Regel die Linsen nicht als „dünne Linsen“ zu beschreiben, die Abhängigkeit der mittleren Bildintensität vom Defokus lässt sich aber auch unter Anwendung dieser Näherung in den folgenden Ausführungen erläutern und erlaubt eine einfachere, wenn auch genäherte, Darstellung der Zusammenhänge. Die so genannte Kondensor-MiniLinse (CM-Linse), die im Anhang A für das JEOL JEM 3010 erwähnt wird und die zwischen der Kondensorblende und der Probe sitzt, wurde nicht in den Abbildungen B.2 und B.3 eingezeichnet, da sie zur schematischen Beschreibung der Einstrahlcharakteristik auf die Probe mit einem Konvergenzhalbwinkel  $\alpha$  nicht notwendig ist. Es sei hier nochmals darauf hingewiesen, dass hier eine Variation der Kondensoranregung durch Änderung der Linsenanregung der dritten Kondensorlinse (Cond3) erzielt wurde und die Anregung der CM-Linse nicht geändert wurde. Der

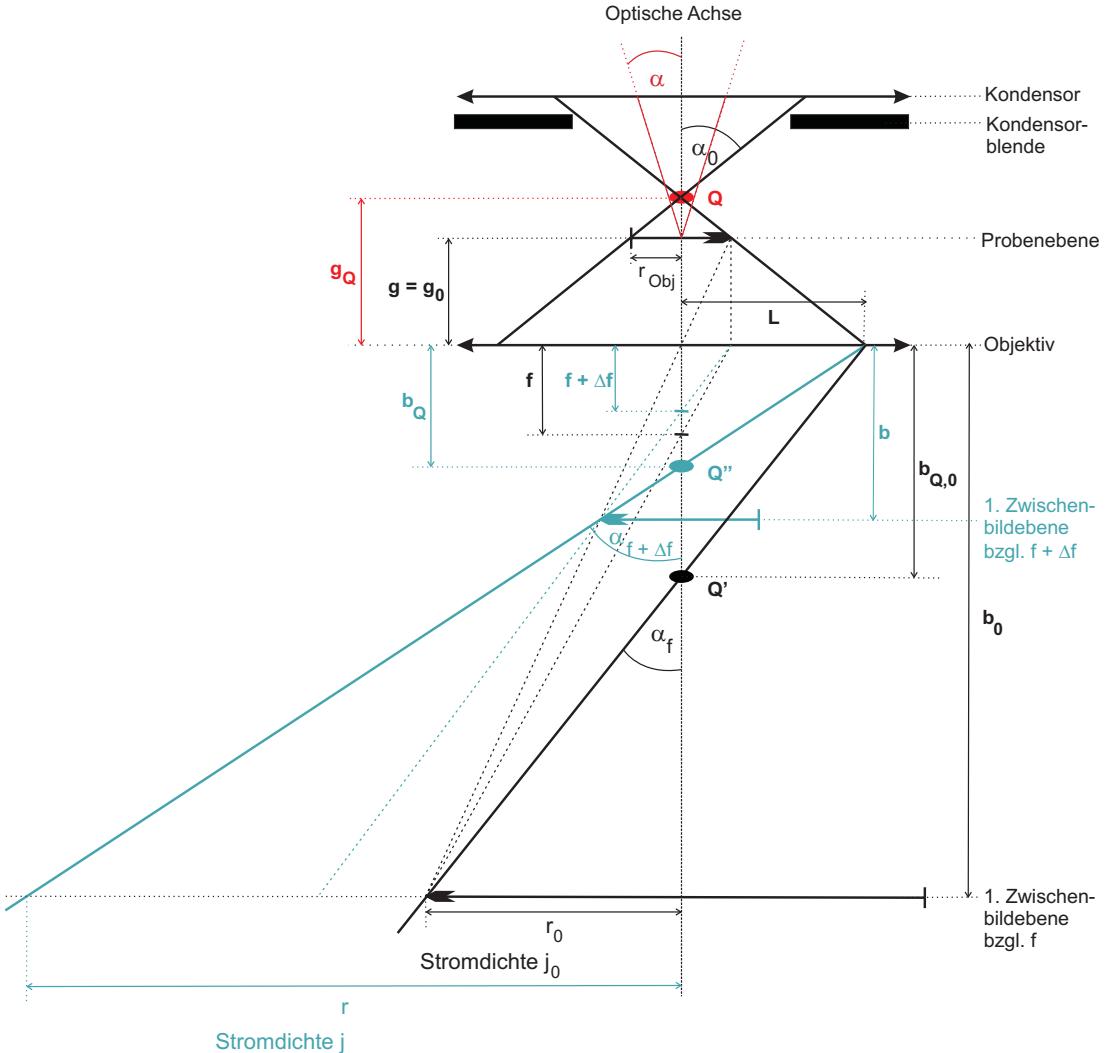


Abbildung B.2: Schematische Darstellung des Abbildungsstrahlengangs im Transmissionselektronenmikroskop bei überfokussiertem Kondensor für einen Defokus der Objektivlinse  $\Delta f = 0 \text{ nm}$  (schwarz) und für einen Defokus  $\Delta f < 0 \text{ nm}$  (grün).

Konvergenzhalbwinkel wird mit  $\alpha$  bezeichnet, der Crossover oberhalb der Objektivlinse mit  $Q$ . Wir gehen hier von kreisförmigen Strahlquerschnitten aus, so dass  $r_{\text{Obj}}$  für den Radius des bestrahlten Probenbereiches steht. Des weiteren gilt folgende Notation:

- $g_Q$  = Gegenstandsweite des Crossovers,
- $g := g_0$  = Gegenstandsweite der Probe,

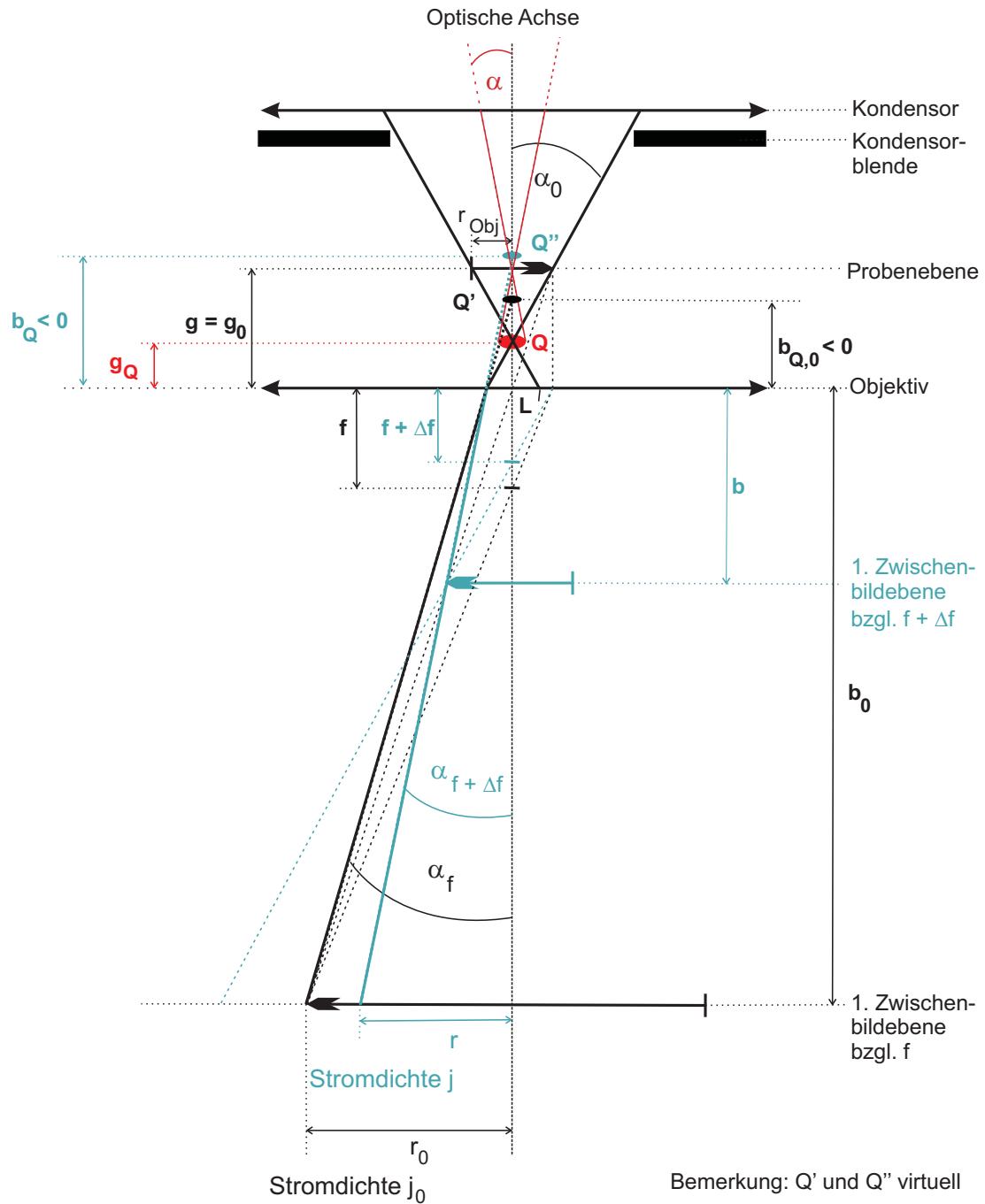


Abbildung B.3: Schematische Darstellung des Abbildungsstrahlengangs im Transmissionselektronenmikroskop bei unterfokussiertem Kondensor für einen Defokus der Objektivlinse  $\Delta f = 0 \text{ nm}$  (schwarz) und für einen Defokus  $\Delta f < 0 \text{ nm}$  (grün).

- $Q'$  = Abbildung des Crossovers im Fall  $\Delta f = 0 \text{ nm}$ ,
- $b_{Q,0}$  = Bildweite des Crossovers im Fall  $\Delta f = 0 \text{ nm}$ ,
- $Q''$  = Abbildung des Crossovers im Fall  $\Delta f < 0 \text{ nm}$ ,
- $b_Q$  = Bildweite des Crossovers im Fall  $\Delta f < 0 \text{ nm}$ ,
- $r_0$  = Radius des Elektronenstrahls in der ersten Zwischenbildebene des Mikroskops im Fall  $\Delta f = 0 \text{ nm}$ ,
- $j_0$  = Stromdichte bzw. Bildintensität in der ersten Zwischenbildebene des Mikroskops im Fall  $\Delta f = 0 \text{ nm}$ ,
- $r$  = Radius des Elektronenstrahls in der ersten Zwischenbildebene des Mikroskops im Fall  $\Delta f < 0 \text{ nm}$ ,
- $j$  = Stromdichte bzw. Bildintensität in der ersten Zwischenbildebene des Mikroskops im Fall  $\Delta f < 0 \text{ nm}$ ,
- $b_0$  = Bildweite der Probe im Fall  $\Delta f = 0 \text{ nm}$ ,
- $b$  = Bildweite der Probe im Fall  $\Delta f < 0 \text{ nm}$ .

Unter der ersten Zwischenbildebene des Mikroskops wird dabei die Bildebene verstanden, die von den nachfolgenden Projektivlinsen auf die Endbildebene auf dem Leuchtschirm oder der CCD-Kamera abgebildet wird. Das Projektivlinsensystem ist in den Abbildungen B.2 und B.3 nicht eingezeichnet, da es nur der Nachvergrößerung dient und für das Verständnis des Abbildungsprozesses nicht nötig ist. Bei der Justage des Elektronenmikroskops JEOL JEM 3010 wird mit maximal angeregter Objektivlinse gearbeitet (Brennweite  $f$ ) und die euzentrische Probenhöhe eingestellt, so dass unter dieser Einstellung in der ersten Zwischenbildebene des Mikroskops ein scharfes Bild entsteht. Die erste Zwischenbildebene, die vom Projektivlinsensystem nachvergrößert wird, entspricht also der ersten Zwischenbildebene bezüglich der Brennweite  $f$ , also bezüglich eines Defokus  $\Delta f = 0 \text{ nm}$ . In dieser Ebene misst man im Falle einer Abbildung mit  $\Delta f = 0 \text{ nm}$  eine Stromdichte  $j_0$ , die der

Bildintensität entspricht. Diese Stromdichte wird in den Abbildungen B.2 und B.3 mit der Stromdichte  $j$  verglichen, die sich in der gleichen Ebene ergibt, wenn man mit einem Defokus  $\Delta f < 0 \text{ nm}$  arbeitet. Es zeigt sich in Abbildung B.2, dass im Falle eines überfokussierten Kondensors die Stromdichte  $j$  kleiner ist als  $j_0$ , da der Strahldurchmesser im Falle  $\Delta f < 0 \text{ nm}$  in der Zwischenbildebene größer ist als im Falle  $\Delta f = 0 \text{ nm}$ . Im Falle eines unterfokussierten Kondensors in Abbildung B.3 liegt der umgekehrte Sachverhalt vor. Dies passt zu den Beobachtungen aus Abbildung B.1. Qualitativ lässt sich also mit den Abbildungen B.2 und B.3 die beobachtete Intensitätsabhängigkeit vom Defokus in den Fokusreihen aus Abbildung B.1 erklären. Die Defokusabhängigkeit der mittleren Bildintensität lässt sich im Prinzip anhand der Bildweite des Crossovers erkennen, die von der Anregung der Objektivlinse, also vom Defokus  $\Delta f$  bestimmt wird. Dass sich bei unterfokussiertem Kondensor das Intensitätsverhalten in Abhängigkeit vom Defokus umkehrt, hängt damit zusammen, dass die Abbildung des Crossovers durch die Objektivlinse im Falle eines unterfokussierten Kondensors virtuell ist ( $b_{Q,0} < 0$  bzw.  $b_Q < 0$ , siehe Abbildung B.3) im Gegensatz zum Falle eines überfokussierten Kondensors, der für eine reale Abbildung des Crossovers sorgt (siehe Abbildung B.2).

Um die Abhängigkeit der mittleren Bildintensität vom Defokus durch diesen Mechanismus quantitativ zu erfassen, konzentrieren wir uns zunächst auf Abbildung B.2. Für die Stromdichten in der ersten Zwischenbildebene des Mikroskops  $j$ ,  $j_0$  und die in Abbildung B.2 definierten Winkel  $\alpha_f$  und  $\alpha_{f+\Delta f}$  gilt

$$\frac{j}{j_0} = \frac{r_0^2}{r^2}, \quad (\text{B.1})$$

$$\tan \alpha_f = \frac{r_0}{b_0 - b_{Q,0}} \quad (\text{B.2})$$

und

$$\tan \alpha_{f+\Delta f} = \frac{r}{b_0 - b_Q}. \quad (\text{B.3})$$

Aus diesen drei Gleichungen folgt für das Stromdichteverhältnis  $j/j_0$ , das der normierten mittleren Bildintensität  $j(\Delta f)/j(\Delta f = 0 \text{ nm})$  in den Messgraphen aus Abbildung B.1 entspricht

$$\frac{j}{j_0} = \frac{(\tan^2 \alpha_f) \cdot (b_0 - b_{Q,0})^2}{(\tan^2 \alpha_{f+\Delta f}) \cdot (b_0 - b_Q)^2}. \quad (\text{B.4})$$

Aus der Linsengleichung [19] ergeben sich folgende Beziehungen:

$$\frac{1}{g_Q} + \frac{1}{b_{Q,0}} = \frac{1}{f}, \quad (\text{B.5})$$

$$\frac{1}{g_Q} + \frac{1}{b_Q} = \frac{1}{f + \Delta f}, \quad (\text{B.6})$$

$$\frac{1}{g_0} + \frac{1}{b_0} = \frac{1}{f} = \frac{1}{g} + \frac{1}{b_0}. \quad (\text{B.7})$$

Somit erhält man aus diesen Beziehungen für die Bildweiten  $b_{Q,0}$ ,  $b_Q$  und  $b_0$

$$b_{Q,0} = \left( \frac{1}{f} - \frac{1}{g_Q} \right)^{-1}, \quad (\text{B.8})$$

$$b_Q = \left( \frac{1}{f + \Delta f} - \frac{1}{g_Q} \right)^{-1}, \quad (\text{B.9})$$

$$b_0 = \left( \frac{1}{f} - \frac{1}{g} \right)^{-1}. \quad (\text{B.10})$$

Für die Winkel  $\alpha_f$ ,  $\alpha_{f+\Delta f}$  und  $\alpha_0$  lässt sich schreiben

$$\tan \alpha_f = \frac{L}{b_{Q,0}}, \quad (\text{B.11})$$

$$\tan \alpha_0 = \frac{L}{g_Q} \quad (\text{B.12})$$

und

$$\tan \alpha_{f+\Delta f} = \frac{L}{b_Q}. \quad (\text{B.13})$$

Eine Kopplung von Gleichung (B.11) und (B.12) bzw. von Gleichung (B.13) und (B.12) resultiert in

$$\tan \alpha_f = \frac{g_Q}{b_{Q,0}} \cdot \tan \alpha_0 \quad (\text{B.14})$$

und

$$\tan \alpha_{f+\Delta f} = \frac{g_Q}{b_Q} \cdot \tan \alpha_0. \quad (\text{B.15})$$

Setzt man nun in den Ausdruck für die normierte mittlere Bildintensität aus Gleichung (B.4) die Gleichungen (B.8) - (B.10) und (B.14) - (B.15) ein, so gilt

$$\frac{j}{j_0} = \frac{b_Q^2}{b_{Q,0}^2} \cdot \left[ \frac{\left( \frac{1}{f} - \frac{1}{g} \right)^{-1} - \left( \frac{1}{f} - \frac{1}{g_Q} \right)^{-1}}{\left( \frac{1}{f} - \frac{1}{g} \right)^{-1} - \left( \frac{1}{f+\Delta f} - \frac{1}{g_Q} \right)^{-1}} \right]^2. \quad (\text{B.16})$$

Nach Einsetzen von Gleichung (B.8) und (B.9), erhält man

$$\frac{j}{j_0} = \frac{\left(\frac{1}{f+\Delta f} - \frac{1}{g_Q}\right)^{-2}}{\left(\frac{1}{f} - \frac{1}{g_Q}\right)^{-2}} \cdot \left[ \frac{\left(\frac{1}{f} - \frac{1}{g}\right)^{-1} - \left(\frac{1}{f} - \frac{1}{g_Q}\right)^{-1}}{\left(\frac{1}{f} - \frac{1}{g}\right)^{-1} - \left(\frac{1}{f+\Delta f} - \frac{1}{g_Q}\right)^{-1}} \right]^2. \quad (\text{B.17})$$

Weiteres Umformen ergibt

$$\frac{j}{j_0} = \left[ \frac{\frac{1}{g} - \frac{1}{g_Q}}{-\frac{1}{f} + \frac{1}{g} + \frac{1}{f+\Delta f} - \frac{1}{g_Q}} \right]^2 \quad (\text{B.18})$$

und

$$\frac{j}{j_0} = \left[ \frac{1}{1 + \frac{\Delta f \cdot g \cdot g_Q}{f \cdot (f+\Delta f) \cdot (g-g_Q)}} \right]^2. \quad (\text{B.19})$$

Ist  $M_{Obj}$  die Vergrößerung des Objektivs in der ersten Zwischenbildebene des Mikroskops und definiert man  $M_{Q''}$  als die Vergrößerung des Crossoverbildes  $Q''$  durch das Objektiv bei eingestellter Brennweite  $f + \Delta f$ , so lassen sich die Gleichungen (B.6) und (B.7) umformen in

$$\frac{g_Q}{f + \Delta f} = 1 + \frac{g_Q}{b_Q} = 1 + \frac{1}{M_{Q''}} \quad (\text{B.20})$$

und

$$\frac{g}{f} = 1 + \frac{g}{b_0} = 1 + \frac{1}{M_{Obj}}, \quad (\text{B.21})$$

mit den daraus folgenden Relationen

$$M_{Q''} \cdot g_Q = (f + \Delta f) \cdot (M_{Q''} + 1) \quad (\text{B.22})$$

und

$$M_{Obj} \cdot g = f \cdot (M_{Obj} + 1). \quad (\text{B.23})$$

Einsetzen der Gleichungen (B.20) und (B.21) in Gleichung (B.19) ergibt für die normierte mittlere Bildintensität

$$\frac{j}{j_0} = \left[ \frac{1}{1 - \frac{\Delta f (M_{Q''} + 1) (M_{Obj} + 1)}{M_{Obj} \cdot M_{Q''} \cdot g_Q - M_{Q''} \cdot M_{Obj} \cdot g}} \right]^2 \quad (\text{B.24})$$

und unter anschließender Verwendung der Gleichungen (B.22) und (B.23)

$$\frac{j}{j_0} = \left( 1 - \frac{\Delta f}{\frac{M_{Obj}}{M_{Obj}+1} (f + \Delta f) - \frac{M_{Q''}}{M_{Q''}+1} \cdot f} \right)^{-2}. \quad (\text{B.25})$$

Da man nach dem Strahlensatz die Vergrößerung  $M_{Q''}$  auch schreiben kann als

$$M_{Q''} = \frac{b_Q - (f + \Delta f)}{f + \Delta f}, \quad (\text{B.26})$$

kann man sie mit Hilfe von Gleichung (B.6) umschreiben als

$$M_{Q''} = \frac{f + \Delta f}{g_Q - (f + \Delta f)} \quad (\text{B.27})$$

und danach in Gleichung (B.25) einsetzen, so dass man als Resultat für die normierte mittlere Bildintensität

$$\frac{j(\Delta f)}{j(\Delta f = 0 \text{ nm})} = \frac{j}{j_0} = \left( 1 - \frac{\Delta f}{\left( \frac{M_{Obj}}{M_{Obj}+1} - \frac{f}{g_Q} \right) \cdot (f + \Delta f)} \right)^{-2} \quad (\text{B.28})$$

erhält. Dieser Ausdruck ergibt sich nach analogem Rechenweg auch für den Fall eines unterfokussierten Kondensors nach Abbildung B.3 unter der Berücksichtigung, dass dort die Abbildungen  $Q'$  und  $Q''$  des Crossovers virtuell sind und die dazu gehörigen Bildweiten  $b_{Q,0}$  und  $b_Q$  negativ sind. Gleichung (B.28) für die normierte mittlere Bildintensität gilt also sowohl für einen über- als auch für einen unterfokussierten Kondensor. Sie weist also tatsächlich eine Defokusabhängigkeit auf sowie eine Abhängigkeit von der Gegenstandsweite  $g_Q$  des Crossovers vor der Objektivlinse. Diese Gegenstandsweite wird durch die Anregung des Kondensors bestimmt, also auch dadurch, ob der Kondensor unter- oder überfokussiert ist. Des Weiteren hängt die normierte mittlere Intensität in Gleichung (B.28) von dem Verhältnis  $M_{Obj}/(M_{Obj} + 1)$  mit der Vergrößerung  $M_{Obj}$  des Objektivs in der ersten Zwischenbildebene des Mikroskops ab.

Nach [48] hat eine Objektivlinse eine Vergrößerung von 20 - 50. Für  $M_{Obj} = 20$  nimmt  $M_{Obj}/(M_{Obj} + 1)$  einen Wert von ca. 0,95 an, für  $M_{Obj} = 50$  einen Wert von ca. 0,98 und für  $M_{Obj} = 100$  einen Wert von ca. 0,99. Für eine Objektivlinsenvergrößerung  $M_{Obj} \geq 50$  und Kondensorlinsenanregungen, bei denen die Gegenstandsweite

$g_Q$  des Crossovers nicht zu nah an der Brennweite  $f$  der Objektivlinse liegt, kann das Verhältnis  $M_{Obj}/(M_{Obj} + 1)$  in Gleichung (B.28) näherungsweise auf 1 gesetzt werden.

Da in Abbildung B.1 für die normierte mittlere Bildintensität  $j(\Delta f)/j(\Delta f = 0 \text{ nm})$  innerhalb des durch die Messung abgedeckten Defokusbereiches für die dort benutzten kleinen Konvergenzhalbwinkel  $\leq 0,17 \text{ mrad}$  ein näherungsweise linearer Zusammenhang mit dem Defokus  $\Delta f$  beobachtet wurde, soll an dieser Stelle die Ableitung  $(j/j_0)'(\Delta f)$  von Gleichung (B.28) berechnet werden. Für diese erhält man

$$\left(\frac{j}{j_0}\right)'(\Delta f) = \frac{f}{f + \Delta f} \cdot \frac{1}{\left(\frac{M_{Obj}}{M_{Obj}+1} - \frac{f}{g_Q}\right) \cdot (f + \Delta f) - \Delta f}. \quad (\text{B.29})$$

Wir führen jetzt die Näherung  $M_{Obj}/(M_{Obj} + 1) \approx 1$  ein, so dass sich der Ausdruck

$$\left(\frac{j}{j_0}\right)'(\Delta f) = \frac{1}{(f + \Delta f) \cdot \left(1 - \frac{f + \Delta f}{g_Q}\right)} \quad (\text{B.30})$$

ergibt, es sei an dieser Stelle jedoch angemerkt, dass diese Näherung kritisch ist, wenn  $g_Q$  einen Wert besitzt, der zu nah an  $f$  liegt. Da der Ausdruck  $(f + \Delta f)$  in Gleichung (B.30) als multiplikativer Faktor bzw. in dem Bruch  $(f + \Delta f)/g_Q$  steht und die Brennweite  $f = 2,5 \text{ mm}$  am JEOL JEM 3010 im Vergleich zum Defokus  $\Delta f$  obiger Messungen sehr groß ist, benutzen wir hier die Näherung  $f + \Delta f \approx f$ , so dass sich das Ergebnis für die Ableitung vereinfacht zu

$$\left(\frac{j}{j_0}\right)'(\Delta f) \approx \frac{1}{f \left(1 - \frac{f}{g_Q}\right)} := S. \quad (\text{B.31})$$

Im Rahmen der obigen Näherungen für  $M_{Obj}/(M_{Obj} + 1)$  und  $f + \Delta f \approx f$  ergibt sich also eine konstante, vom Defokus  $\Delta f$  unabhängige, Ableitung der normierten mittleren Bildintensität  $S := (j/j_0)'(\Delta f) \approx const.$  Dies bestätigt also den oben in Abbildung B.1 beobachteten linearen Zusammenhang zwischen normierter mittlerer Bildintensität und Defokus  $\Delta f$ .

Abbildung B.4 zeigt die Ergebnisse der Least-Squares-Fit-Anpassung von Gleichung (B.28) an den experimentell bestimmten Verläufen der normierten mittleren Bildintensitäten in Abhängigkeit vom Defokus  $\Delta f$  aus Abbildung B.1. Dabei wurde

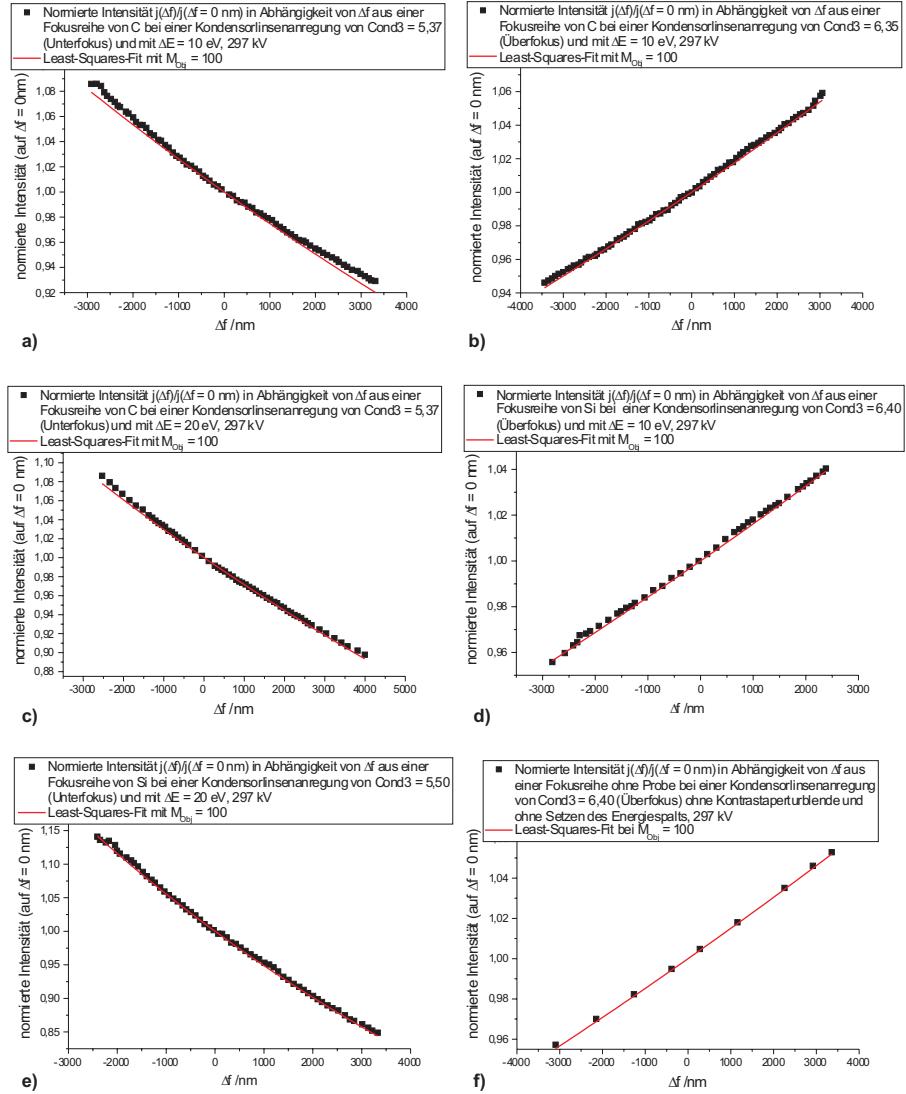


Abbildung B.4: Normierte mittlere Bildintensität  $j(\Delta f)/j(\Delta f = 0 \text{ nm})$  in Abhängigkeit vom Defokus  $\Delta f$  der Einzelbilder aus denselben Fokusreihen wie in Abbildung B.1 für unterschiedliche Kondensorlinsenanregungen (Cond3); durch die Messpunkte wurde ein Least-Squares-Fit der Gleichung (B.28) unter Variation der Gegenstandsweite  $g_Q$  des Crossovers gelegt; dabei wurde die Vergrößerung  $M_{\text{Obj}}$  des Objektivs auf 100 gesetzt; dies brachte folgende Resultate für  $g_Q$ : a) bei Cond3 = 5,37  $g_Q = 2,448 \pm 0,159 \text{ mm}$ ; b) bei Cond3 = 6,35  $g_Q = 2,649 \pm 0,001 \text{ mm}$ ; c) bei Cond3 = 5,37  $g_Q = 2,457 \pm 0,001 \text{ mm}$ ; d) bei Cond3 = 6,40  $g_Q = 2,659 \pm 0,001 \text{ mm}$ ; e) bei Cond3 = 5,50  $g_Q = 2,487 \pm 0,001 \text{ mm}$ ; f) bei Cond3 = 6,40  $g_Q = 2,670 \pm 0,002 \text{ mm}$ . Bezüglich Informationen zu den betreffenden Fokusreihen und Messungen siehe Erklärungen zu Abbildung B.1.

die Vergrößerung des Objektivs in der ersten Zwischenbildebene des Mikroskops  $M_{Obj}$  auf 100 gesetzt, was näherungsweise gleichzusetzen ist mit der Näherung  $M_{Obj}/(M_{Obj} + 1) \approx 1$ . Des Weiteren wurde die Herstellerangabe für die Brennweite  $f = 2,5 \text{ mm}$  eingesetzt und die Gegenstandsweite  $g_Q$  bei der Anpassung variiert. In Abbildung B.4 ist deutlich die gute Übereinstimmung zwischen den experimentellen Verläufen der normierten mittleren Bildintensität  $j(\Delta f)/j(\Delta f = 0 \text{ nm})$  und den theoretischen Verläufen nach Gleichung (B.28) zu erkennen. Auch wird die Rolle der Kondensorlinsenanregung richtig beschrieben. Bei unterfokussiertem Kondensor fällt die normierte mittlere Intensität mit steigendem Defokus  $\Delta f$ , bei überfokussiertem Kondensor steigt sie mit  $\Delta f$ . Die beobachtete Abhängigkeit der normierten mittleren Bildintensität vom Defokus lässt sich also mit der aus obigen Überlegungen resultierenden Gleichung (B.28) reproduzieren.

Es sei an dieser Stelle angemerkt, dass auch für andere Vergrößerungen  $M_{Obj} \neq 100$  Gleichung (B.28) die experimentellen Verläufe gut wiedergibt. So wurde im Rahmen dieser Arbeit auch eine Least-Squares-Fit-Anpassung von Gleichung (B.28) an die experimentellen Daten aus Abbildung B.4 bzw. B.1 für  $M_{Obj} = 10$  durchgeführt. Auch die Resultate einer derartigen Anpassung brachten eine sehr gute Übereinstimmung zwischen den experimentellen Verläufen der normierten mittleren Intensität und den theoretischen gemäß Gleichung (B.28). Die Ergebnisse der so durchgeführten Anpassungen bei  $M_{Obj} = 100$  und  $M_{Obj} = 10$  unterscheiden sich im Prinzip nur in den Resultaten für die Gegenstandsweiten  $g_Q$  des Crossovers. In Abbildung B.4 sind sie für  $M_{Obj} = 100$  angegeben, bei einer Anpassung der gleichen Messdaten aus Abbildung B.4 mit  $M_{Obj} = 10$  sind sie um 0,21 bis 0,26 mm höher.

Falls entweder nicht bekannt ist, ob die Vergrößerung  $M_{Obj}$  des Objektivs in der ersten Zwischenbildebene des Mikroskops die Bedingung  $M_{Obj}/(M_{Obj} + 1) \approx 1$  erfüllt, oder sie dies nicht erfüllt, so ist für eine genaue Bestimmung der Gegenstandsweite  $g_Q$  des Crossovers mit Hilfe einer Least-Squares-Fit-Anpassung mit Gleichung (B.28) zuvor eine experimentelle Bestimmung von  $M_{Obj}$  nötig. Eine experimentelle Abschätzung kann durch Abbildung einer Probe mit Strukturen definierter bekannter Größe (z. B. Katalasekristalle [57] oder Netzebenen von Gold-Clustern) und der gleichzeitigen Abbildung einer Selektorblende bekannten Durchmessers geschehen, die in der ersten Zwischenbildebene des Mikroskops eingebaut ist. Das Bild der

Probenstrukturen bekannter Größe dient zur Kalibrierung der Gesamtvergrößerung  $M_{ges}$ . Gleichzeitig kann aus den Abmessungen der Blendenöffnung auf demselben Bild und dem bekannten Blendendurchmesser die Vergrößerung  $M_{Blende}$  der Blende durch das Projektivlinsensystem und durch eventuell nachfolgende optische Systeme berechnet werden.  $M_{Obj}$  ergibt sich dann aus dem Quotienten  $M_{ges}/M_{Blende}$ . Die Abbildungen B.2 und B.3 helfen nun dabei, die in diesem Abschnitt analysierten Gegenstandsweiten  $g_Q$  des Crossovers in Abhängigkeit von der Kondensorlinsenanregung dazu zu nutzen, den Durchmesser des Crossovers oberhalb der Objektivlinse abzuschätzen. Weist man in diesen Abbildungen dem Crossover  $Q$  über dem Objektiv den Radius  $R_Q$  zu, so ergibt sich für kleine Konvergenzhalbwinkel  $\alpha$

$$\alpha = \frac{R_Q}{g_Q - g}, \quad (\text{B.32})$$

wobei bei dieser Schreibweise  $\alpha$  im Falle eines unterfokussierten Kondensors ( $g_Q < g$ ) negativ definiert wäre. So erhält man aus Gleichung (B.32) die Beziehung

$$\frac{1}{\alpha} = \frac{g_Q - g}{R_Q}, \quad (\text{B.33})$$

aus der man auf den Radius  $R_Q$  des Crossovers schließen kann. Sind aus der Analyse der defokusabhängigen Bildintensitäten von Fokusreihen bei unterschiedlichen Kondensoranregungen nach Gleichung (B.28) die Gegenstandsweiten  $g_Q$  für diese Kondensorlinsenanregungen bekannt und kennt man die dazu gehörigen Konvergenzhalbwinkel  $\alpha$  z. B. aus direkten Messungen nach den im Anhang A beschriebenen Verfahren oder aufgrund einer Konvergenzhalbwinkelgleichung, so muss nach Gleichung (B.33) die Auftragung von  $1/\alpha$  in Abhängigkeit von  $g_Q$  eine Gerade ergeben, deren Steigung den Kehrwert von  $R_Q$  angibt und dessen Schnittpunkt mit der  $1/\alpha$ -Achse von  $R_Q$  und  $g$  abhängt.

Da wir die Gegenstandsweiten  $g_Q$  bisher nur für das Beispiel von  $M_{Obj} = 100$  angegeben haben, weil wir  $M_{Obj}$  nicht kennen, wir aber  $R_Q$  nach Gleichung (B.33) nicht für diesen Spezialfall bestimmen wollen, werden wir die Gegenstandsweiten  $g_Q$  im folgenden neu berechnen unter der Annahme, dass die Näherung  $M_{Obj}/(M_{Obj} + 1) \approx 1$  gilt. Die folgende quantitative Auswertung für das JEOL JEM 3010 gilt also nur dann, wenn die Vergrößerung des Objektivs dieses Mikroskops diese Näherung erfüllt. Ist diese Näherung erfüllt, so gilt Gleichung (B.31) und im Rahmen des für

obige Messungen verwendeten Defokusbereiches ergibt sich eine lineare Abhängigkeit der normierten mittleren Bildintensität  $j(\Delta f) / j(\Delta f = 0 \text{ nm})$  vom Defokus. Dies haben wir in Abbildung B.1 bzw. B.4 auch festgestellt. So wurden in dieser Arbeit elastisch gefilterte Fokusreihen dünner amorpher Kohlenstoff-, Silizium- und Germaniumfilme am JEOL JEM 3010 für unterschiedliche Kondensorlinsenanregungen aufgezeichnet und die Ableitungen bzw. Steigungen  $S := (j/j_0)'(\Delta f)$  der normierten mittleren Bildintensitäten in Abhängigkeit vom Defokus bestimmt und für die jeweilige Kondensorlinsenanregung der Mittelwert dieser Steigung berechnet. Außerdem wurden die Konvergenzhalbwinkel  $\alpha$  für jede Fokusreihe nach dem Least-Squares-Fit-Verfahren aus den dazu gehörigen Kontrast-Transfer-Charakteristiken bestimmt, wie es im Anhang A geschildert ist, und ebenfalls für die jeweilige Kondensorlinsenanregung der Mittelwert von  $\alpha$  gebildet. Dabei wurden nur kleine Konvergenzhalbwinkel  $\alpha \leq 0,17 \text{ mrad}$  verwendet. Aus Gleichung (B.31) erhält man

$$\frac{1}{S} = \left[ \left( \frac{j}{j_0} \right)'(\Delta f) \right]^{-1} \approx f \left( 1 - \frac{f}{g_Q} \right), \quad (\text{B.34})$$

so dass wir mit Hilfe dieses Ausdrucks, der gemessenen experimentellen Steigungen  $S$  und der Herstellerangabe  $f = 2,5 \text{ mm}$  die Gegenstandsweiten  $g_Q$  für die verwendeten Kondensorlinsenanregungen berechnen konnten.

Gleichung (B.34) ist für die vorgelegenen experimentellen Bedingungen am JEOL JEM 3010 in Abbildung B.5 a) dargestellt und dort sind die nach dieser Gleichung aus den Messwerten  $S$  berechneten Datenpunkte eingetragen. Abbildung B.5 b) zeigt die Auftragung der experimentell gemessenen Werte  $1/\alpha$  in Abhängigkeit der korrespondierenden aus Gleichung (B.34) bestimmten Gegenstandsweiten  $g_Q$  des Crossovers, die für das verwendete JEOL JEM 3010 nur dann gültig sind, falls die Objektivlinse des Mikroskops die Bedingung  $M_{Obj}/(M_{Obj} + 1) \approx 1$  erfüllt. Durch die Messpunkte wurde ein Least-Squares-Fit nach Gleichung (B.33) unter Variation der Parameter  $R_Q$  und  $g$  gelegt. Die Anpassung ergab für den Radius  $R_Q$  des Crossovers einen Wert von  $9,12 \pm 0,85 \text{ nm}$ , also für seinen Durchmesser  $D_Q = 18,24 \pm 1,70 \text{ nm}$ , und für die Gegenstandsweite  $g = 2,525 \pm 0,006 \text{ mm}$ .

Die Messpunkte in Abbildung B.5 b) liegen nicht alle auf der eingetragenen Geraden. Dies ist wohl auf einige eventuell fehlerhaft berechnete Werte von  $g_Q$  zurückzuführen,

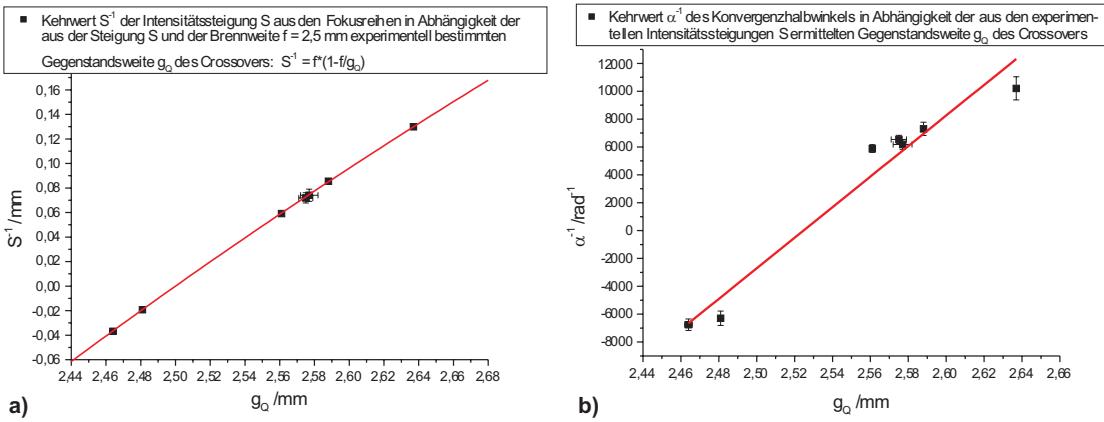


Abbildung B.5: a) Kehrwert der experimentell aus den defokusabhängigen Intensitätsverläufen in Fokusreihen bestimmten Steigung  $S$  in Abhängigkeit der nach Gleichung (B.34) aus diesen Steigungen berechneten Gegenstandsweite  $g_Q$  des Crossovers; b) Kehrwert  $1/\alpha$  der experimentell bestimmten Konvergenzhalfwinkel in Abhängigkeit der aus den experimentell ermittelten Steigungen  $S$  bestimmten Gegenstandsweite  $g_Q$  des Crossovers;  $\alpha$  ist dabei hier bei unterfokussiertem Kondensor negativ definiert; durch die Messpunkte wurde ein Least-Squares-Fit nach Gleichung (B.33) gelegt mit den Ergebnissen  $R_Q = 9,12 \pm 0,85$  nm und  $g = 2,525 \pm 0,006$  mm. Die Messergebnisse beziehen sich auf die Näherung  $M_{Obj}/(M_{Obj} + 1) \approx 1$  und auf das JEOL JEM 3010 mit den Einstellungen *Spot-Size* 2 und  $\alpha$ -Angle 3. Zur Erklärung dieser Größen siehe Anhang A.

da die Näherung  $M_{Obj}/(M_{Obj} + 1) \approx 1$  zumindest dann kritisch ist, wenn  $g_Q$  sehr nahe bei der Brennweite  $f$  liegt, was man an den Gleichungen (B.28) und (B.29) erkennen kann. Bei Verwendung dieser Näherung für  $M_{Obj}$  und ohne genaue Kenntnis von  $M_{Obj}$  ist der hier gefundene Wert für  $R_Q$  also nur als Abschätzung zu verstehen. Zur weiteren Beurteilung dieser Ergebnisse für  $R_Q$  und  $g$  greifen wir auf die geometrische Optik zurück. Geht man von dem aus der geometrischen Optik stammenden Ausdruck für die Objektivlinsenvergrößerung  $M_{Obj} = f/(g - f)$  und von der Linsengleichung aus, so kann man aus den ermittelten Daten für  $g = 2,525 \pm 0,006$  mm und der Brennweite  $f = 2,5$  mm auf  $M_{Obj}$  und die Bildweite  $b$  der ersten Zwischenbildebene des Mikroskops schließen und erhält  $M_{Obj} = 100 \pm 24$  und  $b = 252,5 \pm 60,0$  mm. Diese Werte liegen unter Berücksichtigung ihrer Messunsicherheiten in der richtigen Größenordnung, denn durch eine äußere Längenmessung am JEOL JEM 3010 kann

der Abstand zwischen Probenhalter und Selektorblende, die ja in der ersten Zwischenbildebene sitzt, zumindest grob auf ca.  $185 \pm 40,0$  mm abgeschätzt werden.

Obwohl der hier bestimmte Wert für  $R_Q$  aufgrund der hier unbekannten Vergrößerung  $M_{Obj}$  und der für  $M_{Obj}$  angenommenen Näherung nur als Abschätzung angesehen werden kann, weist Abbildung B.5 b) allerdings darauf hin, dass eine Untersuchung der Crossoverabmessung nach obigem Verfahren bei bekannter Vergrößerung  $M_{Obj}$  und bekannter Brennweite  $f$  des Objektivs möglich sein sollte: dann können nämlich nach Gleichung (B.28) die Gegenstandsweiten  $g_Q$  für unterschiedliche Kondensoranregungen genauer ermittelt und der Crossoverradius  $R_Q$  aus den gemessenen Konvergenzhälbwinkeln mit Hilfe von Gleichung (B.33) durch eine Auftragung von  $1/\alpha$  in Abhängigkeit von  $g_Q$  analog zu Abbildung B.5 b) bestimmt werden.

Diese Methode wäre eine Alternative zu der direkten Abbildung des Crossovers auf ein Speichermedium bei fokussiertem Kondensor, da die Abbildung des Crossovers durch die Linsenfehler „verwaschen“ wird und somit die Messung seines Durchmessers auf dem Bild erschwert wird. Auch die hohe Intensität des Crossovers macht seine Aufzeichnung und seine Durchmesserbestimmung auf dem Bild komplizierter. Aufgrund der hohen Intensität sollte bei der Bildaufzeichnung in diesem Fall mit einer Photoplatte und nicht mit der CCD-Kamera gearbeitet werden, um diese nicht zu beschädigen.

Abschließend für diesen Abschnitt bleibt festzuhalten, dass die Abhängigkeit der mittleren Bildintensität in Fokusreihen vom Defokus nach obigen Überlegungen sowohl qualitativ als auch quantitativ reproduziert werden kann und dass diese Abhängigkeit maßgeblich von der Gegenstandsweite des Crossovers oberhalb der Objektivlinse beeinflusst wird. Für eine Berechnung von Kontrast-Transfer-Charakteristiken aus Fokusreihen ist aufgrund dieser Defokusabhängigkeit eine vorherige Intensitätsnormierung der Diffraktogramme in Form eines Angleichs der mittleren Intensitäten der Einzelbilder wichtig, also auch dann, wenn die Einzelbilder der Fokusreihe alle mit der gleichen Belichtungszeit aufgezeichnet wurden.

## Literaturverzeichnis

- [1] Ahn, C. C. und O. L. Krivanek: A reference guide of electron energy loss spectra covering all stable elements. ASU HREM facility and Gatan
- [2] D'Antonio, P. und J. H. Konnert: Small-Angle-Scattering Evidence of Voids in Hydrogenated Amorphous Silicon. Physical Review Letters **43** 16 (1979) 1161-1163
- [3] 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. Appl. Phys. **4** (1998), 11-26
- [4] Bird, D. M. und Q. A. King: Absorptive Form Factors For High-Energy Electron Diffraction. Acta Cryst. A**46** (1990) 202-208
- [5] Bearden, J. A.: X-Ray Wavelengths. Review Of Modern Physics **39** 1 (1967) 78-124
- [6] Berger, A. und H. Kohl: Elemental mapping using an imaging energy filter: image formation and resolution limits. Microscopy Microanalysis Microstructures **3** (1992) 159-174
- [7] 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. Physical Review B **39** 8 (1989) 5101-5106
- [8] Cowley, J. M.: Diffraction Physics. North-Holland, Amsterdam, 1975

- [9] Egerton, R. F. und S. C. Cheng: Measurement Of Local Thickness By Electron Energy-Loss Spectroscopy. Ultramicroscopy **21** (1987) 231-244
- [10] Egerton, R. F. und R. D. Leapman: Quantitative Electron Energy-Loss Spectroscopy, in [46] 269-290
- [11] Egerton, R. F.: Electron Energy-Loss Spectroscopy in the Electron Microscope. Plenum Press, New York, 1996
- [12] Gatan Inc.: a chart of inner shell loss edge types and energies for Electron Energy Loss Spectroscopy. Gatan (1985)
- [13] Gibson, J. M.: Breakdown of the weak-phase object approximation in amorphous objects and measurement of high-resolution electron optical parameters. Ultramicroscopy **56** (1994), 26-31
- [14] Gibson, J. M. und M. M. J. Treacy: Diminished Medium-Range Order Observed in Annealed Amorphous Germanium. Physical Review Letters **78** 6 (1997) 1074-1077
- [15] Goodman, J. W.: Introduction to Fourier Optics. McGraw-Hill, New-York, 1988
- [16] Gralla, B.: Optimierung der Energieverlustfensterpositionen und Fensterbreite für die Aufnahme von Elementverteilungsbildern. Diplomarbeit, Universität Münster, 2003
- [17] Gralla, B., A. Thesing, und H. Kohl: Optimization of the positions and the width of the energy windows for the recording of Ti elemental maps, in: D. Schryvers, J.-P. Timmermans (Eds.), Proc. 13<sup>th</sup> Eur. Micr. Congr., Antwerp, Belgium, August 22-27, 2004 **Vol. I**, Belgian Society for Microscopy, Liège (2004) 287-288
- [18] Hanszen, K.-J.: The Optical Transfer Theory of the Electron Microscope: fundamental principles and applications. Advances in Optical and Electron Microscopy **4** (1971) 1-84
- [19] Hecht, E.: Optik. Addison-Wesley, Bonn, 1994

- [20] Hofer, F.: Inner-Shell Ionization, in [46] 225-268
- [21] Holleman, A. F. und E. Wiberg: Lehrbuch der anorganischen Chemie. Walter de Gruyter, Berlin, 1985
- [22] Hülk, C.: Charakterisierung von CCD-Kamerasystemen in der Transmissions-elektronenmikroskopie und deren Einsatz bei der Erstellung von Elementverteilungsbildern. Dissertation, Universität Münster, 1998
- [23] Hülk, C., I. Daberkov: Easy methods for accurate characterization of CCD cameras, in: H.A. Calderón Benavides, M. José Yacamán (Eds.), Electron Microscopy 1998, Proc. 14<sup>th</sup> Int. Congr. on Electron Microscopy, Cancun (Mexico), 31 August to 4 September 1998 **Vol. I**, Institute of Physics Publishing, Bristol (1998) 189-190
- [24] Instructions JEOL. JEOL LTD., Tokyo Japan, 1991
- [25] Kirkland, E. J.: Advanced Computing in Electron Microscopy. Plenum Press, New York, 1998
- [26] Knippelmeyer, R. und H. Kohl: Relativistic calculations of intensity distributions in elemental maps using contrast transfer functions. Journal of Microscopy **194** (1999) 30-41
- [27] Knippelmeyer, R.: Bestimmung von Übertragungsfunktionen zur quantitativen Auswertung von Elementverteilungsbildern. Dissertation, Universität Münster, 2000
- [28] Knippelmeyer, R. und H. Kohl: Determination of the medium range structure of amorphous foils from inelastically filtered images using inelastic transfer functions, in: L. Frank, F. Čiampor (Eds.), Proc. 12<sup>th</sup> Eur. Congr. Electr. Micr., **Vol. II**, Czechoslovak Society for Electron Microscopy, Brno (2000) 457-458
- [29] Knippelmeyer, R., A. Thesing und H. Kohl: Influence of the imaginary part of the atomic scattering factor on diffractograms of thin amorphous foils, in: L. Frank, F. Čiampor (Eds.), Proc. 12<sup>th</sup> Eur. Congr. Electr. Micr., **Vol. III**, Czechoslovak Society for Electron Microscopy, Brno (2000) 391-392

- [30] Knippelmeyer, R., A. Thesing und H. Kohl: Determination of the contrast transfer function by analysing diffractograms of thin amorphous foils. *Zeitschrift für Metallkunde* **94** (2003) 3 282-289
- [31] 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
- [32] Krivanek, O. L.: A method for determining the coefficient of spherical aberration from a single electron micrograph. *Optik* **45** 1 (1976) 97-101
- [33] Krivanek, O. L.: Practical High-Resolution Electron Microscopy, in: P. Buseck, J. Cowley, L. Eyring (Eds.) „High Resolution Transmission Electron Microscopy and Associated Techniques“. Oxford University Press, Oxford, 1988, 519-567
- [34] Lonsdale, K. (Ed.): *International Tables For X-Ray Crystallography Vol. 3.* The Kynoch Press, Birmingham, 1968
- [35] Lüke, H. D.: Signalübertragung, Grundlagen der digitalen und analogen Nachrichtenübertragungssysteme. Springer, Berlin, 1992
- [36] Mahan, A. H., D. L. Williamson, 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. *Physical Review B* **40** 17 (1989) 12024-12027
- [37] Möbus, G. und M. Rühle: A new procedure for the determination of the chromatic contrast transfer envelope of electron microscopes. *Optik* **93** 3 (1993) 108-118
- [38] Möbus, G.: Optimierung der digitalen Kontrastauswertung hochauflöster elektronenmikroskopischer Aufnahmen innerer Grenzflächen. Dissertation, MPI für Metallforschung, Stuttgart, 1994
- [39] Mortimer, C. E.: Chemie. Georg Thieme Verlag Stuttgart, 1987

- [40] Müller, I.: Einsatz eines multivariaten Analyseverfahrens zur Segmentierung von Elementverteilungsbildern. Dissertation, Universität Münster, 2001
- [41] Prietzel, C.: Messungen und Simulationsrechnungen der orientierungsabhängigen Röntgenemission an einem einkristallinen San Carlos Olivin. Diplomarbeit, Universität Münster, 1999
- [42] Pun, T., J. R. Ellis und M. Eden: Weighted least squares estimation of background in EELS imaging. *Journal of Microscopy* **137** (1985) 93-100
- [43] Raith, H.: Komplexe Atomstreuamplituden für die elastische Elektronenstreuung an Festkörperatomen. *Acta Cryst. A* **24** (1968) 85-93
- [44] Reimer, L.: Elektronenmikroskopische Untersuchungs- und Präparationsmethoden. Springer, Berlin, 1967
- [45] Reimer L., U. Zepke, J. Moesch, St. Schulze-Hilbert, M. Ross-Messemmer, W. Probst und E. Weimer: EEL Spectroscopy - A Reference Handbook of Standard Data for Identification and Interpretation of Electron Energy Loss Spectra and for Generation of Electron Spectroscopic Images. Carl Zeiss, Electron Optics Division (1992)
- [46] Reimer, L. (Ed.): Energy-Filtering Transmission Electron Microscopy. Springer Series in Optical Sciences **71**, Springer, Berlin, 1995
- [47] Reimer, L.: Electron Spectroscopic Imaging, in [46] 347-400.
- [48] Reimer, L.: Transmission Electron Microscopy, Physics of Image Formation and Microanalysis. Springer Series in Optical Sciences **36**, Springer, Berlin, 1997
- [49] Reimer, L.: SEM/TEM Hypertext - Per Mausklick (fast) alles über Elektronenmikroskopie, Münster, 1999
- [50] Rose, A.: Quantum limitations to vision at low light levels. *Image Technology* **12** (1970) 13-15 & 30-31
- [51] Rose, H.: Nonstandard imaging methods in electron microscopy. *Ultramicroscopy* **2** (1977) 251-267

- [52] Thesing, A.: Möglichkeiten zur Bestimmung von Linsenfehlern und Strukturfaktoren in der Transmissionselektronenmikroskopie. Diplomarbeit, Universität Münster, 1999
- [53] Typke, D. und M. Radermacher: Determination of the phase of complex atomic scattering amplitudes from light-optical diffractograms of electron microscope images. Ultramicroscopy **9** (1982) 131-138
- [54] Unser, M., S. R. Ellis, T. Pun und M. Eden: Optimal background estimation in EELS. Journal of Microscopy **145** (1987) 245-256
- [55] Weickenmeier, A. und H. Kohl: Computation of Absorptive Form Factors for High-Energy Electron Diffraction. Acta Cryst. A**47** (1991), 590-597
- [56] Williams, D. B. und C. B. Carter: Transmission Electron Microscopy. Plenum Press, New-York, 1996
- [57] Wrigley, N. G.: The Lattice Spacing of Crystalline Catalase as an Internal Standard of Length in Electron Microscopy. J. Ultrastructure Res. **24** (1968), 454-464
- [58] Zeitler, E. und H. Olsen: Complex Scattering Amplitudes in Elastic Electron Scattering. Physical Review A **162** 5 (1967) 1439-1447





# Danksagung

An dieser Stelle möchte ich mich bei allen Mitarbeiterinnen und Mitarbeitern der Abteilung für Elektronenmikroskopie des Physikalischen Instituts für das freundschaftliche Arbeitsklima und die hilfreiche Unterstützung bedanken. Besonders möchte ich mich bedanken bei

Prof. Dr. Helmut Kohl für die Ermöglichung dieser Arbeit und für seine Anregungen und fachlichen Ratschläge, Dr. Rainer Knippelmeyer für seine Unterstützung und für wertvolle fachliche Diskussionen, Dr. Ingo Müller für wertvolle fachliche Diskussionen und die Zusammenarbeit bei Reparatur- und Wartungsarbeiten am Zeiss EM 902, Dr. Hilmar Hoffmeister für wertvolle fachliche Diskussionen und seine Hilfe bei computertechnischen Problemen, Benedikt Gralla für wertvolle fachliche Diskussionen und seine aufopferungsvolle Arbeit bei der Computeradministration in unserer Abteilung, Markus Silder für die technische Unterstützung und die Hilfe bei Reparatur- und Wartungsarbeiten am Zeiss EM 902. Karl-Heinz Krämer, Mi Young Park und Claudia Prietzl danke ich für ihre Arbeit in der Computeradministration, Dr. Ulrich Plate für seine Unterstützung bezüglich der Wartung des Zeiss EM 902, Dr. Ute Golla-Schindler und Dr. Kilian Pollok vom Institut für Mineralogie für hilfreiche Diskussionen bezüglich des JEOL JEM 3010 und Dr. Thorsten Krol vom Institut für Materialphysik für fachliche Diskussionen zur Proben-Thematik.

An dieser Stelle möchte ich mich ganz herzlich und ganz besonders bei meinen Eltern bedanken, die mich immer liebevoll unterstützt haben und immer für mich da gewesen sind - auch in schweren Zeiten. Dafür möchte ich auch meinen Brüdern Rudolf und Michael, meiner Schwester Claudia und meinem Schwager Frank danken.

Ich versichere hiermit, bei der Danksagung niemanden absichtlich vergessen zu haben!







