

Claudia Prietzel

Untersuchungen zur energiegefilterten
Elektronenbeugung im
Transmissionselektronenmikroskop
an GaAs

2006

Experimentelle Physik

Untersuchungen zur energiegefilterten
Elektronenbeugung im
Transmissionselektronenmikroskop
an GaAs

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

vorgelegt von
Claudia Prietzel
aus Münster
–2006–

Dekan:	Prof. Dr. G. Münster
Erster Gutachter:	Prof. Dr. H. Kohl
Zweiter Gutachter:	Prof. Dr. M. Donath
Tag der mündlichen Prüfung(en):	16.10. und 23.10.2006
Tag der Promotion:	23.10.2006

Für meine Eltern Marita und Horst.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Theorie der Elektronenbeugung	3
2.1	Elastische Streuung	3
2.1.1	Dynamische Theorie der Elektronenbeugung	3
2.1.2	Absorption	8
2.2	Unelastische Streuung	12
2.2.1	Der Ansatz für den Wirkungsquerschnitt	12
2.2.2	Auswertung des Wirkungsquerschnittes	15
3	Experimentelle Grundlagen	20
3.1	Die Probe	20
3.2	Probenpräparation	26
3.3	Verwendete Geräte und experimentelle Parameter	30
4	Beschreibung der Simulationsprogramme	38
4.1	Rechenzeitbetrachtungen	39
4.2	Programme	45

5 Experiment und Simulationen	48
5.1 Die Kristalldicke	48
5.1.1 Dickenabhängigkeit der ESD bei einer Beschleunigungsspannung von 80 kV	49
5.1.2 Dickenabhängigkeit der ESD bei einer Beschleunigungsspannung von 200 kV	56
5.2 Die Beschleunigungsspannung	58
5.3 Vergleich zwischen Experiment und Simulation	61
6 Zusammenfassung	71
A Reflexdatei	74
B Abkürzungen	75
C Abbildungsverzeichnis	75
Literaturverzeichnis	79

Kapitel 1

Einleitung

Ein Transmissionselektronenmikroskop mit integriertem Energiefilter (EFTEM) ermöglicht die Aufzeichnung von Bildern, zu denen nur Elektronen mit einem spezifischen Energieverlust, den sie durch die Wechselwirkung mit der Probe erlitten haben, beitragen. Wird dieser Energiefilter bei der Abbildung eingesetzt, so erhält man eine energieverlustspezifische Abbildung (ESI = engl.: electron spectroscopic imaging). Mittels dieser Abbildungsmethode lassen sich Elementverteilungsbilder, sogenannte „Elemental Maps“, erzeugen, aus denen orts aufgelöste Elementinformationen gewonnen werden können.

Zur Bestimmung von Fremdatomverteilungen in der Kristalleinheitszelle und zu gitterplatzspezifischen Untersuchungen existieren unterschiedliche Methoden. Die ALCHEMI-Methode (Atom Location by CHanneling Enhanced MIcroanalysis), die von Spence und Taftø 1983 [29] entwickelt wurde, basiert auf der charakteristischen Röntgenemission, deren Intensität von der Einstrahlrichtung abhängig ist. Für leichte Atome ist diese Methode wegen der geringen Fluoreszenzausbeute für diese Atome nicht geeignet. Taftø und Krivanek [30] haben gitterplatzspezifische Untersuchungen mithilfe der Elektronenverlustspektroskopie (EELS = engl.: electron energy-loss spectrometry) am Beispiel eines Spinell durchgeführt. Hierzu haben sie zwei EEL-Spektren bei zwei unterschiedlichen Kristallorientierungen aufgenommen und anhand der Intensitäten der einzelnen Ionisationskanten Aussagen über die Elementverteilung gemacht. In den letzten Jahren wurde u.a. vermehrt dem magnetischen

zirkularen Dichroismus Aufmerksamkeit geschenkt. Hébert und Schattschneider [10] haben 2003 den Vorschlag gemacht, zirkularen Dichroismus im TEM mit EELS zu messen und hierzu kürzlich erste Ergebnisse präsentiert [28].

Eine weitere Methode zur Untersuchung des zirkularen Dichroismus könnten die energieverlustspezifischen Beugungsdiagramme (ESD = engl.: electron spectroscopic diffraction pattern) sein.

Eine noch offene Frage ist, ob sich die Struktur der Einheitszelle (EZ) aus energieverlustspezifischen Beugungsdiagrammen bestimmen lässt. Zur Auswertung dieser experimentellen Diagramme ist es notwendig, Simulationen durchzuführen und diese mit den experimentellen Ergebnissen zu vergleichen. Overbeck [23] hat am Silizium-einkristall diesen Vergleich durchgeführt. Im nächsten Schritt gilt es, Kristalle zu untersuchen, die aus mehreren Elementen bestehen.

Gegenstand dieser Arbeit ist der Vergleich der Simulationen mit dem Experiment am Beispiel von Galliumarsenid. In Kapitel 2 werden die notwendigen theoretischen Grundlagen zur Berechnung des doppelt differentiellen Wirkungsquerschnittes, der proportional zur Intensität der energiegefilterten Beugungsdiagramme ist, dargestellt. In Kapitel 3 werden die experimentellen Grundlagen wie Struktur und Eigenschaften der Probe, Präparation und Geräte, mit denen die Messungen durchgeführt worden sind, beschrieben. Als Modellpräparat wurde ein Galliumarsenideinkristall ausgewählt, dessen Ionisationsenergien für Gallium und Arsen bei 1115 eV bzw. 1323 eV liegen. Für die Messungen standen zwei EFTEMs mit den Beschleunigungsspannungen 80 kV und 200 kV zur Verfügung. Da die Simulationen sehr rechenzeitaufwendig sind, werden in Kapitel 4 Rechenzeitbetrachtungen gemacht, die die Bedeutung der Anzahl der berücksichtigten Blochwellen und die Kristallorientierung, und die damit verbundene Symmetrie, verdeutlichen. In Kapitel 5 wird die Abhängigkeit der ESD von der Kristalldicke und der Beschleunigungsspannung untersucht und der Vergleich zwischen Experiment und Simulation durchgeführt. Der Vergleich ist durch die digitale Aufzeichnung der Beugungsdiagramme mit einer CCD-Kamera möglich. Durch die Linearität der Kameras können die Diagramme untergrundkorrigiert werden und enthalten nach einer derartigen Korrektur nur die elementspezifische Information, d.h. es tragen nur Elektronen zu dem Beugungsdiagramm bei, die eine bestimmte innere Schale eines Kristallatoms ionisiert haben.

Kapitel 2

Theorie der Elektronenbeugung

Dieses Kapitel behandelt die Streuprozesse der Elektronen in einer kristallinen Probe. Zunächst wird die dynamische Theorie der Elektronenbeugung vorgestellt, bei der in ihrer einfachsten Form der Kristall als starres, periodisches Kristallgitter betrachtet wird (Kapitel 2.1.1). Werden innere Freiheitsgrade berücksichtigt, so kommt es zu einer exponentiellen Dämpfung der Wellenfunktion, die im Abschnitt 2.1.2 störungstheoretisch behandelt wird. Kapitel 2.2 handelt von der unelastischen Streuung. Hier wird der doppelt differentielle Wirkungsquerschnitt für die unelastischen Streuprozesse hergeleitet, wobei der Einfluss der Mehrfachstreuung vernachlässigt wird.

2.1 Elastische Streuung

2.1.1 Dynamische Theorie der Elektronenbeugung

Zur Beschreibung der elastischen Beugung wird der Kristall zunächst als eine starre, regelmäßige Gitterstruktur von einzelnen Atomen ohne innere Freiheitsgrade aufgefasst. Damit wird eine reine Potentialstreuung vorausgesetzt.

Für Proben, die dicker als die mittlere elastische freie Weglänge sind, müssen elastische Mehrfachstreuprozesse berücksichtigt werden. Zur Beschreibung dieser Prozesse existieren verschiedene Ansätze wie z.B. das Multislice-Verfahren und die dyna-

misches Theorie. In [32] werden die wichtigsten Simulationsansätze vorgestellt. Auch unseren Simulationen der unelastischen Streuprozesse liegt die in diesem Kapitel dargestellte dynamische Theorie zugrunde. Eine ausführliche Behandlung ist z.B. in [19] zu finden.

Zur exakten Behandlung der Elektronenbeugung muss, auf Grund der hohen Geschwindigkeit der einfallenden Elektronen, relativistisch gerechnet werden. Fujiwara [7] hat 1961 gezeigt, dass die Lösung der Schrödingergleichung eine gute Näherung liefert, wenn relativistische Ausdrücke für Elektronenmasse und Wellenzahl verwendet werden.

Die einfallenden Elektronen sind durch die Energie E und den Wellenzahlvektor \vec{k} charakterisiert. Die Lösung der zeitunabhängigen Schrödingergleichung

$$\left\{ \Delta + \frac{2m}{\hbar^2} (V(\vec{r}) + E) \right\} \Psi(\vec{r}) = 0, \quad (2.1)$$

mit der relativistischen Elektronenmasse m und dem Laplace-Operator Δ , ist die Wellenfunktion $\Psi(\vec{r})$.

Das Kristallpotential $V(\vec{r})$ ist durch die Gitterstruktur periodisch und kann somit in einer Fourierreihe entwickelt werden

$$V(\vec{r}) = \sum_{\vec{g}} V_{\vec{g}} \exp[i \vec{g} \vec{r}], \quad (2.2)$$

wobei \vec{g} den reziproken Gittervektor darstellt. Das reziproke Gitter wird durch die reziproken Basisvektoren \vec{b}_1 , \vec{b}_2 und \vec{b}_3 aufgespannt, die durch die Basisvektoren \vec{a}_1 , \vec{a}_2 und \vec{a}_3 des realen Gitters gegeben sind

$$\vec{b}_i = \frac{2\pi}{V_{EZ}} \vec{a}_j \times \vec{a}_k; \quad i, j, k \text{ zyklisch.} \quad (2.3)$$

V_{EZ} ist das Volumen der Einheitszelle. Der reziproke Gittervektor lässt sich dann mit diesen reziproken Vektoren zu

$$\vec{g} = h\vec{b}_1 + k\vec{b}_2 + l\vec{b}_3 \quad (2.4)$$

bestimmen, mit den Millerschen Indizes (h, k, l) . Nach dem Bloch'schen Theorem sind die speziellen Lösungen der Schrödingergleichung (2.1) Blochwellen, die wie folgt aussehen¹

$$\Psi^{(j)}(\vec{r}) = \sum_{\vec{g}} C_{\vec{g}}(\vec{k}^{(j)}) \exp[i(\vec{g} + \vec{k}^{(j)})\vec{r}]. \quad (2.5)$$

Die Blochwelle Nr. j setzt sich also aus der einfallenden ebenen Welle mit dem Wellenvektor $\vec{k}^{(j)}$ und der Amplitude $C_0^{(j)}$ sowie den gestreuten ebenen Wellen $(\vec{k}^{(j)} + \vec{g})$ mit den Amplituden $C_{\vec{g}}^{(j)}$ zusammen. Die exakte Lösung $\Psi(\vec{r})$ der Schrödingergleichung ist eine Superposition unendlich vieler Blochwellen im Kristall

$$\Psi(\vec{r}) = \sum_j \epsilon^{(j)} \Psi^{(j)}(\vec{r}). \quad (2.6)$$

Da nicht unendlich viele Blochwellen berücksichtigt werden können, beschränkt man sich auf eine endliche Anzahl N von Blochwellen. Durch Einsetzen der Gleichungen (2.5) und (2.2) in die Schrödingergleichung (2.1) erhält man die Dispersionsgleichung der dynamischen Theorie

$$\left[K^2 - (\vec{k}^{(j)} + \vec{g})^2 \right] C_{\vec{g}}^{(j)} + \sum_{\vec{h} \neq 0} U_{\vec{h}} C_{\vec{g}-\vec{h}}^{(j)} = 0 \quad (2.7)$$

mit den Definitionen

$$K^2 := \frac{2m}{\hbar^2} (E + V_0) = \frac{2m}{\hbar^2} E + U_0 \quad (2.8)$$

und

$$U_{\vec{g}} := \frac{2m}{\hbar^2} V_{\vec{g}}. \quad (2.9)$$

Die Anregungskoeffizienten $\epsilon^{(j)}$ ergeben sich aus der Randbedingung für den stetigen Übergang der Wellenfunktion an der Kristalloberfläche. Hierzu wird das Koordinatensystem so gewählt, dass die x- und y-Achsen in der Kristalloberfläche liegen.

¹Im Folgenden wird für die Entwicklungskoeffizienten $C_{\vec{g}}(\vec{k}^{(j)})$ die Kurzschreibweise $C_{\vec{g}}^{(j)}$ benutzt.

In diesem Fall lautet die Randbedingung:

$$\exp[i \vec{k} \vec{r}] \Big|_{z=0} = \sum_j \epsilon^{(j)} \exp[i \vec{k}^{(j)} \vec{r}] \sum_{\vec{g}} C_{\vec{g}}^{(j)} \exp[i \vec{g} \vec{r}] \Big|_{z=0} \quad (2.10)$$

welche nur dann erfüllt ist, wenn

$$k_x^{(j)} = k_x \quad \text{und} \quad k_y^{(j)} = k_y \quad (2.11)$$

und

$$\begin{aligned} 1 &= \sum_j \epsilon^{(j)} C_0^{(j)}, \\ 0 &= \sum_j \epsilon^{(j)} C_{\vec{g}}^{(j)} \quad \text{für } \vec{g} \neq 0 \end{aligned} \quad (2.12)$$

erfüllt sind. Durch die Gleichungen (2.11) sind die Transversalkomponenten des Wellenvektors $\vec{k}^{(j)}$ festgelegt. Nun muss nur noch $k_z^{(j)}$ bestimmt werden. Gleichung (2.8) kann in guter Näherung durch

$$K^2 \simeq k^2 \quad (2.13)$$

ersetzt werden, da der Potentialkoeffizient V_0 von der Größenordnung 10 eV ist und Elektronenenergien von mehreren 10 keV verwendet werden.

Strahlt man parallel oder unter kleinem Winkel zur Oberflächennormalen ein, so werden nur die Reflexe in der reziproken Gitterebene senkrecht zur Oberflächennormalen angeregt. Unter Vernachlässigung der rückgestreuten Elektronen erhält man die linearisierte Dispersionsgleichung

$$\left[\gamma^{(j)} + \frac{1}{2k_z} (2\vec{k}\vec{g} + g^2) \right] C_{\vec{g}}^{(j)} - \frac{1}{2k_z} \sum_{\vec{h} \neq 0} U_{\vec{h}} C_{\vec{g}-\vec{h}}^{(j)} = 0. \quad (2.14)$$

$\gamma^{(j)}$ bezeichnet dabei die Differenz zwischen den Wellenvektoren $k_z^{(j)}$ im Innern des Kristalls und dem zugehörigen Vakuumwellenvektor k_z in z-Richtung

$$k_z^{(j)} = k_z + \gamma^{(j)}. \quad (2.15)$$

Gleichung (2.14) lautet in Matrixschreibweise

$$\underline{\underline{M}}\vec{c}^{(j)} = \gamma^{(j)}\vec{c}^{(j)}, \quad (2.16)$$

mit

$$M_{\vec{g}\vec{g}} = -\frac{1}{2k_z} (2\vec{k}\vec{g} + g^2) \quad (2.17)$$

und

$$M_{\vec{g}\vec{h}} = \frac{1}{2k_z} U_{\vec{g}-\vec{h}}. \quad (2.18)$$

Da das Kristallpotential reell ist,

$$U_{-\vec{g}} = U_{\vec{g}}^*, \quad (2.19)$$

ist die Matrix $\underline{\underline{M}}$ hermitesch. Die Eigenwerte hermitescher Matrizen sind reell und die Eigenvektoren bilden mit folgender Normierung

$$\sum_{\vec{g}} C_{\vec{g}}^{(i)} C_{\vec{g}}^{(j)*} = \delta_{ij} \quad (2.20)$$

$$\sum_j C_{\vec{g}}^{(j)} C_{\vec{h}}^{(j)*} = \delta_{\vec{g}\vec{h}} \quad (2.21)$$

ein Orthonormalsystem. Die Bedingungen (2.12) für die Anregungskoeffizienten $\epsilon^{(j)}$ können in einem linearen Gleichungssystem zusammengefasst werden

$$\begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ \vdots \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} C_0^{(1)} & C_0^{(2)} & \dots \\ C_{\vec{g}}^{(1)} & C_{\vec{g}}^{(2)} & \dots \\ \vdots & \vdots & \ddots \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} \epsilon^{(1)} \\ \epsilon^{(2)} \\ \vdots \end{pmatrix}. \quad (2.22)$$

Multiplikation mit der komplex konjugierten und transponierten Matrix ergibt

$$\epsilon^{(j)} = C_0^{(j)*}. \quad (2.23)$$

Damit erhält man, bei nahezu senkrechter Einstrahlung, für die ungedämpfte Gesamtwellenfunktion $\Psi^{\text{unged.}}(\vec{r})$

$$\Psi^{\text{unged.}}(\vec{r}) = \sum_j C_0^{(j)*} \exp[i\gamma^{(j)}z] \sum_{\vec{g}} C_{\vec{g}}^{(j)} \exp[i(\vec{k} + \vec{g})\vec{r}]. \quad (2.24)$$

2.1.2 Absorption

Im vorangegangenen Abschnitt wurde die dynamische Theorie unter Annahme, dass der Kristall ein starres Gebilde ohne innere Freiheitsgrade ist, behandelt. In diesem Fall gibt es nur diskrete Streurichtungen für die eingestrahnten Elektronen, die Bragg-Reflexe. Es werden aber in einem realen Kristall innere Freiheitsgrade angeregt, so dass es zu einer unelastischen Streuung kommt, bei der die eingestrahnten Elektronen auch zwischen den Reflexen gestreut werden und einen Energieverlust erleiden. Diese Elektronen können durch einen Energiefilter ausgeblendet werden und tragen dann nicht mehr zur Bildintensität bei: Es scheint, als seien die Elektronen im Kristall absorbiert worden.

Zur mathematischen Beschreibung des Problems wurde von Molière [20] phänomenologisch ein komplexes Kristallpotential eingeführt, welches die Dämpfung der Blochwellen in Ausbreitungsrichtung erzwingt. Von Yoshioka [36] wurde die quantenmechanische Rechtfertigung aus der Störungstheorie geliefert. Durch den Imaginärteil des Kristallpotentials werden auch die Eigenwerte $\gamma^{(j)}$ komplex. Im Folgenden wird eine kurze Zusammenfassung des Eigenwertproblems behandelt. Eine detailliertere Betrachtung ist z.B. bei Weickenmeier [33] und Yoshioka [36] zu finden.

Die zeitunabhängige Schrödingergleichung für unser System lautet

$$H\Phi = E\Phi. \quad (2.25)$$

Dabei setzt sich der Hamiltonoperator zusammen aus

$$H = H_e + H_K + H', \quad (2.26)$$

mit der kinetischen Energie des eingestrahnten Elektrons

$$H_e = -\frac{\hbar^2}{2m}\Delta, \quad (2.27)$$

dem Kristall-Hamiltonoperator H_K und dem Wechselwirkungsoperator

$$H' = \frac{\hbar^2}{2m_0 a_B} \left(\sum_{j=1}^l \frac{1}{|\vec{r} - \vec{r}_j|} - \sum_{k=1}^L \frac{Z_k}{|\vec{r} - \vec{R}_k|} \right). \quad (2.28)$$

Der erste Summand in Gleichung (2.28) beschreibt die Wechselwirkung des einstrahlten Elektrons mit den Kristallelektronen am Ort \vec{r}_j und der zweite die mit den Kernen der Kernladungszahl Z_k am Ort \vec{R}_k . Dabei sind l und L die Anzahl der betrachteten Kristallelektronen bzw. der berücksichtigten Kerne im Kristall. a_B bezeichnet den Wasserstoffradius.

Die Gesamtwellenfunktion Φ wird nach den Eigenfunktionen a_n von H_K entwickelt

$$\Phi(\vec{r}, \vec{r}_1, \dots, \vec{r}_l, \vec{R}_1, \dots, \vec{R}_L) = \sum_n \varphi_n(\vec{r}) a_n(\vec{r}_1, \dots, \vec{r}_l, \vec{R}_1, \dots, \vec{R}_L), \quad (2.29)$$

wobei die Wellenfunktionen a_n durch

$$H_K a_n = \epsilon_n a_n \quad (2.30)$$

bestimmt werden. ϵ_n ist die Energie des n -ten Anregungszustandes des Kristalls. $\varphi_0(\vec{r})$ in Gleichung (2.29) beschreibt die elastisch gestreuten Elektronen und $\varphi_n(\vec{r})$ ($n \neq 0$) die inelastisch gestreuten Elektronen, bei deren Streuung der Kristall in den angeregten Zustand a_n übergeht. Ist die unelastische Wechselwirkung hinreichend schwach, so ist $\varphi_n \ll \varphi_0$. Einsetzen der Gleichung (2.29) in die Schrödingergleichung (2.25), Multiplikation mit a_m^* und Integration über alle Kristallkoordinaten ergibt, unter Ausnutzung der Orthonormiertheit,

$$\left\{ \Delta + k_m^2 - \frac{2m}{\hbar^2} H'_{mm} \right\} \varphi_m = \frac{2m}{\hbar^2} \sum_{n \neq m} H'_{mn} \varphi_n \quad ; m \neq 0 \quad (2.31)$$

und

$$\left\{ \Delta + k_0^2 - \frac{2m}{\hbar^2} H'_{00} \right\} \varphi_0 = \frac{2m}{\hbar^2} \sum_{n \neq 0} H'_{0n} \varphi_n, \quad (2.32)$$

mit

$$k_m^2 = \frac{2m}{\hbar^2} (E - \epsilon_m) \quad (2.33)$$

und

$$H'_{mn} = \langle a_m | H' | a_n \rangle. \quad (2.34)$$

Die Terme $H'_{mn} \varphi_n$ ($n \neq 0$) werden vernachlässigt, da $\varphi_n \ll \varphi_0$ vorausgesetzt wurde.

Daraus folgt

$$\{\Delta + k_m^2\} \varphi_m = \frac{2m}{\hbar^2} H'_{m0} \varphi_0 \quad ; m \neq 0. \quad (2.35)$$

Mit der Green'schen Funktion

$$G_m(\vec{r}, \vec{r}') = -\frac{1}{4\pi} \frac{\exp[i k_m |\vec{r} - \vec{r}'|]}{|\vec{r} - \vec{r}'|} \quad (2.36)$$

erhält man die Wellenfunktionen φ_m , die in Gleichung (2.32) eingesetzt wird.

Weitere Rechnungen, die z. B. in [33] detailliert dargestellt sind, führen zur erweiterten Dispersionsgleichung der dynamischen Theorie

$$\left[k_0^2 - (\vec{k} + \vec{g})^2 \right] C_{\vec{g}} + \sum_{\vec{h}} U_{\vec{g}-\vec{h}} C_{\vec{h}} = - \sum_{\vec{h}} V'_{\vec{g}\vec{h}} C_{\vec{h}}. \quad (2.37)$$

Die linke Seite der Gleichung ist analog zur Gleichung (2.7). Auf der rechten Seite wird der Einfluss der unelastischen Streuung durch die komplexen Koeffizienten

$$V'_{\vec{g}\vec{h}} = U''_{\vec{g}\vec{h}} + i U'_{\vec{g}\vec{h}} \quad (2.38)$$

eingeführt, wobei $U''_{\vec{g}\vec{h}}$ eine kleine Korrektur zu $U_{\vec{g}-\vec{h}}$ ist, welche im Folgenden vernachlässigt werden kann. Durch die Gleichung (2.38) werden auch die Eigenwerte komplex und der Imaginärteil der Eigenwerte bewirkt die Dämpfung der Wellenfunktion. Daraus ergibt sich die korrigierte Dispersionsgleichung

$$\left[k_0^2 - (\vec{k}^{(j)} + \vec{g})^2 \right] C_{\vec{g}}^{(j)} + \sum_{\vec{h}} U_{\vec{g}-\vec{h}} C_{\vec{h}}^{(j)} + i \sum_{\vec{h}} U'_{\vec{g}\vec{h}} C_{\vec{h}}^{(j)} = 0, \quad (2.39)$$

mit

$$k_0^2 + U_0 \simeq k_0^2. \quad (2.40)$$

Aus der Randbedingung des stetigen Übergangs der Wellenfunktion an der Grenzfläche folgt

$$\vec{k}^{(j)} = \vec{k} + \vec{\gamma}^{(j)} + i \vec{\mu}^{(j)} = \vec{k} + (\gamma^{(j)} + i \mu^{(j)}) \vec{e}_z \quad (2.41)$$

mit $\vec{k} = \vec{k}_0$. Mit Überlegungen von Rossouw u. a. [25] erhält man näherungsweise für die Absorptionskoeffizienten

$$\mu^{(j)} = \frac{1}{2k_z} \sum_{\vec{g}, \vec{h}} U'_{\vec{g}\vec{h}} C_{\vec{g}}^{(j)*} C_{\vec{h}}^{(j)}. \quad (2.42)$$

Daraus ergibt sich für die gedämpfte Wellenfunktion $\Psi^{\text{ged.}}(\vec{r})$ bei nahezu senkrechter Einstrahlung

$$\Psi^{\text{ged.}}(\vec{r}) = \sum_j C_0^{(j)*} \exp \left[(-\mu^{(j)} + i\gamma^{(j)})z \right] \sum_{\vec{g}} C_{\vec{g}}^{(j)} \exp \left[i(\vec{k} + \vec{g})\vec{r} \right]. \quad (2.43)$$

Bei der unelastischen Wechselwirkung der Primärelektronen mit dem Kristall setzt sich $U'_{\vec{g}\vec{h}}$ aus den drei dominierenden Prozessen zusammen; die elektronische Anregung (Ionisation von Kristallatomen durch unelastische Streuung und Anregung in nicht vollbesetzte Leitungsbänder), Plasmonenanregung und Anregung von Phononen

$$U'_{\vec{g}\vec{h}} \simeq U_{\vec{g}\vec{h}}'^{(el)} + U_{\vec{g}\vec{h}}'^{(plas)} + U_{\vec{g}\vec{h}}'^{(phon)}. \quad (2.44)$$

Die elektronische Anregung und die Plasmonenanregung bewirken überwiegend sehr kleine Streuwinkel im Vergleich zum Braggwinkel. Für die Berechnung der Potentialkoeffizienten werden sie daher ignoriert. Betrachtet man also nur die Phononenstreuung, so können die Potentialkoeffizienten $U_{\vec{g}}$ nach [33] in folgender Form geschrieben werden

$$U_{\vec{g}} = \frac{4\pi}{V_{EZ}} \sum_j f_j(\vec{g}) \exp \left[-i\vec{g}\vec{R}_j \right] \exp \left[-\frac{1}{2}\langle u_j^2 \rangle g^2 \right] \quad (2.45)$$

mit

$$f_j(\vec{g}) = \text{Atomstreuamplitude}. \quad (2.46)$$

Der Debye-Waller-Faktor $\exp \left[-\frac{1}{2}\langle u_j^2 \rangle g^2 \right]$ mit der quadratisch gemittelten Auslenkung $\langle u_j^2 \rangle$ schwächt die Potentialkoeffizienten ab.

2.2 Unelastische Streuung

Während im Kapitel 2.1 die elastische Streuung behandelt wurde, wird in diesem Kapitel der doppelt differentielle Wirkungsquerschnitt derjenigen unelastischen Streuprozesse hergeleitet, die zur Ionisation einer inneren Schale führen. Hierbei wird vorausgesetzt, dass die Dicke der Probe kleiner ist als die mittlere freie Weglänge für unelastische Prozesse, so dass es sich um eine unelastische Einfachstreuung im Kristall handelt. Der doppelt differentielle Wirkungsquerschnitt ist direkt proportional zur Zahl der Elektronen, die in ein Energieverlustintervall $d(\Delta E)$ und Raumwinkelintervall $d\Omega$ gestreut werden, und damit ein Maß für die Intensität in unelastisch energiegefilterten Beugungsbildern. Der erste Abschnitt behandelt den Ansatz für den Wirkungsquerschnitt, der im darauf folgenden Abschnitt ausgewertet wird. Eine ausführliche Darstellung ist bei Weickenmeier [33] zu finden.

2.2.1 Der Ansatz für den Wirkungsquerschnitt

Der Anfangszustand der einfallenden Elektronen ist eine ebene Welle mit dem Wellenvektor \vec{k} . Im Kristall spaltet sich diese Welle in Blochwellen auf, die in Kapitel 2.1 bestimmt wurden. Der Kristall befindet sich im Grundzustand. Im Endzustand ist ein Kristallatom ionisiert und somit das Sekundärelektron aus der inneren Schale des Kristallatoms in ein energetisches Kontinuum angeregt worden. Außerhalb des Kristalls lässt sich das Primärelektron als ebene Welle mit dem Wellenvektor \vec{k}' betrachten.

Im Folgenden wird die mathematische Beschreibung der unelastischen Streuung in atomaren Einheiten durchgeführt. Die Längen werden auf den Bohrradius

$$a_B = \frac{4\pi\epsilon_0\hbar^2}{m_0e^2} = 0,5289 \text{ \AA}$$

normiert. Die Energien werden in Einheiten von Rydberg ($1 \text{ Ryd} = 13,61 \text{ eV}$) gemessen.

In erster Ordnung zeitabhängiger Störungstheorie kann der Wirkungsquerschnitt nach Fermis „Goldener Regel“ berechnet werden

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{1}{(2\pi)^2} \sum_f \frac{k'}{k} |\langle f|V|i\rangle|^2. \quad (2.47)$$

Dabei wird über alle Endzustände summiert. Unter Vernachlässigung der Austauschwechselwirkungen zwischen Primärelektron und Kristallelektron sind die Anfangszustände $|i\rangle$ und Endzustände $|f\rangle$ Produktzustände aus Primärelektronenzustand $|P\rangle$ und Kristallwellenfunktion Ψ

$$|i\rangle = |P_{\vec{k}}, \Psi_i\rangle, \quad (2.48)$$

$$|f\rangle = |P_{\vec{k}'}, \Psi_f\rangle. \quad (2.49)$$

Wird die Kristallwellenfunktion näherungsweise durch eine Slaterdeterminante beschrieben, so kann eine Integration über alle Koordinaten der Kristallatome bis auf \vec{r} durchgeführt werden. Daraus ergibt sich der Wirkungsquerschnitt für die unelastische Streuung, mit den Einteilchenwellenfunktionen Φ_i bzw. Φ_f des Innerschalenelektrons

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{1}{(2\pi)^2} \sum_f \frac{k'}{k} |\langle P_{\vec{k}'}, \Phi_f | V | P_{\vec{k}}, \Phi_i \rangle|^2. \quad (2.50)$$

Es werden näherungsweise für diese Zustände solche von freien Atomen gewählt. In Ortsdarstellung sind die atomaren Wellenfunktionen, die sich nach Drehimpulsen quantisieren lassen, gegeben durch:

$$\Phi_i(\vec{r}_a) = \Phi_{nl}(r_a) Y_{lm}(\vec{\Omega}_a) \text{ und} \quad (2.51)$$

$$\Phi_f(\vec{r}_a) = \Phi_{\kappa l'}(r_a) Y_{l'm'}(\vec{\Omega}_a). \quad (2.52)$$

Dabei gelten folgende Bezeichnungen:

nlm : Haupt- und Drehimpulsquantenzahlen des Anfangszustandes

κ : Impuls des Sekundärelektrons im Endzustand

$l'm'$: Drehimpulsquantenzahlen des Endzustandes.

Des Weiteren gelten die Beziehungen

$$\begin{aligned}\vec{r}_a &= \vec{r} - \vec{R}_a, \\ \vec{\Omega}_a &= \frac{\vec{r}_a}{r_a},\end{aligned}$$

wobei \vec{R}_a den Ort der Kristallatome der Sorte a bezeichnet.

Außerdem wurden folgende Normierungen verwendet:

$$\langle n'l'm'|nlm\rangle = \delta_{nn'}\delta_{ll'}\delta_{mm'} \quad (2.53)$$

$$\langle \kappa'l'm'|\kappa lm\rangle = \delta\left(\frac{\kappa - \kappa'}{2\pi}\right)\delta_{ll'}\delta_{mm'}. \quad (2.54)$$

Durch Summation über $l'm'$ und anschließende Integration über $\frac{d\kappa}{2\pi}$ erhält man den Wirkungsquerschnitt für das Herausschlagen eines Elektrons, welches an einem Atom der Sorte a im Zustand nlm gebunden ist. Da die Anregung **jedes** Atoms der Sorte a einen möglichen Kristallendzustand darstellt, muss außerdem über alle Atompositionen \vec{R}_a summiert werden. Damit gilt für den Wirkungsquerschnitt

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{1}{(2\pi)^2} \sum_{\vec{R}_a} \sum_{l'm'} \int \frac{d\kappa}{2\pi} \frac{k'}{k} |\langle P_{\vec{k}'}, \kappa l' m' | V | P_{\vec{k}}, nlm \rangle|^2. \quad (2.55)$$

Nach Umformung der κ -Integration in die Integration über die Energie des Sekundärelektrons gilt für den differentiellen Wirkungsquerschnitt

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega d(\delta E)} = \frac{1}{2(2\pi)^3} \frac{k'}{\kappa k} \sum_{\vec{R}_a} \sum_{l'm'} |\langle P_{\vec{k}'}, \kappa l' m' | V | P_{\vec{k}}, nlm \rangle|^2. \quad (2.56)$$

Im Abschnitt 2.2.2 wird die Auswertung der Wirkungsquerschnitte kurz dargestellt. Eine ausführliche Betrachtung ist in [33] zu finden.

2.2.2 Auswertung des Wirkungsquerschnittes

Zur Auswertung des Wirkungsquerschnittes (2.56) wird zuerst das Matrixelement

$$\langle P_{\vec{k}', \kappa l' m'} | V | P_{\vec{k}, n l m} \rangle$$

betrachtet. Dazu müssen die Wellenfunktionen $P_{\vec{k}}(\vec{r}')$ bzw. $P_{\vec{k}'}(\vec{r}')$ für den Anfangs- bzw. Endzustand des Primärelektrons im gesamten Raum angegeben werden, der in 3 Gebiete aufgeteilt ist. Die Abbildung 2.1 zeigt schematisch die 3 Gebiete mit den Wellenfunktionen im Anfangs- bzw. Endzustand. Diese sind: Gebiet I oberhalb des Kristalls ($z < 0$), Gebiet II in dem Kristall der Dicke d ($0 \leq z \leq d$) und das Gebiet III unterhalb des Kristalls ($z > d$). Im Anfangszustand beschreibt $P_{\vec{k}}(\vec{r}')$ im Gebiet I eine ebene Welle mit dem Wellenvektor \vec{k} , die im Gebiet II in ein Blochwellenfeld aufgespalten wird und der Dämpfung (Absorptionseffekt) unterliegt. Aus Stetigkeitsgründen muss die Periodizität des Blochwellenfeldes in Gebiet III erhalten bleiben, jedoch unterliegt das Wellenfeld nicht mehr der absorptionsbedingten Dämpfung.

Der Endzustand $P_{\vec{k}'}(\vec{r}')$ ist im Gebiet III als ebene Welle festgelegt. Dazu gehört im Gebiet II ein entsprechendes Blochwellenfeld mit Dämpfung und im Gebiet I, aus Stetigkeitsgründen, ein ungedämpftes Blochwellenfeld. Die Wellenfunktionen sind in den 3 Gebieten wie folgt definiert:

Anfangszustand:

$$\begin{aligned} P_{\vec{k}}^I(\vec{r}') &= \exp[i \vec{k} \vec{r}'] \\ P_{\vec{k}}^{II}(\vec{r}') &= \exp[i \vec{k} \vec{r}'] \sum_{\vec{g}j} C_0^{(j)*} C_{\vec{g}}^{(j)} \exp[(i \vec{\gamma}^{(j)} + i \vec{g} - \vec{\mu}^{(j)}) \vec{r}'] \\ P_{\vec{k}}^{III}(\vec{r}') &= \exp[i \vec{k} \vec{r}'] \sum_{\vec{g}j} C_0^{(j)*} C_{\vec{g}}^{(j)} \exp[(i \vec{\gamma}^{(j)} - \mu^{(j)}) d] \exp[i \vec{g} \vec{r}'] \end{aligned} \quad (2.57)$$

Endzustand:

$$P_{\vec{k}'}^I(\vec{r}') = \exp[i \vec{k}' \vec{r}'] \sum_{\vec{g}'j'} C_0'^{(j')*} C_{\vec{g}'}'^{(j')} \exp[-(i \gamma'^{(j')} - \mu'^{(j')}) d] \exp[i \vec{g}' \vec{r}'] \quad (2.58)$$

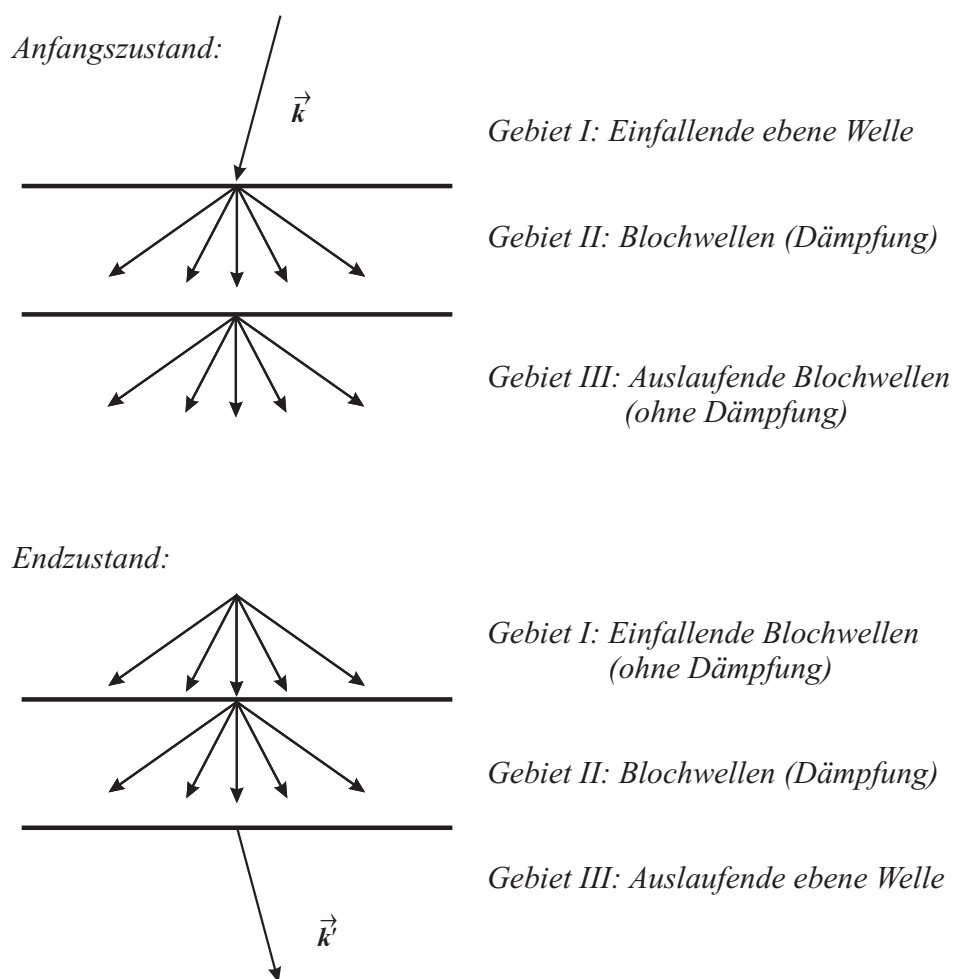


Abbildung 2.1: Schematische Darstellung des Anfangs- und Endzustandes des Primärelektrons nach [33].

$$\begin{aligned}
P_{\vec{k}'}^{II}(\vec{r}') &= \exp[i \vec{k}' \vec{r}'] \sum_{\vec{g}' j'} C_0'^{(j')*} C_{\vec{g}'}'^{(j')} \exp[-(i \gamma'^{(j')} - \mu'^{(j')})d] \\
&\quad \exp[(i \vec{\gamma}'^{(j')} + i \vec{g}' - \vec{\mu}'^{(j')}) \vec{r}'] \\
P_{\vec{k}'}^{III}(\vec{r}') &= \exp[i \vec{k}' \vec{r}'].
\end{aligned}$$

Es wird über jedes einzelne Gebiet integriert und das Matrixelement setzt sich aus der Summe dieser Integrale zusammen

$$\begin{aligned}
\langle P_{\vec{k}'}^{\kappa l' m'} | V | P_{\vec{k}}^{n l m} \rangle &= \int d^3 \vec{r} \Phi_{\kappa l'}^*(r_a) Y_{l' m'}^*(\vec{\Omega}_a) \Phi_{nl}(r_a) Y_{lm}(\vec{\Omega}_a) \quad (2.59) \\
&\times \left\{ \int_I d^3 \vec{r}' P_{\vec{k}'}^{I*}(\vec{r}') P_{\vec{k}}^I(\vec{r}') \frac{1}{|\vec{r} - \vec{r}'|} \right. \\
&\quad + \int_{II} d^3 \vec{r}' P_{\vec{k}'}^{II*}(\vec{r}') P_{\vec{k}}^{II}(\vec{r}') \frac{1}{|\vec{r} - \vec{r}'|} \\
&\quad \left. + \int_{III} d^3 \vec{r}' P_{\vec{k}'}^{III*}(\vec{r}') P_{\vec{k}}^{III}(\vec{r}') \frac{1}{|\vec{r} - \vec{r}'|} \right\}.
\end{aligned}$$

Diese Integrale sind bei Weickenmeier ausgewertet und zusammengefasst worden. Daraus ergibt sich das Matrixelement wie folgt:

$$\begin{aligned}
\langle P_{\vec{k}'}^{\kappa l' m'} | V | P_{\vec{k}}^{n l m} \rangle &= 4\pi \sum_{\vec{g} j} \sum_{\vec{g}' j'} \epsilon^{(j)} \epsilon'^{(j')*} C_{\vec{g}}^{(j)} C_{\vec{g}'}'^{(j')*} \frac{1}{Q^2} \quad (2.60) \\
&\int d^3 \vec{r} \Phi_{\kappa l'}^*(r_a) Y_{l' m'}^*(\vec{\Omega}_a) \Phi_{nl}(r_a) Y_{lm}(\vec{\Omega}_a) \exp[(i \vec{Q} - \vec{\mu}) \vec{r}].
\end{aligned}$$

Hier wurden die Abkürzungen

$$\begin{aligned}
\vec{Q} &= \vec{k} - \vec{k}' + \vec{g} - \vec{g}' + \vec{\gamma}^{(j)} - \vec{\gamma}'^{(j')}, \\
\vec{\mu} &= \vec{\mu}^{(j)} + \vec{\mu}'^{(j')}
\end{aligned}$$

und die aus der dynamische Theorie bekannten Größen

$$\begin{aligned}
\epsilon^{(j)} &= C_0^{(j)*}, \\
\epsilon'^{(j')} &= C_0'^{(j')*} \exp[-(i \gamma'^{(j')} - \mu'^{(j')})d]
\end{aligned}$$

verwendet.

Zur Auswertung des Integrals wird die Exponentialfunktion im Integranden nach Kugelflächenfunktionen entwickelt (siehe auch Landau-Lifshitz [18]):

$$\exp[i\vec{Q}\vec{r}] = 4\pi \sum_{l_1 m_1} i^{l_1} j_{l_1}(Qr) Y_{l_1 m_1}^* \left(\frac{\vec{Q}}{Q} \right) Y_{l_1 m_1}(\vec{\Omega}). \quad (2.61)$$

Dabei bezeichnen die $j_l(Qr)$ die sphärische Besselfunktion der Ordnung l . Mit der Definition

$$W_{nl, \kappa l'}^{l_1}(Q) = \frac{1}{Q^2} \int dr r^2 j_{l_1}(Qr) \Phi_{\kappa l'}^*(r) \Phi_{nl}(r) \quad (2.62)$$

erhält man für das Matrixelement

$$\begin{aligned} \langle P_{\vec{k}'}, \kappa l' m' | V | P_{\vec{k}}, n l m \rangle &= (4\pi)^2 \sum_{\vec{g} j} \sum_{\vec{g}' j'} \epsilon^{(j)} \epsilon'^{(j')*} C_{\vec{g}}^{(j)} C_{\vec{g}'}'^{(j')*} \exp[(i\vec{Q} - \vec{\mu})\vec{R}_a] \\ &\times \sum_{l_1 m_1} i^{l_1} Y_{l_1 m_1}^* \left(\frac{\vec{Q}}{Q} \right) W_{nl, \kappa l'}^{l_1}(Q) \\ &\times \int d^2\vec{\Omega} Y_{l' m'}^*(\vec{\Omega}) Y_{lm}(\vec{\Omega}) Y_{l_1 m_1}(\vec{\Omega}). \end{aligned} \quad (2.63)$$

Das Integral in Gleichung (2.63) ist durch

$$\begin{aligned} \int d^2\vec{\Omega} Y_{l' m'}^*(\vec{\Omega}) Y_{lm}(\vec{\Omega}) Y_{l_1 m_1}(\vec{\Omega}) &= (-1)^m i^{(l+l_1-l')} \sqrt{\frac{(2l+1)(2l_1+1)(2l'+1)}{4\pi}} \\ &\times \begin{pmatrix} l' & l & l_1 \\ -m' & m & m_1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} l' & l & l_1 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \end{aligned} \quad (2.64)$$

gegeben, wobei (:::) als WIGNERSche $3j$ -Symbole bezeichnet werden [18]. Für den Wirkungsquerschnitt muss nun noch das Absolutquadrat des Matrixelementes gebildet werden. Da die Magnetquantenzahl m des Anfangszustandes des Kristallatoms keine Messgröße ist, muss über die $2l+1$ Möglichkeiten gemittelt werden. Anschließend ist mit der Besetzungszahl N_{lm} zu multiplizieren. Als doppelt differentiellen Wirkungsquerschnitt hat man nun

$$\begin{aligned} \frac{d^2\sigma}{d\Omega d(\Delta E)} &= \frac{N_{lm} k'}{(2\pi)^2 \kappa k} \sum_{\vec{R}_a} \sum_{l'} \sum_{l_1 m_1} (2l'+1) \begin{pmatrix} l' & l & l_1 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}^2 \\ &\times \left| \sum_{\vec{g} j} \sum_{\vec{g}' j'} \epsilon^{(j)} \epsilon'^{(j')*} C_{\vec{g}}^{(j)} C_{\vec{g}'}'^{(j')*} \exp[(i\vec{Q} - \vec{\mu})\vec{R}_a] W_{nl, \kappa l'}^{(l_1)}(Q) Y_{l_1 m_1}^* \left(\frac{\vec{Q}}{Q} \right) \right|^2. \end{aligned} \quad (2.65)$$

Durch die Summation über \vec{R}_a werden alle Atome der Sorte a berücksichtigt. Zur Vereinfachung nutzt man die Periodizität des Kristalls aus. Der Vektor \vec{R}_a wird dazu in den Gittervektor \vec{R} und den Ortsvektor \vec{r}_a zerlegt. Mit der Gitterperiode c in z -Richtung und der Anzahl der im Kristall befindlichen Elementarzellen N_{EZ} ergibt sich der allgemeine Ausdruck für den differentiellen Wirkungsquerschnitt

$$\begin{aligned} \frac{d^2\sigma}{d\Omega d(\Delta E)} &= \frac{N_{lm}k'}{(2\pi)^2\kappa k} \frac{N_{EZ}c}{d} \sum_{p\vec{r}_a} \sum_{l'} \sum_{l_1 m_1} (2l' + 1) \begin{pmatrix} l' & l & l_1 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}^2 \quad (2.66) \\ &\times \left| \sum_{\vec{g}j} \sum_{\vec{g}'j'} \epsilon^{(j)} \epsilon'^{(j')*} C_{\vec{g}}^{(j)} C_{\vec{g}'}'^{(j')*} \exp[(i\vec{Q} - \vec{\mu})\vec{r}_a] \right. \\ &\times \left. \exp[(i(\gamma^{(j)} - \gamma'^{(j')}) - \mu)pc] W_{nl,\kappa l'}^{(l_1)}(Q) Y_{l_1 m_1}^* \left(\frac{\vec{Q}}{Q} \right) \right|^2. \end{aligned}$$

Hier wird die Berechnung des Matrixelementes $W_{nl,\kappa l'}^{l_1}$ nicht näher betrachtet. Dazu wird auf [33] verwiesen, aus der das Programmpaket *MATRIX.FOR* hervorgeht und unverändert übernommen wurde. Zur Berechnung der energiegefilterten Beugungsdiagramme muss für alle interessierenden Streuwinkel Ω der doppelt differentielle Wirkungsquerschnitt aus Gleichung (2.66) bei einem festen Energieverlust ΔE berechnet werden.

In Kapitel 5 werden die Rechnungen für Galliumarsenid durchgeführt und mit dem Experiment verglichen.

Kapitel 3

Experimentelle Grundlagen

Im folgenden Kapitel werden die experimentellen Grundlagen dargestellt. Der erste Abschnitt befasst sich mit der verwendeten Probe Galliumarsenid. Hier wird vor allem auf die Kristallographie bzw. auf die Symmetrieeigenschaften eingegangen, die für die Simulationen eine besonders wichtige Rolle spielen. Als nächstes folgt eine kurze Beschreibung der Probenpräparation, da für qualitativ gute Messungen die Qualität der Proben, und somit die Probenpräparation, von großer Bedeutung sind. Die verwendeten Geräte, *Zeiss EM 902* und *Zeiss Libra 200FE*, und die experimentellen Parameter sind Gegenstand des dritten Unterkapitels (Abschnitt 3.3).

3.1 Die Probe

Für die Untersuchungen in dieser Arbeit wurde ein Galliumarsenideinkristall verwendet, der eine Zinkblendestruktur mit der Gitterkonstanten $a = 5,6537 \text{ \AA}$ aufweist, die zur Raumgruppe *No. 216* ($T_d^2-F\bar{4}3m$) [35] gehört. Der Kristall setzt sich aus 2 kubisch flächenzentrierten Untergittern zusammen, die jeweils um $(\frac{1}{4}, \frac{1}{4}, \frac{1}{4})$ zueinander verschoben sind. Die relativen Atompositionen der Gallium- bzw. der Arsen-Atome sind in Tabelle 3.1 aufgelistet.

Mit einer Translation entlang des Basisvektors und mit Symmetrieeoperationen der Raumgruppe $F\bar{4}3m$ lassen sich diese Atompositionen, aus den beiden absoluten Atompositionen von Gallium und Arsen, konstruieren. Durch die Raumgruppe ist

Ga	(4a)	0, 0, 0;	$\frac{1}{2}, \frac{1}{2}, 0$;	$\frac{1}{2}, 0, \frac{1}{2}$	0, $\frac{1}{2}, \frac{1}{2}$
As	(4c)	$\frac{1}{4}, \frac{1}{4}, \frac{1}{4}$;	$\frac{3}{4}, \frac{3}{4}, \frac{1}{4}$;	$\frac{3}{4}, \frac{1}{4}, \frac{3}{4}$	$\frac{1}{4}, \frac{3}{4}, \frac{3}{4}$

Tabelle 3.1: Relative Atompositionen für Galliumarsenid in der Raumgruppe $F\bar{4}3m$ und Wyckoff-Bezeichnung.

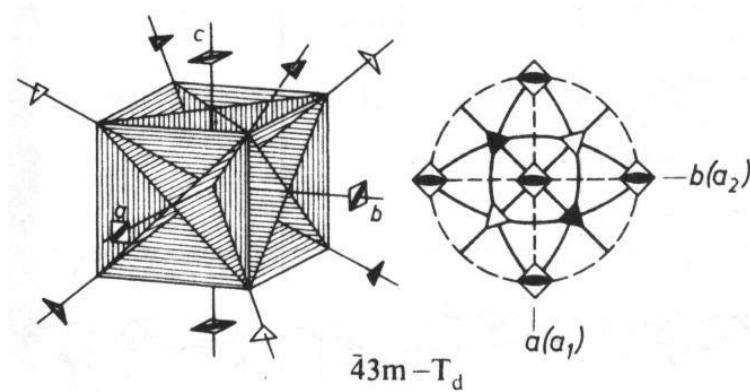


Abbildung 3.1: Symmetriegerüst und Stereogramm der kubischen Punktgruppe $\bar{4}3m$ [2].

die Symmetrie des Kristalls vollständig beschrieben.

Bei der untersuchten Raumgruppe handelt es sich um eine flächenzentrierte Struktur (F), die 4-zählige Drehinversionsachsen ($\bar{4}$), 3-zählige Drehachsen (3) und 2-zählige Drehinversionsachsen (m) beinhaltet. Zur Verdeutlichung ist in Abbildung 3.1 das Symmetriegerüst und das Stereogramm der Punktgruppe $\bar{4}3m$ dargestellt. Weitere Informationen zur Kristallographie sind z.B. bei Borchardt-Ott [2] zu finden.

Abbildung 3.2 zeigt die Kristallstruktur von Galliumarsenid in einer allgemeinen Orientierungen und in zwei Projektionen. Für die Orientierung entlang der $\langle 100 \rangle$ -Zonenachse erkennt man schnell eine 4-zählige Symmetrie mit Spiegelachsen. Die Orientierung entlang der $\langle 110 \rangle$ -Zonenachse hat dahingegen nur eine Spiegelachse. Diese Symmetrien spiegeln sich direkt in den Beugungsdiagrammen wieder. Zur Rechenzeitenreduktion werden diese Symmetrien ausgenutzt, indem nur Teilstücke

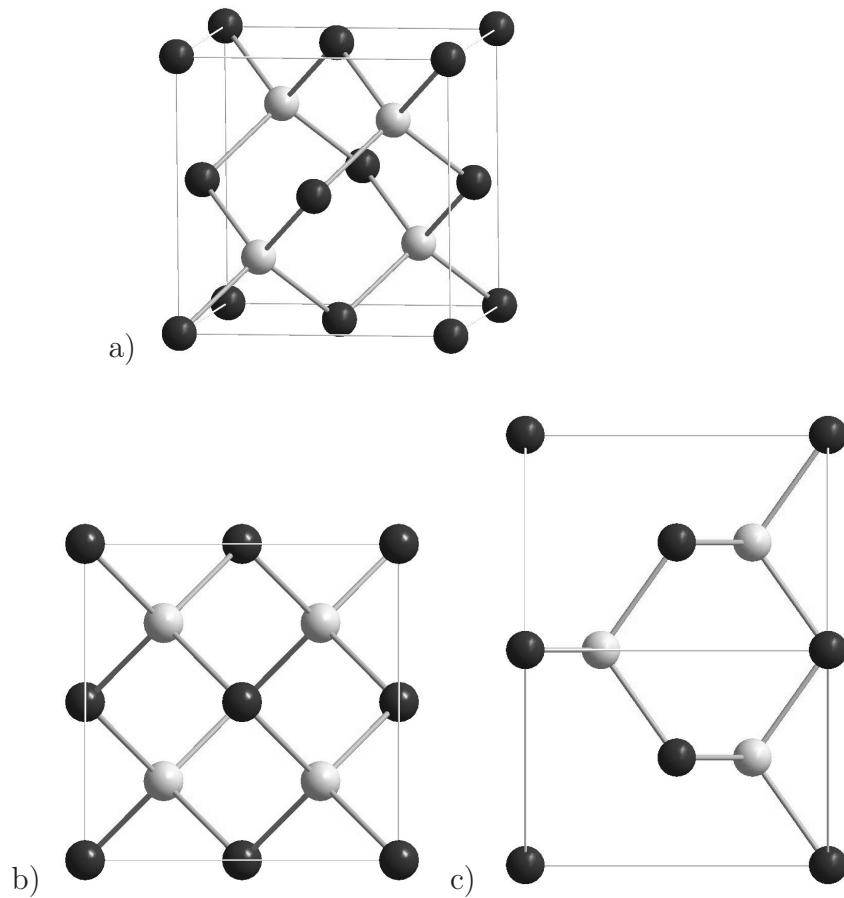


Abbildung 3.2: Galliumarsenideinheitszelle in 3 verschiedenen Orientierungen: a) in einer allgemeinen Orientierung, b) entlang der $\langle 100 \rangle$ -Zonenachse und c) entlang der $\langle 110 \rangle$ -Zonenachse.

der ESD berechnet werden und das Diagramm mit Hilfe dieser Symmetrieeoperationen rekonstruiert wird.

Aus den 'International tables for X-ray crystallography' [13] kann entnommen werden, welche Reflexe für die Raumgruppe *No. 216* erlaubt sind. Für die Miller'schen Indizes h , k , l ergeben sich folgende Bedingungen für die erlaubten Reflexe:

$$hkl : h + k, k + l, (l + h) = 2n$$

$$hhl : (h + l = 2n)$$

zyklisch

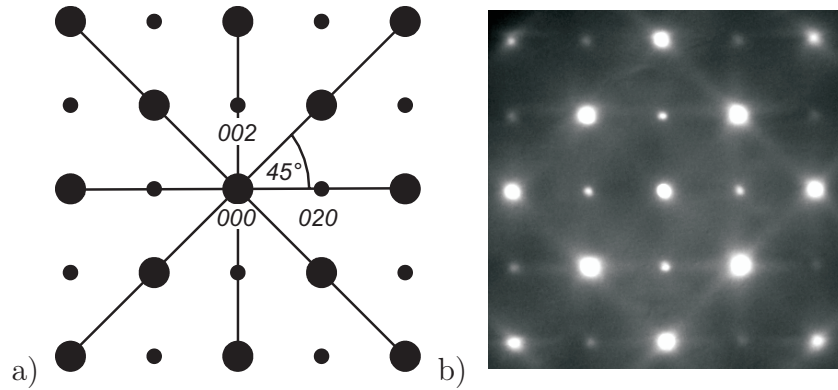


Abbildung 3.3: Beugungsdiagramme von GaAs in $\langle 100 \rangle$ -Orientierung: a) Skizze und b) Experiment.

Die Intensität der Beugungsreflexe ist proportional zum Quadrat des Betrages der Strukturamplitude. Für Galliumarsenid sieht der Strukturfaktor wie folgt aus [34]:

$$F = \frac{\{f_{Ga} + f_{As}e^{\frac{\pi}{2}i(h+k+l)}\}}{\{1 + e^{\frac{\pi}{2}i(h+k)} + e^{\frac{\pi}{2}i(h+l)} + e^{\frac{\pi}{2}i(k+l)}\}} \quad (3.1)$$

mit der Atomstreuamplitude f_{Ga} und f_{As} für Gallium bzw. für Arsen.

Daraus folgen die vier Fälle:

$$\begin{aligned} F &= 0 & h, k, l \text{ gemischt} \\ F &= 4(f_{Ga} \pm i f_{As}) & h, k, l \text{ alle ungerade} \\ F &= 4(f_{Ga} - f_{As}) & h, k, l \text{ alle gerade und } h+k+l = 2N \text{ mit } N \text{ ungerade} \\ F &= 4(f_{Ga} + f_{As}) & h, k, l \text{ alle gerade und } h+k+l = 2N \text{ mit } N \text{ gerade.} \end{aligned}$$

Das entsprechende Beugungsdiagramm zur $\langle 100 \rangle$ -Zonenachsenorientierung ist in Abbildung 3.3a) schematisch dargestellt. Das experimentelle Diagramm in Abbildung 3.3b) wurde am Zeiss EM 902 bei einer Beschleunigungsspannung von 80 kV

aufgenommen. Für diese Orientierung treten nur die Reflexe $0kl$ auf, mit geradem k und l . Die Größe der Beugungspunkte in der Skizze deuten die Intensität der Reflexe an.

Für die intensitätsstarken Reflexe setzt sich der Strukturfaktor aus der Summe und für die schwachen Reflexe aus der Differenz der atomaren Streufaktoren zusammen. Durch Berechnung eines 45° -Keils kann das gesamte Beugungsbild, durch Rotation und Spiegelung, rekonstruiert werden. Dadurch verkürzt sich die Rechenzeit auf ca. $1/8$. In Kapitel 4.1 wird ein Vergleich zwischen den $\langle 100 \rangle$ - und $\langle 110 \rangle$ -Orientierungen bezüglich der Rechenzeit durchgeführt und die Rechenzeitreduktion genauer diskutiert.

In Abbildung 3.4 ist ein typisches Elektronen-Energieverlustspektrum (EELS) von Galliumarsenid zu sehen. Daraus erkennt man, dass zur Aufnahme von energieverlustspezifischen Beugungsdiagrammen die $L_{2,3}$ -Ionisationskanten von Gallium und Arsen geeignet sind. Die Ionisationsenergien der verzögerten Kanten liegen für Gallium bei 1115 eV und für Arsen bei 1323 eV [1]. Die $M_{4,5}$ -Ionisationskante von Arsen liegt bei 41 eV und damit noch im „Low-Loss“-Bereich. Dieser erstreckt sich hinter dem „Zero-Loss“-Peak bis ca. 50 eV und ist vor allem von Plasmonen und Interbandanregungen geprägt, so dass diese Kante zur Aufnahme von energieverlustspezifischen Beugungsdiagrammen ungeeignet ist.

In den Berechnungen der ESD geht unter anderem auch der Debye-Waller-Faktor ein (vgl. Gleichung 2.45), der eine nicht zu vernachlässigende Auswirkung auf die Berechnung der Diagramme hat. Unseren Simulationen liegen die mittleren quadratischen thermischen Auslenkungen für Gallium $\langle u^2 \rangle = 0,0079 \text{ \AA}^2$ sowie für Arsen $\langle u^2 \rangle = 0,0062 \text{ \AA}^2$ [27] zu Grunde. Die Auswirkung des Debye-Waller-Faktors auf die Beugungsdiagramme ist in den Abbildungen 3.5 bis 3.8 zu sehen. Hier ist ein Vergleich der simulierten ESD mit unterschiedlichen Debye-Waller-Faktoren am Beispiel der Arsen $L_{2,3}$ -Ionisationskante dargestellt. Abbildung 3.5a) wurde mit den oben aufgeführten mittleren quadratischen Auslenkungen berechnet, für die Berechnung der ESD in Abbildung 3.5b) wurde sowohl für Gallium als auch für Arsen eine mittlere quadratische thermische Auslenkung von $\langle u_{Ga,As}^2 \rangle = 0,01 \text{ \AA}^2$ angenommen.

Als weitere Simulationsparameter waren vorausgesetzt: 80 kV Beschleunigungsspan-

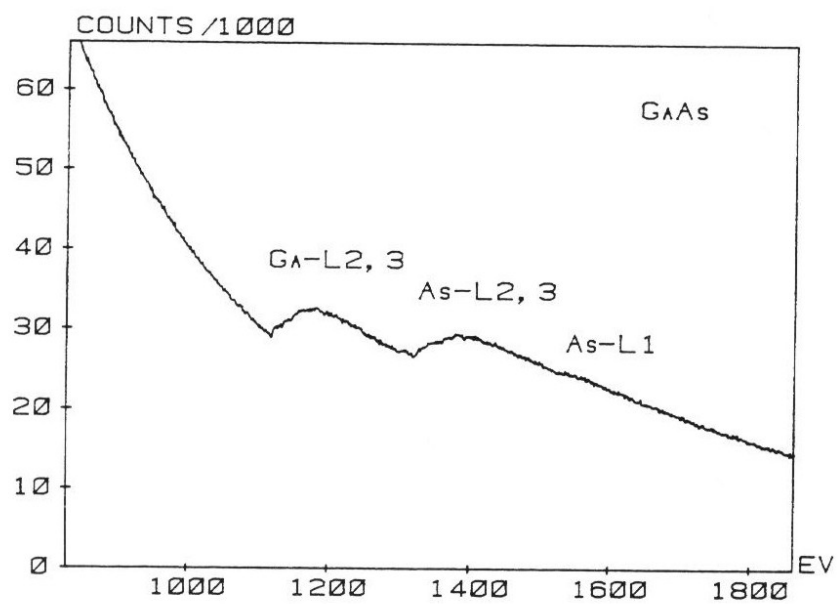
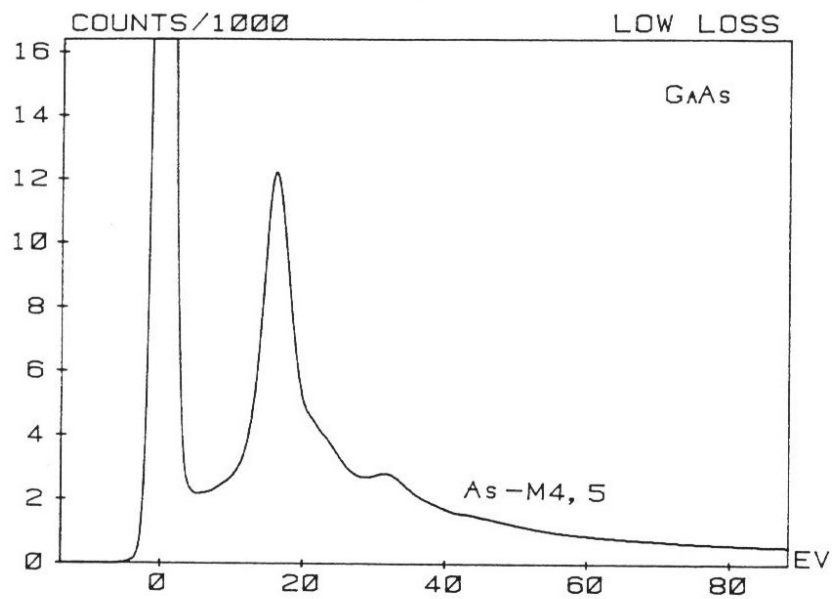


Abbildung 3.4: Typisches EEL-Spektrum von Galliumarsenid aus [1]. Das obere Spektrum zeigt den „Low-Loss“-Bereich mit der $M_{4,5}$ -Kante von Arsen. Im unteren Spektrum ist der Energieverlustbereich der L-Ionisationskanten von Gallium und Arsen dargestellt.

nung, $\langle 100 \rangle$ -Orientierung, 1410 eV Energieverlust bei einer Energiefensterbreite von 30 eV und 100 nm Kristalldicke. Beim Vergleich dieser Diagramme sind deutliche Unterschiede im kleinen bis mittleren Streuwinkelbereich zu erkennen. Das Quotientensignal und ein Linescan hierdurch (Abbildung 3.6) verdeutlichen den Unterschied beider Diagramme nicht nur bei kleinen Streuwinkeln. Die Unterschiede in den Intensitäten betragen bis zu $\pm 50\%$.

Zum Vergleich zeigt Abbildung 3.7 die Beugungsdiagramme, die für einen Energieverlust von 1190 eV (Gallium $L_{2,3}$ -Ionisationskante) simuliert worden sind. Alle weiteren Parameter wurden nicht verändert. Hier sind die Variationen in den Beugungsdiagrammen nicht so deutlich zu erkennen, das Quotientendiagramm und der Linescan hierdurch zeigen jedoch wieder deutliche Unterschiede mit Schwankungen in den Intensitäten bis zu 75% (Abbildung 3.8).

Auffallend ist, dass für das Arsen-Signal die Intensität des Quotientendiagramms (Abbildung 3.6) häufiger wechselt als bei dem Galliumquotientendiagramm (Abbildung 3.8). An den Positionen der $\{020\}$ -Reflexe eines elastischen Beugungsdiagramms (vgl. Abbildung 3.3) ist im Galliumquotientendiagramm nur ein Intensitätsmaximum zu erkennen, während bei Arsen ein Intensitätsmaximum umrandet von einem Minimum zu beobachten ist. An den Positionen der $\{040\}$ - und $\{022\}$ -Reflexe ist eine Kontrastumkehr zwischen den beiden Quotientendiagrammen zu erkennen.

Die Auswirkung des Debye-Waller-Faktors auf die Beugungsdiagramme soll hier aber nicht näher betrachtet werden. Es sollte nur gezeigt werden, wie wichtig eine genaue Kenntniss dieses Faktors für die Simulation ist.

3.2 Probenpräparation

Für unsere Untersuchungen war es notwendig, Probenstellen herzustellen, die einkristallin und planparallel sind, also keinen Dickengradienten aufweisen. Zusätzlich sollte eine hochsymmetrische Orientierung gewählt werden, um die Rechenzeit der

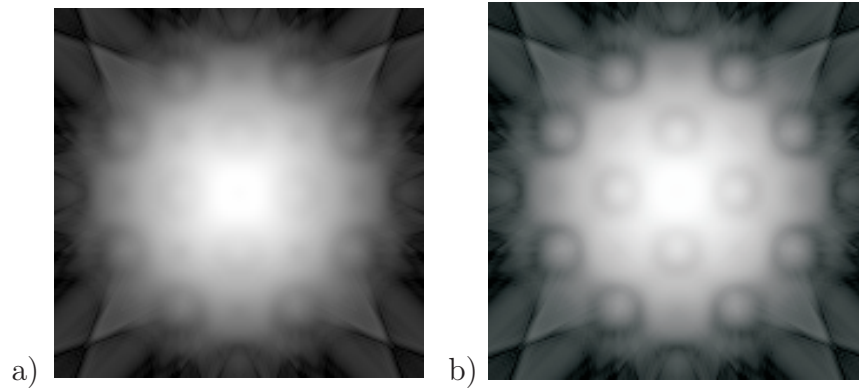


Abbildung 3.5: Simulierte Beugungsdiagramme von Galliumarsenid in der $\langle 100 \rangle$ -Orientierung bei einem Energieverlust von 1410 eV , einer Kristalldicke von 100 nm und einer Beschleunigungsspannung von 80 kV . a) $\langle u_{Ga}^2 \rangle = 0,0079 \text{ \AA}^2$ und $\langle u_{As}^2 \rangle = 0,0062 \text{ \AA}^2$, b) $\langle u_{Ga,As}^2 \rangle = 0,01 \text{ \AA}^2$.

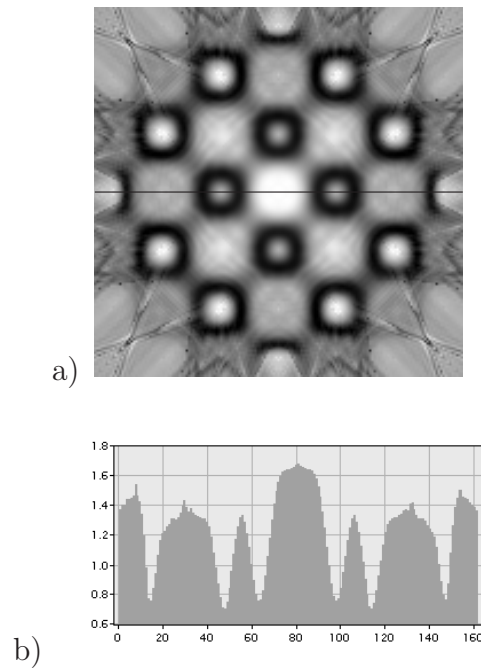


Abbildung 3.6: a) Quotientendiagramm aus den Abbildungen 3.5 a) und 3.5 b), b) Linescan durch a). Die schwarze Linie in a) repräsentiert den Linescan.

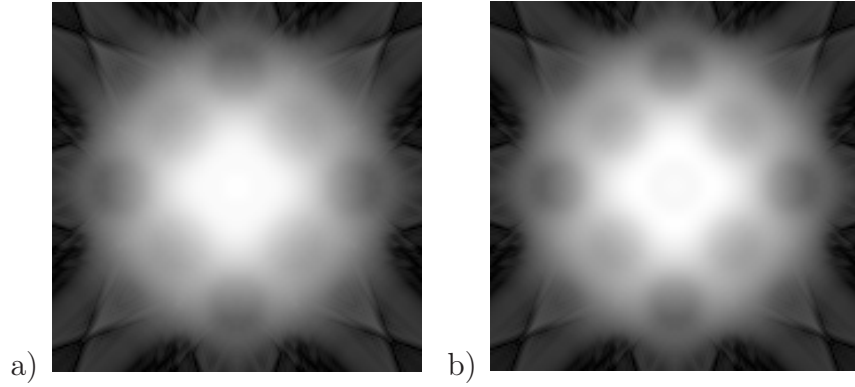


Abbildung 3.7: Simulierte Beugungsdiagramme von Galliumarsenid in der $\langle 100 \rangle$ -Orientierung bei einem Energieverlust von 1190 eV , einer Kristalldicke von 100 nm und einer Beschleunigungsspannung von 80 kV . a) $\langle u_{Ga}^2 \rangle = 0,0079 \text{ \AA}^2$ und $\langle u_{As}^2 \rangle = 0,0062 \text{ \AA}^2$, b) $\langle u_{Ga,As}^2 \rangle = 0,01 \text{ \AA}^2$.

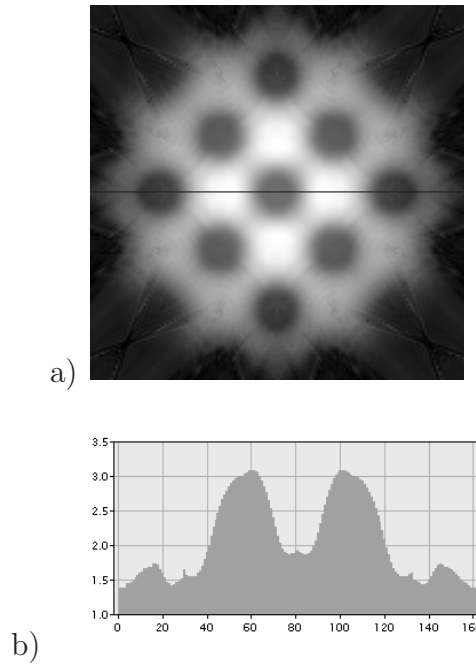


Abbildung 3.8: a) Quotientendiagramm aus den Abbildungen 3.7 a) und 3.7 b), b) Linescan durch a). Die schwarze Linie in a) repräsentiert den Linescan.

entsprechenden Simulationen zu reduzieren (vgl. Kapitel 4.1).

In dieser Arbeit wurde ein Galliumarsenid-Wafer verwendet, der parallel zur [100]-Zonenachse geschnitten war. Bruchstücke wurden mit Sekundenkleber auf einen Objektträger geklebt. Anschließend wurden Dünnschliffe von ca. $20\text{ }\mu\text{m}$ Dicke angefertigt. Da Galliumarsenid sehr spröde ist, wurden im nächsten Präparationsschritt zuerst die Kupfernetzchen (Mesh 50 bzw. Mesh 100) mit dem Kleber *M-Bond 610* auf die Proben geklebt. Die Proben waren teils größer als die Netzchen, so dass mehrere Netzchen auf eine Probe geklebt wurden. Nach Aushärten des Klebers wurden die Proben in Aceton vom Objektträger abgelöst. Als nächstes mussten die Netzchen, voneinander getrennt bzw. die überstehenden Proben abgeschnitten werden. Zur weiteren Dünnung wurden die Proben in einer Ionendünnungsanlage (*DuoMill 600* der Firma *Gatan GmbH*) $4\text{ h} - 6\text{ h}$ bei einem Kippwinkel von $10^\circ - 12^\circ$ und eingeschalteter Rotation beidseitig gedünnt. Die Hochspannung zur Beschleunigung der Argon-Ionen betrug 5 kV . Um die bei der Dünnung entstandene amorphe Schicht an der Oberfläche möglichst stark abzutragen, wurden die Proben im Anschluss für eine halbe Stunde bei einer Spannung von $2,5\text{ kV}$ nachgedünnt. Auf diese Weise konnten Proben mit Kristalldicken zwischen 50 nm und 150 nm hergestellt werden, wie sie für unsere Untersuchungen geeignet waren.

Die Anforderung an die Kristalldicke ist von der Beschleunigungsspannung des TEMs abhängig. Die Proben müssen eine Mindestdicke aufweisen, damit sich im unelastisch gefilterten Beugungsdiagramm Kikuchilinien und Kikuchibänder ausbilden können. Sie sollten aber dünner als die mittlere inelastische freie Weglänge sein, da bei den Simulationen von inelastischer Einfachstreuung ausgegangen wird. Das bedeutet, je höher die Beschleunigungsspannung ist, desto dicker muss die Probe sein.

Abhängig von dem Winkel, unter dem die Proben gedünnt wurden, weisen die Proben einen Dickengradienten auf. Da die ESD dickenabhängig sind, beeinflusst dieser die Messungen. Durch Auswahl eines kleinen beleuchteten Probenbereichs im TEM haben wir Dickenvariationen von $\leq \pm 10\text{ nm}$ in unseren Experimenten erzielen können.¹

¹Genauere Betrachtungen zur Kristalldicke sind in Kapitel 5.1 zu finden.

Zur Herstellung von Proben mit geringen Dickegradienten kann auch eine FIB eingesetzt werden. Dabei sollte aber über die Problematik nachgedacht werden, inwieweit sich z.B. die Galliumionen des Galliumionenstrahls der FIB in ein Galliumarsenideinkristall bei der Präparation einlagern.

3.3 Verwendete Geräte und experimentelle Parameter

Ein Transmissionselektronenmikroskop mit einem Energiefilter erlaubt es, energieverlustspezifische Beugungsdiagramme aufzunehmen. Zur Aufzeichnung dieser Diagramme dienen z.B. Fotoplatten, Imaging Plates und CCD-Kameras. Für die Messungen in dieser Arbeit standen zwei Transmissionselektronenmikroskope mit eingebautem Energiefilter zur Verfügung.

- Das *Zeiss EM 902* mit einer Beschleunigungsspannung von 80 kV und einem Castaing-Henry Filter. Zur Aufzeichnung der ESD dienten Fotoplatten und eine *MegaView III* Kamera der Firma *Soft Imaging System*. Die *MegaView III* ist eine 'side-mounted' TEM CCD-Kamera mit einer maximalen Auflösung von 1376×1032 Pixel und einer Pixelgröße von $6,45\text{ }\mu\text{m} \times 6,45\text{ }\mu\text{m}$.
- Das *Zeiss Libra 200FE* mit einer Beschleunigungsspannung von 200 kV , einem Omega-Filter und einer *UltraScan4000* Kamera der Firma *Gatan*. Die *UltraScan4000* ist eine TEM 'bottom port' CCD-Kamera mit einer maximalen Auflösung von 4080×4080 Pixel und einer Pixelgröße von $15\text{ }\mu\text{m} \times 15\text{ }\mu\text{m}$.

Zu einer quantitativen Auswertung der energieverlustspezifischen Beugungsdiagramme reicht es nicht aus, die Diagramme auf Fotoplatten aufzunehmen, da diese kein lineares Übertragungssystem sind und eine anschließende Untergrundkorrektur der gemessenen Intensitäten nicht vorgenommen werden kann. Das so aufgezeichnete Diagramm enthält das elementspezifische Signal der Innerschalenionisation, welches von den vorangegangenen Ionisationskanten sowie den inelastischen Mehrfachstreuverlusten überlagert ist. Abbildung 3.9 zeigt ein solches experimentelles Diagramm.

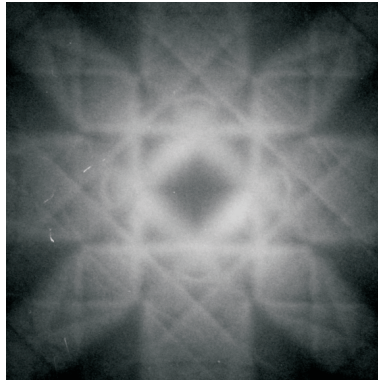


Abbildung 3.9: Experimentelles Beugungsdiagramm von GaAs in $\langle 100 \rangle$ -Orientierung bei einem Energieverlust von 1400 eV , einer Energiefensterbreite von 20 eV , einer Kristalldicke von ca. 110 nm und einer Beschleunigungsspannung von 80 kV .

Es wurde mit dem *EM 902* bei einer Beschleunigungsspannung von 80 kV auf einem *Kodak SO-163* Negativfilm aufgenommen. Die Energiefensterbreite betrug 20 eV , die Kristalldicke ca. 110 nm , die Belichtungszeit 300 s und der Energieverlust lag bei 1400 eV , also etwas oberhalb der $L_{2,3}$ -Ionisationskante von Arsen ($L_{2,3}$ -Ionisationsenergie: 1323 eV). Das entwickelte Negativ wurde anschließend eingescannt und kontrastoptimiert, da trotz der relativ langen Belichtungszeit die Kontraste sehr schwach waren. Im ESD sind deutlich die 4-zählige Symmetrie und die zusätzlichen Spiegelachsen zu erkennen, die es zulassen, bei vergleichenden Simulationen einen Ausschnitt von 45° zu berechnen, und das gesamte Diagramm durch Rotation und Spiegelung zu rekonstruieren (vgl. Abbildung 3.3). Da dem Arsenignal die vorangegangene Ionisationskante vom Gallium überlagert ist, können aber keine elementspezifischen Aussagen über die Probe gemacht werden.

Mit einer CCD-Kamera ist es möglich, aufgrund ihrer Linearität elementspezifische Informationen aus den Beugungsdiagrammen zu erhalten. Eine ausführliche Charakterisierung von CCD-Kamerasystemen ist z.B. bei Hülk [12] zu finden. Ein mit einer CCD-Kamera aufgenommenes energiegefiltertes Beugungsdiagramm und das untergrundkorrigierte Signaldiagramm von Arsen, bei einem Energieverlust von 1395 eV und einer Beschleunigungsspannung von 80 kV , zeigt Abbildung 3.10. Die Kristall-

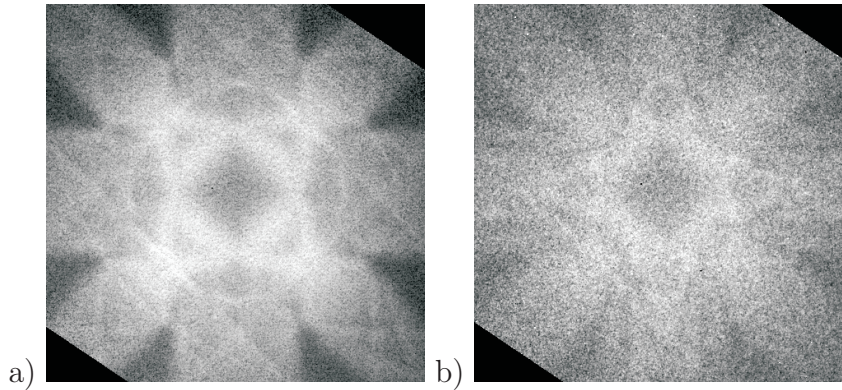


Abbildung 3.10: Experimentelles Beugungsdiagramm (a) und untergrundkorrigiertes Beugungsdiagramm (b) von GaAs in $\langle 100 \rangle$ -Orientierung bei einem Energieverlust von 1395 eV , einer Energiefensterbreite von 32 eV , einer Kristalldicke von ca. 110 nm und einer Beschleunigungsspannung von 80 kV .

dicke betrug ebenfalls ca. 110 nm , die Energiefensterbreite 32 eV und die Belichtungszeit 160 s pro Bild. Die Diagramme, wie auch alle folgenden experimentellen ESD, wurden so gedreht, dass die $\langle 020 \rangle$ - und $\langle 002 \rangle$ -Richtung der Abszisse bzw. der Ordinate entspricht. Da die Beugungsdiagramme nicht direkt in dieser Orientierung aufgenommen wurden, entstehen bei der Drehung und der Auswahl des Ausschnittes von $6,4 \theta_{020} \times 6,4 \theta_{002}$ schwarze Ecken.

Auch bei diesen Diagrammen ist wieder die 4-zählige Symmetrie mit den Spiegelachsen deutlich zu erkennen. Die nicht untergrundkorrigierten Diagramme aus den Abbildungen 3.9 und 3.10 zeigen gleiche Strukturen. Das untergrundkorrigierte Beugungsdiagramm in Abbildung 3.10 weist dahingegen, vor allem im Bereich kleiner Streuwinkel, andere Strukturen auf, die elementspezifisch sind und im Folgenden mit den Simulationsrechnungen zu vergleichen sind.

Overbeck [23] hat gezeigt, dass sich in energieverlustspezifischen Beugungsdiagrammen die Intensitäten in Abhängigkeit von der Elektronenverlustenergie für alle Streuwinkel, ähnlich wie im Elektronenenergieverlustspektrum (EELS), einem Potenzgesetz folgend abfallen. Damit können die Untergrundkorrekturen für EELS und für energiegefilterte Abbildungen (ESI) auf die energiegefilterte Beugung übertragen

werden, wobei diese Untergrundkorrektur für jeden Streuwinkel einzeln durchgeführt werden muss. Die Bestimmung des Untergrundes kann durch eine Extrapolation des EELS vor der Ionisationskante erfolgen.

Zur Extrapolation in den Energieverlustbereich $E > 100 \text{ eV}$ wird meist das Potenzgesetz [5]

$$I_{ij}^U(E_S) = A_{ij} E_S^{-r_{ij}} \quad (3.2)$$

verwendet. Dabei muss die Intensität des Untergrundes $I_{ij}^U(E_S)$ für die Verlustenergie E_S , bei der das zu korrigierende Bild aufgezeichnet wurde, für jeden Bildpunkt (i,j) mit Hilfe der unabhängigen Anpassungsparameter A_{ij} und r_{ij} bestimmt werden. Dazu müssen mindestens zwei Bilder bei den Energieverlusten E_{u1} und E_{u2} vor der Ionisationskante des zu untersuchenden Elementes aufgenommen werden. Durch die Anpassung von Gleichung (3.2) an die Intensität in den Vorkantenbildern werden die Parameter A_{ij} und r_{ij} Bildpunkt für Bildpunkt bestimmt, so dass dann der Untergrund gemäß Gleichung (3.2) in den Energieverlust E_S extrapoliert werden kann. Nach Abzug dieses extrapolierten Untergrundes vom Beugungsdiagramm, mit den Intensitäten $I_{ij}(E_S)$ auf der Ionisationskante, erhält man das elementspezifische Beugungsdiagramm. Diese beschriebene Methode wird als „Drei-Fenster-Methode“ bezeichnet. Zur besseren Untergrundkorrektur ist es oft sinnvoll, mehr Vorkantenbilder zu berücksichtigen [22]. Anhand der „Vier-Fenster-Methode“, bei der drei Vorkantenbilder und ein Bild auf der Kante aufgenommen werden, verdeutlicht Abbildung 3.11 die Vorgehensweise der Untergrundkorrektur schematisch. Untersuchungen zur optimalen Energiefensterposition und -breite für die Untergrundkorrektur sind z.B. von Hofer [11], Kothleitner [17] und Gralla [8] durchgeführt worden.

Für unsere Experimente sind für die Untergrundkorrektur jeweils drei Vorkantenbilder aufgenommen worden. Für die Bestimmung des Gallium-Signals haben wir die Fenster im Vorkantenbereich bei den Energieverlusten von 1013 eV , 1052 eV und 1091 eV und das Fenster im Kantenbereich der Gallium- $L_{2,3}$ -Kante bei 1190 eV gewählt. Entsprechend haben wir für das Arsen-Signal, die Vorkantenfenster bei

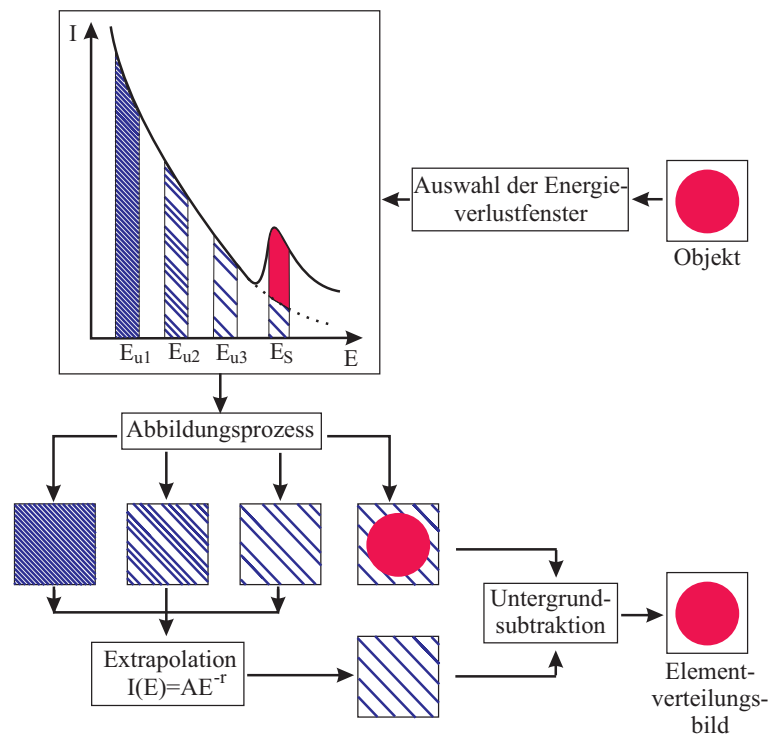


Abbildung 3.11: Schematische Darstellung des Verfahrens zur Untergrundsubtraktion aus drei Vorkantenbildern und einem elementsensitiven Bild [31]. Die Energien E_{u1} , E_{u2} , E_{u3} und E_S kennzeichnen die Positionen der Energiefenster, bei denen die Einzelbilder aufgenommen werden.

den Energieverlusten von 1223 eV, 1262 eV und 1301 eV und das Fenster im Kantenbereich der Arsen- $L_{2,3}$ -Kante bei 1410 eV gesetzt.

Durch die hohen Energieverluste, bei denen die ESD aufgenommen wurden, sind die Intensitäten sehr gering. Daher sind relativ große Energiefensterbreiten und hohe Belichtungszeiten notwendig. Die Energiefensterbreiten lagen für unsere Messungen im allgemeinen bei ca. 30 eV und die Belichtungszeiten zwischen 100 s und 600 s, je nach experimentellen Bedingungen. Die Belichtungszeit hängt zusätzlich von der Kristalldicke, der Intensität des Elektronenstrahls, der Kamera und deren gewählten Auflösung ab. Je dicker eine Probe ist, desto mehr Elektronen erfahren eine unelastische Mehrfachstreuung und der Kontrast im Beugungsdiagramm nimmt ab. Durch die Intensität des Elektronenstrahls kann die Belichtungszeit variiert werden. Durch den größeren Strahlstrom bei einer höheren Intensität kommt es aber zu einer größeren Strahlschädigung der Probe. Die Probenschädigung kann man minimieren, indem man die Auflösung der CCD-Kamera durch die Funktion „Binning“ verkleinert. Bei diesem Verfahren werden z.B. bei Binning 2 2×2 Pixel zu einem Pixel zusammengefasst. Durch Verringerung der Auflösung wird die Intensität pro Pixel bei ansonsten gleichen experimentellen Bedingungen erhöht. Somit kann man eine Verringerung der Kameraauflösung zur Verringerung der Belichtungszeit nutzen.

Am Zeiss EM 902 wurde mit Binning 2 gearbeitet, d.h. die Auflösung der Kamera *MegaView III* betrug 688×516 Pixel. Ein Pixel entspricht dann bei den Diagrammen 0,18 mrad (0,024 θ_{020}). Bei der *UltraScan4000* am *Libra 200FE* wurden die ESD mit Binning 4 aufgenommen, d.h. die Auflösung betrug 1024×1024 Pixel. Hier entspricht einem Pixel 0,09 mrad (0,02 θ_{020}). Diese Auflösungen reichen für den Vergleich mit den Simulationen vollkommen aus. Bei den Simulationen wurden aufgrund der hohen Rechenzeit mit einer maximalen Auflösung von 0,04 θ_{020} /Pixel gerechnet (vgl. Kapitel 4.1).

Um eine Kontamination der Probe zu verringern, wurde mit Objektraumkühlung gearbeitet. Trotz dieser Kühlung ist die Kontamination nicht komplett zu vermeiden, so dass nach langer Belichtungszeit die Beugungsdiagramme einen diffusen Anteil aufweisen.

Zur Dickenbestimmung des untersuchten Kristalls wurden sogenannte t/Λ -Bilder aufgenommen. Hierzu werden zwei Aufnahmen der Probenstelle verwendet, ein elastisch gefiltertes und ein ungefiltertes Bild. Zu dem elastisch gefilterten Bild tragen nur die Elektronen bei, die im Kristall keinen Energieverlust erlitten haben.

Die absolute Probendicke kann durch die folgende Formel berechnet werden [6]:

$$t = \Lambda_{in} \ln \left(\frac{I_{ges}}{I_0} \right). \quad (3.3)$$

I_{ges} bzw. I_0 sind die Intensitäten des ungefilterten bzw. des elastisch gefilterten Bildes und Λ_{in} ist die mittlere freie Weglänge für die unelastische Streuung.

Λ_{in} ist gegeben durch [6]:

$$\Lambda_{in} = \frac{106F \frac{E_0}{E_m}}{\ln \left(\frac{2E_0\beta}{E_m} \right)} \quad (\text{in nm}). \quad (3.4)$$

Dabei ist β der Akzeptanzwinkel in $mrad$, der hier durch den Radius der verwendeten Kontrastaperturblende berechnet werden kann, E_0 die Energie der einfallenden Elektronen in keV und

$$F = \frac{1 + (E_0/1022 \text{ keV})}{(1 + (E_0/511 \text{ keV}))^2} \quad (3.5)$$

ein relativistischer Korrekturfaktor. E_m kann durch die Näherung

$$E_m = 7.6Z^{0.36} \quad (3.6)$$

bestimmt werden, wobei Z die mittlere Ordnungszahl des Kristalls ist.

Bei bekannter Zusammensetzung kann Λ_{in} mit einer Genauigkeit von $\pm 20\%$ bestimmt werden [6]. Für unsere Galliumarsenid-Probe erhalten wir für eine Beschleunigungsspannung von 80 keV und einen Akzeptanzwinkel von 10 mrad eine mittlere inelas-

tische freie Weglänge von $\Lambda_{in} \simeq 64 \text{ nm}$; für 200 kV und 14 mrad ist $\Lambda_{in} \simeq 92 \text{ nm}$. Moore u. a. [21] haben die Orientierungsabhängigkeit der Dickenbestimmung für ebene Einkristalle untersucht. Bei einer Zonenachsenorientierung sind viele Reflexe angeregt und es kann zu störenden Beugungskontrasten kommen, die die Messung verfälschen.

Kapitel 4

Beschreibung der Simulationsprogramme

Um einen Vergleich zwischen den simulierten und den experimentellen Diagrammen durchzuführen, müssen zuerst noch einige Vorüberlegungen zu den Simulationsrechnungen gemacht werden. Zur Berechnung der energieverlustspezifischen Beugungsdiagramme werden die doppelt differentiellen Wirkungsquerschnitte berechnet, die proportional zu der Zahl der Elektronen sind, die in ein Raumwinkelement $d\Omega$ und ein Energieverlustintervall $d(\Delta E)$ gestreut werden. Da die digitalen ESD aus $n \times n$ Pixeln aufgebaut sind, muss für jeden Streuwinkel der Wirkungsquerschnitt, also insgesamt $n \times n$ Wirkungsquerschnitte pro ESD, für den durch das Experiment vorgegebenen Energieverlust berechnet werden. Aufgrund der hohen Rechenzeit, die im Unterkapitel 4.1 genauer betrachtet wird, ist die Auflösung der simulierten Diagramme nicht so hoch wie die der experimentell aufgenommenen ESD. Es ist eine Auflösung gewählt worden, bei der die Strukturen noch gut zu erkennen sind und die Rechenzeit noch vertretbar ist. Das Programmpaket zur Berechnung der ESD besteht aus mehreren FORTRAN-Programmen, die in Kapitel 4.2 als Flussdiagramm dargestellt und kurz beschrieben werden. Alle Rechnungen wurden auf einem VAX-alpha Prozessor durchgeführt. Durch immer schnellere Prozessoren sinkt die Rechenzeit, so dass immer genauere Rechnungen durchgeführt werden können.

4.1 Rechenzeitbetrachtungen

Die Rechenzeit für die Simulationsrechnungen ist eine nicht zu vernachlässigende Größe und hängt von unterschiedlichen Parametern ab, die hier kurz vorgestellt werden:

- Anzahl der Atompositionen in der Einheitszelle
- Anzahl der berücksichtigten Blochwellen
- Anzahl der Streuwinkel
- Symmetrie (Berechnung eines minimalen Ausschnittes und Einbeziehung der Symmetriegruppe des Kristalls in die Blochwellenberechnung)

Die Rechenzeit ist von der Anzahl der Atompositionen in der Einheitszelle abhängig. Befinden sich in der Projektion mehrere Atome der gleichen Atomsorte auf symmetrieäquivalenten Positionen, so reicht es aus, den Wirkungsquerschnitt zu den inäquivalenten Atompositionen zu berechnen, der anschließend mit der Anzahl der äquivalenten Atompositionen gewichtet werden muss.

Ein weiterer entscheidender Parameter für die Rechenzeitreduktion ist die Anzahl der berücksichtigten Blochwellen, welcher an dieser Stelle ausführlicher behandelt wird. Die dynamische Theorie löst das Streuproblem exakt, wenn unendlich viele Blochwellen berücksichtigt werden. Dies ist aber in der Praxis nicht möglich und man muss sich auf eine endliche Zahl N beschränken. Dabei muss immer ein Kompromiss zwischen Genauigkeit und Rechenzeit der Simulation eingegangen werden. Es sollten möglichst viele Blochwellen berücksichtigt werden, um einen Vergleich zwischen Simulationen und Experiment durchführen zu können. Da aber die Rechenzeit mit der vierten Potenz der Anzahl der berücksichtigten Blochwellen wächst, ist eine große Anzahl von Blochwellen von Nachteil. Zur Abschätzung der Anzahl N dient z.B. die Konvergenz der Extinktionslänge ξ der elastischen Streuung. Hierzu werden für eine Anzahl von Reflexen die Potentialkoeffizienten und die Intensität der

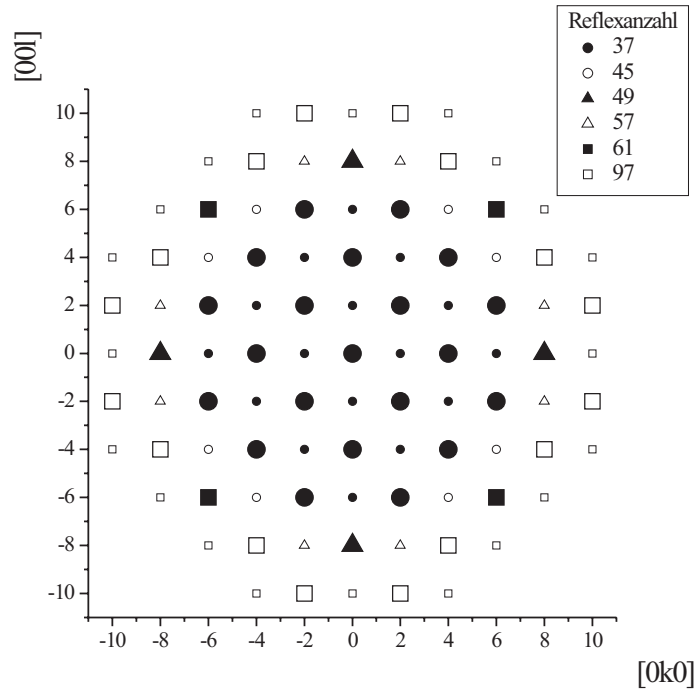


Abbildung 4.1: Skizze der $0kl$ -Ebene zur Veranschaulichung der systematischen Erhöhung der Reflexanzahl.

Blochwellen in Abhängigkeit von der Kristalldicke (Tiefenscan) berechnet. Anschließend wird die Reflexanzahl erhöht und die Rechnungen erneut durchgeführt, bis eine Konvergenz der Extinktionslänge zu erkennen ist.

Für die Reflexauswahl werden zuerst die Reflexe bestimmt, die für die bestimmte Einstrahlrichtung erlaubt sind. Die Bedingungen für diese erlaubten Reflexe sind in Kapitel 3.1 aufgelistet. Aus diesen Bedingungen erhält man für die Orientierung entlang der $\langle 100 \rangle$ -Zonenachse die Reflexe $0kl$, mit k und l gerade.

Nun wird um den 000 Reflex ein Kreis gezogen. Die Reflexe, die innerhalb dieses Kreises liegen, sind vom Betrag des reziproken Gittervektors kleiner als der betrachtete Radius. Durch das Vergrößern des Radius wird die Reflexzahl vergrößert, die bei der Simulation berücksichtigt werden soll. In der Tabelle A.1 im Anhang A sind die Reflexe mit den dazugehörigen Beträgen der reziproken Gittervektoren für die

$\langle 100 \rangle$ -Orientierung aufgelistet.

Zur Veranschaulichung des Verfahrens zur Erhöhung der Reflexanzahl wurden in Abbildung 4.1 unterschiedliche Symbole für die Reflexe verwendet. Auch hier wurde wieder durch die Größe der Symbole die unterschiedliche Intensität der einzelnen Beugungsreflexe verdeutlicht. Wie im Folgenden zu sehen sein wird, ist eine Reflexanzahl von 37 eine untere Grenze. Diese Reflexe sind als gefüllte Kreise dargestellt. Beim Vergrößern des Radius kommen als nächstes 8 weitere Reflexe dazu, die durch offene Kreise gekennzeichnet sind und in der Summe mit den 37 Reflexen 45 Reflexe ergeben. Die nächsten Stufen sind 49, 57 und 61 Reflexe und als letztes 97 Reflexe. Die berechneten Tiefenscans für Galliumarsenid sind in Abhängigkeit der berücksichtigten Reflexanzahl in Abbildung 4.2 für die $\langle 100 \rangle$ -Zonenachsenorientierung bei einer Beschleunigungsspannung von 80 kV dargestellt.

Es ist deutlich zu erkennen, dass es ausreicht, für kleine Kristalldicken weniger Reflexe zu berücksichtigen als für große Kristalldicken. Bei einer Kristalldicke von

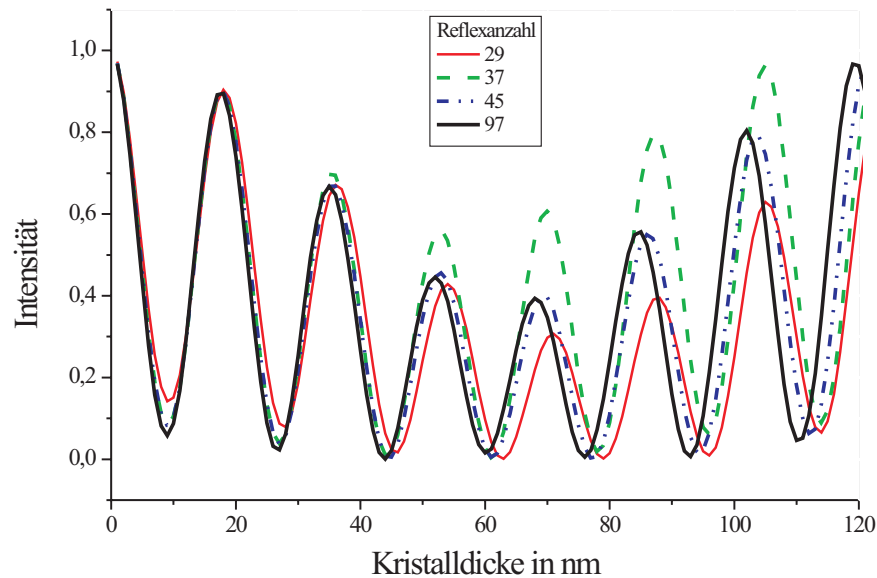


Abbildung 4.2: Tiefenscan von Galliumarsenid in $\langle 100 \rangle$ -Orientierung bei einer Beschleunigungsspannung von 80 kV.

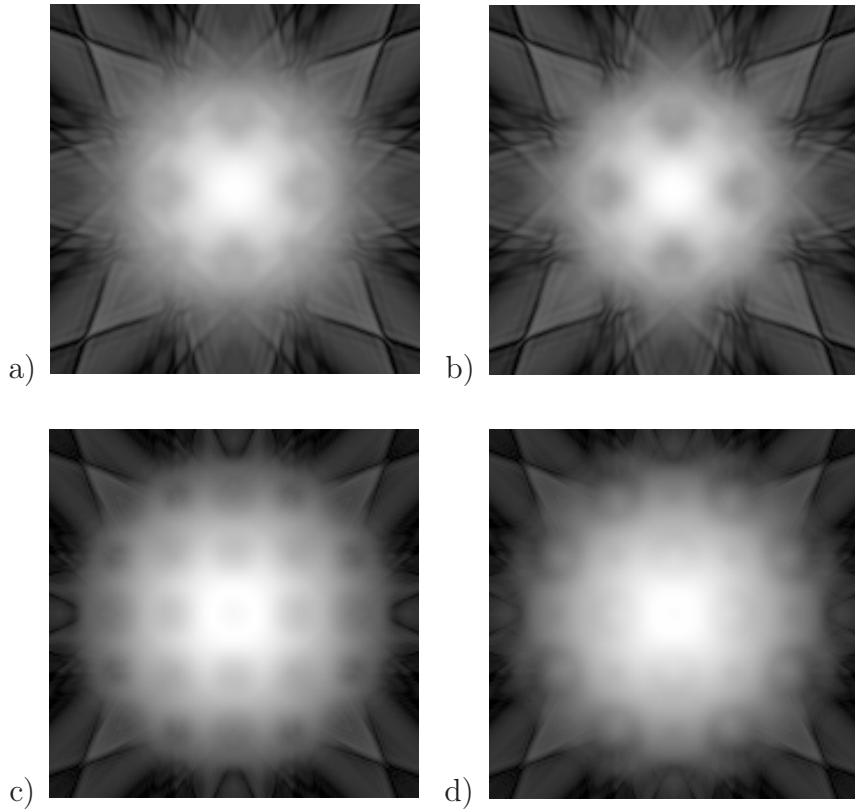


Abbildung 4.3: Galliumarsenidbeugungsdiagramme unter Berücksichtigung der Reflexanzahl bei unterschiedlichen Dicken. Arsen- $L_{2,3}$ -Schalen-Ionisation, 1410 eV Energieverlust, a) 50 nm, 37 Reflexe, b) 50 nm 45 Reflexe, c) 100 nm, 37 Reflexe und d) 100 nm, 45 Reflexe.

ca. 50 nm reichen 37 Reflexe aus, während bei einer Kristalldicke von ca. 100 nm aber mindestens 45 Reflexe notwendig sind. Das zeigen auch deutlich die Beugungsdiagramme in Abbildung 4.3.

Hier sind die ESD für die Arsen- $L_{2,3}$ -Ionisationskante (1410 eV) für die Kristalldicken von 50 nm und 100 nm und für 37 bzw. 45 angeregte Reflexe dargestellt. Für die Kristalldicke von 50 nm ist, wie erwartet, kaum ein Unterschied zwischen den Diagrammen mit 37 und 45 berücksichtigten Reflexen zu erkennen. Für 100 nm ist dies aber nicht der Fall, so dass bei dieser Kristalldicke mindestens 45 Reflexe einbezogen werden müssen.

Zusätzlich ist die Anzahl der zu berücksichtigenden Reflexe noch von der Orientierung der Probe und von der Beschleunigungsspannung abhängig. Auf die Orientierungsabhängigkeit wird hier nur kurz eingegangen. Unsere experimentellen Untersuchungen wurden an einer Galliumarsenidprobe durchgeführt, die eine $\langle 100 \rangle$ -Zonenachsenorientierung aufwies. Der Einfluss der Beschleunigungsspannung auf die ESD wird in Kapitel 5.2 genauer behandelt.

In Abbildung 4.4 sind die Tiefenscans für 37, 63, 69 und 99 berücksichtigte Reflexe für die $\langle 110 \rangle$ -Zonenachsenorientierung bei einer Beschleunigungsspannung von 80 kV dargestellt. Hier tritt selbst bei kleinen Kristalldicken zwischen 20 nm und 40 nm für 63 und 69 Reflexen keine Konvergenz ein. Das bedeutet, die Rechenzeit wächst allein durch die Berücksichtigung von mehr Reflexen stark an. Für 69 Reflexe, im Vergleich zu 37 Reflexen, wie sie bei der $\langle 100 \rangle$ -Zonenachsenorientierung für eine Kristalldicke von ca. 50 nm notwendig sind, steigt die Rechenzeit auf etwa das 12fache an.

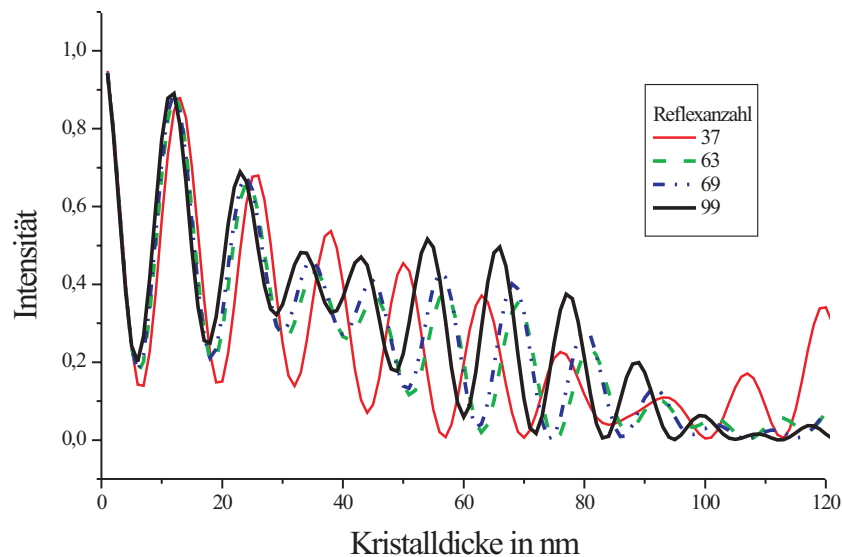


Abbildung 4.4: Tiefenscan von Galliumarsenid in $\langle 110 \rangle$ -Orientierung bei einer Beschleunigungsspannung von 80 kV.

Die Anzahl der Streuwinkel, die berechnet werden müssen, hängt von der Auflösung ab, die erreicht werden soll. Im Experiment hatten wir eine Auflösung von $0,02 \theta_{020}/\text{Pixel}$ bis $0,024 \theta_{020}/\text{Pixel}$, je nach Beschleunigungsspannung. Für die Simulationen wurden Streuwinkel von $-6,4 \theta_{020}$ bis $6,4 \theta_{020}$ und $-6,4 \theta_{002}$ bis $6,4 \theta_{002}$ berechnet, wobei die Schrittweite $0,08 \theta_{020}$ betrug. Diese Auflösung reicht im Allgemeinen für einen Vergleich aus und die Rechenzeit kann relativ gering gehalten werden.

Die Symmetrie wurde schon kurz in Kapitel 3.1 besprochen. Betrachtet man die Beugungsbilder in $\langle 100 \rangle$ -Orientierung bzw. in $\langle 110 \rangle$ -Orientierung, so ist im ersten Fall eine 4-zählige Symmetrie mit Spiegelachsen und im zweiten Fall nur eine Spiegelachse zu erkennen. Durch die Berechnung eines minimalen Ausschnittes kann somit die Rechenzeit reduziert werden. Im Falle der hochsymmetrischen $\langle 100 \rangle$ -Zonenachsenorientierung kann sie auf ca. $1/8$ reduziert werden, bei der $\langle 110 \rangle$ -Zonenachsenorientierung nur auf ca. die Hälfte. Nach Berechnung des minimalen Ausschnittes muss das Vollbild mit einem zusätzlichen Programm zusammengesetzt werden.

Der Fehler, der durch die Rekonstruktion entsteht, liegt bei maximal $0,002 \%$ und wird daher nicht weiter berücksichtigt. Die Rechenzeitreduktion ist also abhängig von der Symmetrie der Projektion der Punktgruppe des Kristalls.

In den Blochwellenberechnungen ist zusätzlich die Symmetriegruppe des Kristalls einbezogen worden. Die Elektronen, die zur Intensität im energieverlustspezifischen Beugungsdiagramm beitragen, spüren nur das in Ausbreitungsrichtung projizierte Kristallpotential. Daher ist es ausreichend, die planare Punktgruppe der Projektion dieser Symmetriegruppe zu betrachten.

Wird entlang einer Zonenachse eingestrahlt, so werden nur die Blochwellen angeregt, deren Eigenvektor durch den zu einer Einsdarstellung gehörenden Eigenwert gegeben ist. Da nach Gleichung (2.23) $\epsilon^{(j)} = C_0^{(j)*}$ gilt, muss in Gleichung (2.66) nur noch eine Summation über alle Werte von j ausgeführt werden, für die gilt: $|C_0^{(j)}| \neq 0$. Hierbei ist zu beachten, dass Galliumarsenid nicht zentrosymmetrisch ist

und die Potentialkoeffizienten dadurch einen imaginären Anteil besitzen. Eine ausführliche Beschreibung hierzu und die damit verbundene mögliche Rechenzeitreduktion ist bei Overbeck [23] zu finden.

Durch diese Vorüberlegungen ist es möglich, die Rechenzeit stark zu kürzen. Anhand der Anzahl der zu berücksichtigenden Reflexe für unterschiedliche Kristallorientierungen wurde gezeigt, dass die gewählte Probe in der vorliegenden $\langle 100 \rangle$ -Orientierung optimal ist.

Für die $\langle 110 \rangle$ -Orientierung und eine Kristalldicke von 50 nm würde die Rechenzeit bei 69 berücksichtigten Reflexen und der berücksichtigten Symmetrie auf etwa das 48fache im Vergleich zur $\langle 100 \rangle$ -Orientierung ansteigen.

4.2 Programme

Wie schon im vorangegangenen Kapitel beschrieben, muss zuerst die Anzahl der zu berücksichtigenden Reflexe und die Anzahl der zu berechnenden Streuwinkel festgelegt werden. Die Anzahl der Reflexe geht direkt in die Berechnung der Potentialkoeffizienten ein. Die Matrixelemente werden für ein bestimmtes Element und eine bestimmte Innerschalenionisation, in unserem Fall Gallium bzw. Arsen und $L_{2,3}$ -Schalenionisation, berechnet. Für die Berechnung dieser Matrixelemente wird das „GSZ“-Potential (nach Green, Sellin und Zachor [9]) verwendet. Im nächsten Schritt werden für jeden Streuwinkel die Eigenwerte und die Eigenvektoren, die die einfallseitigen und ausfallseitigen Blochwellen beschreiben, und anschließend die doppelt differentiellen Wirkungsquerschnitte berechnet. Nach dem Zusammensetzen der Wirkungsquerschnitte der einzelnen Streuwinkel erhält man das unelastisch gefilterte Beugungsdiagramm. Die genutzten Programme sind in Abbildung 4.5 in einem Flussdiagramm dargestellt und werden im Folgenden kurz beschrieben.

Die auszuführenden Programme sind dabei mit der Endung *.for*, die Eingabedateien mit der Endung *.dat* gekennzeichnet. Mit den Dateien *.com* werden die jeweiligen Programme gestartet und die einzulesenden Dateien aufgerufen.



- **Lattice.dat**: Gitterdatei mit Anzahl der Atompositionen, Debye-Waller-Faktor und Einstrahlrichtung
- **Reflex.dat**: Tabelle der Reflexe, die eingelesen werden
- **Pot.for**: Berechnung der Potentialkoeffizienten
- **Eig.for**: Berechnung der Eigenwerte, elastisch und unelastisch
- **Wineig.for**: Steuerung der Streuwinkel, für die der Wirkungsquerschnitt berechnet werden soll
- **GSZ.dat**: GSZ Potentialparameter nach *Green, Sellin und Zachor* [9]
- **Matrix.for**: Berechnung des Matrixelementes
- **_full.dat**: reduzierte Gitterdatei mit Probendicke und Anzahl der äquivalenten Atompositionen in der Projektion
- **Wqinc.for**: Eingabe der Drehimpulse und der Anzahl der berücksichtigten Blochwellen
- **Wq_J.for**: Berechnung des Wirkungsquerschnittes
- **Input.for**: Zusammenfügen aller berechneter Wirkungsquerschnitte
- **Winrek.for**: Rekonstruktion des Vollbildes aus einem Ausschnitt

Kapitel 5

Experiment und Simulationen

Nachdem die Grundlagen für die Experimente und die Simulationen in den vorangegangenen Kapiteln behandelt worden sind, werden nun die experimentellen Ergebnisse mit den simulierten Ergebnissen verglichen.

Zunächst werden die Dickenabhängigkeit der ESD und damit die speziellen Anforderungen an die Probe diskutiert. Des Weiteren werden Unterschiede in den Resultaten zwischen den beiden Beschleunigungsspannungen 80 kV und 200 kV aufgezeigt, für die ein Vergleich zwischen Simulation und Experiment möglich war und es werden weitere Rechnungen für eine Beschleunigungsspannung von 300 kV vorgestellt. Die Simulationen basieren alle auf der nichtrelativistischen Theorie. Arbeiten von Knipplmeyer u.a. [15] haben aber gezeigt, dass sich relativistische Effekte bei hohen Beschleunigungsspannungen ($\geq 200\text{ kV}$) nicht vernachlässigen lassen. Im letzten Abschnitt werden die Experimente mit den Simulationen verglichen und diskutiert.

5.1 Die Kristalldicke

Die Kristalldicke ist ein sehr wichtiger Parameter für die Messungen und Simulationen, da die energieverlustspezifischen Beugungsdiagramme sehr stark hiervon abhängen. Diese Abhängigkeit wird in diesem Kapitel genauer anhand von Experimenten und Simulationsrechnungen für eine Beschleunigungsspannung von 80 kV

untersucht.

Im zweiten Unterabschnitt wird die Dickenabhängigkeit für eine Beschleunigungsspannung von 200 *kV* kurz am Beispiel von zwei experimentellen Diagrammen dargestellt.

5.1.1 Dickenabhängigkeit der ESD bei einer Beschleunigungsspannung von 80 *kV*

In Abbildung 5.1 sind experimentelle energieverlustspezifische Beugungsdiagramme dargestellt, die bei einer Beschleunigungsspannung von 80 *kV* und einem Energieverlust von 1410 *eV* aufgenommen worden sind. Die Energiefensterweite betrug jeweils 30 *eV*. Die Diagramme sind nicht untergrundkorrigiert und daher ein Summensignal aus einem Untergrund, dem Galliumsignal und dem Arsensignal. Zur Verdeutlichung der Dickenabhängigkeit reicht es aus, die unkorrigierten Bilder zu betrachten. Die Kristalldicke in Abbildung 5.1a) betrug ca. 50 *nm*, in Abbildung 5.1b) ca. 70 *nm* und in Abbildung 5.1c) ca. 100 *nm*. In allen drei Beugungsdiagrammen ist die 4-zählige Symmetrie anhand der Kikuchibänder gut zu erkennen. Das Beugungsdiagramm mit Kikuchilinen ist in Abbildung 5.2 schematisch für diese Orientierung dargestellt. Deutlich zu sehen sind die horizontalen und vertikalen $\{040\}$ -Kikuchibänder und die diagonalen $\{02\bar{2}\}$ -Kikuchibänder. Mit zunehmender Kristalldicke bildet sich im Beugungsdiagramm mehr Struktur aus. Während bei 50 *nm* für kleine Streuwinkel, und in den Bändern, kaum Struktur zu sehen ist, ist in diesen Bereichen bei einer Kristalldicke von 100 *nm* deutlich Struktur zu erkennen. Für eine Kristalldicke von 70 *nm* erkennt man in der Mitte ein auf der Spitze stehendes Quadrat, in dessen Inneren, im Vergleich zu der Kristalldicke von 50 *nm*, die Intensität abgenommen hat. Zusätzlich haben sich noch Bögen über den Spitzen des Quadrates gebildet, die sich bei der Kristalldicke von 100 *nm* weiter verstärken. Zwischen diesen Bögen und den Quadratseiten kommt es zu weiteren Kontraständerungen und feineren Strukturen. Es haben sich auch zusätzlich feinere Strukturen in den Bändern gebildet und es sind weitere Kikuchi-Linien zu erkennen.

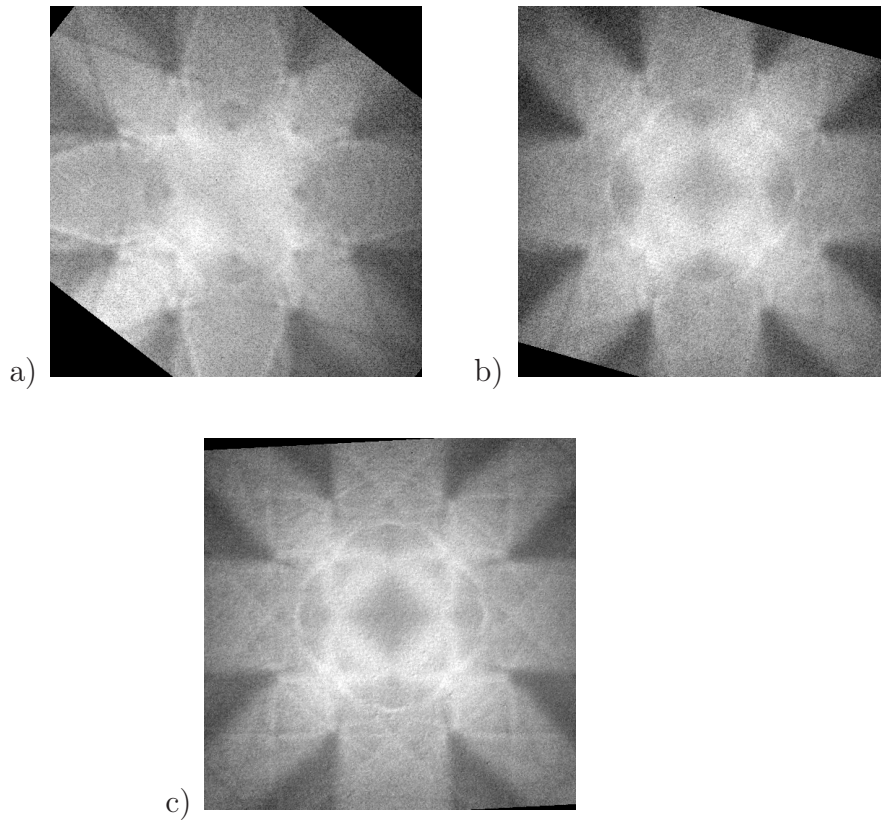


Abbildung 5.1: Experimentelle Dickenserie für Galliumarsenid in $\langle 100 \rangle$ -Orientierung bei einem Energieverlust von 1410 eV und einer Energiefensterbreite von 32 eV . Die Kristalldicken betragen a) ca. 50 nm , b) ca. 70 nm und c) ca. 100 nm .

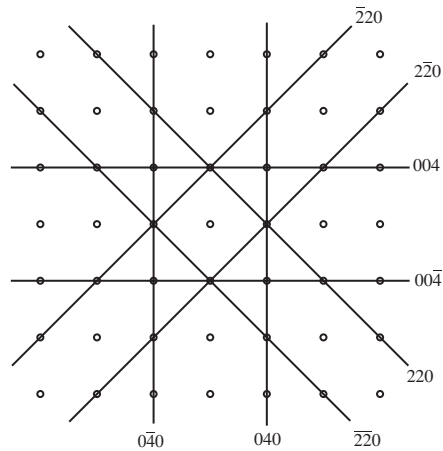


Abbildung 5.2: Schematisches Beugungsdiagramm mit Kikuchilinen in der $\langle 100 \rangle$ -Orientierung.

Die Abbildungen 5.3 und 5.4 zeigen die simulierten energieverlustspezifischen Beugungsdiagramme für die Kristalldicken zwischen 50 nm und 100 nm . Im Gegensatz zum Experiment, in dem der untersuchte Probenbereich meist mit einem Dickegradienten behaftet ist, konnte hier die Kristalldicke korrekt eingegeben und in kleineren Intervallen variiert werden. Die Rechnungen sind für Galliumarsenid in der $\langle 100 \rangle$ -Orientierung bei einer Beschleunigungsspannung von 80 kV und für den 45-Strahlfall (d.h. 45 Reflexe werden berücksichtigt) durchgeführt worden. Abbildung 5.3 zeigt die Diagramme für einen Energieverlust von 1410 eV auf der Arsen $L_{2,3}$ -Ionisationskante und Abbildungen 5.4 die Diagramme bei einem Energieverlust von 1190 eV auf der Gallium $L_{2,3}$ -Ionisationskante. Die Energiefensterbreite betrug jeweils 30 eV . Es ist deutlich zu erkennen, dass die ESD für unterschiedliche Elemente, bei den entsprechenden Kristalldicken, auch unterschiedliche Strukturen aufweisen. Diese Unterschiede sind vor allem im Bereich kleiner Streuwinkel zu sehen. Hier kommt es z.B. für eine Kristalldicke von 50 nm teils zu einer Kontrastumkehr. Mit wachsender Dicke ändern sich bei beiden Serien in diesem Bereich die Strukturen. In Abbildung 5.4 sind diese Änderungen aber nicht so stark, wie in Abbildung 5.3. Die Bänder haben im Bereich großer Streuwinkel ähnliche Strukturen. Daher können

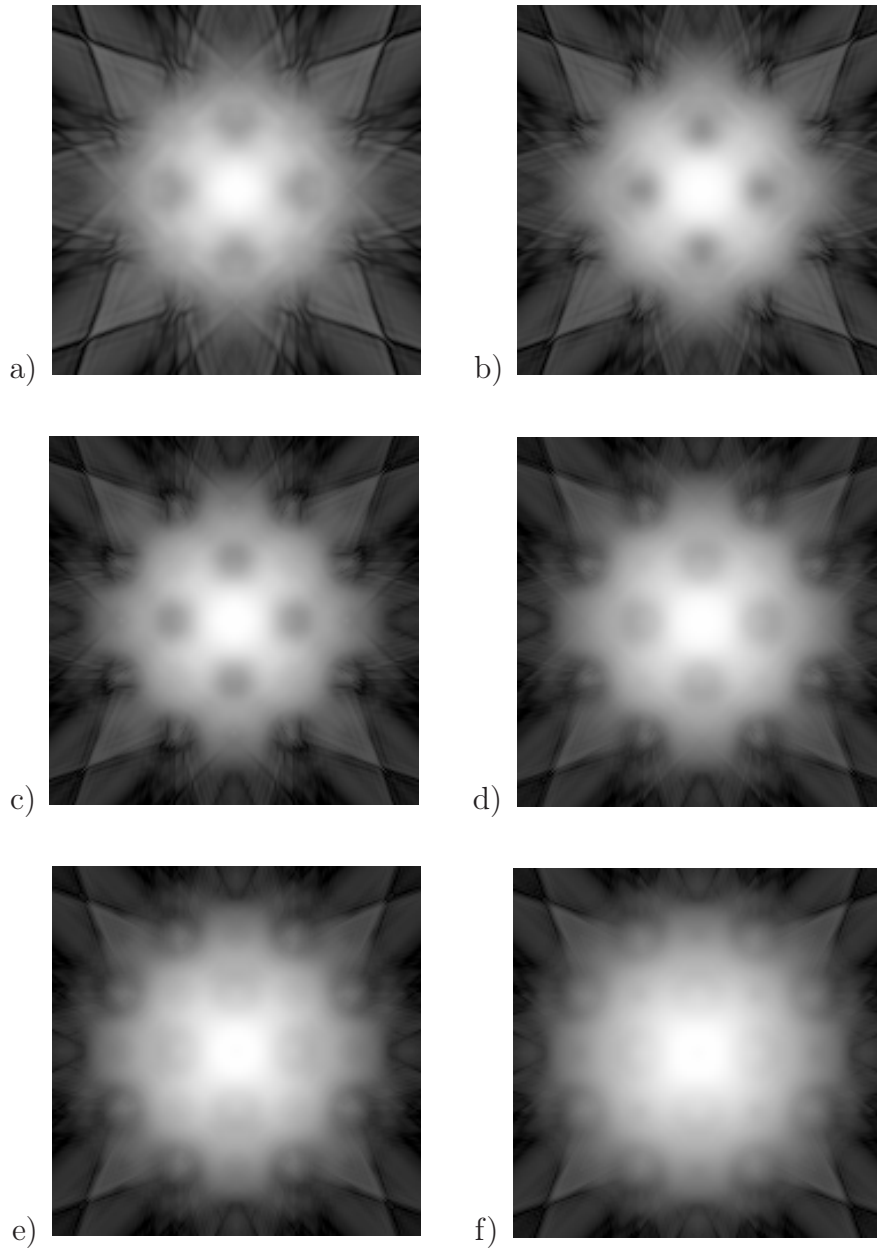


Abbildung 5.3: Dickenserie für Galliumarsenid in $\langle 100 \rangle$ -Orientierung bei einem Energieverlust von 1410 eV auf der Arsen $L_{2,3}$ -Ionisationkante und 45 angeregte Reflexe. Die Kristalldicken betragen: a) 50 nm, b) 60 nm, c) 70 nm, d) 80 nm, e) 90 nm und f) 100 nm.

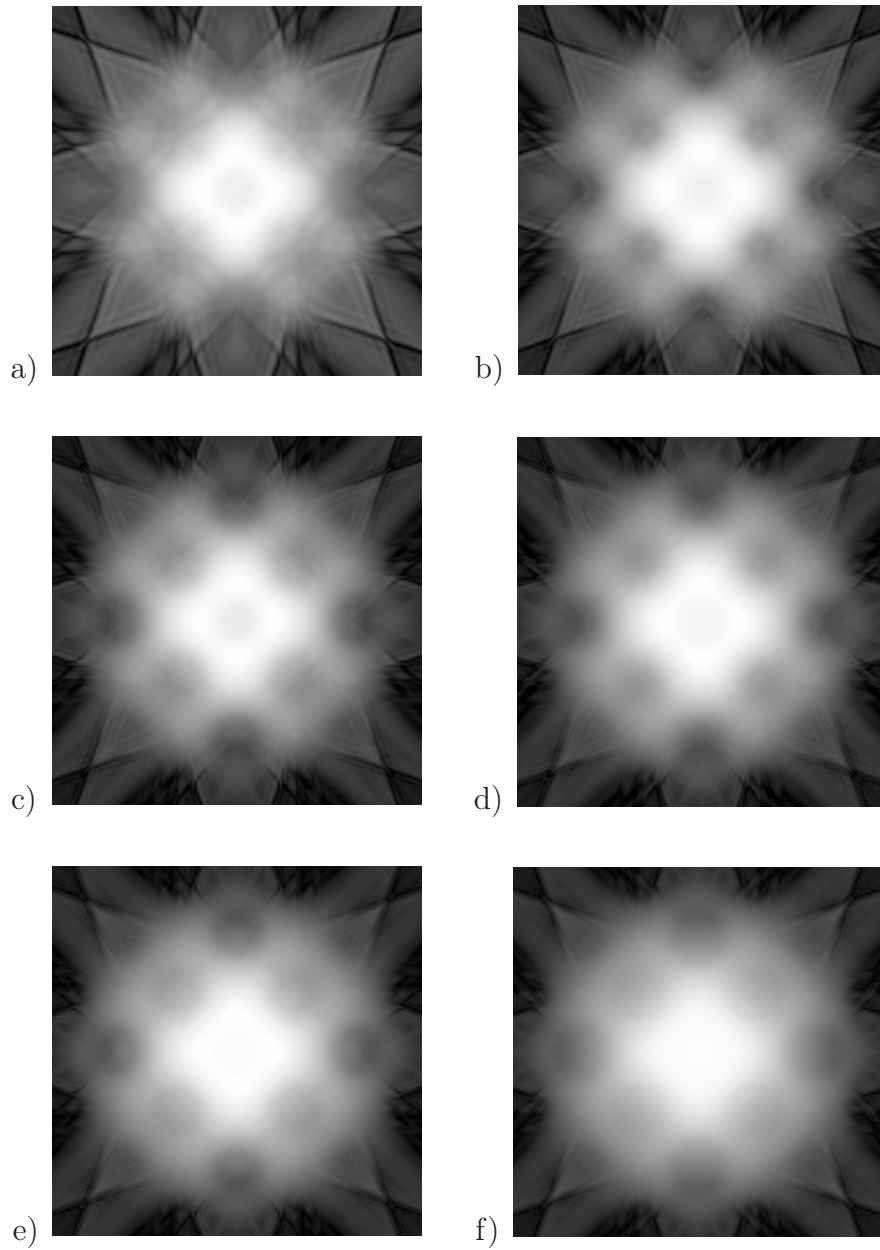


Abbildung 5.4: Dickenserie für Galliumarsenid in $\langle 100 \rangle$ -Orientierung bei einem Energieverlust von 1190 eV auf der Gallium $L_{2,3}$ -Ionisationskante und 45 angeregte Reflexe. Die Kristalldicken betrugen: a) 50 nm , b) 60 nm , c) 70 nm , d) 80 nm , e) 90 nm und f) 100 nm .

anhand der Beugungsdiagramme Rückschlüsse auf die Zusammensetzung des untersuchten Materials gezogen werden. An dieser Stelle soll jedoch noch nicht auf den Vergleich der Experimente mit den Simulationen und auf den Unterschied zwischen unterschiedlichen Ionisationsenergien eingegangen werden. Eine genauere Betrachtung ist in Kapitel 5.3 zu finden.

Es ist nicht sinnvoll, noch größere Kristalldicken zu betrachten, da die Simulation nur die inelastische Einfachstreuung berücksichtigt und daher eine Obergrenze gegeben ist. Betrachtet man Kristalldicken, die kleiner sind als 50 nm (Abbildung 5.5), so erkennt man auch hier die starke Abhängigkeit der ESD von der Dicke, die zum Teil stärker variiert als bei größeren Kristalldicken. Die Simulationen sind hier für den 37-Strahlfall berechnet worden, da es ausreicht, für kleinere Kristalldicken weniger Reflexe zu berücksichtigen und damit die Rechenzeit zu verkürzen (vgl. Kapitel 4.1). Bei einer Dicke von 20 nm sind die Bänder und die sternförmige Struktur stark verwaschen. Außerdem unterscheiden sich das Gallium- und das Arsen-Signal bei dieser Kristalldicke kaum. Beide haben in der Mitte ein auf der Spitze stehendes Quadrat. Wird die Kristalldicke vergrößert, so werden die Bänder immer schärfer und es bildet sich im ESD mehr Struktur aus. Diese Struktur ändert sich für Gallium und Arsen unterschiedlich. Beim Gallium bleibt das Quadrat weiterhin auf der Spitze und es gibt Variationen im Kontrast in der Mitte des Quadrates und an den Seiten. Beim Arsen dahingegen ändert sich die Form des zentralen Bereiches, die Intensität in der Mitte scheint aber gleich zu bleiben.

Anhand dieser Diagramme erkennt man, dass die ESD stark mit der Kristalldicke variieren, so dass man für das Experiment eine möglichst planparallele Probe mit genau bekannter Probendicke benötigt. Darüber hinaus sollte die Probendicke bestimmte Bedingungen erfüllen. Sie muss dick genug sein, damit sich genügend Beugungskontrast ausbilden kann und sie muss dünn genug sein, damit die Voraussetzung für eine inelastische Einfachstreuung erfüllt ist. Anhand der Simulationen haben wir gesehen, dass die Kristalldicke bei 80 kV Beschleunigungsspannung mindestens 30 nm bis 40 nm betragen sollte. Dieser Wert hängt von der Beschleunigungsspannung ab.

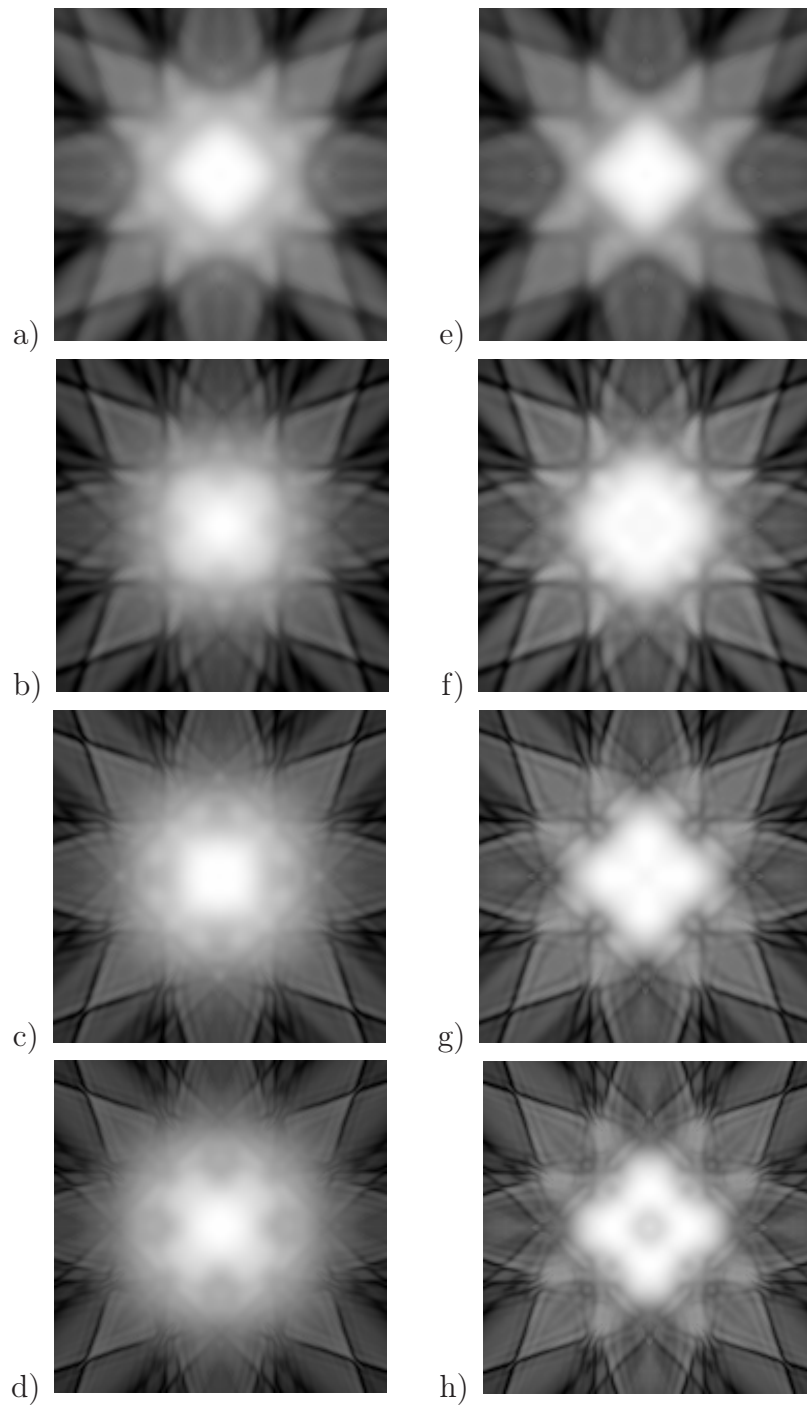


Abbildung 5.5: Dickenserie für Galliumarsenid in $\langle 100 \rangle$ -Orientierung: Energieverlust von 1410 eV auf der Arsen $L_{2,3}$ -Ionisationskante, a) 20 nm , b) 30 nm , c) 40 nm und d) 50 nm . Energieverlust von 1190 eV auf der Gallium $L_{2,3}$ -Ionisationskante, e) 20 nm , f) 30 nm , g) 40 nm und h) 50 nm .

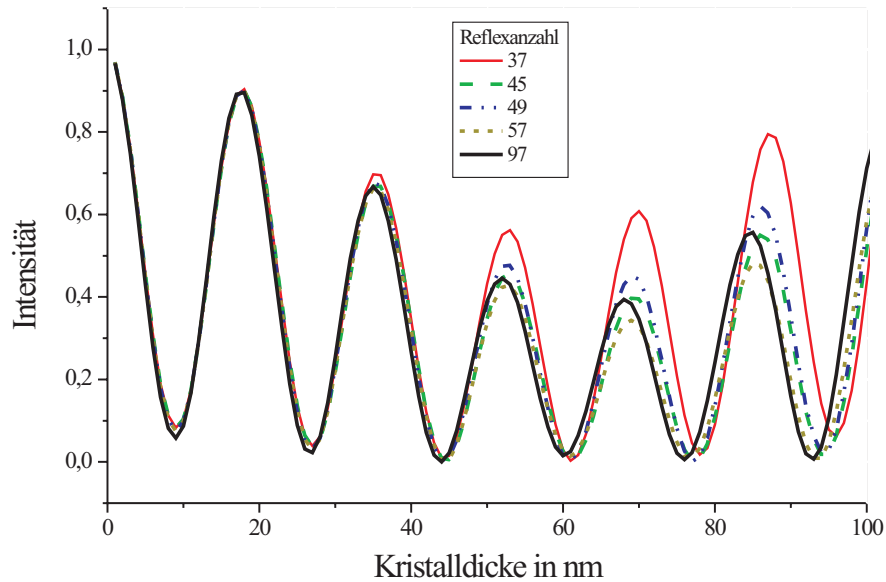


Abbildung 5.6: Tiefenscan von Galliumarsenid in $\langle 100 \rangle$ -Orientierung bei einer Beschleunigungsspannung von 80 kV.

Mit zunehmender Beschleunigungsspannung erhöht sich dieser Wert, da die Extinktionslänge mit der Beschleunigungsspannung zunimmt. Gibt man die Kristalldicke anhand der Extinktionslänge an, so kann man in Abbildung 5.6 ablesen, dass für eine Beschleunigungsspannung von 80 kV und eine $\langle 100 \rangle$ -Zonenachsenorientierung 30 nm bis 40 nm Kristalldicke etwa zwei Extinktionslängen entspricht.

5.1.2 Dickenabhängigkeit der ESD bei einer Beschleunigungsspannung von 200 kV

In Abbildung 5.7 wird nochmal kurz die Auswirkung der Änderung der Kristalldicke auf die ESD anhand zweier experimenteller Beugungsdiagramme gezeigt, die am *Libra 200FE* bei der Beschleunigungsspannung von 200 kV aufgenommen worden

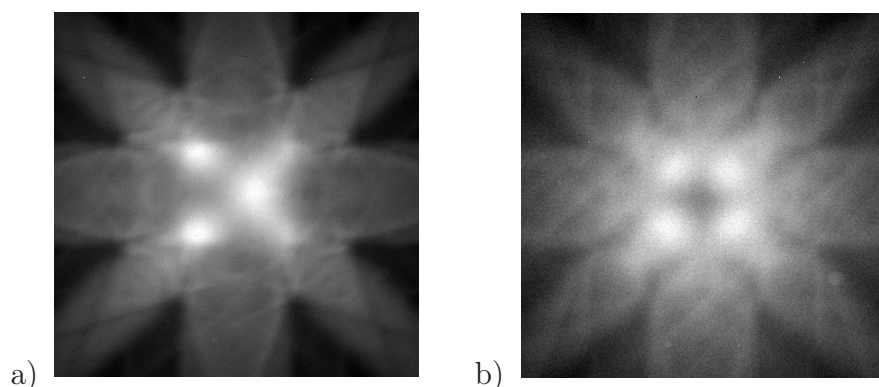


Abbildung 5.7: Experimentelle ESD für Galliumarsenid in $\langle 100 \rangle$ -Orientierung bei einer Beschleunigungsspannung von 200 kV und einem Energieverlust von 1410 eV . Die Kristalldicken betragen a) ca. 100 nm und b) ca. 150 nm .

sind. Die weiteren Parameter waren hier: $\langle 100 \rangle$ -Orientierung, 1410 eV Energieverlust bei einer Energiefensterbreite von 33 eV .

Auch hier sind deutliche Unterschiede zu erkennen. Bei einer Kristalldicke von ca. 100 nm sind zusätzlich zu den Kikuchibändern fünf Beugungsreflexe in der Mitte zu erkennen. Wird die Kristalldicke auf ca. 150 nm vergrößert, so verschwindet der mittlere Reflex und die Intensitäten der vier äußeren Reflexe verlagern sich etwas in Richtung Mitte. Im äußeren Bereich erscheinen bei dem dickeren Kristall weitere Kikuchilinen. Die Kontrastentwicklung mit zunehmender Kristalldicke ist ähnlich der bei 80 kV (vgl. Abbildung 5.1). Mit zunehmender Dicke kommt es in der Mitte zu einer Kontrastumkehr und im äußeren Bereich nehmen die Kikuchilinen zu.

An den experimentellen Beugungsdiagrammen in Abbildung 5.1c) (80 kV) und in Abbildung 5.7a) (200 kV) ist die Abhängigkeit der ESD von der Beschleunigungsspannung für eine Kristalldicke von 100 nm zu erkennen, die im Folgenden Kapitel weiter untersucht werden soll.

5.2 Die Beschleunigungsspannung

Im vorangegangenen Kapitel wurde schon angedeutet, dass die Beschleunigungsspannung Auswirkungen auf die energieverlustspezifischen Beugungsdiagramme hat. Diese Auswirkungen werden in diesem Kapitel anhand von Simulationsrechnungen für Beschleunigungsspannungen von 80 *kV*, 200 *kV* und 300 *kV* behandelt.

Ausgehend von der Bedingung, dass die Kristalldicke mindestens zwei Extinktionslängen entsprechen sollte, damit sich genügend Beugungscontrast ausbilden kann, können wir die Mindestkristalldicke für eine Beschleunigungsspannung von 200 *kV* aus Abbildung 5.8 ablesen. Sie entspricht demnach etwa 50 *nm*. Für diese Kristalldicke reichen 37 Reflexe aus, die in den Simulationen berücksichtigt werden müssen. Abbildung 5.9 zeigt zwei simulierte ESD bei einem Energieverlust von 1335 *eV* für die Kristalldicken von 40 *nm* und 60 *nm*, also unterhalb und oberhalb der bestimmten Mindestkristalldicke. Die energieverlustspezifischen Beugungsdiagramme zeigen einen Ausschnitt aus dem zentralen Bereich bis zu einem Streuwinkel von $4,48 \theta_{020} \times 4,48 \theta_{002}$. Wie zu erwarten ist, sind die Strukturen für eine Kristalldicke von 40 *nm* noch sehr verwaschen. Bei größeren Kristalldicken, hier 60 *nm*, werden die Strukturen deutlicher.

Für eine Beschleunigungsspannung von 300 *kV* ergibt sich ähnliches. Abbildung 5.10 und Abbildung 5.11 zeigen, dass die Mindestdicke hier ca. 60 *nm* sein sollte, damit sich genügend Beugungscontrast ausgebildet hat. Auch hier sollten für diese Kristalldicke 37 Reflexe für die Simulationen berücksichtigt werden und für größere Kristalldicken entsprechend mehr.

Zusammenfassend kann also gesagt werden, dass die Mindestdicke des zu untersuchenden Kristalls mit der Beschleunigungsspannung wächst, was aber auch nicht verwundert, da bei konstanter Kristalldicke die relative Kristalldicke, in Einheiten der Extinktionslänge, mit steigender Beschleunigungsspannung abnimmt.

Beim Betrachten der Extinktionslängen für die unterschiedlichen Beschleunigungsspannungen (Abbildungen 5.6, 5.8 und 5.10) fällt noch auf, dass bei 80 *kV* für

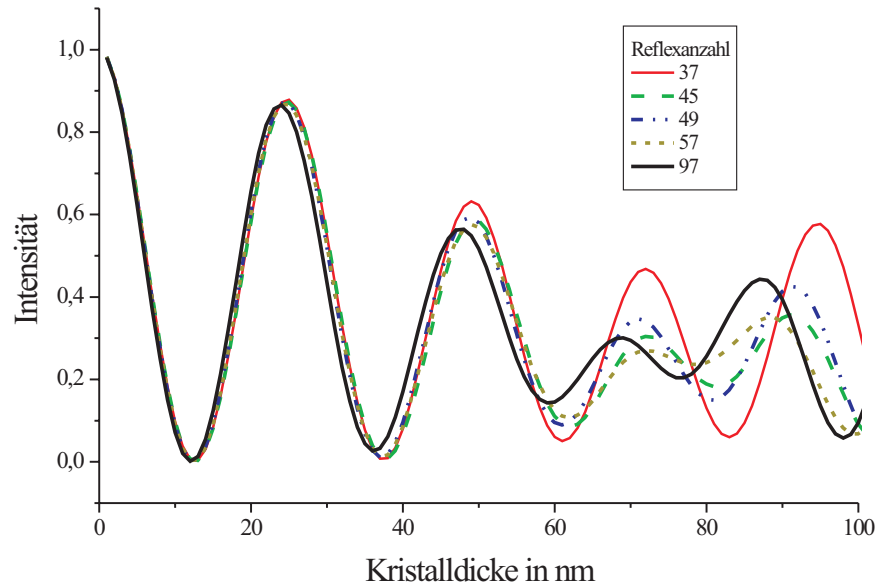


Abbildung 5.8: Tiefenscan von Galliumarsenid in $\langle 100 \rangle$ -Orientierung bei einer Beschleunigungsspannung von 200 kV.

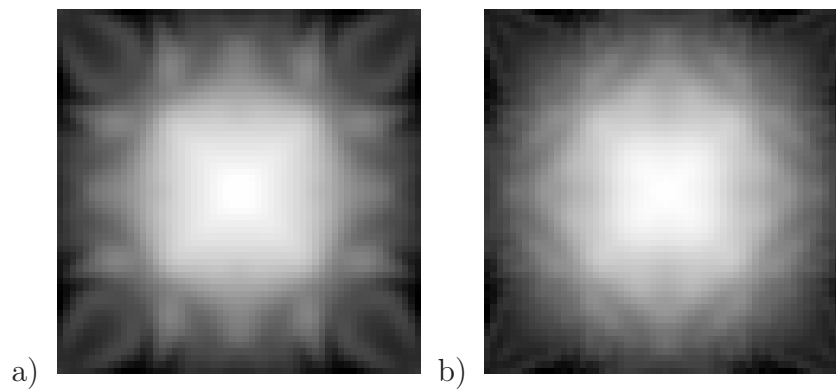


Abbildung 5.9: Simulierte ESD von Galliumarsenid in $\langle 100 \rangle$ -Orientierung bei einer Beschleunigungsspannung von 200 kV, einem Energieverlust von 1335 eV auf der Arsen $L_{2,3}$ -Ionisationskante und einer Kristalldicke von a) 40 nm und b) 60 nm.

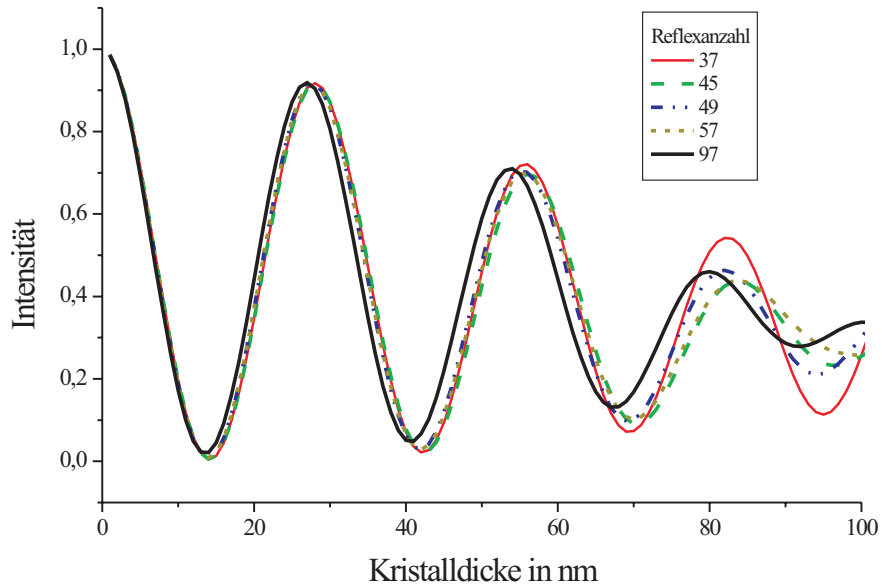


Abbildung 5.10: Tiefenscan von Galliumarsenid in $\langle 100 \rangle$ -Orientierung bei einer Beschleunigungsspannung von 300 kV.

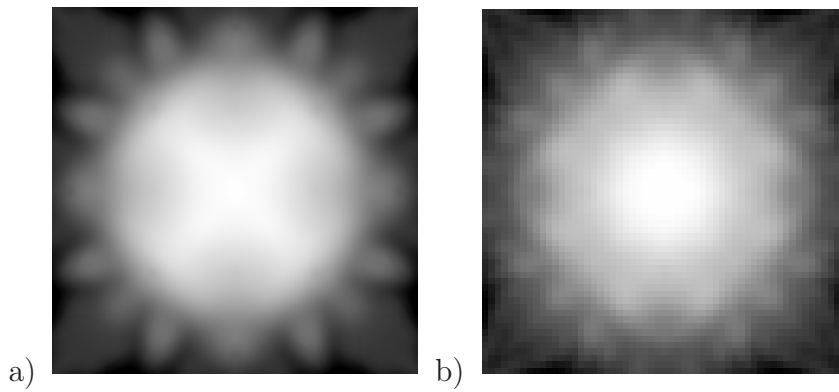


Abbildung 5.11: Simulierte ESD von Galliumarsenid in $\langle 100 \rangle$ -Orientierung bei einer Beschleunigungsspannung von 300 kV, einem Energieverlust von 1335 eV auf der Arsen $L_{2,3}$ -Ionisationskante und einer Kristalldicke von a) 40 nm und b) 60 nm.

Kristalldicken von 100 nm nur 45 Reflexe für die Rechnungen berücksichtigt werden müssen. Bei Beschleunigungsspannungen von 200 kV und 300 kV kann bei 45 Reflexen für eine Kristalldicke von 100 nm noch nicht von einer Konvergenz der Extinktionslänge gesprochen werden. Das bedeutet, dass die Rechenzeiten für diese Beschleunigungsspannungen und diese Kristalldicke stark anwachsen.

Des Weiteren sollte berücksichtigt werden, dass die Rechnungen nicht relativistisch sind. Für Beschleunigungsspannungen bis ca. 100 kV reicht es aus, die nichtrelativistischen Rechnungen kinematisch zu korrigieren, indem für die Masse und die Energie die relativistisch korrekten Ausdrücke in die nichtrelativistische Rechnung eingesetzt werden [4]. Knippelmeyer [14] hat gezeigt, dass bei der Berechnung der Wirkungsquerschnitte der Fehler, durch Verwendung nichtrelativistischer, kinematisch korrigierter Formeln, so klein ist, dass er keine Rolle spielt. Für Beschleunigungsspannungen ≥ 200 kV lassen sich die relativistischen Effekte nicht vernachlässigen. Hier sind vor allem die magnetischen Wechselwirkungen zwischen den einfallenden Elektronen und den beim Streuprozess angeregten Atomelektronen sowie die Verzögerung der Wechselwirkung (Retardierung) von Bedeutung. Untersuchungen hierzu sind von Knippelmeyer [15, 16] gemacht worden. In [24] werden die relativistischen Wirkungsquerschnitte im Rahmen des Zentralfeldmodells untersucht.

In diesem Zusammenhang müssten für Beschleunigungsspannungen ≥ 200 kV weitere Untersuchungen durchgeführt werden, um Aussagen darüber machen zu können, inwieweit sich diese relativistischen Effekte in der Intensität der energieverlustspezifischen Beugungsdiagramme auswirken und ob für diese Beschleunigungsspannungen die ESD relativistisch berechnet werden müssten.

5.3 Vergleich zwischen Experiment und Simulation

In diesem Abschnitt werden die ESD für unterschiedliche Ionisationsenergien untersucht und geprüft, inwieweit die simulierten Ergebnisse mit den experimentellen Ergebnissen übereinstimmen. Damit diese Ergebnisse verglichen werden können, ist es notwendig, bei den experimentellen Beugungsdiagrammen eine Untergrundkorrektur durchzuführen, da das experimentelle Diagramm ein Summensignal ist, das

sich zusammensetzt aus dem Untergrund, dem Signal eines anderen Elementes dessen Ionisationskante vor dem zu untersuchenden Element liegt, und dem element-spezifischen Signal. Die dazu verwendete „Vier-Fenster-Methode“ die auch für ESI angewendet wird, wurde schon in Kapitel 3.3 vorgestellt.

Im Weiteren wird dabei zwischen den Beschleunigungsspannungen von 80 kV und 200 kV unterschieden, für die Messungen durchgeführt werden konnten. Da die Gallium $L_{2,3}$ -Kante verzögert ist, kommt es bei dem Signal von Arsen, wegen der Unsicherheit der Extrapolation des Untergrundes aus den Vorkantenbildern, zu relativ stark verrauschten Diagrammen, sodass hier die Untersuchungen teilweise sehr schwierig sind. Dies ist für Gallium nicht der Fall, da vor der Galliumkante nur noch die Arsen $M_{4,5}$ -Kante bei einem Energieverlust von 41 eV und die Plasmonenpeaks im „Low-Loss“-Bereich liegen.

Für eine Beschleunigungsspannung von 80 kV werden die experimentellen und simulierten Ergebnisse, anhand von zwei Kristalldicken, 70 nm und 100 nm , diskutiert. Nachdem in Kapitel 5.1.1 die Änderung der energiegefilterten Beugungsdiagramme mit der Kristalldicke untersucht wurde, sollen hier nun die experimentellen, elementcharakteristischen Diagramme mit den Simulationen verglichen werden. Die Abbildungen 5.12 und 5.13 zeigen die experimentellen, untergrundkorrigierten Diagramme und die dazugehörigen simulierten Diagramme, die für den 45-Strahlfall und für einen Energieverlust von 1190 eV berechnet wurden. Die Energiefensterbreite betrug 30 eV und die Kristalldicke 70 nm ($t \approx 1,1\lambda_{in}$) bzw. 100 nm ($t \approx 1,5\lambda_{in}$). Die elementcharakteristischen Beugungsdiagramme für Arsen, bei 1410 eV , sind in den Abbildungen 5.14 und 5.15 ebenfalls für die Kristalldicken von 70 nm bzw. 100 nm abgebildet. Alle Diagramme weisen den charakteristischen 4-zähligen Stern für die $\langle 100 \rangle$ -Orientierung auf. Im großen Streuwinkelbereich sind im Experiment sowie in den Simulationen die Intensitätsverläufe vergleichbar.

Der interessante Bereich ist auf den ersten Blick der Streuwinkelbereich bis etwa $4\theta_{020}$. Dieser Bereich ist in Abbildung 5.16 nochmals als Detailausschnitt aus den Abbildungen 5.12 und 5.14 dargestellt.

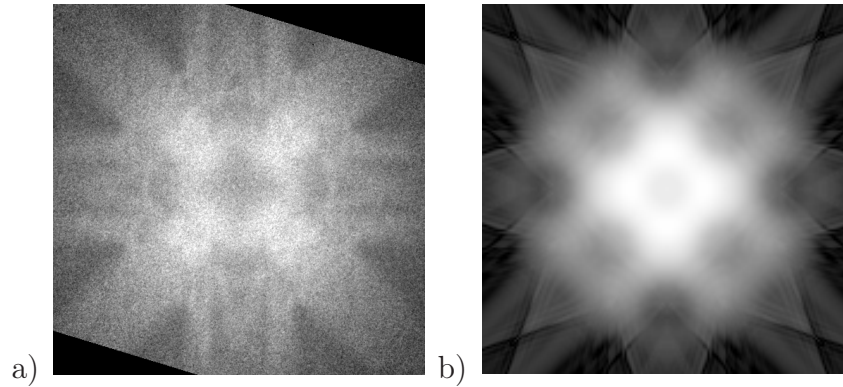


Abbildung 5.12: Gallium-Signal bei 80 kV Beschleunigungsspannung, einem Energieverlust von 1190 eV und einer Kristalldicke von 70 nm : a) Experiment (32 eV Energiefensterbreite) und b) Simulation (45-Strahlfall).

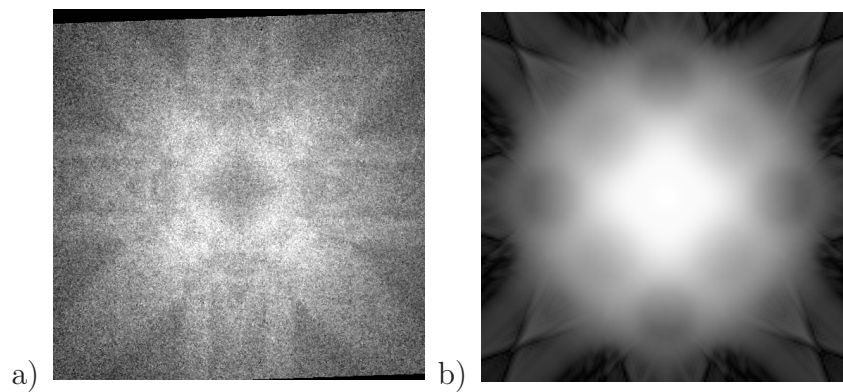


Abbildung 5.13: Gallium-Signal bei 80 kV Beschleunigungsspannung, einem Energieverlust von 1190 eV und einer Kristalldicke von 100 nm : a) Experiment (32 eV Energiefensterbreite) und b) Simulation (45-Strahlfall).

Das Gallium-Signal weist, sowohl im Experiment als auch bei der Simulation, ein auf der Spitze stehendes Quadrat auf. Die Ecken liegen an den Positionen der $\{020\}$ -Reflexe eines elastischen Beugungsbildes. Im Inneren dieses Quadrates ist die Intensität beim Experiment gering, bei der Simulation ist dieses Intensitätsminimum jedoch

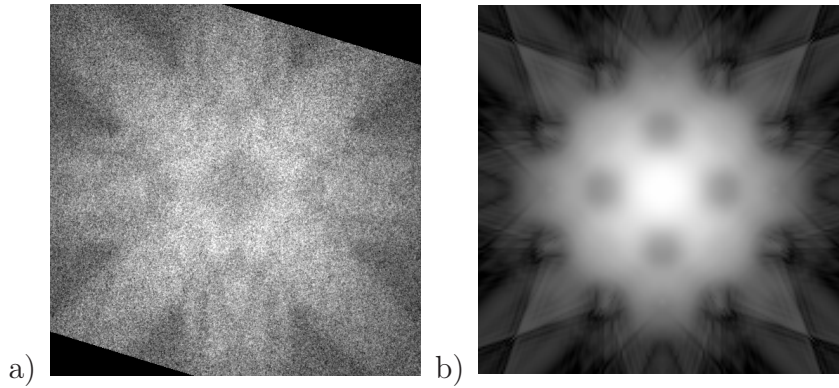


Abbildung 5.14: Arsen-Signal bei 80 kV Beschleunigungsspannung, einem Energieverlust von 1410 eV und einer Kristalldicke von 70 nm : a) Experiment (32 eV Energiefensterbreite) und b) Simulation (45-Strahlfall).

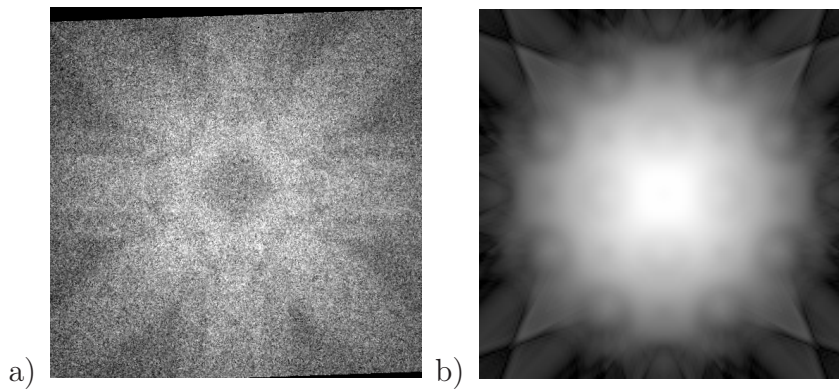


Abbildung 5.15: Arsen-Signal bei 80 kV Beschleunigungsspannung, einem Energieverlust von 1410 eV und einer Kristalldicke von 100 nm : a) Experiment (32 eV Energiefensterbreite) und b) Simulation (45-Strahlfall).

nicht so stark ausgeprägt. Für das Arsen-Signal dahingegen ist die Intensität in der Mitte bei dem simulierten Diagramm hoch, bei dem experimentellen Diagramm, ähnlich wie beim Gallium-Signal, gering. Hier sind aber im mittleren Streuwinkelbereich ähnliche Strukturen zu erkennen. Die vier intensitätsschwachen Gebiete in der Simulation sind auch im experimentellen Diagramm schwach zu erkennen. Da vor der Arsen $L_{2,3}$ -Ionisationskante die verzögerte Gallium $L_{2,3}$ -Ionisationskante

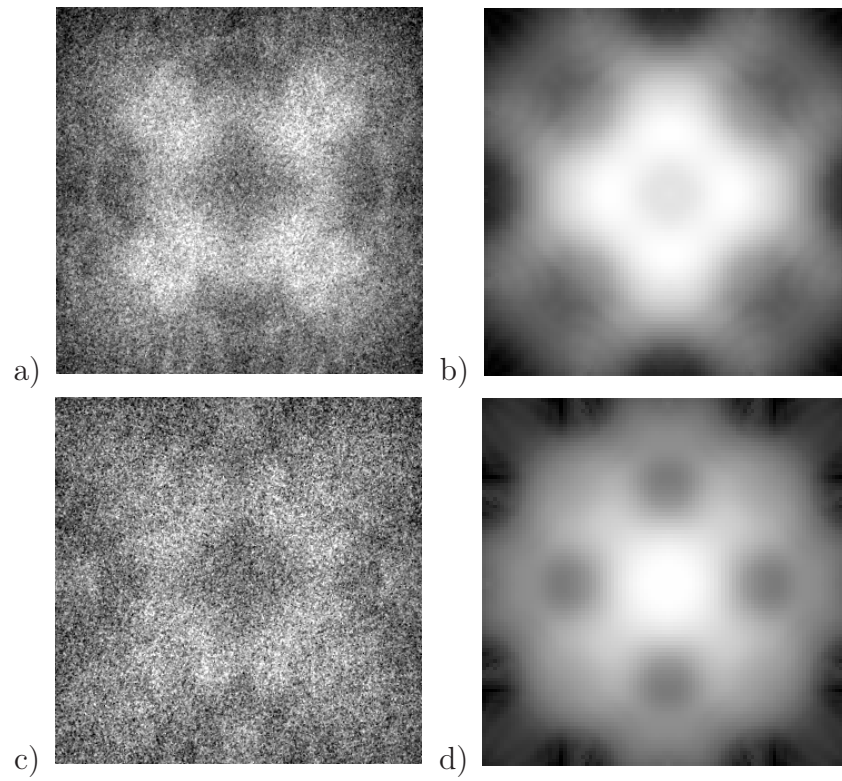


Abbildung 5.16: Detailausschnitte aus den Abbildungen 5.12 und 5.14 a) Gallium-Signal bei 1190 eV , Experiment b) Gallium-Signal bei 1190 eV , Simulation (45-Strahlfall), c) Arsen-Signal bei 1410 eV , Experiment und d) Arsen-Signal bei 1410 eV , Simulation (45-Strahlfall).

liegt, kommt es bei dem Arsensignal zu einem relativ schwachen Signal-zu-Rausch-Verhältnis (SNR). Daher ist die Struktur der Arsendiagramme im Allgemeinen nicht so gut zu erkennen, wie es bei den Galliumdiagrammen der Fall ist.

Zur Verdeutlichung des elementspezifischen Signals kann hier die „Jump-Ratio“-Methode herangezogen werden, die allerdings keine quantitativen Aussagen über die Probe ermöglichen.

Hierzu werden zwei Energieverlustbilder, auf der Ionisationskante I_t und vor der

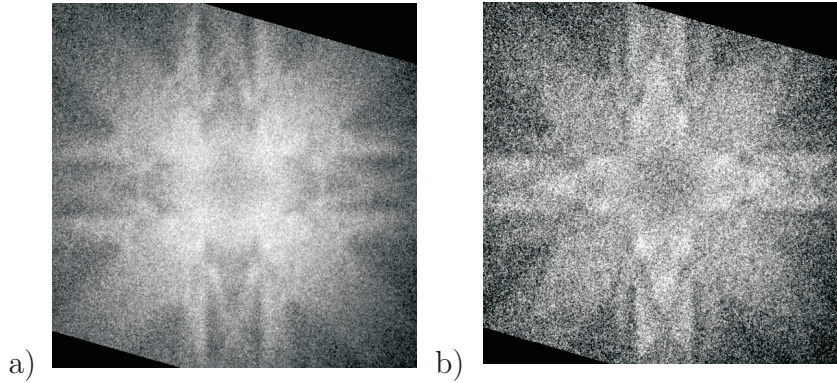


Abbildung 5.17: „Jump-Ratio“-Bilder von Galliumarsenid bei einer Kristalldicke von 70 nm und einer Beschleunigungsspannung von 80 kV : a) Gallium-Signal und b) Arsen-Signal.

Ionisationskante I_b , aufgenommen und anschließend durcheinander dividiert

$$I_e = \frac{I_t}{I_b}. \quad (5.1)$$

Abbildung 5.17 zeigt das „Jump-Ratio“-Bild für das Gallium- bzw. das Arsen-Signal. Die Energieverluste der Kanten- bzw. der Vorkantenbilder betrugen für Gallium 1190 eV und 1091 eV und für Arsen 1410 eV und 1301 eV . Die Energiefensterbreite betrug 32 eV . In beiden Fällen kommen die Strukturen deutlicher heraus.

Beim Vergleich der experimentellen Diagramme von Gallium und Arsen, sind deutliche Unterschiede zu erkennen. Im äußeren Bereich sind bei den untergrundkorrigierten Diagrammen außer der $\{040\}$ -Kikuchibänder zusätzlich noch die $\{020\}$ -Kikuchibänder zu erkennen. Diese sind in den unkorrigierten experimentellen Diagrammen, in den Abbildungen 5.1 und 5.7, nicht zu sehen. Das innere Band erscheint bei den Galliumdiagrammen (in den Abbildungen 5.12 und 5.13) dunkler und das äußere Band heller. Bei den Arsendiagrammen (in den Abbildungen 5.14 und 5.15) ist es umgekehrt.

Im zentralen Bereich ist die Intensität in den experimentellen Diagrammen gering, aber auch hier sind deutliche Unterschiede zwischen dem Gallium- und dem Arsen-

Signal zu erkennen, z.B. weisen die ESD von Gallium Bögen auf, die bei den Arsen-Diagrammen nicht auftreten. Diese Unterschiede sind auch im „Jump-Ratio“-Bild deutlicher zu erkennen.

Als zweites Beispiel werden die elementcharakteristischen Beugungsdiagramme für eine Beschleunigungsspannung von 200 kV kurz diskutiert. Die experimentellen und simulierten Bilder sind für Gallium in Abbildung 5.18 und für Arsen in Abbildung 5.19 dargestellt. Die untersuchte Kristalldicke betrug hier ca. $1,1 \Lambda_{in}$. Das entspricht etwa 100 nm bei dem in Kapitel 3.3 bestimmten Λ_{in} . Auch hier sind wieder in allen Diagrammen die Kikuchibänder deutlich zu erkennen. Im Gegensatz zu den experimentellen Diagrammen bei der Beschleunigungsspannung von 80 kV (Abbildungen 5.12a) bis 5.15a)) sind hier im zentralen Bereich der experimentellen ESD bei beiden Energieverlusten fünf Reflexe zu sehen. Im restlichen Bereich sind die Strukturen ähnlich.

Die simulierten Diagramme zeigen im Vergleich mit den Experimenten, wie auch schon bei 80 kV , für große Streuwinkel ähnliche Strukturen. Im Bereich kleiner Streuwinkel ist nur für das Arsenignal eine Übereinstimmung zu erkennen. In den simulierten ESD sind in den Bereichen der vier äußeren Reflexe der experimentellen ESD, die ein Quadrat bilden, auch helle Bereiche zu erkennen. Die Unterschiede der experimentellen Gallium-Beugungsdiagramme zu den experimentellen Arsen-Beugungsdiagrammen sind deutlich zu sehen. So kommt es fast im gesamten Bereich der Kikuchibänder zu einer Kontrastumkehr zwischen den experimentellen ESD von Gallium und Arsen.

Bei der Aufnahme der experimentellen Beugungsdiagramme gab es zusätzlich aufgrund der hohen Belichtungszeiten das Problem der Kontamination, welches in Abbildung 5.20 als Beispiel dargestellt ist. Es handelt sich um ein so genanntes t/Λ -Bild, das am *Libra 200FE* nach einer Bestrahlungszeit von ca. einer Stunde aufgenommen wurde. t/Λ -Bilder werden zur Bestimmung von Probendicken aufgenommen. Diese Methode zur Dickenbestimmung wurde schon in Kapitel 3.3 beschrieben.

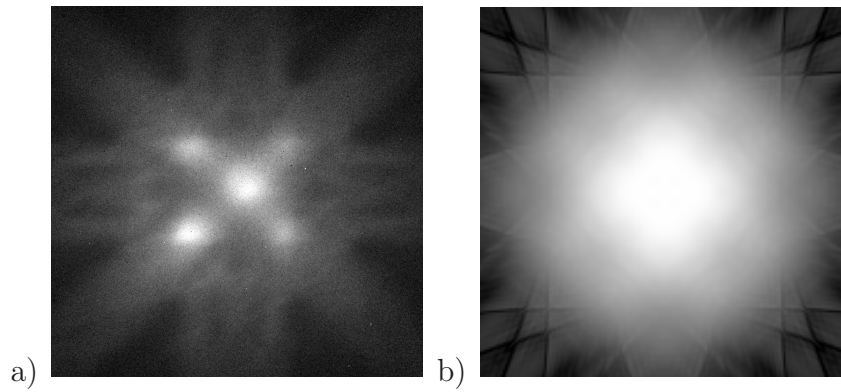


Abbildung 5.18: Gallium-Signal bei einem Energieverlust von 1190 eV , einer Kristalldicke von 100 nm und einer Beschleunigungsspannung von 200 kV : a) Experiment (33 eV Energiefensterbreite) und b) Simulation (57-Strahlfall).

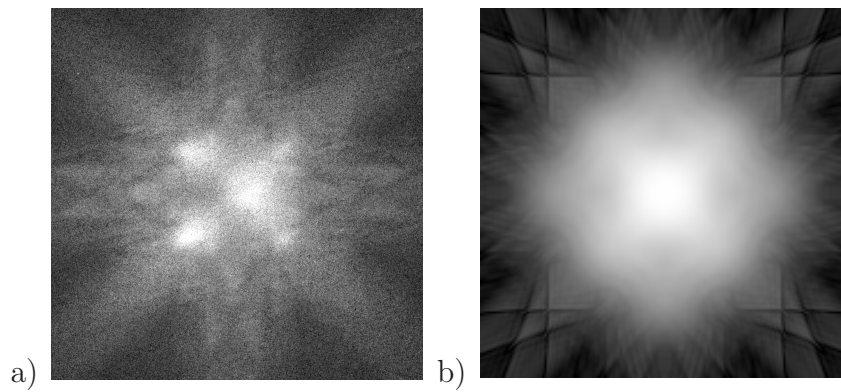


Abbildung 5.19: Arsen-Signal bei einem Energieverlust von 1410 eV , einer Kristalldicke von 100 nm und einer Beschleunigungsspannung von 200 kV : a) Experiment (33 eV Energiefensterbreite) und b) Simulation (57-Strahlfall).

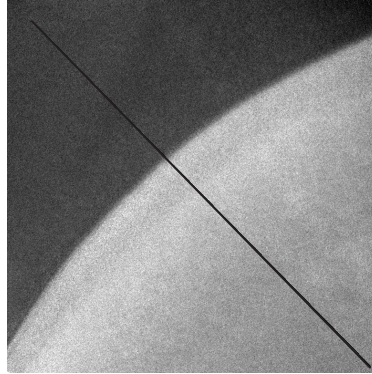


Abbildung 5.20: t/Λ -Bild einer Galliumarsenid-Probe, mit Kontamination, nach Aufnahme einer ESD-Serie. Der dunkle Bereich wurde während der Aufnahme der ESD-Serie nicht bestrahlt, der helle Bereich wurde bestrahlt. Die schwarze Linie repräsentiert einen Linescan, dessen Intensitätsprofil in 5.21 gezeigt wird.

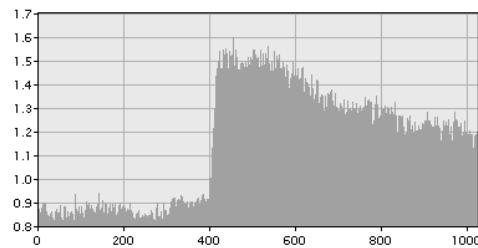


Abbildung 5.21: Linescan durch das t/Λ -Bild aus Abbildung 5.20.

In dem t/Λ -Bild sind zwei Bereich, ein heller und ein dunkler Bereich, zu unterscheiden. Der dunkle Bereich ist ein unbeschädigter Probenbereich, der während des Experiments nicht bestrahlt wurde. Der Probenbereich, der während der Aufnahme einer ESD-Serie bestrahlt wurde erscheint hier hell. In Abbildung 5.21 verdeutlicht ein Linescan über die Probe den Einfluss. Für den unbeschädigten Probenbereich ist in Abbildung 5.21 bei den Kanälen 0 – 400 ein t/Λ von etwa 0,85 bis 0,90 abzulesen. Das entspricht bei einem $\Lambda_{in} \simeq 92 \text{ nm}$, das in Kapitel 3.3 für unsere Experimente

am *Libra 200FE* bestimmt wurde, etwa $78\text{ nm} - 83\text{ nm}$. Für den bestrahlten Bereich (Kanäle > 400) steigt dieser Wert stark an, was auf Kontamination bzw. Schichtdickenzunahme während der Bestrahlung hinweist.

Quantitative Aussagen können also an dieser Stelle über die Probe nicht gemacht werden. Es konnte aber gezeigt werden, dass es zwischen den einzelnen Elementen im Kristall Unterschiede in den energieverlustspezifischen Beugungsdiagrammen gibt, auch wenn diese auf symmetrieäquivalenten Atompositionen sitzen.

Auch die wichtige Rolle der Kristalldicke ist verdeutlicht worden. So konnte gezeigt werden, dass für die Experimente die Kristalldicke etwa $1,1\ \Lambda_{in}$ entsprechen sollte, damit sich genügend Beugungscontrast ausbildet. Da in den Simulationen nur die inelastische Einfachstreuung berücksichtigt wird, sollten die Proben nicht viel dicker sein. Aber auch die Simulationen haben gezeigt, dass es sinnvoll ist, bei kleineren Kristalldicken die Messungen durchzuführen, da die Anzahl der zu berücksichtigenden Reflexe in den Simulationen mit der Kristalldicke steigt und damit auch die Rechenzeit.

Ein Problem bei den Simulationen ist sicherlich unter anderem der Debye-Waller-Faktor, der genau bekannt sein muss. Des Weiteren könnte der relativistische Effekt für die Beschleunigungsspannung von 200 kV eine wichtige Rolle spielen. Hierzu müssten noch weitere Untersuchungen durchgeführt werden, um zu prüfen, welche Auswirkungen der relativistische Effekt auf die elementverlustspezifischen Beugungsdiagramme hat.

In den letzten Jahren wurde dem zirkularen Dichroismus im TEM vermehrt Aufmerksamkeit geschenkt. Von Hébert und Schattschneider [10] wurde 2003 der Vorschlag gemacht, zirkularen Dichroismus im TEM mit EELS zu messen. Erste Ergebnisse hierzu wurden von Rubino [26] und Schattschneider [28] präsentiert. Dies könnte auch eine weitere Anwendung der energieverlustspezifischen Beugungsdiagrammen sein.

Kapitel 6

Zusammenfassung

Über die Elementverteilung innerhalb der Einheitszelle eines kristallinen Präparats lassen sich anhand energieverlustspezifischer Beugungsdiagramme nur Aussagen machen, wenn die experimentellen Diagramme mit Simulationen verglichen werden können. Die Simulationen hängen von einigen Parametern, wie der Kristallorientierung, der Symmetrie des Kristalls, der Kristalldicke, der Beschleunigungsspannung des TEM, der Anzahl der Beugungsreflexe und der Elektronenverlustenergie ab, die genauer untersucht werden müssen.

Durch die digitale Aufzeichnung der Beugungsdiagramme mit CCD-Kameras oder aber auch Imaging Plates [3] ist es möglich, elementspezifische Untersuchungen durchzuführen. Es kann in einem unelastisch gefilterten, im Ionisationsenergieverlustbereich des analysierten Elementes aufgezeichneten, Beugungsdiagramm der Untergrund, der durch Ausläufer von Ionisationskanten bei geringeren Energieverlusten und durch Mehrfachstreuung zustande kommt, mithilfe der „Vier-Fenster-Methode“ abgezogen werden, sodass nur der elementspezifische Teil übrig bleibt.

Gegenstand dieser Arbeit war es, die Simulationen von energieverlustspezifischen Beugungsdiagrammen mit den experimentellen energieverlustspezifischen Beugungsdiagrammen für eine zweiatomare Basis zu vergleichen, um Aussagen darüber machen zu können, inwieweit und unter welchen Voraussetzungen die Simulationen zur quan-

titativen Auswertung der ESD beitragen können. Da die Rechenzeit unter anderem nahezu proportional zur vierten Potenz der Anzahl der Blochwellen ist, sollte die Anzahl der bei der Simulation berücksichtigten Reflexe möglichst gering gehalten werden.

Es wurde gezeigt, wie die Rechenzeit stark reduziert werden kann, indem die Anzahl der Blochwellen minimiert wird und dennoch die Genauigkeit der ESD ausreicht. Zur Bestimmung der Anzahl der Blochwellen, die berücksichtigt werden müssen, wurde das Kriterium der Konvergenz der Extinktionslängen benutzt. Eine weitere Rechenzeitreduktion konnte durch die Symmetrie des Kristalls und eine geeignet gewählte Kristallorientierung erreicht werden. Dies wurde an zwei Kristallorientierungen gezeigt, bei denen sich die Rechenzeit um einen Faktor 48 unterscheidet und die Wahl der $\langle 100 \rangle$ -Zonenachsenorientierung für Galliumarsenid bei den Untersuchungen rechtfertigt.

Weitere wichtige Parameter, wie der Debye-Waller-Faktor, die Kristalldicke und die Beschleunigungsspannung, wurden genauer untersucht. Dabei stellte sich heraus, dass der Debye-Waller-Faktor auf die Rechnungen einen relativ großen Einfluss hat und dieser genau bekannt sein muss. Aber auch die Kristalldicke muss genau bestimmt werden und darf im betrachteten Bereich nicht stark variieren. Dies wurde beim Vergleich von experimentellen und an simulierten Beugungsdiagrammen für verschiedene Kristalldicken deutlich. Damit ist eine große Anforderung an die Probenpräparation gestellt. Mit einer Probenpräparation in einer Ionendünnungsanlage, wie sie in dieser Arbeit verwendet wurde, kommt es oft zu großen Dickengradienten in dem beleuchteten Probenbereich, so dass es teilweise schwierig war, eine geeignete Probenstelle zu finden. Durch den Einsatz einer FIB ist es sicher möglich, geeignetere Proben herzustellen, wobei für Galliumarsenid aber auch über die Problematik nachgedacht werden sollte, inwieweit sich z.B. die Galliumionen des FIB-Ionenstrahls in den Galliumarsenidkristall implementieren.

Im letzten Kapitel wurden die elementspezifischen Beugungsdiagramme verglichen. Es konnte gezeigt werden, dass sie für unterschiedliche Elemente eine unterschiedliche Struktur aufweisen, auch wenn die unterschiedlichen Elemente, wie beim Galliumarsenid, auf symmetrieäquivalenten Positionen sitzen. Somit lassen sich Elementverteilungen in der Kristalleinheitszelle mit energieverlustspezifischen Beugungsdiagrammen

grammen in einem TEM untersuchen. Leider stimmen die Simulationen, vor allem bei einer Beschleunigungsspannung von 200 kV , mit den Experimenten nur in wenigen Bereichen überein. Daher sind noch weitere Untersuchungen notwendig, um festzustellen, wie sich z.B. relativistische Effekte bei einer Beschleunigungsspannung von 200 kV bemerkbar machen.

Eine weitere Anwendung der energieverlustspezifischen Beugungsdiagramme könnte die Untersuchung des zirkularen Dichroismus sein. Hierzu wurde 2003 von Hébert und Schattschneider [10] der Vorschlag gemacht, zirkularen Dichroismus im TEM mit EELS zu messen. Erste Ergebnisse hierzu sind in [26] und in [28] präsentiert.

Anhang A

Reflexdatei

h	k	l	Nr.	g ²
0	0	0	1	0
0	0	2	2	4,98198
0	0	-2	3	
0	2	0	4	4,98198
0	-2	0	5	
0	2	2	6	9,96397
0	-2	2	7	
0	2	-2	8	
0	-2	-2	9	
0	0	4	10	19,92793
0	0	-4	11	
0	4	0	12	19,92793
0	-4	0	13	
0	2	4	14	24,90992
0	-2	4	15	
0	2	-4	16	
0	-2	-4	17	
0	4	2	18	24,90992
0	-4	2	19	
0	4	-2	20	
0	-4	-2	21	
0	4	4	22	39,85587
0	-4	4	23	
0	4	-4	24	
0	-4	-4	25	
0	0	6	26	44,83785
0	0	-6	27	
0	6	0	28	44,83785
0	-6	0	29	
0	2	6	30	49,81983
0	-2	6	31	
0	2	-6	32	
0	-2	-6	33	

h	k	l	Nr.	g ²
0	6	2	34	49,81983
0	-6	2	35	
0	6	-2	36	
0	-6	-2	37	
0	4	6	38	64,76579
0	-4	6	39	
0	4	-6	40	
0	-4	-6	41	
0	6	4	42	64,76579
0	-6	4	43	
0	6	-4	44	
0	-6	-4	45	
0	0	8	46	79,71173
0	0	-8	47	
0	8	0	48	79,71173
0	-8	0	49	
0	2	8	50	84,69372
0	-2	8	51	
0	2	-8	52	
0	-2	-8	53	
0	8	2	54	84,69372
0	-8	2	55	
0	8	-2	56	
0	-8	-2	57	
0	6	6	58	89,6757
0	-6	6	59	
0	6	-6	60	
0	-6	-6	61	
0	4	8	62	99,63966
0	-4	8	63	
0	4	-8	64	
0	-4	-8	65	

h	k	l	Nr.	g ²
0	8	4	66	99,63966
0	-8	4	67	
0	8	-4	68	
0	-8	-4	69	
0	0	10	70	124,54958
0	0	-10	71	
0	6	8	72	124,54958
0	-6	8	73	
0	6	-8	74	
0	-6	-8	75	
0	8	6	76	124,54958
0	-8	6	77	
0	8	-6	78	
0	-8	-6	79	
0	10	0	80	124,54958
0	-10	0	81	
0	2	10	82	129,53157
0	-2	10	83	
0	2	-10	84	
0	-2	-10	85	
0	10	2	86	129,53157
0	-10	2	87	
0	10	-2	88	
0	-10	-2	89	
0	4	10	90	144,47752
0	-4	10	91	
0	4	-10	92	
0	-4	-10	93	
0	10	4	94	144,47752
0	-10	4	95	
0	10	-4	96	
0	-10	-4	97	

Tabelle A.1: Erlaubte Reflexe für Galliumarsenid in der $\langle 100 \rangle$ -Orientierung.

Anhang B

Abkürzungen

ALCHEMI	Atom Location by Channeling Enhanced Microanalysis
CCD	Charge-Coupled Device
EELS	Electron Energy-Loss (Spectrometry) Spectrum, Elektronenenergieverlust(spektroskopie) spektrum
EFTEM	Energy Filtered Transmission Electron Microscope, Energiefilterndes Transmissionselektronenmikroskop
ESD	Energy Spectroscopic Diffraction Pattern, Energieverlustspezifische Beugungsdiagramm
ESI	Electron Spectroscopic Imaging, Energieverlustspezifische Abbildung
EZ	Einheitszelle
FIB	Focussed Ion Beam
SNR	Signal-to-Noise Ratio, Signal-Rausch-Verhältnis
TEM	Transmission Electron Microscope, Transmissionselektronenmikroskop

Abbildungsverzeichnis

2.1	Skizze des Anfangs- und Endzustandes des Primärelektrons	16
3.1	Symmetriegerüst und Stereogramm der Punktgruppe $\bar{4}3m$	21
3.2	GaAs Einheitszelle in verschiedenen Orientierungen	22
3.3	Beugungsdiagramme in $\langle 100 \rangle$ -Orientierung (Skizze und Experiment) .	23
3.4	EEL-Spektrum von GaAs	25
3.5	ESD mit unterschiedlichen Debye-Waller-Faktoren bei 1410 eV Ener- gieverlust	27
3.6	Quotientendiagramm zu 3.5 mit Linescan	27
3.7	ESD mit unterschiedlichen Debye-Waller-Faktoren bei 1190 eV Ener- gieverlust	28
3.8	Quotientendiagramm zu 3.7 mit Linescan	28
3.9	Experimentelles Beugungsdiagramm in $\langle 100 \rangle$ -Orientierung	31
3.10	Experimentelles und untergrundkorrigiertes Beugungsdiagramm in $\langle 100 \rangle$ - Orientierung	32
3.11	Schematische Darstellung zur Vier-Fenster-Methode	34
4.1	Skizze der 0kl-Ebene	40
4.2	Tiefenscan von GaAs in $\langle 100 \rangle$ -Orientierung bei 80 kV	41
4.3	Simulierte ESD von GaAs in Abhängigkeit von der Reflexanzahl und der Kristalldicke	42
4.4	Tiefenscan von GaAs in $\langle 110 \rangle$ -Orientierung bei 80 kV	43

4.5	Flussdiagramm der Programme	46
5.1	Dickenserie für GaAs bei 1410 eV Energieverlust und 80 kV (Experiment)	50
5.2	Schematisches Beugungsdiagramm mit Kikuchilinen	51
5.3	Dickenserie für GaAs bei 1410 eV Energieverlust, 80 kV, 50 nm bis 100 nm (Simulation)	52
5.4	Dickenserie für GaAs bei 1190 eV Energieverlust, 80 kV, 50 nm bis 100 nm (Simulation)	53
5.5	Dickenserie für GaAs bei 1410 eV und 1190 eV, 80 kV, 20 nm bis 50 nm (Simulation)	55
5.6	Tiefenscan von GaAs in $\langle 100 \rangle$ -Orientierung bei 80 kV	56
5.7	ESD für GaAs bei 1410 eV Energieverlust, 200 kV Beschleunigungsspannung (Experiment)	57
5.8	Tiefenscan von GaAs in $\langle 100 \rangle$ -Orientierung bei 200 kV	59
5.9	ESD von GaAs bei 1335 eV Energieverlust, 200 kV (Simulation) . . .	59
5.10	Tiefenscan von GaAs in $\langle 100 \rangle$ -Orientierung bei 300 kV	60
5.11	ESD von GaAs bei 1335 eV Energieverlust, 300 kV (Simulation) . . .	60
5.12	Ga-Signal bei 80 kV und einer Kristalldicke von 70 nm (Experiment und Simulation)	63
5.13	Ga-Signal bei 80 kV und einer Kristalldicke von 100 nm (Experiment und Simulation)	63
5.14	As-Signal bei 80 kV und einer Kristalldicke von 70 nm (Experiment und Simulation)	64
5.15	As-Signal bei 80 kV und einer Kristalldicke von 100 nm (Experiment und Simulation)	64
5.16	Detailausschnitte aus Abbildungen 5.12 und 5.14	65
5.17	„Jump-Ratio“-Bilder von Galliumarsenid	66
5.18	Ga-Signal bei 200 kV und einer Kristalldicke von 100 nm (Experiment und Simulation)	68

5.19 As-Signal bei 200 kV und einer Kristalldicke von 100 nm (Experiment und Simulation)	68
5.20 t/Λ -Bild	69
5.21 Linescan durch das t/Λ -Bild	69

Literaturverzeichnis

- [1] AHN C.C. und KRIVANEK O.L.: *EELS Atlas*. Gatan Inc. 780 Commonwealth Drive, Warrendale, PA, USA (1983).
- [2] BORCHARDT-OTT W.: *Kristallographie*. Springer Verlag (Berlin, 1997).
- [3] DITABIS Digital Biomedical Imaging Systems AG, Benefits of Imaging Plates, www.ditabis.de/iptech/iptech.html (2006).
- [4] EGERTON R.F.: *Electron Energy-Loss Spectroscopy in the Electron Microscope*. Second Edition, Plenum Press (New York, 1996).
- [5] EGERTON R.F.: *Inelastic scattering of 80keV electrons in amorphous carbon*. Phil. Mag. **31**, 199-215 (1975).
- [6] EGERTON R.F. und CHENG S.C.: *Measurement of local thickness by electron energy-loss spectroscopy*. Ultramicroscopy **21**, 231-244 (1987).
- [7] FUJIWARA K.: *Relativistic Dynamical Theory of Electron Diffraction*. Jour. Phy. Soc. Japan **16**, 2226-2238 (1961).
- [8] GRALLA B.: *Optimierung der Energieverlustfensterpositionen und Fensterbreite für die Aufnahme von Elementverteilungsbildern*. Diplomarbeit, Westfälische Wilhelms-Universität Münster (2003).
- [9] GREEN A.E.S., SELLIN D.L. und ZACHOR, A.S.: *Analytic Independent-Particle Model for Atoms*. Phys. Rev. **184**, 1-9 (1969).

- [10] HÉBERT C. und SCHATTSCHEIDER P.: *A proposal for dichroic experiments in the electron microscope*. Ultramicroscopy **96**, 463-468 (2003).
- [11] HOFER F., GROGGER W., KOTHLEITNER G., WARBIHLER P.: *Quantitative analysis of EFTEM elemental distribution images*. Ultramicroscopy **67**, 83-103 (1997).
- [12] HÜLK C.: *Charakterisierung von CCD-Kamerasystemen in der Transmissions-elektronenmikroskopie und deren Einsatz bei der Erstellung von Elementverteilungsbildern*. Dissertation, Westfälische Wilhelms-Universität Münster (1998).
- [13] LONSDALE K.: *International Tables for X-Ray Crystallography Vol.1*, (Birmingham, 1965).
- [14] KNIPPELMEYER R.: *Relativistische Betrachtung der unelastischen Streuung von Elektronen für Anwendungen in der Elektronenmikroskopie*. Diplomarbeit, Westfälische Wilhelms-Universität Münster (1996).
- [15] KNIPPELMEYER R., WAHLBRING P., KOHL H.: *Relativistic ionisation cross sections for use in microanalysis*. Ultramicroscopy **68**, 25-41 (1997).
- [16] KNIPPELMEYER R.: *Bestimmung von Übertragungsfunktionen zur quantitativen Auswertung von Elementverteilungsbildern*. Dissertation, Westfälische Wilhelms-Universität Münster (2000).
- [17] KOTHLEITNER G. und HOFER F.: *Optimization of the Signal to Noise Ratio in EFTEM Elemental Maps with Regard to Different Ionization Edge Types*. Micron **29**, 349-357 (1998).
- [18] LANDAU L.D. und LIFSHITZ E.M.: *Lehrbuch der theoretischen Physik, Band III*. Akademie-Verlag (Berlin, 1986).
- [19] METHERELL A.J.F.: *Electron Microscopy in Materials Science, Vol.2*, (1975). Luxembourg: Commission of the European Communities.
- [20] MOLIÈRE K.: *Über den Einfluß der Absorption auf den Brechungseffekt der Elektronenstrahlen II. Teil*. Ann. d. Physik **34**, 461-472 (1939).

- [21] MOORE K.T., STACH E.A., HOWE J.M., ELBERT D.C. und VEBLEN D.R.: *A tilting procedure to enhance compositional contrast and reduce residual diffraction contrast in energy-filtered TEM imaging of planar interfaces*. Micron **33**, 39-51 (2002).
- [22] MÜLLER I.: *Einsatz eines multivarianten Analyseverfahrens zur Segmentierung von Elementverteilungsbildern*. Dissertation, Westfälische Wilhelms-Universität Münster (2001).
- [23] OVERBECK N.: *Untersuchungen zur energieverlustspezifischen Elektronenbeugung in einem Transmissionselektronenmikroskop*. Dissertation, Westfälische Wilhelms-Universität Münster (1999).
- [24] POKROPPA F.: *Berechnung von relativistischen Wirkungsquerschnitten im Rahmen des Zentralfeldmodells für Anwendungen in der Elektronenenergieverlustspektroskopie*. Diplomarbeit, Westfälische Wilhelms-Universität Münster (1999).
- [25] ROSSOUW C.J., MILLER P.R., DRENNAN J. und ALLEN L.J.: *Quantitative absorption corrections for electron diffraction: correlation between theory and experiment*. Ultramicroscopy **34**, 149-163 (1990).
- [26] RUBINO S., SCHATTSCHEIDER P., HÉBERT C.: *TEM experiment on Circular Dichroism in Ni*. in: D. Schryvers, J.-P. Timmermans (Eds.), Proc. 13th Eur. Micr. Congr., Antwerp, Belgium, August 22-27, 2004 **Vol. II**, Belgian Society for Microscopy, 313 (Liège, 2004).
- [27] SARAVANAN R., MOHANLAL S.K. und CHANDRASEKARAN K.S.: *Anharmonic Temperature Factors, Anomalous-Dispersion Effects and Bonding Charges in Gallium Arsenide*. Acta Cryst. **A48**, 4-9 (1992).
- [28] SCHATTSCHEIDER P., RUBINO S., HÉBERT C., RUSZ J., KUNEŠ J., NOVÁK P., CARLINO E., FABRIZIOLI M., PANACCIONE G. und ROSSI G.: *Detection of magnetic circular dichroism using a transmission electron microscope*. Nature **441**, 486-488, (2006).

- [29] SPENCE J.C. und TAFTØ J.: *ALCHEMI: a new Technique for Locating Atoms in Small Crystals*. Jour. of Micr. **130**, 147-154 (1983).
- [30] TAFTØ J. und KRIVANEK O.L.: *Site-Specific Valence Determination by Electron Energy-Loss Spectroscopy*. Phys. Rev. Lett. **48**, 560-563 (1982).
- [31] THESING A.: *Bestimmung von Phasen komplexer Atomstreuamplituden und von partiellen Zwei-Teilchen-Strukturfaktoren amorpher Proben*. Dissertation, Westfälische Wilhelms-Universität Münster (2005).
- [32] WANG Z.L.: *Elastic and Inelastic Scattering in Electron Diffraction and Imaging*. Plenum Press (New York, 1995).
- [33] WEICKENMEIER A.: *Berechnung von energiegefilterten elektronenmikroskopischen Beugungsdiagrammen*. Dissertation, Technische Hochschule Darmstadt (1991).
- [34] WILLIAMS D.B. und CARTER C.B.: *Transmission Electron Microscopy*. Plenum Press (New York, 1996).
- [35] WYCKOFF R.W.G.: *Crystal Structures Volume 1*. (New York, 1963). 108-111.
- [36] YOSHIOKA H.: *Effect of Inelastic Waves on Electron Diffraction*. J. Phys. Soc. Japan **12**, 618-628 (1957).

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich mich besonders bedanken bei:

Herrn Prof. Dr. Helmut Kohl für die Möglichkeit zur Anfertigung dieser Arbeit und seine Anregungen und sein förderndes Interesse an dieser Arbeit,

Herrn Dr. Andreas Thesing für wertvolle fachliche Diskussionen,

Herrn Benedikt Gralla, der mich am *Libra 200FE* eingearbeitet hat,

Herrn Markus Silder und allen Mitgliedern der elektronenmikroskopischen Abteilung für das freundschaftliche Arbeitsklima und hilfreiche Unterstützung,

Frau Dr. Termeh Navidi-Kasmai für wertvolle fachliche Diskussionen,

Frau Ursula Heitmann, Institut für Planetologie der Westfälischen Wilhelms-Universität Münster, für die Anfertigung der Dünnschliffe,

der Firma *Soft Imaging System* für die Bereitstellung der *MagaView III* Kamera,

und meinen Eltern, die mir das Studium ermöglicht und mich immer unterstützt haben.

