Quantitative Beschreibung von Phasenkontrastaufnahmen im Transmissionselektronenmikroskop

Masterarbeit im Fach Physik
Westfälische Wilhelms-Universität Münster
Physikalisches Institut AG Kohl
September 2014

Stephan Majert stephan.majert@gmail.com

Inhaltsverzeichnis

1 Einleitung **1**

2 Das konventionelle Transmissionselektronenmikroskop **5**
2.1 Grundlegendes 5
2.2 Das TEM als lineares System 8

3 Die Multislice Methode **11**
3.1 Grundlagen 11
3.2 Partielle Kohärenz 14

4 Simulation von Grenzflächenaufnahmen im TEM **17**
4.1 Vorüberlegungen zum Probensystem 18
4.2 TEM-Aufnahme einer Phasenkante 19
4.3 Multislice Simulationen von Grenzflächen amorpher Stoffe 22

5 Kontrast im Raster-Transmissionselektronenmikroskop **25**
5.1 Das Raster-Transmissionselektronenmikroskop 25
5.2 Wellenoptische Beschreibung der Bildentstehung im STEM 28
5.3 Differentieller Phasenkontrast 32

6 Die Phasengradientübertragungsfunktion **37**
6.1 Berechnung 37
6.2 Definition der DPC-Auflösungsgrenze 41

7 DPC-Auflösungsgrenze verschiedener Detektorgeometrien **45**
7.1 Halbkreisdetektor 45
7.2 Verschiedene Quadrantendetektoren 48

8 Zusammenfassung und Ausblick **55**

A Benutzerhandbuch IMP **57**
A.1 Einleitung 57
A.2 Installation und Kompilierung 58
A.3 Verwendung 59
A.4 Anwendungsbeispiel 62

B Phasenkante im TEM **67**

C Schnittfläche eines Vollkreises und eines Halbkreises **69**

Kapitel 1

Einleitung

Durch verschiedene Konfigurationen erlauben Elektronenmikroskope eine Fülle an Kontrastmodi. In dieser Arbeit sollen speziell das konventionelle Transmissionselektronenmikroskop (TEM ≙ **T**ransmission **E**lectron **M**icroscope) und das Raster-Transmissionselektronenmikroskop (STEM ≙ **S**canning **T**ransmission **E**lectron **M**icroscope) betrachtet werden, die sich beide dadurch auszeichnen, dass der im Mikroskop erzeugte Elektronenstrahl eine dünne Probe (5 nm bis 100 nm für Elektronenenergien von 100 keV [1]) durchstrahlt. Weiterhin soll es sich bei den betrachteten (S)TEM um aberrationskorrigierte Geräte handeln. Dies bedeutet, dass ein Linsenfehler der Objektivlinse, nämlich die sphärische Aberration, bei den behandelten (S)TEM durch magnetische Multipole zum Teil korrigiert wird [2]. Ausgestattet mit dieser, in den letzten Jahrzehnten entwickelten, Methode der Linsenfehlerkorrektur erreichen moderne Elektronenmikroskope routinemäßig sub-Ångstrom Auflösungen, was unter anderem die Abbildung einzelner Atomsäulen ermöglicht.

Wir richten besonderes Augenmerk auf den Phasenkontrast und den differentiellen Phasenkontrast (DPC ≙ **D**ifferential **P**hase **C**ontrast). Phasenkontrast bezeichnet einen Kontrastmodus, in dem das Elektronenmikroskop so eingestellt wird, dass das entstehende Bild die von den eingestrahlten Elektronen im Objekt erlittene Phasenverschiebung wiedergibt. Um die Phase der Elektronen sichtbar zu machen, werden Interferenzerscheinungen zwischen den im Objekt gestreuten und den ungestreuten Elektronen ausgenutzt. Zur Erzeugung von Phasenkontrast wird in der Lichtoptik ein Plättchen eingesetzt, das die Phase eines Teils des Lichtes verschiebt. Dies ist prinzipiell auch im Elektronenmikroskop möglich [3], da jedoch jegliche in den Strahlengang eingebrachten Plättchen, neben einer Phasenverschiebung, eine zusätzliche Streuung der Elektronen bewirken würden, ist ein solches Verfahren zur Phasenkontrasterzeugung in der Praxis mit Schwierigkeiten verbunden. Durchgesetzt hat sich im TEM stattdessen die Erzeugung von Phasenkontrast mit Hilfe der in der Objektivlinse auftretenden Linsenfehler [4]. Aufgrund der sphärischen Aberration der Objektivlinse erleiden die Elektronen, die die Linse im Außenbereich passieren, eine zusätzliche Phasenverschiebung im Vergleich zu den Elektronen, die die Linse mittig durchqueren. Phasenkontrast entsteht nun durch Interferenz zwischen Zentral-

und Randelektronen.

Im STEM lassen sich sowohl Phasenkontrast als auch differentieller Phasenkontrast (DPC) erzeugen. Beim DPC wird die Interferenz zwischen verschiedenen, bei kohärent konvergenter Elektronenbeugung entstehenden, Beugungsscheibchen ausgenutzt. DPC lässt sich somit auch an einem STEM frei von Linsenfehlern erreichen. Zur Erzeugung von DPC wird ein in Segmente aufgeteilter Detektor in der Beugungsebene des STEM platziert. In der Praxis können verschiedene Detektorgeometrien, wie z. B. ein in zwei Halbkreise geteilter Kreisdetektor oder ein in vier Quadranten geteilter Ringdetektor, verwendet werden. Durch Subtraktion der von den einzelnen Segmenten detektierten Signale lässt sich ein Bild erzeugen, das dem Gradienten der Phasenänderung der eingestrahlten Elektronen beim Passieren der Probe [5] und damit dem Gradienten des Probenpotentials [6] (daher *differentieller* Phasenkontrast) entspricht.

In dieser Arbeit sollen konkret zwei Fragestellungen aus dem Gebiet der hochaufgelösten (Raster-)Transmissionselektronenmikroskopie behandelt werden. In den Kapiteln 2 bis 4 wird es zunächst um die Simulation von Grenzflächenaufnahmen amorpher Substanzen im TEM gehen. Mit der zunehmenden Miniaturisierung der z. B. in Computern und Mobiltelefonen verwendeten Bauteile wird die Kontrolle der Bauteilmaße immer komplizierter. Als metrologisches Institut ist die Physikalisch-Technische Bundesanstalt (PTB) an der Entwicklung von Normalen auf diesem Gebiet interessiert. Hierzu ist die Position von Grenzflächen in Querschnittspräparationen dieser Bauelemente zu bestimmen. Da die Auflösung von Rasterelektronenmikroskopen für diesen Zweck oft nicht mehr ausreicht, gewinnen TEM-Messungen von querschnittspräparierten Halbleiterstrukturen in der Halbleiterfertigungs-Branche momentan stark an Bedeutung. Damit diese Messungen gute Ergebnisse liefern, ist die Bestimmung der Grenzflächenposition möglichst genau zu gestalten. Auf Vorschlag der PTB soll hier speziell die Frage bearbeitet werden, wie sehr die mit Hilfe der TEM-Aufnahme bestimmte Position einer Grenzfläche zwischen amorphen Stoffen von der tatsächlichen Position der Grenzfläche in der Probe abweicht. Um diese Frage zu beantworten, ist im Zuge dieser Arbeit ein Programm auf Basis der Multislice Methode geschrieben worden, das die Simulation von Grenzflächenaufnahmen im TEM ermöglicht. Grenzflächen zwischen amorphen Stoffen werden in diesem Programm modellhaft durch in den jeweiligen Teilbereichen der Probe zufällig verteilte Atome/Moleküle beschrieben. Der Vergleich zwischen der im Programm angegebenen Grenzflächenposition und der mit Hilfe der hieraus berechneten TEM-Aufnahme bestimmten Grenzflächenposition ermöglicht nun eine Abschätzung von eventuell auftretenden systematischen Fehlern.

In den Kapiteln 5 bis 7 wird die zweite Fragestellung behandelt. Diese befasst sich

mit differentieller Phasenkontrastmikroskopie am STEM. Üblicherweise wird DPC zur Messung von magnetischen Feldern in der Probe bei niedrigen bis mittleren Auflösungen eingesetzt (z. B. [7]). Jüngst ist DPC-Mikroskopie auch zur direkten, hochaufgelösten Messung von elektrischen Feldern in der Probe genutzt worden [8–10]. Da zur Erzeugung von DPC verschiedene Detektorgeometrien verwendet werden können stellt sich die Frage, ob die in [8–10] genutzte Detektorgeometrie für die Erzeugung von hochaufgelöstem DPC überhaupt geeignet ist. Für die direkte Messung von elektrischen Feldern mit DPC müssen prinzipiell zwei Bedingungen erfüllt sein. Zum einen muss die Kontrastübertragung linear sein, d. h. die Probe muss „hinreichend" dünn sein. Für die hier durchgeführten Überlegungen wird angenommen, dass die erste Bedingung für die verwendete Probe gilt, was sich darin niederschlägt, dass die im STEM befindliche Probe hier stets als schwaches Phasenobjekt (d. h. die Probe ändert lediglich geringfügig die Phase der einfallenden Elektronen) beschrieben wird. Zum anderen muss der erhaltene Kontrast den Gradienten des Probenpotentials wiedergeben. Diese Bedingung an das Gerät soll hier durch das Berechnen der Phasenkontrastübertragungsfunktion (PCTF ≙ **P**hase **C**ontrast **T**ransfer **F**unction) geprüft werden, wobei von einem STEM ohne Linsenfehler ausgegangen wird. Um die Betrachtung der Kontrastübertragungscharakteristik des Gradienten des Probenpotentials zu erleichtern, wird die PCTF leicht modifiziert. Die resultierende modifizierte PCTF wird als PGTF (PGTF ≙ **P**hase **G**radient **T**ransfer **F**unction) bezeichnet. Mit Hilfe der PGTF lässt sich nun, in Abhängigkeit von der konkreten Detektorgeometrie, berechnen, bis zu welcher Strukturgröße noch eine ausreichende Übertragung des Probenpotentialgradienten erfolgt.

Kapitel 2

Das konventionelle Transmissionselektronenmikroskop

Wie bereits in der Einleitung erwähnt, soll zuerst die Simulation von Grenzflächenaufnahmen im konventionellen Transmissionselektronenmikroskop (TEM) besprochen werden. In diesem Kapitel wird dabei das TEM an sich in den Mittelpunkt gerückt. Im ersten Abschnitt des Kapitels erfolgt eine kurze Skizze des Weges der Elektronen durch das Gerät, die für das Verständnis der zu simulierenden Prozesse wichtig ist. Weiterhin werden die Linsenfehler, die bei den hier durchgeführten Simulationen eines TEM berücksichtigt werden, kurz beschrieben. Der zweite Abschnitt des Kapitels dreht sich um den Begriff „lineares System“. Da die aus der Beschreibung des (S)TEM als lineares System resultierende Mathematik zentral für die hier bearbeiteten Fragestellungen ist, soll in diesem Kapitel genauer auf die Anforderungen eingegangen werden, die ein System erfüllen muss, um als linear bezeichnet zu werden.

2.1 Grundlegendes

In einem TEM wird die zu untersuchende Probe von einem Elektronenstrahl durchleuchtet. Das hinter der Probe befindliche Linsensystem sorgt dafür, dass ein stark vergrößertes Bild der Probe entsteht, welches mittels eines fluoreszierenden Schirms oder einer Kamera sichtbar gemacht werden kann. Zur Verdeutlichung der Funktionsweise eines TEM ist in Abb. 2.1 der Strahlenverlauf in einem TEM schematisch dargestellt.

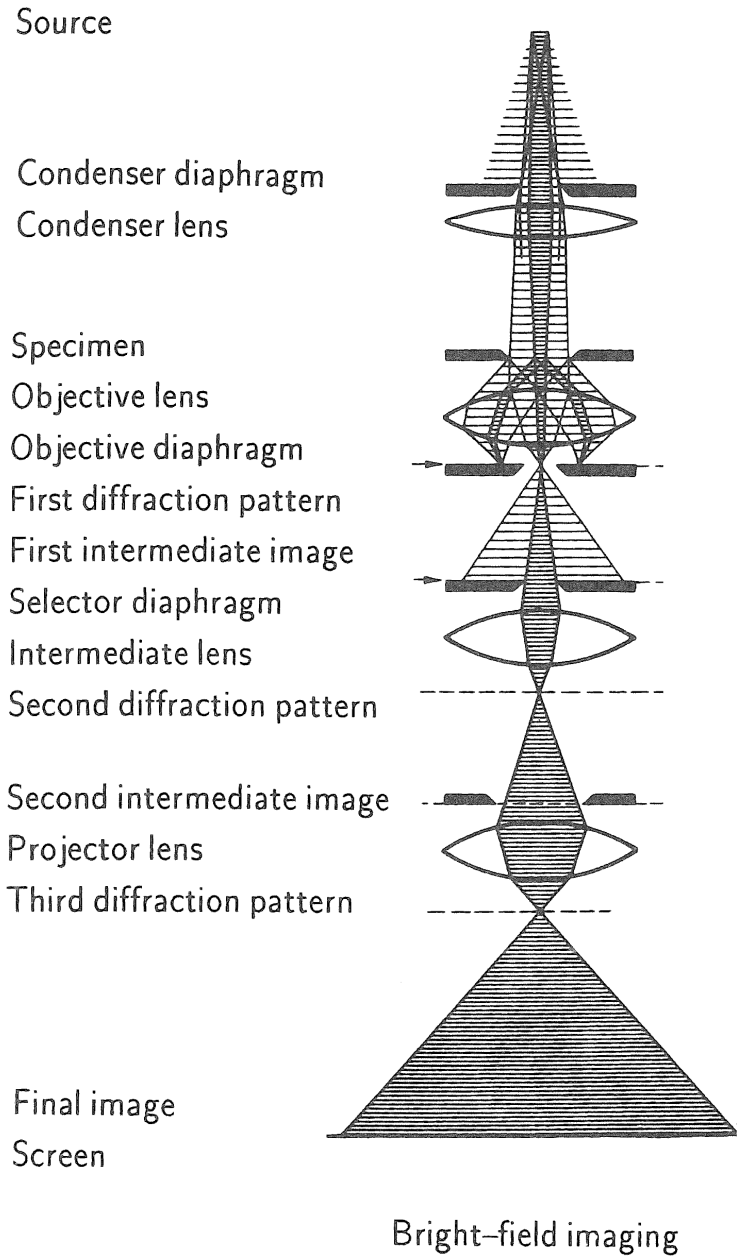

Abbildung 2.1 – Schematischer Strahlenverlauf im TEM [1].

In Abb. 2.1 ist zu sehen, dass zunächst ein Elektronenstrahl an der Elektronenquelle (in Abb. 2.1 „source“) erzeugt wird. Dies geschieht dadurch, dass mittels thermischer Emission oder Feldemission freie Elektronen erzeugt werden, welche dann durch elektrische Felder in Richtung der Probe beschleunigt werden. Das auf die Elektronenquelle folgende System aus Kondensorlinse (engl. „condenser lens“) und Kondensorblende (engl. „condenser diaphragm“) sorgt dafür, dass die Elektronen

möglichst parallel (zur optischen Achse) auf die Probe treffen. In der Praxis ist hier zu berücksichtigen, dass der die Probe ausleuchtende Elektronenstrahl niemals komplett parallel zur optischen Achse ist, sondern zum Teil eine leichte Neigung aufweist. Nach der Transmission des Elektronenstrahls durch die Probe (engl. „specimen“) treffen die Elektronen auf Objektivlinse und -blende (engl. „objective lens/aperture“). Diese erzeugen ein Zwischenbild der Probe, welches durch die folgenden Linsen und Blenden vergrößert und in die Endbildebene (in Abb. 2.1 „final image screen“) projiziert wird.

Der auflösungsbegrenzende Faktor für ein unkorrigiertes TEM ist die sphärische Aberration der Objektivlinse (auch Öffnungsfehler der Objektivlinse genannt). Die Linsenfehler der anderen Linsen, wie z. B. der Kondensorlinse, spielen eine untergeordnete Rolle. Dies liegt daran, dass der Winkelbereich der einfallenden Elektronen bei den anderen Linsen, im Vergleich zur Objektivlinse, klein ist und somit auch die auftretenden Linsenfehler klein sind. Mit dem Begriff „sphärische Aberration“ wird der Umstand beschrieben, dass bei einer (nicht idealen) Linse die Außenbereiche eine kleinere Brennweite aufweisen als der Innenbereich. Dies führt zu der in Abb. 2.2A gezeigten Situation. Bei einem (S)TEM lässt sich dieser Fehler mittels magnetischer Multipole zum Teil korrigieren, sodass ein Strahlenverlauf auftritt, der dem in Abb. 2.2B sehr nahe kommt.

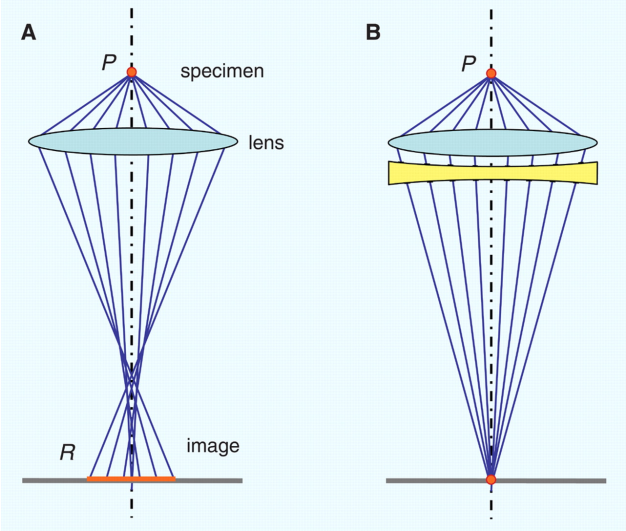

Abbildung 2.2 – Schematische Darstellung des Strahlenverlaufs durch eine Linse bei unkorrigierter (A) und komplett korrigierter (B) sphärischer Aberration [2].

Für aberrationskorrigierte Mikroskope spielt, neben der verbleibenden sphärischen Aberration, noch die chromatische Aberration eine Rolle[1]. Bei diesem Linsenfehler

[1] Bei Elektronenmikroskopen ist als weiterer Linsenfehler noch der Astigmatismus erwähnenswert, der sich allerdings vergleichsweise einfach korrigieren lässt [11] und daher hier nicht weiter diskutiert wird.

ist die Brennweite der Linse abhängig von der deBroglie-Wellenlänge der einfallenden Elektronen. Details zur Berücksichtigung der chromatischen Aberration bei der Simulation von TEM-Aufnahmen mit der Multislice Methode sind in Abschnitt 3.2 zu finden.

2.2 Das TEM als lineares System

Der Begriff „ lineares System“ wird unter anderem zur Beschreibung von elektrischen Netzwerken verwendet. Hier besagt er, dass jedem Eingangssignal $s(t)$ ein einzigartiges Ausgangssignal $g(t)$ gegenübersteht. Mathematisch ausgedrückt bedeutet dies, dass das dem Eingangssignal $as_1(t) + bs_2(t)$ entsprechende Ausgangssignal gerade die Form $ag_1(t) + bg_2(t)$ annimmt, wobei $s_1(t)/g_1(t)$ und $s_2(t)/g_2(t)$ zwei Paare von Eingangs- und Ausgangssignal bezeichnen und a, b Konstanten darstellen. Aus dieser Beziehung folgt (siehe z. B. [12]), dass sich das Verhalten des Systems durch eine Stoßantwortfunktion $h(t, \tau)$ beschreiben lässt, die als Antwort des Systems auf eine Delta-Funktion $\delta(t - \tau)$ definiert ist. Mit Hilfe der Stoßantwortfunktion lässt sich die Reaktion des lineares Systems auf ein beliebiges Signal vermittels des Integrals

$$g(t) = \int_{-\infty}^{\infty} s(\tau)h(t, \tau)\ \mathrm{d}\tau \tag{2.1}$$

berechnen. Ist ein System neben „linear“ auch „zeitinvariant“, so bedeutet dies, dass die Signale $s(t - t_1)$ und $s(t - t_2)$ die Antworten $g(t - t_1)$ und $g(t - t_2)$ liefern, die sich nur durch den Zeitunterschied $t_2 - t_1$ voneinander unterscheiden [13]. Dies heißt wiederum, dass die Stoßantwortfunktion eines linear zeitinvarianten Systems nur von der Zeitdifferenz $t - \tau$ abhängt [12], womit sich Gl. (2.1) vereinfachen lässt zu

$$g(t) = \int_{-\infty}^{\infty} s(\tau)h(t, \tau)\ \mathrm{d}\tau = \int_{-\infty}^{\infty} s(\tau)h(t - \tau)\ \mathrm{d}\tau = s(t) * h(t)\ . \tag{2.2}$$

Die Antwort $g(t)$ eines linear zeitinvarianten Systems auf ein Signal $s(t)$ ist somit gerade die Faltung des Signals mit der Stoßantwortfunktion des Systems $s(t) * h(t)$.

Da es sich bei der Schrödingergleichung um eine lineare (partielle) Differentialgleichung handelt, lässt sich unter bestimmten Näherungen auch das TEM (und das STEM) als lineares, invariantes System behandeln [13]. Hierbei ist das eingehende Signal die Transmissionsfunktion der Probe $t(x, y) = t(\vec{x})$ und die Antwort des Systems die Wellenfunktion in der Bildebene $\psi_i(\vec{x})$. Sowohl Eingangs- als auch Ausgangssignal hängen beim linearen TEM nicht mehr von der Zeit t, sondern von den Raumkoordinaten x, y ab. Die Zeitinvarianz bei einem linear (zeit)invarianten elektrischen Netzwerk entspricht also einer Rauminvarianz (in der Optik als Isoplanasie bezeichnet) bei einem linear (raum)invarianten TEM.

Damit die Bildentstehung in einem TEM als linear rauminvarianter Vorgang behandelt werden kann, müssen einige Voraussetzungen erfüllt sein.

1. Das Gerät muss frei von Rauschen sein. Bei einem linear rauminvarianten TEM wird also jegliches Rauschen, wie es bei einem realen Gerät z. B. durch Schwingungen verursacht werden könnte, vernachlässigt.

2. Zwei gleiche Objekte, die sich an den Positionen (x_1, y_1) und (x_2, y_2) befinden, müssen (bis auf räumlichen Versatz) gleich abgebildet werden (Rauminvarianz/Isoplanasie).

3. Die Probe muss sich durch eine Transmissionsfunktion $t(\vec{x})$ beschreiben lassen.

Voraussetzung **2** lässt sich durch Wählen eines kleinen Sichtfeldes stets zumindest näherungsweise erfüllen [13]. Damit Voraussetzung **3** erfüllt ist, muss die untersuchte Probe hinreichend dünn sein. Wird die Wellenfunktion vor der Probe als $\psi_0(\vec{x})$ bezeichnet, dann gilt im linear rauminvarianten TEM für den Zusammenhang zwischen der Transmissionsfunktion der Probe $t(\vec{x})$ und der Wellenfunktion in der Bildebene $\psi_i(\vec{x})$

$$\psi_i(\vec{x}) = h(\vec{x}) * t(\vec{x})\psi_0(\vec{x}) \ , \tag{2.3}$$

wobei $h(\vec{x})$ die Stoßantwortfunktion des TEM bezeichnet. Die Annahme einer hinreichend dünnen Probe ist in der Realität für viele Proben nicht erfüllt. Diesem Problem kann durch Durchführung einer Multislice Rechnung (siehe Kapitel 3) Abhilfe geschaffen werden, im Zuge derer die Wellenfunktion unmittelbar hinter der Probe $\psi_N(\vec{x})$ berechnet wird. Das linear rauminvariante System besteht dann zwischen dem Eingangssignal $\psi_N(\vec{x})$ und dem Ausgangssignal $\psi_i(\vec{x})$, sodass gilt

$$\psi_i(\vec{x}) = h(\vec{x}) * \psi_N(\vec{x}) \ . \tag{2.4}$$

Die Faltung in Gl. (2.3) lässt sich alternativ unter Verwendung der Fouriertransformation

$$\begin{aligned} \mathbb{F}\mathrm{T}^{2D}[f(\vec{x})] = F(\vec{k}) &= \int f(\vec{x}) e^{-2\pi i \vec{x}\cdot\vec{k}} \ \mathrm{d}^2x \\ \mathbb{F}\mathrm{T}^{-2D}[F(\vec{k})] = f(\vec{x}) &= \int F(\vec{k}) e^{+2\pi i \vec{x}\cdot\vec{k}} \ \mathrm{d}^2k \end{aligned} \tag{2.5}$$

umschreiben zu

$$\psi_i(\vec{x}) = \mathbb{F}\mathrm{T}^{-2D}\left[H(\vec{k}) \ \Psi_N(\vec{k})\right] \ . \tag{2.6}$$

Die Fouriertransformierte der Stoßantwortfunktion eines TEM $H(\vec{k})$ setzt sich zusammen aus den Transmissionsfunktionen von Objektivlinse und -blende [14]

$$H(\vec{k}) = H_O(\vec{k})A(\vec{k}) = \exp\left(-\, i\, \underbrace{\pi\lambda k^2 \left\{ C_5 \frac{(k\lambda)^4}{3} + C_3 \frac{(k\lambda)^2}{2} + C_1 \right\}}_{=\chi(k)} \right) A(\vec{k})\ . \tag{2.7}$$

In diesem Ausdruck wird mittels der Öffnungsfehlerkoeffizienten 3. und 5. Ordnung C_3 und C_5 der Einfluss der sphärischen Aberration berücksichtigt. Weiterhin stellen C_1 den Öffnungsfehlerkoeffizienten 1. Ordnung, λ die deBroglie-Wellenlänge der Elektronen und

$$A(\vec{k}) = \begin{cases} 1, & \text{falls } \lambda|\vec{k}| = \Theta < \theta_0 \\ 0, & \text{sonst} \end{cases} \tag{2.8}$$

die Transmissionsfunktion einer kreisförmigen Objektivblende mit dem Objektivapertur(halb)winkel θ_0 dar.

Kapitel 3

Die Multislice Methode

Um die Simulation von Grenzflächenaufnahmen im TEM durchführen zu können, ist im Zuge dieser Arbeit das Programm IMP (IMP $\widehat{=}$ **I**nterface **M**ultislice **P**rogram) geschrieben worden. Dieses Programm nutzt die Multislice Methode, deren ausführliche Herleitung in [14] zu finden ist. Ein Benutzerhandbuch für das Programm IMP ist im Anhang A zu finden. Im ersten Abschnitt des Kapitels wird ein Überblick über die Gleichungen gegeben, die im Zuge einer Multislice Simulation zu durchlaufen sind. Hierbei wird angenommen, dass der abbildende Elektronenstrahl vollständig kohärent ist. Im zweiten Abschnitt wird besprochen, wie sich der Umstand, dass der abbildende Elektronenstrahl in Wirklichkeit nie komplett kohärent ist, in der Multislice Methode berücksichtigen lässt.

3.1 Grundlagen

Im Zuge der Multislice Methode wird eine Probe, deren TEM-Aufnahme simuliert werden soll, zunächst in dünne Scheibchen der Dicken Δz_n aufgeteilt (siehe Abb. 3.1).

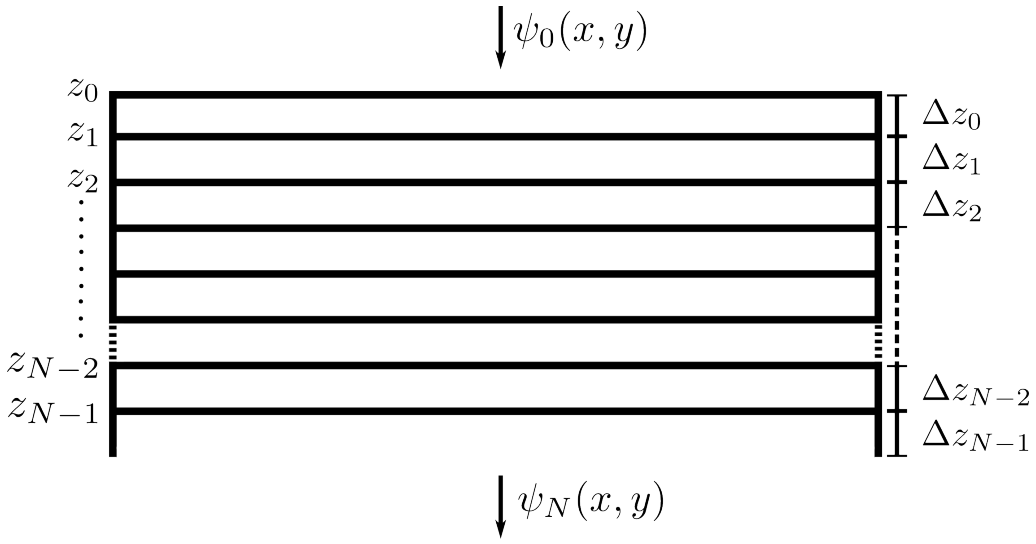

Abbildung 3.1 – Schematische Darstellung einer in N Scheibchen aufgeteilten Probe. Das n-te Scheibchen beginnt an der Position z_n und weist eine Dicke Δz_n auf. Mit Hilfe einer Multislice Rechnung lässt sich aus der einfallenden Wellenfunktion $\psi_0(x,y)$ die Wellenfunktion unmittelbar hinter der Probe $\psi_N(x,y)$ berechnen.

Bei der konkreten Auswahl der Schichtdicke ist es bei einer kristallinen Probe ratsam, sich nach der Struktur der Elementarzelle zu richten. Für eine amorphe Probe kann die Schichtdicke relativ frei gewählt werden, wobei in einer konkreten Rechnung ein Kompromiss zwischen der höheren Genauigkeit einer Rechnung mit kleinen Schichtdicken [14] und den numerisch ungünstigen Eigenschaften einer aus sehr vielen Scheibchen bestehenden Probe (höhere Dauer der Rechnung und bei Berücksichtigung partieller Kohärenz je nach Programm höherer Arbeitsspeicherbedarf) getroffen werden muss. Da nun jedes Scheibchen für sich genommen ein dünnes Objekt darstellt, lässt sich die Wirkung jedes Scheibchens auf einen Elektronenstrahl durch eine Transmissionsfunktion $t(x,y)$ und eine Propagationsfunktion $p(x,y,\Delta z)$ beschreiben. Für das n-te Scheibchen lauten diese

$$t_n(x,y) = \exp\left(\frac{2\pi i m_e e \lambda}{h} \int_{z_n}^{z_n+\Delta z_n} V(x,y,z')\,\mathrm{d}z'\right) \tag{3.1}$$

und

$$p(x,y,\Delta z_n) = \frac{1}{i\lambda\Delta z_n} \exp\left(\frac{i\pi}{\lambda\Delta z_n}(x^2+y^2)\right)\ , \tag{3.2}$$

wobei $V(x,y,z)$ das Potential der Probe, m_e die Ruhemasse des Elektrons, e die Elementarladung, h das Plancksche Wirkungsquantum und λ die deBroglie-Wellenlänge der einfallenden Elektronen bezeichnen.

Der nächste Schritt besteht darin, die einfallende Wellenfunktion $\psi_0(x,y)$ zu be-

rechnen, die den die Probe beleuchtenden Elektronenstrahl beschreibt. Unter der Annahme, dass ein um den kleinen Winkel $\vec{\alpha} = (\alpha_x, \alpha_y)$ gekippter, vollständig kohärenter[1] Elektronenstrahl auf die Probe trifft, ergibt sich [14]

$$\psi_0(x, y) = \exp(2\pi i(\alpha_x x + \alpha_y y)) = \exp(2\pi i \vec{\alpha} \cdot \vec{x}) \ . \tag{3.3}$$

Es folgt die eigentliche Multislice Rechnung, bei der die Wellenfunktion nach dem Prinzip

$$\begin{aligned}
\psi_0'(x, y) &= \psi_0(x, y) t_0(x, y) \\
\psi_1(x, y) &= [\psi_0(x, y) t_0(x, y)] * p(x, y, \Delta z_0) = \psi_0'(x, y) * p(x, y, \Delta z_0) \\
\psi_1'(x, y) &= \psi_1(x, y) t_1(x, y) \\
&\vdots \\
\psi_N(x, y) &= \psi_{N-1}'(x, y) * p(x, y, \Delta z_{N-1})
\end{aligned} \tag{3.4}$$

durch jedes einzelne Scheibchen der Probe transmittiert und propagiert wird. Das in den Gleichungen (3.4) geschilderte Konzept lässt sich auch in der rekursiven Gleichung

$$\psi_{n+1}(x, y) = [\psi_n(x, y) t_n(x, y)] * p(x, y, \Delta z_n) \tag{3.5}$$

darstellen, die die Wellenfunktion unmittelbar vor dem $n + 1$-ten Scheibchen mit der Wellenfunktion unmittelbar vor dem n-ten Scheibchen verknüpft. In der Praxis erfolgt die Ausführung einer Multislice Rechnung numerisch, wobei ein entsprechendes Multislice Programm zunächst $\psi_0(x, y)$ mittels Gl. (3.3) berechnet und dann Gl. (3.5) z. B. in der Form

$$\psi_{n+1}(x, y) = \mathbb{F}\mathrm{T}^{-2D} \left[\mathbb{F}\mathrm{T}^{2D} \left[\psi_n(x, y) t_n(x, y) \right] P(k_x, k_y, \Delta z_n) \right] \tag{3.6}$$

durchführt. Anstelle der expliziten Durchführung der Faltung wird in der abgewandelten rekursiven Gleichung die Fouriertransformation (siehe Gl. (2.5)) verwendet, da für diese mit der Fast-Fourier-Transformation[2] (FFT) ein schneller Algorithmus zur Verfügung steht. Nachdem, durch komplettes Durchlaufen von Gl. (3.6), die Wellenfunktion hinter der Probe $\psi_N(x, y)$ berechnet worden ist, lässt sich durch Faltung mit der Stoßantwortfunktion des TEM, wie in Gl. (2.4) geschildert, die Wellenfunktion in der Bildebene des TEM berechnen. Das Aussehen der Stoßantwortfunktion hängt von den konkreten Eigenschaften der Objektivlinse ab, welche dem Programm entsprechend vorgegeben werden müssen. Im letzten Schritt ist noch das Betragsquadrat der Wellenfunktion in der Bildebene $\psi_i(x, y)$ zu bilden, das gerade

[1] Diese Annahme ist in der Realität nie vollständig erfüllt. Zur Berücksichtigung dieses Umstandes siehe Abschnitt 3.2.

[2] In dem im Zuge dieser Arbeit geschriebenen Multislice Programm IMP ist für die FFT der *fftw*-Algorithmus [15] verwendet worden.

der Stromdichte in der Bildebene und somit dem auf dem fluoreszierenden Schirm des TEM sichtbaren Bild entspricht.

3.2 Partielle Kohärenz

In Abschnitt 3.1 ist davon ausgegangen worden, dass der Abbildungsvorgang im TEM vollständig kohärent verläuft. Diese Anforderung ist in der Realität niemals erfüllt. Dies liegt unter anderem daran, dass der einfallende Elektronenstrahl immer einen gewissen Kippungsbereich $[\alpha_{\min}, \alpha_{\max}]$ aufweist, was dazu führt, dass die abbildende Elektronenwelle räumlich nur partiell kohärent ist. Weiterhin führen leichte Instabilitäten in der Hochspannung für die Elektronenquelle und die chromatische Aberration der Objektivlinse dazu, dass die abbildenden Elektronen auch zeitlich nur partiell kohärent sind. Die zeitlich partielle Kohärenz lässt sich durch eine Schwankung der Fokusposition beschreiben, was einer Schwankung der Defokussierung $\Delta f = -C_1$ entspricht. Um die partielle Kohärenz des gesamten Abbildungsvorgangs zu berücksichtigen, sind beide Effekte, räumlich und zeitlich partielle Kohärenz, zu beachten.

Die Simulation der räumlich partiellen Kohärenz lässt sich durch Integration des mittels der kohärenten Multislice Methode (Abschnitt 3.1) berechneten TEM-Bildes über die Strahlkippung α erreichen [14]. Im Programm IMP wird, zum Erhalten der Stromdichte in der Bildebene bei räumlich partieller Kohärenz $j_{i,rp}(x, y)$, die Integration mittels einer Summe nach dem Prinzip

$$j_{i,rp}(x, y) = \int |\psi_i(x, y)_{\vec{\alpha}=\vec{\alpha}'}|^2 \, \mathrm{d}^2\alpha' \approx \frac{1}{Q} \sum_{m=0}^{Q} |\psi_i(x, y)_{\vec{\alpha}=\vec{\alpha}_m}|^2 \tag{3.7}$$

durchgeführt, wobei Q die Anzahl der zur numerischen Integration berechneten Stützpunkte ist und $\alpha_{m,x/y} \in [\alpha_{\min}, \alpha_{\max}]$ gilt. Wie in Gl. (3.7) ersichtlich erfolgt bei der Integration über die Strahlkippung α in IMP keine Gewichtung, was bedeutet, dass das Programm von einer im Kippungsbereich $[\alpha_{\min}, \alpha_{\max}]$ homogen ausgeleuchteten Probe ausgeht.

Zeitlich partielle Kohärenz lässt sich konzeptionell ähnlich berücksichtigen, wobei hier nicht mehr über die Strahlkippung $\vec{\alpha}$, sondern über den Öffnungsfehlerkoeffizienten erster Ordnung C_1 zu integrieren ist. Die auftretende Öffnungsfehlerschwankung wird durch eine Gaußverteilung [14, 16]

$$G(C_1') = \exp\left(-0.5 \left\{ \frac{C_1' - C_1}{\sigma} \right\}^2 \right) \tag{3.8}$$

mit der Standardabweichung σ gewichtet. Bei der Integration in IMP werden nur die Werte von C_1' berücksichtigt, die noch innerhalb der 2.5σ-Umgebung liegen. Konkret lautet die im Programm ausgeführte Summe zur Berücksichtigung der zeitlich partiellen Kohärenz

$$j_{i,zp}(x,y) = \left(\sum_{l=0}^{Q'} G(C_{1l}')\right)^{-1} \sum_{l=0}^{Q'} G(C_{1l}')|\psi_i(x,y)_{C_1=C_{1l}'}|^2 \ , \tag{3.9}$$

wobei Q' die Anzahl der berechneten Werte in der 2.5σ-Umgebung der Gaußverteilung ist und $C_{1l} \in [C_1 - 2.5\sigma, C_1 + 2.5\sigma]$ gilt. Gl. (3.9) beschreibt den Einfluss der unterschiedlichen Energien der Elektronen im Elektronenstrahl auf das TEM-Bild nur im Bezug auf die entstehende „Fokusbreite“ (engl. „focal spread“) der Objektivlinse. Der Umstand, dass andere deBroglie-Wellenlängen λ auch andere Werte der in der Multislice Rechnung genutzten Transmissions- und Propagationsfunktionen (siehe Abschnitt 3.1) zur Folge haben, wird also nicht berücksichtigt. So lange die Energiebreite des einfallenden Elektronenstrahls nicht weit über den üblichen Werten (0.3-2 eV [1]) liegt, ist dieser Effekt allerdings für nicht allzu dicke Proben vernachlässigbar.

Durch Kombination von Gl. (3.7) und Gl. (3.9) lässt sich die Stromdichte in der Bildebene unter Berücksichtigung partieller Kohärenz $j_i(x,y)$ mit [14]

$$j_i(x,y) = \left(Q\sum_{l=0}^{Q'} G(C_{1l}')\right)^{-1} \sum_{m=0}^{Q}\sum_{l=0}^{Q'} G(C_{1l}')|\psi_i(x,y)_{\vec{\alpha}=\vec{\alpha}_m, C_1=C_{1l}'}|^2 \tag{3.10}$$

numerisch berechnen. Hierbei ist erneut $\alpha_{m,x/y} \in [\alpha_{\min}, \alpha_{\max}]$ und $C_{1l} \in [C_1 - 2.5\sigma, C_1 + 2.5\sigma]$. Bei der Nutzung von IMP ist es hilfreich zu wissen, dass die Berücksichtigung der zeitlich partiellen Kohärenz ohne allzu großen Zeitaufwand durchgeführt werden kann, da für eine Variation von C_1 kein erneutes Durchführen der eigentlichen Multislice Rechnung nötig ist. Im Gegensatz dazu muss für die Berücksichtigung der räumlich partiellen Kohärenz für jede Strahlkippung $\vec{\alpha}$ eine komplette Multislice Rechnung durchlaufen werden, da der Parameter $\vec{\alpha}$ bereits für die Berechnung der Wellenfunktion vor der Probe benötigt wird. Da $\vec{\alpha}$ außerdem in zwei Richtungen (x- und y) variiert, vergrößert sich die benötigte Laufzeit des Simulationsprogramm IMP bei einer Vergrößerung des $[\alpha_{\min}, \alpha_{\max}]$-Intervalls erheblich.

Die Auswirkung der partiellen Kohärenz auf die Bildentstehung besteht darin, dass sich benachbarte Bereiche der Übertragungsfunktion des TEM überlappen. Da die Übertragungsfunktion bei hohen Raumfrequenzen schnell oszilliert, wird sie durch partielle Kohärenz in diesem Raumfrequenzbereich gedämpft [14]. Partielle Kohärenz führt also dazu, dass Raumfrequenzen ab einer bestimmten Höhe im Bild nicht mehr sichtbar sind und stellt damit eine Auflösungsbegrenzung für das Gerät dar.

Kapitel 4

Simulation von Grenzflächenaufnahmen im TEM

Mit der fortschreitenden Miniaturisierung besteht die metrologische Notwendigkeit, die Position von Grenzflächen möglichst genau zu bestimmen. In diesem Kapitel werden Simulationen von TEM-Aufnahmen von Grenzflächen zwischen verschiedenen amorphen Stoffen durchgeführt. Durch Vergleich der simulierten TEM-Aufnahme mit der im Programm angegebenen Probenstruktur lässt sich feststellen, wie gut die Position der Grenzfläche in der TEM-Aufnahme mit der tatsächlichen Position der Probe übereinstimmt. Im Speziellen soll hier, inspiriert von [17], eine Grenzfläche von amorphem Platin zu amorphem Siliziumdioxid untersucht werden, die auf einen Siliziumkristall aufgebracht ist. Im ersten Abschnitt des Kapitels wird das betrachtete Probensystem kurz vorgestellt. Weiterhin werden einige Überlegungen dazu angestellt, welcher Teil des Probensystems tatsächlich simuliert werden muss. Während im zweiten Abschnitt des Kapitels noch ein analytisch lösbares Modell für die Simulation einer Grenzfläche zwischen zwei amorphen Stoffen verwendet wird, wird im letzten Abschnitt des Kapitels das Probensystem mit Hilfe der Multislice Methode untersucht.

Für alle Simulationen in diesem Kapitel sind ein Objektivaperturwinkel von $\theta_0 = 25\,\mathrm{mrad}$, eine Beschleunigungsspannung von $U_{\mathrm{acc}} = 300\,\mathrm{kV}$ [17] und ein Öffnungsfehlerkoeffizient 5. Ordnung $C_5 = 2.5\,\mathrm{mm}$ [18] verwendet worden. Die Parameter C_1 und C_3 sind beim korrigierten TEM frei wählbar, sodass sich die Übertragungsfunktion des TEM entweder auf die Übertragung der Phase oder der Amplitude der abgebildeten Elektronenwelle optimieren lässt [16]. Wird die Übertragung der Phase optimiert („Phasenkontrast“), ergibt sich aus den bereits angegeben Parametern $C_1 = 43\,\text{Å}$ und $C_3 = -0.007\,\mathrm{mm}$. Für eine Optimierung der Amplitudenübertragung („Amplitudenkontrast“) ist $C_1 = 2\,\text{Å}$ und $C_3 = -0.002\,\mathrm{mm}$ zu wählen. Ist bei einer Simulation in diesem Kapitel partielle Kohärenz berücksichtigt worden, so geschah dies mit einer Strahlkippung $\alpha \in [-0.6\,\mathrm{mrad}, 0.6\,\mathrm{mrad}]$, $\sigma = 50\,\text{Å}$ und einer Abtastweite von $\delta C_1 = 10\,\text{Å}$ [14]. Für alle dargestellten Multislice Simulationen wurde, sofern nicht anders angegeben, eine Bildgröße von 2048×2048 Pixel verwendet. Bei allen Multislice Simulationen in Abschnitt 4.3 ist eine Scheibchendicke von $\Delta z = 1\,\mathrm{nm}$

gewählt worden, während die Scheibchendicke in der Simulation in Abschnitt 4.1 5.43 Å beträgt (Dicke einer Si(111)-Elementarzelle) [14].

4.1 Vorüberlegungen zum Probensystem

Zu dieser Arbeit gab unter anderem die Frage Anlass, wo in dem in Abb. 4.1 gezeigten Probensystem die Grenzfläche zwischen amorphem Platin und amorphen SiO_2 liegt. Dieses Probensystem Pt-SiO_2-Si soll daher auch im Mittelpunkt der hier durchgeführten Simulationen stehen.

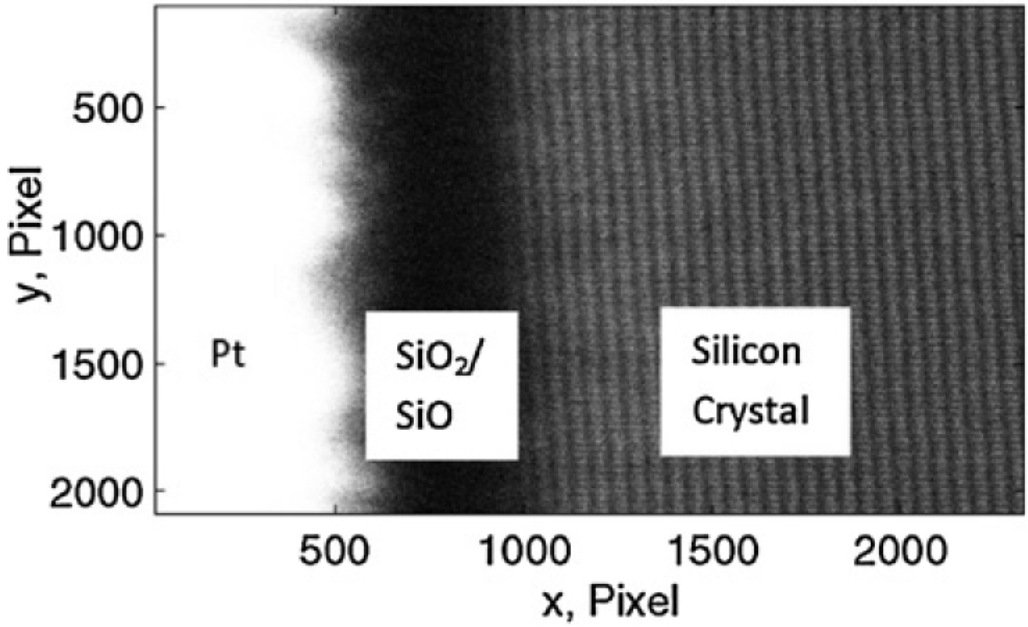

Abbildung 4.1 – STEM-Aufnahme des Platin-SiO_2-Silizium Probensystems mit einem annularen Dunkelfelddetektor („high-angle annular dark field“-STEM) [17].

In dem in Abb. 4.1 gezeigten Probensystem ist primär die Grenzfläche zwischen Platin und SiO_2 von Interesse. Es wäre daher günstig, das kristalline Silizium bei der Simulation der Pt-SiO_2-Grenzfläche vernachlässigen zu können. Hierzu ist jedoch zuerst zu klären, inwiefern der Si-Kristall Einfluss auf die an der Grenzfläche gemessenen Intensitäten hat. Dies kann durch Simulation eines Si-Kristalls angrenzend an leeren Raum mittels einer Multislice Rechnung untersucht werden. Die Ergebnisse der Simulation sind in Abb. 4.2 dargestellt.

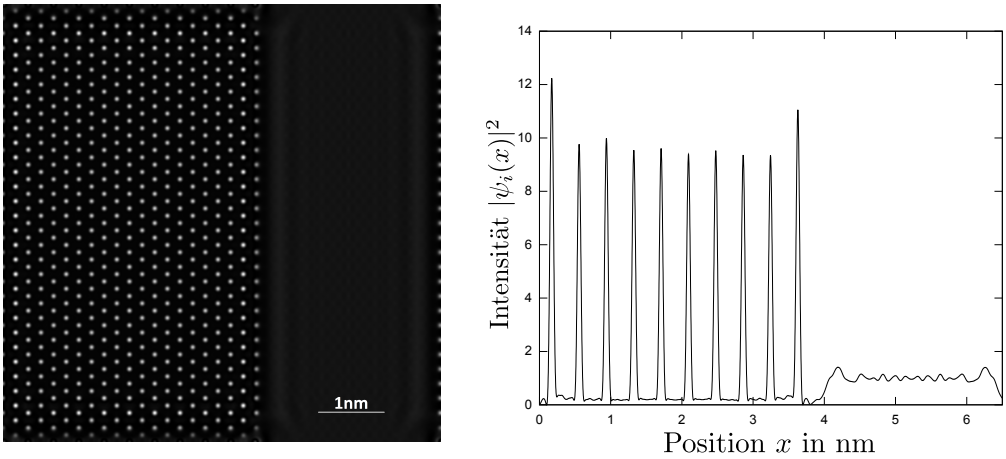

Abbildung 4.2 – Multislice Simulation einer Grenzfläche zwischen 108.6 nm dickem Silizium in (111)-Orientierung und leerem Raum bei axialer Beleuchtung, Vernachlässigung partieller Kohärenz, Amplitudenkontrast und einer Bildgröße von 4096×4096 Pixel. Die simulierte Aufnahme ist links zu sehen, während der Graph auf der rechten Seite der Abbildung ein Profil senkrecht zur Grenzfläche bei $x_G = 3.8$ nm zeigt.

Wie im Graphen in Abb. 4.2 zu sehen ist, nimmt die Intensität bereits im Abstand von etwas unter 1 nm vom Siliziumkristall einen Wert von ungefähr 1 an. Da die einfallende Wellenfunktion bei der Simulation für jeden Pixel einen Wert nach dem Schema $\psi_0(x, y) = \exp(i\varphi(x, y))$ ($\Rightarrow |\psi_0(x, y)|^2 = 1$) aufweist, bedeutet dies, dass die Wellenfunktion bereits in diesem Abstand durch den Kristall kaum mehr beeinflusst wird. Bestimmung der Breite der SiO_2-Schicht bei der in [17] untersuchten Probe mit Hilfe des in der Publikation gegebenen Maßstabes liefert einen Wert von ca. $2 - 3$ nm, sodass davon ausgegangen werden kann, dass der Einfluss des Siliziumkristalls auf das Bild der Grenzfläche zwischen Platin und SiO_2 gering ist. Zur Untersuchung dieser Grenzfläche ist somit die Vernachlässigung des benachbarten Siliziumkristalls vertretbar. Das Abweichen der Intensität von dem Wert 1 im ganz rechten Teil der Aufnahme in Abb. 4.2 ist nicht auf die mittlere Grenzfläche zwischen Kristall und leerem Raum zurückzuführen, sondern auf die Grenzfläche zwischen Kristall und leerem Raum am rechten bzw. linken Rand des Bildes. Diese Grenzfläche tritt auf, weil die bei der Multislice Rechnung verwendete diskrete Fouriertransformation periodische Randbedingungen impliziert.

4.2 TEM-Aufnahme einer Phasenkante

Die Hochenergie-Näherung [19] besagt, dass für Elektronen, deren kinetische Energie weit über dem Potential des durchstrahlten Objekts liegt, sich das Objekt in Form einer Phasenverschiebung auf die Elektronenwelle auswirkt. Eine dünne Probe, bestehend aus einer Grenzfläche zwischen zwei amorphen Stoffen, lässt sich daher

modellhaft durch eine Phasenkante

$$\varphi(x) = \delta\varphi \cdot \Delta(x) = \begin{cases} \delta\varphi, & \text{falls } x > 0 \\ 0, & \text{falls } x < 0 \end{cases} \tag{4.1}$$

beschreiben, wobei $\Delta(x)$ die Heaviside-Funktion ist. Die Transmissionsfunktion einer Phasenkante lautet somit

$$t(x) = e^{i\varphi(x)} = e^{i\delta\varphi\Delta(x)} \ . \tag{4.2}$$

Unter Annahme eines linear rauminvarianten TEM lässt sich nun mittels der in Kapitel 2 eingeführten Gleichungen die Bildintensität bei Abbildung einer Phasenkante berechnen (siehe Anhang B). Numerisches Auswerten des sich hierbei ergebenden Integrals für $\delta\varphi = 1$ und den zu Beginn dieses Kapitels genannten Parametern liefert die in Abb. 4.3 gezeigten Graphen.

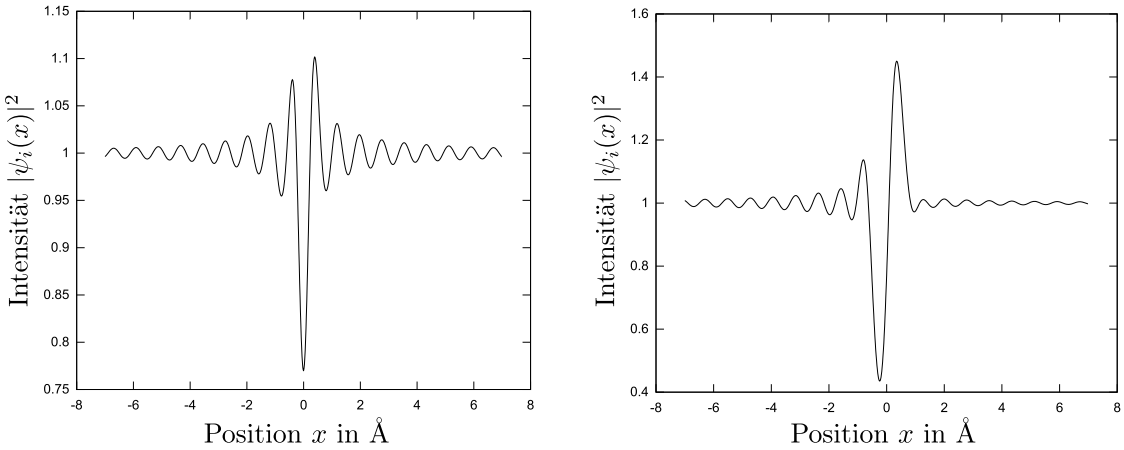

Abbildung 4.3 – Simulierte TEM-Aufnahme einer Phasenkante $\delta\varphi = 1$ mit Amplitudenkontrast (links) und Phasenkontrast (rechts).

Abb. 4.3 zeigt, dass in diesem Modell die Grenzfläche im TEM-Bild weder bei Amplitudenkontrast noch bei Phasenkontrast als Kante sichtbar ist. Dies ist zum einen darauf zurückzuführen, dass sich die Amplitude der Transmissionsfunktion $t(x)$ nicht ändert, was hier dazu führt, dass der reine Amplitudenkontrast gleiche Werte links und rechts von der Phasenkante aufweist. Zum anderen werden die niedrigen Raumfrequenzen der Kantenstruktur in der Phase der Transmissionsfunktion vom Mikroskop nicht ausreichend übertragen, um zu einer Abbildung der Kante zu führen. Die Kontrastübertragung eines Phasenobjekts wird durch die Phasenkontrastübertragungsfunktion beschrieben, die sich beim TEM als Imaginärteil der fouriertransformierten Transmissionsfunktion der Objektivlinse $\mathrm{Im}[H_0(k)]$ [16] ergibt (siehe Abb. 4.4). Dass niedrige Raumfrequenzen in der Phase der Transmissionsfunktion nicht bzw. nur geringfügig übertragen werden, liegt am geringen Wert der

Phasenkontrastübertragungsfunktion des TEM bei niedrigen Raumfrequenzen.

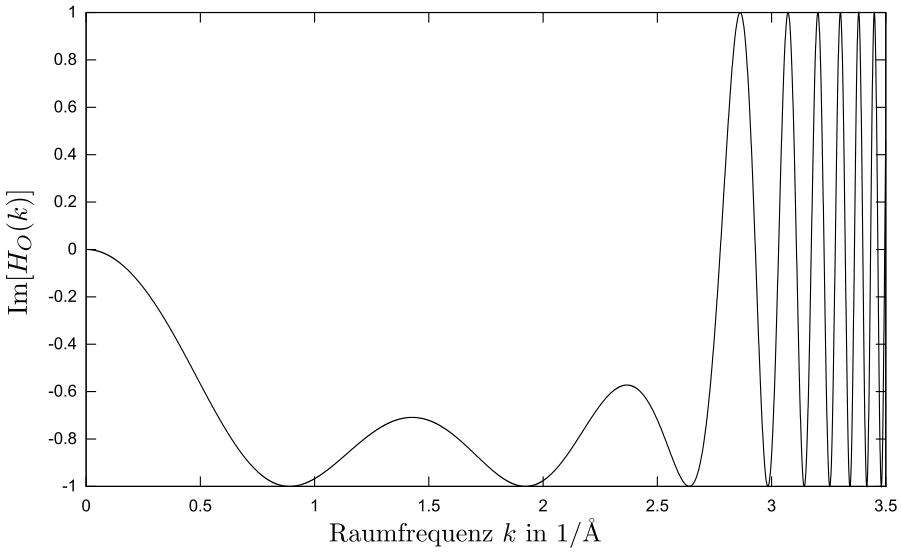

Abbildung 4.4 – Phasenkontrastübertragungsfunktion des TEM für $C_1 = 43\,\text{Å}$, $C_3 = -0.007\,\text{mm}$ und $C_5 = 2.5\,\text{mm}$ in Abhängigkeit von der Raumfrequenz k.

In der in Abb. 4.1 gezeigten Dunkelfeldaufnahme des Probensystems im STEM ist ein Intensitätsunterschied zwischen den Bereichen links und rechts von der Pt-SiO_2-Grenzfläche sichtbar. Das gleiche Intensitätsniveau auf beiden Seiten der simulierten Hellfeldaufnahme der Phasenkante (Abb. 4.3) deutet an, dass dieser Intensitätsunterschied entweder beim TEM nicht auftritt, oder eine Phasenkante als Modell einer Grenzfläche zwischen zwei amorphen Stoffen nicht ausreichend ist. In der Tat wird bei der Verwendung einer Phasenkante als Probenpotential die Streuung der Elektronen an den einzelnen Atomen der amorphen Stoffe vernachlässigt. Da so gestreute Elektronen, je nach Stärke der Ablenkung, an der Blende absorbiert werden könnten, wird somit auch der auftretende Streu-Absorptionskontrast nicht berücksichtigt. Um dies zu vermeiden, werden im Folgenden Abschnitt die amorphen Stoffe als aus Atomen/Molekülen zusammengesetzt beschrieben. Tatsächlich ergibt sich in den entsprechenden Bildsimulationen ein Intensitätsunterschied[1] zwischen den Bereichen links und rechts von der Grenzfläche, der sich zur Bestimmung der Grenzflächenposition anbietet. Bei der Bestimmung der Grenzflächenposition auf diese Weise spielen Phasen- und Amplitudenkontrast keine Rolle. Die in Abb. 4.3 gezeigte Simulation weist allerdings bei Amplitudenkontrast geringere Intensitätsschwankungen auf, die auf beiden Seiten der Phasenkante ungefähr gleich sind. In der Hoffnung, den Einfluss von Phasen- und Amplitudenkontrast auf die Position

[1] Da Hellfeldaufnahmen simuliert worden sind, ist, im Gegensatz zu Abb. 4.1, auf diesen Bildern das Platin als dunkler Bereich und das SiO_2 als heller Bereich zu sehen.

der Grenzfläche möglichst gering zu halten, werden im Folgenden Abschnitt für die Bildsimulationen die auf die Übertragung der Amplitude optimierten Parameter verwendet.

4.3 Multislice Simulationen von Grenzflächen amorpher Stoffe

Als Alternative zur Phasenkante aus Abschnitt 4.2 wird ein Modellpotential verwendet, bei dem amorphe Stoffe durch zufälliges Verteilen von Atomen/Molekülen dargestellt werden. Die analytische Behandlung eines solchen, intrinsisch numerischen, Potentials gestaltet sich schwierig, weshalb die Simulation der dem Potential entsprechenden TEM-Aufnahme mit Hilfe der Multislice Methode (siehe Kapitel 3) durchgeführt wurde. Zur Darstellung einer Grenzfläche zwischen zwei amorphen Stoffen wird für die einzelnen Scheibchen die Transmissionsfunktion

$$t(\vec{x}) = \exp\left(\frac{2\pi i m_e e \lambda}{h}\left\{\sum_{l=1}^{N_a} V_{z,a}(|\vec{x}-\vec{x}_l|) + \sum_{m=1}^{N_b} V_{z,b}(|\vec{x}-\vec{x}_m|)\right\}\right) \tag{4.3}$$

verwendet. Der Einfachheit halber soll sich die Grenzfläche in der Mitte der Probe befinden. $V_{z,a}(\vec{x})$ und $V_{z,b}(\vec{x})$ sind dann die projizierten Potentiale eines einzelnen Atoms/Moleküls des Stoffes in der linken und der rechten Probenhälfte. Die Vektoren $\vec{x}_l$ und $\vec{x}_m$ in Gl. (4.3) sind zufällig in der jeweiligen Hälfte der Probe verteilt und die Anzahl der Summanden N_a und N_b ist abhängig von der Dichte der Stoffe links und rechts von der Grenzfläche.

Abb. 4.5 (links) zeigt die Simulation einer $D = 50\,\text{nm}$ dicken Probe bestehend aus einer Grenzfläche zwischen amorphem Platin und amorphem SiO_2 bei $x_G = 30\,\text{Å}$. Die Position der (tatsächlichen) Grenzfläche ist dabei als der Punkt $x = x_G$ definiert für den gilt, dass sich im Bereich $x > x_G$ keine Mittelpunkte von Platinatomen und im Bereich $x < x_G$ keine Mittelpunkte von Siliziumatomen befinden. Im rechten Teil von Abb. 4.5 ist die parallel zur Grenzfläche gemittelte Intensität als Graph dargestellt. Durch eine weitere Mittelung der im Graphen dargestellten Intensitäten im Bereich von $10 - 20\,\text{Å}$ und $40 - 50\,\text{Å}$ lassen sich die Intensitätsniveaus links I_a und rechts I_b von der Kante bestimmen. Analog zu der in [17] gewählten Vorgehensweise wird nun die scheinbare Position der Grenzfläche als der x-Wert festgelegt, an dem die Intensität genau zwischen I_a und I_b liegt (also $I_a + 0.5 \cdot (I_a + I_b)$). Dieses Verfahren soll im Folgenden als Mittelmethode bezeichnet werden. Für die in Abb. 4.5 gezeigte Simulation ergibt sich nach der Mittelmethode eine scheinbare Grenzflächenposition von $x_{Gs} = 31.23\,\text{Å}$, was einer Abweichung von $\Delta x_G = x_{Gs} - x_G = 1.23\,\text{Å}$ von der Position der tatsächlichen Grenzfläche entspricht.

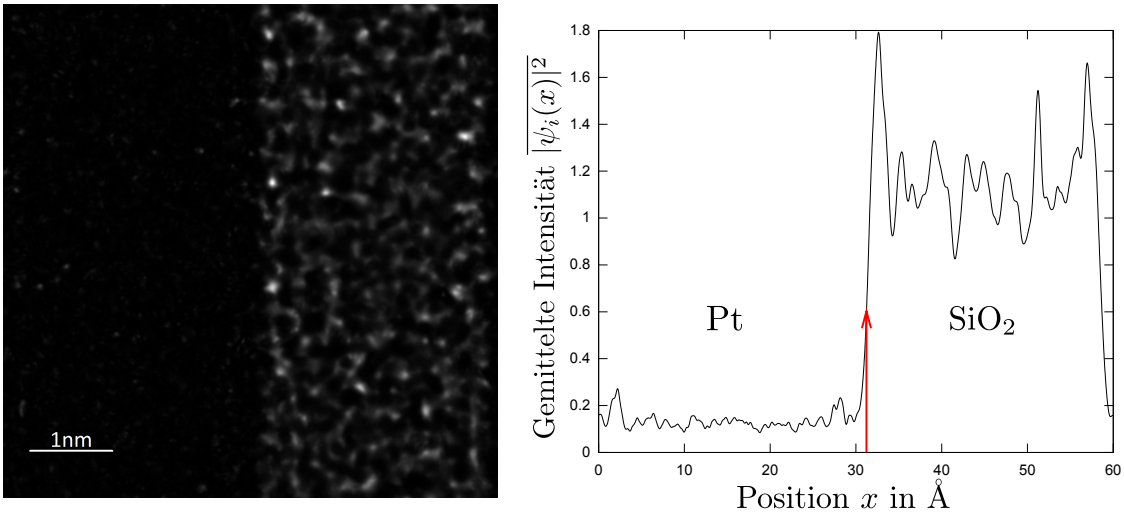

Abbildung 4.5 – (Links:) TEM-Aufnahme einer $D = 50\,\text{nm}$ dicken Pt-SiO_2-Grenzfläche bei $x_G = 30\,\text{Å}$ mit Amplitudenkontrast und partieller Kohärenz. (Rechts:) Gemittelte Intensität der im linken Teil der Abb. gezeigten TEM-Aufnahme parallel zur Grenzfläche. Der rote Pfeil kennzeichnet die scheinbare Position der Grenzfläche.

Für den in Abb. 4.5 gezeigten Fall ist die scheinbare Grenzfläche also im Vergleich zur tatsächlichen Grenzfläche um 1.23 Å in Richtung des SiO_2 verschoben. In der klassischen Anschauungsweise lässt sich dieser Positionsfehler dadurch erklären, dass die stark streuenden Platinatome die im Vergleich schwach streuenden SiO_2-Moleküle in der Nähe der Grenzfläche verdecken. Elektronen, die auf der SiO_2-Seite (in Abb. 4.5 die rechte Hälfte der TEM-Aufnahme) in der Nähe der Grenzfläche einfallen, werden durch die naheliegenden Platinatome (stark) abgelenkt und an der Blende absorbiert. Im Bild ist dieser Bereich nun dunkler als der Rest des SiO_2-Bereichs, weshalb die scheinbare Grenzfläche zwischen Platin und SiO_2 in Richtung des SiO_2 verschoben ist. Diese Verschiebung der scheinbaren Grenzfläche wird im Folgenden als (Grenzflächen-)Positionsfehler Δx_G bezeichnet.

Durch die Simulation von Proben verschiedener Dicke lässt sich die Abhängigkeit des Positionsfehlers Δx_G von der Probendicke D untersuchen. Da die Atome im simulierten Potential zufällig verteilt werden, ist Δx_G mit einer gewissen Unsicherheit behaftet. Diesem Umstand wurde in dem in Abb. 4.6 abgebildeten Graphen dadurch Rechnung getragen, dass für jede untersuchte Probendicke 10 Simulationen durchgeführt und hiermit die Unsicherheiten der jeweiligen Δx_G-Werte bestimmt worden sind.

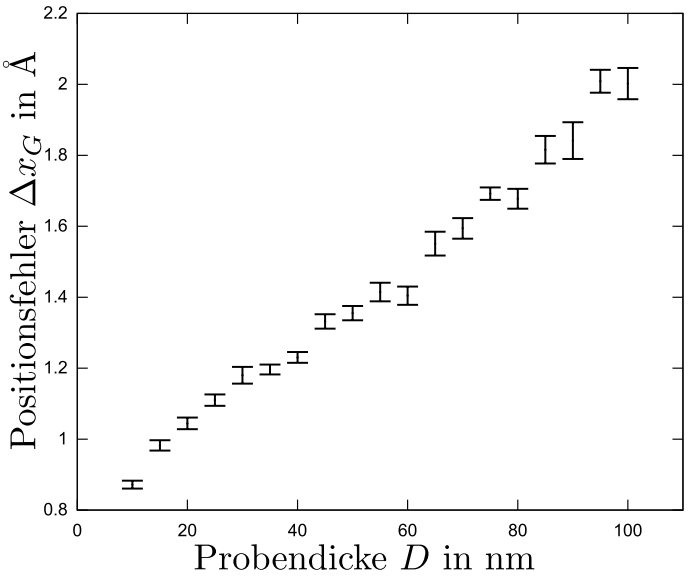

Abbildung 4.6 – Positionsfehler Δx_G der Grenzfläche in Abhängigkeit von der Probendicke D. Zu jedem im Graphen abgebildeten Punkt wurden 10 Multislice Simulationen mit Amplitudenkontrast und partieller Kohärenz ausgewertet.

Wie in Abb. 4.6 zu sehen ist, wächst der Positionsfehler Δx_G der Grenzfläche im betrachteten Dickenbereich mit zunehmender Probendicke D ungefähr linear an. Dies ist insofern sinnvoll, als dass die Anzahl der Platinatome in der Nähe der Grenzfläche proportional zur Dicke der Probe ist. Dass der Positionsfehler lediglich ungefähr linear mit der Probendicke verbunden ist, ist möglicherweise auf die Überlagerung des zum Intensitätsunterschied führenden Streu-Absorptionskontrastes mit dem Bild der grob als Phasenkante beschreibbaren Grenzfläche zurückzuführen (vgl. Abb. 4.3).

Abb. 4.6 zeigt weiterhin, dass die mit der Mittelmethode bestimmte Position der Grenzfläche im Vergleich zur tatsächlichen Position um bis zu 2 Å in Richtung des SiO_2 verschoben ist. Dieser Positionsfehler ließe sich z. B. dadurch verringern, dass zur Bestimmung der Grenzflächenposition in der TEM-Aufnahme nicht mehr die Mittelmethode verwendet wird. Für das betrachtete Probensystem könnte beispielsweise die Position der Grenzfläche als der Punkt bestimmt werden, an dem die Intensität beginnt anzusteigen. Bei allgemeinen Grenzflächen von amorphen Stoffen im TEM sollte die nach der Mittelmethode bestimmte scheinbare Position der Grenzfläche von der tatsächlichen Grenzflächenposition in Richtung des schwächer streuenden Stoffes verschoben sein. Somit ist, für eine möglichst korrekte Bestimmung der Grenzflächenposition, die mit der Mittelmethode bestimmte Position der Grenzfläche mit dem Streuvermögen der jeweiligen Stoffe zu gewichten.

Kapitel 5

Kontrast im Raster-Transmissionselektronenmikroskop

Der verbleibende Teil dieser Arbeit befasst sich mit der Fragestellung, ob die in [8–10] verwendeten, ringförmigen Quadrantendetektoren zur Erzeugung von hochaufgelöstem differentiellen Phasenkontrast (DPC) im Raster-Transmissionselektronenmikroskop (STEM) geeignet sind. Im ersten Abschnitt dieses Kapitels soll hierzu zunächst ein kurzer Überblick über den Strahlengang im STEM gegeben werden. Darauf folgt im zweiten Abschnitt die Berechnung der Kontrastübertragungsfunktion eines linear rauminvarianten STEM, die in Kapitel 6 für weitere Rechnungen bezüglich der DPC-Übertragungscharakteristik des STEM benötigt wird. Der letzte Abschnitt dieses Kapitels befasst sich mit der klassischen und der wellenoptischen Interpretation des DPC, von denen hier vor allem die Letztere von Bedeutung ist.

5.1 Das Raster-Transmissionselektronenmikroskop

In einem Raster-Transmissionselektronenmikroskop (STEM) werden durch Feldemission (oder thermische Emission) freie Elektronen erzeugt, welche dann mittels eines Linsensystems auf die zu untersuchende Probe fokussiert werden. Nach dem Passieren der Probe wird ein Teil der Elektronen detektiert. Bei der Detektion von Elektronen mit großem Ablenkwinkel wird von einer Dunkelfeldaufnahme gesprochen, während ein Bild, bei dem Elektronen mit geringen (oder keinem) Ablenkwinkel registriert worden sind, als Hellfeldaufnahme bezeichnet wird. In einem STEM wird, im Gegensatz zum konventionellen Transmissionselektronenmikroskop (TEM), zu jedem Zeitpunkt nur ein kleiner Teil des abzubildenden Bereiches beleuchtet. Zur Erzeugung eines Bildes muss also der Elektronenstrahl über die Probe gerastert werden, was mit Hilfe des Magnetfeldes von stromdurchflossenen Spulen (sogenannte Rasterspulen / engl. „scan coils“) durchgeführt wird. Somit entspricht jeder Pixel einer STEM-Aufnahme einer Position des Elektronenstrahls auf der Probe.

In Abb. 5.1 ist der Strahlengang in einem STEM schematisch dargestellt.

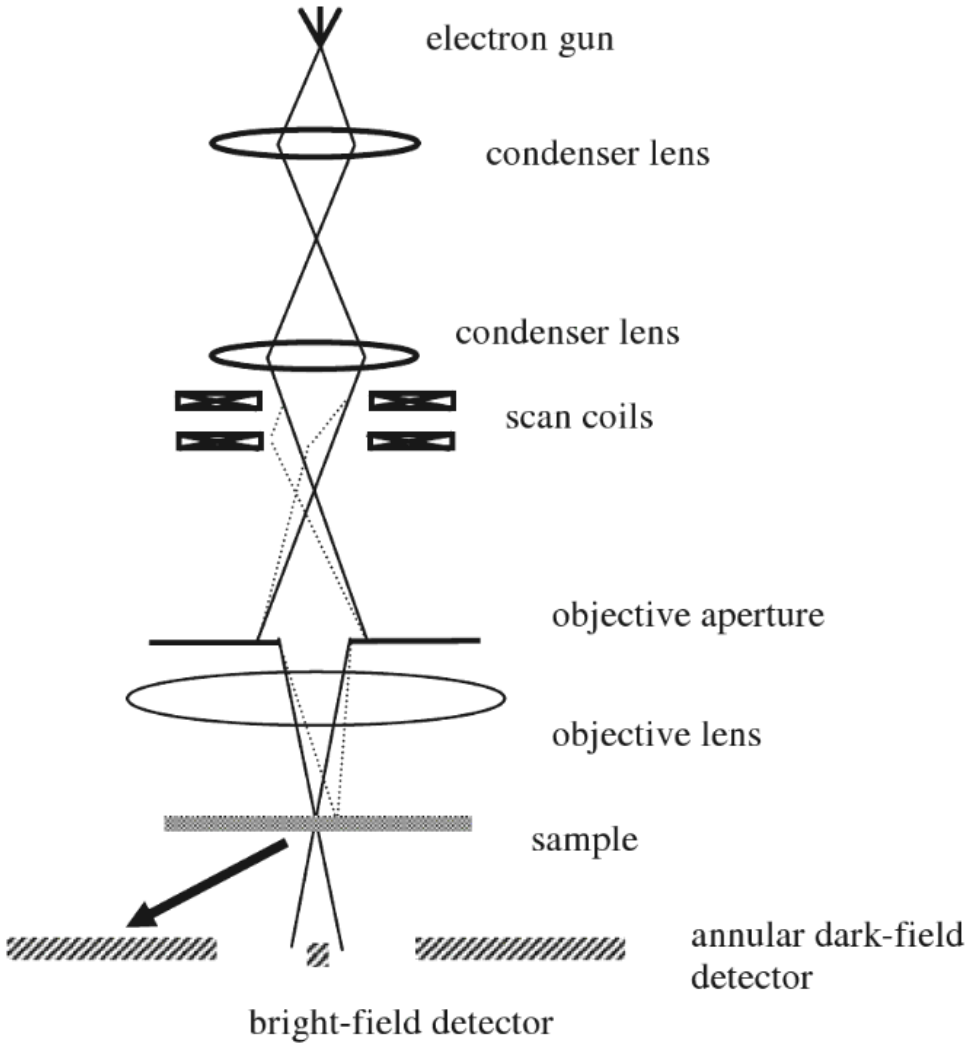

Abbildung 5.1 – Schematische Darstellung des Strahlengangs in einem STEM [20].

Das Linsensystem eines STEM, bestehend aus den Kondensorlinsen (engl. „condensor lens“) und der Objektivlinse (engl. „objective lens“) dient dazu, den Elektronenstrahl auf atomare Größenordnung zu verkleinern. Wie beim TEM (siehe Abschnitt 2.1) sind beim STEM die Linsenfehler der Objektivlinse am größten und daher ausschlaggebend für das gesamte optische System. Bei einer mathematischen Beschreibung bietet es sich daher an, ein STEM als Kombination aus einer Punktquelle, einer Objektivblende (auch Objektivapertur genannt), einer Objektivlinse, einer Probe und einem Detektor zu beschreiben.

Weiterhin sei an dieser Stelle erwähnt, dass, unter der Annahme vollständig elastisch gestreuter Elektronen, das STEM einem konventionellen Transmissionselektronen-

mikroskop entspricht, bei dem Detektor und Quelle vertauscht worden sind [20]. Dieser als Reziprozität-Theorem bezeichnete Umstand hat zur Folge, dass viele für das STEM gültige Beziehungen in ähnlicher Form auch für das TEM gültig sind. Da differentieller Phasenkontrast (DPC) im STEM jedoch durch das Subtrahieren der Signale verschiedener Detektorsegmente erzeugt wird, wäre für die zum STEM analoge Erzeugung von DPC im TEM eine „negative Beleuchtung“ nötig. Dies ist praktisch nicht möglich, womit die Erzeugung von DPC in der hier geschilderten Form nur mit dem STEM erreicht werden kann.

5.2 Wellenoptische Beschreibung der Bildentstehung im STEM

Wie bereits in Abschnitt 5.1 erwähnt, sind die Eigenschaften der Objektivlinse ausschlaggebend für das optische Verhalten eines STEM. Bei der wellenoptischen Beschreibung des STEM lässt sich dieses daher auf eine Punktquelle, Objektivlinse und Objektivapertur, Probe und Detektor reduzieren (vgl. Abb. 5.2).

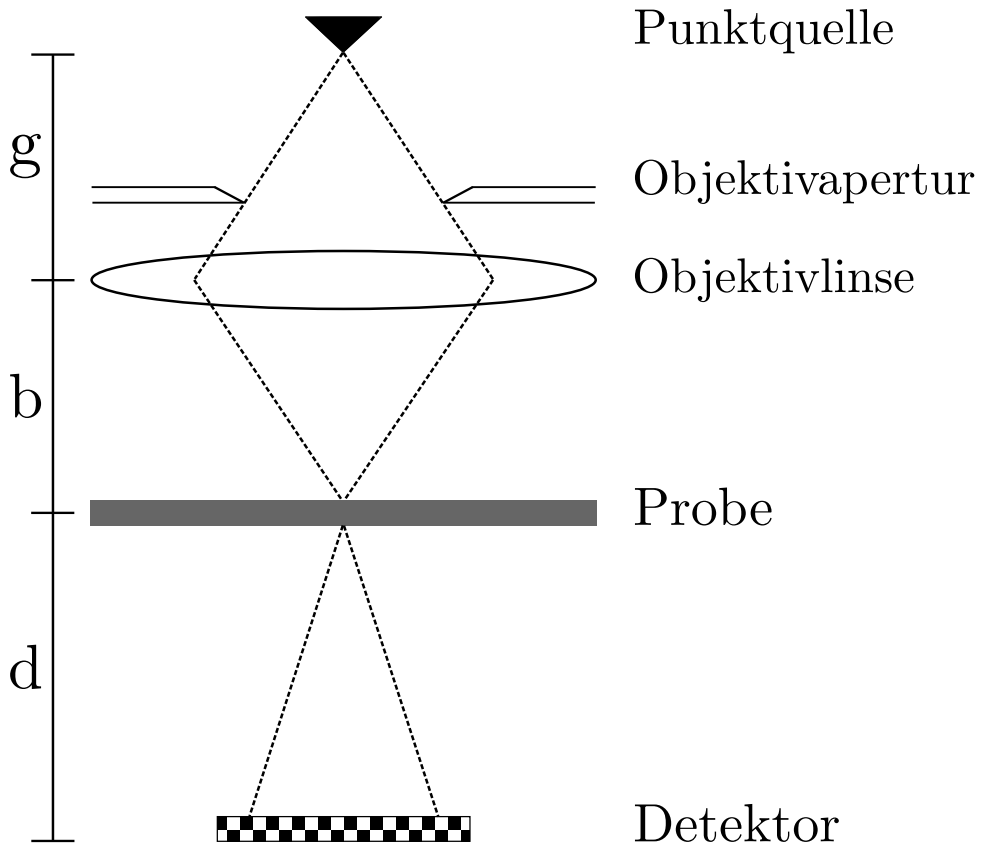

Abbildung 5.2 – Schematische Darstellung des zur wellenoptischen Beschreibung verwendeten reduzierten STEM.

Für ein aberrationskorrigiertes STEM stellt die Behandlung der Objektivlinse als ideale Linse eine gute Näherung dar. Damit ergibt sich die Wellenfunktion unmittelbar vor der Probe $\psi_o(\vec{\varrho}_o)$ als Fouriertransformation der Objektivapertur-Funktion $A(\Theta)$ [21]. Die im Folgenden verwendete Fouriertransformation der Funktion $f(\vec{\varrho})$ wird, abweichend von der in Gl. (2.5) getroffenen Definition, als $\widetilde{f}(\vec{\Theta})$ definiert nach dem Prinzip [22]

$$\begin{aligned} \widetilde{f}(\vec{\Theta}) &= \int_{-\infty}^{\infty}\int_{-\infty}^{\infty} f(\vec{\varrho})\mathrm{e}^{-iK\vec{\Theta}\cdot\vec{\varrho}}\,\mathrm{d}\left(\frac{\varrho_x}{\lambda}\right)\mathrm{d}\left(\frac{\varrho_y}{\lambda}\right) = \int f(\vec{\varrho})\mathrm{e}^{-iK\vec{\Theta}\cdot\vec{\varrho}}\,\mathrm{d}^2\left(\frac{\varrho}{\lambda}\right) \\ f(\vec{\varrho}) &= \int_{-\infty}^{\infty}\int_{-\infty}^{\infty} \widetilde{f}(\vec{\Theta})\mathrm{e}^{iK\vec{\Theta}\cdot\vec{\varrho}}\,\mathrm{d}\Theta_x\mathrm{d}\Theta_y = \int \widetilde{f}(\vec{\Theta})\mathrm{e}^{iK\vec{\Theta}\cdot\vec{\varrho}}\,\mathrm{d}^2\Theta\ , \end{aligned} \tag{5.1}$$

wobei $\vec{\varrho}$ und $\vec{\Theta}$ zweidimensionale Vektoren in einer Ebene parallel zur optischen Achse des STEM darstellen, λ die deBroglie-Wellenlänge der Elektronen bezeichnet und $K = 2\pi/\lambda$ die Kreiswellenzahl ist. Für die Fouriertransformierte der Wellenfunktion unmittelbar vor der Probe gilt dann

$$\widetilde{\psi}_o(\vec{\Theta}) = \frac{1}{\sqrt{N}}A(\Theta)\ . \tag{5.2}$$

Bei N handelt es sich um eine Normierungskonstante. Wird nun die Wellenfunktion durch die Probe transmittiert, so muss der im STEM stattfindende Rastervorgang berücksichtigt werden. Befindet sich der Elektronenstrahl an der Position $\vec{\varrho}$, so gilt für die durch die Probe transmittierte Wellenfunktion

$$\psi_o'(\vec{\varrho}_o, \vec{\varrho}) = \psi_o(\vec{\varrho}_o - \vec{\varrho})T(\vec{\varrho}_o)\ . \tag{5.3}$$

Hierbei ist $\vec{\varrho}_o$ ein zweidimensionaler Vektor in der Objektebene und $T(\vec{\varrho}_o)$ die Transmissionsfunktion der Probe. Da sich der Detektor im Abstand d von der Probe im Fernfeld befindet, lässt sich die Wellenfunktion in der Detektorebene $\psi_d(\vec{\Theta},\ \vec{\varrho})$ aus der Wellenfunktion unmittelbar hinter dem Objekt $\psi_o'(\vec{\varrho}_o,\ \vec{\varrho})$ durch die Fraunhofersche Beugungsformel [1] zu

$$\psi_d(\vec{\Theta}, \vec{\varrho}) = \int \underbrace{\psi_o(\vec{\varrho}_o - \vec{\varrho})T(\vec{\varrho}_o)}_{\psi_o'(\vec{\varrho}_o,\vec{\varrho})}\ \mathrm{e}^{-iK\vec{\varrho}_o\cdot\vec{\Theta}}\ \mathrm{d}^2\left(\frac{\varrho_o}{\lambda}\right) \tag{5.4}$$

bestimmen. $\vec{\Theta}$ bezeichnet hier den zweidimensionalen Ablenkwinkel in der Detektorebene des STEM. Durch Ausnutzung der Fouriertransformation der Funktionen $\psi_o(\vec{\varrho}_o - \vec{\varrho})$ und $T(\vec{\varrho}_o)$ zu

$$\psi_o(\vec{\varrho}_o - \vec{\varrho}) = \int \widetilde{\psi}_o(\vec{\Theta}')\mathrm{e}^{iK\vec{\Theta}'\cdot(\vec{\varrho}_o-\vec{\varrho})}\ \mathrm{d}^2\Theta'\ , \qquad T(\vec{\varrho}_o) = \int \widetilde{T}(\vec{\Theta}'')\mathrm{e}^{iK\vec{\Theta}''\cdot\vec{\varrho}_o}\ \mathrm{d}^2\Theta'' \tag{5.5}$$

lässt sich Gl. (5.4) umschreiben in

$$\psi_d(\vec{\Theta}, \vec{\varrho}) = \int\int\int \mathrm{e}^{iK\vec{\varrho}_o\cdot(\vec{\Theta}'+\vec{\Theta}''-\vec{\Theta})}\ \mathrm{d}^2\left(\frac{\varrho_o}{\lambda}\right)\ \widetilde{\psi}_o(\vec{\Theta}')\widetilde{T}(\vec{\Theta}'')\mathrm{e}^{-iK\vec{\Theta}'\cdot\vec{\varrho}}\ \mathrm{d}^2\Theta'\mathrm{d}^2\Theta''\ . \tag{5.6}$$

Durch Verwendung der Delta-Funktion

$$\delta(\vec{\Theta}' + \vec{\Theta}'' - \vec{\Theta}) = \int \mathrm{e}^{iK\vec{\varrho}_o\cdot(\vec{\Theta}'+\vec{\Theta}''-\vec{\Theta})}\ \mathrm{d}^2\left(\frac{\varrho_o}{\lambda}\right) \tag{5.7}$$

gelingt eine weitere Vereinfachung der Wellenfunktion in der Detektorebene zu

$$\psi_d(\vec{\Theta}, \vec{\varrho}) = \int \widetilde{\psi}_o(\vec{\Theta} - \vec{\Theta}'')\widetilde{T}(\vec{\Theta}'')\mathrm{e}^{-iK\vec{\varrho}\cdot(\vec{\Theta}-\vec{\Theta}'')}\ \mathrm{d}^2\Theta''\ . \tag{5.8}$$

Für die Stromdichte in der Detektorebene $j_d(\vec{\Theta},\ \vec{\varrho}) = |\psi_d(\vec{\Theta},\ \vec{\varrho})|^2$ folgt

$$j_d(\vec{\Theta}, \vec{\varrho}) = \int\int \widetilde{\psi}_o(\vec{\Theta} - \vec{\Theta}')\widetilde{\psi}_o^*(\vec{\Theta} - \vec{\Theta}'')\widetilde{T}(\vec{\Theta}')\widetilde{T}^*(\vec{\Theta}'')\mathrm{e}^{iK\vec{\varrho}\cdot(\vec{\Theta}'-\vec{\Theta}'')}\ \mathrm{d}^2\Theta'\mathrm{d}^2\Theta''\ . \tag{5.9}$$

Für ein schwaches Phasenobjekt ist die Transmissionsfunktion [22]

$$T(\vec{\varrho}_o) = \mathrm{e}^{i\varphi(\vec{\varrho}_o)} \approx 1 + i\varphi(\vec{\varrho}_o)\ . \tag{5.10}$$

Entsprechend ist die Fouriertransformierte der Transmissionsfunktion eines schwachen Phasenobjekts

$$\widetilde{T}(\vec{\Theta}) = \delta(\vec{\Theta}) + i\widetilde{\varphi}(\vec{\Theta})\ , \tag{5.11}$$

wobei $\widetilde{\varphi}(\vec{\Theta})$ die Fouriertransformation der Phasenverschiebung bezeichnet, die die Elektronen beim Passieren des Objekts erleiden. Mit Gl. (5.11) ergibt sich

$$\widetilde{T}(\vec{\Theta}')\widetilde{T}^*(\vec{\Theta}'') = \delta(\vec{\Theta}')\delta(\vec{\Theta}'') - i\widetilde{\varphi}^*(\vec{\Theta}'')\delta(\vec{\Theta}') + i\widetilde{\varphi}(\vec{\Theta}')\delta(\vec{\Theta}'') + \underbrace{\widetilde{\varphi}(\vec{\Theta}')\widetilde{\varphi}^*(\vec{\Theta}'')}_{\approx 0}\ , \tag{5.12}$$

wobei Terme, die quadratisch in der Phasenverschiebung sind, vernachlässigt werden. Einsetzen der Gleichungen (5.2) und (5.12) in Gl. (5.9) liefert

$$\begin{aligned} j_d(\vec{\Theta}, \vec{\varrho}) = &\frac{1}{N}\Bigg\{A(\vec{\Theta})^2 - i\int A(\vec{\Theta})A(\vec{\Theta} - \vec{\Theta}'')\widetilde{\varphi}^*(\vec{\Theta}'')\mathrm{e}^{-iK\vec{\Theta}''\cdot\vec{\varrho}}\ \mathrm{d}^2\Theta'' \\ &+ i\int A(\vec{\Theta} - \vec{\Theta}')A(\vec{\Theta})\widetilde{\varphi}(\vec{\Theta}')\mathrm{e}^{iK\vec{\Theta}'\cdot\vec{\varrho}}\ \mathrm{d}^2\Theta'\Bigg\}\ . \end{aligned} \tag{5.13}$$

Von der Stromdichte in der Detektorebene $j_d(\vec{\Theta},\ \vec{\varrho})$ wird lediglich der Teil erfasst, der auf den Detektor fällt. Wird der Detektor durch die Detektorfunktion $D(\vec{\Theta})$ beschrieben, so lässt sich die detektierte Intensität $I(\vec{\varrho})$ berechnen durch

$$I(\vec{\varrho}) = \int j_d(\vec{\Theta}, \vec{\varrho})D(\vec{\Theta})\ \mathrm{d}^2\Theta\ . \tag{5.14}$$

Hiermit lässt sich die Kontrastfunktion des STEM $\mathcal{C}(\vec{\varrho})$ berechnen als

$$\mathcal{C}(\vec{\varrho}) = I(\vec{\varrho}) - I_0 \ , \tag{5.15}$$

wobei I_0 die detektierte Intensität ohne Objekt ($\varphi = 0$) bezeichnet. Die Fouriertransformation der Kontrastfunktion lautet somit

$$\widetilde{\mathcal{C}}(\vec{\omega}) = \frac{i}{N} \int A(\vec{\Theta}) D(\vec{\Theta}) \left\{ A(\vec{\Theta} - \vec{\omega}) - A(\vec{\Theta} + \vec{\omega}) \right\} \ \mathrm{d}^2\Theta \ \widetilde{\varphi}(\vec{\omega}). \tag{5.16}$$

Hierbei sind die Beziehungen

$$\delta(\vec{\Theta}' - \vec{\omega}) = \int \mathrm{e}^{iK\vec{\varrho}\cdot(\vec{\Theta}' - \vec{\omega})} \ \mathrm{d}^2 \left(\frac{\varrho}{\lambda} \right) \ , \quad \delta(\vec{\Theta}'' + \vec{\omega}) = \int \mathrm{e}^{-iK\vec{\varrho}\cdot(\vec{\Theta}'' + \vec{\omega})} \ \mathrm{d}^2 \left(\frac{\varrho}{\lambda} \right) \tag{5.17}$$

und

$$\widetilde{\varphi}^*(-\vec{\omega}) = \widetilde{\varphi}(\vec{\omega}) \tag{5.18}$$

genutzt worden.

5.3 Differentieller Phasenkontrast

Wird eine kristalline Probe mit einer ebenen Elektronenwelle bestrahlt, so besteht das Beugungsbild aus mehreren Punkten. Diese sogenannten Beugungsspots entsprechen unterschiedlichen reziproken Gittervektoren in der Probe. Beim STEM wird die Probe nicht mit einer ebenen Elektronenwelle, sondern mit einem konvergenten Elektronenbündel beleuchtet. Dies führt dazu, dass sich die Beugungsspots zu Kreisen, Beugungsscheibchen genannt, ausweiten. Die sich aus diesem als kohärent konvergente Elektronenbeugung bezeichneten Vorgang ergebende Situation im STEM ist in Abb. 5.3 für eine Probe dargestellt, die nur zu zwei reziproken Gittervektoren $\vec{G}$ und $-\vec{G}$ streut. Neben den zwei aus der Streuung resultierenden Beugungsscheibchen B_{+1} und B_{-1} tritt dabei noch der aus ungestreuten Elektronen bestehende direkte Strahl B_0 auf.

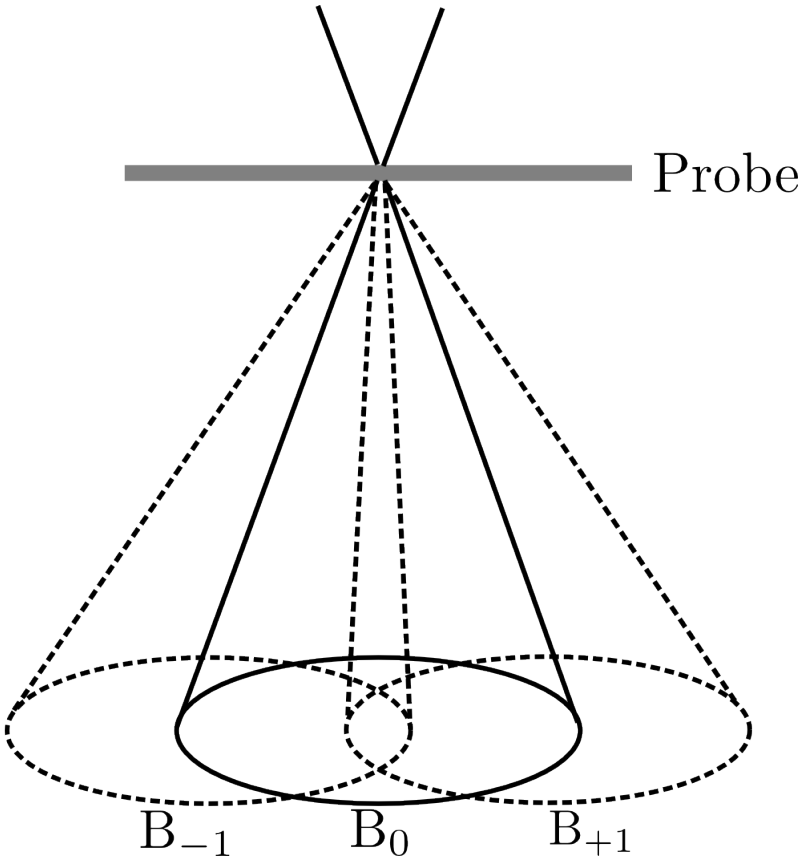

Abbildung 5.3 – Schematische Darstellung von kohärent konvergenter Elektronenbeugung im STEM für eine zu zwei reziproken Gittervektoren $\vec{G}$ und $-\vec{G}$ streuende Probe (Skizze nach [20]).

In der klassischen Interpretation entsteht DPC dadurch, dass die Elektronen des direkten Strahls durch die elektrischen oder magnetischen Felder in der Probe

abgelenkt werden und somit der direkte Elektronenstrahl leicht gekippt wird. Befindet sich nun ein segmentierter Detektor, wie z. B. ein Ringquadrantendetektor, in der Beugungsebene des STEM, so ist das Differenzsignal zweier gegenüberliegender Segmente proportional zu dieser Kippung (vgl. Abb. 5.4). Die Größe der Kippung ist wiederum abhängig von der Stärke des elektrischen oder magnetischen Feldes, sodass das erhaltene DPC-Signal die elektrische bzw. magnetische Struktur der Probe wiedergibt. Die klassische Interpretation ist für die Untersuchung der DPC-Auflösungsgrenze ungeeignet, da bei hohen Auflösung und dementsprechend kleinen abgebildeten Strukturen die Wellennatur der Elektronen zu berücksichtigen ist.

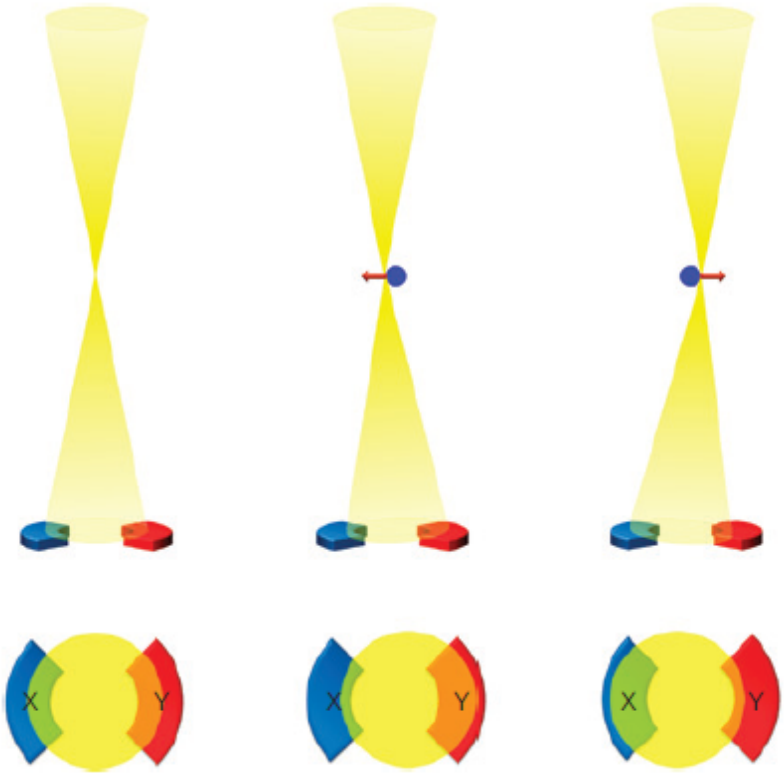

Abbildung 5.4 – Entstehung des DPC-Signals in der klassischen Interpretation beim Scannen über ein Atom: Ohne Probe (links) ist der direkte Strahl auf dem Detektor (hier: Zwei Segmente eines Ringquadrantendetektors) zentriert und das Differenzsignal zwischen den beiden Segmenten ($Y - X$) ist null. Rastert der Strahl nun über ein Atom (blauer Punkt), so wird er durch dessen elektrisches Feld gekippt und es entsteht zunächst ein positives (mitte) und dann ein negatives (rechts) Differenzsignal [10].

In der Welleninterpretation des DPC entsteht dieser durch die getrennte Detektion und anschließende Subtraktion der Elektronenintensitäten in den Interferenzgebieten zwischen direktem Strahl und einem Paar abgebeugter Strahlen. Die entsprechende Situation in der Detektorebene des STEM ist für eine Probe, die zu zwei reziproken

Gittervektoren streut (wie in Abb. 5.3), in Abb. 5.5 dargestellt. Als Beispiel für einen DPC-Detektor ist in Abb. 5.5 ein kreisförmiger Detektor (D) gezeigt, der in zwei Halbkreissegmente D_L und D_R aufgeteilt ist (also ein „Halbkreisdetektor“). Die zwei durchgezogenen Kreise B_{-1} und B_{+1} stellen die Beugungsscheibchen zweier abgebeugter Strahlen dar, während der mittlere durchgezogene Kreis B_0 dem direkten Strahl entspricht. Für die Entstehung des DPC wichtig sind die beiden Interferenzgebiete zwischen einem abgebeugten Strahl und dem direkten Strahl A_{-1} und A_{+1}, die in Abb. 5.5 schraffiert gezeichnet sind. Durch separate Detektion der Bereiche A_{-1} und A_{+1} mit den Detektorsegmenten D_L und D_R und anschließendes Subtrahieren der beiden Signale voneinander entsteht ein Differenzsignal, das, bei der in Abb. 5.5 gezeigten Orientierung des Detektors, dem x-Gradienten der Phasenänderung der Elektronen beim Passieren des Objekts entspricht [5].

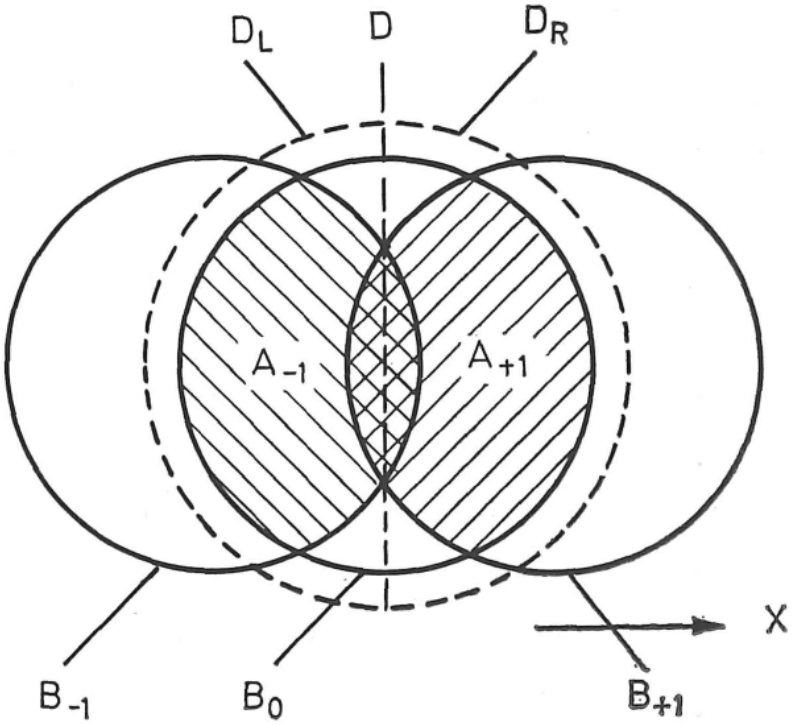

Abbildung 5.5 – Situation in der Detektorebene eines STEM bei einem Objekt, das zu zwei reziproken Gittervektoren $\vec{G}$ und $-\vec{G}$ streut, wobei die abgebeugten Strahlen B_{+1} und B_{-1} entstehen. DPC wird erzielt durch die separate Detektion der Interferenzgebiete A_{+1} und A_{-1} zwischen den einzelnen abgebeugten Strahlen und dem direkten Strahl [5].

An dieser Stelle sei noch angemerkt, dass ein Signal, das aus der Addition der Signale von den Segmenten D_L und D_R in Abb. 5.5 entsteht, keinen DPC zeigen würde. Dies ist darauf zurückzuführen, dass sich bei einem Objekt, das auf die einfallenden Elektronen lediglich in Form einer schwachen Phasenverschiebung wirkt, die Elektro-

nenintensitäten in den Interferenzgebieten A_{-1} und A_{+1} beim Scannen des Strahls über das Objekt gegenphasig ändern [5]. Ein entsprechendes Bild aus der Addition der Signale von D_L und D_R bzw. eines ungeteilten Detektors wäre somit strukturlos bezüglich DPC.

Um elektrische Felder in der Probe mit DPC, wie in [8–10], direkt zu messen, muss das verwendete Gerät den Gradienten des Objektpotentials abbilden. Ob diese Bedingung erfüllt ist, lässt sich mit Hilfe der Phasenkontrastübertragungsfunktion (PCTF) testen, wobei es speziell für diese Aufgabe günstig ist, die PCTF in die Phasengradientübertragungsfunktion (PGTF) umzuwandeln. Die Details zur Berechnung der PGTF (und damit auch der PCTF) werden in Kapitel 6 besprochen. Unter anderem wird dabei die in Abschnitt 5.2 berechnete Kontrastfunktion benötigt.

Kapitel 6

Die Phasengradientübertragungsfunktion

Um Aussagen über die Tauglichkeit eines Detektors für hochaufgelöste DPC-Messungen treffen zu können, wird die korrespondierende Phasengradientübertragungsfunktion (PGTF) benötigt. Im ersten Abschnitt dieses Kapitels wird daher auf die hier genutzte Vorgehensweise zur Berechnung der PGTF eingegangen. Da die hochaufgelösten DPC-Messungen in [8–10] mit Quadrantendetektoren durchgeführt worden sind, soll der Fokus hier auf Detektorgeometrien liegen, die sich in Halbkreise aufteilen lassen, wie z. B. Halbkreisdetektoren oder Quadrantendetektoren. Der zweite Abschnitt dieses Kapitels beschäftigt sich mit der Definition einer Auflösungsgrenze für DPC-Messungen. Die erhaltene Auflösungsgrenze stellt zwar eine im Vergleich zur PGTF weniger umfassende Beschreibung der Kontrastübertragung dar, erlaubt dafür aber die grobe Charakterisierung einer zweidimensionalen Funktion durch einen einzigen Wert.

6.1 Berechnung

Die PGTF beschreibt die Kontrastübertragungscharakteristik einer DPC-Messung. Sie ist definiert über die Phasenkontrastübertragungsfunktion (PCTF) als [22]

$$\widehat{\mathcal{L}}(\vec{\omega}) = \frac{\mathcal{L}(\vec{\omega})}{i\omega_x} \ . \tag{6.1}$$

Dabei ist $\mathcal{L}(\vec{\omega})$ die PCTF, $\vec{\omega}$ der Streuwinkel der Elektronen und die Division durch $i\omega_x$ im Fourierraum entspricht einer Integration im Realraum. Gleichung (6.1) macht deutlich, dass es sich bei der PGTF lediglich um eine geringfügig abgewandelte PCTF handelt, deren Berechnung das eigentliche Problem darstellt. Die PCTF ist definiert über den Zusammenhang [22]

$$\widetilde{\mathcal{C}}(\vec{\omega}) = 2\mathcal{L}(\vec{\omega})\widetilde{\varphi}(\vec{\omega}) \ . \tag{6.2}$$

An dieser Stelle lässt sich die in Abschnitt 5.2 hergeleitete Fouriertransformierte der Kontrastfunktion Gl. (5.16) gewinnbringend einsetzen, sodass sich für die PCTF

$$\mathcal{L}(\vec{\omega}) = \frac{i}{2N} \int A(\vec{\Theta}) D(\vec{\Theta}) \left\{ A(\vec{\Theta} - \vec{\omega}) - A(\vec{\Theta} + \vec{\omega}) \right\} \, \mathrm{d}^2\Theta \tag{6.3}$$

ergibt. Im Folgenden wird eine kreisförmige Objektivblende mit dem Objektivapertur(halb)winkel θ_0 angenommen, d. h. für die Objektivaperturfunktion gilt

$$A(\vec{\Theta}) = A(\Theta) = \begin{cases} 1, & \text{für } \Theta < \theta_0 \\ 0, & \text{für } \Theta > \theta_0 \ . \end{cases} \tag{6.4}$$

Weiterhin wird, durch Wählen der Konstante N zu $N = \pi\theta_0^2$, die PCTF auf die Fläche des Beleuchtungskreises des direkten Strahls normiert. Damit lautet Gl. (6.3)

$$\mathcal{L}(\vec{\omega}) = \frac{i}{2\pi\theta_0^2} \int A(\Theta) D(\vec{\Theta}) \left\{ A(|\vec{\Theta} - \vec{\omega}|) - A(|\vec{\Theta} + \vec{\omega}|) \right\} \, \mathrm{d}^2\Theta \ . \tag{6.5}$$

Durch Substitution von $\vec{\Theta} \to -\vec{\Theta}$ im ersten der beiden Terme lässt sich die Gleichung umschreiben zu

$$\mathcal{L}(\vec{\omega}) = \frac{i}{2\pi\theta_0^2} \int A(\Theta) A(|\vec{\Theta} + \vec{\omega}|) \left\{ D(-\vec{\Theta}) - D(\vec{\Theta}) \right\} \, \mathrm{d}^2\Theta \ . \tag{6.6}$$

An diesem Ausdruck ist auffällig, dass $\mathcal{L}(\vec{\omega})$ im Falle eines symmetrischen Detektors $D(-\vec{\Theta}) = D(\vec{\Theta})$ verschwindet. Das mit einem symmetrischen Detektor und einer idealen Linse aufgenommene Bild eines schwachen Phasenobjekts im STEM weist also keinen Phasenkontrast auf. Der Betrag der PCTF wird hingegen maximal für einen antisymmetrischen Detektor $-D(-\vec{\Theta}) = D(\vec{\Theta})$. Dies ist der Grund dafür, dass die Erzeugung von DPC mit antisymmetrischen Detektoren erfolgt. Für den Fall eines antisymmetrischen Detektors $D_a(\vec{\Theta})$ lautet die PCTF

$$\mathcal{L}(\vec{\omega}) = -\frac{i}{\pi\theta_0^2} \int A(\Theta) A(|\vec{\Theta} + \vec{\omega}|) D_a(\vec{\Theta}) \, \mathrm{d}^2\Theta \ . \tag{6.7}$$

Unter Beachtung der Objektivaperturfunktion aus Gl. (6.4) lässt sich das Integral in dieser Formulierung der PCTF geometrisch interpretieren. $A(\Theta)$ ist hierbei ein Kreis um den Ursprung mit dem Radius θ_0. $A(|\vec{\Theta} + \vec{\omega}|)$ ist ebenfalls ein Kreis mit dem Radius θ_0, dessen Mittelpunkt um den Streuwinkel $\vec{\omega}$ verschoben worden ist. $D_a(\vec{\Theta})$ repräsentiert den (unverschobenen) Detektor, sodass sich das Integral in Gl. (6.7) als Schnittfläche zwischen den zwei Kreisen und dem Detektor ergibt. Für das Beispiel eines Halbkreisdetektors ist diese Schnittfläche in Abb. 6.1 dargestellt.

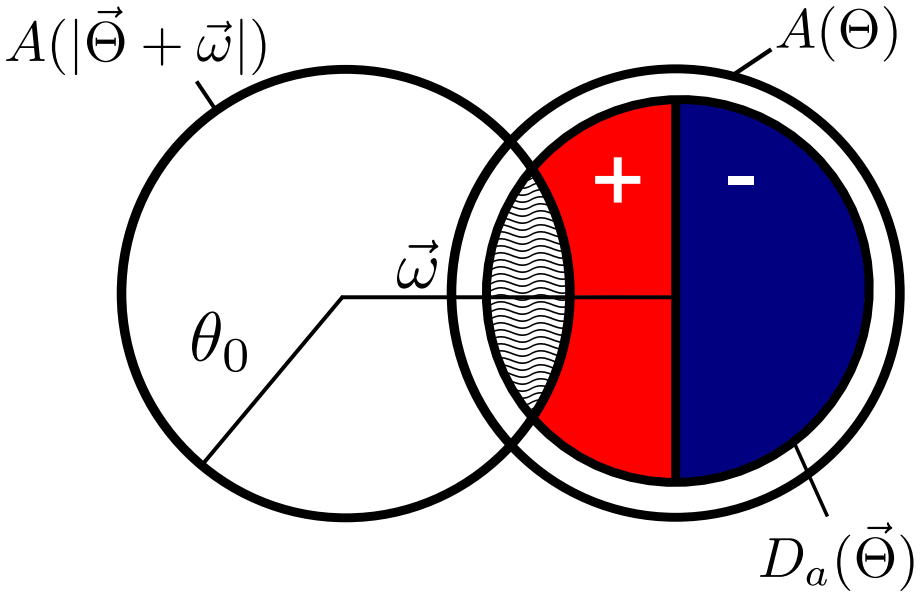

Abbildung 6.1 – Geometrische Interpretation des Integrals in Gl. (6.7) für das Beispiel eines Halbkreisdetektors. Die Lösung des Integrals entspricht der, im Bild durch Wellenlinien hervorgehobenen, Schnittfläche zwischen den zwei Kreisen und dem Detektor. Erstreckt sich diese Schnittfläche, bei kleineren Werten von $\vec{\omega}$ als im Bild gezeigt, auch auf den negativen Teil (blau) des Detektors, so ist der auf dem negativen Segment des Detektors liegende Teil der Schnittfläche von dem auf dem positiven Segment des Detektors (rot) liegenden Teil abzuziehen.

Der $A(\Theta)$ entsprechende Kreis ist stets auf dem Detektor zentriert. Für einen Objektivaperturwinkel θ_0, der größer ist als der Detektoraußenwinkel, lässt sich daher die zur Berechnung des Integrals in Gl. (6.7) zu betrachtende Schnittfläche auf die Schnittfläche zwischen dem verschobenen Kreis $A(|\vec{\Theta}+\vec{\omega}|)$ und dem Detektor $D_a(\vec{\Theta})$ reduzieren (vgl. Abb. 6.1). Sollte θ_0 kleiner sein als der Detektoraußenwinkel, so lässt sich, unter der Bedingung, dass der Detektoraußenwinkel durch den Objektivaperturwinkel θ_0 ersetzt wird, der zu berechnende Ausdruck ebenfalls auf die Schnittflächen zwischen einem verschobenem Kreis und dem Detektor vereinfachen. Eine weitere Vereinfachung der zu ermittelnden Schnittfläche wird dadurch erreicht, dass der Detektor in Halbkreise aufgeteilt wird. Für einen Halbkreisdetektor ist dies offensichtlich problemlos möglich (siehe Abschnitt 7.1), aber auch komplizierter Detektorgeometrien wie z. B. ein Ringquadrantendetektor lassen sich in Halbkreise aufteilen (siehe Abschnitt 7.2).

Durch die obigen Überlegungen lässt sich das Integral in Gl. (6.7), für in Halbkreise aufteilbare Detektorgeometrien, auf die Schnittfläche zwischen einem Halbkreis und einem Vollkreis reduzieren. Zur Modellierung eines Ringquadrantendetektors wird diese Schnittfläche bei verschiedenen Radien von Vollkreis und Halbkreis benötigt,

sodass es sinnvoll ist, die Berechnung dieser Fläche direkt für beliebige Radien des Voll- und Halbkreises durchzuführen. Mittels geometrischer Überlegungen ergeben sich als Lösung dieser Aufgabe die im Anhang C aufgelisteten Gleichungen. Zur Bestimmung der PCTF wird nun durch Kombination von verschiedenen Vollkreis-Halbkreis-Schnittflächen der Detektor zusammengesetzt, sodass sich ein Wert für die Schnittfläche zwischen einem verschobenem Vollkreis und dem Detektor ergibt. Dieser entspricht der Lösung des Integrals in Gl. (6.7), womit sich die PCTF $\mathcal{L}(\vec{\omega})$ durch Teilen des erhaltenen Wertes durch $\pi\theta_0^2$ ermitteln lässt. Das eigentliche Ziel der Rechnung, die PGTF $\widehat{\mathcal{L}}(\vec{\omega})$, kann nun ohne weitere Hürden mittels Gl. (6.1) berechnet werden.

Es sei angemerkt, dass der analytische Ausdruck für die Schnittfläche zwischen Kreis und Halbkreis beliebiger Radien mehrere Fallunterscheidungen aufweist (siehe Anhang C). Das Berechnen der PGTF mit Stift und Papier wäre somit äußerst mühselig und das Ergebnis selbst im „einfachen“ Fall des Halbkreisdetektors lang und unübersichtlich. Stattdessen bietet es sich an, die PGTF mit einem Programm, das die Fallunterscheidungen in den Schnittflächengleichungen selbständig durchführen kann, zu ermitteln. Hierzu ist in dieser Arbeit das selbstgeschriebene Programm CTCiSTEM[1] (CTCiSTEM ≙ **C**ontrast **T**ransfer **C**alculator for **i**deal **STEM**) verwendet worden.

Mit der aus dem Programm erhaltenen PGTF lässt sich nun die komplette Kontrastübertragungscharakteristik der entsprechenden Detektorgeometrie beschreiben. Es wäre allerdings nützlich, eine Auflösungsgrenze einzuführen, die wesentliche Eigenschaften der etwas unhandlichen, zweidimensionalen PGTF wiedergibt. Eine solchen Auflösungsgrenze stellt offensichtlich eine starke Vereinfachung dar, erlaubt dafür aber eine griffige Zusammenfassung der PGTF. Da es verschiedene Möglichkeiten gibt, die Auflösungsgrenze zu definieren, wird in Abschnitt 6.2 die hier gewählte Herangehensweise geschildert.

[1] CTCiSTEM ist auf dem beiliegenden Datenträger enthalten.

6.2 Definition der DPC-Auflösungsgrenze

Die Definition einer Auflösungsgrenze kann beispielsweise mit Hilfe des Rayleigh-Kriteriums [23] erfolgen. Wird eine kreisförmige Blende mit einer ebenen Welle beleuchtet, so ergibt sich im Fernfeld (Fraunhoferbeugung) ein als Airy-Muster bezeichnetes Beugungsbild (vgl. Abb. 6.2).

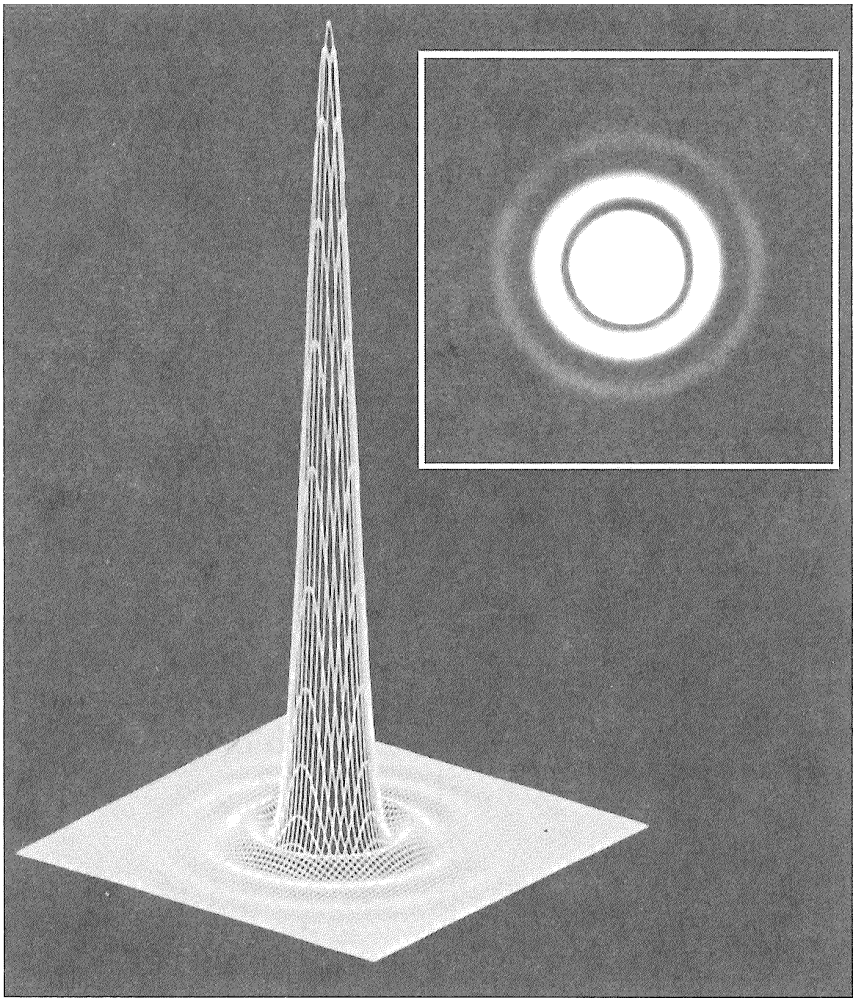

Abbildung 6.2 – Das Airy-Muster in Aufsicht (Einsatz) und in perspektivischer Zeichnung [11].

Bei einer weit entfernten, selbstleuchtenden Punktquelle können die auf eine kreisförmige Blende fallenden Wellen als ebene Wellen betrachtet werden, sodass sich für jede solche Punktquelle ein Airy-Muster im Fernfeld ergibt. Das Rayleigh-Kriterium besagt nun, dass zwei Punktquellen genau dann gerade noch aufgelöst werden können, wenn das zentrale Maximum des einen Airy-Musters auf dem ersten Minimum des anderen Airy-Musters liegt (vgl. Abb. 6.3).

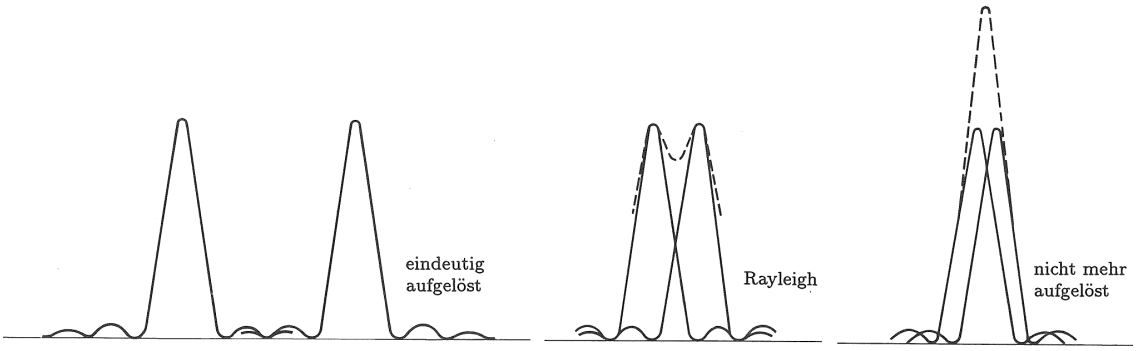

Abbildung 6.3 – Beugungsbild zweier eindeutig auflösbarer Punktquellen (links) / nach dem Rayleigh-Kriterium auflösbarer Punktquellen (mittig) / nicht auflösbarer Punktquellen (rechts) [23].

Es lässt sich zeigen [23], dass der Abstand d_R zwischen den beiden Maxima in dieser Situation der ersten Nullstelle der Besselfunktion erster Ordnung, also [24]

$$d_R = 0.61 \frac{\lambda}{\theta_0} \ , \tag{6.8}$$

entspricht, wobei λ die Wellenlänge der zur Abbildung verwendeten Welle und θ_0 den Öffnungswinkel der Blende bezeichnet. Das mit Gl. (6.8) berechnete d_R gibt nach dem Rayleigh-Kriterium die Größe der kleinsten noch auflösbaren Strukturen an und wir daher als Auflösungsgrenze bezeichnet. Die zur Auflösungsgrenze im Realraum korrespondierende Größe im Fourierraum wird hier als Auflösungsvermögen bezeichnet, und lässt sich in Form eines Streuwinkels ω_R oder einer Raumfrequenz k_R ausdrücken. Für das auf den Öffnungswinkel θ_0 normierte Auflösungsvermögen ν_R ergibt sich aus dem Rayleigh-Kriterium

$$\nu_R = \frac{\omega_R}{\theta_0} = \frac{\lambda}{\theta_0} \frac{1}{d_R} = \frac{1}{0.61} \ . \tag{6.9}$$

Eine alternative Formulierung des Rayleigh-Kriteriums gelingt mit Hilfe der Kontrastübertragungsfunktion (OTF $\widehat{=}$ **O**ptical **T**ransfer **F**unction) eines beugungsbegrenzten Systems (siehe Abb. 6.4 links). Beugungsbegrenzt bedeutet, dass die Auflösung einzig durch Beugungseffekte und nicht durch andere Effekte wie z. B. Linsenfehler begrenzt ist. Für ein beugungsbegrenztes System mit einer kreisförmigen Blende ergibt sich die normierte OTF als Schnittfläche zweier Einheitskreise, deren Mittelpunkte den Abstand ν haben, zu [12, 24]

$$\mathcal{H}(\nu) = \begin{cases} \frac{1}{\pi}\left(2\arccos\left(\frac{\nu}{2}\right) - \nu\sqrt{1-\frac{\nu^2}{4}}\right), & \text{für } \nu \leq 2 \\ 0, & \text{sonst.} \end{cases} \tag{6.10}$$

Da gilt $\mathcal{H}(0) = 1$ und $\mathcal{H}(\nu_R) = 0.089$, wäre eine zum Rayleigh-Kriterium äquivalente Definition der Auflösung, dass das normierte Auflösungsvermögen eines Systems gerade dem normierten Streuwinkel $\nu_R = \omega_R/\theta_0$ entspricht, an dem die OTF nur noch 8.9% ihres Wertes bei $\omega/\theta_0 = 0$ innehat [24]. Inspiriert von dieser Formulierung des Rayleigh-Kriteriums ist das DPC-Auflösungsvermögen in dieser Arbeit als der Punkt definiert worden, an dem die PGTF nur noch $8,9\%$ ihres Wertes bei $\omega/\theta_0 = 0$ beträgt.

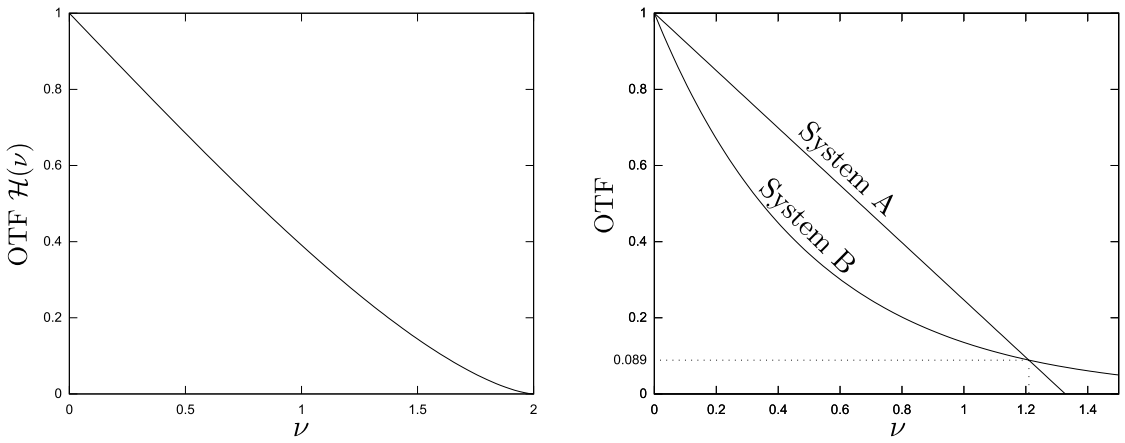

Abbildung 6.4 – OTF eines beugungsbegrenzten Systems (links) und OTF zweier hypothetischer Systeme „A“ und „B“ (rechts), die laut der hier getroffenen Auflösungsdefinition dieselbe Auflösungsgrenze aufweisen würden.

Zum Abschluss der Überlegungen zur Definition der DPC-Auflösung sei nochmals darauf hingewiesen, dass die Reduktion einer Kontrastübertragungscharakteristik auf eine einzige Zahl eine starke Vereinfachung darstellt. So weisen z. B. die beiden in Abb. 6.4 rechts gezeigten OTF von „System A“ und „System B“ nach der oben gegebenen Definition das gleiche normierte Auflösungsvermögen von $\nu_R = 1.21$ auf, obwohl System B unterhalb des normierten Auflösungsvermögens einen schwächeren Kontrast als System A liefert.

Kapitel 7

DPC-Auflösungsgrenze verschiedener Detektorgeometrien

Nach der mathematischen Vorbereitung in den Kapiteln 5 und 6 wird in diesem Kapitel die PGTF für verschiedene Detektorgeometrien berechnet. Mit der PGTF lässt sich eine DPC-Auflösungsgrenze für die entsprechende Detektorgeometrie ermitteln, wobei die hierfür benötigten Werte der Beschleunigungsspannung U_{acc} und des Objektivaperturwinkels θ_0 in Übereinstimmung mit der in [8] durchgeführten Messung gewählt werden. PGTF und errechnete Auflösungsgrenze liefern nun Informationen darüber, ob der Detektor für hochaufgelöste DPC-Messungen prinzipiell geeignet ist. Um den Rechenweg, der zur PGTF führt, deutlicher zu machen, wird im ersten Abschnitt der, im Vergleich zu den Quadrantendetektoren im zweiten Abschnitt, etwas einfachere Fall des Halbkreisdetektors diskutiert. Im zweiten Abschnitt werden dann die PGTF verschiedener Quadrantendetektoren ausgewertet, welche zum Teil auch in [8–10] für die Durchführung hochaufgelöster DPC-Messungen verwendet worden sind.

7.1 Halbkreisdetektor

Im ersten Abschnitt dieses Kapitels werden die zum Erhalten der PGTF durchzuführenden Rechenschritte am Beispiel des Halbkreisdetektors vorgestellt. Der Halbkreisdetektor bietet sich als Beispiel an, da sich seine Zerlegung in Halbkreise besonders einfach darstellt (siehe Abb. 7.1).

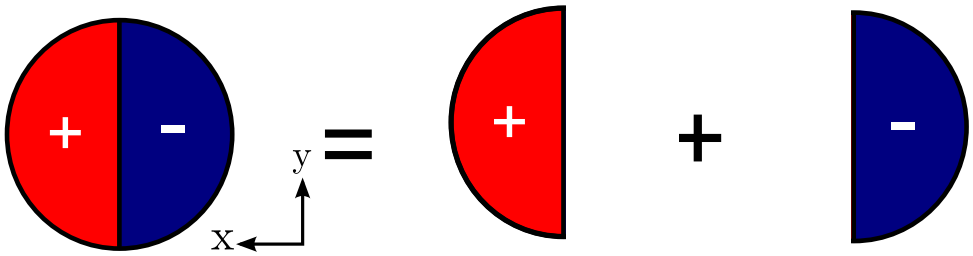

Abbildung 7.1 – Zerlegung der Geometrie eines Halbkreisdetektors in Halbkreise.

Ist nun der Objektivaperturwinkel θ_0 größer als der Detektoraußenwinkel θ_a, so ist zur Berechnung der PCTF für jedes der beiden Halbkreissegmente des Detektors die Schnittfläche mit einem um den Streuwinkel $\vec{\omega}$ verschobenen Kreis mit dem Radius θ_0 zu berechnen. Durch Abziehen der zwei so ermittelten Schnittflächen voneinander und Teilen des so erhaltenen Ergebnisses durch $\pi\theta_0^2$ ergibt sich nach Gl. (6.7) die PCTF des Halbkreisdetektors. Für den Fall, dass der Objektivaperturwinkel kleiner ist als der Detektoraußenwinkel ($\theta_0 < \theta_a$), ergibt sich die PCTF analog, wobei die Radien der beiden Halbkreissegmente auf den Objektivaperturwinkel θ_0 zu verkleinern sind. Da in den für diese Arbeit betrachteten Experimenten üblicherweise $\theta_0 < \theta_a$ verwendet worden ist [9,10,25], wird in diesem Kapitel ebenfalls $\theta_0 < \theta_a$ angenommen. In diesem Fall ist die in Abb. 7.2 gezeigte PCTF eines Halbkreisdetektors unabhängig von der Größe des Detektoraußenwinkels θ_a, da dieser für die geometrische Auswertung des Integral in Gl. (6.7) nicht benötigt wird. Um eine von der konkreten Größe des Objektivaperturwinkels θ_0 unabhängige Darstellung zu erhalten bietet es sich außerdem an, die auftretenden Größen auf ebenjenen zu normieren.

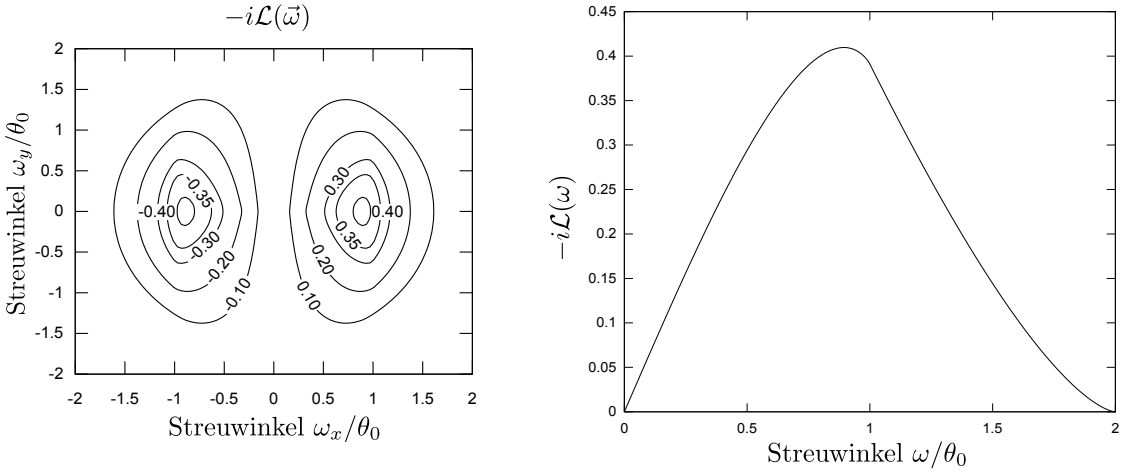

Abbildung 7.2 – PCTF $\mathcal{L}(\vec{\omega})$ als Isolinienkarte (links) und Profil entlang der x-Achse (rechts) für einen Halbkreisdetektor (und $\theta_0 < \theta_a$).

Die zweidimensionale PCTF eines Halbkreisdetektors ist, mit denselben Näherungen wie hier, bereits von *Rose* in [26] berechnet worden. Das in Abb. 7.3 gezeigte Ergebnis dieser Rechnung weist eine gute Übereinstimmung mit der Isolinienkarte in Abb. 7.2 auf, was die hier durchgeführten Überlegungen zur Berechnung der PCTF zumindest für diesen Spezialfall untermauert.

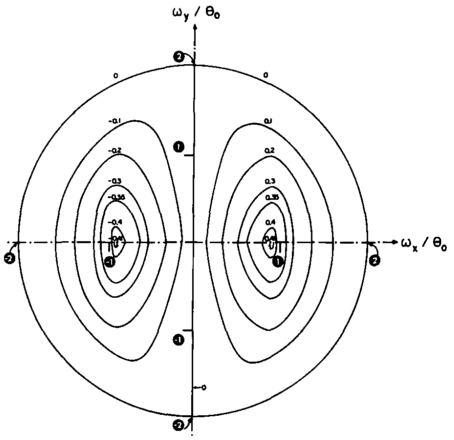

Abbildung 7.3 – $-i\mathcal{L}(\vec{\omega})$ als Isolinienkarte für einen Halbkreisdetektor [26].

Die Phasenkontrastübertragungsfunktion beschreibt die Kontrastübertragungscharakteristik des Gerätes für Phasenkontrast. Bei differentiellem Phasenkontrast handelt es sich jedoch um die Ableitung des Phasenkontrastes (bei der in Abb. 7.1 gezeigten Orientierung des Detektors in x-Richtung), was sich im Fourierraum durch eine Multiplikation mit $i\omega_x$ bemerkbar macht. DPC tritt also in dem Bereich auf, in dem die PCTF proportional zu ω_x ist. Da eine genaue Einschätzung des Ausmaßes dieses Bereichs anhand der PCTF schwierig ist (vgl. Profil in Abb. 7.2), bietet es sich an, die PCTF, wie in Gl. (6.1) beschrieben, durch $i\omega_x$ zu teilen, um die PGTF zu erhalten. Für die PGTF des Halbkreisdetektors ergeben sich dann die in Abb. 7.4 dargestellten Graphen.

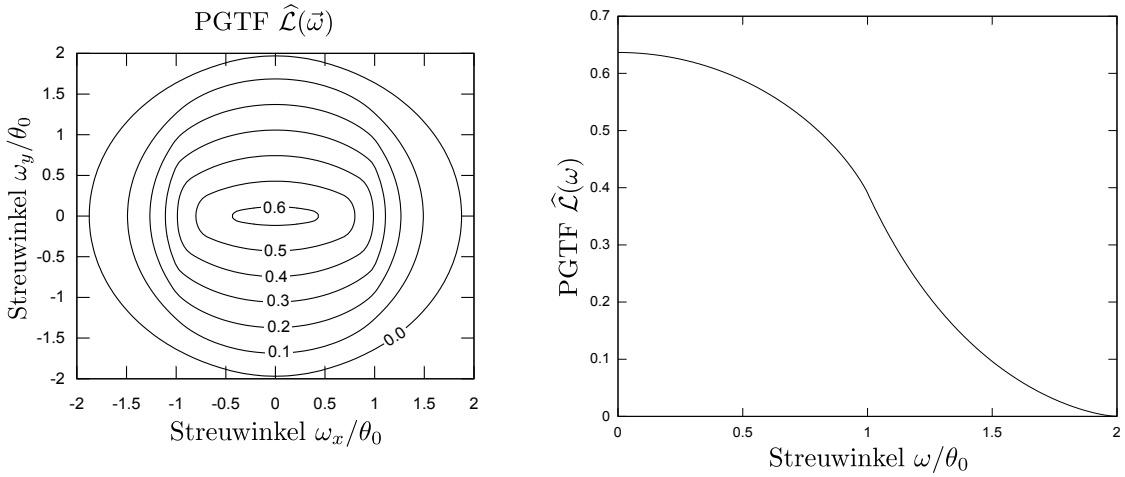

Abbildung 7.4 – PGTF $\widehat{\mathcal{L}}(\vec{\omega})$ als Isolinienkarte (links) und Profil entlang der x-Achse (rechts) für einen Halbkreisdetektor.

Laut der in Abschnitt 6.2 festgelegten Definition entspricht das DPC-Auflösungsver-

mögen dem Wert, an dem die PGTF auf $8,9\%$ ihres Wertes bei $\vec{\omega} = 0$ abgefallen ist. Im Fall des Halbkreisdetektors ist dies ein Wert von $\widehat{\mathcal{L}}(\vec{\omega}) = 0.06$. Ein Blick auf die 0.1-Isolinie der Isolinienkarte in Abb. 7.4 zeigt, dass das DPC-Auflösungsvermögen für den Halbkreisdetektor nahezu unabhängig von der Richtung der konkret an der Bildentstehung beteiligten Streuwinkel ist. Mit Hilfe der Kurve in Abb. 7.4 (rechts) lässt sich das normierte DPC-Auflösungsvermögen des Halbkreisdetektors als $\omega_R/\theta_0 = 1.63$ bestimmen. Für eine Beschleunigungsspannung von $U_{\text{acc}} = 300\,\text{kV}$ und einem Objektivaperturwinkel von $\theta_0 = 21.0\,\text{mrad}$ [8] entspricht dies einem DPC-Auflösungsvermögen von $k_R = \omega_R/\lambda = 1.7\,{}^1/\text{Å}$ und einer DPC-Auflösungsgrenze von $d_R = \lambda/\omega_R = 0.6\,\text{Å}$.

7.2 Verschiedene Quadrantendetektoren

Die Zerlegung eines Ringquadrantendetektors in Halbkreise erfolgt mit Hilfe des in Abb. 7.5 gezeigten Schemas.

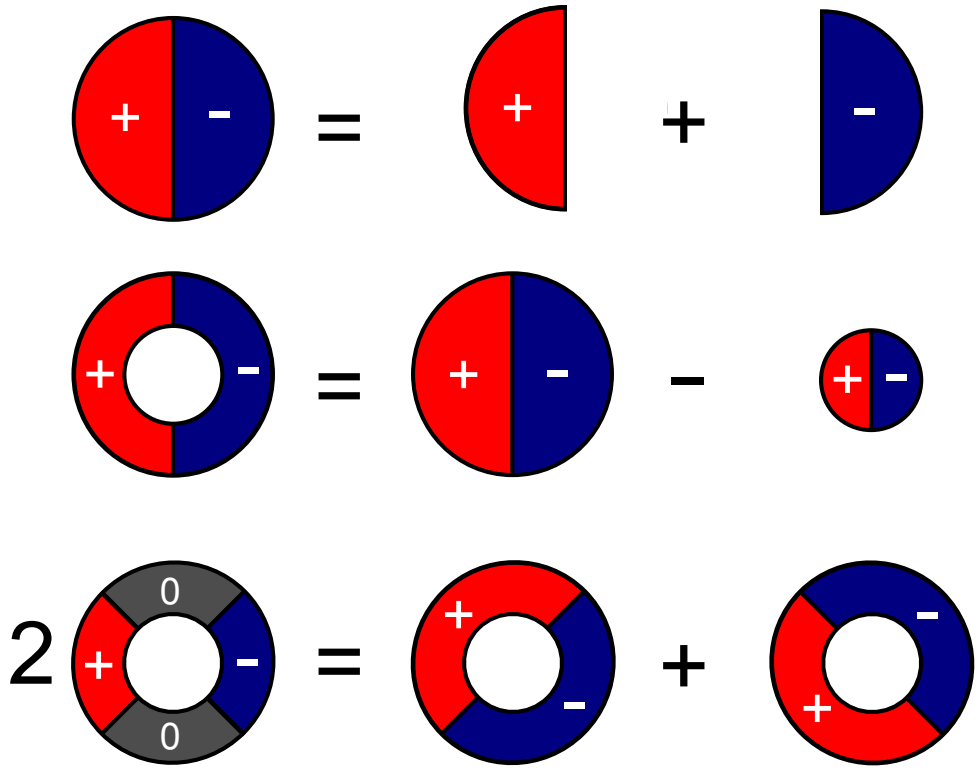

Abbildung 7.5 – Zerlegung der Geometrie eines Ringquadrantendetektors in Halbkreise.

Die Reduzierung eines lochlosen Ringquadrantendetektors (also eines konventionellen Quadrantendetektors) auf Halbkreise kann mit einem ähnlichen Schema durchgeführt

werden, in dem der zweite Schritt in Abb. 7.5 fehlt und bei dem in den ringförmigen Geometrien im letzten Schritt das Loch entfernt wird.

Für Ringquadranten- und konventionelle Quadrantendetektoren erfolgt die Berechnung der PGTF nun analog zu der Rechnung für den Halbkreisdetektor (siehe Abschnitt 4.1). Bei einem Detektoraußenwinkel, der größer als der Objektivaperturwinkel ist, ist die PGTF eines Ringquadrantendetektors nur abhängig vom Verhältnis zwischen Detektorinnenwinkel θ_i und Objektivaperturwinkel θ_0. Diese Größe wird hier als

$$\epsilon = \frac{\text{Detektorinnenwinkel } \theta_i}{\text{Objektivaperturwinkel } \theta_0} \tag{7.1}$$

bezeichnet.

Bei der Messung von magnetischen Strukturen mit DPC in niedriger Auflösung lässt sich ein Ringquadrantendetektor verwenden, der nur geringfügig vom direkten Strahl überlappt wird (vgl. Abb. 7.6).

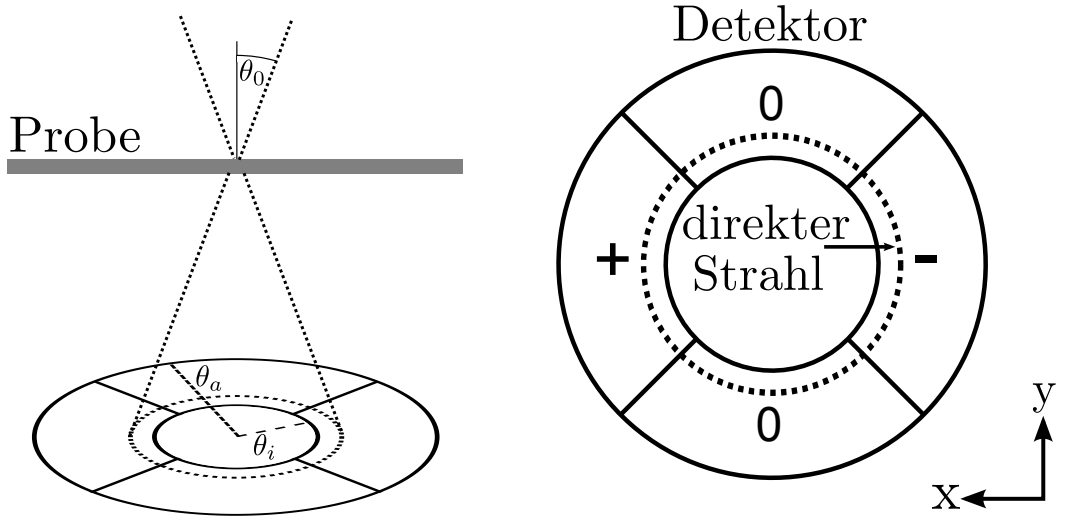

Abbildung 7.6 – Schematische Darstellung der Konfiguration des Detektors zur Messung von magnetischen Feldern mit DPC in niedriger Auflösung. Der Beleuchtungskreis des direkten Strahls überlappt den Ringquadrantendetektor nur geringfügig (Detektoraußenwinkel θ_a, Detektorinnenwinkel θ_i).

Dieser Aufbau, der das Signal-zu-Rausch-Verhältnis für niedrige Raumfrequenzen optimiert [25], wird durch ein ϵ nahe 1 beschrieben. Als Beispiel für eine solche Detektorkonfiguration ist in Abb. 7.7 die PGTF für einen Ringquadrantendetektor mit $\epsilon = 0.97$ aufgetragen.

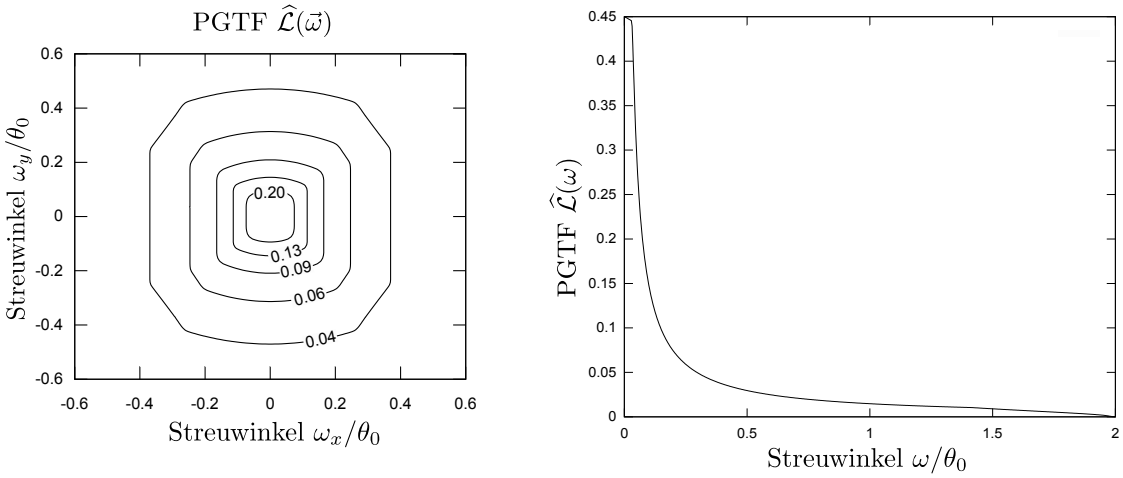

Abbildung 7.7 – PGTF $\widehat{\mathcal{L}}(\vec{\omega})$ als Isolinienkarte (links) und Profil entlang der x-Achse (rechts) für einen Ringquadrantendetektor mit $\epsilon = 0.97$.

Am in Abb. 7.7 gezeigten Profil wird direkt deutlich, dass für den $\epsilon = 0.97$-Ringquadrantendetektor hohe Raumfrequenzen gedämpft werden. Konkret wird die DPC-Auflösung, nach der in Abschnitt 6.2 gegebenen Definition, durch $\widehat{\mathcal{L}}(\vec{\omega}) = 0.04$ begrenzt, was einem normierten DPC-Auflösungsvermögen von $\omega_R/\theta_0 = 0.37$ entspricht. Die $0.04-$Isolinie in der Isolinienkarte in Abb. 7.7 zeigt, dass das Auflösungsvermögen des $\epsilon = 0.97$-Ringquadrantendetektors, ähnlich wie beim Halbkreisdetektor, nahezu unabhängig von der konkreten Richtung der einfließenden Streuwinkel $\vec{\omega}$ ist.

Mit einem Wert von $\omega_R/\theta_0 = 0.37$ entspricht das normierte DPC-Auflösungsvermögen des $\epsilon = 0.97$-Ringquadrantendetektors bei $\theta_0 = 21.0\,\text{mrad}$ und $U_{\text{acc}} = 300\,\text{kV}$ einem Auflösungsvermögen von $k_R = 0.4\,{}^1/\text{Å}$ und einer Auflösungsgrenze von $d_R = 2.5\,\text{Å}$. Das normierte Auflösungsvermögen beträgt nur ungefähr ein Viertel des normierten Auflösungsvermögen des beugungsbegrenzten Systems ($\omega_R/\theta_0 = 1.64$ siehe Abschnitt 6.2). Dies zeigt, dass der $\epsilon = 0.97$-Ringquadrantendetektor für die Erstellung hochaufgelöster DPC-Aufnahmen nicht optimal ist.

Die in Abb. 7.8 gezeigte PGTF eines $\epsilon = 0.5$-Ringquadrantendetektors deutet darauf hin, dass Ringquadrantendetektoren mit (im Vergleich zum Beleuchtungskreis) kleineren Detektorinnenwinkeln für DPC in Hochauflösung besser geeignet sind. Hier ergibt sich ein normiertes DPC-Auflösungsvermögen von $\omega_R/\theta_0 = 1.70$. Bei $\theta_0 = 21.0\,\text{mrad}$ und $U_{\text{acc}} = 300\,\text{kV}$ entspricht dies einem DPC-Auflösungsvermögen von $k_R = 1.8\,{}^1/\text{Å}$ und einer DPC-Auflösungsgrenze von $d_R = 0.6\,\text{Å}$.

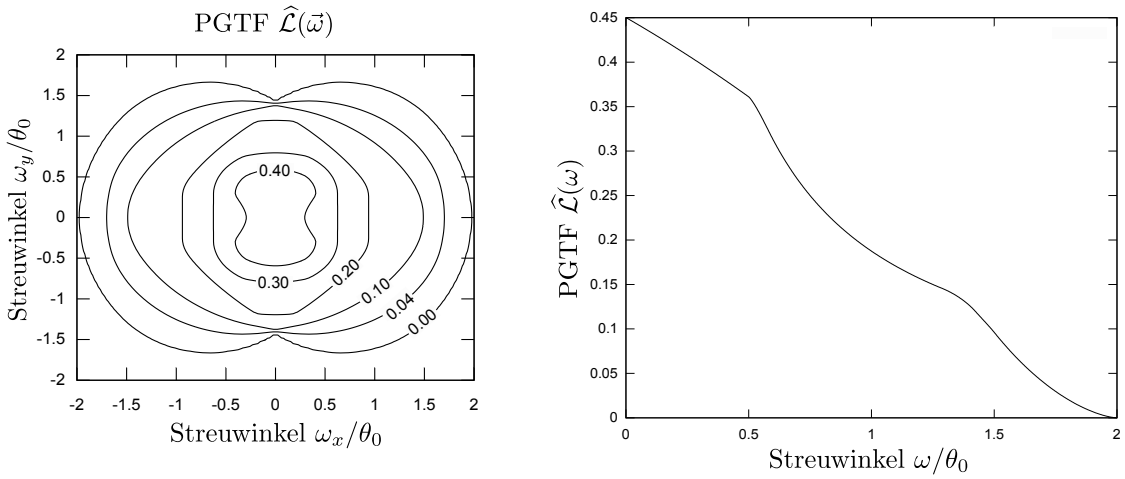

Abbildung 7.8 – PGTF $\widehat{\mathcal{L}}(\vec{\omega})$ als Isolinienkarte (links) und Profil entlang der x-Achse (rechts) für einen Ringquadrantendetektor mit $\epsilon = 0.5$.

Die für das Auflösungsvermögen ausschlaggebende Isolinie des $\epsilon = 0.5$-Ringquadrantendetektors ist erneut $\widehat{\mathcal{L}}(\vec{\omega}) = 0.04$. Ein genauerer Blick auf die Isolinienkarte des $\epsilon = 0.5$-Ringquadrantendetektors in Abb. 7.8 lässt erkennen, dass das anhand des Profils entlang der x-Achse bestimmte normierte Auflösungsvermögen von $\omega_{R,x}/\theta_0 = 1.70$ in y-Richtung einen etwas kleineren Wert von etwa $\omega_{R,y}/\theta_0 = 1.41$ annehmen würde. Da die PGTF bei der hier gewählten Orientierung des Detektors in x-Richtung die Übertragungscharakteristik des Gradienten des Probenpotentials in x-Richtung darstellt, ist diese Abhängigkeit des Auflösungsvermögens von der Richtung des Streuwinkels $\vec{\omega}$ durchaus verständlich. Unabhängig von der Richtung von $\vec{\omega}$ liegt das Auflösungsvermögen des $\epsilon = 0.5$-Ringquadrantendetektors jedoch deutlich über dem Auflösungsvermögen des $\epsilon = 0.97$-Ringquadrantendetektors.

Dasselbe gilt für den konventionellen Quadrantendetektor ($\epsilon = 0$), dessen PGTF in Abb. 7.9 dargestellt ist. Der konventionelle Quadrantendetektor weist entlang der x-Achse dieselbe Auflösungsgrenze auf wie der $\epsilon = 0.5$-Ringquadrantendetektor, nämlich $d_R = 0.6\,\text{Å}$. Das in Abb. 7.9 gezeigte Profil der PGTF für den konventionellen Quadrantendetektor nimmt im Bereich von $\omega/\theta_0 = 0.5 - 1.4$ etwas höhere Werte als das des $\epsilon = 0.5$-Ringquadrantendetektors an, was darauf hindeutet, dass ein mit einem konventionellen Quadrantendetektor aufgenommenes Bild in diesem Streuwinkelbereich einen stärkeren Kontrast aufweist.

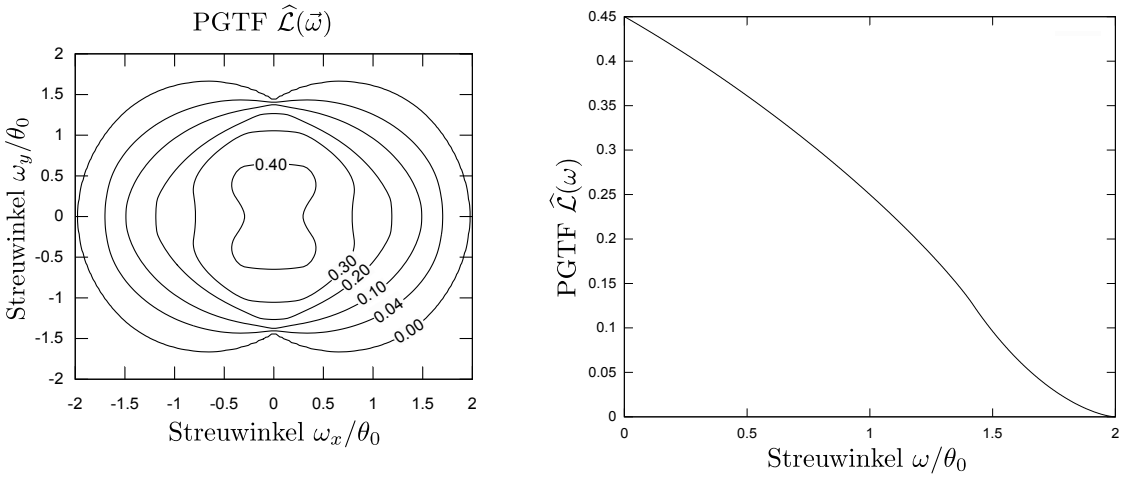

Abbildung 7.9 – PGTF $\widehat{\mathcal{L}}(\vec{\omega})$ als Isolinienkarte (links) und Profil entlang der x-Achse (rechts) für einen konventionellen Quadrantendetektor ($\epsilon = 0$).

Aus dem in Abb. 7.10 gezeigten Graphen, der den Zusammenhang zwischen dem Verhältnis ϵ von Detektorinnenwinkel zu Objektivaperturwinkel und dem normierten DPC-Auflösungsvermögen ω_R/θ_0 zeigt, lässt sich entnehmen, dass das in Abschnitt 6.2 definierte DPC-Auflösungsvermögen für alle $\epsilon < 0.7$-Ringquadrantendetektoren $\omega_R/\theta_0 = 1.7$ beträgt.

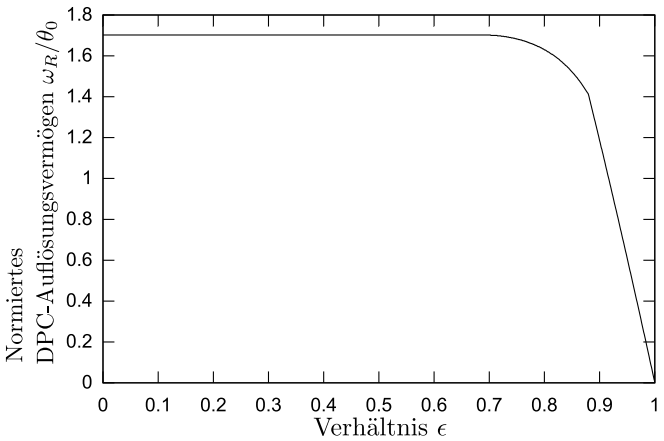

Abbildung 7.10 – Normiertes DPC-Auflösungsvermögen ω_R/θ_0 eines Ringquadrantendetektors in Abhängigkeit von dem Verhältnis ϵ zwischen seinem Innenwinkel und dem Objektivaperturwinkel. Es wird angenommen, dass der Außenwinkel des Detektors größer ist als der Objektivaperturwinkel.

Dies bedeutet jedoch nicht, dass sich alle $\epsilon < 0.7$-Ringquadrantendetektoren gleich gut für hochaufgelöste Aufnahmen eignen, da die über den gesamten Raumfrequenzbereich höchsten Werte der PGTF beim Quadrantendetektor ($\epsilon = 0$) auftreten. Für Werte

von $\epsilon > 0.7$ nimmt das erreichbare DPC-Auflösungsvermögen ab und nähert sich bei $\epsilon \to 1$ dem Wert 0 an. Hochauflösung ist daher für Detektoren mit einem ϵ nahe an 1 nicht möglich. Es ist allerdings zu beachten, dass sich selbst bei einem Wert von $\epsilon = 0.97$ noch eine Auflösungsgrenze von $d_R = 2.5$ Å ergeben kann (siehe oben), sodass ein kategorisches Ausschließen von hochaufgelösten Aufnahmen nur für Detektoren mit einem ϵ extrem nahe an 1 möglich ist. Nichtsdestotrotz sollte ein konventioneller Quadrantendetektor, vom Standpunkt der Kontrastübertragung, zur Aufnahme von hochaufgelösten DPC-Bildern besser geeignet sein als ein Ringquadrantendetektor mit großem Detektorinnenwinkel relativ zum Detektoraußenwinkel oder geringfügiger Beleuchtung. Mit dem in Abb. 7.11 dargestellten Ergebnis der Signal-zu-Rausch-Betrachtungen in [25] gilt dieselbe Aussage auch bezüglich des Signal-zu-Rausch-Verhältnisses.

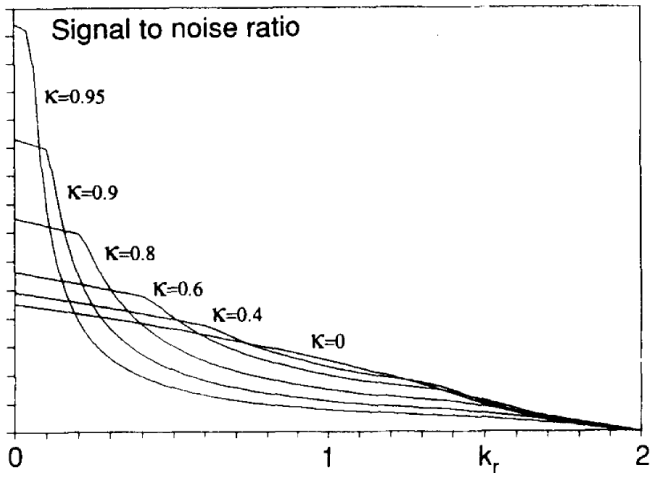

Abbildung 7.11 – Signal-zu-Rausch-Verhältnis für verschiedene Ringquadrantendetektoren in Abhängigkeit von der normierten Raumfrequenz. Die als κ bezeichnete Größe entspricht dem in dieser Arbeit verwendeten ϵ und $\kappa = 0$ somit einem Quadrantendetektor und $\kappa = 0.95$ einem geringfügig beleuchteten Ringquadrantendetektor (vgl. Abb. 7.6) [25].

Es ist noch anzumerken, dass, laut den in Abschnitt 4.1 durchgeführten Überlegungen, auch ein Halbkreisdetektor für die Erstellung von hochaufgelösten DPC-Aufnahmen prinzipiell geeignet wäre. Ein ausführlicher Vergleich zwischen Halbkreis- und Quadrantendetektor soll an dieser Stelle allerdings ausbleiben, da sich zum einen die Eigenschaften eines Halbkreisdetektors auch durch Addition und Subtraktion der mit einem Quadrantendetektor aufgenommenen Signale erzielen lassen, womit jeder Quadrantendetektor auch als Halbkreisdetektor verwendet werden kann. Zum anderen lassen sich die in diesem Kapitel gezeigten Graphen für den Halbkreisdetektor und den Quadrantendetektor nicht direkt vergleichen, da beim Halbkreisdetektor alle zwei Segmente des Detektors in den Plot einfließen, während in den Graphen für den Quadrantendetektor nur ein gegenüberliegendes Paar der vier Detektorsegmente

berücksichtigt worden ist.

Kapitel 8

Zusammenfassung und Ausblick

In dieser Arbeit haben wir zwei Fragestellungen aus dem Bereich der hochaufgelösten Transmissionselektronenmikroskopie behandelt. Um herauszufinden, inwiefern die Position einer Grenzfläche zwischen amorphen Stoffen in einer TEM-Aufnahme mit der tatsächlichen Position der Grenzfläche in der Probe übereinstimmt, sind zunächst (Kapitel 2 bis 4) TEM-Aufnahmen von Grenzflächen zwischen amorphen Stoffen simuliert worden. Es stellte sich heraus, dass bei der Abbildung von Grenzflächen zwischen amorphen Stoffen im TEM der Phasenkontrast nur eine untergeordnete Rolle spielt. In den für das betrachtete Probensystem durchgeführten Simulationen trat ein Unterschied von bis zu 2 Å zwischen der nach der Mittelmethode bestimmten Grenzflächenposition in der TEM-Aufnahme und der tatsächlichen Position der Grenzfläche in der Probe auf. Im Folgenden (Kapitel 5 bis 7) wurde die Phasenkontrastübertragungsfunktion des STEM betrachtet mit dem Ziel, eine Aussage über die Tauglichkeit von Ringquadrantendetektoren für hochaufgelösten DPC zu treffen. Es ergab sich, dass schmale Ringquadrantendetektoren für hochaufgelösten DPC nicht optimal sind. Als Alternative empfehlen sich konventionelle Quadrantendetektoren.

Aus den in Kapitel 4 durchgeführten Simulationen folgt, dass bei der Positionsbestimmung von Grenzflächen zwischen amorphen Stoffen der durch Absorption von gestreuten Elektronen durch die Blende entstehende Streu-Absorptionskontrast das Bild dominiert. Dieser führt dazu, dass für das untersuchte Probensystem die scheinbare Position der Grenzfläche in der TEM-Aufnahme in Richtung des schwächer streuenden Stoffes verschoben ist. Bei der Positionsbestimmung von Grenzflächen zwischen amorphen Stoffen mit dem TEM sollte für höchstmögliche Genauigkeit daher das Streuverhalten der einzelnen Stoffe berücksichtigt werden. Für zukünftige Betrachtungen dieser Fragestellung wäre unter anderem interessant, ob sich die Verbindung von Positionsfehler der Grenzfläche und Streuvermögen der Stoffe in einen (einfachen?) mathematischen Zusammenhang bringen lässt. Weiterhin wäre auch von Interesse, ob der beobachtete Positionsfehler in ähnlicher Form auch bei anderen Abbildungsmodi, wie z. B. STEM oder energiedispersiver Röntgenspektroskopie, auftritt. Als weitere Frage stellt sich, wie gut die Näherung von amorphen Stoffen als zufällig verteilte Atome/Moleküle in der Multislice Methode ist. So wäre

möglicherweise ein bestimmter Mindestabstand der Atome/Moleküle bei der zufälligen Verteilung günstiger, wobei ein solcher Mindestabstand wiederum abhängig vom konkreten Stoff und von der Scheibchendicke in der Multislice Rechnung wäre. Hinzu kommt, dass bei der zufälligen Verteilung von Atomen/Molekülen auch jegliche, durch Bindungen zwischen den einzelnen Atomen/Molekülen entstehende, kurzreichweitige Ordnung des entsprechenden Stoffes vernachlässigt wird (zur atomaren Anordnung von Glas siehe z. B. [27]). Da bei Proben entsprechender Dicke gewissermaßen eine Mittelung über die Struktur der Probe erfolgt, ist jedoch anzunehmen, dass die Nahordnung der Stoffe einen eher geringen Einfluss auf ihr Bild im TEM hat.

Die in Kapitel 7 durchgeführten Rechnungen zeigen, dass ein konventioneller Quadrantendetektor den Gradienten des Objektpotentials auch noch im hohen Raumfrequenzbereich abzubilden vermag. Für die Auflösungsgrenze des konventionellen Quadrantendetektors ergibt sich ein Wert von 0.6 Å. Da zur Berechnung dieses Wertes jedoch von einem idealen Mikroskop ausgegangen wird, heißt dieser Wert nicht, dass diese DPC-Auflösung bei tatsächlichen Messungen erreicht werden kann. Stattdessen deutet dieser Wert an, dass sich mit einem konventionellen Quadrantendetektor die Punktauflösungsgrenze des verwendeten STEM auch im DPC-Modus erreichen lässt. Zur weiteren Untersuchung ließe sich die Rechnung prinzipiell auch für ein weniger stark idealisiertes Mikroskop durchführen [22]. Zum einen würde dies jedoch dazu führen, dass eine analytische Lösung des Problems nicht mehr möglich wäre. Zum anderen ist der Einfluss der vernachlässigten Effekte offensichtlich kleiner als die mit einem STEM erreichbare Punktauflösung ($< 0.1\,\mathrm{nm}$ [28]), sodass sich an der prinzipiellen Aussage, dass schmale Ringquadrantendetektoren für hochaufgelösten DPC nicht optimal sind, nichts ändern sollte. Als etwas weitergehende Fragestellung ließe sich außerdem noch die Bedingung einer „hinreichend“ dünnen Probe (siehe Kapitel 1) für DPC näher untersuchen. Dies könnte z. B. mit Hilfe einer entsprechenden Multislice Rechnung erfolgen, mit der sich testen ließe, inwiefern die DPC-Aufnahmen von Proben unterschiedlicher Dicke noch den Gradienten des Objektpotentials wiedergeben.

Anhang A

Benutzerhandbuch IMP

A.1 Einleitung

Das Programm IMP (IMP $\widehat{=}$ **I**nterface **M**ultislice **P**rogram) ist ein Multislice Programm (Multislice Methode siehe Abschnitt 3), das auf die Simulation von Grenzflächenaufnahmen im konventionellen Transmissionselektronenmikroskop (TEM) ausgelegt ist. Es ist mit Blick auf das von *Kirkland* in [14] beigelegte Programmpaket geschrieben worden, was sich unter anderem darin äußert, dass IMP die Potentiale der Probenatome mit Hilfe der in [14] mitgelieferten Daten berechnet. Erwähnenswert ist weiterhin, dass IMP mit den aus diskreter Darstellung von Bildern (Stichwort Aliasing) entstehenden Problemen auf die gleiche Weise umgeht, wie die Programme aus [14]. Die in [14] enthaltene detaillierte Beschreibung der auftretenden Aliasing-Effekte und der Weg zur Vermeidung ebenjener ist somit auch für IMP gültig.

Abgesehen von den konzeptionellen Gemeinsamkeiten unterscheidet sich IMP von dem Programmpaket in mehreren Aspekten. So lassen sich z. B. in IMP Proben mit Grenzflächen komfortabler erstellen und der Anwender hat generell mehr Möglichkeiten, auf das in der Multislice Rechnung verwendete Potential einzuwirken. Weiterhin erlaubt IMP die Simulation von aberrationskorrigierten TEM-Aufnahmen. Ein weiterer Unterschied besteht darin, dass IMP in C++ (siehe Datei IMP.cpp) und im Wesentlichen objektorientiert geschrieben ist, während die Programme aus [14] in C geschrieben sind. Mit der Absicht, ein möglichst schnelles Programm zu schreiben, ist in IMP auch eine anderer FFT-Algorithmus [15] als in den Programmen aus [14] verwendet worden. Darüber hinaus handelt es sich bei IMP nicht mehr um ein Programmpaket, sondern um ein einziges Programm. Dies ist zum einen sinnvoll, da sich die durch das Aufteilen des Programms wie in [14] erreichte Zeitersparnis bei den mittlerweile schnelleren Rechnern in Grenzen hält. Zum anderen würde ein Aufteilen des Programms die Simulation von amorphen Proben unnötig verkomplizieren. Zusammenfassend ist IMP mit den Programmen aus [14] im Bezug auf die letztlich durchgeführten Rechnungen nahezu identisch, das die Rechnungen umschließende Programm unterscheidet sich jedoch stark von dem ursprünglichen Programmpaket.

A.2 Installation und Kompilierung

Unter Windows sollte die 32bit bzw. 64bit Version (je nach System) von `IMP.exe` ohne weitere Installation lauffähig sein, wobei sich zur Ausführung des Programms die Dateien `FPARAMS.DAT` und `libfftw3-3.dll` in einem Ordner mit dem Programm befinden müssen. Wird der Programmcode unter `IMP.cpp` verändert, so muss das Programm selbst neu kompiliert werden, damit die Änderungen wirksam werden. Hierzu kann unter Windows MinGW verwendet werden. Dies ist kostenlos und kann z. B. unter `http://nuwen.net/mingw.html` heruntergeladen werden, wobei die Website auch eine Installationsanleitung („How to install“) anbietet. Die über diese Website vertriebene Distribution von MinGW bietet den Vorteil, dass die für IMP benötigte Boost-Bibliothek bereits enthalten ist und nicht separat installiert werden muss. Nach dem Abschluss der Installation von MinGW lässt sich durch einen Doppelklick auf die im Installationsverzeichnis enthaltene Datei `open_distro_window.bat` ein Terminal öffnen. Durch den Befehl `cd <Verzeichnis>` kann nun in das Verzeichnis (z. B. `C:/IMP`) navigiert werden, in dem `IMP.cpp` kompiliert werden soll. In diesem Verzeichnis sollten sich die auf der beigelegten CD enthaltenen Dateien

- `IMP.cpp`
- `fftw3.h`
- `libfftw3-3.dll`
- `libfftw3-3.dll.a`

befinden. Die letzten zwei dieser Dateien gibt es in einer 32bit und in einer 64bit Version und es ist daher darauf zu achten, dass die dem System entsprechende Version verwendet wird. Durch die Eingabe des Befehls

```
g++ -std=c++11 -Wall -pedantic -o IMP IMP.cpp -lfftw3-3
   -L<Verzeichnis> -I<Verzeichnis>
```

in das Terminal wird die Kompilierung ausgeführt und die neue `IMP.exe` erzeugt. Der Ausdruck `<Verzeichnis>` ist hierbei erneut durch das angesteuerte Verzeichnis (z. B. `C:/IMP`) zu ersetzen.

Prinzipiell lässt sich IMP auch unter Linux in einen funktionstüchtigen Zustand versetzen. Die verwendete FFT-Bibliothek fftw (`http://www.fftw.org/`) [15] lässt sich unter Linux sogar wesentlich besser auf das System abstimmen als unter Windows. Da Linux allerdings Textdateien in einer etwas anderen Form speichert als Windows (kein „carriage return“), wären im Bezug auf Ein- und Ausgabe von Werten im Quellcode von IMP einige Anpassungen durchzuführen.

A.3 Verwendung

Beim Starten von IMP ist darauf zu achten, dass sich `IMP.exe` in einem Ordner mit den Dateien `FPARAMS.DAT`, `libfftw3-3.dll`, `Mikroskop.txt` und `Probe.txt` befindet. Die Datei `FPARAMS.DAT` enthält die Streufaktoren der Atome mit den Ladungszahlen von $Z = 1$ bis $Z = 103$ in erster Bornscher Näherung und stammt ursprünglich aus [14]. Die Bibliothek `libfftw3-3.dll` enthält von der Fast-Fourier-Transformation fftw [15] benötigte Funktionen und ist daher für das Ausführen von IMP nötig. In den Dateien `Mikroskop.txt` und `Probe.txt` werden die für die Simulation nötigen Parameter des TEM und der Probe angegeben, sodass beim Ausführen von `IMP.exe` keine Parameter mehr in das Terminal selber eingeben werden müssen. Die in der Datei `Mikroskop.txt` enthaltenen Parameter sind nach dem in Tabelle A.1 gezeigten Konzept angeordnet.

Tabelle A.1 – Konzeptioneller Inhalt der Mikroskop-Eingabedatei.

Größe des Bildes in Pixel × Pixel
Beschleunigungsspannung in kV und Koeffizienten C_1 in Å, C_3 in mm, C_5 in mm
Objektivaperturwinkel und Objektivaperturposition in x- und y-Richtung in mrad
Strahlkippung in x- und y-Richtung in mrad
dec (Ein- /Aus-Schalter für partielle Kohärenz)
Minimale und Maximale Strahlkippung in mrad
Standardabweichung und Sampling von C_1 in Å

Der Wert *dec* in der fünften Zeile von `Mikroskop.txt` sagt dem Programm, ob mit ($dec = 1$) oder ohne ($dec = 0$) partielle Kohärenz gerechnet werden soll. Wird partielle Kohärenz bei der Rechnung nicht berücksichtigt (was z. B. sinnvoll sein kann um Arbeitsspeicherbedarf und Laufzeit des Programms zu verringern), so werden für die Strahlkippung $\vec{\alpha} = (\alpha_x, \alpha_y)$ (siehe Abschnitt 3.1) die in der fünften Zeile angegebenen Werte verwendet und die letzten zwei Zeilen von `Mikroskop.txt` werden bei der Rechnung ignoriert[1]. Bei eingeschalteter partieller Kohärenz ($dec = 1$) werden die zwei Werte in der vierten Zeile von `Mikroskop.txt` ignoriert, während die beiden Werte aus der vorletzten Zeile als $\alpha_{\min}$, $\alpha_{\max}$ (siehe Abschnitt 3.2) und die beiden Werte aus der letzten Zeile als die Standardabweichung σ des gaußverteilten C_1 (siehe Abschnitt 3.2) und als Schrittweite δC_1 der numerischen Integration über C_1 verwendet werden.

In der Datei `Probe.txt` sind die Strukturdaten der in Scheibchen geschnittenen Probe vorhanden. Der erste Schritt der Multislice Methode, nämlich das Aufteilen der Probe in Scheibchen (siehe Abschnitt 3.1), ist also vom Nutzer selbst durchzuführen.

[1] Um korrektes Einlesen der Datei zu gewährleisten, müssen hier trotzdem Werte angegeben werden, die dann vom Programm ignoriert werden.

Hierbei ist insbesondere ein Kompromiss zwischen Genauigkeit und Schnelligkeit der Rechnung zu finden, da eine geringere Scheibchendicke einerseits zu einem geringeren Fehler der Multislice Rechnung führt, andererseits aber auch die Dauer der Multislice Rechnung erhöht. Die Struktur der in Scheibchen geschnittenen Probe ist in der Datei `Probe.txt` in der in Tabelle A.2 gezeigten Form einzugeben.

Tabelle A.2 – Konzeptioneller Inhalt der Probenstruktur-Eingabedatei.

Scheibchenreihenfolge (0 : Erstes Scheibchen, 1 : Zweites Scheibchen, ...)
Wiederholung der Scheibchenreihenfolge
Größe der Probe in x- und y-Richtung in Å
Dicke des 0ten Scheibchens in Å
Grenzen 0ter Teilbereich, Abmessung Elementarzelle (x,y) in Å
Daten 0tes Atom im 0ten Teilbereich des 0ten Scheibchens
Daten 1tes Atom im 0ten Teilbereich des 0ten Scheibchens
⋮
<Leerzeile>
Grenzen 1ter Teilbereich, Abmessung Elementarzelle (x,y) in Å
Daten 0tes Atom im 1ten Teilbereich des 0ten Scheibchens
Daten 1tes Atom im 1ten Teilbereich des 0ten Scheibchens
⋮
⋮
<Leerzeile>
<Leerzeile>
Dicke des 1ten Scheibchens in Å
Grenzen 0ter Teilbereich, Abmessung Elementarzelle (x,y) in Å
Daten 0tes Atom im 0ten Teilbereich des 1ten Scheibchens
Daten 1tes Atom im 0ten Teilbereich des 1ten Scheibchens
⋮
⋮
⋮
<Leerzeile>
<Leerzeile>
<Leerzeile>

In der Datei `Probe.txt` wird, wie in Tabelle A.2 zu sehen ist, zunächst die Reihenfolge der Scheibchen angegeben. Hier würde z. B. die Eingabe 0 1 1 2 bedeuten, dass auf das 0te Scheibchen zweimal das 1te Scheibchen und dann das 2te Scheibchen folgt. Mit dem Wert in der nächsten Zeile der Datei kann dann angegeben werden, wie oft

diese Reihenfolge wiederholt werden soll (z. B. 20mal die Reihenfolge 0 1 1 2). Nach den Abmessungen der Probe folgen darauf in der übernächsten Zeile die Daten zu den verschiedenen Scheibchen. Die Daten der verschiedenen Scheibchen sind dabei jeweils durch zwei Leerzeilen voneinander getrennt. Weiterhin lässt sich jedes Scheibchen in verschiedene Teilbereiche (in x-Richtung) aufteilen, die in Form eines Anfangs- und eines Endwertes angegeben werden. Für jeden dieser Teilbereiche lässt sich auch die Größe einer rechteckigen Elementarzellen in x- und y-Richtung angeben, auf die sich die Daten der zu den jeweiligen Teilbereichen gehörenden Atome beziehen können. Die verschiedenen Teilbereiche eines Scheibchens sind durch eine Leerzeile voneinander getrennt. Sind alle Strukturdaten der Probe eingegeben worden, so wird IMP durch drei Leerzeilen das Ende der Probendatei `Probe.txt` signalisiert. Die Daten der einzelnen Atome, von denen in jedem Teilbereich beliebig viele angegeben werden können, werden dem Programm nach dem in Tabelle A.3 (oben) dargestellten Schema mitgeteilt.

Tabelle A.3 – Eingabeschema für Atomdaten (oben) und Bedeutung von Parameter1 und Parameter2 für verschiedene Atomoptionen (unten).

Optionen occupancy Ladungszahl Parameter1 Parameter2
N-Atome: Parameter1/2 = relative x/y-Position in der Elementarzelle
Z-Atome: Parameter1/2 = bedeutungslos
A-Atome: Parameter1/2 = Anzahl der Atome/Anzahl der folgenden B-Atome
B-Atome: Parameter1/2 = Abstand von zugehörigem A-Atom in x/y-Richtung in Å

Jede Atomdatenzeile beginnt mit einem Buchstaben (N/Z/A/B), über den sich verschiedenen Optionen bezüglich der Behandlung des Atoms (siehe unten) einstellen lassen. Darauf folgt die sogenannte „occupancy“, die einen Wert darstellt, mit dem das gesetzte Atompotential multipliziert werden soll. Dies kann z. B. dazu genutzt werden, zwei innerhalb eines Scheibchens in z-Richtung genau hintereinander liegende Atome zu simulieren (die occupancy würde dann auf 2 gesetzt). Der dritte Wert legt die Ladungszahl der von dieser Zeile beschriebenen Atome fest. Hier sind Eingaben von 1 bis 103 möglich. Die letzten zwei Werte (Parameter1 und Parameter2) einer Atomdatenzeile haben je nach an erster Stelle der Zeile stehendem Buchstaben unterschiedliche Bedeutungen.

Beginnt eine Atomdatenzeile mit dem Buchstaben „N“, so bedeutet dies, dass das beschriebene Atom Teil der Elementarzelle eines Kristalls ist. Die unter Parameter1 und Parameter2 angegebenen Werte beschreiben dann seine relative Position in der Elementarzelle. Mit Hilfe der Angaben über die Größe der Elementarzelle (siehe Tabelle A.2) füllt IMP dann den gesamten Teilbereich, zu dem die Atomdatenzeile gehört, mit entsprechend platzierten Atomen aus. Mit dem Buchstaben „Z“ beginnende Atomdatenzeilen sagen dem Programm, dass der Teilbereich mit einem konstanten

Potential gefüllt werden soll. Die Angaben über die Größe der Elementarzelle und die bei Parameter1 und Parameter2 stehenden Werte werden in diesem Fall ignoriert und der gesamte zur Atomdatenzeile gehörende Teilbereich mit dem Wert, den das Potential des Atoms mit der angegebenen Ladungszahl im Abstand von 0.5 Å vom Atommittelpunkt annimmt, gefüllt. Mit „A“ gekennzeichnete Atomdatenzeilen beschreiben im zugehörigen Teilbereich[2] zufällig verteilte Atome, die zur Simulation von amorphen Materialien genutzt werden können. Bei dieser Atomoption beschreibt Parameter1 die Anzahl der im Teilbereich zufällig zu verteilenden Atome, während Parameter2 die Anzahl der an den zufällig verteilten Atomen anhängenden Atome ist. Die konkrete Anzahl der zu verteilenden Atome lässt sich hierbei aus der Dichte des amorphen Stoffes, dem zu füllenden Volumen und der atomaren Masse berechnen. An einem zufällig verteilten Atom anhängenden Atome werden durch die Atomoption „B“ beschrieben und müssen auf ihr zugehöriges A-Atom folgen. Parameter1 und Parameter2 stellen hier den Abstand vom A-Atom (in Angstrom) dar. Soll beispielsweise amorphes SiO_2 simuliert werden, so folgen auf das A-Atom (Silizium) zwei B-Atome (Sauerstoff). IMP liest das A-Atom und die zwei B-Atome zusammen ein und platziert dann mittels der Abstandsdaten der B-Atome die drei Atome des SiO_2-Moleküls entsprechend. Von dem so erhaltenen Molekül wird die in den Daten des A-Atoms angegebenen Anzahl zufällig gedreht und dann zufällig innerhalb des zugehörigen Teilbereiches platziert. Es ist zu beachten, dass IMP lediglich garantiert, dass sich die A-Atom der zufällig platzierten Moleküle innerhalb des angegebenen Teilbereiches befinden. B-Atome können also, je nach Platzierung des Moleküls, in andere Teilbereiche hineinragen.

A.4 Anwendungsbeispiel

Zur Verdeutlichung des Simulationsvorgangs sollen hier die wesentlichen Schritte bei der Simulation einer Grenzfläche zwischen einem Siliziumkristall in (100)-Orientierung und amorphem SiO_2 gezeigt werden. Aus der Struktur eines Siliziumkristalls [14], den Dichten von Silizium und SiO_2 [29] und einigen Strukturinformationen von amorphem SiO_2 [30, 31] lässt sich die in Tabelle A.4 (links) gezeigte `Probe.txt`-Datei erstellen.

[2] Die Angaben zur Größe der Elementarzelle werden also erneut ignoriert.

Tabelle A.4 – Eingabedatei der Probe (links) und des Mikroskops (rechts) für die Simulation einer Si(100) - SiO_2-Grenzfläche.

0 1 40 43.44 43.44 2.715 0 21.72 1 1 A 1 14 60 2 B 1 8 0 1.605 B 1 8 0.25 -1.59 21.72 43.44 5.43 5.43 N 1 14 0 0 N 1 14 0.5 0.5 N 1 14 0.25 0.75 N 1 14 0.75 0.25 2.715 0 21.72 1 1 A 1 14 60 2 B 1 8 0 1.605 B 1 8 0.25 -1.59 21.72 43.44 5.43 5.43 N 1 14 0.5 0 N 1 14 0 0.5 N 1 14 0.25 0.25 N 1 14 0.75 0.75	512 512 300 0 0 2 25 0 0 0 0 1 0 1 10 1

Mit Hilfe der in Tabelle A.4 (rechts) gezeigten `Mikroskop.txt`-Datei, die ein aberrationskorrigiertes TEM beschreibt, lässt sich nun `IMP.exe` ausführen (siehe Abb. A.1). Dieses gibt zunächst die eingelesenen Daten an. Während der Durchführung des Multislice Verfahrens gibt IMP außerdem die Nummer des gerade bearbeiteten Scheibchens und als Kontrollparameter die integrierte Intensität der Wellenfunktionsmatrix hinter dem Scheibchen aus. Letzterer beginnt bei 1.00 und verringert sich, aufgrund des durchgeführten Anti-Aliasings, üblicherweise je mehr Scheibchen von der Wellenfunktion durchquert worden sind. Fällt der Kontrollparameter unter einen Wert von ca. 0.90 [14], so ist das simulierte Bild im besten Fall nur noch qualitativ korrekt und im schlimmsten Fall treten (starke) Artefakte auf. Der Abfall des Kontrollparameters lässt sich durch eine Erhöhung der Anzahl der Pixel pro Atom verringern, wobei hierbei ein Kompromiss mit der vom Programm benötigten Rechenzeit getroffen werden muss. `IMP.exe` zeigt, bei eingeschalteter partieller Ko-

härenz (siehe Abschnitt 3.2), weiterhin die momentan bearbeitete Strahlkippung $\vec{\alpha}$ und den momentan bearbeiteten Wert von C_1 an.

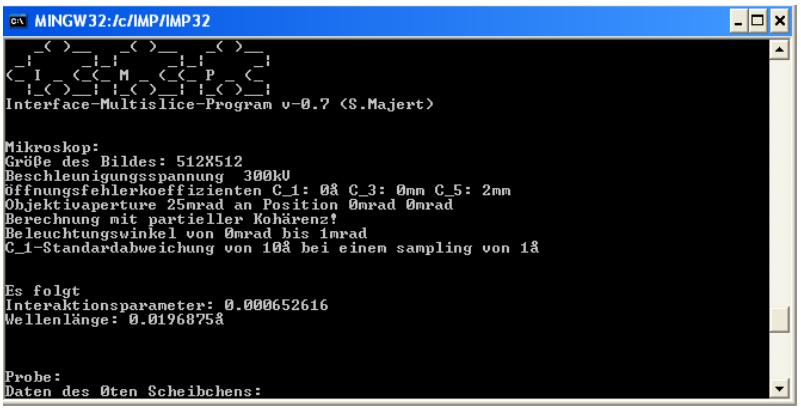

Abbildung A.1 – Ausgabe beim Starten von IMP.

Nach abgeschlossener Rechnung gibt IMP als letzten Schritt die simulierte TEM-Aufnahme als Matrix in der Datei `Bild.txt` aus. Unter Verwendung von Bildbearbeitungsprogrammen wie z. B. imageJ (*File*→*Import*→*Text Image...*) lässt sich die Matrix `Bild.txt` in ein Bild umwandeln. Für die Parameter aus Tabelle A.4 ergibt sich auf diese Weise die in Abb. A.2 gezeigte TEM-Aufnahme.

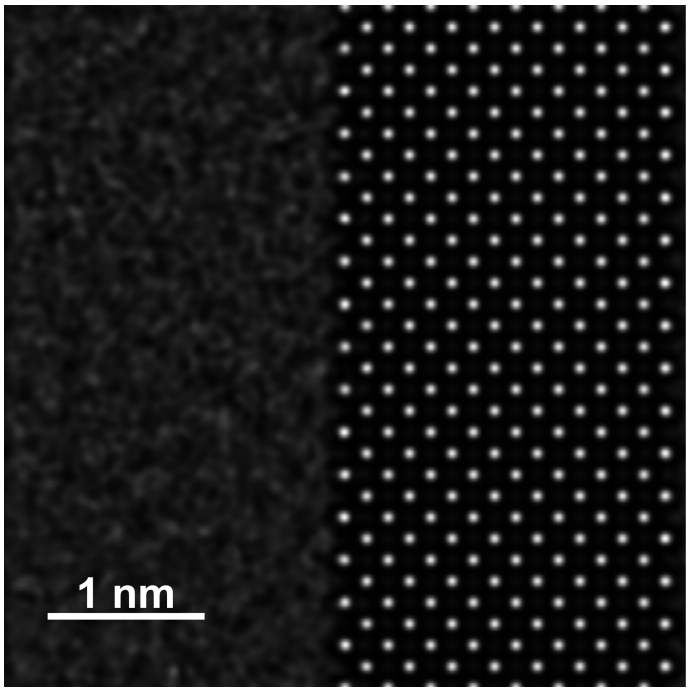

Abbildung A.2 – Mit den Parametern aus Tabelle A.4 simulierte TEM-Aufnahme einer Grenzfläche zwischen amorphem SiO_2 und kristallinem Silizium in (100)-Orientierung.

Abschließend sei noch erwähnt, dass die Verwendung der diskreten Fouriertransformation in `IMP.exe` eine periodische Fortsetzung der transformierten Matrix impliziert. Dies bedeutet, dass in Abb. A.2 zwei Grenzflächen zu sehen sind, nämlich einmal in der Mitte und einmal am linken/rechten Rand des Bildes.

Anhang B

Phasenkante im TEM

Berechnet werden soll die TEM-Aufnahme einer axial beleuchteten Probe, die aus einem Phasensprung $\delta\varphi$ in x-Richtung besteht. Die Transmissionsfunktion einer solchen Probe lautet in Hochenergie-Näherung [19]

$$t(x) = e^{i\delta\varphi\Delta(x)} = e^{i\delta\varphi}\Delta(x) + \Delta(-x) \ . \tag{B.1}$$

Die Wellenfunktion unmittelbar hinter der Probe ergibt sich bei axialer Beleuchtung somit zu

$$\psi_N(x) = \underbrace{e^{2\pi i k_z z}}_{\text{wird weggelassen}} \quad t(x) \ , \tag{B.2}$$

wobei der Faktor $\exp(2\pi i k_z z)$ in den folgenden Rechnungen nicht hingeschrieben wird, da er bei der Bildung des Betragsquadrates zur Ermittelung der Intensität am Ende der Rechnung verschwindet. Nach Gleichung (2.6) lautet die Wellenfunktion in der Bildebene $\psi_i(\vec{x})$ nun

$$\psi_i(\vec{x}) = \mathbb{F}\mathrm{T}^{-2D}\left[H(\vec{k})\ \Psi_N(\vec{k})\right] \ . \tag{B.3}$$

Durch Ausnutzen der Fouriertransformation (2.5) der Heaviside-Funktion $\Delta(x)$ [32]

$$\begin{aligned} \mathbb{F}\mathrm{T}^{2D}\left[\Delta(x)\right] &= \left(\frac{\delta(k_x)}{2} - \frac{i}{2\pi}\frac{1}{k_x}\right)\delta(k_y) \\ \mathbb{F}\mathrm{T}^{2D}\left[\Delta(-x)\right] &= \left(\frac{\delta(k_x)}{2} + \frac{i}{2\pi}\frac{1}{k_x}\right)\delta(k_y) \end{aligned} \tag{B.4}$$

ergibt sich für $\Psi_N(\vec{k})$

$$\Psi_N(\vec{k}) = \left\{\frac{\delta(k_x)}{2}\left(1 + e^{i\delta\varphi}\right) + \frac{i}{2\pi}\frac{1}{k_x}\left(1 - e^{i\delta\varphi}\right)\right\}\delta(k_y) \ . \tag{B.5}$$

Somit ist die Wellenfunktion in der Bildebene

$$\psi_i(x) = \int H(k_x) e^{i2\pi k_x x} \left\{ \left(1 + e^{i\delta\varphi}\right) \frac{\delta(k_x)}{2} + \left(1 - e^{i\delta\varphi}\right) \frac{i}{2\pi} \frac{1}{k_x} \right\} \mathrm{d}k_x \ . \tag{B.6}$$

Durch Einsetzen der Transmissionsfunktionen für Objektivlinse und Objektivblende (Kreisblende) aus Gl. (2.7) lässt sich Gl. (B.6) vereinfachen zu

$$\psi_i(x) = \frac{\left(1 + e^{i\delta\varphi}\right)}{2} + i \frac{\left(1 - e^{i\delta\varphi}\right)}{2\pi} \int_{-\theta_0/\lambda}^{\theta_0/\lambda} \frac{e^{i2\pi k_x x - i\chi(k_x)}}{k_x} \, \mathrm{d}k_x \ . \tag{B.7}$$

Zur Berechnung der Elektronenintensität in der Bildebene ist als letzter Schritt noch das Bilden des Betragsquadrates von $\psi_i(k_x)$ durchzuführen, welches nach numerischer Berechnung des Integrals in Gl. (B.7) mit dem Newton-Verfahren computergestützt erfolgt.

Anhang C

Schnittfläche eines Vollkreises und eines Halbkreises

Für die Berechnung der PGTF wird die Schnittfläche zwischen einem Vollkreis mit dem Radius R_f und einem Halbkreis mit dem Radius R_h benötigt. Da es sich um eine rein geometrische Aufgabe handelt, wurde hierzu die in Abb. C.1 gezeigte Variablenbenennung verwendet.

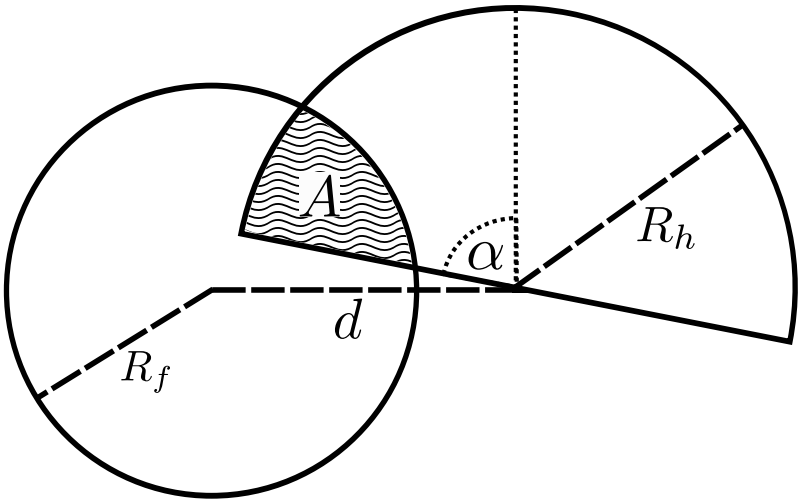

Abbildung C.1 – Konventionen für die Variablenbenennung bei der Berechnung der Schnittfläche zwischen einem Vollkreis und einem Halbkreis.

Ohne Beschränkung der Allgemeinheit kann $-\pi \leq \alpha \leq \pi$ gewählt werden. Die Ermittelung der Schnittfläche A erfolgt durch das Lösen mehrerer Integrale in Polarkoordinaten, deren Ursprung sich am Mittelpunkt des Halbkreises befindet. Dabei spielen die „kritischen“ Grenzwinkel

$$\alpha_c = \arcsin\left(\frac{R_h^2 + d^2 - R_f^2}{2R_h d}\right) \quad \beta_c = \arccos\left(\frac{R_f}{d}\right),$$

als Integrationsgrenzen eine zentrale Rolle. Weiterhin werden hier die Definitionen

$$\widetilde{\alpha} = \begin{cases} |\alpha_c|, & \text{für } |\alpha| < |\alpha_c| \\ |\alpha|, & \text{für } |\alpha_c| < |\alpha| < \pi - |\alpha_c| \\ \pi - |\alpha_c|, & \text{für } \pi - |\alpha_c| < |\alpha| < \pi, \end{cases}$$

$$\widetilde{\beta} = \begin{cases} |\beta_c|, & \text{für } |\alpha| < |\beta_c| \\ |\alpha|, & \text{für } |\beta_c| < |\alpha| < \pi - |\beta_c| \\ \pi - |\beta_c|, & \text{für } \pi - |\alpha_c| < |\alpha| < \pi, \end{cases}$$

$$\widetilde{R}_1 = \max\{R_h - R_f;\ R_f\},$$
$$\widetilde{R}_2 = \min\{R_h - R_f;\ R_f\},$$
$$S_a = (\widetilde{\alpha} - \alpha_c)\left(\frac{R_h^2 - R_f^2}{2}\right) + \frac{d^2(\sin(2\widetilde{\alpha}) - \sin(2\alpha_c))}{4},$$

und die Funktion

$$S_b(x) = \frac{R_f^2}{2}\arcsin\left(\frac{d\cos(x)}{R_f}\right) + \frac{d\cos(x)}{2}\sqrt{R_f^2 - d^2\cos^2(x)},$$

zur Darstellung des Ergebnisses verwendet. Im Bezug auf den Abstand d zwischen dem Mittelpunkt des Vollkreises und dem Mittelpunkt des Halbkreises sind die folgenden Fälle zu unterscheiden:

Für große Abstände $\sqrt{R_h^2 + R_f^2} < d < R_f + R_h$

$$A = S_a - S_b(\widetilde{\alpha}) + S_b(\alpha_c)\ .$$

Weiterhin wird bezüglich der Radien R_f und R_h zwischen den Fällen $R_f > R_h$ und $R_f < R_h$ unterschieden.

Für den Fall $R_f > R_h$:
Für $R_f < d < \sqrt{R_h^2 + R_f^2}$

$$A = \frac{\pi R_f^2}{2} + S_a + S_b(\widetilde{\alpha}) - S_b(\alpha_c) - 2S_b(\widetilde{\beta})\ .$$

Für $\sqrt{R_f^2 - R_h^2} < d < R_f$

$$A = \frac{\pi R_f^2}{2} + S_a + S_b(\widetilde{\alpha}) - S_b(\alpha_c) - 2S_b(|\alpha|)\ .$$

Für $R_f - R_h < d < \sqrt{R_f^2 - R_h^2}$

$$A = \frac{\pi R_f^2}{2} + S_a - S_b(\widetilde{\alpha}) - S_b(\alpha_c) \ .$$

Und für $0 < d < R_f - R_h$

$$A = \frac{\pi R_h^2}{2} \ .$$

Für den Fall $R_f < R_h$:
Für $\widetilde{R}_1 < d < \sqrt{R_h^2 + R_f^2}$

$$A = \frac{\pi R_f^2}{2} + S_a + S_b(\widetilde{\alpha}) - S_b(\alpha_c) - 2S_b(\widetilde{\beta}) \ .$$

Für $R_f > R_h/2$ und $R_h - R_f < d < R_f$

$$A = \frac{\pi R_f^2}{2} + S_a + S_b(\widetilde{\alpha}) - S_b(\alpha_c) - 2S_b(|\alpha|) \ .$$

Für $R_f < R_h/2$ und $R_f < d < R_h - R_f$

$$A = \frac{\pi R_f^2}{2} - 2S_b(\widetilde{\beta}) \ .$$

Und für $0 < d < \widetilde{R}_2$

$$A = \frac{\pi R_f^2}{2} - 2S_b(|\alpha|) \ .$$

Für alle anderen Fälle, insbesondere $d > R_f + R_h$,

$$A = 0 \ .$$

Literaturverzeichnis

[1] L. Reimer: *Transmission Electron Microscopy.* Berlin : Springer, 1997

[2] K. W. Urban: Studying Atomic Structures by Aberration-Corrected Transmission Electron Microscopy. In: *Science* 321 (2009), Nr. 5888, S. 506. http://dx.doi.org/10.1126/science.1152800. – DOI 10.1126/science.1152800

[3] D. Typke: Zernike Phase Contrast Electron Microscopy with a Spherically Corrected Foil Lens. In: *Microscopy and Microanalysis* 16 (2010), S. 441. http://dx.doi.org/10.1017/S1431927610000462. – DOI 10.1017/S1431927610000462

[4] O. Scherzer: The Theoretical Resolution Limit of the Electron Microscope. In: *Journal of Applied Physics* 20 (1949), S. 20. http://dx.doi.org/10.1063/1.1698233. – DOI 10.1063/1.1698233

[5] N. H. Dekkers ; H. de Lang: Differential phase contrast in a STEM. In: *Optik* 41 (1974), S. 452

[6] H. Rose: Image formation by inelastically scattered electrons in electron microscopy. In: *Optik* 45 (1976), S. 139

[7] J. N. Chapman u. a.: The direct determination of magnetic domain wall profiles by differential phase contrast electron microscopy. In: *Ultramicroscopy* 3 (1978), S. 203. http://dx.doi.org/10.1016/S0304-3991(78)80027-8. – DOI 10.1016/S0304–3991(78)80027–8

[8] J. Zweck u. a.: Charge density within a unit cell of GaN imaged with sub-Ångstrøm resolution by differential phase contrast microscopy. In: Rachel (Hrsg.) ; Reinhard (Hrsg.): *Proceedings MC 2013*, 2013, S. 77. – URN: urn:nbn:de:bvb:355-epub-287343

[9] M. Lohr u. a.: Differential phase contrast 2.0 - Opening new "fields"for an estabilshed technique. In: *Ultramicroscopy* 117 (2012), S. 7. http://dx.doi.org/10.1016/j.ultramic.2012.03.020. – DOI 10.1016/j.ultramic.2012.03.020

[10] N. Shibata u. a.: Differential phase-contrast microscopy at atomic resolution. In: *nature physics* 8 (2012), S. 611. http://dx.doi.org/10.1038/NPHYS2337. – DOI 10.1038/NPHYS2337

[11] D. B. Williams ; C. B. Carter: *Transmission Electron Microscopy - A Textbook for Materials Science.* New York und London : Plenum Press, 1996

[12] J. W. Goodman: *Introduction to Fourier Optics.* New York : McGraw-Hill Publishing Company, 1968

[13] F. A. Lenz: Transfer of Image Information in the Electron Microscope. In: U. Valdre (Hrsg.): *Electron Microscopy in Material Science.* New York und London : Academic Press, 1971, S. 541

[14] E. J. Kirkland: *Advanced Computing in Electron Microscopy.* New York und London : Plenum Press, 1998

[15] Matteo Frigo u. a.: The design and implementation of FFTW3. In: *Proceedings of the IEEE*, 2005, S. 216

[16] Matthias Foschepoth: *Simulation von Amplitudenkontrastaufnahmen für ein korrigiertes hochauflösendes Transmissions-Elektronenmikroskop*, Westfälische Wilhelms-Universität Münster, Diplomarbeit, Juli 1997

[17] G. Dai u. a.: Reference nano-dimensional metrology by scanning transmission electron microscopy. In: *Measurement Science and Technology* 24 (2013), S. 085001. `http://dx.doi.org/10.1088/0957-0233/24/8/085001`. – DOI 10.1088/0957–0233/24/8/085001

[18] A. R. Lupini u. a.: Characterizing the Two- and Three-Dimensional Resolution of an Improved Aberration-Corrected STEM. In: *Microscopy and Microanalysis* 15 (2009), S. 441. `http://dx.doi.org/10.1017/S1431927609990389`. – DOI 10.1017/S1431927609990389

[19] H. Kohl: *Skript zur Vorlesung 'Hochauflösende Elektronenmikroskopie'.* 1998

[20] S. J. Pennycook ; P. D. Nellist: *Scanning Transmission Electron Microscopy - Imaging and Analysis.* New York : Springer, 2011

[21] J. J. Hren: *Introduction to Analytical Electron Microscopy.* New York and London : Plenum Press, 1979

[22] M. Hammel: *Optimale Detektorstrategien für die Phasenkontrastabbildung im Raster-Transmissions-Elektronenmikroskop*, Technische Hochschule Darmstadt, Diss., 1992

[23] E. Hecht: *Optik.* Bonn : Addison-Wesley, 1974

[24] J. Orloff (Hrsg.): *Handbook of charged particle Optics.* CrC Press, 2009

[25] J. N. Chapman u. a.: Modified differential phase contrast lorentz microscopy for improved imaging of magnetic structures. In: *IEEE Transactions on Magnetics* 26 (1990), S. 1506. http://dx.doi.org/10.1109/20.104427. – DOI 10.1109/20.104427

[26] H. Rose: Nonstandard imaging methods in electron microscopy. In: *Ultramicroscopy* 2 (1977), S. 251. http://dx.doi.org/10.1016/S0304-3991(76)91538-2. – DOI 10.1016/S0304–3991(76)91538–2

[27] W. H. Zachariasen: The atomic arrangement in glass. In: *Journal of the American Chemical Society* 54 (1932), S. 3841. http://dx.doi.org/10.1021/ja01349a006. – DOI 10.1021/ja01349a006

[28] P. D. Nellist u. a.: Direct Sub-Angstrom Imaging of a Crystal Lattice. In: *Science* 305 (2004), S. 1741. http://dx.doi.org/10.1126/science.1100965. – DOI 10.1126/science.1100965

[29] J. S. Grigoriev (Hrsg.) ; E. Z. Meilikhov (Hrsg.): *Handbook of Physical Quantities*. New York und London : CRC-Press, 1997

[30] J. Neuefeind ; K.-D. Liss: Bond angle distribution in amorphous germania and silica. In: *Berichte der Bunsengesellschaft für Physikalische Chemie* 100 (1996), S. 1341. http://dx.doi.org/10.1002/bbpc.19961000812. – DOI 10.1002/bbpc.19961000812

[31] D. I. Grimley u. a.: Neutron scattering from vitreous silica IV. Time-of-flight diffraction. In: *Journal of Non-Crystalline Solids* 119 (1990), S. 49. http://dx.doi.org/10.1016/0022-3093(90)90240-M. – DOI 10.1016/0022–3093(90)90240–M

[32] J. F. James: *A Student's Guide to Fourier Transforms: With Applications in Physics and Engineering*. 3. Cambridge : Cambridge University Press, 2011

Selbstständigkeitserklärung

Hiermit versichere ich, dass ich die vorliegende Arbeit mit dem Titel

Quantitative Beschreibung von Phasenkontrastaufnahmen im Transmissionselektronenmikroskop

selbstständig verfasst habe, und dass ich keine anderen Quellen und Hilfsmittel als die angegebenen benutzt habe und dass die Stellen der Arbeit, die anderen Werken - auch elektronischen Medien - dem Wortlaut oder Sinn nach entnommen wurden, auf jeden Fall unter Angabe der Quelle als Entlehnung kenntlich gemacht worden sind.

Ort, Datum	Stephan Majert

Ich erkläre mich mit einem Abgleich der Arbeit mit anderen Texten zwecks Auffindung von Übereinstimmungen sowie mit einer zu diesem Zweck vorzunehmenden Speicherung der Arbeit in eine Datenbank einverstanden.

Ort, Datum	Stephan Majert

Danksagung

Zunächst sei allen gedankt, die zur Entstehung dieser Arbeit beigetragen haben. Dies betrifft speziell alle Mitglieder der AG Kohl, die diese Arbeit erst ermöglicht haben und mir mit Rat und Tat zur Seite standen. Besonders hervorzuheben ist hier mein Betreuer, Prof. Dr. Helmut Kohl, dem ich für das interessante Thema und dafür, dass er sich stets Zeit nahm, meine Fragen zu beantworten, danken möchte. Bedanken möchte ich mich außerdem bei Michael Entrup für die vielen hilfreichen Diskussionen und bei MiYoung Park für die gute Büroatmosphäre und das geduldige Ertragen meiner Probevorträge.

Zur Entstehung dieser Arbeit trugen außerdem auch Dr. Georg Frase, Dr. Gaoliang Dai und Prof. Dr. Josef Zweck bei, bei denen ich mich für die hilfreiche Korrespondenz und für die Bereitschaft, den langen Weg nach Münster auf sich zu nehmen, bedanken möchte.

Abschließend sei all denen gedankt, die mich in meinem Studium unterstützt haben. Insbesondere ist hiermit meine ganze Familie gemeint. Speziell möchte ich meinen Eltern und meinem Bruder für ihre moralische und finanzielle Unterstützung danken.