

# Differentielle Phasenkontrastmikroskopie

Entwicklung und Charakterisierung  
eines Detektors zur direkten Bestimmung  
der Änderung des lateralen Elektronenimpulses



## Dissertation

zur Erlangung des  
Doktorgrades der Naturwissenschaften (Dr. rer. nat.)  
der Fakultät für Physik der  
Universität Regensburg

vorgelegt von  
Felix Maximilian Schwarzhuber  
aus Deggendorf

im Jahr 2020

Promotionsgesuch eingereicht am 7. Juli 2020  
Die Arbeit wurde angeleitet von: Prof. Dr. Josef Zweck

Prüfungsausschuss:

Vorsitzende:	Prof. Dr. Milena Grifoni
1. Gutachter:	Prof. Dr. Josef Zweck
2. Gutachter:	Prof. Dr. Sergey Ganichev
Weiterer Gutachter:	Prof. Dr. Jascha Repp

# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2</b>	<b>Magnetischer und elektrischer Phasenkontrast im STEM</b>	<b>5</b>
2.1	Das Rastertransmissionselektronenmikroskop . . . . .	5
2.1.1	Allgemeines . . . . .	6
2.1.2	Aufbau und Funktionsweise . . . . .	7
2.1.3	Betriebsmodi eines STEM . . . . .	14
2.2	Wechselwirkung des Probenpotentials mit der Elektronensonde . . . . .	17
2.2.1	Wechselwirkung der Elektronen mit elektrischen und magnetischen Feldern . . . . .	18
2.2.2	Einfluss homogener Probenpotentiale auf den Elektronenstrahl	22
2.2.3	Einfluss inhomogener Probenpotentiale auf den Elektronenstrahl	25
<b>3</b>	<b>Bestehende DPC-Messverfahren</b>	<b>31</b>
3.1	Konventionelle Differentielle Phasenkontrastmikroskopie . . . . .	31
3.1.1	DPC-Detektor . . . . .	32
3.1.2	Kontrastentstehung . . . . .	33
3.1.3	Empfindlichkeit der Messtechnik . . . . .	38
3.2	Impulsaufgelöste Rastertransmissionselektronenmikroskopie . . . . .	47
3.2.1	Messung des Intensitätsschwerpunktes . . . . .	47
3.2.2	Theoretische Grundlagen moreSTEM . . . . .	52
3.3	Zusammenfassung . . . . .	57
<b>4</b>	<b>Duolaterale positionsempfindliche Diode (PSD)</b>	<b>59</b>
4.1	Aufbau und Funktionsweise eines PSD-Detektors . . . . .	60
4.1.1	Detektor-Layout . . . . .	60
4.1.2	Signalentstehung . . . . .	63
4.1.3	Messung des Intensitätsschwerpunktes . . . . .	64
4.2	Theoretische Überlegungen zur Positionsgenauigkeit . . . . .	67
4.2.1	Simulationen . . . . .	67
4.2.2	Analytisches Modell . . . . .	72
<b>5</b>	<b>Realisierung und Charakterisierung des PSD-Systems</b>	<b>75</b>
5.1	Experimenteller Aufbau . . . . .	75
5.1.1	Verwendete PSD . . . . .	76
5.1.2	Elektromechanischer Aufbau . . . . .	76

5.1.3	Signalverarbeitung und Auswertung . . . . .	80
5.2	Charakterisierung des PSD-Detektors . . . . .	83
5.2.1	Empfindlichkeit des PSD-Detektors . . . . .	83
5.2.2	Detektorlinearität . . . . .	88
5.2.3	Einflüsse auf die Messempfindlichkeit . . . . .	92
<b>6</b>	<b>Erste Messungen mit dem PSD-Detektor</b>	<b>97</b>
6.1	Messungen im LMSTEM-Betrieb . . . . .	97
6.1.1	Untersuchte Probe . . . . .	98
6.1.2	Messverfahren . . . . .	98
6.1.3	Ergebnisse . . . . .	99
6.1.4	Vergleich mit dem cDPC-Setup . . . . .	103
6.2	Messungen im HMSTEM-Betrieb . . . . .	104
6.2.1	Untersuchte Probe . . . . .	104
6.2.2	Messverfahren . . . . .	105
6.2.3	Ergebnisse . . . . .	106
6.2.4	Vergleich mit der MerlinEM-Kamera . . . . .	110
<b>7</b>	<b>Zusammenfassung</b>	<b>113</b>
<b>A</b>	<b>Anhang</b>	<b>117</b>
A.1	Weitere Abbildungen zu Abschnitt 5 . . . . .	117
A.2	Herleitung von Gleichung 4.22 . . . . .	119
A.3	Abhängigkeit von Defokuswert und Strahldurchmesser . . . . .	122
A.4	Weitere Abbildungen zu Abschnitt 6.2 . . . . .	126
	<b>Literatur</b>	<b>129</b>
	<b>Abbildungsverzeichnis</b>	<b>139</b>

# Akronyme

<b>TEM</b>	engl. <b>t</b> ransmission <b>e</b> lectron <b>m</b> icroscope
<b>STEM</b>	engl. <b>s</b> canning <b>t</b> ransmission <b>e</b> lectron <b>m</b> icroscope
<b>HM-STEM</b>	engl. <b>h</b> igh <b>m</b> agnification-STEM
<b>LM-STEM</b>	engl. <b>l</b> ow <b>m</b> agnification-STEM
<b>BF-STEM</b>	engl. <b>b</b> right <b>f</b> ield-STEM
<b>HAADF</b>	engl. <b>h</b> igh <b>a</b> ngle <b>a</b> nnular <b>d</b> ark <b>f</b> ield
<b>LTEM</b>	engl. <b>l</b> orentz <b>t</b> ransmission <b>e</b> lectron <b>m</b> icroscope
<b>moreSTEM</b>	engl. <b>m</b> omentum <b>r</b> esolved-STEM
<b>morePC</b>	engl. <b>m</b> omentum <b>r</b> esolved <b>p</b> hase <b>c</b> ontrast
<b>(c)DPC</b>	engl. ( <b>c</b> onventional-) <b>d</b> ifferential <b>p</b> hase <b>c</b> ontrast microscopy
<b>COM</b>	engl. <b>c</b> entre <b>o</b> f <b>m</b> ass
<b>PSD</b>	engl. <b>p</b> osition <b>s</b> ensitive <b>d</b> iode
<b>CCD</b>	engl. <b>c</b> harge <b>c</b> oupled <b>d</b> evice
<b>CMOS</b>	engl. <b>c</b> omplementary <b>m</b> etal <b>o</b> xide <b>s</b> emiconductor
<b>FIB</b>	engl. <b>f</b> ocused <b>i</b> on <b>b</b> eam
<b>EMPAD</b>	engl. <b>e</b> lectron <b>m</b> icroscope <b>p</b> ixel <b>a</b> rray <b>d</b> etector
<b>FFT</b>	engl. <b>f</b> ast <b>f</b> ourier <b>t</b> ransformation
<b>ADC</b>	engl. <b>a</b> nalog to <b>d</b> igital <b>c</b> onverter
<b>SNR</b>	engl. <b>s</b> ignal to <b>n</b> oise <b>r</b> atio



# 1 Einleitung

Passiert ein Elektronenstrahl einen Bereich mit magnetischen oder elektrischen Feldern erfährt er eine Ablenkung durch die Lorentz- beziehungsweise die Coulombkraft. Die Ablenkung ist proportional zu Richtung und Stärke der Felder. Im Grunde basiert die Messung magnetischer oder elektrischer Feldverteilungen mit einem Rastertransmissionselektronenmikroskop (STEM<sup>1</sup>) auf diesem einfachen Prinzip. Wird zum Beispiel in einem STEM der Elektronenstrahl auf eine Probenstelle fokussiert, die ein zur Ausbreitungsrichtung des Strahls senkrecht Magnetfeld enthält, wird dieser von seiner Bahn abgelenkt. Diese Ablenkung kann mit speziellen positionsempfindlichen Detektoren gemessen werden. Es können somit direkt Rückschlüsse über Feldrichtung und -stärke in der Probe gezogen werden. Die Differentielle Phasenkontrastmikroskopie (kurz DPC<sup>2</sup>) ist eine Messtechnik der Rastertransmissionselektronenmikroskopie, welche auf diesem einfachen Grundprinzip basiert. Sie erlaubt es, hochaufgelöste Messungen der intrinsischen magnetischen und elektrischen Feldverteilung in den zu untersuchenden Proben durchzuführen. Zudem können auch elektromagnetische Felder außerhalb der Probe untersucht werden, wie zum Beispiel das Magnetfeld eines stromdurchflossenen Drahtes oder das elektrische Feld eines Plattenkondensators.

DPC wurde in den 1970er Jahren von H. Rose, N. H. Dekkers und H. de Lang theoretisch beschrieben [1–4] und von J. N. Chapman erstmalig realisiert. Letzterer verwendete die Messtechnik zur Analyse von magnetischen Domänen [5]. Seit dieser Zeit wurde DPC hauptsächlich zur Abbildung von Feldverteilungen, deren Variationen sich auf Längenskalen von einigen Nanometern bis hin zu mehreren Mikrometern abspielen, verwendet. So sind zum Beispiel Messungen magnetischer Domänenstrukturen in dünnen magnetischen Schichten [5–17] und die Untersuchung von piezoelektrischen Feldern in GaN/InGaN/GaN-Heterostrukturen [18, 19], beziehungsweise in GaAs-Nanodrähten [20, 21], zu nennen. All diesen Messungen ist gemein, dass die Größe der Elektronensonde klein im Vergleich zu der Ausdehnung der Felder ist, der Elektronenstrahl also von einem (nahezu) konstanten Feld am Probenort abgelenkt wird. Diese Ablenkung führt zu einer Verschiebung des (homogenen) Elektronenstrahls in der Detektorebene, welche typischerweise mit einem segmentierten DPC-Ringdetektor gemessen wird. Einer der Nachteile dieser Messtechnik – auch im Zuge dieser Arbeit genauer untersucht – ist die relativ komplizierte, zeitaufwändige und zudem fehleranfällige Quantifizierung der Messdaten [22, 23].

---

<sup>1</sup>engl. **s**canning **t**ransmission **e**lectron **m**icroscope

<sup>2</sup>engl. **d**ifferential **p**hase **c**ontrast microscopy

Seit der Entwicklung von sondenkorrigierten Rastertransmissionselektronenmikroskopen mit Auflösungsvermögen im Sub-Ångström-Bereich, wird DPC auch zur Analyse atomarer elektrostatischer Feldverteilungen und Ladungsträgerdichten verwendet [24–27]. Im Unterschied zu konventionellen DPC-Messungen (kurz cDPC<sup>3</sup>) bei denen üblicherweise Felder gemessen werden, welche als (nahezu) konstant über den Durchmesser der Elektronensonde angenommen werden können, ist dies bei Messungen mit atomarer lateraler Auflösung nicht mehr der Fall. Es ergibt sich eine komplexe Wechselwirkung zwischen den stark inhomogenen Feldverteilungen der Kernpotentiale und der Elektronensonde. Diese resultiert in einer Umverteilung von Intensität innerhalb des Beugungsscheibchens, welche nicht oder nur eingeschränkt mit einem DPC-Ringdetektor vermessen werden kann. In der aktuellen Forschung werden deshalb schnelle CCD<sup>4</sup>- oder CMOS<sup>5</sup>-Kamerasysteme verwendet, um die Verlagerungen des Intensitätsschwerpunktes (kurz COM<sup>6</sup>) im Inneren der Beugungsscheibchen zu detektieren [25, 26, 28–35]. Den so gemessenen COM-Positionen können mit der Theorie des impuls aufgelösten Phasenkontrasts (kurz morePC<sup>7</sup>) von K. Müller-Caspary und F. F. Krause [25, 26] absolute elektrische Feldstärken und Ladungsträgerdichten zugeordnet werden. Dieses Messverfahren wird im Folgenden auch als impuls aufgelöste STEM-Messung (kurz moreSTEM) bezeichnet. Einer der Nachteile dieser Messtechnik ist, dass selbst moderne Kamerasysteme, im Vergleich zu cDPC-Detektorsystemen (Messdauer pro Rasterpunkt im Mikrosekundenbereich), welche auf flächigen Halbleiterdioden basieren, relativ langsam sind (Messdauer im Millisekundenbereich). Die damit einhergehenden langen Messzeiten von mehreren Minuten stellen erhebliche Anforderungen an die Stabilität des elektronenoptischen System und an die Probenstabilität. Zudem können lange Messzeiten bei der Analyse von strahlungsempfindlichen Proben zu Problemen führen und im Zweifel ein Ausschlusskriterium für die Anfertigung einer moreSTEM-Messung sein.

Das Ziel dieser Arbeit war es, einen neuartigen Detektor zu entwickeln, welcher sowohl die Anfertigung von quantitativen cDPC-, als auch moreSTEM-Messungen erlaubt. Damit einher geht die Anforderung, dass der Detektor dazu in der Lage sein muss, die absolute COM-Position des Beugungsscheibchens innerhalb weniger Mikrosekunden zu detektieren. **Das neue Detektorsystem soll die Anfertigung von DPC-Messungen im gesamten nutzbaren Spektrum aller in einem STEM verfügbaren Vergrößerungen ermöglichen.** Im besten Fall sollen damit beispielsweise sowohl quantitative Messungen an ausgedehnten magnetischen Domänen (im Mikrometerbereich), als auch Messungen atomarer elektrischer Feldverteilungen angefertigt werden können. Der neue Detektor soll also die Schnelligkeit eines cDPC-Systems mit der Eigenschaft der COM-Messung von modernen Kamerasystemen kombinieren.

---

<sup>3</sup>engl. conventional-DPC

<sup>4</sup>engl. charge coupled device

<sup>5</sup>engl. complementary metal oxide semiconductor

<sup>6</sup>engl. centre of mass

<sup>7</sup>engl. momentum resolved phase contrast

---

Die vorliegende Arbeit ist in sieben Kapitel unterteilt. Im Anschluss an die einleitenden Worte werden in Kapitel 2 zunächst die Grundlagen der Rastertransmissions-elektronenmikroskopie dargelegt. Ferner wird das Zustandekommen von magnetischem und elektrischem Phasenkontrast in einem STEM beschrieben und die Auswirkungen konstanter und nicht konstanter Potentialgradienten auf den Elektronenstrahl diskutiert. Im Anschluss befasst sich Kapitel 3 mit der Beschreibung bestehender DPC-Messverfahren und Detektorkonzepte. So werden zum einen die Funktionsweise von cDPC-Messungen mit einem Ringdetektor und zum anderen die von moreSTEM-Messungen mit schnellen Kamerasystemen erläutert. Im Verlauf dieser Dissertation wurde nicht nur der neue DPC-Detektor entwickelt, sondern auch die Leistungsfähigkeit des segmentierten DPC-Ringdetektors untersucht. Ein Teil der Ergebnisse dieser Untersuchungen werden im Zuge der Erklärung der Funktionsweise von cDPC-Messungen vorgestellt. Der Aufbau und die Signalentstehung einer duolateralen positionsempfindlichen Diode (kurz PSD<sup>8</sup>) sowie deren Eignung als COM-Detektor in der Elektronenmikroskopie werden in Kapitel 4 diskutiert. Mittels Simulationsrechnungen wurden die Einflüsse von Strahlgröße und -intensität (in der Detektorebene) auf die Positionsempfindlichkeit einer PSD untersucht. In Kapitel 5 wird der – in dieser Arbeit entwickelte – Aufbau des PSD-Detektorsystems beschrieben. Es werden die Ergebnisse einer umfassenden experimentellen Charakterisierung präsentiert. So wurden beispielsweise Winkelauflösung und Linearität des Detektors bestimmt. Den Höhepunkt dieser Arbeit stellen die ersten Testmessungen an realen Proben dar. Die PSD wurde einerseits zur Untersuchung einer magnetischen Domänenwand in einer polykristallinen Cobalt-Dünnschicht-Probe im LM<sup>9</sup>-STEM-Betrieb, und andererseits zur Abbildung der atomaren Feldverteilung eines Strontiumtitanat-Kristalls im HM<sup>10</sup>-STEM-Betrieb verwendet. Die Ergebnisse dieser Untersuchungen werden in Kapitel 6 vorgestellt. Zur Einordnung der Leistungsfähigkeit des neuen Detektors wurden vergleichende Messungen mit einem konventionellen Ringdetektor und mit einem modernen Kamerasystem angefertigt. Eine Zusammenfassung der wichtigsten Erkenntnisse und Ergebnisse schließt diese Arbeit ab.

---

<sup>8</sup>engl. **p**osition **s**ensitive **d**iode

<sup>9</sup>engl. **l**ow **m**agnification

<sup>10</sup>engl. **h**igh **m**agnification



## 2 Magnetischer und elektrischer Phasenkontrast im STEM

Im Verlauf dieses Kapitels werden die zum Verständnis dieser Arbeit notwendigen Aspekte des Aufbaus und der Funktionsweise eines STEMs beschrieben. Neben den Grundlagen der Elektronenoptik wird besonders auf das Zustandekommen des Phasenkontrasts von magnetischen und elektrischen Feldern bei STEM-Messungen eingegangen. Mittels der Ergebnisse einfacher Simulationsrechnungen wird der Einfluss homogener und inhomogener Feldern auf den Elektronenstrahl und insbesondere auf die Intensitätsverteilung in der Detektorebene – dem sogenannten Beugungsscheibchen – beschrieben.

### 2.1 Das Rastertransmissionselektronenmikroskop

Der Nobelpreis für Physik des Jahres 1986 wurde unter anderem an Ernst Ruska verliehen, über 50 Jahre nachdem dieser zusammen mit Max Knoll das Transmissionselektronenmikroskop (TEM) erfunden hat. Mit der Erfindung des TEM gelang es den beiden Physikern erstmals, das Auflösungsvermögen optischer Mikroskope zu unterschreiten. Ein Teil der Originalveröffentlichungen und der Nobel-Festvortrag von E. Ruska, welche die Entstehungsgeschichte des – ursprünglich als Übermikroskop bezeichneten – Transmissionselektronenmikroskops dokumentieren, finden sich in den Quellen [36–46]. Bis dato zeichnet sich das (S)TEM durch sein hervorragendes Auflösungsvermögen von aktuell bis zu 45 Pikometern aus. Deshalb und aufgrund der vielseitigen Analysemethoden, welche aktuelle (S)TEMs bieten, finden sie in nahezu jedem naturwissenschaftlichen Fachbereich Anwendung. So zum Beispiel in der Festkörperphysik zur Untersuchung von mikroskopischen Halbleiterstrukturen oder zur Analyse der Systematik von Viren und Bakterien in der Biologie und Biophysik. Auch die Struktur des für die aktuelle globale Pandemie verantwortlichen SARS-CoV-2-Virus wurde mit einem sogenannten Cryo-TEM untersucht [47–50].

In diesem Abschnitt werden Aufbau und Funktionsweise eines STEMs dargelegt. Die Ausführungen beruhen dabei auf der dieser Arbeit vorangegangenen Masterarbeit [22] sowie den Quellen [14, 51–53]. Da eine komplette Beschreibung der Transmissionselektronenmikroskopie ganze Bücher füllen würde, wird für eine umfassende Behandlung des Themas auf ebensolche verwiesen [52–56]. Nachfolgend wird nur auf Aspekte eingegangen, die zum direkten Verständnis dieser Arbeit notwendig sind.

Alle Angaben, wenn nicht explizit anders gekennzeichnet, beziehen sich auf das an der Arbeitsgruppe von Prof. Dr. Zweck vorhandene Mikroskop, einem *Tecnai F30 Regensburg Special* des Herstellers *FEI*.

### 2.1.1 Allgemeines

Die Auflösungsgrenze eines Durchlichtmikroskops ist nach Ernst Abbe durch

$$d_a = \frac{\lambda}{2n \sin \alpha} \quad (2.1)$$

definiert. Sie gibt an, wie weit zwei Punkte voneinander entfernt sein dürfen, sodass sie vom Betrachter unter dem Mikroskop gerade noch als getrennt wahrgenommen werden können. Der minimale Abstand  $d_a$  ist dabei abhängig von der Wellenlänge  $\lambda$  des Lichts, dem Brechungsindex des Immersionsmediums  $n$  und dem Öffnungswinkel des Objektivs  $\alpha$ . Im besten Fall ( $n \approx 1$  und  $\alpha \approx 90^\circ$ ) kann so die maximal erreichbare Auflösung eines Lichtmikroskops mit der halben Wellenlänge des verwendeten Lichts abgeschätzt werden. Für blaues Licht mit  $\lambda = 400$  nm ergibt sich für  $d_a$  ein Wert von ungefähr 200 nm. Im Vergleich zu einem optischen Durchlichtmikroskop, welches in seinen Grundzügen durchaus mit einem TEM verglichen werden kann, bietet letzteres ein um mehrere Größenordnungen besseres Auflösungsvermögen von bis zu 45 pm. Dies wird erreicht, indem in einem TEM anstatt von sichtbarem Licht ein hochenergetischer Strahl aus beschleunigten Elektronen zur Abbildung verwendet wird. Nach Louis de Broglie kann Elementarteilchen mit einer endlichen Ruhemasse, aufgrund des Welle-Teilchen-Dualismus, die nach ihm benannte de-Broglie-Wellenlänge

$$\lambda_e = \frac{h}{p} \quad (2.2)$$

zugeordnet werden. Dabei entspricht  $h$  dem Planckschen Wirkungsquantum und  $p$  dem Impuls der Teilchen. Für Elektronen, welche mit einer (für aktuelle (S)TEMs) typischen Beschleunigungsspannung  $U_B$  von 300 kV beschleunigt wurden, ergibt sich unter Berücksichtigung relativistischer Effekte eine de-Broglie-Wellenlänge  $\lambda_e$  von

$$\lambda_e = \frac{h}{\sqrt{e \cdot U_B \left( 2m_0 + \frac{e \cdot U_B}{c^2} \right)}} = 1,97 \text{ pm} \quad (2.3)$$

[53], wobei  $m_0$  und  $e$  der Ruhemasse, beziehungsweise der Elementarladung der Elektronen und  $c$  der Vakuumlichtgeschwindigkeit, entsprechen. Nach E. Abbe (siehe Gleichung 2.1) würde sich somit eine theoretische Auflösungsgrenze von unter einem Pikometer ergeben. Aufgrund von Aberrationen des elektronenoptischen Systems [52, 53, 57] liegt die tatsächlich erreichbare Auflösung eines (S)TEM von maximal 45 pm deutlich über diesem Wert. Sie übertrifft aber dennoch das Auflösungsvermögen von Lichtmikroskopen um ein Vielfaches.

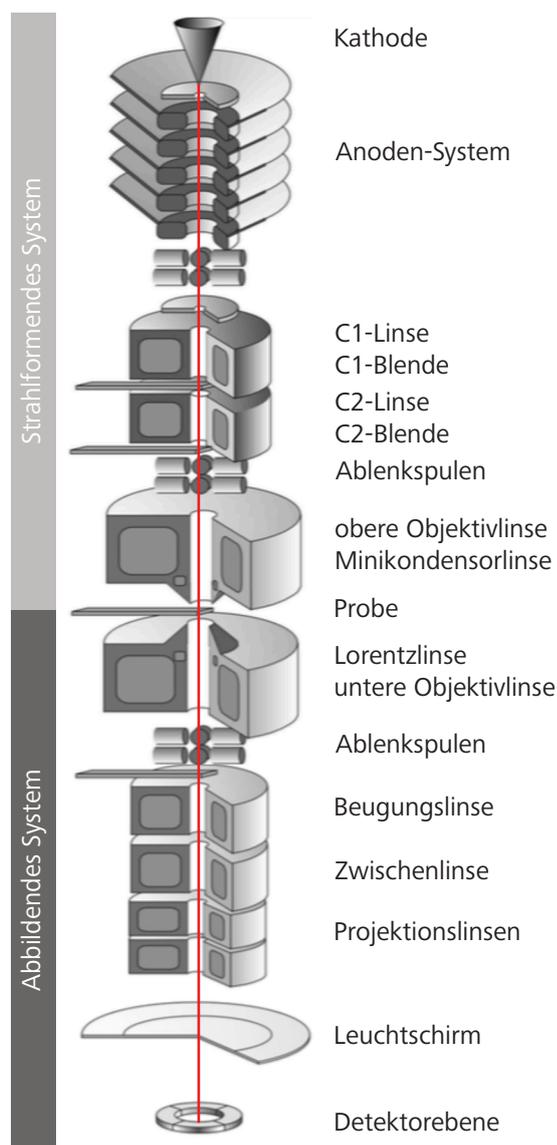
## 2.1.2 Aufbau und Funktionsweise

Allen Elektronenmikroskopen ist gemein, dass sie zur Fokussierung des Elektronenstrahls, anstatt von Glaslinsen, stromdurchflossene Spulen verwenden. Diese erzeugen im Zusammenspiel mit speziell geformten weichmagnetischen Polschuhen inhomogene rotationssymmetrische Magnetfelder [58]. Sie erlauben es, den Elektronenstrahl mittels der Lorentzkraft so zu formen, wie sichtbares Licht mit Glaslinsen. Die Linsenwirkung inhomogener magnetischer Felder auf Elektronenstrahlen wurde bereits in den Jahren 1926 und 1927 von H. Busch beschrieben [59, 60]. Die Brechkraft der Elektronenlinsen kann durch eine Änderung des Spulenstroms – in gewissen Grenzen – frei variiert werden. Dies ermöglicht es, trotz einer räumlich festen Anordnung der einzelnen Linsensegmente unterschiedliche Strahlverläufe, beziehungsweise Abbildungsbedingungen in einem (S)TEM zu realisieren. So kann zum Beispiel die Vergrößerung um eine Spanne von über fünf Größenordnungen variiert werden. [15, 21] Ein großer Nachteil von magnetischen Linsen ist deren, im Vergleich zu Glaslinsen, relativ geringe optische Qualität [57]. Bereits im Jahr 1936 zeigte Otto Scherzer, dass es unter Erhaltung der Rotationssymmetrie nicht möglich ist die Feldinhomogenität so zu formen, dass sich eine fehlerfreie Elektronenlinse ergibt [57]. Typische Linsenfehler sind die sphärische und chromatische Aberration, beschrieben durch die Koeffizienten  $C_s$  und  $C_c$ , sowie der Astigmatismus. Zur Kompensation dieser Linsenfehler werden unterschiedliche Korrektoren verwendet. So ist es zum Beispiel mit dem Tecnai F30 möglich den (axialen) Astigmatismus verschiedener Linsen mittels sogenannter Stigmatoren zu korrigieren. Einige neuere Mikroskope bieten zudem die Möglichkeit die sphärische und chromatische Aberration mittels spezieller Korrektoren auszugleichen. Auf eine Beschreibung der Linsenfehler und deren Korrektur wird an dieser Stelle verzichtet und auf die Bücher [52, 53] sowie auf die Arbeiten von M. Haider und H. Rose [61–63] verwiesen.

Ein wichtiger Aspekt, welcher die Elektronenmikroskopie von der Lichtmikroskopie unterscheidet, ist, dass sich der gesamte strahlführende Teil des Mikroskops im (Ultra-)Hochvakuum befindet. Dies ist notwendig, da Elektronen – im Gegensatz zu Licht – stark mit Materie wechselwirken und so die ungewollte Ablenkung des Strahls von Restgasmolekülen und eine Kontamination der Probe vermieden beziehungsweise vermindert werden können [52, 53]. Die starke Wechselwirkung von Elektronen mit Materie hat zudem Auswirkungen auf die Beschaffenheit der zu untersuchenden Proben. Damit der Elektronenstrahl diese durchdringen kann, sollte die Probendicke  $t$  (im Normalfall) unter 100 nm liegen. Für Messungen mit atomarer Auflösung werden extrem dünne Proben benötigt (Dicken im Bereich von circa 5 nm bis 20 nm) [53]. Präparationsmethoden, wie die Querschnittpräparation, moderne FIB<sup>1</sup>-Techniken oder das direkte Wachstum dünner Schichten auf speziellen Probenhalterungen und Membranen [52, 53], erlauben es Proben mit Dicken im Bereich von ungefähr 5 nm bis 100 nm herzustellen.

---

<sup>1</sup>engl. focused ion beam



**Abb. 2.1:** Schematischer Aufbau eines (S)TEMs, welches mit einem DPC-Detektor ausgerüstet ist. Das Mikroskop lässt sich grob in ein strahlformendes und in ein abbildendes System einteilen. (Abbildung verändert aus [64])

In Abbildung 2.1 ist der schematische Aufbau eines (S)TEMs des Typs Tecnai F30 gezeigt. Das Mikroskop lässt sich in ein strahlformendes und in ein abbildendes System einteilen. In Ersterem wird der Elektronenstrahl mittels einer Kathode erzeugt. Dabei handelt es sich um eine sogenannte Feldemissionskathode (kurz FEG<sup>2</sup>), welche auf dem Prinzip der Schottky-Emission basiert und ursprünglich von A. V. Crewe entwickelt wurde [65]. Im Vergleich zu rein thermischen Emittern, wie Wolfram- oder Lanthanhexaborid-Kathoden, muss eine FEG nicht so stark aufgeheizt werden. Dies hat den Vorteil einer schmäleren Energieverbreiterung des Elektronenstrahls und somit eine bessere Abbildung durch das optische System zur Folge. Durch das Anlegen einer Extraktionsspannung im Bereich von 3 kV bis 4,5 kV verlassen die Elektronen die Kathode tunnelnd und werden direkt im Anschluss durch eine

<sup>2</sup>engl. field emission gun

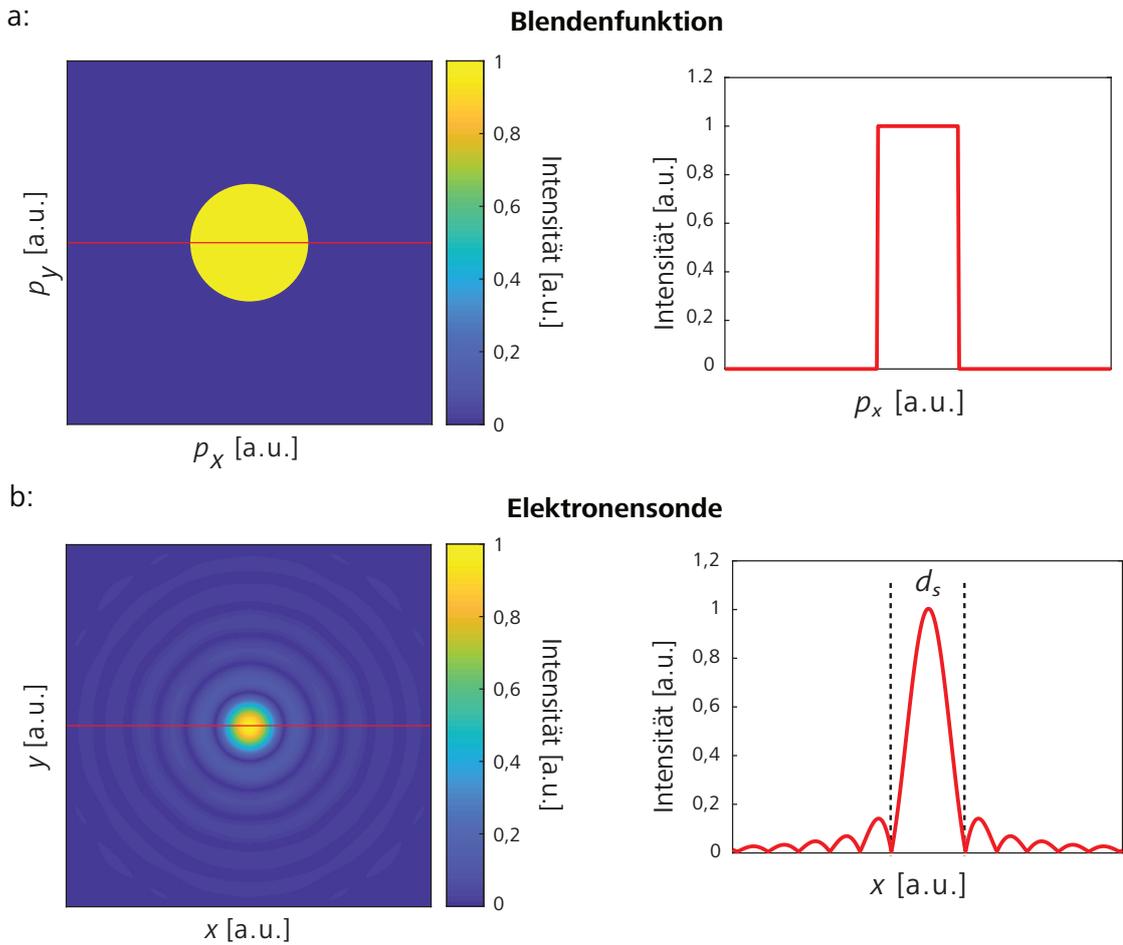
elektrostatische Linse in den Kathoden-Crossover fokussiert. Der durch diese sogenannte Gun-Linse erzeugte Crossover wird auch als die virtuelle Elektronenquelle angesehen und dient als Ausgangspunkt aller weiteren elektronenoptischen Konstruktionen. Im Anschluss an den Emissionsprozess wird der Strahl durch ein mehrstufiges System aus ringförmigen Anoden auf die gewünschte kinetische Energie von bis zu 300 keV beschleunigt. Dieser Elektronenstrahl tritt in das Kondensorenliniensystem ein. Im Zusammenspiel mit der oberen Objektivlinse und der sogenannten Minikondensorenlinse dient es der Formung und Kollimation des Elektronenstrahls. Je nach Einstellung des Kondensorensystems entscheidet sich in welchem Modus das Mikroskop betrieben werden soll. So wird für den TEM-Betrieb ein paralleles Strahlenbündel erzeugt, welches den zu betrachtenden Teil der Probe möglichst homogen ausleuchtet. Für den STEM-Betrieb hingegen wird der Elektronenstrahl so auf die Probe fokussiert, dass sich eine nahezu punktförmige Elektronensonde ergibt. Die Probe selbst befindet sich ungefähr auf halber Höhe des Mikroskops (siehe Abbildung 2.1). Da für die in dieser Arbeit verwendeten Messtechniken – cDPC und moreSTEM – das Mikroskop ausschließlich im STEM-Modus betrieben wird, wird auf eine detaillierte Beschreibung des TEM-Modus verzichtet und auf die Quellen [52–54] verwiesen.

**STEM-Modus** Die grundlegende Funktionsweise des STEM-Modus besteht darin, dass ein, auf die Probe fokussierter konvergenter Elektronenstrahl – die Elektronensonde – mittels mehrerer Ablenkspulen, über einen bestimmten Probenbereich gerastert wird. Weitere Ablenkspulen unterhalb der Probe führen den verschobenen Elektronenstrahl wieder zurück auf die optische Achse. Der durch die Probe transmittierte Elektronenstrahl kann anschließend mit unterschiedlichen Detektoren gemessen werden. Zum Beispiel wird zur Aufnahme eines Standard STEM-Bildes für jede Strahlposition auf der Probe  $P(x, y)$  die transmittierte Intensität mit einem Photomultiplier gemessen. Da die so gemessenen Signale von der Struktur der Probe abhängig sind, lassen sich so Rückschlüsse auf die Beschaffenheit der Probe am jeweiligen Rasterpunkt ziehen. Die nachfolgenden Betrachtungen folgen dabei hauptsächlich den Beschreibungen der Quellen [64, 66, 67].

Um das Mikroskop im STEM-Modus betreiben zu können muss zunächst eine, auf die Probe fokussierte Elektronensonde, mit möglichst geringem Durchmesser erzeugt werden. Wie bereits erwähnt, wird dazu das Kondensorensystem des Mikroskops verwendet. Abbildung 2.3 zeigt eine vereinfachte Darstellung des STEM-Strahlengangs einer hochaufgelösten Hellfeld-STEM-Messung (kurz BF<sup>3</sup>-STEM). Diese Betriebsart stellt ein Standard-Messverfahren dar und wird im Folgenden auch als (BF)-HMSTEM bezeichnet. Zunächst wird mit der C1-Linse ein verkleinertes Abbild des Kathoden-Crossovers erzeugt (vergleiche Abbildung 2.3), der sogenannte C1-Crossover. Aus dem von diesem Punkt ausgehenden, divergenten Strahlenbündel, wird anschließend im Zusammenspiel von C2-Linse und -Blende in der hinteren Brennebene der C2-Linse ein paralleles Strahlenbündel geformt. Der Querschnitt des Strahls,

---

<sup>3</sup>engl. bright field



**Abb. 2.2:** Zusammenhang zwischen der Blendenfunktion  $A(\vec{p})$  und der Intensitätsverteilung der Elektronensonde auf Probe. In **a** ist der Querschnitt des parallelen Elektronenstrahls senkrecht zur optischen Achse, direkt nachdem er die C2-Blende passiert hat, gezeigt. Das Strahlprofil entspricht unter Vernachlässigung von Aberrationen der Form der C2-Blende. Die Wellenfunktion der Elektronensonde  $\psi_{\text{in}}(\vec{r})$  auf der Probe ist mit  $A(\vec{p})$  über die Fouriertransformation verknüpft. Das Betragsquadrat von  $\psi_{\text{in}}$  und somit die Intensitätsverteilung der Sonde entspricht der Form eines Airy-Scheibchens (**b**). Die Breite des zentralen Maximums wird im Folgenden als Sondendurchmesser  $d_s$  bezeichnet.

senkrecht zur optischen Achse, ist in Abbildung 2.2a gezeigt und entspricht dabei im Idealfall (unter Vernachlässigung von Aberrationen des optischen Systems, sowie mechanischer Fertigungstoleranzen) der Form der kreisförmigen C2-Blende. Er lässt sich mit der Blendenfunktion

$$A(\vec{p}) = \begin{cases} 1 & |\vec{p}| \leq \frac{d}{2} \\ 0 & \text{sonst.} \end{cases} \quad (2.4)$$

beschreiben. Dabei entspricht  $d$  dem Durchmesser der C2-Blende und  $\vec{p}$  einem Vektor in der durch die (Impulsraum-)Koordinaten  $p_x$  und  $p_y$  aufgespannten Blenden-ebene. In Abbildung 2.2a sind sowohl die zweidimensionale Blendenfunktion, als auch der rot eingezeichnete rechteckige Intensitätsverlauf von  $\Psi_0(\vec{p})$  entlang der

$p_x$ -Richtung exemplarisch gezeigt. Es wäre grundsätzlich möglich, dieses Strahlprofil auch mit nur einer Kondensorlinse (und Blende) zu erzeugen. Aus technischer Sicht wird darauf aber verzichtet, da die Aberrationen von Elektronenlinsen mit ihrer Fokusslänge skalieren [21]. Des Weiteren ergibt sich unter Verwendung eines zweiseitigen Kondensors ein weiterer Freiheitsgrad, mit dem Einfluss auf den Elektronenstrahl genommen werden kann: Die sogenannte *Spotsize*-Einstellung. Sie beeinflusst die Anregung der C1-Linse und hat direkte Auswirkung auf Größe und Helligkeit der Elektronensonde. Zur Auswahl stehen dabei elf unterschiedliche *Spotsize*-Werte, welche mit den Zahlen 1 bis 11 beschrieben werden. Kleine Zahlenwerte entsprechen dabei großen Elektronensonden mit hoher Intensität; große Werte kleinen Sonden mit geringer Intensität. Eine detaillierte Beschreibung der *Spotsize*-Einstellung findet sich in der, dieser Arbeit vorangegangenen Masterarbeit [22], sowie in einschlägiger Literatur [52, 53]. Um schließlich die Elektronensonde zu erzeugen, wird der Elektronenstrahl mittels der oberen Objektivlinse möglichst genau auf die Probe fokussiert. Die Elektronensonde entspricht dabei dem Fokuspunkt in der hinteren Brennebene einer Sammellinse (hier der Objektivlinse). Dieser entsteht, wenn die Objektivlinse mit der, durch die C2-Blende begrenzten, ebenen Welle beleuchtet wird. Die sphärische Aberration  $C_s$  und ein Defokus  $\Delta f$  der fokussierenden Optik (hier der Objektivlinse) werden als Phasenfaktor

$$\chi(p) = \frac{\pi}{2}(-2\Delta f \cdot \lambda \cdot p^2 + C_s \cdot \lambda^3 \cdot p^4) \quad (2.5)$$

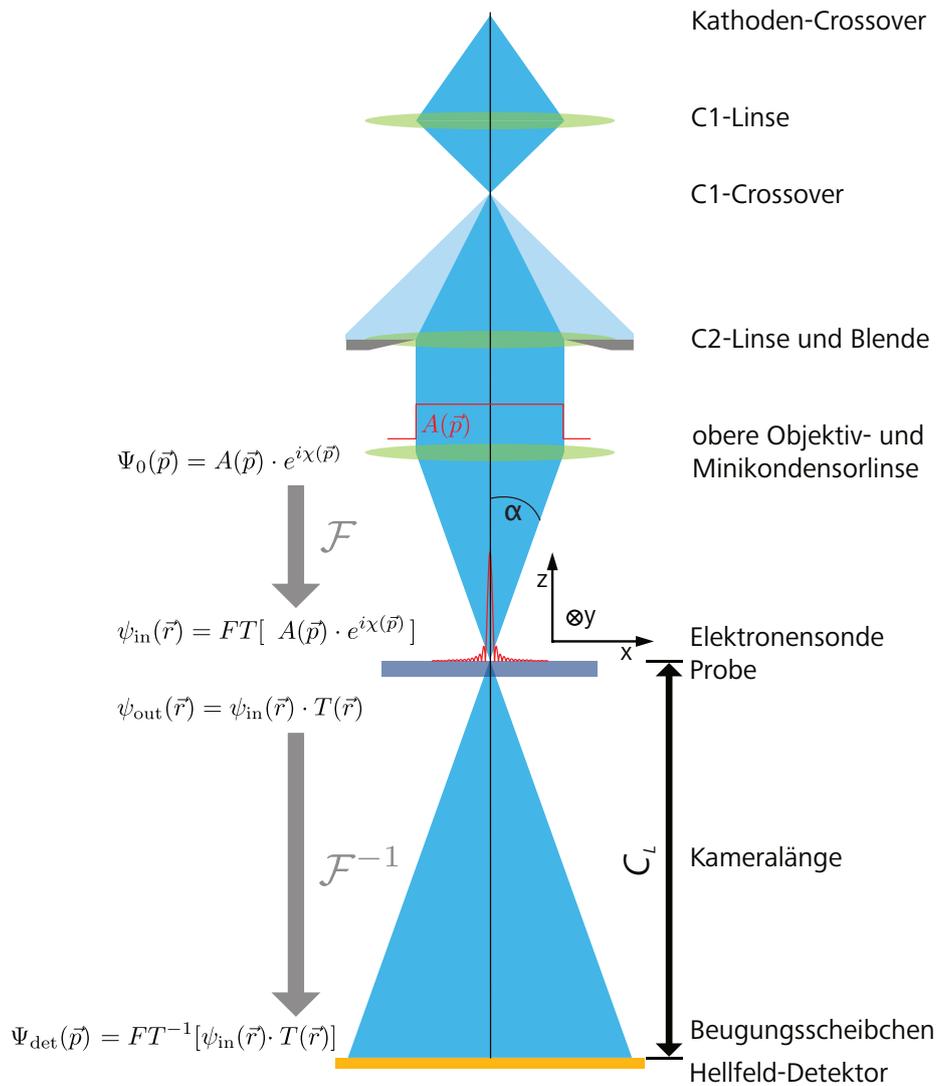
welcher sich in der hinteren Brennebene der C2-Linse auswirkt, berücksichtigt. Die Wellenfunktion, der auf die obere Objektivlinse einfallenden Elektronenwelle  $\Psi_0(\vec{p})$ , lässt sich mit

$$\Psi_0(\vec{p}) = A(\vec{p}) \cdot e^{i\chi(\vec{p})} \quad (2.6)$$

beschreiben [14]. Die Eintrittswellenfunktion der Elektronensonde  $\psi_{\text{in}}(\vec{r})$  entspricht dann der Fouriertransformierten von  $\Psi_0(\vec{p})$ ):

$$\psi_{\text{in}}(\vec{r}) = FT[A(\vec{p}) \cdot e^{i\chi(\vec{p})}] \underset{\chi=0}{\approx} \frac{J_1(\vec{r})}{\vec{r}} \quad (2.7)$$

$J_1$  entspricht einer Besselfunktion erster Art und  $\vec{r} = (x, y)$  einem durch die Koordinaten  $x$  und  $y$  definierten Ort in der Probenebene [67]. Das Betragsquadrat von  $\psi_{\text{in}}$ , besser bekannt als Airy-Scheibchen, entspricht der Intensitätsverteilung der Elektronensonde auf der Probe (siehe Abbildung 2.2b). Unter Vernachlässigung von sphärischer Aberration und fehlendem Defokus, also für  $\chi = 0$ , entspricht dies dem Beugungsbild der den Strahl begrenzenden C2-Blende. Basierend auf dieser Beschreibung ist es einfach zu erkennen, dass eine größere Blende ein bessere Auflösung zur Folge hat. Die Fouriertransformation einer größeren Blende führt zu einem schmälere Beugungsbild und somit zu einer kleineren Elektronensonde (Airy-Scheibchen). Die Größe des zentralen Maximums des Airy-Scheibchens  $d_s$  (siehe Abbildung 2.2b)



**Abb. 2.3:** Schematische wellenoptische Beschreibung des Strahlengangs einer STEM-Messung. Die Eintrittswellenfunktion  $\psi_{\text{in}}(\vec{r})$  ist mit  $\Psi_0(\vec{p})$  über eine Fouriertransformation verknüpft. Zwischen der aus der Probe auslaufenden Welle  $\psi_{\text{out}}(\vec{r})$  und der Wellenfunktion in der Detektorebene  $\Psi_{\text{det}}(\vec{p})$  besteht ebenfalls ein Zusammenhang über die (inverse) Fouriertransformation. (Abbildung nach [51])

ist, neben der Genauigkeit der Ablenkspulen, welche den Strahl über die Probe rastern, bestimmend für das Auflösungsvermögen eines STEMs.

Nachdem der Elektronenstrahl die Probe passiert hat, tritt er in das abbildende System des Mikroskops ein. Dieses besteht aus mehreren unterschiedlichen Linsen, sowie Lochblenden und Ablenkspulen (siehe Abbildung 2.1). Je nach Ansteuerung kann der Elektronenstrahl entweder auf den fluoreszierenden Leuchtschirm zur direkten Beobachtung durch den Benutzer oder auf unterschiedliche Detektoren projiziert werden. Der Abstand zwischen der Probe und den Detektoren wird als Kameralänge  $C_L$  bezeichnet (siehe Abbildung 2.3). Hierbei handelt es sich nicht um den physischen Abstand zwischen Probe und Detektor, wie es in einem Lichtmikroskop der Fall wäre, sondern um eine virtuelle Kameralänge. Deren Länge kann auf Grund der

variablen Brechkraft von Elektronenlinsen im abbildenden System – in gewissen Grenzen – frei variiert werden. Sie kann Werte zwischen einigen Zentimetern bis hin zu mehreren hundert Metern annehmen. In Abbildung 2.3 ist gezeigt, dass der Öffnungswinkel des divergenten Strahlenbündels, welches die Probe verlässt, dem Konvergenzwinkel  $\alpha$  entspricht. Dieser wird von der Größe der C2-Blende direkt beeinflusst. In der hinteren Brennebene der abbildenden Optik (Detektorebene) entsteht so ein Bild der strahllimitierenden C2-Blende. Diese kreisförmige Elektronenverteilung wird fortan als Beugungsscheibchen bezeichnet.

Um die Wellenfunktion des Elektronenstrahls in der Detektorebene  $\Psi_{\text{det}}(\vec{p})$  zu beschreiben, wird zunächst die Austrittswellenfunktion  $\psi_{\text{out}}(\vec{r})$  (siehe Abbildung 2.3) des Elektronenstrahls nach der Transmission durch die Probe benötigt. Sie entspricht der Multiplikation von  $\psi_{\text{in}}(\vec{r})$  mit der Transmissionsfunktion  $T(\vec{r})$ , welche die Wechselwirkung des Strahls mit der Probe beschreibt

$$\psi_{\text{out}}(\vec{r}) = \psi_{\text{in}}(\vec{r}) \cdot T(\vec{r}) \quad (2.8)$$

$$= \psi_{\text{in}}(\vec{r}) \cdot a(\vec{r}) e^{i\phi(\vec{r})} \quad (2.9)$$

Hier entsprechen  $a(\vec{r})$  der amplitudenmodulierenden Wirkung und  $\phi(\vec{r})$  dem inneren Potential der Probe am jeweiligen Rasterpunkt  $\vec{r}$ . [51, 64, 66–68]

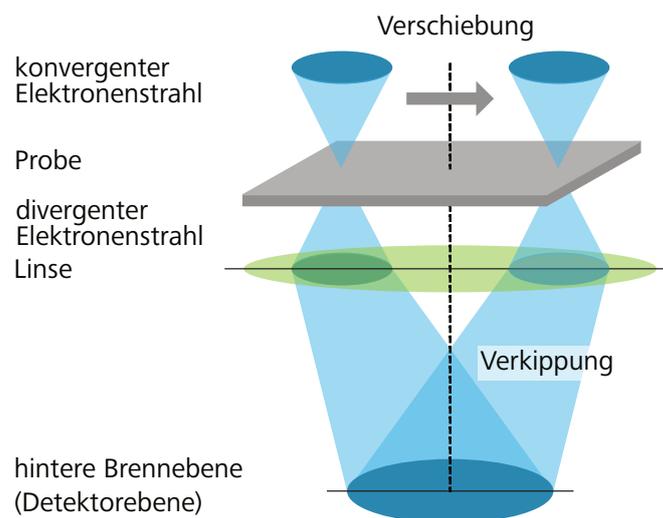
Die Wellenfunktion in der Detektorebene  $\Psi_{\text{det}}(\vec{p})$  ergibt sich schließlich, im Fraunhofer Fernfeld, durch eine (inverse) Fouriertransformation von  $\Psi_{\text{out}}(\vec{r})$

$$\Psi_{\text{det}}(\vec{p}) = FT^{-1}[\Psi_{\text{out}}(\vec{r})] = FT^{-1}[\psi_{\text{in}}(\vec{r}) \cdot T(\vec{r})] \quad (2.10)$$

Die mit einem BF-Detektor gemessene, beziehungsweise die am Leuchtschirm beobachtbare, Intensitätsverteilung  $I(\vec{p}, \vec{r}_0)$  für einen Strahl, der die Probe am Punkt  $\vec{r}_0$  durchstrahlt, entspricht

$$I(\vec{p}, \vec{r}_0) = |\Psi_{\text{det}}(\vec{p})|^2 \quad (2.11)$$

Mittels Detektoren, wie zum Beispiel dem kreisförmigen BF- oder dem ringförmigen Dunkelfeld-Detektor, können unterschiedliche Probeneigenschaften, wie Absorptions- und Streuvermögen analysiert werden. Eine tiefergehende Beschreibung der Kontrastmechanismen eines STEMs findet sich in [52, 53, 69]. Den Rastervorgang übernehmen mehrere Ablenkspulen (siehe Abbildung 2.1). Mit diesen kann der einfallende konvergente Strahl parallel zur optischen Achse verschoben werden. Es wird auf diese Weise ein rechteckiger Bereich auf der Probe abgerastert und jedem Rasterpunkt  $P(x, y)$  in der Probenebene ein Messwert, zum Beispiel das BF-Signal, zugeordnet. In Abbildung 2.4 ist gezeigt, dass, trotz der Verschiebung des Elektronenstrahls in der Probenebene, die Position des Beugungsscheibchens in der Detektorebene stationär bleibt. Der Grund hierfür ist, dass die Detektorebene genau der Brennebene der abbildenden Optik entspricht. Vereinfachend wird die Wirkung der abbildenden Optik des Mikroskops (Projektions-System) auf den divergenten



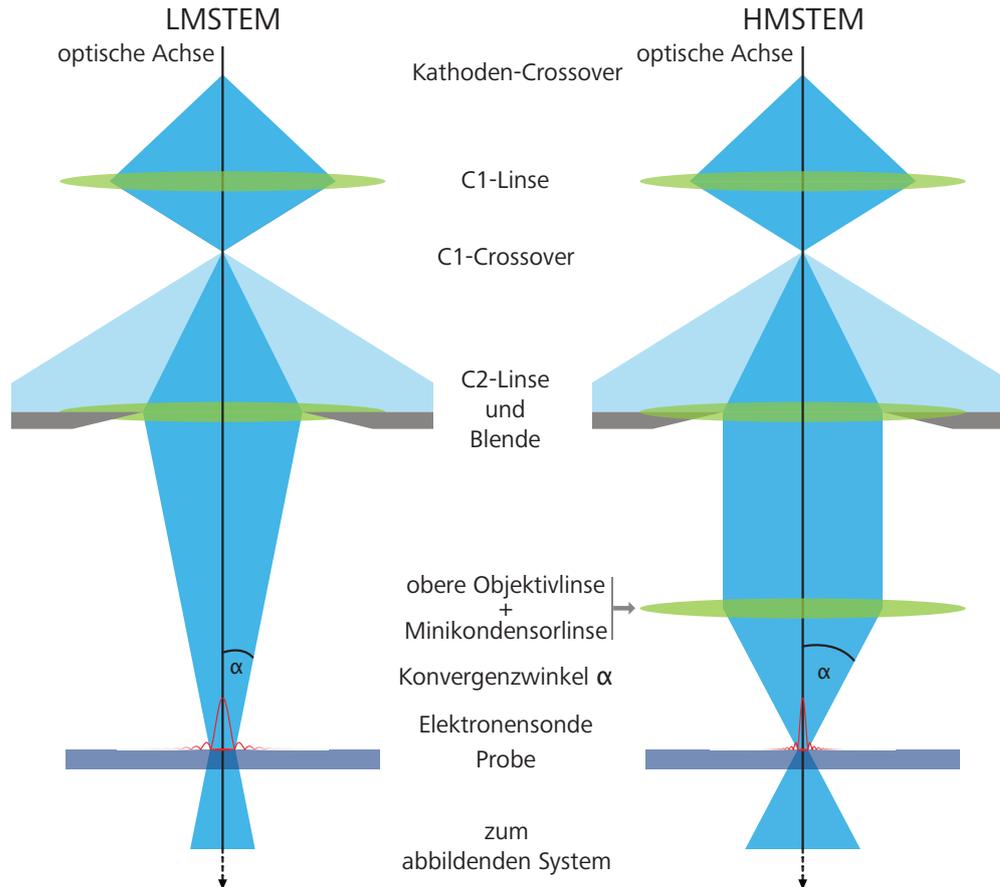
**Abb. 2.4:** Skizze des Strahlengangs im STEM-Betrieb. Die Probe wird mit einem konvergenten Elektronenstrahl abgetastet. Dieser verlässt die Probe als divergentes Strahlenbündel, welches in der hinteren Brennebene der abbildenden Optik (Detektorebene) als Beugungsscheibchen abgebildet wird. Eine Verschiebung des Strahls auf der Probe bewirkt keine Verschiebung des Beugungsscheibchens, sondern nur eine Verkippung des ausfallenden Strahlenbündels. (Abbildung und Beschreibung nach [64])

Elektronenstrahl mit einer einzelnen Linse beschrieben. Strahlen, welche unter dem gleichen Winkel in die abbildende Linse eintreten, werden im selben Punkt der Brennebene fokussiert. Eine Verschiebung des Strahls führt somit lediglich zu einer Verkippung des auslaufenden Strahlenbündels nicht aber zu einer Verschiebung des Elektronenstrahls in der Detektorebene [64]. Dies ist vor allem im Hinblick auf DPC-Messungen wichtig, da die Verschiebungen des Beugungsscheibchens, welche durch die Ablenkung des Strahls durch Felder in der Probe bewirkt werden, im Mikrometerbereich liegen (siehe Abschnitt 3.1). Neben der Sondengröße ist die Genauigkeit des Rastervorganges ein wichtiger, die Auflösung einer STEM-Messung bestimmender, Faktor. Zudem ist die Größe des Rasterbereichs ausschlaggebend für die Vergrößerung.

Die in dieser Arbeit verwendeten Mikroskope bieten im STEM-Betrieb die Möglichkeit, zwischen zwei Betriebsmodi zu wählen, dem HM- und dem LM-STEM Modus. Im Folgenden wird kurz auf die Unterschiede ihrer Funktionsweisen und deren Eignung zur Untersuchung von magnetischen und elektrischen Feldern eingegangen.

### 2.1.3 Betriebsmodi eines STEM

**HMSTEM** Wird von einer STEM-Messung gesprochen, bezieht sich dies meistens auf den HMSTEM-Modus des Mikroskops. Er ist die Standardbetriebsart moderner Rastermikroskope und zeichnet sich vor allem durch sein hervorragendes Auflösungsvermögen, mit erreichbaren Sondengrößen im Sub-Ångström-Bereich,



**Abb. 2.5:** Vereinfachte Darstellung der Strahlengänge des LMSTEM (links) und HMSTEM (rechts) Betriebs. Im HMSTEM-Modus wird der Elektronenstrahl mittels der stark angeregten Objektivlinse auf die Probe fokussiert. Es ergeben sich Elektronensonden im Sub-Nanometerbereich. Im LMSTEM-Modus hingegen wird zugunsten eines (nahezu) feldfreien Probenraumes die C2-Linse zur Fokussierung des Strahls verwendet. Dies führt zu einem, im Vergleich zu HMSTEM, verringerten maximalen lateralen Auflösungsvermögen, ermöglicht aber unter anderem die Betrachtung von magnetischen Strukturen.

aus. Um dies zu erreichen, wird der parallele Elektronenstrahl, welcher das Kondensorsystem verlässt, durch die obere Objektivlinse auf die Probe fokussiert (siehe Abbildung 2.5). Da sich diese Linse sehr nahe an der Probenebene befindet, ergibt sich ein großer Konvergenzwinkel  $\alpha$ , und im Einklang mit der Abbeschen Abbildungstheorie eine kleine Elektronensonde. Deren Durchmesser  $d_s$  kann für eine bestimmte de-Broglie-Wellenlänge  $\lambda_e$  und kleinen Winkeln  $\alpha$  (im Milliradian-Bereich) mit

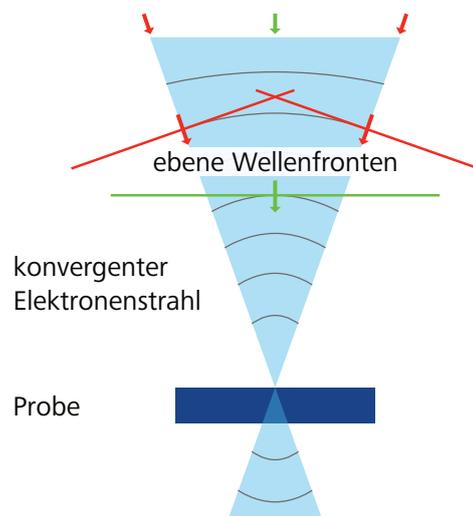
$$d_s = 1,22 \cdot \frac{\lambda_e}{\alpha} \quad (2.12)$$

abgeschätzt werden [53]. Typischerweise liegt im HMSTEM-Betrieb der Konvergenzwinkel in einem Bereich von circa 8 mrad (Tecnai F30) bis circa 26 mrad (STEM mit  $C_s$ -Korrektor). Um die hierfür benötigte Brechkraft der oberen Objektivlinse zu gewährleisten wird diese mit 90 bis 98 Prozent des maximal möglichen Spulenstroms

angeregt. Auf diese Weise entstehen am Probenort große Magnetfelder von bis zu 2 Tesla. Diese großen Feldstärken bedeuteten im Hinblick auf DPC-Messungen, dass sich der HMSTEM-Modus hauptsächlich zur Untersuchung von Proben mit intrinsischen elektrischen Feldern eignet, nicht aber zur Untersuchung magnetischer Strukturen. Während die starken Magnetfelder der Objektivlinse keinen Einfluss auf erstere haben, bewirken sie bei den meisten magnetischen Proben eine Sättigung der Magnetisierung. Da sich in Sättigung sämtliche magnetische Momente parallel zum angelegten Magnetfeld ausrichten, führt dies zu einem Verlust des magnetischen Kontrastes. Das an der Arbeitsgruppe vorhandene Tecnai F30 erreicht nach Herstellerangaben im HMSTEM-Betrieb eine maximale Auflösung von 0,19 nm und bietet einen (sinnvoll) nutzbaren Vergrößerungsbereich von 8.000- bis 2.000.000-facher Vergrößerung. Im Zuge dieser Arbeit wurden auch Messungen an einem STEM, welches zur Verbesserung der Auflösung mit einem  $C_s$ -Korrektor sowie einem Monochromator ausgestattet ist, durchgeführt. Es handelt sich dabei um das *FEI Titan 80-300 STEM* des Ernst-Ruska-Zentrums am Helmholtz-Zentrum Jülich.

**LMSTEM** Der Hauptunterschied zwischen HM- und LMSTEM ist bereits mit dem ersten Blick auf Abbildung 2.5 zu erkennen. Im LMSTEM-Betrieb wird anstatt der Objektivlinse die, weiter von der Probe entfernte, C2-Linse zur Fokussierung des Elektronenstrahls verwendet. Dies führt im Vergleich zu HMSTEM zu kleineren Konvergenzwinkeln im zweistelligen Mikroradian- bis einstelligen Milliradian-Bereich und somit zu einem verringerten Auflösungsvermögen. Die maximal erreichbare Auflösung (minimale Sondengröße) des Tecnai F30 wurde von T. Uhlig in [64] auf  $(5 \pm 1)$  nm bestimmt und liegt somit erheblich über der des HMSTEM-Betriebs. Die Spanne der nutzbaren Vergrößerungen reicht von 50- bis 152.000-facher Vergrößerung, was den LMSTEM-Modus auf die Untersuchung größerer Strukturen einschränkt.

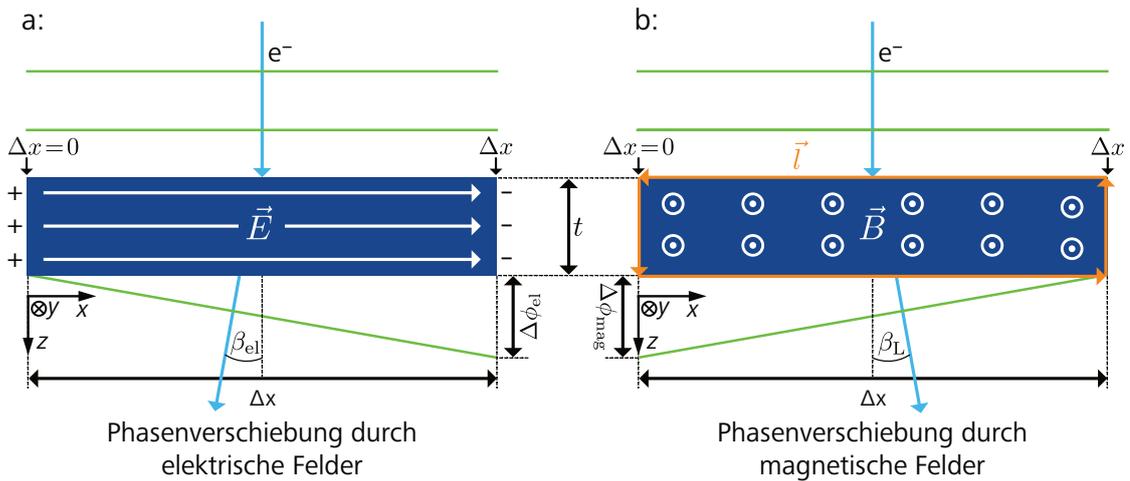
Der große Vorteil von LMSTEM besteht darin, dass, durch das Wegfallen des Magnetfeldes der Objektivlinse, im Bereich um die Probe nahezu Feldfreiheit herrscht. Dies ermöglicht die Untersuchung von magnetischen Proben, da diese nicht durch das starke Magnetfeld der Objektivlinse beeinflusst werden. Der LMSTEM-Betrieb eignet sich zur Untersuchung elektrischer und magnetischer Feldverteilungen mittels DPC. Ein weiterer Vorteil in Bezug auf DPC ist das, im Vergleich zu HMSTEM, bessere Felddauflösungsvermögen (siehe Abschnitt 3.1.3). Der minimal messbare Ablenkwinkel des Elektronenstrahls im HMSTEM-Modus beträgt  $(0,76 \pm 0,03) \mu\text{rad}$ . Für den LMSTEM-Modus ergibt sich ein circa 30-mal kleiner Wert von  $(0,028 \pm 0,001) \mu\text{rad}$ . Eine genauere Beschreibung der mit cDPC erreichbaren Felddauflösung, sowohl im HM- als auch im LMSTEM-Betrieb, findet sich in Abschnitt 3.1.3 und in [22, 70].



**Abb. 2.6:** Jedes Strahlelektron kann als eine Überlagerung von ebenen Wellen beschrieben werden. Für einen konvergenten Elektronenstrahl ergibt deren Überlagerung, entsprechend der Abbeschen Abbildungstheorie, die Wellenfunktion der Elektronensonde  $\psi_{\text{in}}(\vec{r})$ . Es sind exemplarisch die Wellenfronten an den Rändern (rot) und in der Mitte (grün) des konvergenten Elektronenstrahls eingezeichnet. Im weiteren Verlauf basieren alle Erläuterungen zum Phasenkontrast, ohne Einschränkung der Allgemeinheit, ausschließlich auf der Betrachtung der waagerechten Wellenfront (grün).

## 2.2 Wechselwirkung des Probenpotentials mit der Elektronensonde

In diesem Abschnitt soll durch Berechnungen, beziehungsweise mittels einfacher Simulationen, gezeigt werden, welche Auswirkungen homogene und inhomogene Potenzialverläufe in der Probe auf den Elektronenstrahl haben. Dabei ist insbesondere die Auswirkung der Phasenverschiebung des Elektronenstrahls durch elektrische und magnetische Felder auf die Intensitätsverteilung des Beugungsscheibchens in der Detektorebene von Interesse. Es soll geklärt werden, welche Unterschiede sich ergeben, wenn die Elektronensonde klein, beziehungsweise groß, gegenüber der Ausdehnung der zu messenden Felder ist. Physikalisch würde dies zum Beispiel dem Unterschied zwischen einer DPC-Messung an ausgedehnten Feldern in magnetischen Dünnschichten und der Messung atomarer elektrischer Felder eines Atomkerns entsprechen. Die Ergebnisse in den Abschnitten 2.2.3 und 2.2.3 sollen nicht den Anspruch einer möglichst genauen Wiedergabe der real im Mikroskop ablaufenden Prozesse erfüllen, wie zum Beispiel in den Arbeiten von V. Galioit [67] und M. Kadur [68]. Vielmehr soll mittels einfacher Modellsysteme aufgezeigt werden, dass die in der konventionellen Differentiellen Phasenkontrastmikroskopie gängige Annahme eines Beugungsscheibchens homogener Intensität nur für spezielle Messsituationen gültig ist (siehe Abschnitt 3.1). Als Grundlage dieses Abschnitts dient die Beschreibung der Wechselwirkung des Elektronenstrahls mit elektrischen und magnetischen Feldern. Es wird gezeigt, welche Phasenverschiebung eine Elektronenwelle



**Abb. 2.7:** Wechselwirkung des Elektronenstrahls mit elektrischen und magnetischen Feldern. Eine Probe der Dicke  $t$ , welche ein elektrisches  $\vec{E}$  (a) oder magnetisches Feld  $\vec{B}$  (b) im Bereich zwischen  $x = 0$  und  $x = \Delta x$  enthält, bewirkt eine Phasenverschiebung der einfallenden ebenen Elektronenwelle. Es ergibt sich eine Ablenkung des auslaufenden Elektronenstrahls um den Winkel  $\beta_{el}$  beziehungsweise  $\beta_L$ . (Abbildung und Beschreibung frei nach [51])

durch diese erfährt. Die Erklärung erfolgt dabei nicht im Teilchenbild, sondern basiert auf einer wellenoptischen Betrachtung des Elektronenstrahls. Dieser wird somit nicht als ein Strahl, bestehend aus einzelnen Teilchen, betrachtet, sondern als eine Überlagerung von ebenen Wellen (siehe Abbildung 2.6). Diese treffen in unterschiedlichen (durch den Konvergenzwinkel  $\alpha$  begrenzten) Einfallswinkeln auf die Probe. Abbildung 2.6 verdeutlicht dies exemplarisch für drei unterschiedliche Wellenfronten. Am Fokuspunkt überlagern sich diese Wellen, und es ergibt sich entsprechend der Abbeschen Abbildungstheorie durch Interferenz der Wellenfunktionen die Wellenfunktion der Elektronensonde  $\psi_{in}$  (siehe Gleichung 2.7) auf der Probe (siehe Abbildung 2.2b). Stellvertretend für alle Einfallswinkel werden zugunsten der Einfachheit nur Auswirkungen des Probenpotentials auf ebene Wellen parallel zur Probenebene diskutiert. Sämtliche dabei angeführten Argumente können auf beliebige Einfallrichtungen ohne Einschränkung der Allgemeinheit übertragen werden.

### 2.2.1 Wechselwirkung der Elektronen mit elektrischen und magnetischen Feldern

Zum Verständnis, wie es mit einem STEM möglich ist magnetische und elektrische Potentialverteilungen zu vermessen, muss zunächst geklärt werden, welchen Einfluss diese auf die Phase der transmittierten Elektronenwelle haben. Da es sich bei DPC um eine sogenannte in-plane Messmethode handelt (siehe [19]) wird nur der Einfluss der Feldkomponenten des elektrischen  $E_{\perp}(x, y)$  und des magnetischen  $B_{\perp}(x, y)$  Feldes, senkrecht zur optischen Achse, diskutiert. [51, 52].

**Elektrische Felder** In Abbildung 2.7a ist die Ablenkung eines Elektronenstrahls durch eine Probe der Dicke  $t$  mit einem intrinsischen (homogenen) elektrischen Feld gezeigt. Der Strahl wird auf Grund der Coulombkraft um den Winkel  $\beta_{\text{el}}$  nach links abgelenkt. Das elektrische Feld ist konstant über die gesamte Probendicke. Die Probe wird als reines Phasenobjekt angenommen. Dies bedeutet, dass es zu keiner Änderung der Intensität des Elektronenstrahls kommt, wenn dieser die Probe passiert ( $a = 1$ ). Dies vereinfacht die in Abschnitt 2.1 eingeführte Austrittswellenfunktion  $\psi_{\text{out}}$  des Elektronenstrahls nach Verlassen der Probe zu:

$$\begin{aligned}\psi_{\text{out}}(\vec{r}) &= \psi_{\text{in}}(\vec{r}) \cdot \underbrace{a(\vec{r}) e^{i\phi(\vec{r})}}_{=T(\vec{r})} \\ &\approx \psi_{\text{in}}(\vec{r}) \cdot e^{i\phi(\vec{r})}\end{aligned}\quad (2.13)$$

Somit ist  $\psi_{\text{out}}(\vec{r})$  nur von der Funktion  $\phi(\vec{r})$ , welche die Phasenverschiebung durch das innere Potential der Probe beschreibt, und der Eintrittswellenfunktion  $\psi_{\text{in}}(\vec{r})$  abhängig. Als Beispiel für eine reale Probe mit diesen Eigenschaften sei an dieser Stelle das elektrische Feld eines Plattenkondensators genannt, wie es auch in Abschnitt 5.2.1 zur Charakterisierung der Empfindlichkeit des PSD-Systems verwendet wurde. Als annähernd reine Phasenobjekte können auch Proben angesehen werden, deren Dicken kleiner als 5 nm sind, da hier die Absorption vernachlässigbar klein ist.

Die Phasenverschiebung  $\phi_{\text{el}}$ , welche der Elektronenstrahl durch ein elektrisches Feld erfährt, kann mit

$$\phi_{\text{el}}(\vec{r}) = 2\pi \frac{e}{h\nu_{\text{rel}}} \int_t V_{\text{el}}(\vec{r}) dz \quad (2.14)$$

beschrieben werden [51, 71]. Hier entsprechen  $h$  dem Planckschen Wirkungsquantum,  $\nu_{\text{rel}}$  der relativistischen Elektronengeschwindigkeit<sup>4</sup> und  $V_{\text{el}}(x, y, z)$  dem elektrostatischen Potential im Probeninneren. Die Integration  $\int_t V_{\text{el}}(\vec{r}) dz$  des elektrostatischen Potentials über die Probendicke  $t$  entspricht dem sogenannten projizierten Probenpotential  $V_{\text{el}}^{\text{proj}}(x, y)$ . Das dreidimensionale Potentialfeld  $V_{\text{el}}$  wird somit auf ein zweidimensionales reduziert. Typischerweise wird das elektrische Potential meist als das mittlere innere Probenpotential (kurz MIP) angesehen. Dieses kann aber zusätzlich von einem Potentialgradienten eines intrinsischen elektrischen Feldes überlagert werden. Als Beispiel für solche Felder seien die von M. Lohr mit cDPC vermessenen piezoelektrischen Felder in GaN/InGaN/GaN-Strukturen genannt [18, 19].

Das elektrische Feld in Abbildung 2.7a, welches sich zwischen dem linken ( $x_0 = 0$ ) und rechten ( $x_0 + \Delta x$ ) Probenrand in  $x$ -Richtung ausbreitet (Abstand  $\Delta x$ ) ist durch

$$\vec{E}(x) = \frac{(V(x_0) + V(\Delta x)) - V(x_0)}{\Delta x} \cdot \hat{x} = \frac{\Delta V}{\Delta x} \cdot \hat{x} \quad (2.15)$$

gegeben [51]. Dabei entsprechen  $V(x_0)$  dem MIP, welches hier als konstant über die

<sup>4</sup>  $\nu_{\text{rel}} = 2,33 \cdot 10^8 \text{ m/s}$  für Elektronen mit einer kinetischen Energie von 300 keV

gesamte Probe angenommen wird,  $V(\Delta x)$  dem Potential am rechten Probenrand,  $\Delta V$  der elektrostatischen Potentialdifferenz zwischen dem linken und rechten Probenrand und  $\hat{x}$  dem Einheitsvektor in  $x$ -Richtung. In differentieller Schreibweise (und einer Dimension) kann die Phasenverschiebung  $d\phi_{\text{el}}$  der auslaufenden Elektronenwelle, zwischen  $x_0$  und  $x_0 + \Delta x$ , durch

$$d\phi_{\text{el}} = \underbrace{\frac{2\pi e}{h\nu_{\text{rel}}}}_{\xi} \cdot \underbrace{\frac{dV_{\text{el}}}{dx}}_{E_x} \cdot t \cdot dx \quad (2.16)$$

beziehungsweise mit

$$\frac{d\phi_{\text{el}}}{dx} = \frac{2\pi e}{h\nu_{\text{rel}}} \cdot \frac{dV_{\text{el}}}{dx} \cdot t = \xi \cdot E_x \cdot t \quad (2.17)$$

beschrieben werden [51]. Zur Vereinfachung sind die konstanten Vorfaktoren in Gleichung 2.16 in der sogenannten Interaktionskonstante  $\xi$  zusammengefasst. Der Gradient von  $V_{\text{el}}$  entspricht dabei dem elektrischen Feld in  $x$ -Richtung (vergleiche Gleichung 2.15). Es zeigt sich, dass der Phasengradient  $\frac{d\phi_{\text{el}}}{dx}$  beziehungsweise dessen Änderung linear von der elektrischen Feldstärke und der Probendicke abhängt. Im Hinblick auf Messungen an realen Proben ist es wichtig zu beachten, dass  $t$  im zu untersuchenden Bereich möglichst konstant sein sollte. Wäre dies nicht der Fall, würden sich trotz einer konstanten Feldstärke unterschiedliche Werte für  $\frac{d\phi_{\text{el}}}{dx}$  ergeben, wenn eine Probe mit variierender Dicke untersucht wird. Die in Abbildung 2.7a eingezeichnete Phasendifferenz  $\Delta\phi_{\text{el}}$  über  $\Delta x$  wird mit

$$\Delta\phi_{\text{el}} = \xi \cdot E_x \cdot t \cdot \Delta x \quad (2.18)$$

beschrieben. Die Phasenverschiebung des Elektronenstrahls durch die Probe führt zu einer Ablenkung des Strahls um den Winkel  $\beta_{\text{el}}$ . Dieser ist direkt proportional zu  $\frac{d\phi_{\text{el}}}{dx}$  und kann mittels einfacher geometrischer Überlegungen anhand der Abbildung 2.7a mit

$$\beta_{\text{el}} \approx \tan \beta_{\text{el}} = \frac{\frac{\Delta\phi_{\text{el}}}{2\pi} \cdot \lambda}{\Delta x} = \underbrace{\frac{\lambda}{2\pi}}_{=\frac{1}{p_0}} \cdot \frac{\Delta\phi_{\text{el}}}{\Delta x} \stackrel{\lim_{\Delta x \rightarrow 0}}{=} \frac{1}{p_0} \cdot \frac{d\phi_{\text{el}}}{dx} \quad (2.19)$$

angegeben werden [72]. Hier entspricht  $\frac{\Delta\phi_{\text{el}}}{2\pi} \cdot \lambda$  der Strecke, welche der phasenverschobene Strahl zurückgelegt hat und  $p_0 = \frac{2\pi}{\lambda}$  der Kreiswellenzahl des beschleunigten Elektronenstrahls [51, 72]. Die Kleinwinkelnäherung ist an dieser Stelle gerechtfertigt, da sich die Ablenkungswinkel im Mikro- bis Milliradianbereich bewegen [19]. Einsetzen von Gleichung 2.17 in 2.19 und Umformen ergibt schließlich den Zusammenhang zwischen Ablenkungswinkel, elektrischer Feldstärke und Probendicke:

$$\beta_{\text{el}} \approx \frac{1}{p_0} \cdot \frac{2\pi e}{h\nu_{\text{rel}}} \cdot |\vec{E}| \cdot t \propto |\vec{E}| \cdot t \quad (2.20)$$

**Magnetische Felder** Analog zu obiger Beschreibung soll nun die Wirkung eines magnetischen Vektorpotentials beziehungsweise der magnetischen Induktion auf den Elektronenstrahl beschrieben werden. In Abbildung 2.7b ist gezeigt, dass eine aus der Blattebene zeigende magnetische Induktion  $\vec{B}$  innerhalb einer Probe mit Dicke  $t$  den Elektronenstrahl um den sogenannten Lorentzwinkel  $\beta_L$  nach rechts ablenkt. Auf den Elektronenstrahl wirkt in diesem Fall die Lorentzkraft. Die Probe wird wieder als reines Phasenobjekt angenommen. Die Wirkung des MIP wird an dieser Stelle vernachlässigt. Dies dient der Vereinfachung der Beschreibung und würde für ein homogenes MIP ausschließlich in einer konstanten Phasenverschiebung des Elektronenstrahls und somit zu keiner zusätzlichen Ablenkung führen.

Die Phasenverschiebung, welche der Elektronenstrahl durch ein magnetisches Vektorpotential  $\vec{V}_{\text{mag}}$  erfährt, ist nach [72]:

$$\phi_{\text{mag}} = -\frac{2\pi e}{h} \oint_L \vec{V}_{\text{mag}} d\vec{l} = -\frac{2\pi e}{h} \int_S \vec{B} d\vec{S} \quad (2.21)$$

Wobei  $\vec{l}$  den geschlossenen Pfad entlang der orangen Linie in Abbildung 2.7b beschreibt. Unter Verwendung des Stockeschen Integralsatzes und der von Y. Aharonov und D. Bohm beschriebenen Tatsache [73], dass die magnetische Induktion  $\vec{B}$  der Rotation des reinen Vektorpotentials  $\vec{B} = \nabla \times \vec{V}_{\text{mag}}$  entspricht, wurde in Gleichung 2.21 das Kurvenintegral in ein Integral über die von  $\vec{l}$  eingeschlossene Fläche  $S$  umgeformt [51, 64, 72]. Hier entspricht das Flächenintegral:

$$\int_S \vec{B} d\vec{S} = -B_y \cdot \Delta x \cdot t \quad (2.22)$$

In Analogie zu der in Abbildung 2.7a gezeigten Situation eines elektrischen Feldes ergibt sich damit schließlich für die Phasendifferenz  $\Delta\phi_{\text{mag}}$  der auslaufenden Elektronenwelle (über den Abstand  $\Delta x$ ):

$$\Delta\phi_{\text{mag}} = -2\pi \cdot \frac{e}{h} \cdot B_y(x) \cdot \Delta x \cdot t \quad (2.23)$$

Sie ist linear von  $B_y(x)$  und  $t$  abhängig. Für kleine Werte von  $\Delta x$  ergibt sich für den Phasengradienten  $\frac{d\phi_{\text{mag}}}{dx}$ :

$$\frac{d\phi_{\text{mag}}}{dx} = -2\pi \cdot \frac{e}{h} \cdot B_y(x) \cdot t \quad (2.24)$$

Dieser bewirkt eine Ablenkung des Elektronenstrahls um den Lorentzwinkel  $\beta_L$ :

$$\beta_L \approx \frac{1}{p_0} \cdot \frac{d\phi_{\text{mag}}}{dx} \quad (2.25)$$

$$\approx -\frac{1}{p_0} \cdot \frac{2\pi e}{h} \cdot |\vec{B}| \cdot t \propto |\vec{B}| \cdot t \quad (2.26)$$

Er ist direkt proportional zu Probenstärke und Feldstärke (beziehungsweise dem Potentialgradienten) am jeweiligen Probenort. [51]

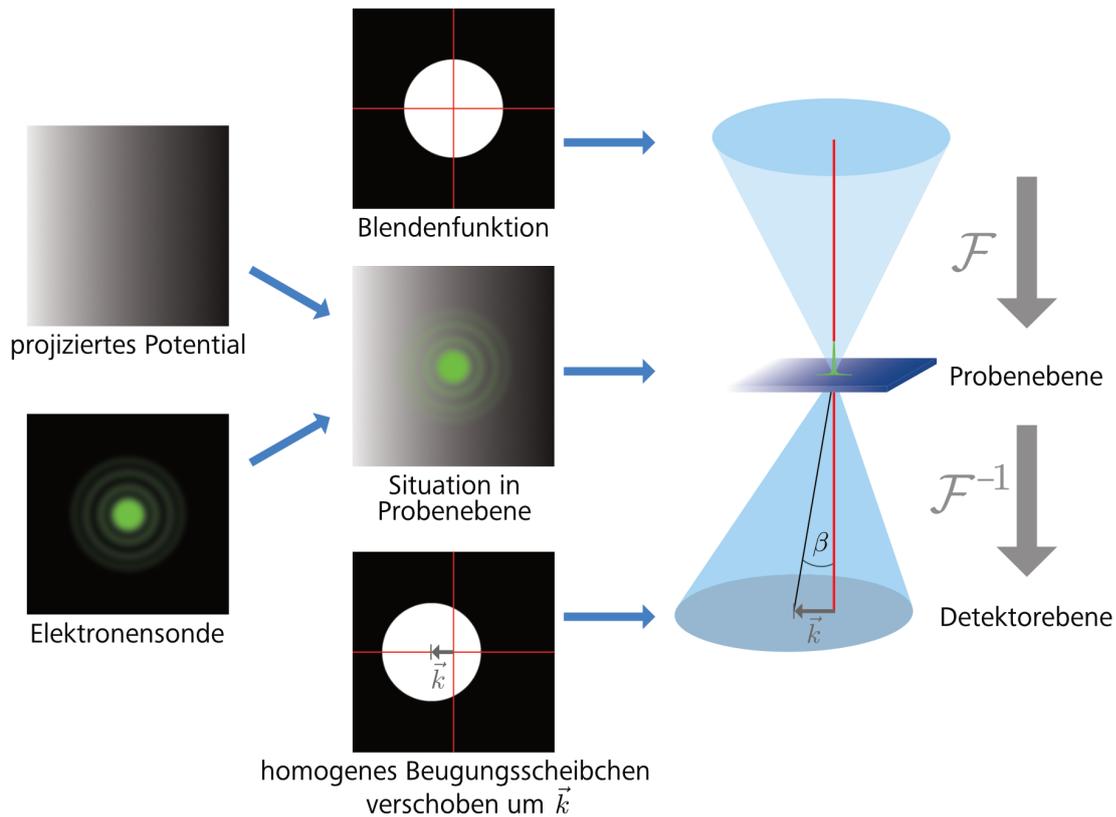
## 2.2.2 Einfluss homogener Probenpotentiale auf den Elektronenstrahl

Nachfolgend wird erläutert welchen Einfluss eine Probe mit homogenem Potentialverlauf auf das Beugungsscheibchen in der Detektorebene hat. Als Modellsystem für diese Betrachtungen dient eine ähnliche Situation, wie sie auch zur Beschreibung der Phasenverschiebung durch elektrische Felder verwendet wurde (siehe Abbildung 2.7a). Zusammengefasst bedeutet dies, eine nicht absorbierende Probe der Dicke  $t$  mit einem intrinsischen elektrischen Feld  $E_x$  in positiver  $x$ -Richtung. In Abbildung 2.8 sind die wichtigsten Schritte der Simulation der Wechselwirkung zwischen Elektronensonde und Probenpotential gezeigt. Dabei entspricht die verwendete Herangehensweise weitestgehend dem, in der Masterarbeit von Vincent Galioit [67] gezeigten, Singleslice-Algorithmus. Da an dieser Stelle nur die qualitative Beschaffenheit des Beugungsscheibchens von Interesse ist, nicht aber die absoluten Intensitäten, werden konstante Vorfaktoren vernachlässigt, wie zum Beispiel der sogenannte Phase-Grating-Faktor (vergleiche [67]). Sämtliche errechneten Intensitätsverteilungen werden auf ihren jeweiligen Maximalwert normiert dargestellt. Als Simulationsumgebung wurde die Software *Matlab* in der Version 2019a verwendet.

In der rechten Seite von Abbildung 2.8 ist der schematische Strahlengang des Elektronenstrahls im STEM-Modus dargestellt. Linker Hand sind die entsprechenden Simulationsschritte in den konjugierten Ebenen, der Blenden-, Proben- und Detektorebene gezeigt. Die Wellenfunktion der Elektronensonde wurde durch Fouriertransformation mittels der zweidimensionalen diskreten schnellen Fouriertransformation (kurz FFT<sup>5</sup>) der Blendenfunktion berechnet. Letztere entspricht dabei nicht exakt der in Formel 2.4 definierten Rechteckfunktion. Zur Vermeidung der Unstetigkeitsstellen wurde die in Abbildung 2.2a gezeigte Funktion mit einer, im Vergleich zum Blendendurchmesser schmalen Gauss-Funktion gefaltet. Schmal bedeutet in diesem Kontext, dass die Halbwertbreite der Gauss-Funktion weniger als vier Prozent des Blendendurchmessers beträgt. Auf diese Weise ergibt sich ein stetiger Funktionsverlauf an den Flanken der Rechteckfunktion. Dadurch werden Probleme, wie das Auftreten von sogenannten Gibbsschen Überschwingern an den Rändern der simulierten Beugungsscheibchen vermieden. In der Arbeit von Galioit [67] findet sich eine genauere Beschreibung dieser Problematik, sowie mögliche Lösungsansätze. Als Resultat dieses Prozesses ergibt sich schließlich das in Abbildung 2.9a gezeigte Intensitätsprofil  $|\psi_{in}|^2$  der Elektronensonde.

Das projizierte elektrostatische Potential  $V_{el}^{proj} = \int_t V_{el}(\vec{r}) dz$  (Probendicke  $t$ ) des elektrischen Feldes überlagert sich in der Probenebene mit  $\psi_{in}$ . In Abbildung 2.8 sind  $V_{el}^{proj}$  und  $\psi_{in}$  (Bilder links) sowie deren Überlagerung (mittleres Bild) gezeigt. Bei der Darstellung des Potentials und der Sonde entsprechen hellere Grau- beziehungsweise Farbwerte größeren Intensitäten. Der Intensitätsquerschnitt (in  $x$ -Richtung) von  $V_{el}^{proj}$  entspricht dem Verlauf des blauen Graphen in Abbildung 2.9a.

<sup>5</sup>engl. fast fourier transformation

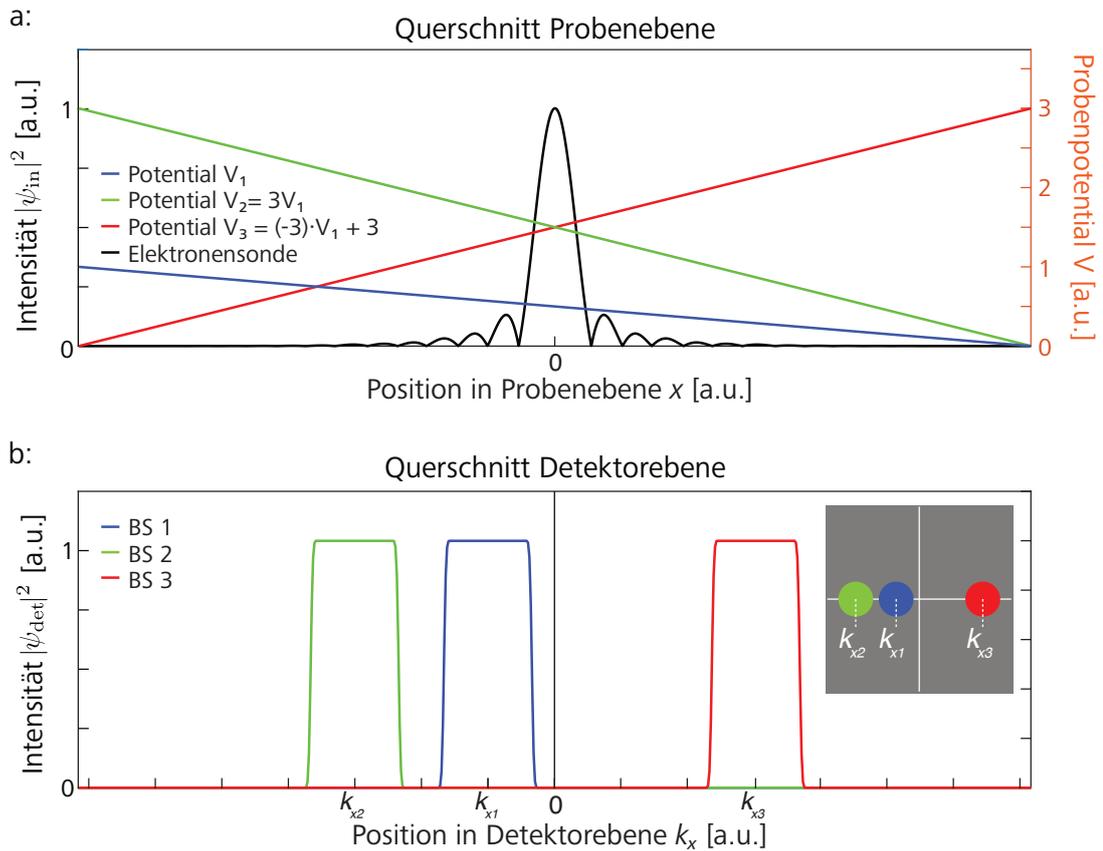


**Abb. 2.8:** Schematische Darstellung der wichtigsten Schritte der Simulation der Wechselwirkung zwischen einem homogenen projiziertem Probenpotential und dem Elektronenstrahl. Für diese Situation ergibt sich ein um den Vektor  $\vec{k}$  verschobenes Beugungsscheibchen mit homogener Intensitätsverteilung. (Abbildung in Anlehnung an [67])

Die Austrittswellenfunktion  $\psi_{\text{out}}$  des Elektronenstrahls kann mit Hilfe von Gleichung 2.13 berechnet werden. Die darin eingehende Phasenverschiebung durch das elektrische Feld wird analog zu Abschnitt 2.1.2 mit

$$\phi_{\text{el}} = \xi \cdot V_{\text{el}}^{\text{proj}} \quad (2.27)$$

beschrieben. Das Betragsquadrat der inversen Fouriertransformierten von  $\psi_{\text{out}}$  ergibt schließlich die Intensitätsverteilung des Elektronenstrahls in der Detektorebene (siehe Gleichung 2.11). Für ein konstantes elektrisches Feld  $E_1$  ergibt sich ein, um den Vektor  $\vec{k}$  nach links verschobenes Beugungsscheibchen mit einer homogenen Intensitätsverteilung (siehe Abbildung 2.8 unten). Anders formuliert: Der konstante Potentialgradient bewirkt eine Ablenkung des Elektronenstrahls um den Winkel  $\beta$ , ohne dabei Einfluss auf die innere Struktur des Beugungsscheibchens zu nehmen. Die Beschreibung der Verschiebung des Beugungsscheibchens beziehungsweise die Angabe von Positionen in der Detektorebene erfolgt im weiteren Verlauf dieser Arbeit über den Vektor  $\vec{k}$ , welcher auf den (Ortsraum-)Koordinaten  $k_x$  und  $k_y$  basiert (in der Einheit Meter). Die Umrechnung zwischen Orts- und Impulsraum-Koordinaten in der Detektorebene, also zwischen  $p_{x,y} [\frac{J\text{s}}{m}]$  und  $k_{x,y} [m]$  findet sich in Abschnitt 3.2.2.



**Abb. 2.9:** Simulation der Wechselwirkung zwischen der Elektronensonde und drei unterschiedlichen homogenen Potentialgradienten. In **a** sind die Querschnitte der unterschiedlichen Potentiale und der Elektronensonde gezeigt. In **b** sind entsprechend die resultierenden Querschnitte der verschobenen Beugungsscheibchen in der Detektorebene gezeigt. Potential und resultierendes Beugungsscheibchen sind jeweils in derselben Farbe dargestellt. Es zeigt sich, dass Richtung und Stärke der Verschiebung direkt proportional zu Stärke und Vorzeichen des jeweiligen Potentials sind.

In Abbildung 2.9b sind Querschnitte der Potentiale und der Elektronensonde sowie der resultierenden Beugungsscheibchen entlang der  $x$ - beziehungsweise  $k_x$ -Richtung in der Proben- und Detektorebene gezeigt. Der blaue Potentialverlauf  $V_1$  entspricht dabei obiger Messsituation. Der Querschnitt des Beugungsscheibchens in der Detektorebene macht erneut deutlich, dass es lediglich zu einer Verschiebung des Scheibchenmittelpunktes nach  $k_{x1}$ , nicht aber zu einer Intensitätsumverteilung gekommen ist. In Abbildung 2.9a und b sind Simulationsergebnisse für weitere, von  $V_1$  abweichende, Potentiale gezeigt (siehe Abbildung 2.8a). Ein elektrisches Feld mit der Feldstärke  $E_2 = 3 \cdot E_1$  (grüne Kurve) beziehungsweise dem dreifachen Potential  $V_2 = 3V_1$ , führt zu einer Verschiebung des Beugungsscheibchens um  $|\vec{k}| = k_{x2} = 3k_{x1}$ . Ein Potentialverlauf  $V_3 = (-3)V_1 + 3$  (orange Kurve), welcher in die entgegengesetzte Richtung zeigt, ergibt eine Verschiebung um die gleiche Strecke, aber in entgegengesetzter Richtung nach  $|\vec{k}| = k_{x3} = -k_{x2}$ .

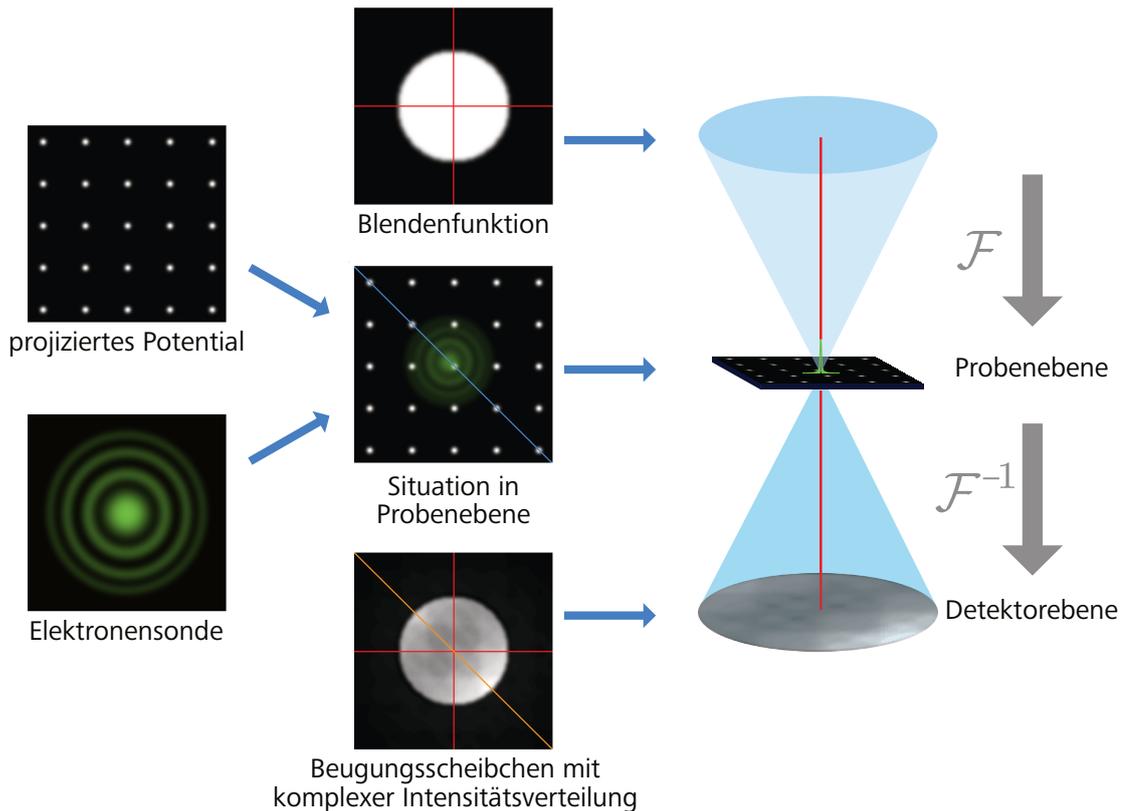
Zusammenfassend zeigt sich, dass für homogene Potentiale die Verschiebung des Beugungsscheibchens linear mit der Feldstärke, beziehungsweise dem Potentialgradienten, skaliert und es zu keiner Intensitätsumverteilung im Inneren des Beugungsscheibchens kommt. Die Simulationsergebnisse stehen somit im Einklang mit der im vorigen Abschnitt beschriebenen Theorie, welche die Ablenkung des Elektronenstrahls durch elektrostatische Potentiale beschreibt. In Bezug auf reale Messungen zeigen diese Simulationsergebnisse auf, dass eine Messung der Position beziehungsweise der Verschiebung des Zentrums des Beugungsscheibchens genügt, um die Stärke von elektrischen Feldern im Inneren einer Probe (mit bekannter Dicke) zu bestimmen (siehe Abschnitt 3.1). Dies trifft natürlich auch für Proben mit homogenen magnetischen Feldern zu.

### 2.2.3 Einfluss inhomogener Probenpotentiale auf den Elektronenstrahl

Mit der gleichen Simulationsmethode (siehe oben) wird nun dargelegt, welche Einflüsse stark inhomogene Potentialverläufe auf den Elektronenstrahl und somit auf die Intensitätsverteilung in der Detektorebene haben. Reale Messsituationen, bei denen dies der Fall ist, sind zum Beispiel Messungen atomarer elektrischer Feldverteilungen, wie die von K. Müller-Casparly gezeigten Messungen an Strontiumtitanat [25] (siehe auch Abschnitt 6.2) oder Untersuchungen einer geladenen Domänenwand in dotiertem Bismut-Ferrit von I. MacLaren [74]. Als weitere Quellen sind zum Beispiel die Arbeiten auf dem Gebiet atomar aufgelöster Phasenkontrastmessungen von N. Shibata [24, 75] und R. Ishikawa [76] zu nennen.

Die als Modellsystem für die nachfolgende Simulation dienende zweidimensionale inhomogene Potentialverteilung  $V_{\text{inh}}^{\text{proj}}$  ist in Abbildung 2.10 gezeigt. In Anlehnung an das (projizierte) elektrostatische Potential eines kubischen Atomgitters wurde ein regelmäßiges Gitter, bestehend aus einzelnen schmalen Gauss-Funktionen gleicher Höhe, erzeugt. Schmal bedeutet hier, dass die Halbwertsbreite der Gauss-Kurven circa 20 % der Breite des zentralen Maximums der Elektronensonde entspricht. Auf diese Weise wird ein stark inhomogener Potentialverlauf quer zum Sondenquerschnitt erzeugt (vergleiche Abbildung 2.11a). In diesem Modellsystem repräsentieren die Gauss-förmigen Potentialverteilungen in  $V_{\text{inh}}^{\text{proj}}$  die (positiven) Kernpotentiale einzelner Atome. Der Abstand zwischen den einzelnen Peaks entspricht circa der doppelten Sondengröße. Dieses Modellsystem beschreibt in etwa die Situation einer realen STEM-Messung mit atomarer Auflösung. In Abbildung 2.11a sind die Querschnitte der Elektronensonde und der Potentiallandschaft entlang der in Abbildung 2.10 eingezeichneten blauen Linie gezeigt.

Es wird darauf hingewiesen, dass diese Simulation nicht dem Anspruch einer möglichst realistischen Reproduktion einer echten Messung an einem Atomgitter gerecht werden soll. Vielmehr dient sie dem Zweck, den Einfluss inhomogener Potentiale auf den Elektronenstrahl, beziehungsweise auf das Beugungsscheibchen, zu

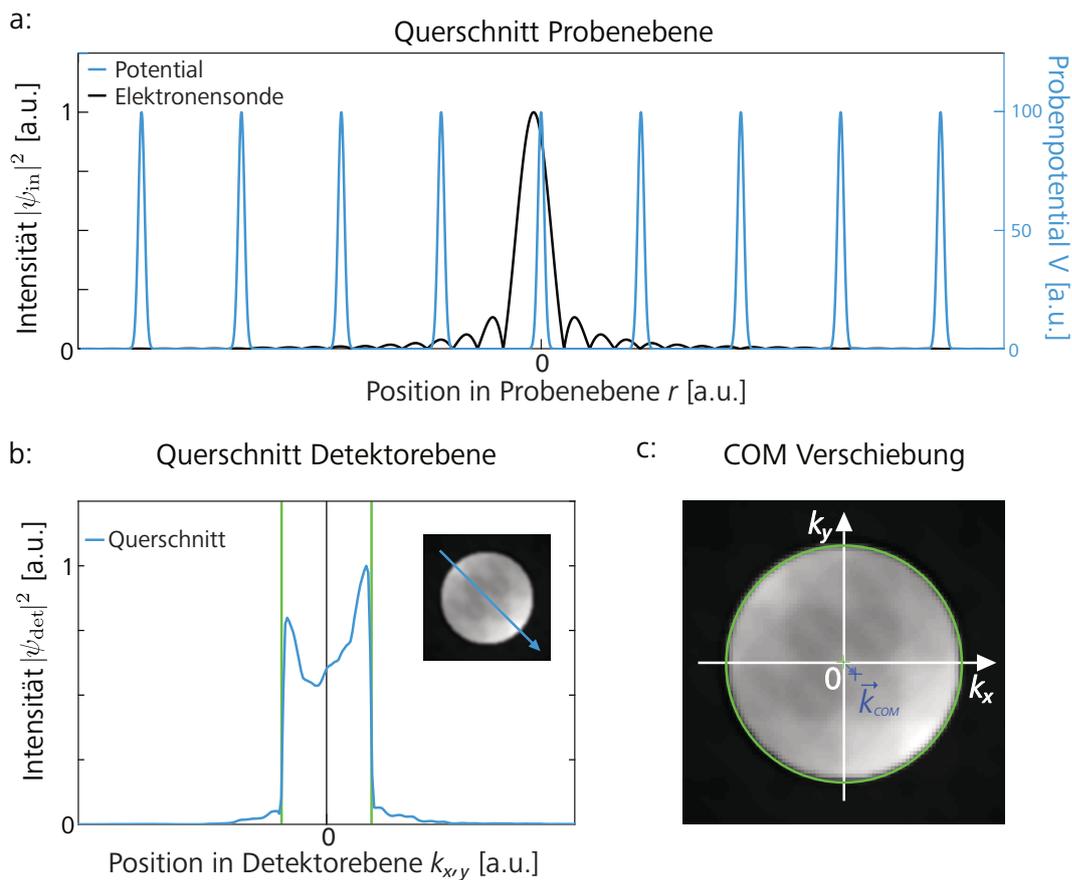


**Abb. 2.10:** Schematische Darstellung der wichtigsten Schritte der Simulation der Wechselwirkung zwischen einem stark inhomogenen Probenpotential  $V_{\text{inh}}^{\text{proj}}$  und dem Elektronenstrahl. Als Modellsystem für ein atomares Gitter dient ein Raster aus schmalen Gauss-Verteilungen. Für diese Situation ergibt sich anstatt einer Verschiebung des Beugungsscheibchens eine komplexe Umverteilung der Intensität in dessen Inneren. Die Position des Scheibchens bleibt dabei (nahezu) unverändert. Es verlagert sich hauptsächlich der Intensitätsschwerpunkt. (Abbildung in Anlehnung an [67])

beschreiben. Das gewählte Modellsystem bietet dafür eine einfache und anschauliche Diskussionsgrundlage. Im Folgenden werden, trotz des Modellcharakters der Potentialverteilung, die Gauss-Peaks als Atomkerne oder Atompotentiale bezeichnet.

Einsetzen des projizierten Potentials  $V_{\text{inh}}^{\text{proj}}$  in Gleichung 2.27 ergibt die ortsabhängige Phasenverschiebung  $\phi_{\text{el}}$ . Zur Vermeidung einer symmetrischen Messsituation wurde die Elektronensonde links über dem mittleren Atompotential positioniert (vergleiche Abbildung 2.10 Mitte). Für diese Situation kann analog zu Abschnitt 2.2.2 die Austrittswellenfunktion und durch anschließende Fouriertransformation von  $\psi_{\text{out}}$  die Intensitätsverteilung in der Detektorebene berechnet werden. Das resultierende Beugungsscheibchen ist in den Abbildungen 2.10 (unten) und 2.11c gezeigt.

Im Vergleich zum Fall homogener Potentiale zeigen sich bereits auf den ersten Blick signifikante Unterschiede. Die Simulation ergibt nun eine Umverteilung der Intensität aus der Mitte des Beugungsscheibchens nach links oben beziehungsweise



**Abb. 2.11:** Simulation der Wechselwirkung zwischen der Elektronensonde und einem stark inhomogenen periodischen Probenpotential. In **a** ist gut zu erkennen, dass hier die Ausdehnung der Elektronensonde groß gegenüber den einzelnen Peaks der Potentialverteilung ist. In **b** zeigt der Querschnitt, entlang der blau eingezeichneten Richtung, eine Umverteilung von Intensität im Inneren des Beugungsscheibchens, aber keine Verschiebung dessen (Ruhelage grün markiert). Die Lage des Intensitätsschwerpunktes  $\vec{k}_{\text{COM}}$ , sowie die durch einen Kreis-Fit (grün) bestimmte geometrische Mitte des Scheibchens ist in **c** gezeigt.

(hauptsächlich) nach rechts unten an den Rand des Scheibchens. Die Richtung dieser Umverteilung verläuft entlang der, in das Beugungsbild orange eingezeichneten, Diagonale (vergleiche Abbildung 2.10 unten). Deren Richtung entspricht der der blauen Verbindungslinie zwischen Sondenposition und dem Kernpotential, das der Sonde am nächsten liegt (vergleiche Abbildung 2.10 Mitte). Der in Abbildung 2.11b gezeigte Querschnitt des Beugungsscheibchens entlang dieser Richtung zeigt, anstatt eines homogenen Plateaus, eine asymmetrische Verteilung der Intensität zwischen den Flanken des Beugungsscheibchens, wobei der größere Anteil in Richtung des zentralen Kernpotentials (rechte Flanke) umverteilt wurde. Zudem ergibt sich eine Verbreiterung des Beugungsscheibchens. In der Detailansicht in Abbildung 2.11c ist gut zu erkennen, dass es zu keiner erkennbaren Verschiebung der geometrischen Mitte des Scheibchens (grünes Kreuz) kommt. Die geometrische Mitte wurde über die Anpassung eines Kreises (grün) an die Flanken des Beugungsscheibchens

bestimmt. Es ergibt sich eine Verschiebung um

$$\vec{k}_s = \begin{pmatrix} k_x \\ k_y \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} -0.0094 \\ 0.0094 \end{pmatrix} \cdot r_d \quad (2.28)$$

wobei  $\vec{k}_s$  einem Verschiebungsvektor in der Detektorebene und  $r_d$  dem, ebenfalls durch den Fit bestimmten, Scheibchenradius entsprechen. Es ergibt sich für die Länge des Verschiebungsvektor ein Wert von

$$|\vec{k}_s| = 0,013 \cdot r_d \quad (2.29)$$

Die Verschiebung beträgt also lediglich 1,3% der Länge von  $r_d$ . Da der bestimmte Radius mit einem relativen Fehler von 1 % behaftet ist, liegt die berechnete Verschiebung nahe an der Nachweisgrenze. Insgesamt zeigt sich, dass die Verschiebung des Beugungsscheibchens im Vergleich zum Fall homogener Potentialgradienten vernachlässigbar klein ist.

Im Folgenden wird anstatt der geometrischen Mitte des Scheibchens die Position des Schwerpunktes der Intensitätsverteilung betrachtet. Dieser wird, angelehnt an den aus der Mechanik bekannten Massenschwerpunkt, kurz als COM<sup>6</sup> bezeichnet. Die Position des COM  $\vec{k}_{\text{COM}}$  ergibt sich durch Aufsummieren aller Positionen  $\vec{k}_i$  des Beugungsbildes (hier die Positionen der einzelnen Bildpunkte), gewichtet mit den korrespondierenden lokalen Intensitäten  $j_i$  und anschließendem Teilen durch die Gesamtintensität des Beugungsscheibchens  $J_{\text{ges}}$

$$\vec{k}_{\text{COM}} = \frac{\sum_{i=1}^N \vec{k}_i \cdot j_i}{\sum_{i=1}^N j_i} = \frac{1}{J_{\text{ges}}} \sum_{i=1}^N \vec{k}_i \cdot j_i \quad (2.30)$$

Für das simulierte Beugungsscheibchen ergibt sich für die Lage des COM in der  $k_{x,y}$ -Ebene

$$\vec{k}_{\text{COM}} = \begin{pmatrix} k_x \\ k_y \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0,07 \\ -0,07 \end{pmatrix} \cdot r_d \quad (2.31)$$

und für die Länge des Verschiebungsvektors  $\vec{k}_{\text{COM}}$  ein Wert von

$$|\vec{k}_{\text{COM}}| = 0,11 \cdot r_d \quad (2.32)$$

Es zeigt sich eine signifikante Verschiebung des COM um circa 11 % des Scheibchenradius nach rechts unten. Die COM-Position ist in Abbildung 2.11c eingezeichnet.

Zusammengefasst zeigt die Simulation, dass die Wechselwirkung des Elektronenstrahls mit stark inhomogenen Potentialen hauptsächlich die Lage des COM beeinflusst, nicht aber eine Verschiebung des Beugungsscheibchens an sich bewirkt. Ähnliche Ergebnisse ergeben sich auch bei realen Messungen an atomaren

---

<sup>6</sup>engl. centre of mass

Feldverteilungen [25]. Es ist offensichtlich, dass hier eine einfache Messung der Verschiebung des Beugungsscheibchens nicht genügt, um Rückschlüsse über die Potentiallandschaft und damit über die lokalen Feldstärken in der Probe zu ziehen. Vielmehr wird eine Theorie benötigt (siehe Abschnitt 3.2), welche es erlaubt die Verschiebung des COM mit der Feldstärke in der Probe zu korrelieren. Zudem werden Detektoren benötigt, welche es erlauben die COM-Position zu detektieren.



# 3 Bestehende DPC-Messverfahren

In diesem Kapitel werden zwei unterschiedliche Messverfahren vorgestellt, welche in der aktuellen Forschung zur Abbildung und Vermessung von elektrischen und magnetischen Feldverteilungen verwendet werden. Dabei handelt es sich zum einen um die konventionelle Differentielle Phasenkontrastmikroskopie mit segmentierten Ringdetektoren und zum anderen um die impuls aufgelöste Rastertransmissionselektronenmikroskopie mit schnellen CCD- oder CMOS-Kameras.

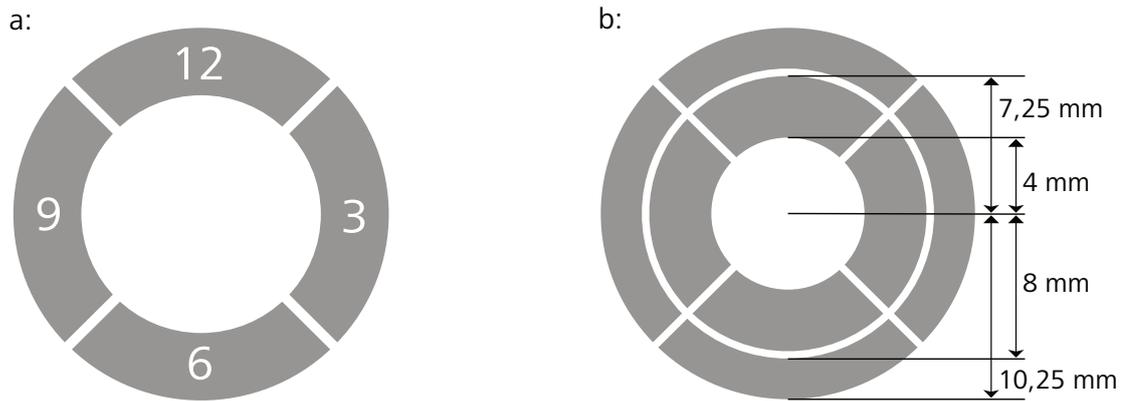
Im Zuge dieser Arbeit (und der vorangegangenen Masterarbeit) wurden neben der Entwicklung des PSD-Setups, auch Untersuchungen zur Leistungsfähigkeit von konventionellen DPC-Systemen durchgeführt. Dabei wurden neue Erkenntnisse über die Stärken und Schwächen dieser Messtechnik gewonnen. Diese Ergebnisse sind auch im Zuge der Entwicklung des neuen Detektors hilfreich. So dienen sie als Vergleichsbasis zur Einordnung seiner Empfindlichkeit. Außerdem zeigen sie auf, welche Eigenschaften der neue Detektor haben soll, um DPC-Messungen damit einfacher und weniger fehleranfällig zu gestalten. Deshalb wird in diesem Kapitel den Ausführungen zur Funktion und Leitungsfähigkeit von cDPC mehr Raum eingeräumt, als den Erläuterungen zu der Funktionsweise von moreSTEM-Messungen. Die Ergebnisse dieser Untersuchung wurden in [70] veröffentlicht.

## 3.1 Konventionelle Differentielle Phasenkontrastmikroskopie

Die konventionelle Differentielle Phasenkontrastmikroskopie in einem STEM beruht auf der Messung der Verschiebung (nahezu) homogener Beugungsscheibchen durch elektrische oder magnetische Felder in der untersuchten Probe. DPC bietet gegenüber anderen Verfahren zur Abbildung und Analyse von Feldverteilungen diverse Vorteile. Im Gegensatz zur sogenannten Lorentzmikroskopie (kurz LTEM<sup>1</sup>), welche auch zur Abbildung magnetischer Feldverteilungen genutzt wird (siehe [14, 15, 53]), handelt es sich bei DPC um eine *in-Fokus*-Messmethode. Um Feldkontrast zu erzielen, muss nicht wie bei LTEM-Messungen defokussiert werden. Dies hat den großen Vorteil eines größeren lateralen Auflösungsvermögens.

---

<sup>1</sup>engl. Lorentz transmission electron microscopy



**Abb. 3.1:** **a** zeigt eine schematische Darstellung des segmentierten DPC-Ringdetektors nach J. N. Chapman [77]. Die Segmente sind nach den entsprechenden Ziffern auf der Uhr benannt. In **b** ist eine bemaßte Skizze des in dieser Arbeit verwendeten DPC-Detektors gezeigt. Er besteht aus zwei konzentrisch angeordneten Ringdetektoren. (Abbildung nach [22])

Gegenüber der Elektronenholographie (siehe [52, 53, 69]) hat DPC den Vorteil der relativ freien Wahl der zu untersuchenden Probenstelle. So ist DPC einzig auf eine elektronentransparente Probenstelle, welche im besten Fall eine homogene Dicke von unter 50 nm aufweist, angewiesen. Bei der Elektronenholographie muss hingegen darauf geachtet werden, dass sich die zu untersuchende Stelle nahe einer Probenkante befindet. Nur so kann sichergestellt werden, dass die zur Aufnahme eines Hologramms benötigte Vakuum-Referenzwelle verfügbar ist.

Nachfolgend werden die Grundlagen von cDPC erläutert. Dabei wird zunächst auf den zur Messung verwendeten positionsempfindlichen Detektor eingegangen und anschließend die Signalverarbeitung und Bildentstehung beschrieben.

### 3.1.1 DPC-Detektor

Zur Aufnahme von DPC-Messungen wird ein Detektor benötigt, welcher in der Lage ist die Verschiebung homogener Beugungsscheibchen zu messen. Typischerweise werden dafür segmentierte Halbleiterdetektoren verwendet, welche sich unter dem Leuchtschirm in der Detektorebene des Mikroskops befinden (siehe Abbildung 2.1). Die Form und Anordnung der einzelnen Segmente haben dabei einen großen Einfluss auf das Signal-Rausch-Verhältnis (kurz SNR<sup>2</sup>) und die Empfindlichkeit der Messung [14, 22, 70]. Neben anderen Detektorgeometrien (vergleiche [2, 3, 78, 79]) hat sich der von J. N. Chapman entwickelte ringförmige Vier-Quadranten-Detektor (siehe Abbildung 3.1a) in aktuellen DPC-Systemen durchgesetzt [77]. Im Vergleich zu anderen Detektorlayouts bietet dieser ein besseres SNR des segmentierten Ringdetektors. Ein Vergleich der Signalgüte verschiedener DPC-Detektoren findet sich in der Dissertation von T. Uhlig [14]. Wie in Abbildung 3.1a gezeigt, werden in dieser Arbeit die einzelnen Ringsegmente nach den ihrer Position entsprechenden Zahlen eines

<sup>2</sup>engl. **signal to noise ratio**

Zifferblatts mit 3, 6, 9 und 12 bezeichnet. Abbildung 3.1b zeigt den in dieser Arbeit verwendeten Detektor, welcher aus zwei konzentrisch angeordneten Ringdetektoren besteht (Bemaßung ist der Abbildung zu entnehmen). Dieses Detektorlayout erlaubt es dem Anwender bei einer DPC-Messung frei zwischen den beiden Ringen zu wählen. Zudem ist es möglich alle acht Segmente gleichzeitig auszulesen. Der Vorteil dieses Detektors besteht in der erhöhten experimentellen Flexibilität bei der Wahl der Größe des Beugungsscheibchens und somit auch bei der Wahl der Kameralänge und der C2-Blende. Da gezeigt wurde, dass die Größe des Beugungsscheibchens in Relation zur Detektorgeometrie einen erheblichen Einfluss auf die Empfindlichkeit einer cDPC-Messung hat (siehe Abschnitt 3.1.3) [16, 22, 70], bietet dieses Layout mit der Wahl des Ringes einen weiteren experimentellen Freiheitsgrad bei der Kontrastoptimierung.

Die Segmente bestehen im Wesentlichen aus, in Sperrrichtung vorgespannten, flächigen pin-Dioden. Werden diese mit dem Elektronenstrahl beleuchtet, liefern sie jeweils einen Fotostrom, welcher proportional zu Bestrahlungsintensität und bestrahlter Detektorfläche ist. Diese Ströme werden anschließend mit Transimpedanzverstärkern der Firma KE-Developments Ltd. (Datenblatt: [80]) in proportionale Spannungen gewandelt. Diese Spannungssignale werden mit schnellen Analog-Digital-Konvertern (kurz ADC<sup>3</sup>) – mit einer maximalen Wandlungsrate von 5 MHz – digitalisiert. Der Dynamikumfang der ADCs beträgt dabei 15 bit (32768 Signalabstufungen) in einem Spannungsbereich von 0 bis 15 Volt. Dies ergibt eine minimal messbare Spannungsänderung von 0,46 mV.

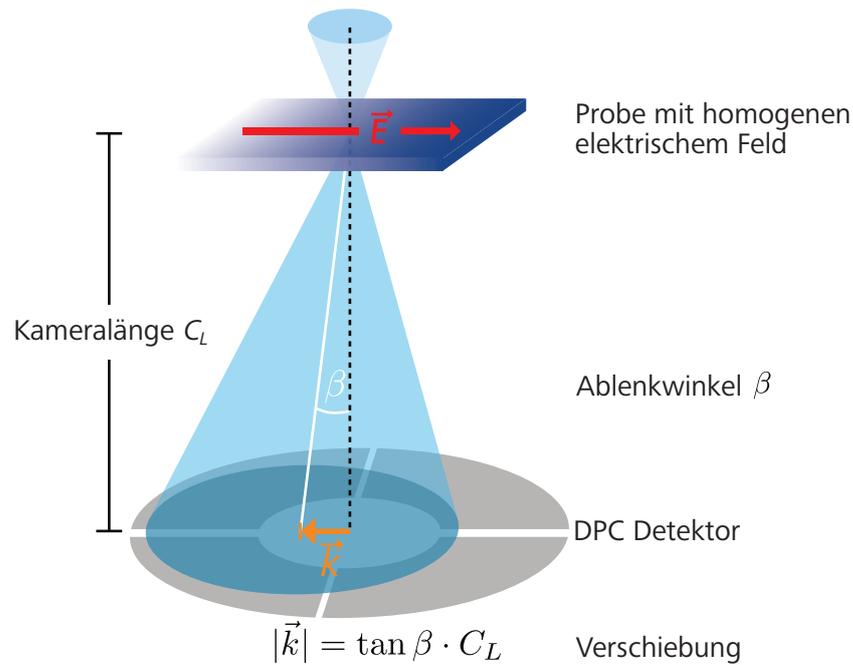
### 3.1.2 Kontrastentstehung

Folgende Erläuterungen beziehen sich auf Messungen, bei denen es zu einer Verschiebung eines homogenen Beugungsscheibchens kommt. Als Beispiel zur Erklärung der Kontrastentstehung dient eine hypothetische Probe, welche auf ihrer gesamten Dicke  $t$  von einem homogenen elektrischen Feld  $E(x)$  in negativer  $x$ -Richtung durchsetzt ist. Abbildung 3.2 zeigt, dass der auslaufende divergente Strahl um den Winkel  $\beta_{el}$ , ebenfalls in negative  $k_x$ -Richtung, verkippt wird. Diese Ablenkung führt zu einer Verschiebung  $\vec{k}$  des Beugungsscheibchens auf dem ringförmigen DPC-Detektor, welcher sich im Abstand  $C_L$  (Kameralänge) unterhalb der Probe befindet. Die Länge des Verschiebungsvektors  $\vec{k}$  lässt sich mit

$$|\vec{k}| = \tan \beta_{el} \cdot C_L \approx \beta_{el} \cdot C_L \quad (3.1)$$

in Abhängigkeit von  $\beta_{el}$  und  $C_L$  berechnen. Die Kleinwinkelnäherung ist gerechtfertigt, da sich die Ablenkwinkel im Mikro- bis Milliradianbereich bewegen [14, 22, 72]. Durch Einsetzen in Gleichung 2.20 und Auflösen nach  $|\vec{k}|$  ergibt sich schließlich die Beziehung zwischen der Verschiebung des Beugungsscheibchens und der

<sup>3</sup>engl. analog to digital converter



**Abb. 3.2:** Skizze zur Beschreibung der Abhängigkeit zwischen der Verschiebung  $\vec{k}$ , dem Ablenkwinkel  $\beta$  und der Kameralänge  $C_L$ . Die Ablenkung des Elektronenstrahls durch das homogene elektrische Feld in der Probe führt zu einer Verschiebung  $\vec{k}$  des Beugungsscheibchens auf dem DPC-Detektor. (Abbildung frei nach [22])

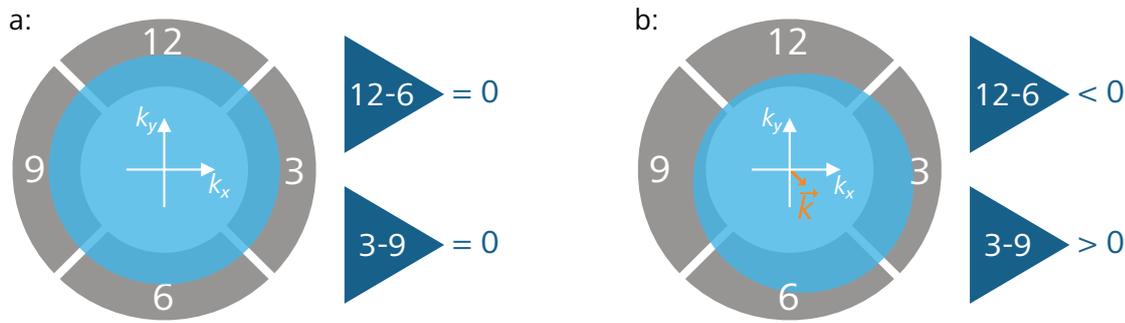
elektrischen Feldstärke  $|\vec{E}(x, y)|$  am untersuchten Probenort  $P_{x,y}$ :

$$|\vec{k}^{\text{el}}| = \frac{1}{p_0} \cdot \frac{2\pi e}{h v_{\text{rel}}} \cdot |\vec{E}(P_{x,y})| \cdot t \cdot C_L \quad (3.2)$$

Analog zu dieser Herleitung ergibt sich für Proben mit einer intrinsischen magnetischen Feldverteilung durch Einsetzen von Gleichung 3.1 in Gleichung 2.26 (Definition des Lorentzwinkels) der Zusammenhang:

$$|\vec{k}^{\text{mag}}| = -\frac{1}{p_0} \cdot \frac{2\pi e}{h} \cdot |\vec{B}(P_{x,y})| \cdot t \cdot C_L \quad (3.3)$$

Es zeigt sich also, dass  $|\vec{k}|$  direkt proportional zu Feldstärke, Probendicke  $t$  und Kameralänge  $C_L$  ist. Da wiederum das Signal einer cDPC-Messung direkt proportional zu der Verschiebung des Beugungsscheibchens auf dem Detektor ist, lassen sich Rückschlüsse über Feldstärke und Richtung am jeweiligen Probenort ziehen. Für Proben bei denen sich kleine Ablenkwinkel  $\beta$  ergeben, da sie zum Beispiel eine geringere Dicke und/oder geringere Feldstärke aufweisen, kann es auf Grund der Proportionalität zwischen  $C_L$  und  $|\vec{k}|$  hilfreich sein, die Messung mit größeren Kameralängen durchzuführen. Auf diese Weise ergeben sich auch für kleine Ablenkwinkel größere Verschiebungen auf dem Detektor. Die Funktionsweise einer cDPC-Messung mit einem segmentierten Ringdetektor wird in Abbildung 3.3 veranschaulicht. Teilabbildung a zeigt einen DPC-Detektor dessen Segmente gleichmäßig



**Abb. 3.3:** Schematische Darstellung der Positionsmessung eines homogenen Beugungsscheibchens mit einem ringförmigen DPC-Detektor. Die Signaldifferenzen einander gegenüberliegender Segmente definieren ein orthogonales Koordinatensystem, welches die Messung der Position des Beugungsscheibchens (blau) ermöglicht. Für ein auf dem Detektor zentriertes Scheibchen (a) sind beide Signaldifferenzen gleich null. Für eine Verschiebung in Richtung der Segmente 3 und 6, ergibt sich eine negative Signaldifferenz in  $k_y$ -Richtung und eine positive in  $k_x$ -Richtung. (Abbildung nach [22])

von einem Beugungsscheibchen homogener Intensität überdeckt sind.

Die (relative) Position des Scheibchens auf dem Detektor entspricht dabei den Differenzen der Signale gegenüberliegender Ringsegmente. Entsprechend der verwendeten Nomenklatur ergeben sich somit die Signaldifferenzen  $S_{3-9}$  und  $S_{12-6}$  wie folgt:

$$S_{3-9} = S_3 - S_9 \quad (3.4)$$

$$S_{12-6} = S_{12} - S_6 \quad (3.5)$$

Es wird ein orthogonales Koordinatensystem definiert (siehe Abbildung 3.3) dessen  $k_x$ - und  $k_y$ -Achse durch die Differenzen der Signale  $S_3$  und  $S_9$  sowie  $S_{12}$  und  $S_6$  aufgespannt werden. Für die in Abbildung 3.3a gezeigte Situation eines zentrierten Beugungsscheibchens sind beide Signaldifferenzen gleich Null. Wird nun das Beugungsscheibchen um den Vektor  $\vec{k}$  – in Richtung der Segmente 3 und 6 – verschoben ergibt sich für  $S_{3-9}$  eine positive und für  $S_{12-6}$  eine negative Signaldifferenz (vergleiche Abbildung 3.3b).

Bedingt durch Variationen der Probendicke, Dichte oder Materialzusammensetzung an unterschiedlichen Rasterpunkten  $P_{x,y}$  kann es im Verlauf einer realen Messung zu ortsabhängigen Schwankungen der Intensität des Elektronenstrahls kommen. In den Arbeiten [19, 22, 70] wurde gezeigt, dass diese Intensitätsvariationen zu einer Fehlinterpretation der Messergebnisse führen können, da die Differenzsignale von der Intensität beziehungsweise Strahlstromdichte des Beugungsscheibchens beeinflusst werden. Bei ansonsten unveränderten Bedingungen, wie Strahlposition und Strahlgröße, würde beispielsweise eine Verdoppelung der Strahlstromdichte auf dem Detektor zu einer Verdoppelung der Differenzsignale führen. Diese könnte fälschlicherweise als eine Verschiebung des Beugungsscheibchens und somit als eine Feldänderung interpretiert werden. Um dies zu vermeiden, müssen die

Signaldifferenzen mit dem, vom Probenort abhängigen, Summensignal  $S_{\text{SUM}}(P_{x,y})$  der einzelnen Segmente 3, 6, 9 und 12

$$S_{\text{SUM}}(P_{x,y}) = \sum_{\text{seg}} S_{\text{seg}} \quad (3.6)$$

$$= S_3 + S_6 + S_9 + S_{12} \quad (3.7)$$

normiert werden. Es ergeben sich die intensitätsunabhängigen normierten Signaldifferenzen:

$$S_{3-9}^*(P_{x,y}) = \frac{S_{3-9}}{S_{\text{SUM}}} \quad (3.8)$$

$$S_{12-6}^*(P_{x,y}) = \frac{S_{12-6}}{S_{\text{SUM}}} \quad (3.9)$$

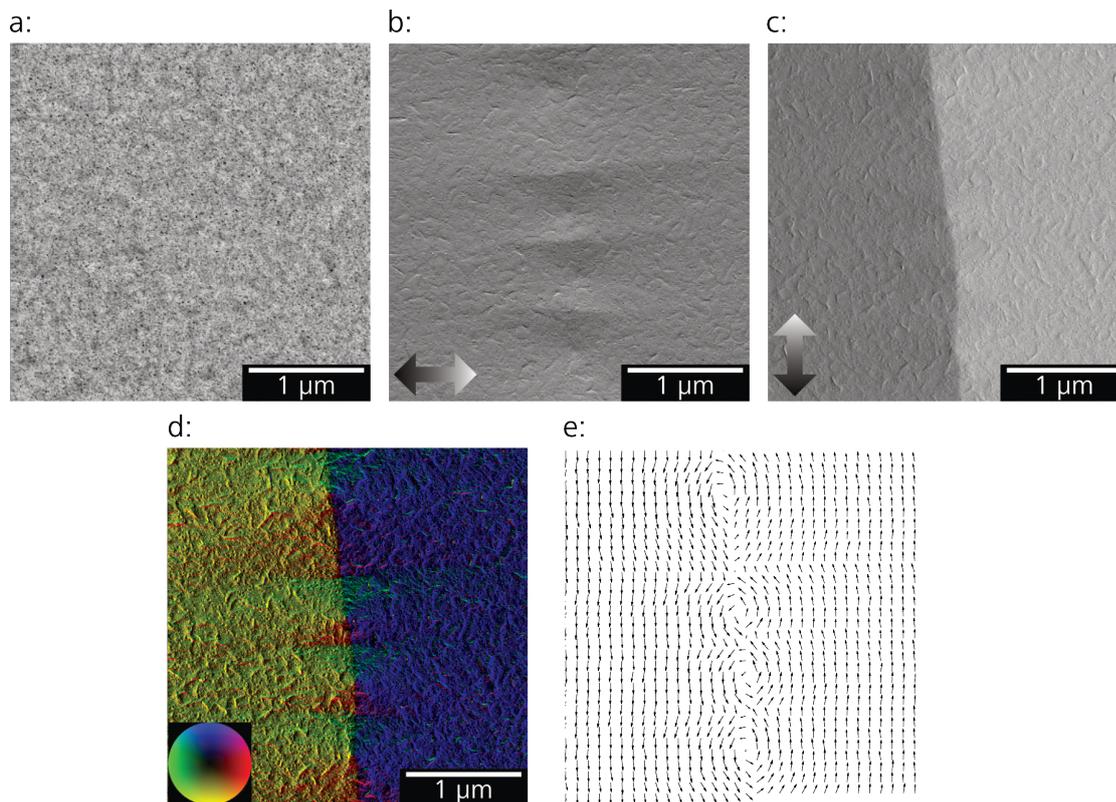
Für kleine Verschiebungen und homogene Beugungsscheibchen ist  $S_{\text{SUM}}(P_{x,y})$  ein Maß für die Variation der Strahlstromdichte in der Detektorebene im Verlauf einer Messung und liefert somit ähnliche Bildkontraste wie ein BF-STEM-Detektor. Kleine Verschiebungen des Beugungsscheibchens führen zu keiner Änderung des Summensignals, da sich Signalunterschiede gegenüberliegender Detektorsegmente gegenseitig kompensieren. [19, 70]

Typischerweise wird das Signal einer cDPC-Messung mit dem von  $P_{x,y}$  abhängigen DPC-Signalvektor  $\vec{S}_{\text{DPC}}$

$$\vec{S}_{\text{DPC}}(P_{x,y}) = \begin{pmatrix} S_{3-9}^* \\ S_{12-6}^* \end{pmatrix} \quad (3.10)$$

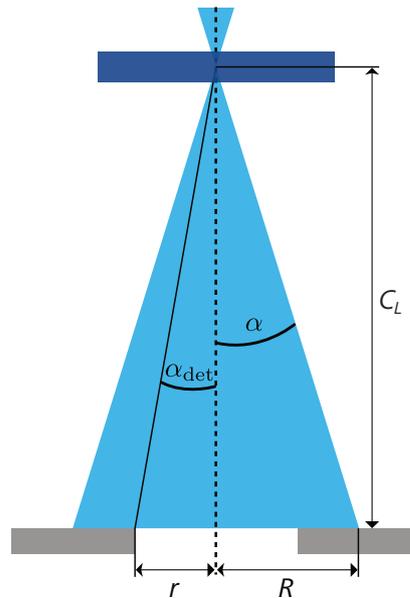
beschrieben. Als Ergebnis einer cDPC-Messung ergibt sich ein zweidimensionales Vektorfeld, welches Informationen über Stärke und Richtung der Feldverteilung im untersuchten Probenbereich enthält. Zur qualitativen Darstellung dieses Vektorfelds wird jedem Signalvektor ein Bildpunkt zugeordnet, wobei dessen Helligkeit und Farbe durch Länge und Richtung des jeweiligen DPC-Signalvektors festgelegt werden.

Als Beispiel für die Auswertung und Darstellung von cDPC-Datensätzen dient die in Abbildung 3.4 gezeigte Messung an einer magnetischen Dömanenwand mit einer sogenannten Stacheldraht-Struktur. Bei der untersuchten Probe handelt es sich um eine polykristalline Cobalt-Dünnschicht. Die hier gezeigte Messung wird in Abschnitt 6.1.4 mit den Ergebnissen einer PSD-Messung an derselben magnetischen Struktur verglichen. Für weitere Informationen über die verwendete Probe wird auf Abschnitt 6.1.4 verwiesen. In Abbildung 3.4a ist das Summensignal der DPC-Messung gezeigt. Der Bildkontrast des Summensignals ist mit dem eines BF-STEM-Detektors vergleichbar und liefert Informationen über die strukturelle Beschaffenheit der Probe, nicht aber über die magnetische Feldverteilung. Es zeigt sich eine homogene Verteilung der einzelnen Cobaltkristallite im untersuchten Probenbereich.



**Abb. 3.4:** Ergebnis einer cDPC-Messung an einer magnetischen Domanenwand mit einer Stacheldraht-Struktur in einer dünnen polykristallinen Cobaltprobe. In **a** ist das Summensignal aller vier Segmente gezeigt. Es entspricht annähernd dem BF-Signal eines BF-STEM-Detektors und zeigt deshalb keinen magnetischen Kontrast. In **b** und **c** sind die x- und y-Komponenten der magnetischen Induktion gezeigt. In **d** ist eine farbcodierte Darstellung des gemessenen zweidimensionalen Vektorfeldes der Induktion zu sehen. **e** zeigt die entsprechende Vektorkarte der Induktion.

Bei der Darstellung der Differenzsignale muss, im Falle magnetischer Feldverteilungen, darauf geachtet werden, dass die Ablenkung des Elektronenstrahls und somit auch die Verschiebung des Beugungsscheibchens auf dem Detektor, auf Grund der Lorentzkraft, senkrecht zur magnetischen Induktion steht. In Abbildungen 3.4b und c sind die aus den normierten Differenzsignalen  $S_{12-6}^*$  und  $S_{3-9}^*$  berechneten Richtungskomponenten der magnetischen Induktion gezeigt. Es ist wichtig anzumerken, dass es sich hier um eine unkalibrierte DPC-Messung handelt und somit den Daten lediglich relative Änderungen der Feldstärke, nicht aber absolute Werte zugeordnet werden können. Relative Stärke und Richtung der Felder am jeweiligen Bildpunkt können mit Hilfe der Doppelpfeile abgelesen werden. Dabei entspricht ein mittlerer Grauwert einem zentrierten Beugungsscheibchen, weiß und schwarz repräsentieren eine Ablenkung in positiver beziehungsweise negativer Richtung. In Abbildung 3.4c sind zwei antiparallele Domänen zu erkennen wobei die Magnetisierung der linken (dunkler Bildbereich) nach unten und die der rechten (heller Bildbereich) nach oben zeigt. In Abbildung 3.4b ist hingegen gut die Stacheldraht-Struktur der Domänenwand zu erkennen, welche abwechselnd aus Vortex-/Anti-Vortex Strukturen



**Abb. 3.5:** Skizze zur Veranschaulichung der in den Gleichungen 3.12 und 3.13 vorkommenden Variablen. Hier entspricht  $\alpha$  dem von der C2-Blende anhängenden Konvergenzwinkel des Elektronenstrahls,  $R$  dem Radius des Beugungsscheibchens und  $C_L$  der Kameralänge.  $\alpha_{\text{det}}$  beschreibt den Winkel unter dem das Loch des Detektors (Lochradius  $r$ ) im Abstand  $C_L$  von der Probe vom Elektronenstrahl beleuchtet wird.

besteht. Die zweidimensionale Feldverteilung des magnetischen Feldes ist in den Abbildungen 3.4d und e als farbcodiertes Bild und als Vektorkarte gezeigt. Der in Abbildung 3.4d eingefügte Farbkreis dient der Interpretation der Farbdarstellung. Die Farbe eines Bildpunktes entspricht dabei der Feldrichtung und die Helligkeit der relativen Feldstärke. Die Helligkeit ist proportional zum Betrag der magnetischen Induktion  $|\vec{B}|$ . Die Länge der in der Vektorkarte eingezeichneten Vektoren ist dazu ebenfalls proportional. Besonders die abwechselnde Vortex-/Antivortex-Struktur der Domänenwand ist in der Farb- beziehungsweise Vektordarstellung gut erkennbar.

### 3.1.3 Empfindlichkeit der Messtechnik

Dieser Abschnitt beschäftigt sich mit der Winkel- beziehungsweise Felddauflösung von ringförmigen DPC-Detektoren und den Mikroskopparametern, welche diese beeinflussen. Von besonderem Interesse ist es herauszufinden, welche Mikroskopparameter die Empfindlichkeit von DPC-Messungen beeinflussen. Daraus kann abgeleitet werden, welche experimentellen Bedingungen zu optimalen Messergebnissen im Sinne der erreichbaren Felddauflösung führen. Es wird ein Formalismus vorgestellt, der es erlaubt, die qualitativen DPC-Signale in absolute Werte des Ablenkwinkels, beziehungsweise der elektrischen oder magnetischen Feldstärke, umzurechnen. Abschließend werden die maximal erreichbaren Empfindlichkeiten des in dieser Arbeit verwendeten cDPC-Systems im HM- und LMSTEM-Betrieb vorgestellt.

**Quantifizierung von cDPC-Messungen** Zur Quantifizierung von cDPC-Messungen wird ein Formalismus benötigt, der es ermöglicht, den qualitativen Messsignalen absolute Werte des Ablenkwinkels zuzuordnen. Dem normierten Signalvektor  $\vec{S}_{\text{DPC}}$  kann mit

$$\beta = |\vec{S}_{\text{DPC}}| \cdot \kappa_\beta \quad (3.11)$$

der absolute Wert des Ablenkwinkels  $\beta$  zugeordnet werden (vergleiche Gleichungen 3.10 und 3.5). Das DPC-Signal und  $\beta$  sind dabei über einen sogenannten Kalibrierungsfaktor  $\kappa_\beta$

$$\kappa_\beta = \frac{R^2 - r^2}{R \cdot C_L} \quad (3.12)$$

$$\approx \frac{\alpha^2 - \alpha_{\text{det}}^2(C_L)}{\alpha} \quad (3.13)$$

miteinander verknüpft [22, 70]. In Gleichung 3.12 entsprechen  $r$  und  $R$  den Radius des zentralen Detektorloches sowie des Beugungsscheibchens und  $C_L$  der Kameralänge (vergleiche Abbildung 3.5). Unter Anwendung der Kleinwinkelnäherung lässt sich Gleichung 3.12 in eine Form bringen, in der  $\kappa_\beta$  ausschließlich von dem Konvergenzwinkel  $\alpha \approx \frac{R}{C_L}$  des Elektronenstrahls und dem Halbwinkel  $\alpha_{\text{det}} \approx \frac{r}{C_L}$  abhängt (siehe Abbildung 3.5). Abbildung 3.5 ist unter anderem zu entnehmen, dass  $\alpha_{\text{det}}$  dem Halbwinkel entspricht, unter dem das Loch des DPC-Detektors beleuchtet wird.

Zur Bestimmung der Kalibrierungsfaktoren kann auf unterschiedliche Art verfahren werden. Eine Möglichkeit stellt dabei eine experimentelle Kalibrierung des cDPC-Systems mittels definierter Ablenkungen des Elektronenstrahls dar. Üblicherweise wird dazu in der Probenebene ein definiertes homogenes elektrisches Feld erzeugt (siehe Abschnitt 5.2.1) und die daraus resultierende Verschiebung des Beugungsscheibchens gemessen. Wird dies für verschiedene Feldwerte beziehungsweise Ablenkwinkel durchgeführt, ist es möglich, den Umrechnungsfaktor zwischen Signalvektor und absoluter Ablenkung zu bestimmen. Auf dieser Vorgehensweise basiert die Bezeichnung von  $\kappa_\beta$  als Kalibrierungsfaktor. Sind für eine bestimmte Messsituation alle zur Bestimmung von  $\kappa_\beta$  benötigten Variablen bekannt, ist auch eine direkte Berechnung möglich (siehe unten). So bietet sich an modernen Mikroskopen (zum Beispiel den STEMs der Titan-Baureihe des Herstellers FEI) die Bestimmung von  $\kappa_\beta$  mittels Gleichung 3.13 an, da an diesen der Konvergenzwinkel  $\alpha$  frei einstellbar und der Winkel  $\alpha_{\text{det}}$  nach einmaliger Vermessung des Ringdetektors bekannt ist. Da sich diese Arbeit nicht mit der Kalibrierung eines konventionellen DPC-Systems beschäftigt, sind nachfolgend nur die formalen Abhängigkeiten des DPC-Signals von Interesse. Für eine umfassende Beschreibung der Kalibrierung wird auf die Quellen [22, 70] verwiesen.

**Quantifizierung von elektrischen und magnetischen Feldern** Die Umrechnungsformeln zur Quantifizierung von elektrischen und magnetischen Feldern ergeben sich durch jeweiliges Einsetzen der in Abschnitt 2.2.1 hergeleiteten Gleichungen 2.19 und 2.26 in Gleichung 3.11. Für elektrische Felder ergibt sich durch Umformen und Auflösen nach  $|\vec{E}|$  der Zusammenhang:

$$|\vec{E}| = \frac{|\vec{S}_{\text{DPC}}|}{t} \cdot \underbrace{\kappa_{\beta} \cdot \frac{h \cdot p_0 \cdot v_{\text{rel}}}{2\pi \cdot e}}_{=\kappa_{\text{el}}} \quad (3.14)$$

Zur Vereinfachung dieser Gleichung wurde ein Kalibrierungsfaktor für elektrische Felder  $\kappa_{\text{el}}$  definiert:

$$\kappa_{\text{el}} := \kappa_{\beta} \cdot \frac{h \cdot p_0 \cdot v_{\text{rel}}}{2\pi \cdot e} = \frac{R^2 - r^2}{R \cdot C_L} \cdot \frac{h \cdot p_0 \cdot v_{\text{rel}}}{2\pi \cdot e} \quad (3.15)$$

$$= \frac{R^2 - r^2}{R \cdot C_L} \cdot \frac{m_{\text{rel}} \cdot v_{\text{rel}}^2}{e} \quad (3.16)$$

Es ist zu beachten, dass die relative Elektronenmasse  $m_{\text{rel}}$  und -geschwindigkeit  $v_{\text{rel}}$  von der Beschleunigungsspannung  $U_b$  des Mikroskops abhängen. Deshalb muss  $\kappa_{\text{el}}$  für jede verwendete Beschleunigungsspannung separat berechnet, beziehungsweise durch eine Kalibrierungsmessungen bestimmt werden. Für die letzte Umformung (Gleichung 3.16) wurden die Zusammenhänge  $p_0 = \frac{2\pi}{\lambda}$  und  $h = \lambda \cdot m_{\text{rel}} \cdot v_{\text{rel}}$  verwendet. [70]

Durch Einsetzen von Gleichung 2.26 in 3.11 und einer zur Herleitung von Gleichung 3.14 analogen Vorgehensweise, ergeben sich die Umrechnungsformel sowie der normierte Kalibrierungsfaktor  $\kappa_{\text{mag}}$  zur Quantifizierung von DPC-Messungen an magnetischen Feldverteilungen [70]:

$$|\vec{B}| = \frac{|\vec{S}_{\text{DPC}}|}{t} \cdot \underbrace{\kappa_{\beta} \cdot \frac{h \cdot p_0}{2\pi \cdot e}}_{=\kappa_{\text{mag}}} \quad (3.17)$$

$$\kappa_{\text{mag}} := \kappa_{\beta} \cdot \frac{h \cdot p_0}{2\pi \cdot e} = \frac{R^2 - r^2}{R \cdot C} \cdot \frac{m_{\text{rel}} \cdot v_{\text{rel}}}{e} \quad (3.18)$$

Die Umrechnungsformeln ermöglichen es, den normierten (qualitativen) Messsignalen absolute Werte des Ablenkwinkels beziehungsweise der Feldstärke im Probeninneren zuzuordnen [19, 22, 70]. Diese lassen sich für eine bestimmte Beschleunigungsspannung durch Multiplikation mit konstanten Werten einfach in  $\kappa_{\beta}$  und  $\kappa_{\text{mag}}$  umrechnen (siehe Gleichungen 3.12, 3.16 und 3.18). Zwischen  $\kappa_{\text{el}}$  und  $\kappa_{\text{mag}}$  besteht die folgende Abhängigkeit:

$$\frac{\kappa_{\text{el}}}{\kappa_{\text{mag}}} = \frac{\kappa_{\beta} \cdot \frac{m_{\text{rel}} \cdot v_{\text{rel}}^2}{e}}{\kappa_{\beta} \cdot \frac{m_{\text{rel}} \cdot v_{\text{rel}}}{e}} = v_{\text{rel}} \quad (3.19)$$

Da sich  $\kappa_{el}$  und  $\kappa_{mag}$  nur durch – für eine bestimmte Beschleunigungsspannung – konstante Faktoren von  $\kappa_{\beta}$  unterscheiden, werden alle nachfolgenden Betrachtungen zur Empfindlichkeit von cDPC-Messungen anhand der Definition von  $\kappa_{\beta}$  diskutiert.

**Empfindlichkeit** Die Empfindlichkeit  $\chi$  von cDPC-Messungen lässt sich wie folgt definieren:

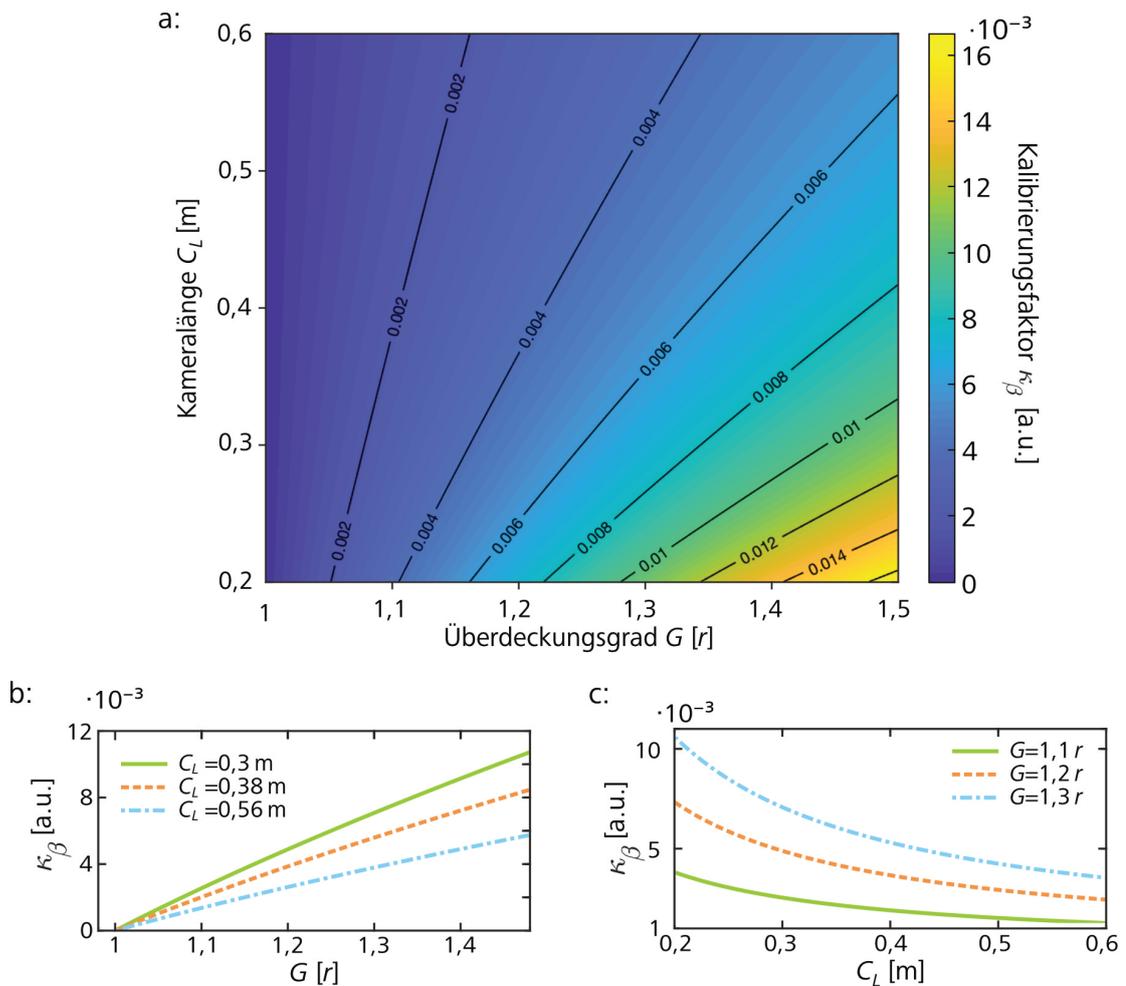
$$\chi := \beta_{\min} = |\tilde{S}_{DPC}^{\min}| \cdot \kappa_{\beta} \quad (3.20)$$

Es zeigt sich also, dass  $\chi$  dem minimal messbaren Ablenkwinkel  $\beta_{\min}$  entspricht, welcher direkt proportional zu  $\kappa_{\beta}$  und der kleinsten unterscheidbaren Variation  $\tilde{S}_{DPC}^{\min}$  des cDPC-Signals ist. Analog zu den Ausführungen in [22, 70] wird festgelegt, dass zwei Messwerte als voneinander getrennt gelten, wenn sich diese um mindestens den zweifachen Standardfehler  $SE$

$$\tilde{S}_{DPC}^{\min} \geq 2 \cdot SE \quad (3.21)$$

der Messung unterscheiden. Auf diese Weise wird sichergestellt, dass sich die Fehlerbereiche zweier Messpunkte nicht überschneiden. Typischerweise wird  $SE$  für eine bestimmte Messsituation experimentell bestimmt, indem die Position eines stationär auf dem Detektor positionierten Beugungsscheibchens mehrfach gemessen wird. Aus der Variation der Messwerte lässt sich der korrespondierende Wert von  $SE$  berechnen. Eine weiterführende Beschreibung über die Auswirkung verschiedener Messparameter auf die Signalstatistik, beziehungsweise den Messfehler von cDPC-Signalen, findet sich in [72]. Aus dieser Quelle geht auch hervor, dass größere Strahlstromdichten in der Detektorebene zu einer besseren Messstatistik führen, was wiederum ein besseres SNR zur Folge hat.

Anhand der Definition von  $\kappa_{\beta}$  (siehe Gleichung 3.11) kann abgeleitet werden, welche experimentellen Parameter einen Einfluss auf die Empfindlichkeit von cDPC-Messungen haben. Es zeigt sich, dass  $\kappa_{\beta}$  von der Kameralänge sowie den Radien des Detektorloches und des Beugungsscheibchens abhängig ist. Wie bereits in Abschnitt 2.1 erwähnt, kann an dem in dieser Arbeit verwendeten STEM, die Kameralänge im HM- sowie im LMSTEM-Betrieb auf verschiedene vordefinierte Werte eingestellt werden. Dabei gilt generell, dass im LMSTEM-Modus um bis zu zwei Größenordnungen längere Kameralängen verfügbar sind als im HMSTEM-Betrieb. Der Radius des Beugungsscheibchens  $R$  in der Detektorebene kann sowohl über die Kameralänge, als auch über die Größe der verwendeten C2-Blende beeinflusst werden. Ein weiterer Parameter, der Einfluss auf die Kalibrierung hat, ist der Radius des inneren Detektorloches  $r$ . Die Verwendung von DPC-Detektoren, bestehend aus mehreren konzentrisch angeordneten segmentierten Ringen (siehe Abbildung 3.1b), erlaubt einen experimentellen Zugang zu dieser Variable.



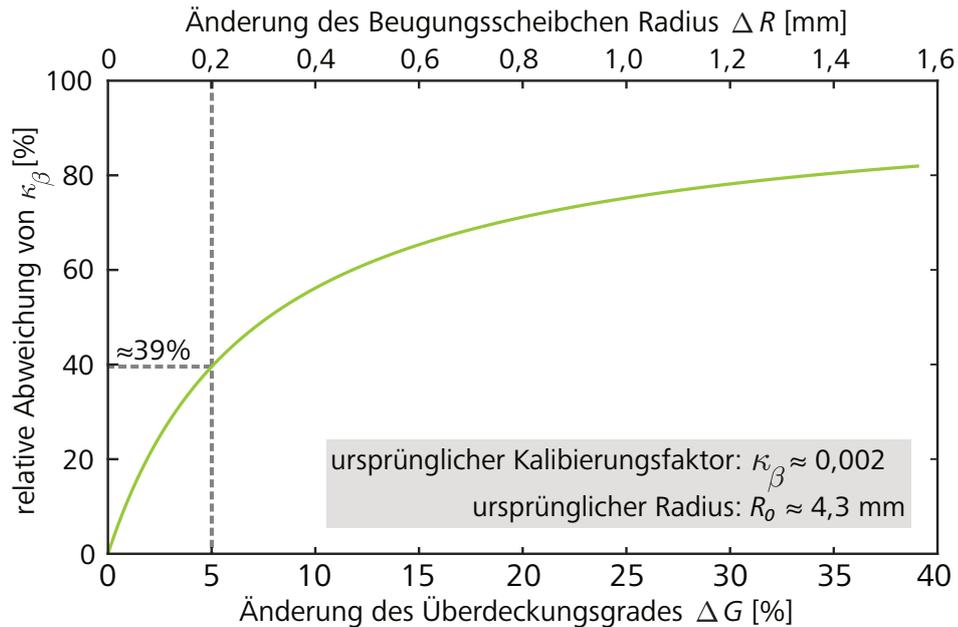
**Abb. 3.6:** Graphische Auswertung von Gleichung 3.11 für typische Wertebereiche der Variablen  $R$  und  $C_L$  im HMSTEM-Betrieb. Der Kontur-Plot in **a** zeigt die Abhängigkeit von  $\kappa_\beta$  von  $C_L$  und dem Überdeckungsgrad  $G = \frac{R}{r}$ . Es zeigt sich, dass sich für  $\kappa_\beta$  bessere (kleinere) Werte mit steigender Kameralänge und kleiner werdendem Überdeckungsgrad ergeben. Zur Anschaulichkeit sind in **b** und **c** jeweils drei Schnitte entlang unterschiedlicher konstanter Werte von  $C_L$  und  $G$  gezeigt.

Um entscheiden zu können, welche dieser Parameterkombinationen bessere Ergebnisse im Sinne der Winkel- beziehungsweise Felddauflösung liefern, können die jeweiligen Kalibrierungsfaktoren  $\kappa_\beta$  als Richtgröße verwendet werden. Ein Kriterium für höhere Empfindlichkeiten lässt sich anhand von Gleichung 3.11 ableiten. Für eine hypothetische Messsituation, in welcher der Elektronenstrahl durch die Probe um einen bestimmten Winkel  $\beta$  abgelenkt wird, würden größere Werte von  $\kappa_\beta$  zu kleineren Signalen führen und umgekehrt. Somit liefern Parameterkombinationen, die kleinere Werte von  $\kappa_\beta$  zur Folge haben – für eine gegebene Ablenkung des Elektronenstrahls – größere Messsignale.

Zur Veranschaulichung des Einflusses unterschiedlicher Messbedingungen auf die Kalibrierung des DPC-Systems (hier unterschiedliche Kameralängen und Radien des Beugungsscheibchens) wurde Gleichung 3.11 in Abhängigkeit von  $R$  und  $C_L$  ausgewertet (siehe Abbildung 3.6). Es wurden für  $R$  Werte zwischen 0,004 m und 0,006 m,

für  $C_L$  Werte zwischen 0,2 m und 0,6 m und für  $r$  ein Wert von 0,004 m in Gleichung 3.11 eingesetzt. Diese wurden ausgewählt, da sie einen typischen Wertebereich für cDPC-Messungen im HMSTEM-Modus mit dem inneren Detektorring abdecken. Das Ergebnis dieser Auswertung ist in Abbildung 3.6a als Konturplot dargestellt. Er zeigt den Verlauf von  $\kappa_\beta$  in Abhängigkeit von  $C_L$  und dem Überdeckungsgrad  $G = \frac{R}{r}$  des DPC-Detektors durch das Beugungsscheibchen. Zur besseren Anschaulichkeit zeigen die Graphen in den Teilabbildungen b und c unterschiedliche Schnitte des Konturplots in Abhängigkeit von  $G$  und  $C_L$  für konstante Werte von  $C_L$  beziehungsweise  $G$ . Mit Hilfe dieser Darstellung und dem oben aufgestellten Kriterium für hohe Empfindlichkeit ist es möglich abzulesen, welche Parameterkombination bessere Messergebnisse im Sinne der Feldauflösung zur Folge haben. So ist auf den ersten Blick eine starke Abhängigkeit zwischen  $\kappa_\beta$  und  $G$  zu erkennen. Für kleinere Werte von  $G$  ergeben sich umso bessere (kleinere) Werte von  $\kappa_\beta$ . Zum Beispiel ergibt sich bei einer Kameralänge von 0,3 m ein Anstieg von  $\kappa_\beta$  um  $\approx 2,5 \cdot 10^{-3}$  Signaleinheiten wenn sich  $G$  um 10 % von  $G = 1,1$  auf  $G = 1,2$  vergrößert (grüne Kurve in Abbildung 3.6b). Dies entspricht einer Änderung des Radius von lediglich  $\Delta R = 0,4$  mm. Bei einer realen Messung würde dies eine Reduktion des DPC-Messsignals um circa die Hälfte zur Folge haben. Des Weiteren zeigt sich für konstante Werte von  $G$ , dass größere Werte von  $C_L$  zu niedrigeren Werten von  $\kappa_\beta$  führen (siehe Abbildung 3.6c). Anhand von Abbildung 3.6 lässt sich also feststellen, dass cDPC-Messungen mit größeren Kameralängen und niedrigeren Überdeckungsgraden zu besseren Ergebnissen führen (Bereich links oben in Abbildung 3.6a). Dabei muss bedacht werden, dass es nicht an jedem Mikroskop möglich ist  $C_L$  und  $G$  unabhängig voneinander einzustellen, und es so nur Zugang zu einer limitierten Anzahl an möglichen Parameterkombination gibt. Dies schränkt cDPC-Messungen auf einige wenige Punkte der gezeigten kontinuierlichen Verteilung ein. Darstellungen der funktionalen Abhängigkeit von  $\kappa_\beta$  eignen sich gut zur Optimierung von cDPC-Messungen. Anhand dieser lassen sich diejenigen Parameterkombinationen ableiten, welche zu kleineren Werten von  $\kappa_\beta$  und somit zu besseren Feldauflösungen führen.

Die oben beschriebene starke Abhängigkeit von  $\kappa_\beta$  auf Variationen von  $G$  birgt einen der größten Nachteile von ringförmigen Detektoren. Zur Quantifizierung muss darauf geachtet werden, dass die experimentellen Bedingungen (Überdeckungsgrad, Kameralänge und Beschleunigungsspannung) während der Messung möglichst genau denen bei der Bestimmung des jeweiligen Kalibrierungsfaktors entsprechen. Nur so kann sichergestellt werden, dass die Umrechnung von normierten DPC-Signalen in absolute Messwerte verlässliche Ergebnisse mit geringen Fehlern liefert. Jedoch kann es bei Messungen an realen Proben trotz der Verwendung des gleichen Parametersatzes zu Abweichungen der Größe des Beugungsscheibchens und somit auch zu einer Änderung von  $G$  kommen. Elastische und inelastische Wechselwirkungen (siehe [52, 53]) des Elektronenstrahls mit der Probe können zu einer Aufweitung des aus der Probe auslaufenden Elektronenstrahls führen. Dies hat wiederum eine Vergrößerung des Beugungsscheibchens zur Folge. Da diese Prozesse stark von der



**Abb. 3.7:** Graphische Darstellung der Auswirkung einer Änderung des Überdeckungsgrades  $\Delta G$  durch eine homogene Strahlverbreiterung auf den Wert von  $\kappa_\beta$ . Die hier gezeigte relative Abweichung von  $\kappa_\beta$  bezieht sich auf einen vorab bestimmten Wert von  $\kappa_\beta = 0,002$ . Dieser entspricht dem Kalibrierungsfaktor des unverbreiterten Elektronenstrahls. Es zeigt sich, dass bereits eine Vergrößerung von  $G$  um nur 5 % im Vergleich zum ursprünglichen Überdeckungsgrad zu einer relativen Abweichung von  $\kappa_\beta$  um  $\approx 39\%$  führt. Da  $\kappa_\beta$  direkt proportional in die Berechnung des Ablenkwinkels eingeht, bedeutet dies, dass  $\beta$  ebenfalls um  $\approx 39\%$  vom eigentlichen Wert abweicht.

jeweils untersuchten Probenstelle, beziehungsweise dem inneren Potential am jeweiligen Rasterpunkt, beeinflusst werden, kann es auch im Verlauf **einer** DPC-Messung zu ortsabhängigen Variationen der Größe des Beugungsscheibchens kommen. Deren Auswirkungen auf die Auswertung von DPC-Messungen wurde beispielsweise in der Dissertation von B. Bauer [21] beschrieben.

Abbildung 3.7 dient der Veranschaulichung, welchen Einfluss probenbedingte Änderungen von  $G(R)$  auf die Quantifizierung von cDPC-Messungen haben. Dazu wird von einer hypothetischen Messsituation ausgegangen, bei der die verwendeten Mikroskopparameter ( $C_L = 0,3 \text{ m}$ ,  $r = 0,004 \text{ m}$ ) zu einem Beugungsscheibchen mit Radius  $R_0 \approx 0,0043 \text{ m}$  führen. Für diese Strahlgröße ergibt sich auf dem inneren Detektorring ( $r = 0,004 \text{ m}$ ) ein Überdeckungsgrad  $G \approx 1,075$  und ein errechneter nomineller Kalibrierungsfaktor  $\kappa_\beta \approx 0,002$ . In Abbildung 3.7 ist gezeigt, welchen Einfluss eine Änderung des Überdeckungsgrades  $\Delta G$  – ausgehend vom ursprünglichen Wert – auf die Größe von  $\kappa_\beta$  hat, wenn es zum Beispiel durch die Probe zu einer homogenen Strahlaufweitung kommt. Es wird die relative Abweichung, die sich aus der Änderung von  $G$  ergebenden Wertes, von  $\kappa_\beta$  von seinem ursprünglichen Wert dargestellt. Da  $\kappa_\beta$  direkt proportional zu den berechneten Ablenkwinkeln  $\beta$  ist, entspricht die

hier gezeigte relative Abweichung von  $\kappa_\beta$  auch der von  $\beta$  (vergleiche Gleichung 3.11).

Dem Graphen ist zu entnehmen, dass eine Vergrößerung von  $\Delta G$  um 5 % bereits zu einer Abweichung von  $\kappa_\beta$  vom ursprünglichen Wert um  $\approx 39\%$  führt. Es ergibt sich also ein nicht zu vernachlässigender Fehler der Quantifizierung von circa 40 %. Für die hier diskutierte Situation entspricht die Vergrößerung von  $G$  um 5 % einer Vergrößerung des Beugungsscheibchenradius um lediglich 0,2 mm. Dies entspricht einer typischen Strahlverbreiterung, welche sich bei Messungen mit größeren Kameralängen ergeben kann. Deshalb muss bei der Quantifizierung von cDPC-Messungen besonders sorgfältig vorgegangen werden. Insbesondere bei der Untersuchung inhomogener Proben kann dies bedeuten, dass eine Quantifizierung nur eingeschränkt oder im Zweifel nicht möglich ist. Dies stellt einen erheblichen Nachteil von cDPC-Messungen dar und unterstreicht die Notwendigkeit eines neuartigen Detektorkonzepts zur Aufnahme von quantitativen DPC-Messungen (siehe Abschnitte 4 und 5).

**Empfindlichkeit im HMSTEM-Betrieb** Bei der Kalibrierung des cDPC-Systems wurden für diejenigen Mikroskopeinstellungen, welche im HM- beziehungsweise im LMSTEM-Betrieb die kleinsten Kalibrierungsfaktoren ergaben, jeweils die maximal erreichbaren Empfindlichkeiten berechnet. Dabei ergibt sich im HMSTEM-Modus die maximale Empfindlichkeit von cDPC-Messungen bei der Kombination aus innerem Detektorring, einem C2-Blendendurchmesser von  $150\mu\text{m}$  und einer Kameralänge von 0,3 m. Für diese Parameter resultieren die folgenden Werte für den minimal messbaren Ablenkwinkel sowie den daraus abgeleiteten Empfindlichkeiten für magnetische und elektrische Felder  $\chi_{\text{el}}$  und  $\chi_{\text{mag}}$ .

- Minimaler Ablenkwinkel:

$$\beta_{\text{min}}^{\text{HM}} = (2,7 \pm 0,12) \mu\text{rad} \quad (3.22)$$

- Empfindlichkeit auf Änderungen der elektrischen Feldstärke:

$$\chi_{\text{el}}^{\text{HM}} = |\vec{E}| \cdot t = (1,29 \pm 0,07) \frac{\text{V}}{\text{m}} \cdot \text{m} \quad (3.23)$$

- Empfindlichkeit auf Änderungen der magnetischen Induktion:

$$\chi_{\text{mag}}^{\text{HM}} = |\vec{B}| \cdot t = (5,6 \pm 0,21) \cdot 10^{-9} \text{T} \cdot \text{m} \quad (3.24)$$

Da bei der Ablenkung des Elektronenstrahls durch magnetische und elektrische Felder die Probendicke einen Einfluss auf den Ablenkwinkel hat, werden die entsprechenden Empfindlichkeiten durch das Produkt aus Feldstärke  $|\vec{E}|$  und Probendicke  $t$  beschrieben. Auf diese Weise können die minimal messbaren Feldstärken für beliebige Probendicken angegeben werden [19].

**Empfindlichkeit im LMSTEM-Betrieb** Für den LMSTEM-Betrieb wird die maximale Empfindlichkeit bei einer Kombination aus innerem Detektorring, einem C2-Blendendurchmesser von  $50 \mu\text{m}$  und einer Kameralänge von  $93,6 \text{m}$  erreicht. Hier ergeben sich die folgenden Werte:

- Minimaler Ablenkwinkel:

$$\beta_{\min}^{\text{HM}} = (0,028 \pm 0,001) \mu\text{rad} \quad (3.25)$$

- Empfindlichkeit auf Änderungen der elektrischen Feldstärke:

$$\chi_{\text{el}}^{\text{HM}} = |\vec{E}| \cdot t = (13,7 \pm 0,6) \cdot 10^{-3} \frac{\text{V}}{\text{m}} \cdot \text{m} \quad (3.26)$$

- Empfindlichkeit auf Änderungen der magnetischen Induktion:

$$\chi_{\text{mag}}^{\text{HM}} = |\vec{B}| \cdot t = (5,9 \pm 0,3) \cdot 10^{-11} \text{T} \cdot \text{m} \quad (3.27)$$

**Einordnung der Empfindlichkeit im Hinblick auf reale Messsituationen** Es zeigt sich, dass für cDPC-Messungen, bei denen eine besonders hohe Felddauflösung wichtiger ist als das laterale Auflösungsvermögen, der LMSTEM-Modus besser geeignet ist als der HMSTEM-Modus. Im Vergleich zu letzterem bieten Messungen im LMSTEM-Betrieb eine circa 100-fach höhere Felddauflösung. Die Leistungsfähigkeit des verwendeten cDPC-Setups im Hinblick auf reale Messsituationen zeigt ein Vergleich der ermittelten Empfindlichkeiten mit den zu erwartenden Feldstärken zweier hypothetischer Proben. Bei der ersten Probe handelt es sich um ein  $30 \text{nm}$  dickes Querpräparat eines GaN/InGaN/GaN-Quantentrogs mit einem intrinsischen piezoelektrischen Feld der Stärke  $100 \frac{\text{MV}}{\text{m}}$ . Die zweite Probe ist eine ebenfalls  $30 \text{nm}$  dicke Schicht einer magnetischen Legierung (zum Beispiel Permalloy) mit einer Sättigungsmagnetisierung von  $1 \text{T}$ . Durch Einsetzen der jeweiligen Feldstärke und Proben Dicke in Gleichung 2.19 beziehungsweise 2.26 ergeben sich die korrespondierenden Ablenkwinkel des Elektronenstrahls zu  $\beta_{\text{el}} \approx 11 \mu\text{rad}$  und  $\beta_{\text{mag}} \approx 14 \mu\text{rad}$ . Da die zu erwartenden Ablenkwinkel beider Proben teils weit über der Auflösungsgrenze des cDPC-Systems liegen, zeigt dieser Vergleich, dass beide Betriebsmodi dazu in der Lage sind diese Felder mit einer guten Dynamik abzubilden. Dabei muss beachtet werden, dass der HMSTEM-Modus auf Grund der großen Magnetfelder der Objektivlinse am Probenort (siehe 2.1.2) typischerweise nicht dazu geeignet ist, magnetische Proben zu vermessen. Interessant ist zudem, dass die Felddauflösung im LMSTEM-Betrieb ausreicht, um magnetische Feldverteilungen in Proben mit dicken von  $1 \text{nm}$  und weniger abzubilden. Analog zu obiger Überlegung würde sich für eine  $1 \text{nm}$  dicke Permalloy-Schicht eine Ablenkung von  $\beta_{\text{mag}} \approx 0,47 \mu\text{rad}$  ergeben, was ebenfalls über dem Detektionslimit liegen würde.[70, 72]

Zusammenfassend lässt sich über die Leistungsfähigkeit eines cDPC-Systems sagen, dass es auf Grund seiner hervorragenden Feldauflösung in der Lage ist, nahezu alle elektrischen und magnetischen Feldverteilungen in der modernen Festkörperphysik abzubilden. Zu beachten ist aber, dass quantitative Messungen auf Grund der starken Abhängigkeit der Kalibrierung von der Größe des Beugungsscheibchens nicht immer möglich sind. [70, 72] Eine weitere Einschränkung besteht in der Anforderung eines nahezu homogenen Beugungsscheibchens in der Detektorebene. Dies begrenzt die Messtechnik – zumindest im Hinblick auf quantitative Messvorhaben – auf Proben, bei denen die Ausdehnung der Felder groß gegenüber der Sondengröße sind (vergleiche Abschnitt 2.2.2).

## 3.2 Impulsaufgelöste Rastertransmissionselektronenmikroskopie

In diesem Abschnitt wird die von K. Müller-Caspary und F. F. Krause entwickelte Theorie, beziehungsweise Messtechnik der impulsaufgelösten Rastertransmissionselektronenmikroskopie moreSTEM [25, 26] erläutert. Diese dient der Abbildung und Vermessung atomarer elektrischer Feldverteilungen. Eine quantenmechanische Betrachtungsweise des Messvorgangs ermöglicht es, selbst Beugungsscheibchen mit komplexen Intensitäts(um)verteilungen, ohne Verlust der Allgemeinheit, auf eine einzige Observable – dem COM – zu reduzieren. Unter Anwendung des Ehrenfest-Theorems können der COM-Position quantitative Werte der elektrischen Feldstärke oder der lokalen Ladungsträgerdichte zugeordnet werden.

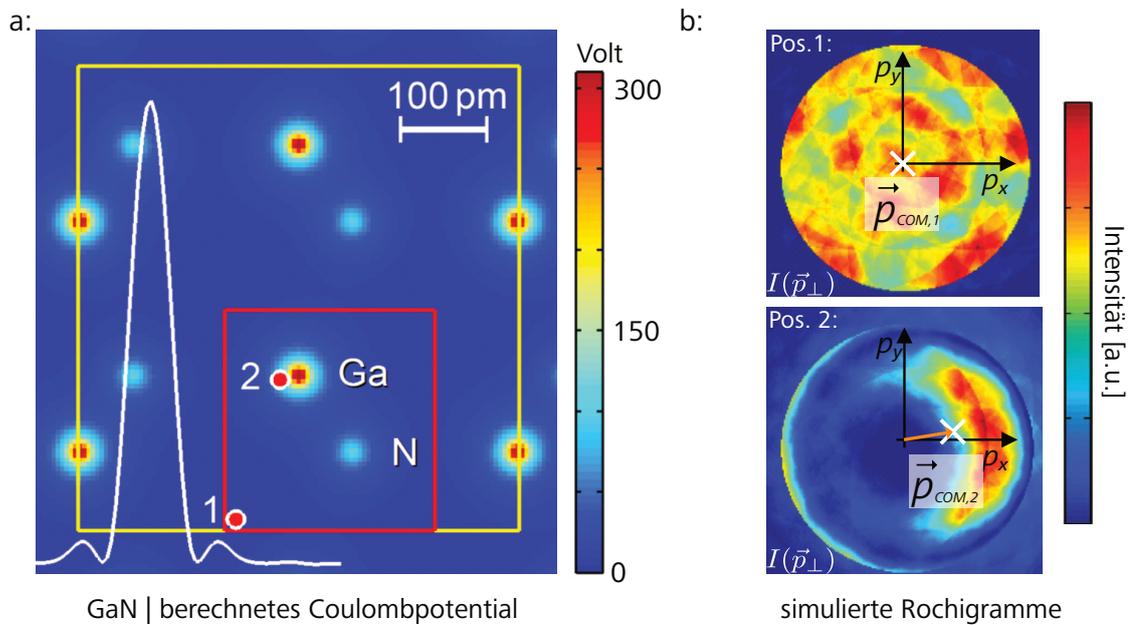
Im Verlauf dieses Abschnitts wird zunächst das Messprinzip der COM-Bestimmung erläutert. Im Anschluss daran werden die theoretischen Grundlagen von moreSTEM beschrieben und zudem erläutert, welche Bedeutung dem COM des Beugungsscheibchens zugeordnet werden kann. Abschließend wird kurz auf die Vor- und Nachteile dieser Messtechnik eingegangen. Die nachfolgenden Beschreibungen basieren auf den Quellen [25] und [26].

### 3.2.1 Messung des Intensitätsschwerpunktes

Der Ablauf einer moreSTEM-Messung wird exemplarisch anhand einer simulierten Messsituation an einem Galliumnitrid-Einkristall erläutert. Die verwendeten Datensätze und Bildmaterialien wurden der Arbeit von Müller-Caspary und Krause entnommen<sup>4</sup> [25]. Das in den Abbildungen 3.8, 3.9 und 3.11 gezeigte projizierte Probenpotential beruht auf den Ergebnissen von Dichte-Funktional-Theorie-Rechnungen (kurz DFT-Rechnungen). Die simulierte Struktur der Beugungsscheibchen ist das Ergebnis von sogenannten Multislice-Simulationen [25, 26]. Informationen über den Multislice-Algorithmus in der Elektronenmikroskopie finden sich in [67, 68, 82, 83].

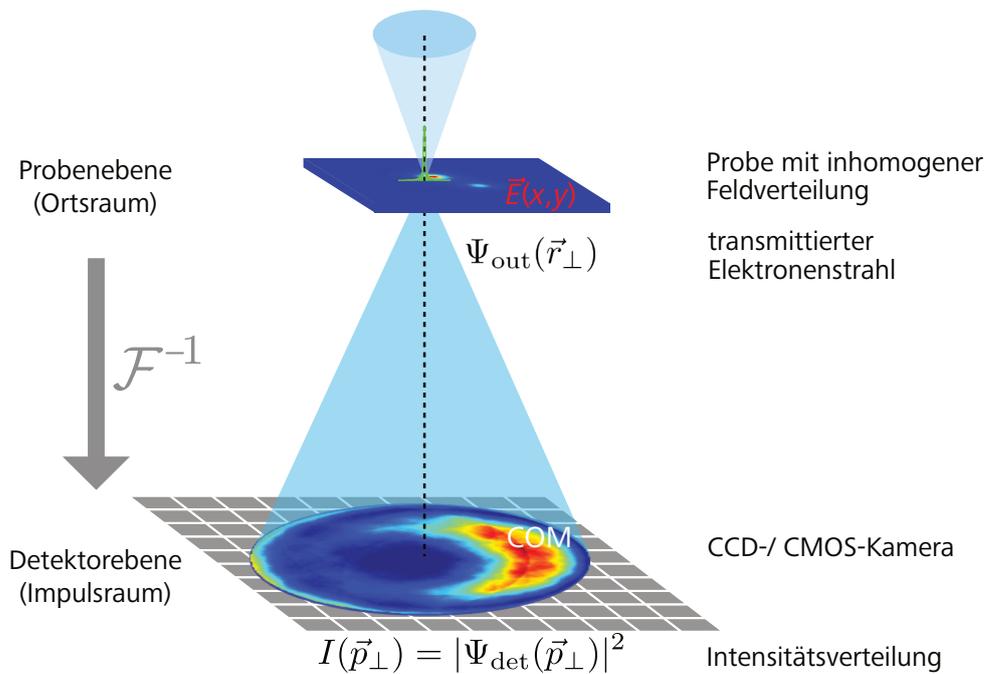
---

<sup>4</sup>gemäß der *Attribution 4.0 International*-Lizenzvereinbarung (siehe [81])



**Abb. 3.8:** In **a** ist das berechnete Coulombpotential von Galliumnitrid gezeigt (in [11-20]-Richtung). Das Intensitätsprofil der Elektronensonde ist weiß im korrekten Maßstab eingezeichnet. Die Einheitszelle ist rot markiert. In **b** sind für die zwei in **a** markierten Strahlpositionen 1 und 2 die entsprechenden simulierten Beugungsscheibchen gezeigt. An Position 1 (nahezu kein elektrisches Feld am Rasterpunkt) ergibt sich ein annähernd ungestörtes symmetrisches Beugungsscheibchen. An Position 2 direkt neben dem Ga-Atom (starke Feldvariation im Inneren der Elektronensonde) zeigt sich eine starke Umverteilung an Intensität. Die COM-Positionen im Impulsraum  $\vec{p}_{\text{COM},1/2}$ , welche dem quantenmechanischen Erwartungswert des Impulsübertrags  $\langle \vec{p}_{\perp} \rangle$  entsprechen (siehe Abschnitt 3.2.2), sind jeweils eingezeichnet. (Abbildungen entnommen aus [25] und verändert; [81])

Abbildung 3.8a zeigt das mittels DFT berechnete Coulombpotential einer 1,3 nm dicken GaN-Schicht (in [11-20]-Projektion), welches in den folgenden Ausführungen als die zu messende Probe angesehen wird. Die weiße Linie entspricht dem Querschnitt der Elektronensonde, welche zur Berechnung der Beugungsscheibchen (siehe Teilabbildung b) verwendet wurde. Ein Vergleich der Größenverhältnisse der Sonde und den einzelnen Atompotentialen zeigt auf, dass es sich hier um eine Messsituation handelt, bei der das untersuchte Potential stark inhomogen in Bezug auf die Ausdehnung der Elektronensonde ist. Dies führt zu teils stark inhomogenen Intensitätsverteilungen in der Detektorebene. Abbildungsteil b zeigt für zwei unterschiedliche Positionen des Elektronenstrahls im Atomgitter (vergleiche Abbildung a) die entsprechenden simulierten Beugungsscheibchen. An Messposition 1, welche weit von den Atomkernen entfernt ist das elektrische Feld, gemittelt über die Ausdehnung der Elektronensonde, vernachlässigbar klein. Hier ergibt sich ein Beugungsscheibchen mit einer beinahe homogenen Intensitätsverteilung.



**Abb. 3.9:** Schematische Messsituation einer moreSTEM-Messung an einer GaN-Einheitszelle (vergleiche Abbildung 3.8) mit einer CCD- oder CMOS-Kamera. Die Intensitätsverteilung  $I(\vec{p}_\perp)$  des Beugungsscheibchens wird an jedem Rasterpunkt der Elektronensonde auf der Probe mit der Kamera aufgenommen. Für jedes gemessene Beugungsscheibchen wird die COM-Position berechnet und die Signalvektoren entsprechend der Sondenposition zugeordnet. Das Ergebnis einer moreSTEM-Messung ist ein zweidimensionales Vektorfeld aller COM-Verschiebungen im untersuchten Probenbereich. (Teile der Abbildung entnommen aus [25] und verändert; [81])

Die COM-Position im Impulsraum<sup>5</sup>  $\vec{p}_{\text{COM}}$  errechnet sich für diese Situation zu ungefähr  $\vec{p}_{\text{COM}} \approx 0$ . Wird die Elektronensonde direkt neben einem Galliumatom positioniert (Position 2), ergibt sich eine starke Umverteilung von Intensität im Inneren des Beugungsscheibchens in positiver  $p_x$ -Richtung und somit ein endlicher Wert von  $\vec{p}_{\text{COM}}$ . Es zeigt sich also eine starke Abhängigkeit der Lage des COMs von der Position des Elektronenstrahls auf der Probe. In Abbildung 3.9 ist schematisch die Messsituation während der Aufnahme des an Position 2 aufgenommenen Beugungsscheibchens gezeigt. Die Wechselwirkung des Elektronenstrahls mit dem stark inhomogenen Potential des Ga-Atoms führt zu einer ebenfalls stark inhomogenen Intensitätsverteilung  $I(\vec{p}_\perp)$  des Beugungsscheibchens. Eine Messung mit einem ringförmigen DPC-Detektor, würde diese Intensitätsumverteilung fälschlicherweise als eine starke Verschiebung des Beugungsscheibchens interpretieren. Um diesen Fehler zu vermeiden, wird an seiner statt eine schnelle CCD- oder CMOS-Kamera verwendet. [25]

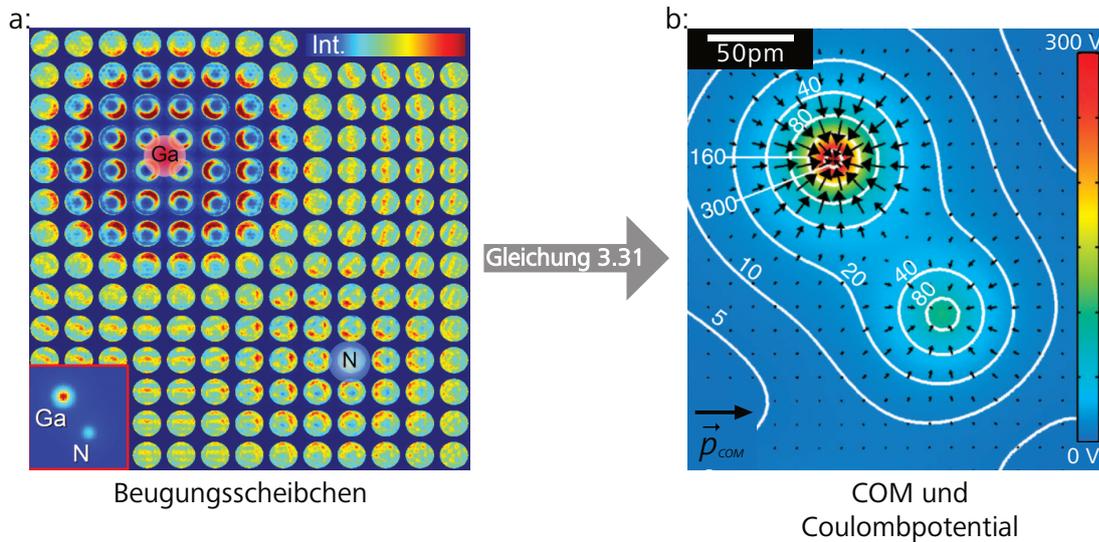
<sup>5</sup>In diesem Abschnitt werden zur Erläuterung der Theorie anstatt der bisher verwendeten Koordinaten  $k_{x,y}[m]$ , welche die Position in der Detektorebene angeben, die Koordinaten  $p_{x,y}[l/m]$  im Impulsraum verwendet. Die Umrechnung findet sich in Gleichung 3.34.

<b>Sensortyp:</b>	Rückwärts vorgespanntes Silizium-Hybrid-Dioden-Array
<b>Pixelgröße:</b>	55 $\mu\text{m}$ · 55 $\mu\text{m}$
<b>Auflösung:</b>	512 px · 512 px
<b>Aktive Fläche:</b>	28 mm · 28 mm
<b>Maximale Aufnahme­rate:</b>	1825 Hz (12-bit, kontinuierlich)
<b>Dynamikbereich:</b>	Variabel zw. 1 bit und 24 bit
<b>Energie-Bereich:</b>	30 keV – 300 keV

**Abb. 3.10:** Kenndaten der MerlinEM-Kamera der Firma Quantum Detectors [33].

Diese, auf die Detektion von hochenergetischen Elektronen spezialisierten Kameras erlauben die Aufnahme einzelner Beugungsscheibchen mit minimalen Aufnahmezeiten im Millisekundenbereich. Die maximalen Aufnahme­raten liegen somit bei circa einem Kilohertz. Beispiele für aktuelle Kamerasysteme sind die MerlinEM-Kamera der Firma Quantum Detectors (Datenblatt: [33]; siehe Abschnitt 6.2) oder die EMPAD<sup>6</sup>-Kamera von ThermoFisher (Datenblatt: [84]). Da im Zuge dieser Arbeit mit der MerlinEM-Kamera gearbeitet wurde, beziehen sich alle nachfolgenden Erklärungen auf dieses Kamerasystem. In Abbildung 3.10 sind die wichtigsten technischen Spezifikationen des Merlin-Detektors zusammengefasst. Ihr ist unter anderem zu entnehmen, dass der Detektor in der Lage ist, Bilder mit einer maximalen Rate von 1.825 Hz mit einem Dynamikumfang von 12-bit Tiefe aufzunehmen. Jede Aufnahme hat dabei eine Auflösung von 512 mal 512 Bildpunkten. Je nach Anforderung kann der Dynamikumfang zwischen 1 bit (binärer Messmodus) und 24 bit variiert werden, was Auswirkungen auf die maximale Aufnahme­frequenz und den Speicherdruck hat. Weiterführende Informationen über den Aufbau und die Funktionsweise dieser und anderer Kameras, welche für moreSTEM geeignet sind, finden sich unter anderem in [31–34, 84]. Der Messvorgang einer moreSTEM-Messung gestaltet sich wie folgt: Mit einem (typischerweise) sondenkorrigierten STEM wird der zu untersuchende Probenbereich mit der Elektronensonde abgetastet. An jedem Rasterpunkt  $P(x, y)$  wird mit der Kamera das resultierende Beugungsscheibchen aufgenommen und entsprechend referenziert. Auf diese Weise entsteht ein sogenannter vierdimensionaler Datensatz, welcher die Intensitätsverteilungen aller gemessener Beugungsscheibchen  $I(p_x, p_y, P(x, y))$  enthält. Typischerweise werden bei moreSTEM-Messungen Probenbereiche mit Auflösungen zwischen 128 px · 128 px bis maximal 512 px · 512 px abgerastert. Dies ergibt eine Anzahl von 16.384 beziehungsweise 262.144 aufgenommene Beugungsscheibchen pro Messung. Je nach Dynamikumfang der Kamera können sich auf diese Weise teils sehr große Messdateien ergeben. So ergibt sich beispielsweise für eine moreSTEM-Messung eines Probenbereichs von 256 px · 256 px, einer Kameraauflösung von 512 px · 512 px und einem Dynamikumfang von 12 bit eine Messdatei von circa 25 Gb Größe. Dies stellt erhebliche Anforderungen an das Dateimanagement, die Rechnerkapazität und die Auswertung von moreSTEM-Messungen.

<sup>6</sup>kurz für: engl. **e**lectron **m**icroscope **p**ixel **a**rray **d**etector



**Abb. 3.11:** In **a** sind die Beugungsscheibchen der simulierten moreSTEM-Messung an einer GaN-Einheitszelle gezeigt. Sie sind entsprechend ihrer Rasterposition angeordnet. Die farbcodierten Intensitäten lassen gut den Einfluss des atomaren elektrischen Feldes der Ga- und N-Atome auf die Struktur der Scheibchen erkennen. Abbildung **b** zeigt das mit Gleichung 3.31 berechnete Vektorfeld der entsprechenden COM-Positionen  $\vec{p}_{\text{COM}}$  beziehungsweise des lateralen Impulsübertrages aller Beugungsscheibchen. Das Vektorfeld  $\vec{p}_{\text{COM}}(P_{x,y})$  korreliert mit den Gradienten des Coulombpotentials der Einheitszelle (eingezeichnet als weiße Isolinien). (Abbildungen entnommen aus [25] und verändert; [81])

Ein wichtiger Punkt, welcher bei der Aufnahme von moreSTEM-Messungen bedacht werden muss, ist die Messzeit. Trotz der hohen Aufnahmezeiten moderner Kamerasysteme ergibt sich zum Beispiel für eine dwell-time (Zeit pro Rasterpunkt) von 1 ms und einem Raster von 512 mal 512 Bildpunkten eine Messdauer von ungefähr viereinhalb Minuten. Eine vergleichbare cDPC-Messung (dwell-time:  $5\mu\text{s}$ ) würde etwa 2 Sekunden dauern. Diese vergleichsweise lange Messdauer stellt – teils erhebliche – Anforderungen an die Probenstabilität (zum Beispiel Probendrift und Aufladung der Probe unter dem Elektronenstrahl). Zudem muss bedacht werden, dass es durch die längere Messzeit zu Strahlenschäden auf der Probe kommen kann. Dies ist beispielsweise bei der Untersuchung von empfindlichen 2D-Materialien zu bedenken, wie zum Beispiel bei ein- oder zweilagigen  $\text{MoS}_2$ -Proben [28].

In Abbildung 3.11a und b ist, stellvertretend für eine reale Messsituation, das Ergebnis einer simulierten Messung, an dem in Abbildung 3.8a rot markierten Bereich, gezeigt. Dieser wurde mit 13 mal 14 Messpunkten abgerastert. Die resultierenden Beugungsscheibchen sind entsprechend ihrer Position auf der Probe im Bild angeordnet. Die Positionen des Ga- und N-Atoms sind markiert. Bereits in dieser Darstellung sind – anhand der Intensitätsverteilungen der individuellen Beugungsscheibchen – die Positionen des Ga- und N-Atoms gut zu erkennen. Der Bereich um das schwerere Ga-Atom weist dabei eine stärkere Intensitätsverteilung auf, als der um das leichtere N-Atom. Wird nun analog zu den Ausführungen in Abschnitt 3.2.2 mit

Gleichung 3.31 für jedes Beugungsscheibchen die Position des COM  $\vec{p}_{\text{COM}}$  berechnet, ergibt sich die in Abbildung 3.11b gezeigte Vektorkarte. Länge und Richtung der Vektorpfeile entsprechen dabei der Position des COM in der Detektorebene (im Impulsraum). Typischerweise dient als Koordinatenursprung der Schnittpunkt der optischen Achse mit der Detektorebene. Es zeigt sich, dass die Verschiebung des COMs direkt mit dem Gradienten des Coulombpotentials der Probe korreliert ist. Die physikalischen Gründe für diesen Zusammenhang werden in Abschnitt 3.2.2 erläutert. [25]

Da moreSTEM-Messungen in der aktuellen Forschung typischerweise zur Charakterisierung von elektrischen Feldern im Sub-Nanometerbereich durchgeführt werden, beschränken sich die Erläuterungen in diesem Abschnitt ausschließlich auf dieses Anwendungsgebiet. Es wird sich auf Messsituationen eingeschränkt, bei denen ein inhomogenes Beugungsscheibchen vorliegt und somit nicht oder nur eingeschränkt mit cDPC gemessen werden kann.

Es soll nicht unerwähnt bleiben, dass es mit moreSTEM natürlich auch möglich ist, die Verschiebung homogener Beugungsscheibchen durch ausgedehnte magnetische oder elektrische Felder zu detektieren. Prinzipiell könnte also moreSTEM anstatt von cDPC verwendet werden. Es gibt aber mehrere Gründe, warum cDPC noch nicht in allen Bereichen von moreSTEM abgelöst wurde. So stellt die vergleichsweise lange Messdauer, von bis zu mehreren Minuten pro Bild, erhebliche Anforderungen an die Strahl- und Probenstabilität. Des Weiteren ist es nicht für alle Fragestellungen in der Phasenkontrastmikroskopie notwendig, die explizite Intensitätsverteilung der Beugungsscheibchen zu kennen. Für diese Situationen sind der erhöhte Speicherbedarf und die selbst mit modernen Computersystemen zeitaufwändige Auswertung der 4D-Datensätze nicht erforderlich, beziehungsweise einer effizienten Arbeitsweise hinderlich. Ebenso sind die hohen Anschaffungskosten schneller Kamerasysteme, welche sich ungefähr im Bereich zwischen 100.000 € und 500.000 € bewegen, nicht für alle Forschungsprojekte gerechtfertigt.

### 3.2.2 Theoretische Grundlagen moreSTEM

**Bedeutung des Intensitätsschwerpunktes** In Abbildung 3.9 ist gezeigt, dass in einem STEM die Wellenfunktionen in der Probenebene (Ortsraum) und in der Detektorebene (Impulsraum), welche der Fraunhofer-Beugungsebene entspricht, über die (inverse) Fouriertransformation, gemäß

$$\Psi_{\text{det}}(\vec{p}_{\perp}) = FT^{-1}[\psi_{\text{out}}(\vec{r}_{\perp})] \quad (3.28)$$

miteinander verknüpft sind (vergleiche Abschnitt 2.1.2 und Abbildung 2.3). Dabei entsprechen  $\Psi_{\text{out}}(\vec{r})$  und  $\Psi_{\text{det}}(\vec{p}_{\perp})$  den Wellenfunktionen des Elektrostrahls direkt nach Verlassen der Probe, sowie in der Detektorebene.  $\vec{r}_{\perp}(x, y)$  und  $\vec{p}_{\perp}(p_x, p_y)$  entsprechen den Koordinaten im Orts- beziehungsweise Impulsraum senkrecht zur

Ausbreitungsrichtung des Elektronenstrahls. Die zweidimensionale Intensitätsverteilung des Beugungsscheibchens  $I(\vec{p}_\perp)$  entspricht dem Betragsquadrat der Wellenfunktion auf der Kamera:

$$I(\vec{p}_\perp) = |\Psi_{\text{det}}(\vec{p}_\perp)|^2 = \Psi_{\text{det}}(\vec{p}_\perp) \cdot \Psi_{\text{det}}^*(\vec{p}_\perp) \quad (3.29)$$

Diese auf der Fourieroptik basierende Beschreibung der Bildentstehung in einem STEM lässt sich auch mit den Axiomen der Quantenmechanik betrachten. Der Zustand eines quantenmechanischen Systems, in diesem Fall der durch die Probe beeinflusste Elektronenstrahl, kann nach Erwin Schrödinger mit einer Wellenfunktion  $\psi$ , welche eine Lösung der Schrödingergleichung (kurz SGL) ist, beschrieben werden. Die SGL kann in unterschiedlichen – aber gleichwertigen – Darstellungen vorliegen. So beschreiben zum Beispiel  $\psi(\vec{r})$  und  $\psi(\vec{p})$  den gleichen quantenmechanischen Zustand im Orts- beziehungsweise im Impulsraum. Ebenso wie die Wellenfunktionen des Elektronenstrahls in Gleichung 3.28 sind diese Repräsentationen über die Fouriertransformation miteinander verknüpft ( $\psi(\vec{p}) \propto \text{FT}[\psi(\vec{r})]$ ). Des Weiteren besagen die Axiome der Quantenmechanik, dass die Eigenwerte  $\vec{p}$  des Impulsoperators für eine gegebene Wellenfunktion mit der Wahrscheinlichkeit

$$P = \psi(\vec{p}) \cdot \psi^*(\vec{p}) \hat{=} I(\vec{p}_\perp) \quad (3.30)$$

gemessen werden können. Für eine ausreichend große Anzahl von Elektronen entspricht diese Wahrscheinlichkeitsverteilung der gemessenen Intensitätsverteilung  $I(\vec{p}_\perp)$  des Elektronenstrahls in der Detektorebene. Basierend auf diesem Zusammenhang lässt sich der mittlere laterale Impuls den das Elektronenensemble in der Detektorebene aufweist als der quantenmechanischen Erwartungswert

$$\langle \vec{p}_\perp \rangle = \left\langle \begin{pmatrix} p_x \\ p_y \end{pmatrix} \right\rangle = \int \vec{p}_\perp I(\vec{p}_\perp) dp_x dp_y \quad (3.31)$$

beschreiben [25]. Dieser entspricht dem Mittelwert der Impulse vieler Einzel-Elektronen-Experimente, für welche die Wellenfunktion  $\Psi_{\text{out}}(\vec{r}_\perp)$  eine Lösung der Schrödingergleichung darstellt und die aufgrund der quantenmechanischen Natur der Messung jeweils einen stark unterschiedlichen Erwartungswert liefern würde. Erst die Ensemblemessung liefert schließlich den gültigen Erwartungswert. Im Folgenden wird  $\langle \vec{p}_\perp \rangle$  auch als mittlerer lateraler Impuls (-Vektor) des Elektronenstrahls bezeichnet. Die schrittweisen Herleitungen von Gleichungen 3.29 und 3.31 finden sich in der Ergänzenden Information von Quelle [25].

Der mittlere laterale Impuls des auf die Probe einfallenden Elektronenstrahls wird als  $\langle \vec{p}_\perp \rangle := 0$  angenommen. Dies ist gerechtfertigt, da der Strahl zu diesem Zeitpunkt noch nicht durch die Probe beeinflusst wurde und gemäß den Ausführungen in Abschnitt 2.1.2 als eine ebene Welle, welche senkrecht auf die Probe einfällt, angesehen werden kann. Somit beschreibt Gleichung 3.31 ausschließlich den mittleren lateralen Impulsübertrag auf das Elektronenensemble, welches dieses durch die Interaktion

mit der Probe erfährt. Ein wichtiger Aspekt und Grundlage der Messtechnik selbst ist, dass mit Gleichung 3.31 die zum Teil sehr komplexe Intensitätsverteilung des Beugungsscheibchens auf einen einzigen Messwert  $\langle \vec{p}_\perp \rangle$  reduziert wird. In ihm sind alle Wechselwirkungen des Elektronenstrahls mit der Probe enthalten.

Es zeigt sich auch, dass Gleichung 3.31 der integralen Beschreibung der Lage des COMs  $\vec{p}_{\text{COM}}$  einer zweidimensionalen Intensitätsverteilung im Impulsraum

$$\vec{p}_{\text{COM}} = \int \vec{p} I(\vec{p}) dp_x dp_y \quad (3.32)$$

entspricht. Dies bedeutet, dass eine Messung des COMs des Beugungsscheibchens im Impulsraum einer Messung des mittleren lateralen Impulsübertrags auf den Elektronenstrahl durch die Probe entspricht und somit

$$\vec{p}_{\text{COM}} = \langle \vec{p}_\perp \rangle \quad (3.33)$$

gilt. Zusammengefasst bedeutet dies, dass die Lage des COMs, unabhängig von der Komplexität der Struktur des Beugungsscheibchens die mittlere Ablenkung des Elektronenstrahls durch die Probe beschreibt. [25, 26]

Typischerweise liefern die zur Messung verwendeten Kamerasysteme und auch der in dieser Arbeit entwickelte Detektor (siehe Abschnitte 4 und 4.1) ausschließlich die Verschiebung des COM auf dem Detektor in der Einheit Meter. Die Umrechnung zwischen der Verschiebung auf den Detektoren und den Impulsvektoren in der Detektorebene (Impulsraum) erfolgt über:

$$|\vec{p}_{\text{COM}}(p_x, p_y)| \left[ \frac{Js}{m} \right] \approx \frac{|\vec{k}_{\text{COM}}|}{C_L} \cdot |\vec{p}_0| \quad (3.34)$$

$$\propto |\vec{k}_{\text{COM}}| [m] \quad (3.35)$$

Hier entsprechen  $\vec{k}_{\text{COM}}$  der Position des COMs des Beugungsscheibchens in der Detektorebene (in der Einheit Meter),  $C_L$  der Kameralänge und  $\vec{p}_0 =$  dem Wellenvektor des auf die Probe einfallenden Elektronenstrahls in Richtung der optischen Achse (in der Einheit  $\frac{Js}{m}$ ). Diese Umrechnung basiert auf den beiden Beschreibungen des Ablenkungswinkels im Orts- beziehungsweise im Impulsraum  $\beta \approx \frac{|\vec{k}_{\text{COM}}|}{C_L}$  und  $\beta \approx \frac{|\vec{p}_{\text{COM}}|}{|\vec{p}_0|}$ . Es zeigt sich also, dass der mittlere laterale Impulsübertrag proportional zu der Position des gemessenen Intensitätsschwerpunktes ist.

**Zusammenhang zwischen COM-Position und elektrischer Feldstärke** Im Folgenden wird gezeigt, wie dem mittleren lateralen Impulsübertrag  $\langle \vec{p}_\perp \rangle$  beziehungsweise der Lage des COM  $\vec{p}_{\text{COM}}$  der Erwartungswert der projizierten elektrischen Feldstärke  $\langle \vec{E}_\perp \rangle$  am Probenort  $\vec{r}_\perp$  zugeordnet werden kann. In der klassischen Elektrodynamik entspricht die Lorentzkraft der Ableitung des Impulsübertrags nach der Zeit. Für eine Situation, in der ausschließlich ein elektrisches und kein magnetisches

Feld vorhanden ist, verbleibt als einzige Kraftwirkung auf den Elektronenstrahl die Coulombkraft  $-e \cdot \vec{E}_\perp$ . Im Sinne des Ehrenfest-Theorems [25, 26, 85, 86] hat dieser Zusammenhang auch für Erwartungswerte in der Quantenmechanik seine Gültigkeit. Dies erlaubt es, die Änderung von  $\langle \vec{p}_\perp \rangle$  mit

$$d\langle \vec{p}_\perp \rangle = -e \cdot \langle \vec{E}_\perp \rangle dt \quad (3.36)$$

zu beschreiben. Ausgehend von dieser Formel und unter Anwendung der paraxialen Näherung konnten K. Müller-Caspary und F. F. Krause den Zusammenhang zwischen Impulsübertrag und gemessenen lateralen elektrischen Feld in der Probe herleiten:

$$\vec{E}_\perp = -\langle \vec{p}_\perp \rangle \frac{v}{e \cdot t} \quad (3.37)$$

Dabei entsprechen  $v$  der Geschwindigkeit der Elektronen in Ausbreitungsrichtung,  $e$  der Elementarladung und  $t$  der Probendicke. Im Zuge der Herleitung dieser Formel wurde vereinfachend angenommen, dass die Form der Elektronensonde auf ihrem Weg durch die Probe erhalten bleibt. Diese Annahme führt dazu, dass Gleichung 3.37 streng genommen nur für sehr dünne Proben mit Dicken von unter 5 nm gilt. Nur auf diese Weise kann experimentell sichergestellt werden, dass die Form der Elektronensonde nicht durch Effekte wie Streuung oder Absorption beeinflusst wird. Das in moreSTEM-Messungen gemessene laterale elektrische Feld  $\vec{E}_\perp$  entspricht der Faltung des – real existierenden – projizierten elektrischen Feldes  $\vec{E}_\perp^{\text{real}}$  mit der normierten Intensitätsverteilung der Elektronensonde  $I_{\text{Sonde}}$ :

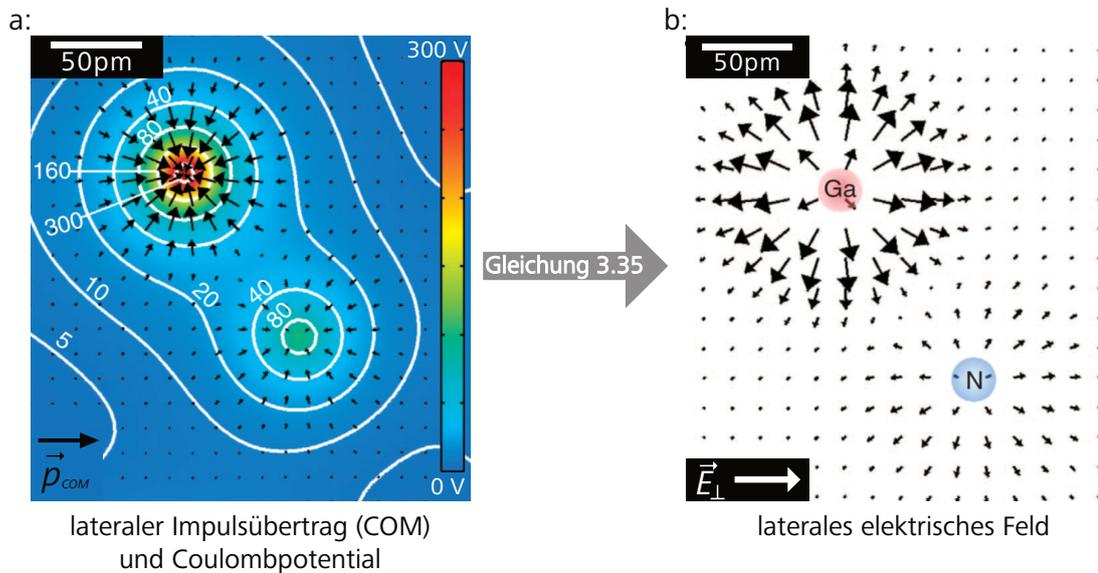
$$\vec{E}_\perp = \vec{E}_\perp^{\text{real}} \otimes I_{\text{Sonde}} \quad (3.38)$$

Hier entspricht das mittlere projizierte Feld der Probe

$$\vec{E}_\perp^{\text{real}}(\vec{r}_\perp) = \frac{1}{t} \int_t \vec{E}_\perp^{\text{3D}}(\vec{r}_\perp, z) dz \quad (3.39)$$

der Integration der dreidimensionalen Feldverteilung im Inneren  $\vec{E}_\perp^{\text{3D}}(\vec{r}_\perp, z)$  über die Probendicke  $t$  [25]. Für eine genaue Messung der elektronischen Feldverteilung in der Probe ist es also von Vorteil, die Probe mit einer möglichst kleinen Sonde abzutasten. Da die exakte Form der Sonde typischerweise nicht bekannt ist und somit nicht aus dem gemessenen Signalen herausgerechnet werden kann, minimiert der Einsatz eines sondenkorrigierten STEMs, mit Sondengrößen von bis zu 45 pm den Messfehler. Die schrittweise Herleitung sowie Informationen über die Näherungen, finden sich in der ergänzenden Information von Quelle [25] sowie in [26].

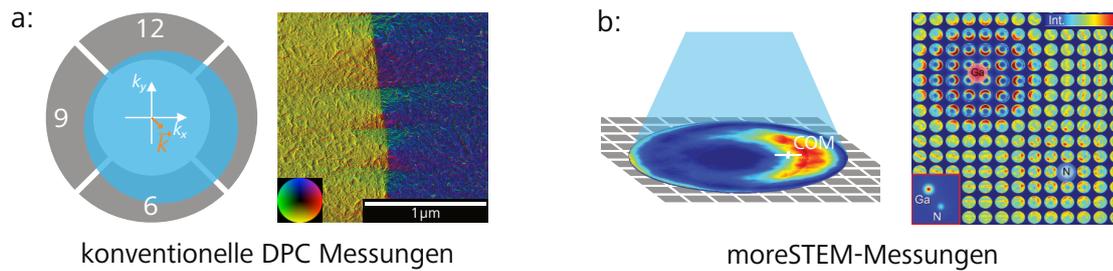
Wird Gleichung 3.37 auf das in Abbildung 3.11b (siehe Abbildung 3.12a) dargestellte Vektorfeld des COMs, beziehungsweise des lateralen Impulsübertrags, angewandt ergibt sich die in Abbildung 3.12b gezeigte elektrische Feldverteilung. Es ist gut zu erkennen, dass die beiden positiv geladenen Atomkerne als Quellen des elektrischen Feldes fungieren. Die Anwendbarkeit dieser Theorie wurde durch



**Abb. 3.12:** In **a** ist zum Vergleich noch einmal das in Abbildung 3.11 gezeigte Vektorfeld der COM-Positionsvektoren  $\vec{p}_{\text{COM}}(P_{x,y})$  dargestellt. Wird Gleichung 3.37 darauf angewandt ergibt sich das in **b** gezeigte laterale atomare elektrische Feld  $\vec{E}_{\perp}$ . Es zeigt sich, dass die Atome als Quellen des Feldes fungieren. (Abbildungen entnommen aus [25] und verändert; [81])

moreSTEM-Messungen an SrTiO<sub>3</sub> in [25] experimentell bestätigt.

Wie oben bereits erwähnt ist es mit schnellen Kameras natürlich auch möglich, die Ablenkung des Elektronenstrahls durch magnetische Feldverteilungen im Probeninneren zu detektieren. Zum Beispiel untersuchte M. Krajnák in [29] die Eignung von schnellen Kameras (wie dem Medipix3-Detektor) zur Untersuchung von dünnen polykristallinen magnetischen Schichten. Sie konnten zeigen, dass es mit einer Kamera und speziellen Auswertung der einzelnen Beugungsbilder möglich ist, den bei der Messung von magnetischen Feldverteilungen störenden Kristallkontrast zu mindern [29]. Es wurde aber auch angemerkt, dass die Auslesegeschwindigkeit der Kameras weiter verbessert werden sollte. Dies würde die Untersuchung von größeren Messfeldern beziehungsweise Messfelder mit einer höheren Pixeldichte ermöglichen. Zur Messung von ausgedehnten Magnetfeldern werden große Rasterfelder mit hoher Auflösung ( $1.024^2$  oder  $2.048^2$  Messpunkte pro Abbildung) benötigt. Da sich für diese lange Aufnahmezeiten und ein hoher Speicherbedarf ergeben, ist es meist nicht praktikabel, diese mit einer Kamera zu detektieren. Hier bietet sich eine Messung mit einem cDPC-System auf Grund der erheblich kürzeren Messzeiten an. Deshalb liegt (zurzeit) das Hauptanwendungsgebiet von moreSTEM-Messungen typischerweise in der Detektion von (atomaren) elektrischen Feldverteilungen.



- |  |  |
|--|--|
| <ul style="list-style-type: none"> <li>+ erlaubt schnelle DPC Messungen<br/>→ dwell-time im <math>\mu\text{s}</math>-Bereich</li> <li>+ hohe Feldauflösung und Empfindlichkeit<br/>→ minimal messbare Ablenkungswinkel im sub-<math>\mu\text{rad}</math> Bereich</li> <li>+ vergleichsweise niedrige Anschaffungskosten</li> <li>- homogenes Beugungsscheibchen wird vorausgesetzt</li> <li>- keine Information über die Lage des Intensitätsschwerpunktes (COM)</li> <li>- homogene und inhomogene Strahlaufweitung führt zu Fehlern bei der Quantifizierung</li> </ul> | <ul style="list-style-type: none"> <li>+ Aufnahme eines Beugungsscheibchens für jeden Rasterpunkt auf der Probe<br/>→ vielseitig einsetzbar</li> <li>+ Messung des COM<br/>→ ermöglicht atomar aufgelöste DPC-Messungen</li> <li>+ Kameras mit sehr hoher Empfindlichkeit<br/>→ Detektion von einzelnen Strahlelektronen</li> <li>- vergleichsweise langsam<br/>→ dwell-time im ms-Bereich<br/>→ Messdauer im Minutenbereich</li> <li>- hohe Anschaffungskosten</li> </ul> |
|--|--|

**Abb. 3.13:** Vor- und Nachteile von konventionellen DPC-Messungen mit Ringdetektoren (a) und moreSTEM-Messungen mit CCD- oder CMOS-Kameras (b). (Teile der Abbildungen in b entnommen aus [25] und verändert)

### 3.3 Zusammenfassung

In diesem Abschnitt wurden zwei unterschiedliche Messtechniken vorgestellt, welche es erlauben, in einem STEM magnetische und elektrische Feldverteilungen abzubilden und zu quantifizieren. Zusammenfassend sind in Abbildung 3.13 die Vor- und Nachteile von cDPC- und moreSTEM-Messungen gezeigt. Einer der Vorteile von cDPC ist die hohe Feld- beziehungsweise Winkelauflösung des Messsystems. Es lassen sich Ablenkungen des Elektronenstrahls von bis zu  $\approx 0,028 \mu\text{rad}$  detektieren (siehe 3.1.3). Außerdem erlaubt der, aus Halbleiterdioden aufgebaute, Ringdetektor ein schnelles Auslesen der Signale an jedem Rasterpunkt. Im verwendeten Setup beträgt die minimale (noch sinnvolle) Auslesezeit pro Rasterpunkt  $5 \mu\text{s}$ . Dies ermöglicht die Analyse großer Probenbereiche mit hoher Rasterauflösung in kurzer Zeit. Des Weiteren ergeben sich selbst für große Messfelder relativ kleine Messdateien im zweistelligen Megabyte-Bereich, was die Auswertung der Messdaten einfacher (und kürzer) gestaltet als bei den großen moreSTEM-Datensätzen (siehe Abschnitt 3.2.1). Ein ebenfalls nicht unerheblicher Punkt sind die im Vergleich zu modernsten Kamerasystemen niedrigen Anschaffungskosten des Ringdetektors. Diese rangieren aktuell im Bereich von ungefähr 10.000 € und 20.000 €, wohingegen neue Kamerasysteme erst ab circa 100.000 € erhältlich sind. Dies fördert die Verbreitung der Messtechnik und

erlaubt auch kleineren Forschungseinrichtungen und Universitäten die Anschaffung von cDPC-Messsystemen. Der größte Nachteil eines Ringdetektors ist, dass er nicht dazu in der Lage ist den Intensitätsschwerpunkt des Elektronenstrahls zu messen, sondern ausschließlich Verschiebungen homogener Beugungsscheibchen. Intensitätsumverteilungen verfälschen zudem die Positionsmessung. Ein weiterer Nachteil ist, dass die Größe des Beugungsscheibchens beziehungsweise der Überdeckungsgrad des Detektors einen großen Einfluss auf die Kalibrierung des Setups haben. Dies kann zu erheblichen Problemen bei der Quantifizierung von cDPC-Messungen – gerade bei inhomogenen Proben – führen (siehe Abschnitt 3.1.3).

Der Hauptvorteil von moreSTEM-Messungen mit schnellen Kameras ist, dass für jeden Rasterpunkt die gesamte Intensitätsverteilung des Beugungsscheibchens aufgenommen werden kann. Dies ermöglicht unter anderem die Messung des COMs, beziehungsweise des mittleren lateralen Impulsübertrags, und somit die quantitative Analyse von atomaren elektrischen Feldverteilungen [25, 26]. Ein weiterer positiver Punkt ist, dass die Empfindlichkeit mancher Kamerasysteme groß genug ist, um den Auftreffpunkt einzelner Strahlelektronen zu detektieren. Außerdem sind schnelle Kameras nicht nur auf die Anfertigung von moreSTEM-Messungen beschränkt. Im TEM-Modus können sie zum Beispiel zur direkten Abbildung der Probe verwendet werden. Besonders die Untersuchung von zeitkritischen Prozessen profitiert von den schnellen Bildraten dieser Kameras. Die im Vergleich zum DPC-Ringdetektor relativ langsame Messgeschwindigkeit und die damit einhergehenden langen Messzeiten (siehe Abschnitt 3.2.1) stellen den größten Nachteil von schnellen Pixeldetektoren gegenüber cDPC-Messungen dar. Gerade bei der Analyse von ausgedehnten Feldverteilungen oder von Feldern in strahlungsempfindlichen Proben kann der erhöhte Zeitaufwand problematisch und im Zweifel ein Ausschlusskriterium für die Anfertigung einer moreSTEM-Messung sein.

# 4 Duolaterale positionsempfindliche Diode (PSD)

Das Ziel dieser Arbeit war es einen Detektor zu realisieren, der gleichermaßen für die konventionelle Differentielle Phasenkontrastmikroskopie und die impuls aufgelöste Rastertransmissionselektronenmikroskopie geeignet ist. Das neue Detektorsystem soll dabei möglichst viele, der im vorigen Kapitel besprochenen, Vorteile von DPC-Ringdetektoren und schnellen Kamerasystemen vereinen. Das Hauptaugenmerk lag dabei auf der Entwicklung eines Detektorsystems, welches dazu in der Lage ist, die absolute COM-Position des Elektronenstrahls mit der Geschwindigkeit eines cDPC-Systems zu detektieren.

Als ein geeigneter Kandidat für ein solches Detektorsystem kristallisierte sich die sogenannte duolaterale positionsempfindliche Diode (PSD<sup>1</sup>) heraus. Der Grund für die Wahl von einer PSD als Sensor für die Differentielle Phasenkontrastmikroskopie ist deren Eigenschaft, dass sie direkt die absolute Position des COMs einer einfallenden Strahlung messen (siehe Abschnitt 4.1.3). Bis dato werden PSDs typischerweise in Kombination mit Laserstrahlen (im UV- bis IR-Bereich) zur Positionsmessung und Justage von Messaufbauten verwendet. Beispielsweise werden sie in dem NuSTAR<sup>2</sup>-Satelliten der NASA, welcher als Röntgenteleskop der Beobachtung von Röntgenquellen wie schwarzen Löchern dient, verwendet. In diesem Teleskop werden sie zur kontinuierlichen Kollimation der adaptiven Optik eingesetzt [87, 88]. Weitere Beispiele für die Einsatzmöglichkeiten von PSDs finden sich in den Dissertationen von A. Mäkynen, T. Meister und H. Andersson [89–91]. Dass es sich dabei (in der Lichoptik) um weit verbreitete und ausführlich getestete Bauteile handelt, erleichterte zudem ihre Integration in das neue Detektorsystem. Der relativ einfache, auf einer flächigen pin-Diode basierende Aufbau macht PSDs zu verlässlichen und wenig fehleranfälligen Bauteilen. Zudem ermöglicht er die Konstruktion von Sensoren mit großen aktiven Flächen, aber dennoch kurzen Ansprechzeiten (englisch rise-time), von unter 5  $\mu$ s. Es ergeben sich somit Auslesefrequenzen von bis zu 200 kHz, was die Geschwindigkeit moderner Kamerasysteme weit übersteigt.

---

<sup>1</sup>engl. **p**osition **s**ensitive **d**iode

<sup>2</sup>engl. **n**uclear **s**pectroscopic **t**elescope **a**rray

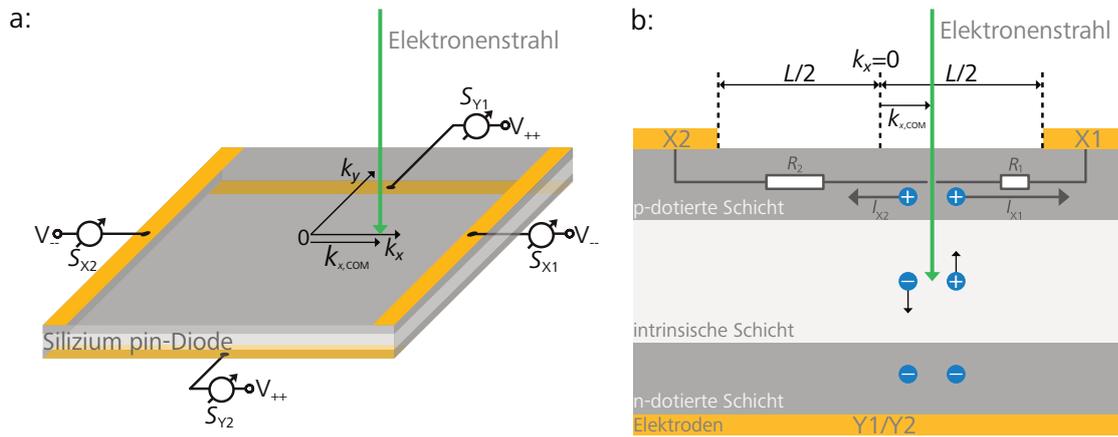
In diesem Kapitel wird die Funktionsweise einer PSD und deren Anwendung in der Elektronenmikroskopie erläutert. Es wird das Layout der – in dieser Arbeit verwendeten – Diode beschrieben und auf die Signalentstehung und Auswertung eingegangen. Der Einfachheit halber wird zur Erläuterung der Funktionsweise zunächst von einem fokussierten Elektronenstrahl ausgegangen, welcher an nur einem Punkt auf die aktive Fläche des Detektors trifft. Im weiteren Verlauf wird beschrieben wie die Lage des COMs eines ausgedehnten Elektronenstrahls bestimmt werden kann. Es wird gezeigt, dass dabei die Form der Intensitätsverteilung des zu messenden Beugungsscheibchens keine Rolle spielt. Die PSD ist somit sowohl in der Lage die Verschiebung eines homogenen Beugungsscheibchens als auch die COM-Position inhomogener Scheibchen zu bestimmen. Abschließend werden theoretische Überlegungen zu der erreichbaren Positionsgenauigkeit mit einer PSD präsentiert. Ein Teil der in diesem Kapitel gezeigten Erläuterungen wurde in der Fachzeitschrift *Ultramicroscopy* veröffentlicht [23]. Die jeweiligen Stellen sind gekennzeichnet.

### 4.1 Aufbau und Funktionsweise eines PSD-Detektors

In diesem Abschnitt werden Layout und Funktionsweise des PSD-Typs erläutert, welcher auch im weiteren Verlauf dieser Arbeit verwendet wird (siehe Abschnitt 5). Es handelt sich dabei um eine duolaterale PSD auf Silizium Basis.

#### 4.1.1 Detektor-Layout

In den Abbildungen 4.1a und b ist der schematische Aufbau einer duolateralen PSD gezeigt, welche mit einem infinitesimal schmalen Elektronenstrahl am Ort  $k_{x,COM}$  bestrahlt wird. Das Koordinatensystem, mit dem im Folgenden sämtliche COM-Positionen angegeben werden, ist auf dem Detektor zentriert; der Koordinatenursprung beschreibt somit das Zentrum der aktiven Fläche. Die PSD selbst basiert auf einer flächigen Silizium pin-Diode. Deren Ober- und Unterseite – es handelt sich dabei um die p- beziehungsweise n-dotierte Schicht – sind jeweils mit einem Paar einander gegenüberliegender Streifenkontakte aus Gold kontaktiert. Auf der Unterseite sind die Kontakte in einem 90-Grad-Winkel zu denen auf der Oberseite orientiert. Die Kontakte auf der Oberfläche werden mit X1 und X2, die auf der Unterseite mit Y1 und Y2 bezeichnet, die entsprechenden Signale mit  $S_{X1}$  und  $S_{X2}$  beziehungsweise  $S_{Y1}$  und  $S_{Y2}$ . Die p- und n-Schicht der Diode werden auch als sogenannte resistive Schichten bezeichnet. Der Widerstand zwischen den Kontaktpaaren beträgt jeweils 10 k $\Omega$ . Die Diode wird in Sperrrichtung mit maximal 20 V vorgespannt. Dementsprechend liegt an der Oberseite eine negative und an der Unterseite eine positive Spannung an (vergleiche Abbildung 4.1a). Mit Hilfe von Abbildung 4.1b, welche einen Querschnitt durch die PSD in  $k_x$ -Richtung zeigt, wird nun das auf dem lateralen



**Abb. 4.1:** **a** zeigt eine schematische Zeichnung einer auf Silizium basierenden duolateralen PSD, welche von einem infinitesimal schmalen Elektronenstrahl am Ort  $k_{x,COM}$  beleuchtet wird. Die PSD selbst besteht aus einer flächigen pin-Diode, welche über je zwei Streifenkontakte an Ober- und Unterseite in Sperrrichtung vorgespannt wird. In **b** ist ein Querschnitt der Situation in **a** gezeigt. Da die dotierten Schichten einen gleichmäßigen Schichtwiderstand aufweisen, ist die Entfernung zwischen dem Auftreffpunkt des Elektronenstrahls und den Kontakten maßgeblich für die Größe der jeweiligen Ströme (und Widerstände) zu den Kathoden. So fließen zum Beispiel hier mehr Löcher über Elektrode X1 als über X2 ab ( $I_{X1} > I_{X2}$ ). (Abbildung nach [91] und [23])

Photoeffekt basierende Messprinzip einer PSD erläutert. Der laterale Photoeffekt selbst wurde im Jahr 1957 von J. T. Wallmark erstmalig beschrieben [92]. Trifft der Elektronenstrahl auf den Detektor, dringt er senkrecht in die Diode ein. Die Eindringtiefe ist dabei abhängig von der kinetischen Energie der Strahlelektronen und dem Detektormaterial. Für eine Beschleunigungsspannung von 300 kV und einen auf Silizium basierenden Detektor beträgt die maximale Eindringtiefe circa  $410\ \mu\text{m}$  (siehe Abbildung 4.4). Es ist also für die gegebene Detektorgeometrie (Höhe der Diode: 1,65 mm) [93] sichergestellt, dass der Elektronenstrahl auf seinem Weg durch den Detektor seine Energie komplett in der Diode deponiert. Dies geschieht durch inelastische Stöße der Strahlelektronen mit dem Halbleitermaterial. Durch diese Stöße werden Elektronen in das Leitungsband gehoben. Dies führt zu der Erzeugung von freien Elektron-Loch-Paaren entlang des Pfades des Elektronenstrahls durch den Detektor. Da in Silizium die Energie zur Erzeugung eines Elektron-Loch-Paars bei 3,6 eV liegt, ist ein einzelnes einfallendes Elektron mit einer kinetischen Energie von 300 keV theoretisch dazu in der Lage, circa 84.000 Elektron-Loch-Paare zu erzeugen. Durch Effekte wie Rekombination der Ladungsträger und Absorption in der Kontaktschicht zwischen Halbleiter und Metallkontakt liegt die Zahl der erzeugten Sekundärladungen eher im Bereich von  $2 \cdot 10^4$  bis  $6 \cdot 10^4$  Ladungen [52].

Die Elektron-Loch-Paare werden durch das elektrische Feld der Raumladungszone und im weiteren Verlauf durch das Potential der angelegten Vorspannung voneinander getrennt. Da der Widerstand der intrinsischen Schicht größer ist als der der beiden dotierten Schichten ist sichergestellt, dass die Sekundärladungen auf dem

kürzesten Weg, direkt nach oben beziehungsweise nach unten in diese Schichten wandern. Dort angekommen fließen die Ladungen über die jeweiligen Kontaktpaare ab. Die Ladungsträger nehmen also nicht den kürzesten Pfad zu den Elektroden, sondern im Wortsinn den Weg des geringsten Widerstandes. Im Folgenden wird das Messprinzip exemplarisch anhand der zur p-dotierten Schicht wandernden Löcher beschrieben. In Abbildung 4.1b ist zu erkennen, dass die erzeugten Löcher direkt am Auftreffpunkt des Elektronenstrahls  $k_{x,COM}$  nach oben in die p-dotierte Schicht wandern. Von diesem Punkt aus teilt sich der Lochstrom auf die beiden negativ vorgespannten Kontakte X1 und X2 auf. Da für die gesamte homogen p-dotierte Schicht eine ebenfalls homogene Widerstandsverteilung angenommen werden kann und diese zudem dünn gegenüber der intrinsischen Schicht ist (selbiges gilt auch für die n-dotierte Schicht), ergeben sich unterschiedliche Widerstände  $R_1$  und  $R_2$  zu den Elektroden X1 und X2. Der Abstand des Auftreffpunktes des Elektronenstrahls zu X1 und X2 definiert dabei die Größen von  $R_1$  und  $R_2$ . Somit ist offensichtlich, dass ein größerer Anteil des erzeugten Stroms an derjenigen Elektrode abfließt, welche sich näher am Auftreffpunkt des Elektronenstrahls befindet. Für die abgebildete Situation ergibt sich ein größerer Strom zu X1 als zu X2, da der Widerstand  $R_1$  geringer ist als  $R_2$ . Das Verhältnis der Widerstände bestimmt somit das Verhältnis der über die beiden Elektroden abfließenden Ströme  $I_{X1}$  und  $I_{X2}$ :

$$\frac{I_{X1}}{I_{X2}} = \frac{R_2}{R_1} = \frac{\frac{L}{2} - k_{x,COM}}{\frac{L}{2} + k_{x,COM}} \quad (4.1)$$

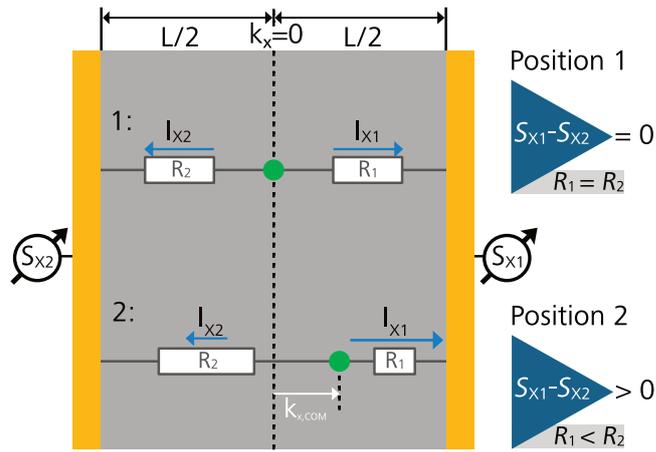
Hier entspricht  $L$  dem Abstand zwischen den Elektrodenpaaren und  $k_{x,COM}$  der Lage des COMs in  $k_x$ -Richtung (vergleiche Abbildungen 4.1a und b). Es ergibt sich also eine Beziehung zwischen dem Auftreffpunkt des Elektronenstrahls und den Strömen  $I_{X1}$  und  $I_{X2}$ . [23, 91]

Da es im Hinblick auf eine reale Anwendung sinnvoller ist, Spannungssignale zu messen, werden die einzelnen Ströme mit Transimpedanzverstärkern in proportionale Spannungssignale gewandelt und anschließend gemessen (siehe Abschnitt 5.1.3). Die Signale der beiden oberen Kontakte werden mit  $S_{X1}$  und  $S_{X2}$  bezeichnet, die der unteren mit  $S_{Y1}$  und  $S_{Y2}$  (vergleiche Abbildung 4.1a). Wird diese Strom-Spannungs-Wandlung auf Gleichung 4.1 angewendet, ergibt sich für die  $k_x$  Richtung das Verhältnis:

$$\frac{I_{X1}}{I_{X2}} = \frac{S_{X1}}{S_{X2}} = \frac{\frac{L}{2} - k_{x,COM}}{\frac{L}{2} + k_{x,COM}} \quad (4.2)$$

Für die  $k_y$ -Richtung ergibt sich analog dazu:

$$\frac{S_{Y1}}{S_{Y2}} = \frac{\frac{L}{2} - k_{y,COM}}{\frac{L}{2} + k_{y,COM}} \quad (4.3)$$



**Abb. 4.2:** Schematische Darstellung der Messung der Position des Elektronenstrahls mit einer PSD exemplarisch in der  $k_x$ -Richtung (Funktionsweise in  $k_y$ -Richtung analog). In Situation 1 trifft der Elektronenstrahl mittig zwischen den Kontakten X1 und X2 auf die PSD. Es ergeben sich gleich große Signale an den beiden Kontakten ( $I_{X1} = I_{X2}$ ). Die Signaldifferenz  $S_{k_x}^{dif}$  ist somit gleich Null. In Situation 2 trifft der Strahl näher bei X1 auf ( $I_{X1} > I_{X2}$ ), was eine positive Signaldifferenz  $S_{k_x}^{dif} > 0$  zur Folge hat.

### 4.1.2 Signalentstehung

Die relativen  $k_x$ - und  $k_y$ -Positionen  $S_{k_x}^{dif}$  und  $S_{k_y}^{dif}$  des COMs des Elektronenstrahls auf dem Detektor ergeben sich aus den Signaldifferenzen der gegenüberliegenden Kontakte:

$$S_{k_x}^{dif}[a.u.] = S_{X1} - S_{X2} \quad (4.4)$$

$$S_{k_y}^{dif}[a.u.] = S_{Y1} - S_{Y2} \quad (4.5)$$

Auf diese Weise definiert sich ein orthogonales Koordinatensystem (siehe Abbildung 4.1). Trifft der punktförmige Elektronenstrahl den Detektor direkt in der Mitte zwischen X1 und X2 (siehe Abbildung 4.2: Position 1), ergeben sich gleich große Spannungssignale  $S_{X1} = S_{X2}$  und  $S_{k_x}^{dif}$  ist gleich Null. Wird der Elektronenstrahl um  $k_{x,COM}$  in positiver  $k_x$ -Richtung verschoben (siehe Abbildung 4.2: Position 2), ergibt sich eine positive Signaldifferenz  $S_{k_x}^{dif} > 0$ , da  $S_{X1} > S_{X2}$  ist.

Die absoluten Koordinaten des Intensitätsschwerpunkts ergeben sich durch Auflösen der Gleichungen 4.2 und 4.3 nach  $k_{x,COM}$  respektive  $k_{y,COM}$ :

$$k_{x,COM}[m] = \frac{S_{X1} - S_{X2}}{S_{X1} + S_{X2}} \cdot \frac{L}{2} \quad (4.6)$$

$$k_{y,COM}[m] = \frac{S_{Y1} - S_{Y2}}{S_{Y1} + S_{Y2}} \cdot \frac{L}{2} \quad (4.7)$$

In diesen Gleichungen sind die Differenzsignale  $S_{k_x}^{\text{dif}}$  und  $S_{k_y}^{\text{dif}}$  jeweils durch das Summensignal der beiden beteiligten Kontakte

$$\Sigma_{h^+}(P_{x,y}) = S_{X1} + S_{X2} \quad (4.8)$$

$$\Sigma_{e^-}(P_{x,y}) = S_{Y1} + S_{Y2} \quad (4.9)$$

normiert. Diese Normierung stellt sicher, dass die Messung des COMs unabhängig von der auf den Detektor einfallenden Strahlstromdichte  $j$  ist und somit auch von Variationen der lokalen Dicke, Dichte und materiellen Zusammensetzung der Probe am Rasterpunkt  $(P_{x,y})$  nicht beeinflusst wird. In dieser Schreibweise sollen die Indices  $h^+$  und  $e^-$  verdeutlichen, dass das Summensignal der Kontakte X1 und X2 ausschließlich durch einen Lochstrom zustande kommt und das der Kontakte Y1 und Y2 durch einen Strom von Elektronen. Auf Grund der Ladungsträgererhaltung erzeugt der einfallende Elektronenstrahl gleich viele Ladungen beider Spezies. Dies hat zur Folge, dass die abfließenden Ströme (Elektronen- und Lochstrom) gleich groß sind und somit auch die entsprechenden Summensignale. Der Umstand, dass eine PSD beide Ladungsträgerarten zur Detektion der Position verwendet, stellt einen Unterschied zu der Funktionsweise eines DPC-Ringdetektors dar. Auf Grund dessen flächigen Rückseitenkontakts, welcher keine Positionsinformation liefert, trägt nur eine Ladungsträgerspezies zum Messsignal bei. Eine PSD nutzt also im Vergleich die doppelte Anzahl an Ladungsträgern, was zu einem günstigeren Signal-Rausch-Verhältnis führt. Die Summensignale  $\Sigma_{h^+}$  und  $\Sigma_{e^-}$  entsprechen außerdem jeweils dem BF-Signal einer konventionellen STEM-Messung. Die PSD liefert also gleichzeitig die absolute COM-Position des Elektronenstrahls in der Detektorebene und das Hellfeld-Signal. [23]

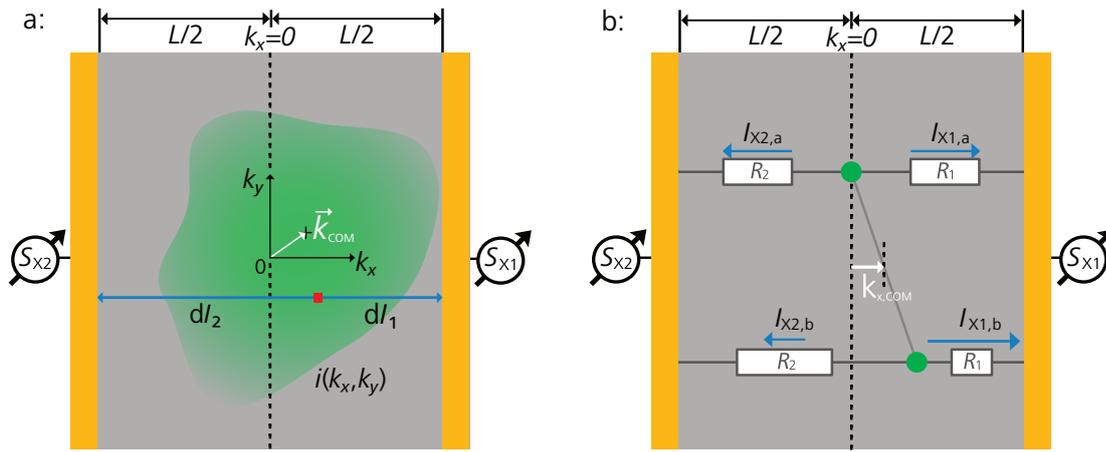
Analog zu konventionellen DPC-Messungen (siehe Abschnitt 3.1) lässt sich für jeden Punkt  $P_{x,y}$  auf der Probe ein sogenannter PSD-Signalvektor  $\vec{k}_{\text{COM}}(P_{x,y})$  definieren:

$$\vec{k}_{\text{COM}}(P_{x,y})[m] = \begin{pmatrix} k_{x,\text{COM}} \\ k_{y,\text{COM}} \end{pmatrix} \quad (4.10)$$

Zur Darstellung von PSD-Messungen wird in dieser Arbeit die gleiche Farbcodierung wie bei cDPC-Messungen verwendet (siehe Abschnitte 3.1, 6.1.3 und 6.2.3).

### 4.1.3 Messung des Intensitätsschwerpunkts

Bis zu dieser Stelle wurde ausschließlich von einem punktförmigen Elektronenstrahl ausgegangen, welcher auf den PSD-Detektor trifft. Für diese Situation ist es trivial, dass Auftreffpunkt und COM derselben Position entsprechen. Im Folgenden soll nun bewiesen werden, dass der gemessene Signalvektor  $\vec{k}_{\text{COM}}$  der Lage des COMs jeder beliebigen zweidimensionalen Elektronenverteilung  $i(k_x, k_y)$ , wie zum Beispiel der in Abbildung 4.3a gezeigten, entspricht. Im Sinne der Übersichtlichkeit beschränkt sich die Herleitung auf eine der beiden Detektionsrichtungen ( $k_x$ -Richtung).



**Abb. 4.3:** **a** zeigt eine schematische Darstellung einer PSD, welche von einem Elektronenstrahl mit einer willkürlichen Intensitätsverteilung  $i(k_x, k_y)$  beleuchtet wird. Von jedem Punkt dieser Verteilung, zum Beispiel dem rot markierten, fließen infinitesimale Teilströme zu den Elektroden (hier exemplarisch in  $k_x$ -Richtung gezeigt), welche sich an diesen sammeln. Dies entspricht einer Integration über alle Teilströme und erlaubt die Bestimmung der Lage des COM  $\vec{k}_{COM}$  nur durch die Messung der vier Gesamtströme, welche über die Elektroden abfließen. In **b** treffen zwei gleich intensive Teilstrahlen auf die PSD. Dadurch, dass sich die Teilströme zu den Elektroden X1 und X2 aufaddieren, misst die PSD einen Punkt, welcher exakt zwischen den beiden einfallenden Strahlen liegt. Dieser entspricht wiederum dem COM. (Abbildung a nach [23])

Für einen Punkt  $\vec{k} = (k_x, k_y)$  auf der (bestrahlten) aktiven Fläche entspricht der Quotient der beiden Widerstände  $R_{X1}$  und  $R_{X2}$ :

$$\frac{dI_{X1}}{dI_{X2}} = \frac{R_{X2}}{R_{X1}} \quad (4.11)$$

Auflösen nach  $dI_{X1}$  und  $dI_{X2}$  liefert die entsprechenden infinitesimalen Anteile der Ströme, ausgehend von einem infinitesimalen Flächenstück  $dk_x dk_y$  (rot markiert in Abbildung 4.3a), zu den Elektroden X1 und X2:

$$dI_{X1} = \frac{R_{X2}}{R_{X1}} \cdot dI_{X2} \quad (4.12)$$

$$dI_{X2} = \frac{R_{X1}}{R_{X2}} \cdot dI_{X1} \quad (4.13)$$

Dabei ist der Gesamtstrom  $dI$  durch die endliche Anzahl der am Ort  $\vec{k}$  erzeugten Ladungsträger begrenzt, und zudem ist er direkt proportional zu der Strahlstromdichte am jeweiligen Ort  $i(\vec{k})$ , sodass sich für  $dI$  folgender Zusammenhang ergibt:

$$dI = dI_{X1} + dI_{X2} \propto i(k_x, k_y) dk_x dk_y \quad (4.14)$$

Jeweiliges Einsetzen der Gleichungen 4.12 und 4.13 in Gleichung 4.14 ergibt:

$$\stackrel{Gl.4.12}{\implies} dI_{X1} = \frac{\frac{R_{X2}}{R_{X1}} \cdot dI}{1 + \frac{R_{X2}}{R_{X1}}} \quad (4.15)$$

$$\stackrel{Gl.4.13}{\implies} dI_{X2} = \frac{\frac{R_{X1}}{R_{X2}} \cdot dI}{1 + \frac{R_{X1}}{R_{X2}}} \quad (4.16)$$

Unter Anwendung von Gleichung 4.1 resultieren schließlich Formeln, welche die beiden infinitesimalen Ströme  $dI_{X1}$  und  $dI_{X2}$  mit der Lage des Punktes  $k_x$  (von welchem sie ausgehen) und dem Kontaktabstand  $L$  in Relation setzen:

$$dI_{X1} = \frac{L - 2k_x}{2L} dI \quad (4.17)$$

$$dI_{X2} = \frac{L + 2k_x}{2L} dI \quad (4.18)$$

Bis hierher beziehen sich diese Formeln nur auf den Anteil des Stromes von jeweils einem Punkt der kompletten vom Elektronenstrahl beleuchteten Detektorfläche. Um den Schwerpunkt der gesamten Elektronenverteilung  $i(k_x, k_y)$  zu bestimmen, müssen jeweils die Gesamtströme  $I_{X1}$  und  $I_{X2}$  zu den Elektroden X1 und X2 berechnet werden. Diese ergeben sich durch Integration der jeweiligen infinitesimalen Teilströme  $dI_{X1}$  und  $dI_{X2}$ , welche proportional zu den lokalen Strahlstromdichten  $i(k_x, k_y)dk_x dk_y$  sind, über die gesamte aktive Detektorfläche [23]:

$$I_{X1} \propto \int_{-L/2}^{L/2} \left( \int_{-L/2}^{L/2} \frac{L - 2k_x}{2L} i(k_x, k_y) dk_x \right) dk_y \propto S_{X1} \quad (4.19)$$

$$I_{X2} \propto \int_{-L/2}^{L/2} \left( \int_{-L/2}^{L/2} \frac{L + 2k_x}{2L} i(k_x, k_y) dk_x \right) dk_y \propto S_{X2} \quad (4.20)$$

Zur Herleitung dieser Formeln wurde die Proportionalität zwischen  $i(k_x, k_y)$  und  $dI(k_x, k_y)$  verwendet (siehe Gleichung 4.14). Die im letzten Schritt angenommene direkte Proportionalität zwischen den Strömen und den jeweiligen gemessenen Spannungen ist gerechtfertigt, da die hierfür verwendete Transimpedanzverstärkung linear ist. Durch Einsetzen dieser Definitionen in Gleichung 4.6 ergibt sich schlussendlich für die  $k_x$ -Richtung:

$$\frac{S_{X1} - S_{X2}}{S_{X1} + S_{X2}} \cdot \frac{L}{2} = \frac{\int_{-L/2}^{L/2} \left( \int_{-L/2}^{L/2} i(k_x, k_y) k_x dk_x \right) dk_y}{\int_{-L/2}^{L/2} \left( \int_{-L/2}^{L/2} i(k_x, k_y) dk_x \right) dk_y} =: k_{x,COM} \cdot \hat{k}_x \quad (4.21)$$

Dies entspricht der integralen Form der Definition einer der Richtungskomponenten des Schwerpunktes der Elektronenverteilung  $i(k_x, k_y)$ . Wie bereits erwähnt, erfolgt die Herleitung für die orthogonale  $k_y$ -Richtung analog.

Diese Herleitung beweist, dass es mit einer PSD möglich ist, das COM einer beliebigen Elektronenverteilung nur durch die Messung der vier Detektorsignale zu bestimmen.[70] Es sei angemerkt, dass der einfallende Elektronenstrahl weder homogen noch zusammenhängend sein muss, um die Lage des COM bestimmen zu können. Dies wird in Abbildung 4.3b anhand der Messung des COM zweier gleichzeitig auf den Detektor einfallenden (punktförmigen) Elektronenstrahlen mit gleicher Strahlstromdichte verdeutlicht. Hier addieren sich die Teilströme, welche von den beiden Auftreffpunkten ausgehen, an den Kontakten X1 und X2 auf. Wird schließlich gemäß Gleichung 4.6 das COM berechnet ergibt sich als Ergebnis für diese Situation ein Punkt, welcher in der Mitte zwischen den beiden einfallenden Strahlen liegt.

## 4.2 Theoretische Überlegungen zur Positionsgenauigkeit

Nachdem im letzten Abschnitt gezeigt wurde, dass es mit einer PSD theoretisch möglich sein sollte, die Position des COMs des Elektronenstrahls zu bestimmen, werden im Folgenden theoretische Überlegungen zu der Positionsgenauigkeit angestellt. Anhand der Ergebnisse von Computersimulationen kann eingeschätzt werden, ob die Positionsgenauigkeit einer PSD für den Einsatz als Detektor für die Differentielle Phasenkontrastmikroskopie ausreichend ist. Des Weiteren kann von den hier gezeigten Ergebnissen abgeleitet werden, welche experimentellen Parameter, beziehungsweise Mikroskopeinstellungen, zu einer höheren Messempfindlichkeit führen. Dies ist besonders im Hinblick auf die Planung und Durchführung erster experimenteller Funktionstests der PSD im Mikroskop hilfreich.

### 4.2.1 Simulationen

Mittels Computersimulationen wurde analysiert, welchen Einfluss Größe und Intensität des Beugungsscheibchens auf die Messgenauigkeit einer PSD haben. Dabei wurde sich hier auf die Untersuchung von Beugungsscheibchen mit einer homogenen Intensitätsverteilung eingeschränkt. Die Ergebnisse dieses Abschnitts dienen somit hauptsächlich zur Einschätzung der Leistungsfähigkeit des PSD-Detektors für cDPC-Messungen, also der Messung der Verschiebung homogener Beugungsscheibchen. Auf eine Analyse der Auswirkung von Beugungsscheibchen mit einer inhomogenen Intensitätsverteilung wurde an dieser Stelle verzichtet. Die Leistungsfähigkeit der PSD bei moreSTEM-Messungen an atomarer Feldverteilungen im HMSTEM-Betrieb, wurde in dieser Arbeit ausschließlich experimentell eingeschätzt (siehe Abschnitt 6.2).

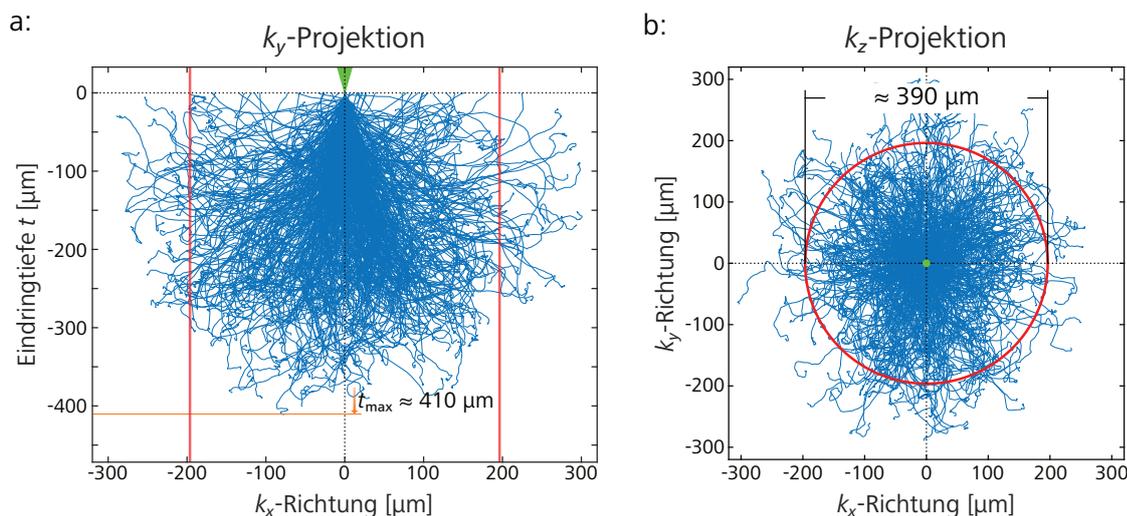
**Methode** Nachfolgend wird die angewendete Simulationsmethode beschrieben. Als Simulationsumgebung diente in dieser Arbeit das Programm *Matlab* der Firma Mathworks in den Versionen 2018a/b. Der Ablauf der einzelnen Simulationen gestaltete sich wie folgt: Für einen bestimmten Satz an Simulationsparametern (siehe unten) wurden mehrere, sich daraus ergebende, Beugungsscheibchen mit zufälligen Elektronenverteilungen erzeugt. Von jeder dieser Verteilungen wurde die Lage des Intensitätsschwerpunktes berechnet. Auf Grund statistischer Schwankungen der Elektronenverteilungen schwanken die errechneten Werte des COMs um das vorab festgelegte geometrische Zentrum des Beugungsscheibchens. Das Zentrum wurde der Einfachheit halber auf den Koordinaten-Ursprung des Detektors gelegt. Als Kenngröße für die Positionsempfindlichkeit einer PSD dient an dieser Stelle die Standardabweichung dieser Messwertverteilung.

Als Grundlage für diesen Ablauf wird zunächst ein geeignetes Modell zur Beschreibung des (homogenen) Beugungsscheibchens auf dem Detektor benötigt. Es lässt sich vereinfacht als kreisförmige Anordnung statistisch verteilter Primärstrahlelektronen (kurz PE) beschreiben. Dabei ist mit statistisch eine homogene Zufallsverteilung der Elektronen gemeint. In der Simulation können die Anzahl  $N_{PE}$ , der Radius  $R$  sowie die Position des geometrischen Mittelpunkts des Scheibchens auf dem Detektor frei gewählt werden. Bei der Modellierung der Beugungsscheibchen wurde auch die homogene Verbreiterung des Elektronenstrahls im Detektormaterial sowie die damit verbundene Erzeugung von Sekundärladungen (kurz SE) (vergleiche Abschnitt 4.1) im Bereich der Anregungsbirne miteinbezogen. Dazu wurde angenommen, dass jedes PE auf seinem Weg durch das Detektormaterial 10.000 SE erzeugt. Die Anzahl der erzeugten SE liegt dabei in der Größenordnung der tatsächlich zu erwartenden Anzahl an Sekundärladungen, welche ein Elektronenstrahl mit 300 keV Energie erzeugen kann (vergleiche Abschnitt 4.1 und [52]). Es wurde vereinfachend angenommen, dass die SE gemäß einer zweidimensionalen Normalverteilung um jeden Auftreffpunkt eines Strahlelektrons verteilt sind.

Um die Breite der Anregungsbirne im verwendeten Detektormaterial abzuschätzen, wurde die frei verfügbare Monte-Carlo Simulationssoftware *CASINO*<sup>3</sup> in der Version 2.42 verwendet (siehe [94]). Diese an der Gruppe von R. Gauvin an der Universität Sherbrook entwickelte Software wird typischerweise in der Elektronenmikroskopie zur Simulation von Verteilungen der Elektronentrajektorien in Festkörpern verwendet. In Abbildung 4.4 ist das Ergebnis einer solchen Simulation, dargestellt in zwei verschiedenen Projektionen, gezeigt. Es trifft ein fokussierter konvergenter Elektronenstrahl (grün markiert) mit einer kinetischen Energie von 300 keV und einer Sondenbreite  $d_s = 0.1$  nm auf einen reinen Siliziumkristall. Letzterer dient als ein vereinfachtes Modell der verwendeten, auf einer Silizium pin-Diode basierenden, PSD. Die im realen Bauteil vorhandenen dotierten Schichten wurden wegen mangelnder Informationen über deren tatsächlichen Aufbau (Schichtdicken, Art und Stärke der Dotierung) der PSD vernachlässigt. Für die hier angestrebte Abschätzung der Größe der

---

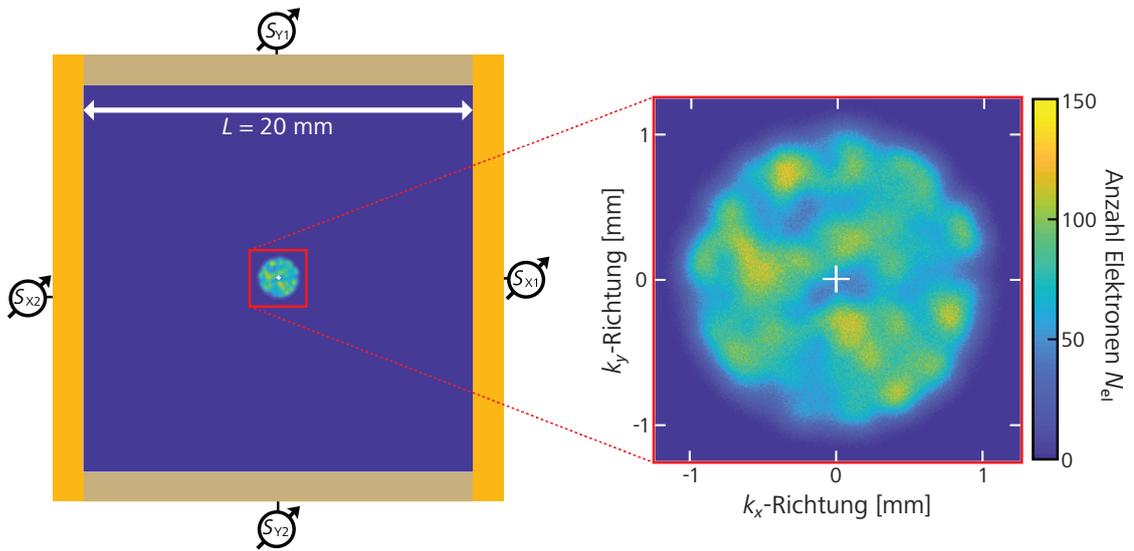
<sup>3</sup>engl. monte carlo simulation of electron trajectory in solids



**Abb. 4.4:** Ergebnis der Casino-Simulation [94] zur Untersuchung der Aufweitung des Elektronenstrahls im Inneren einer reinen Siliziumschicht. Der auftreffende konvergente Elektronenstrahl hat dabei eine Sondenbreite  $d_s$  von 0,1 nm und eine kinetische Energie von 300 keV. In **a** ist eine Seitenansicht (Projektion in  $k_y$ -Richtung) und in **b** ist die Draufsicht (Projektion in  $k_z$ -Richtung) der sich ergebenden Elektronentrajektorien in der Siliziumschicht gezeigt. Es wurden die Eindringtiefe (circa 410  $\mu\text{m}$ ) und Breite der Anregungsbirne (circa 390  $\mu\text{m}$ ) ermittelt.

Strahlverbreiterung ist die Annahme eines ausschließlich aus Silizium bestehenden Detektors dennoch ausreichend. In Abbildung 4.4a ist eine Seitenansicht (Projektion in  $k_y$ -Richtung) und in Abbildung 4.4b ist eine Draufsicht (Projektion in  $k_z$ -Richtung) der sich ergebenden Elektronen-Trajektorien gezeigt. Um statistische Ausreißer abzufangen, wurde als Breite der Anregungsbirne der Bereich festgelegt, welcher die Endpunkte von 95 % aller Trajektorien enthält (rot markierte Bereiche). Auf diese Weise ergibt sich für die Breite der Anregungsbirne  $b_a$  ein Wert von  $b_a \approx 390 \mu\text{m}$ . Zudem konnte mit dieser Simulation die maximale Eindringtiefe  $t_{\text{max}} \approx 410, \mu\text{m}$  des Elektronenstrahls ermittelt werden.

In der Simulation des Beugungsscheibchens wurde die Breite der zweidimensionalen SE-Verteilung  $\sigma$  entsprechend so gewählt, dass 95 % der normalverteilten Sekundärelektronen in einem Bereich um jeden Auftreffpunkt der PE mit Radius  $R \approx \frac{390}{2} \mu\text{m}$  liegen. Dabei wurde vernachlässigt, dass die SE strenggenommen nur entlang einer einzelnen Trajektorie eines Strahlelektrons erzeugt werden. Die Annahme einer Normalverteilung der SE ist aber dennoch gerechtfertigt. Da jedes Strahlelektron einen anderen Pfad durch das Detektormaterial nimmt – wobei Pfade in Vorwärtsrichtung wahrscheinlicher sind – mitteln sich eventuelle Ungleichgewichte in der SE-Verteilung heraus. Zudem führt eine thermische Diffusion der erzeugten Sekundärladungen zu einer weiteren homogenen Verteilung im Detektormaterial. Im Hinblick auf eine reale Messsituation, bei der die Anzahl der auf den Detektor einfallenden Elektronen so groß ist, dass auf jeden Ort im Beugungsscheibchen mehrere Elektronen einfallen, ist die Annahme einer homogenen Anregungsbirne auf jeden Fall gerechtfertigt. Abbildung 4.5 zeigt eines der simulierten Beugungsscheibchen mit einem



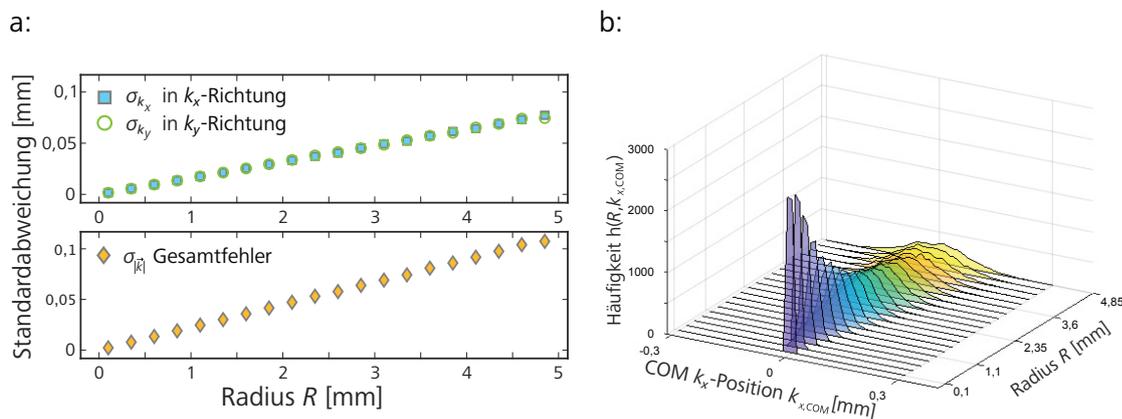
**Abb. 4.5:** Diese Abbildung zeigt eines der simulierten Beugungsscheibchen ( $R = 1 \text{ mm}$ ,  $N_{\text{PE}} = 1.000$  und  $N_{\text{SE}} = 10.000$ ), welches mittig auf den PSD-Detektor positioniert wurde.

Radius  $R = 1 \text{ mm}$ , einer PE Anzahl  $N_{\text{PE}} = 1.000$  und einer SE-Anzahl von  $N_{\text{SE}} = 10.000$ , welches mittig auf dem Detektor (Kantenlänge  $L = 20 \text{ mm}$ ) platziert wurde. In der Vergrößerung des rot markierten Bereichs sind gut die statistischen Schwankungen der Elektronenverteilung erkennbar. Die Lage des errechneten COMs entspricht hier:

$$\vec{k}_{\text{COM}} = \begin{pmatrix} -1,7 \\ -7,98 \end{pmatrix} \cdot 10^{-4} \text{ mm}$$

Dies ergibt eine Abweichung  $|\vec{k}_{\text{COM}}| = 0,81 \mu\text{m}$  von der eigentlichen Lage des geometrischen Mittelpunkts des Scheibchens. Um statistische Schwankungen der Messwerte auszugleichen, wurden für jede Kombination von Simulationsparametern 5.000 einzelne Beugungsscheibchen erzeugt und von jedem die Lage des COMs berechnet. Auf diese Weise ergibt sich für jede Detektionsrichtung eine Gauss-förmige Verteilung der  $k_x$ - und  $k_y$ -COM-Positionen (vergleiche zum Beispiel Abbildung 4.6b). Wie bereits erwähnt, entspricht der gesuchte Messfehler der COM-Positionsmessung der Standardabweichung  $\sigma$  dieser Messwertverteilungen.

**Größenabhängigkeit** Um zu analysieren, welchen Einfluss die Größe des Beugungsscheibchens auf dem Detektor hat, wurde eine Simulationsreihe mit variierenden Werten des Scheibchenradius  $R$  bei ansonsten konstanten Parametern durchgeführt. Die Radien wurden dabei von  $0,1 \text{ mm}$  bis  $4,85 \text{ mm}$  in  $0,25 \text{ mm}$  Schritten vergrößert. Die PE- und SE-Anzahl lagen für jede Simulation konstant bei  $N_{\text{PE}} = 1.000$  und  $N_{\text{SE}} = 10.000$ . Das Ergebnis dieser Simulation ist in Abbildung 4.7 dargestellt. Abbildungsteil a zeigt sowohl die resultierenden Messfehler für die beiden Detektionsrichtungen ( $\sigma_{k_x}$  und  $\sigma_{k_y}$ ), als auch den Gesamtfehler beider Richtungen  $\sigma_{|\vec{k}|} = \sqrt{\sigma_{k_x}^2 + \sigma_{k_y}^2}$ . Es ist gut zu erkennen, dass der Fehler linear mit steigendem  $R$  ansteigt.



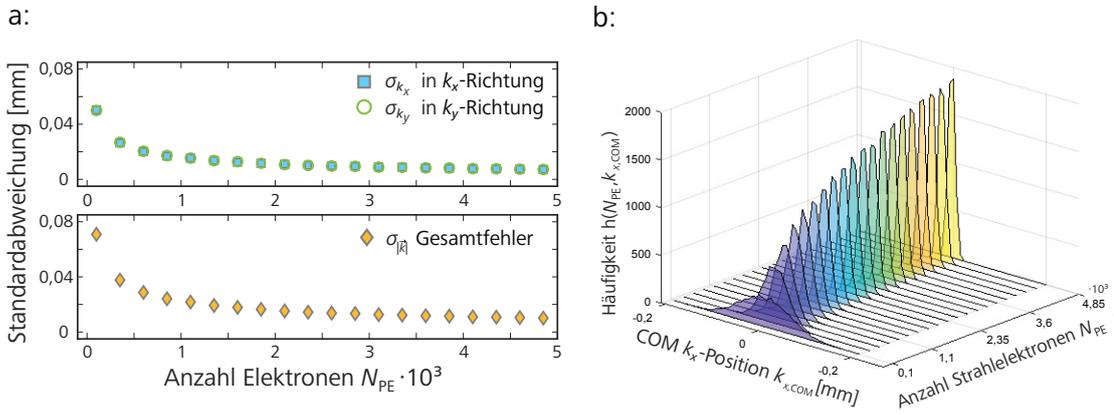
**Abb. 4.6:** Simulationsergebnis der Untersuchung der Abhängigkeit des Messfehlers von der Größe des Beugungsscheibchens. In **a** sind sowohl die Standardabweichungen der einzelnen Richtungskomponenten, als auch der Gesamtfehler  $\sigma_{|\vec{k}|}$  in Abhängigkeit von  $N_{PE}$  gezeigt. Es ergibt sich ein linearer Anstieg des Messfehlers mit steigendem  $R$  (**a**). Der minimale Wert von  $\sigma_{|\vec{k}|}$  beträgt hier  $2,2\ \mu\text{m}$ . In **b** sind exemplarisch die Messwertverteilungen der  $k_x$ -COM-Positionen für die unterschiedlichen Radien als Histogramme gezeigt.

Wird der Gesamtfehler betrachtet, ergibt sich eine minimale Standardabweichung von  $\sigma_{|\vec{k}|} = 2,2\ \mu\text{m}$  ( $R = 0,1\ \text{mm}$ ) und ein maximaler Wert von  $\sigma_{|\vec{k}|} = 100,9\ \mu\text{m}$  ( $R = 4,85\ \text{mm}$ ). In Abbildungsteil b ist exemplarisch die Messwertverteilung der COM-Positionen in  $k_x$ -Richtung in Abhängigkeit von  $R$  gezeigt. Die immer breiter werden, den Messfehlern zugrundeliegenden, Gauss-förmigen Verteilungen der COM-Positionen sind gut zu erkennen.

Im Hinblick auf reale Messsituationen sollten also Mikroskopeinstellungen verwendet werden, die kleinere Beugungsscheibchen zur Folge haben. Experimentell lässt sich dies zum Beispiel mittels kürzeren Kameralängen oder der Wahl einer C2-Blende mit kleinerem Durchmesser realisieren. Dabei sollte aber bedacht werden, dass ein zu kleiner Elektronenstrahl mit einer hohen Strahlstromdichte in der Detektorebene eventuell zu einer schnelleren Degradation des PSD-Detektors führen kann. Zudem sollte bei Messungen, bei denen nicht eine Verschiebung des Beugungsscheibchens, sondern eine Umverteilung der Intensität im Inneren analysiert werden soll, die Scheibchengröße ebenfalls nicht zu klein sein (siehe Abschnitt 6.2).

Zusammenfassend zeigt sich, dass trotz der relativ niedrigen Anzahl an Strahlelektronen die Simulation vielversprechende Ergebnisse im Sinne einer zu erwartenden Positionsgenauigkeit im  $\mu\text{m}$ -Bereich liefert. Dies ist besonders im Hinblick auf die Anwendung einer PSD als Ersatz für einen DPC-Ringdetektor ein gutes Ergebnis.

**Intensitätsabhängigkeit** Zur Untersuchung des Einflusses der Intensität des Elektronenstrahls auf die Genauigkeit der COM-Positionsbestimmung wurde in der zweiten Simulationsreihe die Anzahl der Primärelektronen  $N_{PE}$  von 100 auf 4.850 in Schritten von jeweils 250 erhöht. Der Radius des Beugungsscheibchens und die Anzahl der



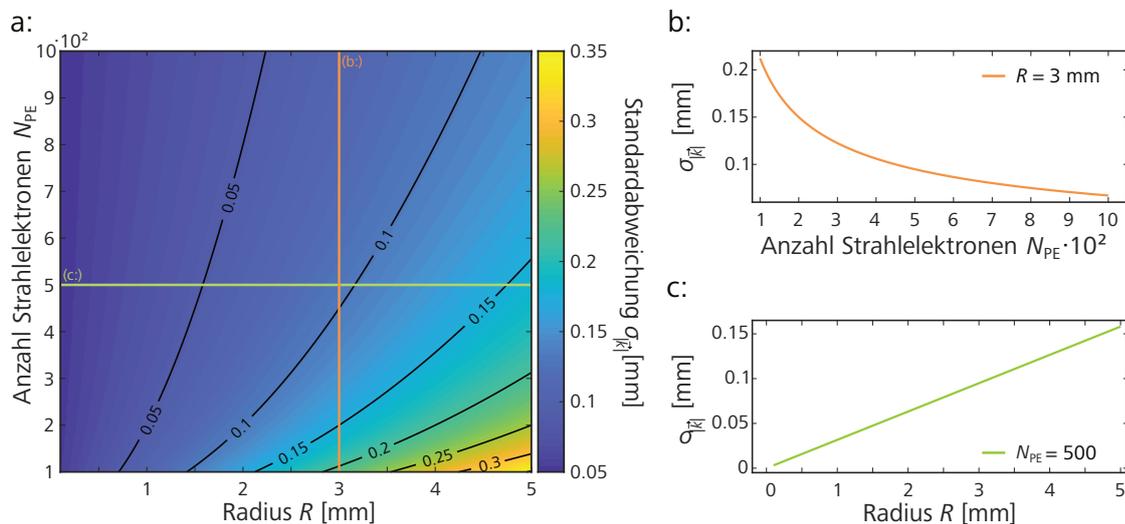
**Abb. 4.7:** Simulationsergebnis der Untersuchung der Abhängigkeit des Messfehlers von der Intensität des Beugungsscheibchens. Es zeigt sich, dass der Messfehler mit steigender Elektronenzahl  $N_{PE}$  (Intensität) in einer  $\frac{1}{\sqrt{N_{PE}}}$ -Abhängigkeit abnimmt (a). Für den Gesamtfehler beider Richtungen ergibt sich ein minimaler Wert von  $\sigma_{|\vec{k}|} = 10,1 \mu\text{m}$ . In b sind exemplarisch die den berechneten Standardabweichungen zugrunde liegenden Messwertverteilungen der  $k_x$ -COM-Positionen für unterschiedliche Anzahlen an Strahlelektronen gezeigt.

Sekundärelektronen betragen dabei  $R = 1 \text{ mm}$  beziehungsweise  $N_{SE} = 10.000$ . Die Ergebnisse sind in Abbildung 4.7, analog zu denen in Abbildung 4.6, dargestellt. Es zeigt sich, dass der Messfehler mit steigender Elektronenzahl  $N_{PE}$  in einer  $\sigma_{|\vec{k}|} \propto \frac{1}{\sqrt{N_{PE}}}$ -Abhängigkeit abnimmt. So ergibt sich zum Beispiel für  $N_{PE} = 0,1 \cdot 10^3$  Elektronen ein Fehler von  $\sigma_{|\vec{k}|} = 70,1 \mu\text{m}$  und für  $N_{PE} = 4,85 \cdot 10^3$  ein Fehler von  $\sigma_{|\vec{k}|} = 10,1 \mu\text{m}$ .

Basierend auf diesen Simulationsergebnissen sollten zugunsten der Messgenauigkeit solche Einstellungen am Mikroskop gewählt werden, die zu einem erhöhten Strahlstrom und somit zu einer größeren Anzahl an detektierten Elektronen (Primär- und Sekundärladungen) führt. Aus experimenteller Sicht kann dies zum Beispiel durch die Wahl einer größeren C2-Blende oder über niedrigere *Spotsizes*-Werte (siehe Abschnitt 2.1.2) realisiert werden. Dabei muss darauf geachtet werden, dass der Detektor nicht durch einen zu großen Strom in Sättigung gerät und somit „blind“ wird. Außerdem kann ein zu großer Strom die Probe durch Kohlenstoffkontamination verunreinigen oder auch deren Struktur durch Strahlenschäden zerstören.

#### 4.2.2 Analytisches Modell

Basierend auf den im Zuge dieser Arbeit durchgeführten Simulationen wurde von Simon Pöllath ein analytisches Modell entwickelt. Dies erlaubt es, den Messfehler, hier die Standardabweichung  $\sigma_{|\vec{k}|}$ , in Abhängigkeit von der Anzahl der Primär- und Sekundärelektronen  $N_{PE}$  und  $N_{SE}$ , der Größe des Beugungsscheibchens  $R$  sowie von der Ausdehnung der Anregungsbirne darzustellen. Es ergibt sich der folgende



**Abb. 4.8:** **a** zeigt die graphische Auswertung von Gleichung 4.22 als Konturplot. **b** und **c** zeigen Schnitte entlang der in **a** eingezeichneten Linien (orange und grün markiert). Ein Vergleich des analytischen Modells mit den Ergebnissen der Simulationen zeigt, dass sich hier die gleichen funktionellen Abhängigkeiten des Messfehlers von der Größe und Intensität des Beugungsscheibchens ergeben.

formelle Zusammenhang für den Messfehler (Standardabweichung):

$$\sigma_{|\vec{k}|} = \sqrt{\frac{R^2}{2N_{PE}} + \frac{2\sigma_{SE}^2}{N_{PE}N_{SE}}} \quad (4.22)$$

Die Herleitung dieser Formel findet sich im Anhang dieser Arbeit (siehe Anhang A.2).

Eine graphische Auswertung von Gleichung 4.22 ist in Abbildung 4.8 gezeigt. Der Wertebereich des Scheibchenradius  $R$  läuft dabei von 0,1 mm bis 5 mm; die Anzahl der Strahlelektronen  $N_{PE}$  wurde kontinuierlich von 100 bis 1.000 erhöht. Die Anzahl der Sekundärelektronen beträgt, wie bei den Simulationen,  $N_{SE} = 10.000$ ; für die Standardabweichung der Sekundärelektronenverteilung wurde ein Wert von  $\sigma_{SE} = 0,08$  mm gewählt. Letztere liefert eine für Silizium typische Breite der Anregungsbirne von  $\approx 360 \mu\text{m}$  (Strahlenergie von 300 keV). In Abbildung 4.8a ist das Ergebnis als Kontur-Plot dargestellt, Teilabbildungen b und c zeigen Schnitte entlang der beiden in Abbildungsteil a eingezeichneten Richtungen (grün und orange markiert). So zeigt Abbildung b die Abhängigkeit von  $\sigma_{|\vec{k}|}$  von  $N_{PE}$  für einen konstanten Radius ( $R = 3$  mm) und Abbildung c diejenige von  $R$  für eine konstante Teilchenzahl ( $N_{PE} = 500$ ). Sowohl für die  $N_{PE}$ - als auch die  $R$ -Abhängigkeit zeigt sich ein ähnliches Bild wie bei den durchgeführten Simulationen. Für einen konstanten Wert von  $R$  ergibt sich nach Gleichung 4.22 eine  $\sigma_{|\vec{k}|} \propto \frac{1}{\sqrt{N_{PE}}}$ -Abhängigkeit und für eine konstante Elektronenzahl ein linearer Zusammenhang zwischen  $\sigma_{|\vec{k}|}$  und  $R$ . Der Konturplot zeigt anschaulich auf, dass die besten Messergebnisse – im Sinne der Positionsgenauigkeit der COM-Messung – für kleine Radien und große Strahlströme, also für Beugungsscheibchen mit größeren Strahlstromdichten  $j$  zu erwarten sind.

Für eine typische STEM-Messsituation mit einem Beugungsscheibchen, mit einem Radius von  $R = 2 \text{ mm}$  und einem Strahlstrom<sup>4</sup> von  $0,5 \text{ nA}$ , würde sich laut Gleichung 4.22 für die zu erwartende Standardabweichung ein Wert von  $\sigma_{|\vec{k}|} = 8 \mu\text{m}$  ergeben. Dieser Wert stellt im Hinblick auf die reale Anwendung einer PSD als COM-Detektor in einem Elektronenmikroskop ein vielversprechendes Ergebnis, im Sinne der zu erwartenden Positionsgenauigkeit, dar. Zudem kann der absolute Messfehler (Standardfehler) durch mehrmaliges Messen der COM-Position pro Rasterpunkt weiter reduziert werden. So würde sich für das gezeigte Beispiel bereits durch fünfmaliges Mitteln ein absoluter Fehler von  $\frac{\sigma_{|\vec{k}|}}{\sqrt{5}} = \frac{8 \mu\text{m}}{\sqrt{5}} = 3,5 \mu\text{m}$  ergeben.

---

<sup>4</sup>Die Anzahl der Strahlelektronen wurde über  $N_{\text{PE}} = \frac{0,5 \text{ nA}}{e} \cdot 10^{-6} \text{ s} \approx 31.210 \text{ SE}$  abgeschätzt, wobei  $e$  der Elementarladung eines Elektrons entspricht.

# 5 Realisierung und Charakterisierung des PSD-Systems

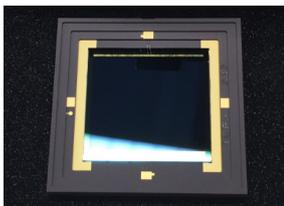
Mit diesem Kapitel beginnt der experimentelle Teil dieser Arbeit. In diesem und im nächsten Kapitel werden unter anderem die Realisierung und die Charakterisierung sowie erste Ergebnisse von Messungen mit dem entwickelten PSD-Messsystem an realen Proben, sowohl im LM- als auch HMSTEM-Betrieb, präsentiert. Zunächst wird beschrieben, auf welche Art und Weise eine kommerziell erhältliche PSD, als Detektor zur Messung des lateralen Elektronenimpulses, in ein (S)TEM implementiert wurde. Darauf folgt eine Charakterisierung der Leistungsfähigkeit des neuartigen Detektors. Dabei wurden speziell die Positionsgenauigkeit der COM-Messung, die für DPC- beziehungsweise moreSTEM-Messungen wichtige Detektorlinearität und die Messempfindlichkeit des Detektors für Beugungsscheibchen unterschiedlicher Größe und Intensität, untersucht. Im Zuge dieser Dissertation wurden mehrere Master-, Diplom- und Bachelorarbeiten betreut, welche sich mit Teilaspekten dieser Arbeit auseinandersetzten (siehe [95–101]). So war die Entwicklung des elektromechanischen Aufbaus des PSD-Detektors Teil der Masterarbeit von C. Habenschaden [95]. Die Messung der Positionsgenauigkeit mittels definierter elektrischer Felder entstand in Zusammenarbeit mit P. Melzl [96]. An Textstellen, bei denen eine tiefere Erläuterung den Rahmen dieser Arbeit überschreiten würde, wird auf die entsprechenden Ergebnisse der betreuten Abschlussarbeiten verwiesen.

## 5.1 Experimenteller Aufbau

Eines der Hauptziele dieser Arbeit war es, eine kommerziell erhältliche PSD in das an der Arbeitsgruppe vorhandene (S)TEM, einem *Tecnai F30* der Firma FEI<sup>1</sup>, permanent als COM-Detektor zu implementieren. Der Einbau eines zusätzlichen Detektors in ein bestehendes (S)TEM ist aufgrund der typischerweise nicht vorhandenen standardisierten Anschlussmöglichkeiten oder Trägersysteme ein schwieriges Unterfangen. Das eingeschränkte Platzangebot in der sogenannten Projektionskammer, welche unterschiedliche Detektoren (Kameras, STEM- und DPC-Detektoren) sowie den

---

<sup>1</sup>jetzt ThermoFisher



<b>Sensortyp:</b>	Duo-laterale Positionempfindliche Silizium Diode (optimiert für UV-Licht)
<b>Aktive Fläche:</b>	20 mm · 20 mm
<b>Flankenanstiegszeit:</b>	1,6 $\mu$ s (von 10 % - 90 % des Dynamikbereichs)
<b>Dunkelstrom:</b>	200 nA
<b>Linearitätsabweichung:</b>	$\pm$ 1% (gilt für 80 % der Kantenlänge)
<b>Maximale Vorspannung:</b>	30 V

**Abb. 5.1:** Diese Abbildung enthält die für diese Arbeit wichtigen Kenndaten der verwendeten duolateralen PSD des Typs *2L20UV\_CP7\_NW* der Firma SiTek (Datenblatt: [93]).

Leuchtschirm beherbergt, stellt weitere Anforderungen an ein geeignetes Detektor-konzept. Die Vakuumdichtigkeit und die Abschirmung der im Mikroskop entstehenden Röntgenstrahlung sind weitere wichtige Aspekte, die bedacht werden müssen. Im Folgenden wird die finale Realisierung des PSD-Messsystems kurz erläutert.

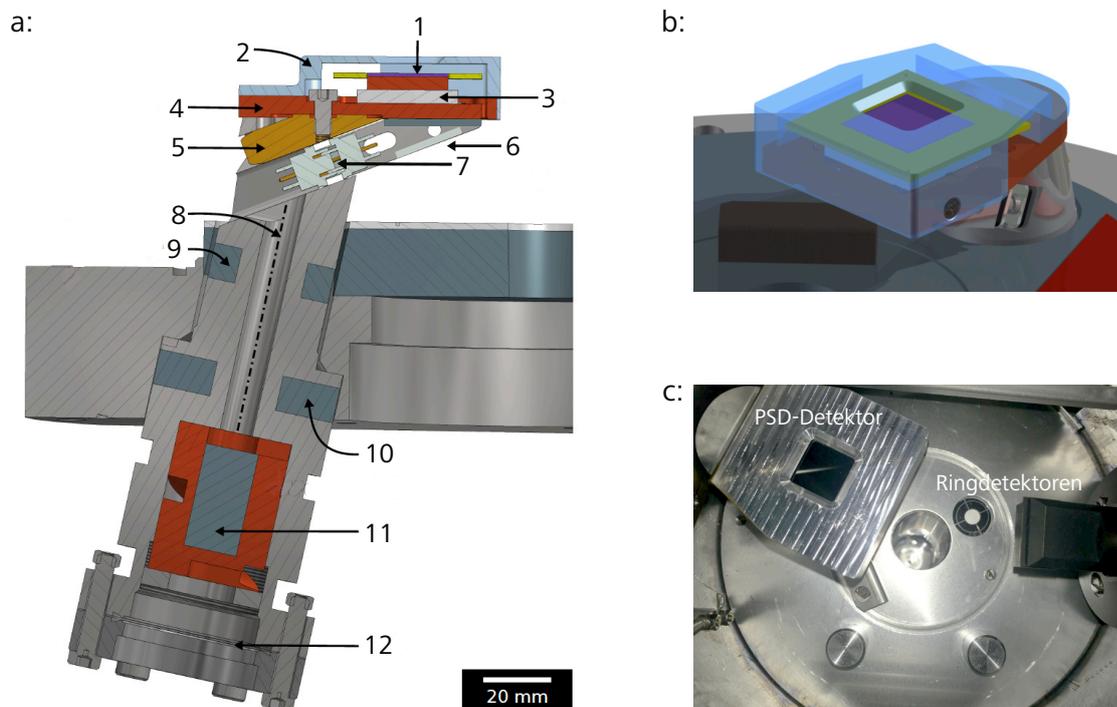
### 5.1.1 Verwendete PSD

Im Verlauf dieser Arbeit wurden mehrere unterschiedliche kommerziell erhältliche duolaterale PSDs auf deren Eignung für den Einsatz als COM-Detektor getestet. Als ein geeigneter Kandidat stellte sich schließlich die in Abbildung 5.1 gezeigte, für die Detektion von UV-Licht optimierte, PSD des Typs *2L20UV\_CP7\_NW* (Datenblatt: [93]) der Firma SiTek<sup>2</sup> heraus. Gründe für diese Wahl waren die große aktive Fläche von 20 mm · 20 mm, das schnelle Antwortvermögen mit einer Flankenanstiegszeit von circa 1,6  $\mu$ s sowie die gute Detektorlinearität (siehe Abbildung 5.1). Zudem zeigten erste Tests im TEM, dass diese PSD das beste Signal-Rausch-Verhältnis, sowie das niedrigste Dunkelrauschen aller getesteten Bauteile liefert. Ein weiterer Vorteil war, dass diese spezielle PSD ohne eine Sensorabdeckung aus Glas, welche den Elektronenstrahl blockieren würde, ausgeliefert werden kann.

### 5.1.2 Elektromechanischer Aufbau

In Abbildung 5.2 ist der finale Aufbau des PSD-Messsystems, wie es experimentell realisiert wurde, gezeigt. Der zweiteilige Aufbau bestehend aus einer Trägereinheit, welche zudem auch als Vakuumdurchführung für Versorgungs- und Messleitungen dient, und einer austauschbaren Sensorhalterung, die den PSD-Sensor sowie weitere

<sup>2</sup>Deutscher Vertriebspartner ist die Firma Lasercomponents



**Abb. 5.2:** **a** zeigt einen Querschnitt durch die Durchführung mit montiertem Sensorhalter am Off-Axis-Port der Bodenplatte des Tecnai F30. **Baugruppe Sensorhalter:** (1) PSD-Sensor, (2) Aluabdeckung, (3) Peltier-Element, (4) Kupfer-Bodenplatte des Sensorhalters, (5) Messing-Passteil (6) PSD-Ausleseelektronik SPC02, (7) D-Sub Steckverbindung. **Baugruppe Vakuum-Signal-Durchführung:** (8) Durchführung mit Bohrung als Kabelkanal, (9)-(11) Bleischirmungen, (12) CF40-Flansch. **b** zeigt eine Bildsynthese des Sensorhalters im Mikroskop. In **c** ist eine Fotografie des Innenraumes der Projektionskammer mit montiertem PSD-Detektor gezeigt. (Abbildungen a/b entnommen aus [95] und verändert)

elektronische Komponenten und Anschlüsse beherbergt. Weitere Abbildungen finden sich im Anhang dieser Arbeit (siehe Anhang A.2) sowie in der Masterarbeit von C. Habenschaden [95]. Die Durchführung wurde so konstruiert, dass sie an dem Port für Off-Axis-Detektoren des Mikroskops verwendet werden kann. Dieser Anschluss ist sowohl an dem Tecnai F30 der Arbeitsgruppe als auch an der neueren Titan-(S)TEM-Baureihe von FEI vorhanden (und typischerweise unbelegt). Im Folgenden werden die wichtigsten Komponenten der beiden Baugruppen beschrieben.

**Sensorhalter** Als direktes Trägersystem für die PSD (siehe Abbildung 5.2a (1)) dient ein wechselbarer Sensorhalter, welcher sowohl die PSD, als auch die Ausleseelektronik (siehe unten) und ein Peltier-Kühlsystem mit Temperaturmessung enthält. Abbildung 5.2b zeigt eine Bildsynthese des Sensorhalters (erstellt mit *AutoCAD* von Autodesk), Teilabbildung c zeigt eine Fotografie des Sensorhalters in der Projektionskammer des Mikroskops. Auf letzterer ist gut zu erkennen, dass trotz der limitierten Platzverhältnisse keiner der anderen vorhandenen Detektoren (zum Beispiel die beiden DPC-Ringdetektoren und der in deren Mitte untergebrachte BF-STEM-Detektor) von der neuen Baugruppe blockiert wird. Die Bauteile sind in der nachfolgenden

Erklärung entsprechend Abbildung 5.2a nummeriert. Um zu verhindern, dass die Goldkontakte und Bonddrähte der PSD (1) vom Elektronenstrahl beleuchtet werden, was zu erheblichen Aufladungen und Signalstörungen führen würde, sind diese von einer Aluabdeckung (2) mit einem 17 mm · 17 mm großen Fenster abgeschirmt. Die Aluabdeckung dient zudem der Strahlensicherheit. Sie verhindert, dass der hochenergetische Elektronenstrahl auf andere in der Halterung verbaute Metalle (Kupfer, V2A-Edelstahl, Blei und Messing) treffen kann. Auf diese Weise wird neben der Bremsstrahlung hauptsächlich die relativ niedrig energetische charakteristische Strahlung von Aluminium (Energie der Al- $K_{\alpha}$ -Linie: 1.486,6 eV) erzeugt. Diese lässt sich einfacher abschirmen, als zum Beispiel die hochenergetische  $K_{\beta_1}$ -Linie von Blei, welche eine Energie von 84,9 keV besitzt. Weiterführende Ausführungen zu der Strahlensicherheit des Messaufbaus finden sich in [95]; Informationen zu den Grundlagen der Strahlungsphysik und der Abschirmung von Röntgenstrahlung finden sich beispielsweise in [102, 103].

Die PSD selbst ist auf einem Peltier-Element (3) des Typs *TB-31-1.0-1.3* der Firma Kryotherm (Datenblatt: [104]) mittels einer selbstklebenden Wärmeleitfolie befestigt. Dies ermöglicht eine Kühlung der PSD auf eine Temperatur von circa 1° C. Mit diesem Aufbau sollte das temperaturabhängige Rauschen der PSD-Signale abgesenkt werden, sowie eine lokale Erhitzung der aktiven Fläche aufgrund der Bestrahlung durch den Elektronenstrahl verhindert werden. Zur Messung der Temperatur der PSD und der Bodenplatte des Sensorhalters wurden genormte PT1000 Platin-Messwiderstände an den entsprechenden Komponenten befestigt. Erste Messungen zeigten aber, dass die damit erreichbare Temperaturdifferenz von circa 21 C° nicht ausreichend ist, um eine signifikante Minderung des Signalrauschens zu erreichen. Dies lässt den Rückschluss zu, dass der limitierende Faktor für das SNR nicht das thermische Rauschen des Sensors sondern das Rauschverhalten der verwendeten elektronischen Komponenten zur Signalverarbeitung ist. Die Ergebnisse der entsprechenden Messreihen finden sich in den Arbeiten von C. Habenschaden und C. Steininger [95, 100]. Trotz der geringen Auswirkung auf das Rauschverhalten wird die PSD ausschließlich mit aktiver Kühlung betrieben, um einer Degradation durch lokale Erhitzungen aufgrund des Elektronenstrahls vorzubeugen.

Unter der Bodenplatte des Sensorhalters (4) wurde die PSD-Ausleseelektronik (6) *SPC02* der Firma Sitek (siehe Abschnitt 5.1.3) angebracht. Diese Operationsverstärkerschaltung dient der Strom-Spannungs-Wandlung der PSD-Signale. Sie wurde möglichst nahe am Sensor montiert, da die Übertragung der gewandelten Spannungssignale weniger störungsanfällig ist, als der Transport relativ kleiner Signalströme ( $\mu$ A-Bereich). Zur Kontaktierung der elektronischen Komponenten wurden ausschließlich vakuumtaugliche teflonummantelte Kabel verwendet. Sämtliche Mess- und Versorgungsleitungen sind mit einem 15-poligen D-Sub-Stecker (7) verbunden.

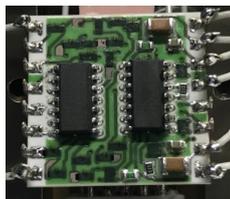
Mittels einer D-Sub<sup>3</sup>-Steckverbindung wird der Sensorhalter sowohl mechanisch, als auch elektrisch, mit der Vakuum-Signaldurchführung verbunden. Für eine stabile und schwingungsfreie Verbindung der beiden Baugruppen sorgt ein passgenauer Schiebemechanismus aus Messing (5). Der Sensorhalter kann zusätzlich mit einer Schraube arretiert werden. Sämtliche in diesem und nächsten Abschnitt genannten Bauteile und Materialien wurden so gewählt, dass die für eine Anwendung im Hochvakuum der Projektionskammer (Druck im Bereich um  $10^{-6}$  hPa) des Mikroskops geeignet sind. Elektronische Komponenten wurden vor dem Einbau in das TEM in einem separaten Vakuumpumpstand auf ihre Eignung getestet.

**Vakuum-Signaldurchführung** Eine speziell angefertigte Vakuumdurchführung dient der Durchführung der Mess- und Versorgungsleitungen aus dem Mikroskop (siehe Abbildung 5.2a) und als Träger des Sensorhalters. Sie konnte so in den Off-Axis-Port des Mikroskops integriert werden, dass keiner der anderen Detektoren davon in seiner Funktion beeinträchtigt ist. Auf die mechanische Stabilität des (S)TEMs hat das Bauteil keinen Einfluss. Es konnten keine Unterschiede der im TEM-Modus erreichbaren Hochauflösung vor und nach dem Einbau festgestellt werden. Hauptsächlich besteht die Durchführung aus einem zerspannten Drehteil aus V2A-Stahl, welches eine zentrale Bohrung (8) besitzt. Diese dient der Durchführung der elektrischen Kabelverbindungen. Insgesamt stellt der Aufbau 15 elektrische Kontakte zur Verfügung, welche jeweils mit einem separaten Kabel durch das Bauteil geführt werden. Auf der einen Seite sind diese über einen 15-poligen D-Sub-Stecker mit dem Sensorhalter verbunden, auf der anderen dient ein in einen CF40-Flansch (12) integrierter DB-25 Stecker der Vakuumdurchführung der Kontakte. Die Signalbelegung der einzelnen Steckverbindungen ist in [95] dokumentiert. In Abbildung 5.2a sind mehrere Bleielemente an der Außenseite und im Inneren der Durchführung zu erkennen (dunkelgrau markierte Bereiche; Nummern: 9,10,11). Diese verhindern den Austritt von Röntgenstrahlung im Bereich der Durchführung. Die Geometrie und Position der Bleielemente wurde so gewählt, dass Röntgenstrahlung entweder von einem der Elemente blockiert wird, oder aber von einer kritischen Dicke an Stahl vollständig absorbiert werden kann. Eine direkte Bestrahlung der Bleielemente ist aufgrund der gewählten Geometrie nicht möglich. Die Strahlensicherheit des Versuchsaufbaus wurde von einem Techniker der Firma ThermoFisher Scientific bestätigt, zudem finden sich methodische Messungen, welche die Strahlensicherheit des Aufbaus bestätigen in der Arbeit von C. Habenschaden [95].

Zusammenfassend bietet der experimentelle Aufbau die Möglichkeit, einen zusätzlichen Detektor in das verwendete Mikroskop zu integrieren. Aufgrund des austauschbaren Sensorhalters ist es möglich, neben der PSD auch andere Detektoren in das (S)TEM zu integrieren (eine passende Größe und Anzahl der benötigten elektrischen Anschlüsse vorausgesetzt). Da ein Tausch des Sensorhalters nur wenige Minuten dauert, ist dieses System außerdem eine geeignete Testplattform für neue Detektoren.

---

<sup>3</sup>engl. **d subminiature**



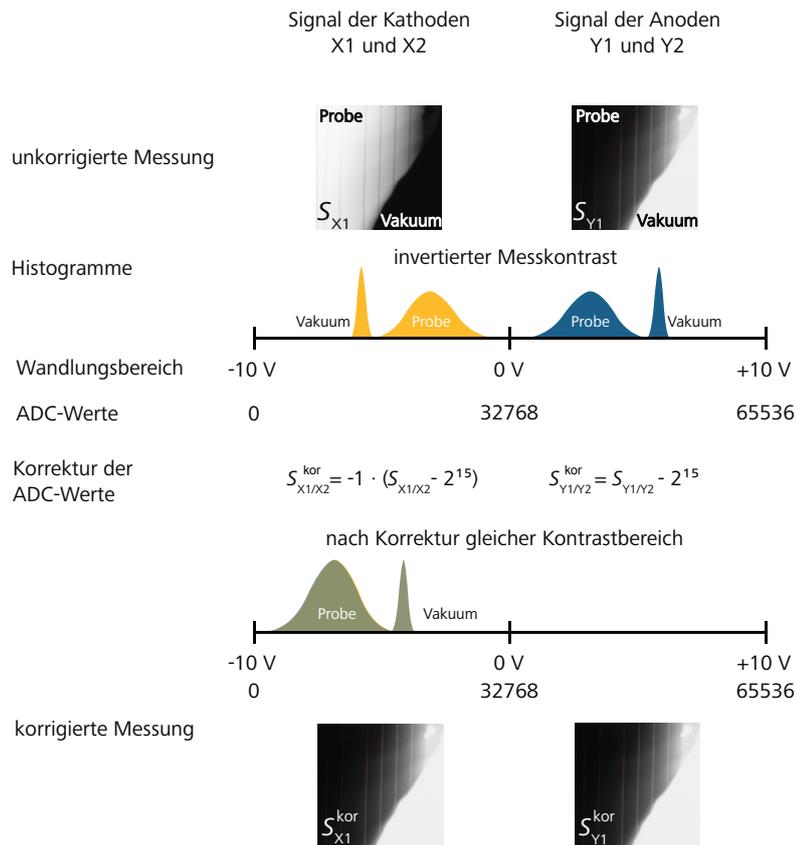
<b>Bezeichnung:</b>	SiTek PSD-Ausleseelektronik SPC01
<b>Transimpedanzverstärkung:</b>	$1 \times 10^5 \text{ V/A}$
<b>Bandbreite:</b>	400 kHz
<b>Dunkelstrom:</b>	200 nA
<b>Maximale Versorgungsspannung:</b>	$\pm 18 \text{ V}$
<b>Diodenvorspannung:</b>	15 V
<b>Maximale Flankensteilheit:</b>	$13 \text{ V}/\mu\text{s}$

**Abb. 5.3:** Diese Abbildung enthält die für diese Arbeit wichtigen Daten der verwendeten PSD-Ausleseelektronik des Typs *SPC02* der Firma Sitek (Datenblatt: [105]). Diese wird genutzt um die Ströme, welche über die einzelnen Elektroden der PSD abfließen, in proportionale Spannungssignale zu wandeln. In der Fotografie ist die bereits an den Sensorhalter montierte Schaltung gezeigt.

### 5.1.3 Signalverarbeitung und Auswertung

In diesem Abschnitt wird kurz auf die Signalverarbeitung und die Auswertung der PSD-Messsignale eingegangen. Bei der verwendeten Ausleseelektronik (kurz SPC<sup>4</sup>) für die PSD handelt es sich um den *SPC02* Schaltkreis der Firma Sitek (Datenblatt: [105]). Dieser wurde explizit für die Anwendung mit duolateralen (SiTek)-PSDs, wie die in dieser Arbeit verwendeten, entworfen. Vereinfacht handelt es sich dabei um mehrere Transimpedanzverstärker-Schaltungen (für jeden Kontakt eine) zur Strom-Spannungs-Wandlung der PSD-Signale. Die für PSD-Messungen erforderliche Vorspannung der PSD von  $\pm 15 \text{ V}$  in Sperrrichtung wird dabei durch die Verwendung von sogenannten Rail-to-Rail Operationsverstärkern realisiert. Dabei handelt es sich um Operationsverstärker, bei denen die Ausgangsspannung nahe an die Versorgungsspannung heranreichen kann. In Abbildung 5.3 sind die bereits am Sensorhalter angebrachte Schaltung, sowie deren wichtigste Kenndaten gezeigt. Die Transimpedanzverstärkung der einzelnen Kanäle beträgt jeweils  $1 \cdot 10^5 \frac{\text{V}}{\text{A}}$ . Für eine typische COM-Messung im STEM ergeben sich so Spannungssignale im Bereich von circa 0,1 V bis 2 V. Zwei der drei Ausgänge eines 3-Kanal-Netzteils vom Typ *Rigol DP832A* stellen die Versorgungsspannung von  $\pm 15 \text{ V}$  für die Operationsverstärkerschaltung zur Verfügung. Über den dritten Ausgang des Netzteils wird das Peltier-Element zur Kühlung der PSD mit Strom versorgt. Die Bandbreite (400 kHz) und die Flankensteilheit ( $13 \frac{\text{V}}{\mu\text{s}}$ ) der Elektronik bieten im Hinblick auf die zu erwartenden Signalstärken beziehungsweise Signaländerungen einen ausreichenden Spielraum, da die maximale (sinnvolle) Rasterfrequenz des Mikroskops circa 200 kHz beträgt. Der maximal zu erwartende Signalhub, vom unbeleuchteten Zustand bis hin zur vollen Beleuchtung mit dem Elektronenstrahl, beträgt für typische Strahlströme ungefähr drei Volt.

<sup>4</sup>engl. signal processing circuit



**Abb. 5.4:** Ablauf der Korrektur von PSD-Messsignalen zur Angleichung des Bildkontrastes der Signale der Kathoden (Elektroden X1 und X2) und Anoden (Elektroden Y1 und Y2). Der anfänglich invertierte Messkontrast der beiden Richtungssignale wird durch die hier gezeigte Korrektur der gemessenen ADC-Werte angeglichen. Es sind jeweils die Messsignale und Histogramme einer Kathode und Anode (hier X1 und Y1) vor und nach der Korrektur dargestellt. Anhand des gemessenen Bereichs, welcher sowohl Probe als Vakuum zeigt, ist gut der anfänglich invertierte Kontrast der dargestellten Elektroden zu erkennen. (Abbildung aus [96] und verändert)

Als Ausgangssignale liefert die Elektronik vier Spannungen, wobei die Signale der Elektroden X1 und X2 (Kathoden der PSD) positive und die der Elektroden Y1 und Y2 (Anoden der PSD) negative Spannungen liefern. Diese Signale werden im Anschluss mit einem von der Elektronikwerkstatt der Fakultät für Physik der Universität Regensburg entwickelten rauscharmen 8-Kanal-Spannungsverstärker (hausinterne Kennnummer: EP545) weitergeleitet. Dieser erlaubt pro Kanal eine stufenlose Verstärkung der einzelnen Eingangssignale (Verstärkungsbereich: 5- bis 50-fach). Außerdem verfügt jeder Kanal über eine Offset-Korrektur von  $\pm 1$  V, welche vor der Signalverstärkung angewendet wird. Die Digitalisierung der Messdaten erfolgt über eine von G. Buheitl entwickelte Einleseelektronik mit 12 separaten Analog-Digital-Eingängen. Der Wandlungsbereich der verwendeten AD-Wandler beträgt  $\pm 10$  V mit einem Dynamikumfang von 16 Bit, die Wandlungsrate beträgt 5 MHz. Bei der AD-Wandlung entfallen jeweils 15 Bit Dynamikumfang auf den negativen (-10 V bis 0 V) und positiven (0 V bis +10 V) Spannungsbereich, somit ergibt sich für eine

Eingangsspannung von 0 V ein AD-Wert von  $2^{15} = 32.768$ . Allerdings wird bei PSD-Messungen nur eine Auflösung von 15 Bit pro Detektor-Richtung genutzt, da die Kathoden der PSD nach der Transimpedanzwandlung negative Spannungssignale liefern und die der Anoden positive (vergleiche Abbildung 5.4).

Werden STEM oder DPC-Messungen durchgeführt, liest die Ausleseelektronik neben den Messsignalen der angeschlossenen Detektoren auch die jeweilige Rasterposition des Elektronenstrahls ein und übermittelt die Messdaten über eine serielle Schnittstelle an den Messrechner. Auf diesem werden die Daten mit dem an der Arbeitsgruppe geschriebenen Programm *DPC-Grabber* eingelesen. Dieses bietet neben der Aufnahme von STEM- und DPC-Bildern auch eine Echtzeitvorschau aller AD-Eingänge der Einleseelektronik sowie die Möglichkeit die Messsignale als Datenströme ohne Information der Rasterposition abzuspeichern. Letzteres ist gerade bei der Analyse der Detektorempfindlichkeit oder Untersuchungen zur Strahlstabilität sehr hilfreich, da so ein stationärer Elektronenstrahl auf dem PSD-Detektor vermessen werden kann.

Die anschließende Auswertung der Messdaten erfolgt hauptsächlich über Matlab-Skripte. Da die Signale einer PSD – je nach Richtung – im negativen oder positiven Spannungsbereich liegen, befinden sich auch die ADC-Werte in unterschiedlichen Wandlungsbereichen. Vor der Auswertung von PSD-Messdaten müssen die einzelnen Messsignale korrigiert werden. In Abbildung 5.4 ist diese Korrektur anhand der Auswertung einer PSD-Messung an einem Bildausschnitt, welcher sowohl Probenmaterial als auch Vakuum enthält, dargestellt. Anhand der Bilder, welche die unkorrigierten Signale jeweils einer Anode und Kathode (hier X1 und Y1) zeigen, ist zu erkennen, dass deren Kontrast zueinander invertiert ist. In den schematischen Histogrammen, welche die Signale im jeweiligen Wandlungsbereich darstellen, ist dies ebenfalls ersichtlich; wobei der schmalere Peak hier jeweils den im Vakuum aufgenommenen Daten entspricht. Die Korrektur der Messwerte erfolgt je nach Richtung mit:

$$S_{X1/X2}^{\text{kor}} = (-1) \cdot (S_{X1/X2} - 2^{15}) \quad (5.1)$$

$$S_{Y1/Y2}^{\text{kor}} = S_{Y1/Y2} - 2^{15} \quad (5.2)$$

Nach dieser liegen die Ergebnisse beider Detektionsrichtungen im Bereich von 0 bis 32.768 Signaleinheiten und es ergibt sich der gleiche Bildkontrast (siehe Abbildung 5.4 unten). Die Korrektur der Signale wurde so gewählt, dass die Probe dunkel gegenüber dem Vakuum erscheint, da dies der typischen Darstellung von (BF)-STEM-Messungen entspricht.

## 5.2 Charakterisierung des PSD-Detektors

Bevor mit dem PSD-Detektor erste Proben untersucht wurden, erfolgte eine umfassende Charakterisierung des entwickelten Messsystems. Im Zuge dieser Testmessungen wurde eine Untersuchung der Winkel- beziehungsweise Feldauflösung des PSD-Detektors durchgeführt. Um die Leistungsfähigkeit des PSD-Systems einzuordnen, wurden die Ergebnisse mit einer vorab durchgeführten Charakterisierung des cDPC-Setups (siehe [22, 70]) verglichen. Ein weiteres Ziel war es, festzustellen, ob ein linearer Zusammenhang zwischen der Position des Beugungsscheibchens und den gemessenen Signalen besteht. Die Detektorlinearität ist von entscheidender Bedeutung für die Anwendbarkeit der PSD als DPC- beziehungsweise COM-Detektor. Abschließend wurde der, in Abschnitt 4.2 theoretisch diskutierte, Einfluss der Größe und Intensität des Beugungsscheibchens auf die Positionsgenauigkeit der COM-Messung experimentell untersucht und mit den theoretischen Ergebnissen verglichen.

### 5.2.1 Empfindlichkeit des PSD-Detektors

Nachfolgend werden das Messverfahren und die Ergebnisse der Charakterisierung der Winkel- beziehungsweise Feldauflösung des entwickelten PSD-Detektors präsentiert. Ziel war es, die minimal messbare Verschiebung eines homogenen Beugungsscheibchens auf dem Detektor festzustellen. Anhand der Ergebnisse lässt sich unter anderem einschätzen, ob eine PSD als Ersatz für einen segmentierten Ringdetektor zur Anfertigung von DPC-Messungen geeignet ist.

Zur Analyse der Winkel- und Feldauflösung wurde das gleiche Messverfahren angewendet, welches schon zur Charakterisierung des cDPC-Systems verwendet wurde [22, 70]. Dies bietet neben dem Vorteil der Verwendung einer erprobten Methode auch den der Vergleichbarkeit der Messergebnisse. Die Untersuchung erfolgte im LMSTEM-Betrieb für unterschiedliche Kombinationen an Mikroskopparametern, die einen Einfluss auf die Empfindlichkeit der COM-Messung haben. So wurden unterschiedliche Kombinationen der C2-Blende, der Kameralänge und der *Spotsize*-Einstellung untersucht. Ein Teil der Messungen wurde in Zusammenarbeit mit P. Melzl im Zuge von dessen Diplomarbeit [96] durchgeführt. Die hier gezeigten Ergebnisse wurden in [23] veröffentlicht. Die nachfolgenden Erläuterungen basieren dabei in Teilen auf denen in [23]; aus diesem Grund kann es zu inhaltlichen Überschneidungen und ähnlichen Formulierungen kommen.

**Messverfahren** Die Messprozedur gestaltete sich wie folgt: Zu Beginn einer jeden Messung wurde das Beugungsscheibchen, unter Verwendung der unteren Ablenkspulen des Mikroskops, auf der aktiven Fläche des Detektors zentriert. Anschließend wurde es in definierten Schritten linear auf dem Detektor verschoben (siehe unten) und die Antwort des Detektors gemessen. Durch Variation der C2-Blende und der

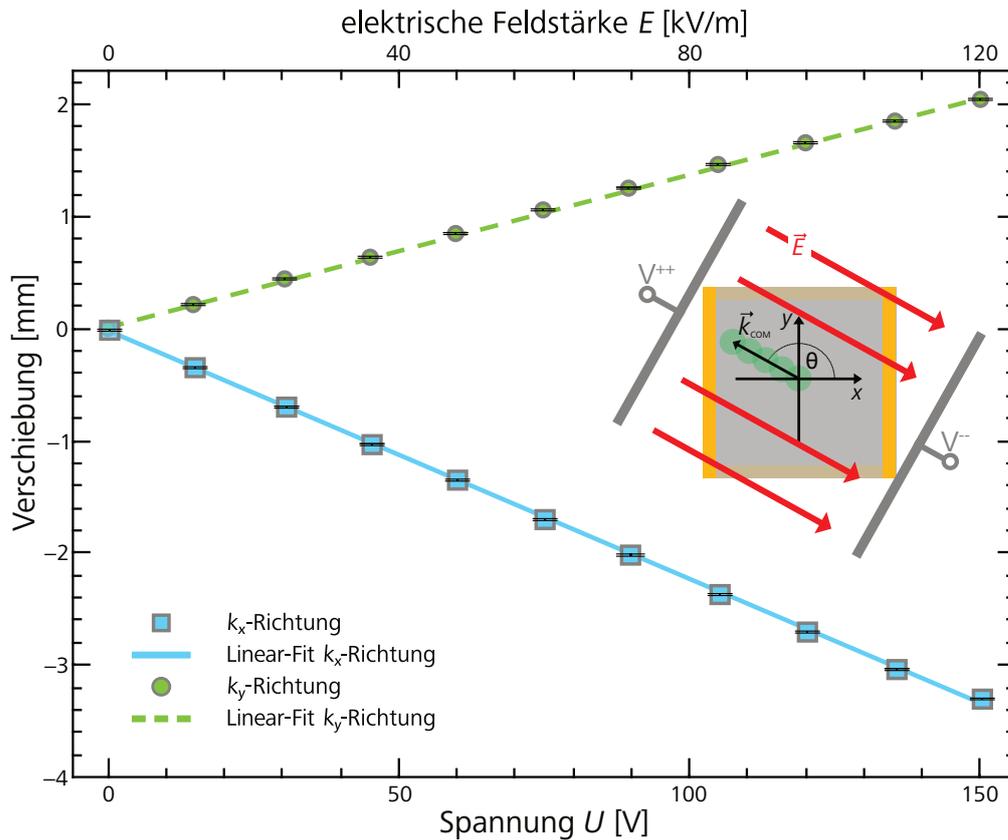
Kameralänge wurden kleine Beugungsscheibchen mit Radien zwischen 2 mm und 6 mm realisiert. Der Grund für die Wahl relativ kleiner Scheibchen waren die Ergebnisse der vorab durchgeführten Simulationen, welche eine höhere Empfindlichkeit für kleinere Radien vorhersagten. Zudem wurde so sichergestellt, dass das Beugungsscheibchen während der Tests nicht von der aktiven Fläche des Detektors (Fenstergröße der Detektorabdeckung: 17 mm · 17 mm) geschoben werden konnte.

Die Verschiebung des Elektronenstrahls erfolgte über definierte elektrische Felder in der Probenebene des STEM. Diese wurden mit einem speziellen Probenhalter, welcher an seiner Spitze einen Plattenkondensator mit einer wohl bekannten Plattengeometrie besitzt, durchgeführt. Dieser sogenannte Feldhalter erlaubt die Erzeugung von definierten homogenen elektrischen Feldern in der Probenebene, welche den Elektronenstrahl um einen bestimmten Winkel  $\beta$  ablenken (vergleiche Abschnitt 2.2.1) und somit eine Verschiebung des Beugungsscheibchens auf dem Detektor bewirken [19, 22, 23, 70]. Der Elektronenstrahl tritt dabei senkrecht in das horizontal verlaufende Feld ein. Der Plattenabstand des Kondensators ist  $d_K = (1,25 \pm 0,02) \cdot 10^{-3}$  m und die Plattendicke beträgt  $t_K = (1,00 \pm 0,02) \cdot 10^{-3}$  m. Zur Spannungsversorgung wird eine von der Elektronikwerkstatt der Fakultät der Physik entwickelte erdfreie und stabilisierte Spannungsquelle verwendet (hausinterne Kennnummer: EP448). Diese hat einen stufenlos einstellbaren Spannungsbereich von 0 V bis 300 V mit einer Stabilität von  $\pm 10$  mV. Für eine bestimmte angelegte Kondensatorspannung  $U$  ergibt sich eine Winkelablenkung des Elektronenstrahls von

$$\beta = \frac{U}{d_K} \cdot t_K \cdot \frac{e}{m_{\text{rel}} \cdot v_{\text{rel}}^2} \quad t_K=1\text{ mm}; d_K=1,25\text{ mm} \quad \frac{U \cdot e}{m_{\text{rel}} \cdot v_{\text{rel}}^2} \cdot 0,8 \quad (5.3)$$

[69]. Dieser Zusammenhang gilt für eine Ablenkung des Elektronenstrahls durch homogene Felder. Dies kann hier mit Sicherheit angenommen werden, da der Plattenabstand um circa sechs Größenordnungen größer ist als der Strahldurchmesser. Die Auswirkung von inhomogenen Streufeldern am Rad des Kondensators kann vernachlässigt werden, da der Elektronenstrahl durch die integrierte Feldstärke aller horizontalen Feldkomponenten entlang seines Weges abgelenkt wird.[70]

Im Laufe einer Messung wurde das elektrische Feld  $\vec{E}(U)$  des Plattenkondensators in 12  $\frac{\text{kV}}{\text{m}}$ -Schritten stufenweise von 0  $\frac{\text{kV}}{\text{m}}$  auf 120  $\frac{\text{kV}}{\text{m}}$  erhöht und jeweils die Signale aller Elektroden ( $S_{X1}$ ,  $S_{X2}$ ,  $S_{Y1}$ ,  $S_{Y2}$ ) gemessen. Um statistisch aussagekräftige Messdaten zu erhalten, wurden für jeden Feldschritt 1.000 Einzelmessungen angefertigt und deren Ergebnisse gemittelt. Aus den gemittelten Signalen wurden schließlich gemäß Gleichung 4.6 und 4.7 die absoluten Positionen  $k_{x,\text{COM}}(\vec{E})$  und  $k_{y,\text{COM}}(\vec{E})$  der Intensitätsschwerpunkte der verschobenen Beugungsscheibchen berechnet. Der Messfehler entspricht dem Standardfehler der jeweils 1.000-fach gemittelten Messwerte. Der Fehler der Feldstärke  $E$  ist aufgrund der stabilisierten Spannungsquelle so niedrig (im Promillebereich), dass er nicht sinnvoll in den Graphen eingezeichnet werden konnte. In den nachfolgenden Auswertungen wird er dennoch mit einbezogen.



**Abb. 5.5:** Abhängigkeit zwischen der gemessenen Verschiebung in  $k_x$ - und  $k_y$ -Richtung des Beugungsscheibchen und der an den Kondensator angelegten Spannung  $U$  beziehungsweise der elektrischen Feldstärke  $E$  des Kondensatorfeldes. Es besteht eine lineare Abhängigkeit der Richtungssignale im gesamten Messbereich. Die Skizze zeigt die Ausrichtung des elektrischen Feldes bezüglich der Detektorachsen während der Messung. (Abbildung entnommen aus [23] und verändert)

**Ergebnisse** In Abbildung 5.5 ist das Ergebnis der Messung dargestellt, welche bei der, im Hinblick auf die Messempfindlichkeit, besten Kombination an Mikroskopeinstellungen durchgeführt wurde. Das bedeutet im LMSTEM-Betrieb, bei einer Kameiralänge von  $C_L = 9,33$  m, einem C2-Blendendurchmesser von  $150 \mu\text{m}$  und einem *Spotsize*-Wert von 7. Diese Kombination ergibt einen Strahlstrom von  $\approx 1,7 \cdot 10^{-8}$  A und eine ungefähre Scheibchengröße von  $\approx 6$  mm (Radius). Auf eine Diskussion der Ergebnisse der restlichen Testmessungen für andere Parameterkombinationen wird an dieser Stelle verzichtet und auf [96] verwiesen.

Die in Abbildung 5.5 gezeigten Verläufe der beiden Richtungssignale in Abhängigkeit von der Feldstärke  $E$  (und Kondensatorspannung  $U$ ) zeigen einen linearen Zusammenhang über den gesamten Messbereich. Außerdem ist zu erkennen, dass die Ausrichtung des elektrischen Feldes bezüglich der Detektorachsen um  $\theta = 152,8^\circ$  gedreht war (siehe Einschub in Abbildung 5.5), da beide Richtungen ein Signal liefern. Auf diese Weise konnten beide Detektionsrichtungen simultan getestet werden.

An dieser Stelle soll hervorgehoben werden, dass die lineare Detektorantwort über die gesamte Länge der Verschiebung des Elektronenstrahls auf dem Detektor von  $|\vec{k}_{\text{COM}}| = (3,87 \pm 0,01) \text{ mm}$  bestehen bleibt. Dies stellt gegenüber DPC-Messungen mit einem Ringdetektor einen großen Vorteil dar, da dort eine Verschiebung von circa 4 mm im besten Fall zu einer nicht mehr linearen Detektorantwort führen würde [72], und im schlechtesten Fall das Scheibchen komplett von einem der Ringsegmente geschoben wird. Die Näherung, dass die Verschiebung des Beugungsscheibchen klein ( $\mu\text{m}$ -Bereich) gegenüber seiner Größe (mm-Bereich) ist, welche bei der Beschreibung der Signalentstehung eines Ringdetektors benötigt wird (siehe [22, 70, 72]), ist für die hier gemessene Verschiebung obsolet. Im Hinblick auf das benötigte lineare Ansprechverhalten des PSD-Detektors ist dies ein vielversprechendes Ergebnis. Im nächsten Abschnitt folgt dennoch eine umfassende Analyse der Detektorlinearität.

Anhand des gezeigten Messergebnisses kann auch die Empfindlichkeit des PSD-Detektors bestimmt werden. Zwischen der angelegten Kondensatorspannung und der Länge des PSD-Signalvektors  $\vec{k}_{\text{COM}}$  besteht folgender Zusammenhang:

$$U = \frac{|\vec{k}_{\text{COM}}|}{\sqrt{m_1^2 + m_2^2}} \quad (5.4)$$

Hier entsprechen  $m_1$  und  $m_2$  den Steigungen der beiden Ausgleichsgeraden, welche jeweils durch eine lineare Anpassung an die absoluten Positionssignale in  $k_x$ - beziehungsweise  $k_y$ -Richtung ermittelt wurden (siehe Abbildung 5.5). Für die gezeigte Messung ergeben sich die folgenden Werte für deren Steigungen:

$$m_1 = (-2,215 \pm 0,004) \cdot 10^{-2} \frac{\text{mm}}{\text{V}} \quad (\gamma_1 = 0,18\%) \quad (5.5)$$

$$m_2 = (1,363 \pm 0,003) \cdot 10^{-2} \frac{\text{mm}}{\text{V}} \quad (\gamma_2 = 0,22\%) \quad (5.6)$$

$\gamma_{1/2}$  beschreibt hier den relativen Fehler. Durch Einsetzen von Gleichung 5.4 in Gleichung 5.3 ergibt sich schließlich der Zusammenhang zwischen der gemessenen Verschiebung des COM  $|\vec{k}_{\text{COM}}|$  und dem entsprechenden Ablenkwinkel des Elektronenstrahls  $\beta$ :

$$\beta(|\vec{k}_{\text{COM}}|) = \frac{|\vec{k}_{\text{COM}}|}{\sqrt{m_1^2 + m_2^2}} \cdot \frac{e}{m_{\text{rel}} \cdot v_{\text{rel}}^2} \cdot 0,8 \quad (5.7)$$

Zur Berechnung des minimal messbaren Ablenkwinkels  $\beta_{\text{min}}$  muss zunächst die kleinste noch messbare Änderung des PSD-Signalvektors  $|\vec{k}_{\text{COM}}^{\text{min}}|$  bestimmt werden. Da für jeden Messpunkt 1.000 Einzelmessungen gemittelt wurden, ist es möglich, für jeden Datenpunkt den entsprechenden Standardfehler  $SE$  zu berechnen. Als minimal messbare Verschiebung zwischen zwei Messpunkten  $|\vec{k}_{\text{COM}}^{\text{min}}|$  dient der doppelte Wert

des größten auftretenden Standardfehlers  $SE_{\max} = 3,5 \mu\text{m}$ :

$$|\vec{k}_{\text{COM}}^{\min}| := 2 \cdot SE_{\max} = (7,0 \pm 0,2) \mu\text{m} \quad (5.8)$$

Dieses Vorgehen stellt sicher, dass die Fehlerbereiche zweier Signale nicht überlappen. Die entsprechende minimal messbare Ablenkung des Elektronenstrahls  $\beta_{\min}$  ergibt sich unter Anwendung von Gleichung 5.7 zu:

$$\begin{aligned} \beta_{\min} &= \frac{|\vec{k}_{\text{COM}}^{\min}|}{\sqrt{m_1^2 + m_2^2}} \cdot \frac{e}{m_{\text{rel}} \cdot v_{\text{rel}}^2} \cdot 0,8 \\ &= (0,44 \pm 0,012) \mu\text{rad} \end{aligned} \quad (5.9)$$

Dieser Wert gilt ausschließlich für die oben genannte Parameterkombination. Es muss noch angemerkt werden, dass dieser Wert nicht zwingend die maximal mögliche Empfindlichkeit des Messaufbaus widerspiegelt. Ferner wurde bei der Wahl des zu testenden Parameterraumes darauf geachtet, dass dieser einen für DPC-Messungen typischen Wertebereich abdeckt.

**Einordnung der Messergebnisse** Der in dieser Arbeit entwickelte PSD-Detektor bietet im LMSTEM-Betrieb unter Standardmessbedingungen eine Winkelauflösung von  $\beta_{\min} = (0,44 \pm 0,012) \mu\text{rad}$ . Mit dieser Auflösung ist es möglich, die meisten in realen Proben auftretenden elektrischen und magnetischen Felder mit einer guten Messdynamik zu vermessen, beziehungsweise abzubilden. Als Vergleichspunkt dienen hier auch die beiden in Abschnitt 3.1.3 angeführten Beispiele zur Einordnung der Empfindlichkeit des cDPC-Systems. So liegt der Messwert von  $\beta_{\min}$  beispielsweise weit unterhalb der Ablenkung von  $\beta_{\text{el}} \approx 11 \mu\text{rad}$  durch ein piezoelektrisches Polarisationsfeld der Stärke  $100 \frac{\text{MV}}{\text{m}}$  in einer 30 nm dicken GaN/InGaN/GaN-Quantentrog-Struktur. Dies gilt natürlich auch für die zu erwartende Ablenkung des Elektronenstrahls um  $\beta_{\text{mag}} \approx 14 \mu\text{rad}$  durch das magnetische Feld im Inneren eines 30 nm dicken Permalloy Films (Sättigungsmagnetisierung: 1 T). Im Vergleich zu dem konventionellen DPC-System der Arbeitsgruppe zeigt sich, dass der PSD-Detektor im Hinblick auf die maximal erreichbare Winkelauflösung etwas schlechter abschneidet als das cDPC-System. Dessen Empfindlichkeit rangiert, je nach Kombination aus C2-Blende und Kameralänge, im Bereich zwischen  $0,028 \mu\text{rad}$  (maximale Empfindlichkeit) und  $\approx 3 \mu\text{rad}$ . Für eine vergleichbare Messsituation bei einer Kameralänge von ebenfalls  $L = 9,33 \text{ m}$  liefert das cDPC-System eine Winkelauflösung von circa  $0,13 \mu\text{rad}$  (vergleiche [22]) und somit eine nur geringfügig bessere Empfindlichkeit als der PSD-Detektor ( $\beta_{\min} = 0,44 \mu\text{rad}$ ).

Zusammengefasst ist es möglich mit einem Messsystem, welches auf einer für die Detektion von UV-Laser-Licht optimierten PSD basiert, ähnlich gute Ergebnisse zu erzielen als mit dem, auf die Detektion von Elektronenstrahlen spezialisierten, DPC-Ringdetektor. Zudem sollte bedacht werden, dass die PSD absolute Werte der Lage

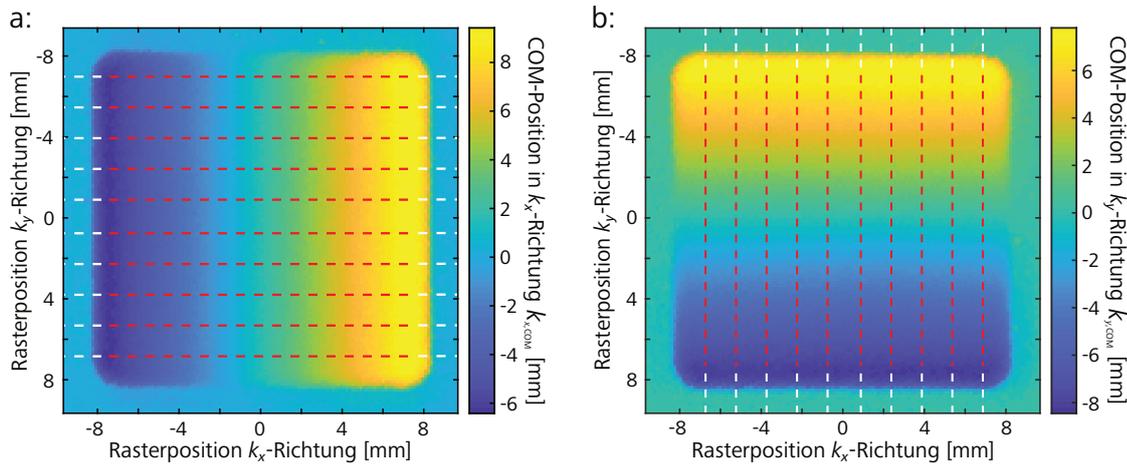
des COMs des Beugungsscheibchens liefert, und ein Ringdetektor ausschließlich dazu in der Lage ist die relative Verschiebung eines – im besten Falle homogenen – Beugungsscheibchens zu detektieren. Eine aufwändige Kalibrierung des Messsystems, wie sie in [70] durchgeführt wurde, ist auf Grund der absoluten Positionssignale der PSD ebenfalls obsolet.

### 5.2.2 Detektorlinearität

Anhand des Ergebnisses der im vorangehenden Abschnitt gezeigten Empfindlichkeitsmessung zeigt sich bereits ein linearer Zusammenhang zwischen der tatsächlichen und gemessenen Position des Beugungsscheibchens auf dem Detektor. Da dort aber nur ein kleiner Bereich der aktiven Fläche vom Elektronenstrahl überstrichen wurde, folgt in diesem Abschnitt eine Untersuchung der kompletten PSD auf die Detektorlinearität.

**Messverfahren** Mit den unteren Ablenkspulen des Mikroskops, welche auch zur Zentrierung des Elektronenstrahls auf dem Detektor verwendet werden, ist es möglich, das Beugungsscheibchen in der Detektorebene (langsam) über den Detektor zu rastern. Die abgetastete Fläche entspricht dabei einem quadratischen Bereich. Angesteuert werden die Ablenkspulen dabei über eine eigens in das Messprogramm DPC-Grabber integrierte Messroutine. Diese erlaubt es, die Größe des Rasterbereichs, den Abstand und die Anzahl der Rasterpunkte sowie die Anzahl der Mittelungen pro Messpunkt einzustellen. Die Verschiebung des Elektronenstrahls durch die Ablenkspulen hat keinen Einfluss auf die Form des Beugungsscheibchens. Das Mikroskop wurde während der Messung im HMSTEM-Modus betrieben. Der Rasterbereich wurde so gewählt, dass die aktive Fläche der PSD möglichst in dessen Mitte lag und die abgetastete Fläche größer war als das Fenster der Detektorabdeckung. Dies stellte sicher, dass die gesamte nutzbare Detektorfläche untersucht werden konnte. An jedem Rasterpunkt wurden die PSD-Signale mehrfach, mit der vorab eingestellten Anzahl an Mittelungen pro Punkt, gemessen, gemittelt und jeweils die absolute  $k_x$ - und  $k_y$ -Position des Elektronenstrahls berechnet (unter Verwendung der Gleichungen 4.6 und 4.7). Um den Detektor mit einem möglichst homogenen Beugungsscheibchen abtasten zu können, befand sich während der Messung keine Probe im Strahlengang.

Die nachfolgend gezeigte Messung wurde im HMSTEM-Modus, mit der kleinsten C2-Blende (Durchmesser:  $50\ \mu\text{m}$ ) und einer Kameralänge von  $L = 11,8\text{m}$  durchgeführt. Diese Kombination liefert ein relativ kleines Beugungsscheibchen mit einem Radius von  $R \approx 1\text{mm}$ . Dies erlaubt es den Detektor bis nahe an den Rand des Fensters abzutasten. Es wurde absichtlich kein auf den Detektor fokussierter Elektronenstrahl verwendet, da dies keiner realen Messsituation bei der Untersuchung von elektrischen und magnetischen Feldern entsprechen würde. Um die Dauer der Messung niedrig zu halten (Messdauer circa 3 Minuten), und somit den Einfluss von Strahlinstabilitäten (zum Beispiel Helligkeitsschwankungen oder thermischer Drift) zu vermindern,



**Abb. 5.6:** Ergebnis der Messung der Detektorlinearität mittels eines Detektorscans. Der Elektronenstrahl wurde dazu mit den unteren Ablenkspulen über den Detektor gerastert und für jeden Rasterpunkt die COM-Position  $k_{\text{COM}}$  mit der PSD mehrfach gemessen. Abbildungen **a** und **b** zeigen das Ergebnis der beiden Richtungskomponenten  $k_{x,\text{COM}}$  beziehungsweise  $k_{y,\text{COM}}$ . Die rot-weißen Linien markieren die Positionen der in Abbildung 5.7 gezeigten Signalverläufe. Bereits in dieser Darstellung sind gut die beiden Detektionsrichtungen zu erkennen.

wurde ein kleines Raster von  $140 \cdot 140$  Messpunkten mit 5 Mittelungen pro Messpunkt gewählt. Für die Positionierungsgenauigkeit des Rastervorgangs wird an dieser Stelle ein absoluter Fehler pro Messpunkt und Richtung von  $\pm 0,1$  mm angenommen. Dieser Wert wurde durch mehrmaliges Anfahren gleicher Rasterpositionen und den sich dabei ergebenden Schwankungen der gemessenen PSD-Positionen ermittelt.

**Ergebnisse** In Abbildung 5.6 ist das Ergebnis des Detektorscans dargestellt. In Teilabbildung 5.6a ist das Ergebnis der  $k_{x,\text{COM}}$ -Komponente der COM-Position gezeigt und in 5.6b das der  $k_{y,\text{COM}}$ -Komponente. Der Bereich der aktiven Fläche sowie die jeweilige Detektionsrichtung ist in beiden Darstellungen gut zu erkennen. Die abgerundeten Ecken an den Rändern der aktiven Fläche entsprechen der Faltung des kreisförmigen Beugungsscheibchens mit den Ecken der Aluabdeckung. Auf den ersten Blick zeigt sich bereits ein homogener Anstieg der gemessenen Positionen  $k_{x,\text{COM}}$  und  $k_{y,\text{COM}}$  in den entsprechenden Detektionsrichtungen  $k_x$  und  $k_y$ . Zur Analyse der Detektorlinearität wurden pro Richtung jeweils die Signalverläufe entlang von 10 äquidistanten Linien untersucht, welche in Abbildung 5.6 als gestrichelte weiß-rote Linien eingezeichnet sind. Die entsprechenden Signalverläufe sind für die jeweilige Messrichtung in Abbildung 5.6a und b als Linienscharen gezeigt. Positiv fällt bereits auf, dass die einzelnen Verläufe unabhängig von der Linienposition nur leichte Abweichungen voneinander aufweisen, was auf ein homogenes Ansprechverhalten hinweist. Die Signale von  $k_{x,\text{COM}}$  und  $k_{y,\text{COM}}$  folgen dabei in beide Richtungen einem ähnlichen Verlauf. So fallen beziehungsweise steigen sie an den Randbereichen der PSD (grau hinterlegt) zunächst ab, beziehungsweise an. Dies entspricht den Situationen an denen das Beugungsscheibchen noch nicht komplett auf der aktiven

Fläche des Detektors geschoben wurde, sondern sie nur teilweise bedeckte. Diese Bereiche sind aufgrund ihrer stark nichtlinearen Messcharakteristik nicht für Positionsmessungen geeignet. Da deren Ausdehnung aus offensichtlichen Gründen von der Strahlgröße abhängt, ergibt sich für PSD-Messungen mit größeren Beugungsscheibchen ( $R > 7$  mm) eine potenzielle Fehlerquelle, wenn diese im Verlauf der Messung in diesen Bereich abgelenkt werden. Eine Testmessung kann dabei Aufschluss liefern, ob der Strahl den Detektor während der eigentlichen Aufnahme ganz oder teilweise verlässt. Ein Indiz dafür ist zum Beispiel ein starker Einbruch der Summensignale, obwohl ein homogener Probenbereich untersucht wird. In den Rasterbereichen zwischen ungefähr  $-7$  mm und  $+7$  mm (rot markierte Bereiche in den Abbildungen 5.6 und 5.7) ergeben sich in beiden Richtungen lineare Verläufe der gemessenen Positionssignale. In  $k_x$ -Richtung zeigt sich, dass der Detektor in der Mitte ( $k_x = 0$  mm) einen positiven Signal-Offset von  $(1,64 \pm 0,04)$  mm liefert (siehe unten). Der Grund hierfür war, dass der Offset des Messverstärkers für die Messsignale  $S_{X1}$  und  $S_{X1}$  nicht korrekt eingestellt war. Dieser gemessene Offset hat aber auf die Untersuchung der Linearität keinen weiteren Einfluss und kann einfach korrigiert werden.

Zur Analyse der Linearität wurden zunächst die Steigungen der einzelnen Signalverläufe in den rot markierten Bereichen durch lineare Anpassungen bestimmt. Für jede Richtung wurde aus den Einzelergebnissen der Fits je eine mittlere Steigung  $m_{k_x/k_y}$  und der y-Achsenabschnitt  $b_{k_x/k_y}$  berechnet. Die sich auf diese Weise ergebenden mittleren Ausgleichsgeraden sind in Abbildungen 5.6a und b eingezeichnet. Als Kriterium für die Linearität des Detektors dienen schließlich die errechneten Standardabweichungen  $\sigma_{m; k_{x,y}}$  und  $\sigma_{b; k_{x,y}}$  sowie die entsprechenden relativen Fehler  $\gamma_{k_{x,y}}$  der mittleren Ausgleichsgeraden. Die sich aus den linearen Anpassungen der einzelnen Signalverläufe ergebenden Fehler wurden in der Berechnung von  $\sigma_{m; k_{x,y}}$  und  $\sigma_{b; k_{x,y}}$  berücksichtigt. Für die  $k_x$ -Richtung ergeben sich die folgenden Werte

$$m_{k_x} = (1,081 \pm 0,003) \frac{\text{mm}}{\text{mm}} \quad (5.10)$$

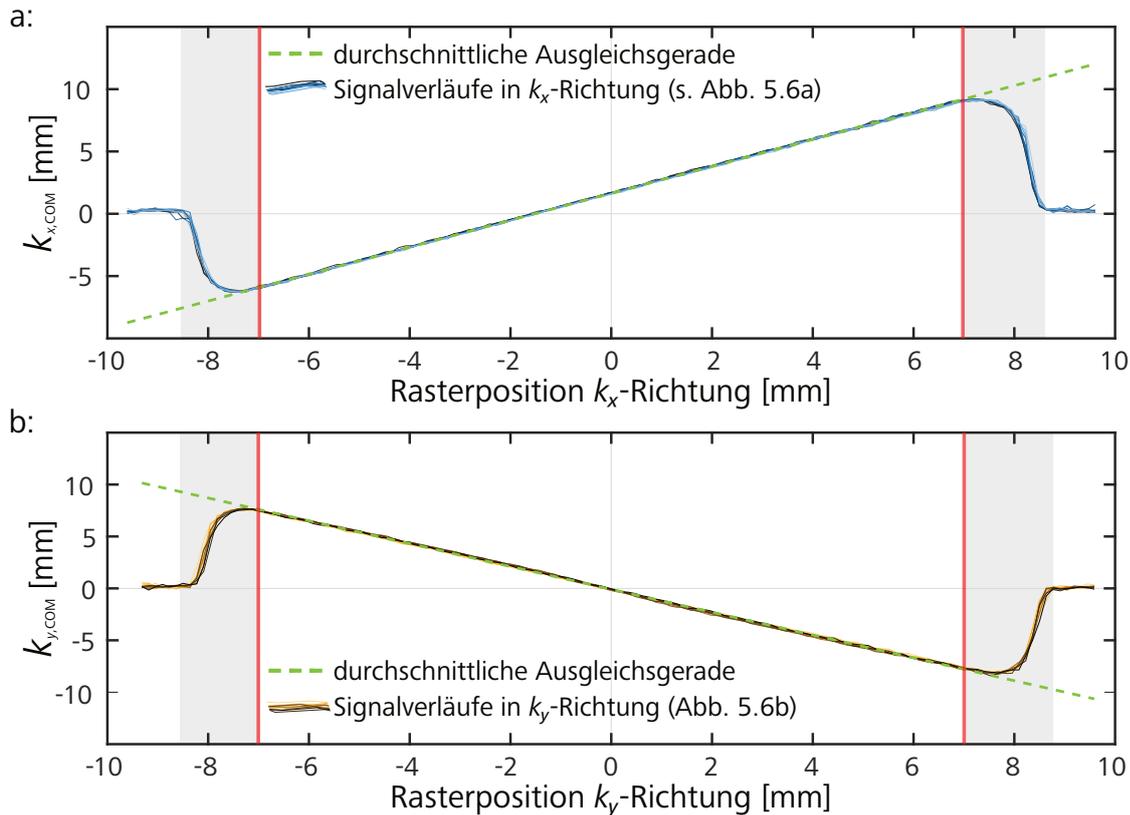
$$b_{k_x} = (1,64 \pm 0,04) \text{ mm} \quad (5.11)$$

und für die  $k_y$ -Richtung

$$m_{k_y} = (-1,01 \pm 0,02) \frac{\text{mm}}{\text{mm}} \quad (5.12)$$

$$b_{k_y} = (-0,09 \pm 0,01) \text{ mm} \quad (5.13)$$

Bei den Messfehlern handelt es sich um die jeweiligen Standardabweichungen. Die entsprechenden Verläufe dieser mittleren Ausgleichsgeraden sind wie bereits erwähnt grün in Abbildung 5.7a und b eingezeichnet. Die leicht unterschiedlichen Steigungen der beiden mittleren Ausgleichsgeraden sind, wie der größere y-Offset in  $k_x$ -Richtung, auf eine ungleichmäßige Verstärkung (Verstärkungsfaktor und Offset) der Messsignale zurückzuführen. Um Messfehlern vorzubeugen wurde vor der Anfertigung der in Abschnitt 6 gezeigten DPC- und moreSTEM-Messungen die



**Abb. 5.7:** **a** und **b** zeigen jeweils die in Abbildung 5.6 markierten Signalverläufe von  $k_{x,COM}$  und  $k_{y,COM}$  in  $k_x$ - und  $k_y$ -Richtung. Die grau hinterlegten Signalbereiche entsprechen den Situationen, bei denen das Beugungsscheibchen nicht komplett auf dem Detektor lag. Im linearen Bereich dazwischen wurden die Steigung und der y-Achsenabschnitt jedes einzelnen Signalverlaufs ermittelt und für jede Detektorrichtung eine mittlere Ausgleichsgerade berechnet (grün gestrichelte Linie). Es zeigt sich, dass die PSD-Signale in einem großen Bereich eine gute lineare Charakteristik aufweisen.

Signalverstärkung mittels einer gleichmäßigen (flächigen) Beleuchtung des Detektors kalibriert. In  $k_x$ -Richtung besitzt der relative Fehler  $\gamma_{k_x}$  der mittleren Steigung  $m_{k_x}$  einen Wert von  $\gamma_{k_x} = 0,3\%$ . In  $k_y$ -Richtung ergibt sich ein etwas größerer Fehler von  $\gamma_{k_y} = 1,4\%$ .

Zusammenfassend zeigen die Ergebnisse, dass ungefähr 70% der aktiven Detektorfläche nur sehr geringe Abweichungen in der Detektorlinearität von 0,3% in  $k_x$ -Richtung und 1,4% in  $k_y$ -Richtung aufweisen. Der PSD-Detektor ist somit auch in diesem Sinn ein geeigneter Kandidat für die Anwendung als DPC-Detektor. Besonders im Vergleich zu Ringdetektoren, welche durch ihre Geometrie eingeschränkt sind, stellt der große nutzbare Messbereich des PSD-Detektors einen erheblichen Vorteil im Bezug auf die experimentelle Freiheit dar.

### 5.2.3 Einflüsse auf die Messempfindlichkeit

In diesem Abschnitt werden die Einflüsse der Intensität und der Größe des Beugungsscheibchens auf die Messgenauigkeit einer PSD diskutiert. Dabei sollen die in Abschnitt 4.2 präsentierten Simulationsergebnisse sowie das analytische Modell, welche beide den Messfehler einer PSD in Relation zu Strahlgröße und -strom beschreiben, auf ihre Gültigkeit überprüft werden. Bei der Planung und Durchführung der Experimente wurde darauf geachtet, Einstellungen zu verwenden, welche einen möglichst großen Bereich an Intensitäten und Radien der Beugungsscheibchen bereitstellen. Die Untersuchung der maximal erreichbaren Messempfindlichkeit spielt dabei eine untergeordnete Rolle. Experimentelle Ergebnisse zur erreichbaren Empfindlichkeit des PSD-Systems finden sich in Abschnitt 5.2.1 und in den Quellen [23, 96]. Zudem sei angemerkt, dass die im Folgenden präsentierten Messergebnisse und die daraus abgeleiteten Erkenntnisse nur für PSD-Messungen mit homogenen Beugungsscheibchen ihre Gültigkeit besitzen; also hauptsächlich für DPC-Messungen an ausgedehnten Feldverteilungen in dünnen Proben.

#### Einfluss des Strahlstroms

In Abschnitt 4.2 wurde gezeigt, dass der Messfehler  $\sigma_{\vec{k}_{\text{COM}}}$  einer PSD, welcher der Standardabweichung der Positionsmessung entspricht, vereinfacht einer  $\frac{1}{\sqrt{I}}$ -Abhängigkeit folgt. Für einen Elektronenstrahl mit konstanter Größe ergibt sich also mit steigendem Strahlstrom  $I$  (steigender Zahl an Primärstrahlelektronen) ein kleiner werdender Messfehler (vergleiche Abbildung 4.7). Dieser Zusammenhang wird im Folgenden überprüft.

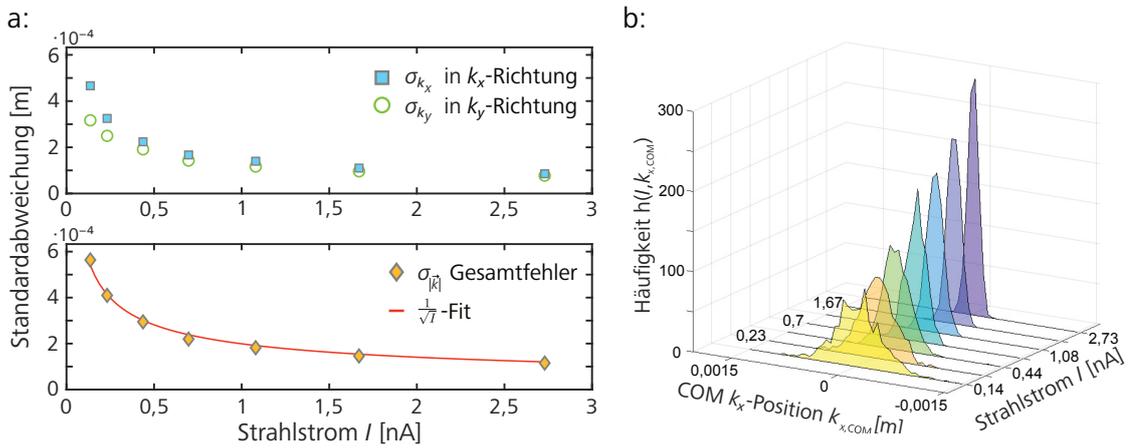
**Messverfahren** Zur Messung der Intensitätsabhängigkeit des Messfehlers musste eine Messsituation geschaffen werden, welche es erlaubt, die Intensität des Elektronenstrahls zu variieren, ohne dabei die Scheibchengröße zu beeinflussen. Es wurde wie folgt vorgegangen: Im TEM-Modus wurde ein runder Elektronenstrahl in der Größe des Fensters der Detektorabdeckung erzeugt, was einem Radius von  $R \approx 8,5$  mm entspricht. Der Strahlstrom wurde über die *Spotsize*-Einstellung des Mikroskops in 7 Schritten (*Spotsize*-Werte von 2 bis 8) variiert. Dies resultierte in Strahlströmen im Bereich von 0,14 nA und 2,73 nA. Der Grund für die Wahl des TEM-Modus war, dass dieser es im Gegensatz zum STEM-Betrieb erlaubt, die Strahlgröße kontinuierlich über die sogenannte *Intensity*-Einstellung zu variieren. Auf diese Weise konnten kleine Veränderungen von  $R$ , die sich durch den Wechsel der *Spotsize* ergeben können, ausgeglichen werden. Das Detektorfenster diente dabei als Anhaltspunkt um den Radius des Elektronenstrahls konstant bei  $R \approx 8,5$  mm zu halten. Die Messungen wurden ohne Probe und unter Verwendung der C2-Blende Nummer 3 mit einem Durchmesser von  $100 \mu\text{m}$  durchgeführt.

Für jede *Spotsize*-Einstellung, beziehungsweise jeden  $I$ -Wert wurden 1.000 Einzelmessungen der Strahlposition in Form eines kontinuierlichen Datenstromes aufgenommen. Für jede der gemessenen Verteilungen der Positions-Messwerte  $\vec{k}_{\text{COM}}(I)$  wurde die Standardabweichung bestimmt. Der Strahlstrom wurde über ein, an den Leuchtschirm des Mikroskops gekoppeltes Strommessgerät, gemessen. Trifft der Elektronenstrahl auf den Leuchtschirm, fließen die Elektronen über ein Strommessgerät auf Masse ab. Dessen Messwert wird direkt in der Steuersoftware des Mikroskops angezeigt. Laut Aussagen eines Technikers der Firma ThermoFisher Scientific besitzt diese Messung einen absoluten Fehler von ungefähr 0,1 nA.

**Ergebnisse** Das Ergebnis der Intensitätsmessreihe mit konstantem Radius ist in Abbildung 5.8a und b gezeigt. In Teilabbildung a sind sowohl die Standardabweichungen der beiden Richtungskomponenten  $\sigma_{k_x}$  und  $\sigma_{k_y}$  als auch der Gesamtfehler  $\sigma_{|\vec{k}_{\text{COM}}|}$  der Messung der COM-Position gezeigt. In Teilabbildung b sind exemplarisch die entsprechenden Messwertverteilungen der  $k_{x,\text{COM}}$ -Komponenten des COMs dargestellt. Es zeigt sich die in Abschnitt 4.2 beschriebene  $\frac{1}{\sqrt{I}}$ -Abhängigkeit des Messfehlers von der Intensität des Beugungsscheibchens. Beispielsweise fällt der Wert von  $\sigma_{|\vec{k}_{\text{COM}}|}$  für eine Vergrößerung von  $I$  um 0,5 nA (von 0,14 nA auf 0,7 nA) zunächst stark von  $\sigma_{|\vec{k}_{\text{COM}}|} \approx 560 \mu\text{m}$  auf  $\sigma_{|\vec{k}_{\text{COM}}|} \approx 220 \mu\text{m}$  ab. Im weiteren Verlauf flacht die Kurve ab, und es ergibt sich für einen weiteren Stromanstieg von  $\approx 2$  nA (von 0,7 nA auf 2,7 nA) nur noch eine Reduktion des Messfehlers um  $\approx 105 \mu\text{m}$  auf  $\sigma_{|\vec{k}_{\text{COM}}|} \approx 115 \mu\text{m}$ . Der Grund für die relativ große Streuung der Positionswerte und den resultierenden Standardabweichungen von über  $\sigma_{|\vec{k}_{\text{COM}}|} \approx 115 \mu\text{m}$  liegt an der Wahl eines sehr großen Beugungsscheibchens (siehe oben), welches fast die komplette aktive Fläche der PSD beleuchtete.

Weiterhin zeigen die Messdaten, dass die  $k_y$ -Komponente des Messfehlers bessere Ergebnisse (kleinerer Messfehler) liefert als die  $k_x$ -Komponente. Für den niedrigsten Strahlstrom ergibt sich für  $\sigma_{k_x}$  ein um  $\approx 150 \mu\text{m}$  größerer Wert als für  $\sigma_{k_y}$ . Für größere Strahlströme verringert sich der Unterschied auf eine minimale Abweichung von  $\approx 8 \mu\text{m}$  ( $I = 2,73$  nA). Weitere Untersuchungen des Messsystems zeigten, dass die zu diesem Zeitpunkt verbaute PSD bei allen Tests in  $\sigma_{k_x}$ -Richtung einen größeren Messfehler lieferte als in  $\sigma_{k_y}$ -Richtung. Vor der Anfertigung der HMSTEM-Messungen in Jülich (siehe Abschnitt 6.2) wurde diese durch eine neue PSD des gleichen Typs ersetzt. Erste Tests des neuen Bauteils zeigten keine nennenswerten Unterschiede des Messfehlers der unterschiedlichen Richtungen. Im Nachhinein konnte nicht geklärt werden, ob fertigungsbedingte Abweichungen, eine Alterung der PSD oder ein Schaden durch den Elektronenstrahl für dieses Verhalten verantwortlich sind.

Abschließend lässt sich an dieser Stelle festhalten, dass diese Messreihe die theoretischen Überlegungen bestätigt. Es zeigt sich, dass es von Vorteil ist, PSD-Messungen mit größeren Strahlströmen durchzuführen um bessere Ergebnisse mit geringeren Messfehlern zu erhalten. Für die hier verwendeten Messparameter, welche in keins-ter Weise einer optimalen Messsituation entsprechen, ergibt sich eine minimale



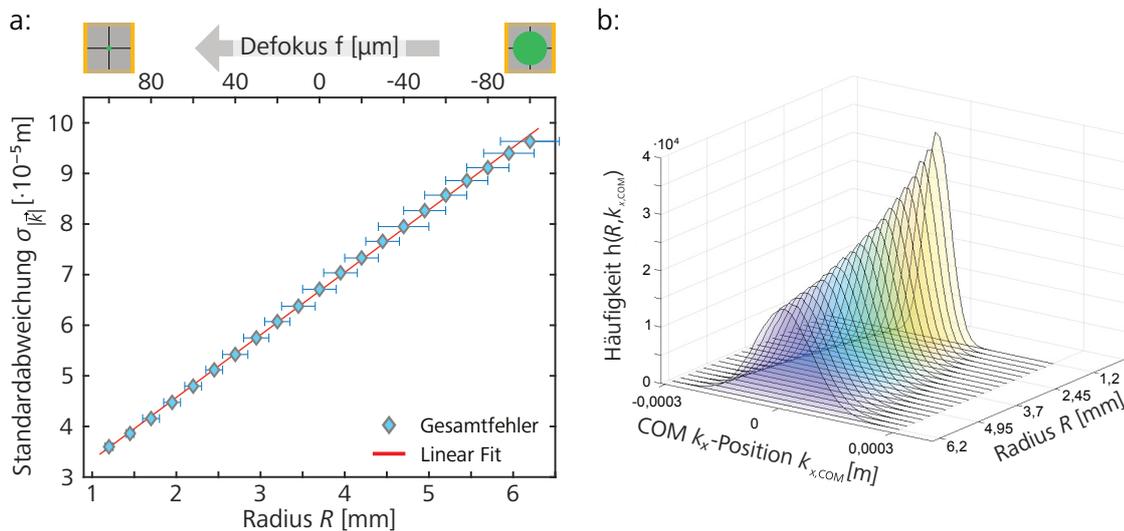
**Abb. 5.8:** Ergebnis der Messung des Einflusses des Strahlstroms  $I$  auf die Messempfindlichkeit der COM-Positionsmessung für eine konstante Strahlgröße. In **a** sind sowohl die Standardabweichungen der beiden Richtungskomponenten  $\sigma_{k_x}$  und  $\sigma_{k_y}$  als auch der Gesamtfehler  $\sigma_{|\vec{k}_{COM}|}$  der Messung der COM-Position gezeigt. Es ergibt sich, wie bei der entsprechenden Simulation, eine  $\frac{1}{\sqrt{I}}$  Abhängigkeit des Messfehlers (siehe Fit). In **b** sind exemplarisch die, den berechneten Standardabweichungen zugrunde liegenden, Messwertverteilungen der  $k_x$ -COM-Positionen für die unterschiedlichen Strahlströme gezeigt. Es ist gut zu erkennen, dass sich diese mit steigendem  $I$  verschmälern.

Standardabweichung der Positionsmessung von  $\sigma_{|\vec{k}_{COM}|} \approx 115 \mu\text{m}$ . Der absolute Fehler (Standardfehler) einer Messung unter diesen Bedingungen und einer Anzahl von 100 Mittelungen pro Messpunkt würde sich auf  $\pm 11,5 \mu\text{m}$  belaufen. Obwohl dieser Wert nicht optimal ist, sollte es mit dieser Ortsauflösung aber dennoch möglich sein, Proben mit stärkeren intrinsischen Feldern (zum Beispiel in Permalloy und Cobalt) zu vermessen.

### Einfluss der Strahlgröße

An dieser Stelle soll die Abhängigkeit des Messfehlers  $\sigma_{|\vec{k}_{COM}|}$  von dem Radius  $R$  des Beugungsscheibchens ermittelt werden. Im Idealfall sollten sich die experimentellen Ergebnisse mit denen der Simulationen decken und somit bestätigen, dass ein linearer Zusammenhang zwischen  $\sigma_{|\vec{k}_{COM}|}$  und  $R$  besteht (siehe Abschnitt 4.2.1).

**Messverfahren** Zur Messung der Größenabhängigkeit musste eine Möglichkeit gefunden werden, welche es erlaubt, die Größe des Beugungsscheibchens auf dem Detektor zu variieren, ohne dabei Einfluss auf den Strahlstrom  $I$  zu nehmen. Da es hierfür am Mikroskop der Arbeitsgruppe kein Standardverfahren gibt, wurde die sogenannte *Defokus*-Einstellung, mit welcher normalerweise im STEM-Modus der Elektronenstrahl auf die Probe fokussiert wird, für diese Messreihe zweckentfremdet. Der *Defokus*-Wert wird typischerweise in Mikrometern angegeben. Befindet sich keine Probe im Strahlengang, kann mit dieser Einstellung (in gewissen Grenzen) die Größe des Beugungsscheibchens, in der Detektorebene variiert werden, ohne dabei den



**Abb. 5.9:** Ergebnis der Messung des Einflusses des Strahlradius  $R$  auf die Messempfindlichkeit der Positionsmessung für einen konstanten Strahlstrom. Der Radius des Beugungsscheibchens konnte im HMSTEM-Modus über die *Defokus*-Einstellung variiert werden. In **a** sind sowohl die Standardabweichungen der beiden Richtungskomponenten  $\sigma_{k_x}$  und  $\sigma_{k_y}$  als auch der Gesamtfehler  $\sigma_{|\vec{k}_{COM}|}$  der Messung der COM-Position gezeigt. Es ergibt sich eine lineare Abhängigkeit des Messfehlers bezüglich der Strahlgröße. Dies bestätigt die Ergebnisse der entsprechenden Simulationsrechnung. In **b** sind exemplarisch die, den berechneten Standardabweichungen zugrunde liegenden, Messwertverteilungen der  $k_x$ -COM-Positionen für die unterschiedlichen Radien gezeigt. Diese verschmälern sich mit abnehmendem Radius.

Strahlstrom zu beeinflussen. Da es zum Verständnis der Messergebnisse nicht nötig ist, die Funktionsweise der *Defokus*-Einstellung zu kennen, wird auf eine Erläuterung an dieser Stelle verzichtet. Der Zusammenhang zwischen dem *Defokus*-Wert  $f$  und  $R$  wurde in der, im Laufe dieser Dissertation betreuten, Zulassungsarbeit von F. Müller [98] experimentell bestimmt. Auf eine Erläuterung des hierzu verwendeten Messverfahrens wird im Hinblick auf den Umfang dieser Arbeit verzichtet und auf die Zulassungsarbeit selbst verwiesen [98]. Eine graphische Darstellung der gemessenen Abhängigkeit zwischen  $f$  und dem Durchmesser des Beugungsscheibchens, sowie eine kurze Erläuterung des Messverfahrens finden sich dennoch im Anhang A.3 dieser Arbeit. Für die Messsituation während der Anfertigung der Messreihe (siehe unten) ergibt sich zwischen den am Mikroskops eingestellten  $f$ -Werten und  $R$  der folgende lineare Zusammenhang:

$$R(f) = -\frac{0,05 \cdot f + 7,4}{2} \quad (5.14)$$

[98]. Im Laufe der Messreihe wurde der Radius in 0,24 mm-Schritten von circa 1,2 mm auf 6,2 mm vergrößert, was einer Reduzierung der *Defokus*-Werte von  $f = +100 \mu\text{m}$  auf  $f = -100 \mu\text{m}$  entspricht (vergleiche Abbildungen 5.9 und A.4). Für jeden Radius wurde das Beugungsscheibchen auf dem Detektor zentriert und dessen Position jeweils 262.144 mal gemessen. Wie zuvor wurde für jede der sich so ergebenden

Verteilungen der Messfehler in Form der Standardabweichung der Positionsmessung  $\sigma_{|\vec{k}_{\text{COM}}|}$  berechnet. Die Messreihe wurde im HMSTEM-Modus, bei einer Kameralänge von  $C_L = 250$  mm, unter Verwendung der C2-Blende Nummer 3 (Blendendurchmesser:  $100 \mu\text{m}$ ) und der *Spotsize*-Einstellung Nummer 9 durchgeführt. Diese Einstellungen lieferten einen Strahlstrom von ungefähr  $I = 0,82$  nA, welcher im Rahmen der Messgenauigkeit der Strommessung mit dem Leuchtschirm für alle eingestellten Radien konstant blieb.

**Ergebnisse** In Abbildung 5.9a ist das Ergebnis der Messreihe präsentiert. Sie zeigt den Gesamtfehler  $\sigma_{|\vec{k}_{\text{COM}}|}$  der COM-Messung in Abhängigkeit von  $R$  und  $f$ . Die eingezeichneten Fehlerbereiche beziehen sich auf den Messfehler von  $R$  (siehe Anhang Abbildung A.4 und [98]). Auf eine separate Darstellung der Richtungskomponenten  $\sigma_{k_x}$  und  $\sigma_{k_y}$  des Messfehlers wurde an dieser Stelle verzichtet. Das Ergebnis bestätigt die Annahme eines linearen Zusammenhangs zwischen  $R$  und  $\sigma_{|\vec{k}_{\text{COM}}|}$ . So ergibt sich der minimale Messfehler  $\sigma_{|\vec{k}_{\text{COM}}|} \approx 35 \mu\text{m}$  bei der kleinsten Strahlgröße ( $R \approx 61,2$  mm) und der maximale Wert  $\sigma_{|\vec{k}_{\text{COM}}|} \approx 98 \mu\text{m}$  für die Messung mit dem größten Scheibchen ( $R \approx 6,2$  mm). Zwischen diesen beiden Werten steigt der Messfehler linear mit einer Steigung von  $m = (2,10 \pm 0,07) \cdot 10^{-5} \frac{\mu\text{m}}{\text{mm}}$  an (siehe Ausgleichsgerade in Abbildung 5.9a). In Abbildung 5.9b, welche exemplarisch die Verteilungen der Messwerte in  $k_x$ -Richtung für die Unterschiedlichkeit der Radien zeigt, ist gut zu erkennen, dass sich die Verteilungen mit kleiner werdendem  $R$  immer weiter verschmälern.

Eine Extrapolation der Ausgleichsgeraden in Abbildung 5.9a für  $R$  gegen Null liefert den hypothetischen Fehler einer Messung mit einem nahezu punktförmigen ( $R \approx 0$  mm) Elektronenstrahl. Er beträgt  $\sigma_{|\vec{k}_{\text{COM}}|}(R = 0 \text{ mm}) \approx 2,1 \mu\text{m}$ . Dieser Wert bedeutet, dass der PSD-Detektor dazu in der Lage ist, die Verschiebung eines nahezu punktförmigen Strahls um lediglich  $2,1 \mu\text{m}$  zu detektieren. Dies ist besonders im Vergleich zu schnellen Kamerasystemen (siehe Abschnitt 3.2) ein interessantes Messergebnis, da diese nur dann eine Änderung der Position detektieren können, wenn der Strahl mindestens soweit verschoben wird, dass er sich nach der Verschiebung im angrenzenden Detektor-Pixel befindet. Beispielsweise müsste der Strahl für eine Pixelgröße von  $55 \mu\text{m}$  mal  $55 \mu\text{m}$  (MerlinEM-Kamera) um mindestens  $27,5 \mu\text{m}$  verschoben werden, wenn er zu Beginn der Verschiebung in der Mitte eines Pixels positioniert war. Ein Vergleich mit einem DPC-Ringdetektor ist an dieser Stelle nicht sinnvoll, da dort das Beugungsscheibchen größer sein muss als das zentrale Detektorloch.

Zusammenfassend konnten die Messergebnisse dieses Abschnitts die theoretischen Überlegungen zur Abhängigkeit der Messfehlers, beziehungsweise der Messempfindlichkeit, von der Größe des Beugungsscheibchens bestätigen. Auf Grund des linearen Zusammenhangs zwischen  $\sigma_{|\vec{k}_{\text{COM}}|}$  und  $R$  sollten DPC-Messungen  $\sigma$  mit dem neuen Detektorsystem – wenn es die Messsituation erlaubt – mit möglichst kleinen Beugungsscheibchen durchgeführt werden.

# 6 Erste Messungen mit dem PSD-Detektor

Die experimentelle Charakterisierung des PSD-Detektors legt nahe, dass es mit dem entwickelten System möglich sein sollte, DPC-Messungen an realen Proben durchzuführen. Sowohl die ermittelte Messempfindlichkeit als auch die gute Detektorlinearität (vergleiche Abschnitte 5.2.1 und 5.2.2) sprechen für einen Einsatz der PSD als DPC-Detektor in einem Rastertransmissionselektronenmikroskop.

In diesem Kapitel werden die Ergebnisse erster Messungen mit dem neuen Detektor an realen Proben präsentiert. Das Hauptaugenmerk liegt dabei auf der Klassifizierung der Leistungsfähigkeit des PSD-Systems unter Realbedingungen und nicht auf der Untersuchung von Proben im Hinblick auf neue physikalische Erkenntnisse. Aus diesem Grund wurden Proben gewählt, welche sich besonders gut als Testobjekte für den Detektor eignen und welche allgemein in der Elektronenmikroskopie gerne zum Test neuer Systeme und Methoden verwendet werden. So wird die PSD einerseits zur Untersuchung einer magnetischen Domänenwand in einer polykristallinen Cobalt-Dünnschicht-Probe im LMSTEM-Betrieb und andererseits zur Abbildung der atomaren Feldverteilung eines Strontiumtitanat-Kristalls  $\text{SrTiO}_3$  im HMSTEM-Betrieb verwendet. Diese beiden Proben, beziehungsweise Messsituationen, erlauben es den Detektor sowohl auf seine Leistungsfähigkeit bei der Detektion der Verschiebung homogener Beugungsscheibchen als auch auf seine Eignung als COM-Detektor für moreSTEM-Messungen mit stark inhomogenen Beugungsscheibchen zu testen. Zur Einordnung der Messergebnisse werden diese mit denen eines cDPC-Systems (Ergebnisse der Cobaltprobe) und denen einer moreSTEM-Messung mit einem schnellen Kamerasystem (Ergebnisse der  $\text{SrTiO}_3$ -Probe) verglichen.

## 6.1 Messungen im LMSTEM-Betrieb

Dieser Abschnitt beschäftigt sich mit der Untersuchung einer magnetischen Domänenwand in einer Cobalt-Dünnschicht-Probe, welche im LMSTEM-Betrieb des Mikroskops durchgeführt wurde. Für diese Messung ergeben sich, auf Grund der im Vergleich zur Sondengröße ausgedehnten homogenen magnetischen Felder, nahezu homogene Beugungsscheibchen (siehe Abschnitt 2.2.2). Die mit der PSD gemessenen COM-Positionen entsprechen für diese Situation den geometrischen Mittelpunkten der Beugungsscheibchen und somit der Verschiebung dieser auf dem Detektor.

Typischerweise werden an der Arbeitsgruppe Untersuchungen an Proben dieses Typs mit dem cDPC-System durchgeführt. Die Ergebnisse der Testmessungen werden deshalb mit cDPC-Messungen derselben Probenstelle verglichen. Ein Teil der Ergebnisse dieses Abschnitts wurden in der Fachzeitschrift *Ultramicroscopy* veröffentlicht [23].

### 6.1.1 Untersuchte Probe

Bei der untersuchten Probe handelt es sich um eine nanokristalline Cobalt-Dünnschichtprobe, welche im Zuge der Masterarbeit von T. Beer [106] durch thermische Verdampfung von hochreinem Cobalt (Reinheit laut Hersteller: 99,995 %) in einer Vakuumkammer der Firma tectra GmbH hergestellt wurde. Auf eine Beschreibung der Probenherstellung wird an dieser Stelle verzichtet und auf den entsprechenden Abschnitt in der Arbeit von T. Beer [106] verwiesen. Die Dicke der Probe wurde während des Aufdampfprozesses mit einer Quarzwaage gemessen und beträgt  $t_{\text{Co}} = (35 \pm 8)$  nm.

Solche Cobaltproben besitzen eine ausgeprägte magnetische Domänenstruktur, deren Magnetisierung auf Grund der niedrigen Probendicke hauptsächlich in der Probenebene liegt. An den Grenzen zwischen zwei Domänen können sich je nach Probendicke Néel-, Bloch und/oder sogenannte Stacheldraht<sup>1</sup>-Domänenwände ausbilden [107]. Bei ersterer dreht sich die Magnetisierung zwischen zwei Domänen – im Gegensatz zu Bloch-Wänden – in der Ebene. Die Stacheldraht-Domänenwand entspricht einer Kombination aus Néel- und Bloch-Wänden. Für die gemessene Probendicke von circa  $(35 \pm 8)$  nm sollten sich sowohl Néel- als auch Stacheldraht-Domänenwände darin ausbilden [108]. Da die Magnetisierung hauptsächlich in der Probenebene liegt, eignen sich Proben dieses Typs gut zur Untersuchung mittels der Differentiellen Phasenkontrastmikroskopie und sind somit auch ein ideales Testobjekt für den PSD-Detektor. Weitere Informationen über den Magnetismus dünner Schichten sowie (S)TEM-Untersuchungen an dünnen Cobaltproben und anderen magnetischen Materialien finden sich beispielsweise in den Quellen [5, 8, 14, 51, 64, 66, 106, 108–114].

### 6.1.2 Messverfahren

Die Messungen wurden an einem Tecnai F30 mit dem in Abschnitt 5.1 beschriebenen PSD-System angefertigt. Jede untersuchte Probenstelle wurde sowohl mit dem neuen PSD-Detektor als auch mit dem, ebenfalls im Mikroskop verbauten, ringförmigen DPC-Detektor vermessen. Direkt nach einer PSD-Messung wurde mit den gleichen Messparametern eine vergleichende cDPC-Messung an der selben Probenstelle durchgeführt. Hierzu mussten Einstellungen verwendet werden, bei denen das Beugungsscheibchen sowohl auf den PSD- als auch auf den cDPC-Detektor passte. Es zeigte sich, dass Messungen im LMSTEM-Betrieb, mit der C2-Blende Nummer 3

---

<sup>1</sup>oft auch als Cross-Tie-Domänenwand bezeichnet

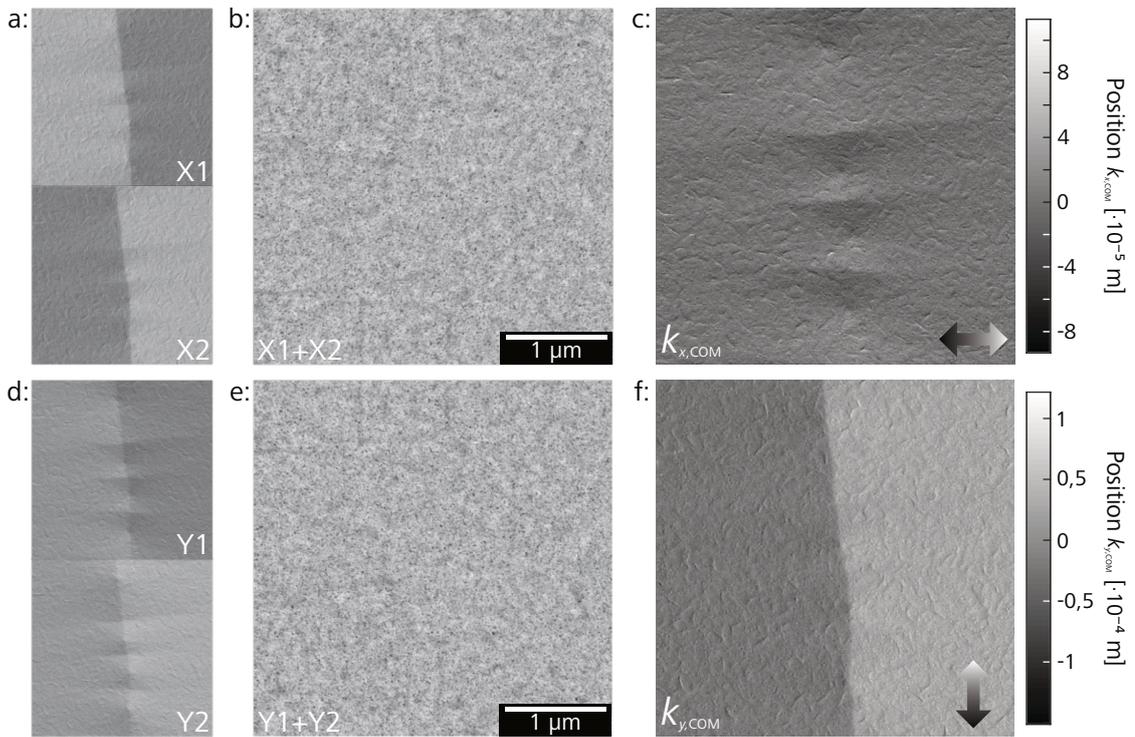
(Durchmesser:  $100\ \mu\text{m}$ ), einer Kameralänge von  $C_L = 9,33\ \text{m}$  und der *Spotsize* Nummer 9, auf beiden Detektoren sinnvolle Signale lieferten. Für die cDPC-Messungen wurde der innere Detektorring (siehe Abschnitt 3.1.1) verwendet. Die untersuchten Probenbereiche wurden mit  $1.024$  mal  $1.024$  Rasterpunkten mit einer Verweilzeit von  $\tau = 10\ \mu\text{s}$  pro Punkt abgetastet.

### 6.1.3 Ergebnisse

Abbildung 6.1 zeigt das Ergebnis einer PSD-Messung an einer vertikal verlaufenden Stacheldraht-Domänenwand, von welcher zwei Domänen mit antiparalleler Magnetisierung getrennt sind. Bereits auf den ersten Blick ist ersichtlich, dass das PSD-System dazu in der Lage ist, die magnetische Struktur der Cobaltschicht abzubilden. Dies stellt im Bezug auf die – bis zu diesem Punkt noch nicht untersuchte – Messgeschwindigkeit des Detektors ein zufriedenstellendes Ergebnis dar. Der Fakt, dass die Signale einzelner Rasterpunkte klar voneinander getrennt und nicht zeilenweise verschmiert sind, zeigt, dass die Antwortzeit des Detektors auf schnelle ( $\tau = 10\ \mu\text{s}$ ) Positionsänderungen des Beugungsscheibchens kurz genug ist um diese zuverlässig zu detektieren [23]. Dafür spricht besonders der scharfe Kontrast der einzelnen Cobaltkristallite, welcher in den beiden Summensignalen (siehe Abbildung 6.1b und e) zu sehen ist.

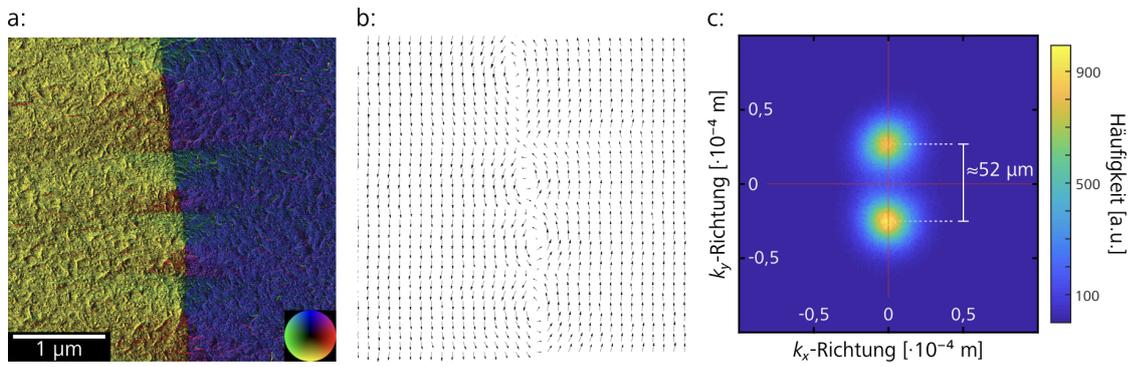
Für jede Detektionsrichtung sind sowohl die Einzelsignale der Elektrodenpaare X1/X2 und Y1/Y2 (siehe Abbildung 6.1a und d) als auch die korrespondierenden Summensignale  $\Sigma_{h+}$  und  $\Sigma_{e-}$  (siehe Abbildung 6.1b und e) gezeigt. In den Einzelsignalen ist bereits die magnetische Struktur der Stacheldraht-Wand gut zu erkennen. Dabei entspricht ein hellerer Grauwert einem größeren Messsignal an der jeweiligen Elektrode, und zeigt auf, dass der Elektronenstrahl durch das magnetische Feld am Probenort in Richtung der Elektrode verschoben wurde. Die Summensignale der beiden Elektrodenpaare, welche nach praktischen Gesichtspunkten identisch sind, zeigen wie erwartet keinen magnetischen Kontrast, sondern die polykristalline Struktur der Cobaltschicht. Sie entsprechen dem BF-Signal konventioneller STEM-Messungen mit einem BF-Detektor. Im Gegensatz zu dem Summensignal eines DPC-Ringdetektors (vergleiche Abschnitt 3.1.3 oder [70]) sind diese Signale weitestgehend unabhängig von Strahlform und -größe und detektieren ausschließlich Intensitätsvariationen des Elektronenstrahls. Neben der Messung der Feldverteilung liefert die PSD also gleichzeitig ein fokussiertes BF-Bild des untersuchten Probenbereichs.

In den Abbildungen 6.1c und f sind die, aus den Einzelsignalen berechneten, Richtungskomponenten  $k_{x,\text{COM}}$  und  $k_{y,\text{COM}}$  der absoluten Position des COMs des Beugungsscheibchens gezeigt. Diese wurden mit Gleichungen 4.6 und 4.7 aus den Einzelsignalen und der Kantenlänge  $L = 0,02\ \text{m}$  der aktiven Fläche berechnet. Die Fehl- ausrichtung des Koordinatensystems des Detektors bezüglich dem der Probe ergab einen Winkel von  $\theta = -111^\circ$ . Diese wurde in den Darstellungen von  $k_{x,\text{COM}}$  und  $k_{y,\text{COM}}$  vorab durch eine Rotation des gemessenen Vektorfeldes korrigiert. Da im Falle



**Abb. 6.1:** Ergebnisse der PSD-Messung an einer Stacheldraht-Domänenwand in einer dünnen Cobaltprobe. **a** und **d** zeigen die Einzelsignale der Elektrodenpaare X1/X2 und Y1/Y2, **b** und **e** die entsprechenden Summensignale. Letztere entsprechen dem BF-Signal eines BF-STEM Detektors. In **c** und **f** sind die Richtungskomponenten  $k_{x,COM}$  und  $k_{y,COM}$  der absoluten COM Positionen gezeigt. Durch eine geeignete Rotation des gemessenen Vektorfeldes (siehe Haupttext) entsprechen die Richtungen der beiden Richtungssignale bereits denen der entsprechenden Komponenten der magnetischen Induktion. Die Struktur der Domänenwand (**c**) sowie die Richtung der beiden angrenzenden magnetischen Domänen (**f**) sind gut zu erkennen.

magnetischer Feldverteilungen die Ablenkung des Elektronenstrahls und somit auch die Verschiebung des Beugungsscheibchens auf dem Detektor, senkrecht zur magnetischen Induktion (Lorentzkraft) steht, wurde das resultierende Vektorfeld zudem um  $-90^\circ$  gedreht. Die Richtungen der hier dargestellten Richtungssignale entsprechen somit bereits denen der jeweiligen Komponenten der magnetischen Induktion. Diese Winkelkorrekturen sind auch der Grund, warum die Einzelsignale scheinbar nicht zu den Richtungssignalen passen. Da die Verschiebung  $\vec{k}_{COM}$  des Beugungsscheibchens gemäß Gleichung 3.3 proportional zur Stärke der magnetischen Induktion am jeweiligen Probenort ist, liefern  $k_{x,COM}$  und  $k_{y,COM}$  Aufschluss über die magnetische Struktur des untersuchten Probenbereichs. So sind in Abbildung 6.1c die horizontalen Anteile der Stacheldraht-Domänenwand erkennbar. In Abbildung 6.1f ist die vertikale Trennung der beiden antiparallelen Domänen zu sehen, wobei die Induktion in der linken Domäne nach unten zeigt und in der rechten nach oben. Die schmalen länglichen Strukturen, welche in beiden Richtungen zu erkennen sind, sind auf Polymerrückstände des Präparationsprozesses (vergleiche [106]) zurückzuführen. Diese bewirken eine Variation der lokalen Probendicke, was wiederum eine

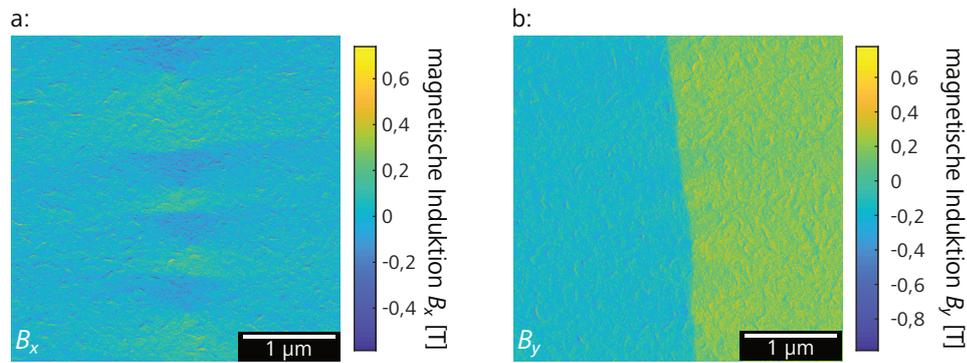


**Abb. 6.2:** In **a** und **b** ist das gemessene Vektorfeld der COM-Positionen sowohl farbcodiert als auch als Vektorkarte dargestellt. Die abwechselnde Vortex/Antivortex-Struktur der Domänenwand ist gut zu erkennen. In **c** ist ein sogenannter Scatterplot der zweidimensionalen Verteilung aller gemessenen COM-Positionen  $\vec{k}_{\text{COM}}$  gezeigt. Der Abstand der beiden runden Verteilungen beträgt circa  $52 \mu\text{m}$ . Er ist hauptsächlich auf die Ablenkung des Elektronenstrahls durch die antiparallelen Domänen zurückzuführen.

Phasenverschiebung der auslaufenden Elektronenwelle bewirkt und als ein zusätzlicher nicht magnetischer Anteil des Phasenkontrasts gemessen wird [72].

Analog zu der Darstellung des Signalvektors von cDPC-Messungen (vergleiche Abbildungen 3.4d und e), ist in den Abbildungen 6.2a und b eine farbcodierte Darstellung des Vektorfeldes der ortsabhängigen PSD-Signalvektoren  $\vec{k}_{\text{COM}}(P_{x,y})$  sowie eine Vektorkarte gezeigt. In beiden Darstellungen sind die zwei magnetischen Domänen sowie die Stacheldraht-Struktur gut erkennbar. Zudem werden feinere Details, wie die abwechselnde Vortex/Antivortex-Struktur der Domänenwand sichtbar. Teilabbildung 6.2c zeigt die zweidimensionale Verteilung aller gemessenen COM-Positionen  $\vec{k}_{\text{COM}}$  in einem sogenannten Scatterplot. Es ergeben sich zwei voneinander getrennte runde Verteilungen, deren Intensitätsschwerpunkte in  $k_y$ -Richtung circa  $52 \mu\text{m}$  voneinander entfernt sind. Diese Aufspaltung ist auf die Ablenkung des Elektronenstrahls durch die beiden antiparallelen Domänen zurückzuführen. Die schmalere Verteilung der COM-Positionen in  $k_x$ -Richtung resultiert aus der Struktur der Domänenwand.

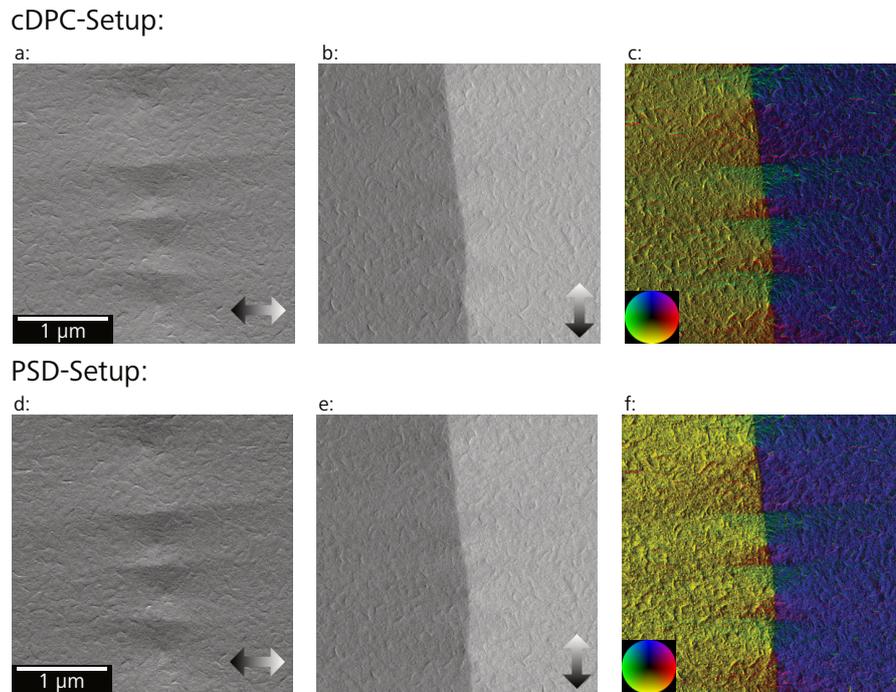
Ein großer Vorteil des PSD-Detektors ist, dass er im Gegensatz zum DPC-Ringdetektor absolute Messwerte der COM-Position des Beugungsscheibchens liefert. Dies erlaubt bei bekannter Kameralänge und Probendicke eine direkte Quantifizierung der lokalen magnetischen Induktion  $\vec{B}[T]$  (unter Anwendung von Gleichung 3.3). Dies gilt natürlich auch für Proben mit intrinsischen elektrischen Feldern  $\vec{E}$  (Gleichung 3.2). In Abbildung 6.3 sind die aus den absoluten COM-Positionen  $k_{x,\text{COM}}$  und  $k_{y,\text{COM}}$  berechneten Richtungskomponenten der magnetischen Induktion  $B_x$  und  $B_y$  gezeigt. Hierfür wurde eine Probendicke von  $t = 35 \text{ nm}$  und eine Kameralänge von  $C_L = 9,33 \text{ m}$  angenommen. An dieser Stelle sei angemerkt, dass die realen Werte von  $t$  und  $C_L$  eventuell abweichen können und somit auch die absoluten Feldwerte mit einem Fehler behaftet sind. So beträgt der relative Fehler der Probendicke bereits  $\approx 21 \%$ .



**Abb. 6.3:** In dieser Abbildung ist das Ergebnis der Quantifizierung der PSD-Messung an der Stacheldraht-Domänenwand in Cobalt gezeigt. **a** zeigt dabei die  $x$ -Komponente der magnetischen Induktion  $B_x$  und **b** die  $y$ -Komponente  $B_y$ . Die ermittelten absoluten Werte liegen im Bereich von  $\pm 1$  Tesla und somit nahe der richtigen Größenordnung.

Da sich der am Mikroskop angezeigte Wert von  $C_L$  auf den elektronenoptisch wirksamen Abstand zwischen Probenebene und dem BF-STEM-Detektor bezieht, und sich der PSD-Detektor in einer anderen (höheren) Ebene befindet, wird der Wert der Kameralänge ebenfalls abweichen. Grundsätzlich sollten vor der Anfertigung von absoluten Feldmessungen die Probendicke bestimmt und die Kameralänge kalibriert werden. Die nachfolgenden Ergebnisse sind eher als ein „Proof of Concept“ gedacht und dienen hauptsächlich der Überprüfung, ob die absoluten Feldwerte in der richtigen Größenordnung liegen. Für die  $B_x$ -Komponente, welche hauptsächlich die Anteile der Stacheldraht-Wand enthält, ergeben sich Werte im Bereich zwischen  $-0,6\text{ T}$  und  $+0,6\text{ T}$ , für die  $B_y$ -Komponente, welche die vertikale Trennung der Domänen zeigt, Werte zwischen  $-0,9\text{ T}$  und  $+0,8\text{ T}$ . In Anbetracht der Fehlertoleranz der Quantifizierung (siehe oben) liegen diese Werte annähernd in der für diese Probe erwarteten Größenordnung (die Sättigungsmagnetisierung von elementarem Cobalt beträgt  $1,76\text{ T}$  [107, 114]). Gründe dafür, dass der Wert von  $1,76\text{ T}$  im untersuchten Probenbereich nicht gemessen wurde, könnten neben einer abweichenden Kameralänge und Probendicke auch eine Oxidation der Cobaltschicht und Streufelder über und unter der Probe sein.

Es zeigt sich also, dass die Quantifizierung der PSD-Messung Ergebnisse im Bereich der richtigen Größenordnung liefert, was einen entscheidenden Vorteil gegenüber konventionellen DPC-Messungen darstellt. Um mit einem Ringdetektor absolute Messungen durchführen zu können, muss dieser zuvor kalibriert werden. Diese Kalibrierung ist aber, wie in Abschnitt 3.1.3 gezeigt, stark von der Größe des Beugungsscheibchens auf dem Ringdetektor abhängig und somit anfällig für Fehler durch homogene und inhomogene Strahlverbreiterungen. Da mit einer PSD ausschließlich das COM des Beugungsscheibchens bestimmt wird, haben Strahlgröße und -form nahezu keinen Einfluss auf den Messfehler und die Quantifizierung. Einzig die Messempfindlichkeit der Positionsbestimmung wird von der Strahlgröße beeinflusst (vergleiche Abschnitte 4.2.1 und 5.2.3).



**Abb. 6.4:** Vergleich der Ergebnisse der PSD-Messung mit einer cDPC-Messung am selben Probenbereich. In **a/b** (PSD-Detektor) und **d/e** (Ringdetektor) sind die jeweiligen Richtungskomponenten der magnetischen Induktion gezeigt. In **c** und **f** sind die gemessenen Feldverteilungen farbcodiert dargestellt. Ein einfacher visueller Vergleich der Ergebnisse offenbart keine nennenswerten Unterschiede der beiden Messtechniken.

#### 6.1.4 Vergleich mit dem cDPC-Setup

Abschließend werden die Ergebnisse des PSD-Detektors mit denen einer direkt im Anschluss durchgeführten cDPC-Messung am selben Probenbereich verglichen. Die Messparameter beider Messungen waren dabei identisch (siehe Abschnitt 6.1.2). Die Ergebnisse wurden auf die gleiche Weise dargestellt, wobei besonders darauf geachtet wurde, dass die Bildkontraste nicht verändert wurden. Abbildung 6.4 zeigt eine Gegenüberstellung der Signale beider Detektoren. In den Abbildungsteilen **a/b** und **d/e** sind die jeweiligen Detektorsignale in  $k_x$ - beziehungsweise  $k_y$ -Richtung gezeigt, in den Abbildungen **c** und **d** sind die gemessenen Feldverteilungen farbcodiert dargestellt. Bei der Betrachtung zeigen sich keine nennenswerten Unterschiede der Signale. Sowohl der Richtungscontrast als auch die Wiedergabe der relativen Variationen der Feldstärken an unterschiedlichen Probenbereichen zeigen keine nennenswerten Unterschiede. Beide Detektoren liefern eine klare Messung der magnetischen Probenstruktur. Wegen der geringen qualitativen Unterschiede, und da beide Detektoren eine unterschiedliche elektronische Signalauswertung (Transimpedanzwandler und Signalverstärkung) mit unterschiedlicher Rauschcharakteristik besitzen, wurde an dieser Stelle auf eine quantitative Analyse der Signal-Rausch-Verhältnisse verzichtet.

Die hier gezeigten Messungen legen zweifelsfrei dar, dass das PSD-System als Detektor für die Differentielle Phasenkontrastmikroskopie im LMSTEM-Betrieb geeignet ist. In Bezug auf Richtungskontrast und Detektionsgeschwindigkeit steht der PSD-Detektor dem cDPC-System in nichts nach. Der Fakt, dass der neue Detektor nicht nur qualitative Richtungssignale, sondern absolute Positionswerte des COMs des Beugungsscheibchen liefert, positioniert ihn als eine ernstzunehmende Alternative zum DPC-Ringdetektor.

## 6.2 Messungen im HMSTEM-Betrieb

Im letzten Abschnitt dieser Arbeit soll geklärt werden, ob der PSD-Detektor auch für die Anfertigung von impuls aufgelösten STEM-Messungen mit atomarer lateraler Auflösung geeignet ist (vergleiche Abschnitt 3.2). Bis zu diesem Punkt in der Arbeit wurden ausschließlich Messungen an Beugungsscheibchen mit homogener Intensitätsverteilung, bei denen die gemessene COM-Position  $\vec{k}_{\text{COM}}$  der Lage der geometrischen Mitte des Scheibchens entspricht, durchgeführt. Abschließend soll nun untersucht werden, ob der PSD-Detektor dazu in der Lage ist Variationen des COMs zu detektieren, welche auf einer Intensitätsumverteilung im Inneren des Beugungsscheibchens basieren (siehe Abschnitte 2.2.3 und 3.2). Dies wurde mittels hochauflösender STEM-Messungen – mit atomarer Auflösung – an einer monokristallinen  $\text{SrTiO}_3$ -Probe untersucht. Da die Auflösung des an der Arbeitsgruppe vorhandenen Tecnai F30 für diese Untersuchung nicht ausreicht, wurden diese PSD-Messungen an einem sondenkorrigierten STEM des Typs *Titan 80-300 STEM* der Firma FEI am *Ernst-Ruska-Zentrum für Mikroskopie und Spektroskopie mit Elektronen* (ER-C) des Forschungszentrums Jülich durchgeführt. Die nachfolgend gezeigten Messungen entstanden in Zusammenarbeit mit Knut Müller-Caspary, welcher es ermöglichte, die Messungen an seiner Arbeitsgruppe am ER-C durchzuführen. Das verwendete STEM bietet auch die Möglichkeit moreSTEM-Messungen mit einem aktuellen Kamerasystem, der MerlinEM-Kamera der Firma Quantum Detectors [33], durchzuführen. Dies ermöglichte einen direkten Vergleich des PSD-Detektors mit einem modernen Kamerasystem.

### 6.2.1 Untersuchte Probe

Die zum Test des Detektors verwendete Probe ist ein FIB-Schnitt eines monokristallinen Strontiumtitanat-Kristalls. Die Dicke der Probe in den untersuchten Bereichen lag dabei zwischen 2 nm und 30 nm. Bei Strontiumtitanat handelt es sich um ein Oxid der Elemente Strontium und Titan mit der chemischen Zusammensetzung  $\text{SrTiO}_3$ . In Abbildung 6.5a ist die in [100]-Richtung projizierte Gitterstruktur von  $\text{SrTiO}_3$  gezeigt. In dieser Projektion, welche auch der Ausrichtung der untersuchten Probe entspricht, befinden sich an den Eckpunkten der Elementarzelle (grau hinterlegt) Strontium-Atomsäulen in einem Abstand von  $a = 0,3945 \text{ nm}$  (= Gitterkonstante der

kubischen Perowskit Einheitszelle). Zwischen den Sr-Atomen, an den Kanten der Einheitszelle, befinden sich reine Sauerstoff-Atomsäulen; und in der Mitte eine Säule, welche abwechselnd aus Titan- und Sauerstoffatomen aufgebaut ist.

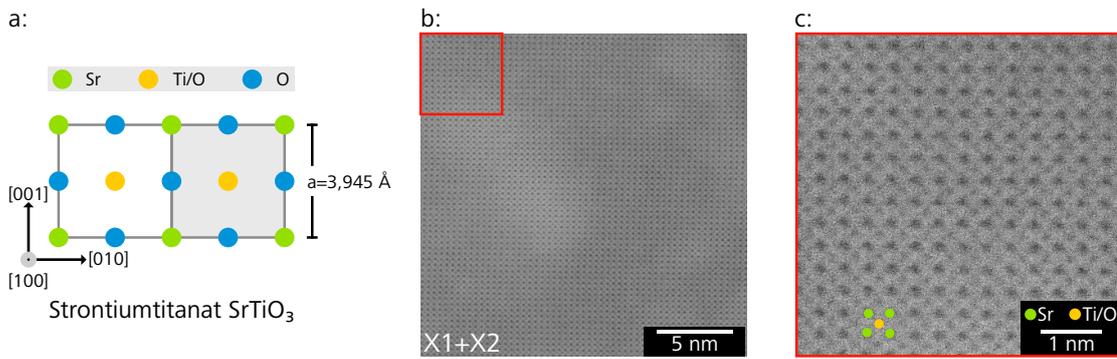
Einer der Gründe für die Wahl von  $\text{SrTiO}_3$  als Testprobe war, dass es sich dabei um ein wohldefiniertes Materialsystem handelt, welches gerne zur Charakterisierung neuer Messtechniken in der Elektronenmikroskopie verwendet wird. So wurde es beispielsweise auch von K. Müller-Caspary im Zuge der Beschreibung von moreSTEM-Messungen verwendet [25, 26]. Zudem bieten die drei, aus unterschiedlichen Atomen aufgebauten, Säulen in der Einheitszelle die Möglichkeit, den Messkontrast an verschiedenen Atomsorten zu evaluieren. Ein guter Test für die Empfindlichkeit einer Messtechnik ist dabei, ob es mit ihr möglich ist, die reinen Sauerstoffsäulen in  $\text{SrTiO}_3$  abzubilden. Dies stellt in der aktuellen Forschung immer noch eine große Herausforderung dar [25, 115, 116]. So ist es in Standard BF- und HAADF<sup>2</sup>-STEM Messungen, auf Grund des niedrigen Atomgewichts von Sauerstoff nicht – oder nur eingeschränkt – möglich diese O-Säulen abzubilden [25]. Weitere Informationen über die Kristallstruktur von  $\text{SrTiO}_3$  und weitere Untersuchungsergebnisse finden sich beispielsweise in [25, 26, 115, 117–119].

### 6.2.2 Messverfahren

Wie bereits erwähnt, wurden die HRSTEM-Messungen mit dem PSD-Detektor, mit einem sondenkorrigierten STEM am Ernst-Ruska-Zentrum in Jülich durchgeführt. Dieses STEM, welches mit einem Monochromator und einem  $C_s$  Sondenkorrektor der Firma CEOS ausgestattet ist, bietet die Möglichkeit STEM-Messungen mit einer lateralen Auflösung von unter einem Ångström anzufertigen. Weitere Informationen zu diesem Mikroskop finden sich in [120]. Das entwickelte PSD-Detektorsystem konnte ohne Probleme in das neuere Mikroskop integriert werden, da dessen Projektionskammer weitestgehend baugleich mit dem des ansonsten verwendeten Tecnai F30 ist. Einzig die Rasterpositionen des Elektronenstrahls mussten auf eine unterschiedliche Weise ausgelesen werden, da sich die Steuerung der Rasterelektronik beider STEMs unterscheidet. Da das Titan 80-300 STEM die Möglichkeit bietet, die Rasterposition in Form von analogen Spannungssignalen auszugeben, konnten diese mit einem Analog-Digital-Wandler eingelesen und den entsprechenden Detektorsignalen zugeordnet werden.

Die PSD-Messungen wurden im HRSTEM-Modus bei einer Kameralänge von  $C_L = 160\text{ mm}$  aufgenommen. Die Messungen wurden mit einer Rasterauflösung von 2.048 mal 2.048 Punkten und einer dwell-time von  $\tau = 20\ \mu\text{s}$  pro Messpunkt aufgenommen. Die Signale jedes Messpunkts entsprechen jeweils dem Mittel von vier Einzelmessungen mit einer Messdauer von je  $5\ \mu\text{s}$ . Die Pixelgröße, welche die Schrittweite eines einzelnen Rasterschrittes beschreibt, war  $11,1\ \frac{\text{pm}}{\text{px}}$ . Mit diesen Einstellungen ergab sich für die Messdauer einer kompletten PSD-Aufnahme ungefähr

<sup>2</sup>engl. high angle annular dark field



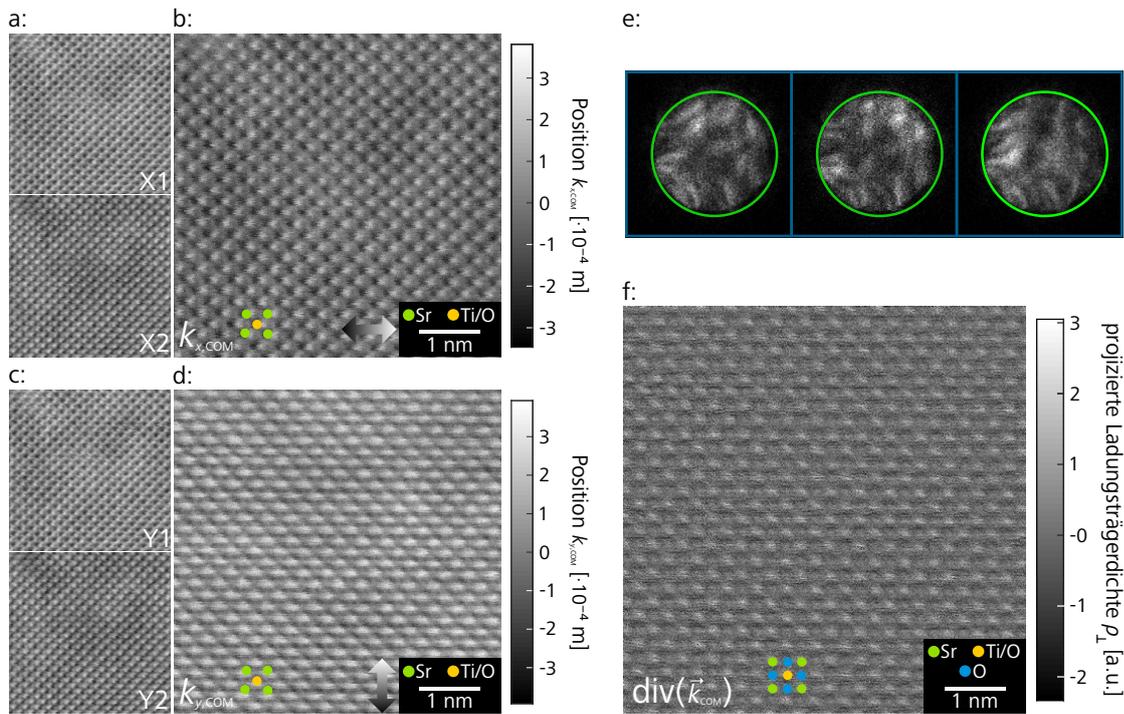
**Abb. 6.5:** In **a** ist die Struktur der untersuchten SrTiO<sub>3</sub> in [100]-Richtung gezeigt. Abbildung **b** zeigt das Summensignal der Elektroden X1 und X2 der PSD-Messung an der SrTiO<sub>3</sub>-Probe. Der rot markierte Bereich ist in **c** vergrößert dargestellt. Es sind gut die Sr- und Ti/O-Säulen zu erkennen.

90 Sekunden. Der gemessene PSD-Signal-Vektor  $\vec{k}_{\text{COM}}$  entspricht – gemäß den Ausführungen in Abschnitt 3.2 und den Quellen [25, 26] – dem mittleren lateralen Impulsübertrag, den der Elektronenstrahl durch die Interaktion mit der Probe erfährt (siehe Gleichung 3.33).

Zum Vergleich wurden von der untersuchten Probe auch moreSTEM-Messungen mit dem Merlin-Detektor angefertigt. Im Zuge dieser wurde die Probe in einem Raster von 256 mal 255 Punkten abgetastet und an jedem Rasterpunkt mit der Kamera das entsprechende Beugungsscheibchen aufgenommen. Die Aufnahmezeit betrug dabei pro Beugungsbild 1 ms und für die gesamte Messung ungefähr 2 Minuten. Die Auflösung des Kamerasensors beträgt bei der MerlinEM-Kamera 512 mal 512 Pixel bei einer Pixelgröße von 55 mal 55  $\mu\text{m}$  (vergleiche [33]). Der Speicherbedarf eines kompletten moreSTEM-Datensatzes beträgt ungefähr 4 Gigabyte. Für jedes der aufgenommenen Beugungsbilder wurden in der Auswertung die  $k_x$ - und  $k_y$ -Komponenten der Lage des COMs  $\vec{k}_{\text{COM}}$ , beziehungsweise des lateralen Impulsübertrags  $\langle \vec{p}_{\perp} \rangle$  und die Gesamtintensität auf dem Detektor (entspricht dem BF-STEM-Signal) berechnet.

### 6.2.3 Ergebnisse

Begonnen wird die Präsentation der Ergebnisse der PSD-Messungen an SrTiO<sub>3</sub> mit der Darstellung des Summensignals  $\Sigma_{h+}$  der Elektroden X1 und X2 (siehe Abbildungen 6.5b und c). Auf die Darstellung des Summensignals  $\Sigma_{e-}$  der Elektroden Y1 und Y2 wird an dieser Stelle verzichtet, da es keinen qualitativen Unterschied zu  $\Sigma_{h+}$  aufweist. In Abbildung 6.5b ist das Summensignal im kompletten gemessenen Probenbereich dargestellt. Da die Fläche des abgetasteten Probenbereichs von circa (23·23) nm<sup>2</sup> im Vergleich zu den Atomabständen (Abstand der Sr-Atome = 0,3945 nm) sehr groß ist, sind in Abbildung 6.5b nur wenige Details erkennbar. Im Sinne der Anschaulichkeit wird aus diesem Grund im Folgenden immer nur ein Teilbereich des kompletten gemessenen Probenbereichs dargestellt. Dieser entspricht dabei jeweils der in Abbildung 6.5b rot markierten Fläche.



**Abb. 6.6:** Ergebnisse der HMSTEM-PSD-Messung an  $\text{SrTiO}_3$ . In **a** und **c** sind die jeweiligen Einzelsignale der Elektrodenpaare X1/X2 und Y1/Y2 gezeigt. **b** und **d** zeigen die Richtungskomponenten  $k_{x,\text{COM}}$  und  $k_{y,\text{COM}}$  der COM-Positionen. In **e** sind exemplarisch drei mit der MerlinEM-Kamera, an unterschiedlichen Probenstellen, aufgenommenen Beugungsscheibchen gezeigt. Es ist gut eine Umverteilung von Intensität zu erkennen. In **f** ist die Divergenz von  $\vec{k}_{\text{COM}}$ , welche proportional zur lokalen Ladungsträgerdichte  $\rho_{\perp}$  ist (siehe Haupttext), gezeigt. In dieser Darstellung sind die O-Säulen bereits erkennbar.

In der Detailansicht des Summensignals sind bereits gut die Positionen der Sr- und Ti/O-Säulen erkennbar. Auf Grund des höheren Atomgewichts erscheinen die Sr-Atome dunkler als die Ti/O-Säulen. Die reinen O-Säulen sind in diesem Hellfeldsignal nicht erkennbar. Im Hinblick auf das niedrige Atomgewicht von Sauerstoff und des damit einhergehenden niedrigen Z-Kontrastes im Elektronenmikroskop (vergleiche [52, 53]) stellt dies ein erwartetes Ergebnis dar. Auch das Summensignal der Merlin Datensätze zeigte keinen erkennbaren Bildkontrast an den Positionen der O-Säulen (siehe Anhang; Abbildung A.1a).

Die absoluten Richtungssignale  $k_{x,\text{COM}}$  und  $k_{y,\text{COM}}$ , sowie die entsprechenden Einzelsignale der Elektrodenpaare X1/X2 und Y1/Y2 sind in Abbildung 6.6b und d, beziehungsweise a und c gezeigt. Die dargestellten Bereiche entsprechen wiederum nur einem Bruchteil der gesamten abgetasteten Fläche (vergleiche Abbildung 6.5b). Die kompletten Datensätze sind im Anhang dieser Arbeit gezeigt (siehe Abbildung A.5).

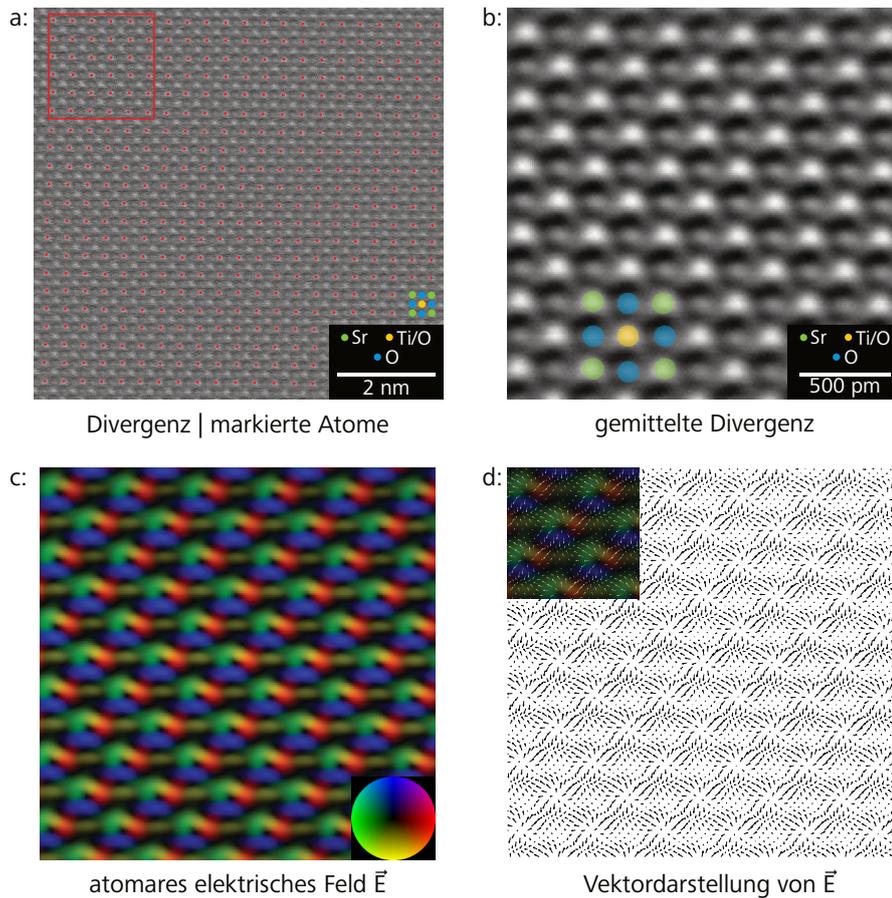
An den Positionen der Sr- und Ti/O-Säulen ist in den Richtungsbildern (Teilabbildungen b und c) jeweils ein örtlich begrenzter Hell-Dunkel-Kontrast erkennbar, wobei dieser in der  $k_{x,\text{COM}}$ -Komponente stärker ausgeprägt ist. Dieser Richtungskontrast ist auf die Umverteilung von Intensität im Inneren des Beugungsscheibchen

zurückzuführen. Mit Hilfe der MerlinEM-Kamera konnte vor der PSD-Messung verifiziert werden, dass es sich tatsächlich um eine Umverteilung der Intensität und nicht um eine Verschiebung des Beugungsscheibchens auf dem Detektor handelte. Dies wird exemplarisch anhand der in Abbildung 6.6e gezeigten Beugungsscheibchen, welche mit der MerlinEM-Kamera an unterschiedlichen Rasterpositionen aufgenommen wurden, verdeutlicht. Der eingezeichnete Kreis dient als Vergleichspunkt und entspricht dem Rand des ersten dargestellten Beugungsscheibchens. Der Unterschied des Richtungskontrastes von  $k_{x,COM}$  und  $k_{y,COM}$  deutet auf eine leichte Verkipfung der Probe um eine Drehachse in  $k_y$ -Richtung hin. Von K. Müller-Caspary wurde in [25] und [26] gezeigt, dass die Divergenz des zweidimensionalen Vektorfeldes von  $\vec{k}_{COM}$ , beziehungsweise von  $\langle \vec{p}_\perp \rangle$ , direkt proportional zu der, mit der Intensitätsverteilung der Elektronensonde  $I_{Sonde}$  gefalteten lateralen Ladungsträgerdichte  $\rho_\perp$  ist:

$$\text{div} \vec{k}_{COM} \propto \text{div} \langle \vec{p}_\perp \rangle \propto \rho_\perp \otimes I_{Sonde} \quad (6.1)$$

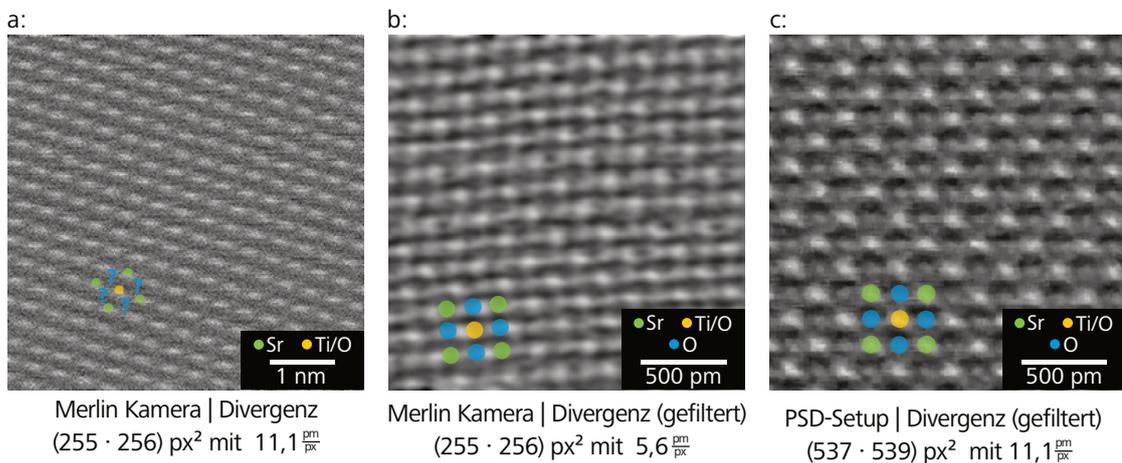
Zudem wurde in diesen Veröffentlichungen gezeigt, dass sich  $\text{div}(\vec{k}_{COM})$  besonders gut dafür eignet, die Sauerstoffsäulen in  $\text{SrTiO}_3$  darzustellen. Die Divergenz von  $\vec{k}_{COM}$  beziehungsweise die dazu proportionale Ladungsträgerdichte  $\rho_\perp$  ist in Abbildung 6.6f gezeigt. Für  $\rho_\perp$  können keine absoluten Werte angegeben werden, da sowohl die Proben Dicke im untersuchten Bereich, als auch die Form der Elektronensonde, welche für die Berechnung benötigt werden, nicht bekannt sind. Im untersuchten Probenbereich liefern die Sr- und Ti/O-Säulen einen guten Kontrast. Bemerkenswert ist, dass auch die O-Säulen in der ungefilterten PSD-Messung einen erkennbaren Kontrast liefern. Somit ist die PSD dazu in der Lage, alle neun Atomsäulen der Perowskit Einheitszelle von  $\text{SrTiO}_3$  in [100]-Projektion abzubilden.

Handelt es sich, wie bei der hier gezeigten Messung, um eine Probe mit einer regelmäßigen Struktur, erlaubt das große Messfeld eine Mittelung des Signals kleinerer Unterbereiche gleicher Struktur. Auf diese Weise kann der Bildkontrast erheblich gesteigert werden. In Abbildung 6.7 werden das Vorgehen und das Ergebnis eines solchen Mittelungsprozesses, welcher im Englischen oft auch als *unit cell averaging* bezeichnet wird, exemplarisch an der Divergenz von  $\vec{k}_{COM}$  gezeigt. In einem besonders homogenen Teil des gemessenen Probenbereichs wurden mittels eines Matlab-Skripts automatisch die Positionen der Sr-Atome erkannt und markiert (rote Punkte in Abbildung 6.7a). In einem weiteren Schritt wurde die Größe des gemittelten Bildes festgelegt (markiert mit einem roten Rechteck). Anschließend wurde dieser Bereich jeweils um eine Einheitszelle verschoben und die Signale des verschobenen und ursprünglichen Bereichs gemittelt. Dieser Prozess wiederholt sich so lange, bis alle übereinstimmenden Probenbereiche gemittelt wurden. In Abbildung 6.7b ist das Ergebnis dieses Prozesses gezeigt. Sie zeigt die 473-fach gemittelte Divergenz von  $\vec{k}_{COM}$ . Es sind sämtliche Atomsäulen der Einheitszelle klar erkennbar, wobei an dieser Stelle besonders auf den hervorragenden Kontrast der reinen O-Säulen hingewiesen wird. Wegen der bereits erwähnten leichten Verkipfung der Probe entlang der  $k_y$ -Richtung ergibt sich an den Positionen der Atomsäulen ein



**Abb. 6.7:** In dieser Abbildung werden die Methode und die Ergebnisse der positionsabhängigen Intensitätsmittelung (siehe Haupttext) einer PSD-Messung an  $\text{SrTiO}_3$  gezeigt. In **a** wurden in der Divergenz von  $\vec{k}_{\text{COM}}$  die Positionen der Sr-Atome markiert, welche als Raster für die spätere Mittelung fungieren. Der rot markierte Bereich wurde schrittweise um eine Einheitszelle verschoben und die Signale des unverschobenen und verschobenen Bereichs jeweils gemittelt. **b** zeigt das Ergebnis dieses iterativen Mittelungsprozesses. Es sind gut die Positionen der O-Säulen zu erkennen. Abbildungen **c** und **d** zeigen das auf die gleiche Weise berechnete elektrische Feld  $\vec{E}_\perp$  in Farb- und Vektordarstellung.

etwas dunklerer Kontrast direkt unter den Atomen. In einer idealen Messung würde sich ein gleichmäßiger Grauwert im Bereich um die Atomsäulen ergeben. Mit dieser Technik wurden auch die Signale der einzelnen Richtungskomponenten von  $\vec{k}_{\text{COM}}$  gemittelt und das resultierende Vektorfeld, welches direkt proportional zu Stärke und Richtung des lateralen elektrischen Feldes  $\vec{E}_\perp$  in der Probe ist, in den Abbildungen 6.7c und d dargestellt. Es ist gut zu erkennen, dass die Sr- und Ti/O-Säulen als Quellen des elektrischen Feldes fungieren. Auf Grund der Verkipfung der Probe ist das atomare elektrische Feld der O-Säulen von einem ungleichmäßigem Kontrast in  $k_y$ -Richtung überlagert, was es unmöglich macht, diese ebenfalls als Feldquellen zu identifizieren. Dennoch zeigen diese Ergebnisse eindrucksvoll die Leistungsfähigkeit des PSD-Detektors und der positionsabhängigen Intensitätsmittelung.



**Abb. 6.8:** In dieser Abbildung werden zwei unterschiedliche Merlin-Messungen (**a** und **b**) mit dem Ergebnis einer PSD-Messung (**c**) verglichen. Alle Teilabbildungen zeigen dabei die Divergenz von  $\vec{k}_{\text{COM}}$ , wobei das Signal in **b** und **c** mit einem Medianfilter geglättet wurde. In **a** sind auf Grund eines starken Probedrifts während der Messung nur die Sr- und Ti/O-Säulen erkennbar. In der etwas stärker vergrößerten Merlin-Messung in **b** an einem stabileren Probenbereich sind auch die O-Säulen gut erkennbar. Die Merlin-Messung zeigt abgesehen von Bildstörungen durch den langsameren Rastervorgang einen ähnlichen Kontrast wie die PSD-Messung in **c**.

## 6.2.4 Vergleich mit der MerlinEM-Kamera

In diesem Abschnitt werden die Ergebnisse der PSD-Messung mit denen der MerlinEM-Kamera verglichen. Die gezeigten Merlindatensätze wurden von K. Müller-Caspary aufgenommen. In Abbildung 6.8 sind die Ergebnisse zweier unterschiedlicher moreSTEM-Messungen der MerlinEM-Kamera (siehe a und b) sowie ein kleiner Ausschnitt (der gezeigte Bereich entspricht etwa zwei Prozent der gemessenen Fläche) der PSD-Messung dargestellt (siehe c). Für diesen Vergleich wurden jeweils die Divergenzbilder der unterschiedlichen Messungen verwendet. In Teilabbildung a ist das Ergebnis einer Merlin-Messung gezeigt, welche mit der gleichen Pixelgröße ( $11,1 \frac{\text{pm}}{\text{px}}$ ) wie die PSD-Messung aufgenommen wurde. In dieser sind die Sr- und Ti/O-Säulen als leicht elongierte helle Bereiche erkennbar, nicht aber die O-Säulen. Zudem ist der abgetastete Bereich etwas verzogen. Es scheint, als ob die Probe während der circa zweiminütigen Messung schräg nach rechts unten gedriftet ist (in Richtung der Elongation der Atomsäulen). Auf Grund der relativ langen Zeit pro Bildpunkt von 1 ms und des Proben-Drifts, ergibt sich ein reduzierter Bildkontrast, welcher dem der PSD-Messung unterlegen ist. Aus diesem Grund wurde eine weitere Aufnahme an einer stabileren Probenstelle mit einer höheren Vergrößerung, beziehungsweise einer niedrigeren Pixelgröße von  $5,6 \frac{\text{pm}}{\text{px}}$  angefertigt (siehe Abbildung 6.8b). Die gezeigte Divergenz des lateralen Impulsübertrags wurde mit einem Medianfilter mit einer Breite von 5 Pixeln geglättet. Im Anhang dieser Arbeit finden sich in Abbildung A.1 die ungefilterte Divergenz, die beiden Richtungssignale und das BF-Signal der Merlin-Messung. Um die Vergleichbarkeit zu gewährleisten, ist auch das Ergebnis der



	Merlin-Kamera	PSD-Detektor
Bildgröße:	(256 · 255) px <sup>2</sup>	(2048 · 2048) px <sup>2</sup>
Pixelgröße:	11,1 pm/px	11,1 pm/px
Zeit pro Rasterpunkt:	~ 1 ms	~ 20 µs
Messdauer:	~ 120 s	~ 90 s
Mittelungen pro Rasterpunkt:	1	4
Speicherbedarf:	~ 4 GB	~ 0,4 GB

**Abb. 6.9:** In dieser Abbildung werden die Messparameter einer PSD- und einer Merlin-Messung miteinander verglichen. Dabei liegt das Hauptaugenmerk auf der Tatsache, dass die PSD – trotz einer um 30 Sekunden kürzeren Messzeit und bei gleicher Pixelgröße – ein erheblich größeres Gesichtsfeld bietet als die MerlinEM-Kamera.

PSD-Messung mit diesem Filter geglättet worden. In der zweiten Merlin-Messung sind nun, trotz einer leichten Verzerrung des abgebildeten Bereichs, auch klar die Positionen der Sauerstoff-Säulen erkennbar. Dass die mit der MerlinEM-Kamera gemessene Struktur der Ladungsträgerdichte ähnliche Kontraste liefert wie der PSD-Detektor, bestätigt nochmals, dass letzterer tatsächlich dazu in der Lage ist, den lateralen Impulsübertrag atomar aufgelöster Messungen zu detektieren. Die relativ lange Messdauer von circa zwei Minuten und das kleine Gesichtsfeld von circa  $(2,5 \cdot 2,5) \text{ nm}^2$  der Merlin-Messung, stellen große Anforderungen, sowohl an die Rasterelektronik des Mikroskops, als auch an die Probenstabilität. Im Vergleich betrug die Zeit, welche das PSD-System zur Aufnahme des in Abbildung 6.8c gezeigten Ausschnitts benötigte nur circa 2 Sekunden. Dies zeigt sich vor allem darin, dass die PSD-Aufnahme keinerlei Verzerrung durch Probendrift oder Stahlinstabilitäten aufweist. Die Schnelligkeit des PSD-Systems kann – bis zu einem gewissen Grad – Störungen durch einen Drift der Probe kompensieren. Da zudem der Elektronenstrahl nur sehr kurz an einem bestimmten Probenort verweilt, können wegen der niedrigeren Stahldosis pro Ort auch Proben untersucht werden, welche eher zu Strahlenschäden neigen. So könnte sich der PSD-Detektor bei der Untersuchung von Proben, die nur aus wenigen Atomlagen bestehen (zum Beispiel Graphen, ein- oder zweilagiges Molybdändisulfid oder Metallorganische Gerüstverbindungen sogenannte MOFs<sup>3</sup>), als nützlich erweisen.

Abschließend werden die Unterschiede der gezeigten PSD-Messung und der in Abbildung 6.8a dargestellten Merlin-Messung zusammengefasst. Die beiden hier verglichenen Messungen wurden mit der gleichen Pixelgröße von  $11,1 \frac{\text{pm}}{\text{px}}$  aufgenommen. Ein großer Vorteil des PSD-Detektors ist, dass er auf Grund seiner Schnelligkeit dazu in der Lage ist, große Probenbereiche mit hoher Auflösung abzutasten. In knapp 90

<sup>3</sup>engl. metal-organic frameworks

Sekunden konnte mit der PSD ein Bereich von ungefähr  $(22 \cdot 22) \text{ nm}^2$  mit einer Auflösung von 2.048 mal 2.048 Rasterpunkten abgetastet werden. Die dwell-time betrug dabei  $20 \mu\text{s}$ . Diese Verweilzeit erlaubte es der PSD-Elektronik vier Einzelmessungen pro Bildpunkt durchzuführen, was die Signalgüte verbessert. Im Vergleich konnte die langsamere MerlinEM-Kamera nur einen Probenbereich von ungefähr  $(2,5 \cdot 2,5) \text{ nm}^2$  mit einer Auflösung von 256 mal 255 Rasterpunkten in etwas unter zwei Minuten vermessen. Die Fläche des Gesichtsfeldes der Merlin-Messung beträgt in etwa zwei Prozent des Gesichtsfeldes der PSD-Messung.

Die Ergebnisse dieses Abschnitts zeigen klar auf, dass es mit dem entwickelten PSD-System möglich ist, die zum Teil sehr kleinen Variationen des Intensitätsschwerpunktes des Beugungsscheibchens im Verlauf einer hochaufgelösten STEM-Messung zu detektieren. Eine PSD eignet sich somit als Detektor für die Anfertigung von impuls aufgelösten Messungen atomarer Potentialverteilungen und stellt eine Alternative zu schnellen Kamerasystemen dar. Es ist wichtig anzumerken, dass das PSD-System nur dann eine Alternative für eine schnelle Kamera darstellt, wenn ausschließlich die Variation des lateralen Elektronenimpulses, beziehungsweise die COM-Position des Beugungsscheibchens, gemessen werden soll. Für Messungen, bei denen auch die explizite Intensitätsverteilung des Beugungsscheibchens von Interesse ist, führt kein Weg an einem Pixel-Detektor vorbei. Da die Messfrequenz der PSD (bis zu 200 kHz) im Vergleich zu der aktueller Kameras (bis zu 1 kHz) viel höher ist (siehe Abschnitt 6.2.4) können mit ihr in kürzerer Zeit größere Probenbereiche mit höherer Rasterauflösung abgebildet werden. Dies bietet Vorteile bei der Untersuchung von strahlungsempfindlichen Präparaten. Außerdem haben Probendrift oder Instabilitäten des elektronenoptischen Systems weniger Auswirkung auf die Qualität der moreSTEM-Messung. Das große Gesichtsfeld der PSD erlaubt es, ausgedehnte Feldverteilungen (elektrische und magnetische) in kurzer Zeit mit gutem Feldkontrast zu vermessen.

## 7 Zusammenfassung

Im Zuge dieser Arbeit wurde ein neues Detektorsystem für die Differentielle Phasenkontrastmikroskopie entwickelt, welches die absolute Position des Intensitätsschwerpunkts des Beugungsscheibchens detektieren kann. Dieser Intensitätsschwerpunkt entspricht nach K. Müller-Caspary und F. F. Krause dem mittleren lateralen Impuls des Elektronenstrahls in der Detektorebene. Dieser Messwert beschreibt, unabhängig von der Komplexität der Struktur des Beugungsscheibchens, die mittlere Ablenkung des Elektronenstrahls durch die Probe und ist somit eine ideale Messgröße zur Untersuchung von elektrischen und magnetischen Feldverteilungen. Das neue Detektorsystem basiert auf einer kommerziell erhältlichen duolateralen positionsempfindlichen Diode, welche normalerweise für die Positionsbestimmung von UV-Laserstrahlung verwendet wird.

Theoretische Vorüberlungen zeigten, dass eine PSD dazu in der Lage ist, die Positionen der Intensitätsschwerpunkte einer willkürlich geformten Elektronenverteilung auf dem Detektor zu bestimmen. Im weiteren Verlauf wurden die Funktionsweise und die Realisierung des PSD-Detektors beschrieben. Das fertige PSD-Messsystem, welches aus einer Signaldurchführung und einer Trägereinheit für den PSD-Sensor besteht, konnte über eine bereits vorhandene Vakuumdurchführung dauerhaft in das Mikroskop integriert werden. Die entwickelte Detektorträgereinheit wurde so gestaltet, dass sie in kurzer Zeit über eine Schiebe-/Steckverbindung ausgetauscht werden kann. Dies ermöglicht den Einsatz verschiedener Sensoren und erleichterte so die Suche nach einer geeigneten PSD-Variante für den finalen Detektor erheblich. Zudem wurde in die Halterung eine Peltier-Kühlung eingebaut, welche zur Stabilisation der Temperatur des Detektors während der Messungen dient.

Eine experimentelle Charakterisierung des PSD-Detektors gab Aufschlüsse über die erreichbare Feld-, beziehungsweise Winkelauflösung des Detektors im LMSTEM-Betrieb des Mikroskops. Diese wurde mit Hilfe von definierten elektrischen Feldern, welche es erlauben, den Elektronenstrahl um einen bekannten Winkel abzulenken, durchgeführt. Für eine Standard DPC-Messsituation ergibt sich für den PSD-Detektor eine Winkelauflösung von:

$$\beta_{\min} = (0,44 \pm 0,012) \mu\text{rad}$$

Diese Winkelauflösung bewegt sich in der Größenordnung der Empfindlichkeit des konventionellen DPC-Systems und ist mehr als ausreichend für die Anfertigung von DPC-Messungen. Im Zuge der experimentellen Charakterisierung wurden auch die Detektorlinearität, sowie die Einflüsse der Intensität und Größe des Beugungsscheibchens auf den Messfehler der COM-Positionsmessung untersucht. Die Analyse der Detektorlinearität ergab, dass die PSD auf gut 70 % der aktiven Detektorfläche sehr geringe Abweichungen der Detektorlinearität von 0,3% in  $k_x$ -Richtung und 1,4% in  $k_y$ -Richtung aufweist. Da die Detektorlinearität eine wichtige Voraussetzung für verlässliche DPC-Messergebnisse ist, stellt diese niedrige Abweichung ein positives Ergebnis dar. Die Untersuchung der Einflüsse auf den Messfehler ergab Folgendes: Es besteht ein direkter linearer Zusammenhang zwischen dem Radius des Beugungsscheibchens und der Standardabweichung der Positionsmessung. So steigt der Messfehler mit zunehmendem Radius an. Zwischen dem Strahlstrom  $I$  des Beugungsscheibchens auf dem Detektor und dem Messfehler  $\sigma_{|\vec{k}|}$  ergibt sich eine  $\sigma_{|\vec{k}|} \propto \frac{1}{\sqrt{I}}$  Abhängigkeit. Basierend auf diesen Ergebnissen sollten DPC-Messungen mit der PSD bestenfalls mit kleinen Beugungsscheibchen und einem großen Strahlstrom durchgeführt werden, um optimale Messergebnisse zu erhalten. Die experimentellen Ergebnisse bestätigen die vorab durchgeführten theoretischen Überlegungen und Simulationsrechnungen zur Positionsgenauigkeit. Die Charakterisierung des PSD-Systems zeigt auf, dass der entwickelte Detektor prinzipiell für die Anfertigung von DPC-Messungen geeignet ist und zumindest dem konventionellen Ringdetektor in nichts nachsteht.

Um abschließend zu klären, ob der PSD-Detektor auch für die Untersuchung realer Proben geeignet ist, wurden sowohl im LMSTEM- als auch im HMSTEM-Modus erste Messungen durchgeführt. Es wurden vergleichende Messungen an einer polykristallinen Cobalt-Dünnschicht-Probe, sowohl mit dem PSD- als auch dem cDPC-Detektor durchgeführt. Die PSD war ohne weiteres dazu in der Lage, eine magnetische Stacheldraht-Domänenwand – unter Standardmessbedingungen – abzubilden. Es konnten keine qualitativen Kontrastunterschiede zwischen den Ergebnissen beider Detektoren festgestellt werden. Ein großer Vorteil des PSD-Detektors gegenüber cDPC-Messungen ist, dass dieser ohne die Notwendigkeit einer Kalibrierung – wie sie bei einem cDPC-Detektor von Nöten ist – absolute Werte der COM-Position liefert. Sind Probendicke und Kameralänge bekannt, können die Positionsdaten der PSD also direkt in absolute Feldwerte umgerechnet werden. Die PSD stellt somit eine vielversprechende Alternative zu dem bis dato verwendeten DPC-Ringdetektor dar.

Mittels hochauflösender STEM-Messungen (mit atomarer Auflösung) an einer monokristallinen  $\text{SrTiO}_3$ -Probe wurde untersucht, ob der PSD-Detektor auch Variationen des COMs detektieren kann, welche auf einer Intensitätsumverteilung im Inneren des Beugungsscheibchens und nicht auf einer Verschiebung dessen basieren. Die Messungen wurden an einem Mikroskop des Typs *Titan 80-300 STEM* am Ernst-Ruska-Zentrum für Mikroskopie und Spektroskopie mit Elektronen in Zusammenarbeit mit K. Müller-Caspary durchgeführt.

---

Es zeigte sich, dass der PSD-Detektor ohne Einschränkungen dazu in der Lage ist, die Änderungen des lateralen Elektronenimpulses durch die atomaren elektrischen Felder zu detektieren. Außerdem konnten die reinen Sauerstoff-Säulen des SrTiO<sub>3</sub>-Kristalls mit gutem Kontrast abgebildet werden. Da dies auch mit aktueller Technik immer noch eine große Herausforderung in der Festkörperphysik darstellt, unterstreicht dieses Ergebnis – nochmals – die Empfindlichkeit des PSD-Detektors auf Variationen der COM-Position. Vergleichende Messungen, welche an derselben Probe mit der ebenfalls im Mikroskop vorhandenen MerlinEM-Kamera durchgeführt wurden, lieferten vergleichbare Kontraste. Dies bestätigt, dass die PSD tatsächlich den lateralen Elektronenimpuls misst. Zudem zeigte sich, dass die PSD auf Grund ihrer, im Vergleich zur Kamera, sehr hohen Messgeschwindigkeit von bis zu 5  $\mu$ s pro Messpunkt, weniger stark von Störungen wie Probendrift und Instabilitäten des Elektronenstrahls betroffen ist. Die Messdaten der PSD weisen im Vergleich zur MerlinEM-Kamera weniger – beziehungsweise nahezu keine – Bildstörungen auf. Der wohl größte Vorteil des PSD-Detektors im Vergleich zur Kamera ist sein erheblich größeres Gesichtsfeld. So können mit ihm in kürzerer Zeit größere Probenbereiche mit höherer Rasterauflösung abgetastet werden. Eine Merlin-Messung mit der gleichen Pixelgröße (Vergrößerung) bietet in einer vergleichbaren Messzeit ein Gesichtsfeld, dessen Fläche lediglich 2 Prozent des Gesichtsfeldes einer PSD-Messung beträgt.

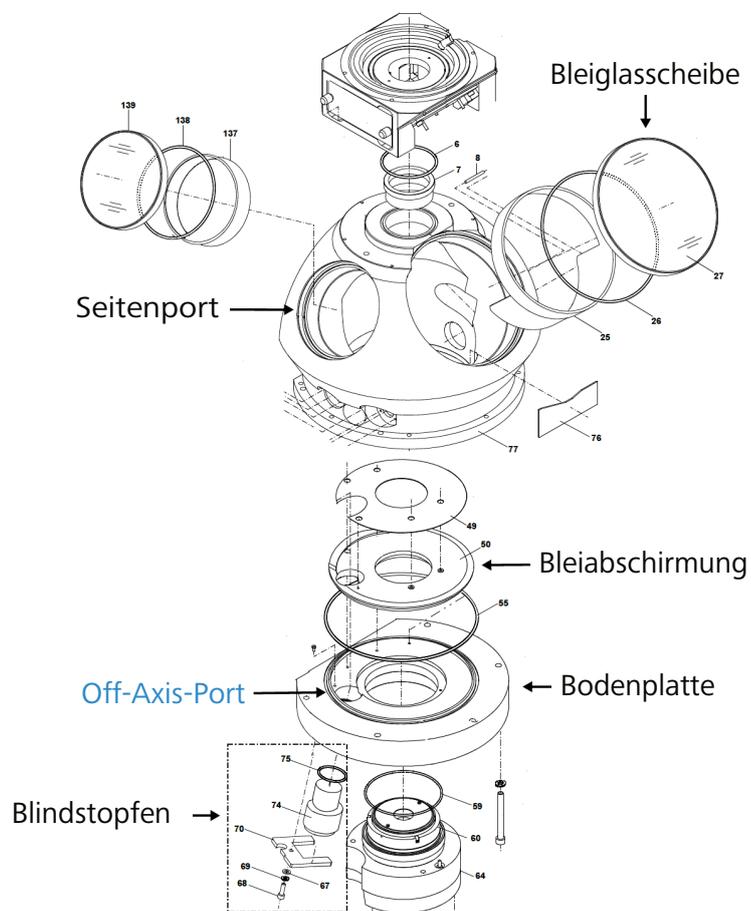
Abschließend bleibt zu sagen, dass das Ziel dieser Arbeit, einen schnellen Detektor zur Messung des lateralen Elektronenimpulses zu entwickeln, erreicht wurde. Das im Zuge dieser Arbeit entstandene PSD-Detektorsystem hat ein großes Potential, um zukünftig als COM-Detektor in der Transmissionselektronenmikroskopie eingesetzt zu werden. Der Fakt, dass es auf einer für die Detektion von Laserlicht optimierten PSD basiert, bietet, im Hinblick auf die Weiterentwicklung der Messtechnik, einen großen Spielraum für weitere Optimierungen des Detektors. Auf Grund der Tatsache, dass die PSD absolute COM-Positionen liefert und zudem nicht so fehleranfällig bei der Quantifizierung von Messdaten ist, stellt sie – nahezu uneingeschränkt – eine Alternative zu dem konventionellen DPC-Ringdetektor dar. Für moreSTEM-Messungen und DPC-Messvorhaben mit atomarer Auflösung, bei denen keine Kenntnis über die tatsächlichen Intensitätsverteilungen der Beugungsscheibchen notwendig ist, ist der PSD-Detektor ebenfalls gut geeignet. Neben dem zu aktuellen Kamerasystemen vergleichbaren Messkontrast, sprechen die einfache Anwendbarkeit und der vergleichsweise niedrige Anschaffungspreis von unter 5.000 Euro für das PSD-Messsystem. Das große Gesichtsfeld und die Geschwindigkeit eröffnen neue Anwendungsgebiete in der impuls aufgelösten Rastertransmissionselektronenmikroskopie. Beispiele hierfür sind die Untersuchung von ausgedehnten Feld- oder Potentialverteilungen mit atomarer Auflösung oder die Analyse von strahlungsempfindlichen Präparaten, welche beide mit den erheblich langsameren „schnellen“ Kamerasystemen nur eingeschränkt oder nicht vermessen werden können.



# A Anhang

## A.1 Weitere Abbildungen zu Abschnitt 5

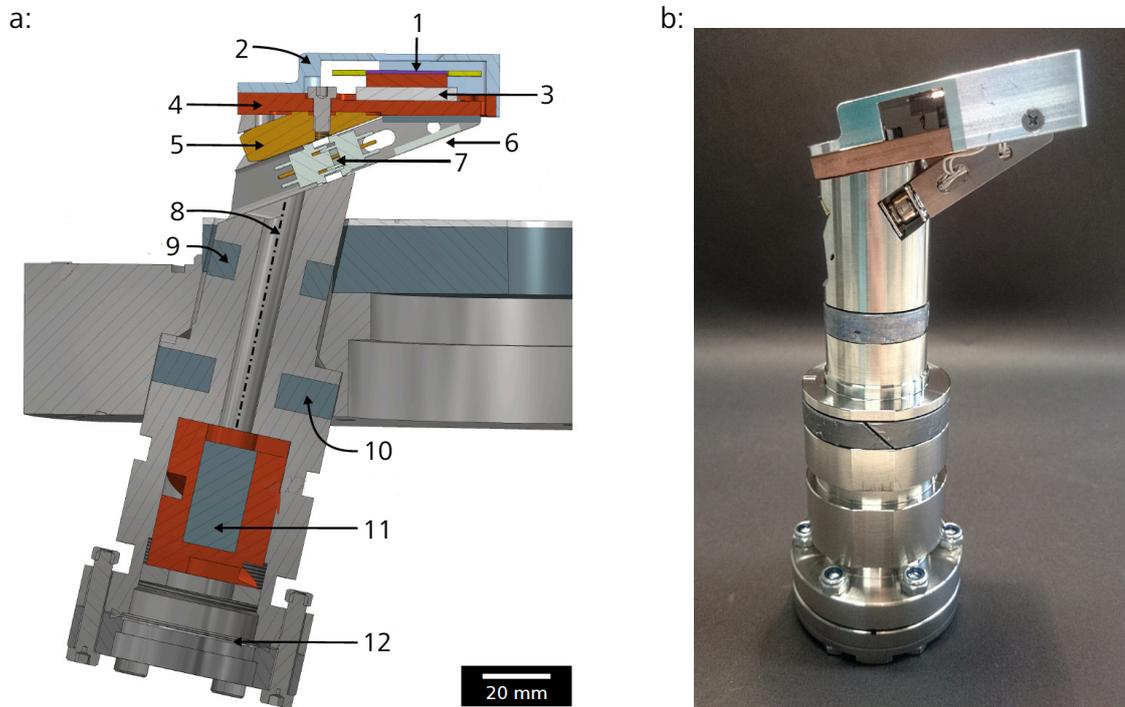
Explosionsdarstellung der Projektionskammer eines Tecnai F30



**Abb. A.1:** Explosionsdarstellung der Projektionskammer eines Tecnai F30. Der als Durchführung für das PSD-System verwendete Off-Axis-Port ist blau markiert. (Abbildung verändert aus [121])

### PSD-Setup: CAD-Zeichnung und reales Bauteil

Die bemaßten technischen Zeichnungen, welche die Mechanikwerkstatt der Fakultät für Physik der Universität Regensburg zur Herstellung der mechanischen Komponenten des PSD-Systems verwendet hat, finden sich in [95].



**Abb. A.2:** Gegenüberstellung der technischen Zeichnung (a) und einer Fotografie des entwickelten PSD-Systems (b). Die Beschreibungen zu der Nummerierung in a finden sich in der Bildunterschrift von Abbildung 5.2a (Abbildungen entnommen aus [95] und verändert)

## A.2 Herleitung von Gleichung 4.22

An dieser Stelle findet sich die Herleitung von Gleichung 4.22. Danke an Simon Pöhlath für das Bereitstellen dieser Herleitung und für die Erlaubnis diese Ergebnisse in dieser Arbeit zu verwenden.

Bei einer PSD-Messung werden die Positionen von  $N$  Strahlelektronen gemessen und schließlich ihr Schwerpunkt, das COM, berechnet. In einer idealen Messung werden die Positionen der Elektronen perfekt erfasst und der resultierende Messfehler ergibt sich lediglich durch statistische Ungenauigkeiten bei der Schwerpunktsberechnung, wenn die Auftreffwahrscheinlichkeit der Elektronen mittels  $N$  Stichproben genähert wird. Der gemessene Schwerpunkt  $\vec{k}_{\text{COM}}$  ergibt sich aus der Summe der einzelnen Elektronenpositionen  $\vec{k}_i = (k_{(x,i)}, k_{(y,i)})^\top$

$$\vec{k}_{\text{COM}} = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \vec{k}_i \quad (\text{A.1})$$

Der gesuchte Messfehler ist die Standardabweichung von  $\vec{k}_{\text{COM}}$ , also die Wurzel aus der Varianz  $\text{Var}(\vec{k}_{\text{COM}})$ . Zu beachten ist, dass in der verwendeten Notation  $\text{Var} = (\text{Var}(k_x), \text{Var}(k_y))^\top$  ein Vektor ist. Da die Zufallsvariablen der einzelnen Elektronenpositionen stochastisch unabhängig verteilt sind und die gleiche Varianz besitzen ( $\text{Var}(\vec{k}_i) = \text{Var}(\vec{k}_j) =: \text{Var}(\vec{k}); \forall i, j \in 1, \dots, N$ ) kann an dieser Stelle die Gleichung von Bienayme angewendet werden:

$$\text{Var}(\vec{k}_{\text{COM}}) = \begin{pmatrix} \text{Var}(k_x) \\ \text{Var}(k_y) \end{pmatrix} = \text{Var} \left( \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \vec{k}_i \right) = \frac{1}{N^2} \sum_{i=1}^N \text{Var}(\vec{k}_i) = \frac{1}{N} \text{Var}(\vec{k}) \quad (\text{A.2})$$

Sei nun  $P(\vec{k})$  die Wahrscheinlichkeitsdichteverteilung am Ort  $\vec{k}$  ein Elektron zu messen. Somit kann Gleichung 2 umgeschrieben werden zu

$$\text{Var}(\vec{k}_{\text{COM}}) = \frac{1}{N} \int_{\mathbb{R}} d^2 \vec{k} \begin{pmatrix} (k_x - \langle k_x \rangle)^2 \\ (k_y - \langle k_y \rangle)^2 \end{pmatrix} P(\vec{k}) \quad (\text{A.3})$$

Die Wahrscheinlichkeit, dass ein Elektron am Ort  $\vec{k}$  auftrifft ist proportional zur Strahlstromdichte  $j(\vec{k})$ . Deshalb kann  $P(\vec{k})$  über die Strahlstromdichte des Beugungsscheibchens ausgedrückt werden:

$$P(\vec{k}) = \frac{j(\vec{k})}{I} \quad (\text{A.4})$$

Wobei  $I$  dem Gesamtstrom entspricht, der auf den Detektor trifft. Per Definition ist (Gleichung A.4)  $P$  normiert.

Nun wird der Fall eines kreisrunden Beugungsscheibchens mit Radius  $R$  und homogener Strahlstromdichte  $j$  innerhalb des Scheibchens, also

$$j(\vec{k}) = \frac{I}{\pi R^2} \Theta(|\vec{k}| - R) \quad (\text{A.5})$$

, betrachtet. Hierbei ist  $\Theta$  die Heaviside-Funktion. Die Wahrscheinlichkeit ein Elektron bei einer Messung am Ort  $\vec{k}$  vorzufinden, ist also konstant innerhalb und Null außerhalb des Kreises. Es ergibt sich also:

$$P(\vec{k}) = \frac{\Theta(|\vec{k}| - R)}{\pi R^2} \quad (\text{A.6})$$

Der Erwartungswert  $\langle \vec{k} \rangle = (\langle k_y \rangle, \langle k_x \rangle)^\top$  berechnet sich wie folgt: (Analogie zur Quantenmechanik:  $P(\vec{k}) = \psi^*(\vec{k}) \cdot \psi(\vec{k})$ )

$$\langle \vec{k} \rangle = \int_{\mathbb{R}} d^2 \vec{k} \begin{pmatrix} k_x \\ k_y \end{pmatrix} P(\vec{k}) \quad (\text{A.7})$$

$$= \int_0^{2\pi} \int_0^R dk d\phi \cdot \begin{pmatrix} k \cdot \cos(\phi) \\ k \cdot \sin(\phi) \end{pmatrix} \frac{1}{\pi R^2} = 0 \quad (\text{A.8})$$

Damit kann die Varianz  $\text{Var}(\vec{k})$  berechnet werden:

$$\text{Var}(\vec{k}) = \frac{1}{N} \int_{\mathbb{R}} d^2 \vec{k} \begin{pmatrix} (k_x - \langle k_x \rangle)^2 \\ (k_y - \langle k_y \rangle)^2 \end{pmatrix} P(\vec{k}) \quad (\text{A.9})$$

$$= \int_0^{2\pi} \int_0^R dk d\phi \cdot \begin{pmatrix} k^2 \cdot \cos^2(\phi) \\ k^2 \cdot \sin^2(\phi) \end{pmatrix} \frac{1}{\pi R^2} = \begin{pmatrix} \frac{1}{4} R^2 \\ \frac{1}{4} R^2 \end{pmatrix} \quad (\text{A.10})$$

Damit vereinfacht sich Gleichung A.2 zu

$$\text{Var}(\vec{k}_{\text{COM}}) = \begin{pmatrix} \frac{R^2}{4N} \\ \frac{R^2}{4N} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \sigma_{k_x}^2 \\ \sigma_{k_y}^2 \end{pmatrix} \quad (\text{A.11})$$

Die Standardabweichung ist also

$$\vec{\sigma}_{\vec{k}_{\text{COM}}} = \sqrt{\text{Var}(\vec{k}_{\text{COM}})} = \begin{pmatrix} \frac{R}{2\sqrt{N}} \\ \frac{R}{2\sqrt{N}} \end{pmatrix} \quad (\text{A.12})$$

und der absolute Fehler ist schließlich gegeben durch den Fehler von  $\vec{k}_{\text{COM}}$ :

$$\sigma_{|\vec{k}_{\text{COM}}|} = \sqrt{\sigma_{k_x}^2 + \sigma_{k_y}^2} = \frac{R}{2\sqrt{N}} \quad (\text{A.13})$$

Nachfolgend soll nun zusätzlich der Einfluss der Primärstrahlverbreiterung in der Anregungsbirne diskutiert werden. Jedes Primärstrahlelektron  $i$  erzeugt nun eine Anregungsbirne am Ort  $\vec{k}_i$ . Dieser Umstand wird durch Addition eines zusätzlichen Vektors  $\delta\vec{k}_i$  berücksichtigt, welcher einer normalverteilten Zufallsverteilung mit Standardabweichung  $\sigma_\delta$  folgt. Pro Primärelektron werden  $N_{SE}$  Sekundärelektronen erzeugt, die detektiert werden. Der modifizierte Strahlschwerpunkt  $\vec{k}_{COM}^*$  ist nun:

$$\vec{k}_{COM}^* = \frac{1}{NN_{SE}} \sum_i^N \left[ \sum_j^{N_{SE}} (\vec{k}_i + \delta\vec{k}_j) \right] = \frac{1}{N} \sum_i^N \vec{k}_i + \frac{1}{NN_{SE}} \sum_i^{NN_{SE}} \delta\vec{k}_j \quad (A.14)$$

Der erste Summand entspricht  $\vec{k}_{COM}$ . Wie oben sind die einzelnen  $\delta\vec{k}_j$  statistisch unabhängig, identisch verteilt, und besitzen die gleiche Varianz. Die Varianz von  $\vec{k}_{COM}^*$  errechnet sich dann zu:

$$\text{Var}(\vec{k}_{COM}^*) = \text{Var}(\vec{k}_{COM}) + \text{Var}\left(\frac{1}{NN_{SE}} \sum_i^{NN_{SE}} \delta\vec{k}_j\right) \quad (A.15)$$

$$= \text{Var}(\vec{k}_{COM}) + \frac{1}{NN_{SE}} \text{Var}(\delta\vec{k}_j) = \frac{1}{N} \text{Var}(\vec{k}) + \frac{1}{NN_{SE}} \sigma_\delta^2 \quad (A.16)$$

Für die oben beschriebene homogene Kreisscheibe ergibt sich damit eine Standardabweichung von

$$\sigma_{|\vec{k}_{COM}^*|} = \sqrt{\text{Var}(\vec{k}_{COM}^*)} = \left( \begin{array}{l} \sqrt{\frac{R^2}{4N} + \frac{\sigma_\delta^2}{NN_{SE}}} \\ \sqrt{\frac{R^2}{4N} + \frac{\sigma_\delta^2}{NN_{SE}}} \end{array} \right) \quad (A.17)$$

und ein absoluter Fehler:

$$\sigma_{|\vec{k}_{COM}^*|}^* = \sqrt{\frac{R^2}{2N} + \frac{2\sigma_\delta^2}{NN_{SE}}} \quad (A.18)$$

Dies entspricht der im Hauptteil in Abschnitt 4.2.2 verwendeten Gleichung 4.22.

### A.3 Abhängigkeit von Defokuswert und Strahldurchmesser

Die nachfolgenden Ergebnisse und Beschreibungen entstammen weitestgehend der Zulassungsarbeit von Franz Müller [98]. Diese Arbeit wurde im Zuge dieser Dissertation betreut. In Zusammenarbeit mit F. Müller eine Methode entwickelt, welche es erlaubt, die Größe des Beugungsscheibchens mit Hilfe des PSD-Detektors zu vermessen. Mit dieser Methode wurde die Abhängigkeit zwischen der *Defokus*-Einstellung, welche in Abschnitt 5.2.3 zur Veränderung der Scheibchengröße verwendet wird, und dem Durchmesser des Beugungsscheibchens auf dem Detektor experimentell bestimmt.

Abbildung A.3a zeigt eine schematische Darstellung dieser Methode. Das zu vermessende Beugungsscheibchen wird manuell mit den unteren Ablenkspulen linear über den Detektor geschoben. Während dieser Verschiebung werden kontinuierlich die Positionssignale der PSD sowie die entsprechenden Summensignale ausgelesen und gespeichert. Ziel dieser Messung ist es, die beiden Positionen zu bestimmen, bei denen das Beugungsscheibchen gerade noch komplett auf der aktiven Fläche des Detektors liegt (siehe Abbildung). Hierzu wird der Verlauf eines der beiden Summensignale der PSD (hier:  $S_{X1} + S_{X2}$ ) verwendet. So lange der Strahl nicht komplett auf dem Detektor positioniert ist, steigt oder fällt dieses Signal an oder ab. Im Bereich, in dem der Strahl komplett auf der aktiven Fläche des Detektors liegt, weist das Summensignal ein Plateau auf (siehe Abbildung A.3b). Für die weitere Auswertung sind nur die Anfangs- und Endpunkte dieses Plateaus von Interesse, da diese an den beiden in Abbildung A.3a gezeigten Strahlpositionen zustande kommen. Für diese Messwerte werden die zugehörigen Positionssignale  $k_{x,COM}$  und  $k_{y,COM}$  aus den Graphen in Abbildung A.3b abgelesen. Da zur Bestimmung des Durchmessers nur eine Detektorrichtung benötigt wird, werden im Folgenden nur die Messwerte der Achse verwendet, welche den größeren Signalhub verzeichnet (hier die  $k_y$ -Achse). Der Durchmesser des Beugungsscheibchens  $d$  lässt sich schließlich wie folgt berechnen:

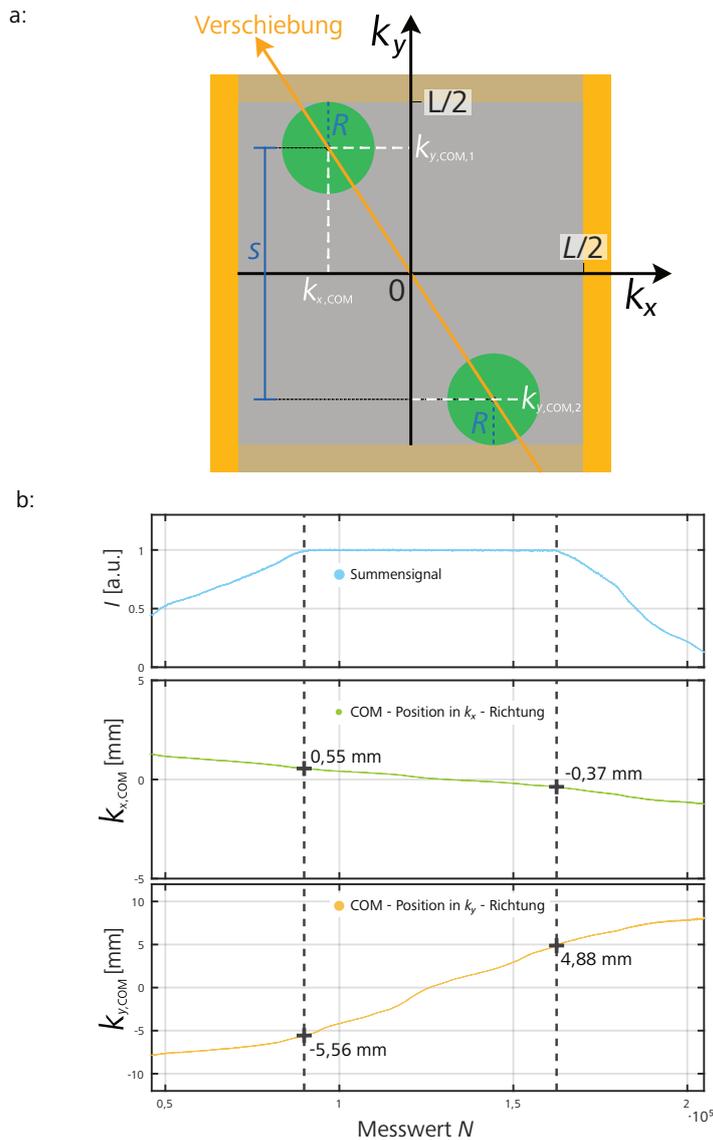
$$d = L - (|k_{y,COM,1} - k_{y,COM,2}|) = L - S \quad (\text{A.19})$$

Dabei entspricht  $L$  der Kantenlänge des Detektorfensters und  $S$  dem Abstand der Mittelpunkte der beiden Beugungsscheibchen in  $y$ -Richtung.  $k_{y,COM,1}$  und  $k_{y,COM,2}$  entsprechen den jeweiligen  $k_y$ -Komponenten der ermittelten Positionen. Mit dieser Messmethode ist es relativ einfach möglich, die Größe des Beugungsscheibchens auf dem Detektor zu bestimmen.

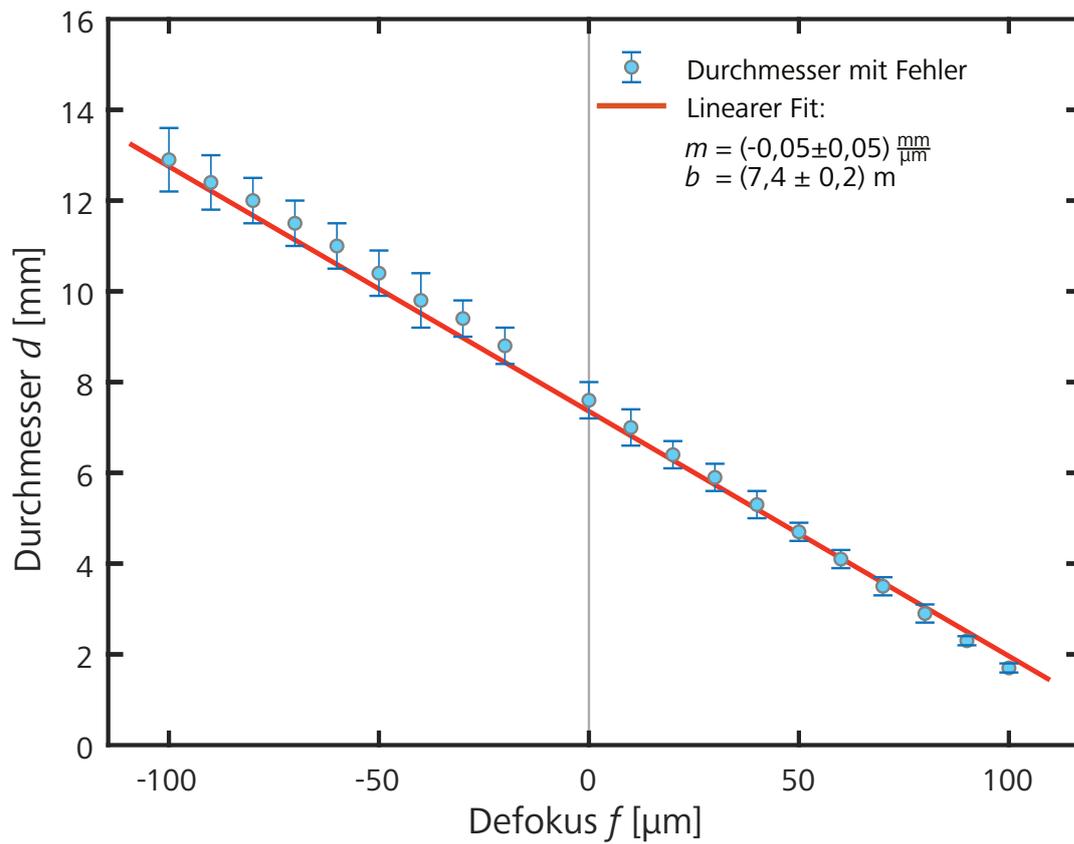
Mit dieser Methode wurde für jeden in Abschnitt 5.2.3 verwendeten Defokuswert  $f$  die entsprechende Scheibchengröße bestimmt. Abbildung A.4 zeigt die so ermittelten Strahldurchmesser in Abhängigkeit von  $f$ , welche linear voneinander abhängig sind. Der eingezeichnete Messfehler basiert auf der Toleranz von  $\pm 0,3\%$  bei der Herstellung des Detektorfensters sowie dem Fehler bei der Bestimmung der

---

Randpunkte des Plateaus im Summensignal. Um eventuell vernachlässigte Fehlerquellen dennoch einzubeziehen, wurde noch ein absoluter Fehler von  $50\ \mu\text{m}$  addiert. Eine lineare Anpassung ergibt schließlich den zur Umrechnung benötigten linearen funktionalen Zusammenhang. Die Steigung und y-Achsenabschnitt der ermittelten Ausgleichsgerade sind in Abbildung A.4 notiert.



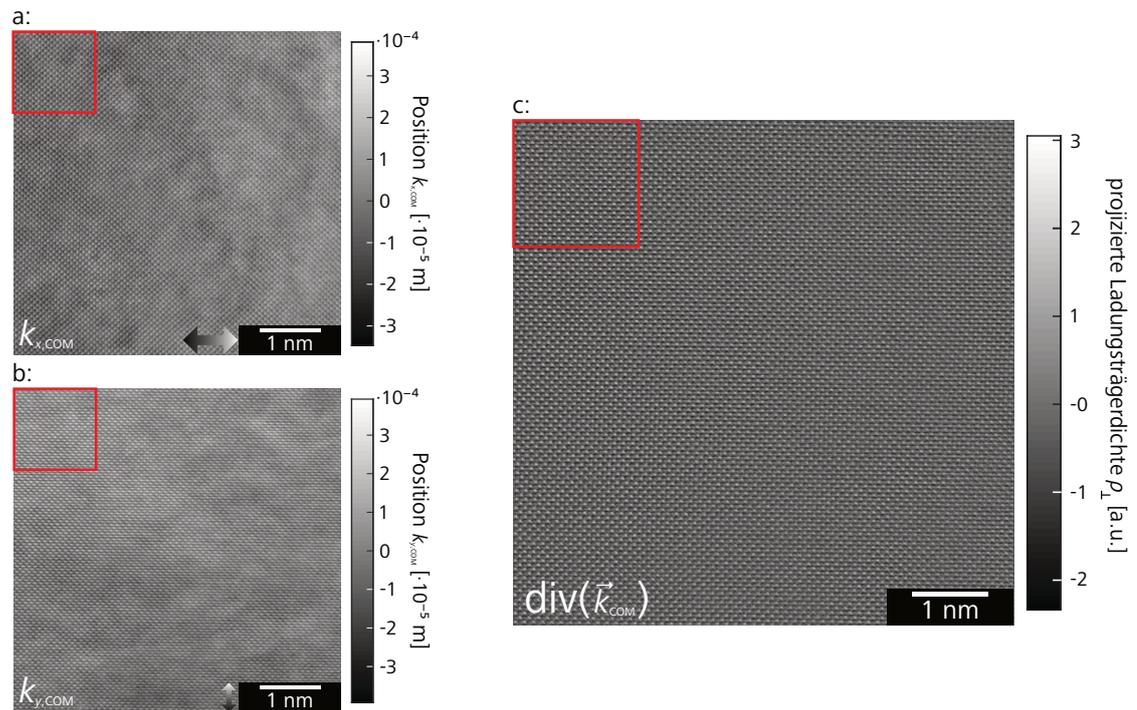
**Abb. A.3:** **a** zeigt eine schematische Darstellung der Messmethode, welche zur Bestimmung der Größe des Beugungsscheibchens auf dem Detektor verwendet wurde. Der Strahl wurde dabei linear über den Detektor gezogen. Aus den Randpositionen des Beugungsscheibchens lässt sich der Radius  $R$  bestimmen (Abbildung frei nach [98]). In **b** sind die Verläufe des Summsignals und der beiden Richtungskomponenten  $k_{x,COM}$  und  $k_{y,COM}$  einer Beispielmessung gezeigt. Für diese Messung ergeben sich keine linearen Verläufe der Richtungssignale da die Verschiebung über den Detektor manuell und somit mit keiner konstanten Geschwindigkeit vorgenommen wurde (entnommen aus [98] und verändert)



**Abb. A.4:** Gemessener Zusammenhang zwischen Defokuswert  $f$  und dem Durchmesser  $d$  des Beugungsscheibchens auf dem PSD-Detektor. (Abbildung entnommen aus [98] und verändert)

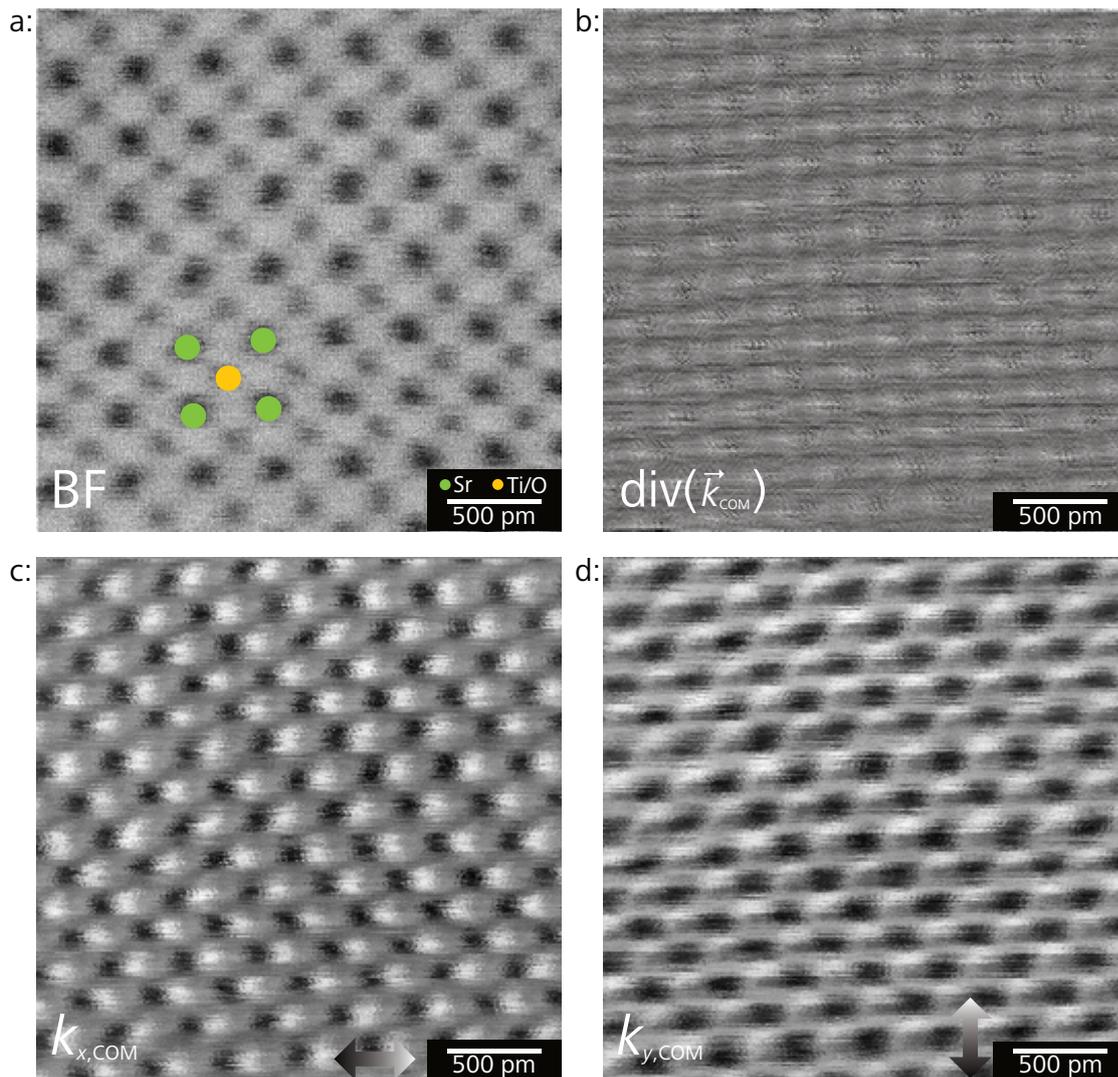
## A.4 Weitere Abbildungen zu Abschnitt 6.2

Unbeschnittene Ergebnisse der HMSTEM-PSD-Messung an  $\text{SrTiO}_3$



**Abb. A.5:** Diese Abbildung zeigt den kompletten mit der PSD gemessenen Bereich der Messung aus Abschnitt 6.1.3. Rot markiert sind jeweils die in Abbildung 6.2 gezeigten Teilbereiche der Richtungskomponenten  $k_{y,COM}$  und  $k_{y,COM}$  (a und b) und der Divergenz von  $\vec{k}_{COM}$  (c)

## Weitere Ergebnisse der Merlin-Messung an $\text{SrTiO}_3$



**Abb. A.6:** Weitere Ergebnisse der in Abschnitt 6.2.4 gezeigten Merlin-Messung an  $\text{SrTiO}_3$ . **a** zeigt das BF-Signal der Kamera. **b** die ungefilterte Divergenz von  $\vec{k}_{\text{COM}}$ . Die Richtungskomponenten  $k_{x,\text{COM}}$  und  $k_{y,\text{COM}}$  von  $\vec{k}_{\text{COM}}$  sind in **c** und **d** gezeigt.



# Literatur

- [1] H. Rose, „Phase-contrast in Scanning-transmission Electron-microscopy“. In: *Optik* 39.4 (1973), S. 416–436.
- [2] H. Rose, „Nonstandard Imaging Methods In Electron-microscopy“. In: *Ultramicroscopy* 2.2-3 (1977), S. 251–267.
- [3] N. H. Dekkers und H. D. Lang, „Differential Phase-contrast In A Stem“. In: *Optik* 41.4 (1974), S. 452–456.
- [4] N. H. Dekkers und H. D. Lang, „Calculation of Bright Field Single-atom Images In Stem With Half Plane Detectors“. In: *Optik* 51.1 (1978), S. 83–92.
- [5] J. Chapman, P. Batson, E. Waddell und R. Ferrier, „The direct determination of magnetic domain wall profiles by differential phase contrast electron microscopy“. In: *Ultramicroscopy* 3.0 (1978), S. 203–214. DOI: 10.1016/S0304-3991(78)80027-8.
- [6] J. Chapman, G. Morrison, J. Jakubovics und R. Taylor, „Determination of domain wall structures in thin foils of soft magnetic alloy“. In: *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* 49.3 (1985), S. 277–285. DOI: 10.1016/0304-8853(85)90159-3.
- [7] J. Chapman, G. Morrison, D. Fort und D. Jones, „An electron microscope investigation of domain structures in thin terbium foils“. In: *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* 22.3 (1981), S. 212–219. DOI: 10.1016/0304-8853(81)90025-1.
- [8] J. N. Chapman, „The investigation of magnetic domain structures in thin foils by electron microscopy“. In: *Journal of Physics D: Applied Physics* 17.4 (1984), S. 623–647. DOI: 10.1088/0022-3727/17/4/003.
- [9] J. Zweck, J. Chapman, S. McVitie und H. Hoffmann, „Reconstruction of induction distributions in thin films from DPC images“. In: *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* 104-107 (1992), S. 315–316. DOI: 10.1016/0304-8853(92)90813-4.
- [10] R. Ferrier, Y. Liu, J. Martin und T. Arnoldussen, „Electron beam tomography of magnetic recording head fields“. In: *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* 149.3 (1995), S. 387–397. DOI: 10.1016/0304-8853(95)00304-5.
- [11] I. Petri, T. Zimmermann, J. Zweck, H. Hoffmann, Yan Liu, R. P. Ferrier und W. Nichtl-Pecher, „Investigations on the stray-fields of magnetic read/write heads and their structural reasons“. In: *IEEE Transactions on Magnetics* 32.5 (1996), S. 4141–4143.

- [12] J. N. Chapman, S. McVitie und S. J. Hefferman, „Mapping induction distributions by transmission electron microscopy (invited)“. In: *Journal of Applied Physics* 69.8 (1991), S. 6078–6083. DOI: 10.1063/1.347775.
- [13] T. Sannomiya, Y. Haga, Y. Nakamura, O. Nittono und Y. Takahashi, „Observation of magnetic structures in Fe granular films by differential phase contrast scanning transmission electron microscopy“. In: *Journal of Applied Physics* 95.1 (2004), S. 214–218. DOI: 10.1063/1.1630356.
- [14] T. Uhlig und J. Zweck, „Direct observation of switching processes in Permalloy rings with Lorentz microscopy“. In: *Physical Review Letters* 93.4 (2004), S. 047203. DOI: 10.1103/PhysRevLett.93.047203.
- [15] J. Wild, „Lorentz-Transmissionselektronenmikroskopie und Differentielle Phasenkontrastmikroskopie an magnetischen Skyrmionen“. Diss. Fakultät für Physik der Universität Regensburg, 2017.
- [16] G. Lee, J. Jeong, F. Schwarzhuber, J. Zweck, J. Kim, D. H. Kim und H. J. Chang, „Influence of combinatory effects of STEM setups on the sensitivity of differential phase contrast imaging“. In: *Micron* 127 (2019), S. 102755. DOI: 10.1016/j.micron.2019.102755.
- [17] S. Pöllath, T. Lin, N. Lei, W. Zhao, J. Zweck und C. Back, „Spin structure relation to phase contrast imaging of isolated magnetic Bloch and Néel skyrmions“. In: *Ultramicroscopy* 212 (2020), S. 112973. DOI: 10.1016/j.ultramicro.2020.112973.
- [18] M. Lohr, R. Schregle, M. Jetter, C. Waechter, T. Wunderer, F. Scholz und J. Zweck, „Differential phase contrast 2.0 - Opening new "fields" for an established technique“. In: *Ultramicroscopy* 117 (2012), S. 7–14. DOI: 10.1016/j.ultramicro.2012.03.020.
- [19] M. Lohr, „Quantitative Bestimmung innerer elektrischer Felder mit Hilfe von Differentieller Phasenkontrastmikroskopie“. Diss. Fakultät für Physik der Universität Regensburg, 2013.
- [20] B. Bauer, J. Hubmann, M. Lohr, E. Reiger, D. Bougeard und J. Zweck, „Direct detection of spontaneous polarization in wurzite GaAs nanowires“. In: *Applied Physics Letters* 104.21 (2014), S. 211902. DOI: 10.1063/1.4880209.
- [21] B. Bauer, „Transmission Electron Microscopy on GaAs Nanowires Spontaneous Polarization and MnAs Nanocrystals“. Diss. Fakultät für Physik der Universität Regensburg, 2015.
- [22] F. Schwarzhuber, „Kalibrierung und Charakterisierung des DPC-Modus im Rastertransmissionselektronenmikroskop“. Masterarbeit. Fakultät für Physik der Universität Regensburg, 2015.
- [23] F. Schwarzhuber, P. Melzl, S. Pöllath und J. Zweck, „Introducing a non-pixelated and fast centre of mass detector for differential phase contrast microscopy“. In: *Ultramicroscopy* 192 (2018), S. 21–28. DOI: 10.1016/j.ultramicro.2018.05.003.

- [24] N. Shibata, S. D. Findlay, Y. Kohno, H. Sawada, Y. Kondo und Y. Ikuhara, „Differential phase-contrast microscopy at atomic resolution“. In: *Nature Physics* 8.8 (2012), S. 611–615. DOI: 10.1038/NPHYS2337.
- [25] K. Mueller, F. F. Krause, A. Béché, M. Schowalter, V. Galioit, S. Löffler, J. Verbeeck, J. Zweck, P. Schattschneider und A. Rosenauer, „Atomic electric fields revealed by a quantum mechanical approach to electron picodiffraction“. In: *Nat Commun* 5 (2014), S. 5653.
- [26] K. Müller-Caspary, F. F. Krause, T. Grieb, S. Löffler, M. Schowalter, A. Béché, V. Galioit, D. Marquardt, J. Zweck, P. Schattschneider, J. Verbeeck und A. Rosenauer, „Measurement of atomic electric fields and charge densities from average momentum transfers using scanning transmission electron microscopy“. In: *Ultramicroscopy* (2016), S. 62–80. DOI: 10.1016/j.ultramicro.2016.05.004.
- [27] R. Close, Z. Chen, N. Shibata und S. Findlay, „Towards quantitative, atomic-resolution reconstruction of the electrostatic potential via differential phase contrast using electrons“. In: *Ultramicroscopy* 159 (2015), S. 124–137. DOI: 10.1016/j.ultramicro.2015.09.002.
- [28] K. Müller-Caspary, M. Duchamp, M. Rösner, V. Migunov, F. Winkler, H. Yang, M. Huth, R. Ritz, M. Simson, S. Ihle, H. Soltau, T. Wehling, R. E. Dunin-Borkowski, S. Van Aert und A. Rosenauer, „Atomic-scale quantification of charge densities in two-dimensional materials“. In: *Phys. Rev. B* 98 (12 2018), S. 121408. DOI: 10.1103/PhysRevB.98.121408.
- [29] M. Krajnak, D. McGrouther, D. Maneuski, V. O. Shea und S. McVitie, „Pixelated Detectors and Improved Efficiency for Magnetic Imaging in {STEM} Differential Phase Contrast“. In: *Ultramicroscopy* (2016), S. 42–50. DOI: 10.1016/j.ultramicro.2016.03.006.
- [30] T. J. Pennycook, A. R. Lupini, H. Yang, M. F. Murfitt, L. Jones und P. D. Nellist, „Efficient phase contrast imaging in STEM using a pixelated detector. Part 1: Experimental demonstration at atomic resolution“. In: *Ultramicroscopy* 151 (2015). Special Issue: 80th Birthday of Harald Rose; PICO 2015 - Third Conference on Frontiers of Aberration Corrected Electron Microscopy, S. 160–167. DOI: 10.1016/j.ultramicro.2014.09.013.
- [31] A. M. Raighne, G. V. Fernandez, D. Maneuski, D. McGrouther und V. O'Shea, „Medipix2 as a highly flexible scanning/imaging detector for transmission electron microscopy“. In: *Journal of Instrumentation* 6.01 (2011), S. C01047–C01047. DOI: 10.1088/1748-0221/6/01/c01047.
- [32] R. Plackett, I. Horswell, E. N. Gimenez, J. Marchal, D. Omar und N. Tartoni, „Merlin: a fast versatile readout system for Medipix3“. In: *Journal of Instrumentation* 8.01 (2013), S. C01038–C01038. DOI: 10.1088/1748-0221/8/01/c01038.
- [33] *Datasheet MerlinEM*. Accessed: 2020-05-24. Quantum Detectors. 2019.
- [34] M. W. Tate, P. Purohit, D. Chamberlain, K. X. Nguyen, R. Hovden, C. S. Chang, P. Deb, E. Turgut, J. T. Heron, D. G. Schlom und et al., „High Dynamic Range Pixel

- Array Detector for Scanning Transmission Electron Microscopy“. In: *Microscopy and Microanalysis* 22.1 (2016), S. 237–249. DOI: 10.1017/s1431927615015664.
- [35] H. Ryll, M. Simson, R. Hartmann, P. Holl, M. Huth, S. Ihle, Y. Kondo, P. Kotula, A. Liebel, K. Mueller-Caspary, A. Rosenauer, R. Sagawa, J. Schmidt, H. Soltau und L. Strueder, „A pnCCD-based, fast direct single electron imaging camera for TEM and STEM“. In: *JOURNAL OF INSTRUMENTATION* 11 (2016). DOI: {10.1088/1748-0221/11/04/P04006}.
- [36] E. Ruska, „Beitrag zur übermikroskopischen Abbildung bei höheren Drucken“. In: *Kolloid-Zeitschrift* 100.2 (1942), S. 212–219. DOI: 10.1007/BF01519549.
- [37] M. Knoll und E. Ruska, „Beitrag zur geometrischen Elektronenoptik. I“. In: *Annalen der Physik* 404.5 (1932), S. 607–640. DOI: 10.1002/andp.19324040506.
- [38] E. Ruska, „Über ein magnetisches Objektiv für das Elektronenmikroskop“. In: *Zeitschrift für Physik* 89.1 (1934), S. 90–128. DOI: 10.1007/BF01333236.
- [39] E. Ruska, „über Fortschritte im Bau und in der Leistung des magnetischen Elektronenmikroskops“. In: *Zeitschrift für Physik* 87.9 (1934), S. 580–602. DOI: 10.1007/BF0133326.
- [40] B. v. Borries, E. Ruska, J. Krumm und H. O. Müller, „Übermikroskopische Abbildung mittels magnetostatischer Linsen“. In: *Naturwissenschaften* 28.22 (1940), S. 350–351. DOI: 10.1007/BF01480393.
- [41] H. O. Müller und E. Ruska, „Ein Übermikroskop für 220 kV Strahlspannung“. In: *Kolloid-Zeitschrift* 95.1 (1941), S. 21–25. DOI: 10.1007/BF01520679.
- [42] E. Ruska, „Über die Linsen hochauflösender Elektronenmikroskope“. In: *Archiv für Elektrotechnik* 36.7 (1942), S. 431–454. DOI: 10.1007/BF02075058.
- [43] E. Ruska, „Zur Entwicklung der Übermikroskopie und über ihre Beziehungen zur Kolloidforschung“. In: *Kolloid-Zeitschrift* 108.1 (1944), S. 64–64. DOI: 10.1007/BF01510868.
- [44] E. Ruska, „über den Bau und die Bemessung von Polschuhlinen für hochauflösende Elektronenmikroskope“. In: *Archiv für Elektrotechnik* 38.3 (1944), S. 102–130. DOI: 10.1007/BF02092675.
- [45] E. Ruska, „Über neue magnetische Durchstrahlungs-Elektronenmikroskope im Strahlspannungsbereich von 40 ... 220 kV“. In: *Kolloid-Zeitschrift* 116.2 (1950), S. 102–120. DOI: 10.1007/BF01515853.
- [46] E. Ruska, „The Development of the Electron Microscope and of Electron Microscopy (Nobel Lecture)“. In: *Angewandte Chemie International Edition in English* 26.7 (1987), S. 595–605. DOI: 10.1002/anie.198705953.
- [47] X. Fan, D. Cao, L. Kong und X. Zhang, „Cryo-EM analysis of the post-fusion structure of the SARS-CoV spike glycoprotein“. In: *Nature Communications* 11.1 (2020), S. 3618. DOI: 10.1038/s41467-020-17371-6.
- [48] M. Cyrklaff und W. Kühlbrandt, „High-resolution electron microscopy of biological specimens in cubic ice“. In: *Ultramicroscopy* 55.2 (1994), S. 141–153. DOI: 10.1016/0304-3991(94)90165-1.

- [49] Y. Fujiyoshi, „Low Dose Techniques and Cryo-Electron Microscopy“. In: *Methods in molecular biology (Clifton, N.J.)* 955 (Jan. 2013), S. 103–18. DOI: 10.1007/978-1-62703-176-9\_6.
- [50] J. Dubochet, „On the Development of Electron Cryo-Microscopy (Nobel Lecture)“. In: *Angewandte Chemie International Edition* 57.34 (2018), S. 10842–10846. DOI: 10.1002/anie.201804280.
- [51] J. Zweck, „Imaging of magnetic and electric fields by electron microscopy“. In: *Journal of Physics: Condensed Matter* 28.40 (2016), S. 403001. DOI: 10.1088/0953-8984/28/40/403001.
- [52] D. Williams und C. B. Carter, *Transmission Electron Microscopy*. 2. Aufl. Springer, 2009.
- [53] J. Thomas und T. Gemming, *Analytische Transmissionselektronenmikroskopie Eine Einführung für den Praktiker*. Springer.
- [54] L. Reimer und H. Kohl, *Transmission Electron Microscopy*. Hrsg. von W. T. Rhodes. 5. Aufl. Springer, 2008.
- [55] J. Zuo und J. Spence, *Advanced transmission electron microscopy: Imaging and diffraction in nanoscience*. English (US). United States: Springer New York, Jan. 2016. DOI: 10.1007/978-1-4939-6607-3.
- [56] J. Spence, *High-Resolution Electron Microscopy*. English (US). Oxford University Press, Jan. 2010. DOI: 10.1093/acprof:oso/9780199552757.001.0001.
- [57] O. Scherzer, „Über einige Fehler von Elektronenlinsen“. In: *Zeitschrift für Physik* 101.9 (1936), S. 593–603. DOI: 10.1007/BF01349606.
- [58] W. Glaser, „Strenge Berechnung magnetischer Linsen der Feldform  $H=H_0(1+(z/a)^2)$ “. In: *Zeitschrift für Physik* 117.5 (1941), S. 285–315. DOI: 10.1007/BF01676330.
- [59] H. Busch, „Berechnung der Bahn von Kathodenstrahlen im axialsymmetrischen elektromagnetischen Felde“. In: *Annalen der Physik* 386.25 (1926), S. 974–993. DOI: 10.1002/andp.19263862507.
- [60] H. Busch, „Über die Wirkungsweise der Konzentrierungsspule bei der Braunschen Röhre“. In: *Archiv für Elektrotechnik* (1927), S. 583–594.
- [61] M. Haider, S. Uhlemann, E. Schwan, G. Rose, B. Kabius und K. Urban, „Electron microscopy image enhanced“. In: *Nature* 392.6678 (1998), S. 768–769. DOI: 10.1038/33823.
- [62] M. Haider, P. Hartel, H. Müller, S. Uhlemann und J. Zach, „Information Transfer in a TEM Corrected for Spherical and Chromatic Aberration“. In: *Microscopy and Microanalysis* 16.4 (2010), S. 393–408. DOI: 10.1017/S1431927610013498.
- [63] H. Rose, „Outline of a spherically corrected semi-aplanatic medium-voltage TEM“. In: *Optik* 85 (1990), S. 19–24.
- [64] T. Uhlig, „Differentielle Phasenkontrastmikroskopie an magnetischen Ringstrukturen“. Diss. Fakultät für Physik der Universität Regensburg, 2004.
- [65] A. V. Crewe, D. N. Eggenberger, J. Wall und L. M. Welter, „Electron Gun Using a Field Emission Source“. In: *Review of Scientific Instruments* 39.4 (1968), S. 576–583. DOI: 10.1063/1.1683435.

- [66] J. Zweck und T. Uhlig, „Lorentz Microscopy of Thin-film Systems“. In: *Handbook of Magnetism and Advanced Magnetic Materials*. American Cancer Society, 2007. DOI: 10.1002/9780470022184.hmm305.
- [67] V. Galioit, „Kontrastsimulationen zu Atomic DPC am Modellsystem GaN“. Masterarbeit. Fakultät für Physik der Universität Regensburg, 2014.
- [68] M. Kadur, „Simulation der Auswirkung von elektrischen Feldern und Verspannungen auf DPC-Bilder“. Masterarbeit. Fakultät für Physik der Universität Regensburg, 2014.
- [69] L. Reimer und H. Kohl, *Transmission Electron Microscopy*. Hrsg. von W. T. Rhodes. 5th edition. Springer, 2008. DOI: DOI : 10.1007/978-0-387-34758-5.
- [70] F. Schwarzhuber, P. Melzl und J. Zweck, „On the achievable field sensitivity of a segmented annular detector for differential phase contrast measurements“. In: *Ultramicroscopy* (2017), S. 97–105. DOI: 10.1016/j.ultramicro.2017.02.005.
- [71] H. Lichte und M. Lehmann, „Electron holography—basics and applications“. In: *Reports on Progress in Physics* 71.1 (2007), S. 016102. DOI: 10.1088/0034-4885/71/1/016102.
- [72] J. Zweck, F. Schwarzhuber, J. Wild und V. Galioit, „On detector linearity and precision of beam shift detection for quantitative differential phase contrast applications“. In: *Ultramicroscopy* 168 (2016), S. 53–64. DOI: 10.1016/j.ultramicro.2016.05.007.
- [73] Y. Aharonov und D. Bohm, „Significance of Electromagnetic Potentials in the Quantum Theory“. In: *Phys. Rev.* 115 (3 1959), S. 485–491. DOI: 10.1103/PhysRev.115.485.
- [74] I. MacLaren, L. Wang, D. McGrouther, A. J. Craven, S. McVitie, R. Schierholz, A. Kovács, J. Barthel und R. E. Dunin-Borkowski, „On the origin of differential phase contrast at a locally charged and globally charge-compensated domain boundary in a polar-ordered material“. In: *Ultramicroscopy* 154.0 (2015), S. 57–63. DOI: 10.1016/j.ultramicro.2015.03.016.
- [75] N. Shibata, T. Seki, G. Sánchez-Santolino, S. D. Findlay, Y. Kohno, T. Matsumoto, R. Ishikawa und Y. Ikuhara, „Electric field imaging of single atoms“. In: *Nature Communications* 8 (2017), 15631 EP. DOI: 10.1038/ncomms15631.
- [76] R. Ishikawa, S. D. Findlay, T. Seki, G. Sánchez-Santolino, Y. Kohno, Y. Ikuhara und N. Shibata, „Direct electric field imaging of graphene defects“. In: *Nature Communications* 9.1 (2018), S. 3878.
- [77] J. N. Chapman, I. R. McFadyen und S. McVitie, „Modified differential phase contrast Lorentz microscopy for improved imaging of magnetic structures“. In: *IEEE Transactions on Magnetism* 26.5 (1990), S. 1506–1511. DOI: 10.1109/20.104427.
- [78] I. Daberkow, *Ein frei konfigurierbares ortsauflösendes Detektorsystem für ein Raster-Transmissions-Elektronenmikroskop (STEM) (Ä freely configurable spatially resolving detector system for a scanning transmission electron microscope (STEM))*. Universität Tübingen, 1992.

- [79] F. L. I. Daberkow K.-H. Herrmann, „A configurable angle-resolving detector system in STEM“. In: *Ultramicroscopy* 50.1 (1993), S. 75–82.
- [80] *Backscatter Detector, Manual BS101, Issue2*. K.E.Developements Limited. 1997.
- [81] *Creative Commons Attribution 4.0 International License*. Accessed: 2020-05-24. 2018.
- [82] J. M. Cowley und A. F. Moodie, „The scattering of electrons by atoms and crystals. I. A new theoretical approach“. In: *Acta Crystallographica* 10.10 (1957), S. 609–619. DOI: 10.1107/S0365110X57002194.
- [83] A. Rosenauer und M. Schowalter, „STEMSIM—a New Software Tool for Simulation of STEM HAADF Z-Contrast Imaging“. In: *Microscopy of Semiconducting Materials 2007*. Hrsg. von A. G. Cullis und P. A. Midgley. Dordrecht: Springer Netherlands, 2008, S. 170–172.
- [84] *Datasheet MerlinEM*. Accessed: 2020-05-24. Thermo Fisher. 2018.
- [85] P. Ehrenfest, „Bemerkung über die angenäherte Gültigkeit der klassischen Mechanik innerhalb der Quantenmechanik“. In: *Zeitschrift für Physik* 45.7-8 (Juli 1927), S. 455–457. DOI: 10.1007/BF01329203.
- [86] B. A. Lippmann, „Ehrenfest’s Theorem and Scattering Theory“. In: *Phys. Rev. Lett.* 15 (1 1965), S. 11–14. DOI: 10.1103/PhysRevLett.15.11.
- [87] *First Sensors position sensitive detectors*. Accessed: 2020-08-05. First Sensor. 2020.
- [88] C. C. Liebe, B. W. Bauman, G. R. Clark, R. Cook, B. Kecman, K. K. Madsen, P. Mao, P. Meras, H. Miyasaka, M. Cooper, C. Scholz und J. Sedaka, „Design, Qualification, Calibration and Alignment of Position Sensing Detector for the NuSTAR Space Mission“. In: *IEEE Sensors Journal* 12.6 (2012), S. 2006–2013.
- [89] A. Mäkynen, „Position-Sensitive Devices and Sensor Systems for Optical Tracking and Displacement Sensing Applications“. Diss. Faculty of Technology University of Oulu, 2000.
- [90] T. Meister, „Aufbau und Regelung eines elektrostatischen Levitators“. Diss. Fakultät für Elektrotechnik und Informationstechnik der Ruhr-Universität Bochum, 2000.
- [91] H. Andersson, „Position Sensitive Detectors - Device Technology and Application in Spectroscopy“. Diss. Mid Sweden University, 2008.
- [92] J. T. Wallmark, „A New Semiconductor Photocell Using Lateral Photoeffect“. In: *Proceedings of the IRE* 45.4 (1957), S. 474–483.
- [93] *Datenblatt: PSD*. Accessed: 2020-08-05. SiTek Electro Optics. 2020.
- [94] D. Drouin, A. R. Couture, D. Joly, X. Tastet, V. Aimez und R. Gauvin, „CASINO V2.42 A Fast and Easy-to-use Modeling Tool for Scanning Electron Microscopy and Microanalysis Users“. In: *Scanning* 29.3 (2007), S. 92–101. DOI: 10.1002/sca.20000.
- [95] C. Habenschaden, „Integration eines Positions-Sensitiven Detektors in ein Rastertransmissionselektronenmikroskop als Detektor für differentielle Phasenkontrastmikroskopie“. Masterarbeit. Fakultät für Physik der Universität Regensburg, 2019.

- [96] P. Melzl, „Test einer duolateralen Position Sensitive Diode als neuartiger Detektor für ein Differentielles Phasenkontrast System“. Diplomarbeit. Fakultät für Physik der Universität Regensburg, 2017.
- [97] A. Altmann, „Untersuchungen zum Zeit-Antwortverhalten eines Elektronendetektors“. Bachelorarbeit. Fakultät für Physik der Universität Regensburg, 2018.
- [98] F. Müller, „Methoden zur Bestimmung von Elektronenstrahldurchmessern mittels PSD“. Zulassungsarbeit. Fakultät für Physik der Universität Regensburg, 2018.
- [99] M. Schmauser, „Untersuchungen zur Linearität der Ortsbestimmung eines PSD-Detektors für Elektronen“. Bachelorarbeit. Fakultät für Physik der Universität Regensburg, 2018.
- [100] C. Steininger, „Detektor zur COM-Bestimmung: Bestimmung der Temperaturabhängigkeit“. Bachelorarbeit. Fakultät für Physik der Universität Regensburg, 2018.
- [101] T. Gierl, „Bau und Test eines Si-Detektors zur COM-Bestimmung“. Bachelorarbeit. Fakultät für Physik der Universität Regensburg, 2017.
- [102] A. Flammersfeld, „Eine Beziehung zwischen Energie und Reichweite für Beta-Strahlen kleiner und mittlerer Energie“. In: *Zeitschrift für Naturforschung A* 2.7 (1947), S. 370–375. DOI: 10.1515/zna-1947-0702.
- [103] H. Krieger, *Grundlagen der Strahlungsphysik und des Strahlenschutzes*. 4. Aufl. Springer, 2007.
- [104] *Datenblatt: Peltier-Element*. Accessed: 2020-08-10. Kryotherm. 2013.
- [105] *Datenblatt: Signal Processing Circuit for SiTek High Linearity Position Sensing Detector*. Accessed: 2020-08-05. First Sensor. 2018.
- [106] T. Beer, „Differentieller Phasenkontrast an getemperten Cobalt Dünnschicht Proben“. Masterarbeit. Fakultät für Physik der Universität Regensburg, 2016.
- [107] D. Jiles, *Introduction to Magnetism and Magnetic Materials*. CRC Press, 2015.
- [108] E. Miekos, J. Balcerski, P. Kowalczyk, M. Cichomski und W. Szmaja, „Investigation of thermally evaporated nanocrystalline thin cobalt films“. In: *Applied Physics A* 123 (Feb. 2017). DOI: 10.1007/s00339-017-0789-5.
- [109] R. Gross und A. Marx, *Festkörperphysik*. Berlin, Boston: De Gruyter Oldenbourg, 19 Aug. 2014. DOI: /10.1524/9783110358704.
- [110] A. Daykin, J. Kim und J. Jakubovics, „A study of cross-tie domain walls in cobalt using small-aperture Foucault imaging“. In: *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* 153.3 (1996), S. 293–301. DOI: 10.1016/0304-8853(95)00551-X.
- [111] T. J. Bromwich, A. Kohn, A. K. Petford-Long, T. Kasama, R. E. Dunin-Borkowski, S. B. Newcomb und C. A. Ross, „Remanent magnetization states and interactions in square arrays of 100-nm cobalt dots measured using transmission electron microscopy“. In: *Journal of Applied Physics* 98.5 (2005), S. 053909. DOI: 10.1063/1.2011780.

- [112] M. Mankos, M. R. Scheinfein und J. M. Cowley, „Absolute magnetometry at nanometer transverse spatial resolution: Holography of thin cobalt films in a scanning transmission electron microscope“. In: *Journal of Applied Physics* 75.11 (1994), S. 7418–7424. DOI: 10.1063/1.356658.
- [113] M. Mankos, Z. J. Yang, M. R. Scheinfein und J. M. Cowley, „Absolute magnetometry of thin cobalt films and Co/Cu multilayer structures at nanometer spatial resolution“. In: *IEEE Transactions on Magnetics* 30.6 (1994), S. 4497–4499.
- [114] R. Dunin-Borkowski, M. McCartney, D. Smith und S. Parkin, „Towards quantitative electron holography of magnetic thin films using in situ magnetization reversal“. English (US). In: *Ultramicroscopy* 74.1-2 (Juli 1998), S. 61–73. DOI: 10.1016/S0304-3991(98)00023-0.
- [115] C. L. Jia und K. Urban, „Atomic-Resolution Measurement of Oxygen Concentration in Oxide Materials“. In: *Science* 303.5666 (2004), S. 2001–2004. DOI: 10.1126/science.1093617.
- [116] S. Findlay, N. Shibata, H. Sawada, E. Okunishi, Y. Kondo und Y. Ikuhara, „Dynamics of annular bright field imaging in scanning transmission electron microscopy“. In: *Ultramicroscopy* 110.7 (2010), S. 903–923. DOI: 10.1016/j.ultramic.2010.04.004.
- [117] P. Gao, A. Kumamoto, R. Ishikawa, N. Lugg, N. Shibata und Y. Ikuhara, „Picometer scale atom position analysis in annular bright-field STEM imaging“. In: *Ultramicroscopy* 184 (2018), S. 177–187. DOI: 10.1016/j.ultramic.2017.09.001.
- [118] A. Rosenauer, K. Müller-Caspary, M. Schowalter, T. Grieb, F. Krause, T. Mehrtens, A. Béché, J. Verbeeck, J. Zweck, S. Löffler, P. Schattschneider, M. Müller, P. Veit, S. Metzner, F. Bertram, J. Christen, T. Schimpke, M. Straßburg, R. Dunin-Borkowski und M. Duchamp, „Quantitative STEM - From composition to atomic electric fields“. In: Dez. 2016, S. 552–553. DOI: 10.1002/9783527808465.EMC2016.8302.
- [119] H. Kim, J. Y. Zhang, S. Raghavan und S. Stemmer, „Direct Observation of Sr Vacancies in SrTiO<sub>3</sub> by Quantitative Scanning Transmission Electron Microscopy“. In: *Phys. Rev. X* 6 (4 2016), S. 041063. DOI: 10.1103/PhysRevX.6.041063.
- [120] Ernst Ruska Centre for Microscopy and Spectroscopy with Electrons (ER-C) et al., „FEI Titan 80-300 STEM“. In: *Journal of large-scale research facilities* 2 (2016).
- [121] *Tecnai Mechanics, Projection chamber and screen lift T10, T12, T20 Fig. 8-16 (1)*. FEI Company. 1999.



# Abbildungsverzeichnis

2.1	Aufbau eines (S)TEM . . . . .	8
2.2	Theorie Elektronensonde . . . . .	10
2.3	Wellenoptische Beschreibung des STEM-Strahlenganges . . . . .	12
2.4	Skizze des Strahlenganges im STEM-Betrieb . . . . .	14
2.5	Gegenüberstellung der Strahlengänge des LM- und HMSTEM-Modus . . . . .	15
2.6	Konvergenter Elektronenstrahl . . . . .	17
2.7	Wechselwirkung des Elektronenstrahls mit elektrischen und magnetischen Feldern . . . . .	18
2.8	Simulation des Einflusses homogener Potentiale auf das Beugungsscheibchen; Teil 1 . . . . .	23
2.9	Simulation des Einflusses homogener Potentiale auf das Beugungsscheibchen; Teil 2 . . . . .	24
2.10	Simulation des Einflusses inhomogener Potentiale auf das Beugungsscheibchen; Teil 1 . . . . .	26
2.11	Simulation des Einflusses inhomogener Potentiale auf das Beugungsscheibchen; Teil 2 . . . . .	27
3.1	Ringförmiger 4-Quadranten-Detektor . . . . .	32
3.2	cDPC: Verschiebung des Beugungsscheibchens . . . . .	34
3.3	Signalentstehung cDPC . . . . .	35
3.4	Darstellung von cDPC-Messergebnissen . . . . .	37
3.5	Wichtige Messparameter bei cDPC . . . . .	38
3.6	Empfindlichkeit von cDPC-Messungen . . . . .	42
3.7	Auswirkung der Strahlgröße auf den Messfehler von cDPC . . . . .	44
3.8	Simulierte moreSTEM-Messung an einer GaN-Einheitszelle . . . . .	48
3.9	Schematische Darstellung einer moreSTEM-Messung . . . . .	49
3.10	Daten des MerlinEM Detektors . . . . .	50
3.11	Zusammenhang lateraler Impulsübertrag und Coulomb-Potential . . . . .	51
3.12	Zusammenhang zwischen lateralem Impulsübertrag und elektrischen Feld . . . . .	56
3.13	Vor- und Nachteile von cDPC-Messungen und moreSTEM-Messungen mit schnellen Kameras . . . . .	57
4.1	Aufbau und Funktionsweise einer PSD . . . . .	61
4.2	Signalentstehung PSD . . . . .	63
4.3	COM-Messung mit einer PSD . . . . .	65

---

4.4	Ergebnisse CASINO-Simulation . . . . .	69
4.5	Simuliertes Beugungsscheibchen . . . . .	70
4.6	Simulationsergebnis R-Abhängigkeit . . . . .	71
4.7	Simulationsergebnis Intensitätsabhängigkeit . . . . .	72
4.8	Analytisches Modell des Messfehlers einer PSD . . . . .	73
5.1	Daten der verwendeten PSD . . . . .	76
5.2	Experimenteller Aufbau des PSD-Detektorsystems . . . . .	77
5.3	Daten der Ausleseelektronik . . . . .	80
5.4	Korrektur der PSD-Signale . . . . .	81
5.5	Ergebnis Empfindlichkeitsmessung . . . . .	85
5.6	Ergebnis Detektorlinearität . . . . .	89
5.7	Auswertung Detektorlinearität . . . . .	91
5.8	Messung der Intensitätsabhängigkeit der Empfindlichkeit einer PSD .	94
5.9	Messung der Größenabhängigkeit der Empfindlichkeit einer PSD . . .	95
6.1	Ergebnis einer LMSTEM-PSD-Messung an Cobalt 1 . . . . .	100
6.2	Ergebnis einer LMSTEM-PSD-Messung an Cobalt 2 . . . . .	101
6.3	Quantifizierung der PSD-Messung . . . . .	102
6.4	Vergleich von DPC-Ringdetektor und PSD-Detektor . . . . .	103
6.5	Struktur von SrTiO <sub>3</sub> ; Summensignal der HMSTEM-PSD-Messung . . .	106
6.6	Richtungssignale und Divergenz der HMSTEM-PSD-Messung . . . . .	107
6.7	Positionsabhängige Intensitätsmittelung . . . . .	109
6.8	Vergleich von Merlin- und PSD-Detektor . . . . .	110
6.9	Vergleich der Gesichtsfelder von MerlinEM-Kamera und PSD-System .	111
A.1	Explosionsdarstellung der Tecnai F30 Projektionskammer . . . . .	117
A.2	Gegenüberstellung technische Zeichnung und reales PSD-System . . .	118
A.3	Messung der Größe des Beugungsscheibchens . . . . .	124
A.4	Zusammenhang zwischen Defokus Scheibchengröße . . . . .	125
A.5	Unbeschnittene Ergebnisse der LMSTEM-PSD-Messungen . . . . .	126
A.6	Weitere Ergebnisse der MerlinEM-Kamera . . . . .	127

# Publikationsliste

## Publikationen in Fachjournalen

### Als Erstautor

- **F. Schwarzhuber**, P. Melzl und J. Zweck. „On the achievable field sensitivity of a segmented annular detector for differential phase contrast measurements“. In: Ultramicroscopy (2017) 97-105. DOI: 10.1016/j.ultramic.2017.02.005.
- **F. Schwarzhuber**, P. Melzl, S. Pöllath und J. Zweck. „Introducing a non-pixelated and fast centre of mass detector for differential phase contrast microscopy“. In: Ultramicroscopy 192 (2018) 21-28. DOI: 10.1016/j.ultramic.2018.05.003.

### Als Ko-Autor

- J. Zweck, **F. Schwarzhuber**, J. Wild und V. Galioit. „On detector linearity and precision of beam shift detection for quantitative differential phase contrast applications“. In: Ultramicroscopy 168 (2016) 53-64. DOI: 10.1016/j.ultramic.2016.05.007.
- S. Sandl, **F. Schwarzhuber**, S. Pöllath, J. Zweck und A. J. von Wangelin. „Olefin-Stabilized Cobalt Nanoparticles for C=C, C=O, and C=N Hydrogenations “. In: Chemistry Eur. J. (2017). DOI: 10.1002/chem.201705366.
- M. Vogel, B. Zimmermann, J. Wild, **F. Schwarzhuber**, C. Mewes, T. Mewes, J. Zweck und C. H. Back. „Phase programming in coupled spintronic oscillators “. In: arXiv (2018). DOI:arXiv:1811.02154.
- B. J. Gregori, **F. Schwarzhuber**, S. Pöllath, J. Zweck, L. Fritsch, R. Schoch, M. Bauer und A. J. von Wangelin. „Stereoselective Alkyne Hydrogenation by a Simple Iron Catalyst“. In: ChemSusChem (2019). DOI: 10.1002/cssc.201900926.
- H. Chang, G. Lee, J. Jeong, **F. Schwarzhuber**, J. Zweck, J. Kim und D. H. Kim. „Influence of combinatory effects of STEM setups on the sensitivity of differential phase contrast imaging “. In: Micron (2019)

## Konferenzbeiträge

### Vorträge

- **F. Schwarzhuber**, P. Melzl, S. Pöllath und J. Zweck. „Performance of a new fast COM detector for differential phase contrast microscopy“. In: StEM Workshop at Ringberg Castle (2019). **Eingeladener Vortrag**
- **F. Schwarzhuber**, S. Pöllath, P. Melzl und J. Zweck. „Theoretical and experimental study on detection precision and imaging quality of a PSD based non-pixelated COM detector for DPC “. In: International Microscopy Congress IMC (Sydney, 9.-14. Sept. 2018). **Präsentierender Autor**
- **F. Schwarzhuber**, P. Melzl und J. Zweck. „First results with a non-pixelated and fast centre of mass detector for differential phase contrast microscopy (DPC)“. In: Dreiländertagung (Lausanne, 21-25 Aug. 2017). **Präsentierender Autor**
- **F. Schwarzhuber**, J. Wild, M. Lohr, R. Schregle und Josef Zweck. „Quantification of microscopic magnetic and/or electric fields by calibrated DPC measurements“. In: DPG Frühjahrstagung (Berlin, 15. - 20. März 2015). **Präsentierender Autor**

### Poster

- **F. Schwarzhuber**, S. Pöllath, P. Melzl, K. Müller-Caspary und J. Zweck. „Theoretical and experimental classification of the detection precision of a PSD based non-pixelated COM detector for DPC“. In: Microscopy Conference MC (Berlin, 01. - 05. September 2019). **Präsentierender Autor; Best Poster Award**
- **F. Schwarzhuber**, T. Beer und J. Zweck. „DPC measurements of local hysteresis loops on annealed cobalt thin films“. In: DPG Frühjahrstagung (Dresden, 19. - 24. März 2017). **Präsentierender Autor**
- **F. Schwarzhuber**, J. Wild und J. Zweck. „Direct determination of calibration factors for quantitative DPC measurements “. In: European Microscopy Congress EMC (Lyon, 28. Aug - 2. Sept. 2016). **Präsentierender Autor**
- T. Beer, **F. Schwarzhuber** und J. Zweck. „DPC measurements on annealed cobalt thin films “. In: European Microscopy Congress EMC (Lyon, 28. Aug - 2. Sept. 2016). **Präsentierender Autor**
- **F. Schwarzhuber**, J. Wild, M. Lohr, R. Schregle, B. Bauer und J. Zweck. „DPC measurements of local hysteresis loops on annealed cobalt thin films “. In: Microscopy Conference MC (Göttingen, 6.-11. Sept. 2015). **Präsentierender Autor**

# Danksagung

An dieser Stelle möchte ich mich ganz herzlich bei allen bedanken die mich bei dieser Dissertation wissenschaftlich und vor allem menschlich unterstützt haben! Ohne Euch und Eure Hilfe wäre diese Arbeit nicht möglich gewesen. Insbesondere möchte ich mich bei den folgenden Personen bedanken ...

*Joe Zweck.* Herzlichen Dank für die lehrreichen, interessanten und lustigen Jahre an deiner Gruppe! Ich werde daran immer gerne zurückdenken. Danke für die unzähligen Stunden in denen wir über meine Arbeit, die Physik und vieles andere diskutiert haben. Unvergessen bleiben auch die TEM-Wochenenden und unser (explosiver) Ausflug nach Jülich ;). Danke für alles!

*Simon Pöllath.* Vielen Dank für Deine Unterstützung und die schönen Jahre die wir gemeinsam an der Arbeitsgruppe, im gleichen Büro und auch außerhalb verbracht haben. Danke für Deine unschätzbare Hilfe und die unzähligen Stunden die Du mit der Programmierung des DPC-Grabber verbracht hast. Unsere Rundreise durch Australien werde ich nie vergessen. Danke!

*Johannes Wild und Benedikt Bauer.* Danke für die tolle Zeit die wir gemeinsam an der Arbeitsgruppe und auch außerhalb miteinander verbracht haben.

*Peter Melzl und Christopher Habenschaden.* Es hat mich sehr gefreut mit Euch gemeinsam an meinem Thema zu arbeiten. Danke für die vielen guten Einfälle die ihr dazu beigesteuert habt.

*Knut Müller-Caspary.* Vielen Dank für die Einladung an Deine Gruppe am Ernst-Ruska-Zentrum in Jülich und die Möglichkeit mit Dir zusammen meinen Detektor zu testen. Danke auch für Deine fachliche Hilfe und deine Unterstützung.

*der AG-Zweck.* Vielen Dank an alle (ehemaligen) Gruppenmitglieder für die freundschaftliche und kollegiale Atmosphäre.

*Gustl Buheitl.* Vielen Dank für die Entwicklung der Einleseelektronik und die zahlreichen lustigen Diskussionen.

*Magdalena Pflieger, Doris Meier, Claudia Zange, Sylvia Hrdina, Olga Ganicheva und Markus Hollnberger.* Vielen Dank für Eure große Hilfe und vor allem die schöne Zeit am Lehrstuhl Back/Wunderlich!

*Elisabeth Zolnowski und Robin Puchert.* Danke Euch beiden für die vielen – und manchmal sogar konstruktiven ;) – Diskussionen beim Feierabendbier! Natürlich auch für Eure Unterstützung und die schöne gemeinsame Zeit an der Uni!

*meiner Mutter, meiner Schwiegermutter und meiner Frau.* Vielen Dank für das Korrekturlesen dieser Arbeit! Ich kann mir vorstellen, dass das keine leichte Aufgabe war ;)

*meiner Schwiegerfamilie* Herzlichen Dank für Eure Unterstützung und die Aufnahme in die Familie! Danke an meine beiden Nichten Sophia und Amélie für die allzeit willkommene Ablenkung. Danke liebe Christine für Deine Hilfe bei der Überwindung der großen Analysis Krise von 2012 ;)!

*meiner Familie* Vielen lieben Dank, dass ihr mich immer unterstützt habt, sowohl im Studium, meiner Promotion und im Leben! Ohne Euch wäre diese Arbeit nicht möglich gewesen. Danke für Alles!

*meiner Frau Carolin* Herzlichen Dank liebe Caro, dass Du mich unterstützt und mir immer den Rücken freigehalten hast! Danke für deine Liebe, Hilfe und Geduld!