

Entwicklung einer optischen Fernfeldmethode zur Detektion von Nanopartikeln

Dissertation zur Erlangung des Doktorgrades der
Naturwissenschaften (Dr. rer. nat.)

vorgelegt von Sandra Krämer

Erstgutachter Prof. Dr. Peter J. Klar

Zweitgutachter Prof. Dr. Thomas Sure

Oktober 2023

Abstract

Nanoparticles offer an increasing number of different applications, for example in biology and medicine, where research is being performed on the transport of drugs through nanoparticles made of gold, among other things. In the semiconductor industry, the detection of defects and contaminations in the sub-wavelength range is of great importance in order to be able to estimate the quality of wafers. An universal and fast detection method is therefore of great interest. However, classical imaging techniques cannot resolve nanoparticles smaller than the diffraction limit. Established near-field optical methods are complex and time-consuming. Thus, there is a great interest in an easy-to-use far-field method.

The method of coherent Fourier scatterometry, although originally developed for periodic grating structures, shows great potential for detection of single particles. The study of different numbers of nanoparticles in specific geometric arrangements is not known in the literature. However, especially the distinction of different arrangements of nanoparticles is useful for medical research to detect the formation of clusters. In the semiconductor industry, directional defects can provide important hints for systematic process problems.

The present work covers this gap. Arrays of spherical nanoparticles such as lines, squares, triangles or L shaped arrangements are investigated. The dimensions of these assemblies are in the order of or smaller than the Airy diameter. Correlations between particle geometries and intensity distributions in the Fourier plane are observed, allowing distinction between the different assemblies. In addition, a method is developed to determine the orientation of the connecting axis of neighboring particles.

Moreover, metallic nanostructures are investigated. These top-down fabricated nanostructures consist of gold in three different thicknesses. In addition to the geometric arrangements already mentioned above, these samples also contain spirals. These structures are successfully distinguished and correlations are found between the contrast of the intensity values in the Fourier plane and the thickness of the structures.

Zusammenfassung

Nanopartikel haben eine steigende Anzahl verschiedener Anwendungen, zum Beispiel in der Biologie und Medizin, wo unter anderem an dem Transport von Medikamenten durch Nanopartikel aus Gold geforscht wird. In der Halbleiterindustrie ist der Nachweis von Defekten und Verunreinigungen im Subwellenlängenbereich von großer Bedeutung, um die Qualität von Wafern beurteilen zu können. Eine universelle, schnelle Nachweismethode ist somit von großem Interesse. Klassische bildgebende Verfahren können jedoch Nanopartikel, die kleiner als die Beugungsgrenze sind, nicht auflösen. Die etablierten optischen Nahfeldverfahren sind komplex und zeitaufwendig. Somit besteht ein großes Interesse an einem einfach handhabbaren Fernfeldverfahren.

Die Methode der kohärenten Fourier Scatterometrie zeigt, obwohl sie ursprünglich für periodische Gitterstrukturen entwickelt wurde, ein großes Potential zu Detektion von einzelnen Partikeln. Die Untersuchung von unterschiedlich vielen Nanopartikeln in bestimmten geometrischen Anordnungen ist in der Literatur nicht bekannt. Insbesondere die Unterscheidung verschiedener Anordnungen von Nanopartikeln ist für die medizinische Forschung jedoch hilfreich, um die Bildung von Clustern zu erkennen. In der Halbleiterindustrie können richtungsabhängige Defekte wichtige Hinweise auf systematische Prozessfehler liefern.

Die vorliegende Arbeit schließt diese Lücke. Anordnungen von sphärischen Nanopartikeln wie Linien, Quadrate, Dreiecke oder L's werden untersucht. Die Abmessungen dieser Strukturen liegen in der Größenordnung des Airy Durchmessers oder sind kleiner als dieser. Korrelationen zwischen Partikelgeometrien und Intensitätsverteilung in der Fourier-Ebene werden nachgewiesen, die eine Unterscheidung der verschiedenen Strukturen ermöglichen. Außerdem wird eine Methode entwickelt, mit welcher die Orientierung der Verbindungsachse benachbarter Partikel bestimmt werden kann.

Darüber hinaus werden metallische Nanostrukturen untersucht. Diese bestehen aus auf Silizium aufgedampftem Gold in drei verschiedenen Dicken. Diese Proben weisen neben den oben bereits erwähnten geometrischen Anordnungen auch Spiralen auf. Auch diese Strukturen werden erfolgreich unterschieden und Zusammenhänge zwischen dem Kontrast der Intensitätswerte in der Fourier-Ebene und der Dicke der Strukturen werden gefunden.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	6
2	Theoretische Grundlagen	9
2.1	Beugungstheorie des Lichtes	9
2.1.1	HUYGENS-KIRCHHOFF-Beugungsintegral	9
2.1.2	FRESNEL-Beugung	14
2.1.3	FRAUNHOFER-Beugung	15
2.2	Fourier-Optik	17
2.2.1	Grundlagen der Fourier-Theorie	17
2.2.2	Verknüpfung von Fourier-Theorie und Beugung	21
2.2.3	Optische Abbildung	22
2.3	Streuung von Licht an kleinen Teilchen	29
2.3.1	Simulation der Streuung an Einzelpartikeln	30
3	Experimentelle Methoden	36
3.1	Experimenteller Aufbau zur kohärenten Fourier Scatterometrie	36
3.1.1	Ein-Kamera-System	36
3.1.2	Zwei-Kamera-System	40
3.2	Proben	45
3.2.1	Herstellung der metallischen Nanostrukturen	45
3.2.2	Herstellung der geometrischen Anordnungen sphärischer Gold-Nanopartikel	49
4	Ergebnisse	56
4.1	Detektion von Einzelpartikeln	56
4.1.1	Vergleich von Simulation und Experiment	56
4.2	Messung metallischer Nanostrukturen in verschiedenen Dicken	64
4.3	Unterscheidung von geometrisch angeordneten Nanopartikeln anhand des Pupillenbildes	71
4.3.1	Verbesserung durch Fourier-Transformation	78

4.3.2	Messung mit kleinerer Apertur	87
5	Zusammenfassung und Ausblick	90

Kapitel 1

Einleitung

In unserer modernen Welt sind Halbleiterchips die zentralen Bausteine aller digitalen Geräte und werden für Autos, Waschmaschinen, Computer und vieles mehr benötigt. Gemäß dem Moore'schen Gesetz [1] verdoppelt sich alle 24 Monate die Transistordichte auf Halbleiterchips. Hierdurch kann mehr Rechenleistung auf einem kleineren Chip bereitgestellt werden. Also werden die Strukturen in der Halbleiterindustrie immer kleiner. Hiermit steigen auch die Anforderungen an die benötigte Messtechnik. Insbesondere die Prüfung von Verunreinigungen ist ein wesentlicher Faktor [2]. Eine Verunreinigung durch Nanopartikel kann zu so genannten Killerdefekten führen, die die Funktion des Chips beeinträchtigen oder zum Totalversagen führen [3]. Auch in der Medizin spielen Nanopartikel eine immer größere Rolle. Goldnanopartikel weisen eine gute Biokompatibilität auf [4] und verfügen über immenses Potential in vielen Feldern der Medizin [5–7]. Speziell der Transport von Medikamenten durch Goldnanopartikel wird erforscht, denn die Goldpartikel können die Blut-Hirnschranke durchstoßen und damit diesen Weg für Medikamente ermöglichen, die sonst nicht durchdringen könnten [6, 8, 9]. Dies eröffnet neue Möglichkeiten, beispielsweise für die Behandlung von Krankheiten des Gehirns [10].

Um die oben angesprochenen Herausforderungen und Möglichkeiten durch Nanopartikel händeln zu können, bedarf es einer zuverlässigen Methode zu deren Detektion. Das Messsystem sollte den folgenden Anforderungen genügen: schnell, nichtinvasiv und eine hohe Empfindlichkeit. Insbesondere im industriellen Umfeld ist die benötigte Zeit für einen Prozess direkt mit Kosten verbunden. Und auch im Bereich der biomedizinischen Anwendungen sind auf Grund von Diffusionsprozessen kurze Integrationszeiten bei der Nanopartikel-Detektion von Vorteil. Außerdem sind hohe Beleuchtungsintensitäten zu vermeiden, da hierdurch insbesondere organische Proben thermisch geschädigt werden können [11].

Eine etablierte Methode, die das Streuverhalten von Partikeln zu deren Detektion ausnutzt, ist die Dunkelfeld-Mikroskopie. Hierbei wird die Probe unter einem Winkel beleuchtet, sodass die beiden Strahlengänge für Beleuchtung und Detektion getrennt sind [12]. Dies stellt sicher, dass nur von der Probe gestreutes Signal detektiert wird. Aus diesem Grund wird - insbesondere bei kleinen Partikeln - eine hohe Beleuchtungsintensität benötigt [13]. Die hohen Intensitäten führen allerdings häufig zu erheblichen thermischen Belastungen [14].

Die Rasterelektronenmikroskopie (REM, engl. scanning electron microscope, SEM) erlaubt die Abbildung von Nanopartikeln mit hoher Tiefenschärfe und Genauigkeit [15]. Jedoch ist diese Methode sehr aufwendig, da sie nur unter Vakuumbedingungen funktioniert. Ebenfalls eine hohe Genauigkeit liefert die Methode der spitzenverstärkten Raman-Spektroskopie (engl. tip-enhanced Raman spectroscopy, TERS) [16], aber auch diese Methode ist komplex und zeitaufwendig.

Eine Messmethode, die den oben genannten Anforderungen eher entspricht, ist die Kohärente Fourier Scatterometrie (engl. Coherent Fourier Scatterometry, CFS). Hierbei wird das experimentell leichter zugängliche Fernfeld ausgenutzt. Obwohl diese Methode ursprünglich für die Messung und Rekonstruktion periodischer Strukturen entwickelt wurde [17–20], zeigt sie großes Potential für die Detektion einzelner Partikel [21]. CFS wertet die Austrittspupille eines Mikroskopobjektives mit einer hohen Numerischen Apertur (NA) aus. Die Methode misst im Hellfeld: die kohärente Beleuchtung und die Detektion des rückgestreuten Lichtes erfolgt mit dem selben Objektiv. Ein Partikel im Fokus erzeugt Aberrationen, auch wenn er eine Größe unterhalb der Auflösungsgrenze aufweist. Diese Aberrationen können in der Wellenfront der Austrittspupille über ein Relay-System beobachtet werden. Durch die hohe NA wird gewährleistet, dass ein großer Winkelbereich des rückgestreuten Lichtes eingesammelt wird [22].

In der Literatur gibt es bereits mehrere Berichte über den Nachweis von Defekten oder die Detektion von Einzelpartikeln mittels CFS [21,23,24], jedoch ohne Rücksicht auf richtungsabhängige Eigenschaften. Im Rahmen dieser Arbeit soll über die Messung von geometrisch strukturierten Proben ein neuartiger Beitrag auf diesem Gebiet geleistet werden. Die Unterscheidung von verschiedenen Nanopartikel-Clustern geht über die reine Detektion hinaus und ist zum Beispiel in der Halbleitertechnologie nötig, um systematische Prozessfehler erkennen zu können.

Diese Arbeit erhebt den Anspruch eines Proof of Concept an die Methode CFS zur Unterscheidung verschiedener geometrischer Strukturen. Die mit verschiedenen geometrischen Mustern versehenen Proben werden im Rahmen des Herstellungspro-

zesses mit Hilfe von SEM Aufnahmen genau charakterisiert, sodass die CFS-Signale anhand dieser Referenzen interpretiert werden können. Bevor eine Messmethode zur detaillierten Rekonstruktion von Strukturparametern entwickelt werden kann, ist es zunächst wichtig, die generellen Korrelationen zwischen der Geometrie der Proben und der Intensitätsverteilung in der Austrittspupille zu verstehen.

In der folgenden Arbeit werden zunächst die benötigten theoretischen Grundlagen gelegt, welche zum Verständnis der Funktionsweise der CFS und zur anschließenden Auswertung der Messsignale nötig sind. Dazu wird die mathematische Beschreibung der Streuung an sphärischen Einzelpartikeln hergeleitet. Anschließend werden die experimentellen Methoden dargestellt. Hierzu zählen eine ausführliche Beschreibung der verwendeten Versuchsaufbauten und die Beschreibung der Probenherstellung. Schließlich werden die Messungen der verschiedenen Probengeometrien präsentiert und mit verschiedenen Methoden ausgewertet. Abgeschlossen wird diese Arbeit mit einem Überblick über die Ergebnisse und einem Ausblick.

Kapitel 2

Theoretische Grundlagen

In diesem Kapitel werden die Grundlagen, welche zum Verständnis der Messungen nötig sind, hergeleitet und erläutert. Es folgen drei Abschnitte, in denen auf die Beugungstheorie des Lichtes, Fourier-Optik und die Physik zur Streuung an kleinen Teilchen eingegangen wird.

2.1 Beugungstheorie des Lichtes

Beugung beschreibt die Ablenkung von Wellen an einem Hindernis, welches die gleiche oder eine kleinere Ausdehnung als die Wellenlänge des Lichtes besitzt [25, S.460]. Diese Beugungseffekte beschreiben Abweichungen der Lichtstrahlen von einem geradlinigen Strahlengang, welche nicht auf eine Spiegelung oder Brechung zurückgeführt werden können. Das Phänomen der Beugung wird bei *allen* Wellenvorgängen beobachtet. Hierbei tritt Wellenintensität in den geometrischen Schattenraum ein [26, S.332].

In den folgenden Abschnitten wird zunächst allgemein das HUYGENS-KIRCHHOFF-Beugungsintegral hergeleitet. Anschließend werden zwei Spezialfälle dieses Integrals betrachtet: die Fresnel-Beugung für das Nahfeld und die Fraunhofer-Beugung für das Fernfeld.

2.1.1 HUYGENS-KIRCHHOFF-Beugungsintegral

Um die Beugung des Lichtes zu erklären, muss man dessen Wellennatur berücksichtigen.

Christian HUYGENS entwickelte 1690 ein erstes Prinzip zur Wellenausbreitung von Licht, welches auch heute noch häufig Anwendung findet [25, S.43]. Es besagt, dass

wobei

$$\frac{\omega}{u} = \frac{n\omega}{c} = \frac{2\pi}{\lambda} = k \quad (2.3)$$

den Wellenvektor beschreibt. E und E' seien nun Lösungen der Wellengleichung mit dem gleichen ω . Es gilt der GREEN'sche Satz [26, S.33]

$$\int_V d^3r (E\Delta E' - E'\Delta E) = \int_{\partial V} (E\nabla E' - E'\nabla E) \cdot d\mathbf{f} \quad (2.4)$$

Mit der Wellengleichung erhält man

$$E\Delta E' - E'\Delta E = \left(-\frac{\omega^2}{u^2}\right) (EE' - E'E) = 0 \quad (2.5)$$

und es bleibt:

$$\int_{\partial V} (E\nabla E' - E'\nabla E) \cdot d\mathbf{f} = 0 \quad (2.6)$$

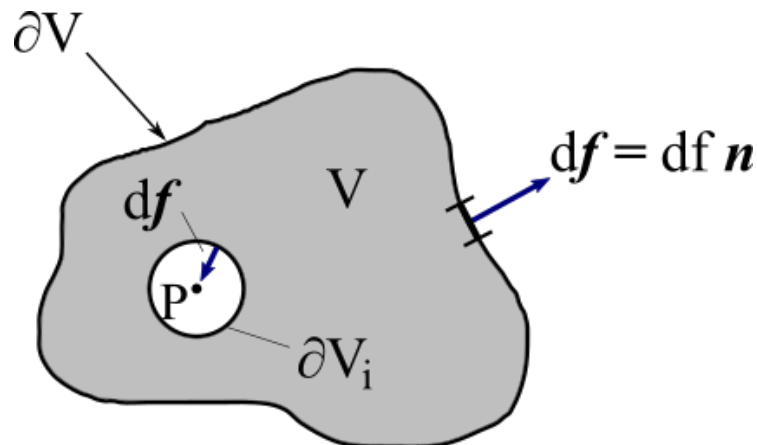


Abbildung 2.2: Integrationsgebiet zur Herleitung der KIRCHHOFF-Formel. In Anlehnung an [26, S.334]

Abbildung 2.2 zeigt exemplarisch ein Volumen V mit Rand ∂V , über welches integriert wird. Die Kugelwelle E'

$$E' = \frac{e^{ikr}}{r} \quad (2.7)$$

soll vom Punkt P ausgehen und soll lediglich als mathematische Hilfsgröße zur Bestimmung des Feldes E dienen. Außerdem liege der Koordinatenursprung innerhalb von V . Da E' für $r \rightarrow 0$ divergiert, wird ein kleines Volumen V_i um den Ursprung

ausgeschlossen. Eingesetzt erhalten wir

$$\left(\int_{\partial V} + \int_{\partial V_i} \right) \left(E \nabla \frac{e^{ikr}}{r} - \frac{e^{ikr}}{r} \nabla E \right) df \quad , \quad (2.8)$$

wobei mit der Wahl der Vorzeichen berücksichtigt wurde, dass df vom Integrationsvolumen ausgehend immer nach außen zeigt. Für das Integral über V_i gilt nun:

$$\int_{\partial V_i} \frac{e^{ikr}}{r} \nabla E \cdot r^2 \sin(\theta) d\theta d\phi \rightarrow 0, \quad \text{wenn } r \rightarrow 0 \quad . \quad (2.9)$$

Der erste Term lässt sich folgend betrachten:

$$\begin{aligned} \nabla \frac{e^{ikr}}{r} &= \left(-\frac{1}{r^2} + \frac{ik}{r} \right) e^{ikr} \vec{e}_r \\ \Rightarrow \int_{\partial V_i} E \nabla \frac{e^{ikr}}{r} \cdot df &= \int_{\partial V_i} E \left(-\frac{1}{r^2} + \frac{ik}{r} \right) e^{ikr} \vec{e}_r df \\ &= \int_{\partial V_i} E (ikr - 1) e^{ikr} \sin(\theta) d\theta d\phi \\ &\rightarrow E(P) \cdot 4\pi, \quad \text{wenn } r \rightarrow 0 \quad . \end{aligned}$$

Zusammengefasst erhält man schließlich folgende Formel von KIRCHHOFF:

$$E(P) = \frac{1}{4\pi} \int_{\partial V} \left(\frac{e^{ikr}}{r} \nabla E - E \nabla \frac{e^{ikr}}{r} \right) df \quad (2.10)$$

Die Feldstärke im Punkt P erhält man also aus dem Integral über die Oberfläche eines beliebigen Volumens, das P enthält. Die rechte Seite kann so interpretiert werden, dass sie von Kugelwellen bewirkt wird, welche von der Begrenzung ausgehen und in P zu $E(P)$ interferieren [26, S.335], was als ein Hinweis auf das HUYGENS'sche Prinzip verstanden werden kann.

Gleichung 2.10 direkt zu berechnen ist jedoch schwierig, da hierfür E und ∇E auf dem Rand und der Öffnung des Schirms bekannt sein müssen, was in der Regel nicht der Fall ist. Daher bedient man sich folgender Näherungen [26, S.335]:

- $E, \nabla E = 0$ auf dem Rand des Schirms
- $E, \nabla E$ in der Schirmöffnung so, als wäre der Schirm nicht vorhanden

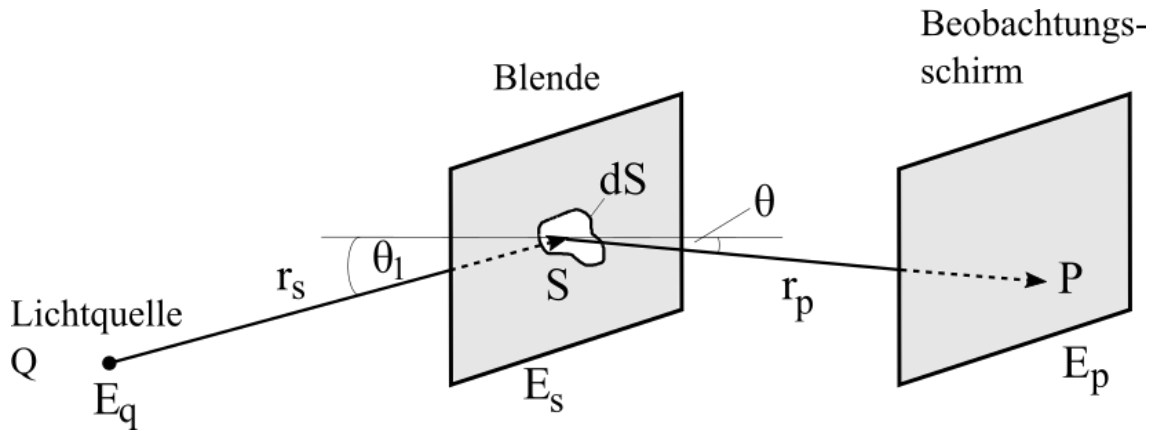


Abbildung 2.3: Illustration zum KIRCHHOFF-HUYGENS-Beugungsintegral.

Die nun zu betrachtende Geometrie ist in *Abbildung 2.3* dargestellt. Hierbei bezeichnet E_q die Feldstärke der Quelle, r_s den Abstand der Quelle zur Blende, E_s die Feldstärke im Punkt S der Blende, r_p den Abstand der Blende zum Beobachtungspunkt, und E_p die elektrische Feldstärke im Beobachtungspunkt P . Eine punktförmige Lichtquelle Q sendet kugelförmige Wellen aus, welche an der Stelle S auf die Blende treffen.

Die Quelle sendet Kugelwellen aus, also wird die Feldstärke im Punkt S durch

$$E_S \propto \frac{E_q}{r_s} \cdot e^{ikr_s} \quad (2.11)$$

ausgedrückt. Dies bedeutet:

$$\nabla_{r_s} E_S = \frac{d}{dr_s} \left(\frac{E_q}{r_s} \cdot e^{ikr_s} \right) \cdot \frac{\vec{r}_s}{r_s} = E_q \left(\frac{-1}{r_s^2} + \frac{ik}{r_s} \right) e^{ikr_s} \cdot \frac{\vec{r}_s}{r_s} \quad (2.12)$$

Setzt man dies in *Gleichung 2.10* ein, so ergibt sich:

$$E(P) \propto \frac{E_q}{4\pi} \int_S \frac{e^{ik(r_s+r_p)}}{r_s \cdot r_p} \left(\left(\frac{-1}{r_s} + ik \right) \cos(\theta_1) - \left(\frac{-1}{r_p} + ik \right) \cos(\theta) \right) df \quad (2.13)$$

Man kann von

$$r_s, r_p \gg \lambda, \quad \text{bzw.} \quad r_s^{-1}, r_p^{-1} \ll k = \frac{2\pi}{\lambda} \quad (2.14)$$

ausgehen. Man erkennt, dass in obigem Integral der Imaginärteil dominiert und kann unter Einführung des Neigungsfaktors Ψ [22, S.422]

$$\Psi = \frac{\cos(\theta) + \cos(\theta_1)}{2} \quad (2.15)$$

sowie unter Einführung eines Proportionalitätsfaktors A als finale Form des HUYGENS-KIRCHHOFF-Beugungsintegral schreiben

$$E(P) \approx -\frac{i \cdot A}{\lambda} \iint \frac{\exp(ik(r_s + r_p))}{r_s \cdot r_p} \cdot \Psi \, df \quad . \quad (2.16)$$

2.1.2 FRESNEL-Beugung

Die FRESNEL-Beugung ist ein Spezialfall der KIRCHHOFF-Beugung. Trifft man bestimmte Vereinfachungen und Annahmen, so ergibt sich das FRESNELSche Beugungsintegral aus *Gleichung 2.16*.

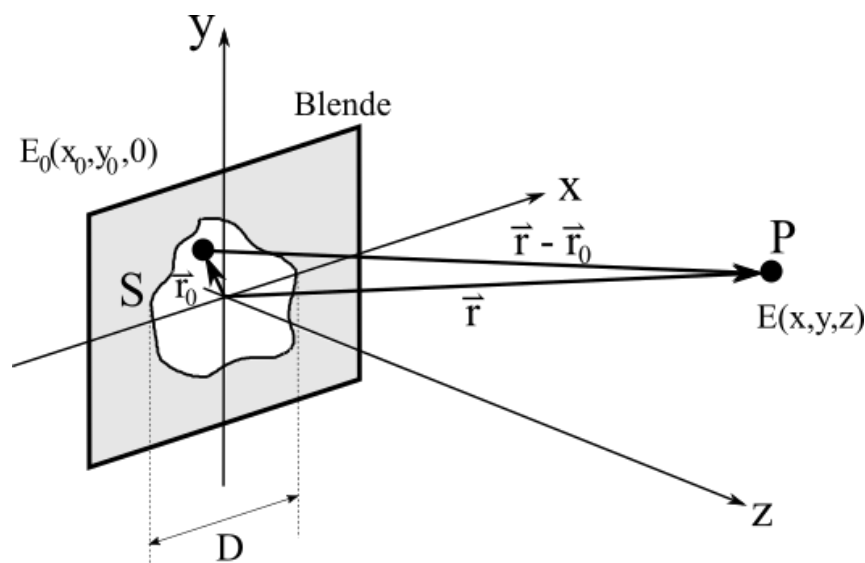


Abbildung 2.4: *Illustration zum FRESNELSchen-Beugungsintegral.*

Die hierfür benötigte Geometrie ist in *Abbildung 2.4* dargestellt. Ab einem gewissen Abstand $z \ll D$ kann man die folgenden Näherungen annehmen:

Der Betrag des Abstandes

$$|\vec{r} - \vec{r}_0| = \sqrt{(x - x_0)^2 + (y - y_0)^2 + (z - 0)^2} \quad (2.17)$$

kann mit einer TAYLOR-Reihe entwickelt, und nach dem quadratischen Term abgebrochen werden, sodass sich ergibt:

$$|\vec{r} - \vec{r}_0| \approx |\vec{r}| + \frac{x_0^2 + y_0^2}{2|\vec{r}|} - \frac{x \cdot x_0 + y \cdot y_0}{|\vec{r}|} \quad . \quad (2.18)$$

Steht $|\vec{r} - \vec{r}_0|$ im Nenner, so genügt sogar nur der erste Term aus *Gleichung 2.18*. Da

in dieser Näherung paraxiale Strahlen betrachtet werden, kann man des Weiteren schreiben, dass

$$|\vec{r}| = z \quad . \quad (2.19)$$

Für die Exponentialfunktion jedoch ist diese Näherung zu oberflächlich, da bereits kleine Änderungen von r eine große Änderung der Phase bewirken. Daher muss hier mit

$$|\vec{r}| = z \cdot \sqrt{1 + \frac{x^2 + y^2}{z^2}} \approx z + \frac{x^2 + y^2}{2z} \quad (2.20)$$

gerechnet werden. Außerdem beträgt hier der Neigungsfaktor Ψ eins, da nur achsennahe Strahlen berücksichtigt werden.

Arbeitet man nun alle oben genannten Vereinfachungen in *Gleichung 2.16* ein und berücksichtigt die Vorfaktoren, so erhält man für das FRESNELSche Beugungsintegral

$$E(\vec{r}) = -\frac{in}{\lambda \cdot z} \cdot e^{ikz} \cdot e^{i\pi \frac{x^2 + y^2}{\lambda \cdot z}} \iint_A E_0(\vec{r}_0) \cdot e^{i\pi \frac{x_0^2 + y_0^2}{\lambda \cdot z}} \cdot e^{-ik \frac{x \cdot x_0 + y \cdot y_0}{z}} dx_0 dy_0 \quad . \quad (2.21)$$

2.1.3 FRAUNHOFER-Beugung

Das FRAUNHOFER-Beugungsintegral folgt aus weiteren Vereinfachungen der FRESNEL-Beugung. Das Beugungsbild gemäß der FRAUNHOFER-Beugung ist die Fernfeldnäherung des FRESNELSchen Beugungsintegrals aus obigem Abschnitt [28, Abschnitt 4.3].

Für diese Näherung wird angenommen, dass die einfallenden und gebeugten Wellen eben sind, was theoretisch unendlich weit entfernte Quellen und Beobachtungspunkte voraussetzt. Folglich ist das Fernfeld experimentell leichter zugänglich als das Nahfeld.

Da die Struktur des Beugungsbildes nun nicht mehr von der Entfernung z zum Schirm abhängt [26, S.339], kann man in eine Winkelbeschreibung übergehen:

$$\cos(\alpha) = \frac{x}{|\vec{r}|} \quad \cos(\beta) = \frac{y}{|\vec{r}|} \quad (2.22)$$

Setzt man dies nun in *Gleichung 2.18* ein, so ergibt sich

$$|\vec{r} - \vec{r}_0| \approx |\vec{r}| + \frac{x_0^2 + y_0^2}{2|\vec{r}|} - (\cos(\alpha) \cdot x_0 + \cos(\beta) \cdot y_0) \quad . \quad (2.23)$$

Da wir in dieser Näherung nur große Abstände, und somit auch Werte von $|\vec{r}|$ betrachten, kann man den quadratischen Term vernachlässigen, sodass die Phase im Exponenten der e-Funktion nun lediglich linear von x_0 und y_0 abhängt:

$$|\vec{r} - \vec{r}_0| \approx |\vec{r}| - (\cos(\alpha) \cdot x_0 + \cos(\beta) \cdot y_0) \quad . \quad (2.24)$$

Fasst man die obigen Überlegungen zur FRAUNHOFER-Näherung zusammen, so erhält man das FRAUNHOFER-Beugungsintegral:

$$E(\alpha, \beta, z) = -\frac{i}{\lambda \cdot |\vec{r}|} \cdot \frac{z}{|\vec{r}|} \cdot e^{ik|\vec{r}|} \quad (2.25)$$

$$\cdot \iint_A E_0(x_0, y_0, z) \cdot e^{-ik \cdot (\cos(\alpha)x_0 + \cos(\beta)y_0)} dx_0 dy_0$$

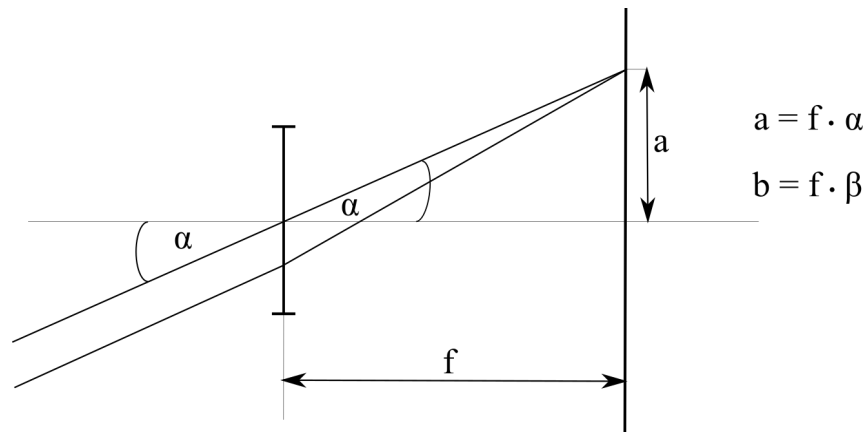


Abbildung 2.5: *Illustration zum FRAUNHOFERschen-Beugungsintegral. Die Angaben gelten für kleine Winkel.*

Mit Hilfe von *Abbildung 2.5* fällt es leicht, das obige Integral auf die Koordinaten der Ebene des Schirmes umzuschreiben. Man erhält als äquivalente Darstellung:

$$E(a, b, z) = -\frac{i}{\lambda \cdot z} \cdot e^{ikz} \cdot e^{\pi i \frac{z}{\lambda \cdot f^2} \cdot (a^2 + b^2)} \quad (2.26)$$

$$\cdot \iint_A E_0(x_0, y_0, 0) \cdot e^{-ikf^{-1} \cdot (a \cdot x_0 + b \cdot y_0)} dx_0 dy_0 \quad .$$

Die Fraunhofer-Näherung entspricht einer Fernfeld-Näherung und ist gültig, wenn die Blende klein und der Beobachtungsabstand groß ist. Da obiges Beugungsintegral im Wesentlichen der Fouriertransformierten der Blende entspricht, wird anstelle des Begriffes Fraunhofer-Beugung auch die Bezeichnung Fouier-Optik verwendet.

2.2 Fourier-Optik

Der nachfolgende Abschnitt befasst sich mit Fourier-Optik und schafft ein grundlegendes Verständnis, um später die experimentellen Ergebnisse aus wellenoptischer Sicht nachvollziehen zu können.

2.2.1 Grundlagen der Fourier-Theorie

Die Theorie der Fourier-Reihen wurde von J. FOURIER (1768-1839) entwickelt, als er versuchte, die Wärmeleitungsgleichung zu lösen [29]. Ihr wesentliches Prinzip beruht auf der Zerlegung eines periodischen Vorgangs in elementarere periodische Vorgänge. L^2_{per} ist die Menge aller \mathbb{C} -wertigen, RIEMANN-integrierbaren und 2π -periodischen Funktionen auf dem Intervall $[-\pi, \pi]$. Sei nun $\phi_n(x)$ ein Orthonormalsystem in L^2_{per} , dann gilt mit dem L^2 -Skalarprodukt:

$$\langle \phi_n, \phi_m \rangle_{L^2} = \delta_{nm} \quad . \quad (2.27)$$

Ein mögliches und häufig genutztes Orthonormalsystems lautet:

$$\phi_n(x) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} e^{inx} \quad . \quad (2.28)$$

Und so heißen

$$c_n := c_n(f(x)) := \langle f(x), \phi_n(x) \rangle_{L^2} \quad (2.29)$$

die *Fourier-Koeffizienten* der Funktion $f(x)$ bezüglich ϕ_n . Sie können als die Amplituden der jeweiligen Frequenzen n interpretiert werden.

Der formale Ausdruck

$$\sum_{n \in \mathbb{Z}} c_n \phi_n(x) \quad (2.30)$$

heißt *Fourier-Reihe* der Funktion f . Ist f stetig, 2π -periodisch und von beschränkter Schwankung, so konvergiert die Fourier-Reihe mit dem SATZ VON JORDAN sogar gleichmäßig gegen f [30].

Allgemeiner kann man für Funktionen mit einer Periodendauer von

$$T = \frac{2\pi}{\omega} \quad (2.31)$$

schreiben [31]:

$$c_n = \frac{1}{T} \cdot \int_{-\frac{T}{2}}^{\frac{T}{2}} f(x) \cdot \exp(-in\omega x) dx \quad . \quad (2.32)$$

Für eine Funktion, welche keinerlei Periodizität beinhaltet, geht die Periodendauer T gegen unendlich. Betrachtet man *Gleichung 2.31*, so entspräche dies Frequenzen ω , die infinitesimal klein werden. Hier geht nun die Summe aus *Gleichung 2.30* in ein Integral über, und aus den zuvor noch einzelnen Fourier-Koeffizienten wird eine stetige Funktion, die so genannte Fourier-Transformierte:

$$\mathcal{F}(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} f(x) \cdot \exp(-i\omega x) dx \quad . \quad (2.33)$$

Mit einer Fourier-Transformation wechselt man aus dem realen Raum in den reziproken Raum.

Die *inverse Fourier-Transformation* lautet wie folgt ([32]):

$$f(x) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \mathcal{F}(\omega) \cdot \exp(i\omega x) d\omega \quad . \quad (2.34)$$

Nun wird noch kurz das Faltungstheorem erläutert. Seien f_1 und f_2 zwei Funktionen auf \mathbb{R}^n . Ihre Faltung ($f_1 \otimes f_2$) ist dann definiert als [32]

$$(f_1 \otimes f_2)(x) := \int_{\mathbb{R}^n} f_1(x - \xi) f_2(\xi) d\xi^n \quad . \quad (2.35)$$

Die Fourier-Darstellung der Faltung führt zum Faltungstheorem:

$$\mathcal{F}(f_1 \otimes f_2)(k) = \mathcal{F}(f_1)(k) \cdot \mathcal{F}(f_2)(k) \quad , \quad \forall k \in \mathbb{R}^n \quad (2.36)$$

Man erkennt, dass eine Faltung im Ortsraum einer Multiplikation im Fourier-Raum entspricht. In einem späteren Abschnitt wird dies nützlich sein, denn eine optische Abbildung lässt sich mathematisch durch die Faltung der Intensitätsverteilung des Objektes mit einer entsprechenden Punktbildfunktion des Objektivs beschreiben (siehe *Unterabschnitt 2.2.3*).

Umgekehrt kann die Fourier-Transformierte des Produktes von f_1 und f_2 als Faltung ihrer Fourier-Transformierten ausgedrückt werden:

$$\mathcal{F}(f_1) \otimes \mathcal{F}(f_2)(k) = \mathcal{F}(f_1 \cdot f_2)(k) \quad , \quad \forall k \in \mathbb{R}^n \quad . \quad (2.37)$$

Zuletzt sei noch auf die schnelle Fourier-Transformation (engl.: *fast Fourier transform*, FFT) eingegangen. Diese ist ein Algorithmus, mit dem man die diskrete Fourier-Transformation (DFT) eines zeitdiskreten Signals schneller und effizienter berechnen kann. Um den FFT-Algorithmus korrekt herzuleiten, muss zunächst die DFT näher betrachtet werden.

Um Fourier-optische Rechnungen auf einem Computer realisieren zu können, muss die oben beschriebene kontinuierliche Fourier-Transformation diskretisiert werden. Die Funktion $f(x)$ muss abgetastet werden, sodass im Gegensatz zur analytischen Fourier-Transformation nur noch eine endliche Anzahl N an Datenpunkten in Betracht gezogen wird:

$$f(x) \rightarrow f(m\Delta x) \rightarrow \tilde{f}(m) \quad . \quad (2.38)$$

Das Integral in *Gleichung 2.33* kann nun durch eine Riemann'sche Summe angenähert werden [32, S.18], wobei zu beachten ist, dass ω von Δx abhängt:

$$\int_{-\infty}^{\infty} f(x) \exp(-i\omega x) dx \rightarrow \sum_{m=-N/2}^{N/2-1} \tilde{f}(m) \exp[-i\omega(\Delta x)m\Delta x] \Delta x \quad . \quad (2.39)$$

Die Konvention für den Frequenzbereich f_x ist die Aufteilung in N Frequenzkoordinaten mit gleichem Abstand [33]:

$$f_x \rightarrow \frac{q}{N\Delta x}, \text{ mit } q = -\frac{N}{2}, \dots, \frac{N}{2} - 1 \quad . \quad (2.40)$$

Hierbei nimmt q die selben Werte an wie m , Raum- und Frequenzkoordinaten verfügen über die gleiche Anzahl an Elementen. Setzen wir dies nun in den exponentiellen Kern von *Gleichung 2.39* ein, so erhalten wir

$$\exp[-i\omega(\Delta x)m\Delta x] = \exp[-i2\pi f_x m\Delta x] = \exp\left[-i2\pi \frac{q}{N\Delta x} m\Delta x\right]$$

und damit als finale Form zur mathematischen Beschreibung der DFT:

$$\mathcal{F}(q) = \sum_{m=-N/2}^{N/2-1} \tilde{f}(m) \exp\left[-i2\pi \frac{qm}{N}\right] \quad . \quad (2.41)$$

Um den Rechenaufwand und benötigten Speicher der DFT zu reduzieren, teilt man die DFT mit N Elementen auf zwei Transformationen mit $N/2$ Elementen auf:

$$\begin{aligned}
& \sum_{m=-N/2}^{N/2-1} \tilde{f}(m) \exp \left[-i2\pi \frac{qm}{N} \right] \\
&= \sum_{m=-N/2}^{-1} \tilde{f}(m) \exp \left[-i2\pi \frac{qm}{N} \right] + \sum_{m=0}^{N/2-1} \tilde{f}(m) \exp \left[-i2\pi \frac{qm}{N} \right] \\
&= \sum_{m=0}^{N/2-1} \tilde{f} \left(m + \frac{N}{2} \right) \exp \left[-i2\pi \frac{q}{N} \left(m + \frac{N}{2} \right) \right] + \sum_{m=0}^{N/2-1} \tilde{f}(m) \exp \left[-i2\pi \frac{qm}{N} \right] \\
&= \sum_{m=0}^{N/2-1} \left\{ \tilde{f}(m) \exp \left[-i2\pi \frac{qm}{N} \right] + \tilde{f} \left(m + \frac{N}{2} \right) \exp \left[-i2\pi \frac{q}{N} \left(m + \frac{N}{2} \right) \right] \right\} \quad (2.42)
\end{aligned}$$

Nun sortieren wir die Terme in gerade und ungerade Anteile:

$$\begin{aligned}
\mathcal{F}_{2q'} &= \sum_{m=0}^{N/2-1} \left\{ \tilde{f}(m) \exp \left[-i2\pi \frac{m}{N} 2q' \right] + \tilde{f} \left(m + \frac{N}{2} \right) \right. \\
&\quad \left. \cdot \exp \left[-i2\pi \frac{m}{N} 2q' \right] \underbrace{\exp \left[-i\pi 2q' \right]}_{=1} \right\} \quad (2.43)
\end{aligned}$$

$$\mathcal{F}_{2q'} = \sum_{m=0}^{N/2-1} \left\{ \left(\tilde{f}(m) + \tilde{f} \left(m + \frac{N}{2} \right) \right) \exp \left[-i2\pi \frac{m}{N} 2q' \right] \right\} \quad (2.44)$$

$$\begin{aligned}
\mathcal{F}_{2q'+1} &= \sum_{m=0}^{N/2-1} \left\{ \tilde{f}(m) \exp \left[-i2\pi \frac{m}{N} (2q' + 1) \right] + \tilde{f} \left(m + \frac{N}{2} \right) \right. \\
&\quad \left. \cdot \exp \left[-i2\pi \frac{m}{N} (2q' + 1) \right] \underbrace{\exp \left[-i\pi (2q' + 1) \right]}_{=-1} \right\} \quad (2.45)
\end{aligned}$$

$$\mathcal{F}_{2q'+1} = \sum_{m=0}^{N/2-1} \left\{ \left(\tilde{f}(m) - \tilde{f} \left(m + \frac{N}{2} \right) \right) \exp \left[-i2\pi \frac{m}{N} (2q' + 1) \right] \right\} \quad (2.46)$$

Also wurde die DFT mit N Elementen in zwei DFTs mit jeweils $N/2$ Elementen aufgeteilt. Bei geraden Elementen ergibt sich der Koeffizient aus der Summe zweier ursprünglicher Koeffizienten, bei ungeraden Elementen aus deren Differenz. Die grundsätzliche Idee der FFT ist, die Transformationen immer weiter zu halbieren,

bis sie schließlich nur noch aus einer Zahl bestehen [34]. Folglich ist die FFT am schnellsten, wenn N eine Potenz von 2 ist. Symmetrie und Periodizität der Terme verringern die Anzahl benötigter Rechnungen weiter [31]. Nun gibt es aber noch das Problem, dass die Elemente falsch sortiert sind, nach der Transformation müssen gerade und ungerade Elemente wieder in der richtigen Reihenfolge kombiniert werden. Dies geschieht in der Regel über das Bit-Umkehrverfahren. Bei diesem ergibt sich der neue Index aus der Umkehrung des alten binären Index.

Vergleichen wir abschließend noch den Rechenaufwand der DFT mit dem der FFT. Gemäß *Gleichung 2.41* benötigt die DFT N Multiplikationen und $N-1$ Additionen:

$$\text{Aufwand der DFT } \mathcal{O}(N^2) \quad .$$

Für die FFT sind $N/2$ Additionen, $N/2$ Subtraktionen, $N/2$ Multiplikationen der Differenzen, $N/2$ Multiplikationen durch das Erstellen der Faktoren sowie zwei mal eine FFT mit $N/2$ Elementen nötig. Hinzu kommt noch der Aufwand für das Umsortieren der Elemente. Zusammengefasst ergibt sich [34]:

$$\text{Aufwand der FFT } \mathcal{O}(N \log(N)) \quad .$$

Man erkennt, dass der zeitliche Vorteil der FFT gegenüber der DFT mit steigender Elementzahl drastisch zunimmt.

2.2.2 Verknüpfung von Fourier-Theorie und Beugung

Die FOURIER-Transformation stellt also die Frequenzanalyse eines zeitlichen Signals $f(t)$ dar, und überträgt es zu einer räumlichen Größe $f(\vec{r})$. Hierin ist die Beschreibung des HUYGENSSchen Prinzips indirekt enthalten, wenn man die Frequenzen durch *Raumfrequenzen* ersetzt: Für die komplexe Amplitude einer Raumfrequenz k werden die Funktionswerte aus dem Ortsraum $f(\vec{r})$ unter Berücksichtigung der Phasenlage über den Exponenten der e-Funktion aufsummiert (bzw. integriert).

Schaut man sich die obigen Beugungsintegrale *Gleichung 2.21* und *Gleichung 2.26* nochmals an, so erkennt man, dass diese die FOURIER-Darstellung bereits beinhalten.

Um dies etwas klarer darzustellen, fassen wir den Term vor dem FRESNEL-Integral zu einer Konstanten

$$C = -\frac{i}{\lambda \cdot z} \cdot e^{ikz} e^{i\pi \frac{x^2+y^2}{\lambda \cdot z}} \quad (2.47)$$

zusammen, und führen die Terme im Integral wie folgt zusammen:

$$F(\vec{r}_0) = E_0(\vec{r}_0) \cdot e^{i\pi \frac{x_0^2+y_0^2}{\lambda \cdot z}} \quad . \quad (2.48)$$

So erhält man in Pupillenkoordinaten:

$$E(\vec{r}) = C \iint_A F(\vec{r}_0) \cdot e^{-i\frac{k}{z} \cdot (xx_0 + yy_0)} dx_0 dy_0 \quad (2.49)$$

Da ein Flächenintegral vorliegt, muss die Raumfrequenz, oder auch Wellenzahl, k

$$k = \frac{2\pi}{\lambda} \quad (2.50)$$

als eine vektorielle Größe gesehen werden:

$$\vec{k} = \begin{pmatrix} k_x \\ k_y \end{pmatrix} . \quad (2.51)$$

Zusammengefasst erhält man schließlich das FRESNEL-Integral in FOURIER-Darstellung:

$$E(\vec{k}) = C \cdot \mathcal{F}(F(\vec{r}_0)) , \quad (2.52)$$

wobei $\mathcal{F}(F(\vec{r}_0))$ die Fourier-Transformierte von F darstellt.

Auf analoge Weise lässt sich auch das FRAUNHOFER-Beugungsintegral (*Gleichung 2.26*) umschreiben [35, S.22], sodass man erhält:

$$\begin{aligned} E(a, b, z) &= C(a, b, z) \iint_A E_0(\vec{r}_0) \cdot e^{-i\frac{k}{f} \cdot (a \cdot x_0 + b \cdot y_0)} dx_0 dy_0 \quad (2.53) \\ &= C(a, b, z) \cdot \mathcal{F}(E_0(\vec{r}_0)) \end{aligned}$$

Die obigen Gleichungen zeigen, dass das Beugungsmuster eines Gegenstandes oder einer Blende nichts anderes ist, als die zweidimensionale Fourier-Transformierte oder das *Ortsfrequenzspektrum* der Blende [25, S.731].

Hierdurch wird legitimiert, dass die unten stehenden Berechnungen mit Hilfe von MATLAB unter Nutzung des FFT-Algorithmus durchgeführt werden können.

2.2.3 Optische Abbildung

In diesem Abschnitt wird der Begriff der Numerischen Apertur (NA) im Rahmen der Fourier-Optik erläutert und mit der Auflösung verknüpft. Ebenso werden basierend hierauf die so genannten Beugungsscheibchen erläutert. Dies ist nötig, um die Messdaten in dieser Arbeit interpretieren und weiter verarbeiten zu können. Zuletzt wird das Pupillenkzept bei optischen Abbildungen dargestellt.

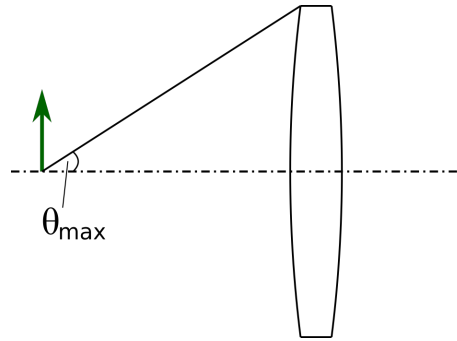


Abbildung 2.6: Skizze zur heuristischen Herleitung der Auflösung und Veranschaulichung der Numerischen Apertur.

Betrachten wir zunächst *Abbildung 2.6*. Dort ist eine dünne Linse gezeigt, links stehend das abzubildende Objekt, symbolisiert durch den Pfeil. Der maximal mögliche Winkel zur optischen Achse, unter dem ein vom Objekt ausgehender Lichtstrahl noch abgebildet wird, heißt θ_{\max} . Die NA ist von E. Abbe definiert als [36, S.16]

$$NA \equiv n \cdot \sin(\theta_{\max}) \quad , \quad (2.54)$$

wobei n der Brechungsindex des umgebenden Mediums ist. Für die folgenden Betrachtungen sei $n = 1$ (Luft).

In der Fourier-optischen Betrachtung entspricht dieser Winkel dem Lichtstrahl einer ebenen Welle, deren Wellenfront senkrecht zur Ausbreitungsrichtung steht. Also ist θ_{\max} auch der maximale Winkel, unter dem eine ebene Welle auf unser optisches System einfallen kann, sodass diese Welle noch abgebildet wird. Diese ebene Welle entspricht einer bestimmten objektseitigen Wellenlänge λ_x und somit auch Wellenzahl $k_x = 2\pi/\lambda_x = k \cdot \sin(\theta)$. Somit gilt für die maximal auflösbare Wellenzahl:

$$k_{x,max} = k \cdot \sin(\theta_{max}) = k \cdot NA \quad (2.55)$$

Anschaulich kann man sich vorstellen, dass die NA wie eine Art Tiefpassfilter für die Fourier-Transformation der Eintrittspupille fungiert [37, S.165]. *Abbildung 2.7* veranschaulicht dies in Form einer Rechteckfunktion. Alle Wellenzahlen, die unser optisches System transmittieren kann, liegen zwischen $-k_{x,max}$ und $k_{x,max}$.

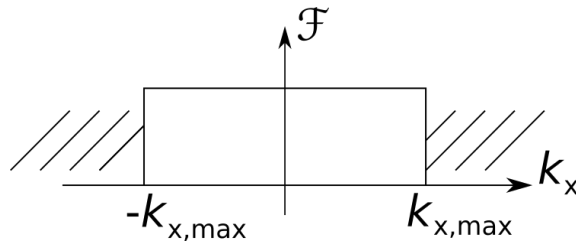


Abbildung 2.7: Veranschaulichung der Numerischen Apertur als Tiefpassfilter für die Fourier-Transformation.

Anschaulich kann man eine Definition der Auflösung R über

$$R \approx \lambda_{x,min} \quad (2.56)$$

der kleinsten Wellenlänge, die das System abbilden kann, definieren. Man kann abschätzen:

$$R \approx \lambda_{x,min} = \frac{2\pi}{k_{x,max}} = \frac{2\pi}{\frac{2\pi}{\lambda_0} \cdot NA} = \frac{\lambda_0}{NA} \quad . \quad (2.57)$$

Später wird sich zeigen, dass diese rein heuristische Herleitung nahe an der korrekt über die Fouriertransformation berechneten Formel für die Auflösung liegt.

Anschaulich kann man die NA also als Maß für die Auflösung eines optischen Systems, bzw. das Limit der maximal auflösbare Raumfrequenz $k_{x,max}$, interpretieren. Um die Auflösung nun korrekt mathematisch herzuleiten, kombinieren wir die Fouriertransformation eines Objektes in Form einer kreisförmigen Blende mit dem Tiefpassfilter aus *Abbildung 2.7*.

Kreisförmige Blenden sind häufig von praktischer Bedeutung, da diese in vielen optischen Systemen, wie zum Beispiel Mikroskopen, vorhanden sind. Nicht selten führen diese kreisförmigen Blenden zu Beugungserscheinungen, welche die Auflösung limitieren [38]. Betrachten wir also eine Lochblende mit Radius \tilde{R} . Auf Grund der Symmetrie führen wir Polarkoordinaten (ρ, θ) ein:

$$x = \rho \cos(\theta) \quad y = \rho \sin(\theta) \quad ,$$

somit gilt für die optischen Koordinaten des Schirms:

$$u = \xi \cos(\phi) \quad v = \xi \sin(\phi) \quad .$$

Damit lässt sich das Fresnel-Beugungsintegral aus *Gleichung 2.26* folgendermaßen

umschreiben:

$$E(u, v) \propto \int_0^{\tilde{R}} \int_0^{2\pi} e^{-i(\rho\xi\cos(\phi)\cos(\theta)+\rho\xi\sin(\phi)\sin(\theta))} \rho d\rho d\theta \quad (2.58)$$

$$E(u, v) \propto \int_0^{\tilde{R}} \int_0^{2\pi} e^{-i(\rho\xi\cos(\theta-\phi))} \rho d\rho d\theta \quad . \quad (2.59)$$

Dieses Integral können wir mit Hilfe von Bessel-Funktionen lösen ([39, 40]) und es ergibt sich

$$E(\xi, \phi) = \frac{2\pi\tilde{R}J_1(\xi\tilde{R})}{\xi} = \pi\tilde{R}^2 \left[\frac{2J_1(\xi\tilde{R})}{\xi\tilde{R}} \right] \quad . \quad (2.60)$$

Wir erkennen, dass das Beugungsmuster einer kreisförmigen Blende rotationssymmetrisch und unabhängig vom Winkel ϕ ist.

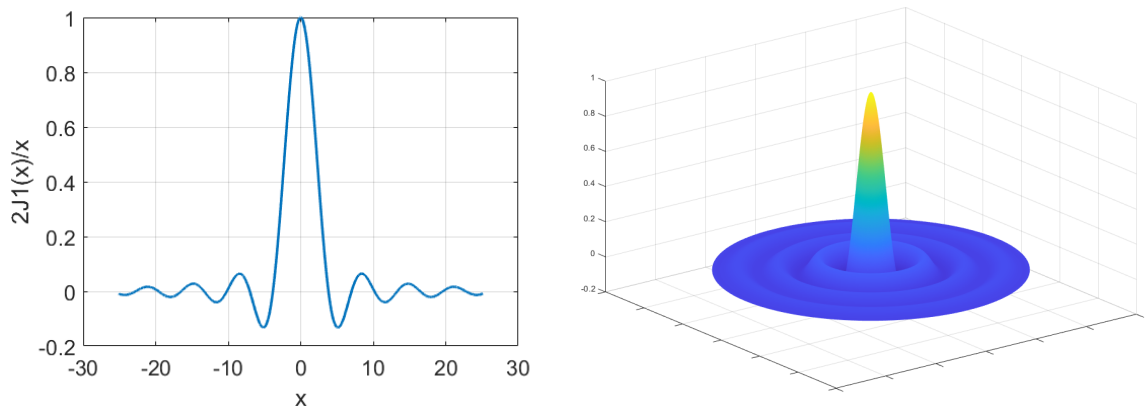


Abbildung 2.8: Links: Verlauf der $J_1(x)/x$ -Funktion, entsprechend der radialen Verteilung der Beugungsamplitude. Rechts: 3D Plot der Amplitude.

Abbildung 2.8 zeigt den Verlauf der $J_1(x)/x$ -Funktion. Anhand der radialen Verteilung ist zu sehen, dass sowohl Amplitude, als auch Oszillationsfrequenz mit steigendem x abnehmen. Das zentrale Maximum des Beugungsbildes wird als *Airy-Scheibe* bezeichnet. Der Radius dieser Scheibe entspricht der ersten Nullstelle der Funktion. Gemessen werden kann aber nur die Intensität [25]. Somit ist es nötig, die Verteilung der Beugungsamplitude zu quadrieren. Für den Durchmesser der Airy-Scheibe muss also die folgende Nullstelle bestimmt werden:

$$I = \left(\pi\tilde{R}^2 \left[\frac{2J_1(\xi\tilde{R})}{\xi\tilde{R}} \right] \right)^2 \stackrel{!}{=} 0 \quad . \quad (2.61)$$

Als Lösung ergibt sich gemäß [41, S.70]

$$\xi \tilde{R} \approx 3,8317 \quad , \quad (2.62)$$

was analog ist zu

$$\sin(\theta) = \frac{\xi}{k_0} = \frac{3,8317\lambda}{2\pi\tilde{R}} = 0,61 \frac{\lambda}{\tilde{R}} \quad . \quad (2.63)$$

Gemäß dem Babinet'schen Prinzip ist die Amplitudenverteilung des Beugungsbildes für eine Lochblende äquivalent zu der einer kreisförmigen Struktur [42, S.428]. Möchten wir nun also einen Punkt abbilden, so wissen wir aus den vorigen Betrachtungen, dass das Bild dieses Punktes auf Grund von Beugungserscheinungen analog zu einer Airy-Funktion verwaschen sein wird. Generell wird die auftretende Intensitätsverteilung bei der Abbildung eines Punktes auch als Punktbildfunktion (engl. *Point-Spread-Function*, PSF) bezeichnet.

Wenn wir nun zwei benachbarte Punkte abbilden wollen, so erhalten wir zwei benachbarte PSFs. Ob wir die beiden Punkte im Bild auch noch separiert wahrnehmen können, hängt von deren Abstand ab.

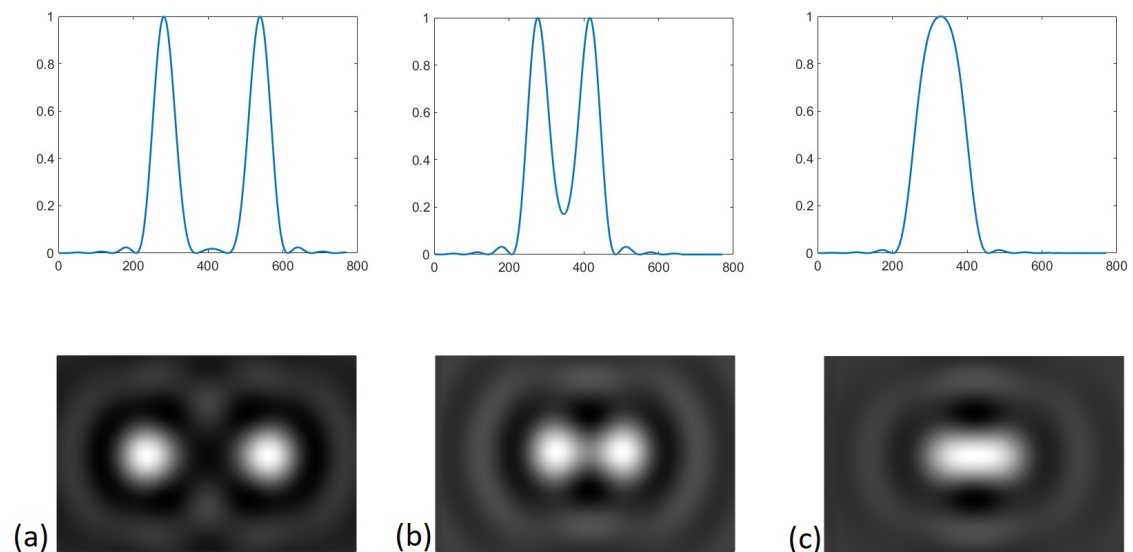


Abbildung 2.9: Veranschaulichung der Auflösung: die beiden Punkte in (a) und (b) sind noch auflösbar, in (c) jedoch nicht mehr.

Diese benachbarten PSFs beginnen unter einem gewissen Abstand, zu überlappen, sodass sie im Bild nicht mehr als separat wahrgenommen werden können (siehe *Abbildung 2.9*). Über diesen Abstand und die vorigen Rechnungen kommt nun die (für das Fernfeld) mathematisch korrekte Herleitung der Auflösung (Rayleigh Kriteri-

um):

$$\text{Auflösung } R = 0,61 \frac{\lambda}{\sin\theta} = 0,61 \frac{\lambda}{\text{NA}} \quad . \quad (2.64)$$

Man erkennt, dass das Ergebnis der heuristischen Herleitung (*Gleichung 2.57*) dieser Formel sehr nahe kommt.

Nach diesem Kriterium gelten zwei Punkte als gerade noch auflösbar, wenn das Maximum der Airy-Scheibe des ersten Objekt mit dem Minimum des zweiten übereinstimmt.

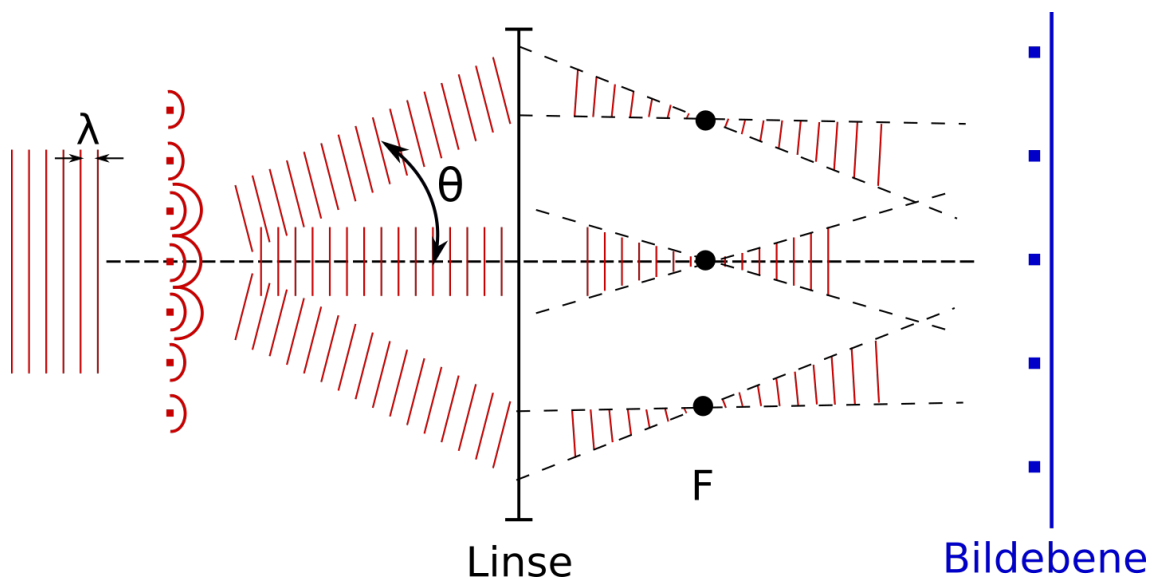


Abbildung 2.10: Veranschaulichung der Bildentstehung durch Anwesenheit der ersten Beugungsordnung.

Für die Interpretation der späteren Messergebnisse wird nun nochmals der Begriff der Apertur und Auflösung veranschaulicht. Betrachte hierzu das Punktgitter aus *Abbildung 2.10*, wobei die Wellenlänge kleiner als der Abstand der Punkte ist. Dieses Gitter wird mit einer ebenen Welle der Wellenlänge λ beleuchtet. Gemäß dem HUYGENS'SCHEN Prinzip betrachten wir jeden dieser Punkte als Ausgangspunkt einer Elementarwelle. Diese Elementarwellen überlagern sich anschließend und erzeugen ein Beugungsmuster. Exemplarisch sind hier die nullte und erste Ordnung gezeigt. Die Beugungsordnungen propagieren als ebene Wellen, bis sie auf die Linse mit dem Brennpunkt F treffen. All diese ebenen Wellen werden hinter der Linse in der Brennebene gesammelt und laufen anschließend wieder auseinander. Das Punktgitter wird in der Bildebene (hier blau) abgebildet. Das Bild entsteht aus dem Interferenzmuster. Damit die Auflösung des Punktgitters im Bild möglich ist,

muss das Interferenzmuster entstehen, also die Abbildung sicher mindestens die erste Beugungsordnung mit enthalten. Ist zum Beispiel die Linse zu klein oder werden die Beugungsordnungen mit einer Blende geblockt, so erhält man nur einen hellen Fleck, aber keine Auflösung und kein Bild der Struktur mehr. Der Winkel θ zwischen der nullten und ersten Beugungsordnung entspricht dem Winkel aus *Gleichung 2.64*.

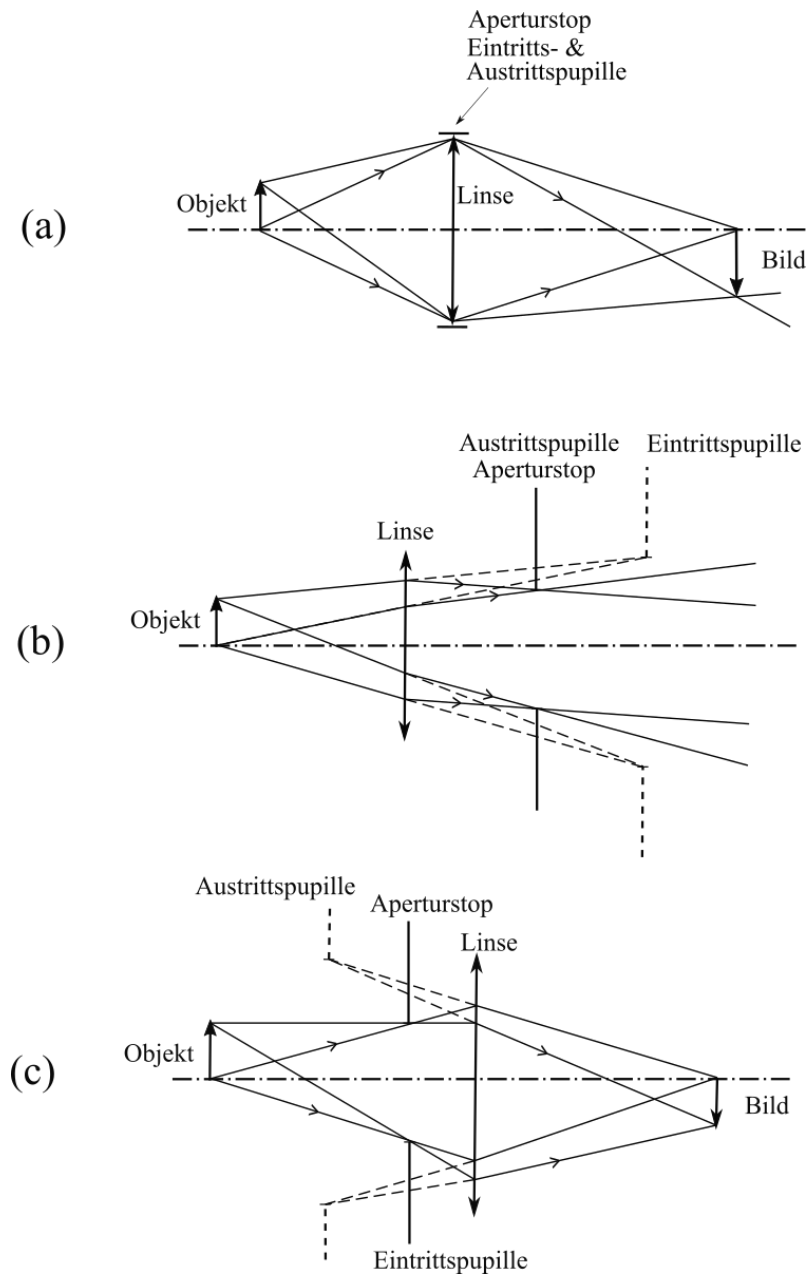


Abbildung 2.11: Ein- und Austrittspupillen. (a) Ein- und Austrittspupille fallen mit dem physischen Aperturstop zusammen. (b) Die Austrittspupille fällt mit dem physischen Aperturstop zusammen. (c) Die Eintrittspupille fällt mit dem physischen Aperturstop zusammen.

Abschließend für dieses Kapitel wird nun das Pupillenkonzept erläutert. Ein Linsensystem kann mehrere Aperturen enthalten, von denen jedoch eine immer die stärkste Begrenzung für die räumliche Ausdehnung der Wellenfront am Eingang des Systems und beim Verlassen des Linsensystems bietet. Die Eintrittspupille eines optischen Systems ist als das Bild der am stärksten begrenzenden Apertur definiert, wenn man vom Objektraum aus durch alle optischen Elemente blickt. Analog ist die Austrittspupille definiert als das Bild der Apertur vom Bildraum aus gesehen, wenn man durch alle optischen Elemente zwischen dieser Apertur und der Bildebene schaut [28]. *Abbildung 2.11* veranschaulicht dies am Beispiel einer einfachen Linse. Dort fällt der Aperturstop entweder mit der Linse zusammen (a), liegt hinter der Linse (b) oder davor (c). Im ersten Fall stimmen Ein- und Austrittspupille mit der physikalischen Öffnung der dünnen Linse überein. Im zweiten Fall fällt die Austrittspupille mit der physikalischen, bildseitigen Blende zusammen, und im dritten Fall stimmt die Eintrittspupille mit der objektseitig liegenden Blende überein. Im letzteren Fall ist die Austrittspupille ein virtuelles Bild des Aperturstops. In komplexeren optischen Systemen ist es meistens nötig, mit Hilfe von Optik-Simulationsprogrammen die Strahlen nachzuverfolgen, um bei vorgegebenem Aperturstop Ein- und Austrittspupille zu finden.

2.3 Streuung von Licht an kleinen Teilchen

In diesem Abschnitt wird der Hintergrund der theoretischen Simulationen der Streuung von Licht an sphärischen Nanopartikeln aufgezeigt. Zur mathematischen Beschreibung wird eine Modifikation des SOMMERFELD'SCHEN Halbraumproblems genutzt. Im späteren Verlauf dieser Arbeit werden die Ergebnisse der Simulation mit den gemessenen Intensitätsverteilungen der Fourierebene bei Streuung an einzelnen, sphärischen Nanopartikeln verglichen.

Wie alle Materie, bestehen zu detektierenden Partikel auf elementarster Ebene unter anderem aus diskreten elektrischen Ladungen, den Protonen und Elektronen. Trifft eine elektromagnetische Welle, wie in unserem Fall Laserlicht, auf den Partikel, werden dessen Ladungen durch das einfallende Feld in eine getriebene Schwingung versetzt. Beschleunigte Ladungen emittieren Sekundärstrahlung in Form von elektromagnetischen Wellen in alle Richtungen. Diese Sekundärstrahlung bezeichnet die vom Partikel gestreute Strahlung.

Für uns von Interesse ist die kohärente Streuung, oder präziser ausgedrückt die

elastische Streuung, bei der die Frequenz des gestreuten Lichtes der Frequenz des einfallenden Lichtes entspricht.

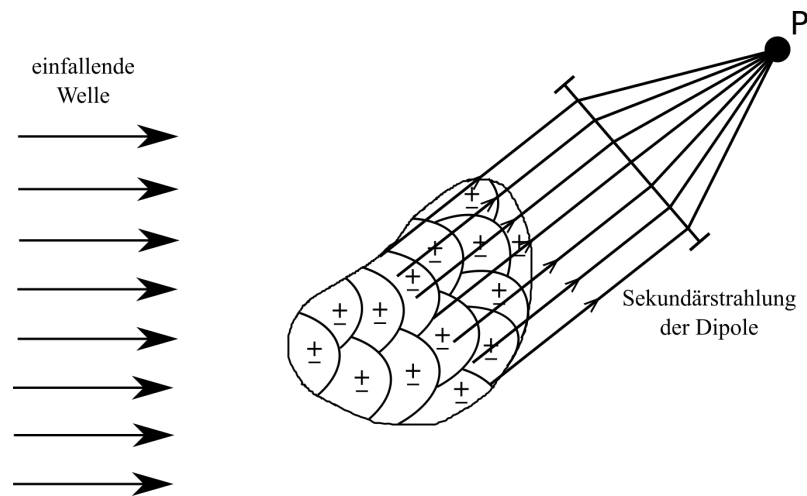


Abbildung 2.12: Eine ebene, elektromagnetische Welle trifft auf einen beliebig geformten Partikel, die Sekundärstrahlung der einzelnen Unterbereiche des Partikels werden im Beobachtungspunkt P aufsummiert. In Anlehnung an [43].

Um ein qualitatives Verständnis für das genutzte Modell zu erlangen, zeigt *Abbildung 2.12* einen beliebig geformten Partikel mit einer einfallenden, ebenen Welle. Der Partikel wird zur Veranschaulichung gedanklich in kleinere Bereiche unterteilt. In jedem dieser Bereiche wird durch das einfallende elektromagnetische Feld ein Dipol induziert. Da wir elastische Streuung betrachten, oszillieren alle Dipole in Phase zu dem einfallenden Feld. Um das gestreute Feld in einem beliebigen Beobachtungspunkt P zu erhalten, muss die Sekundärstrahlung jedes Dipols phasenrichtig aufsummiert werden.

An dieser Stelle können wir bereits eine erste Vereinfachung nutzen: Normalerweise ist zu erwarten, dass das gestreute Feld mit der Richtung der Streuung variiert. Da die hier betrachteten Nanopartikel mit einem maximalen Durchmesser von 300 nm jedoch kleiner als die Wellenlänge von 633 nm sind, sind alle sekundär abgestrahlten Wellen im Fernfeld annähernd gleichphasig und verhalten sich wie ein einziger oszillierender Dipol [43]. Das Ergebnis dieser Vorüberlegung vereinfacht die mathematische Lösung des Streuproblems. Dieses wird im folgenden *Unterabschnitt 2.3.1* betrachtet.

2.3.1 Simulation der Streuung an Einzelpartikeln

Dieser Abschnitt behandelt die mathematische Beschreibung des Streuproblems. Auf Grund der Größenordnungen des Systems (Partikel mit maximalem Durch-

messer von 300 nm, Wellenlänge $\lambda = 633$ nm) wird dieses durch die Mie-Theorie beschrieben und gelöst. Das Ziel unserer Betrachtungen ist die Visualisierung der elektromagnetischen Felder im Fernfeld, um eine Vorhersage über das Pupillenbild treffen zu können, welche man dann mit den experimentellen Ergebnissen vergleichen kann. Die Mathematik der Mie-Theorie ist zwar aufwendig, aber unverfänglich [44]. Jedoch muss man an dieser Stelle bedenken, dass dies nur für die Berechnung der Streuquerschnitte gilt. Möchten wir die Visualisierung der Intensitätsverteilung berechnen, so ist dies weitaus komplizierter. Eine mögliche analytische Lösung für das gestreute Fernfeld ist die Entwicklung der gestreuten Felder in Form von dreidimensionalen Vektor-Wellenfunktionen, wobei die Vektor-Wellenfunktionen selbst gemäß der Polarisationsrichtungen expandiert werden müssten. Der benötigte Rechenaufwand hierfür wäre immens. Daher nutzen wir ein Modell zur Simulation des Streuverhaltens eines einzelnen sphärischen Partikels mit Hilfe von gewissen Vereinfachungen und Annahmen für das Fernfeld.

Die Geometrie ist in *Abbildung 2.13* dargestellt. Man sieht einen sphärischen Partikel mit Radius a , dessen Zentrum den Abstand d zur Oberfläche hat. Das rechtshändige Koordinatensystem hat den Ursprung im Zentrum des Partikels. Eine ebene Welle, dargestellt durch einen Pfeil, der der Richtung des Wellenvektors entspricht, fällt unter dem Winkel α zur z-Achse ein. Die Beschaffenheit der Proben (siehe *Abchnitt 3.2*) erfordert $d = a$, was den Fall beschreibt, dass sich der Nanopartikel direkt auf der Oberfläche befindet.

Um eine mathematische Beschreibung dieses Streuproblems zu erhalten, modifizieren wir das SOMMERFELD'SCHE-Halbraumproblem. Das SOMMERFELD'SCHE-Halbraumproblem beschreibt einen oszillierenden Dipol mit einer definierten Orientierung, der sich oberhalb einer bestimmten Höhe zu einer dielektrischen Oberfläche befindet [22, 46]. Die Berechnungen basieren auf [47] und nutzen verschiedene Vereinfachungen für das Fernfeld.

Das Feld in der oberen Halbebene setzt sich aus den folgenden Komponenten zusammen:

- die einfallende ebene Welle
- der Anteil aus der Wechselwirkung der eintreffenden Welle mit der Grenzfläche zwischen Medium 1 und Medium 2
- der vom Kugel-Oberflächen System gestreute Anteil

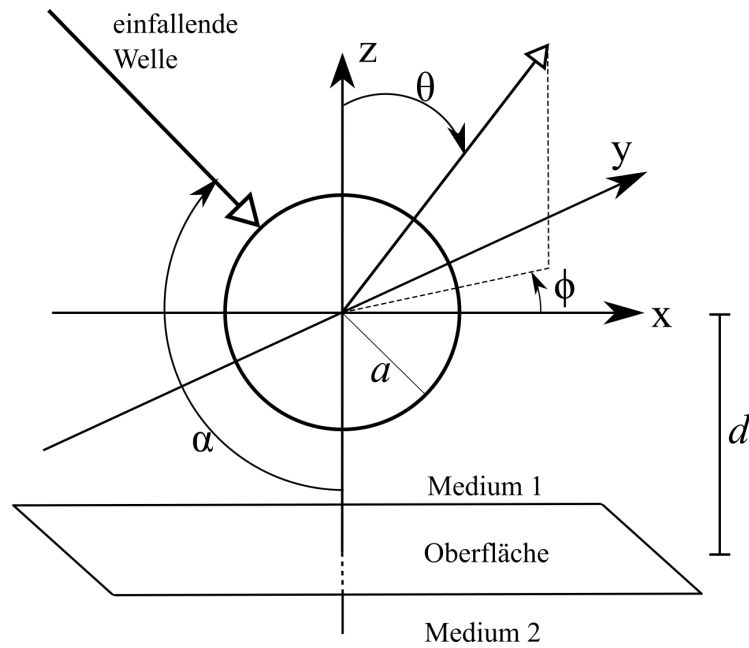


Abbildung 2.13: Geometrie des Streuproblems. Eine Kugel mit dem Radius a befindet sich im Abstand d über einer Oberfläche. Eine ebene Welle fällt in der x - z -Ebene unter dem Winkel α gegenüber der z -Achse ein. Darstellung in Anlehnung an [45].

Der hier beschriebene Lösungsweg ist auch als das SOMMERFELD-RAYLEIGH-System bekannt, das in [45] vorgestellt wurde. Das vom Kugel-Oberflächen-System in die obere Halbebene gestreute Feld ist $\propto a^3$, und das Feld innerhalb der Sphäre ist $\propto 1/2kd$, bzw. für unseren Fall, dass der Partikel direkt auf der Oberfläche sitzt, $\propto 1/2ka$ [43]. Da mit dieser mathematischen Herleitung kleine Partikel mit Radius a beschrieben werden sollen, wird der vom Kugel-Oberflächen-System gestreute Anteil vernachlässigt, und angenommen, dass der Dipol nur von der einfallenden ebenen Welle und deren direkt von der Oberfläche reflektiertem Anteil getrieben wird. Dies stellt die zweite Vereinfachung, die das SOMMERFELD-RAYLEIGH-System nutzt, dar. Da wir mit dieser Beschreibung ein qualitatives Bild für das Streuverhalten eines einzelnen Partikels erhalten wollen, ist dieses Modell trotz der genutzten Näherungen und Vereinfachungen ausreichend.

Da die eintreffende ebene Welle in der x - z -Ebene liegt, wird der Dipol auch in der x - z -Ebene induziert. Der Winkel β liegt zwischen der Achse des Dipols und der z -Achse. Das Dipolmoment kann mit der Delta-Distribution δ geschrieben werden als:

$$\vec{p} = p(\vec{e}_x \sin\beta + \vec{e}_z \cos\beta)\delta(x)\delta(y)\delta(z - d) \quad . \quad (2.65)$$

Das Sommerfeld-Fernfeld-Vektorpotential nach [45, 48, 49] ist gegeben durch:

$$\vec{\Pi} = \Pi_x \vec{e}_x + \Pi_z \vec{e}_z \quad (2.66)$$

mit

$$\Pi_x = \frac{p}{4\pi\epsilon_0} (\sin\beta) \left[\frac{\exp(ikr)}{r} + R_{\text{TE}}(\theta) \frac{\exp(ikr')}{r'} \right] \quad (2.67)$$

$$\Pi_z = \frac{p}{4\pi\epsilon_0} \left\{ \cos\beta \left[\frac{\exp(ikr)}{r} - R_{\text{TM}}(\theta) \frac{\exp(ikr')}{r'} \right] \right. \quad (2.68)$$

$$\left. + (2\sin\beta \cos\phi \sin\theta \cos\theta) \cdot \frac{\cos\theta_i - [n_{\text{sur}}^2 - \sin^2\theta_i]^{1/2}}{n_{\text{sur}}^2 \cos\theta_i + [n_{\text{sur}}^2 - \sin^2\theta_i]^{1/2}} \cdot \frac{\exp(ikr')}{r'} \right\}$$

mit

$$R_{\text{TE}}(\theta_i) = \frac{\cos(\theta_i) - [n_{\text{sur}}^2 - \sin^2(\theta_i)]^{1/2}}{\cos(\theta_i) + [n_{\text{sur}}^2 - \sin^2(\theta_i)]^{1/2}} \quad (2.69)$$

$$R_{\text{TM}}(\theta_i) = -\frac{n_{\text{sur}}^2 \cos(\theta_i) - [n_{\text{sur}}^2 - \sin^2(\theta_i)]^{1/2}}{n_{\text{sur}}^2 \cos(\theta_i) + [n_{\text{sur}}^2 - \sin^2(\theta_i)]^{1/2}} \quad (2.70)$$

und

$$r' = r + 2d \cos\theta \quad , \quad (2.71)$$

hierbei beschreibt n_{sur} den Brechungsindex der Oberfläche.

Das elektrische Feld erhält man über die Wellengleichung:

$$\vec{E} = k^2 \vec{\Pi} + \nabla(\nabla \cdot \vec{\Pi}) \quad . \quad (2.72)$$

Für die Komponenten des elektrischen Fernfeldes hat die Wellengleichung die folgenden Lösungen [45]:

$$E_r = 0 \quad (2.73)$$

$$\begin{aligned} E_\theta = & -k^3 \frac{p}{4\pi\epsilon_0} \frac{\exp(ikr)}{kr} \\ & \cdot \{ [1 - R_{\text{TM}}(\theta) \exp(2ikd \cos(\theta))] \sin(\theta) \cos(\beta) \\ & - [1 + R_{\text{TM}}(\theta) \exp(2ikd \cos(\theta))] \cos(\theta) \cos(\phi) \sin(\beta) \} \end{aligned} \quad (2.74)$$

$$\begin{aligned} E_\phi = & -k^3 \frac{p}{4\pi\epsilon_0} \frac{\exp(ikr)}{kr} \\ & \cdot \{ 1 + R_{\text{TE}}(\theta) \exp[2ikd \cos(\theta)] \} \sin(\phi) \sin(\beta) \quad . \end{aligned} \quad (2.75)$$

Das Dipolmoment p ist abhängig von der Polarisation der einfallenden Welle:

$$p_{\text{TE}} = p \{1 + R_{\text{TE}}(\pi - \alpha) \exp[-2ikd \cos(\alpha)]\} \vec{e}_y \quad (2.76)$$

$$\begin{aligned} p_{\text{TM}} &= p \{1 + R_{\text{TM}}(\pi - \alpha) \exp[2ikd \cos(\alpha)]\} \vec{e}_x \cdot \cos(\alpha) \\ &\quad - p \{1 - R_{\text{TM}}(\pi - \alpha) \exp[-2ikd \cos(\alpha)]\} \vec{e}_z \cdot \sin(\alpha) \end{aligned} \quad (2.77)$$

mit

$$p = 4\pi\epsilon_0 \frac{n_{\text{sph}}^2 - 1}{n_{\text{sph}}^2 + 2} a^3 E_{\text{inc}} \quad (2.78)$$

Somit ist das elektrische Fernfeld für die Streuung an einem einzelnen, sphärischen Nanopartikel, der sich direkt auf einer Oberfläche befindet, vollständig bestimmt. Um nun von dem elektrischen Fernfeld zu der Intensitätsverteilung in der Austrittspupille eines Mikroskopobjektives zu gelangen, muss noch dessen Numerische Apertur und optische Abbildung berücksichtigt werden. Das Objektiv transformiert eine ebene Welle in eine Kugelwelle mit Ursprung im Brennpunkt und vice versa. Dies muss für die finale Simulation des Pupillenbildes in Form einer stereografischen Projektion beachtet werden [50]. Dabei wird ein Punkt auf der Kugeloberfläche mit dem Nord/Südpol verbunden, der Schnittpunkt von Ebene und Gerade entspricht der Projektion der Punkte von der Kugeloberfläche in die Ebene. Veranschaulicht ist dies in *Abbildung 2.14*.

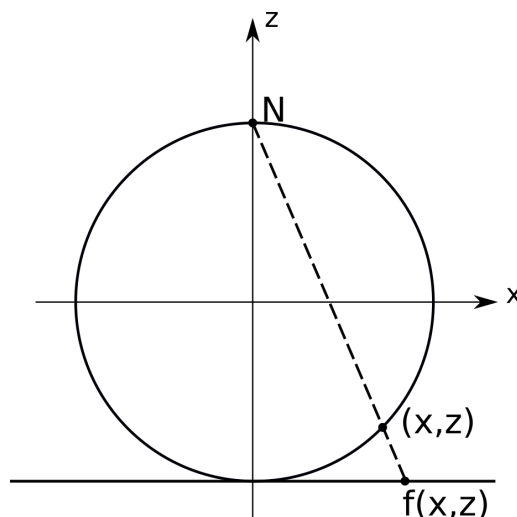


Abbildung 2.14: Stereografische Projektion eines Punktes (x, z) durch N auf $f(x, z)$ in die dargestellte Ebene.

Mathematisch handelt es sich also um das Aufstellen einer Geradengleichung durch den Nord- oder Südpol und das Finden des Schnittpunktes mit der gewünschten Ebene. Eine Sphäre mit allgemeinem Radius R wird im dreidimensionalen Raum durch

$$S : \quad x^2 + y^2 + z^2 = R^2 \quad . \quad (2.79)$$

beschrieben. Für die Geradengleichung gilt:

$$g : \quad \vec{x} = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ R \end{pmatrix} + q \cdot \begin{pmatrix} x \\ y \\ -R \end{pmatrix} , \quad q \in \mathbb{R} \quad (2.80)$$

Das Schneiden von Geradengleichung und Gleichung der Sphäre ergibt

$$q = \frac{2R^2}{x^2 + y^2 + R^2} . \quad (2.81)$$

Einsetzen in die Geradengleichung ergibt dann schließlich die gewünschte Projektion. Der Radius der Sphäre ergibt sich aus der Brennweite des verwendeten Objektivs. Die NA des Objektivs wird dadurch berücksichtigt, dass nur Geraden mit einem maximalen Winkel von $\alpha = \sin^{-1}(\text{NA})$ zur z -Achse für die Berechnung herangezogen werden. Dieses Vorgehen geht von einem gut auskorrigierten Mikroskopobjektiv aus, dessen Aberrationen man vernachlässigen kann. Da es sich im Rahmen der Simulation um eine rein qualitative Betrachtung handelt, ist diese Vereinfachung zulässig.

Kapitel 3

Experimentelle Methoden

In diesem Kapitel wird auf das experimentelle Vorgehen eingegangen. Es werden zwei Aufbauten zur kohärenten Fourier Scatterometrie vorgestellt: das Ein-Kamera-System und das Zwei-Kamera-System. Außerdem wird die Probenherstellung beschrieben, und die Wahl der Geometrie der hergestellten Nanopartikel-Cluster und metallischen Nanostrukturen begründet.

3.1 Experimenteller Aufbau zur kohärenten Fourier Scatterometrie

Die folgenden Beschreibungen des experimentellen Aufbaus sind in zwei Abschnitte unterteilt. Diese entsprechen den beiden verschiedenen Abwandlungen des Messsystems.

3.1.1 Ein-Kamera-System

Abbildung 3.1 zeigt das Ein-Kamera System. Der zur Fourier-Scatterometrie gehörende Strahlengang ist in rot dargestellt. Das Licht eines 5 mW starken, 633 nm HeNe-Lasers wird kollimiert und durchläuft einen Polarisationsfilter, bevor es von dem Strahlteiler BS2 zum Objektiv hin reflektiert wird. Das Objektiv fokussiert einerseits den Laser auf die Probe, nimmt andererseits aber auch das zurück gestreute Licht wieder auf. Als Objektiv wird ein NPLAN der Firma Leica mit 100-facher Vergrößerung und einer Numerischen Apertur von 0,9 genutzt. Dieses Objektiv bildet, wie die meisten Mikroskopobjektive, nach Unendlich ab. Um die Fourier-

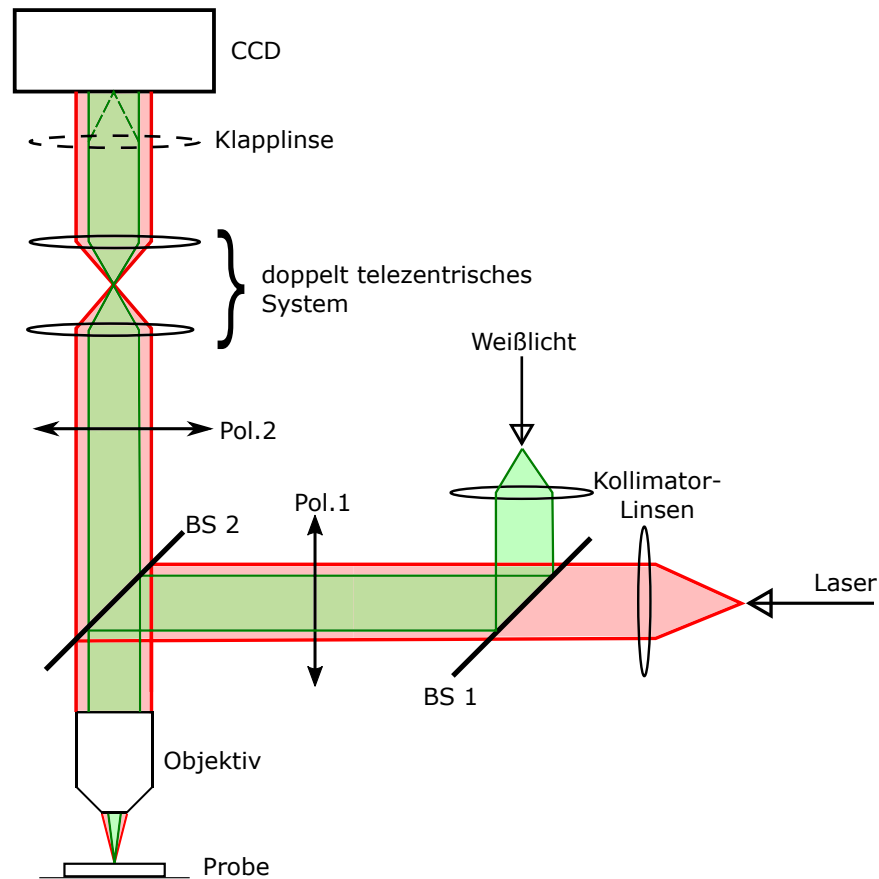


Abbildung 3.1: Schematische Darstellung des Ein-Kamera-Systems. Roter Strahlengang: Laserlicht, Strahlengang zur kohärenten Fourier Scatterometrie. Grün: Strahlengang des Weißlichtmikroskopes.

Ebene des Objektivs auf den Kamerachip (CCD) abbilden zu können, muss der doppelt-telezentrische Aufbau auf den Abstand der Brennweite der ersten (auf der Abbildung unteren) Linse zur Austrittspupille des Objektivs positioniert werden. In dieser ersten Version des Aufbaus wurden ein Achromat mit 50 mm Brennweite und ein Achromat mit 100 mm Brennweite genutzt. Der doppelt-telezentrische Aufbau ist einerseits nötig, um die erforderliche Vergrößerung zu erhalten. Die Pupille muss nämlich verkleinert werden, um auf den CCD-Chip zu passen. Andererseits gewährleistet der doppelt-telezentrische Strahlengang eine Minimierung der Abbildungsfehler.

Bei der Kamera handelt es sich um das Modell UI-1540SE-M-GL der Firma iDS-imaging. Sie hat eine Auflösung von 1280 x 1024 Pixeln und eine Farbtiefe von 8 bit. Zur Anzeige eines Live-Bildes kann die Kamera wie folgt angesprochen werden:

```

1 % activating uEye camera
2 captdev = 'winvideo';
3 vid = videoinput("winvideo", 1, "RGB32_752x480");
4 src = getselectedsource(vid);
5 % Set the desired parameters to display the image correctly.
6 triggerconfig(vid, 'manual');
7 src.ContrastMode = 'manual';
8 src.Contrast = 10;
9 src.GainMode = 'manual';
10 src.Gain = 0;
11 src.ExposureMode = 'manual';
12 src.Exposure = -10;
13 vid.FramesPerTrigger = 500;
14 %Loading the parameters and switching on the camera ready for use
15 start(vid)

```

Für die Messung der Pupillenbilder hat es sich jedoch als hilfreich erwiesen, die Image-Aquisition-Toolbox von MATLAB zu nutzen, in der man über einen Button in einem vordefinierten Ordner ein Bild aus der Live-Vorschau der Kamera speichern kann.

Die gestrichelt dargestellte einschwenkbare Linse muss zur Abbildung der Pupille aus dem Strahlengang geschwenkt werden. Auf dem Weg zur Kamera durchläuft der Strahlengang einen Analysator (Pol. 2 in *Abbildung 3.1*).

Zusätzlich hat dieser Aufbau einen Zwei-in-Eins Effekt. Durch Einschwenken der Linse in den Strahlengang und Einschalten der Weißlichtbeleuchtung (grüner Strahlengang) kann er als konventionelles Weißlichtmikroskop genutzt werden. Dies erleichtert die räumliche Orientierung auf der Probe erheblich. Die einklappbare Linse bringt den Vorteil, dass hier nur eine einzige Kamera für beide Abbildungen benötigt wird. Die Probe befindet sich auf einem 3-Achs-Probenhalter, welcher sich mit Hilfe von Mikrometerfeinstellschrauben verstellen lässt.

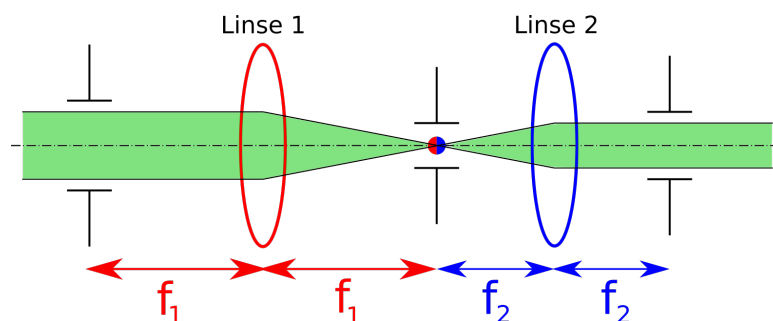


Abbildung 3.2: Schematische Darstellung des zur Abbildung der Austrittspupille genutzten doppelt-telezentrischen Systems.

Das in *Abbildung 3.1* gezeigte doppelt-telezentrische System ist nicht maßstabsgerecht. Das korrekte System wird in *Abbildung 3.2* dargestellt. Ein doppelt-telezentrisches System hat eine Vergrößerung, die unabhängig von der Entfernung des Objektes und dem Fokus ist. Somit kommt es auch bei Verschiebung des abgebildeten Objektes (in unserem Falle: Fourier-Ebene des Mikroskopobjektives) oder der Bildebene bzw. CCD-Kamera nur zu symmetrischen Aberrationen. Das heißt, dass Strahlen, die parallel zur optischen Achse einfallen, auch parallel zur optischen Achse ausfallen. Bei Defokussierung wird der Spot zwar größer, allerdings geschieht dies symmetrisch um das Zentrum herum [50]. Um die Austrittspupille abzubilden, muss sich diese im Abstand der Brennweite der ersten Linse befinden. Der Abstand zwischen den beiden Linsen beträgt die Summe der beiden Brennweiten. Die CCD Kamera muss im Abstand der Brennweite der zweiten Linse positioniert werden. Obwohl das Objektiv nach unendlich abbildet, ist es wichtig, diese Abstände zu beachten, da der Strahlengang an der Stelle der Austrittspupille abgebildet werden muss.

Der gesamte Aufbau befindet sich bei Raumtemperatur in einer Flowbox, um Reinraumqualität gewährleisten zu können.

Bei den ersten Messungen haben sich die folgenden Herausforderungen gezeigt:

- Schwingungsanfälligkeit des Probenhalters
- zu grobe Einstellmöglichkeiten der Mikrometerfeinstellschrauben
- mangelhafte Wiederholgenauigkeit beim Ein- und Ausschwenken der Linse

Die Schwingungsanfälligkeit des Probenhalters liegt in der händischen Bedienung der Mikrometerfeinstellschrauben begründet. Außerdem können die Nanopartikel-Strukturen nicht mit der nötigen Präzision zentriert werden. Die Nanopartikel müssen mehrmals angefahren werden, bis sie sich in der Mitte des Fokus befinden.

Als Antwort auf diese Schwierigkeiten wurde das im nächsten Abschnitt vorgestellte Zwei-Kamera-System aufgebaut.

3.1.2 Zwei-Kamera-System

Das Zwei-Kamera-System ist die Erweiterung des Ein-Kamera-Systems. Um die beobachteten Schwierigkeiten zu überwinden, erscheint es sinnvoll, auf die Klapplinse zu verzichten und stattdessen einen Aufbau mit zwei unterschiedlichen Kameras für die beiden Strahlengänge von Laser und Weißlicht zu konstruieren.

Folglich wurde eine zweite CCD Kamera gleichen Typs der Firma idS-imaging eingebaut. Zudem wurde die Beleuchtung durch Weißlicht über zwei weitere Strahlteiler eingekoppelt. Der Strahlteiler BS 2 steht um 90° gedreht zu BS 1, sodass sich der Parallelversatz beider Strahlteilerplatten kompensiert.

Die schematische Darstellung des Aufbaus ist in *Abbildung 3.3* zu sehen.

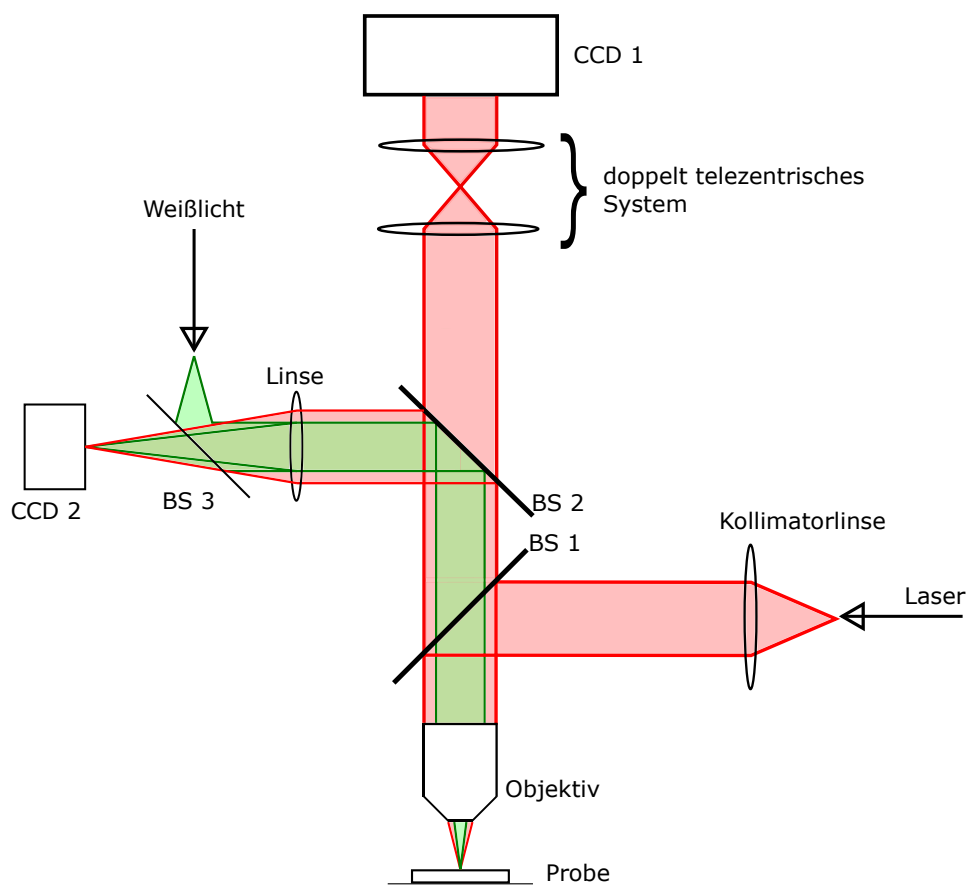


Abbildung 3.3: *Zwei-Kamera-System: Erweiterung des Ein-Kamera-Systems durch eine weitere Kamera sowie separate Weißlichtbeleuchtung.*

Die Sichtbarkeit des Laserspots auf dem Weißlichtbild der Probe ist von großem Vorteil für die Zentrierung der zu messenden Nanopartikel-Strukturen.

Außerdem wurde der Probenhalter optimiert, indem zwei über Steppermotoren an-

steuerbare Lineartische der Firma Physik Instrumente (Modell M-111.1DG1) zu einem xy-Tisch kombiniert wurden. Dies ermöglicht eine berührungslose Bedienung des Aufbaus und vermeidet Schwingungen des Probenhalters. Zudem wird eine genauere Positionierung ermöglicht. Das Objektiv wurde ebenfalls auf einen Lineartisch gleicher Art montiert, sodass hiermit auch eine genauere Fokuseinstellung möglich ist. Ein Foto dieser Optimierungen ist in *Abbildung 3.4* zu sehen. Die Ansteuerung in MATLAB erfolgt nach dem Laden der Treiber und über einfache Kommandozeilenbefehle:

```
1 %% Connecting to PI Linear Stages
2 % Load PI MATLAB Driver GCS2
3 % (if not already loaded)
4 addpath ( 'C:\Users\Public\PI\PI_MATLAB_Driver_GCS2' ); % If you ...
   are still using XP, please look at the manual for the right ...
   path to include.
5 if ( ~exist ( 'Controller', 'var' ) || ~isa ( Controller, '...
   PI_GCS_Controller' ) )
6     Controller = PI_GCS_Controller ();
7 end;
8 % Start connection
9 %(if not already connected)
10 boolPIdeviceConnected = false;
11 if ( exist ( 'PIdevice', 'var' ) ), if ( PIdevice.IsConnected ), ...
   boolPIdeviceConnected = true; end; end;
12 if ( ~(boolPIdeviceConnected) )
13 % connection type
14 %     % USB
15     controllerSerialNumber = '118000048';
16     PIdevice = Controller.ConnectUSB ( controllerSerialNumber );
17 end
18 % Query controller identification string
19 connectedControllerName = PIdevice.qIDN()
20 % initialize PIdevice object for use in MATLAB
21 PIdevice = PIdevice.InitializeController ();
22 % Show connected stages
23 % query names of all controller axes
24 availableAxes = PIdevice.qSAI_ALL
25 % get Name of the stage connected to axis 1
26 PIdevice.qCST ( '1' )
27 % Show for all axes: which stage is connected to which axis
```

```
28 for idx = 1 : length ( availableAxes )
29     % qCST gets the name of the
30     stageName = PIddevice.qCST ( availableAxes { idx } );
31     disp ( [ 'Axis ', availableAxes{idx}, ': ', stageName ] );
32 end
33
34
35 % Overview of used Commands
36 % IMPORTANT: before using the linear stages, they must be ...
37           referenced in the PI software tool. Otherwise the hardware ...
38           can move against the end of the stage and be damaged.
39
40 % Position query
41 Position_x = PIddevice.qPOS('1');
42 % Move axis in global coordinate system
43 PIddevice.MOV('1',Position_x);
44 % move axis incrementally
45 PIddevice.MVR('1',increment[mm]);
```

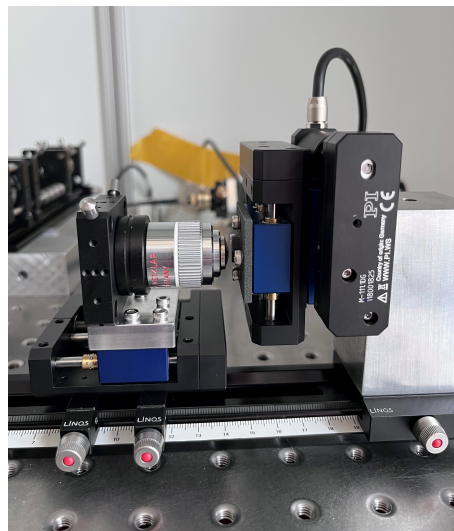


Abbildung 3.4: Foto des aus zwei Lineartischen aufgebauten Probenhalters. Das Objektiv befindet sich ebenfalls auf einem Lineartisch.

Die beiden Achromaten des doppelt-telezentrischen Systems wurden durch einen Achromaten mit 100 mm Brennweite und einen Achromaten mit 200 mm Brennweite ersetzt. Dies entzerrt den Aufbau auf Grund von größeren Abständen, wodurch Platz für den zusätzlichen Strahlteiler geschaffen wurde. Außerdem werden Aberrationen verringert, denn Achromaten haben einen minimalen sphärischen Fehler.

Im Messbetrieb zeigte sich bei dem Zwei-Kamera-System das folgende Problem.

Trotz einer deutlichen Verbesserung und genaueren Einstellungen des Probenhalters wäre eine noch höhere Präzision wünschenswert. Erreichbar wäre dies über einen xy-Piezotisch. Dieser stand aber nicht zur Verfügung. Das Problem wurde gelöst, indem die zu messenden Strukturen mehrfach angefahren wurden.

Ein Foto, welches auch die geometrischen Abmessungen des Aufbaus verdeutlicht, ist in *Abbildung 3.5* gezeigt. Dort sind alle Komponenten im Detail benannt.

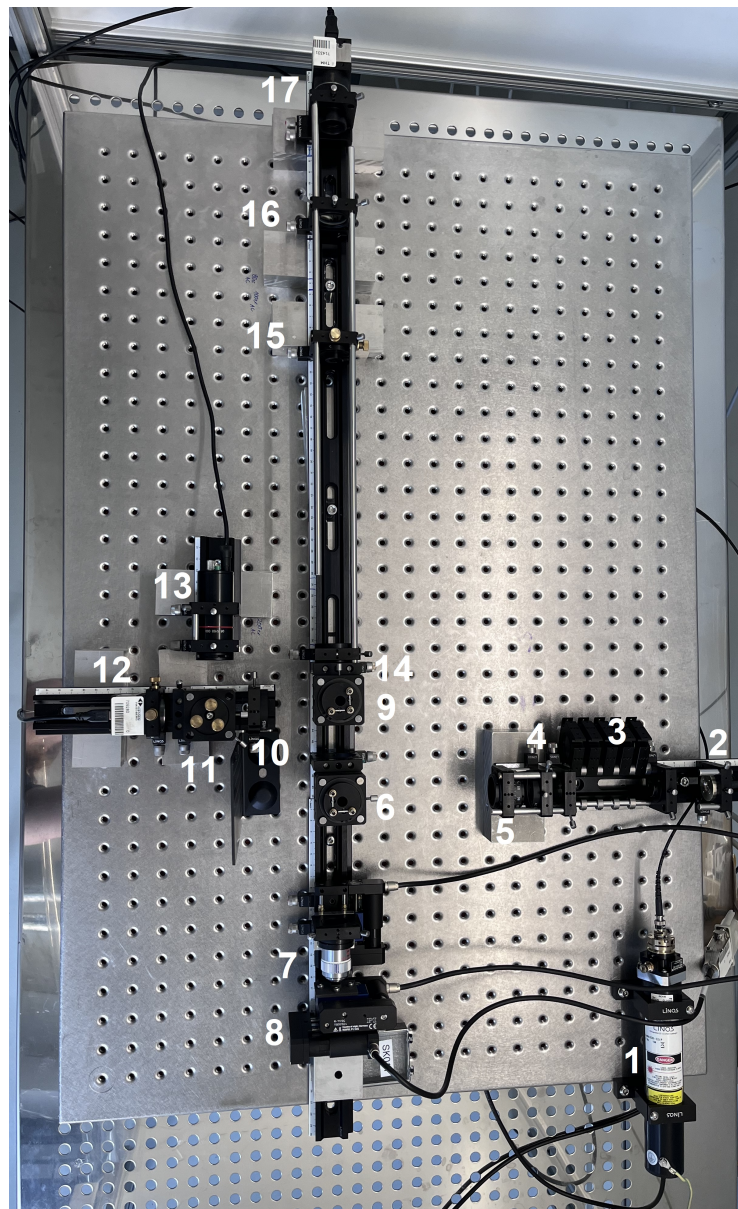


Abbildung 3.5: Foto des Zwei-Kamera-Systems: 1 - Laser, 2 - Ausgang Faserkoppler, 3 - Filterkaskade, 4 - Achromat, 5 - $\lambda/4$ Platte o. Polarisator, 6,9,11 - Strahlteiler, 7 - Objektiv auf Lineartisch, 8 - Probenhalter, 10 - Achromat, 12 - CCD 2, 13 - Weißlichtquelle, 14 - Achromat 1 DTZ, 15 - Blende, 16 - Achromat 2 DTZ, 17 - CCD 1.

Die beiden CCDs sind mit einem außerhalb der Flowbox stehenden Computer verbunden, ebenso wie der Controller, über den die drei Lineartische bewegt werden können. Während der CFS-Messung ist es wichtig, das Weißlicht aus zu schalten, um Rauschen zu vermeiden. Wird ein anderes Objektiv verwendet, so müssen die beiden Achromaten des doppelt-telezentrischen Aufbaus neu positioniert werden, bezogen auf die Lage der Austrittspupille des anderen Objektivs. Hierzu wird anstelle der Probe ein Planspiegel eingebaut und beleuchtet. Die Justage ist erfolgreich, wenn die Pupille homogen ausgeleuchtet ist, und über scharfe Ränder verfügt.

3.2 Proben

Wir verwenden zwei verschiedene Arten von nanostrukturierten Proben. Typ 1 sind einzelne Gold-Nanostrukturen mit definierter Form, Größe und Dicke. Proben-typ 2 entspricht unterschiedlichen geometrischen Anordnungen sphärischer Gold-Nanopartikel auf 100-orientierten Silizium-Wafern. Die Goldpartikel stellen ein mittels der kohärenten Fourier Scatterometrie noch nicht untersuchtes Material dar. Bisher wurden in der Literatur nur Partikel aus Polystyrol-Latex (PSL) mit diesem Verfahren detektiert [21]. Auch die Messung von geometrisch strukturierten Nanopartikel-Arrangements ist neuartig.

Die Herstellung der Proben wurde in der Arbeitsgruppe Mikro- und Nanostrukturphysik von Herrn Professor Klar an der Justus-Liebig-Universität Gießen durchgeführt. Insbesondere Kathrin Kroth hat einen Großteil zur Entstehung der in dieser Arbeit vermessenen Proben beigetragen.

3.2.1 Herstellung der metallischen Nanostrukturen

Das Ziel der im folgenden beschriebenen Prozedur zur Probenherstellung sind geometrisch klar strukturierte Nanostrukturen aus Gold. Diese werden in vier verschiedenen Geometrien - L-Form, Linie, Punkt und Spirale - und in drei verschiedenen Höhen hergestellt.

Zu Beginn muss der zu beschreibende Silizium-Wafer gereinigt werden. Hierzu wird er zunächst mit Aceton und Isopropanol gespült, und anschließend mit gereinigter Druckluft getrocknet, bevor mit dem H_2 -Plasmareiniger die letzten Rückstände entfernt werden.

Mittels *Spin-Coating* wird eine etwa 400 nm hohe Schicht aus PMMA als Fotolack auf den Wafer aufgetragen. Dieser wird anschließend entlang des Gitters in etwa 1 cm x 1 cm große Stücke gebrochen. Auf diese Stücke wird mittels Elektronenstrahl-litographie (EBL) das gewünschte Muster geschrieben. Durch den Elektronenstrahl wird der Fotolack chemisch modifiziert, sodass man ihn lokal lösen kann. Als Entwickler verwenden wir Isopropanol und Wasser (Volumenverhältnis 2:1). Die Probe wird 45 s in dieser Mischung entwickelt, im Anschluss nochmal 20 s mit Isopropanol gespült und abschließend mit N_2 getrocknet. Man erhält also das gewünschte Muster zunächst als Negativ. Die geschriebene Struktur wird unter dem Lichtmikroskop geprüft.

Nach der Entwicklung der Muster wird Gold mittels Elektronenstrahl-Verdampfen

ganzflächig auf die Probe aufgedampft. Die Höhe der Struktur ergibt sich aus der Dauer des Aufdampf-Prozesses und wird während des Vorgangs mit einem Schwingquarz gemessen. Der verbleibende Fotolack, auf welchem sich nun auch Gold befindet, wird abschließend in einem Lift-off-Prozess mit Aceton entfernt. Somit verbleibt nur noch die gewünschte Nanostruktur. Zuletzt wird die Höhe der Strukturen noch mit einem Profilometer überprüft.

Abbildung 3.6 - Abbildung 3.9 zeigen die erfolgreich hergestellten Nanostrukturen in 60 nm Höhe.

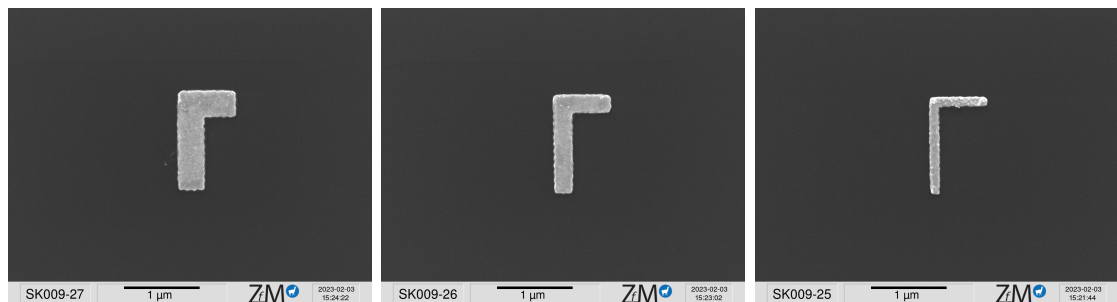


Abbildung 3.6: L-förmige Nanostrukturen mit $1\ \mu\text{m} \times 500\ \text{nm}$ Ausdehnung in 60 nm Höhe. Die Dicken betragen etwa 450 nm, 300 nm und 150 nm.

Die L-förmigen Nanostrukturen sind in *Abbildung 3.6* gezeigt. Die L-Formen sind horizontal gespiegelt. Die lange Seite ist mit $1\ \mu\text{m}$ etwa doppelt so lang wie die kurze Seite. Für die Bestimmung der Ausdehnungen der Struktur wurden, wie für die im Folgenden diskutierten Nanostrukturen auch, mehrere Strukturen an verschiedenen Stellen mit Hilfe von Bildverarbeitung unter Einbeziehung der genutzten Vergrößerung gemessen und anschließend aus einer Menge von >10 Datenpunkten gemittelt.

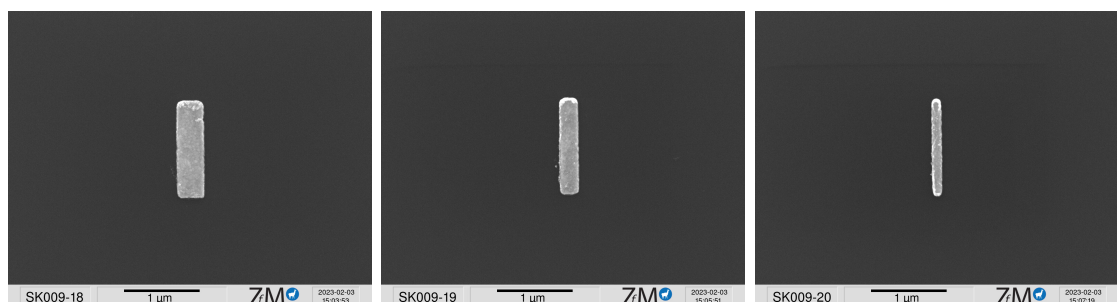


Abbildung 3.7: Linienförmige Nanostrukturen mit $1\ \mu\text{m}$ Länge in 60 nm Höhe. Die Linienbreiten betragen etwa 450 nm, 300 nm und 150 nm.

Abbildung 3.7 zeigt die linienförmigen Nanostrukturen. Ihre Länge beträgt etwa

1 μm . Die Breite variiert von 450 nm über 300 nm bis zu nur 150 nm und liegt somit deutlich unterhalb der Auflösungsgrenze.

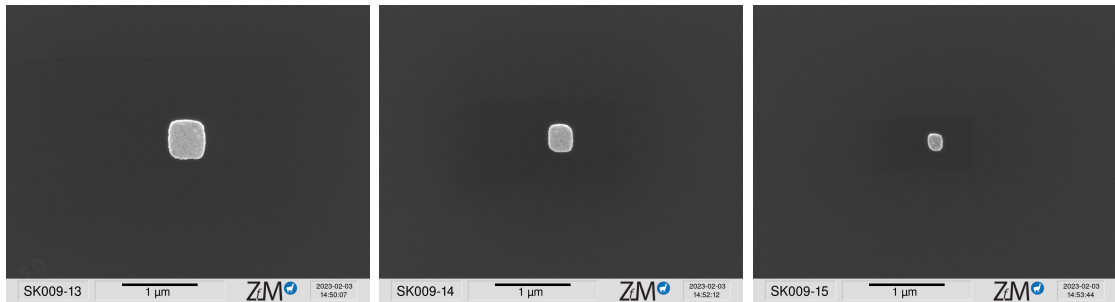


Abbildung 3.8: *Punktförmige Nanostrukturen mit Durchmessern (Diagonale) von circa 500 nm, 300 nm und 170 nm.*

Die punktförmigen Nanostrukturen sind in *Abbildung 3.8* gezeigt. Diese sind auf Grund des EBL-Prozesses nicht ideal rund, sondern etwas kantig geworden. Bei der Größenbestimmung wurde daher die Diagonale als Durchmesser gewählt. Der kleinste Punkt mit einem Durchmesser von 170 nm und einer Höhe von 60 nm stellt die kleinste zu messende Struktur dar.

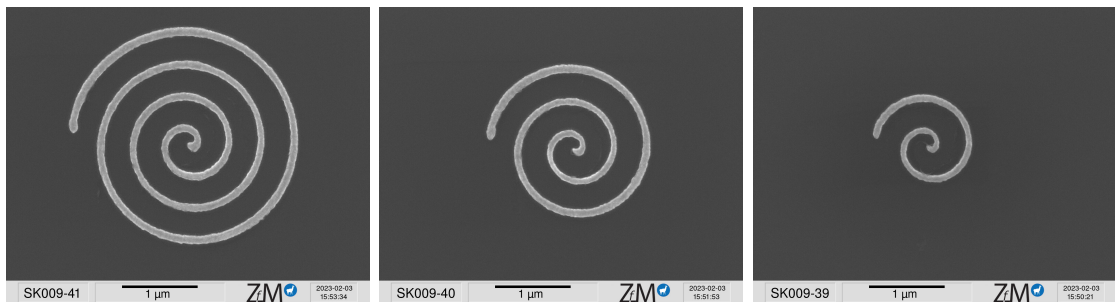


Abbildung 3.9: *Spiralförmige Nanostrukturen mit Durchmessern von circa 2,5 μm , 1,75 μm und 1 μm . Die Breiten variieren von 65-100 nm*

Die Spiralen sind in *Abbildung 3.9* gezeigt. Die Gesamt-Durchmesser dieser Strukturen liegen nicht unterhalb der Auflösungsgrenze. Die kleinste Spirale hat einen Durchmesser in der Größe des Laserspots. Jedoch liegt die Breite der Spiralstrukturen mit 65-100 nm unterhalb dieser Grenze und es wird interessant zu sehen sein, ob dies mit unserem Aufbau erkannt werden kann.

In den später folgenden Messungen werden zunächst die Pupillenbilder aufgenommen und direkt miteinander verglichen. Es wäre bereits ein Gewinn, wenn sich zum

Beispiel die Linien und L's oder die Punkte und Spiralen direkt anhand des Pupillenbildes voneinander unterscheiden ließen.

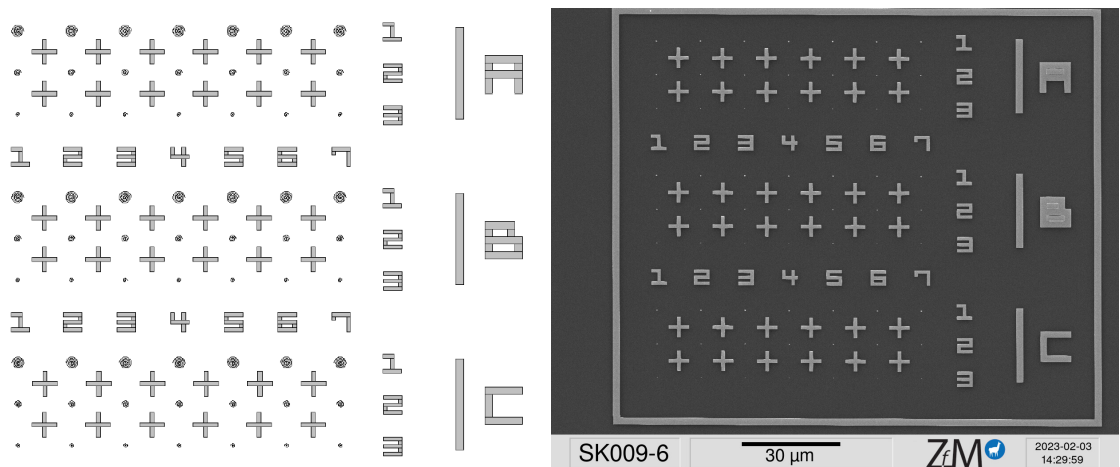


Abbildung 3.10: *Links: Markersystem für die metallischen Nanostrukturen, Rechts: Hergestellte Nanostruktur.*

Die Auflösungsgrenze unseres Systems beträgt circa 430 nm und somit liegt immer mindestens eine laterale Dimension der oben beschriebenen Strukturen unterhalb dieser. Daher können wir die Strukturen mit unserem in den Aufbau zusätzlich integrierten Weißlichtmikroskop nicht unbedingt erkennen, und müssen Marker in ausreichender Größe verwenden. *Abbildung 3.10* zeigt das Konzept der Markerstruktur für die metallischen Nanostrukturen und ein SEM-Bild eines fertig hergestellten Bereichs.

3.2.2 Herstellung der geometrischen Anordnungen sphärischer Gold-Nanopartikel

Der zweite Probentyp besteht aus geordneten Arrangements von einzelnen Nanosphären. Es handelt sich um Siliziumkugeln mit einem Kerndurchmesser von $197\text{ nm} \pm 10\text{ nm}$, welche mit einer 54 nm dicken Schicht aus Gold ummantelt sind, bezogen von der Firma NanoComposix. *Abbildung 3.11* zeigt SEM-Bilder der Partikel. Die Größe von 300 nm wird eingehalten und die sphärische Form der Partikel ist deutlich erkennbar. Im Gegensatz zu Nanopartikeln aus reinem Gold in dieser Größenordnung besteht der Vorteil einer gleichmäßigeren sphärischen Form. Der Siliziumkern ist nämlich auch in dieser Größe mit guter Präzision sphärisch, während reine Goldpartikel eine breitere Formabweichung zeigen.

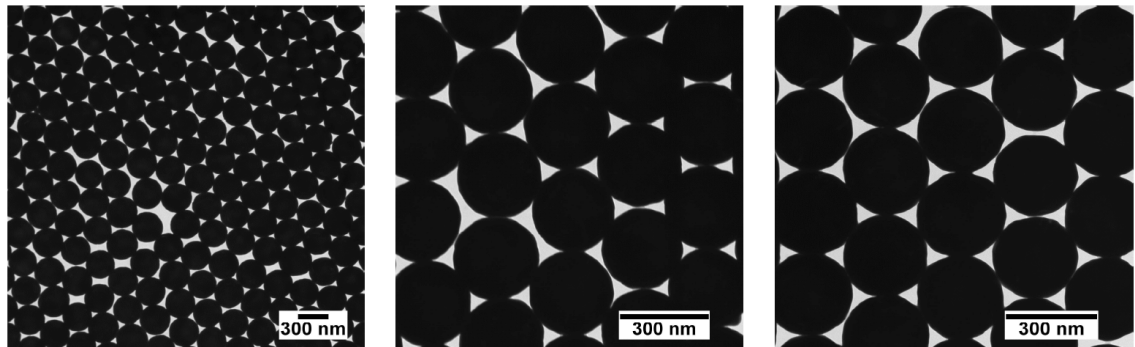


Abbildung 3.11: Darstellung der verwendeten Gold-Nanopartikel von NanoComposix. Links: Übersicht. Mitte und Rechts: detaillierte Aufnahmen zur Formprüfung der Partikel.

Die ersten Schritte des Herstellprozesses entsprechen denen der metallischen Nanostrukturen. Auch hier wird ein Silizium-Wafer mit PMMA beschichtet und die gewünschten Positionen der Nanosphären durch Schreiben mit der EBL definiert. Die Entwicklung des PMMAs erfolgt analog zu oben. Im Gegensatz zum ersten Probentyp dienen die Resistvertiefungen nun zur Aufnahme der Nanopartikel. Hierbei ist jedoch etwas mehr experimentelles Geschick von Nöten und es müssen verschiedene Ausdehnung der Resistvertiefungen, steuerbar zum Beispiel über die Leistung der EBL, und verschiedene Höhen des PMMAs getestet werden, um ein optimales Ergebnis zu erzielen. Die Nanosphären werden dann im zweiten Schritt durch einen Dip-Coating-Prozess positioniert. Eine wässrige Nanopartikellösung wird auf den strukturierten Wafer aufgebracht und mit Hilfe einer Glasplatte, die sich mit

konstanter Geschwindigkeit parallel zur Oberfläche des Wafers bewegt, über die Probenoberfläche gezogen. Die Meniskuskräfte am Rand der Glasplatte drücken die Nanopartikel in die im Resist vorbereiteten Vertiefungen. Eine ausführlichere Beschreibung des Verfahrens ist von K. Dort et. al. veröffentlicht [51]. Zuletzt muss der restliche Fotolack in Aceton ausgelöst werden. Die gelösten Rückstände werden mit Isopropanol abgespült und die Probe wieder mit N_2 getrocknet. Anschließend wird der Erfolg der Probenherstellung unter dem Mikroskop und unter dem SEM geprüft. Diese SEM Bilder dienen später als Referenz für die CFS-Messungen. Die folgenden Probengeometrien werden hergestellt:

- Einzelpartikel
- zwei nebeneinander liegende Partikel
- drei nebeneinander liegende Partikel
- eine L - bzw. Dreiecksform aus drei Partikeln
- quadratische Anordnung aus 2 x 2 Partikeln

Die Auswirkungen der Partikel auf die Austrittspupille des Objektivs sollen im Rahmen dieser Arbeit hinsichtlich Anzahl und Anordnung der Nanopartikel untersucht und miteinander verglichen werden.

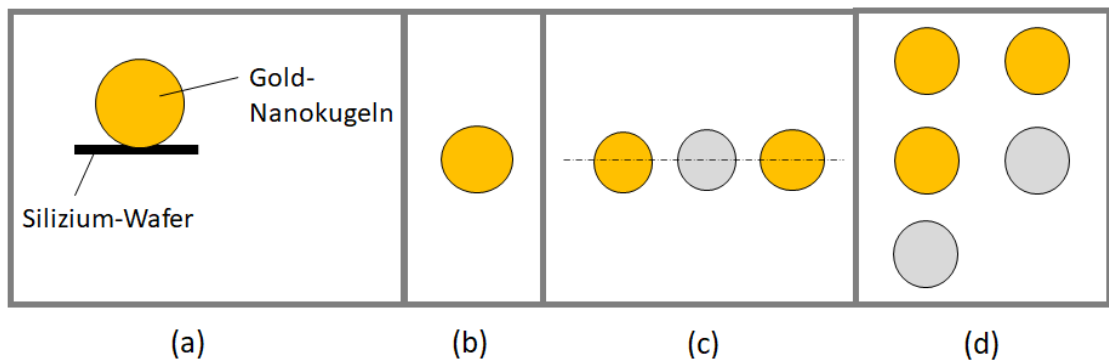


Abbildung 3.12: (a) Seitliche Darstellung eines Partikels auf der Siliziumoberfläche. Angestrebte Anordnungen: (b) Einzelpartikel, (c) zwei oder drei Partikel, (d) quadratische, dreieckige oder L-förmige Anordnung der Partikel. Graue Kreise stellen optionale Partikel dar.

Abbildung 3.12 veranschaulicht die angestrebten Probengeometrien. In Abbildung 3.12 (c) und (d) beschreiben die grauen Kreise optionale Goldpartikel, welche zusätzlich

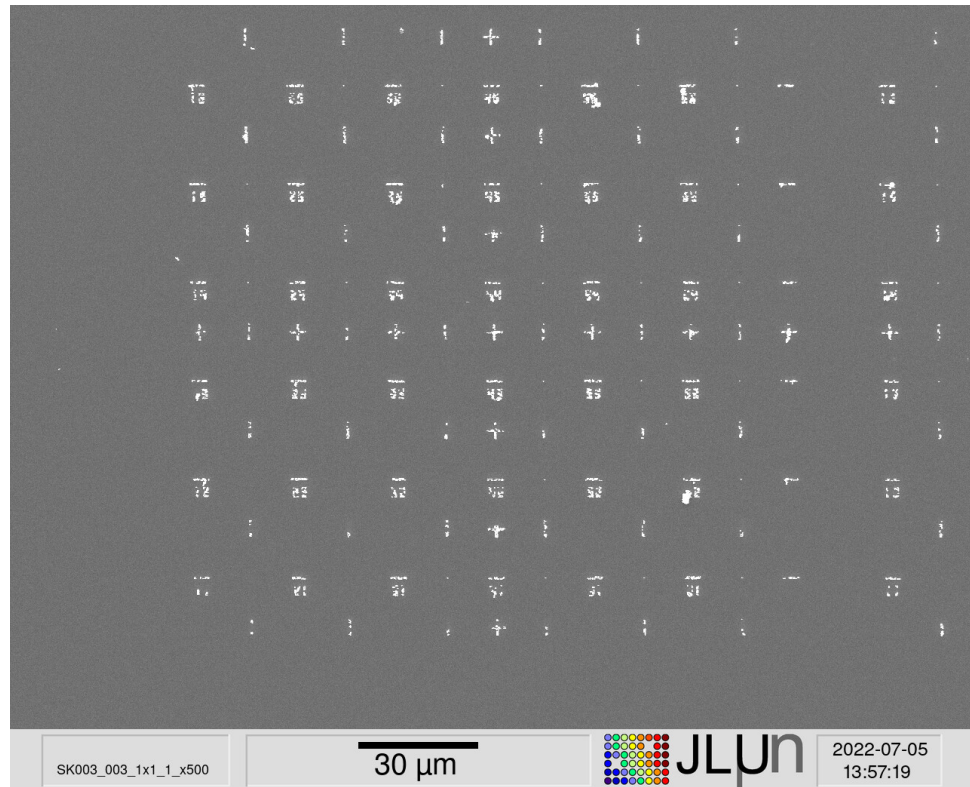


Abbildung 3.14: Schreibfeld einer Probe mit Einzelpartikeln im Zentrum der Marker.

Abbildung 3.14 zeigt das Ergebnis eines Schreibfeldes einer mit 300 nm großen Partikeln besetzten Probe. Angestrebt waren hier Einzelpartikel im Zentrum der Markerstrukturen. Allerdings erkennt man bereits an diesem Übersichtsbild, dass nicht an jeder dafür vorgesehenen Stelle ein Partikel sitzt, und nicht alle Markerstrukturen ideal gefüllt sind. Dies ist auf den anspruchsvollen Herstellungsprozess zurückzuführen. Statistisch gesehen kommt es durch Schwankungen der Partikeldichte in der wässrigen Lösung auch häufiger zu Fehlstellen oder Überbesetzungen, obwohl die Rahmenbedingungen korrekt waren. Daher wurden im Verlauf der Arbeit alle Felder in je vier Einzelbildern mit 1000-facher Vergrößerung aufgenommen, sodass für jede Probe und jede Struktur dokumentiert ist, wie genau die Strukturen angeordnet sind, zu sehen in *Abbildung 3.15*. Mit Hilfe dieser SEM-Bilder können wir nun jede Struktur eindeutig identifizieren und die entsprechenden Detailbilder als Referenz heranziehen. Eine Gesamtübersicht für die Anordnungen auf den hergestellten Proben ist in *Abbildung 3.16* zu sehen. Somit kann man sich nun unter Nutzung des im Aufbau integrierten Lichtmikroskops problemlos auf der Probe zurechtfinden.

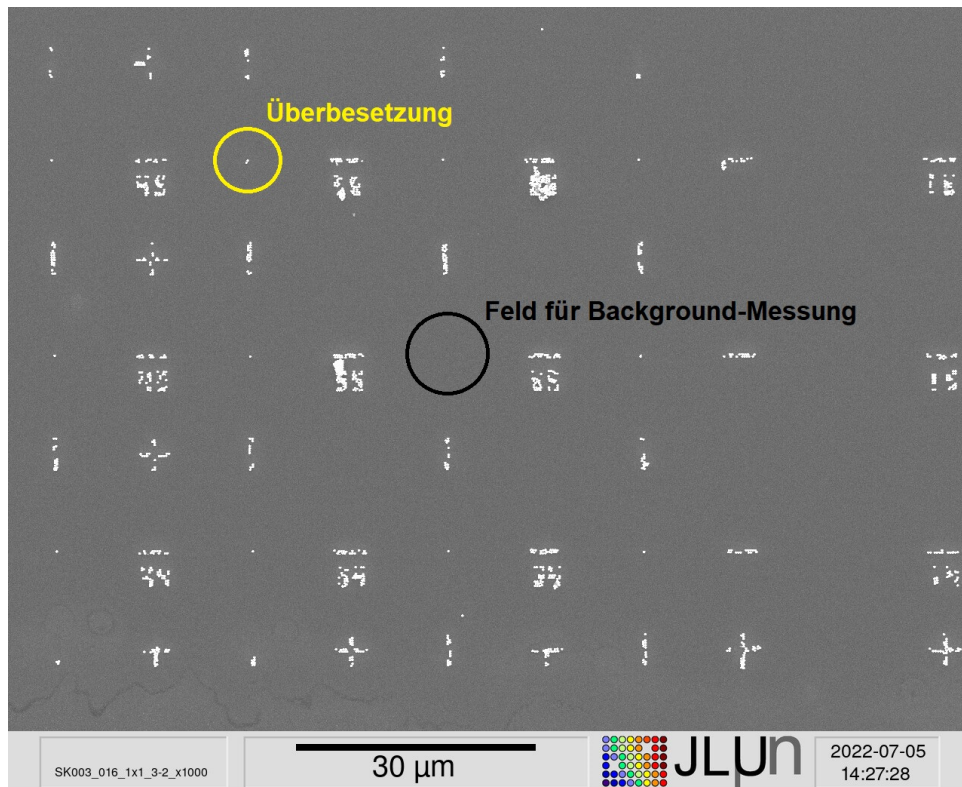


Abbildung 3.15: Vergrößertes Übersichtsbild eines Feldes mit Einzelpartikeln im Zentrum der Marker zur Erkennung von Fehlstellen oder Überbesetzungen.

Übersicht

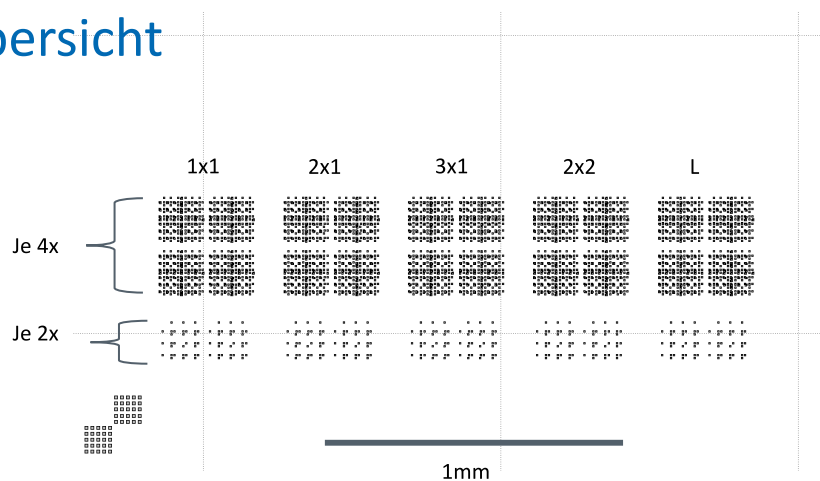


Abbildung 3.16: Übersicht über eine gesamte Probe. Für jede Geometrie wurden vier Schreibfelder erstellt. Zusätzlich finden sich weiter unten je zwei Felder mit einer entzerrten Markerstruktur.

Abschließend folgt noch die Darstellung detaillierter Bilder der gemessenen Geometrien. Die Herstellung der oben als aufschlussreich eingeordneten Anordnungen war erfolgreich, wie die nächsten Bilder zeigen.

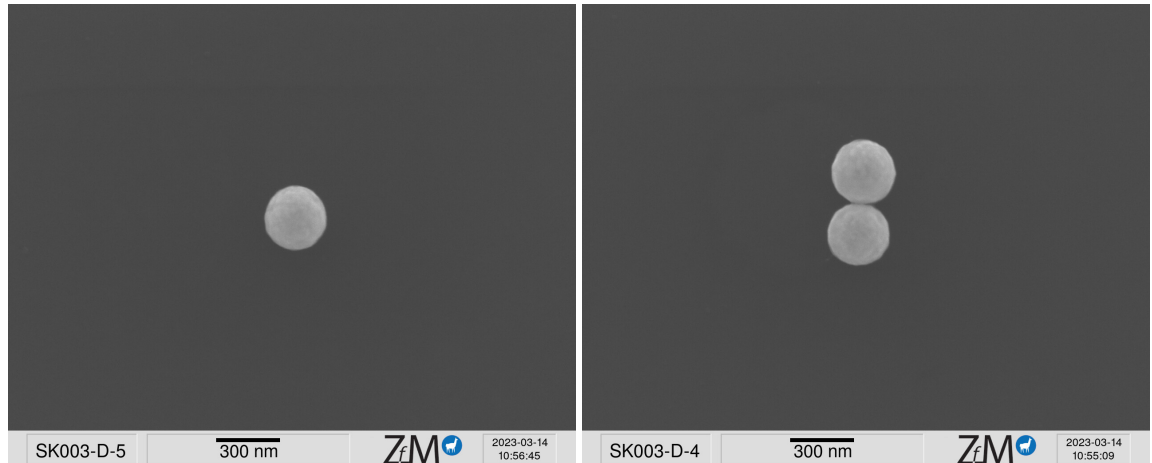


Abbildung 3.17: *Links: Einzelpartikel. Rechts: zwei direkt benachbarte Partikel.*

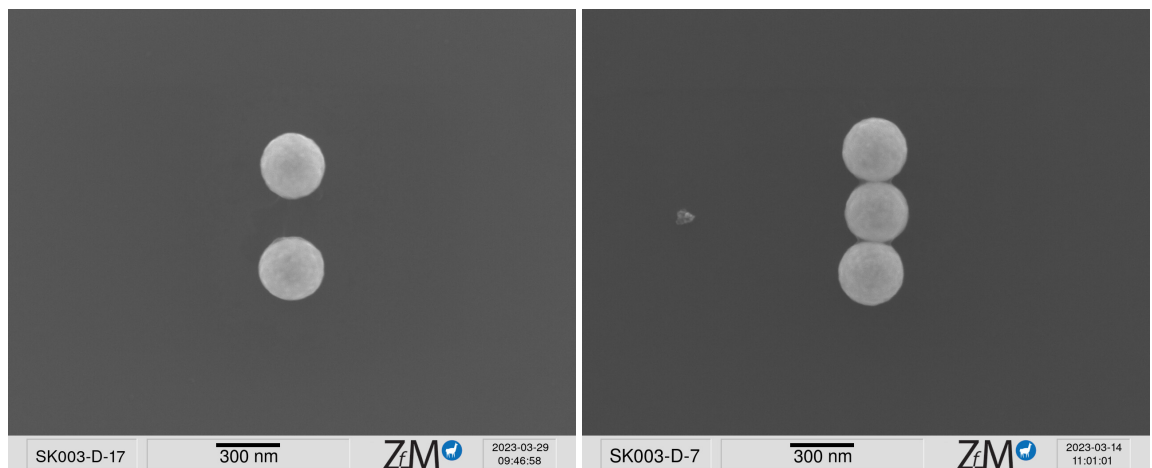


Abbildung 3.18: *Links: zwei benachbarte, aber um einen gewissen Abstand separierte Partikel. Rechts: drei direkt benachbarte Partikel.*



Abbildung 3.19: Links: dreieckige Anordnung mit drei Partikeln. Rechts: quadratische Anordnung aus vier Partikeln.

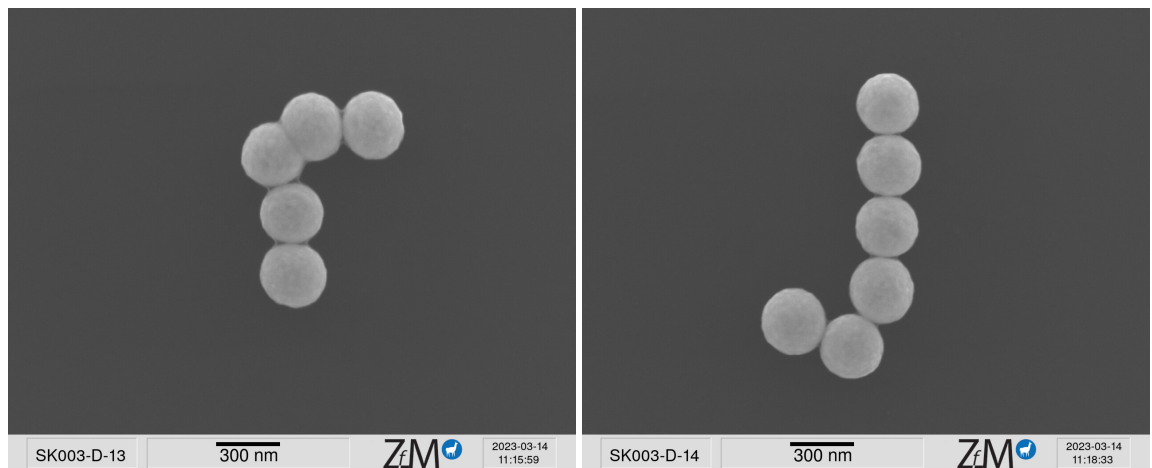


Abbildung 3.20: L-förmige Anordnungen. Links: im Folgenden als L1 bezeichnet. Rechts: im Folgenden als L2 bezeichnet.

Kapitel 4

Ergebnisse

4.1 Detektion von Einzelpartikeln

Dieser Abschnitt behandelt die Detektion von isolierten Einzelpartikeln. Diese wurden mit dem Ein-Kamera-System detektiert. Die Ergebnisse der mathematischen Betrachtungen aus *Unterabschnitt 2.3.1* werden genutzt, um die Intensitätsverteilung der Austrittspupille des Objektivs numerisch zu berechnen und mit den experimentellen Daten zu vergleichen.

4.1.1 Vergleich von Simulation und Experiment

Gleichung 2.73 bis *Gleichung 2.78* werden in ein Matlab-Skript umgesetzt, um die Simulation des Pupillenbildes zu erhalten. Es werden jedoch noch einige (Material-) Parameter benötigt. Im Falle des senkrechten Einfalls gilt [52, 53]:

$$R(0^\circ) = \frac{(1 - n)^2 + \kappa^2}{(1 + n)^2 + \kappa^2} \quad (4.1)$$

$$n(\text{Gold}, 633 \text{ nm}) = 0,178 \quad (4.2)$$

$$\kappa(\text{Gold}, 633 \text{ nm}) = 3,07 \quad (4.3)$$

$$n(\text{Si}, 633 \text{ nm}) = 3,882 \quad (4.4)$$

Hierbei bezeichnet $R(0^\circ)$ den Reflexionsgrad für senkrechten Einfall, n den Brechungsindex, und κ den Extinktionskoeffizienten. Ein Auszug aus der Umsetzung in MATLAB:

```

1 a = 150e-9; %radius of sphere in
2 d = 150e-9; % distance center of sphere to surface
3 % we will consider TE Polarization
4 beta = pi/4; % angle between dipole and z-axis, must always be pi...
    /4 for perpendicular incidence
5 m_surf = 3.882; %refractive index of Si
6 R_0 = 0.934;% Reflexivity with incident angle of 0
7 m_sph = 0.178;
8 epsilon_0 = 8.854e-12; %As/(Vm)
9 k = 2*pi/(633e-9); % k = 2pi/lambda
10 % dipole moment induced in the sphere is given by
11 p_TE_y = 4*pi*epsilon_0*(m_sph^2-1)/(m_sph^2+2)*a^3*1*(...
12     1+R_0*exp(2*k*i*d)).*r.*sin(theta).*sin(phi); %E_inc = 1 (...
    normed), alpha = pi, e_y spherical
13 % electric far field components
14 E_r = 0;
15 E_theta = -(k).^3.*p_TE_y./(4*pi*epsilon_0).*exp(i*k.*r)./(k.*r)...
    *((1-R_TM(theta,m_surf)).*...
16     exp(2*i*k*d.*cos(theta))).*sin(theta).*cos(beta)-(1+R_TM(...
    theta,m_surf)).*...
17     exp(2*i*k*d.*cos(theta)).*cos(theta).*cos(phi).*sin(beta));
18 E_phi = -(k).^3.*p_TE_y./(4*pi*epsilon_0).*exp(i*k.*r)./(k.*r).*...
    ...
19 (1+ R_TE(theta,m_surf).*exp(2*i*k*d.*cos(theta))).*sin(phi).*sin(...
    beta);
20 % ...
21 % at the end: functions for R_TM and R_TE
22 function RTE = R_TE(theta,m_surf);
23 % Input: theta, m_surf( surface refr. index), Output: R_TE
24 RTE = (cos(theta)-m_surf^2-sin(theta).^2).^^(1/2)./((cos(theta)...
    )+m_surf^2-sin(theta).^2).^^(1/2));
25 end
26 function RTM = R_TM(theta,m_surf);
27 RTM = - (m_surf^2*cos(theta)-(m_surf^2-sin(theta).^2)).^(1/2)...
    ./((m_surf^2*cos(theta)+(m_surf^2-sin(theta).^2)).^(1/2))...
    ;
28 end

```

Die numerische Berechnung wurde für den Fall paralleler linearer Polarisatoren unter Verwendung eines Mikroskopobjektivs mit einer NA von 0.9 bei einer Wellenlänge von 633 nm durchgeführt. Die lineare Polarisierung wurde aus Gründen der Vergleichbarkeit mit Ergebnissen aus der Literatur gewählt.

Für die Umsetzung der stereographischen Projektion in MATLAB gilt:

```
1 for i = 1:200
2     for j = 1:200
3         XY(i, j) = norm([X(i, j), Y(i, j)]) .^2;
4         r(i, j) = 2*R^2 / (XY(i, j) + R^2);
5         X_new(i, :) = X(i, :) .* r(i, j);
6         Y_new(:, i) = Y(:, i) .* r(i, j);
7         Z_new(i, j) = R * (1 - r(i, j));
8     end
9 end
10 % R: Radius of sphere
11 % X, Y : matrices with meshgrid-coordinates of the old values
```

Die Ergebnisse dieser theoretischen Überlegungen sind normiert in *Abbildung 4.1* dargestellt.

Man kann deutlich die symmetrische Intensitätsakkumulation an den Rändern der Pupille erkennen. In [21] sind Pupillenbilder für PSL-Nanopartikel dargestellt. Das Streuverhalten von Gold unterscheidet sich geringfügig von dem von PSL, was sich in einem ausgeprägteren Dipolcharakter der Intensitätsverteilung zeigt. An dieser Stelle sei erneut betont, dass diese Simulation lediglich das qualitativ zu erwartende Pupillenbild aufzeigt. Der folgende Vergleich soll zur Validierung des Versuchsaufbaus dienen. Dieses theoretische Modell wurde bereits für andere Materialien zur Berechnung der Intensitätsverteilung in der Austrittspupille erfolgreich eingesetzt, was belegt, dass die Nutzung trotz der verwendeten Näherungen für einen rein qualitativen Vergleich absolut gerechtfertigt ist. Die folgende Messung und der Vergleich mit der Simulation in *Abbildung 4.1* stellt eine wichtige Prüfung des Versuchsaufbaus dar, bevor die Messung von komplexeren geometrischen Probenstrukturen durchgeführt wird.

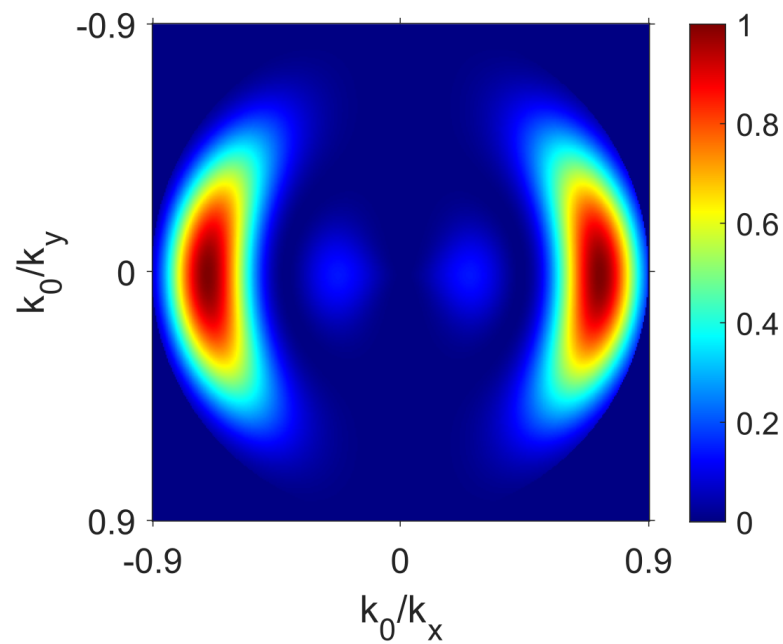


Abbildung 4.1: Numerisch berechnete Intensitätsverteilung in der Pupillenebene, wenn in y -Richtung ausgerichtete, parallele lineare Polarisatoren verwendet werden und ein 300 nm großer Goldnanopartikel in der Mitte des Laserspots positioniert ist.

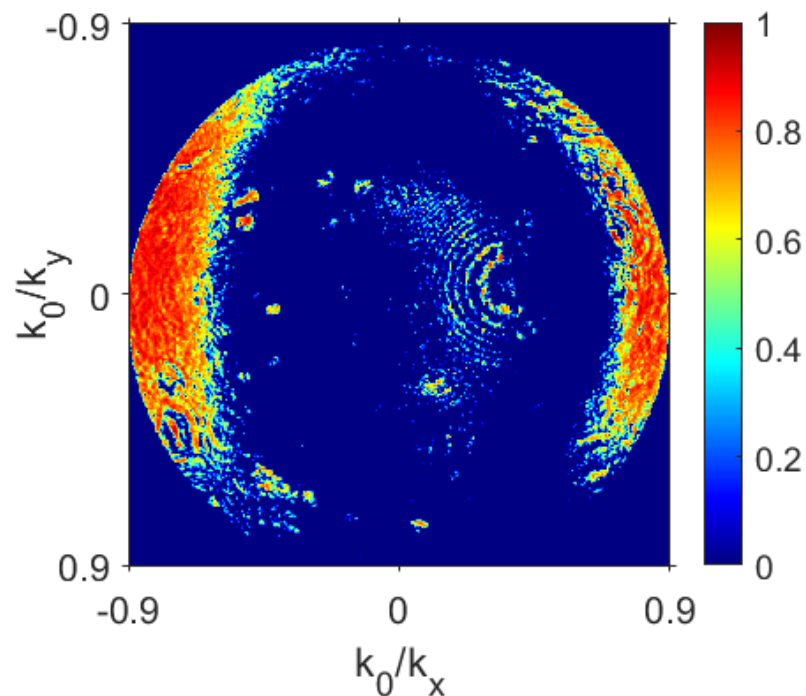


Abbildung 4.2: Gemessene Intensitätsverteilung der Austrittspupille für einen sphärischen Einzelpartikel unter Verwendung in y -Richtung ausgerichteter, paralleler linearer Polarisatoren.

Abbildung 4.2 zeigt die mit dem Ein-Kamera-System gemessene Intensitätsverteilung der Austrittspupille für die Streuung an einem einzelnen sphärischen Partikel mit einem Durchmesser von 300 nm.

Die Achsen des Pupillenbildes sind in Einheiten von k_x/k_0 skaliert. Da wir die Fourier-Ebene abbilden, befinden wir uns im k -Raum. Abbildung 4.3 veranschaulicht, dass der Radius der Austrittspupille der maximal auflösbaren Wellenzahl entspricht.

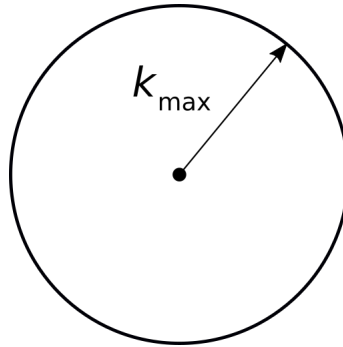


Abbildung 4.3: Illustration zur Achsenskalierung der Fourier-Ebene.

Für k_{\max} gilt:

$$k_{\max} = \frac{2\pi}{\lambda_{\min}} = \frac{2\pi}{\frac{\lambda_0}{NA}} = NA \cdot k_0 \quad (4.5)$$

Also entspricht der Radius der Pupille bei der von uns gewählten Skalierung in k_x/k_0 der Numerischen Apertur, in unserem Fall 0,9.

Passend zur Simulation wurde ein Mikroskopobjektiv mit einer NA von 0,9 und eine Wellenlänge von 633 nm verwendet. Die Intensität wurde normiert. Das Background-Signal ist in dem dargestellten Bild bereits abgezogen. Dieses wurde in einem der in Abbildung 3.13 zu diesem Zwecke frei gelassenen Feld gemessen und beinhaltet somit nur das Signal des Wafers. Es ist zu erkennen, dass das Messergebnis mit der durch die Simulation vorhergesagten Intensitätsverteilung übereinstimmt. Links und rechts (parallel zur Polarisatorstellung) bilden sich deutliche Intensitätsanhäufungen am Rand der Pupille aus. Die Asymmetrie ist auf die limitierte Zentrierfähigkeit des Probenhalters zurückzuführen. Experimentell hat es sich mit den zur Verfügung stehenden Lineartischen mangels Piezoantrieb als sehr schwierig herausgestellt, die gewünschte Probenstruktur exakt zu zentrieren. Im Zentrum des gemessenen Pupillenbildes zeigt sich trotz Abzug des Hintergrundes noch ein Relikt des zentralen Reflexes, sowie einzelne und vermutlich auf Staub zurückzuführende kleine Bereiche erhöhter Intensität. Diese Störgrößen wurden durch Reinigen und Verbessern der

Justage zwar minimiert, zeigten sich aber dennoch in leicht ausgeprägter Form. Somit ist festzuhalten, dass das Streuverhalten eines einzelnen Partikels mit Hilfe des SOMMERFELD-RAYLEIGH-Systems erfolgreich theoretisch modelliert und vorhergesagt werden konnte. Die durch die Näherung entstandenen Ungenauigkeiten sind vertretbar, um dennoch ein qualitatives Bild der zu erwartenden Intensitätsverteilung zu erhalten. Das gemessene Pupillenbild stimmt gut mit dem Ergebnis der Simulation überein. Somit kann auch unser experimenteller Aufbau, der für diese Messung erstmalig in Betrieb genommen wurde, validiert und grundsätzliche Fehler ausgeschlossen werden. Auch bei der wiederholten Messung verschiedener Einzelpartikel zeigt sich eine verlässliche Wiederholgenauigkeit. Dies stellt eine wichtige Voraussetzung für die nun anstehenden Messungen von Proben mit komplexeren Geometrien dar. Denn der für eine exakte Berechnung der Intensitätsverteilung von komplexen Proben notwendige Aufwand bzgl. einer theoretisch basierten Simulation ist im Rahmen dieser Arbeit nicht leistbar. Umso wichtiger ist es, sicher sein zu können, dass der experimentelle Aufbau keine Fehler enthält.

Abschließend folgen nun noch einige Erläuterungen zum Hintergrund des zur Simulation verwendeten Modells. Man kann nämlich durchaus den Einwand bringen, dass Gold als Metall über einen komplexen Brechungsindex verfügt, weshalb das Absorptionsspektrum berücksichtigt werden müsste. Zudem handelt es sich ja auch nicht um reine Goldpartikel, sondern um Sphären aus Silizium, die mit Gold ummantelt sind.

Zur Beantwortung der Frage, ob nicht auch die Eigenschaften und Materialparameter des Siliziumkerns in Betracht gezogen werden müssen, betrachten wir zunächst die Eindringtiefe einer elektromagnetischen Welle in Gold. Diese gibt an, nach welcher Länge eine in das Metall eindringende ebene Welle auf $1/\sqrt{e}$ abgefallen ist. Die Eindringtiefe δ ergibt sich aus [54, S.32]

$$\frac{I}{I_0} = \frac{1}{\sqrt{e}} = \exp\left(-\frac{2\pi\kappa\delta}{\lambda_0}\right) \quad (4.6)$$

$$\Rightarrow \delta = \frac{\lambda_0}{4 \cdot \pi \cdot \kappa} \quad (4.7)$$

Bei der von uns verwendeten Wellenlänge von 633 nm hat Gold einen Extinktionskoeffizienten von $\kappa = 3,43$ [55]. Somit erhalten wir eine Eindringtiefe von etwa 14,67 nm, die wesentlich geringer ist als die Dicke der Goldschicht.

Um unser Vorgehen noch weiter zu bestärken, betrachten wir nun noch die Volu-

menverhältnisse von Kern und Gold-Ummantelung. Diese betragen:

$$V_{Core} = \frac{4}{3} \cdot \pi \cdot r_{core}^3 = \frac{4}{3} \cdot \pi \cdot (98 \text{ nm})^3 = 3.9425e + 06 \text{ nm}^3 \quad (4.8)$$

$$V_{Shell} = \frac{4}{3} \cdot \pi ((150 \text{ nm})^3 - (98 \text{ nm})^3) = 1.0195e + 07 \text{ nm}^3 \quad (4.9)$$

Das Volumen der Goldschicht, die den Silizium-Kern ummantelt, ist also mehr als doppelt so groß wie das Volumen des Kerns selbst. Gemäß [43, S.329] ist es also in Ordnung, die Partikel für unsere Simulation anzusehen, als bestünden sie aus reinem Gold.

Auch das Absorptionsspektrum in Abhängigkeit von der Wellenlänge ist durchaus kritisch zu betrachten. Für Nanopartikel können sich nämlich die dielektrischen Eigenschaften drastisch ändern verglichen mit den Materialien im Festkörper. Insbesondere sollte man beachten, dass beim Maximum des Absorptionsspektrums, bei der so genannten Fröhlich-Frequenz, plasmonische Effekte angeregt werden können [43, S.327]. Als Oberflächenplasmonen bezeichnet man kohärente, delokalisierte Elektronenoszillationen an Grenzflächen. Bei Nanopartikeln, deren Ausdehnung kleiner als die Wellenlänge ist, kann dieses Oberflächenplasmon sogar zu einem lokalisierten Oberflächenplasmon eingeschränkt werden. Dies resultiert aus der Einschränkung der mittleren freien Weglänge. Beim Auftreten von lokalisierten Oberflächenplasmonen treten Feldverstärkungseffekte in direkter Nähe auf, sodass unsere obige Annahme des nur von der einfallenden und direkt von der Oberfläche reflektierten Strahlung getriebenen Dipols ungültig wäre. Jedoch trifft dies auf unsere Partikel nicht zu. Die hier verwendeten Partikel sind mit einem Durchmesser von 300 nm sehr große Nanopartikel, sodass diese für *sehr* kleine Partikel stark ausgeprägten Effekte kaum auftreten. Dies wird unter anderem verdeutlicht durch die in [56] vorgestellten Ergebnisse. Dort werden die Absorptionsspektren von Arrays von Goldnanopartikeln verschiedener Durchmesser vorgestellt. Mit steigender Partikelgröße wird der Absorptionsspeak breiter und ins Blaue verschoben. Es ist zu erwarten, dass sich dieser Trend auch für weiter zunehmende Partikelgrößen fortsetzt (siehe hierzu auch [43, S.370], [57]). In [56] ist außerdem zu erkennen, dass die Absorption mit steigender Clustergröße geringer wird. Die Maxima liegen für den Fall von 100 nm großen Partikeln allesamt bei Wellenlängen von deutlich unter 600 nm. Somit können wir unsere Herangehensweise rechtfertigen. Dies heißt nicht, dass nicht vielleicht doch plasmonische Effekte auftreten. Allerdings wird unser Vorgehen diese nicht zu berücksichtigen, durch die obige Argumentation legitimiert, insbesondere da unser Ziel primär ein einfach zu implementierendes mathematisches Modell für

die *qualitative* Vorhersage ist. Zudem validiert die festgestellte Übereinstimmung von Simulation und Experiment diese Herangehensweise zusätzlich.

4.2 Messung metallischer Nanostrukturen in verschiedenen Dicken

In diesem Abschnitt wird die Messung der metallischen Nanostrukturen, welche durch Aufdampfen hergestellt wurden (siehe *Kapitel 3*), vorgestellt. Für diese Messungen wurde das Zwei-Kamera-System genutzt, was eine deutliche Vereinfachung des Ablaufes und Zeitersparnis brachte. Durch die Herstellung von vier verschiedenen Geometrien - L-Form, Linie, Punkt und Spirale - in 3 verschiedenen Höhen - 240 nm, 160 nm und 60 nm - entstehen 36 verschiedene Pupillenbilder, welche im folgenden miteinander verglichen und näher untersucht werden. Wichtig zu erwähnen ist, dass für diese Messungen *zirkular* polarisiertes Licht verwendet wurde. Dies hat den Hintergrund, die Strukturen nicht bereits in irgendeiner Vorzugsrichtung anzuregen. Insbesondere, da nicht bekannt ist, ob und inwiefern Plasmonen angeregt werden, ist die zirkulare Polarisation zu wählen. Dass für den im vorigen Kapitel beschriebenen, einzelnen sphärischen Partikel hingegen eine lineare Polarisation gewählt wurde, hat den Hintergrund der Vergleichbarkeit zu bekannten Ergebnissen und Pupillenbildern aus der Literatur ([21]). Die zirkulare Polarisation wird durch den Einsatz einer $\lambda/4$ -Platte erreicht.

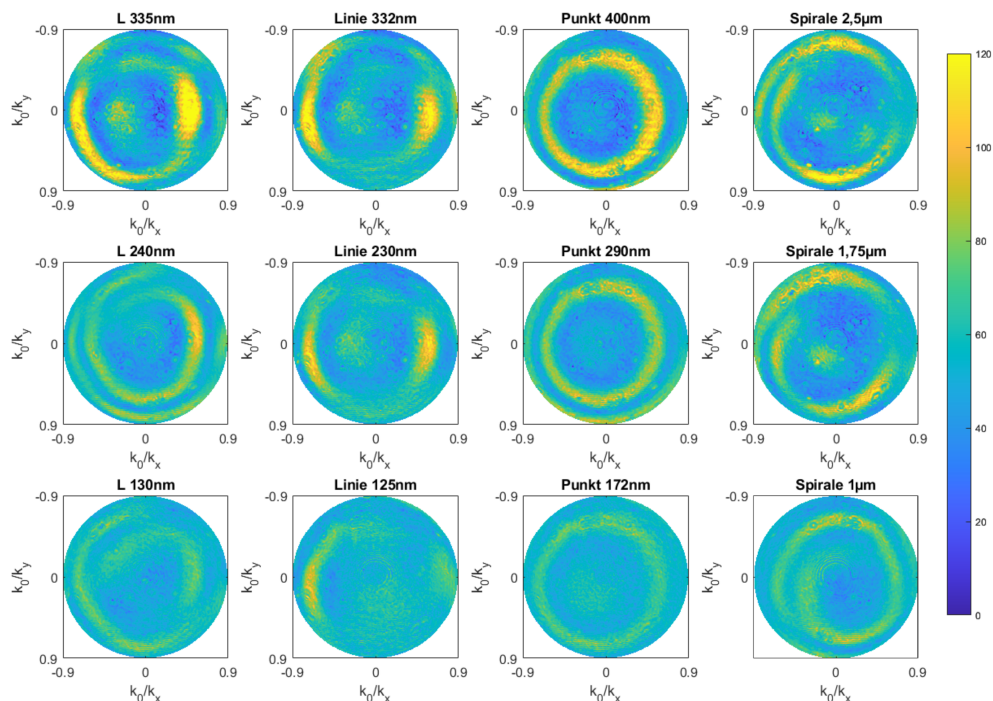


Abbildung 4.4: *Pupillenbilder der 240 nm hohen Nanostrukturen für zirkular polarisierte Beleuchtung.*

Abbildung 4.4 zeigt die Pupillenbilder für alle 240 nm hohen Strukturen in tabellarischer Form. Jeder Spalte ist einer Form zuzuordnen, die entlang der Reihen immer kleiner wird. Die genauen Ausdehnungen der jeweiligen Geometrien ist der Abbildung zu entnehmen. Die Intensitätswerte sind durch den selben, für alle Pupillenbilder gültigen, Farbverlauf veranschaulicht. Während der Messung wurden die Kameraparameter konstant gehalten, um Vergleichbarkeit zu gewährleisten.

In der ersten Spalte von *Abbildung 4.4* sind die L-Strukturen dargestellt. Vor der Interpretation dieser Pupillenbilder sei nochmals auf die Orientierung der Ls auf der Probe verwiesen (*Kapitel 3*). Die gemessenen Strukturen entsprechen nämlich einem horizontal gespiegelten L. Für alle drei verschieden großen Ls lässt sich ein qualitativ ähnliches Verhalten beobachten: in der linken Hälfte der Pupille bildet sich eine Art Ringmuster aus, wohingegen in der rechten oberen Pupillenhälfte ein Bereich mit starkem Kontrast dominiert. Insbesondere auch aus der weiteren Betrachtung der noch folgenden Pupillenbilder für die L-Strukturen kann man hieraus die Orientierung des Ls rückschließen. Das ringförmige Intensitätsmuster in der linken Hälfte der Pupille ist der langen Seite des Ls zuzuordnen, wohingegen der Bereich stärkeren Kontrasts und Intensitätsmodulation auf die kurze Seite des Ls zurückzuführen ist. Dass zum Beispiel das Ringmuster in der linken Hälfte des Ls mit 335 nm dicke nicht ganz gleichmäßig ist, ist auf Probleme bei der Zentrierung zurückzuführen. Mit abnehmender Dicke der Ls ändert sich nicht das qualitative Pupillenbild, sondern primär der Kontrast.

Die zweite Spalte in *Abbildung 4.4* zeigt die Pupillenbilder für 240 nm hohe Linien in drei verschiedenen Dicken. Gemessen wurden vertikale Linien. Man erkennt, dass sich senkrecht zu den Linien an den Rändern der Pupille Bereiche mit verstärktem Kontrast ausbilden. Parallel zu den Linien in den oberen und unteren Bereichen der Pupille tritt kaum eine Modulation der Intensität auf. Die Asymmetrien, insbesondere bei der dünnsten Linie mit 125 nm, lassen sich erneut auf die Ungenauigkeit des Probenhalters zurückführen.

Die Punkte in verschiedenen Größen sind in der dritten Spalte dargestellt. Im Gegensatz zur Messung eines sphärischen Partikels mit linear polarisiertem Licht erhalten wir für die aufgedampften Nanopunkte aus Gold bei der Messung mit zirkular polarisiertem Licht eine rotationssymmetrische Intensitätsverteilung in der Austrittspupille. Es bildet sich eine ringförmige Intensitätsverteilung aus. Auch hier sinkt der Kontrast mit der Größe der Struktur.

In der letzten Spalte von *Abbildung 4.4* sind die Pupillenbilder für die Spiralen

gezeigt, welche Dicken von 70 nm bis 90 nm haben und gegen den Uhrzeigersinn drehen. Der Drehsinn der Spiralen lässt sich auch an dem gemessenen Pupillenbild erkennen. Erneut lässt sich eine Abnahme des Kontrasts mit sinkender Größe der Struktur beobachten. Interessant ist hierbei jedoch, dass die kleinste Spirale mit einem Durchmesser von $1\ \mu\text{m}$ in etwa der Größe des Spots entspricht, wir aber für die größeren Spiralen dennoch einen höheren Kontrast detektieren. Dies kann dadurch erklärt werden, dass eventuell Feld und Pupille nicht sauber getrennt sind, und wir mit unserem Aufbau mehr Feld messen. Eine Lösung hierfür wäre es, auch die Beleuchtung des Lasers über ein Relay-System einzuführen, bei dem man an der Position des Zwischenbildes eine Blende einfügt, sodass wirklich nur achsenparallele Strahlen zur Beleuchtung herangezogen werden. Eine andere Erklärung können eventuell auftretende Waveguiding-Effekte durch die Anregung von Plasmonen sein. Da diese Arbeit allerdings eher den Anspruch eines Proof of Concept an die CFS-Methode stellt, um verschiedene Geometrien anhand der Messung unterscheiden zu können, wurden diese Adaptionen nicht weiter verfolgt und der Schwerpunkt der Arbeit auf die Messung weiterer Proben gelegt, um deren CFS-Signale mit der Probegeometrie korrelieren zu können.

Betrachtet man *Abbildung 4.4*, so erinnern die teils ringförmigen Strukturen der Intensitätsverteilungen der Austrittspupillen an Interferogramme.

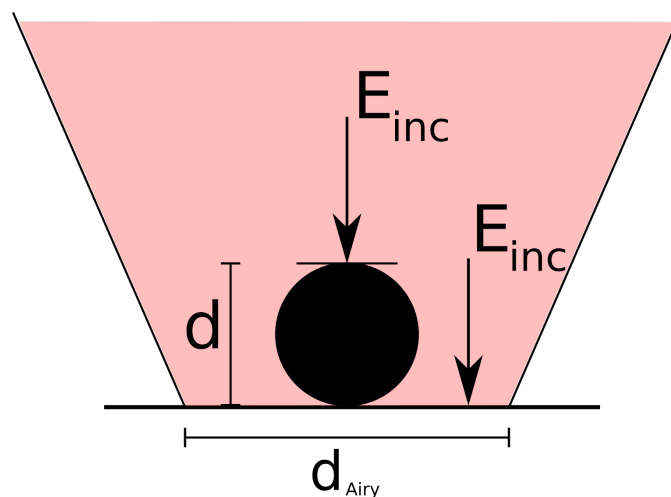


Abbildung 4.5: Skizze zur Veranschaulichung der Interpretation der Pupillenbilder.

Tatsächlich ist es legitim, die Pupillenbilder als Interferogramme zu interpretieren. *Abbildung 4.5* veranschaulicht dies. Dort sieht man den seitlichen Schnitt der vorliegenden Geometrie. Der durch die Fokussierung kegelförmig einfallende Laserstrahl hat eine Spotgröße, welche größer ist als die zu untersuchende Struktur bzw. der

zu untersuchende Partikel. Ein Teil des einfallenden Lichtes wird von der Oberseite des Partikels gestreut, im Gegensatz zu den Anteilen, die direkt von der Oberfläche reflektiert werden. Also wird an dieser Stelle durch die Höhendifferenz d ein Gangunterschied erzeugt. Das Ergebnis, die Überlagerung der zurück gestreuten Wellen, kann also auch als eine Art Interferogramm interpretiert werden. Um diesen Ansatz weiter zu verfolgen, müsste man jedoch die Phase messen, und nicht nur die Intensitätsverteilung. Es ist also zu erwarten, dass man aus der Phase der Pupille noch zusätzliche Informationen gewinnen kann. Jedoch ist das Ziel dieser Arbeit die Entwicklung eines einfachen Verfahrens. Der zusätzlich erforderliche Aufwand, die Wellenfront mit Phase über zum Beispiel ein interferometrisches Verfahren zu messen, würde dieses Ziel verfehlen.

Abbildung 4.6 und Abbildung 4.7 zeigen die Pupillenbilder der 160 nm und 60 nm hohen Strukturen. Die Anordnung der Bilder ist analog zu Abbildung 4.4. Man erkennt, dass abgesehen von den bereits bekannten Zentrierschwierigkeiten, die Intensitätsverteilungen keine qualitativen Unterschiede zu denen in Abbildung 4.4 aufweisen, sondern lediglich im Kontrast variieren.

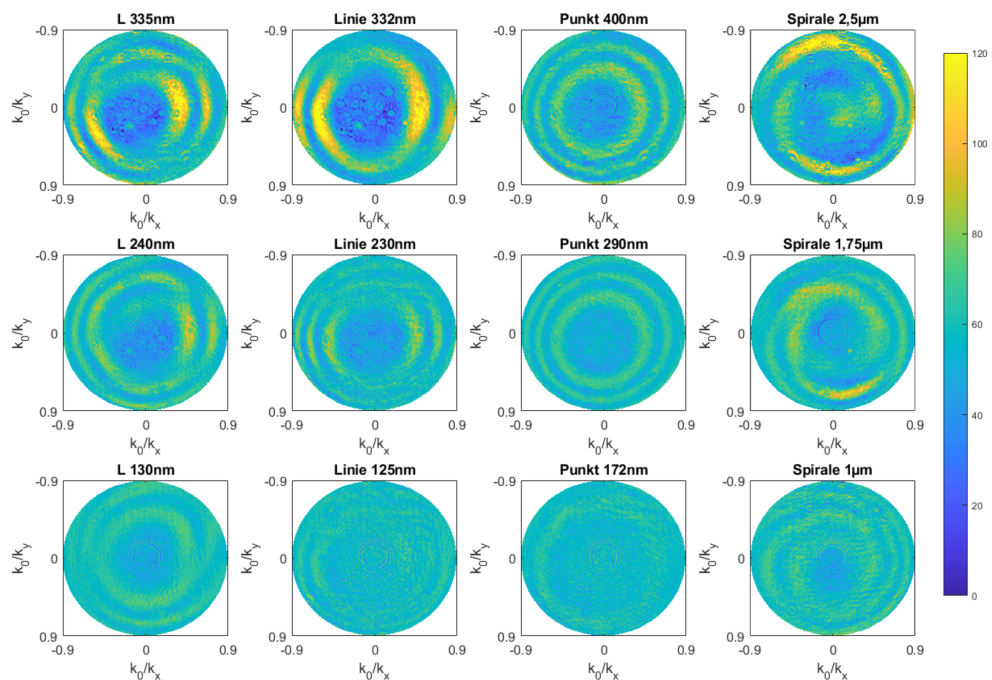


Abbildung 4.6: Pupillenbilder der 160 nm hohen Nanostrukturen, aufgenommen bei Beleuchtung mit zirkular polarisiertem Licht.

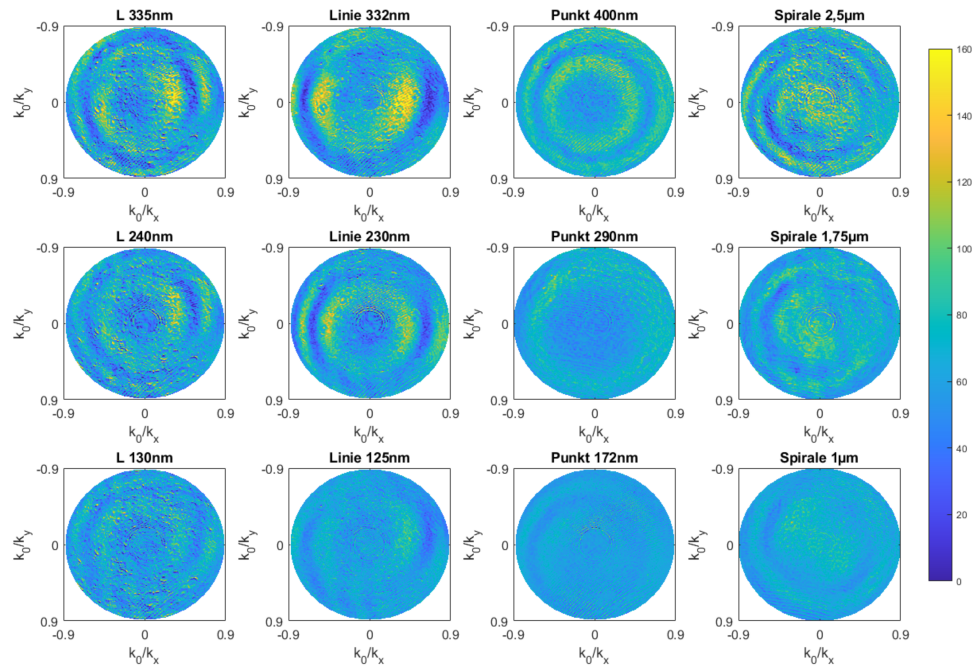


Abbildung 4.7: Pupillenbilder der 60 nm hohen Nanostrukturen bei Beleuchtung mit zirkular polarisiertem Licht.

Auch die niedrigsten Strukturen mit 60 nm Höhe können nur anhand des Pupillenbildes voneinander unterschieden werden.

Um die Pupillenbilder weiter zu untersuchen und in Relation zu setzen, wurde der Kontrast für jedes Bild bestimmt. Der Kontrast K ist definiert als [25]:

$$K = \frac{I_{max} - I_{min}}{I_{max} + I_{min}} \quad (4.10)$$

In *Abbildung 4.8* sieht man die Kontrastwerte aller 36 Messungen in Form von Säulendiagrammen. Auf der y-Achse sind die normierten Kontrastwerte dargestellt, auf der x-Achse die Namen der Strukturen. Für jede Probe, also jede Höhe, wurde ein eigenes Diagramm angelegt. In den drei Diagrammen sind die verschiedenen Strukturen in ihren drei verschiedenen Größen gruppiert, hier lediglich mit ‘klein, mittel, groß’ betitelt, die genauen Ausdehnungen sind *Abbildung 4.4* - *Abbildung 4.7* zu entnehmen. Für alle Formen von Nanostrukturen ist mit steigender lateraler Ausdehnung ein stärkerer Kontrast zu beobachten. Die gleichen Strukturen weisen mit wachsender Probenhöhe der aufgedampften Nanostrukturen streng monoton steigende Kontrastwerte auf.

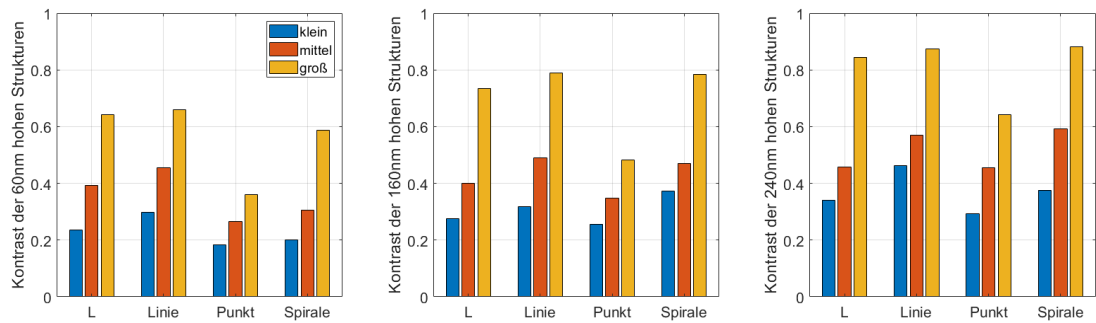


Abbildung 4.8: Vergleich der Kontrastwerte der Nanostrukturen.

Man kann also feststellen, dass der Kontrast der Intensitätsverteilung der Austrittspupille größer ist, je höher die betrachteten Strukturen sind und je größer deren laterale Ausdehnung ist. Dies erscheint physikalisch sinnvoll.

Schließlich konnten wir in diesem Abschnitt die Unterscheidung verschiedener geometrischer Nanostrukturen in verschiedenen Höhen mit der Methode der CFS präsentieren. Die unterschiedlichen Formen und Geometrien der Nanostrukturen spiegeln sich in der Intensitätsverteilung der Austrittspupille trotz der geringen Größe der Strukturen, bei denen mindestens eine laterale Komponente unterhalb der Auflösungsgrenze lag, wider. Die kleinste gemessene Struktur war ein Punkt mit einer Höhe von nur 60 nm und einem Durchmesser von 170 nm.

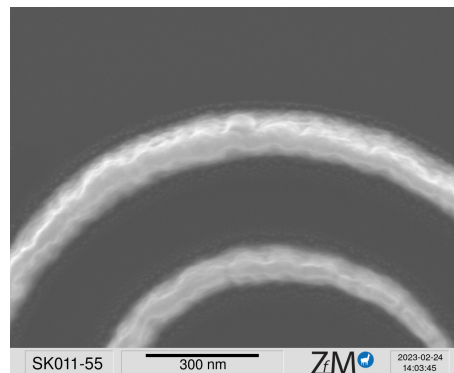


Abbildung 4.9: Detailbild einer Kante von einer Spirale auf der Probe SK011 (240 nm hoch).

Abgesehen von dem ungenau verfahrenen Probenhalter können leichte Unterschiede der Pupillenbilder auch in unsauberer Kanten der Nanostrukturen begründet

sein. *Abbildung 4.9* veranschaulicht, dass es insbesondere mit steigendem Aspektverhältnis schwieriger wird, saubere und senkrecht abfallende Kanten zu erhalten. Beim Lift-Off während der Probenherstellung können Fragmente an den Kanten der Nanostrukturen herausgelöst werden.

Es wäre durchaus interessant, weitere Untersuchungen hinsichtlich dem Einsatz der CFS zur Beurteilung des Fertigungszustandes von Nanostrukturen, und insbesondere auch auftretenden Kantendefekten, durchzuführen. Jedoch würde dies den Rahmen dieser Arbeit sprengen und das eingangs formulierte Ziel der Differenzierung zwischen verschiedenen Probengeometrien verfehlen. Daher konzentriert sich die Arbeit in den folgenden Abschnitten auf den zweiten Probentyp, der aus verschiedenen Anordnungen sphärischer Nanopartikel besteht.

4.3 Unterscheidung von geometrisch angeordneten Nanopartikeln anhand des Pupillenbildes

Nachdem gezeigt wurde, dass die metallischen Nanostrukturen anhand von CFS Messungen unterschieden werden können, werden nun verschiedene geometrische Anordnungen aus sphärischen Partikeln betrachtet. Wie in *Kapitel 3* beschrieben, handelt es sich hierbei um sphärische Goldnanopartikel mit einem Durchmesser von 300 nm, die einen Siliziumkern von etwa 196 nm Durchmesser haben. Es wurden die in *Abschnitt 3.2* gezeigten Geometrien hergestellt und mit unserem Aufbau vermessen.

In *Abbildung 4.10* bis *Abbildung 4.16* sind die entsprechenden, experimentell erfassten, und vom Hintergrund bereinigten Pupillenbilder dargestellt. Wie zuvor werden die Intensitätswerte der Pupillenbilder farblich kodiert.

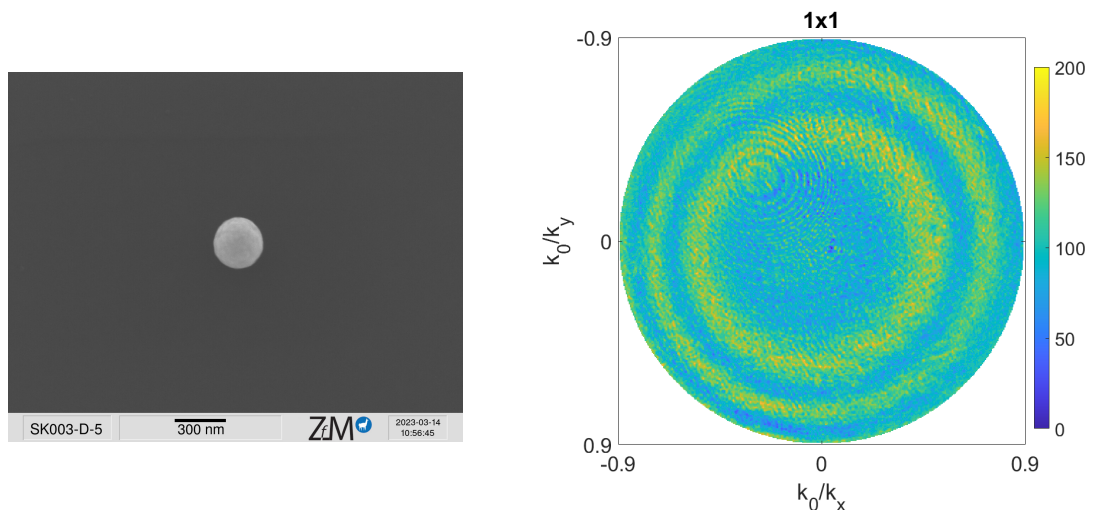


Abbildung 4.10: *Pupillenbild des einzelnen Partikels, wenn das einfallende Licht zirkular polarisiert ist.*

Das Pupillenbild einer einzelnen Nanosphäre in *Abbildung 4.10* zeigt eine rotations-symmetrische Intensitätsverteilung, die im Wesentlichen aus konzentrischen Kreisen besteht.

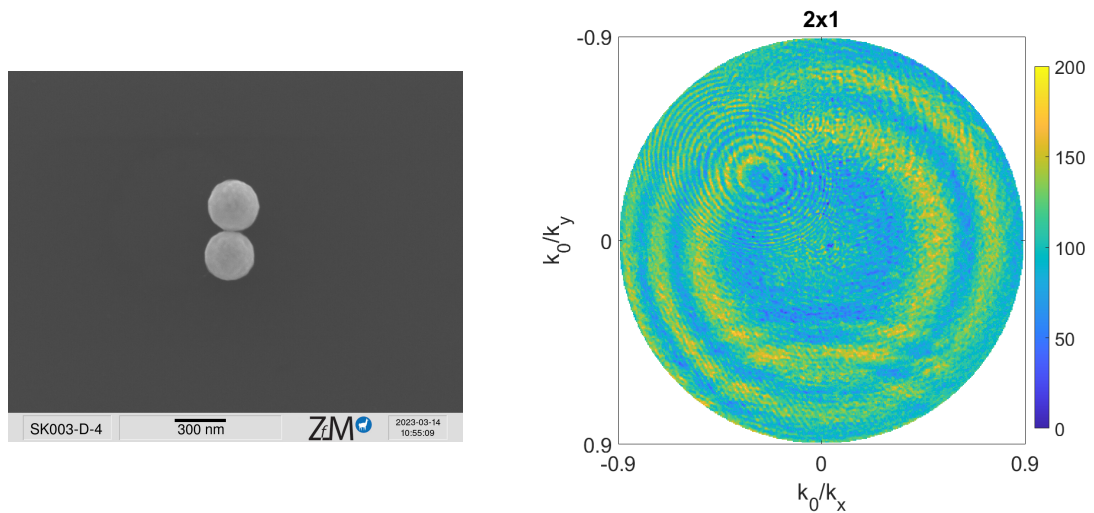


Abbildung 4.11: Pupillenbild der 2×1 -Anordnung bei zirkular polarisierter Beleuchtung (Partikel direkt nebeneinander).

Die CFS-Messung von zwei direkt benachbarten Partikeln ergibt die in *Abbildung 4.11* gezeigte Austrittspupille. Diese Intensitätsverteilung entspricht qualitativ der Verteilung, die sich für einen Einzelpartikel ergibt. Somit sind diese beiden Geometrien nicht auf Anhieb zu unterscheiden.

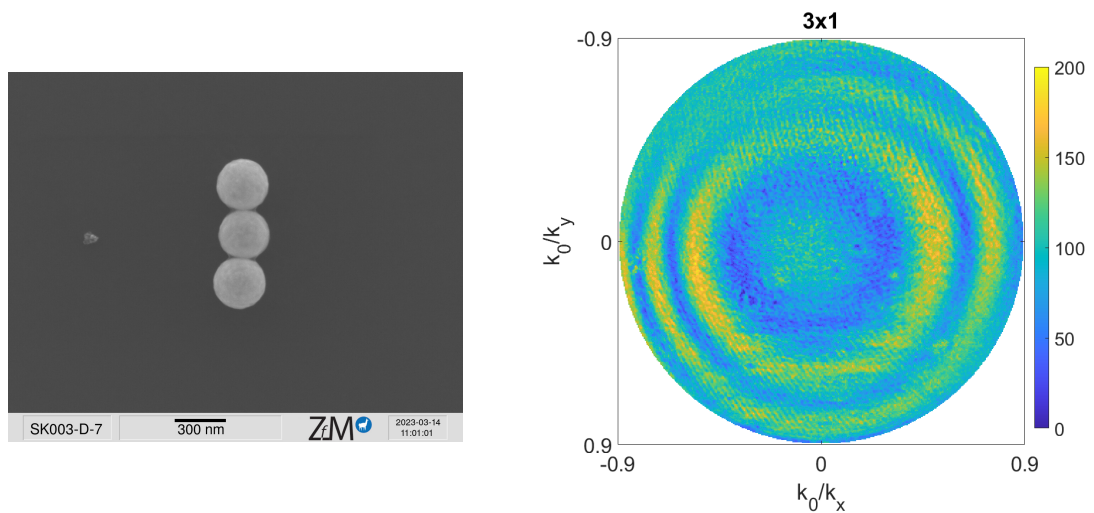


Abbildung 4.12: Pupillenbild der 3×1 -Anordnung bei zirkular polarisierter Beleuchtung (Partikel direkt nebeneinander).

Das Pupillenbild der 3×1 -Anordnung (*Abbildung 4.12* zeigt senkrecht zur Verbindungsachse der drei Nanopartikel eine stärkere Modulation der Intensitätsmaxima

und -minima, was zu einem erhöhten Kontrast in diesen Bereichen führt. Die Intensitätsverteilung dieses Pupillenbildes lässt sich gut mit den Intensitätsverteilungen vergleichen, die für die linienförmigen Nanostrukturen aus *Abschnitt 4.2* beobachtet wurden.

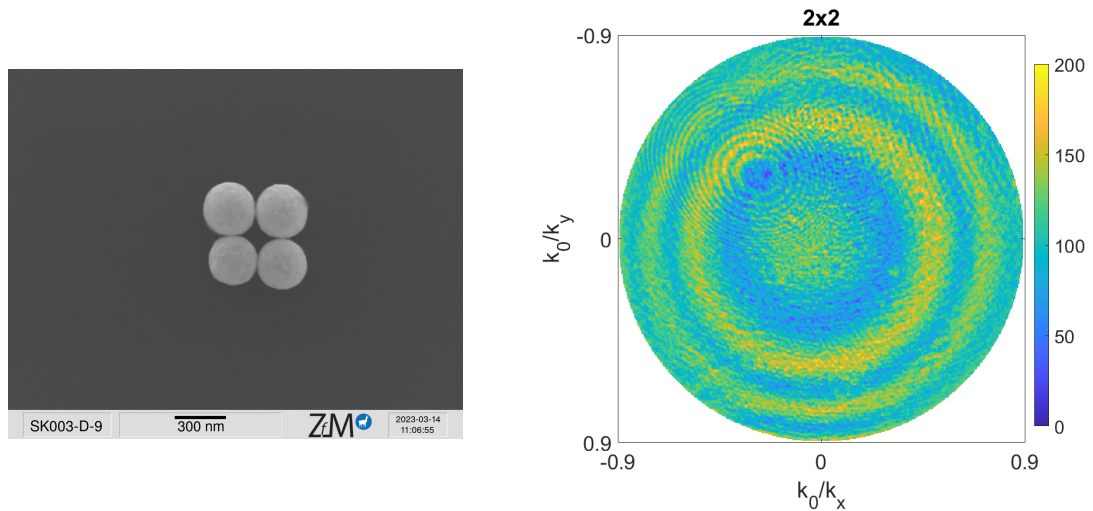


Abbildung 4.13: *Pupillenbild der quadratischen Anordnung aus vier Partikeln bei zirkular polarisierter Beleuchtung.*

Auch die Intensitätsverteilung der Austrittspupille für die quadratische 2×2 -Anordnung zeigt rotationssymmetrische, konzentrische Kreise. Die 2×2 -Struktur ist ebenfalls nicht auf Anhieb von dem einzelnen Partikel zu unterscheiden. Selbst wenn man Kriterien wie zum Beispiel den Kontrast zur Beurteilung heranzieht, konnten wir im Rahmen unserer Messungen keine statistisch sichere Abhängigkeit beobachten und somit auch keine Unterscheidung zum Einzelpartikel nur anhand des Pupillenbildes erzielen.

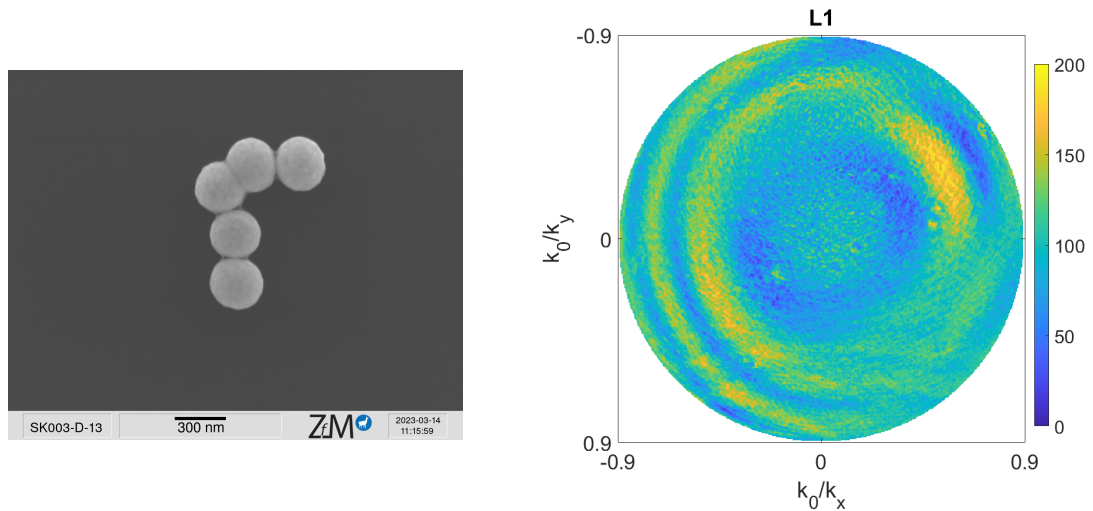


Abbildung 4.14: *Pupillenbild der L1-Struktur bei zirkular polarisierter Beleuchtung.*

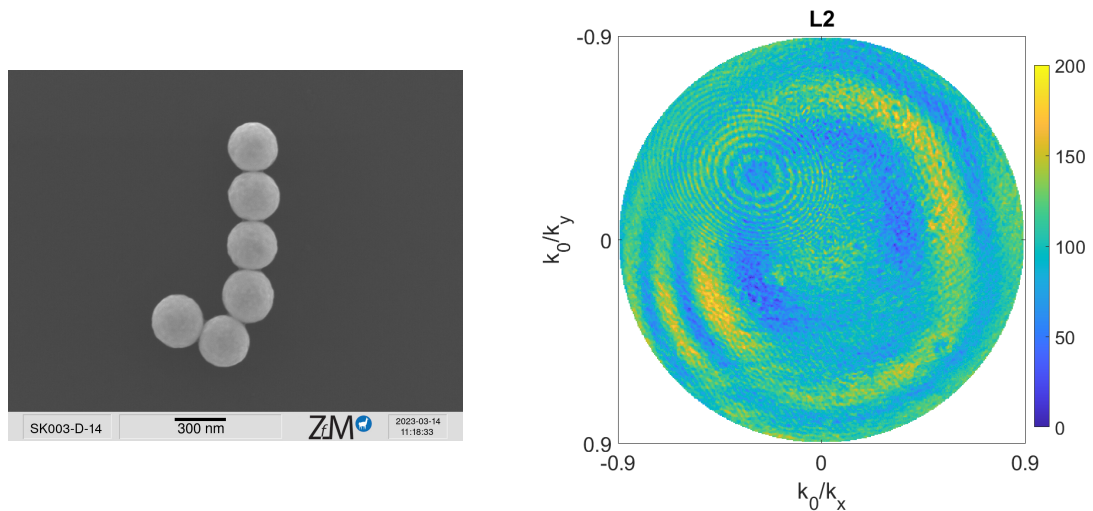


Abbildung 4.15: *Pupillenbild der L2-Struktur bei zirkular polarisierter Beleuchtung.*

Die Pupillenbilder für die beiden L-förmigen Anordnungen zeigen ebenfalls eine deutlich asymmetrische Intensitätsverteilung. Der Scheitelpunkt von L1 befindet sich in der oberen linken Ecke des Laserspots. Senkrecht zur langen Kante von L1 ist die Intensitätsmodulation stärker. In der oberen rechten Hälfte der Pupille ist ein Bereich stärkeren Kontrasts zu beobachten. Das Bild für L2 kann analog interpretiert werden. Die Intensitätsmodulation senkrecht zur langen Seite von L2 ist im Vergleich zu L1 etwas deformiert. Der Grund dafür sind Unterschiede in der geometrischen Anordnung der Nanopartikel. Die Pupillenbilder der beiden L-förmigen Anordnungen aus Nanopartikeln sind vom Verhalten her qualitativ vergleichbar mit den Intensitätsverteilungen der Ls der metallischen Nanostrukturen.

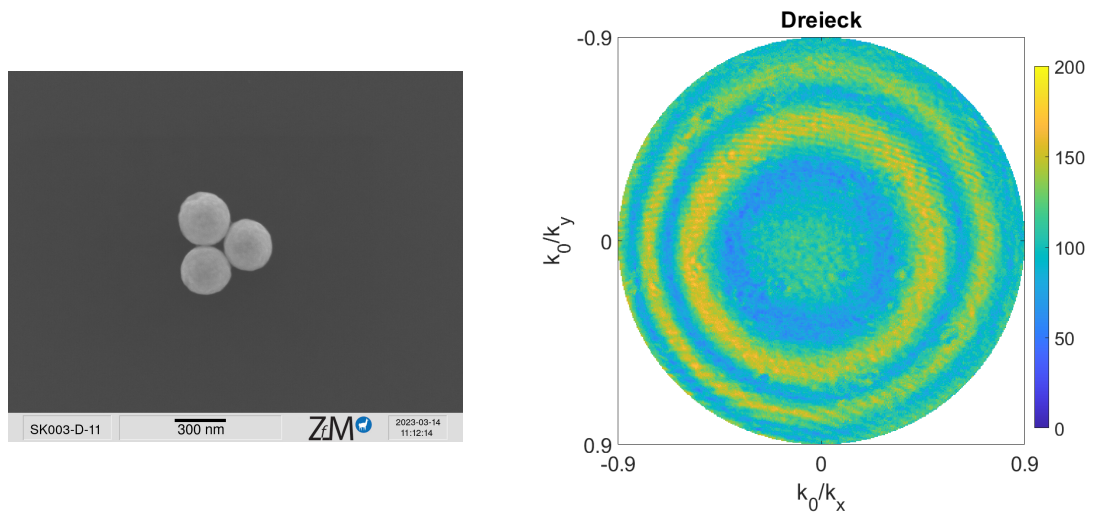


Abbildung 4.16: *Pupillenbild der dreieckigen Struktur aus drei Partikeln bei zirkular polarisierter Beleuchtung.*

Das Pupillenbild der dreieckigen Anordnung in *Abbildung 4.16* zeigt wieder eine ähnliche Intensitätsverteilung wie der Einzelpartikel und ist somit nicht direkt von diesem zu unterscheiden.

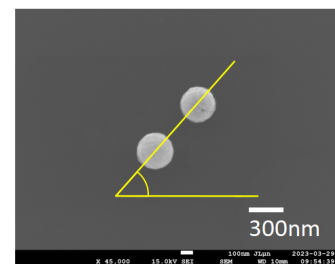
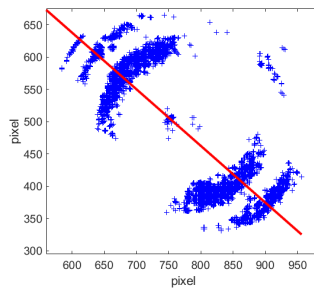
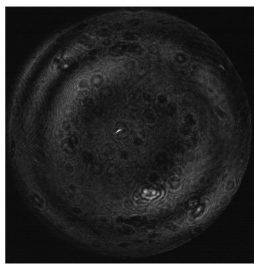
Abschließend stellen wir also fest, dass die Pupillenbilder der Nanopartikelgeometrien auf Anhieb nicht leicht zu unterscheiden sind. Insbesondere sind die Pupillenbilder des einzelnen Partikels, der 2×1 -Anordnung, der 2×2 -Anordnung und der dreieckigen Anordnung sehr ähnlich und bestehen im Wesentlichen aus konzentrischen Kreisen. Der Grund dafür ist wahrscheinlich, dass diese vier Anordnungen so dicht gepackt sind, dass sich nicht mehr als 2 Nanopartikel nebeneinander befinden und sie somit keine besondere Ausdehnung entlang einer Richtung aufweisen. Dies ist bei den übrigen drei Anordnungen anders. Bei den beiden L-förmigen Anordnungen und der 3×1 -Linie sind mindestens drei Nanopartikel in einer geraden Linie angeordnet, so dass die Anisotropie der Anordnung zunimmt und dementsprechend auch eine Anisotropie in den Pupillenbildern dieser Anordnungen besser zu erkennen ist.

Bei der Interpretation der Pupillenbilder sind die Unterschiede zwischen 3×1 - und L-förmigen Strukturen jedoch deutlich zu erkennen. Außerdem kann man Rückschlüsse über die Ausrichtung der L-förmigen Strukturen anhand der Intensitätsverteilung ziehen. Die Beobachtung, dass sich senkrecht zur Verbindungsachse der Partikel der 3×1 -Struktur eine stärkere Modulation der Intensität ausbildet, wird im folgenden ausgenutzt, um auch quantitativ die Lage der benachbarten Partikel zu bestimmen.

Methode zur Lagebestimmung von 2×1 - und 3×1 -Strukturen

Das gestreute Signal der 3×1 -Anordnung von Nanosphären erzeugt eine starke Intensitätsmodulation senkrecht zur Verbindungslinie der drei Partikel. Das gleiche Verhalten wird auch für Paare aus zwei benachbarten Partikeln beobachtet, sofern sie einen Abstand von mindestens 170 nm haben, wie beispielsweise in *Abbildung 4.17 (c)*. Im Rahmen der Messgenauigkeit des Zwei-Kamera-Systems konnten keine Unterschiede zwischen den Messergebnissen von drei direkt benachbarten Partikeln und zwei um mindestens 170 nm separierten Partikeln anhand des direkt aufgenommen Pupillenbildes festgestellt werden. Daher werden diese beiden Fälle für die folgenden Auswertungen als gleichwertig aufgefasst.

In diesem Abschnitt wird eine Methode zur Bestimmung des Winkels der Verbindungsachse zwischen benachbarten Partikeln vorgestellt. Die Ergebnisse werden durch Vergleich mit den Winkeln, die aus den entsprechenden SEM-Aufnahmen der Strukturen gewonnen wurden, validiert. Das Vorgehen wird in *Abbildung 4.17* illustriert:



(a) Gemessenes Pupillenbild. Die stärkere Intensitätsmodulation bildet sich senkrecht zur Verbindungsachse der benachbarten Partikel aus, siehe (c).

(b) Binarisierung des Bildes aus (a) über einen Schwellenwert, anschließend lineare Regression an die verbleibenden Datenpunkte, um die Ausrichtung der Verbindungsachse aus der Steigung der Regressionsgeraden zu bestimmen.

(c) Grafische Bestimmung des Winkels der Verbindungsachse zur Horizontalen aus dem SEM-Bild.

Abbildung 4.17: Veranschaulichung der Methode zur Bestimmung der Verbindungsachse zweier benachbarter Partikel, die um mindestens 170 nm separiert sind.

Der Ausgangspunkt ist das gemessene Graustufenbild der Pupille in *Abbildung 4.17 (a)*. Das Bild wird durch Festlegen eines Schwellenwerts binarisiert. Die resultieren-

de Punktwolke ist in *Abbildung 4.17 (b)* in blau zu sehen. Eine lineare Regression wird auf die Datenpunkte angewandt. Die sich ergebende Regressionsgrade ist in rot dargestellt. Über den Arcustangens lässt sich der Winkel dieser Linie zur horizontalen Achse bestimmen. Da die stärkere Intensitätsmodulation senkrecht zur Verbindungsachse der Partikels auftritt, muss der berechnete Winkel schließlich um 90° gedreht werden, damit er mit dem aus dem realen Raum stammenden SEM-Bild in *Abbildung 4.17 (c)* übereinstimmt. Das Verhalten der Intensitätsmodulation senkrecht zur Achse kann auch analog zur Beugung am Spalt nach dem Babinetschen Prinzip interpretiert werden.

Zur weiteren Überprüfung unserer Methode wurden die Verbindungsachsen von 11 Paaren von zwei Partikeln mit unterschiedlichen Ausrichtungen bestimmt und mit den Winkeln verglichen, die aus den entsprechenden SEM-Bildern abgeleitet wurden. Die Ergebnisse sind in *Tabelle 4.1* aufgezeigt.

Tabelle 4.1: *Winkel bestimmt mit der von uns vorgestellten Methode, Angabe in Grad. Vergleich der Ergebnisse mit den Winkeln aus den SEM-Bildern.*

Ergebnis Threshold Methode [°]	Winkel aus SEM Bild [°]	Differenz [°]
41.350	42.423	-1.073
40.530	46.280	5.750
45.080	43.750	1.330
43.368	43.270	0.098
40.270	43.305	-3.035
36.700	41.180	-4.480
88.620	80.620	8.000
94.530	94.436	0.094
38.180	40.438	-2.258
6.700	4.440	2.260
49.560	57.160	-7.600
mittlere Differenz von $(-1.128 \pm 4.281)^\circ$		

Das Ergebnis des Vergleichs war bei allen Proben erfolgreich, und die mittlere Winkelabweichung zwischen dem aus dem Pupillenbild abgeleiteten Winkel und dem aus dem entsprechenden SEM-Bild abgeleiteten Winkel betrug $-1,128^\circ$ mit einer Streuung von $4,281^\circ$.

Die Pupillenbilder ermöglichen es uns nicht immer, die vollständige räumliche Anordnung der Nanosphärenanordnung zu bestimmen, aber im Falle linienförmiger,

länglicher Anordnungen liefern sie die Orientierung der Hauptachse, entlang derer die Nanosphären ausgerichtet sind.

4.3.1 Verbesserung durch Fourier-Transformation

Wir stehen nach wie vor vor der Herausforderung, dass es in den in zuvor gezeigten Pupillenbildern nicht möglich ist, allein durch die Betrachtung der Intensitätsverteilung in der Pupillenebene zwischen 1×1 -, 2×1 - (Partikel direkt nebeneinander), dreieckigen und 2×2 -Strukturen zu unterscheiden. Im Folgenden wird gezeigt, dass zusätzliche Informationen durch die Durchführung einer zweidimensionalen Fast Fourier Transformation (FFT) des Pupillenbildes gewonnen werden können. Die Ergebnisse der FFT-Analyse für die verschiedenen Anordnungen sind in *Abbildung 4.18* bis *Abbildung 4.24* dargestellt.

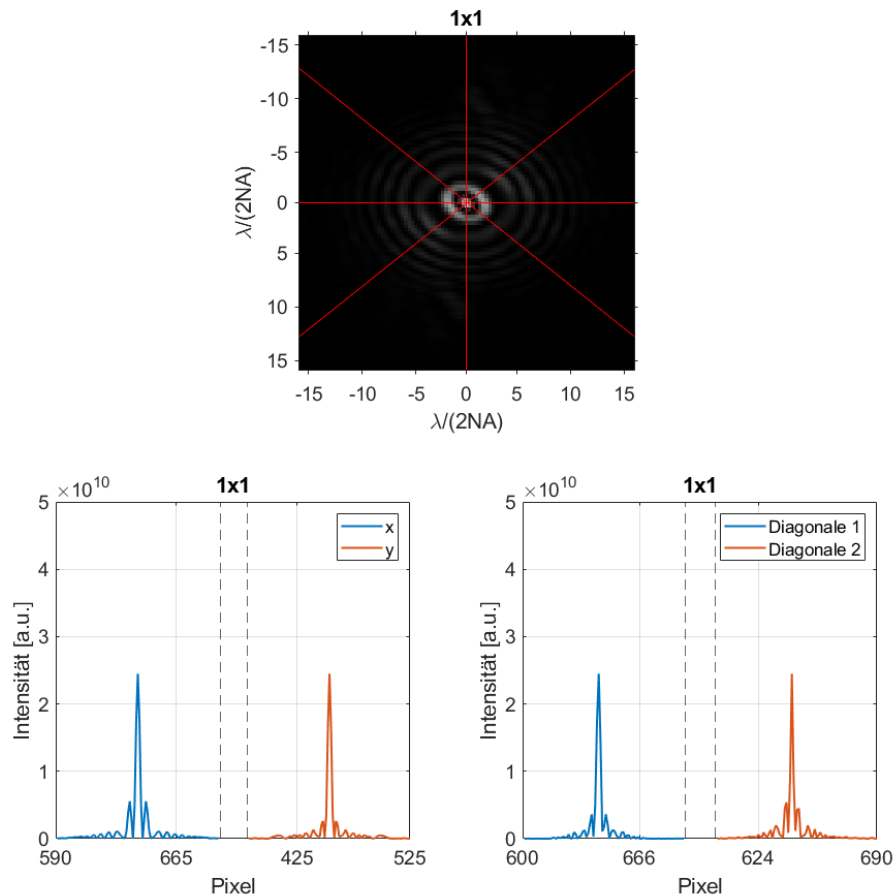


Abbildung 4.18: Zweidimensionale FFT des Pupillenbildes des Einzelpartikels und Intensitätsprofil. Die Linien, entlang denen Intensitätsschnitte für alle Anordnungen durchgeführt werden, sind repräsentativ in rot gezeichnet: x -Richtung, y -Richtung, Diagonale 1 und Diagonale 2.

Zu interpretieren sind die Ergebnisse der FFTs als durch Partikel im Airy-Spot aberrierte PSFs. Im Falle einer idealen und nicht aberrierten Wellenfront würde man, unter Vernachlässigung des Einflusses der Abbildungsfehler des Objektivs, eine ideale Airy-Funktion, wie in *Kapitel 2* gezeigt, erwarten. Durch die Fouriertransformation wird die Information vom k -Raum wieder in den Ortsraum transferiert. Anstatt der Intensitätsverteilung der Wellenfront in der Austrittspupille, dem reziproken Raum, betrachten wir nun die Auswirkungen der Anwesenheit der Anordnungen aus Nanosphären in der Bildebene. Da eine Linse nichts anderes als ein Fourier-Transformator ist, könnte man an dieser Stelle denken, es sei einfacher, die aberrierten PSFs durch Abbilden der Austrittspupille mit Hilfe einer Tubuslinse zu erhalten. Jedoch enthält die Austrittspupille, obwohl nur die Intensitätsverteilung gemessen wurde, intrinsische Informationen über die Phase, da die Intensitätsverteilung mathematisch stetig sein muss, welche bei der Bildentstehung verloren gehen. Zudem können wir mit unserer Methode eine bessere Auflösung erreichen, da die aberrierten PSFs eine deutlich geringere laterale Ausdehnung haben als der Durchmesser der Austrittspupille, und auf diesem Wege auch mehr Information über die Auswirkungen der Nanopartikel-Geometrien erhalten.

In *Abbildung 4.18* hat bereits eine Anpassung der Einheiten auf physikalische Einheiten stattgefunden. Nach der reinen Fourier-Transformation sind die Achsen einfach nur durch die Zeilen und Spalten des Bildes beschrieben. Betrachten wir zuerst die Achsen im Bild der Wellenfront. Es muss zunächst ermittelt werden, wie viele Durchmesser der Austrittspupille in die Höhe bzw. Breite des Bildes passen. Allgemein geschieht dies mit $[n, m]$ als Größe des Bildes und g als Durchmesser der Austrittspupille in Pixeln: $Q_n = \frac{n}{g}$ bzw. $Q_m = \frac{m}{g}$. Der physikalische Durchmesser der Austrittspupille beträgt für das verwendete Mikroskopobjektiv 3,6 mm und sei im Folgenden mit D bezeichnet. Somit ist leicht zu schlussfolgern, dass das Bild der Intensitätsverteilung an der Austrittspupille einen physikalischen Bereich von $\left(\frac{n}{g} \cdot D\right) \times \left(\frac{m}{g} \cdot D\right)$ repräsentieren muss. Der Abstand zweier Pixel beträgt somit also $\left(\frac{D}{g}\right)$. Damit entspricht der Wert eines Pixels an der Position u in optischen Einheiten:

$$u \cdot \frac{D}{g}, \quad u = 0, 1, 2, 3, \dots, n-1, \quad u \in \mathbb{Z} \quad (4.11)$$

Schließlich muss der Ursprung noch in die Mitte des Bildes gelegt werden, was über eine einfache Translation der Koordinaten realisiert wird, welche die Abstände zweier Pixel natürlich nicht beeinflusst:

$$u = -\frac{n}{2}, -\frac{n}{2} + 1, -\frac{n}{2} + 2, \dots, \frac{n}{2} - 1 \quad .$$

Umgesetzt in MATLAB sieht dies wie folgt aus:

```

1 Q = n/g; % Wie viele Pupillendurchmesser in Pixeln passen in das ...
  Bild?
2 D = 3.6; %Durchmesser der Austrittspupille in mm
3 % neue Achsenskalierung festlegen, Verschieben des Ursprungs in ...
  die Mitte
4 axis_exit_pupil = (-1/2:1/n:1/2-1/n)*Q*D;

```

Wie oben bereits erwähnt, erhält man die aberrierte PSF aus dem Betragsquadrat der Fouriertransformation der Intensitätsverteilung an der Austrittspupille. Mit Hilfe der hierfür nötigen Koordinatentransformation ([58])

$$x \mapsto f_u = \frac{x}{\lambda \cdot f}, \quad y \mapsto f_v = \frac{y}{\lambda \cdot f} \quad (4.12)$$

und der Tatsache, dass man durch eine Fouriertransformation in den *reziproken* Raum transformiert, sieht man, dass in Achsen der PSF der Wert eines Pixels an der Position f_u in optischen Einheiten

$$f_u \cdot \frac{1}{Q \cdot D}, \quad f_u = 0, 1, 2, \dots, n-1, \quad f_u \in \mathbb{Z} \quad (4.13)$$

beträgt. Hierbei ist λ die Wellenlänge, f die Brennweite und D der Durchmesser der Austrittspupille.

Um nun die benötigten Einheiten von x zu erhalten, muss f_u noch mit $\lambda \cdot f$ multipliziert werden. Schließlich erhält man auf der horizontalen Achse für den physikalischen Wert an der Indexposition x :

$$x \cdot \frac{\lambda}{Q \cdot 2 \cdot NA}, \quad \text{mit } x = 0, 1, 2, \dots, n-1, \quad x \in \mathbb{Z}, \quad (4.14)$$

wobei $\frac{f}{D}$ direkt durch $\frac{1}{2NA}$ ersetzt wurde. Somit liegt die selbe Einheit wie die der Wellenlänge λ vor, da Q und die Numerische Apertur NA dimensionslose Zahlen sind. Diese Umrechnung erfolgt analog für die vertikale Achse.

Schließlich muss auch für die Achsen der PSF noch eine Verschiebung in den Ursprung vorgenommen werden. Dies wird wie oben beschrieben realisiert:

$$x = -\frac{n}{2}, -\frac{n}{2} + 1, -\frac{n}{2} + 2, \dots, \frac{n}{2} - 1 \quad . \quad (4.15)$$

Umgesetzt in MATLAB erhält man:

```
1 axis_PSF = (-n/2:n/2-1)/(2*Q); % *lambda/(2NA)
```

Somit sind wir nun in der Lage, die erstellten Fouriertransformationen auch mit korrekten Achsen zu versehen.

Die zweidimensionale Fourier-Transformation des Einzelpartikels aus *Abbildung 4.18* ist rotationssymmetrisch und isotrop, was auch durch die Intensitätsschnitte gezeigt wird. Die x-Achse der Intensitätsprofile ist lediglich in “Pixeln” angegeben und in der Mitte unterbrochen, sodass man die Verläufe in x- und y- Richtung bzw. entlang Diagonale 1 und 2 gut einzeln und ohne Überlappungen erkennen kann.

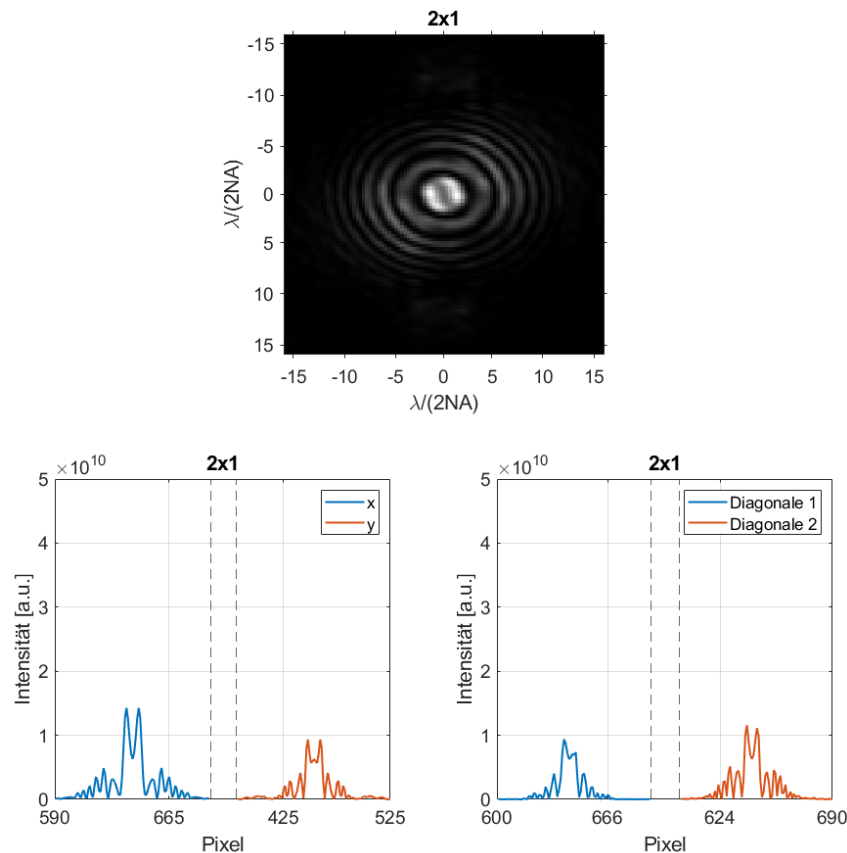


Abbildung 4.19: *Zweidimensionale FFT des Pupillenbildes der 2x1-Struktur und deren Intensitätsprofil.*

Der Vergleich der 2D FFTs der 1x1- und 2x1- Anordnung zeigt, dass es nun einfacher ist, die einzelne Nanosphäre von einem Paar zweier direkt benachbarter Nanosphären zu unterscheiden. Im Gegensatz zum Einzelpartikel beobachten wir eine s-förmige Charakteristik der Intensitätsverteilung in der zentralen Airy-Disk der zweidimensionalen Fourier-Transformation der 2x1-Anordnung. Außerdem zeigt 2x1-Anordnung eine Ungleichheit der x- und y-Richtung und der beiden Diagonalen.

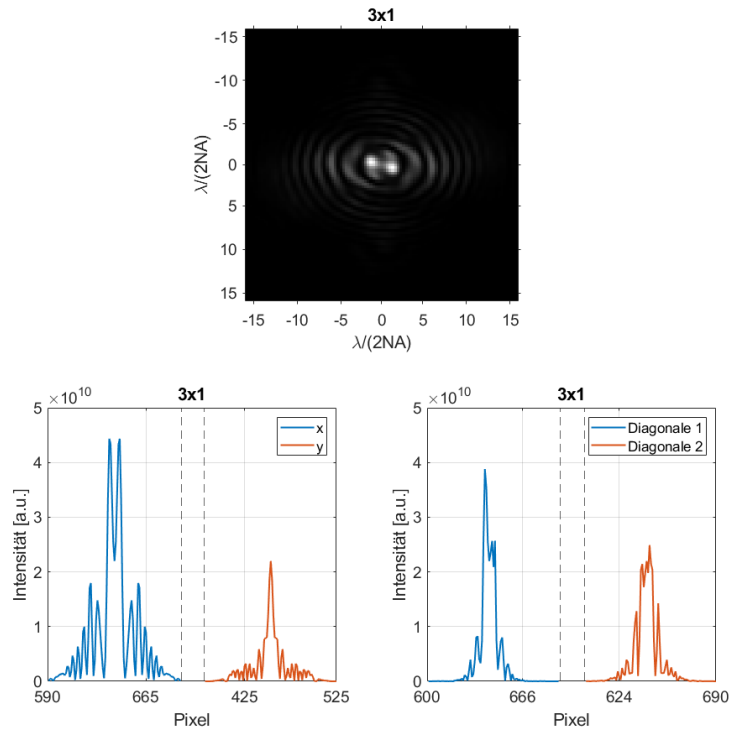


Abbildung 4.20: Zweidimensionale FFT des Pupillenbildes der 3×1 -Struktur und deren Intensitätsprofil.

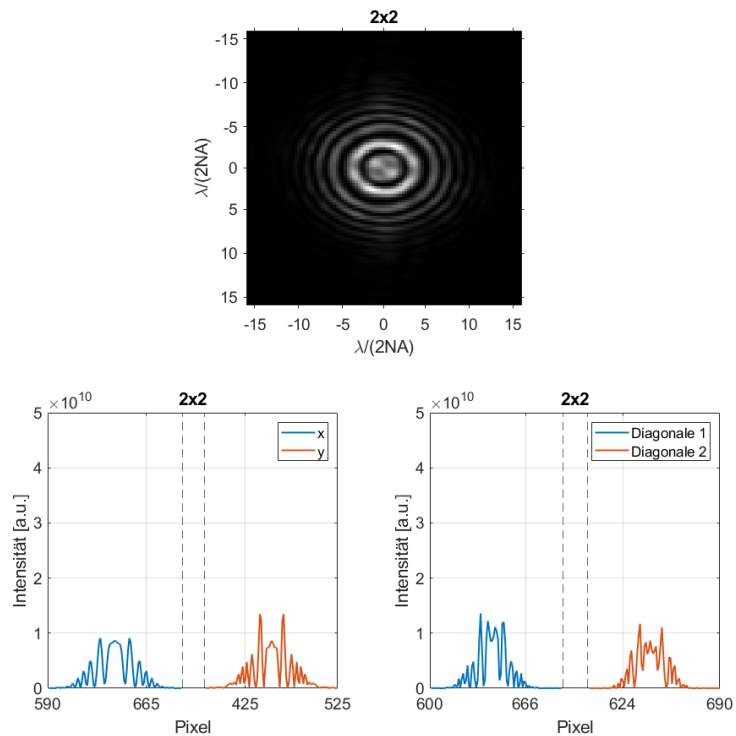


Abbildung 4.21: Zweidimensionale FFT des Pupillenbildes der quadratischen 2×2 -Struktur und deren Intensitätsprofil.

Das Verhalten der 2×1 -Anordnung zeigt sich ebenfalls im Falle der 3×1 -Anordnung, zu sehen in *Abbildung 4.20*, in noch stärker ausgeprägter Form. Darüber hinaus ist bei der 3×1 -Struktur der erste Ring, der den zentralen Bereich hoher Intensität umgibt, deformiert und weist eine Variation in der Breite auf, und der zweite Ring ist nicht geschlossen - anders als im Falle der 1×1 - und 2×1 -Strukturen. Der Unterschied des Intensitätsprofils in x- und y- Richtung ist bei der 3×1 Anordnung sogar noch ausgeprägter. Das Intensitätsprofil für die x-Richtung ist bei der 3×1 -Struktur nicht nur höher, sondern auch verbreitert. Der asymmetrische Abfall in der Diagonale 1 des Intensitätsprofils, ist bei der 3×1 -Anordnung noch ausgeprägter als bei der 2×1 - Struktur.

Die 2D FFT der 2×2 -Anordnung ist in *Abbildung 4.21* dargestellt. Diese unterscheidet sich auch insofern von der der einzelnen Nanosphäre, dass das zentrale Maximum breit ausgedehnt ist und die Intensität innerhalb der vier Quadranten der zentralen Airy Scheibe leicht variiert. Außerdem der erste Ring um den zentralen Bereich der 2D FFT der 2×2 -Anordnung viel heller als im Fall des einzelnen Teilchens, und insbesondere auch heller als das zentrale Maximum. Die FFT-Profile der 2×2 -Anordnung in x- und y- Richtung spiegeln die Breitenausdehnung der Struktur wider. Die maximale Intensität ist nicht sehr hoch, nimmt aber auch nicht so schnell ab, je weiter man sich vom Zentrum entfernt, was zu hellen Ringen führt. Die beiden Intensitätsprofile der Diagonalen zeigen ebenfalls eine breite Verteilung und besonders hohe Intensitäten in den äußeren Ringen.

Die 2D FFTs der beiden L-förmigen Anordnung zeigen beide stark deformierte Ringe und inhomogene Intensitätsverteilungen, siehe *Abbildung 4.22* und *Abbildung 4.23*. Wie zu erwarten, zeigen die FFT-Profile der L-förmigen Strukturen ebenfalls starke Unterschiede zwischen der x- und y-Richtung. Die L-förmigen Anordnungen weisen außerdem die stärksten Unterschiede zwischen den FFT-Profilen entlang der beiden Diagonalen auf. Insbesondere der erste Ring der mit Abbildungsfehlern behafteten PSF zeigt eine sehr hohe Intensität für beide Diagonalen. Im zentralen Maximum kann eine starke Asymmetrie der Intensitätsschnitte beobachtet werden. Die Intensitäten der Ringe entlang der Diagonale 2 sind deutlich höher als entlang der Diagonale 1.

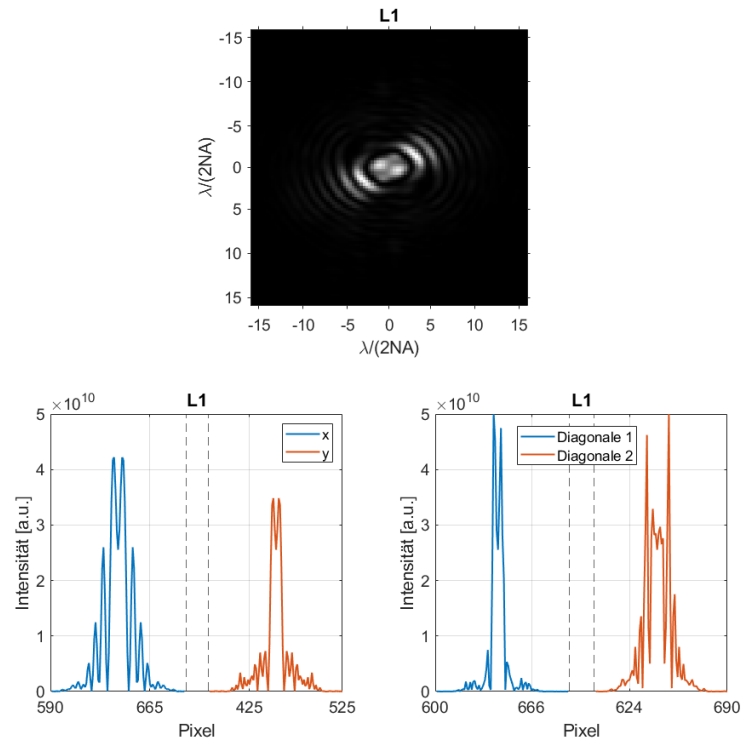


Abbildung 4.22: Zweidimensionale FFT des Pupillenbildes der L1-Struktur und deren Intensitätsprofil.

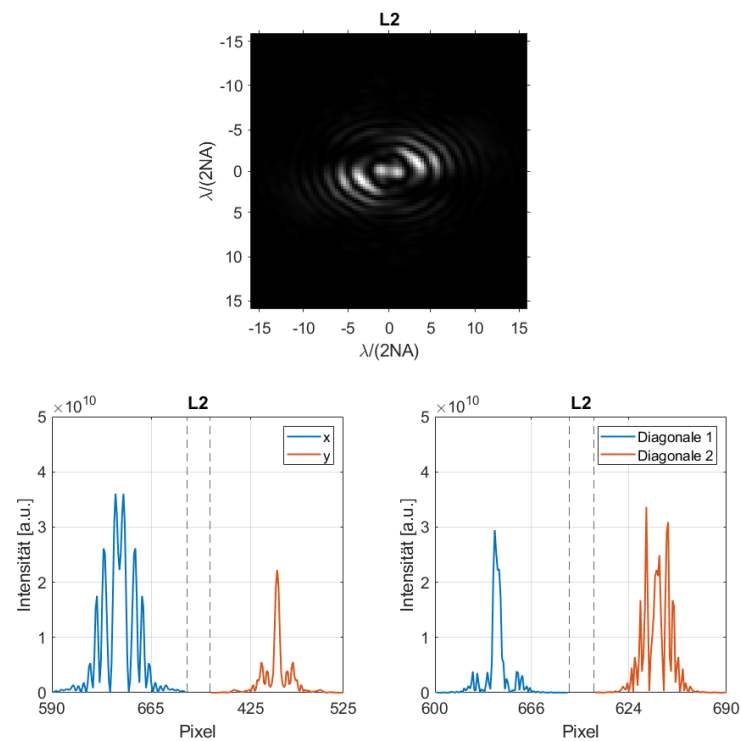


Abbildung 4.23: Zweidimensionale FFT des Pupillenbildes der L2-Struktur und deren Intensitätsprofil.

Auch die Dreiecksanordnung, zu sehen in *Abbildung 4.24*, lässt sich nun deutlich von den 1×1 -, 2×1 - und 2×2 -Anordnungen unterscheiden, und zwar durch die charakteristische Intensitätsverteilung im zentralen Bereich der zweidimensionalen FFT. Die dreieckige Struktur weist kaum Abweichungen in den Intensitätsprofilen entlang der Diagonalen 1 und 2 auf. Allerdings, im Gegensatz zu den Einzelpartikeln, sind die Kurven jedoch viel breiter und fallen langsamer ab. Die FFT-Profile entlang der x- und y-Richtung des dreieckigen Aufbaus zeigen ebenfalls aufgrund der dreifachen Symmetrie keine sehr starken Abweichungen. Sie liefern jedoch immer noch genügend Informationen um die dreieckige Anordnung von einem einzelnen Partikel zu unterscheiden, da die Graphen für das einzelne Partikel viel schmaler sind.

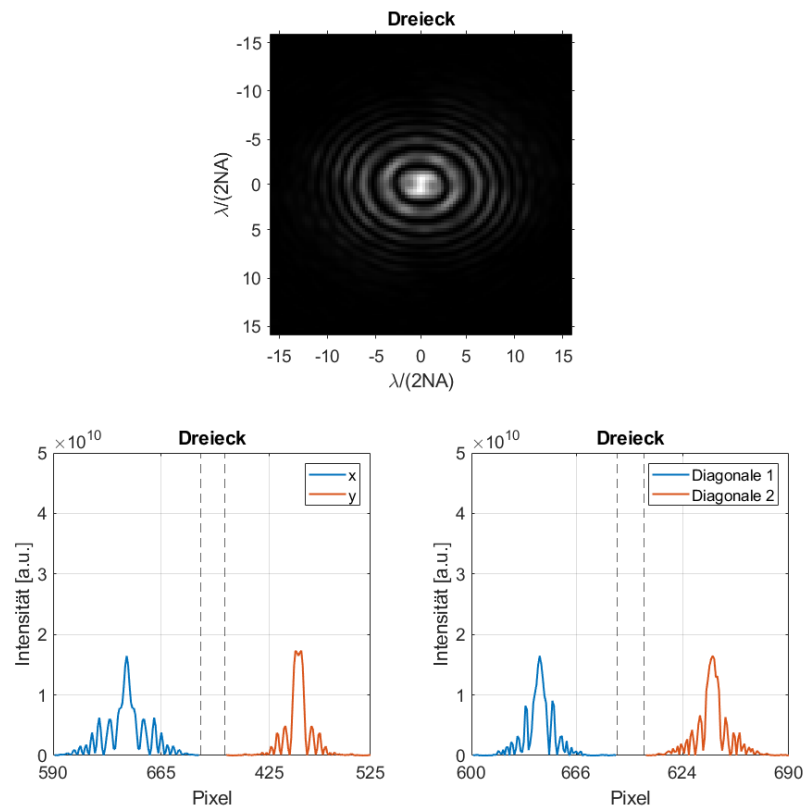


Abbildung 4.24: Zweidimensionale FFT des Pupillenbildes der dreieckigen Struktur aus drei Partikeln und deren Intensitätsprofil.

Abschließend ist also festzustellen, dass durch das Anwenden einer zweidimensionalen FFT auf das gemessene Pupillenbild zusätzliche Informationen über die geometrischen Anordnungen gewonnen werden. Durch diese Methode ist es nun auch möglich, die Einzelpartikel von der 2×1 , 2×2 und der Dreiecksanordnung zu unterscheiden. Allgemeiner formuliert, kann man über die Durchführung der Fouriertransformation nun auch Anordnungen unterscheiden, welche in keiner Richtung eine ausgeprägte Ausdehnung vorweisen. Die Geometrien der Partikelanordnungen spiegeln sich in den Intensitätsverteilungen der aberrierten PSFs wider. Besonders deutlich wird dies, wenn man Intensitätsprofile entlang der x- und y- Richtung sowie den beiden Diagonalen erstellt.

Somit ist es also möglich, alle von uns hergestellten geometrischen Nanosphären-Anordnungen klar zu differenzieren.

4.3.2 Messung mit kleinerer Apertur

Die Auflösung des Mikroskopobjektives mit $NA = 0,9$ liegt knapp an den lateralen Abmessungen der Nanopartikel-Geometrien. Für die Messungen in den vorangegangenen Abschnitten wurde bewusst eine so große NA gewählt, um den Proof of Concept der Unterscheidung verschiedener Probengeometrien mit CFS umzusetzen. Durch die hohe NA wurde zunächst viel Licht und somit auch viel Information gesammelt. Dies stellt eine solide Basis, um die Methode nun weiter auszuschöpfen. Um zu belegen, dass die Pupillenbilder der CFS-Messungen eine klare Unterscheidung von Merkmalen unterhalb der klassischen Auflösungsgrenze ermöglichen, wird nun die NA des Mikroskopobjektivs auf 0,625 reduziert und damit die Auflösungsgrenze erhöht. Obwohl Strukturen unterhalb der Auflösungsgrenze untersucht werden, können sie dennoch detektiert und sogar unterscheiden werden, wie im Folgenden beispielhaft für die einzelne Nanosphäre und die 3×1 -Anordnung demonstrieren werden.

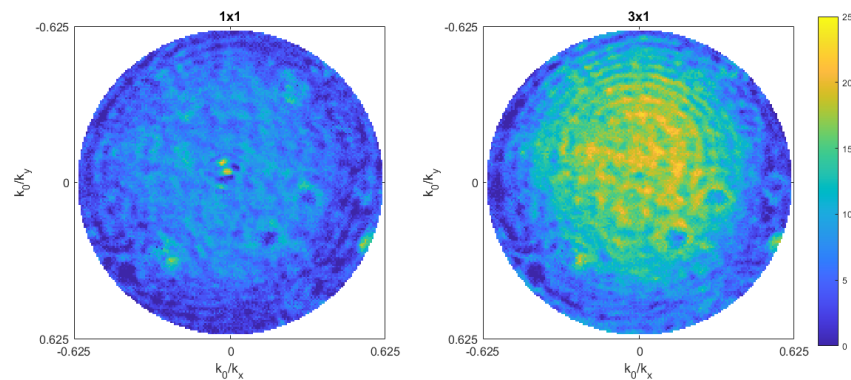


Abbildung 4.25: *Pupillenbilder der 1×1 und 3×1 Struktur gemessen mit einer NA von 0.625 bei zirkular polarisierter Beleuchtung.*

Abbildung 4.25 zeigt die mit einer NA von 0,625 gemessenen Pupillenbilder für eine einzelne Nanosphäre und für die 3×1 -Anordnung. Die Intensitätsverteilung im Falle des einzelnen Partikels ist rotationssymmetrisch und ihre Intensität nimmt mit dem Abstand vom Zentrum der Pupille ab. Die Intensität im Pupillenbild bei der 3×1 -Anordnung hingegen ist insgesamt höher und zeigt das bereits bekannte asymmetrische Verhalten. Auch hier sind die Intensitätsmodulationen senkrecht zur der Verbindungsachse der drei Partikel stärker als parallel zu dieser Achse.

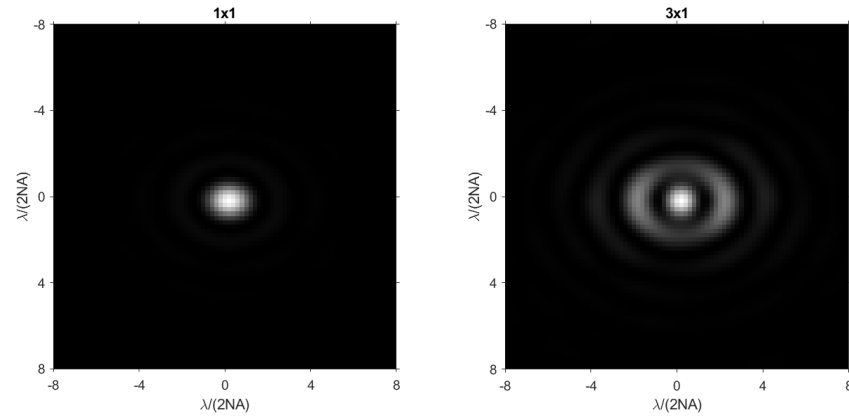


Abbildung 4.26: *Fouriertransformation der Pupillenbilder der 1×1 und 3×1 Struktur bei einer Messung mit einer NA von 0.625.*

Abbildung 4.26 zeigt die entsprechenden Ergebnisse der zweidimensionalen FFT. Die Unterschiede im Streuverhalten der beiden Nanosphärenanordnungen sind nun noch deutlicher zu erkennen. Die zweidimensionale FFT des Pupillenbildes der einzelnen Nanosphäre zeigt das qualitativ typische Verhalten einer Airy-Scheibe. Die zweidimensionale FFT des Pupillenbildes der 3×1 -Anordnung zeigt ein asymmetrisches Intensitätsmuster mit einer ausgedehnteren Ringstruktur. Das erste Minimum der Intensität der zentralen Scheibe ist in x-Richtung stärker ausgeprägt als in der y-Richtung.

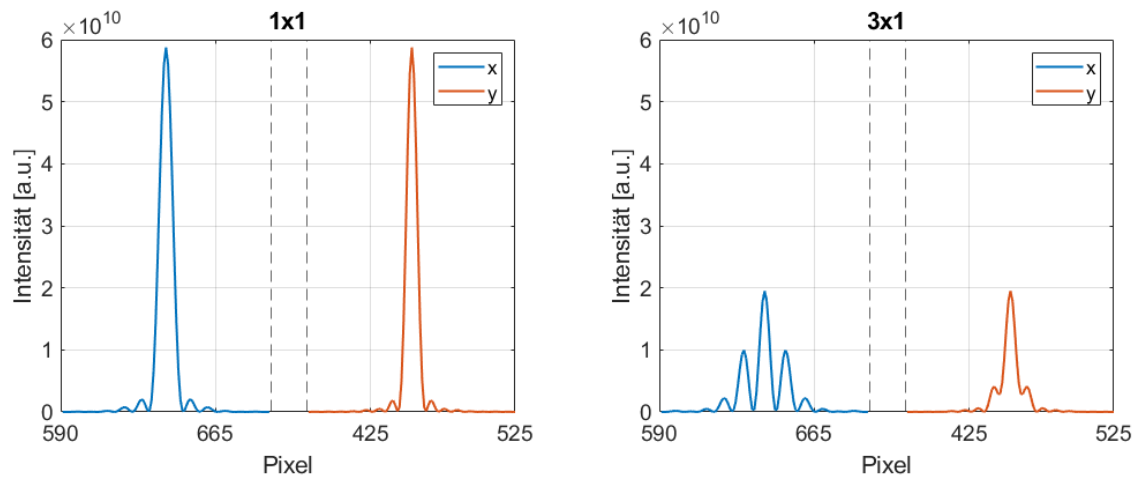


Abbildung 4.27: *Intensitätsschnitte in x- und y-Richtung der FFTs der 1×1 und 3×1 Struktur gemessen mit einer NA von 0.625.*

Abbildung 4.27 zeigt die Intensitätsverläufe der beiden FFTs in x- und y-Richtung.

Die Profile für den einzelnen Partikel stimmen in guter Näherung überein und zeigen die Symmetrie der aberrierten PSF auf. Dagegen weichen die Intensitätsschnitte der drei benachbarten Partikel in x- und y-Richtung erheblich voneinander ab. Somit haben wir über das Abblenden der Apertur demonstriert, dass die von uns vorgestellte Methode zur Differenzierung verschiedener Geometrischer Anordnungen auch funktioniert, wenn die Abmessungen der Probenstrukturen deutlich unterhalb der Auflösengrenze liegen.

Kapitel 5

Zusammenfassung und Ausblick

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurde eine Messmethode entwickelt, welche im Fernfeld agiert und verschiedene geometrische Anordnungen von Nanopartikeln und Geometrien metallischer Nanostrukturen nicht nur detektieren, sondern insbesondere auch unterscheiden kann. Hierzu wurde die Methode der kohärenten Fourier Scatterometrie (CFS), welche ursprünglich für periodische Liniengitter entwickelt wurde, abgewandelt. Die eingangs gestellten Anforderungen an das zu entwickelnde Messsystem - schnell, nichtinvasiv, hohe Empfindlichkeit - werden erfüllt. Bei der CFS wird die Intensitätsverteilung der Austrittspupille des Mikroskopobjektives, welches das gestreute Licht einsammelt, mit Hilfe eines Relay-Systems abgebildet. Durch die Messung im Hellfeld ist keine hohe Laserleistung nötig. Es wird die Tatsache ausgenutzt, dass Partikel im Fokus eines Objektivs Aberrationen in der Austrittspupille verursachen, auch wenn die Partikel kleiner als die Auflösungsgrenze sind.

Zu Beginn der Arbeit wurde der neu erstellte Aufbau zunächst validiert. Hierzu wurde das qualitative Streuverhalten eines einzelnen sphärischen Nanopartikels auf Basis des in der Literatur bekannten SOMMERFELD-RAYLEIGH-Systems mathematisch modelliert. Die berechnete Intensitätsverteilung stimmt gut mit den Messergebnissen überein, sodass wir eine Bestätigung der Funktionstüchtigkeit des Aufbaus erhalten haben, bevor wir uns mit dem Kern der Arbeit, der Unterscheidung verschiedener Geometrien, auseinander gesetzt haben.

Der Anspruch eines Proof of Concept, die CFS-Methode auf die Möglichkeit zur Differenzierung verschiedener geometrischer Eigenschaften von Probenstrukturen zu untersuchen, wurde erfüllt. Die Realisierbarkeit wurde anhand von verschiedenen und über SEM-Bilder genau charakterisierten "Master-Proben" demonstriert. Die Herstellung dieser Proben wurde an der Justus-Liebig-Universität Gießen durchgeführt. Dort wurden zwei verschiedene Probentypen hergestellt. Einerseits metal-

lische Nanostrukturen aus Gold, mit den vier verschiedenen Geometrien L-Form, Linie, Punkt und Spirale. Diese Nanostrukturen wurden in verschiedenen lateralen Ausdehnungen und in drei verschiedenen Höhen hergestellt. Die Formen und Geometrien der Nanostrukturen sind deutlich unterscheidbar trotz der geringen Größe der Nanostrukturen, bei denen mindestens eine laterale Abmessung unterhalb der Auflösungsgrenze liegt. Der Signalkontrast der Nanostrukturen hängt von ihrer Größe und Dicke ab und nimmt zu, wenn die Strukturen größer und dicker werden. Anhand der Intensitätsverteilung in der Austrittspupille kann zwischen den verschiedenen geometrischen Strukturen unterschieden werden. Andererseits wurden für die Proben des anderen Typs sphärische Nanopartikel mit einem Siliziumkern von 196 nm Durchmesser und einer 56 nm dicken Goldschicht, Gesamtdurchmesser etwa 300 nm, zu verschiedenen Geometrien angeordnet. Die untersuchten Geometrien bestanden aus linienförmigen Anordnungen von bis zu drei Partikeln, Quadraten mit vier Partikeln, Dreiecken und L-förmigen Anordnungen. Die Unterscheidung verschiedener Anordnungen von Nanosphären rein auf der Grundlage des gemessenen Pupillenbildes funktioniert, solange eine Ausdehnung des Systems größer als $\lambda/2$ ist. Es ist sogar möglich, den Winkel der Verbindungsachse von benachbarten Partikeln zu bestimmen, die sich nicht direkt berühren, aber durch einen Abstand unterhalb der Auflösungsgrenze getrennt sind. Hierzu wird das Pupillenbild über das Setzen eines Schwellenwertes binarisiert. Anschließend wird in die verbleibenden Datenpunkte eine lineare Regression gelegt, sodass man über den Winkel der Regressionsgeraden den Winkel der Verbindungsachse erhält. Zeigt das zu messende System keine deutliche Ausdehnung in eine bestimmte Richtung, so kann man die Geometrien dennoch durch Fourier-Transformation des Pupillenbildes unterscheiden. Insbesondere Asymmetrien der geometrischen Anordnungen sind deutlich sichtbar und spiegeln sich in den Intensitätsprofilen des Fourier-transformierten Pupillenbildes in x- und y-Richtung sowie entlang der beiden Diagonalen wider.

Nach diesen erfolgreichen Messungen wäre es darüber hinaus interessant, noch mehr und vor allem auch kleinere Strukturen und Partikelanordnungen zu messen. Insbesondere sollte der Frage nachgegangen werden, ob sich mit Hilfe der Fourier-Transformation des Pupillenbildes auch eine Anordnung mehrerer kleiner Partikel von einem einzelnen großen Partikel unterscheiden lassen. Das Signal-Rausch-Verhältnis ist der limitierende Faktor dieser Methode und sollte daher verbessert werden. Dies kann beispielsweise mit Hilfe eines Lock-In-Verstärkers erreicht werden. Ein weiterer Ansatz ist die interferometrische Erweiterung des Versuchsaufbaus, sodass nicht nur die Intensitätsverteilung der Austrittspupille gemessen werden kann,

sondern auch die tatsächliche Wellenfront mit ihrer dazugehörigen Phaseninformation detektiert wird.

Für die Anwendung in den eingangs genannten, industriellen Umfeldern sind noch weitere Schritte nötig. Für die Anwendung zur Detektion von Nanopartikeln in Flüssigkeiten wie zum Beispiel Blut sind keine Single-Shot-Messungen, wie wir sie durchgeführt haben, möglich. Auf Grund der Eigenbewegung der Nanopartikel in einem Flüssigkeitsvolumen und den kleinen Ausdehnungen des Laserspots müsste noch viel Statistik betrieben werden. Zudem wäre ein Umbau des Aufbaus zur Messung in Transmission sinnvoll, damit die Methode im medizinischen Bereich Anwendung finden kann. Für den Einsatz in der Halbleiter-Industrie besteht die Möglichkeit des Aufbaus eines scannenden Systems, sodass ein gewisser Bereich eines Wafers großflächig abgerastert wird, und Defekte lokalisiert werden können. In diesem Zusammenhang interessant wäre ebenfalls das Anlernen eines Machine-Learning Systems, welches Defekte oder verunreinigende Partikel automatisiert detektieren kann. Dies bedarf allerdings vorab noch vielen weiteren Messungen zur Erstellung einer großen Datenbank und einer zeitintensiven Anlernphase des eines Machine-Learning-Modells.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde also ein Grundstein gelegt, und gezeigt, dass die Methode der kohärenten Fourier Scatterometrie, obwohl deren theoretische Beschreibung ursprünglich für periodische Gitter entwickelt wurde, ein großes Potential zeigt, nicht nur einzelne Nanostrukturen zu detektieren, sondern auch geometrische Eigenschaften und Ausdehnungen der gemessenen Proben zu identifizieren.

Literaturverzeichnis

- [1] G. E. Moore. The future of integrated electronics. *Electronics Magazine*, 1965.
- [2] T. Hattori. Contamination control: Problems and prospects. *Solid State Technology*, 33, 1990.
- [3] A. Chen et. al. Advanced inspection methodologies for detection and classification of killer substrate defects. In *Lithography Asia 2008*, volume 7140. SPIE, 2008.
- [4] Y. Yu, T. Yang, T.Sun . New insights into the synthesis, toxicity and applications of gold nanoparticles in CT imaging and treatment of cancer. *Nanomedicine (Lond)*, 2022.
- [5] K. Saha, S. S. Agasti, C. Kim, X. Li, V.M. Rotello. Gold nanoparticles in chemical and biological sensing. *Chem. Rev.*, 112:2739–79, 2012.
- [6] J. Hun Kim et.al. Intravenously administered gold nanoparticles pass through the blood–retinal barrier depending on the particle size, and induce no retinal toxicity. *Nanotechnology*, 20(50):505101, 2009.
- [7] J.F. Hainfeld, F. A. Dilmanian, D.N. Slatkin, H.M. Smilowith. Radiotherapy enhancement with gold nanoparticles. *Journal of Pharmacy and Pharmacology*, pages 977–985, 2008.
- [8] H. Sela, H. Cohen, P. Elia, R. Zack, Z. Karpas, Y. Zeiri. Spontaneous penetration of gold nanoparticles through the blood brain barrier (BBB) . *Journal of nanobiotechnology*, 13, 2015.
- [9] L. Yang, T. Yin, Y. Liu, J. Sun, Y. Zhou, J. Liu. Gold nanoparticle-capped mesoporous silica-based H₂O₂-responsive controlled release system for Alzheimer’s disease treatment. *Acta biomaterialia*, 46:177–190, 2016.

-
- [10] J. Zhang, T. Yang, W. Huang, Y. Yu, T. Sun. Applications of Gold Nanoparticles in Brain Diseases across the Blood-Brain Barrier . *Current medicinal chemistry*, 29(39):6063–6083, 2022.
- [11] S Nešpurek J. Pospišil. Photostabilization of coatings. mechanisms and performance. *Progress in Polymer Science*, 25(9):1261–1335, 2000.
- [12] D. Gerlach. *Mikroskopie in Forschung und Praxis*. GIT-Verlag Darmstadt, 1995.
- [13] J. van der Donck, R. Snel, J. Stortelder, A. Abutan, S. Oostrom, S. van Reek, B. van der Zwan, and P. van der Walle. Particle detection on flat surfaces. In *Extreme Ultraviolet (EUV) Lithography II*, volume 7969. SPIE, 2011.
- [14] N. Fairbairn, A. Christofidou, Antonios G. Kanaras, T. A. Newman, and O. L. Muskens. Hyperspectral darkfield microscopy of single hollow gold nanoparticles for biomedical applications. *Phys. Chem. Chem. Phys.*, 15:4163–4168, 2013.
- [15] J.C.H. Spence P.W. Hawkes, editor. *Springer Handbook of Microscopy*. Springer, 2019.
- [16] N. Kumar, S. Mignuzzi, W. Su, and D. Roy. Tip-enhanced raman spectroscopy: principles and applications. *EPJ Techn Instrum*, 2(9), 2015.
- [17] N. Kumar, P. Petrik, G.K.P. Ramanandran, O. El Gawhary, S. Roy, S.F. Pereira, W.M.J.M. Coene, and H.P. Urbach. Reconstruction of sub-wavelength features and nano-positioning of gratings using coherent fourier scatterometry. *Optics Express*, 22(20):24678–24688, 2014.
- [18] N. Kumar, L. Cisotto, S. Roy, G. Ramanandan, S. Pereira, and H. Urbach. Determination of the full scattering matrix using coherent fourier scatterometry. *Applied Optics*, 55:4408–4413, 05 2016.
- [19] V. Paz, S. Peterhänsel, K. Frenner, and W. Osten. Solving the inverse grating problem by white light interference Fourier scatterometry. *Light: Science and Applications*, 1, 11 2012.
- [20] V. Ferreras Paz, S. Peterhänsel, Ka. Frenner, W. Osten, A. Ovsianikov, K. Obata, and B. Chichkov. Depth sensitive Fourier-Scatterometry for the characterization of sub-100 nm periodic structures. In *Modeling Aspects in Optical Metrology III*, volume 8083. SPIE, 2011.

-
- [21] S. Roy, A.C. Assafrão, S.F. Pereira, and H.P. Urbach. Coherent fourier scatterometry for detection of nanometer-sized particles on a planar substrate surface. *Optics Express*, 22(11):13250–13262, May 2014.
- [22] Max Born and Emil Wolf. *Principles of Optics*. Cambridge, 2001.
- [23] D. Kolenov, R. C. Horsten, and S. F. Pereira. Heterodyne detection system for nanoparticle detection using coherent Fourier scatterometry. In *Optical Measurement Systems for Industrial Inspection XI*, volume 11056. SPIE, 2019.
- [24] D. Kolenov, I. E. Zadeh, R. C. Horsten, and S. F. Pereira. Direct detection of polystyrene equivalent nanoparticles with a diameter of 21 nm using coherent Fourier scatterometry. *Optics Express*, 29:16487–16505, 2021.
- [25] Pedrotti, Pedrotti, Bausch, and Schmidt. *Optik für Ingenieure*. Springer, 2008.
- [26] Wolfgang Nolting. *Grundkurs Theoretische Physik 3*. Springer, 2013.
- [27] Forrest L. Anderson. Huygens’ Principle geometric derivation and elimination of the wake and backward wave. *Scientific Reports*, 11, 2021.
- [28] Joseph W. Goodman. *Introduction to Fourier Optics*. Roberts, 1996.
- [29] <https://www.pro-physik.de/nachrichten/joseph-fourier-revolutionaere-reihen>. zuletzt aufgerufen am 12.06.2023.
- [30] Otto Forster. *Analysis 1*. Springer Spektrum, 2012.
- [31] R.E. Edwards. *Fourier Series A Modern Introduction Volume 1*. Springer-Verlag, 1979.
- [32] David G. Voelz. *Computational Fourier Optics: A MATLAB Tutorial*. SPIE, 2011.
- [33] E. Oran Bringham. *The Fast Fourier Transform and its applications*. Prentice Hall, 1988.
- [34] Robert Heß. <http://www.rrhess.de/pdf/Skript-FFT.pdf>. *DFT und FFT Anwendung, Herleitung und Implementierung in C/C++*, zuletzt aufgerufen am 14.06.2023.
- [35] Falko Jahn. Untersuchung von Methoden und Erstellung eines Programmmoduls zur computergestützten Berechnung von Diffraktiven Optischen Elementen (DOE). *Hochschule Mittweida, Masterarbeit*, 2011.

-
- [36] Barry R. Masters. *Superresolution Optical Microscopy: The Quest for Enhanced Resolution and Contrast*. Springer Series in Optical Sciences, 2021.
- [37] Wolfgang Stoessel. *Einführung in die Fourier-Optik*. Springer-Verlag Berlin Heidelberg GmbH, 1992.
- [38] Wolfgang Demtröder. *Experimentalphysik 2 Elektrizität und Optik*, chapter 10, pages 320–322. Springer Spektrum, 2017.
- [39] Lord Rayleigh Sec. R. S. XV. On the theory of optical images, with special reference to the microscope. *The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science*, 42(255):167–195, 1896.
- [40] Eugene Hecht. *Optik*, chapter 4.9, page 271. De Gruyter, 2018.
- [41] Dieter Meschede. *Optik, Licht und Laser*. Vieweg+Teubner Verlag, 2015.
- [42] J.D. Jackson. *Classical Electrodynamics, 2nd Edition*. Wiley, 1975.
- [43] C.F. Bohren and D.R. Huffman. *Absorption and Scattering of Light by Small Particles*, chapter 1, pages 7–8. John Wiley and Sons, Ltd, 1998.
- [44] G. Mie. Beiträge zur Optik trüber Medien, speziell kolloidaler Metallösungen. *Ann. Phys.*, (3):377–445, 1908.
- [45] Gordon V., M. G. Turner, V. J. Iafelice, W. S. Bickel, and W. L. Wolfe. Scattering from a small sphere near a surface. *J. Opt. Soc. Am. A*, 10(1):118–126, Jan 1993.
- [46] A. Sommerfeld. Über die Ausbreitung der Wellen in der drahtlosen Telegraphie. *Annalen der Physik*, 333(4):665–736, 1909.
- [47] Gordon Videen. Light scattering from a sphere on or near a surface. *J. Opt. Soc. Am. A*, 9(5):844–845, May 1992.
- [48] P. Parhami Y. Rahmat-Samii, R. Mittra. *Transient Response of a Loaded Horizontal Antenna Over Lossy Ground with Application to EMP Simulators*, chapter 2, page 19. University of Illinois at Urbana-Champaign, 1977.
- [49] P. Parhami Y. Rahmat-Samii, R. Mittra. Evaluation of sommerfeld integrals for lossy half-space problems. *Electromagnetics*, 1:1–28, 1981.
- [50] Thomas Sure. "personal communication".

-
- [51] K. Dort, K. Kroth, and P. Klar. A surface-enhanced raman-spectroscopic study: Verification of the interparticle gap dependence of field enhancement by triangulation of spherical gold nanoparticle trimers. *Journal of Raman Spectroscopy*, 50, 08 2019.
- [52] Filmetrix a KLA company. <https://www.filmetrics.de/refractive-index-database/Au/Gold>. *zuletzt aufgerufen am 06.07.2023*.
- [53] Filmetric a KLA company. <https://www.filmetrics.de/refractive-index-database/Si/Silicon>. *zuletzt aufgerufen am 06.07.2023*.
- [54] L. Novotny and B. Hecht. *Principles of Nano-Optics*. Cambridge University Press, 2 edition, 2012.
- [55] P. B. Johnson and R. W. Christy. Optical constants of the noble metals. *Phys. Rev. B*, 6:4370–4379, Dec 1972.
- [56] N Nedyalkov, A. Dikovska, I Dimitrov, R. Nikov, P. Atanasov, R. Toshkova, E. Gardeva, L. Yossifova, and M. Alexandrov. Far- and near-field optical properties of gold nanoparticle ensembles. *Quantum Electronics*, 42, 12 2012.
- [57] J Turkevich, G Garton, and P.C Stevenson. The color of colloidal gold. *Journal of Colloid Science*, 9:26–35, 1954.
- [58] Abberated Wave to Image intensity PSF. <http://www.strollswithmydog.com/aberrated-wave-to-image-intensity-to-mtf/>. *zuletzt aufgerufen am 12.07.2023*.

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich allen danken, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben:

Prof. Dr. Peter Klar danke ich für die freundliche Aufnahme als Promotionsstudentin und die Betreuung in den letzten vier Jahren, ebenso für die Möglichkeit, die Labore der Arbeitsgruppe nutzen zu dürfen. Seine Korrekturen haben wesentlich zur Qualität der im Rahmen dieser Arbeit veröffentlichten Beiträge beigetragen.

Besonderer Dank gilt Prof. Dr. Thomas Sure, der mich intensiv betreut hat. Mit seiner Hilfe und Erfahrung hat er zu der Lösung vieler Probleme beigetragen. Auch die vielen Diskussionen mit ihm, am aller meisten die während der Kaffeepausen, haben diese Arbeit wesentlich vorangebracht. Durch die hervorragende Laborausstattung, die er über Jahre hinweg angesammelt hat, war es eine Freude, an diesem Thema in seinem Labor zu arbeiten.

Würfel danke ich für die Unterstützung im Labor und die gemeinsamen Diskussionen.

Marcel Weinhold und insbesondere Kathrin Kroth, die den wesentlichen Anteil an der Erstellung der vielen Proben geleistet haben. Ohne diese Hilfe hätte meine Arbeit nicht erfolgen können.

Nathalie Weigand danke ich für die Mikroskopie der Proben und die lustige gemeinsame Zeit im Reinraum.

Jost Wittmann möchte ich für die vielen gemeinsamen Stunden und den Austausch im Mittagsplausch danken.

Danken möchte ich auch Paulo Ferreira und dem gesamten Dekanat und Sekretariat des Fachbereiches ME, das mir immer mit Rat und Tat in organisatorischen Dingen zur Seite stand.

Prof. Dr. Sangam Chatterjee und Prof. Dr. Sebastian Schiffner für das Mitwirken in der Prüfungskommission.

Dank geht auch an das 3D Druckzentrum der THM, welches mit dem Druck von Kleinteilen immer schnell aushelfen konnte.

Auch danke ich allen Freunden, die mich in dieser Zeit unterstützt haben und mir abseits der Arbeit einige unbeschwerte Stunden beschert haben.

Besonderer Dank gilt meinen Eltern, die mir das Studium überhaupt erst ermöglicht haben.

Eidesstattliche Erklärung

Ich erkläre: Ich habe die vorgelegte Dissertation selbstständig und ohne unerlaubte fremde Hilfe und nur mit den Hilfen angefertigt, die ich in der Dissertation angegeben habe. Alle Textstellen, die wörtlich oder sinngemäß aus veröffentlichten Schriften entnommen sind, und alle Angaben, die auf mündlichen Auskünften beruhen, sind als solche kenntlich gemacht. Ich stimme einer evtl. Überprüfung meiner Dissertation durch eine Antiplagiat-Software zu. Bei den von mir durchgeführten und in der Dissertation erwähnten Untersuchungen habe ich die Grundsätze guter wissenschaftlicher Praxis, wie sie in der "Satzung der Justus-Liebig-Universität Gießen zur Sicherung guter wissenschaftlicher Praxis" niedergelegt sind, eingehalten.

(Ort, Datum)

(Sandra Krämer)