

K-M花样分析法测定薄晶体厚度和消光距离的不确定度评定

娄艳芝 李玉武

Evaluation of uncertainty in measuring thin crystal thickness and extinction distance by Kossel–Mllenstedt pattern analysis

Lou Yan-Zhi Li Yu-Wu

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 71, 146803 (2022) DOI: 10.7498/aps.71.20212271

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.71.20212271>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

可搬运锶光晶格钟系统不确定度的评估

Evaluation of systematic uncertainty for transportable ^{87}Sr optical lattice clock

物理学报. 2021, 70(3): 030601 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20201204>

双波长自由载流子吸收技术测量半导体载流子体寿命和表面复合速率

Determination of carrier bulk lifetime and surface recombination velocity in semiconductor from double-wavelength free carrier absorption

物理学报. 2018, 67(21): 217201 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20181509>

原子喷泉频标:原理与发展

Atomic fountain frequency standard: principle and development

物理学报. 2018, 67(16): 163202 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180540>

大气边界层模式中随机参数的反演与不确定性分析

Retrieval and uncertainty analysis of stochastic parameter in atmospheric boundary layer model

物理学报. 2018, 67(19): 199201 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20181014>

熵不确定度关系综述

Review on entropic uncertainty relations

物理学报. 2022, 71(7): 070302 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20212197>

多普勒差分干涉仪干涉图信噪比对相位不确定度研究

A propagation of interferogram signal-to-noise (SNR) and phase uncertainty in Doppler asymmetric spatial heterodyne spectrometer

物理学报. 2020, 69(1): 014202 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20191179>

K-M 花样分析法测定薄晶体厚度和消光距离的不确定度评定

娄艳芝¹⁾ 李玉武^{2)†}

1) (中国航发北京航空材料研究院, 北京 100095)

2) (国家环境分析测试中心, 北京 100029)

(2021 年 12 月 8 日收到; 2022 年 3 月 13 日收到修改稿)

本文通过分析 200 kV 加速电压条件下, 单晶 Si 薄膜样品的透射电子显微镜 (TEM) 双束会聚束衍射 (CBED) Kossel-Möllenstedt (K-M) 花样, 测定了单晶 Si 薄膜样品的局部厚度和 Si 晶体 (400) 晶面的消光距离 ξ_{400} . 分析了影响测量不确定度的因素, 并运用一阶偏导的方法讨论了各个因素对测量不确定度的影响系数, 依据 GB/T 27418-2017《测量不确定度评定与表示》对实验估计值进行了不确定度评定. 结论如下: 被测 Si 晶体局部厚度的实验估计值为 239 nm, 其合成标准不确定度为 5 nm, 相对标准不确定度为 2.2%; 包含概率为 0.95 时, 包含因子为 2.07, 扩展不确定度为 11 nm; 加速电压为 200 kV 时, Si 晶体 (400) 晶面的消光距离 ξ_{400} 的实验估计值为 194 nm, 合成标准不确定度为 20 nm; 包含概率为 0.85 时, 包含因子为 1.49, 扩展不确定度为 30 nm. 影响试样厚度 t_0 合成标准不确定度的主要因素是相机常数、加速电压和试样厚度; 影响消光距离 ξ 合成标准不确定度的主要因素是相机常数、加速电压和消光距离. 双束 K-M 花样测量数据的测量不确定度 $u(\Delta\theta_i)$ 对消光距离不确定度的影响约是对试样厚度不确定度影响的 $n_i(\xi/t)^3$ (n_i 为正整数, $n_i \geq 1$) 倍, 对拟合直线斜率的不确定度的影响是对截距不确定度影响的 n_i 倍. 如果试样有一定厚度, 即 $n_i > 1$, 则用 TEM 双束会聚束衍射 K-M 花样分析薄晶体厚度的不确定度较小, 而用此方法分析消光距离的不确定度较大.

关键词: 会聚束电子衍射, 厚度测定, 消光距离, 不确定度

PACS: 68.37.Lp, 02.50.-r, 68.60.-p, 61.50.Ah

DOI: 10.7498/aps.71.20212271

1 引言

薄晶体样品的局部厚度在很多情况下需要精确测定, 如高分辨图像模拟、聚焦离子束 (FIB) 样品制备、X 射线能谱 (EDS) 定量分析时的吸收与荧光修正、半导体器件的物理分析、金属材料中析出相含量以及位错密度的测定等相关科研工作^[1-4]. 目前测定薄晶体厚度的方法有很多, 常用的有消光轮廓法、滑移痕迹法、电子能量损失谱 (EELS) 和透射电子显微镜双束会聚束衍射法 (CBED) 等^[5-7], 其中 EELS 和 CBED 的测量精确度较高. 样品厚

度较小 (如: < 20 nm) 时, 可选用 EELS 测量, 但如果样品太厚, 将无法得到较好的能损谱, 且数据处理过程中需要估算电子在此物质中的平均自由程, 一般误差较大. 样品厚度在 50—200 nm 之间时, 采用 CBED 方法可以得到更准确的分析结果, 这是因为基于双束动力学衍射理论的会聚束电子衍射 K-M 花样对薄晶体厚度非常敏感, 可以通过分析 K-M 花样暗条纹位置, 从而精确测定薄晶体的厚度. CBED 方法的另一优点是在分析薄晶体样品厚度的同时可以得到该晶体在特定条件下的消光距离.

选用不同的薄晶体厚度测定方法得到的测试

† 通信作者. E-mail: liyuwu100029@163.com

结果,其精确度各不相同.在给出厚度测量结果的同时,可以给出测量不确定度.测量不确定度简称不确定度,它是表征测试结果分散性的一个非负参数,是测试结果可信度的量度.通常,不确定度是赋予被测值的,该值的改变将导致相应不确定度的改变.不确定度一般由若干分量组成,它是各个分量的不确定度引起的测试结果不确定度的叠加,体现了测试结果的最大误差范围,反映了测试结果的置信水平.影响不确定度的分量一般可以分为两类:一类是在规定测试条件下,将测量值用统计分析的方法进行评定的不确定度分量,此为A类不确定度,如暗条纹位置这个测量值的不确定度,这类不确定度会随着测量次数的增加而减小;除A类以外,其他影响不确定度的分量可归纳为B类不确定度分量,如加速电压的波动、经检定的透射电镜的型号和等级等,此类不确定度由实验设备的水平决定,与测试人员和测量次数无关.

关于通过双束会聚束衍射K-M花样测定薄晶体厚度的不确定度水平,很多资料都有提及,多数文献给出了不确定度的大概范围,如Spence和Zuo^[8]在专著中提到测量误差可以小于2%.Delille等^[7]通过对能量过滤K-M花样的分析,得到测量误差优于1%,此误差是软件拟合时得到的拟合误差,它与本文的直线拟合误差一致,是不确定度的一个分量.事实上,采用CBED方法测定薄晶体厚度时,不确定度的值因厚度值的改变而有所不同,同时也与晶体在特定条件下消光距离的大小有关,不能一概而论.

本文以目前常规配置透射电镜(无能量过滤器)和常用实验条件($U = 200$ kV)下得到的Si晶体(400)晶面的双束会聚束衍射K-M花样为例,采用国家标准^[9]描述的薄晶体厚度测定方法,分析得到了Si晶体的局部厚度和加速电压200 kV条件下、(400)晶面的消光距离的实验估计值;采用一阶偏导的方法,推导了试样厚度和消光距离的测量不确定度,比较了厚度和消光距离两个被测量在不确定度水平方面的差异,讨论了差异产生的原因,给出了影响分析结果不确定度的主要因素以及各个因素的灵敏系数.计算结果表明,通过降低主要影响因素的不确定度分量可以实现降低分析结果测量不确定度的目的.本文为改善双束会聚束衍射K-M花样法测定薄晶体厚度的不确定度水平指明了努力的方向,为目前常规实验条件下双束会聚

束衍射K-M花样法测定薄晶体厚度分析结果的测量不确定度评定,提供了具体实例和科学依据.

2 实验结果

本文分析用实验数据是单晶Si薄膜样品(400)晶面的透射电子显微镜双束会聚束衍射K-M花样^[4],如图1所示.实验用电子显微镜为Tecnai G² F20型透射电子显微镜,实验用加速电压 U 的标称值为200 kV,波动范围为 $1 \times 10^{-7} U/\text{min}$,即0.02 V/min.Si晶体为金刚石结构,点阵参数 $a = 0.5430$ nm,晶面间距 $d_{400} = 0.1357$ nm.K-M花样拍摄时,双倾试样台沿 x 轴和 y 轴的转角分别为: $\alpha = 7.56^\circ$, $\beta = 2.80^\circ$.

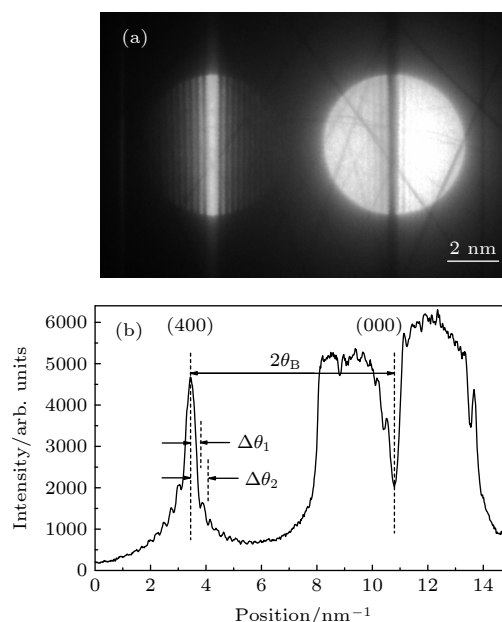


图1 单晶硅的K-M花样 (a) (400)晶面的K-M花样; (b) g_{400} 方向的强度分布

Fig. 1. K-M pattern of single-crystal silicon: (a) K-M pattern of (400) plane; (b) intensity distribution along g_{400} .

3 K-M花样数据分析

在透射电子显微镜中用会聚电子束照射薄晶体试样时,在物镜的后焦平面上将产生会聚束电子衍射(CBED)花样.在适当的试样厚度范围内,衍射盘内会出现明暗相间的条纹,即K-M衍射花样.

根据电子衍射的动力学理论,在双束近似条件下试样 (hkl) 衍射盘内的强度分布 I_{hkl} 为^[8]

$$I_{hkl} = 1 / \left[1 + (s_i \xi_{hkl})^2 \right] \times \sin^2 \left[\pi t \sqrt{1 + (s_i \xi_{hkl})^2 / \xi_{hkl}} \right], \quad (1)$$

式中

$$s_i = (\lambda / d_{hkl}^2) (\Delta\theta_i / R_{hkl}), \quad (2)$$

s_i 为偏离矢量, 也就是 (hkl) 衍射盘内第 i 个强度极小值对精确布拉格条件的偏离值; λ 为入射电子束波长; d_{hkl} 是 (hkl) 晶面间距; $\Delta\theta_i$ 是 (hkl) 衍射盘内第 i 条暗条纹到盘中心的距离; R_{hkl} 为透射盘和衍射盘之间的距离; t 为入射电子束方向薄晶体试样的局部厚度; ξ_{hkl} 为 200 kV 条件下, Si 晶体 (hkl) 晶面的消光距离.

衍射盘内第 i 条暗条纹出现的条件是 $I_{hkl} = 0$, 由此可得^[10]

$$(s_i / n_i)^2 + (\xi_{hkl} n_i)^{-2} = t^{-2}, \quad (3)$$

式中, n_i 为正整数. 如令 $k = -\xi_{hkl}^{-2}$, $b = t^{-2}$, $x = n_i^{-2}$ 和 $y = (s_i / n_i)^2$, 则 (3) 式可以表达为 $y = kx + b$.

在图 1(a) 所示 K-M 花样中, 测量出 R_{hkl} 和衍射盘内各个暗条纹到衍射盘中心的距离 $\Delta\theta_i$, 被测量 Z 平均值的不确定度 $u(Z)$ 可以用平均值的实验标准差表示^[11], 如 (4) 式所示, 分析结果列于表 1.

$$u(Z) = \sqrt{\frac{1}{n(n-1)} \sum_{i=1}^n (Z_i - \bar{Z})^2}. \quad (4)$$

根据 (2) 式计算出 Si 晶体 (400) 衍射盘内各个强度极小值对应的偏离矢量 s_i 值, 分析得到 n_i 和 i 之间的关系^[4] 为 $n_i = i + 1$, 将其代入 n_i^{-2} 和 $(s_i / n_i)^2$ 中, 结果如表 2 所列.

用表 2 中的第三列 n_i^{-2} 的值作横坐标 x , 最后

一系列 $(\bar{s}_i / n_i)^2$ 的值作纵坐标 y 画图, 并用最小二乘法拟合直线, 得到拟合直线的方程为: $y = (-2.66105x + 1.71376) \times 10^{-5}$, 拟合结果如图 2 所示.

表 1 K-M 花样测量数据

Table 1. K-M pattern measurement data.

Z	Data 1 /nm ⁻¹	Data 2 /nm ⁻¹	Data 3 /nm ⁻¹	Ave. /nm ⁻¹	$u(Z)$ /nm ⁻¹
R	7.336	7.336	7.318	7.330	0.006
$\Delta\theta_1$	0.361	0.342	0.343	0.349	0.006
$\Delta\theta_2$	0.631	0.613	0.595	0.613	0.010
$\Delta\theta_3$	0.829	0.831	0.847	0.836	0.006
$\Delta\theta_4$	1.101	1.082	1.045	1.076	0.016
$\Delta\theta_5$	1.299	1.334	1.298	1.310	0.012
$\Delta\theta_6$	1.516	1.532	1.569	1.539	0.016
$\Delta\theta_7$	1.750	1.766	1.785	1.767	0.010
$\Delta\theta_8$	2.001	2.019	1.949	1.990	0.021

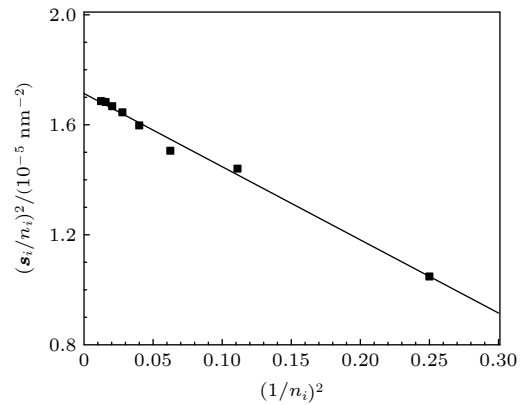


图 2 $(s_i/n_i)^2 - n_i^{-2}$ 关系图

Fig. 2. Graph of $(s_i/n_i)^2$ against n_i^{-2} .

拟合直线的斜率 k 、截距 b 及其不确定度 $u(k)$ 和 $u(b)$ 列于表 3 中. 将相关直线拟合结果代入关系式 $b = t^{-2}$, 得到试样沿入射束方向的厚度为

表 2 K-M 花样测量结果的数据分析

Table 2. Data analysis of K-M pattern measurement results.

i	n_i	n_i^{-2}	数据1		数据2		数据3		平均值	
			s_i /nm ⁻¹	$(s_i/n_i)^2$ / (10 ⁻⁵ nm ⁻²)	s_i /nm ⁻¹	$(s_i/n_i)^2$ / (10 ⁻⁵ nm ⁻²)	s_i /nm ⁻¹	$(s_i/n_i)^2$ / (10 ⁻⁵ nm ⁻²)	\bar{s}_i /nm ⁻¹	$(\bar{s}_i/n_i)^2$ / (10 ⁻⁵ nm ⁻²)
1	2	0.2500	0.0067	1.1239	0.0064	1.0087	0.0064	1.0146	0.0065	1.0484
2	3	0.1111	0.0117	1.5262	0.0114	1.4403	0.0111	1.3570	0.0114	1.4403
3	4	0.0625	0.0154	1.4817	0.0154	1.4889	0.0157	1.5468	0.0155	1.5057
4	5	0.040	0.0204	1.6727	0.0201	1.6155	0.0194	1.5069	0.0200	1.5976
5	6	0.0278	0.0241	1.6170	0.0248	1.7053	0.0241	1.6145	0.0243	1.6453
6	7	0.0204	0.0282	1.6180	0.0285	1.6524	0.0291	1.7331	0.0286	1.6675
7	8	0.0156	0.0325	1.6507	0.0328	1.6811	0.0332	1.7174	0.0328	1.6830
8	9	0.0123	0.0372	1.7053	0.0375	1.7361	0.0362	1.6178	0.0370	1.6860

表 3 直线拟合数据及相关分析结果
 Table 3. Line fitting data and related analysis results.

$k/(10^{-7} \text{ nm}^{-2})$	$u(k)/(10^{-7} \text{ nm}^{-2})$	ξ_{400}/nm	$u(\xi_{400})/\text{nm}$	$b/(10^{-7} \text{ nm}^{-2})$	$u(b)/(10^{-7} \text{ nm}^{-2})$	t/nm	$u(t)/\text{nm}$	t_0/nm	$u(t_0)/\text{nm}$
-266.105	9.703	194	3.534	171.376	0.982	242	0.692	239	0.685

$t = 242 \text{ nm}$. 另外, 垂直于入射电子束的平面与试样所在平面之间的转角 φ 与双倾台转角 α 和 β 之间的关系为 $\cos\varphi = \cos\alpha\cos\beta$, 由此得到试样厚度 $t_0 = t\cos\varphi = t\cos\alpha\cos\beta = 239 \text{ nm}$. 将表 3 中相关数据代入关系式 $k = -\xi_{hkl}^{-2}$, 得到 200 kV 条件下, Si 晶体 (400)晶面的消光距离 $\xi_{400} = 194 \text{ nm}$.

由关系式 $b = t^{-2}$, $k = -\xi_{hkl}^{-2}$ 得到 $t = b^{-\frac{1}{2}}$, $\xi_{hkl} = (-k)^{-\frac{1}{2}}$, 在等号两侧分别求偏导数, 得到拟合厚度的误差 $u(t)$ 和拟合斜率的误差 $u(\xi_{hkl})$, 如 (5) 式和 (6) 式所示. 另外, 由 $t_0 = t\cos\alpha\cos\beta$ 可得到 $u(t_0)$ 和 $u(t)$ 之间的关系, 如 (7) 式所示.

$$u(t) = \left| \frac{\partial t}{\partial b} \right| u(b) = \frac{1}{2} t^3 u(b), \quad (5)$$

$$u(\xi_{hkl}) = \left| \frac{\partial \xi_{hkl}}{\partial k} \right| u(k) = \frac{1}{2} \xi^3 u(k), \quad (6)$$

$$u(t_0) = u(t) \cos\alpha\cos\beta. \quad (7)$$

将直线拟合结果代入 (5) 式—(7) 式中, 得到 $u(t)$, $u(\xi_{400})$ 和 $u(t_0)$ 的值, 结果列入表 3 中.

4 不确定度分析

4.1 试样厚度的不确定度分析

4.1.1 合成标准不确定度 $u_c(t_0)$

由 (3) 式得到入射电子束方向试样厚度 t 的表达式:

$$t = \left[\left(\frac{s_i}{n_i} \right)^2 + (\xi_{hkl} n_i)^{-2} \right]^{-\frac{1}{2}}. \quad (8)$$

试样的厚度 $t_0 = t\cos\alpha\cos\beta$, 其中 α 和 β 为透射电镜试样双倾台在 x 轴和 y 轴的转角. 试样的厚度 t_0 的

表达式为

$$t_0 = t \cos\alpha \cos\beta = \left[\left(\frac{s_i}{n_i} \right)^2 + (\xi_{hkl} n_i)^{-2} \right]^{-\frac{1}{2}} \cos\alpha \cos\beta. \quad (9)$$

(9) 式中 s_i 的表达式如 (2) 式所示. 可见, (9) 式中涉及的变量有 n_i , ξ_{hkl} , α , β , λ , d_{hkl} , $\Delta\theta_i$ 和 R_{hkl} . 其中, n_i 是正整数, 无误差; λ , d_{hkl} , α 和 β 的误差很小, 可忽略不计. 因此, 影响厚度 t_0 不确定度的因素只有 ξ_{hkl} , $\Delta\theta_i$ 和 R_{hkl} .

被测量厚度 t_0 估计值的合成标准不确定度 $u_c(t_0)$ 可近似由 ξ_{hkl} , $\Delta\theta_i$ 和 R_{hkl} 三个变量不确定度引起的厚度不确定度平方和的正平方根计算得到^[12]. 另外, 各个变量的不确定度引起的厚度不确定度中包含自变量 i , 这里采用平均值的实验标准差公式表示. 试样厚度 t_0 的合成标准不确定度 $u_c(t_0)$ 可表示为

$$\begin{aligned} u_c^2(t_0) = & \frac{1}{n(n-1)} \sum_{i=1}^n \left[\frac{\partial t_0}{\partial \xi_{hkl}} \right]^2 u^2(\xi_{hkl}) \\ & + \frac{1}{n(n-1)} \sum_{i=1}^n \left[\frac{\partial t_0}{\partial \Delta\theta_i} \right]^2 u^2(\Delta\theta_i) \\ & + \frac{1}{n(n-1)} \sum_{i=1}^n \left[\frac{\partial t_0}{\partial R_{hkl}} \right]^2 u^2(R_{hkl}), \quad (10) \end{aligned}$$

式中, 第 1 项为消光距离的不确定度 $u(\xi_{hkl})$ 引入的不确定度分量; 第 2 项为衍射盘中第 i 个强度极小值至中心的距离 $\Delta\theta_i$ 的测量不确定度 $u(\Delta\theta_i)$ 引入的分量; 第 3 项为衍射盘中心与透射盘中心距离测量值的不确定度 $u(R_{hkl})$ 引入的不确定度分量. 将 (9) 式两侧求偏导数, 可得到 (10) 式中各个偏导数的表达式, 结果为

$$\frac{\partial t_0}{\partial \xi_{hkl}} = \left[\left(\frac{s_i}{n_i} \right)^2 + (\xi_{hkl} n_i)^{-2} \right]^{-\frac{3}{2}} (\xi_{hkl} n_i)^{-3} n_i \cos\alpha\cos\beta = \frac{1}{\xi_{hkl}^3 n_i^2} t^2 t_0, \quad (11)$$

$$\frac{\partial t_0}{\partial \Delta\theta_i} = \left(-\frac{1}{2} \right) \left[\left(\frac{s_i}{n_i} \right)^2 - k \left(\frac{1}{n_i} \right)^2 \right]^{-\frac{3}{2}} \frac{2s_i \lambda \cos\alpha\cos\beta}{n_i R d_{hkl}^2} = -\frac{s_i \lambda}{n_i R_{hkl} d_{hkl}^2} t^2 t_0 = -\frac{s_i^2}{\Delta\theta_i n_i} t^2 t_0 = -\frac{s_i^2}{\Delta\theta_i n_i} \frac{1}{t} t^2 t_0, \quad (12)$$

$$\frac{\partial t_0}{\partial R_{hkl}} = -\left(-\frac{1}{2}\right) \left[\left(\frac{s_i}{n_i}\right)^2 - k \left(\frac{1}{n_i}\right)^2 \right]^{-\frac{3}{2}} \frac{2s_i \lambda \Delta\theta_i \cos\alpha \cos\beta}{n_i R_{hkl}^2 d_{hkl}^2} = \frac{s_i^2}{n_i R_{hkl}} t^2 t_0 = \frac{s_i^2}{R_{hkl} n_i} t^2 t_0. \quad (13)$$

因 k 和 ξ_{hkl} 之间有关系式 $k = -\xi_{hkl}^{-2}$, 变量 ξ_{hkl} 引入的不确定度分量也可以用变量 k 引入的不确定度分量代替, 即 (10) 式也可以表达为

$$u_c^2(t_0) = \frac{1}{n(n-1)} \sum_{i=1}^n \left[\frac{\partial t_0}{\partial k} \right]^2 u^2(k) + \frac{1}{n(n-1)} \sum_{i=1}^n \left[\frac{\partial t_0}{\partial \Delta\theta_i} \right]^2 u^2(\Delta\theta_i) + \frac{1}{n(n-1)} \sum_{i=1}^n \left[\frac{\partial t_0}{\partial R_{hkl}} \right]^2 u^2(R_{hkl}), \quad (14)$$

其中

$$\frac{\partial t_0}{\partial k} = -\left(-\frac{1}{2}\right) \left[\left(\frac{s_i}{n_i}\right)^2 - k \left(\frac{1}{n_i}\right)^2 \right]^{-\frac{3}{2}} \left(\frac{1}{n_i}\right)^2 \cos\alpha \cos\beta = \frac{1}{2n_i^2} t^2 t_0. \quad (15)$$

将数据代入相关公式, 计算过程数据如表 4 所列, (10) 式中三项的值分别为

$$\begin{aligned} & \frac{1}{n(n-1)} \sum_{i=1}^n \left[\frac{\partial t_0}{\partial \xi_{hkl}} \right]^2 u^2(\xi_{hkl}) \\ &= \frac{1}{n(n-1)} \sum_{i=1}^n \left[\frac{\partial t_0}{\partial k} \right]^2 u^2(k) = 0.067 \text{ nm}^2, \\ & \frac{1}{n(n-1)} \sum_{i=1}^n \left[\frac{\partial t_0}{\partial \Delta\theta_i} \right]^2 u^2(\Delta\theta_i) = 26.784 \text{ nm}^2, \\ & \frac{1}{n(n-1)} \sum_{i=1}^n \left[\frac{\partial t_0}{\partial R_{hkl}} \right]^2 u^2(R_{hkl}) = 0.179 \text{ nm}^2. \end{aligned}$$

可以看出, 与第二项测量误差引起的不确定度相比, 第一项和第三项引起的测量不确定度可以忽略不计. 试样厚度 t_0 的合成标准不确定度 $u_c(t_0)$ 可近似表达为

$$u_c^2(t_0) = \frac{1}{n(n-1)} \sum_{i=1}^n \left[\frac{\partial t_0}{\partial \Delta\theta_i} \right]^2 u^2(\Delta\theta_i). \quad (16)$$

将相关数据代入 (16) 式, 求出试样厚度的合成标准不确定度为 $u_c(t_0) = 5 \text{ nm}$; 试样厚度的相对标准不确定度为 $u_c(t_0)/t_0 = 2.2\%$.

若用合成标准不确定度表示被测单晶 Si 薄膜样品的局部厚度, 可以表述为: 局部厚度的实验估计值为 239 nm , 合成标准不确定度为 5 nm ; 相对标准不确定度为 2.2% .

4.1.2 扩展不确定度 $U(t_0)$

将合成标准不确定度 $u_c(t_0)$ 乘以包含概率为 p 时的包含因子 k_p ($k_p > 1$), 得到包含概率为 p 时的扩展不确定度 $U_p(t_0)$, 即 $U_p(t_0) = k_p t_0$, 其中包含因子 $k_p = t_p(v)$, $t_p(v)$ 表示包含概率为 p 、自由度为 v 时的 t 分布值.

本次测量数据点 $N = 24$, 数据自由度 $v = N - 2 = 22$. 若取包含概率 $p = 0.95$, 查表^[11] 可得到自由度分别为 20 和 25 时的 t 分布值: $t_{0.95}(20) = 2.09$, $t_{0.95}(25) = 2.06$, 用插值法得到 $t_{0.95}(22) = 2.08$. $t_p(v)$ 的值也可以使用相关软件, 如 excel 软件中的

表 4 薄晶体厚度的合成标准不确定度分析过程数据

Table 4. Combined standard uncertainty analysis process data of thin crystal thickness.

i	n_i	$\Delta\theta_i$	$\frac{\partial t_0}{\partial \xi}$	$\left[\frac{\partial t_0}{\partial \xi} \right]^2 u^2(\xi)$ /nm ²	$\frac{\partial t_0}{\partial k}$	$\left[\frac{\partial t_0}{\partial k} \right]^2 u^2(k)$ /nm ²	$\frac{\partial t_0}{\partial \Delta\theta_i}$	$\left[\frac{\partial t_0}{\partial \Delta\theta_i} \right]^2 u^2(\Delta\theta_i)$ /nm ²	$\frac{\partial t_0}{\partial R_{hkl}}$	$\left[\frac{\partial t_0}{\partial R_{hkl}} \right]^2 u^2(R_{hkl})$ /nm ²
1	2	0.349	0.4789	2.865	17.445	2.865	-8.383	26.848	39.92	0.057
2	3	0.613	0.2129	0.566	7.753	0.566	-9.838	104.519	82.27	0.244
3	4	0.836	0.1197	0.179	4.361	0.179	-10.058	32.823	114.67	0.473
4	5	1.076	0.0766	0.073	2.791	0.073	-10.361	290.186	152.09	0.833
5	6	1.310	0.0532	0.035	1.938	0.035	-10.514	154.891	187.96	1.272
6	7	1.539	0.0391	0.019	1.424	0.019	-10.585	275.992	222.24	1.778
7	8	1.767	0.0299	0.011	1.090	0.011	-10.634	115.718	256.35	2.366
8	9	1.990	0.0237	0.007	0.861	0.007	-10.644	498.953	288.91	3.005

TINV 函数得到, 结果为 $t_{0.95}(22) = 2.07$. 这里采信 $t_{0.95}(22) = 2.07$, 则厚度 t_0 的扩展不确定度为 $U_{95}(t_0) = t_{0.95}(22) u_c(t_0) = 11 \text{ nm}$.

若用扩展不确定度表示被测单晶 Si 薄膜样品的局部厚度, 可以表述为 $t_0 = (239 \pm 11) \text{ nm}$, 合成标准不确定度为 5 nm ; 包含概率为 0.95 时, 包含因子为 2.07 , 扩展不确定度为 11 nm .

4.2 消光距离的不确定度分析

4.2.1 合成标准不确定度 $u_c(\xi)$

由 (2) 式和 (3) 式得到消光距离 ξ 的表达式为

$$\xi = \left[\left(\frac{n_i}{t} \right)^2 - \left(\frac{\lambda \Delta \theta_i}{d_{hkl}^2 R_{hkl}} \right)^2 \right]^{-\frac{1}{2}}. \quad (17)$$

(17) 式中涉及的变量有 n_i , t , λ , $\Delta \theta_i$, d_{hkl} 和 R_{hkl} , 其中 n_i , λ 和 d_{hkl} 的不确定度可忽略不计, 影响消光距离 ξ 的不确定度因素主要是 t , $\Delta \theta_i$ 和 R_{hkl} . 消光距离 ξ 的合成标准不确定度 $u_c(\xi)$ 可表示为

$$\begin{aligned} u_c^2(\xi) &= \frac{1}{n(n-1)} \sum_{i=1}^n \left[\frac{\partial \xi}{\partial t} \right]^2 u^2(t) \\ &+ \frac{1}{n(n-1)} \sum_{i=1}^n \left[\frac{\partial \xi}{\partial \Delta \theta_i} \right]^2 u^2(\Delta \theta_i) \\ &+ \frac{1}{n(n-1)} \sum_{i=1}^n \left[\frac{\partial \xi}{\partial R_{hkl}} \right]^2 u^2(R_{hkl}), \quad (18) \end{aligned}$$

式中, 第 1 项为试样厚度的不确定度 $u(t)$ 引入的不确定度分量; 第 2 项为衍射盘中第 i 个强度极小值至中心的距离 $\Delta \theta_i$ 的测量不确定度 $u(\Delta \theta_i)$ 引入的不确定度分量; 第 3 项为衍射盘中心与透射盘中心距离的测量不确定度 $u(R_{hkl})$ 引入的不确定度分量. 将 (17) 式两侧求偏导数, 可得到 (18) 式中各个偏导数的表达式, 结果为

$$\begin{aligned} \frac{\partial \xi}{\partial t} &= \left[\left(\frac{n_i}{t} \right)^2 - \left(\frac{\lambda \Delta \theta_i}{d_{hkl}^2 R_{hkl}} \right)^2 \right]^{-\frac{3}{2}} n_i^2 t^{-3} \\ &= \frac{n_i^2}{t^3} \xi^3, \quad (19) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial \xi}{\partial \Delta \theta_i} &= \left[\left(\frac{n_i}{t} \right)^2 - \left(\frac{\lambda \Delta \theta_i}{d_{hkl}^2 R_{hkl}} \right)^2 \right]^{-\frac{3}{2}} \\ &\times \left(\frac{\lambda \Delta \theta_i}{d_{hkl}^2 R_{hkl}} \right) \left(\frac{\lambda}{d_{hkl}^2 R_{hkl}} \right) \\ &= -\frac{s_i^2}{\Delta \theta_i} \xi^3, \quad (20) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial \xi}{\partial R_{hkl}} &= - \left[\left(\frac{n_i}{t} \right)^2 - \left(\frac{\lambda \Delta \theta_i}{d_{hkl}^2 R_{hkl}} \right)^2 \right]^{-\frac{3}{2}} \\ &\times \left(\frac{\lambda \Delta \theta_i}{d_{hkl}^2 R_{hkl}} \right) \left(\frac{\lambda \Delta \theta_i}{d_{hkl}^2 R_{hkl}^2} \right) \\ &= -\frac{s_i^2}{R_{hkl}} \xi^3. \quad (21) \end{aligned}$$

因 b 和 t 之间有关系式 $b = t^{-2}$, 变量 t 引入的不确定度分量也可以用变量 b 引入的不确定度分量代替, 即 (18) 式也可以表达为

$$\begin{aligned} u_c^2(\xi) &= \frac{1}{n(n-1)} \sum_{i=1}^n \left[\frac{\partial \xi}{\partial b} \right]^2 u^2(b) \\ &+ \frac{1}{n(n-1)} \sum_{i=1}^n \left[\frac{\partial \xi}{\partial \Delta \theta_i} \right]^2 u^2(\Delta \theta_i) \\ &+ \frac{1}{n(n-1)} \sum_{i=1}^n \left[\frac{\partial \xi}{\partial R_{hkl}} \right]^2 u^2(R_{hkl}), \quad (22) \end{aligned}$$

其中

$$\frac{\partial \xi}{\partial b} = \left(-\frac{1}{2} \right) \left[\left(\frac{n_i}{t} \right)^2 - \left(\frac{\lambda \Delta \theta_i}{d_{hkl}^2 R_{hkl}} \right)^2 \right]^{-\frac{3}{2}} n_i^2 = -\frac{n_i^2 \xi^3}{2}. \quad (23)$$

将数据代入相关公式, 计算过程数据如表 5 所列, (18) 式中各项的值分别为

$$\begin{aligned} &\frac{1}{n(n-1)} \sum_{i=1}^n \left[\frac{\partial \xi}{\partial t} \right]^2 u^2(t) \\ &= \frac{1}{n(n-1)} \sum_{i=1}^n \left[\frac{\partial \xi}{\partial b} \right]^2 u^2(b) = 35.028 \text{ nm}^2, \\ &\frac{1}{n(n-1)} \sum_{i=1}^n \left[\frac{\partial \xi}{\partial \Delta \theta_i} \right]^2 u^2(\Delta \theta_i) = 368.552 \text{ nm}^2, \\ &\frac{1}{n(n-1)} \sum_{i=1}^n \left[\frac{\partial \xi}{\partial R_{hkl}} \right]^2 u^2(R_{hkl}) = 2.717 \text{ nm}^2. \end{aligned}$$

可以看出, 与第一项和第二项相比, 第三项可以忽略不计. 消光距离 ξ 的合成标准不确定度 $u_c(\xi)$ 可简化为

$$\begin{aligned} u_c^2(\xi) &= \frac{1}{n(n-1)} \sum_{i=1}^n \left[\frac{\partial \xi}{\partial t} \right]^2 u^2(t) \\ &+ \frac{1}{n(n-1)} \sum_{i=1}^n \left[\frac{\partial \xi}{\partial \Delta \theta_i} \right]^2 u^2(\Delta \theta_i). \quad (24) \end{aligned}$$

将相关数据代入 (24) 式, 求出消光距离的合成标准不确定度为 $u_c(\xi) = 20 \text{ nm}$; 消光距离的相对标准不确定度为 $u_c(\xi)/\xi = 10\%$.

表 5 消光距离的合成标准不确定度分析过程数据
Table 5. Combined standard uncertainty analysis process data of extinction distance.

i	n_i	$\Delta\theta_i$	$\frac{\partial\xi}{\partial t}$	$\left[\frac{\partial\xi}{\partial t}\right]^2 u^2(t)$ /nm ²	$\frac{\partial\xi}{\partial b}$	$\left[\frac{\partial\xi}{\partial b}\right]^2 u^2(b)$ /nm ²	$\frac{\partial\xi}{\partial\Delta\theta_i}$	$\left[\frac{\partial\xi}{\partial\Delta\theta_i}\right]^2 u^2(\Delta\theta_i)$ /(10 ² nm ²)	$\frac{\partial\xi}{\partial R_{hkl}}$	$\left[\frac{\partial\xi}{\partial R_{hkl}}\right]^2 u^2(\bar{R}_{hkl})$ /nm ²
1	2	0.349	2.067	2.047	-1.457	2.047	-8.762	0.293	-0.417	0.063
2	3	0.613	4.651	10.363	-3.278	10.363	-15.405	2.563	-1.289	0.598
3	4	0.836	8.269	32.752	-5.828	32.752	-21.001	1.431	-2.394	2.064
4	5	1.076	12.921	79.962	-9.106	79.962	-27.041	19.767	-3.969	5.672
5	6	1.310	18.606	165.809	-13.113	165.809	-32.929	15.193	-5.887	12.475
6	7	1.539	25.325	307.182	-17.848	307.182	-38.676	36.847	-8.120	23.738
7	8	1.767	33.077	524.039	-23.312	524.039	-44.406	20.179	-10.705	41.252
8	9	1.990	41.863	839.410	-29.504	839.410	-50.001	110.117	-13.573	66.316

若用合成标准不确定度表示 200 kV 时, 被测 Si 晶体 (400) 晶面的消光距离可以表述为: 消光距离的实验估计值为 194 nm, 合成标准不确定度为 20 nm; 相对标准不确定度为 10%.

4.2.2 扩展不确定度 $U(\xi_{400})$

数据点 $N = 24$, 数据自由度 $v = 22$, 包含概率为 $p = 0.85$ 时, $t_{0.85}(22) = 1.49$. 消光距离 ξ_{400} 的扩展不确定度为 $U_{85}(\xi_{400}) = t_{0.85}(22) u_c(\xi_{400}) = 30$ nm.

若用扩展不确定度表示 200 kV 时, 被测 Si 晶体 (400) 晶面的消光距离, 可以表述为: $\xi_{400} = (194 \pm 30)$ nm, 合成标准不确定度为 20 nm; 包含概率为 0.85 时, 包含因子为 1.49, 扩展不确定度为 30 nm.

4.2.3 ξ 的测试值与理论值的比较

根据电子衍射的衬度理论, hkl 衍射束在满足布拉格衍射条件时的有效消光距离 ξ_{hkl} 可以表示为 [13,14]

$$\xi_{hkl} = \pi V_c \cos\theta_B / \lambda F_{hkl}, \quad (25)$$

式中 V_c 是单胞的体积; λ 是经相对论修正的电子束波长; θ_B 是 hkl 衍射束的布拉格角, 可由布拉格公式 $2d\sin\theta_B = \lambda$ [15,16] 计算得到, 也可以通过测量衍射花样上衍射斑 hkl 和透射斑之间的角度 $2\theta_B$ 得到. 因 θ_B 很小, $\cos\theta_B \approx 1$, 消光距离公式也可以简化为 $\xi_{hkl} = \pi V_c / \lambda F_{hkl}$.

经相对论修正的电子束波长 λ 的表达式 [17,18] 为

$$\lambda = h / [2m_e eU (1 + eU / (2m_e c^2))]^{1/2},$$

即

$$\lambda = 1.22643 / [U (1 + 0.978476 \times 10^{-6} U)]^{1/2},$$

λ 的单位为 nm. λ 的值可计算得到, 也可以在文献中查到 [19,20]. U 是电子显微镜的加速电压, 单位为 V; F_{hkl} 是 g_{hkl} 衍射时晶体单胞的结构振幅, 其表达式为

$$F_{hkl} = \sum_i^N f_{gi}(e) \exp[2\pi i \mathbf{g} \cdot \mathbf{r}_i], \quad (26)$$

其中

$$\mathbf{r}_i = x_i \mathbf{a} + y_i \mathbf{b} + z_i \mathbf{c}, \mathbf{g} = h\mathbf{a}^* + k\mathbf{b}^* + l\mathbf{c}^*, \quad (27)$$

式中, \mathbf{r}_i 表示第 i 个原子位置的坐标矢量; \mathbf{g} 表示产生衍射的晶面的倒易矢量; $\mathbf{a}, \mathbf{b}, \mathbf{c}$ 是正空间的单位矢量; $\mathbf{a}^*, \mathbf{b}^*, \mathbf{c}^*$ 是倒空间的单位矢量; $f_{gi}(e)$ 是 g_{hkl} 衍射时单胞中第 i 个原子对电子的散射振幅, 它是 $\frac{\sin\theta}{\lambda}$ 的函数. 计算得到 $\frac{\sin\theta}{\lambda} = 3.685$ nm⁻¹, 查阅国际晶体学表或文献 [19, 20] 得到 $f_{gi}(3.5) = 0.123$ nm, $f_{gi}(4) = 0.102$ nm, 用插值法得到 $f_{gi}(3.685) = 0.115$ nm.

晶体 Si 为金刚石结构, 点阵参数为 $a = 5.430$ Å, 单胞体积为 $V_c = a \times b \times c = 160.1^3$. 实验用透射电镜加速电压为 200 kV, 入射电子束波长为 $\lambda = 0.02507$ Å. 在金刚石结构 Si 晶体中, 每个单胞有 8 个原子, 8 个原子的位置坐标分别为 $(0, 0, 0)$, $(\frac{1}{2}, \frac{1}{2}, 0)$, $(\frac{1}{2}, 0, \frac{1}{2})$, $(0, \frac{1}{2}, \frac{1}{2})$, $(\frac{1}{4}, \frac{1}{4}, \frac{1}{4})$, $(\frac{3}{4}, \frac{3}{4}, \frac{1}{4})$, $(\frac{3}{4}, \frac{1}{4}, \frac{3}{4})$, $(\frac{1}{4}, \frac{3}{4}, \frac{3}{4})$. 单胞中 8 个原子的 $\mathbf{g} \times \mathbf{r}_i$ 矢量点积分别为: $\mathbf{g}_{400} \cdot \mathbf{r}_1 = 0, \mathbf{g}_{400} \cdot \mathbf{r}_2 = 2, \mathbf{g}_{400} \cdot \mathbf{r}_3 = 2, \mathbf{g}_{400} \cdot \mathbf{r}_4 = 0, \mathbf{g}_{400} \cdot \mathbf{r}_5 = 1, \mathbf{g}_{400} \cdot \mathbf{r}_6 = 3, \mathbf{g}_{400} \cdot \mathbf{r}_7 = 3, \mathbf{g}_{400} \cdot \mathbf{r}_8 = 1$, 计算得到 $\sum_{i=1}^8 e^{2\pi i \mathbf{g} \cdot \mathbf{r}_i} = 2 + 2e^{2\pi i} + 2e^{4\pi i} + 2e^{6\pi i} = 8$, 电子质量的相对论修正系数 $\frac{m}{m_0} = 1.3914$, 经相对论修正的结构因子 $F_g = 8 \frac{m}{m_0} f_{gi}(e) = 1.283$.

计算得到, 在 200 kV 加速电压条件下, 硅晶体 (400) 晶面的消光距离为 $\xi_{400} = 156$ nm. 理论计算值低于本次实验测定值 38 nm, 约占实测值的 19%. 实际情况下, 由于若干因素对原子散射振幅的影响, 实测值和理论值会有较大误差.

4.3 影响 t_0 和 ξ 不确定度的因素

影响试样厚度 t_0 和消光距离 ξ_{400} 实验估算值的不确定度的主要来源是测量数据的不确定度, 即 $u(\Delta\theta_i)$, 也就是 (10) 式和 (18) 式中第二项的值是主要影响因素. 第二项中, $u(\Delta\theta_i)$ 前面的系数 $\left| \frac{\partial t_0}{\partial \Delta\theta_i} \right|$ 和 $\left| \frac{\partial \xi}{\partial \Delta\theta_i} \right|$ 直接决定了试样厚度 t_0 和消光距离 ξ_{400} 的不确定度水平. 关于 $\frac{\partial t_0}{\partial \Delta\theta_i}$ 和 $\frac{\partial \xi}{\partial \Delta\theta_i}$ 的表达式如下:

$$\frac{\partial t_0}{\partial \Delta\theta_i} = -\frac{s_i^2}{\Delta\theta_i} \frac{1}{n_i} t^2 t_0 = -\left(\frac{\Delta\theta_i}{d_{hkl}^2 n_i} \right) (R_{hkl} d_{hkl})^{-2} (\lambda^2) (t^2 t_0), \quad (28)$$

$$\frac{\partial \xi}{\partial \Delta\theta_i} = -\frac{s_i^2}{\Delta\theta_i} \xi^3 = -\left(\frac{\Delta\theta_i}{d_{hkl}^2} \right) (R_{hkl} d_{hkl})^{-2} (\lambda^2) \xi^3, \quad (29)$$

$$\left| \frac{\partial \xi}{\partial \Delta\theta_i} \right| / \left| \frac{\partial t}{\partial \Delta\theta_i} \right| = n_i \left(\frac{\xi}{t} \right)^3. \quad (30)$$

可见, 影响试样厚度 t_0 标准不确定度的主要因素是相机常数、加速电压和试样厚度. 相机常数越大、加速电压越大、试样厚度越小, 则试样厚度 t_0 的标准不确定度越小; 影响消光距离 ξ 标准不确定度的主要因素是相机常数、加速电压和消光距离. 相机常数越大、加速电压越大、消光距离 ξ 越小, 则消光距离 ξ 的标准不确定度越小. K-M 花样暗条纹位置的测量误差 $u(\Delta\theta_i)$ 对消光距离不确定度的影响约是对试样厚度的不确定度影响的 $n_i(\xi/t)^3$ 倍.

因 t_0 和 ξ 分别与直线的截距 b 和斜率 k 有关, 因此 $\left| \frac{\partial t_0}{\partial \Delta\theta_i} \right|$ 和 $\left| \frac{\partial \xi}{\partial \Delta\theta_i} \right|$ 的区别也可以由 $\left| \frac{\partial b}{\partial \Delta\theta_i} \right|$ 和 $\left| \frac{\partial k}{\partial \Delta\theta_i} \right|$ 的差异反映出来. 关于 $\frac{\partial b}{\partial \Delta\theta_i}$ 和 $\frac{\partial k}{\partial \Delta\theta_i}$ 的表达式为

$$\frac{\partial b}{\partial \Delta\theta_i} = \frac{\partial b}{\partial t} \frac{\partial t}{\partial \Delta\theta_i} = (-2t^{-3}) \left(-\frac{S_i^2}{n_i \Delta\theta_i} t^3 \right) = 2 \frac{S_i^2}{\Delta\theta_i} \frac{1}{n_i}, \quad (31)$$

$$\frac{\partial k}{\partial \Delta\theta_i} = \frac{\partial k}{\partial \xi} \frac{\partial \xi}{\partial \Delta\theta_i} = (2\xi^{-3}) \left(-\frac{S_i^2}{\Delta\theta_i} \xi^3 \right) = -2 \frac{S_i^2}{\Delta\theta_i}. \quad (32)$$

两侧相除, 得到

$$\left| \frac{\partial k}{\partial \Delta\theta_i} \right| / \left| \frac{\partial b}{\partial \Delta\theta_i} \right| = n_i. \quad (33)$$

可见, 测量不确定度导致的拟合直线斜率的不确定度约是截距不确定度的 n_i 倍. 如果试样有一定厚度, 即 $n_i > 1$, 则用 TEM 双束会聚束衍射 K-M 花样分析得到的薄晶体厚度的不确定度会明显小于用此方法分析得到的消光距离的不确定度.

5 结 论

1) 被测 Si 晶体局部厚度的实验估计值为 239 nm, 其合成标准不确定度为 5 nm; 相对标准不确定度为 2.2%; 包含概率为 0.95 时, 包含因子为 2.07, 扩展不确定度为 11 nm;

2) 加速电压为 200 kV 时, Si 晶体 (400) 晶面的消光距离 ξ_{400} 的实验估计值为 194 nm, 合成标准不确定度为 20 nm; 相对标准不确定度为 10%; 包含概率为 0.85 时, 包含因子为 1.49, 扩展不确定度为 30 nm;

3) 加速电压为 200 kV 时, 被测 Si 晶体 (400) 晶面的消光距离的理论计算值为 156 nm, 理论计算值与实验测定值的差为 38 nm, 约占 19%;

4) 影响试样厚度 t_0 和消光距离 ξ 合成标准不确定度的主要因素是测量不确定度 $u(\Delta\theta_i)$, 测量不确定度对试样厚度 t_0 和消光距离 ξ 的合成标准不确定度的影响系数由相机常数、加速电压、试样厚度或消光距离决定;

5) 测量误差 $u(\Delta\theta_i)$ 对消光距离不确定度的影响是对试样厚度不确定度影响的 $n_i(\xi/t)^3$ 倍; 对拟合直线斜率的不确定度的影响是对截距不确定度影响的 n_i 倍. 如果试样有一定厚度, 即 $n_i > 1$, 则用 TEM 双束会聚束衍射 K-M 花样分析得到的薄晶体厚度的不确定度会明显小于用此方法分析得到的消光距离的不确定度.

参考文献

- [1] Shi J A, Zhang Q H, Gu L 2017 *J. Chin. Electron Microsc. Soc.* **36** 18 (in Chinese) [时金安, 张庆华, 谷林 2017 电子显微学报 **36** 18]

- [2] Heo Y U 2020 *Appl. Microsc.* **50** 325
- [3] Liu Y, Zhao D S, Nie X, Tao H Y, Wang J B, Gui J N 2012 *J. Chin. Electron Microsc. Soc.* **31** 130 (in Chinese) [刘玉, 赵东山, 聂鑫, 陶红玉, 王建波, 桂嘉年 2012 *电子显微学报* **31** 130]
- [4] Lou Y Z 2021 *J. Chin. Electron Microsc. Soc.* **40** 234 (in Chinese) [娄艳芝 2021 *电子显微学报* **40** 234]
- [5] Castro Riglos M V, Tolley A 2007 *Appl. Surf. Sci.* **254** 420
- [6] Zhu J, Tan P K, Tan H, Wang D D, Mai Z H 2015 *J. Vac. Sci. Technol., B* **33** 052209
- [7] Delille D, Pantel R, Van Cappellen E 2001 *Ultramicroscopy* **87** 5
- [8] Spence J C H, Zuo J M 1992 *Electron Microdiffraction* (New York: Plenum Press) p86
- [9] GB/T 20724-2021 *Microbeam analysis—Method of Thickness Measurement for Thin Crystals by Convergent Beam Electron Diffraction* (in Chinese) [GB/T 20724-2021 微束分析薄晶体厚度的会聚束电子衍射测定方法]
- [10] Ye H Q, Wang Y M 2003 *Progress on Transmission Electron Microscope* (Beijing: Science Press) p22 (in Chinese) [叶恒强, 王元明 2003 (北京: 科学出版社) 第22页]
- [11] GB/T 27418-2017 *Guide to the Evaluation and Expression of Uncertainty in Measurement* pp48, 49 (in Chinese) [GB/T 27418-2017 测量不确定度评定与表示 第48, 49页]
- [12] JJF1059.1-2012 *Evaluation and Expression of Uncertainty in Measurement* p19 (in Chinese) [JJF1059.1-2012 测量不确定度评定与表示 第19页]
- [13] Hirsch P, Howie A, Nicholson R B, Pashley D W, Whelan M J (translated by Liu A S, Li Y H) 1983 *Electron microscopy of thin crystals* (Beijing: Science Press) p111 (in Chinese) [赫什P, 豪伊·A, 尼科尔森R B, 帕施利D W, 惠兰M J 著 (刘安生, 李永洪 译)1983 薄晶体电子显微学 (北京: 科学出版社) 第111页]
- [14] Fultz B, Howe J 2008 *Transmission Electron Microscopy and Diffractometry of Materials* (New York: Springer Press) p237
- [15] Vainshtein B K 1964 *Structure Analysis by Electron Diffraction* (York: Pergamon Press) p16
- [16] Egerton R F 2016 *Physical Principles of Electron microscopy* (New York: Springer Press) p101
- [17] Williams D B, Carter C B 2009 *Transmission Electron Microscopy: A Textbook for Materials Science* (New York: Springer Press) p14
- [18] Zuo J M, Spence J C H 2017 *Advanced Transmission Electron Microscopy: Imaging and Diffraction in Anoscience* (New York: Springer Press) p2
- [19] Liu D L, Quan M H, Wu X F 2018 *Practical Methods of Electron Microscopic Analysis* (Beijing: China Quality and Standards Press) pp288–292 (in Chinese) [柳得楷, 权茂华, 吴杏芳 2018 电子显微分析实用方法 (北京: 中国质检出版社, 中国标准出版社) 第288—292页]
- [20] Hirsch P, Howie A, Nicholson R B, Pashley D W, Whelan M J (translated by Liu A S, Li Y H) 1983 *Electron Microscopy of Thin Crystals* (Beijing: Science Press) pp568–579 (in Chinese) [赫什P, 豪伊A, 尼科尔森R B, 帕施利D W, 惠兰M J 著 (刘安生, 李永洪 译) 1983 薄晶体电子显微学 (北京: 科学出版社) 第568—579页]

Evaluation of uncertainty in measuring thin crystal thickness and extinction distance by Kossel-Möllenstedt pattern analysis

Lou Yan-Zhi¹⁾ Li Yu-Wu^{2)†}

1) (*AECC Beijing Institute of Aeronautical Materials, Beijing 100095, China*)

2) (*National Research Center for Environmental Analysis and Measurement, Beijing 100029, China*)

(Received 8 December 2021; revised manuscript received 13 March 2022)

Abstract

In this paper, the local thickness of single crystal Si film sample and the extinction distance ξ_{400} of the (400) plane of Si crystal are obtained by analyzing the double-beam converging beam diffraction (CBED) pattern of single crystal Si film sample under the 200 kV of accelerated voltage. The factors affecting the measurement uncertainty are analyzed, and the influence coefficients of each factor on the measurement uncertainty are discussed by using the concept of first-order partial derivative. The measurement uncertainty of thin crystal thickness and extinction distance are evaluated and expressed according to national standards GB/T 27418-2017. The conclusions are as follows. The local thickness of the measured Si crystal is estimated at 239 nm, the combined standard uncertainty is 5 nm, and the relative standard uncertainty is 2.2%. With the inclusion probability being 0.95, the coverage factor is 2.07 and the expanded uncertainty is 11 nm. With the accelerated voltage being 200 kV, the extinction distance of Si crystal (400) plane is estimated at 194 nm, the combined standard uncertainty of the extinction distance is 20 nm, and the relative standard uncertainty of the extinction distance is 10%. With the inclusion probability being 0.85, the coverage factor is 1.49 and the expanded uncertainty is 30 nm. The main factors that can affect the combined standard uncertainty of sample thickness t_0 are camera constant, accelerating voltage and sample thickness, while the factors that influence the combined standard uncertainty of extinction distance are camera constant, accelerating voltage and extinction distance. The influence of the uncertainties of the measurement data of the Kossel-Möllenstedt pattern on the uncertainty of the extinction distance is $n_i(\xi/t)^3$ times that on the sample thickness, and their influence on the slope of the fitting line is about n_i times that on the intercept of the line, where n_i is a positive integer and greater than or equal to 1. If the sample is not too thin, that is, n_i is greater than 1, then the uncertainty of crystal thickness will be smaller than the uncertainty of extinction distance.

Keywords: convergent-beam electron diffraction, thickness measurement, extinction distance, uncertainty

PACS: 68.37.Lp, 02.50.-r, 68.60.-p, 61.50.Ah

DOI: 10.7498/aps.71.20212271

† Corresponding author. E-mail: liyuwu100029@163.com