

Bernd Schindler

**Untersuchungen zur
energiegefilterten Abbildung und Spektroskopie
in einem Feldemissions-
Rasterelektronenmikroskop**

- April 1999 -

*„We can't solve problems
by using the same kind of thinking
we used when we created them.“*

A. Einstein

Für Ute

Experimentelle Physik

**Untersuchungen zur
energiegefilterten Abbildung und Spektroskopie
in einem Feldemissions-
Rasterelektronenmikroskop**

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

vorgelegt von
Bernd Schindler
aus Neubeckum
- April 1999 -

Dekan:

Prof. Dr. N. Schmitz

Erster Gutachter:

Prof. Dr. H. Kohl

Zweiter Gutachter:

Prof. Dr. L. Reimer

Tag der mündlichen Prüfungen:

10./15.06.1999

Tag der Promotion:

15.06.1999

Inhaltsverzeichnis

Einleitung	1
1 Besonderheiten eines hochauflösenden LVSEM	5
1.1 Kathodentypen	5
1.1.1 Schottky-Emitter	5
1.1.2 Feldemissionskathoden	7
1.2 Vakuumsystem	11
1.3 Linsensystem	12
1.4 Detektorsysteme	14
2 Theoretische Grundlagen	17
2.1 Elastische Streuprozesse	17
2.1.1 Rutherford-Streuung	18
2.1.2 Mott-Streuung	19
2.2 Unelastische Streuprozesse	22
2.2.1 Kinematische Betrachtungen	25
2.2.2 Unelastischer Streuquerschnitt	26
2.2.3 Stopping-Power	27
2.3 Elektronenmikroskopische Größen	30
2.3.1 Reichweite der Elektronen	30
2.3.2 Transmissionskoeffizient	36
2.3.3 Rückstreukoeffizient	37
2.3.3.1 Winkelverteilung der BSE	39
2.3.3.2 Energieverteilung der BSE	39
2.4 Monte-Carlo Simulation	41
3 Energiefilterung von Elektronen	45
3.1 Einführung	45

3.2	Elektrostatische Elektronen-Spektrometer	46
3.2.1	Parameter von Elektronen-Spektrometern	50
3.2.2	Optimierung des Betriebs von Spektrometern	51
3.2.3	Detektoren	55
4	Experimentelles	59
4.1	Meßaufbau zur Energiefilterung im LVSEM	59
4.1.1	Eigenschaften der Einzelkomponenten	59
4.2	Gegenfeld-Spektrometer	61
4.2.1	Gegenfeld-Filterlinse	61
4.2.2	Hemisphärisches Gegenfeld-Spektrometer	65
4.3	Ablenkfeld-Spektrometer	69
4.3.1	Toroidales Sektorfeld-Spektrometer	69
4.3.2	„Sphärisches“ Sektorfeld-Spektrometer nach Jost	75
4.4	Probenpräparation	80
5	Ergebnisse und Diskussion	83
5.1	Untersuchungen zur Transmission	83
5.1.1	Gegenfeld-Filterlinse	85
5.1.2	„Sphärisches“ Sektorfeld-Spektrometer nach Jost	88
5.2	Untersuchungen zur Rückstreuung	94
5.2.1	Hemisphärisches Gegenfeld-Spektrometer	94
5.2.2	Toroidales Sektorfeld-Spektrometer	100
5.2.3	Überlegungen zur Auflösungsverbesserung im SEM	105
5.2.3.1	Einfluß der Elektronendiffusion	106
5.2.3.2	Einfluß des Sondendurchmessers	107
5.2.3.3	Einfluß des Signal/Rausch-Verhältnisses	108
5.2.3.4	Auflösungsverbesserung durch elastische Filterung	109
5.2.3.5	Abschätzungen für ein hochauflösendes V-LVSEM	110
5.3	Kontamination	112
6	Zusammenfassung und Ausblick	115
A	Anhang	119
A.1	Parameter des S-4000 SEM	119
A.1.1	Vakuumdaten	119
A.1.2	Sondenstrom	120

A.2	Ergänzende Tabellen	121
A.2.1	Eigenschaften verschiedener Szintillatoren	121
A.2.2	Eigenschaften verschiedener Kathodentypen	121
A.2.3	Praktische Elektronenreichweiten	123
A.3	Elektronische Schaltskizzen	124
A.3.1	Verstärker für das hemisphärische Gegenfeld-Spektrometer . .	124
A.3.2	Signalverstärker zur Bild- und Spektrenaufnahme	125
	Abkürzungsverzeichnis	127
	Symbolverzeichnis	129
	Literaturverzeichnis	132

Einleitung

Die Elektronenmikroskopie hat sich seit ihrer Entwicklung im Jahr 1932 durch Knoll und Ruska (1932) zu einem universellen und unverzichtbaren Hilfsmittel zur Abbildung, Analyse und Manipulation mikroskopischer Strukturen entwickelt. Moderne Rasterelektronenmikroskope (**Scanning Electron Microscope**, SEM) arbeiten mit Beschleunigungsspannungen von 0.5–30 kV. Besonders interessant für die Biologie, Medizin und Materialwissenschaften ist die sogenannte Niederspannungs-Rasterelektronenmikroskopie (**Low-Voltage Scanning Electron Microscopy**, LV-SEM) im Primär-Energiebereich von $E \leq 5 \text{ keV}$ (Pawley, 1984). Seit etwa 10–15 Jahren ist es aufgrund der verbesserten Elektronenoptiken und durch die Entwicklung der Feldemissionskathode sowie des Schottky-Emitters möglich, diesen Energiebereich mit einem ausreichenden Sondenstrom und einer lateralen Auflösung der Größenordnung nm zu nutzen. Niederspannungs-Rasterelektronenmikroskope, die mit einer solchen Kathode ausgestattet sind, werden auch häufig als FE-SEM (**F**ield **E**mission-**S**canning **E**lectron **M**icroscope) bezeichnet.

Der Niederenergie-Bereich ist durch zahlreiche Besonderheiten ausgezeichnet. Die wesentlichen positiven Eigenschaften sind die erhöhte Sekundärelektronenausbeute, die Begrenzung der Strahlenschäden auf einen oberflächennahen Bereich von einigen nm aufgrund der geringeren Eindringtiefe des Primärelektronenstrahls sowie die Möglichkeit der aufladungsfreien Abbildung von Isolatoren. Neben diesen Vorteilen treten in der Niederspannungs-Rasterelektronenmikroskopie aber auch Schwierigkeiten auf. Während im konventionellen Energiebereich ($E > 5 \text{ keV}$) die Rückstreuelektronenausbeute mit steigender Ordnungszahl monoton wächst und somit eine Materialunterscheidung möglich ist, sind die Kontraste im Niederenergie-Bereich weniger eindeutig. Die Ursache hierfür liegt in dem geänderten Streuverhalten der niederenergetischen Elektronen begründet (Reimer, 1993). Mit abnehmender Primärenergie treten zunehmend die Spin-Bahn-Wechselwirkung und die Zunahme der unelastischen Wirkungsquerschnitte in den Vordergrund. Dadurch kommt es zu drastischen Veränderungen der Streuprozesse innerhalb der Probe.

Wichtige Ergebnisse über die Wechselwirkungsmechanismen zwischen Elektronen und Materie lassen sich mittels elektronenspektroskopischer Verfahren erhalten. Durch die Energieanalyse der in einer Probe gestreuten Elektronen lassen sich Aussagen über die unelastische Streuung gewinnen. Bei winkelaufgelösten Messungen erhält man zudem noch Informationen über die elastischen Streuprozesse. Die

Verwendung energieselektierter Elektronen im Abbildungsmodus eröffnet darüber hinaus interessante Möglichkeiten zur Separation einzelner Informationen aus einem integralen Signal. So kann die Energiefilterung beispielsweise zu einer Kontraststeigerung und elementspezifischen Abbildung ausgenutzt werden.

Für derartige Untersuchungen bietet das zur Verfügung stehende Niederspannungs-Rasterelektronenmikroskop S-4000 SEM der Firma Hitachi zahlreiche Vorteile. Einerseits lassen sich elektronenmikroskopische Aufnahmen von den zu untersuchenden Probenstellen erhalten, so daß auftretende Probleme bei einer Analyse häufig durch einfache visuelle Kontrolle erkannt werden können. Andererseits besitzt das Gerät eine kalte Feldemissionsquelle, die über eine deutlich geringere Energiebreite der austretenden Elektronen verfügt als die üblicherweise verwendeten Wolfram-Haarnadelkathoden. Daher ist der kalte Feld-Emitter für spektroskopische Untersuchungen besonders interessant.

Ziel dieser Arbeit war es, ein universelles, modulares System zu entwickeln, daß sowohl eine energiegefilterte Abbildung als auch die Durchführung von Untersuchungen zur Elektronenspektroskopie in einem Niederspannungs-Rasterelektronenmikroskop ermöglicht. Dabei soll der Energiebereich von 0–10 keV abgedeckt werden können, um sowohl Messungen im Niederenergiebereich durchzuführen, als auch Vergleichsmöglichkeiten zum konventionellen Energiebereich zu erhalten. Mit denen für dieses System entwickelten Elektronen-Spektrometern sollen die Möglichkeiten einer Energiefilterung rückgestreuter und transmittierter Elektronen im Rasterelektronenmikroskop mit kalter Feldemissionsquelle untersucht werden.

Die vorliegende Arbeit gliedert sich in die folgenden Teile: Kapitel 1 behandelt die Besonderheiten, die ein LVSEM gegenüber einem konventionellen SEM auszeichnet. Schwerpunkt der Darstellung liegt dabei auf der Beschreibung der speziellen Kathodentypen, wie Schottky- bzw. Feldemissionskathoden, die für die energiegefilterte Abbildung bzw. Spektroskopie von Elektronen in einem SEM eine elementare Rolle spielen. Kapitel 2 beschäftigt sich in einem ersten Teil mit der theoretischen Beschreibung der elementaren Streuprozesse von Elektronen mit Materie. Diese Elementarprozesse sind verantwortlich für die grundlegenden elektronenmikroskopischen Größen: Reichweite, Transmissions- und Rückstreuoeffizient sowie die Energie- und Winkelverteilung. Diese Größen bestimmen maßgeblich die Kontraste und das Auflösungsvermögen elektronenmikroskopischer Bilder. Der daran anschließende Teilbereich befaßt sich mit der Implementierung der vorgestellten theoretischen Modelle in die Monte-Carlo Simulation und den sich daraus ergebenden Möglichkeiten und Grenzen der Methode. In Kapitel 3 wird auf die Grundlagen der energiegefilterten Abbildung und Spektroskopie von Elektronen eingegangen, wie sie für die Mikroskopie von Interesse sind. Dabei werden nach einer kurzen Einführung der grundlegenden Prinzipien zur Energiefilterung von Elektronen die wichtigen Eigenschaften der verwendeten Spektrometertypen diskutiert. Kapitel 4 befaßt sich mit dem entwickelten übergeordneten Meßaufbau sowie den einzelnen Komponenten mit den verwendeten Elektronenspektrometern für die energiegefilterte Abbildung und Spektroskopie. Im Anschluß daran wird auf die Präparation

der verwendeten Proben eingegangen. In Kapitel 5 werden die erzielten Ergebnisse aus den Messungen zur Transmission und Rückstreuung sowie die Ergebnisse der Monte-Carlo Simulationen zur Rückstreuung vorgestellt, verglichen und diskutiert. Speziell zur Rückstreuung werden theoretische Überlegungen zur Auflösungsverbesserung eines Rasterelektronenmikroskops durch die Energiefilterung der elastisch reflektierten Elektronen angestellt. In dem Zusammenhang wird eine Abschätzung für die bestmögliche erzielbare Auflösung eines Rasterelektronenmikroskops gegeben. Kapitel 6 faßt die einzelnen Ergebnisse zusammen und gibt einen Ausblick über zukünftige Möglichkeiten, die sich aus der Weiterentwicklung der verwendeten Spektrometer und der angewendeten Untersuchungsmethoden ergeben.

Kapitel 1

Besonderheiten eines hochauflösenden LVSEM

In diesem Kapitel werden die besonderen Anforderungen an die wesentlichen Komponenten eines LVSEM aufgezeigt, die sich von denen eines konventionellen SEM unterscheiden und damit die Randbedingungen für eine Energiefilterung in einem solchen Gerät festlegen. Dabei werden die Eigenschaften des elektronenstrahlerzeugenden Systems ausführlicher behandelt, da diese im wesentlichen die Grenzen der bei spektroskopischen Untersuchungen erreichbaren Energieauflösung und Nachweisesempfindlichkeit bestimmen. Das Hauptaugenmerk liegt dabei auf dem kalten Feld-Emitter, der im verwendeten LVSEM integriert ist.

1.1 Kathodentypen

Der rasante Fortschritt in der Entwicklung speziell für den Niederenergie-Bereich ausgelegter Rasterelektronenmikroskope wurde maßgeblich durch die Entwicklung der kalten- und geheizten Feldemissionskathoden sowie der Schottky-Emitter eingeleitet. Diese Kathodentypen zeichnen sich gegenüber den üblicherweise verwendeten thermischen W- bzw. LaB₆-Kathoden durch ihre um Zehnerpotenzen größeren Richtstrahlwerte und um die bis zu einer Größenordnung geringere Energiebreite δE aus. Diese Eigenschaften ermöglichen es, im Niederenergie-Bereich bei $E \leq 5$ keV mit ausreichenden Strahlströmen bei kleinen Sondendurchmessern zu arbeiten.

1.1.1 Schottky-Emitter

Die sogenannten Schottky-Emitter vom ZrO/W (100)-Typ sind folgendermaßen aufgebaut: Auf eine Wolfram-Kathode wird eine in (100) Richtung orientierte Wolfram-Einkristallspitze aufgebracht. Diese Spitze wird angeätzt, um einen Krümmungsradius von etwa $0.5 - 1 \mu\text{m}$ zu erhalten. Durch Aufdampfen von ZrO auf die

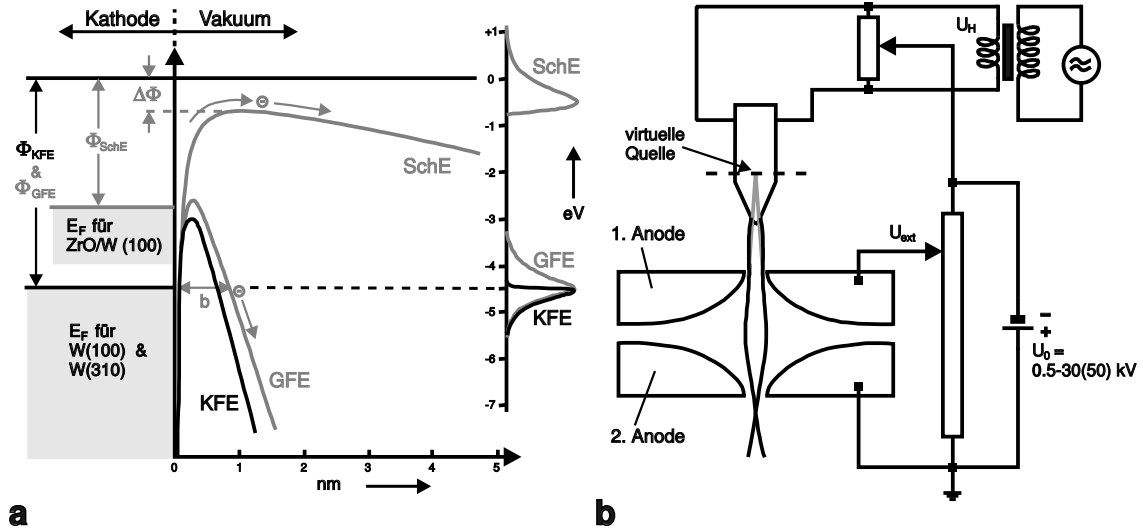


Abb. 1.1: (a) Potentialverlauf an dem Übergang von Kathodenspitze zum Vakuum für einen ZrO/W-Schottky-Emitter (SchE) und eine kalte (KFE) bzw. geheizte (GFE) Wolfram-Einkristall-Feldemissions-Kathode; E_F =Fermi-Energie, Φ =Austrittsarbeit (nach Tuggle *et al.* (1985)). (b) Typischer Aufbau einer Feldemission-Kathode nach Crewe *et al.* (1968a); im Fall einer kalten FE-Kathode entfällt der Heizspannungsstromkreis.

(100)-orientierte W-Spitzenoberfläche wird die Austrittsarbeit von $\Phi_W = 4.6 \text{ eV}$ auf $\Phi_{ZrO} = 2.8 \text{ eV}$ erniedrigt.

Abbildung 1.1(a) stellt die Potentialverhältnisse am Übergang zwischen Kathodenspitze und Vakuum bei Anwesenheit eines elektrischen Feldes dar, wie sie bei Schottky-Emitttern und Feldemissionskathoden herrschen. Beim Betrieb eines Schottky-Emitters wird zwischen Kathode und erster Anode eine Extraktionsspannung von 4–8 kV angelegt. Das dadurch entstehende elektrische Feld an der Kathodenspitze erniedrigt die Potentialbarriere um einen weiteren Betrag $\Delta\Phi$. Dieses Absenken der Potentialbarriere durch ein äußeres Feld wird als Schottky-Effekt bezeichnet. Die Feldstärke an der Spitze reicht jedoch trotz der Erniedrigung der Austrittsarbeit durch das ZrO und der Potentialabsenkung durch den Schottky-Effekt nicht aus, um eine merkliche Feldemission durch den Tunneleffekt zu bewirken. Im Fall der Schottky-Emission müssen daher die Elektronen die Potentialbarriere im wesentlichen durch ihre thermische Energie überwinden. Leider wird der Schottky-Emitter in der Literatur häufig fälschlicherweise als Feldemissions-Kathode bezeichnet.

Die wesentlichen Vorteile dieses Kathodentyps im Vergleich zur konventionellen W- bzw. LaB₆-Quelle sind der hohe Richtstrahlwert von ca. $10^8 \text{ Acm}^{-2} \text{sr}^{-1}$ bei 20 keV, die hohe Emissionsstromdichte von ca. 500 A/cm^2 und die kleine Energiebreite von $\delta E \approx 0.8 \text{ eV}$ bei geringem Rauschen. Die Strahlstromstärke liegt in der Größenordnung von $10^{-8} - 10^{-9} \text{ A}$ und ist damit etwa um einen Faktor 10–50 größer als bei einer kalten Feldemissionskathode. Diese Eigenschaften machen diesen Ka-

thodentyp so interessant für die Elektronenmikroskopie. In Tabelle A.3 sind die Eigenschaften aller in der Rasterelektronenmikroskopie verwendeten Kathodentypen gegenübergestellt. Schottky-Emitter benötigen Aufheizzeiten von ca. 1 h, um die nötige Heiztemperatur von 1800–2300 K zu erreichen. Um diese lange Aufwärmzeit zu umgehen, werden die Schottky-Emitter häufig über Nacht bei reduzierter Heizleistung ständig einsatzbereit gehalten, so daß die Kathode nach nur ca. 2 min Aufheizzeit vor Beginn einer Untersuchung für den Abbildungsbetrieb zur Verfügung steht. Wird diese Kathode im Dauerbetrieb bei ca. 2300 K betrieben, beträgt die Lebensdauer der Spitze ca. 9000 Betriebsstunden (Frase, 1998).

1.1.2 Feldemissionskathoden

Die Feldemissionskathode (**F**ield **E**mission **G**un, FEG) wurde von Crewe *et al.* (1968a) entwickelt und erstmalig für den Gebrauch in einem hochauflösenden STEM von Crewe *et al.* (1968b) vorgestellt. In Abbildung 1.1(b) ist der typische Aufbau der Kanone gezeigt. Der Krümmungsradius einer Feldemissions-Kathodenspitze ist mit $r_s \approx 0.01 - 0.1 \mu\text{m}$ etwa 10–100-fach kleiner als bei einem Schottky-Emitter. Durch Anlegen einer Extraktionsspannung von $U_{ext} \approx 2 - 6 \text{ kV}$ zwischen der Kathode und der ersten Anode entsteht an der Spitze einer FEG daher eine Feldstärke von $|E| = U_{ext}/r_s \geq 5 \cdot 10^7 \text{ V/cm}$. Dieses starke elektrische Feld senkt die Potentialbarriere zwischen der Fermienergie E_F des Kathodenmaterials und dem Vakuum-Niveau zu einem Potentialwall ab, dessen Breite b in der Höhe der Fermi-Energie eine Größenordnung von einigen nm besitzt. Bei diesen Potentialverhältnissen haben die Elektronen die Möglichkeit die Potentialbarriere zu durchtunneln. Da die Tunnelwahrscheinlichkeit eine Funktion von U_{ext} ist, kann der Extraktionsstrom durch Veränderung der Extraktionsspannung U_{ext} variiert werden. Die Spannung U_0 von $\approx 0.5 - 30 \text{ kV}$ zwischen Kathode und zweiter Anode dient einerseits der Fokussierung des Elektronenstrahls, andererseits werden die Elektronen durch diese Spannung auf ihre feste Primärenergie beschleunigt.

FEGs sowie Schottky-Emitter werden auch als virtuelle Punktelektronenquellen bezeichnet, da sie im Gegensatz zu thermischen W- bzw. LaB₆-Kathoden einen von der Spitze divergierenden Elektronenstrahl besitzen. Es existiert also kein *Cross-over* vor der Spitze wie bei den thermischen Kathoden. Durch Rückprojektion der von der Kathodenoberfläche divergierenden Elektronen ergibt sich eine virtuelle Elektronenquelle, die um mehrere Größenordnungen kleiner ist als der erste *Cross-over* einer herkömmlichen W-Haarnadelkathode bzw. LaB₆-Kathode (Abbildung 1.1(b)).

Feldemissionskathoden bestehen in der Regel aus einem gebogenen Wolfram-Draht, auf dem ein in (100) oder (310) Richtung orientierter Wolfram-Einkristall mit einer sehr fein angeätzten Spitze aufgebracht ist. Durch die Verwendung von (100)-orientierten Spitzen wird die Emission auf einen Winkelbereich von $\approx 0.1 \text{ rad}$ begrenzt. Daher zeichnen sich FEGs durch einen extrem hohen Richtstrahlwert von typischerweise $10^{10} \text{ Acm}^{-2}\text{sr}^{-1}$ aus. Durch die Aberration des Kanonen-Linsensystems wird dieser Wert auf etwa $10^7 - 10^8 \text{ Acm}^{-2}\text{sr}^{-1}$ bei einer Primärenergie von 20 keV

reduziert. Verschiedene Elektroden-Anordnungen für FEGs wurden von Crewe *et al.* (1968a), Butler (1966), Munro (1972) und Riddle (1978) untersucht. Mit der Verwendung von magnetischen Linsen beschäftigten sich Cleaver (1979) und Troyon (1980). Eine Zusammenstellung verschiedener Typen von Strahlerzeugungs-Linsensystemen für die Elektronenmikroskopie ist bei Troyon (1984) zu finden.

Kalte Feldemissionsquelle

Das in dieser Arbeit verwendete Niederspannungs-SEM Hitachi S-4000 ist mit einem kalten Feld-Emitter ausgestattet. Die Elektronenstrahlerzeugung erfolgt mittels Tunneleffekt und findet bei Raumtemperatur statt. Während des Betriebs werden trotz Ultrahochvakuum im Laufe der Zeit zunehmend Restgasmoleküle an der Oberfläche der Kathodenspitze adsorbiert. Daher muß die Spitze einer kalten FE-Kathode regelmäßig gereinigt werden, um diese Gasmoleküle von der Oberfläche zu entfernen. Dieser Prozeß wird als *Flashing* bezeichnet. Dazu wird die Kathode durch einen kurzzeitigen Stromimpuls auf etwa 2000 K aufgeheizt, so daß die anhaftenden Moleküle desorbiert werden. Weiterhin bewirkt dieser *Flash*-Prozeß, daß die Spitze der Kathode durch Rekristallisation wieder geglättet wird, da infolge des Ionenbeschusses von Restgasmolekülen kleine Krater entstehen. Für den *Flash*-Prozeß können zwei unterschiedliche Verfahren angewendet werden:

- Im ersten Fall wird die Kathode jeweils am Ende eines Betriebstages geflasht und kann dann über Nacht ruhen, so daß die Kathode unmittelbar am darauffolgenden Tag wieder genutzt werden kann.
- Beim zweiten Verfahren wird die Kathode zu Beginn eines Arbeitstages geflasht. Nach einer anschließenden Wartezeit von etwa 45 – 60 min für die Wiedereinstellung des Ultrahochvakuums im Kathodenbereich und den Rekristallisationsprozeß ist der Emitter für den Betrieb bereit.

Die Erfahrung zeigte, daß das erstgenannte *Flash*-Verfahren zwar den sofortigen Betrieb der Kathode ohne Vorbereitungszeit ermöglichte, sich aber das zweitgenannte Verfahren für die in dieser Arbeit durchgeführten spektroskopischen Untersuchungen besser eignete. So führten im Fall des ersten *Flash*-Verfahrens schlechte Vakuumbedingungen, z. B. durch eine stark ausgasende Probe am Vortag, zu schlechten Stabilitätsbedingungen des Sondenstroms am folgenden Tag. Ein ähnlicher Effekt zeigte sich für gewöhnlich nach einem Wochenende, an dem die Kathode nicht betrieben wurde. Aufgrund der dadurch intensiver auf der Kathodenspitze angesammelten Restgasmoleküle, wurde die für spektroskopische Untersuchungen vorteilhafte und über einen längeren Zeitraum von mehreren Stunden andauernde Stabilitätsphase der Kathode erst sehr spät erreicht. So zeigten sich häufig erst ab dem darauffolgenden Tag deutlich konstantere Strahlstrombedingungen mit höherer Intensität und geringeren Fluktuationen als am ersten Tag nach einer längeren Betriebspause der Kathode. Durch die Anwendung des zweiten Verfahrens, das anfängliche Flashen

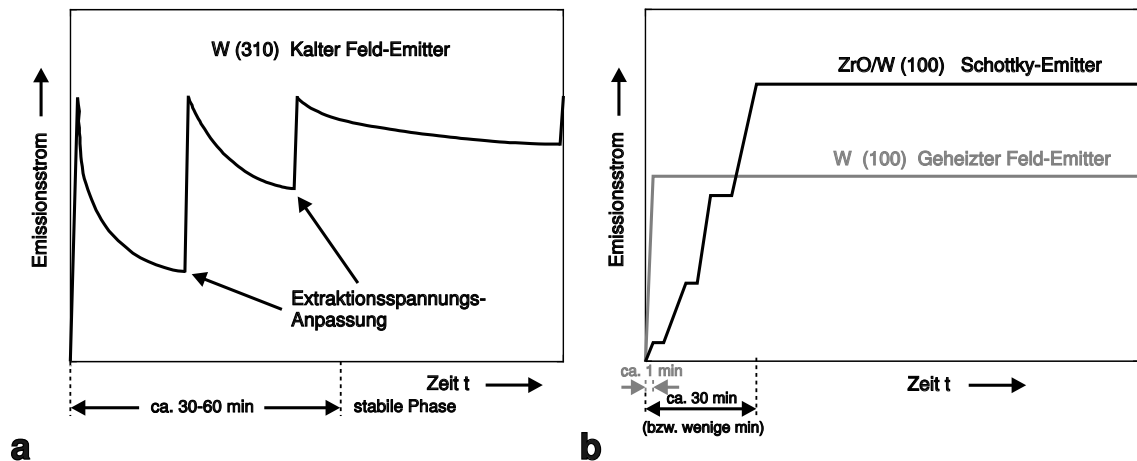


Abb. 1.2: Typischer Emissionsstromverlauf (a) einer kalten Feldemissionsquelle nach dem *Flash*-Prozeß sowie (b) eines Schottky-Emitters und einer geheizten Feldemissionsquelle (nach Jeol (1998)).

vor dem Betrieb der Kathode, wurden einerseits täglich die gleichen, definierten Anfangsbedingungen erreicht, andererseits höhere Intensitäten während der stabileren Phase der Kathode erzielt.

In Abbildung 1.2(a) ist schematisch der typische Verlauf des Emissionsstroms einer kalten FE-Kathode nach einem *Flash*-Prozeß gezeigt. Im Vergleich zum Schottky- bzw. geheizten Feld-Emitter, die nach einer anfänglichen Aufheizphase einen konstanten Emissionsstrom ohne Langzeitdrift mit geringen Kurzzeitschwankungen aufweisen, zeigt der zeitliche Verlauf des Emissionsstroms eines kalten Feld-Emitters ein gänzlich anderes Verhalten. Nach dem Einschalten fällt der Emissionsstrom unter Aufweisen großer Kurzzeitfluktuationen in einem exponentiell-ähnlichen Verlauf stark ab. Diese Anfangsphase ist dadurch gekennzeichnet, daß sich keine Gasmoleküle auf der Kathodenspitze befinden. Mit fortschreitender Zeit lagern sich zunehmend Restgasmoleküle auf der Spitze ab, wodurch die Austrittsarbeit der Elektronen erhöht wird. Dies führt zu dem starken Abfall des Emissionsstroms. Während dieses Stadiums findet eine Adsorption, eine Desorption und eine Verschiebung der Gasmoleküle auf der Oberfläche der Kathode statt, was zu dem starken anfänglichen Signalrauschen führt. Die Korrektur des Emissionsstroms auf den gewünschten, voreingestellten Wert kann bei zu starkem Abfall durch ein „manuelles“ Nachregeln der Extraktionsspannung erfolgen, was in der Grafik durch die vertikalen Sprünge angedeutet ist. Nach Ablagerung einer homogenen Schicht auf der Oberfläche stellt sich ein stabiler Zustand des Emissionsstroms ein. Der Ionenbeschuß auf die Kathode in diesem Stadium führt zu kleineren Umlagerungen der Gasmoleküle auf der Oberfläche, die zu kleineren Kurzzeitschwankungen in der Elektronenemission von 1–5 % bei einem Zeitabstand von ca. 100 ms führen. Typische Zeiten für die anfängliche Instabilitätsphase sind 30 min bis 2 h und für die stabile Phase 2–12 h je nach Verschmutzungsgrad der Kathodenspitze und Güte des Ultrahochvakuums

im Kathodenraum.

Bei Verwendung dieses Kathodentyps im Rasterbetrieb eines SEM oder STEM lassen sich die kurzzeitigen Schwankungen durch eine Signaldivision kompensieren. Dabei wird ein Teil des Emissionsstroms, der auf die Kondensorblende (für $E \leq 5$ keV) bzw. Aperturblende (für $E > 5$ keV) fällt, abgegriffen und das Detektorsignal durch dieses Referenzsignal dividiert. Die Langzeitdrift läßt sich durch eine Anpassung der Extraktionsspannung von Zeit zu Zeit korrigieren. Dabei wurde festgestellt, daß sich durch die Nachregelung der Extraktionsspannung das Kathodenpotential und damit auch die Primärenergie der austretenden Elektronen um einige Volt ändern kann. Bei spektroskopischen Untersuchungen, wie sie in Abschnitt 5.1.2 und 5.2.2 durchgeführt wurden, ist diese Tatsache zu berücksichtigen. Dies gilt insbesondere bei der Mittelung mehrerer aufeinanderfolgender Spektren, zwischen denen eine solche Nachregelung erfolgte. Dabei ist vor der Summation auf eine getrennte Energieeichung der Spektren zu achten. Für die Aufnahme von rauscharmen Bildern bzw. zur Messung von Elektronenspektren ist es notwendig, in der stabilen Phase der Kathode zu arbeiten.

Probleme bei einer kalten FE-Kathode sind einerseits die relativ hohen Kurzzeitschwankungen in der Größenordnung von 1–5 %, im Vergleich zu den Schwankungen der anderen Kathodentypen von unter ca. 1 %, andererseits die Langzeitdrift des Emissionsstroms. Diese Kurzzeitschwankungen lassen sich jedoch aufgrund des punktwisen Bildaufbaus in einem SEM bzw. STEM durch das oben genannte Signal-Divisionsverfahren, die Langzeitdrift durch eine Korrektur der Extraktionsspannung kompensieren. Im parallelen Abbildungsmodus eines TEM läßt sich einerseits das Signal-Divisionsverfahren nicht anwenden, andererseits ist die Strahlstromdichte erheblich geringer als bei thermischen Kathoden. Daher wird dieser Kathodentyp dort nur selten verwendet. Der Vorteil, der die kalte Feldemissionsquelle gegenüber allen anderen kommerziellen Elektronenquellen auszeichnet, ist die derzeit beste Energiebreite von $\delta E \approx 0.2 - 0.4$ eV.

Geheizte Feldemissionsquelle

Die geheizte Feldemissionskathode arbeitet im Gegensatz zur kalten Feldemissionskathode bei Kathodenspitzen-Temperaturen von ≈ 1800 K, wodurch sich die Energiebreite der emittierten Elektronen auf $\delta E \approx 0.5 - 0.7$ eV erhöht. Der Spitzenradius r_s einer solchen Kathode beträgt $\approx 0.01 \mu\text{m}$, die Strahlstromdichte $j_c \approx 5 \cdot 10^6$ A/cm². Durch die ständige Heizung der Kathode und die damit verbundene geringere Adsorption von Restgasmolekülen zeigt eine geheizte FEG geringere Strahlstromfluktuationen als eine kalte FEG. Weiterhin entfällt auch der *Flash*-Prozeß, da Moleküle, die auf die Kathode treffen, aufgrund der erhöhten Temperatur sofort wieder desorbiert werden. Krater, die durch den Ionenbeschuß entstehen, müssen von Zeit zu Zeit durch einen Rekristallisationsprozeß wieder geglättet werden. Der qualitative zeitliche Emissionsstromverlauf im Vergleich zum Schottky-Emitter und zur kalten FEG ist in Abbildung 1.2 dargestellt. Die Verwendung einer

Feldemissionskathode bzw. eines Schottky-Emitters bringt zahlreiche Vorteile mit sich. Es zeigt sich, daß die Schottky-Emitter und die FE-Kathoden einen um bis zu 1000-fach größeren Richtstrahlwert β , eine bis zu einem Faktor 10 kleinere Energiebreite der Primärelektronen und einen bis zu 1000-fach kleineren Elektronenquellendurchmesser besitzen. Diese Kathodentypen sind daher besonders für die Niederspannungs-SEM, die Elektronenstrahlolithographie, die Elektronenholographie bzw. -interferometrie sowie die Lorentzmikroskopie geeignet. Für hochauflösende, spektroskopische Untersuchungen ist die kalte FEG mit der kleinsten Energiebreite eines kommerziellen Elektronen-Emitters die beste Wahl. Der maximale Strahlstrom, der mit einer virtuellen Punktquellen-Kathode erzielt werden kann, liegt in der Größenordnung 10^{-8} A (kalte FEG) bzw. 10^{-7} A (Schottky-Emitter sowie geheizte FEG). Im Gegensatz dazu erreicht man mit thermischen W- bzw. LaB₆-Kathoden im konventionellen Energiebereich Strahlströme mit bis zu 10^{-6} A, was für die wellenlängendispersive Röntgenmikroanalyse sowie für die Anregung von thermischen und akustischen Wellen in der rasternden, elektronenstrahlinduzierten „akustischen Mikroskopie“ (*Scanning Electron Acoustic Microscopy*) ausgenutzt wird.

1.2 Vakuumsystem

Für den Betrieb einer W- bzw. LaB₆-Kathode in konventionellen Rasterelektronenmikroskopen ist in der Region des strahlerzeugenden Systems ein Hochvakuum (HV: $\approx 10^{-6} - 10^{-7}$ hPa) ausreichend. Der Betrieb eines Schottky- bzw. Feld-Emitters bei einem hochauflösenden Niederspannungs-Rasterelektronenmikroskop erfordert hingegen ein Ultrahochvakuum (UHV: $\approx 10^{-9} - 10^{-10}$ hPa) im Kathodenraum, da ein intensiver Beschuß durch ionisierte Restgasmoleküle die feine Kathodenspitze sofort zerstören würde. Der vergleichsweise hohe instrumentelle und damit finanzielle Aufwand für die Erzeugung eines UHV zum Betrieb von Schottky- bzw. Feldemissionskathoden ist verantwortlich dafür, daß diese Kathodentypen bei zahlreichen modernen Elektronenstrahlgeräten nicht eingesetzt werden.

Das Vakuumsystem des S-4000 SEM gliedert sich in drei Teilbereiche mit steigenden Vakuumanforderungen: Die Objektschleuse, die Objektkammer und die Mikroskopsäule. Das nötige Vorvakuum (VV: $\approx 10^{-3} - 10^{-4}$ hPa) für die Probenschleuse wird über eine separate Drehschieberpumpe erzeugt. Das Endvakuum in der Objektkammer des S-4000 SEM wird über eine Kombination aus Drehschieberpumpe zur Erzeugung des Vorvakuums und Öl-Diffusionspumpe für das Hochvakuum erzielt. Zur Realisierung des Ultrahochvakuums im Kathodenraum ist die Mikroskopsäule zusätzlich mit einem differentiellen, dreistufigen Ionen-Getterpumpen-System ausgestattet.

Die für das S-4000 SEM typischen Vakuum-Meßwerte in den verschiedenen Ebenen der Mikroskopsäule und der Objektkammer sind in Abschnitt A.1.1 tabellarisch dargestellt. Darüber hinaus ist eine Auflistung der Vakuum-Anforderungen aller in der SEM gebräuchlichen Kathodentypen im Anhang in Tabelle A.3 zu finden.

1.3 Linsensystem

In einem konventionellen SEM mit thermischer W- bzw. LaB₆-Kathode wird ein dreistufiges Linsensystem benötigt, um den ersten *Cross-over* vor der Spitze der Größenordnung 10–50 μm auf eine hinreichend kleine Elektronensonde von einigen 10 nm zu verkleinern. Die bei Verwendung einer Schottky- bzw. Feldemissionskathode in hochauflösenden LVSEM erzeugte virtuelle Elektronenquelle innerhalb der Kathodenspitze, ist um ca. drei Größenordnungen kleiner als der erste *Cross-over* einer thermischen Kathode. Um diese virtuelle Quelle für die Hochauflösung auf eine Größe von ca. 1 nm zu verkleinern, ist ein zweistufiges Linsensystem ausreichend. Daher ergibt sich als Vorteil eine geringere Bauhöhe der Mikroskopsäule, was im wesentlichen zu geringeren elektromagnetischen Störeinflüssen führt.

Ein entscheidender begrenzender Faktor für das laterale Auflösungsvermögen eines Rasterelektronenmikroskops, besonders im Niederspannungs-Bereich, ist der Sondendurchmesser. Einer endlosen Verkleinerung des Sondendurchmessers sind durch geometrisch-physikalische Gründe sowie den im folgenden beschriebenen Linsen-Aberrationen wie sphärische (d_s) und chromatische (d_c) Aberration, axialer Astigmatismus (d_a) und die Beugung (d_d) Grenzen gesetzt. Der axiale Astigmatismus läßt sich durch Stigmatorspulen korrigieren und wird daher nicht weiter betrachtet. Ausgehend vom Durchmesser des ersten *Cross-overs* (d_0) bzw. der virtuellen Elektronenquelle erhält man durch sukzessive Verkleinerung mittels der elektromagnetischen Linsen eine kleine Elektronensonde. Aufgrund der Tatsache, daß der Richtstrahlwert β einer Kathode innerhalb der elektronenoptischen Säule bei konstanter Primärenergie eine Erhaltungsgröße ist und unter der vereinfachten Annahme einer konstanten Stromdichte innerhalb des Strahldurchmessers, ergibt sich für den geometrischen Strahldurchmesser $d_g = (2 \sqrt{I_p / \pi^2 \beta}) / \alpha$. Um eine Aussage über den effektiven Strahldurchmesser zu erhalten, müssen die oben genannten Aberrationen der Objektivlinse berücksichtigt werden. Diese tragen zu einer Verbreiterung des kleinsten geometrischen Sondendurchmessers bei. Superponiert man in einer Näherung erster Ordnung die Quadrate der einzelnen Aberrationsterme zum Quadrat des geometrischen Sondendurchmessers, so erhält man eine gute Abschätzung der Größenordnung für den effektiven Strahldurchmesser

$$\begin{aligned}
 d_{\text{eff}}^2 &= d_g^2 + d_d^2 + d_s^2 + d_c^2 \quad (1.1) \\
 &= \underbrace{\frac{4}{\pi^2} \frac{I_p}{\beta} \frac{1}{\alpha^2}}_{1. \text{ geom. Anteil}} + \underbrace{(0.6 \lambda_B)^2 \frac{1}{\alpha^2}}_{2. \text{ Beugung}} + \underbrace{\frac{1}{4} C_s^2 \alpha^6}_{3. \text{ Sphär.-Fehler}} + \underbrace{C_c^2 \left(\frac{\delta E}{E} \right)^2 \alpha^2}_{4. \text{ Chrom.-Fehler}} .
 \end{aligned}$$

Dabei ist α die Objektivapertur, λ_B die De Broglie-Wellenlänge des Primärelektrons. C_s , C_c sind die sphärische und chromatische Aberrationskonstante. Diese Gleichung ermöglicht, den Einfluß der verschiedenen Parameter auf den effektiven Strahldurchmesser zu untersuchen. Betrachtet man Gleichung 1.1 in Abhängigkeit von der Strahlapertur α mit den anderen Größen als Parameter, so ergibt sich nach

Reimer (1993) für jeden Parametersatz ein relatives Minimum für eine definierte, optimale Objektivapertur $\alpha = \alpha_{opt}$. Für eine gute Auflösung ist ein möglichst kleines d_{eff} erforderlich. Der erste Term fordert daher eine möglichst kleine Quellfleckgröße. Verwendet man eine thermische W- bzw. LaB₆-Kathode mit einem relativ geringen Richtstrahlwert β , so ist der erste Term wesentlich größer als der zweite. Aus diesem Grund kann der Einfluß der Beugung vernachlässigt werden. Werden hohe Primärenergien (10–30 keV) verwendet, so sind die Terme 1 und 3 aus Gleichung 1.1 dominant. Der chromatische Fehlerterm ist für hohe Energien vernachlässigbar. Bei niedrigen Primärenergien ($E \leq 5$ keV) dagegen dominiert der chromatische Aberrationsterm wegen der relativ großen Energiebreite δE von W- und LaB₆-Kathoden und der Proportionalität von $d_c^2 \propto E^{-2}$. Wegen des abnehmenden Richtstrahlwertes ($\beta \propto E$) mit abnehmender Primärenergie E und der großen Energiebreite δE sind die thermischen W- und LaB₆-Kathoden für die LVSEM weniger geeignet. Verwendet man hingegen Schottky-Emitter bzw. Feldemissionskathoden mit einer bis zu 10-fach kleineren Energiebreite δE und einem bis zu 10–100-fach größeren Richtstrahlwert β , werden die Fehlerterme 1 und 4 in Gleichung 1.1 drastisch reduziert. Hierin liegt die Begründung für die besondere Eignung dieser Kathodentypen in der LVSEM.

Kommerzielle LVSEM mit Schottky- bzw. Feldemissionsquelle erreichen heutzutage eine Auflösung von ca. 1–2 nm bei 30 keV und ca. 3–4 nm bei 1 keV Primärenergie. Eine Verbesserung der elektronenoptischen Eigenschaften wird durch die Positionierung der Probe zwischen den Polschuhen der Objektivlinse erzielt. Realisiert ist diese Eigenschaft in *In-lens*-LVSEM (Nagatani *et al.*, 1987). Dadurch ist für eine Fokussierung eine höhere Erregung der Objektivlinse nötig, was zu einer starken Reduzierung der sphärischen (C_s) und chromatischen (C_c) Fehlerkonstanten führt. Mit einem derartigen Gerät erreicht man derzeit eine Verbesserung der Auflösung auf ca. 1 nm bei 30 keV und ca. 2–3 nm bei 1 keV. Ein Nachteil der *In-lens*-LVSEM ist die Beschränkung der Untersuchung ausschließlich auf kleine Proben der Größenordnung von ($l \times b \times h \approx 10 \text{ mm} \times 4 \text{ mm} \times 3 \text{ mm}$).

Eine andere Möglichkeit, kleine Sondendurchmesser bei kleinen Primärenergien zu erreichen, wird durch eine Kombination aus einer elektrostatischen und magnetischen Elektronenoptik nach Frosien *et al.* (1989) erreicht. Dieses System besitzt geringere Linsenaberrationen als ein Aufbau mit rein magnetischen Linsen. Ein nicht zu unterschätzendes Problem in der hochauflösenden LVSEM sind neben den Linsenaberrationen auch die elektromagnetischen Störfelder, die mit abnehmender Primärenergie zu einer verstärkten Aufweitung des Primärelektronenstrahls führen. Bei dem von Frosien *et al.* (1989) vorgeschlagenem System wird auch dieses Problem deutlich reduziert, da sich der Elektronenstrahl beim Durchgang durch die Mikroskopsäule auf einem hohen Potential (typ. 10 kV) befindet. Erst innerhalb bzw. hinter der Objektivlinse werden die Elektronen auf eine geringere Energie abgebremst.

Der vielversprechendste Ansatz, zukünftig die Auflösungsbegrenzung durch die Linsenfehler zu überwinden, wurde von Zach (1989) und Rose (1990) für die LVSEM

und von Rose (1998) für die Transmissionselektronenmikroskopie (TEM) vorgeschlagen. Dabei werden Korrektoren, bestehend aus magnetischen Multipolelementen, in die elektronenoptische Säule integriert. Durch die damit erzeugten Multipolfelder lassen sich die dominanten Ordnungen des sphärischen und chromatischen Linsenfehlers korrigieren, so daß ein Elektronen-Sondendurchmesser von weniger als 1 nm bei 0.5 keV erreicht wird. Ein solches mit einem Korrektor ausgestattetes hochauflösendes LVSEM wurde von Zach und Haider (1992) sowie Haider *et al.* (1992) vorgestellt und von Zach und Haider (1994) sowie Haider *et al.* (1994) erfolgreich erprobt.

Ein weiterer Vorteil des Einsatzes eines Korrektors, ist ein größerer ausnutzbarer Strahlstrom. Die Strahlstromdichte J_m wird durch den Ausdruck $J_m = \pi\beta\alpha^2$ beschrieben. Nach Korrektur der Linsenfehler können auch größere Aperturen verwendet werden, so daß ein größerer Strahlstrom möglich ist. Weitere Überlegungen zum Auflösungsvermögen heutiger LVSEM in Abhängigkeit von Primärenergie und Ordnungszahl werden in Abschnitt 5.2.3.4 angestellt. In dem Zusammenhang werden darüber hinaus Verbesserungsmöglichkeiten durch die weitere Verringerung der Primärenergie bis zu einigen zehn eV bei Verwendung eines Korrektors und/oder die Energiefilterung der elastisch rückgestreuten Elektronen diskutiert.

1.4 Detektorsysteme

Zur Standardausrüstung eines SEM gehören Sekundärelektronendetektoren vom ETD-Typ (Everhardt-Thornley-Detektor, Everhart und Thornley (1960)). Ein Saugnetz auf einem positiven Potential von ca. 200–300 V sorgt für die Richtungsablenkung langsamer Sekundärelektronen in Richtung des Detektors. Nachdem die Elektronen dieses Saugnetz passiert haben, werden sie durch ein Potential von +10 kV in Richtung des Szintillators beschleunigt und geben dort ihre kinetische Energie ab, vorwiegend in dem sie Lumineszenzzentren anregen. Die erzeugten Photonen werden über einen Lichtleiter an einen Photomultiplier weitergeleitet. Die Vorteile dieses Systems sind die große Effizienz, der große Verstärkungsgrad und die hohe Bandbreite des Ausgangssignals bis zu 10 MHz, die es ermöglicht, mit TV-Abtastgeschwindigkeit zu arbeiten. Durch die geringere Primärenergie im Niederspannungs-Bereich ist die Beeinflussung des Primärstrahles durch das Saugfeld eines ETD wesentlich stärker ausgeprägt als bei höheren Energien (Schmid und Brunner, 1986).

Eine Lösung dieses Problems ist der von Zach und Rose (1986) vorgeschlagene und von Schmid und Brunner (1986) realisierte Quadrupoldetektor unter dem Polschuh eines SEM. Er besitzt auf der optischen Achse ein verschwindendes Feld, so daß keine Beeinflussung auf den Primärelektronenstrahl erfolgt. Da dieses Detektorsystem zwei gegenüberliegende ETD enthält, läßt sich durch die Summenbildung der Signale der Materialkontrast und über die Differenz der Signale der Topographiekontrast hervorheben. Mit dieser Anordnung läßt sich diese für den konventionellen Energiebereich bekannte Technik (Volbert und Reimer, 1980) auch im Niederener-

giebereich anwenden.

Für *In-lens*-LVSEM wird dieses Problem durch die Verwendung eines oberhalb der Probe befindlichen *In-column*-ETD gelöst. Dabei wird die richtungsselektive Eigenschaft eines Wien-Filters zur Detektion der SE genutzt, wobei der Primärstrahl ungehindert durch das Filter gelangt.

Für die Detektion von Rückstreuelektronen (BSE) werden häufig spezielle Szintillator-(Lichtleiter)-Photomultiplier Kombinationen verwendet (Robinson, 1974; Hejna, 1987; Autrata, 1989). Im Vergleich zum ETD sind diese Detektoren im konventionellen Energiebereich typischerweise ohne Saugnetz und ohne Szintillator-Beschleunigungsfeld ausgestattet. Die Form und Position ist dem gewünschten Detektionsraumwinkel angepaßt. Im konventionellen Energiebereich reicht die Energie der BSE aus, um genügend Lumineszenzzentren für ein hinreichendes Signal anzuregen. Dabei verhält sich die Signalausbeute eines Szintillations-BSE-Detektors proportional zu $(E_{BSE} - E_{Schw})$ mit einer Schwellenergie E_{Schw} von ca. 1–2 keV.

Für den Niederenergiebereich müssen daher spezielle Szintillations-BSE-Detektoren verwendet werden (Autrata und Hejna, 1991; Hejna, 1994). Diese sind meist rotationssymmetrisch aufgebaut, um Strahlverzerrungen zu vermeiden und verfügen des weiteren über eine Nachbeschleunigungsmöglichkeit auf den Szintillator von $V_{sz} \approx +5$ kV. Um eine Beeinflussung dieses Beschleunigungsfeldes auf die aus der Probe emittierten Elektronen auszuschließen, wird der Probenraum häufig durch ein geerdetes, kugelförmiges Netz feldfrei gehalten.

Halbleiterdetektoren, die im konventionellen Energiebereich als BSE-Detektoren eingesetzt werden, finden in der LVSEM keine Verwendung, da eine Mindestenergie der auftreffenden Elektronen von 2–5 keV erforderlich ist, um Elektronen-Lochpaare zu erzeugen. Eine Nachbeschleunigung der Elektronen auf den Halbleiter gestaltet sich als schwierig, da sich die Signalverstärkelektronik nur schwer von der Hochspannung entkoppeln läßt. Eine ausführlichere Behandlung der verschiedenen Verfahren zur Detektion von BSE sind bei Reimer (1985, 1993) und Hejna (1994) zu finden.

Kapitel 2

Theoretische Grundlagen

Ursache für alle Kontraste in der Elektronenmikroskopie ist die Wechselwirkung des einfallenden Elektronenstrahls mit den Atomen des bestrahlten Objektes. Alle in Erscheinung tretenden Signale wie die Aussendung von Rückstreuelektronen (BSE), Sekundärelektronen (SE), Röntgenstrahlen (*X-rays*), sichtbarem Licht (Kathodolumineszenz, KL) sowie Wärmestrahlung und akustischen Wellen werden maßgeblich von dieser Wechselwirkung bestimmt. Die beiden grundlegenden Streuprozesse, die ein Elektron beim Durchgang durch einen Festkörper erfahren kann, sind die elastische und unelastische Streuung. Elektronen, die auf einen Festkörper treffen, werden in der Regel vielfach gestreut, so daß sie eine Reihe von elastischen Streuungen mit Ablenkungen um Winkel θ sowie unelastische Streuprozesse mit Energieverlusten ΔE erleiden.

Im folgenden werden die theoretischen Grundlagen hierzu im Hinblick auf die Verwendbarkeit für eine Monte-Carlo Simulation dargestellt. Besonderer Wert wird dabei auf die Unterschiede der Streuung im konventionellen und Niederenergie-Bereich gelegt.

2.1 Elastische Streuprozesse

Die elastische Streuung resultiert aus der anziehenden Coulomb-Wechselwirkung zwischen den Primärelektronen und den Atomkernen der Probe, welche durch die Atomelektronen abgeschirmt sind. Die dabei auf den Festkörper übertragene Energie liegt bei nicht relativistischen Elektronen aufgrund des großen Massenunterschiedes ($\gtrsim 2000:1$) in der Größenordnung einiger meV und kann daher für unsere Betrachtungen vernachlässigt werden. Bei Reimer (1989) sind Berechnungen hierzu für verschiedene Elemente und Primärenergien zu finden. Da die bei der elastischen Streuung auftretenden Energieverluste vernachlässigbar sind, lassen sich die ausschließlich elastisch gestreuten Elektronen energetisch nicht von den ungestreuten Elektronen unterscheiden. Bei auftretenden Mehrfachstreuereignissen sorgt die elastische Streuung mit ihrer relativ großen Winkelverteilung dafür, daß auch unelastisch gestreute

Elektronen in große Winkel transportiert werden.

2.1.1 Rutherford-Streuung

Zur Beschreibung der Winkelverteilung der elastischen Streuung wird der differentielle Streu- bzw. Wirkungsquerschnitt $d\sigma_{el}/d\Omega$ verwendet. Er gibt anschaulich die Fläche pro Atom an, die zu einer Streuung des einfallenden Elektrons in das Raumwinkelement $d\Omega$ um den Streuwinkel θ führt. Für den Fall des einfachen Coulomb-Potentials $V(r) = Ze^2/(4\pi\epsilon_0 r)$ ergibt sich sowohl mit Hilfe der klassischen Theorie als auch mittels quantenmechanischer Rechnung der Rutherfordsche Streuquerschnitt

$$\left(\frac{d\sigma_{el}}{d\Omega}\right)_R = \frac{e^4}{16(4\pi\epsilon_0)^2} \left(\frac{Z}{E}\right)^2 \frac{1}{\sin^4(\theta/2)} \quad (2.1)$$

mit der Ordnungszahl Z und dem Streuwinkel θ ; ϵ_0 stellt die Dielektrizitätskonstante des Vakuums und E die Energie des einfallenden Elektrons dar. Der Rutherford-Streuquerschnitt beschreibt die Streuung an einem „nackten“ Atomkern der Ladung $+Ze$, wobei sich das elektrische Feld bis ins Unendliche erstreckt. Diese Tatsache führt in Gleichung 2.1 zu einer Singularität $(d\sigma_{el}/d\Omega)_R \rightarrow \infty$ für $\theta \rightarrow 0^\circ$.

In der Realität wird dieses Feld durch die Hüllenelektronen der Atome abgeschirmt, was zu einem endlichen Wert des differentiellen Wirkungsquerschnitts für $\theta = 0^\circ$ führt. Die einfachste Möglichkeit, diese Abschirmung durch die Hüllenelektronen zu berücksichtigen, ist die Modifikation des Atompotentials durch die Verwendung eines exponentiellen Abschirmfaktors (Wentzel-Modell)

$$V_W(r) = -\frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 r} e^{-(r/R_a)} \quad (2.2)$$

mit dem Abstand des einfallenden Elektrons vom Atomkern r und dem Abschirmradius des Atoms $R_a \approx a_H Z^{-1/3}$. Dabei ist $a_H = 0.0529 \text{ nm}$ der Radius des H-Atoms nach Bohr. Mit diesem Ansatz folgt aus der Lösung der zeitunabhängigen Schrödinger-Gleichung in Bornscher Näherung der abgeschirmte Rutherfordsche Streuquerschnitt nach Wentzel:

$$\left(\frac{d\sigma_{el}}{d\Omega}\right)_{R_W} = \frac{e^4}{16(4\pi\epsilon_0)^2} \left(\frac{Z}{E}\right)^2 \frac{1}{[\sin^2(\theta/2) + \sin^2(\theta_0/2)]^2} \quad (2.3)$$

mit $\sin(\theta_0/2) \approx \theta_0/2 = \lambda_B/(4\pi R_a)$ und der de Broglie-Wellenlänge $\lambda_B = h/(mv)$ in nm. Der endliche Wert des Abschirmwinkels θ_0 sorgt dafür, daß die Singularität für $\theta \rightarrow 0$ verschwindet und $(d\sigma_{el}/d\Omega)_{R_W}$ einen endlichen Wert annimmt. Für große Energien ($E \gtrsim 10 \text{ keV}$) gibt θ_0 anschaulich im wesentlichen die Viertelwertsbreite des elastischen Streuquerschnitts an. Für kleinere Energien und/oder Elemente mit großem Z wird diese Interpretation zunehmend schwieriger (vgl. Abschnitt 2.1.2).

Obwohl dieses Modell eine starke Vereinfachung darstellt, liefert es doch für zahlreiche Problemstellungen brauchbare Ergebnisse. Wesentlicher Vorteil dieses Modells

ist die analytische Darstellbarkeit. Dadurch läßt es sich recht einfach in Computer-Programme implementieren. Eine bessere Übereinstimmung mit dem Experiment, besonders im Bereich der Kleinwinkelstreuung, wird durch die Verwendung einer Summe von Exponentialfunktionen anstelle des einen Korrekturfaktors in Gleichung 2.2 erzielt.

Die Packungsdichte der Atome im Festkörper und die damit verbundene Modifikation der Atompotentiale läßt sich in einer ersten Näherung mittels des Muffin-Tin-Modells berücksichtigen. Eine weitere Verbesserung für den Bereich kleiner Streuwinkel ($\theta \approx 5^\circ - 10^\circ$) kann durch die Verwendung der Partialwellenmethode bzw. durch die **Wentzel-Kramer-Brillouin** (WKB)-Methode zur Berechnung der Phasenverschiebung der einlaufenden ebenen Elektronenwelle bei der Streuung an den Atomen erzielt werden.

2.1.2 Mott-Streuung

Bei allen bisherigen Betrachtungen wurde der Spin des einfallenden Elektrons vernachlässigt. Berücksichtigt man die Wechselwirkung des Elektronenspins mit dem Magnetfeld des Atomkerns aufgrund seiner Relativbewegung zum Elektron, die sogenannte Spin-Bahn Kopplung, so ergibt sich der differentielle Mott-Streuquerschnitt. In Abbildung 2.1 sind vergleichend die differentiellen Rutherford- und Mott-schen Wirkungsquerschnitte für die Elemente Kohlenstoff und Gold für (a) 30 keV und (b) 1 keV in einer halblogarithmischen Grafik dargestellt.

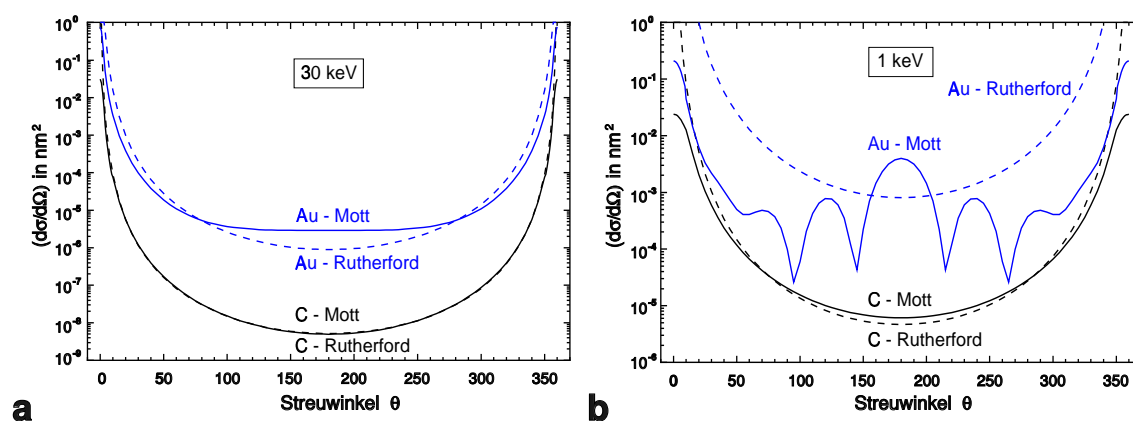


Abb. 2.1: Halblogarithmischer *Plot* der differentiellen Mott- (durchgezogen) bzw. Rutherford- (gepunktet) Streuquerschnitte für C und Au bei (a) $E = 30 \text{ keV}$ und (b) $E = 1 \text{ keV}$; (Daten aus Reimer und Lödding (1984)).

Daraus lassen sich die folgenden charakteristischen Eigenschaften ablesen:

Für Elemente niedriger Ordnungszahl (Kohlenstoff) und hohe Energien (30 keV) sind die Unterschiede zwischen Mott- und Rutherford-Streuung zu vernachlässigen. Für schwere Elemente wie etwa Gold zeigt sich jedoch, daß die Rutherford-

Streuformel selbst bei hohen Energien versagt. Besonders im Bereich der direkten Rückstreuung ($\theta \approx 180^\circ$) treten starke Abweichungen zwischen Mott- und Rutherford-Streuung auf. Vergleicht man die Wirkungsquerschnitte bei niedrigen Energien (1 keV; Abbildung 2.1(b)), so nehmen die Abweichungen drastisch zu. Selbst bei leichten Elementen wie Kohlenstoff zeigen sich dabei deutliche Differenzen für große Streuwinkel. Extreme Unterschiede ergeben sich für Elemente hoher Ordnungszahl. Mit abnehmender Primärenergie nehmen einerseits die Abweichungen vom Mottschen zum Rutherfordschen Wirkungsquerschnitt massiv zu, andererseits treten charakteristische Maxima und Minima bei bestimmten Streuwinkeln auf. Diese Beispiele verdeutlichen, daß es daher für die Implementierung der elastischen Streuung in einem Simulationsprogramm für die Elektronenstreuung im Festkörper mit Primärenergien $\lesssim 30$ keV unerlässlich ist, Mottsche Wirkungsquerschnitte zu verwenden. Reimer und Senkel (1995) demonstrierten am Beispiel der Berechnung des Rückstreukoeffizienten η für Gold im Niederenergiebereich, daß die Implementierung der Mott-Streuung in ein Monte-Carlo Programm den richtigen, monoton fallenden Verlauf mit abnehmender Primärenergie wiedergibt. Aus der Verwendung der Rutherford-Streuformel hingegen resultiert einerseits im gesamten untersuchten Energiebereich ≤ 5 keV ein zu hohes Ergebnis, andererseits zeigt sich auch ein falscher, ansteigender Verlauf von η im Vergleich mit experimentellen Daten von Böngeler (1992). In erster Näherung läßt sich für die Anwendbarkeit der Rutherfordschen Streuformel die Bedingung verwenden, daß die Elektronenenergie größer als die Ionisierungsenergie der K-Schale des betrachteten Elementes sein muß.

Durch die Mott-Streuung wird einerseits die Spin-Bahn Kopplung berücksichtigt, die im wesentlichen Einfluß auf große Streuwinkel hat, andererseits wird die Abschirmung der Kernladungszahl $+Ze$ durch die Hüllenelektronen mit herangezogen, die vorwiegend die Kleinwinkelstreuung ($\theta < \theta_g$ mit $\theta_g \approx 5^\circ - 10^\circ$) beeinflusst. Um die abgeschirmten Mottschen Wirkungsquerschnitte zu erhalten, muß anstelle der einfachen Schrödinger-Gleichung die relativistische Pauli-Dirac-Gleichung unter Verwendung eines abgeschirmten Coulombpotentials gelöst werden (Mott und Massey, 1965; Bühring, 1965). Im Gegensatz zur Rutherford-Streuung existiert für den Mottschen Wirkungsquerschnitt $(d\sigma_{el}/d\Omega)_M$ kein analytischer Ausdruck mehr. Der (abgeschirmte) Mottsche Wirkungsquerschnitt wird häufig in der Form

$$\left(\frac{d\sigma_{el}}{d\Omega} \right)_M = r(\theta, E) \left(\frac{d\sigma_{el}}{d\Omega} \right)_R \quad (2.4)$$

dargestellt. Dabei ist $(d\sigma_{el}/d\Omega)_R$ der unabgeschirmte Rutherford-Streuquerschnitt nach Gleichung 2.1 und $r(\theta, E)$ ein Korrekturfaktor, der direkt den Unterschied von Mott/Rutherford-Streuquerschnitt angibt. Beträgt $r(\theta, E) = 1$, läßt sich die Rutherford-Streuformel nach Gleichung 2.1 bzw. Gleichung 2.3 verwenden. Bereiche mit $r(\theta, E) \neq 1$ hingegen zeigen die Notwendigkeit an, auf die Mott-Streuung zurückzugreifen. Aus diesem Grund wird in der Literatur häufig nicht der differentielle Mott-Streuquerschnitt angegeben, sondern $r(\theta, E)$ (Reimer und Lödding, 1984; Jablonski und Gergely, 1989). Weitere Daten Mottscher Wirkungsquerschnitte so-

wie Informationen zur Berechnung finden sich bei Czyzewski *et al.* (1990) und Riley *et al.* (1975).

In Abbildung 2.2 sind die $r(\theta, E)$ -Werte für die Elemente C, Al, Cu, Ag, Au und U im Energiebereich von $1 \text{ keV} \leq E \leq 50 \text{ keV}$ dargestellt (Reimer und Lödning, 1984; Moesch, 1989). Die Grafiken veranschaulichen deutlich, daß die Unterschiede des

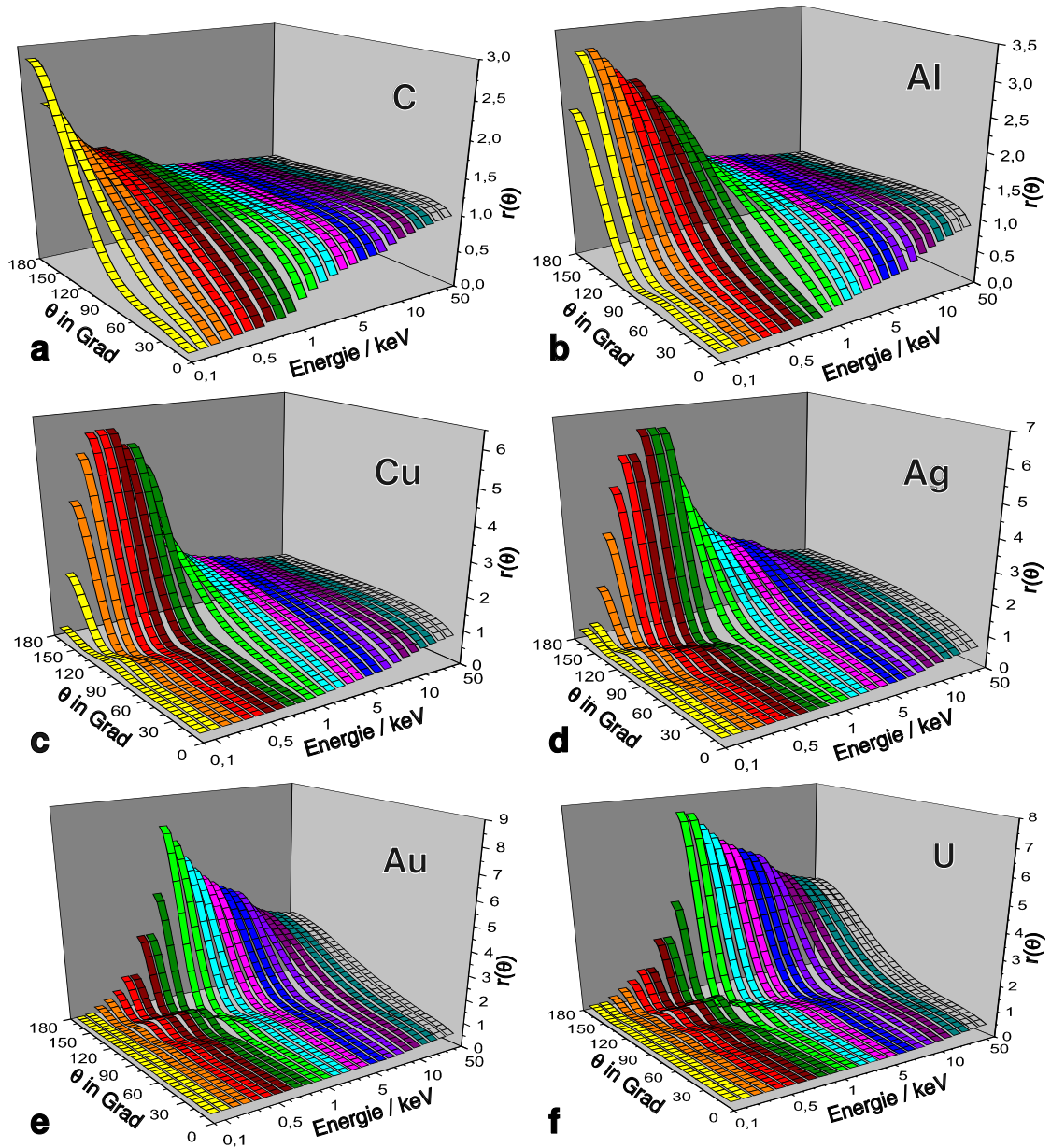


Abb. 2.2: Verhältnis $r(\theta, E)$ von (abgeschirmtem) Mott- zu (unabgeschirmtem) Rutherford-Streuquerschnitt für die Elemente (a) Kohlenstoff, (b) Aluminium, (c) Kupfer, (d) Silber, (e) Gold und (f) Uran; (Daten aus Reimer und Lödning (1984) sowie Moesch (1989); Reimer (1996b)).

Mottschen zum Rutherford'schen Wirkungsquerschnitt einerseits beim Übergang von leichten zu schweren Elementen, andererseits aber auch bei Verringerung der Elektronenenergie zunehmen. Dieses Verhältnis beeinflußt maßgeblich die Elektronenrückstreuung und -diffusion und ist verantwortlich für Unterschiede zwischen dem konventionellen und Niederenergiebereich (vgl. auch Abschnitt 2.3.1 und 2.3.3).

Da die Beobachtung sich meist auf Diffusionsprozesse in massiven Proben beschränkt, kann die elastische Streuung in kleine Winkel ($0^\circ \leq \theta < 10^\circ$) in guter Näherung durch den Vielfachstreuansatz von Lewis (1950) beschrieben werden. Dieser liefert einen mittleren Streuwinkel für die vielfach in kleine Winkel gestreuten Elektronen. Der mittlere Streuwinkel läßt sich bei der halben freien Weglänge zwischen zwei Großwinkelstreuprozessen einführen. Die individuelle elastische Streuung mit Hilfe der Mottschen Wirkungsquerschnitte nach Gleichung 2.4 wird in einem solchen Modell auf den Winkelbereich von $10^\circ \leq \theta \leq 180^\circ$ beschränkt. Der Vorteil, der sich aus der Implementierung des Vielfachstreuansatzes nach Lewis in einer Monte-Carlo Simulation ergibt, ist eine erhebliche Reduzierung der Rechenzeit.

Der Vielfachstreuansatz liefert bei der Berechnung für folgende Problemstellungen keine zufriedenstellenden Ergebnisse:

- Der Winkelverteilung bzw. lateralen Verbreiterung von transmittierten Elektronen beim Durchgang durch dünne Schichten (Reimer und Senkel, 1995) sowie
- der Berechnung des Rückstreukoeffizienten von senkrecht zum Primärstrahl angeordneten Heterostrukturen mit einigen nm Dicke (Reimer *et al.*, 1996).

In diesen Fällen muß die Kleinwinkelstreuung individuell berücksichtigt werden, da im ersten Fall in der Regel die Voraussetzung der Vielfachstreuung nicht mehr erfüllt ist, im zweiten Fall dagegen zunehmend *Channeling*-Effekte eine Rolle spielen.

2.2 Unelastische Streuprozesse

Die unelastische Streuung resultiert aus der Anregung der Atomelektronen, wobei die einfallenden Primärelektronen einen entsprechenden Energieverlust ΔE erleiden. Zu den wichtigsten Anregungsprozessen der unelastischen Streuung gehören:

1. **Die Anregung von Vibrationen in Molekülen und Phononen im Festkörper:** Die zugehörigen Energieverluste liegen in der Größenordnung von $20 \text{ meV} - 1 \text{ eV}$. Da jedoch die Energiebreiten heutiger, in der Elektronenmikroskopie verwendeter Kathoden größer sind (vgl. Abschnitt 1.1), lassen sich diese für die Molekül- und Festkörperphysik interessanten Energieverluste derzeit noch nicht elektronenmikroskopisch untersuchen. Nur in ausgewählten Spezialfällen unter Verwendung einer kalten FEG mit $\delta E \approx 0.2 - 0.4 \text{ eV}$ bzw. durch den Einsatz eines Monochromators lassen sich diese derzeit detektieren.

Durch die zukünftige Entwicklung einer neuen Generation von energiefilternden Transmissionselektronenmikroskopen, bei denen die aus einem Feld- bzw. Schottky-Emitter austretenden Elektronen monochromatisiert werden sollen, rückt das Ziel der orts aufgelösten Abbildung von Phononen in greifbare Nähe.

2. Die Anregung von Plasmonen, Inter- und Intra-band-Übergängen:

Bei der Plasmonenanregung wird das Elektronenplasma vom Valenz- bzw. Leitungsband zu kollektiven, longitudinalen Dichteschwingungen angeregt. Dieser Anregungsprozeß erzeugt einen diskreten Volumen- bzw. Oberflächen-Plasma-verlust im Bereich von $\Delta E = 0 - 50$ eV (*Low-loss*-Bereich). Der Energieverlust ist näherungsweise proportional zur Quadratwurzel der Elektronenkonzentration im Leitungs- bzw. Valenzband. In Abbildung 2.3 sind Beispiele für den *Low-loss*-Bereich von Energieverlustspektren verschiedener Elemente dargestellt (Zepke, 1991).

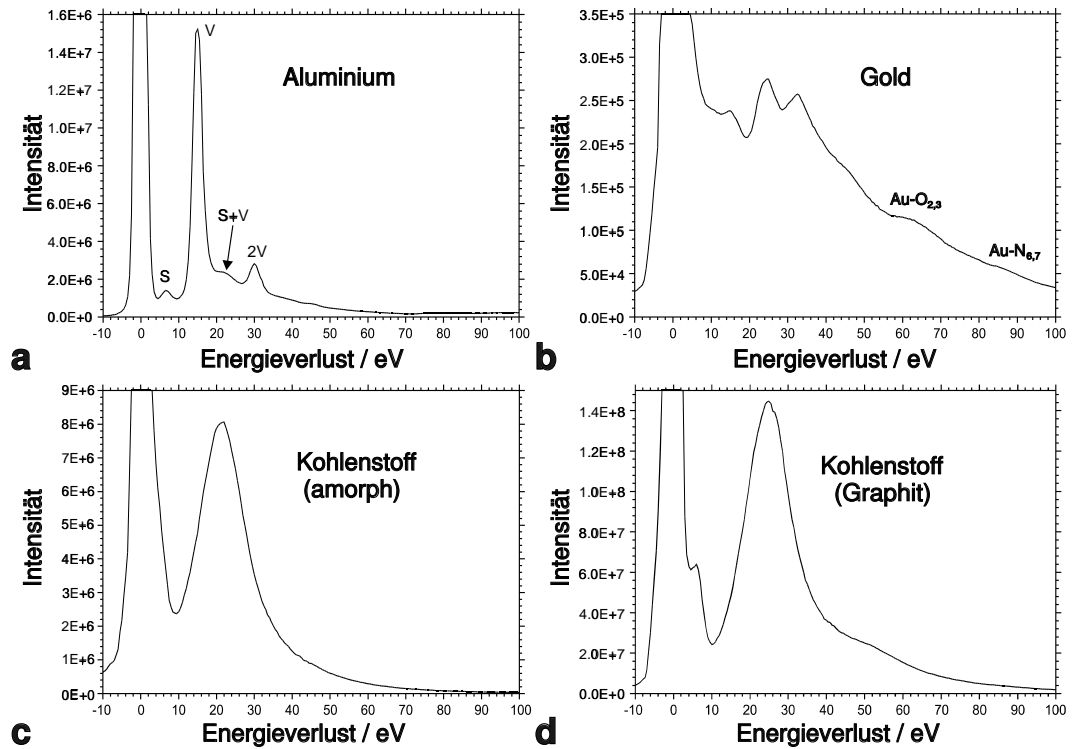


Abb. 2.3: Typischer *Low-loss*-Bereich von Energieverlustspektren verschiedener Elemente für eine Primärenergie von 80 keV (nach Zepke (1991)). **(a):** Al mit seinen typischen scharfen Oberflächen- (S) und Volumen-Plasmaverlusten (V); bei der hier vorhandenen Schichtdicke $t > \lambda_{pl}$ treten auch die Kombinationen aus Oberflächen- und Volumenplasmaverlusten sowie Mehrfachverluste auf. **(b)** zeigt am Beispiel von Au die möglichen Ionisationskantenverluste höherer Schalen. **(c)** und **(d)** demonstrieren die Modifikations-sensibilität des Plasmaverlustbereichs am Beispiel von amorphem Kohlenstoff bzw. Kohlenstoff in Graphit-Modifikation.

Abbildung 2.3(a) zeigt die für Al typischen scharfen Oberflächen- und Volumen-Plasmaverluste sowie das Auftreten von Mehrfachverlusten und Kombinationen aus Oberflächen- und Volumenplasmaverlusten bei Schichtdicken $t > \lambda_{pl}$. Die Abbildungen 2.3(b)–(d) zeigen sowohl elementspezifische, breitere Plasmon-Anregungen bei unterschiedlichen Energieverlusten als auch Informationen über charakteristische Ionisationskanten höherer Schalen (vgl. Abbildung 2.3(b)). Der Vergleich von Abbildung (c) und (d) zeigt am Beispiel verschiedener Modifikationen des Kohlenstoffs, daß aus dem *Low-loss*-Spektrum auch Informationen über unterschiedliche Bindungszustände eines Elements erhalten werden können.

3. **Anregung von quasifreien Einzelelektronen:** Ist die Energie, die auf ein Atomelektron übertragen wird sehr viel größer als die Bindungsenergie, so kann der Streuprozess auch als Stoß zweier Elektronen behandelt werden. Der dadurch resultierende wahrscheinlichste Energieverlust ΔE_c steigt in erster Näherung proportional zu θ^2 an und bildet den Bethe-Kamm in einem $I(\Delta E, \theta)$ -Diagramm. Dieser Prozess wird häufig auch als Compton-Streuung bzw. Elektron-Elektron-Anregung bezeichnet.

4. Inner-Schalen-Anregungen:

Wenn ein Elektron aus der K, L, M, N oder O-Schale in einen unbesetzten Zustand oder in das Kontinuum oberhalb des Fermi-niveaus angeregt wird, verliert das einfallende Elektron mit $E_{PE} \geq \Delta E_I$ einen charakteristischen, elementspezifischen Energiebetrag ΔE_I . Über die oben genannten ersten fünf Schalen lassen sich alle Elemente des Periodensystems in einem Energieverlustbereich von $0 \text{ eV} \leq \Delta E \leq 2500 \text{ eV}$ identifizieren. Für eine Elementanalyse mittels EELS ist in der Regel eine Energieauflösung von 5–20 eV erforderlich.

Eine Zusammenstellung von gemessenen Energieverlustspektren der Elemente des Periodensystems ist bei Ahn und Krivanek (1983) sowie Reimer *et al.* (1992) aufgeführt. Eine genauere Behandlung der grundlegenden physikalischen Prozesse der unelastischen Elektronenstreuung ist bei Schattschneider (1986) zu finden. Raether (1980) befaßt sich dagegen mit der Beschreibung der Interbandübergänge bzw. Anregungen von Plasmonen. Eine umfassende Behandlung der Anregungsprozesse, im besonderen der Ionisation innerer Schalen, mit einer Beschreibung der typischen Kantenformen findet sich bei Egerton (1996) und darüber hinaus eine Zusammenfassung bei Reimer *et al.* (1993) und Reimer (1995).

Die Abbildung 2.4(a) zeigt exemplarisch ein in Transmission bei einer Primärenergie von 80 keV aufgezeichnetes Energieverlustspektrum (EELS) einer dünnen Lanthan-Folie. Aufgrund der ausgeprägten Vorwärtsstreuung bei hohen Primärenergien erstreckt sich das Spektrum über mehrere Dekaden und wird daher üblicherweise halblogarithmisch dargestellt, wenn man sich sowohl für den *Low-loss*- als auch den *High-loss*-Bereich interessiert. Die für die EEL-Spektroskopie optimale Schichtdicke sollte im Idealfall nicht größer als die mittlere freie Weglänge der Plasmaver-

luste λ_{pl} sein, da sonst die Profile der Ionisationskanten mit dem Verlustspektrum zwischen 0–50 eV gefaltet sind. In der Praxis lassen sich jedoch Schichtdicken bis zum (3–10)-fachen von λ_{pl} für eine Elementanalyse ausnutzen, wenn das Spektrum einer Entfaltung unterzogen wird.

In Abbildung 2.4(b) ist im Vergleich dazu schematisch ein (vollständiges) Energiespektrum gegenübergestellt, wie es typischerweise an einer massiven Probe in Rückstreuung erhalten wird. Bezugspunkt ist hierbei im Gegensatz zum Energieverlustspektrum nicht die Primärenergie sondern der Energienullpunkt. Weitere Ausführungen dazu finden sich in Abschnitt 2.3.3.2.

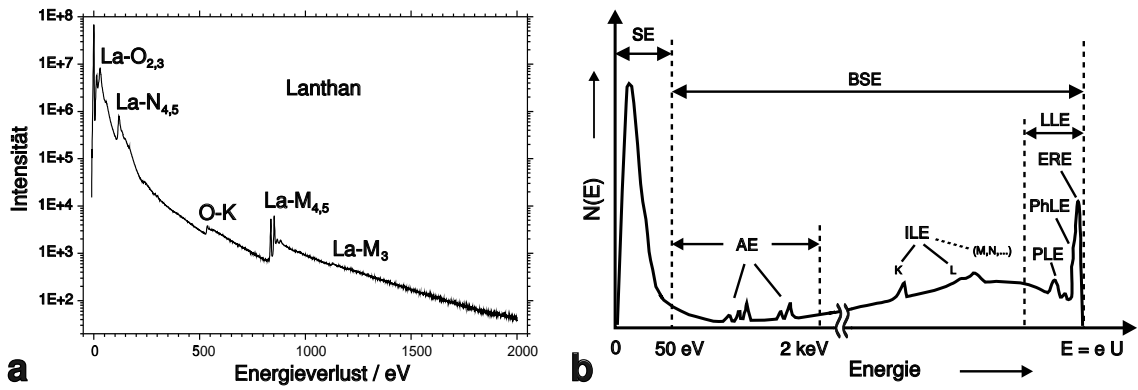


Abb. 2.4: (a): Typisches in Transmission bei 80 keV Primärenergie gemessenes Energieverlustspektrum einer dünnen La-Folie (Zepke, 1991). (b): Schematisch dargestelltes Rückstreuenergiespektrum mit den Sekundärelektronen (SE)- und Rückstreuelektronen (BSE)-Anteilen; die charakteristischen BSE setzen sich dabei zusammen aus Auger-Elektronen (AE) und Ionisationskantenverlust-Elektronen (ILE) sowie den Niederverlust-Elektronen (LLE), welche aus den Plasmaverlust-Elektronen (PLE), den Phononenverlust-Elektronen (PhLE) und den elastisch reflektierten Elektronen (ERE) gebildet werden (nach Reimer (1985)).

Im folgenden werden die theoretischen Grundlagen zur unelastischen Elektronenstreuung behandelt, wie sie für diese Arbeit von Bedeutung sind.

2.2.1 Kinematische Betrachtungen

Bei einem unelastischen Stoß eines Elektrons mit einem Festkörper wird das stoßende Elektron von einem Zustand \vec{k} mit Impuls $\vec{p} = \hbar \vec{k}$ und Energie $E = \hbar^2 k^2 / (2m)$ in den Zustand \vec{k}' mit Impuls $\vec{p}' = \hbar \vec{k}'$ und Energie $E' = \hbar^2 k'^2 / (2m)$ gestreut. Dabei überträgt es an den Festkörper die Energie $\Delta E = \hbar \omega = E - E' = \hbar^2 (\vec{k}^2 - \vec{k}'^2) / (2m)$ (\rightarrow Energieerhaltung) und den Impuls $\Delta \vec{p} = \hbar \vec{q} = \hbar (\vec{k}' - \vec{k})$ (\rightarrow Impulserhaltung), der dadurch vom Zustand $\phi_i(\vec{r}_1, \dots, \vec{r}_n)$ in den Zustand $\phi_f(\vec{r}_1, \dots, \vec{r}_n)$ übergeht. Die geometrischen Verhältnisse sind in Abbildung 2.5 dargestellt.

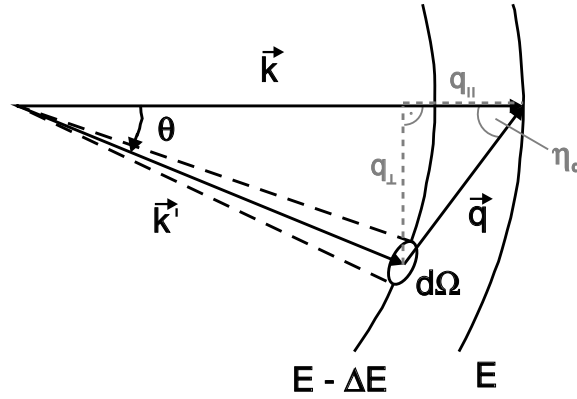


Abb. 2.5: Darstellung des Energie- und Impulsübertrags bei einem unelastischen Streuereignis.

Mit Hilfe des Kosinussatzes erhält man den exakten Ausdruck für den Streuwinkel θ :

$$\theta = \arccos \left(\frac{\vec{k}^2 + \vec{k}'^2 - \vec{q}^2}{2\vec{k}\vec{k}'} \right). \quad (2.5)$$

Unter der Annahme kleiner Streuwinkel θ ergibt sich näherungsweise für das Betragsquadrat des Streuvektors \vec{q} :

$$q^2 = q_{\perp}^2 + q_{\parallel}^2 = k^2 (\theta^2 + \theta_E^2) \quad (2.6)$$

mit dem charakteristischen Streuwinkel $\theta_E \simeq \Delta E / (2E)$ der unelastischen Streuung. Anschaulich beschreibt dieser die Halbwertsbreite des unelastischen Streuquerschnitts. Für einen vorgegebenen Energieverlust ΔE ergeben sich eine Vielzahl von möglichen Impulsüberträgen. Die Größe $q_{\parallel} \approx k \theta_E$ stellt ein Maß für den minimalen Impulsübertrag des Elektrons auf den Festkörper dar.

2.2.2 Unelastischer Streuquerschnitt

Quantenmechanisch betrachtet, wird die Wahrscheinlichkeit, mit der erlaubte Übergänge stattfinden, durch den doppelt differentiellen Streuquerschnitt $d^2\sigma_{in}/(d\Delta E d\Omega)$ der unelastischen Streuung beschrieben. Dieser kann als Wahrscheinlichkeit aufgefaßt werden, mit der ein Teilchen der Energie E den Energieverlust ΔE erleidet und in ein Raumwinkelement $d\Omega$ um θ gestreut wird. Man unterteilt dabei den Anregungsprozeß in die folgenden zwei Bereiche:

1. **Valenzelektronen- bzw. Inter- und Intraband-Anregungen:** Beschreibung durch die makroskopische dielektrische Theorie.
2. **Innerschalenelektronen-Anregungen:** Beschreibung mittels Bethe-Theorie und generalisierter Oszillatorstärken.

Aus beiden, von unterschiedlichen Standpunkten aus betrachteten Ansätzen folgt die äquivalente Darstellung des doppelt differentiellen Streuquerschnitts:

$$\boxed{\frac{d^2\sigma_{in}}{d\Omega d(\Delta E)} = \frac{1}{\pi^2 a_H m_e v_e^2 N_e} \frac{1}{(\theta^2 + \theta_E^2)} \operatorname{Im} \left[-\frac{1}{\epsilon(q, \Delta E)} \right]} \quad (2.7)$$

bzw.

$$\boxed{\frac{d^2\sigma_{in}}{d\Omega d(\Delta E)} = \frac{e^4}{(4\pi\epsilon_0)^2 E \Delta E} \frac{1}{(\theta^2 + \theta_E^2)} \frac{df_{on}(q, \Delta E)}{d(\Delta E)}} \quad (2.8)$$

Dabei ist m_e die Masse bzw. v_e die Geschwindigkeit der einfallenden Elektronen, $a_H=0.0529$ nm der Bohrsche Radius, N_e die Anzahl der freien Elektronen des Festkörpers pro Volumeneinheit und $\epsilon = \epsilon_1 + i\epsilon_2$ die komplexe dielektrischen Funktion. $f_{on}(q, \Delta E)$ stellt die atomaren generalisierten Oszillator-Stärken (GOS) dar (Bethe, 1930; Inokuti, 1971).

Eine Integration über $d\Omega$ und $d(\Delta E)$ liefert den totalen Streuquerschnitt der inelastischen Streuung σ_{in} . Über die Beziehung $\lambda_{in} = 1/(N_e\sigma_{in})$ läßt sich damit die für Simulationen wichtige Größe der inelastischen mittleren freien Weglänge berechnen. Analoges gilt für den totalen elastischen Streuquerschnitt σ_{el} und die daraus resultierende elastische mittlere freie Weglänge λ_{el} . Ein Vergleich des differentiellen elastischen mit dem differentiellen inelastischen Streuwinkel zeigt, daß die inelastische Streuung auf wesentlich kleinere Streuwinkel θ konzentriert ist als die elastische Streuung ($\theta_E \ll \theta_0$). Dieser Umstand hat die wichtige Konsequenz, daß man für Simulationsrechnungen in guter Näherung die elastische von der unelastischen Streuung trennen kann.

2.2.3 Stopping-Power

In der Rasterelektronenmikroskopie bei denen üblicherweise Oberflächen von massiven Festkörpern untersucht werden, interessiert man sich typischerweise für Signale, bei denen die Elektronen in der Regel viele Male in der Probe gestreut wurden. Die elastische Vielfachstreuung sorgt dabei im wesentlichen für eine Verbreiterung der Winkelverteilung und ist der Grund für die Elektronenrückstreuung. Die vielfache inelastische Streuung eines Elektrons entlang seiner Bahn durch den Festkörper hat eine schrittweise Abbremsung zur Folge. Dabei besteht die Möglichkeit, daß es entweder in der Probe zur Ruhe kommt oder die Probe als Rückstreuelektron bzw. bei Probendicken kleiner als die Reichweite als transmittiertes Elektron wieder verlassen kann (vgl. auch Abschnitt 2.3). Die Abbremsung eines Elektrons stellt eine Reihe von inelastischen Streuprozessen dar, die mit der Wahrscheinlichkeit gewichtet sind, wie sie im zugehörigen elementspezifischen Energieverlustspektrum auftreten (vgl. Abbildung 2.4(a)). Da die niederenergetischen Energieverluste mit $\Delta E \approx 0 - 50$ eV dominieren, läßt sich in vielen Fällen die kontinuierliche Abbremsformel (*Continuous Slowing Down Approximation*, CSDA) nach Bethe (1930) anwenden. Dabei werden

Einzelheiten des inelastischen Wirkungsquerschnitts „verschmiert“ und die Streuung vorwiegend von integralen Größen, wie etwa dem mittleren Energieverlust pro Weglängenelement bestimmt.

Jedem Weglängenelement ds kann demnach entlang der Bahn s ein energieabhängiges, mittleres Energieverlustelement dE_m zugeordnet werden. Nach Bethe ergibt sich danach für den mittleren Energieverlust pro Weglängenelement ds und nichtrelativistische Elektronen die sogenannte *Stopping-Power*:

$$S = \left| \frac{dE_m}{ds} \right| = \frac{2\pi e^4 N_A}{(4\pi\epsilon_0)^2} \frac{\varrho}{A E} \sum_{n,l} f_{nl} \ln(E/E_{nl}) , \quad \rightarrow \textbf{Bethe(1)} . \quad (2.9)$$

Dabei ist N_A die Avogadro Zahl, ϱ die Dichte des Materials in g/cm³ und A die relative Atommasse. f_{nl} entspricht der Oszillatorstärke und E_{nl} der Ionisierungsenergie der Unterschale nl . Dabei entspricht f_{nl} der Anzahl Z_{nl} Elektronen der nl -Unterschale. Die Summe über alle Schalen $\sum_{n,l} f_{nl} = Z$ ergibt die Gesamtzahl aller Elektronen des betreffenden Atoms (Bethe-Summenregel). Wird darüber hinaus die *Stopping-Power* durch die dichteunabhängige Größe $|dE_m/dx|$ mit $dx = \varrho ds$ ausgedrückt, so erhält man den häufig verwendeten Näherungsausdruck für Gleichung 2.9:

$$S(E) = \left| \frac{dE_m}{dx} \right| = \frac{2\pi e^4 N_A}{(4\pi\epsilon_0)^2} \frac{Z}{A E} \ln[1.166 (E/J)] , \quad \rightarrow \textbf{Bethe(2)} . \quad (2.10)$$

Dabei entspricht J dem mittleren Ionisierungspotential in eV, welches durch die analytischen Fits

$$\begin{aligned} J &= 9.76 Z + 58.5 Z^{-0.19} \quad (\text{eV}) && \text{für } Z \geq 13 , \\ J &= 11.5 Z \quad (\text{eV}) && \text{für } Z \leq 12 \end{aligned} \quad (2.11)$$

genähert wird. Die Nutzung der Bethe(1)-Formel für Monte-Carlo Simulationen wird in der Regel vermieden, da die Berechnung der einzelnen Innerschalenbeiträge zu rechenintensiv ist. Daher wird häufig auf die Bethe(2)-Formel zurückgegriffen. In Abbildung 2.6 ist die inverse *Stopping-Power* ($1/S$) nach der Bethe-Theorie (vgl. Glg. 2.9 und 2.10) im Vergleich mit Näherungen von Rao-Sahib und Wittry (1974), Joy und Luo (1989) und Tung *et al.* (1979) für den Energiebereich $E \leq 7$ keV dargestellt. Für leichte Elemente, wie am Beispiel des Kohlenstoffs gezeigt, ergeben sich keine Unterschiede zwischen der „exakten“ Bethe(1)- und der genäherten Bethe(2)-Formel. Geht man zu Elementen mit höherer Ordnungszahl über, wie am Beispiel von Gold demonstriert, so werden die Abweichungen mit abnehmender Primärenergie größer. Betrachtet man die Bethe(2)-Kurve bei niedrigen Energien, so zeigt diese einen unphysikalischen Anstieg von $1/S$.

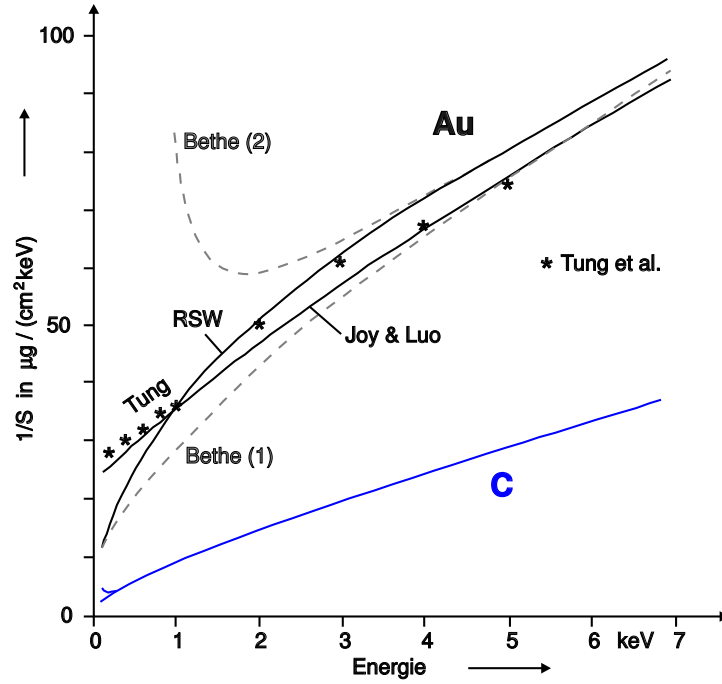


Abb. 2.6: Inverse *Stopping-Power* $1/S$ für die Elemente Gold und Kohlenstoff berechnet nach den Glgn. 2.9 u. 2.10 (Bethe, 1930) und mittels der Näherungen für den Niederenergiebereich nach Glg. 2.12 (Joy und Luo, 1989), Glg. 2.13 (Rao-Sahib und Wittry, 1974) und nach Tung *et al.* (1979).

Nach Gleichung 2.10 geht die *Stopping-Power* S gegen 0 für Energien $E \rightarrow J/1.166$. Dies würde aber bedeuten, daß das Elektron für $E = J/1.166$ die Probe ohne Energieverlust durchlaufen könnte und es für $0 < E < J/1.166$ sogar Energie gewänne. Für Simulationsrechnungen im Niederenergiebereich muß daher die Bethe(2)-Formel modifiziert werden, um sinnvolle Ergebnisse zu erhalten.

Joy und Luo (1989) beheben dieses Problem, indem sie das mittlere Ionisierungspotential durch den energieabhängigen Ausdruck $J \rightarrow J' = J/(1 + \frac{kJ}{E})$ ersetzen, so daß sich für die *Stopping-Power* die Beziehung

$$S_{JL} = \left| \frac{dE_m}{dx} \right| = 7.85 \cdot 10^{-2} \frac{Z}{A E} \ln \left[\frac{1.166(E + kJ)}{J} \right] \quad (2.12)$$

ergibt.

Rao-Sahib und Wittry (1974) schlagen hingegen die folgende einfache Korrektur für Gleichung 2.10 vor:

$$\begin{aligned} S_{RSW} &= \left| \frac{dE_m}{dx} \right| = 7.85 \cdot 10^{-2} \frac{Z}{A E} \ln \left[\frac{1.166E}{J} \right] && \text{für } E \geq 6.4 J \\ S_{RSW} &= \left| \frac{dE_m}{dx} \right| = 6.24 \cdot 10^{-2} \frac{Z}{A \sqrt{E J}} && \text{für } E < 6.4 J . \end{aligned} \quad (2.13)$$

Für beide Näherungen ergibt sich mit E und J in keV, S in $\text{keV cm}^2 \mu\text{g}^{-1}$. Nach Rao-Sahib und Wittry wird also für Energien bis zu einem Punkt von $E \simeq 6.4 J$ die Bethe(2)-Formel verwendet. Ab dieser Schwellenergie wird davon ausgegangen, daß der logarithmische Term in Gleichung 2.10 gegenüber dem $1/E$ -Term überwiegt. Für diesen Bereich wird S daher nach einem $1/\sqrt{EJ}$ -Gesetz genähert.

Die beiden unterschiedlichen Näherungen in Gleichung 2.12 und Gleichung 2.13 beheben das unphysikalische Verhalten der Bethe(2)-Formel und erweitern diese damit auf den Niederenergiebereich. Beide Modifikationen besitzen jedoch keinen physikalischen Hintergrund. Vergleichende Monte-Carlo Simulationen von Senkel (1993) zwischen den oben vorgestellten Erweiterungsformeln und der „exakten“ Bethe(1)-Form ergaben speziell im Niederenergiebereich die besten Ergebnisse mit der Rao-Sahib und Wittry-Erweiterung. Daher wurde für alle in dieser Arbeit durchgeführten Monte-Carlo Simulationen ausschließlich dieser Näherungsansatz verwendet.

2.3 Elektronenmikroskopische Größen

2.3.1 Reichweite der Elektronen

Durch die Vielzahl an unelastischen Streuprozessen, die Elektronen beim Durchlaufen einer massiven Probe erfahren, werden sie kontinuierlich entlang ihrer Bahn abgebremst. Daneben kommt es zu einer Vielzahl von elastischen Streuprozessen, die jeweils eine Richtungsänderung der Elektronen bewirken. Dies führt zur Ausbildung und Begrenzung des Wechselwirkungsvolumens, der sogenannten Diffusionsbirne. Diese ist in Abbildung 2.7(a) schematisch und in den Abbildungen 2.9(a) – (d) für praktische Beispiele mit Hilfe der Monte-Carlo Methode dargestellt.

In Abbildung 2.7(a) sind darüber hinaus die in einem SEM für die Abbildung sowie Mikroanalyse einer massiven Probe wichtigen Wechselwirkungsprozesse gezeigt. Die auf die Probe auftreffenden Primärelektronen (PE) erzeugen direkt am Auftreffort der Sonde Sekundärelektronen (SE1), die aufgrund ihrer geringen Energie nur aus einer schmalen Oberflächenschicht der Tiefe $\lambda_{SE} \approx 1 - 10 \text{ nm}$ die Probe verlassen können. Die SE1 tragen daher sowohl lateral als auch in der Tiefe hochaufgelöste Informationen der Probenoberfläche in der Größenordnung des Sondendurchmessers. Das in Rückstreuung erhaltene Energiespektrum der SE in Abbildung 2.4(b) besteht aus einem scharfen *Peak* bei etwa $2 - 5 \text{ eV}$ und einem langsam abfallenden Ausläufer bis ca. 50 eV . Definitionsgemäß werden die Elektronen mit einer Energie $0 \text{ eV} < E_{SE} \leq 50 \text{ eV}$ als Sekundärelektronen (SE) bezeichnet. Alle Elektronen mit einer größeren Energie ($50 \text{ eV} < E_{BSE} \leq E_{PE}$) werden als Rückstreuelektronen (BSE) bezeichnet. Vielfachgestreute Primärelektronen können die Probe als Rückstreuelektronen aufgrund ihrer größeren Energie aus einer maximalen Tiefe bis zur halben Reichweite $R/2$ wieder verlassen. Die Tiefe $R/2$ wird daher auch als Informationstiefe der BSE bezeichnet. Auf ihrem Weg durch die Oberflächenschicht λ_{SE} erzeugen die BSE in der Regel weit entfernt vom Primärstrahl-Auftreffort eine Reihe von SE2.

SE2 enthalten daher einerseits Oberflächeninformationen, andererseits aber auch Informationen aus einer Tiefe und Entfernung vom Primärstrahl-Auftreffort von bis zu $R/2$. Sie tragen zu einer Verschlechterung der lateralen Auflösung des SE-Signals bei, da sich mit konventionellen Detektorsystemen die einzelnen SE-Anteile nicht trennen lassen. In Abschnitt 5.2.3.4 werden die unterschiedlichen Einflüsse auf das Auflösungsvermögen eines rasterelektronenmikroskopischen Bildes detaillierter behandelt. Auf die in Abbildung 2.7(a) dargestellte, durch eine Energieabgabe der Elektronen ebenfalls mögliche Erzeugung von charakteristischer Röntgenstrahlung (X), Auger-Elektronen (AE), Kathodolumineszenz-Strahlung (KL) und Wärmestrahlung wird hier nicht weiter eingegangen.

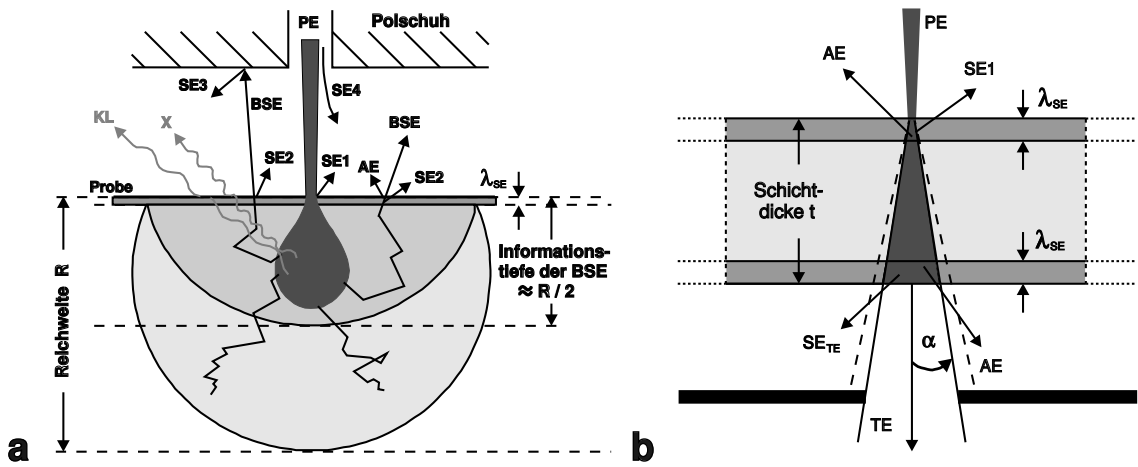


Abb. 2.7: (a): Sich in einem Festkörper ausbildende Diffusionsbirne, die eine Verschlechterung des lateralen Auflösungsvermögens und eine Erhöhung der Tiefeninformation bewirkt. Dargestellt ist die Aussendung von Sekundärelektronen (SE1, ..., SE4), Rückstreuelektronen (BSE), Auger-Elektronen (AE), Röntgenstrahlen (X) und Kathodolumineszenz (KL); (nach Reimer (1993)). (b): Aufweitung des Primärelektronenstrahls innerhalb einer dünnen Schicht. Die Aussendung von Sekundärelektronen erfolgt hier in den schmalen Oberflächenbereichen λ_{SE} an der Ober- (SE1) und Unterseite (SE_{TE}) der Schicht; (nach Egerton (1996)).

Ist die Schichtdicke des Objekts sehr viel kleiner als die Reichweite der Primärelektronen, so ergeben sich die Verhältnisse wie in Abbildung 2.7(b) gezeigt. Es kommt zu einer mehr oder weniger stark ausgeprägten Aufweitung des Primärstrahls, wobei sich die eigentliche Diffusionsbirne nicht mehr ausbildet. Zwischenstadien dieser beiden Extremfälle lassen sich im Schichtdicken- bzw. entsprechenden Energiebereich von $R/2 \lesssim t \leq R$ untersuchen.

Zur Bestimmung der Elektronenreichweite in Abhängigkeit von der Primärenergie existiert in der Literatur eine Vielzahl an Energie-Reichweiten-Beziehungen, deren Definition häufig unterschiedlich verwendet wird. An dieser Stelle sollen nur die für diese Arbeit wichtigen Reichweitenbeziehungen genannt werden. Aus der Gleichung 2.10 für die *Stopping-Power* ergibt sich für das in der Probe zurückgelegte

differentielle Weglängenelement $dx = dE/S(E)$. Die sogenannte Bethe-Reichweite R_B folgt aus der Integration von dx von der Primärenergie bis herab zu einer Minimalenergie $E_{min} \rightarrow 0$. R_B entspricht also der Entfernung, die ein Elektron im Mittel ohne Winkelablenkung bei geradliniger Abbremsung im Festkörper zurücklegen würde. Die Bethe-Reichweite R_B ist nicht zu verwechseln mit der sogenannten praktischen Elektronen-Reichweite R , welche angibt, bis zu welcher Tiefe die Elektronen unter Berücksichtigung der Winkelablenkung im Mittel in die Probe vordringen.

In Abbildung 2.8 ist dieser Sachverhalt am Beispiel des Verlaufs der mittleren Energie E_m eines Elektrons entlang seiner Bahn durch den Festkörper für die Elemente Kohlenstoff und Gold bei Primärenergien von 1–5 keV gezeigt.

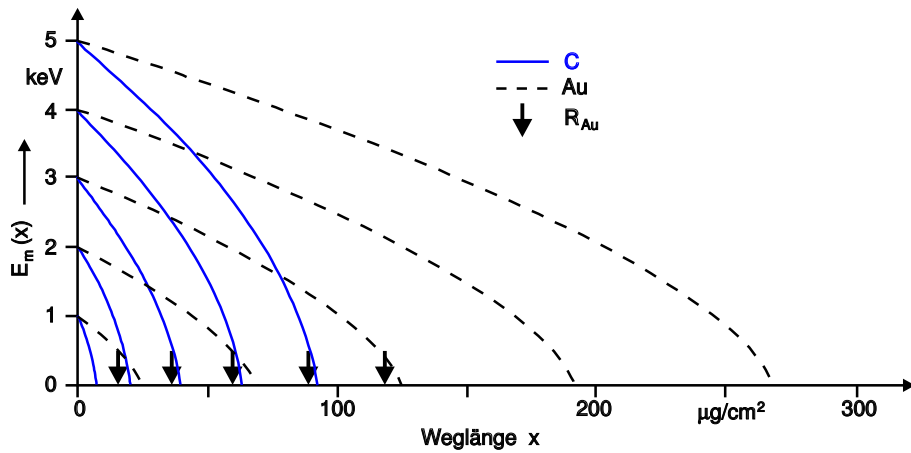


Abb. 2.8: Mittlerer Energieverlust $E_m(x)$ in Abhängigkeit von der Weglänge x in $\mu\text{g}/\text{cm}^2$. Extrapolation der Kurven auf $E_m(x) \rightarrow 0$ ergibt die jeweilige Bethe-Reichweite R_B . Die Pfeile geben die entsprechende nach Glg. 2.19 berechnete praktische Elektronenreichweite für Gold an (Reimer, 1993).

Die Extrapolation der Kurven auf $E_m(x) \rightarrow 0$ ergeben die jeweiligen Bethe-Reichweiten. Für Gold wurden die dazugehörigen, experimentell ermittelten praktischen Reichweiten nach Gleichung 2.19 (Pfeile) eingezeichnet.

Dabei wird deutlich, daß die praktische Reichweite für Elemente höherer Ordnungszahl aufgrund der starken elastischen Vielfachstreuung in große Winkel erheblich kleiner ist als die zugehörige Bethe-Reichweite. Für Elemente niedriger Ordnungszahl ist dieser Effekt aufgrund der stärkeren Vorwärtsstreuung nicht so stark ausgeprägt, so daß die praktische Reichweite vergleichbar mit der Bethe-Reichweite ist. Die Abbildung 2.9 veranschaulicht diesen Sachverhalt und zeigt weiterhin die Unterschiede in der Elektronendiffusion für Kohlenstoff (a), (c) und Gold (b), (d) beim Übergang vom konventionellen Energiebereich (für 30 keV; a, b) zum Niederenergiebereich (für 0.5 keV; c, d).

Abbildung 2.9(a) zeigt die charakteristische Elektronen-Diffusionswolke, wie sie in Kohlenstoff bei 30 keV auftritt. Aufgrund der stark in Vorwärtsrichtung ausgeprägten elastischen Streuung bildet sich die typische pinselförmige Diffusionsbirne

aus, die zu einem geringeren Rückstreukoeffizienten (vgl. Abschnitt 2.3.3) führt. In Gold dagegen (Abb. 2.9(c)) zeigt sich durch die starke elastische Großwinkelstreuung eine ausgeprägte „Zerkneulung“ der Elektronenbahnen, die zu einer apfelförmigen Diffusionswolke und damit zu einer größeren Rückstreuung führt.

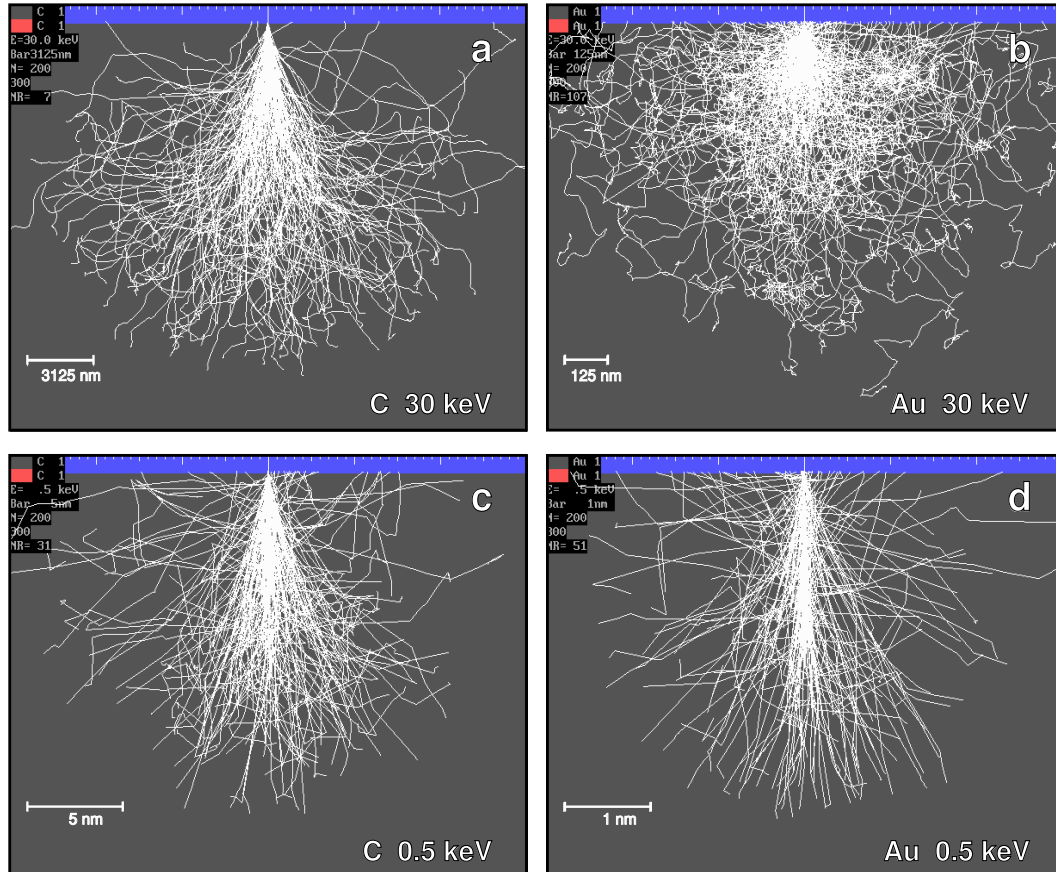


Abb. 2.9: Form der Elektronen-Diffusionsbirne für Kohlenstoff (a), (c) und Gold (b), (d) bei 30 keV (a), (b) und 0.5 keV (c), (d). Man beachte die unterschiedliche Skalierung der Abbildungen.

Beim Übergang zu niedrigen Primärenergien (Abbildung 2.9(c), (d)) ändern sich diese Verhältnisse. Die Form der Diffusionswolke für Kohlenstoff hat sich verbreitert, was zu einer Erhöhung des Rückstreukoeffizienten mit abnehmender Primärenergie führt (vgl. Abschnitt 2.3.3). Die Verbreiterung der Wolke ist eine Konsequenz aus der für leichte Elemente zunehmenden Großwinkelstreuung mit abnehmender Energie. Gold bei 1 keV in Abbildung 2.9(d) hingegen zeigt die entgegengesetzte Tendenz. Die Wahrscheinlichkeit für die Großwinkelstreuung nimmt mit abnehmender Primärenergie entsprechend der Mottschen Wirkungsquerschnitte für Elemente hoher Ordnungszahl ab (vgl. Abschnitt 2.1.2), so daß sich die Form der Diffusionsbirne zu einer mehr pinselförmigen verändert. Dadurch können die Elektronen tiefer in das Material eindringen, so daß sich als Folge der Rückstreukoeffizient verringert

und die in der Einheit Massendicke ausgedrückte praktische Elektronenreichweite im Vergleich zu Elementen mit niedriger Ordnungszahl zunimmt (Böngeler *et al.*, 1992).

Experimentell ist die Messung der praktischen Reichweite R über Transmissionsmessungen an dünnen Schichten bekannter Massendicke x möglich. Eine Möglichkeit ist, die Massendicke x bei konstanter Primärenergie zu variieren und die Reichweite über den Abfall $T(x, E = konst) \rightarrow 0$ zu bestimmen. Andererseits kann auch die Primärenergie E_{PE} bei konstanter Massendicke variiert werden. Bei diesem Verfahren wird die Primärenergie $E_{PE} = E_{th}$ ermittelt, bei der $T(E_{th}, x = konst) = 0$ ist. Für diese Primärenergie ist gerade die Massendicke x der untersuchten Schicht gleich der Reichweite R . Da die Reichweite keine scharfe Grenze darstellt, wird die Definition des Endpunktes in der Literatur unterschiedlich gehandhabt. Nach Fitting (1974, 1975) ist der Endpunkt dort erreicht, wo $T(x)$ auf 1% abgefallen ist. Eine andere Möglichkeit, den Endpunkt der Reichweite zu finden, ist es, den letzten linearen Teil der Transmissionskurve $T(x, E = konst) \rightarrow 0$ (Reimer, 1985) bzw. den ersten linearen Teil der Transmissionskurve $T(E, x = konst) \rightarrow 0$ (Böngeler *et al.*, 1993) zu extrapolieren und den Schnittpunkt mit der Abszisse für die Definition der Reichweite zu verwenden.

Im allgemeinen zeigt sich, daß die praktische Reichweite R durch ein Potenzgesetz $R = a E^n$ angenähert werden kann. In den meisten Fällen wird R in der dichtenormierten Einheit $\mu\text{g}/\text{cm}^2$, der Massendicke x , ausgedrückt, da sie dann für Primärenergien $E \gtrsim 10 \text{ keV}$ im wesentlichen unabhängig von der Art des Elements ist. Die Energie E wird dabei im allgemeinen in keV verwendet. Der Exponent n nimmt für Energien $10 \text{ keV} \lesssim E \lesssim 100 \text{ keV}$ Werte in der Größenordnung $n \approx 1.4 - 1.7$ und für Energien $1 \text{ keV} \lesssim E \lesssim 10 \text{ keV}$ Werte im Bereich von $n \approx 1.3 - 1.4$ an. Für das praktische Arbeiten werden im folgenden die wichtigsten Energie-Reichweiten-Beziehungen genannt. Eine ausführliche Zusammenstellung unterschiedlicher Energie-Reichweiten-Beziehungen zahlreicher Autoren mit ihren unterschiedlichen Definitionen und Gültigkeitsbereichen ist bei Reimer (1985) und eine Ergänzung bei Schindler (1993) zu finden. Für eine schnelle Abschätzung eignet sich die einfache, elementunabhängige Formel von Libby (1947) (Man beachte: Bei Umrechnung der praktischen Elektronenreichweite in die Einheit (nm) ist sie dichte- und damit auch elementabhängig.)

$$R_{(\mu\text{g}/\text{cm}^2)}^{Libby} = \frac{20}{3} E_{(keV)}^{5/3} \quad \text{für } 10 \text{ keV} \leq E \leq 200 \text{ keV} . \quad (2.14)$$

Fitting (1974) gibt zwei Beziehungen an, die über einen erheblich größeren Energiebereich gültig sind:

$$R_{(nm)}^{Fitting} = 45 \varrho_{(g/\text{cm}^3)}^{-0.9} E_{(keV)}^n \quad \text{mit } n = 1.7 \quad \text{für } 10 \text{ keV} < E < 1000 \text{ keV} \quad (2.15)$$

$$R_{(nm)}^{Fitting} = 90 \varrho_{(g/\text{cm}^3)}^{-0.8} E_{(keV)}^n \quad \text{mit } n = 1.3 \quad \text{für } 1 \text{ keV} \leq E \leq 10 \text{ keV} \quad (2.16)$$

Dabei wird der Exponent n als unabhängig von Z angenommen. Man beachte, daß die Reichweite in der Schichtdicken-Einheit (nm) angegeben wird. Für das schnelle

Umrechnen der Reichweite R von (nm) in ($\mu\text{g}/\text{cm}^2$) und umgekehrt ist die praktische Faustformel: $x_{(\mu\text{g}/\text{cm}^2)} = \varrho_{(\text{g}/\text{cm}^3)} \cdot t_{(\text{nm})} / 10$ sehr hilfreich. Dabei entspricht x der Massendicke, ϱ der Dichte und t der Schichtdicke. Rechnet man die Fittingschen Gleichungen 2.15 und 2.16 zur Beschreibung der praktischen Elektronenreichweite in die Einheit der Massendicke um, so ergibt sich für den Energiebereich $E > 10 \text{ keV}$ ein leicht dichteabhängiger multiplikativer Faktor von $\varrho^{0.1}$, der einen vernachlässigbaren Einfluß hat. Somit zeigt sich auch hier wieder die für große Energien und in der Einheit der Massendicke angegebene (im wesentlichen) elementunabhängige Elektronenreichweite. Für Energien $E \leq 10 \text{ keV}$ verdoppelt sich der dichteabhängige Faktor auf $\varrho^{0.2}$, so daß er einen deutlich stärkeren Einfluß ausübt. Dies führt zu einer größeren Reichweite bei Elementen mit größerer Dichte und mit größerer Ordnungszahl Z .

Von Schindler (1993) durchgeführte Messungen der praktischen Elektronenreichweite im Energiebereich $1 - 10 \text{ keV}$ in verschiedenen Elementen ergaben die folgenden Ergebnisse:

$$\text{C:} \quad R_{(\mu\text{g}/\text{cm}^2)} = 9.0 E_{(\text{keV})}^{1.35} \quad \text{für } 0.4 \text{ keV} \leq E \leq 4 \text{ keV} \quad (2.17)$$

$$\text{Al:} \quad R_{(\mu\text{g}/\text{cm}^2)} = 9.9 E_{(\text{keV})}^{1.37} \quad \text{für } 0.6 \text{ keV} \leq E \leq 11 \text{ keV} \quad (2.18)$$

$$\text{Au:} \quad R_{(\mu\text{g}/\text{cm}^2)} = 11.8 E_{(\text{keV})}^{1.44} \quad \text{für } 3 \text{ keV} \leq E \leq 19 \text{ keV} \quad (2.19)$$

Einerseits zeigt sich der für diesen Energiebereich und alle Elemente erwartete kleinere Exponent $n \approx 1.3 - 1.4$, andererseits wird auch eine mit steigender Ordnungszahl zunehmende Reichweite in ($\mu\text{g}/\text{cm}^2$) beobachtet, die bei unseren Messungen jedoch durch eine Zunahme des Vorfaktors a und des Exponenten n erzielt wird. Dabei gilt die Zunahme von a mit zunehmendem Z als gesichert, die gemessene gleichzeitige Zunahme von n kann jedoch auch auf die in den Messungen für C, Al und Au unterschiedlich großen, für die Extrapolation verwendeten Energiebereiche zurückgeführt werden.

Ein Vergleich der nach Fitting (Glg. 2.16) für die Elemente Kohlenstoff, Aluminium und Gold berechneten Reichweiten mit denen von uns nach den Gleichungen 2.17 bis 2.19 bestimmten, ergibt für den Primärenergiebereich von $1 - 10 \text{ keV}$ eine gute Übereinstimmung mit einer typischen Abweichung von $\lesssim 1 - 5\%$. Zu bemerken ist, daß sich bei den hier verwendeten Elementen ϱ in guter Näherung proportional zu Z verhält. Nicht abschließend geklärt ist jedoch die Unstimmigkeit in den Aussagen, daß die Elementabhängigkeit der praktischen Reichweite in ($\mu\text{g}/\text{cm}^2$) nach Fitting von der Dichte ϱ des Materials $\propto \varrho^{+0.2}$ bestimmt wird. Nach unseren Überlegungen sollte sie aber im Energiebereich von $1 \text{ keV} \leq E \leq 10 \text{ keV}$ von der Ordnungszahl Z abhängen, da wir die Unterschiede in den Mottschen Wirkungsquerschnitten dafür verantwortlich machen.

Die Abnahme des Exponenten n beim Übergang vom Energiebereich $10 \text{ keV} < E < 1000 \text{ keV}$ nach $1 \text{ keV} \leq E \leq 10 \text{ keV}$ für alle Elemente führt zu einer auf die Primärenergie bezogene, kleinere relative Reichweite bei niedrigeren Energien. Diese ist auf das erhöhte Bremsvermögen (*Stopping-Power*) mit abnehmender Ener-

gie zurückzuführen. Aus diesem Grund wird auch für den sogenannten Sub-keV-Bereich ($E < 1 \text{ keV}$) ein noch kleineres n erwartet. Die Zunahme des Vorfaktors a mit steigender Ordnungszahl Z für Energien im Bereich von $1 \text{ keV} \leq E \leq 10 \text{ keV}$ läßt sich durch die verminderte Großwinkelstreuung bei Elementen mit großem Z und die Erhöhung der Großwinkelstreuung für Elemente mit niedrigem Z erklären.

2.3.2 Transmissionskoeffizient

Verwendet man keine massiven Proben sondern Schichten, deren Schichtdicke kleiner ist als die praktische Reichweite der Elektronen, so können die Primärelektronen, wie in Abbildung 2.7(b) gezeigt, die Probe an der Unterseite wieder verlassen. Die Transmission $T(x) = I_{TE}/I_{PE}$ ist somit der Anteil des einfallenden Primärelektronenstrahls, der die dünne Schicht mit einer Massendicke x an der Unterseite unter Austrittswinkeln von $0^\circ - 90^\circ$ wieder verläßt. $T(x)$ wird auch häufig Transmissionskoeffizient genannt und mit $\eta_t(x)$ oder $\tau(x)$ bezeichnet. Messungen der Transmission $T(x)$ von Fitting (1974) im Energiebereich von $5 - 500 \text{ keV}$ führen für verschiedene Elemente zu folgender Formel für den Transmissionskoeffizienten T :

$$T(x) = \exp\left[-4.605 \left(\frac{x}{R}\right)^p\right] \quad \text{für } 5 \text{ keV} \lesssim E \leq 500 \text{ keV} . \quad (2.20)$$

Dabei entspricht R der Reichweiten-Beziehung nach Gleichung 2.15 bzw. 2.16. Der Exponent p hängt von der Ordnungszahl Z des jeweiligen Elementes ab. Für leichte Elemente wie z. B. Aluminium nimmt die Transmission $T(x)$ einen eher gaußförmigen Verlauf mit $p = 2$ an, der sich mit zunehmender Kernladungszahl Z einem exponentiellen Abfall mit $p \rightarrow 1$ annähert. In Tabelle 2.1 sind typische aus Fitting (1974) abgeschätzte Werte für den Exponent p angegeben.

Tab. 2.1: Typische aus Fitting (1974) abgeschätzte Werte für den elementabhängigen Exponent p zur Bestimmung des Transmissionskoeffizienten T nach Glg. 2.20.

	Be	Al	Ag	Au
p	$\approx 3 - 4$	≈ 2	≈ 1.5	≈ 1.1

Der Faktor (-4.605) sorgt dafür, daß $T(x)$ für $x = R$ auf den Wert 0.01 abgefallen ist, dem Fittingschen Endwert für die Reichweite.

Eine alternative Darstellung für die Transmission T wird von Drescher *et al.* (1970), Makhov (1961) sowie Vyatskin und Pilyankevich (1964) verwendet. Messungen im Energiebereich von $10 - 100 \text{ keV}$ zeigen, daß sich die Transmissionskurven T in Abhängigkeit von der reduzierten Massendicke $(x/x_{0.5})$ für ein definiertes Element unabhängig von der Primärenergie beschreiben lassen. Dabei entspricht $x_{0.5}$ der Massendicke, bei der die Transmission für eine vorgegebene Energie 50% betragen würde.

2.3.3 Rückstreukoeffizient

Der Rückstreukoeffizient $\eta = I_{BSE}/I_{PE}$ gibt den Anteil der Primärelektronen an, der die Probe mit Energien von $50 \text{ eV} < E \leq E_{PE}$ nach elastischer und/oder unelastischer (Vielfach-)Streuung wieder verläßt (vgl. Abbildung 2.4(b) und 2.7(a)). Wie aus Abbildung 2.10(b) ersichtlich, ist η für einen Bereich von $5 \text{ keV} \lesssim E \leq 100 \text{ keV}$ annähernd unabhängig von der Energie. Für diesen Energiebereich zeigt sich ein monotoner Anstieg des Rückstreukoeffizienten η mit steigender Ordnungszahl Z , analog der 5 keV-Kurve in Abbildung 2.10(a).

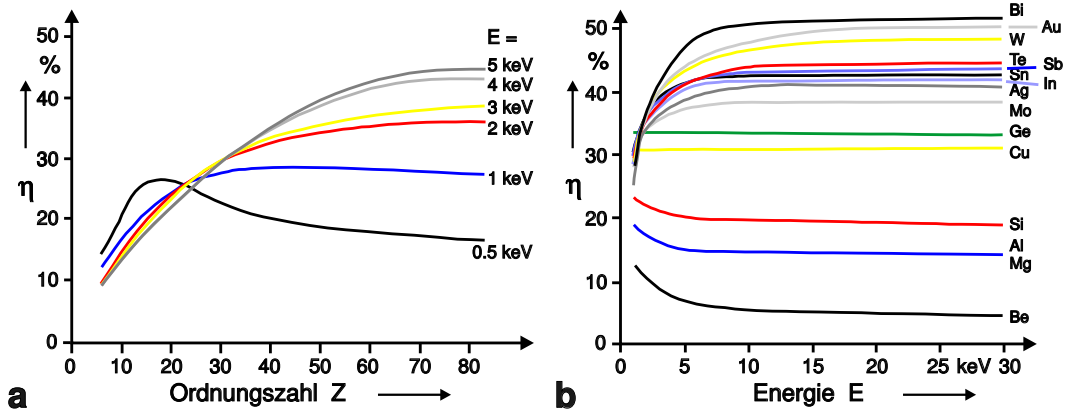


Abb. 2.10: (a) Rückstreukoeffizient η in Abhängigkeit von der Ordnungszahl Z im Niederenergiebereich nach Böngeler *et al.* (1993); (b) Rückstreukoeffizient η in Abhängigkeit von der Primärenergie für den Bereich ($1 \text{ keV} \leq E \leq 30 \text{ keV}$) nach Reimer und Tollkamp (1980).

Verschiedene Autoren (Arnal *et al.*, 1969; Darlington, 1975; Reuter, 1972) geben für diesen Energiebereich die folgenden analytischen Fits für den Rückstreukoeffizienten η in Abhängigkeit von der Ordnungszahl Z an, z. T. auch in Abhängigkeit vom Kippwinkel φ_k ($0^\circ \leq \varphi_k \leq 90^\circ$; $\varphi_k = 0^\circ$: senkrechter Einfall):

$$\eta(Z, \varphi_k) = (1 + \cos \varphi_k)^{-9/\sqrt{Z}} \quad \text{Arnal *et al.* (1969)} \quad (2.21)$$

$$\eta(Z, \varphi_k) = 0.89 [\eta(Z, 0)/0.89]^{\cos \varphi_k} \quad \text{Darlington (1975)} \quad (2.22)$$

$$\begin{aligned} \eta(Z, 0) = & -0.0254 + 0.016 Z - 1.86 \cdot 10^{-4} Z^2 \\ & + 8.31 \cdot 10^{-7} Z^3 \quad \text{Reuter (1972)} \quad (2.23) \end{aligned}$$

Werden Multilayer bzw. Verbindungen als Target verwendet, so zeigt die Summenregel $\eta_{ges} = \sum_i \alpha_i (A_i/M) \eta_i$ die beste Übereinstimmung mit dem Experiment. Dabei bezeichnet η_i den Rückstreukoeffizienten der Teilkomponente i , A_i das Atomgewicht, α_i die Indexzahl und $M = \sum_i \alpha_i A_i$ das Molekulargewicht der Teilkomponente i .

Der monotone Anstieg von η mit zunehmendem Z wird zur Materialunterscheidung mittels BSE-Detektor verwendet. Als Beispiel dafür ist in Abbildung 2.11(a) ein Rückstreuelektronenbild einer Multilayer-Probe gezeigt, bei der nacheinander

versetzt Cu, Ag und Au auf ein Si-Substrat aufgedampft wurde. Dabei war die Schichtdicke größer als die Reichweite für 10 keV Elektronen des jeweiligen Elements.

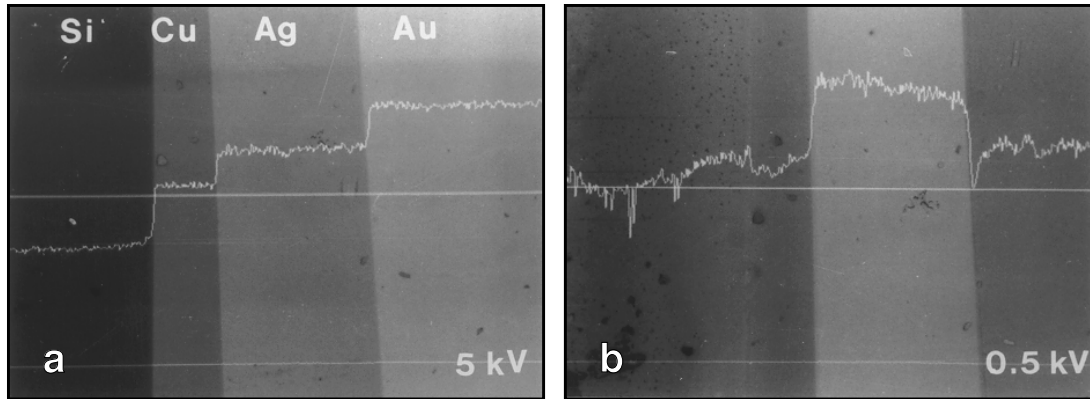


Abb. 2.11: BSE-Bilder einer Vielschicht-Probe aus Si, Cu, Ag und Au (Reimer, 1993). **(a)** bei 5 keV aufgenommen, zeigt die Möglichkeit der Ordnungszahlselektion für $E \geq 5$ keV, aufgrund der mit steigendem Z steigenden Rückstreuung. **(b)** zeigt die sog. **anomale Rückstreuung** für 0.5 keV; für niedrige Energien ist daher keine eindeutige Unterscheidung der Elemente mehr aus dem Rückstreusignal möglich (vgl. auch Abb. 2.10(a)).

Zu erkennen ist die nach Abbildung 2.10(a) mit steigender Ordnungszahl zunehmende Helligkeit des Bildes. Reduziert man jedoch die Primärenergie auf 0.5 keV (Abbildung 2.11(b)), so läßt sich keine eindeutige Materialzuordnung mehr anhand der Kontraste vornehmen. Verantwortlich hierfür ist das geänderte Verhalten des Rückstreukoeffizienten η mit abnehmender Primärenergie im Energiebereich von $E \lesssim 5$ keV. Im Gegensatz zum konventionellen Bereich zeigt der Rückstreukoeffizient $\eta = \eta(Z, E)$ im Niederenergiebereich eine erhebliche Energieabhängigkeit. Wie in Abbildung 2.10(a) (Böngeler *et al.*, 1993) dargestellt, nimmt mit abnehmender Primärenergie der monotone Anstieg von η in Abhängigkeit von Z ab. Bei einer Primärenergie von 1 keV ergibt sich für η daher im wesentlichen ein konstanter Wert für $Z \gtrsim 30$. Bei weiterer Absenkung der Primärenergie auf 0.5 keV nimmt η für $Z \gtrsim 30$ mit zunehmender Ordnungszahl Z sogar ab und durchläuft bei $Z \approx 20$ ein Maximum. Somit läßt sich auch die Kontrastumkehr zwischen Ag und Au in Abbildung 2.11(b) erklären. Betrachtet man die Abbildung 2.10(b) aus Messungen von Reimer und Tollkamp (1980) im Energiebereich von $E \lesssim 5$ keV, so zeigt sich in Übereinstimmung mit anderen Autoren (Böngeler *et al.*, 1993; Darlington und Cosslett, 1972), daß η mit abnehmender Energie für $Z < 30$ ansteigt und für $Z > 30$ abnimmt. Ursache für das geänderte Rückstreuverhalten im Niederenergiebereich sind die in Abschnitt 2.1.2 behandelten Unterschiede in der Mott-Streuung, wie durch Monte-Carlo Simulationen von Reimer und Stelter (1986), Kotera *et al.* (1981a) und Kotera *et al.* (1981b) bestätigt wird.

2.3.3.1 Winkelverteilung der BSE

Im konventionellen Energiebereich kann die Winkelverteilung der BSE für den senkrechten Einfall durch das Lambertsche Kosinus-Gesetz

$$\frac{d\eta}{d\Omega} = \frac{\eta}{\pi} \cos \zeta \quad (\text{Drescher } et al., 1970; \text{Kanter, 1957}) \quad (2.24)$$

beschrieben werden, wobei $\zeta = 90^\circ - \psi$ der Winkel zwischen Oberflächennormale und Austrittsrichtung der BSE ist. Auch für niedrige Energien ($E \leq 5 \text{ keV}$) bei Elementen mit niedrigem Z , wie z. B. Aluminium bei senkrechtem Einfall ($\varphi_k = 0$) kann diese Gesetzmäßigkeit zur Beschreibung von $(d\eta/d\Omega)$ herangezogen werden. Bei Elementen mit hohem Z treten hingegen Abweichungen von dieser Gesetzmäßigkeit auf. Die Winkelverteilung für Au bei $E \lesssim 5 \text{ keV}$ zeigt einen stärkeren Anstieg als $\cos \zeta$ mit abnehmendem Winkel ζ , was durch die erhöhten Mottschen Streuquerschnitte für Streuwinkel in der Nähe von $\theta = 180^\circ$ erklärt werden kann (vgl. Abbildung 2.2). Bei anderen Einfallswinkeln ($\varphi_k \neq 0^\circ$) weist die Winkelverteilung ein reflexionsartiges Maximum auf, dessen Intensität mit zunehmenden Einfallswinkeln ansteigt. Messungen in azimuthaler Richtung zeigen, daß sich das Maximum in größere Azimuth-Winkel ausdehnt. Die Winkelverteilung der BSE für Einfallswinkel $\varphi_k \neq 0^\circ$ zeigt daher eine eher pfannenförmige als zigarrenförmige Charakteristik. Genauere Untersuchungen zur Winkelverteilung rückgestreuter Elektronen im Niederenergiebereich sind bei Spranck *et al.* (1995), Kässens (1995) und Kuhr (1998) zu finden.

2.3.3.2 Energieverteilung der BSE

Die Energieverteilung der Rückstreuelektronen liefert in erster Näherung Informationen über die inelastischen Streuprozesse der Elektronen mit der Probe. In der hochauflösenden Spektroskopie ($\delta E \lesssim 5 \text{ eV}$) rückgestreuter Elektronen, wie z. B. in der Auger-Elektronen-Spektroskopie (Chang, 1974; Chamberlain, 1982; Levenson, 1983), läßt sich eine Elementanalyse mit Elektronen alternativ zur Analyse mit Röntgenstrahlen in der EDX bzw. WDX durchführen. Aber auch die Spektroskopie von Rückstreuelektronen mit geringerer (relativer) Energieauflösung ($\delta E/E \approx 1 - 2\%$) kann schon wichtige Informationen über Materialzusammensetzung liefern und ermöglicht zudem auch Aussagen über die Tiefenzusammensetzung einer Probe. Die letztgenannte Eigenschaft wird in den Abschnitten 4.3.1 und 5.2.2 genauer untersucht. Darüber hinaus läßt sich die Energieverteilung der Rückstreuelektronen für die Berechnung der Signalausbeute von BSE-Detektoren mit einer Detektionseffizienz ($\propto E_{BSE} - E_{Schw}$) verwenden.

Zur Messung der Energieverteilung $d\eta/dE$ von BSE in der SEM werden üblicherweise die in Abschnitt 3.2 beschriebenen Elektronenspektrometertypen verwendet. Ist man an der Energieverteilung eines möglichst großen Raumwinkelbereichs ($\Omega \approx 2\pi$) interessiert, eignen sich besonders gut die Gegenfeld-Analysatoren (**R**etarding **F**ield **A**nalysier (RFA), vgl. Abschnitt 3.2).

Die so mit einer relativen Energieauflösung von $\delta E/E \approx 1-2\%$ gemessenen BSE-Spektren für 10–50 keV-Primärelektronen zeigen ein Maximum bei einer wahrscheinlichsten Energie $E_w < E_{PE}$, die mit zunehmendem Z anwächst.

Ablenkfeld-Spektrometer, wie sie in Abschnitt 3.2 vorgestellt werden, können mit einer größeren (absoluten) Energieauflösung arbeiten, besitzen aber einen kleineren Detektionswinkel. Somit eignen sie sich besonders für die Messung der winkelaufgelösten Energieverteilung $d^2\eta/(d(\Delta E) d\Omega)$. So erhaltene Rückstreu-Energiespektren (vgl. Abbildung 2.4) bestehen bei ausreichender Energieauflösung aus einem *Peak* der elastisch rückgestreuten Elektronen (ERE) mit $E_{ERE} = E_{PE}$ und dem oben erwähnten breiten Maximum mit einer wahrscheinlichsten Energie $E_w < E_{PE}$, das sich von der Primärenergie E_{PE} bis herunter zu sehr kleinen Energien erstreckt. Die wahrscheinlichste Energie E_w des breiten Maximums verschiebt sich mit abnehmender Ordnungszahl zu kleineren Energien, wobei die Halbwertsbreite zunimmt. Bei entsprechender Energieauflösung sind dem Verlauf des breiten Maximums direkt im Anschluß an die elastisch reflektierten Elektronen die Oberflächen- und Volumenplasmaverluste (PLE) überlagert. Zusammen mit den ERE bilden die PLE die Gruppe der *Low-loss*-Elektronen (LLE) mit einer Austrittstiefe, die etwa vergleichbar mit der SE-Austrittstiefe ist. Bei ausreichender Anregungsenergie sind dem Verlauf des breiten Maximums des weiteren die Energieverluste der entsprechenden Ionisationskanten (ILE) gefolgt von den Auger-Elektronen-*Peaks* (AE) überlagert. Den Abschluß bilden die Sekundärelektronen mit einer Energie von $0 < E_{SE} \leq 50$ eV und einem Maximum bei 2–5 eV. Die charakteristischen scharfen *Peaks* der ERE, PLE, ILE sowie AE lassen sich nur mit hochauflösenden Elektronenspektrometern ($\delta E \lesssim 5$ eV) energetisch auflösen. Häufig werden aber in der Literatur für die Messung der BSE-Energieverteilung Spektrometer mit einer relativen Energieauflösung von typischerweise $\delta E/E \approx 1-2\%$ verwendet. Bei der Untersuchung von Elektronen im Bereich einiger 10 keV ergeben sich daher absolute Energieauflösungen von einigen hundert eV, so daß die detaillierteren Strukturen in den Spektren verloren gehen. Was übrig bleibt, ist das elementspezifische breite Maximum.

Monte-Carlo Simulationen von BSE-Spektren bei niedrigen Energien sind bei Shimizu und Ichimura (1984) sowie Johnson und MacDonald (1989) zu finden. Messungen zur Energieverteilung bei niedrigen Energien wurden von Gressus *et al.* (1983) und Seiler (1985) durchgeführt. Wittig (1995) stellt Messungen zur Winkel- und Energieverteilung rückgestreuter Elektronen bei 20 keV Primärenergie vor.

Im Rahmen dieser Arbeit wurden Monte-Carlo Simulationen zu winkelaufgelösten BSE-Energiespektren für verschiedene Elemente bei Primärenergien von 1–10 keV durchgeführt. Die Ergebnisse dieser Rechnungen und der teilweise Vergleich mit gemessenen Spektren sind in Abschnitt 5.2.1 beschrieben.

2.4 Monte-Carlo Simulation

Die Monte-Carlo Methode hat sich in der Elektronenmikroskopie zur quantitativen Analyse und Interpretation elektronenmikroskopischer Ergebnisse als wichtiges Hilfsmittel etabliert. Darüber hinaus bietet sie die Möglichkeit, Informationen zu erhalten, die auf experimentellem Wege nicht oder nur mit sehr großem Aufwand zu messen sind. Weiterhin besitzt sie den Vorteil gegenüber anderen rechnerischen Verfahren, daß sich beliebige Probenstrukturen simulieren lassen. Die Monte-Carlo Methode eignet sich besonders für Problemstellungen im Vielfachstreu- bzw. Elektronen-Diffusionsbereich. Theoretisch lassen sich Probleme innerhalb dieser Streuregime auch über die Lösung der nichtlinearen Boltzmann-Transportgleichung behandeln (Ashcroft und Mermin, 1976; Thümmel, 1974). Die Lösung dieser Gleichung ist aber häufig für praktische Problemstellungen nicht oder nur unter stark einschränkenden Annahmen durchführbar.

Bei der Monte-Carlo Simulation in der Elektronenmikroskopie wird versucht, schrittweise die Bahn eines Elektrons im Festkörper zu beschreiben. Dazu werden physikalische Modelle für die elastische und unelastische Streuung (vgl. Kap. 2) in ein solches Programm implementiert. Entlang der Bahn eines Elektrons werden nach jedem Streueignis die Ortskoordinaten (x, y, z) , der Streuwinkel θ und Azimut χ sowie die kinetische Energie E des Elektrons berechnet. Da jedes einfallende Elektron hunderte bis tausende von Einzelstreueignissen durchläuft, bevor es abgebremst in der Probe verbleibt oder aber als transmittiertes oder rückgestreutes Elektron die Probe wieder verläßt, wird keine der simulierten Bahnen einer tatsächlichen Bahn im Experiment entsprechen. Ist jedoch das implementierte physikalische Modell gut gewählt, so lassen sich über die Statistik einer großen Anzahl simulierter Bahnen, üblicherweise $10^4 - 10^6$, repräsentative Aussagen über das Verhalten der Elektronen im Festkörper machen. Ausführliche Beschreibungen zur Implementierung der Monte-Carlo Methode in Computerprogramme sind bei Reimer und Stelter (1986), Reimer (1985), Joy (1991) und Senkel (1993) zu finden.

Im folgenden werden die Grundlagen der in dieser Arbeit verwendeten Monte-Carlo Simulationsprogramme genannt, um die Möglichkeiten, aber auch Grenzen, die sich daraus ergeben, abschätzen zu können.

Die Simulationen an Reinelementen in Abschnitt 5.2.1 zum Rückstreuoeffizienten und zur winkelabhängigen Energieverteilung rückgestreuter Elektronen wurden mit Hilfe eines für den Niederenergiebereich modifizierten Programms nach Senkel (1993) durchgeführt. Für alle Rechnungen an Multilayern (vgl. Abschnitt 5.2.1 und 5.2.2) wurde das Programmpaket MOCASIM von (Reimer *et al.*, 1996; Reimer, 1996a,b) verwendet. Während das Programm, auf der Basis von Senkel (1993) speziell auf die experimentellen Bedingungen des in Abschnitt 4.2.2 beschriebenen hemisphärischen Gegenfeld-Spektrometers zugeschnitten ist, ermöglicht das Programmpaket MOCASIM von Reimer die Simulation an einer beliebigen im PC erstellten, komplexen, mehrelementigen Objektstruktur. In beiden Programmen sind die folgenden theoretischen Streuansätze zugrunde gelegt:

- Für die **elastische Streuung** eines Elektrons an einem Atom werden die in Abschnitt 2.1.2 dargestellten Mottschen Streuquerschnitte verwendet. Diese resultieren aus relativistischen Partial-Wellen-Berechnungen zur Lösung der Pauli-Dirac-Gleichung mittels eines Programms von Salvat und Mayol (1993). Die Streuquerschnitte liegen für Energien von 0.1–50 keV und Streuwinkel von $10^\circ \leq \theta \leq 180^\circ$ in Winkelschritten von 10° für alle Elemente tabelliert vor und werden beim Start einer Simulation für die fraglichen Elemente geladen. Da die Charakteristika der Mott-Streuung für kleine Winkel ($\theta < 10^\circ$) vernachlässigbar sind, können die Wirkungsquerschnitte für die Kleinwinkelstreuung auch mit einfacheren Modellen, wie der WKB-Methode berechnet werden. Der überwiegende Teil der elastischen Streuprozesse ist auf kleine Winkel $< 10^\circ$ beschränkt. Um die Rechenzeit auf ein akzeptables Maß zu reduzieren, werden daher in den verwendeten Programmen nur Streuprozesse in Winkel $\geq 10^\circ$ individuell berechnet. Die elastische Kleinwinkelstreuung hingegen wird durch den Vielfachstreuansatz von Lewis (1950) berücksichtigt (vgl. auch Abschnitt 2.1).
- Für die **unelastische Streuung** wird die CSDA nach Bethe (vgl. Abschnitt 2.2.3) verwendet, die durch die Rao-Sahib und Wittry-Näherung auf den Niederenergie-Bereich erweitert wurde. Obwohl die CSDA nur einen mittleren Energieverlust berücksichtigt, lassen sich dennoch Aussagen über charakteristische Tendenzen in der Energieverteilung von Rückstreuelektronen gewinnen.

Abhängig von der jeweiligen Problemstellung werden in der Elektronenmikroskopie häufig unterschiedliche Ansätze für die Beschreibung der elastischen und unelastischen Streuung verwendet, was im Einzelfall zu einer erheblichen Reduzierung der Rechenzeit führt. Interessiert man sich beispielsweise nur für integrale Größen wie den Rückstreukoeffizienten (leichter Elemente) bei hohen Primärenergien ($E \gtrsim 10$ keV), so genügt es in der Regel, die einfacheren abgeschirmten Rutherfordischen Wirkungsquerschnitte zur Beschreibung der Winkelablenkung und die in Abschnitt 2.2.3 dargestellte CSDA von Bethe für den mittleren Energieverlust eines Elektrons im Festkörper zu verwenden, um brauchbare Ergebnisse zu erzielen. Wie Reimer und Sommer (1968) zeigten, eignen sich diese Näherungen für eine Vielzahl von Problemen aus der konventionellen Rasterelektronenmikroskopie. Ist man an Simulationsrechnungen für Elemente mit hoher Ordnungszahl und/oder niedrigen Energien ($E \lesssim 5$ keV) interessiert, so wird die Verwendung der elastischen Mott-Streuquerschnitte unerlässlich. Als Beispiel dafür zeigte Senkel (1993), daß die abnehmende Tendenz des Rückstreukoeffizienten η für Gold bei $E \lesssim 5$ keV mit Hilfe der Mottschen Wirkungsquerschnitte richtig beschrieben wird, sich aber bei Verwendung der Rutherfordischen Wirkungsquerschnitte ein falscher, ansteigender Verlauf zeigt. Ist man darüber hinaus noch an detaillierteren Informationen über die Energieverteilung gestreuter Elektronen interessiert, so ist auch die CSDA als Modell nicht mehr ausreichend. Die CSDA berücksichtigt nur einen mittleren Energieverlust. Bei Simulationen von Energiespektren können mit dieser Näherung keine Cha-

rakteristika wie etwa Plasmaverluste oder Ionisationskantenverluste in den Spektren erscheinen. Um derartige Verluste und Effekte wie das *Straggling*, d. h. die statistische Verteilung der Elektronenenergien um den mittleren Wert E_m richtig zu berechnen, ist die genaue Kenntnis des doppelt-differentiellen Streuquerschnitts bzw. der *Single-Scattering-Function* (SSF) des betreffenden Elements nötig. Die SSF stellt den normierten differentiellen Streuquerschnitt dar und beschreibt somit alle inelastischen Streuprozesse mit entsprechender Gewichtung in geschlossener Form. Sie entspricht im Prinzip dem Energieverlustspektrum einer Schicht der Dicke einer Atomlage. Reimer und Senkel (1995) demonstrierten die Möglichkeiten dieser Methode, indem sie für Al eine SSF modellierten und für die Simulation von BSE-Energiespektren verwendeten. Bei der Betrachtung leichter Elemente läßt sich danach der totale inelastische Streuquerschnitt aus den Anteilen für die Plasma- und Comptonstreuung mittels der dielektrischen Theorie und die Anteile aus der Ionisation innerer Schalen über analytische Formeln für die K-Schale (Bethe, 1930; Madison und Merzbacher, 1975), die L-Schale (Choi *et al.*, 1973) und die M-Schale (Choi, 1973) zusammensetzen. Die SSF ist für einen großen Energiebereich weitgehend unabhängig von der Primärenergie, kann aber für Elemente mit höherem Z nicht mehr ohne weiteres nach dem oben beschriebenen Verfahren zusammengesetzt werden. Kuhr (1998) löste dieses Problem für die Übergangselemente Cu, Ag und Au, indem er die Verlustfunktion der Rumpfniveaus aus optischen Daten für eine Modellierung heranzog. Im allgemeinen muß versucht werden, die SSF aus experimentell bestimmten Elektronen-Energieverlustspektren dünner Schichten mit bekannter Dicke bei möglichst geringem Rauschanteil und guter Energieauflösung zu erhalten. Dazu müssen die gemessenen Spektren durch Entfaltung von Oberflächenplasmonen und sonstiger Artefakte auf die Schichtdicke einer Atomlage reduziert werden (Egerton, 1996).

Kapitel 3

Energiefilterung von Elektronen

3.1 Einführung

Die Energieanalyse gestreuter Elektronen liefert wichtige Informationen über die elektronische sowie die atomare oder molekulare Struktur einer Probe. Darüber hinaus läßt sich die Abbildung mit Elektronen eines ausgewählten Energiefensters zur Kontraststeigerung bzw. -Anpassung sowie zur Tiefenselektion einsetzen. Für eine Energieanalyse von Elektronen können verschiedene physikalische Prinzipien ausgenutzt werden. Geordnet nach wachsender Bedeutung für die Elektronenmikroskopie sind dies:

- **Flugzeitanalyse:** Die Messung der Flugzeit t_s , die ein kurzer Elektronenpuls benötigt, um eine feldfreie Driftstrecke s zu durchlaufen.
- **Resonante Anregung (Schwellenspektroskopie):** Durch Variation der Landeenergie der einfallenden Elektronen ändert sich die Anregungswahrscheinlichkeit und damit die Energieverteilung der austretenden Elektronen.
- **Energiedispersiver Nachweis mittels Halbleiterdetektoren:** In einem halbleitenden Material werden proportional zur Energie der einfallenden Elektronen Elektron/Loch-Paare erzeugt.
- **Hochpaßfilterung:** Durch die Verwendung eines elektrostatischen Gegenfeldes werden nur die Elektronen detektiert, deren Energie ausreicht, um diese Potentialbarriere zu überwinden.
- **Bandpaßfilterung:** Dabei wird die energieabhängige Ablenkung der Elektronen in einem elektrostatischen oder magnetischen Feld bzw. in einer Kombination aus beiden Feldern („Wien-Filter“) ausgenutzt.

Die drei ersten Analysemethoden finden in der Elektronenmikroskopie nur selten Verwendung. Bei der Flugzeitanalyse liegt der Grund darin, daß der Elektronenstrahl gepulst werden muß und die Energieauflösung mit wachsender Energie rasch

abnimmt. Des weiteren wird eine schnelle Elektronik benötigt, so daß dieses Verfahren nur für kleine Elektronenenergien in der Größenordnung $E < 40$ eV geeignet ist (Merz, 1990). Im Bereich der Rasterelektronenmikroskopie ist dieses Verfahren daher ausschließlich für die Sekundärelektronen-Spektroskopie interessant.

Die Schwellenspektroskopie von Elektronen ist ein sehr oberflächensensitives Verfahren (Kirschner, 1983). Daher ist diese Analysemethode nur unter UHV-Bedingungen sinnvoll bzw. bei Anwendung anderer Techniken zur Unterdrückung der Kontamination.

Der Einsatz von Halbleiterdetektoren für den energiedispersiven Nachweis von Elektronen erfordert Mindestenergien von einigen keV. Weiterhin besitzt dieses Verfahren eine relativ schlechte Energieauflösung ($\delta E \approx 110 - 150$ eV). Zusätzlich sind Maßnahmen zur Unterdrückung der Röntgenstrahlung nötig.

Für Anwendungen in der Elektronenmikroskopie sind die beiden letztgenannten physikalischen Prinzipien am interessantesten. Die Hochpaßfilterung wird häufig angewendet, wenn eine Detektion großer Raumwinkelbereiche gefordert wird und eine Abbildung mit elastisch gestreuten Elektronen im Vordergrund steht.

In der heutigen energiefilternden TEM mit Primärenergien von 80–1200 keV wird eine Energieselektion ausschließlich über die Dispersion in magnetischen Sektorfeldern realisiert (Rose und Krah, 1994). Der Einsatz von elektrostatischen Elektronen-Spektrometern in diesem Energiebereich wird aufgrund der geforderten Überschlagsfestigkeit erschwert (Gleichauf, 1951). In der Rasterelektronenmikroskopie sowie der Oberflächenphysik werden deutlich geringere Primärenergien verwendet. Hinzu kommt in der Oberflächenphysik die Forderung nach der UHV-Tauglichkeit der verwendeten Spektrometer. Das Ausgasen der Isolations-Schichten, der für magnetische Sektorfelder nötigen Spulenwicklungen erschwert dort den Einsatz derartiger Felder. In der TEM läßt sich dieses Problem vermeiden, da die Magnetspulen außerhalb des Vakuumsystems angebracht werden können. Daher werden sowohl in der SEM als auch in der Oberflächenphysik vorwiegend elektrostatische Spektrometer eingesetzt. Im allgemeinen stellt die Bandpaßfilterung von Elektronen durch die Ablenkung in einem elektrostatischen und/oder magnetischen Feld die geeignetste und am vielseitigsten einsetzbare Methode dar.

3.2 Elektrostatische Elektronen-Spektrometer

Ein Überblick über die am häufigsten in der Oberflächenphysik verwendeten elektrostatischen Elektronen-Spektrometer wird in den Beiträgen von Steckelmacher (1973), Sevier (1972), Roy und Carette (1977) und Leckey (1987) gegeben. Wichtige Grundlagen für die Konstruktion von Elektronen-Spektrometern finden sich bei Ibach (1991) sowie Brunt *et al.* (1977). Im allgemeinen setzen sich Elektronen-Spektrometer für die Analytik von Oberflächen aus den folgenden drei Komponenten zusammen:

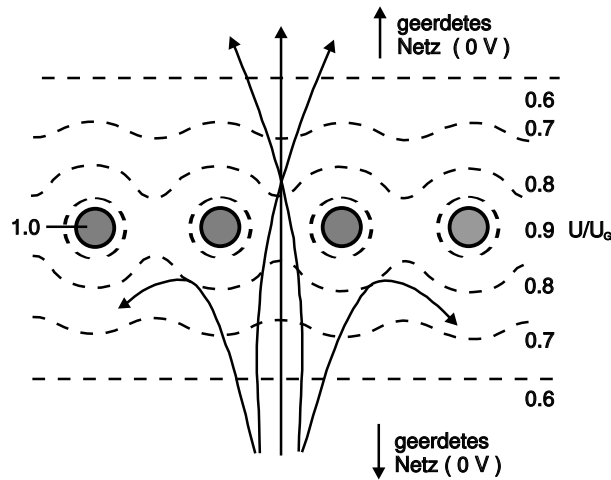


Abb. 3.1: Äquipotentiallinien ($\Phi_p = konst$) eines Gegenfeld-Netzes zwischen zwei geerdeten Netzen. Eingezeichnet sind außerdem typische Elektronenbahnen; nur die Elektronen, die eine ausreichende Energie besitzen, um den Potentialdurchgang in der Mitte der Netzmaschen zu überwinden, können das Netz passieren (Reimer, 1985).

1. der **Elektronen-Transportoptik**,
2. dem **Energieanalysator** und
3. dem **Detektorsystem**.

Dabei wird die vorgeschaltete Elektronen-Transportoptik in der Regel nur dann benötigt, wenn zu geringe Signalintensitäten die dominante Rolle spielen oder die Gewährleistung identischer Abbildungsbedingungen im Vordergrund steht. Für alle in dieser Arbeit durchgeführten spektroskopischen Untersuchungen konnte auf eine derartige separate Transportoptik verzichtet werden. Der wichtigste Teil eines Elektronen-Spektrometers wird durch den Energieanalysator gebildet. Die Vielzahl an gebräuchlichen Analysatoren läßt sich im wesentlichen auf die folgenden drei Grundtypen reduzieren:

Gegenfeld-Analysator: Bei diesem Typ erfolgt der Eintritt der Elektronen vorwiegend senkrecht zu den Äquipotentiallinien ($\Phi_p = konst$) im Analysator. Das notwendige Potential zur Erzeugung eines Gegenfeldes wird häufig durch metallische Netze in definierte Raumregionen des Analysators gebracht. Abbildung 3.1 zeigt typische Bahnverläufe von Elektronen, die auf ein solches Netz zulaufen. Da die Kraftwirkung im elektrostatischen Feld mit $\vec{F}(\vec{r}) \propto \vec{\nabla} \Phi(\vec{r})$ senkrecht zu den Äquipotentiallinien ausgerichtet ist, wird eine Energieseparation durch eine direkte Abbremsung erreicht. Häufig wird ein Aufbau vom LEED-Typ (**L**ow **E**nergy **E**lectron **D**iffraction) verwendet, wie er in Abschnitt 4.2.2 durch das hemisphärische Gegenfeld-Spektrometer repräsentiert wird. Die Besonderheit der in dieser

Arbeit verwendeten Anordnung ist die Möglichkeit, winkelselektive Strommessungen durchführen zu können. Mit den Eigenschaften von LEED-Systemen beschäftigen sich Skinner und Willis (1972) und Cross (1973). Ein Vorteil, der Gegenfeld-Analysatoren auszeichnet, ist eine große Detektionseffizienz aufgrund einer großen Raumwinkelerfassung. Nach Roy und Carette (1977) können durch Anordnungen mit einem Gegenfeld-Netz relative Energieauflösungen in der Größenordnung von 3 % erreicht werden. Durch die Verwendung eines Gegenfeld-Doppelnetzes läßt sich dieser Wert um ca. einen Faktor zehn verbessern. Jedoch ist es bei einer Energieanalyse mittels Gegenfeldfilter nötig, die erhaltene Gegenspannungskurve zu differenzieren. Dies kann entweder während der Messung durch das Arbeiten mit *Lock-in*-Technik oder durch eine nachträgliche numerische Differentiation erfolgen. Im Bereich kleiner und mittlerer Energieverluste liefert ein solches System gute Ergebnisse. Bei hohen Energieverlusten treten in der Regel Störungen in den Spektren auf, die auf an den Netzen gestreute Elektronen und dort erzeugte Sekundärelektronen zurückzuführen sind. Darüber hinaus tragen die Netze im Strahlengang zu einer deutlichen Reduzierung der Transmission des Analysators bei. Genügt eine geringere Raumwinkelerfassung bei der Detektion, so können die negativen Einflüsse der Netze durch Verwendung einer Gegenfeld-Filterlinse überwunden werden. Eine solche Filterlinse besteht im einfachsten Fall aus einem auf einem negativen Potential liegenden Metall-Ring oder Metall-Zylinder, der von einer geerdeten Ein- und Austrittsblende umgeben ist. Eine solche Gegenfeld-Filterlinse ist in Abschnitt 4.2.1 gezeigt und wurde für die *Zero-loss* gefilterte Abbildung mit transmittierten Elektronen verwendet. Ein derartiger elektronenoptischer Aufbau wirkt als elektrostatische Einzellinse und kann auch zur Fokussierung von Elektronen herangezogen werden. Möllenstedt und Rang (1951) sowie Heinemann und Möllenstedt (1967) verwenden eine solche Linse als Geschwindigkeitsanalysator für achsenparallel einlaufende Elektronen in einem definierten Abstand von der optischen Achse. Brack (1962) benutzt eine speziell geformte Gegenfeld-Filterlinse mit weiten Ein- und Austrittsöffnungen. Die Elektrodenform zusammen mit einem achsenparallelen Magnetfeld verhindern eine Streuung der Elektronen in der Filterlinse.

Ablenkfeld-Analysator: Die Ablenkfeld-Analysatoren zusammen mit den im folgenden Abschnitt genannten „Spiegel“-Analysatoren bieten aufgrund der Bandpaßfilterung die vielfältigsten Möglichkeiten für eine Energieanalyse. Sie werden auch häufig als Sektorfeld-Analysatoren bezeichnet. Charakteristikum der Ablenkfeld-Analysatoren ist, daß der Eintritt der Elektronen im wesentlichen tangential zu den Äquipotentiallinien des Spektrometers erfolgt. Die Energieseparation ergibt sich daher durch eine energieabhängige Ablenkung im Feld zwischen zwei auf unterschiedlichem Potential liegenden Elektroden. Die am häufigsten verwendete Klasse bilden die fokussierenden Anordnungen. Abbildung 3.2 zeigt die Ablenkung und Fokussierung am Beispiel eines toroidalen, elektrostatischen Sektorfeldes. Man spricht von einfach fokussierenden Anordnungen, wenn der Quellfleck durch den Analysator auf einen Strich abgebildet wird. Findet eine Abbildung auf einen Punkt statt,

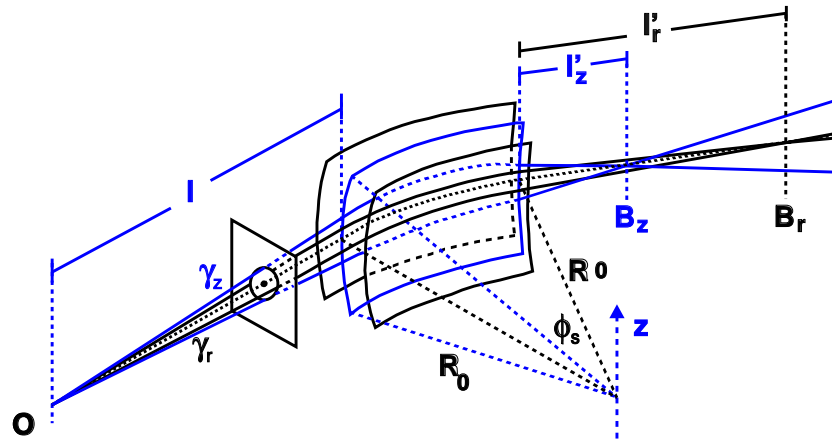


Abb. 3.2: Ablenkung und Fokussierung durch ein toroidales, elektrostatisches Sektorfeld (nach Roy und Tremblay (1990)).

wird von Doppelfokussierung gesprochen. Bei idealer Fokussierung wäre die „Bild-Fleckgröße“ unabhängig von den Eintrittswinkeln γ_r in der Ablenkebene und γ_z in der dazu senkrechten Ebene. Reale Analysatoren zeigen jedoch Abweichungen von der idealen Fokussierung. In der Gleichung zur Beschreibung der „Bild-Fleckgröße“ erscheinen daher Aberrations-Terme, in denen diese Winkel enthalten sind. Man spricht von Fokussierung n -ter Ordnung bzgl. des Winkels γ_r oder γ_z , wenn die niedrigste Potenz des jeweiligen Winkels in dieser Gleichung $n + 1$ ist. Eine wichtige Gruppe von abbildenden Ablenkfeld-Analysatoren nutzen toroidale Sektorfelder zur Energieseparation. In Abbildung 3.3 ist die Elektrodenform eines allgemeinen elektrostatischen Torusses abgebildet.

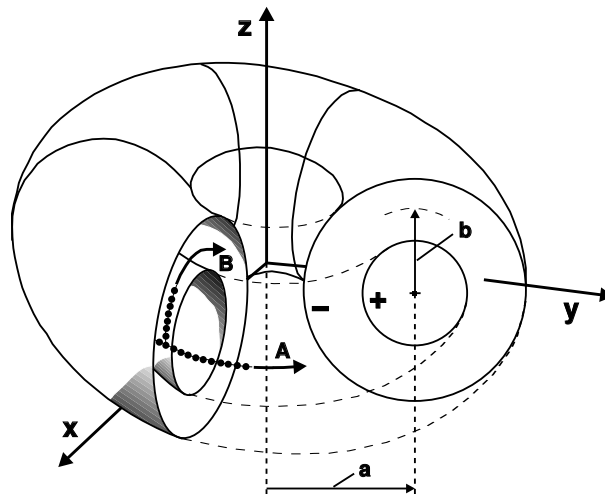


Abb. 3.3: Darstellung von äquatorialen (A) und polaren (B) Elektronenbahnen in einem allgemeinen toroidalen, elektrostatischen Feld (nach Leckey (1987)).

Man unterscheidet zwei Hauptklassen von toroidalen Analysatoren. Die eine Klasse verwendet äquatoriale (oder radiale) Bahnen (A), die andere polare (oder axiale) Bahnen (B). Die Größe a bezeichnet dabei den Zylinderradius und b den sphärischen Radius des Torusses. Die beiden häufig verwendeten Zylinder und sphärischen Sektorfeld-Analysatoren ergeben sich danach als Spezialfälle aus dem äquatorialen Typ eines toroidalen Sektorfeldes. Nach Einführung der Größe $c = a/b$ ergibt sich für einen Zylinderfeld-Analysator $c = 0$ mit einer Fokussierung 1. Ordnung in γ_r bei einem Sektorwinkel von 127.3° . Für einen sphärischen Sektorfeld-Analysator ist $c = a/b = \infty$. Die ideale Abbildungsbedingung, hier Fokussierung 1. Ordnung in γ_r und vollkommen in γ_z (Doppelfokussierung), ist bei einem Sektorwinkel von 180° gegeben. Diese beiden Sektorfeld-Typen lassen sich hinsichtlich der Feldverteilung und der daraus ableitbaren Größen noch analytisch exakt berechnen (Roy und Carette, 1971). Für die Klasse der toroidalen Sektorfelder mit polaren Bahnen ist dies nicht mehr der Fall. Die Eigenschaften dieser Typen müssen in der Regel numerisch bestimmt werden. Kommerzielle Simulationsprogramme zur Berechnung der Eigenschaften von Elektronenoptiken sind beispielsweise CPO und SIMION. (Internet-Adressen: CPO: <http://cpo.ph.man.ac.uk>; SIMION: <http://www.sisweb.com/simion.htm>)

„Spiegel“-Analysator: Charakteristisch für diese Typen ist, daß die zu analysierenden Elektronen schräg zu den Äquipotentiallinien zweier Ablenkelektroden des Analysators eintreffen. Die am häufigsten verwendeten Analysatoren dieses Typs sind der Parallelplatten-Spiegel- sowie der Zylinder-Spiegel-Analysator. Dabei läßt sich der erste technisch relativ leicht realisieren. Der zweite ist aufwendiger in der Konstruktion, aber durch seine zahlreichen Vorteile für viele Bereiche interessanter. So besitzt dieser aus zwei coaxialen Zylindern aufgebaute Analysator bei einem Einschubwinkel von 42.3° oder 38.8° eine Doppelfokussierung 2. Ordnung. Zusammen mit der 360° -Symmetrie ermöglicht der Zylinder-Spiegel-Analysator eine hohe Transmission bei hoher Energieauflösung. Aus diesen Gründen wird dieser Aufbau häufig in der *Auger*-Spektroskopie eingesetzt.

3.2.1 Parameter von Elektronen-Spektrometern

Um die Eigenschaften verschiedener Spektrometer zu beschreiben und miteinander vergleichen zu können, wurde eine Vielzahl von Größen definiert, die zudem Aussagen über die Qualität eines Spektrometers erlauben. Hier sollen nur die wichtigsten genannt werden. Es sind dies die

$$\text{Spektrometer-Transmission: } T_s = \frac{\text{Anz. austretender } e^-}{\text{Anz. eintretender } e^-}, \text{ die} \quad (3.1)$$

$$\text{absolute Energieauflösung: } \delta E \quad \text{bzw. die} \quad (3.2)$$

$$\text{absolute Basis-Energieauflösung: } \delta E_b \quad . \quad (3.3)$$

δE gibt dabei die Halbwertsbreite der Transmissionsfunktion des Spektrometers eines monoenergetischen Elektronenstrahls an und δE_b die Breite der Funktion an der Basis. δE_b läßt sich aus theoretischen Betrachtungen einfacher bestimmen, δE wird aber in der Regel als Vergleichsgröße verwendet. Nach Roy und Carette (1977) läßt sich für die meisten Spektrometer δE aus der Beziehung

$$\delta E \approx 1/2 \delta E_b \quad (3.4)$$

erhalten. Die jeweiligen relativen Größen ergeben sich durch die Division mit der Sollbahn-Energie E_{soll} .

$$\text{Relative Energieauflösung:} \quad \delta E_r = \delta E / E_{soll} \quad , \quad (3.5)$$

$$\text{relative Basis-Energieauflösung:} \quad \delta E_{rb} = \delta E_b / E_{soll} \quad . \quad (3.6)$$

Entscheidenden Einfluß auf die Energieauflösung eines Spektrometers nehmen die Spaltbreiten der Ein- (s_1) und Austrittsblende (s_2), die Winkeldivergenz (γ_r, γ_z) des eintretenden Elektronenstrahls und der Sollbahn-Radius (R_0). Für eine möglichst kleine Energiebreite sollten die Spaltbreiten sowie die Winkeldivergenz möglichst klein und der Sollbahn-Radius möglichst groß gewählt werden. Für den Bau von Spektrometern bedeutet dies, daß man einen Kompromiß zwischen hoher Elektronenintensität, Energieauflösung und Baugröße finden muß.

Speziell für Ablenkfeld-Spektrometer ist häufig eine weitere Größe von Interesse, die

$$\text{Spektrometer-Konstante:} \quad k = E_{soll} / e \Delta V \quad . \quad (3.7)$$

Sie gibt den Faktor an, um den die Sollbahn-Energie in eV größer ist als die dazugehörige Spannung ΔV zwischen beiden Ablenkelektroden. Die Spektrometer-Konstante wird auch häufig in der Literatur mit $c=1/k$ bezeichnet. Sie ist eine spektrometerspezifische, baugrößenabhängige Konstante. Experimentell läßt sie sich durch die Messung der Transmissionsfunktion des Primärelektronenstrahls bei bekannter Sollbahn-Energie bestimmen.

Die hier genannten Größen zur Beschreibung der Eigenschaften von Elektronen-Spektrometern stellen nur eine für diese Arbeit interessante Auswahl dar. Für den Vergleich von Spektrometern können darüber hinaus eine Vielzahl an Gütemaßen (*figures of merit*) herangezogen werden.

3.2.2 Optimierung des Betriebs von Spektrometern

Je nach Anwendungsgebiet oder Anspruch an die Energieauflösung können die Spektrometer-Systeme in den folgenden Betriebsarten für die Aufnahme von Energiespektren oder energiegefilterten Bildern betrieben werden:

- **Spektrometerbetrieb:** Dieser ist der einfachste zu realisierende Betriebsmodus. Dabei wird mit einer konstanten relativen Energieauflösung $\delta E/E_{soll} = konst$ gearbeitet. Die Elektronen gelangen mit ihrer ursprünglichen Energie bzw. mit einer durch eine konstante Vorverzögerung reduzierten Energie in das Spektrometer. Die Aufnahme eines Spektrums erfolgt durch das Durchfahren der Spektrometerspannung ΔV zwischen den beiden Ablenkelektroden, also durch eine Variation der Sollbahn-Energie E_{soll} des Spektrometers.
- **Monochromatorbetrieb:** Dieser Betriebsmodus zeichnet sich dadurch aus, daß mit einer konstanten absoluten Energieauflösung $\delta E = konst E_{soll}$ gearbeitet wird. Dies bedeutet, daß die Sollbahn-Energie der Elektronen und damit auch die Spannung zwischen den beiden Ablenkelektroden während einer Spektrenaufnahme konstant bleiben muß. Über den Betrag der festen Sollbahn-Energie läßt sich der gewünschte Wert der absoluten Energieauflösung δE des Spektrometers einstellen. Realisieren läßt sich diese Forderung über zwei verschiedene Monochromatorbetriebs-Modi.

Monochromatorbetrieb-Typ I: Bei dieser Betriebsart wird das Durchfahren eines Spektrums dadurch erreicht, daß die zu analysierenden Elektronen mit Hilfe eines Gegenpotentials variabel abgebremst werden, um ihre Energie der festeingestellten Sollbahn-Energie E_{soll} des Spektrometers anzupassen.

Monochromatorbetrieb-Typ II: Bei diesem Monochromatormodus werden die Potentialverhältnisse zwischen Objekt und Spektrometer konstant gehalten. Eine Energieanalyse erfolgt bei dieser Betriebsart durch eine kontinuierliche Variation der Primärenergie E_{PE} . Da der Betrag der Energieverluste konstant und damit unabhängig von der Primärenergie ist, verhält sich die verbleibende Restenergie ($E_{PE} - \Delta E$) der in das Spektrometer eintretenden Elektronen proportional zu E_{PE} .

Der Spektrometerbetrieb hat den Vorteil, daß das gesamte Spektrum mit konstanter Transmission von dem Objekt in das Spektrometer gelangt und die nötigen Potentiale einfach zu handhaben sind. Nachteil dieser Betriebsart ist jedoch die Energieabhängigkeit ($\delta E \propto E_{soll}$) des aufgenommenen Spektrums. Für quantitative Untersuchungen ist daher eine rechnerische Korrektur erforderlich.

Der Monochromatorbetrieb wird immer dann bevorzugt, wenn eine hohe und konstante Energieauflösung gewünscht wird sowie quantitative Messungen erfolgen sollen. Der Monochromatorbetriebsmodus I eignet sich besser für eine quantitative Analyse, da während der Aufnahme eines Spektrums aufgrund der konstanten Primärenergie gleiche Streubedingungen herrschen. Im Einzelfall muß jedoch bei diesem Verfahren entschieden werden, ob eine Elektronen-Transportoptik zur Gewährleistung identischer Analysebedingungen erforderlich ist.

Mit dem Monochromatorbetriebsmodus II ist durch die Abhängigkeit der differentiellen Wirkungsquerschnitte von der Primärenergie eine quantitative Analyse nur eingeschränkt möglich. In der energiefilternden TEM wird dieser Betriebsmodus

in der Regel bevorzugt eingesetzt, da in diesem Fall die optimale Justage des Mikroskops während der Aufnahme eines Energieverlust-Spektrums nicht verändert zu werden braucht. Da in der TEM große Primärenergien von 80 – 1200 keV verwendet werden, die interessierenden Energieverluste aber in einem dazu vergleichsweise geringen Energiebereich von $0 \leq \Delta E \leq 2500$ eV liegen, ist die Erniedrigung der Wirkungsquerschnitte bei einer um ΔE erhöhten Primärenergie vernachlässigbar. Ist durch die Energiebreite der einfallenden Elektronen keine Auflösungsbegrenzung vorgegeben, wird die Grenze der erreichbaren Energieauflösung durch Raumladungseffekte, Restmagnetfelder, Inhomogenitäten der Oberflächenpotentiale sowie Intensitätsprobleme bestimmt. Nachteile bei der Verwendung des Monochromatorbetriebs sind, daß zusätzliche Potentiale für die Abbremsung der Elektronen benötigt werden (Monochromatorbetrieb-Typ I) bzw. ein erheblicher Eingriff in die Kathoden-Spannungsversorgung vorgenommen werden muß (Monochromatorbetrieb-Typ II).

Elektronen-Transportoptik: Spielen Signalintensitätsprobleme bzw. die Forderung nach identischen Abbildungsbedingungen bei analytischen Untersuchungen die dominierende Rolle, so werden Elektronen-Transportoptiken benötigt, die die Signalelektronen aus einem objektnahen Bereich in die Spektrometereintrittsöffnung abbilden. Am häufigsten Verwendung finden die elektrostatischen 3-Element-Linsen mit drei frei wählbaren Potentialen (Harting und Read, 1976). Durch eine definierte Wahl der Potentialverhältnisse V_2/V_1 und V_3/V_1 ist es möglich, die Signalenergie bei konstanter Objekt- und Bildposition selektiv zu scannen. Dabei ändert sich jedoch die Vergrößerung des abbildenden Linsensystems. Aus diesem Grund wird eine solche Linse analog zur Licht-Optik als *Zoom*-Linse bezeichnet. Ist man daran interessiert, neben der Objekt- und Bildposition auch die Vergrößerung konstant zu halten, wird aufgrund des zusätzlichen Freiheitsgrades anstelle einer 3-Element- eine 4-Element-Linse benötigt (Kurepa *et al.*, 1974; Martinez und Sancho, 1983). Darüber hinaus ist es mit 3-Element-*Zoom*-Linsen im allgemeinen nicht möglich, Beschleunigungsverhältnisse größer als 10 und Abbremsverhältnisse kleiner als 0.1 zu erreichen. Soll ein größerer Energiebereich abgedeckt werden, so sind Kombinationen aus 2- oder 3-Element-Linsen erforderlich. Kurepa (1987) stellt zusammenfassend die letzten Entwicklungen von elektrostatischen Multi-Element-Linsen vor.

Randfeldproblem: Die Störung der Potentialverteilung in der Region der Aperturblenden und an den Enden der Elektroden führt zu Abweichungen der Eigenschaften eines realen im Vergleich zu denen eines idealen Analysators. Bei der Verwendung von Zylinder-Spiegel- bzw. Parallelplatten-Spektrometern, bei denen die zu analysierenden Elektronen durch eine Äquipotentialfläche ein- und austreten, kann der Störeinfluß minimiert werden, indem Netze über die Blendenöffnungen gespannt werden. Im Fall von reinen Ablenkfeld-Spektrometern ist die Lösung des Problems jedoch schwieriger. Da die Ein- und Austrittsblenden Hauptbahnpotentialflächen darstellen, die senkrecht zu den idealen Äquipotentiallinien verlaufen, wird der ideale Feldverlauf gestört. Dies führt dazu, daß die ideale Fokussierungsbedingung 1. Ord-

nung nach einem Ablenkwinkel von 127.3° beim Zylinder-Ablenkfeld-Spektrometer bzw. 2. Ordnung nach einem Ablenkwinkel von 180° beim sphärischen Ablenkfeld-Spektrometer nicht mehr exakt erfüllt ist. Nach Herzog (1935, 1940) läßt sich das Problem durch eine Verringerung des Elektrodenwinkels und Einführung eines definierten Winkelabstandes zwischen Ablenkelektroden und Ein- bzw. Austrittsblenden beheben (Herzog-Korrektur). Der definierte Wert für diese Erniedrigung des Ablenk winkels ist eine Funktion der Blendengröße und des Elektrodenabstandes (Roy und Carette, 1977). Jost (1979a) erreicht eine Korrektur des Randfeldes durch eine Modifizierung der Elektroden an beiden Enden des Ablenkfeld-Analysators. Dadurch, daß bei seiner Konstruktion die Ablenkelektrodenpotentiale bis weit ins Innere des Analysators hineingezogen werden, erreicht er eine Korrektur des Randfeldes ohne den idealen Ablenkwinkel des Spektrometers zu verändern. Diese Randfeldkorrektur ist bei dem in Kapitel 4.3.2 vorgestellten Jostschen „sphärischen“ Ablenkfeld-Spektrometer realisiert.

Elektrostatische Abschirmung: Bei der Konstruktion von Elektronen-Spektrometern werden häufig metallische Flächen zur elektrostatischen Abschirmung verwendet. Diese werden eingesetzt, um ein definiertes Potential in bestimmten Raumbereichen zu erhalten und um kritische Bereiche, die Aufladungen hervorrufen können, abzuschirmen. Als Faustregel für die Konstruktion von elektronenoptischen Komponenten sollte beachtet werden, daß die Elektronen auf ihrer Bahn keine Isolatoren „sehen“. Für den Bau der einzelnen Komponenten eines Elektronen-Spektrometers sind nichtmagnetische Metalle wie z. B. nichtmagn. rostfreier Stahl, Molybdän, Titan, Aluminium, Kupfer (mit niedrigem Nickel-Anteil) bzw. Kupfer-Beryllium-Legierungen erforderlich.

Unterdrückung/Vermeidung von „Geister“-*Peaks*: Ein allgemeines Problem von Elektronen-Spektrometern ist, daß die damit aufgezeichneten Energiespektren sogenannte „Geister“-*Peaks* aufweisen können. Diese probenunspezifischen Charakteristika können auf reflektierte Elektronen innerhalb des Spektrometers zurückgeführt werden. Bei Ablenkfeld-Spektrometern entstehen derartige Störeinflüsse größtenteils durch reflektierte Elektronen an der inneren und äußeren Ablenkelektrode. Möglichkeiten zur Unterdrückung dieser Störsignale sind:

- die Verwendung von netzförmigen Ablenk- anstelle von massiven Elektroden (Marmet und Kerwin, 1960),
- die Beschichtung von massiven Elektroden mit einer dünnen, gleichmäßigen Schicht aus kolloidalem Graphit; dadurch wird zusätzlich eine homogene Oberflächenpotentialverteilung erzielt,
- die Verwendung einer sägezahn-förmigen Ablenk-Elektrodenoberfläche (Froitzheim *et al.*, 1975),

- die Verwendung eines nachgeschalteten zweiten Analysators,
- die Verwendung eines homogenen Magnetfeldes parallel zur optischen Achse.

Maximal mögliches Rest-Magnetfeld: Nach der Spektrometer-Gleichung $\delta E = \text{konst } E_{\text{soll}}$ läßt sich im Monochromatorbetrieb die absolute Energieauflösung eines Spektrometers durch eine kleinere Sollbahn-Energie erhöhen. Einer beliebigen Verringerung der Sollbahn-Energie sind jedoch durch vorhandene Restmagnetfelder Grenzen gesetzt, die den optimalen Strahlverlauf innerhalb des Spektrometers mit abnehmender Energie zunehmend stören. Als Abschätzung für die maximal zulässige Stärke eines magnetischen Streufeldes für den Betrieb von Ablenkfeld-Spektrometern geben Roy und Carette (1977) die folgende Gleichung an:

$$B_{\text{max}} \leq 6.74 E_{\text{soll}}^{1/2} d / l_s^2 . \quad (3.8)$$

Dabei ergibt sich die Magnetfeldstärke B_{max} in Gauss bei Verwendung der Sollbahn-Energie E_{soll} in eV sowie der maximal erlaubten Strahlabweichung d und der Weglänge l_s in cm. Sollte das Magnetfeld, bezogen auf die verwendete Sollbahn-Energie diesen Wert übersteigen, müssen Vorkehrungen zur Reduzierung des Streufeldes getroffen werden. Dies läßt sich entweder durch

- die Kompensation mittels Helmholtz-Spulen-Paaren in drei senkrecht zueinander stehenden Raumrichtungen oder durch
- eine Mumetall-Abschirmung erzielen.

Die Kompensationsmethode eignet sich gut für konstante magnetische Felder. Auch magnetische Wechselfelder mit Frequenzen in der Größenordnung $f \lesssim 100$ Hz lassen sich mit dieser Methode und einer Frequenzregelung kompensieren. Für die Abschirmung von beliebigen magnetischen Wechselfeldern ist die zweite Methode jedoch die einzige praktikable Lösung.

3.2.3 Detektoren

Je nach Anforderungen an die Nachweisempfindlichkeit, Zeitauflösung, Unempfindlichkeit bzgl. Kontaminationen sowie die flexible Einsatzmöglichkeit und Baugröße können unterschiedliche Elektronendetektoren zum Einsatz kommen. Speziell für den in einem LVSEM abdeckbaren Energiebereich sind dies im wesentlichen die folgenden Typen:

Faraday-Becher: Der Faraday-Becher wird als Detektor immer dann eingesetzt, wenn eine absolute Strommessung erforderlich ist und es nicht auf die Detektion schneller Stromdifferenzen ankommt. Er läßt sich über einen großen Strombereich bis herab zu ca. $10^{-12} - 10^{-13}$ A bei einem typischen Energiebereich von einigen

meV bis zu einigen MeV (Turner *et al.*, 1975) als Elektronen- sowie Ionen-Detektor einsetzen. Er besteht aus zwei konzentrisch angeordneten zylindrischen, voneinander isolierten Hohlräumen mit kleiner Eintrittsöffnung, in welche die zu messenden Elektronen einfallen. Der Elektronenstrom in den inneren metallischen Becher wird über den Spannungsabfall an einem Ableitwiderstand der Größenordnung $10\text{ M}\Omega$ elektrometrisch gemessen. Der äußere Hohlraum dient dabei der elektrostatischen Abschirmung um eine Beeinflussung durch äußerer Störfelder auszuschließen. Er befindet sich auf Erdpotential, kann aber auch auf ein anderes, der Umgebung angepaßtes Potential gelegt werden, um eine evtl. Beeinflussung der zu untersuchenden Elektronen auszuschließen. Um den Anteil der aus dem Faraday-Becher austretenden Elektronen möglichst gering zu halten, wird die Innenseite des inneren Bechers mit Kohlenstoff beschichtet. Ein wesentlicher Vorteil des Faraday-Bechers ist, daß er unempfindlich gegenüber schlechten Vakuumbedingungen in der Probenkammer ist. Faraday-Becher und die damit verbundenen Elektrometer lassen sich jedoch nicht für die Aufnahme schneller Stromschwankungen verwenden. Aufgrund der Kapazität zwischen Probe und Objektkammer, der Kabelkapazität sowie der Eingangskapazität des Stromverstärkers ergeben sich typische minimale Zeitkonstanten von $\tau = RC \approx 0.1\text{ sec}$ bis $10\text{ }\mu\text{sec}$ für Sondenströme von 10^{-12} A bzw. 10^{-9} A .

Szintillator-(Lichtleiter-)Photomultiplier: Der in der Rasterelektronenmikroskopie am häufigsten eingesetzte Detektortyp ist die Szintillator-(Lichtleiter-)Photomultiplier Kombination. Dieser von Everhart und Thornley (1960) für die Detektion von Sekundärelektronen entwickelte Detektor (ETD) bildet die Grundlage für zahlreiche in der LVSEM verwendete Elektronen-Detektortypen (vgl. auch Abschnitt 1.4). Für die Detektion von transmittierten bzw. rückgestreuten Elektronen entfällt das für langsame SE nötige Saugnetz und für Elektronen mit $E \gtrsim 10\text{ keV}$ z. T. auch die Szintillator-Nachbeschleunigungsspannung V_{sz} . Nach diesem Prinzip arbeiten die in den Abbildungen 4.1 und 4.11 und 4.12 gezeigten Szintillations-Detektoren. Für die Detektion von TE bzw. BSE mit $E \lesssim 10\text{ keV}$ wird hingegen ein Nachbeschleunigungsfeld auf den Szintillator mit $V_{sz} \lesssim +10\text{ kV}$ in Kombination mit einem davor liegenden, geerdeten Abschirmnetz verwendet (vgl. Abbildung 4.1). Für eine möglichst effiziente Signalverstärkung ist es neben einer evtl. Nachbeschleunigung der Elektronen wichtig, die einzelnen Teilkomponenten wie (a) die Szintillationsausbeute des Szintillators, (b) das Transmissionsverhalten des verwendeten Lichtleiters sowie (c) die Photonen-Detektionseffizienz des Photomultipliers gut aufeinander abzustimmen. Im Rahmen von Optimierungsüberlegungen des Detektionssystems des in Abschnitt 4.3.2 gezeigten Spektrometers wurden die wesentlichen Eigenschaften der für die SEM verwendbaren Einzelkomponenten in Abbildung 5.6 zusammengetragen. Spezielle Charakteristika verschiedener Szintillatoren sind darüber hinaus in Tabelle A.2 zu finden. Die entscheidenden Vorteile der Szintillator-(Lichtleiter-)Photomultiplier Kombination für die Elektronenmikroskopie sind der große Verstärkungsgrad ($\gtrsim 10^6$), die große Bandbreite ($\lesssim 10\text{ MHz}$), der geringe Rauschanteil und die Unempfindlichkeit gegenüber Kontaminationen.

Weitere mögliche Elektronendetektoren sind der Halbleiterdetektor, die *Micro-Channel-Plate* (MCP) und das *Channeltron*. Halbleiterdetektoren besitzen Schwellenergien $E_{schw}=2-5\text{ keV}$ und werden daher hauptsächlich für die Detektion höherenergetischer Elektronen ($E \gtrsim 5\text{ keV}$) eingesetzt. *Micro-Channel-Plates* und *Channeltrons* hingegen besitzen einen mit abnehmender Primär-Elektronenenergie ansteigenden Verstärkungsfaktor, so daß diese Detektor-Typen besonders interessant für die LVSEM sind. Untersuchungen zum Einsatz von MCP-Detektoren im Niederenergie-Bereich wurden von Russel und Mancuso (1985), Helbig (1987) und Postek *et al.* (1990) durchgeführt. Das Hauptproblem beim Einsatz von MCPs und *Channeltrons* in der LVSEM stellt die Kontamination durch Kohlenwasserstoffe dar. Sie führt zu einer drastischen und dauerhaften Reduzierung des Verstärkungsfaktors dieser Detektor-Typen und muß daher deutlich reduziert werden.

Kapitel 4

Experimentelles

4.1 Meßaufbau zur Energiefilterung im LVSEM

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurde ein universeller Meßaufbau zum PC-gesteuerten Betrieb von unterschiedlichen Elektronen-Spektrometern in kommerziellen (Niederspannungs-)Rasterelektronenmikroskopen entwickelt. Dieser Aufbau setzt sich im wesentlichen aus den folgenden Einzelkomponenten zusammen:

Über einen PC wird mit Hilfe einer ADC/DAC-Einheit¹, die im folgenden mit ADDA-Einheit bezeichnet wird, ein symmetrisches Doppel-Hochspannungsnetzgerät angesteuert, welches die notwendigen Potentiale für die Elektronen-Spektrometer liefert. Das Ausgangssignal des Spektrometers am Photomultiplier oder Elektrometervverstärker wird mit Hilfe eines neu entwickelten Signalverstärkers (vgl. Abbildung A.3) weiterverstärkt. Das so erhaltene analoge Signal wird über die ADDA-Einheit in ein digitales Signal gewandelt und im PC weiterverarbeitet. Über einen zweiten Eingangskanal der ADDA-Einheit lassen sich parallel zur Intensität der Spektren die Emissionsstrom-Fluktuationen der Feldemissionskathode aufzeichnen, um durch Signal-Division eine Rauschunterdrückung zu erzielen. Eine grafische Darstellung der Meßaufbauten mit den entsprechenden Spektrometern ist in den Abschnitten 4.2.1 bis 4.3.2 gezeigt.

4.1.1 Eigenschaften der Einzelkomponenten

Im folgenden werden die Möglichkeiten und Grenzen des Gesamtsystems im Hinblick auf die Energiefilterung im verwendeten LVSEM dargestellt.

ADC/DAC-Einheit: Die ADDA-Einheit der Firma Soft Imaging System besitzt drei über einen PC steuerbare 12 bit Digital/Analog-Konverter (Ausgangskanäle) zur Ansteuerung eines externen Gerätes und zwei 12 bit Analog/Digital-Konverter

¹ ADC : Analog/Digital Converter, DAC : Digital/Analog Converter.

(Eingangskanäle) für die Datenaufnahme. Dabei wurde die ADDA-Einheit so konfiguriert, daß die Ein- bzw. Ausgänge einen Spannungswertebereich von 0 bis +10 V bei entsprechendem 12 bit Zählerwertebereich von 0 bis 4095 abdecken.

HV-Netzgerät: Das symmetrische Doppel-Hochspannungsnetzgerät der Firma fug zur Beschaltung der Spektrometer-Potentiale läßt sich über die Zusatzoption „analoge Programmierung“ mit Hilfe der ADDA-Einheit extern ansteuern. Dabei existieren zwei separate Eingangskanäle (a) zur **Grobregelung** und (b) zur **Feinregelung** des Netzgerätes, die jeweils einen Spannungssollwertebereich von 0 bis +10 V erwarten. Dieser Eingangsspannungsbereich wird am Ausgang des Netzgerätes im Fall der Grobregelung auf einen Ausgangsspannungswertebereich von 0 bis ± 9.5 kV und im Fall der Feinregelung auf einen Spannungsbereich von 0 bis ± 500 V abgebildet. Bei einer 12 bit Steuerungsdatentiefe ergibt sich daraus für die Grobregelung eine minimale Spannungsschrittweite von ± 2.3 V und für die Feinregelung von ± 0.12 V. Der maximale Ausgangsspannungsbereich beträgt daher 0 bis ± 10 kV bei einer Restwelligkeit von $< 0.5 \cdot 10^{-3} \%$.

Programm zur Spektrenaufnahme: Zur PC-gestützten Ansteuerung der Elektronenspektrometerpotentiale sowie der Meßdatenerfassung wurde ein C-Programmpaket entwickelt. Die Eigenschaften werden im folgenden erläutert:

Zur Aufnahme von Energiespektren kann eine Potentialrampe von einem beliebig gesetzten Anfangswert zu einem beliebig gesetzten Endwert innerhalb des oben genannten Wertebereichs durchfahren werden. Dabei kann die Rampe und damit auch das Energiespektrum sowohl absteigend als auch aufsteigend durchfahren werden. Um z. B. den Kontaminationseinfluß im *Low-loss*-Bereich möglichst gering zu halten, ist eine abnehmende Energiespektrenaufnahme sinnvoll. Um den Nachleuchteffekt des Szintillators bei besonders intensitätsstarkem *Zero-loss-Peak* zu minimieren, ist eine aufsteigende Energiespektrenaufnahme zu bevorzugen.

Die Spektrenaufnahme kann einerseits über die Grobregelung mit einer minimalen Rampen-Schrittweite von 2.3 V und einem überstreichbaren Spannungsbereich von 0 bis ± 9.5 kV erfolgen. Andererseits läßt sich auch eine Rampe über die Feinregelung mit einer minimalen Schrittweite von 0.12 V und einem maximal überstreichbaren Spannungsbereich von ± 500 V erzeugen, die um einen Offset über die Grobregelung von 0 bis ± 9.5 kV verschoben werden kann.

Für die Datenaufnahme stehen zwei separate Eingangskanäle zur Verfügung, die seriell abgefragt werden können. Der kürzeste Zeitabstand zwischen zwei aufeinanderfolgenden Meßdatenerfassungen beträgt ca. 1/10 s. Wenn während der Messung keine Datenausgabe auf dem PC-Monitor erfolgt, läßt sich dieser Zeitabstand noch um etwa einen Faktor fünf reduzieren. Dabei können die Signale je nach Rauschanteil über einen beliebigen Zeitraum gemittelt werden. Nach der Aufnahme eines Spektrums können die Rampenwerte zum Durchfahren der Spektrometer-Spannung sowie die Signalintensitäten an den Eingangskanälen 1 und 2 in einem ASCII-Datenfile gespeichert werden.

Zur Anpassung der Eingangssignale an den wandelbaren Bereich von 0 bis +10 V steht ein Programmteil zur grafischen Darstellung des zeitlichen Verlaufs der Signalintensitäten zur Verfügung. Damit läßt sich vorab durch ein grobes, manuelles Durchfahren des Spektrums auf einfache Art und Weise eine optimale Signalverstärkung und Tiefpaßeinstellung finden.

Für die Aufnahme von energiegefilterten Bildern (ESI) hat sich ein Programmteil als nützlich erwiesen, der es ermöglicht, über die Grob- und/oder Feinregulierung schrittweise per Tastendruck die Spektrometer-Spannung zu erhöhen bzw. zu erniedrigen. Damit läßt sich eine Positionsgenauigkeit der Spektrometer-Potentiale in der Größenordnung 0.12 V erzielen, was über eine manuelle Steuerung undenkbar wäre.

4.2 Gegenfeld-Spektrometer

In dieser Arbeit wurden zwei verschiedene Gegenfeld-Spektrometer für unterschiedliche Aufgabenbereiche verwendet. Die im folgenden zuerst vorgestellte Gegenfeld-Filterlinse diente der Aufnahme von ungefilterten und *Zero-loss* gefilterten elektronenmikroskopischen Bildern freitragender Schichten im Raster-Transmissionsbetrieb. Das im darauffolgenden Abschnitt beschriebene hemisphärische Gegenfeld-Spektrometer wurde für spektroskopische Untersuchungen der Energieverteilung an Reinelementen rückgestreuter Elektronen verwendet.

4.2.1 Gegenfeld-Filterlinse

Im Vergleich zum konventionellen Abbildungsmodus eines SEM in Rückstreuung mittels SE bzw. BSE an massiven Präparaten, bietet die Untersuchung an dünnen Schichten die Möglichkeit, eine hohe laterale Auflösung zu erzielen, da für vergleichsweise hohe Energien keine Ausbildung einer Elektronendiffusionsbirne auftritt (vgl. Abbildung 2.7(b)). Werden die transmittierten Elektronen (TE) für eine Abbildung verwendet, d. h., das SEM wird im Raster-Transmissions-(STEM)-Modus betrieben., so können zur TEM vergleichbare elektronenmikroskopische Bilder erhalten werden. Im SEM stehen dabei erheblich geringere und variable Primärenergien im Bereich von $0.5 \text{ keV} \leq E \leq 30 \text{ keV}$ zur Verfügung. Bei der Aufzeichnung von Bildern im Raster-Transmissionsmodus ist zu beachten, daß in einem STEM die Objektstrukturen an der Oberseite der Probe scharf abgebildet werden, in einem TEM dagegen die an der Unterseite. Dieser Effekt wird als *Top-bottom*-Effekt bezeichnet und ist eine Bestätigung des Reziprozitätsprinzips (Reimer und Pfefferkorn, 1977).

Zur Untersuchung der Kontraste in Abhängigkeit von der Primärenergie und des Einflusses einer *Zero-loss*-Filterung im STEM eines LVSEM, wurde die im folgenden beschriebene Gegenfeld-Filterlinse für die Abbildung von dünnen Schichten mit transmittierten Elektronen entwickelt. Die in den Abbildungen 4.1 und 4.2 gezeigte Filterlinse läßt sich aufgrund ihrer geringen Baugröße über die Vorschleuse in die Probenkammer des S-4000 SEM einschleusen und gewährleistet damit einen schnell-

len Probenwechsel. Im Zentrum der Oberseite des Spektrometers befindet sich ein Probenhalter für TEM-Probennetze. Die transmittierten Elektronen, deren Energie ausreicht, um die zu untersuchende dünne Schicht zu durchlaufen, gelangen entlang der optischen Achse durch das Spektrometer hindurch und werden vom Detektorsystem registriert.

Der speziell für die Detektion von transmittierten Elektronen entwickelte Detektor besteht aus einer Szintillator-Lichtleiter-Photomultiplier Kombination (siehe Abbildung 4.1 und 4.3). An den verwendeten P-47-Szintillator kann eine Nachbeschleunigungsspannung von bis zu +10 kV gelegt werden. Er wurde nach dem von Niemitz (1979) beschriebenen Verfahren auf ein Glasplättchen aufgebracht. Dabei wurde eine, nach Aussagen von Comins *et al.* (1978) sowie Volbert und Reimer (1979) optimale Massenbelegung des P-47-Pulvers von 1.2 mg/cm^2 für eine Nachbeschleunigungs-Spannung V_{sz} von +10 kV realisiert. Für die Gewährleistung eines guten optischen Kontaktes zwischen Glasplättchen und Plexiglas-Lichtleiter wurde ein Immersionsöl verwendet.

Um die Detektionsapertur des Spektrometers auf einen Wert von $\alpha = 50 \text{ mrad}$ zu begrenzen, wurde in einer Entfernung von 10 mm unterhalb des TEM-Probennetzes eine Blende mit einem Durchmesser von 1 mm angebracht. Unterhalb dieser aperturbegrenzenden Blende befindet sich eine elektrostatische Filterlinse, die aus einem zylindrischen, polierten Messing-Rohr mit einem Innendurchmesser von 8 mm und einer Länge von 20 mm besteht. Die Filterlinse kann innerhalb des Mikroskopvakuums über eine justierbare Hochspannungszuführung mit einem Gegenpotential von $-10 \text{ kV} \leq V_G < 0 \text{ kV}$ beschaltet werden. Es gelangen nur diejenigen Elektronen zum Detektor, die das Filterlinsenpotential überwinden können. Für Elektronen mit einer geringeren Energie wirkt das Gegenfeld als Elektronenspiegel. Der gezeigte Versuchsaufbau ermöglicht damit sowohl die Aufzeichnung von ungefilterten Raster-Transmissionsbildern über den gesamten ausnutzbaren Primärenergiebereich von $0.5 \text{ keV} \leq E \leq 30 \text{ keV}$ als auch von *Zero-loss* gefilterten Bildern für den eingeschränkten Energiebereich von $0.5 \text{ keV} \leq E \leq 10 \text{ keV}$. Die Einschränkung ergibt sich durch die Begrenzung der für das Gegenpotential zur Verfügung stehenden Spannungsversorgung. Versuche, den Meßaufbau für hochaufgelöste spektroskopische Untersuchungen zu nutzen, wurden verworfen, da die mit diesem Spektrometer aufgenommenen Transmissionscharakteristiken der Primärenergieverteilung starke Seitenbänder aufwiesen, die sich auf Streuelekttronen im Spektrometer zurückführen lassen. Hauptprobleme stellten die für eine Abbildung nötige große Spektrometer-Eintrittsblende und die nicht ausreichende Justiermöglichkeit des Spektrometers auf die elektronenoptische Symmetrieachse dar. Selbst durch die Variation der Filterlinsenlängen, Filtereintritts- und Filteraustrittsblendengrößen sowie die Verwendung von Magnetspulen zur Einengung der Elektronenbahnen auf die elektronenoptische Achse konnten die Störeinflüsse nicht vollständig beseitigt werden. In Abschnitt 5.1.1 werden die zugehörigen, mit diesem Spektrometer erzielten Ergebnisse zur Untersuchung der Kontraststeigerung vorgestellt und weitere Möglichkeiten diskutiert.

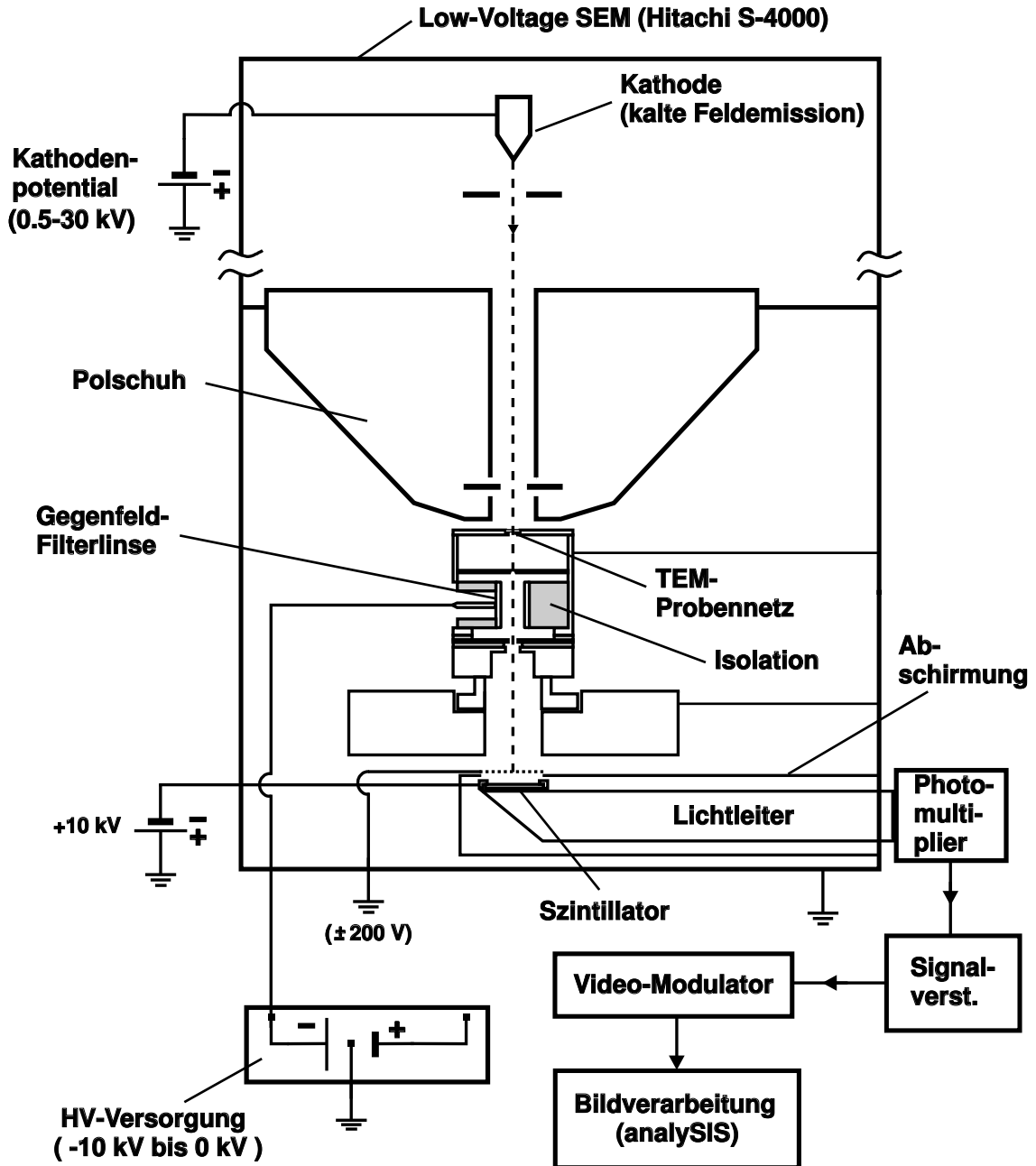


Abb. 4.1: Gesamter Meßaufbau zur Aufnahme von ungefilterten und *Zero-loss* gefilterten Bildern im STEM-Modus des S-4000 SEM mit Hilfe der in Abb. 4.2 gezeigten Gegenfeld-Filterlinse und des in Abb. 4.3 gezeigten Detektorsystems.

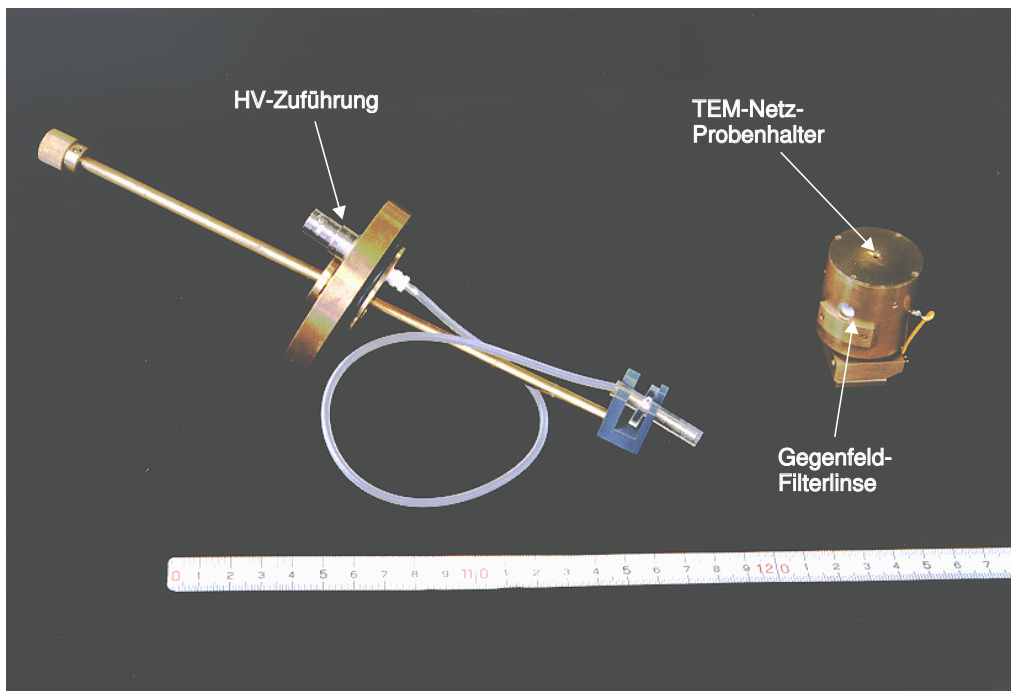


Abb. 4.2: Aufsicht auf die zur ungefilterten sowie *Zero-loss* gefilterten Abbildung mit transmittierten Elektronen entwickelte Gegenfeld-Filterlinse für das S-4000 SEM (rechts); links im Bild ist der Vakuumflansch mit der Hochspannungszuführung für das Gegenpotential abgebildet.

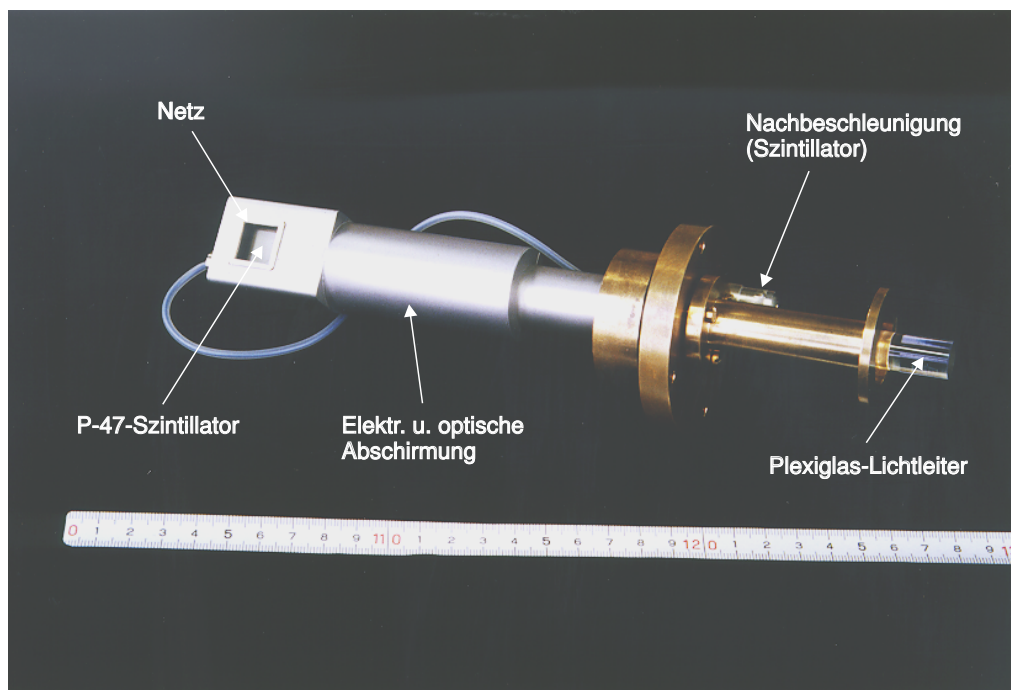


Abb. 4.3: Entwickelter Transmissionselektronen-Detektor für den STEM-Betrieb im S-4000 SEM.

4.2.2 Hemisphärisches Gegenfeld-Spektrometer

Zur quantitativen Analyse und Interpretation rasterelektronenmikroskopischer Bilder ist ein genaues Verständnis der Wechselwirkung zwischen Strahlelektronen und dem zu untersuchenden Objekt notwendig. Besonders in dem für zahlreiche Problemstellungen interessanten Niederenergiebereich von ≤ 5 keV existieren noch Lücken im Verständnis. Die Unterschiede zum konventionellen Bereich von 5 – 30(50) keV liegen in dem geänderten elastischen sowie unelastischen Streuverhalten der langsamen Elektronen begründet (vgl. Kap. 2). Um Aussagen über die abweichende Wechselwirkung und Vergleichsmöglichkeiten zu Monte-Carlo Modellen zu erhalten, sowie auch Meßdaten für den Bau spezieller Rückstreuelektronen-Detektoren für den Niederenergiebereich zu erhalten, wurde von Kässens und Hejna (1995) ein winkelauflösendes hemisphärisches Gegenfeld-Spektrometer konzipiert (Kässens, 1995). Der dabei entwickelte Rohbau dieses segmentierten Spektrometers wurde im Rahmen dieser Arbeit fertiggestellt und weiterentwickelt.

Der für die Untersuchungen zur Energieverteilung rückgestreuter Elektronen im Energiebereich von $E \leq 5$ keV verwendbare Meßaufbau ist in Abbildung 4.4 dargestellt. Kernstück bildet dabei das in den Abbildungen 4.5 bis 4.7 gezeigte hemisphärische Gegenfeld-Spektrometer, das mit der zugehörigen Stromverstärkerelektronik in der Probenkammer des S-4000 SEM installiert wurde.

Die Ansteuerung der Hochspannungsversorgung für das Gegenfeld und die Aufnahme des Meßsignals erfolgt PC-gesteuert über die ADDA-Einheit. Die Primärelektronen fallen durch eine geerdete Metallhülse in der Symmetrieachse des Spektrometers auf die Probe ein. Die Probenoberfläche befindet sich im Mittelpunkt von vier halbkugelförmigen Molybdän-Netzen. Die Durchmesser der vier Molybdän-Netze betragen von innen nach außen 20, 30, 36 und 46 mm. Bei einer Netzmaschenweite von $450 \mu\text{m}$ und einer Netzstegbreite von $55 \mu\text{m}$ ergibt sich eine optische Transmission eines Netzes von $T_{N_1} \approx 79\%$. Die optische Transmissions-Wahrscheinlichkeit für vier Netze folgt damit einfach aus dem Produkt der Einzelwahrscheinlichkeiten zu $T_{4N_1} = T_{N_1}^4 \approx 40\%$. Um die hemisphärischen Netze sind in 10° -Schritten ringförmige, mit Kohlenstoff beschichtete, Messing-Segmentringe (S1, S2, ..., S8) angeordnet. Das innere und äußere Netz liegt jeweils auf Erdpotential, um den Probenraum und den Raum vor den Messing-Ringen feldfrei zu halten. Die beiden mittleren Netze werden auf ein negatives Potential gelegt, um ein Gegenfeld für die rückgestreuten Elektronen zu erzeugen. Rückstreuelektronen und Sekundärelektronen, die aus der Probe in den oberen Halbraum austreten und das innere Netz passiert haben, gelangen in den Bereich des Gegenfeldes der beiden mittleren Netze (siehe Abbildung 4.5). Alle Elektronen, deren Energie ausreicht, um diese Potentialschwelle passieren zu können (BSE1), treffen auf eines der ringförmigen Messing-Segmente. Alle übrigen Elektronen (BSE2, SE) werden retardiert. Der so an den Segmentringen entstehende Elektronenstrom wird mit Hilfe der nachgeschalteten Elektrometer schon in der Probenkammer verstärkt, um induktive Störeinflüsse zu minimieren. Jeder Segmentring ist mit einem separaten Vorverstärker verbunden. Die

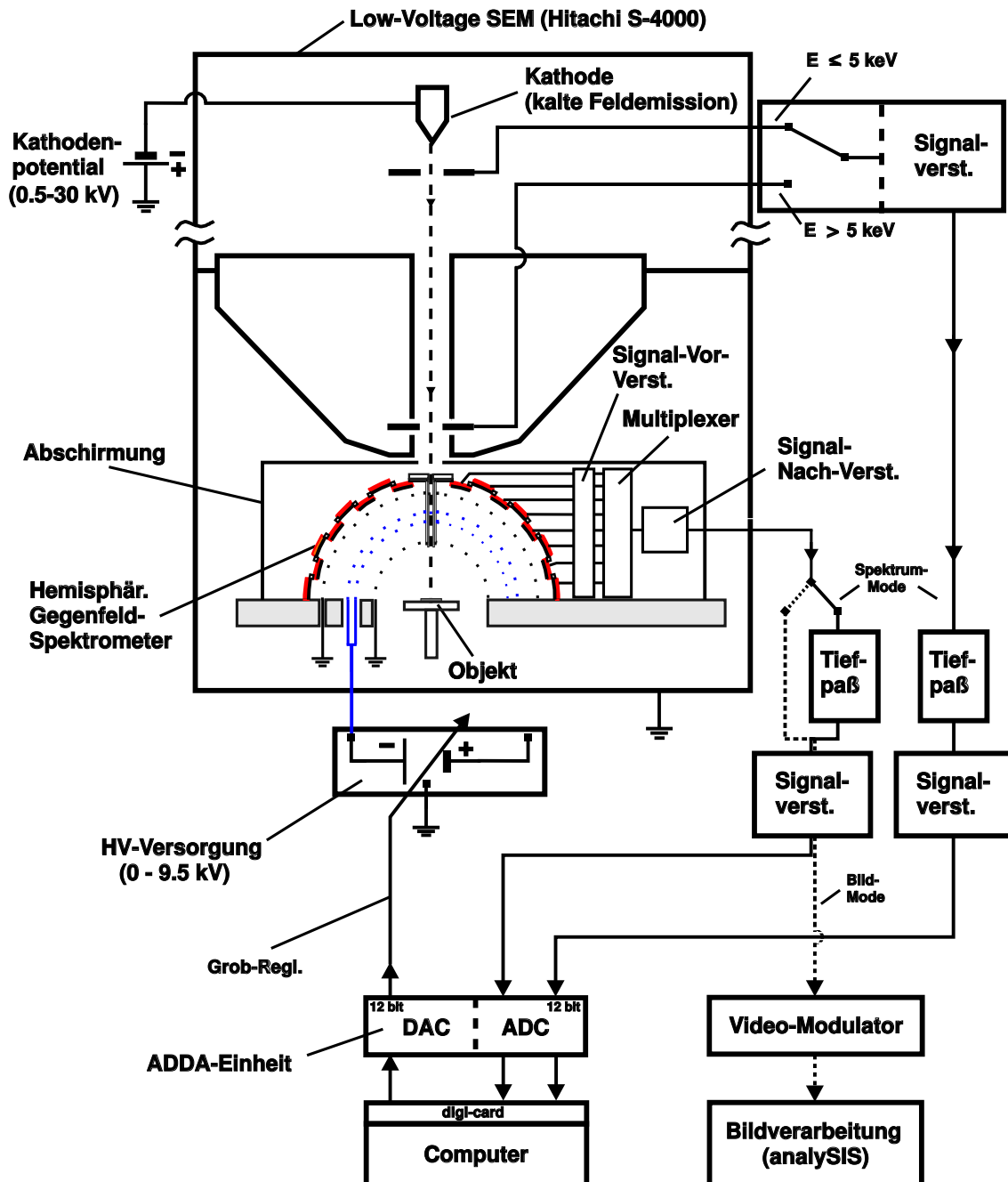


Abb. 4.4: Gesamter Meßaufbau zur Aufnahme von Energiespektren in Rückstreuung mit dem in den Abb. 4.5 bis 4.7 gezeigten hemisphärischen Gegenfeld-Spektrometer.

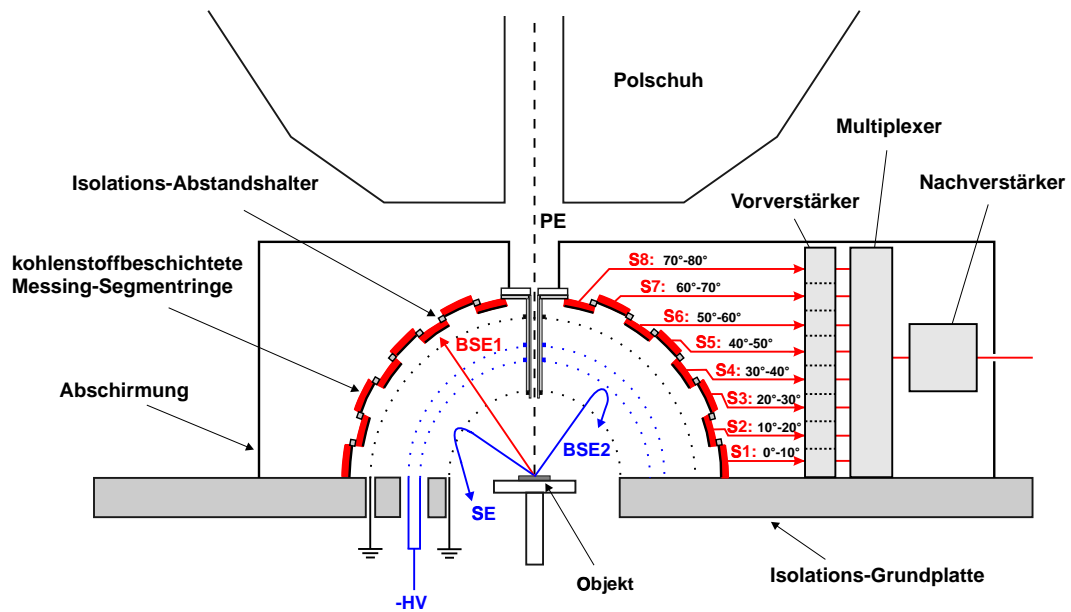


Abb. 4.5: Querschnitt durch den Aufbau des hemisphärischen Gegenfeld-Spektrometers aus Abb. 4.6 und 4.7.

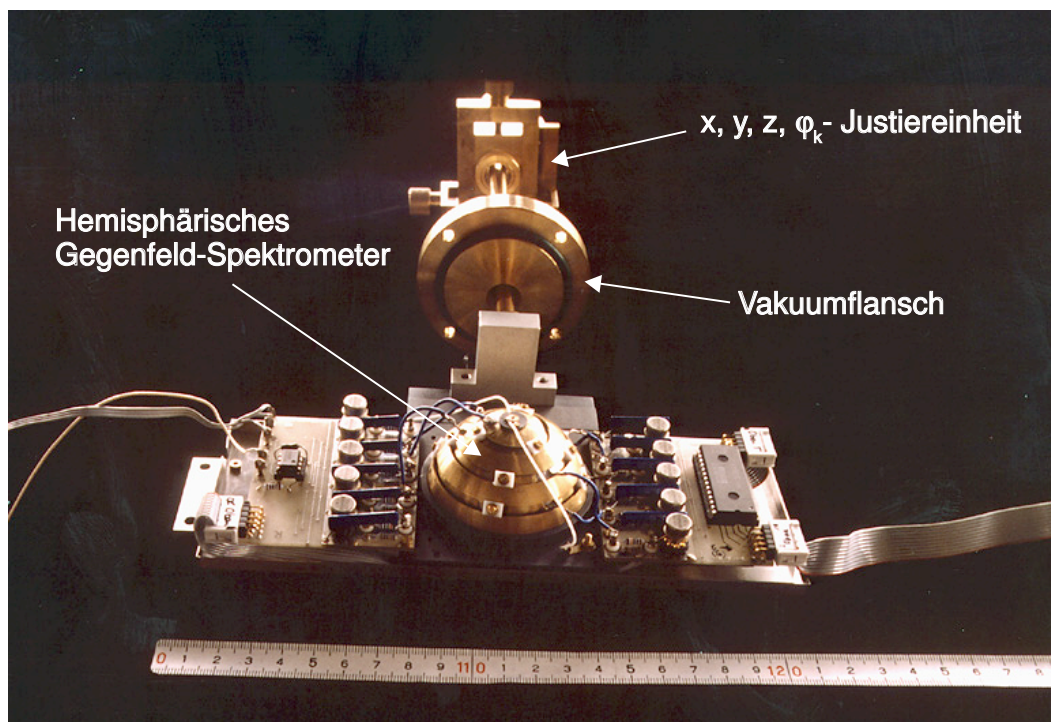


Abb. 4.6: Aufsicht auf das winkelauflösende hemisphärische Gegenfeld-Spektrometer mit der zugehörigen Stromverstärkerelektronik. Im Hintergrund ist die in x , y , z und φ_k -Richtung verstellbare Justiereinheit und der Vakuumflansch zu sehen.

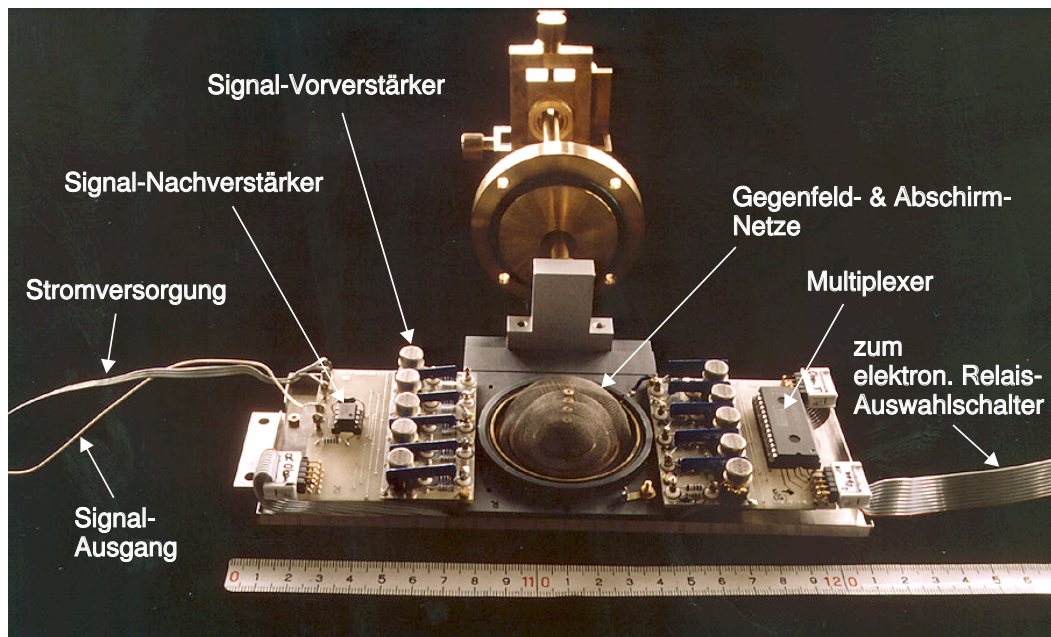


Abb. 4.7: Ansicht auf die vier halbkugelförmigen Netze des Gegenfeld-Spektrometers.

nachfolgende Verstärkung des Signals erfolgt mit Hilfe einer zweiten Verstärkungsstufe und die Auswahl des interessierenden Segmentringes (Austrittswinkelbereichs) über einen Multiplexer. Dieser wird außerhalb des Vakuums über einen elektronischen Relais-Auswahlschalter gesteuert. Das Gegenfeld-Spektrometer ermöglicht somit die Aufzeichnung von BSE-Energiespektren für Austrittswinkelbereiche von $0^\circ - 80^\circ$ in 10° -Schritten für senkrecht einfallende Primärelektronen. Dazu wird die Potentialschwelle für das Gegenfeld schrittweise bis zur Primärenergie variiert. So lassen sich zunächst für jedes Winkelsegment Gegenspannungskurven der Rückstreuungselektronen gewinnen. Um daraus die Energieverteilung der BSE zu erhalten, müssen die gemessenen Gegenspannungskurven zunächst numerisch geglättet und anschließend nach E differenziert werden. Eine alternative Möglichkeit, bei der das Energiespektrum auf direktem Wege erhalten wird, ist das Arbeiten mit *Lock-in*-Technik. Dabei wird dem Gegenfeld mit Hilfe eines HV-Trenntransformators eine Wechselspannung überlagert und der Anteil des Signals mit derselben Frequenz mit Hilfe eines *Lock-in*-Verstärkers herausgefiltert. Dieses Verfahren entspricht einer elektronischen Differentiation während der Messung (Tietze und Schenk, 1993; Liebscher, 1979; Leder und Simpson, 1958).

Vergleichende Messungen mit Hilfe dieser beiden Verfahren ergaben im ersten Fall eine bessere Überprüfbarkeit der Strahlstrombedingungen. Darüber hinaus ließen sich dabei verschiedene Auswertemethoden besser anwenden. Daher wurden alle in dieser Arbeit gezeigten Messungen mit dem hemisphärischen Gegenfeld-Spektrometer durch numerische Differentiation der Gegenspannungskurve erhalten.

4.3 Ablenkfeld-Spektrometer

In den folgenden beiden Abschnitten werden die beiden in dieser Arbeit verwendeten Ablenkfeld-Spektrometer vorgestellt. Beide Spektrometer ermöglichen die Aufnahme von Energiespektren und durch die Selektion eines Energiefensters die energiegefilterte Abbildung mit elastisch oder unelastisch gestreuten Elektronen.

Das toroidale Sektorfeld-Spektrometer nach Rau und Robinson (1996) wurde für die Messung der Energieverteilung und die Aufnahme von energiegefilterten Bildern an Multilayern in Rückstreuung im Hinblick auf eine mögliche tiefenselektive Abbildung eingesetzt. Das „sphärische“ Sektorfeld-Spektrometer nach Jost hingegen wurde für die Aufnahme von hochaufgelösten Energieverlustspektren und elektronenspektroskopischen Bildern im STEM-Modus des S-4000 SEM verwendet. Dabei liegt das Hauptaugenmerk auf der Untersuchung der Kontraststeigerung durch eine Energiefilterung im Niederenergiebereich sowie der Untersuchung der Energieauflösungsgrenze für EELS und ESI. Die Anführungszeichen deuten dabei an, daß die Elektrodenform dieses Spektrometers nicht-sphärisch ist; die definierte Beschaltung der seitlichen Hilfselektroden erzeugt jedoch in der Region um die Zentralbahn sphärische Potentiallinien. Daher wird auch von einem „simuliert-sphärischen“ Sektorfeld-Spektrometer gesprochen.

4.3.1 Toroidales Sektorfeld-Spektrometer

Die Energieverteilung von Rückstreuelektronen an Vielfachschichten liefert wichtige Informationen über die Tiefe von verborgenen Schichten sowie in begrenztem Umfang auch die Element-Zusammensetzung der Probe. Vorteile bei der Verwendung von BSE für die Analyse von Mehrfachschichten sind die große Informationstiefe von ca. $0.4 - 0.5 R$ und die zerstörungsfreie Untersuchungsmöglichkeit.

Eine einfache Möglichkeit um Schichten in zunehmender Tiefe abzubilden, ist durch die Erhöhung der Primärenergie zu erreichen. Ein Beispiel für diese Methode ist in Abbildung 4.8(a) – (d) exemplarisch an einer ca. 50 nm dünnen Germanium-Folie auf einem TEM Kupfer-Netz gezeigt. Bei einer Primärenergie von 1 keV ist die halbe Reichweite der Elektronen noch kleiner als die Ge-Schichtdicke, so daß nur die Oberfläche der Schicht abgebildet wird. Ab einer Energie von etwa 5 keV ist die halbe Reichweite größer als die Ge-Schichtdicke, so daß die verborgenen, rauen Cu-Netzstege unter der Schicht sichtbar werden. Mit zunehmender Primärenergie werden die verborgenen Netzstege zunehmend schärfer abgebildet, da die Informationstiefe der BSE sehr viel größer wird als die Dicke der Ge-Schicht. Ausgiebige Untersuchungen zur Informationstiefe und der Abbildung mittels BSE in einem SEM sind von Seiler (1976) und Wells *et al.* (1984) durchgeführt worden. Reimer und Riepenhausen (1985) befassen sich mit der Untersuchung des BSE-Detektor Signals bei Variation des Detektionswinkels und der damit verbundenen möglichen Kontraststeigerung. Wells (1979) beschäftigt sich mit der Verbesserung der räumlichen Auflösung von Oberflächendetails durch die Energiefilterung der elastisch

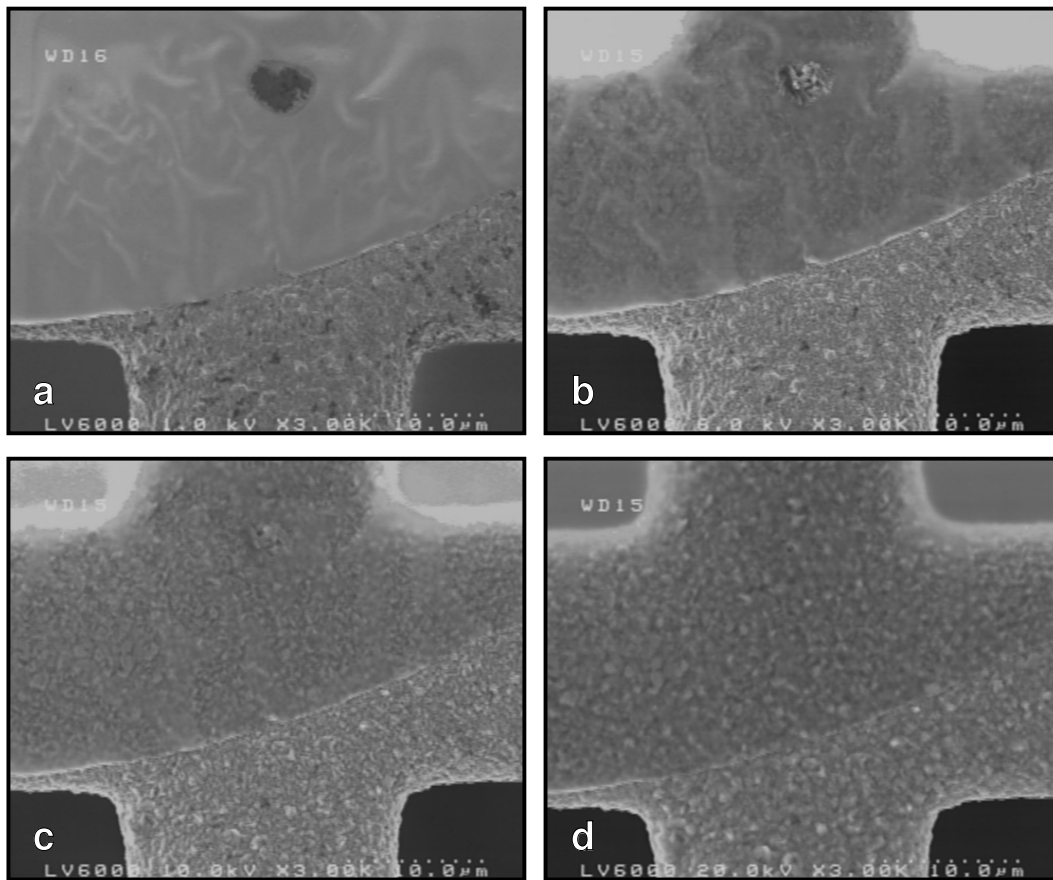


Abb. 4.8: SE-Bilder einer 50 nm dünnen Ge-Schicht auf der rauhen Seite eines TEM-Probennetzes bei unterschiedlichen Primärenergien, (a) 1 keV, (b) 5 keV, (c) 10 keV und (d) 20 keV.

reflektierten Elektronen mit Hilfe eines Gegenfeld-Filters.

Mit den oben genannten Methoden lassen sich Tiefeninformationen gewinnen, die jedoch große Hintergrund-Anteile besitzen oder in ihrer Tiefenselektion stark eingeschränkt sind. Einen Ausweg bietet die 3-dimensionale Rekonstruktion mittels digitaler Bildverarbeitung durch die Variation der Energie des Primärelektronenstrahls (Mellen, 1998).

Ein weiteres im folgenden näher beschriebenes Verfahren benutzt die Abbildung mit einem Sektorfeld-Spektrometer. Durch die Energiefilterung mit einem solchen Spektrometer wird eine direkte tiefenselektive Abbildung ermöglicht. Die Bandpaßfilterung bewirkt dabei die Eliminierung eines Großteils der Hintergrundsignale der unterhalb und oberhalb liegenden Schichten (Aristov *et al.*, 1995). Ermöglicht wird die Zuordnung der Schichttiefe x in $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ zu dem Energieverlust dadurch, daß die BSE mit einem definierten Energieverlust im Mittel aus einer bestimmten Tiefe

stammen. Im Falle einer Vielfachelementprobe ist bei der Interpretation solcher energiegefilterter Bilder darauf zu achten, daß die Tiefe gleicher Massendicke abgebildet wird. Für eine quantitative Schichttiefen-Analyse ist daher die Kenntnis der Elementzusammensetzung unerlässlich, um die Dichte der Materialien zu berücksichtigen. Um einen Überblick über den mit einem SEM abdeckbaren Informationstiefenbereich zu erhalten, wurde in Tabelle A.4 die praktische Elektronenreichweite verschiedener Elemente für den typischen Energiebereich eines (LV)SEM nach Gleichung 2.15 und 2.16 dargestellt. Die zugehörige maximale Informationstiefe der BSE ergibt sich dabei aus der Beziehung $t_{BSE} \approx R/2$.

Die zugrundeliegende Idee bei der tiefenselektiven Abbildung von Mikrostrukturen (Mikrotomographie) mittels BSE-Sektorfeld-Spektrometer ist in Abbildung 4.9 gezeigt.

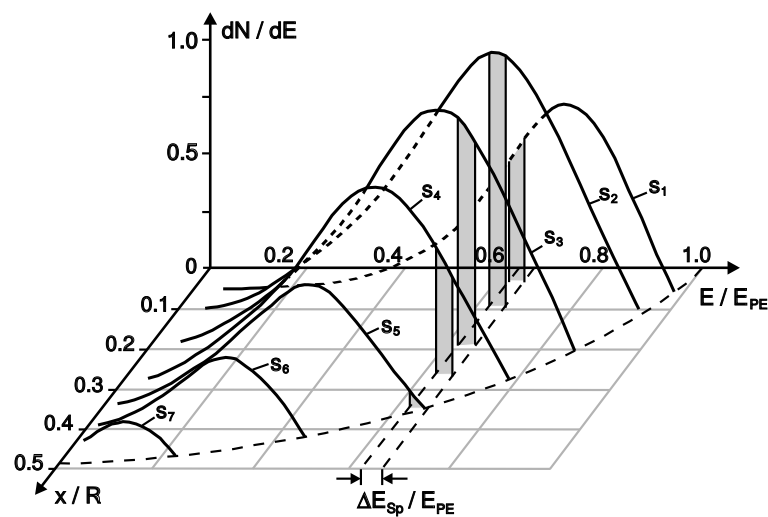


Abb. 4.9: Darstellung von Energiespektren rückgestreuter Elektronen aus verschiedenen Schichttiefen einer ebenen, homogenen Probe (nach Niedrig und Rau (1998)).

Abgebildet sind aus theoretischen Überlegungen abgeleitete BSE-Spektren (dN/dE) einer ebenen, homogen zusammengesetzten Probe in Abhängigkeit von der Schichttiefe x/R . Monte-Carlo Simulationen zu diesem Problem wurden von Hoffmeister *et al.* (1999) durchgeführt. Mit zunehmender Tiefe wird das Energiespektrum zunehmend verbreitert und zu kleineren Energien verschoben. Für eine homogene Probe nehmen des weiteren die Absolutwerte der Spektrenmaxima ab. Befindet sich eine Schicht, bestehend aus einer anderen chemischen Zusammensetzung, innerhalb dieser homogenen Matrix, so werden die BSE-Spektren entsprechend der unterschiedlichen Rückstreuereigenschaften deformiert (Reimer *et al.*, 1991; Dremova *et al.*, 1993). Es entstehen je nach Elementzusammensetzung Zwischenmaxima und -minima. Durch die spezielle Wahl einer Spektrometer-Spannung wird ein definiertes BSE-Energiefenster ΔE_{Sp} ausgewählt. Am Beispiel in Abbildung 4.9 wurde dies auf das absolute Energiemaximum der Schicht gesetzt, so daß bevorzugt BSE aus dieser

Tiefe das Spektrometer passieren können und detektiert werden. In diesem Sinne bietet die Methode der BSE-Bandpaßfilterung mit einem Ablenkefeld-Spektrometer die Möglichkeit, verborgene Schichtstrukturen in unterschiedlichen Tiefen der Probe bevorzugt abzubilden. Auf die Möglichkeiten und Grenzen dieses Verfahrens wird in Abschnitt 5.2.2 eingegangen.

In Zusammenarbeit mit Prof. Dr. E. I. Rau aus Moskau² wurden Untersuchungen zur Spektroskopie und zur tiefenselektiven Abbildung von Mikrostrukturen mit Hilfe eines toroidalen Sektorfeld-Spektrometers durchgeführt, welches in der Moskauer Arbeitsgruppe entwickelt wurde (Rau und Robinson, 1996; Dremova *et al.*, 1995).

Dieses BSE-Spektrometer ist speziell für die Anwendung in einem Rasterelektronenmikroskop konzipiert worden und kann im Probenraum unterhalb des Polschuhs angebracht werden. Nach der Definition in Abschnitt 3.2 ist dieses toroidale Spektrometer vom polaren Ablenkefeld-Typ. Eine Schemazeichnung dieses axialsymmetrischen, 90 mm durchmessenden Spektrometers ist in Abbildung 4.10 und der dazugehörige Meßaufbau in Abbildung 4.11 gezeigt. Der angegebene Durchmesser bezieht sich dabei auf den Analysator ohne Szintillator.

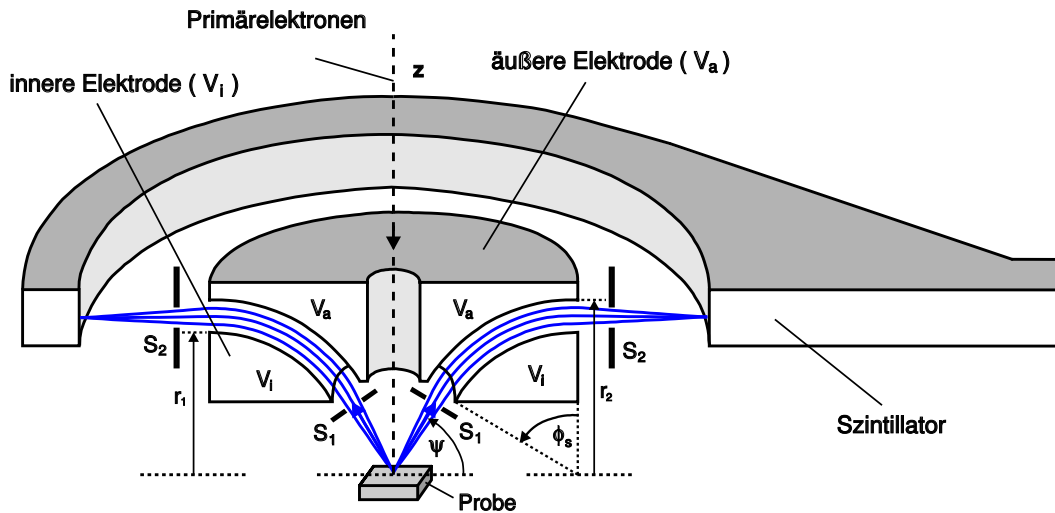


Abb. 4.10: Querschnitt durch das toroidale Sektorfeld-Spektrometer für die energiegefilterte Abbildung (Mikrotomographie) sowie die Spektroskopie von BSE.

Die Primärelektronen gelangen durch eine geerdete, zylindrische Hülse durch das Spektrometer hindurch und treffen auf die zu untersuchende Probe. Die BSE, welche die Probe in einem kegelförmigen Austrittswinkelbereich von $\psi \approx 70^\circ \pm 1^\circ$ (bezogen auf die Probenoberfläche) verlassen, können durch die kreisförmige Eintrittsblende S_1 in den Raum zwischen die toroidalen Ablenkplatten des Spektrometers gelangen. Der Innenradius r_i beträgt dabei 16 mm, der Außenradius $r_a = 18$ mm. Die äußere Elektrode (V_a) wird mit einem Potential $-V$, die innere (V_i) mit einem Potential $+V$

² Department of Physics, Moscow State University, Moscow, Russia

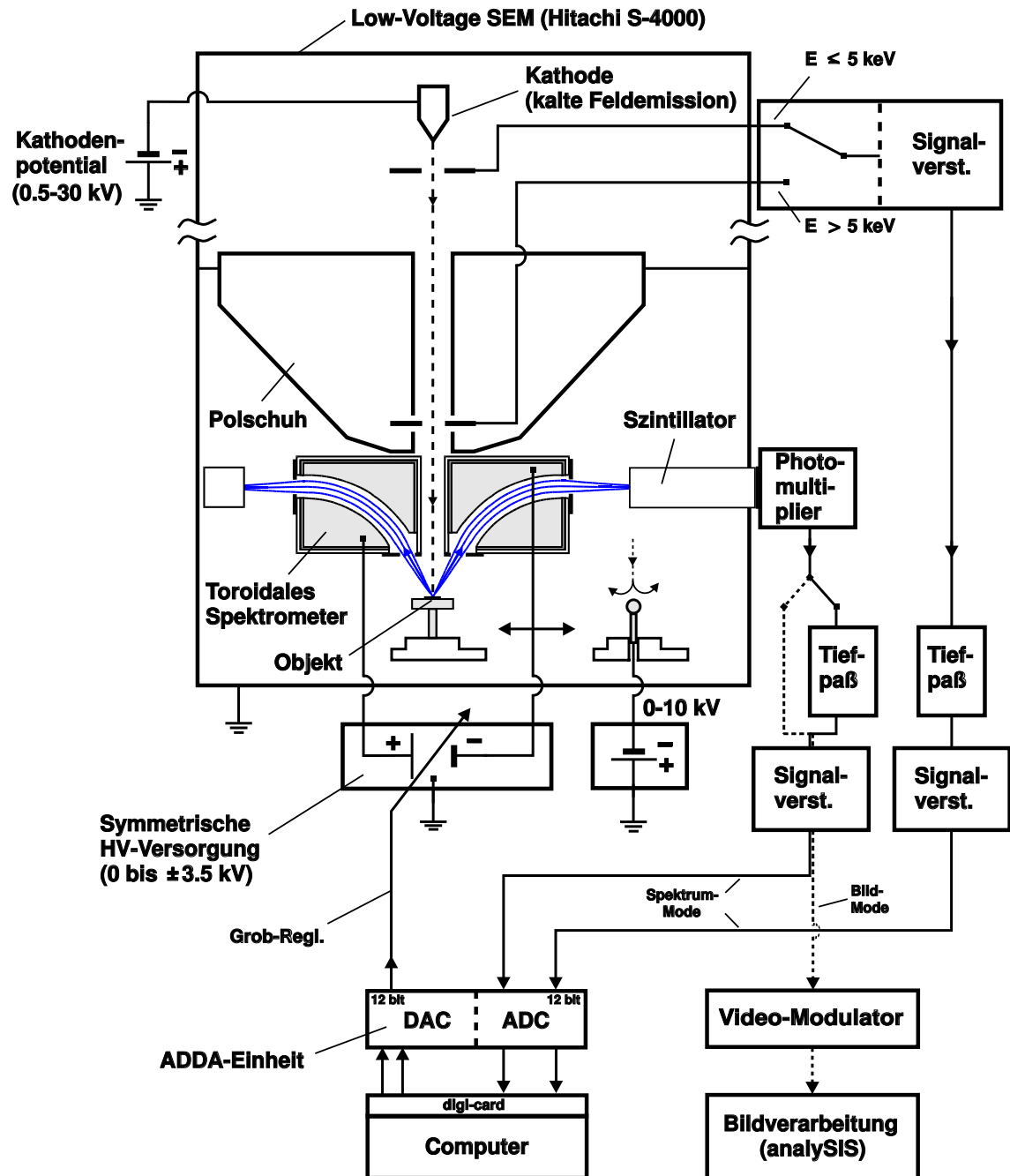


Abb. 4.11: Meßaufbau zur Aufnahme von energiegefilterten Bildern und Energiespektren in Rückstreuung mit dem in Abb. 4.10 gezeigten toroidalen Sektorfeld-Spektrometer.

beschaltet, so daß nur die BSE das Spektrometer ungehindert durchlaufen können, welche die dadurch festgelegte Sollbahn-Energie besitzen. Für die Aufnahme eines Energiespektrums im *Spot*-Modus des SEM wird eine um das Erdpotential symmetrische Potentialrampe an den Elektroden durchfahren. Die das Spektrometer passierenden Elektronen treffen auf den kreisförmig um den Austrittsspalt (S_2) angeordneten Plastik-Szintillator, der die emittierten Photonen an den außerhalb der Probenkammer angebrachten Photomultiplier weiterleitet.

Das toroidale Sektorfeld-Spektrometer läßt sich für eine ortsselektive Analyse bei stationärer Elektronensonde im *Spot*-Modus des SEM sowie für die Aufnahme von energiegefilterten Bildern mit einer rasternden Sonde betreiben. Die kreisförmige Eintritts- bzw. Austrittsblende läßt sich für die unterschiedlichen Betriebsmodi jeweils in ihrer Schlitzbreite variieren. Für die in dieser Arbeit vorliegenden Untersuchungen wurden für den *Spot*-Modus eine Austritts-Schlitzbreite in der Größenordnung 0.1 mm gewählt, die einer relativen Energieauflösung von ca. 1% entspricht. Für den Abbildungsmodus wurde aus Intensitätsgründen eine größere Austritts-Schlitzbreite von ca. 0.2 mm bei entsprechender relativer Energieauflösung von ca. 2% verwendet. Die Eintritts-Schlitzbreite betrug bei beiden Betriebsmodi ca. 1 mm. Gemessen wurde die Energieauflösung des Spektrometers bei den jeweiligen Blenden-Einstellungen mit Hilfe einer auf Primärelektronen-Potential gelegten Stahlkugel. Die einfallenden Primärelektronen lassen sich damit gezielt in verschiedene Positionen der axialsymmetrischen Spektrometer-Eintrittsblende umlenken. Aus der Halbwertsbreite des Primärelektronen-*Peaks* erhält man die relative Energieauflösung des Spektrometers. Aus der energetischen Position des Maximums E_{soll} im Verhältnis zur Ablenkelektroden-Spannung ΔV ergibt sich die Spektrometer-Konstante $k = E_{soll}/e\Delta V$. Je nach Justage des Spektrometers ergaben sich Werte für k von 5.0 bis 5.4, so daß eine Spannung zwischen den Ablenkelektroden von ± 2.8 kV bis ± 3 kV um den symmetrischen Nullpunkt für die Ablenkung von maximal 30 kV-Elektronen ausreichte. Die Bauhöhe des Spektrometers beträgt 24 mm bei einem Fokuspunktabstand von 6 mm zwischen Probenoberfläche und Spektrometer-Unterseite. Daraus ergibt sich ein fester Arbeitsabstand von 30 mm für alle durchgeführten Untersuchungen. In Abschnitt 5.2.2 werden die mit diesem Spektrometer durchgeführten Untersuchungen zur energiegefilterten Abbildung und Spektroskopie der Rückstreuielektronen vorgestellt und Möglichkeiten zur Verbesserung des Verfahrens diskutiert.

4.3.2 „Sphärisches“ Sektorfeld-Spektrometer nach Jost

Die Abbildung 4.12 zeigt den konzeptionellen Aufbau zur Spektroskopie und Energiefilterung transmittierter Elektronen im Niederenergie-Bereich. Kernstück des Aufbaus ist der von Jost (1979b,a) entwickelte „sphärische“ Sektorfeld-Analysator. Dieser wurde ausgewählt, da er im wesentlichen die elektronenoptischen Eigenschaften eines echten sphärischen Sektorfeld-Analysators besitzt, dabei aber um etwa einen Faktor 2/3 kleiner und leichter ist. Der Aufbau bietet den Vorteil, daß die äußere Elektrode auf einfache Art und Weise durch ein Netz gebildet werden kann, was eine starke Unterdrückung der Streuelektren innerhalb des Spektrometers bewirkt (Marmet und Kerwin, 1960). Nachteilig bei der Verwendung des Jost-Spektrometers anstelle eines echten sphärischen Sektorfeld-Spektrometers wirkt sich nur aus, daß die Fokussierung in der zur Ablenkebene senkrechten Ebene größtenteils verloren geht.

Das in Abbildung 4.13 detailliert gezeigte Spektrometer ermöglicht es, energiegefilterte Abbildungen (ESI) bzw. Messungen von Energieverlustspektren (EELS) transmittierter Elektronen im Niederenergie-Bereich durchzuführen. Aus den baulichen Abmessungen des Jost-Analysators nach Grafik 4.13(b) ergibt sich die Spektrometer-Konstante $k = E_{soll}/e\Delta V = r_a r_b / [(r_a)^2 + (r_b)^2] \approx 1.026$ mit $r_a = 20$ mm und $r_b = 32$ mm dem Radius der inneren und äußeren Ablenkelektrode (Jost, 1979b). Nach Roy und Carette (1977) läßt sich die Energieauflösung des Jost-Spektrometers folgendermaßen abschätzen: Die relative Basis-Energiebreite eines sphärischen Sektorfeld-Spektrometers kann über die Beziehung $\delta E_{rb} = \delta E_b / E_{soll} = s_1 + s_2 / (2R_0) + \gamma_r^2$ bestimmt werden. Dabei ist s_1 , s_2 die Ein- bzw. Austrittsspaltbreite, R_0 der Sollbahn-Radius und γ_r der halbe Öffnungswinkel des Spektrometers in Ablenkrichtung. Mit $s_1 = s_2 = 0.5$ mm, $R_0 = 26$ mm und $\gamma_r \approx 0.05$ rad ergibt sich für $\delta E_{rb} \approx 2\%$. Die relative Halbwerts-Energiebreite folgt dann aus $\delta E_r \approx 1/2 \delta E_{rb} \approx 1\%$. Eine Erniedrigung dieses Wertes kann durch die Verringerung der Spaltbreiten erreicht werden.

Die Abbildung 4.13(a) zeigt das Funktions-Prinzip des Aufbaus. Der Primärelektronenstrahl trifft auf eine dünne, auf ein TEM-Netz aufgebrachte Schicht des in Abbildung 4.15 gezeigten Transmissionsprobenhalters. Dieser ermöglicht eine Verschiebung der Probe in x -, y - und z -Richtung sowie eine Kippung um eine Drehachse φ_k . Die gestreuten Elektronen unterhalb der Probe gelangen durch die Eintrittsblendenöffnung in den Raum zwischen die beiden Ablenkplatten, wo sie durch das elektrische Feld energiedispersiv abgelenkt werden. Die Ablenkelektroden liegen auf den Potentialen V_a und V_b . Die Besonderheit des Jostschen Spektrometers sind die in Abbildung 4.13(b) gezeigten Hilfselektroden V_h . Sie werden mit einem Potential $V_h = 0.4 V_a + 0.6 V_b$ beschaltet, so daß sich in der Region um die Zentralbahn in guter Näherung sphärische Äquipotentiallinien ergeben (Jost, 1979b), obwohl die Elektrodenform nichtsphärisch ist. Durch diese Beschaltung der Hilfselektroden verhält sich das Jostsche Spektrometer in der Nähe der Zentralbahn in guter Näherung wie ein echtes sphärisches Sektorfeld-Spektrometer. Die Elektronen, die eine entsprechende

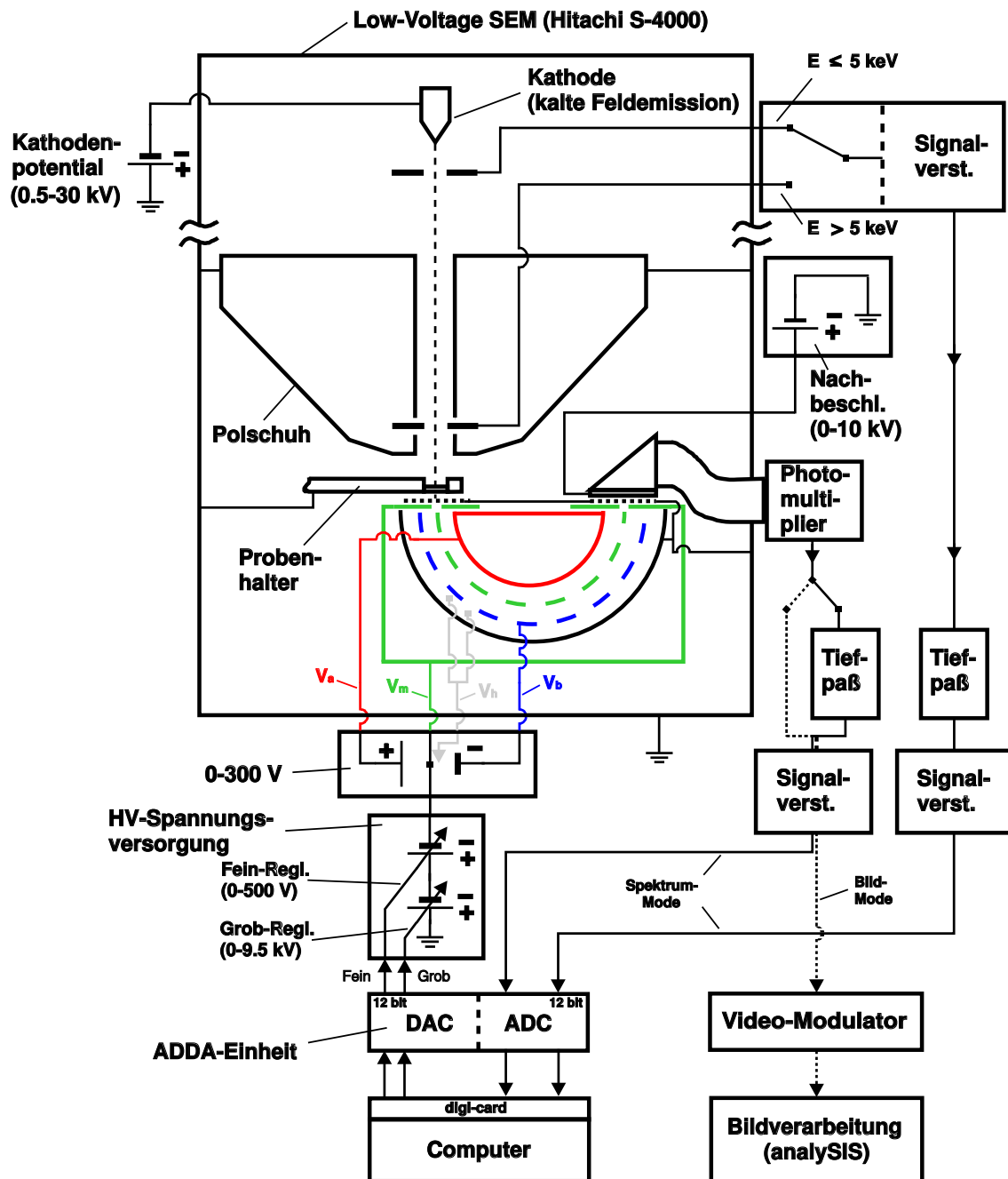
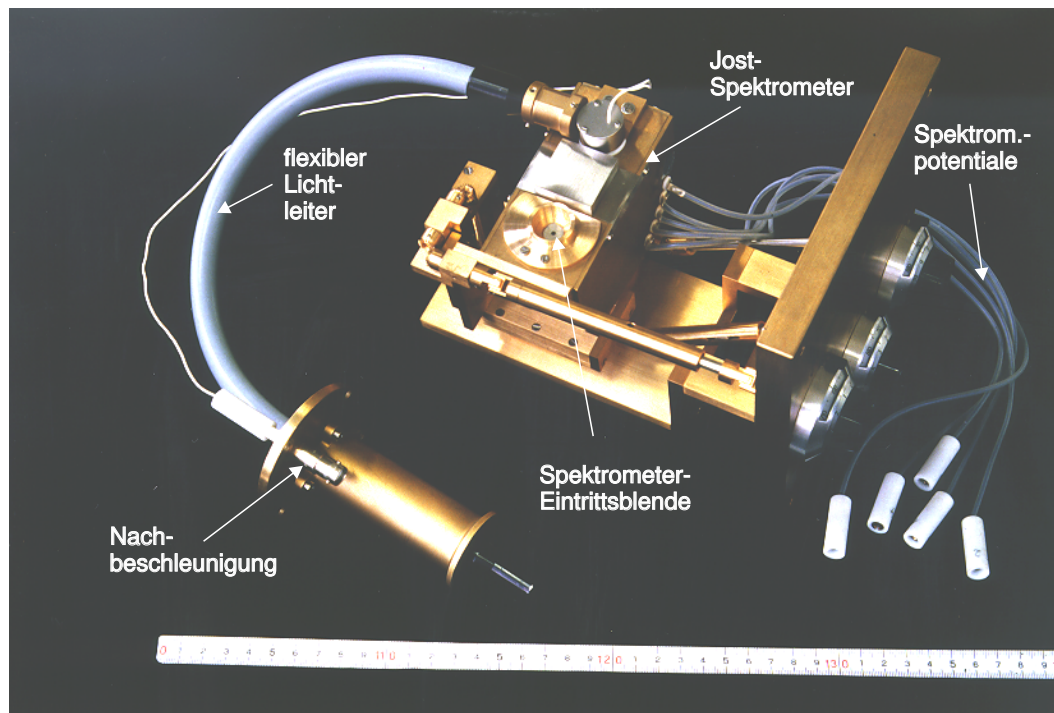
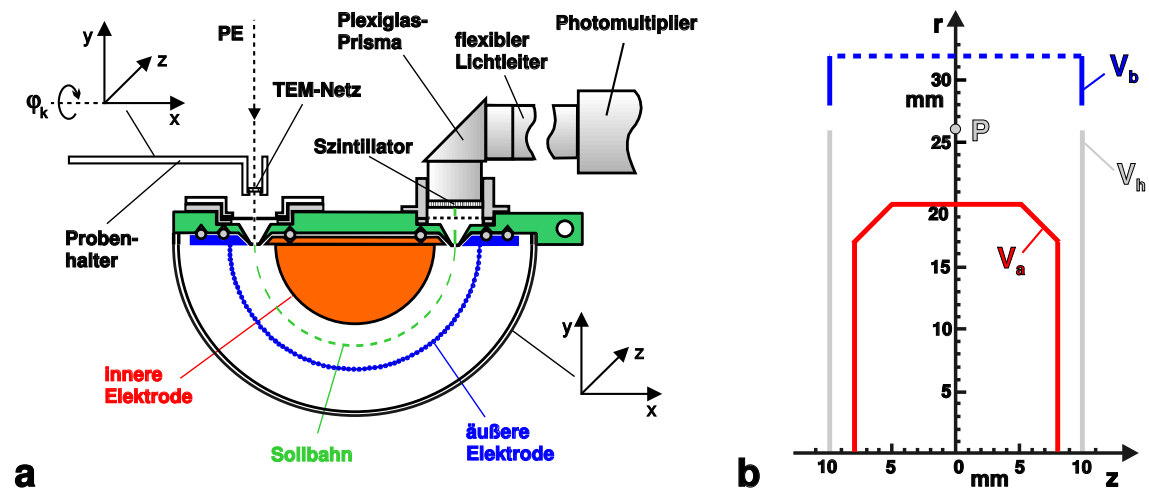


Abb. 4.12: Meßaufbau zur Aufnahme von energiegefilterten Bildern bzw. EEL-Spektren im STEM-Modus des S-4000SEM mit dem in Abb. 4.13 gezeigten „sphärischen“ Sektorfeld-Spektrometer; die genaue Anordnung der Hilfelektroden V_h ist in Abb. 4.13(b) gezeigt.



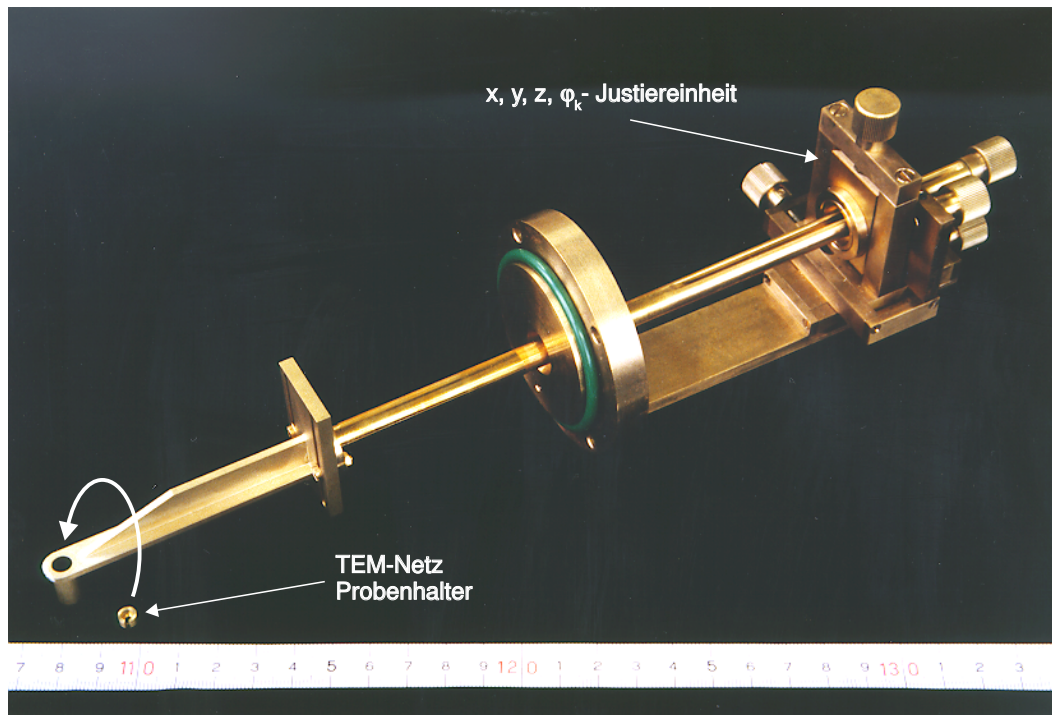


Abb. 4.15: Konstruierter Probenhalter mit x, y, z, φ_k -Justiereinheit zur Untersuchung freitragender Schichten im STEM-Modus des S-4000 SEM.

Sollbahn-Energie besitzen, gelangen auf der Zentralbahn durch das Spektrometer hindurch und passieren die Austrittsöffnung. Dort werden die Elektronen durch ein Beschleunigungsfeld ($V_{sz} = +5 \text{ kV}$) auf einen mit Aluminium bedampften Plastik-Szintillator (NE 102) nachbeschleunigt, um die Photonenausbeute zu erhöhen. Zur Reduzierung der Oxidations-Empfindlichkeit läßt sich auch Ti alternativ zu Al als Szintillator-Beschichtung verwenden Hejna (1996). Die erzeugten Lichtblitze werden über die Totalreflexion in einem Plexiglasprisma in ein Lichtleitfaserbündel eingekoppelt und zur Photokathode eines Photomultipliers weitergeleitet. Das verstärkte Signal wird über einen zweiten Signalverstärker wahlweise dem Aux-Eingang des SEM-Monitors zur Aufnahme von energiegefilterten Bildern oder einem PC zur Aufnahme von Energiespektren zugeführt. Durch die Verwendung des flexiblen Lichtleitfaserbündels läßt sich das Spektrometer während des Betriebs im Vakuum in x -, y - und z -Richtung justieren, so daß eine optimale Positionierung der Spektrometer-Eintrittsblende auf die zu analysierende Probenstelle gewährleistet ist.

Der Aufbau mit dem Jost-Spektrometer ermöglicht wie auch der mit dem toroidalen Spektrometer den Gebrauch im Bild- und Spektrum-Modus. Somit lassen sich einerseits energiegefilterte Abbildungen und andererseits auch Energieverlustspektren von dünnen Filmen aufzeichnen. Darüber hinaus bietet der obige Aufbau die Möglichkeit, das Spektrometer in beiden analytischen Betriebsmodi, entweder (a) dem Spektrometerbetrieb bzw. (b) dem Monochromatorbetrieb, zu betreiben.

Alle in dieser Arbeit in Abschnitt 5.1.2 gezeigten Ergebnisse wurden ausschließlich im Monochromatorbetrieb-Typ I (vgl. Abschnitt 3.2.2) also mittels einer Abbremsung der eintreffenden Elektronen aufgezeichnet. So konnte eine konstante, absolute Energieauflösung in der Größenordnung weniger eV erzielt werden. Für das Jost-Spektrometer bedeutet der Monochromatorbetrieb, daß das Potential ΔV zwischen den beiden Ablenkelektroden (V_a , V_b) während der Aufnahme eines Spektrums konstant bleibt. Bei symmetrischer Anordnung der Potentiale V_a und V_b um das für die variable Abbremsung der Elektronen nötige Abbremspotential V_m ergibt sich

$$V_a = V_m + \left(\frac{\Delta V}{2} \right) \quad \text{und} \quad V_b = V_m - \left(\frac{\Delta V}{2} \right) . \quad (4.1)$$

Nach Ausnutzung der Beziehung $V_h = 0.4 V_a + 0.6 V_b$ folgt

$$V_h = V_m - 0.2 \left(\frac{\Delta V}{2} \right) . \quad (4.2)$$

V_h setzt sich daher im Monochromator-Modus aus einer Summe eines variierenden Potentials V_m und einem konstanten Anteil $-0.2 (\Delta V/2)$ zusammen. Für die Praxis hat dieser Umstand die wichtige Konsequenz, daß die Ablenkelektrodenpotentiale V_a und V_b zusammen mit dem Hilfselektrodenpotential V_h aus einer vom variierenden Abbremspotential V_m separierten Spannungsversorgung erhalten werden können. Die konstanten Potentialdifferenzen zwischen V_a , V_b und V_h werden daher nur zu Beginn einer Messung eingestellt. Das Durchfahren eines Spektrums erfolgt anschließend nur durch die Variation des Potentials V_m .

4.4 Probenpräparation

Für die Untersuchungen in Transmission (Abschnitt 5.1) wurden freitragende Schichten ($t < R$) mit Hilfe von Präparationsverfahren erstellt, wie sie in der Transmissionselektronenmikroskopie üblich sind. Alle für diese Arbeit erzeugten Aufdampfschichten wurden in einer Hochvakuum-Verdampfungsanlage (Edwards-E306A) bei einem Restdruck im Rezipienten von $p < 2 \cdot 10^{-5}$ hPa hergestellt. Die Messungen zur Rückstreuung in Abschnitt 5.2 erfolgten an massiven Proben ($t \gg R$).

Im folgenden werden die in dieser Arbeit verwendeten Präparationstechniken für die Herstellung der freitragenden Schichten und massiven Proben beschrieben.

Präparation der freitragenden Schichten

C- und Al-Schichten: Für die Untersuchungen zur Transmission (vgl. Abschnitt 5.1.1 und 5.1.2) wurden ca. 10–20 nm dünne, freitragende C- und Al-Schichten hergestellt. Kohlenstoff wurde dabei mit Hilfe zweier, mit einer Feder aneinandergedrückter Spektralkohlestäbe im Hochvakuum nach der Methode von Bradley (Reimer, 1967) verdampft. Für die Verdampfung von Aluminium ließ sich ein Wolfram-Schiffchen verwenden.

Als Unterlage für die Schichten diente ein Glasobjektträger. Dieser wurde zunächst mit Ethanol und danach mit destilliertem Wasser gereinigt. Anschließend wurde dieser Objektträger mit einer dünnen, hydrophilen Salzschrift (Polyphosphat, „Grahamsches Salz“) beschichtet, um ein problemloses Ablösen der darauf abgelagerten Materialschicht zu gewährleisten. Für den Aufdampfvorgang wurde ein Abstand zwischen Verdampfungsquelle und Glasobjektträger von 16–20 cm gewählt, um eine mittlere Massendickenabweichung auf dem Objektträger von kleiner als ca. 1%/cm zu erhalten. Die erzeugten Schichten wurden in destilliertem Wasser abgeflottet und auf 300- bzw. 400-*mesh* TEM-Kupfernetze aufgefischt.

Formvar-Schichten: Für die Untersuchungen zur Energiefilterung mit dem Jostschen Spektrometer (vgl. Abschnitt 5.1.2) wurden des weiteren freitragende, mit Gold-Inseln bedampfte Formvar-Schichten verwendet. Formvar bzw. Movital ist eine Firmenbezeichnung für Polyvinylformal(-dehyd) $(C_3O_2H_4)_n$ und bietet als Trägermaterial den Vorteil, daß sich vergleichsweise stabile dünne Schichten herstellen lassen. Nachteilig wirkt sich jedoch die höhere Kontaminationsrate aus, die durch Diffusion der unter Elektronenbestrahlung leicht flüchtigen Wasserstoff- und Sauerstoff-Anteile in der Probe entsteht. Für die Herstellung der dünnen Formvarschichten wurde ein gereinigter Glasobjektträger in eine ca. 0.3 Gew. %-ige Lösung von Polyvinylformaldehyd in Chloroform getaucht, anschließend mit einer konstanten Geschwindigkeit von etwa 4 cm/s aus der Lösung herausgezogen und zum Trocknen senkrecht abgestellt. Zurück bleibt ein rundum mit Formvar bedeckter Objektträger, da das Chloroform in der Deckschicht nach etwa 10 Minuten verdunstet ist. Die unterschiedlichen Verweildauern der Bereiche eines Objektträgers und die Gravitation

sorgen dafür, daß die Schichtdicke der bedeckenden Folie von oben nach unten zunimmt. Um die Schicht einer Seite des rundum beschichteten Glasobjektträgers in destilliertem Wasser abflotten zu können, wurde die geschlossene Oberfläche an den Kanten einer Seite vorsichtig mit einem Skalpell durchgeschnitten. Der auf der Oberfläche schwimmende Formvarfilm wurde an den dünnen Schichtdickenbereichen so mit TEM-Probennetzen belegt, daß deren raue Seite Kontakt mit der Folie hatte. Zum Abheben des mit den Netzen belegten Formvarfilms wurde ein streifenförmiges Stück Filtrierpapier ausreichender Größe auf die Wasseroberfläche gelegt und nach vollständiger Benetzung zusammen mit den haftenbleibenden Netzen und dem Film zügig angehoben und gewendet. Nach dem Trocknungsvorgang von etwa 20 Stunden ließen sich die TEM-Netze einfach vom Filtrierpapier lösen.

Auf die so präparierten TEM-Netze mit aufliegender Formvar-Schicht bzw. Kohlenstoff-Schicht wurde durch Hochvakuumverdampfung nach dem von Bracker (1979) beschriebenen Verfahren, Gold inselförmig aufgedampft. Dabei wurden mehrere gleichförmig beschichtete TEM-Netzchen in unterschiedlichen Abständen von der Verdampfungsquelle positioniert, so daß mit einem Aufdampfvorgang unterschiedliche Inselgrößen realisiert werden konnten.

Präparation der massiven Proben

Die in Abschnitt 5.2.1 gezeigten Messungen der Rückstreuenergieverteilung erfolgten an einem $5 \times 5 \text{ mm}^2$ großen Si-*Wafer*-Stück auf dessen einer Hälfte durch Hochvakuumverdampfung Gold in einer Dicke größer als die Reichweite für 10 keV Elektronen aufgebracht wurde. Für die grobe Abschätzung der Elektronenreichweite wurde die in Abschnitt 2.3.1 genannte Formel von Libby verwendet.

Die mit dem toroidalen Sektorfeld-Spektrometer durchgeführten Untersuchungen wurden mit zwei unterschiedlichen Vielfachschicht-Proben (Abbildung 5.11 und 5.15) und mit einem unpräparierten Mikro-Chip erhalten. Die Si/PMMA/Au-Vielfachschicht-Probe in Abbildung 5.11 wurde in der Moskauer-Arbeitsgruppe um Prof. E. I. Rau hergestellt. Dabei wurden abwechselnd PMMA- und Au-Schichten aufgebracht. Die unterschiedlichen Sequenzen an variierenden Schichten wurden realisiert, indem eine kreuzförmige Lochmaske vor jedem Au-Bedampfungsvorgang verschoben wurde. Die Herstellung der in Abbildung 5.15 gezeigten Cu/Al/Cu-Vielfachschicht-Probe erfolgte durch stufenweises Aufdampfen rechteckiger Bereiche aus Al und Cu auf einen quaderförmigen Si-*Wafer*. Der Si-*Wafer* wurde als Substrat verwendet, um Aufdampfschichten mit vernachlässigbarer Oberflächenrauigkeit zu produzieren. Eine grobe Abschätzung, der für die gewünschten Schichtdicken benötigten Material-Verdampfungsmengen, erfolgte unter Berücksichtigung des Abstandes und der von Reimer und Gadacz (1961) bestimmten Richtungscharakteristik bei der Hochvakuumverdampfung aus einem W-Schiffchen. Die einzelnen, rechteckigen Bereiche der verschiedenen Elemente wurden durch schrittweises Abdecken mit eng anliegenden Streifen aus Aluminium erzeugt.

Für alle spektroskopischen Untersuchungen wurden die verwendeten massiven Proben mit Leit-Silber plan auf einem Al-*Stub* aufgeklebt. Um einen möglichst guten elektrischen Kontakt der Schichten zur Unterlage zu gewährleisten, wurden die Schichten an den Randbereichen des *Wafers* zusätzlich mit Leit-Silber kontaktiert.

Schichtdickenbestimmung

Freitragende Schichten: Die Massendicken aller auf TEM-Probennetze präparierten freitragenden dünnen Schichten wurden mit Hilfe eines auf den Arbeiten von Lange (1966), Sommer (1968) und Roß-Meßmer (1989) basierenden THICKNESS-Programms bestimmt. Dabei wird der exponentielle Abfall der aperturabhängigen Elektronentransmission $T(\alpha_0) = I/I_0 = \exp[-x/x_k(\alpha_0)]$ mit zunehmender Massendicke x ausgenutzt. I stellt dabei die Elektronenintensität bei einer mit einer Schicht belegten Netzmasche und I_0 bei einer unbelegten Netzmasche dar. Die entsprechenden Kontrastdicken x_k wurden von Reimer und Sommer (1968) für den Energiebereich von 17–1200 keV bei verschiedenen Elementen und Aperturen bestimmt. Bei logarithmischer Auftragung der Transmission T gegen die Massendicke ergibt sich daher ein linearer Abfall bis zu einer Massendicke von etwa $\lesssim 45 \mu\text{g}/\text{cm}^2$. Für Massendicken $\gtrsim 45 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ geht der logarithmische Verlauf der Transmission aufgrund der zunehmenden Mehrfachstreuung in einen Sättigungswert über, so daß in diesem Fall für die genaue Bestimmung der Massendicke der von der Linearität abweichende Verlauf berücksichtigt werden muß. Die zugehörige Schichtdicke t ergibt sich aus der Beziehung $t = x/\rho$. Alle Transmissionsmessungen zur Bestimmung der Massendicke der verwendeten freitragenden Schichten wurden mit einem Zeiss EM902 EFTEM durchgeführt.

Schichten auf massiven Substraten: Die Schichtdickenbestimmung aller auf massive Präparate aufgedampften Schichten wurde nach dem Vielstrahlinterferenz-Verfahren von Tolanski ausgemessen. Mit dieser Methode lassen sich bei einer verwendeten Lichtwellenlänge von $\lambda_{ph} = 546 \text{ nm}$ Schichtdicken bis herab zu etwa 10 nm bestimmen. Eine genaue Beschreibung dieses Verfahrens findet sich bei Reimer (1967). Darüber hinaus existieren zahlreiche weitere Verfahren zur experimentellen Bestimmung der lokalen Objektdicke (Reimer *et al.*, 1993). Für spektroskopische Untersuchungen an dünnen Schichten ist dabei das t/λ_{in} -Verfahren besonders interessant. Die lokale Schichtdicke eines Objektes kann danach aus dem Energieverlustspektrum nach $t/\lambda_{in} = \ln(I_1/I_0)$ bestimmt werden, so daß dafür keine zusätzliche Messung notwendig ist. Dabei ist λ_{in} die inelastische mittlere freie Weglänge, I_1 die Fläche unter der Energieverlustkurve mit einem Energiefenster, das den ersten Plasmonen-*Peak* einschließt und I_0 die Fläche unter dem *Zero-loss-Peak*. Im Energiebereich $E > 80 \text{ keV}$ läßt sich dieses Verfahren für den Bereich von $0.2 < \lambda_{in} < 5$ mit einer Genauigkeit von $< 10\%$ anwenden (Leapman *et al.*, 1984). Untersuchungen dazu in welchem Umfang sich diese Methode auch in dem für diese Arbeit besonders interessanten Energiebereich von $E \leq 10 \text{ keV}$ verwenden läßt, stehen noch aus.

Kapitel 5

Ergebnisse und Diskussion

Im folgenden Unterkapitel werden die Ergebnisse vorgestellt, wie sie mit den in den Abschnitten 4.2.1 und 4.3.2 gezeigten Elektronen-Spektrometern bei Untersuchungen zur Transmission erzielt wurden. Der darauffolgende Abschnitt befaßt sich hingegen mit den in Rückstreuung erhaltenen Ergebnissen. Dabei wurden die in den Abschnitten 4.2.2 und 4.3.1 gezeigten Spektrometer verwendet.

5.1 Untersuchungen zur Transmission

Eine wichtige Größe bei der elektronenmikroskopischen Abbildung einer dünnen Probe in Transmission ist der Streukontrast zwischen zwei Objektpunkten. Besonders bei biologischen Dünnschnitten reicht der mit konventionellen TEM erreichbare Streukontrast von Elementen mit niedriger Ordnungszahl alleine oft nicht aus, um verschiedene Bereiche der Probe voneinander unterscheiden zu können. Aus diesem Grund werden charakteristische Bereiche einer solchen Probe typischerweise mit einem Schwermetall kontrastiert.

Eine Steigerung des Streukontrastes eines in Transmission aufgezeichneten elektronenmikroskopischen Bildes einer dünnen Probe kann im wesentlichen durch drei gerätetechnische Ansätze erzielt werden:

- **Verringerung der Objektivapertur:** Durch den Einsatz einer entsprechenden Beobachtungs- bzw. Kontrastblende hinter der Probe werden die in große Winkel gestreuten Elektronen herausgefiltert, so daß sich eine Kontrastverbesserung zwischen stark und weniger stark streuenden Bereichen der Probe mit abnehmendem Blendendurchmesser ergibt. Der beliebigen Verringerung der Beobachtungsapertur sind jedoch Grenzen durch das abnehmende Signal/Rausch-Verhältnis gesetzt.
- **Verringerung der Beschleunigungsspannung:** Die effektivste Möglichkeit, den Streukontrast erheblich zu steigern, läßt sich durch die Verringerung

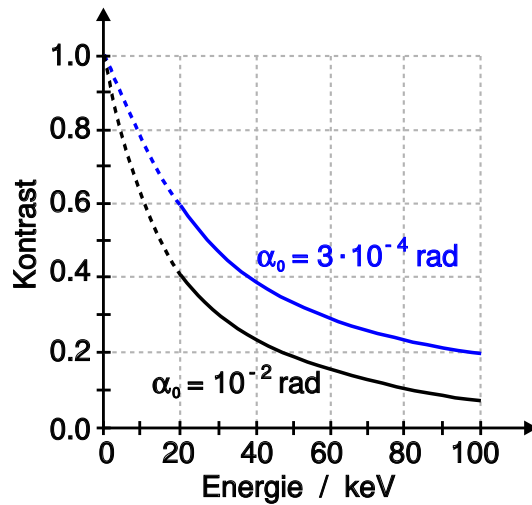


Abb. 5.1: Abhängigkeit des Bildkontrastes eines 28 nm dünnen Kohlefilms von der Primärenergie und der Objektivapertur (Stolz und Möllenstedt, 1971).

der Primärenergie erzielen (Nixon, 1958; Wilska, 1960; van Dorsten und Prem-sela, 1960). Die Kontraststeigerung kommt dabei durch den Anstieg des mittleren Streuwinkels mit abnehmender Primärenergie zustande. Darüber hinaus ergibt sich als weiterer Vorteil mit abnehmender Beschleunigungsspannung ein Anstieg des totalen Streuquerschnitts (Hall, 1953).

- **Energiefilterung (Zero-loss-Filterung):** Bei der *Zero-loss-Filterung* in Transmission wird eine Kontraststeigerung erreicht, indem der störende Untergrund aller unelastisch gestreuten Elektronen aus dem Signal herausgefiltert wird.

Im folgenden werden die beiden letztgenannten Ansätze näher untersucht. Eine Abschätzung der Kontraststeigerung mit Abnahme der Primärenergie ist aus der in Abbildung 5.1 gezeigten Grafik ersichtlich (Stolz und Möllenstedt, 1971). Danach wird z. B. bei einem Übergang von 80 keV nach 20 keV ein Kontrastgewinn von einem Faktor vier und beim Übergang von 20 keV nach 5 keV um einen weiteren Faktor von etwa zwei erwartet. Untersuchungen dazu wurden von Heinemann und Möllenstedt (1967) sowie Stolz und Möllenstedt (1971) durchgeführt. Sie verwendeten ein Transmissionselektronenmikroskop mit Zwischenverzögerer, bei dem die Elektronen vor dem Objekt abgebremst und nach Durchlaufen der Probe wieder beschleunigt wurden. Dabei konnten die in Abbildung 5.1 gezeigten hohen Kontraststeigerungen gegenüber konventionellen Elektronenmikroskopen erzielt werden. Die damit verbundene Verschlechterung der Auflösung spielt für viele Anwendungen eine untergeordnete Rolle. Die Grenzen aller früheren Aufbauten waren im wesentlichen durch den schlechten Richtstrahlwert der thermischen Wolfram-Haarnadelkathoden bestimmt. Die Entwicklung der FE- bzw. Schottky-Kathoden mit ihren deutlich höheren Richtstrahlwerten und kleineren Energiebreiten weckte erneut das Interesse

an der LV(S)TEM. Moderne hochauflösende LVSEMs verfügen über einen derartigen Kathodentyp. Golla (1993) zeigte den möglichen Kontrastgewinn bei Verringerung der Beschleunigungsspannung an biologischen Dünnschnitten und C-Trägerfolien mit einem Raster-Transmissionsaufbau in einem LVSEM. Darüber hinaus wurden mit diesem Aufbau Messungen der Kontrastdicke x_k für den Energiebereich von $1.5 \text{ keV} \leq E \leq 30 \text{ keV}$ für C und Pt durchgeführt (Golla *et al.*, 1993), die eine Erweiterung der Messungen von Reimer und Sommer (1968) auf den Niederenergiebereich darstellen. Die Kenntnis des Wertes von x_k erlaubt es, die exponentielle Abnahme der Transmission $T \propto \exp(-x/x_k)$ mit ansteigender Massendicke $x = \rho t$ der Probe und die damit verbundene Erhöhung des Kontrastes $K = -\log(T) = -\log(I/I_0) \propto 1/x_k$ bei abnehmender Elektronenenergie zu berechnen.

5.1.1 Gegenfeld-Filterlinse

Die in Abbildung 5.2 mit der in Abschnitt 4.2.1 beschriebenen Gegenfeld-Filterlinse erhaltenen Aufnahmen zeigen den möglichen Kontrastgewinn bei Reduzierung der Primärenergie. Die elektronenmikroskopischen Bilder wurden von oben nach unten mit einer abnehmenden Primärenergie von 20, 9 und 3 keV aufgenommen. Die Aufnahmen auf der rechten Seite wurden im STEM-Modus ohne Energiefilterung aufgezeichnet. Zum Vergleich sind die entsprechenden Sekundärelektronenbilder von der Oberseite der Schicht auf der linken Seite gegenübergestellt. Die Bilder sind Aufnahmen derselben Probenstelle einer freitragenden C-Trägerfolie, die mit Au-Inseln bedampft wurde. In der Mitte der abgebildeten Netzmasche wurden durch die Abrasterung der entsprechenden Objektbereiche bei hohen Vergrößerungen gezielt Kontaminationsfenster aufgebracht. Während sowohl die Kontaminationsfenster als auch die kleineren Au-Inselbereiche im STEM-Bild in Abbildung 5.2(b) bei einer Primärenergie von 20 keV nahezu nicht zu erkennen sind, so werden diese Bereiche mit abnehmender Energie mit einem deutlichen Kontrastgewinn abgebildet. Darin zeigt sich ein erheblicher Vorteil bei der Verwendung des Raster-Transmissionsbetriebs in einem LVSEM gegenüber der Abbildung in einem TEM. Die SE-Bilder in den Abbildungen 5.2(a), (c), (e) zeigen zwar bzgl. der Abbildung unterschiedlicher Elemente und Massendickebereiche einen schlechteren Kontrast, liefern aber aufgrund ihrer Oberflächensensibilität zusätzlich wichtige, komplementäre Informationen über die Beschaffenheit der Probe. So treten beispielsweise Unebenheiten der C-Trägerfolie im SE-Bild in Erscheinung (vgl. Abbildung 5.2(c)), die in keinem der STEM-Bilder zu erkennen sind.

Der zusätzliche Kontrastgewinn in Transmission, der sich durch eine *Zero-loss*-Filterung mit der konstruierten Gegenfeld-Filterlinse erzielen läßt, ist in der Abbildung 5.3 ersichtlich. Dabei wurden die oberen Aufnahmen bei einer Primärenergie von 9 keV, die unteren bei einer Energie von 3 keV aufgenommen. Die Bilder der linken Spalte in Abbildung 5.3(a) und (c) wurden ungefiltert, die entsprechenden Aufnahmen der rechten Spalte in Abbildung 5.3(b) und (d)

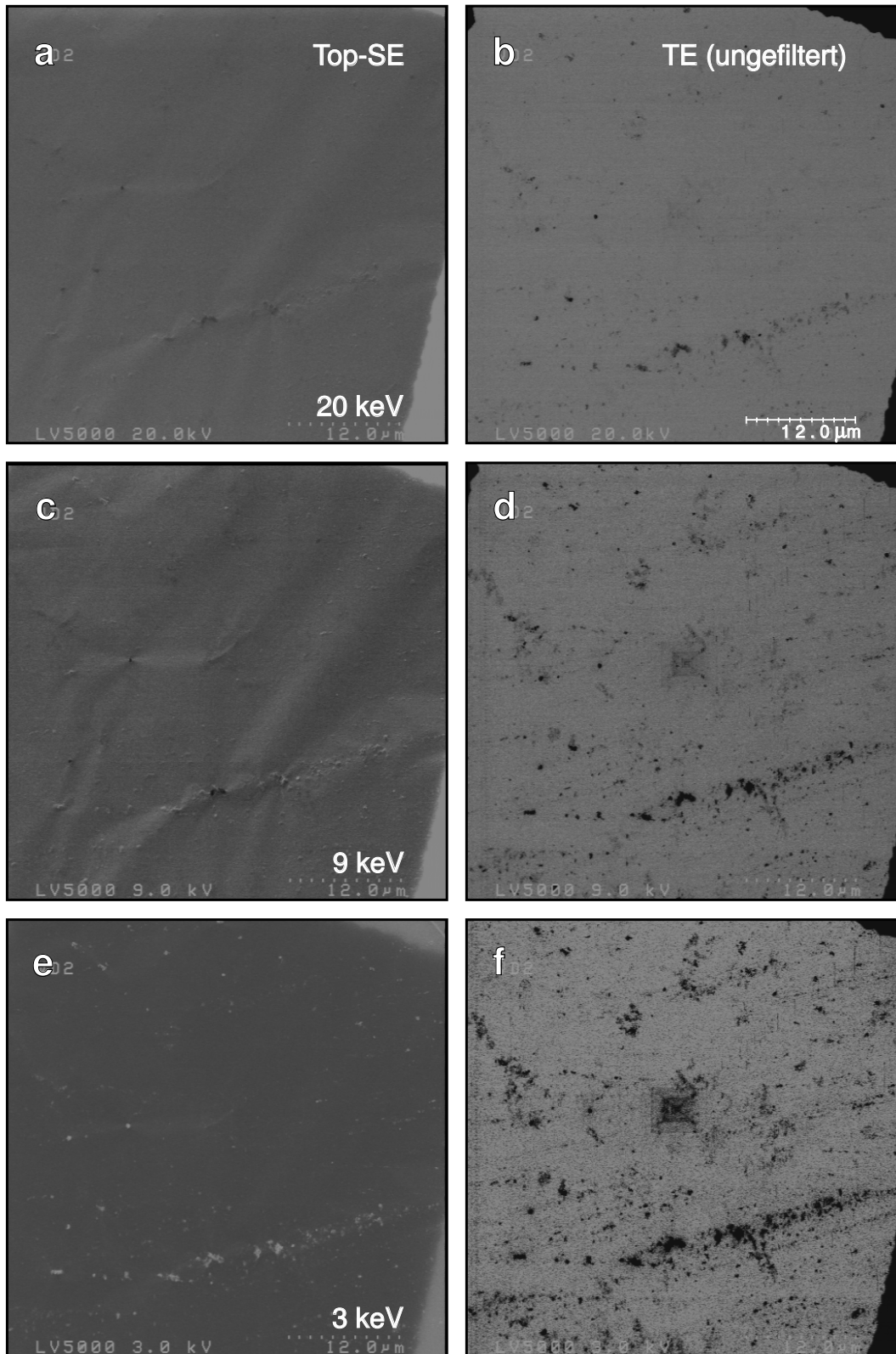


Abb. 5.2: TEM-Netzmasche einer ca. 20 nm dünnen mit Au-Inseln bedampften C-Trägerfolie; (a), (c), (e): SE-Bild der Oberseite bei Primärenergien von 20, 9, 3 keV aufgenommen; (b), (d), (f): mit der in Bild 4.3 gezeigten Gegenfeld-Filterlinse im (ungefilterten) STEM-Modus erhaltene Aufnahmen derselben Probenstelle. In der Mitte der Netzmasche sind gezielt aufgebrachte Kontaminationsfenster zu sehen.

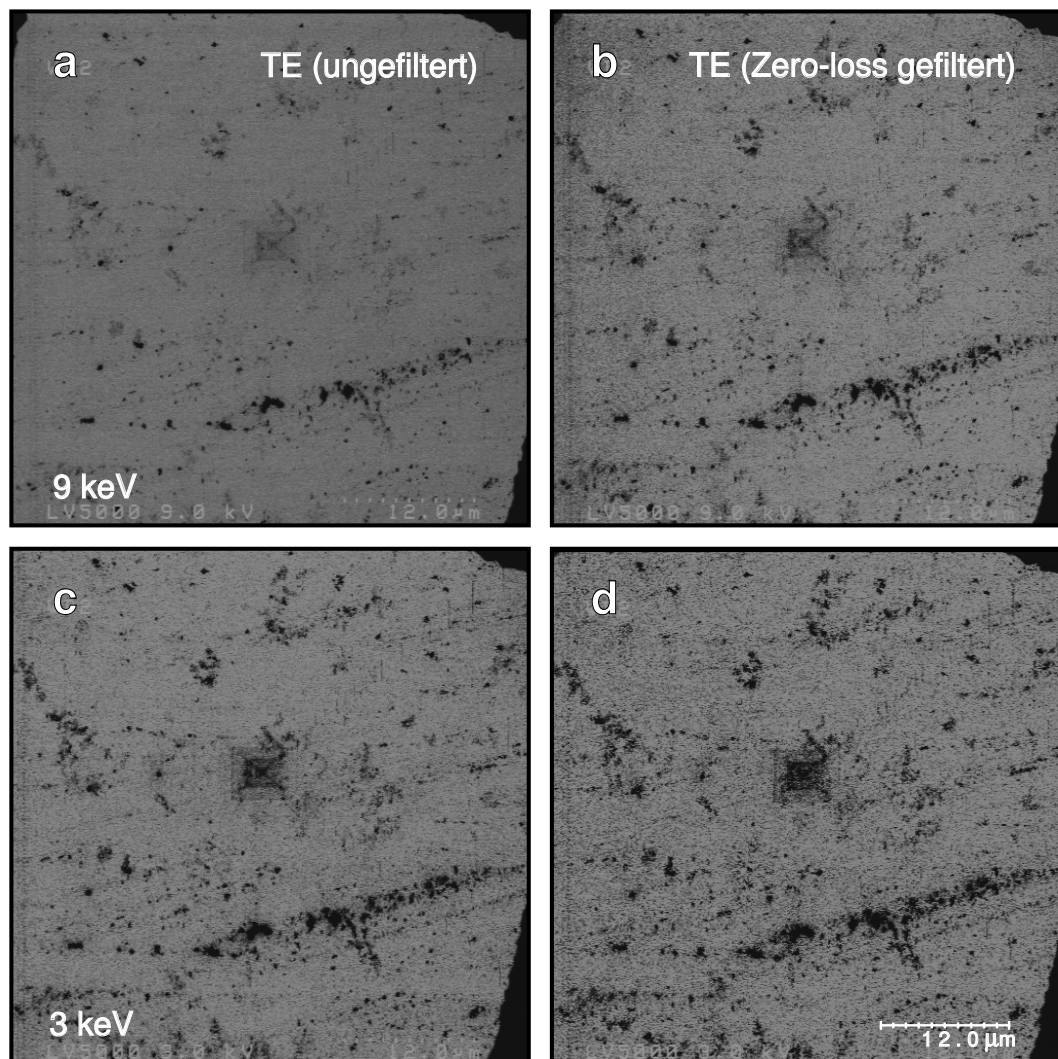


Abb. 5.3: Vergleich von ungefilterten (**links**) und *Zero-loss* gefilterten (**rechts**) Raster-Transmissionselektronen-Bildern einer ca. 20 nm dünnen mit Au-Inseln bedampften C-Folie; **oben** sind die jeweiligen Bilder für 9 keV und **unten** für 3 keV Primärenergie gezeigt.

hingegen mit Hilfe der *Zero-loss*-Filterung erhalten.

Die vorgestellten Untersuchungen zur Transmission zeigen, daß die Absenkung der Primärenergie unterhalb von 10 keV in Verbindung mit einer *Zero-loss*-Filterung die Möglichkeit bietet, Strukturen, die für die konventionelle TEM zu dünn sind bzw. zu geringe Massendicken- oder Konzentrationsunterschiede aufweisen, mit einem erheblich größeren Kontrast abzubilden. Für viele biologische Dünnschnitte bedeutet dies, daß eine Kontrastierung bzw. Schrägbeschattung überflüssig wird. Bei Proben, die dennoch eine Schrägbeschattung erfordern, können geringere Bedampfungsmen-

gen verwendet werden, um einen ausreichenden Kontrast zu erhalten. Dadurch bleiben kleinere Objektstrukturen für die Abbildung erhalten und werden nicht durch die Bedampfungsschicht überdeckt.

Neben den Vorteilen des erhöhten Kontrasts und des Anstiegs des totalen Wirkungsquerschnitts ergeben sich aber auch Schwierigkeiten bei der Mikroskopie mit langsamen Elektronen. Mit Abnahme der Beschleunigungsspannung ergibt sich ein verminderter Richtstrahlwert, eine erhöhte Kontamination, eine geringere Detektionsempfindlichkeit und eine stärkere Anfälligkeit gegen elektromagnetische Störfelder und elektrische Aufladungen. Mit abnehmender Primärenergie sinkt die Elektronenreichweite, was die Verwendung kleinerer Probenschichtdicken erforderlich macht. Somit werden höhere Anforderungen an die Präparation gestellt besonders für die Untersuchungen an biologischen bzw. medizinischen Proben. Die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Untersuchungen sowie Messungen von Golla *et al.* (1993) zeigen, daß sich der neu entwickelte STEM-Meßaufbau für biologische Proben mit Schichtdicken $t \lesssim 50$ nm im ausnutzbaren Primärenergiebereich verwenden läßt.

5.1.2 „Sphärisches“ Sektorfeld-Spektrometer nach Jost

Im folgenden werden die Ergebnisse vorgestellt und diskutiert, die mit dem in Kapitel 4.3.2 beschriebenen Meßaufbau zur Energiefilterung und Spektroskopie transmittierter Elektronen im Niederenergiebereich erhalten wurden (Schindler *et al.*, 1998). Das in den Abbildungen 4.12 bis 4.14 gezeigte „sphärische“ Sektorfeld-Spektrometer nach Jost wurde sowohl im Abbildungs- als auch im Spektrum-Modus verwendet. Die ausnutzbare maximale Primärenergie ist noch auf 3 keV beschränkt, da das verwendete Original des Jostschen Spektrometers für Spannungen konzipiert wurde, wie sie in der Oberflächenanalytik üblich sind. In Abbildung 5.4(b) – (d) sind die mit diesem Meßaufbau in Transmission erhaltenen energiegefilterten Bilder derselben Probenstelle einer 18 nm dünnen, mit Au-Inseln bedampften Formvar-Trägerfolie gezeigt. Das Spektrometer wurde dabei im Rastermodus des SEM betrieben. Abbildung 5.4(b) wurde dabei *Zero-loss* gefiltert, (c) vor dem Formvar-Plasmaverlust und (d) auf dem Formvar-Plasmaverlust mit jeweils einer Energiefensterbreite von etwa 3 eV aufgezeichnet. Da Formvar aus Kohlenwasserstoffverbindungen besteht, die Wasserstoffanteile aber unter Elektronenbeschuß aus der Trägerfolie entweichen, bleibt ein Kohlenstoffgerüst übrig, daß sich spektroskopisch betrachtet ähnlich dem amorphen Kohlenstoff verhält. Die energiegefilterten Bilder (b) und (d) demonstrieren die Verwendbarkeit des Spektrometers im energieselektiven Abbildungsmodus und zeigen auch den großen Kontrast bei Unterschieden in der Massendicke und Elementzusammensetzung bei einer niedrigen Primärenergie. Abbildung 5.4(a) zeigt im Vergleich die Oberflächensensitivität eines konventionellen SE-Bildes desselben Bildausschnitts. Die Primärenergie betrug bei allen Aufnahmen 3 keV.

In der Grafik 5.5 sind die Ergebnisse der Verwendung des Jostschen Spektrometers im EELS-Modus bei ortsfester Elektronensonde gezeigt. In Abbildung 5.5(a) wurde der *Low-loss*-Bereich der in Abbildung 5.4 abgebildeten Formvar-Folie

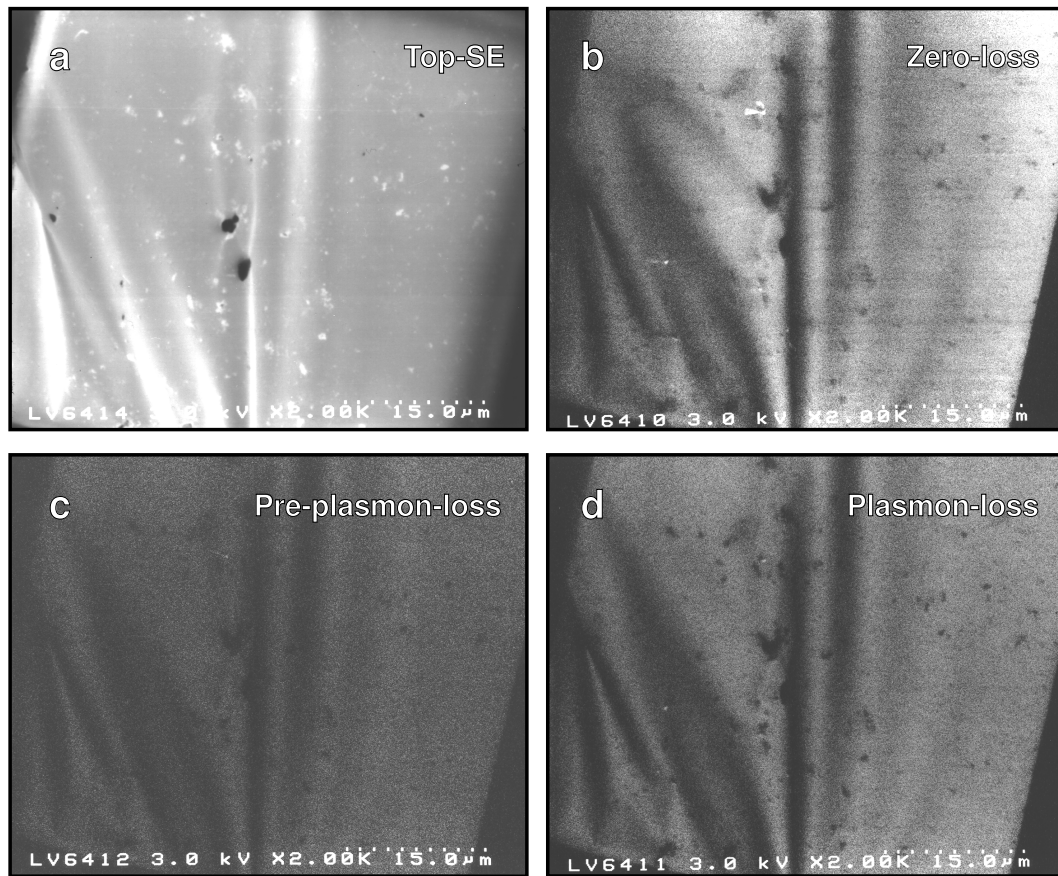


Abb. 5.4: (a): SE-Bild einer ca. 18 nm dünnen, mit Au-Inseln belegten Formvar-Trägerfolie. (b) – (d): ESI-Aufnahmen derselben Probenstelle, die mit dem Jostschen Sektorfeld-Spektrometer bei $\Delta E = 0$ eV (b), $\Delta E = 9$ eV (c) und $\Delta E = 24.5$ eV (d) erhalten wurden.

aufgenommen. Die grau hinterlegten Bereiche markieren die Energiefenster, bei denen die Bilder in Abbildung 5.4(b) – (d) aufgezeichnet wurden. Abbildung 5.4(b) zeigt die Messung des *Low-loss*-Bereichs der dünnen Al-Folie bei einer Primärenergie von 3 keV. Neben dem *Zero-loss-Peak* und dem Volumenplasmaverlust-*Peak* des Aluminiums bei $\Delta E = 15$ eV ist ein deutlich ausgebildetes breites Maximum bei etwa 21.5 eV zu sehen, das auf die Kontamination der Schicht während der Spektrenaufnahme zurückzuführen ist.

Die Energieauflösung der Spektren wurde zu $\delta E = 2.8$ eV bestimmt. Zur Messung der Energieauflösung des Spektrometers wurde der Primärelektronenstrahl direkt durch eine unbelegte Netzmasche in die Spektrometer-Eintrittsblende eingefädelt und die Transmissionsfunktion aufgezeichnet. Messungen an den Einzelkomponenten des Meßaufbaus ergaben, daß die Begrenzung der Energieauflösung des Gesamtsystems derzeit durch die Restwelligkeit der in Abbildung 4.12 gezeigten *float*-baren Elektrodenpotentialversorgung und der ADDA-Einheit gegeben sind.

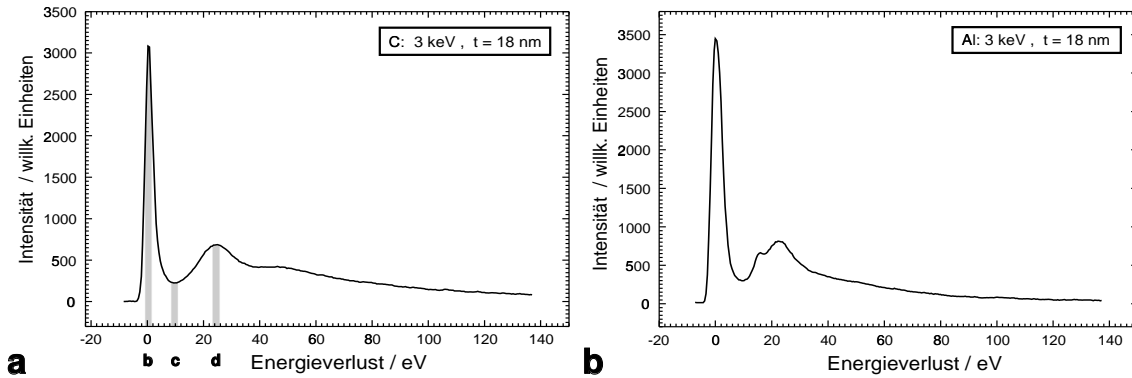


Abb. 5.5: Elektronen-Energieverlustspektrum im Niederspannungsbereich (LV-EELS) **(a)** von einer ca. 18 nm dünnen Formvar-Trägerfolie und **(b)** von einem dünnen, kontaminierten Aluminium-Film ($t_{Al} \approx 18$ nm). Beide Spektren wurden bei einer Primärenergie von 3 keV und einer abs. Energieauflösung von $\delta E = 2.8$ eV aufgenommen. Die grau unterlegten Energiebereiche in **(a)** entsprechen den Energiefenstern der Bilder in Abb. 5.4(b) – (d).

Das Spektrum in Abbildung 5.5(b) demonstriert anschaulich die Notwendigkeit der Kontaminationsunterdrückung im Niederenergiebereich, wenn man an detaillierteren Informationen der Probenzusammensetzung interessiert ist. Für Energieverlustspektren in Transmission wirkt sich die Kontamination stärker aus als in Rückstreuung, da die untersuchte dünne Schicht sowohl an der Ober- als auch an der Unterseite kontaminiert (Reimer, 1984). Eine erfolgreiche Methode zur drastischen Reduzierung der Kontaminationsrate ist die Kühlung der Probe und des Objektraums mit flüssigem Stickstoff (LN_2). Ausgiebige Untersuchungen zu diesem Verfahren wurden von Hirsch *et al.* (1994), Püttmann (1993) und Wahlbring (1994) durchgeführt. Essers (1997) wendete diese Methode in Verbindung mit der *Disappearance Potential-Spectroscopy* bei hoher Oberflächenempfindlichkeit an. Durch die Verwendung einer ca. 460 cm^2 Objektraumkühlfalle und der damit verbundenen erheblichen Verbesserung des Mikroskopsäulenvakuums erreichte er neben der Unterdrückung der Kontamination eine wesentliche Verbesserung der Langzeitstabilität des Emissionsstromes der kalten Feldemissionsquelle. So änderte sich im Rahmen der Meßgenauigkeit des geräteinternen Anzeigeinstrumentes der Emissionsstrom über einen Meßzeitraum von ca. 45–60 min nicht.

Die mit dem in Abschnitt 4.3.2 gezeigten Jostschen Sektorfeld-Spektrometer erzielten Ergebnisse bei der hochaufgelösten Spektroskopie und Energiefilterung in Transmission an freitragenden Schichten demonstrieren die Möglichkeiten eines derartigen Aufbaus. Als wesentlicher Vorteil stellte sich dabei die Verwendbarkeit des Spektrometers im Monochromator-Modus bei einer absoluten Energieauflösung $\delta E = konst.$ heraus. Dadurch läßt sich derzeit eine Energieauflösung von $\delta E = 2.8$ eV über das gesamte Energieverlustspektrum hinweg erzielen. Außerdem ist keine Korrektur bzw. aufwendige Weiterverarbeitung der Spektren nötig, wie dies beim Spektrometer-Modus der Fall ist.

Eine Analyse der Ergebnisse zeigt, daß eine optimale Nutzung des Spektrometers noch einige Modifikationen am verwendeten Meßaufbau erforderlich macht. So ist die Lösung des Kontaminationsproblems bei niedrigen Energien für die Aufnahme von hochaufgelösten EEL-Spektren mit $\delta E < 1 \text{ eV}$ (vgl. Abschnitt 5.3) von zentraler Bedeutung. Um zukünftig die Energiebreite der kalten Feldemissionskathode zu erreichen, muß des weiteren die Restwelligkeit der oben genannten begrenzenden beiden Einzelkomponenten verringert werden. Darüber hinaus ist eine Erhöhung der Spannungsfestigkeit des Spektrometers notwendig, um den für spektroskopische Untersuchungen verwendbaren Primärenergiebereich auf bis zu 10 keV zu erweitern und größere Schichtdicken für den Transmissionsbetrieb im SEM zugänglich zu machen.

Eine weitere Optimierungsmöglichkeit stellt die Erhöhung der Detektionseffizienz dar. Eine Intensitätssteigerung des Ausgangssignals am Photomultiplier läßt sich dabei durch die folgenden Modifikationen am Detektorsystem erzielen:

- Durch die Erhöhung der Szintillator-Nachbeschleunigungsspannung am Ausgang des Jostschen Spektrometers von derzeit +6 kV auf +10 kV. Dazu muß der Isolationsabstand zwischen Szintillator und dem Innern des Spektrometers erhöht werden, um Überschlüge zu vermeiden. Abschätzungen zur Steigerung der Signalausbeute ergaben eine dadurch erreichbare Verbesserung um etwa einen Faktor zwei.

An dieser Stelle sei darüber hinaus angemerkt, daß für die Messung eines vollständigen Energiespektrums eine Nachregelung der Szintillator-Spannung erforderlich wird. Nur so kann für alle Energiebereiche des Spektrums eine konstante Nachbeschleunigung der Elektronen gewährleistet werden. Für die in dieser Arbeit aufgenommenen *Low-loss*-Bereiche der Energie(verlust)-Spektren von Aluminium und Formvar bei einer Primärenergie von 3 keV ist dieser Einfluß jedoch vernachlässigbar.

- Eine weitere Intensitätssteigerung läßt sich durch die Anpassung des signalerzeugenden bzw. -weiterleitenden Systems erzielen. Eine Abschätzung der Verbesserung läßt sich aus dem Diagramm 5.6 ablesen. In dieser Grafik sind sowohl die Kurven der Photonenausbeute verschiedener Photomultiplier (S-11, S-20) als auch die *Peak*-Wellenlängen unterschiedlicher Szintillator-Materialien dargestellt. Des weiteren wurden die wellenlängenabhängigen Transmissionskurven verschiedener Lichtleiter¹ eingezeichnet. Die schwarzen Kurven entsprechen den in dieser Arbeit verwendeten Komponenten. Wie zu erkennen ist, besitzt einerseits der verwendete Plastik-Szintillator eine vergleichsweise geringe Photoneneffektivität von 3 %, andererseits liegt die *Peak*-Wellenlänge im unteren Teil des aufsteigenden Astes der Transmissionskurve des verwendeten Lichtleitfaserbündels. Daher sind derzeit die Einzelkomponenten noch nicht optimal aufeinander abgestimmt. Für detailliertere Informationen zu den

¹ PG: Plexiglas; LL-B: flexibles (Normalglas-)Lichtleitfaserbündel; UV-LL-B: flexibles UV-durchlässiges Quarzglas-Lichtleitfaserbündel

verschiedenen Szintillator-Materialien sei auf die Tabelle A.2 verwiesen. Eine effektive Verbesserung läßt sich durch den Austausch des Plastik-Szintillators durch einen ZnS(Ag)-Szintillator erzielen, der eine vierfach größere Photonen-effektivität besitzt und dessen *Peak*-Wellenlänge sich in einem Wellenlängenbereich befindet, für den eine etwa 15 % größere Transmission erwartet wird.

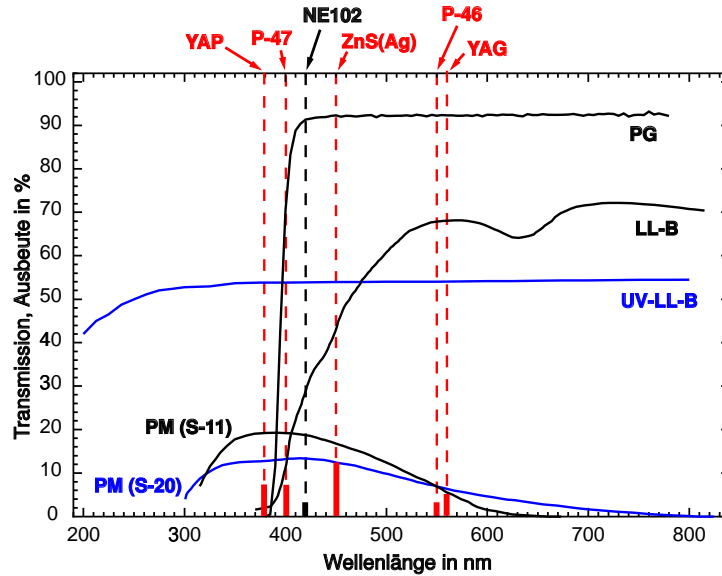


Abb. 5.6: Transmissions- bzw. Effektivitätskurven der optischen Komponenten für den Versuchsaufbau mit dem Jost-Spektrometer; PG: Transm.-Kurve von Plexiglas (Röhm, 1998); LL-B: Transm.-Kurve des verwendeten flexiblen Lichtleiterfaserbündels (für eine Normlänge von 2 m, Streppel (1998)); PM (S-11): Quantenausbeute des verwendeten Photomultipliers (E.M.I., 1990). Die Balken an den entsprechenden Positionen der Abszisse geben die *Peak*-Wellenlängen verschiedener Szintillatoren (vgl. Tab. A.2) mit ihren Energiekonversionseffizienzen in % wieder.

Eine Verbesserung der Transmissionseigenschaften für Szintillatoren mit einer *Peak*-Wellenlänge von max. ca. 475 nm läßt sich auch durch die Verwendung eines UV-durchlässigen Quarzglas-Lichtleiterbündels erreichen.

Nach Optimierung der Einzelkomponenten des in Abschnitt 4.3.2 gezeigten Meßaufbaus sollte sowohl die Aufnahme von energiegefilterten Bildern (ESI) als auch die Aufzeichnung von Energieverlustspektren (EELS) mit einer Energieauflösung < 1 eV möglich sein. Das erreichbare Minimum ist dabei die Energiebreite der kalten FE-Kathode mit $\delta E \approx 0.2 - 0.4$ eV bei einer minimalen Energieschrittweite von 0.12 eV.

Neben der Möglichkeit zur Kontraststeigerung durch eine *Zero-loss*-Filterung kann eine gezielte Anpassung des gewünschten Kontrastes durch das *Kontrast-Tuning* (Reimer, 1991, 1994) erzielt werden. So kann beispielsweise für dicke Schichten auch eine Abbildung mit Elektronen des wahrscheinlichsten Energieverlustes erfolgen. Weiterhin sollte die Steigerung der Ausgangsintensität die Detektion von

Ionisationskanten bei höheren Energieverlusten ermöglichen. Bei ausreichender Intensität ergeben sich des weiteren durch den vorhandenen Meßaufbau interessante Möglichkeiten zur Untersuchungen der kantennahen Feinstruktur (ELNES).

Hochaufgelöste Energie(verlust)spektren reiner Elemente sind interessant für die Kramers-Kronig Analyse, mit deren Hilfe ein Vergleich zwischen EEL-Spektren und optischen Messungen möglich ist. Darüber hinaus sind derartige Spektren für den Vergleich unterschiedlicher theoretischer Modelle bei der Monte-Carlo Simulation und für die Bestimmung der SSF interessant, die zur Beschreibung der exakten Energieverluste in Monte-Carlo Simulationen verwendet werden kann. Durch die große Variationsmöglichkeit der Primärenergie können die Streueigenschaften aller Streuregime von der Einfachstreuung bis hin zur Elektronendiffusion untersucht werden.

Des weiteren sollte mit dem optimierten Meßaufbau eine verbesserte Trennung der Plasmaverluste verschiedener Elemente im Energieverlustintervall von $0 < \Delta E \leq 50 \text{ eV}$ möglich sein. Die Plasmaverlust-Spektroskopie ist häufig durch die verwendeten Kathoden (W, LaB₆) auf eine Energieauflösung von ca. 2–3 eV begrenzt. Dennoch bietet die Plasmaverlust-Spektroskopie eine Vielzahl an interessanten Möglichkeiten bei der Analyse der Mikrostruktur eines Festkörpers (Schattschneider und Jouffrey, 1994). Beispielweise können mit ihrer Hilfe Informationen über die Bandstruktur des Festkörpers erhalten werden. Da die Plasmaverlustenergie ΔE_{pl} von der Elektronendichte abhängt, läßt sich darüber eine Konzentrationsbestimmung in Legierungen durchführen. Die Plasmaverluste besitzen dabei gegenüber den Ionisationskantenverlusten den Vorteil, daß sie eine bis zu 1000-fach größere Intensität besitzen. Weiterhin kann ein Unterschied in der Elektronendichte in amorphen und kristallinen Legierungsphasen festgestellt werden. Bei bekannter Abhängigkeit der Plasmaverlustenergien von der Konzentration eines Legierungsstandards ist eine Mikroanalyse mittels *fingerprinting* möglich (Colliex und Trebbia, 1976; Woo und Carpenter, 1992). Rennekamp (1996) berichtet über die element-spezifische Abbildung mittels Plasmaverlust-Elektronen von Lithium angereicherten Ausscheidungen in einer Al/Li-Legierung. Er erreichte dabei die Trennung der um etwa 1–2 eV auseinanderliegenden Plasmaverluste in einem EFTEM. Ermöglicht wurde diese energetische Trennung einerseits durch die Reduzierung des Wolfram-Kathodenheizstroms, so daß sich eine Abnahme der Energiebreite auf $\delta E \approx 1.8 \text{ eV}$ erzielen ließ, andererseits durch die Verbesserung der Energieschrittweite des Energiefilters auf 0.5 eV. Die Temperaturabhängigkeit der Elektronendichte und damit auch der Plasmaverlustenergie läßt sich darüber hinaus für die Temperaturmessung von Mikrobereichen einer Probe ausnutzen. Speziell der Meßaufbau in einem LVSEM bietet zudem noch erhebliche Vorteile bei der Untersuchung von Oberflächenplasmonen, die schon durch Polarisierung bei einer Entfernung des Primärelektronenstrahls von der Oberfläche von ca. 10 nm angeregt werden können. Aufgrund der großen Objektkammer lassen sich die Proben auch in große Winkel problemlos kippen. Zudem führt die niedrige Primärenergie zu einer größeren Wechselwirkungswahrscheinlichkeit für die Anregung von Oberflächenplasmonen.

Die hochauflöste Energieanalyse ist darüber hinaus für die Sekundärelektronen-Spektroskopie interessant (Seiler, 1984; Bauer und Seiler, 1989). Bei einer Energieauflösung von $\delta E \lesssim 0.5 \text{ eV}$ können Feinstrukturen in der SE-Energieverteilung aufgelöst werden, so daß sich die Korrelationen mit dem Plasmaperlustbereich untersuchen lassen (Mülleijans *et al.*, 1991, 1993). Voraussetzung für die hochauflösende Analytik in dem zur Verfügung stehenden Energiebereich ist eine deutliche Verringerung des Kontaminationsproblems.

5.2 Untersuchungen zur Rückstreuung

Im folgenden Unterabschnitt werden die Ergebnisse des hemisphärischen Gegenfeld-Spektrometers vorgestellt. Dabei liegt das Hauptaugenmerk auf der Analyse von winkelaufgelösten Energieverteilungen im Niederenergiebereich $E \leq 5 \text{ keV}$. Einerseits lassen sich daraus wichtige Rückschlüsse auf den Streumechanismus ziehen, andererseits liefern derartige Daten auch wichtige Informationen über die Signalausbeute von *Low*-, *Middle*- und *High-take-off*-BSE-Detektoren im *Low-Voltage*-Bereich. Durch der Vergleich zwischen simulierten und gemessenen Spektren soll dabei das zugrundeliegende theoretische Modell überprüft werden.

5.2.1 Hemisphärisches Gegenfeld-Spektrometer

Ergebnisse der Monte-Carlo Simulationen: Im folgenden werden die mit Hilfe der Monte-Carlo Methode für die einzelnen Segmentringe des in Abschnitt 4.2.2 gezeigten Gegenfeld-Spektrometers berechneten Energieverteilungen vorgestellt und diskutiert (Schindler *et al.*, 1997). In Abbildung 5.7 sind die für die einzelnen Winkelbereiche des Gegenfeld-Spektrometers für die Reinelemente Al, Cu, Ag und Au und die beiden Primärenergien 1 keV (links) und 10 keV (rechts) berechneten Energiespektren zusammengestellt. In der Simulation in Abb. 5.7 wurde der Vollständigkeit halber auch der Austrittswinkelbereich des hypothetisch angenommenen Segmentrings 'S₉' ($80^\circ \leq \Delta \psi_{S_9} \leq 90^\circ$) dargestellt, obwohl dieser Winkelbereich mit dem in Abb. 4.5 dargestellten Spektrometer nicht meßbar ist. Die gezeigten Spektren werden mit normierter Primärenergie dargestellt, um eine bessere Vergleichsmöglichkeit zu haben. Vergleicht man die Form der Gesamtenergiespektren in Abbildung 5.7 untereinander, so zeigt sich für hohe (10 keV) und niedrige (1 keV) Energien die erwartete Zunahme der wahrscheinlichsten Energie E_w bzw. mittleren Energie E_m mit steigender Ordnungszahl Z . In der Intensität der Gesamtspektren beim Übergang von niedrigen zu hohen Energien spiegelt sich der Verlauf des Rückstreukoeffizienten wider. Anschaulich liefert das Integral über die Energieverteilung den Rückstreukoeffizienten. Berücksichtigt man den Normierungsfaktor bei den 10 keV Energiespektren, so sind die Intensitäten der jeweiligen Graphen für 1 keV und 10 keV eines Elementes direkt miteinander vergleichbar. Entsprechend der Abnahme des Rückstreukoeffizienten für leichte Elemente mit zunehmender Energie (siehe Abbildung 2.10(b) und

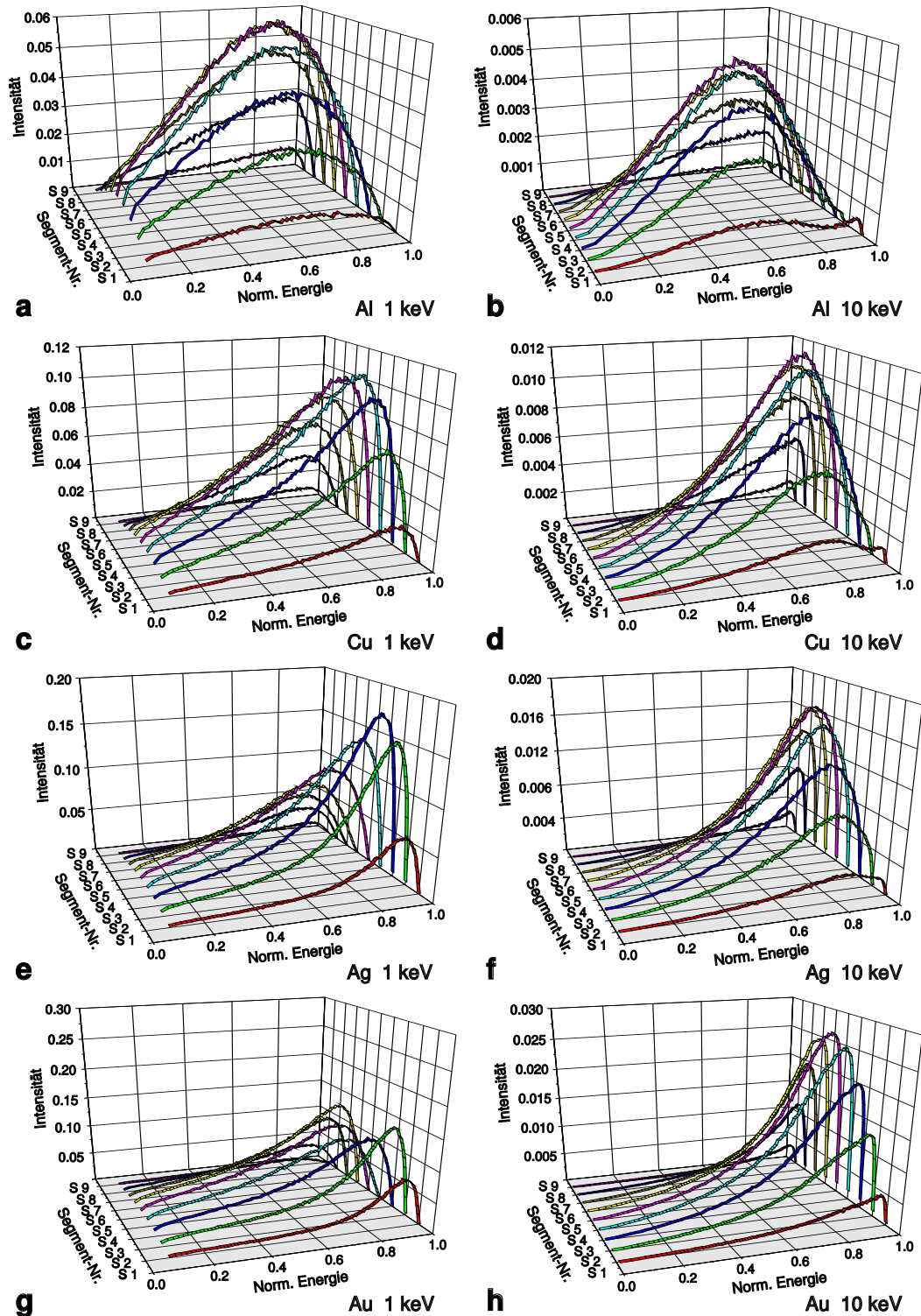


Abb. 5.7: Monte-Carlo simulierte Rückstreuenergieverteilungen von Al, Cu, Ag, und Au für 1 keV (links) und 10 keV (rechts), wie sie für die einzelnen Segmentringe des in Abb. 4.5 gezeigten Gegenfeld-Spektrometers erwartet werden.

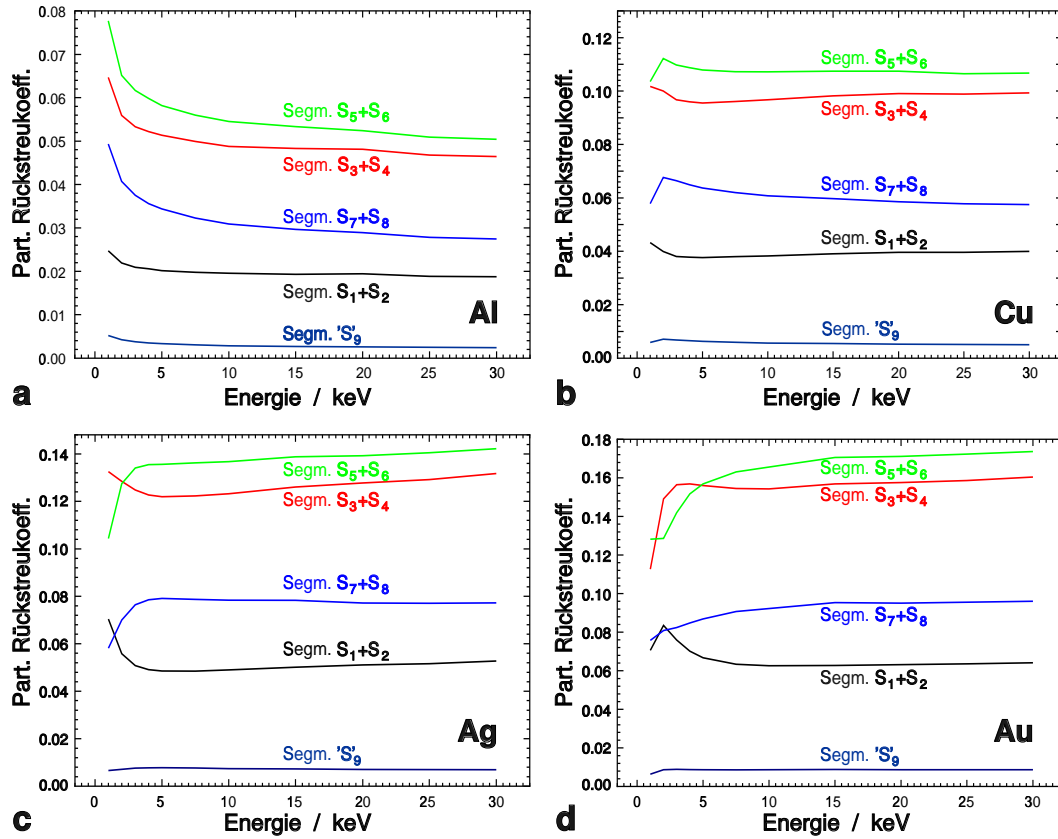


Abb. 5.8: Monte-Carlo Simulation der partiellen Rückstreukoeffizienten $\eta_{S_{ij}} = \eta_{S_i} + \eta_{S_j}$ jeweils zweier zusammengefaßter Segmentringe S_i und S_j . Zur Vollständigkeit wurde auch der berechnete partielle Rückstreukoeff. $\eta_{S_9'}$ des hypothetischen Segmentrings 'S₉' mit eingezeichnet.

Abbildung 5.21) ergibt sich in der Summe der Energiespektren von Al auch eine Abnahme der Intensität. Entsprechend wird für Cu ein im wesentlichen konstanter Wert und für Ag und Au eine mit zunehmender Energie zunehmende Gesamtintensität beobachtet. Um das Rückstreuverhalten für die einzelnen Austrittswinkelbereiche genauer zu untersuchen, wurden in Abbildung 5.8 die partiellen Rückstreukoeffizienten für die Elemente Al, Cu, Ag und Au berechnet. Der Übersichtlichkeit halber wurde jeweils der partielle Rückstreukoeffizient ($\eta_{S_{ij}} = \eta_{S_i} + \eta_{S_j}$) zweier zusammengefaßter Segmentringe S_i und S_j dargestellt. Die einzelnen Segmentringe entsprechen dabei den Austrittswinkelbereichen S_1 : $0^\circ \leq \psi \leq 10^\circ$, S_2 : $10^\circ \leq \psi \leq 20^\circ$, ..., 'S₉': $80^\circ \leq \psi \leq 90^\circ$ bezogen auf die Oberfläche. Die jeweilige Summe der partiellen Rückstreukoeffizienten $\eta_{S_{ij}}$ über alle Austrittswinkelbereiche eines Elementes liefert dabei den in Abbildung 5.21 gezeigten Verlauf des (Gesamt-)Rückstreukoeffizienten η . Auffällig ist, daß der Verlauf des partiellen Rückstreukoeffizienten nicht notwendigerweise mit dem des gesamten η übereinstimmen muß. Für leichte Elemente, wie am Beispiel des Aluminiums in Abbildung 5.8(a) dargestellt, verlaufen die partiellen Rückstreukoeffizienten ähnlich dem Gesamt-Rückstreukoeffizient in Abhängigkeit

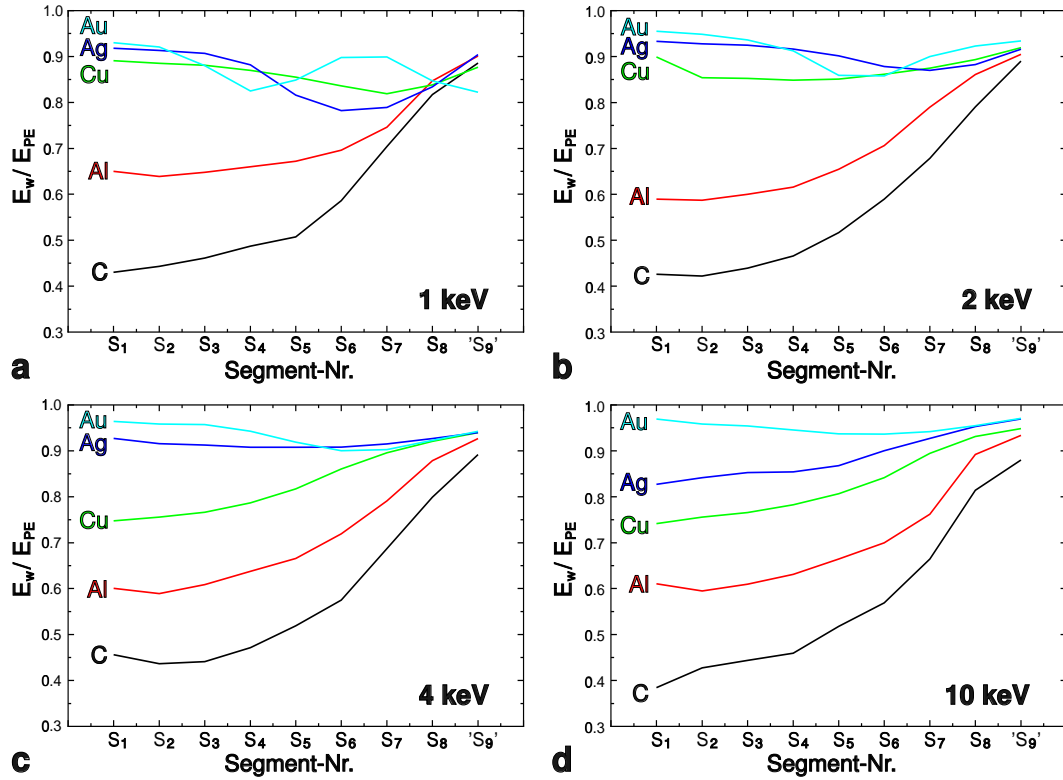


Abb. 5.9: Normierte wahrscheinlichste Energie E_w/E_{PE} in Abhängigkeit vom Austrittswinkelbereich (S_1 : $0^\circ \leq \psi \leq 10^\circ$, ..., ' S_9 ': $80^\circ \leq \psi \leq 90^\circ$) für die Elemente Al, Cu, Ag und Au bei Primärenergien von 1, 2, 4, und 10 keV.

von der Primärenergie. Kupfer in Abbildung 5.8(b) und Silber in Abbildung 5.8(c) zeigen hingegen für die Segmentringe S_{12} und S_{34} einen mit abnehmender Energie ansteigenden Verlauf des partiellen Rückstreukoeffizienten $\eta_{S_{ij}}$, obwohl $\eta = \eta_{ges}$ in diesem Bereich abfällt. Die partiellen Rückstreukoeffizienten $\eta_{S_{ij}}$ für Gold in Abbildung 5.8(d) fallen für alle Winkelbereiche mit fallender Energie ab, lediglich die *Low-take-off*-Winkelbereiche S_{12} und S_{34} zeigen vor ihrem Abfall eine steigende Tendenz.

Als weitere Größe für das Studium des Rückstreuverhaltens von Elektronen im Festkörper wurde in Abbildung 5.9 die normierte wahrscheinlichste Energie E_w/E_{PE} der partiellen simulierten Energieverteilungen für Primärenergien von 1, 2, 4 und 10 keV gegen den Austrittswinkelbereich $S_1, \dots, 'S_9'$ aufgetragen. Für die Elemente C, Al und Cu zeigt sich über alle Austrittswinkelbereiche ein leichter Anstieg von E_w/E_{PE} mit abnehmender Primärenergie. Die Zunahme der elastischen Streuung in größere Winkel führt bei diesen Elementen dazu, daß eine zunehmende Anzahl an Elektronen die Probe wieder verlassen können. Daraus folgt eine relative Abnahme der praktischen Elektronenreichweite für leichte Elemente.

Für schwere Elemente zeigt sich der entgegengesetzte Verlauf, nämlich eine Abnahme der normierten wahrscheinlichsten Energie mit abnehmender Primärenergie.

Das in Abschnitt 2.1.2 geschilderte, drastisch veränderte elastische Streuverhalten bei Verringerung der Primärenergie führt bei schweren Elementen zu einer mehr in Vorwärtsrichtung ausgebildeten Diffusionsbirne. Dies führt zu einer relativen Zunahme der praktischen Elektronenreichweite für schwere Elemente mit abnehmender Primärenergie (vgl. Abbildung 2.9(b), (d)). Daraus ergibt sich wiederum eine größere mittlere Austrittstiefe, was zu der beobachteten Verringerung der wahrscheinlichsten (bzw. mittleren) Energie der Rückstreuenergieverteilung führt.

Allgemein zeigt die Halbwertsbreite der Energieverteilung einen zur wahrscheinlichsten Energie gegenläufigen Verlauf. Mit zunehmendem Wert für E_w wird die Halbwertsbreite der Energiespektren schmaler und umgekehrt. Da die wahrscheinlichste Energie E_w und die mittlere Energie E_m mit steigendem Rückstreuoeffizienten ansteigt, liegt die Folgerung nahe, daß die Elektronen, die ein Material mit höherem η verlassen, im Mittel weniger unelastische Streuprozesse erlitten haben und daher auch einen kleineren Weg in der Probenmaterie durchlaufen haben. Für hohe Energien $E \gtrsim 5$ keV nimmt E_w daher auch mit steigender Ordnungszahl Z zu.

Mit zunehmendem Weg durch die Probenmaterie nimmt die wahrscheinlichste Energie der Elektronen ab und die Halbwertsbreite der Energieverteilung zu. So erklärt sich auch der abfallende Verlauf von E_w/E_{PE} mit abnehmendem Austrittswinkel für Energien $E_{PE} \gtrsim 2$ keV bei den Elementen C, Al, und Cu. Mit zunehmend streifendem Austritt der Elektronen durchlaufen sie im Mittel größere Wege innerhalb der Probe und verlieren im Mittel einen größeren Anteil ihrer Energie. Die Folge ist eine Abnahme der wahrscheinlichsten Energie und eine Zunahme der Halbwertsbreite mit abnehmendem Austrittswinkel.

Ausnahmen von dieser generellen Tendenz treten zunehmend bei Abnahme der Primärenergie und/oder Zunahme der Ordnungszahl Z auf, wie sich in Abbildung 5.9(a), (b) für Ag und Au zeigt. Das bei kleinen Energien veränderte Streuverhalten aufgrund der Spin-Bahn-Kopplung und der Abschirmung der Hüllenelektronen vor allem bei schweren Elementen führt zur Ausbildung von Minima der wahrscheinlichsten Energie E_w , die sich mit abnehmender Energie von hohen Austrittswinkelbereichen zu niedrigen Austrittswinkelbereichen verschieben. Daraus erklärt sich auch der Intensitätseinbruch und die Form des Energiespektrums für Au in Abbildung 5.7(g) für das Segment S_4 bei 1 keV. Der geringere Rückstreuoeffizient für diesen Winkelbereich führt einerseits zu einer geringeren Intensität im Spektrum, andererseits aber auch zu einer verminderten wahrscheinlichsten Energie sowie einer größeren Halbwertsbreite.

Die Kenntnis der genauen Winkelabhängigkeit des Rückstreuoeffizienten, der wahrscheinlichsten bzw. mittleren Energie sowie der Halbwertsbreite liefern somit wichtige Informationen für die Energieanalyse und Interpretation von BSE-Bildern, die im Niederenergiebereich bei unterschiedlichen Detektionswinkeln aufgenommen werden.

Abbildung 5.10 zeigt den Vergleich von Monte-Carlo simulierten und gemessenen Energiespektren bei Energien von 1, 2, 3, 4 und 5 keV für die Elemente Silizium

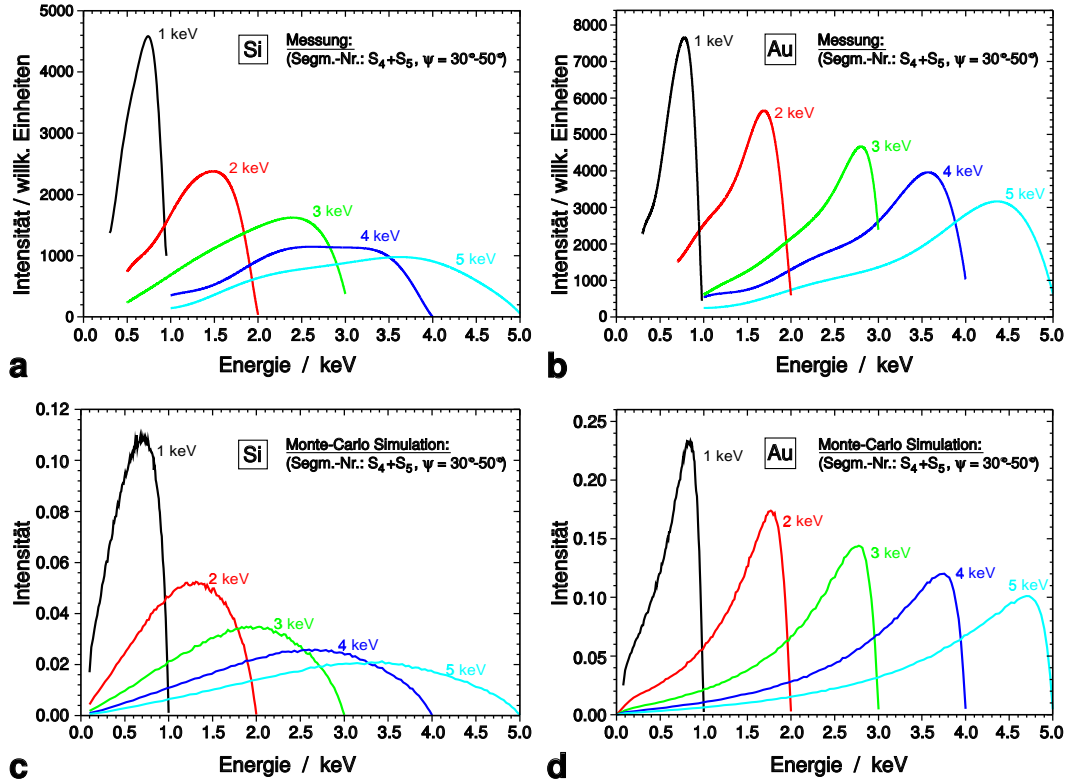


Abb. 5.10: Vergleich von gemessenen Rückstreuenergiespektren an Si und Au mit entsprechenden Monte-Carlo Simulationen für Primärenergien von 1 keV bis 5 keV. Die Grafiken (a), (b) zeigen die gemessenen Spektren, die Grafiken (c), (d) geben die simulierten Spektren wieder.

(links) und Gold (rechts). Für den Vergleich wurde der mittlere Austrittswinkelbereich von $\psi = 30^\circ - 50^\circ$ bei zusammengesetzten Segmentringen S_4 und S_5 zugrunde gelegt. Die gemessenen Spektren wurden jeweils bei niedrigeren Energien abgeschnitten, um den Beitrag der an den inneren Netzen erzeugten Sekundärelektronen auszuschließen. Es zeigt sich für beide untersuchten Elemente bei den verwendeten Energien im Austrittswinkelbereich von $30^\circ \leq \psi \leq 50^\circ$ eine gute Übereinstimmung von Theorie und Experiment.

Die Messungen der Energieverteilungen für die niedrigeren und höheren Austrittswinkelbereiche ergeben derzeit noch größere Abweichungen von den entsprechenden theoretischen Spektren. Die möglichen Ursachen sind in erster Linie im experimentellen Aufbau und im Meßverfahren zu suchen. So muß zukünftig geprüft werden, in welchem Umfang Aufladungseffekte an der Trovidur-Grundplatte für Abweichungen bei niedrigen Austrittswinkeln und Aufladungen an der in der optischen Achse angeordneten zylindrischen Isolations-Teflonhülse bei hohen Austrittswinkelbereichen eine Rolle spielen. Darüber hinaus könnte die Ungenauigkeit in der Positionierung der Objekthöhe innerhalb des Spektrometers auch für Abweichungen

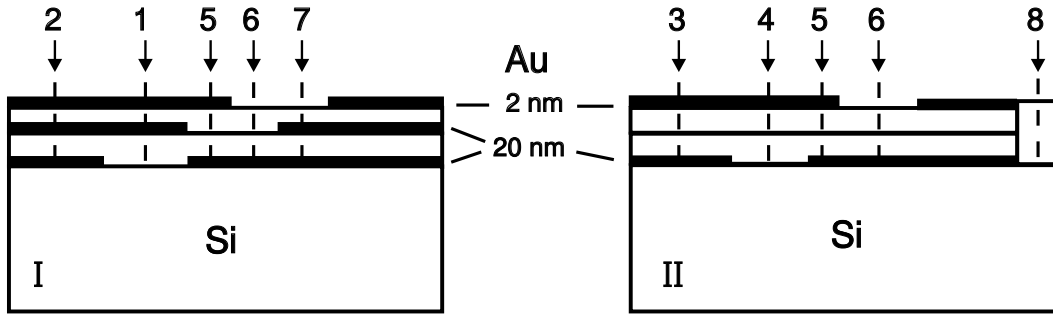


Abb. 5.11: Querschnitt der Si/PMMA/Au-Vielfachschicht-Probe, die für die Untersuchungen zur tiefenselektiven Abbildung mittels BSE mit dem toroidalen Sektorfeld-Spektrometer verwendet wurde. I und II geben die in Abb. 5.12 durch Pfeile gekennzeichneten Schnitte wieder.

verantwortlich sein. So läßt sich derzeit die Probe nur mit einer Genauigkeit von $\Delta h \approx \pm 2 \text{ mm}$ in den Mittelpunkt der hemisphärischen Netze des Spektrometers positionieren. Des weiteren können Kontaminationseffekte bei niedrigen Energien mit dem derzeitigen Aufbau nicht vollständig ausgeschlossen werden. Um den Kontaminationseffekt möglichst zu minimieren, wurde a) die stationäre Elektronensonde auf mehrere Mikrometer während der Messung vergrößert und b) die Aufnahme eines Spektrums innerhalb einer Zeit von ca. 1–2 Minuten durchgeführt.

5.2.2 Toroidales Sektorfeld-Spektrometer

Im folgenden werden die Ergebnisse vorgestellt, die mit dem in Abschnitt 4.3.1 beschriebenen toroidalen Sektorfeld-Spektrometer erhalten wurden. Die beiden verwendeten analytischen Betriebsmodi (Abbildungs- bzw. Spektrum-Modus) des Spektrometers wurden an der in Abbildung 5.11 im Querschnitt dargestellten Si/PMMA/Au-Vielfachschicht-Probe getestet (Rau *et al.*, 1996).

Die Schnitte wurden entlang der in Abbildung 5.12(a) mit I und II gekennzeichneten Richtungen gelegt. Abbildung 5.12(a) zeigt ein konventionelles SE-Bild der Probe, das bei einer Primärenergie von 20 keV aufgenommen wurde. Dieses Bild beinhaltet die integrale Information über den gesamten Tiefenbereich bis etwa zur halben Reichweite der Elektronen. Die Bilder (b)–(d) sind energiegefilterte Bilder, die mit den Sollbahn-Energien des Spektrometers von 18.5 keV bei (b), 15 keV bei (c) und 10 keV bei (d) im Rastermodus des SEM aufgezeichnet wurden. Die Energiefensterbreite des Spektrometers betrug dabei $\delta E/E \approx 2\%$. Mit abnehmender Sollbahn-Energie werden zunehmend tiefere Schichten bevorzugt abgebildet.

Die Energiespektren in Abbildung 5.13 wurden im *Spot*-Modus des SEM an den in Abbildung 5.12(a) und 5.11 numerierten Positionen bei einer Primärenergie von 20 keV aufgezeichnet. Die Energieauflösung betrug dabei $\delta E/E \approx 1\%$. Die Maxima in den Energiespektren werden durch die Rückstreuung an den in den unterschiedlichen Tiefen befindlichen Au-Schichten erzeugt und korrespondieren mit den hellen

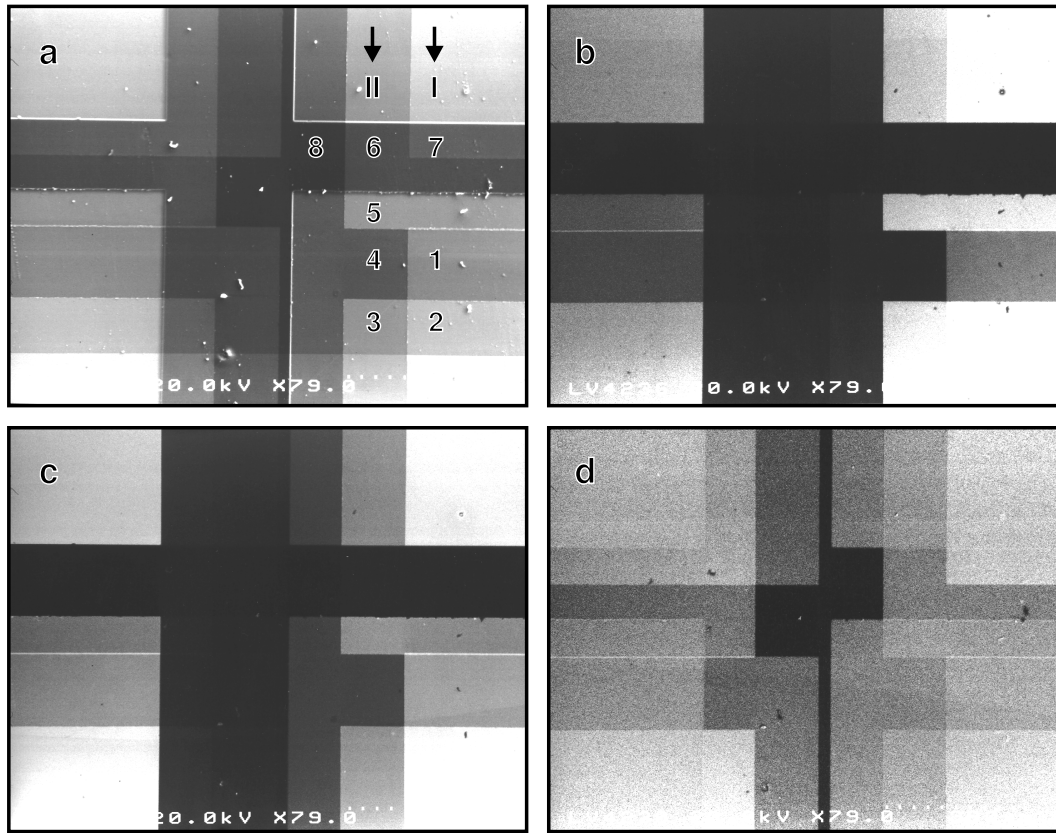


Abb. 5.12: Bilder der Vielschicht-Probe aus Abb. 5.11. (a) Konventionelles SE-Bild (20 keV) und energiegefilterte Bilder mit Sollbahn-Energien von (b) 18.5 keV, (c) 15 keV und (d) 10 keV mit einer rel. Energieauflösung von $\delta E/E \approx 2\%$.

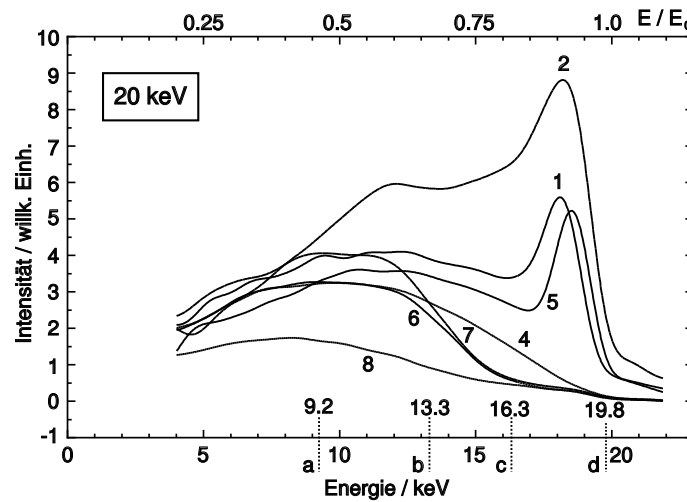


Abb. 5.13: Mit dem toroidalen Sektorfeld-Spektrometer gemessene BSE-Energieverteilungen. Die Spektren wurden mit einer rel. Energieauflösung von $\delta E/E \approx 1\%$ bei einer Primärenergie von 20 keV an den in Abb. 5.11 gezeigten Probenstellen aufgezeichnet.

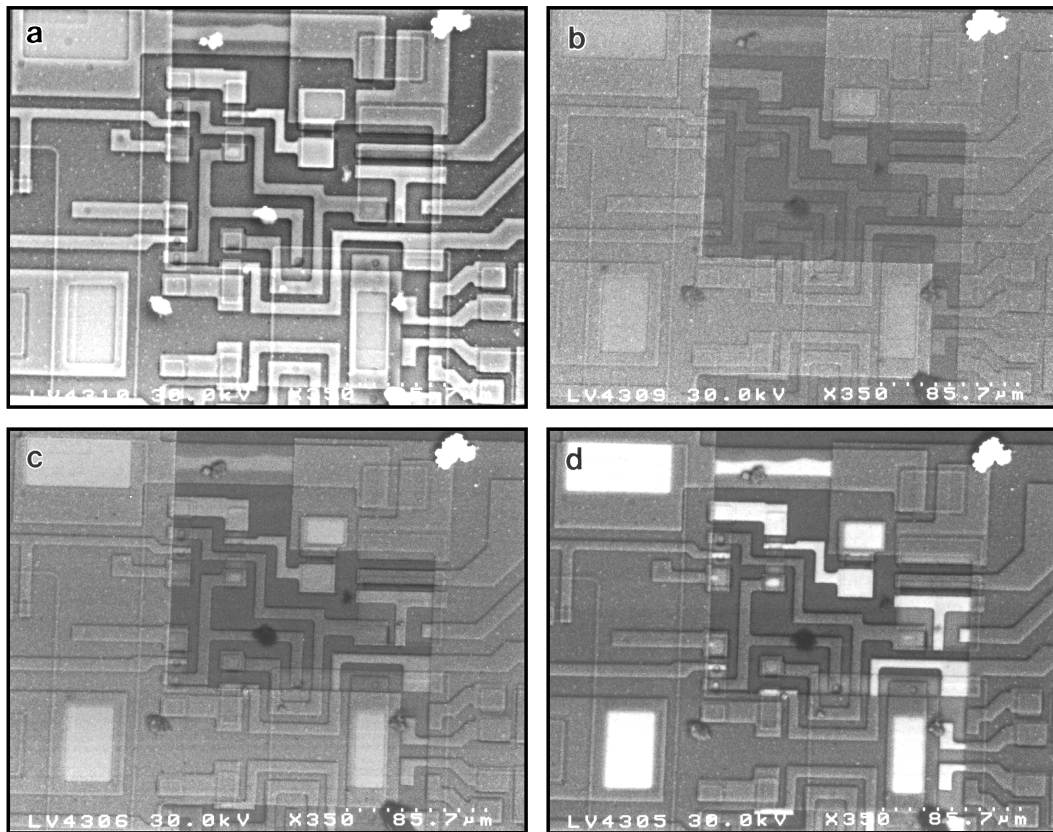


Abb. 5.14: Integrierter Schaltkreis (IC); (a) konventionelles SE-Bild (30 keV) und energiegefilterte Bilder mit Sollbahn-Energien des Spektrometers von (b) $27.7 \text{ keV} \pm 0.42 \text{ keV}$, (c) $25.2 \text{ keV} \pm 0.38 \text{ keV}$ und (d) $22.7 \text{ keV} \pm 0.34 \text{ keV}$.

Bereichen in den energiegefilterten Bildern der Abbildungen 5.12(b)–(d).

Abbildung 5.14 demonstriert die praktische Anwendung der tiefenselektiven Abbildung mittels BSE-Energiefilterung für Strukturen aus der Halbleiterindustrie. Abgebildet wurde ein integrierter Schaltkreis (IC) im (a) SE-Modus und (b)–(d) mit Hilfe des toroidalen Sektorfeld-Spektrometers. Die Sollbahn-Energie betrug in (b) 27.7 keV , (c) 25.2 keV und (d) 22.7 keV bei einer relativen Energiefensterbreite von $\delta E/E = 1.5\%$. Mit abnehmender Sollbahn-Energie werden auch hier wieder zunehmend tiefere Strukturen des ICs bevorzugt abgebildet. Unter der Oberfläche verborgene Schichten können so schnell und ohne Materialabtrag untersucht werden. Somit stellt dieses Verfahren im Bereich der Schadensanalytik für spezielle, qualitative Untersuchungen eine interessante Alternative zu den Material abtragenden Verfahren dar.

Um einen Vergleich zwischen gemessenen Spektren und mit Hilfe der Monte-Carlo Methode simulierter Spektren vornehmen zu können, wurde die in Abbildung 5.15 im Querschnitt gezeigte Cu/Al/Cu-Vielfachschicht-Probe hergestellt. Die in Abbildung 5.11 gezeigte Probe wurde für einen derartigen Vergleich nicht verwendet,

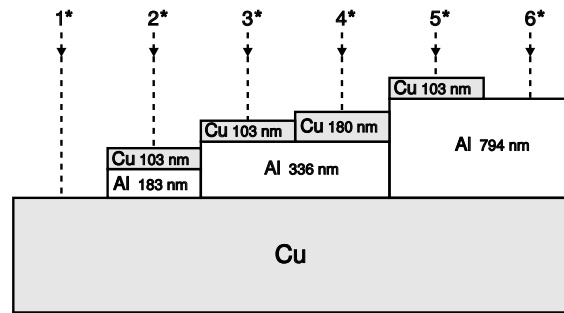


Abb. 5.15: Querschnitt, der für die Energiespektrenaufnahme präparierten Cu/Al/Cu-Vielfachschicht-Probe.

da ein Massenverlust der strahlungsempfindlichen PMMA-Schichten während der Messung nicht ausgeschlossen werden konnte.

Die Abbildung 5.16(a) zeigt mit Hilfe der Monte-Carlo Methode für die in Abbildung 5.15 gekennzeichneten Probenstellen simulierte BSE-Energieverteilungen. Die Spektren wurden dabei für eine Primärenergie von 20 keV und die Geräteparameter des toroidalen Sektorfeld-Spektrometers berechnet. Jedes Einzelspektrum wurde aus $4 \cdot 10^6$ Elektronenbahnen erhalten und in der obigen Abbildung geglättet dargestellt. Die Energiespektren in Abbildung 5.16(a) zeigen in Abhängigkeit von der Schichtdicke der Al-Zwischenschicht bzw. Cu-Deckschicht charakteristische Kurvenverläufe. Spektrum 1* zeigt den Verlauf des reinen Cu-BSE Spektrums. Bis herab zu einer Energie von ca. 18.5 keV decken sich die Kurven 2*, 3* und 5* mit dieser, da die mit dieser Energie austretenden Elektronen im wesentlichen aus der obersten Cu-Deckschicht stammen. Im Energiebereich von ca. 18.5 keV bis ca. 17.5 keV zeigt das Spektrum 2* einen abfallenden Verlauf entsprechend der geringeren Rückstreuung der Al-Zwischenschicht. Unterhalb einer Energie von 17.5 keV steigt der Kurvenverlauf aufgrund der nun vorwiegend aus der Cu-Substratschicht stammenden Rückstreuelektroden wieder und nähert sich schließlich dem Verlauf des reinen Cu-Spektrums an. Die Spektren 3* und 5* zeigen mit zunehmender Al-Zwischenschicht ein späteres Einsetzen des ansteigenden Astes der Cu-Substratschicht. Spektrum 4* hingegen zeigt den aufgrund einer größeren Cu-Deckschicht bei einer höheren Energie abfallenden Zweig der Al-Zwischenschicht. In Kurve 6* ist das Spektrum einer 2-fach-Schichtfolge mit Cu als Substrat und einer 794 nm dicken Al-Deckschicht dargestellt. Im Bereich höherer Energien ergibt sich daher der typische Verlauf des Al-Spektrums. Unterhalb einer Energie von ca. 15 keV ändert sich der Verlauf entsprechend der Cu-Substratschicht.

In Abbildung 5.16(b) sind die mit dem toroidalen Sektorfeld-Spektrometer gemessenen BSE-Energiespektren dargestellt. Die gemessenen BSE-Energiespektren zeigen allgemein geringer ausgeprägte Maxima und Minima an den Übergängen unterschiedlicher Schichten und ein zu niedrigeren Energien verschobenes breites Gesamtmaximum. Erklären lassen sich diese Abweichungen durch die folgenden, zum derzeitigen Zeitpunkt noch nicht berücksichtigten Faktoren: Die im Vergleich

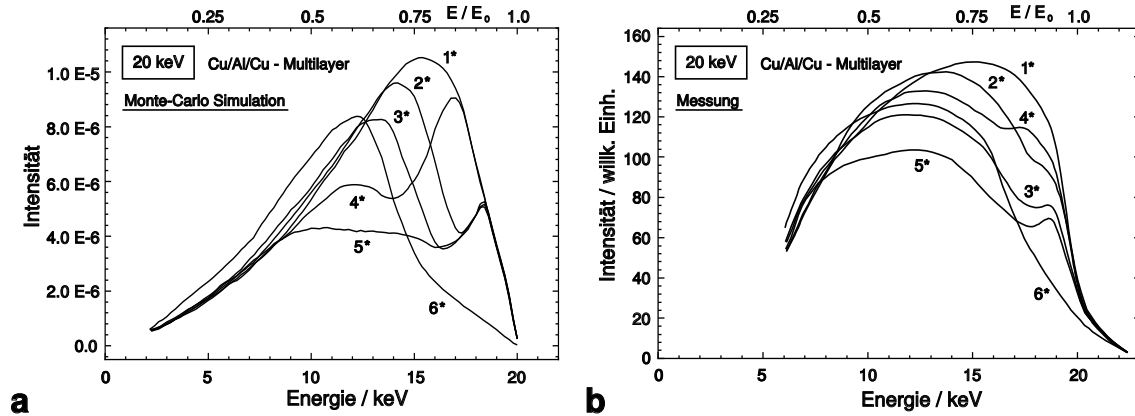


Abb. 5.16: (a): Für das toroidale Spektrometer mit der Monte-Carlo Methode berechnete BSE-Energieverteilungen; die Spektren wurden für die in Abb. 5.15 gekennzeichneten Probenstellen der Cu/AL/Cu-Vielfachschicht-Probe für eine Primärenergie von 20 keV simuliert. (b): Zu (a) entsprechende, mit dem toroidalen Spektrometer gemessene BSE-Energiespektren.

zur Monte-Carlo Simulation kleinere und energieabhängige Energieauflösung des Spektrometers bewirkt eine mit zunehmender Energie zunehmende Detailverschmierung. Die erhöhte Intensität bei niedrigen Energien kann einerseits durch die noch nicht exakt berücksichtigte Energieabhängigkeit der Photonenausbeute des Szintillators sowie der Spektrometer-Dispersion begründet, andererseits auch auf die noch nicht berücksichtigte Transmissionsfunktion des Spektrometers zurückgeführt werden. Neuere Untersuchungen von Hoffmeister und Rau (1998) zeigen, daß die Transmissionsfunktion des in dieser Arbeit verwendeten toroidalen Spektrometers Abweichungen von der idealen Form aufweist. So zeigen sich rechts und links neben der Primärstrahlintensität kleinere Seitenbänder und in einem mittleren Energiebereich eine langgestreckte, flache Schulter. Die Abweichungen können durch Streuelekttronen innerhalb des Spektrometers erklärt werden. Für genauere Vergleiche zwischen Theorie und Experiment müssen daher zukünftig auf der experimentellen Seite die gemessenen Spektren mit der Transmissionsfunktion entfaltet werden. Weiterhin ist eine genauere Berücksichtigung der oben genannten Korrekturparameter erforderlich. Auf der theoretischen Seite muß die tatsächliche Energieauflösung des Spektrometers in die Monte-Carlo Simulation implementiert werden.

Wie in diesem Abschnitt gezeigt, bietet die selektive Energiefilterung rückgestreuter Elektronen die Möglichkeit, verborgene Schichten bevorzugt tiefenselektiv abzubilden. Der Anstieg bzw. Abfall des Kurvenverlaufs im BSE-Energiespektrum setzt dabei an charakteristischen Energieverlusten ein, die mit den Schichtdicken der Elemente mit größerem bzw. kleinerem η korreliert sind. Das zu diesem Zweck verwendete toroidale Sektorfeld-Spektrometer bietet für derartige Untersuchungen entscheidende Vorzüge gegenüber früher verwendeten Gegenfeld-Spektrometern. Es ermöglicht die variable Selektion eines Energiefensters und erfaßt durch die Rotationssymmetrie einen für Sektorfeld-Spektrometer vergleichsweise großen Detekti-

onsraumwinkel. Betrachtet man nochmals die Abbildung 4.9, so lassen sich auch die Grenzen dieses Verfahrens erkennen. Die Grafik zeigt, daß zwar der größte Teil der BSE aus der Schicht s_2 , des absoluten Energiemaximums stammt, aber auch BSE aus den angrenzenden Tiefenschichten s_1 , s_3 , s_4 , ... zum Signal beitragen. Somit läßt sich auch mit dieser Methode die reine Information einer Tiefe nicht vollständig separieren. Eine Lösung dieses Problems bietet die Verwendung der Doppel-Modulation und das Arbeiten mit *Lock-in*-Technik (Niedrig und Rau, 1998). Dabei wird die Spektrometer-Spannung sowie die Primärenergie durch eine Wechselspannung derselben Frequenz moduliert. Bei der Auskopplung des Spektrometer-Ausgangssignals mit Hilfe eines *Lock-in*-Verstärkers erhält man den Differenzanteil des Gesamtsignals, der sich durch ΔE_{Sp} an der Stelle E_{Sp} und Δx an der Stelle $x(E_{Sp})$ ergibt. Dieses Verfahren ermöglicht eine genauere Trennung der Tiefeninformation und stellt die effizienteste Methode für tomographische Untersuchungen mittels BSE-Spektrometer dar. Die Behebung einer weiteren Einschränkung läßt sich durch die Verwendung des Monochromator-Modusses mit konstanter Energieauflösung anstelle des Spektrometer-Modusses bei der Energieselektion erzielen. Im Spektrometerbetrieb ist der Selektionsbereich in der Tiefe energieabhängig. Mit abnehmender Energie und damit auch abnehmender absoluter Energiebreite nimmt auch die Breite des selektierten Bereichs in der Tiefe ab.

Für eine hochaufgelöste Tiefenprofil-Analyse ist es daher notwendig, eine Energiefilterung im Monochromator-Modus durchzuführen und gleichzeitig mit der oben beschriebenen Doppel-Modulationstechnik zu arbeiten. Mit einem solchen Aufbau zur Filterung der BSE in Kombination mit theoretischen Vorhersagen durch Monte-Carlo Simulationen ergeben sich neue Möglichkeiten bei der Lösung des „Inversen Problems“, der Rekonstruktion des Tiefenprofils einer Vielfachschicht-Probe aus dem BSE-Energiespektrum, im Mikrometer- bzw. Sub-Mikrometerbereich.

5.2.3 Überlegungen zur Auflösungsverbesserung im SEM

Für das Verständnis der Kontraste sowie die Abschätzung des Auflösungsvermögens eines rasterelektronenmikroskopischen Bildes ist eine genaue Kenntnis der Wechselwirkungsprozesse und der gerätetechnischen Randbedingungen erforderlich. Die mit abnehmender Primärenergie abnehmende Elektronenreichweite, das geänderte Rückstreuverhalten, die steigende Sekundärelektronenausbeute sowie die Zunahme des Sondendurchmessers haben einen direkten Einfluß auf die Abbildungsbedingungen eines SEMs. Im folgenden werden unterschiedliche Tendenzen im Auflösungsvermögen eines rasterelektronenmikroskopischen Bildes beim Übergang von hohen zu niedrigen Primärenergien je nach Objektzusammensetzung und Oberflächenbeschaffenheit aufgezeigt. Daran anschließend wird auf den Einfluß einer Energiefilterung der elastisch reflektierten Elektronen eingegangen und theoretische Überlegungen zu den Möglichkeiten eines V-LVSEM (**V**ery- **L**ow **V**oltage **S**EM) angestellt.

Der topographische Kontrast bei der Abbildung in einem SEM ist eine Superposition aus verschiedenen Kontrastbeiträgen. Darunter fallen im wesentli-

chen der Flächenneigungskontrast, der Abschattungskontrast, der BSE- und SE-Diffusionskontrast sowie der Massendickekontrast. Der Flächenneigungskontrast ergibt sich dabei aus der Zunahme der Sekundärelektronenausbeute $\delta = N_{SE}/N_{PE}$ mit zunehmendem Kippwinkel φ_k der Oberflächennormale. Objektelemente, die dem Detektor abgewandt sind, führen zu einer geringeren Bildintensität (Abschattungskontrast). Ist die Ausdehnung der Diffusionsbirne größer als die zu untersuchenden Strukturen, so kommt es zum BSE-Diffusionskontrast. Dabei können die diffus gestreuten Primärelektronen bestimmte Objektdetails durchdringen und somit sowohl an der Ein- und Austrittsfläche als auch an anderen, örtlich davon entfernten Probenstellen SEs erzeugen. Dieser Fall tritt häufig an schmalen Kanten auf. Ähnlich dem BSE-Diffusionskontrast verhält sich der SE-Diffusionskontrast jedoch in einer kleineren Größenordnung von $t_{SE} \simeq 1$ nm für Metalle bzw. $t_{SE} \simeq 10$ nm für organische Materialien. Der Massendickekontrast ergibt sich durch lokale Dickeunterschiede von Deckschichten auf einer topographischen Oberfläche. Je nach Probenbeschaffenheit und Primärenergie dominieren unterschiedliche Anteile dieser Kontrastbeiträge, die sich maßgeblich auf das Auflösungsvermögen auswirken.

Die wesentlichen Parameter, die das Auflösungsvermögen im SEM bei der Abbildung eines massiven Objektes bestimmen, sind:

1. Die **Diffusionsbirne**,
2. der **Sondendurchmesser** und
3. das **Signal/Rausch-Verhältnis**.

5.2.3.1 Einfluß der Elektronendiffusion

Ein Beispiel für den BSE-Diffusionskontrast und seine Auswirkungen auf das Auflösungsvermögen ist in Abbildung 5.17(a) gezeigt. Abgebildet wurde mit Sekundärelektronen eine Y-förmig geätzte Silizium-Struktur von ca. $1.5 \mu\text{m}$ Höhe und etwa $3 - 4 \mu\text{m}$ Stegbreite. Bei 30 keV in Abbildung 5.17(a) ist die Diffusionsbirne größer als die Breite des Stegs (vgl. auch Abbildung 2.7(a)). Die Primärelektronen können die Y-Struktur an jedem Punkt vollständig durchdringen und an entfernten Orten SE erzeugen. Dies führt zu einer Verschmierung des Signals über die gesamte Struktur, so daß kleinere Objektdetails auf der Oberfläche des Y nicht mehr erkennbar sind. Mit Reduzierung der Primärenergie in Abbildung 5.17(b) nimmt auch der Austrittswinkelbereich der BSE in lateraler Richtung als auch in der Tiefe deutlich ab. Die Austrittstiefe bzw. -breite der BSE nähert sich mit abnehmender Energie der SE-Austrittstiefe an. Dies führt bei der in Abbildung 5.17(b) gezeigten topographischen Struktur zu einer drastischen Auflösungsverbesserung, so daß die hochaufgelöste Information auf der Oberfläche sichtbar wird.

Um einen Überblick über die in der (LV)SEM erreichbaren praktischen Elektronenreichweiten zu erhalten, sind diese nach Gleichung 2.15 und 2.16 für verschiedene Elemente und typische Primärenergien in Tabelle A.4 aufgelistet.

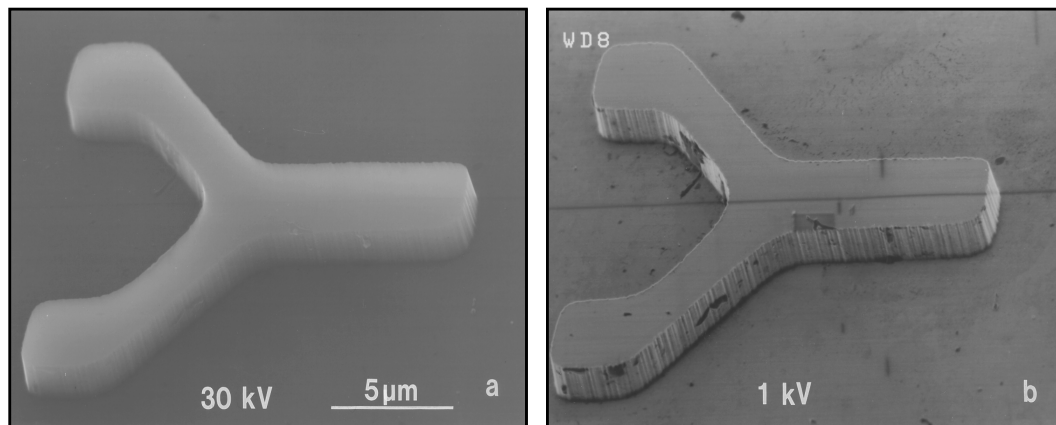


Abb. 5.17: SE-Bilder einer Y-förmig geätzten Struktur auf Silizium, abgebildet bei (a) 30 keV und (b) 1 keV (Reimer, 1993). Aufgrund des großen SE2-Anteils, verursacht durch die starke Elektronendiffusion, zeigt sich bei hohen Energien eine starke Verschmierung des hochaufgelösten SE1-Signals. Daher ergibt sich bei dieser Probe im Gegensatz zu Abb. 5.18 eine bessere Auflösung bei niedrigen Energien.

5.2.3.2 Einfluß des Sondendurchmessers

Eine weitere Größe, die einen elementaren Einfluß auf das Auflösungsvermögen eines SEM ausübt, ist der Sondendurchmesser. Je nach Probenzusammensetzung und Primärenergie treten die beiden auflösungsbegrenzenden Faktoren Elektronendiffusion bzw. Sondendurchmesser mehr oder weniger in den Vordergrund. Das Beispiel in Abbildung 5.17 zeigt, daß für ein rein topographisches Objekt die Elektronendiffusion dominant ist und die hochaufgelöste Information in der Größenordnung des Elektronensondendurchmessers verloren geht. Im Gegensatz dazu zeigt Abbildung 5.18 ein Objekt mit hochaufgelösten Materialunterschieden. Bei der Abbildung mit Sekundärelektronen ergibt sich in diesem Fall eine deutliche Dominanz der hochaufgelösten Information aus Regionen des Sondendurchmessers (SE1-Anteil). Abgebildet sind 40 nm Gold-Kolloide auf einem Silizium-Substrat (a) bei 10 keV und (b) bei 1 keV Primärenergie. Im Gegensatz zur Abbildung 5.17 zeigt sich hier eine bessere Auflösung bei höheren Primärenergien. Erklärbar ist dieses Verhalten dadurch, daß Gold bei 10 keV einen erheblich größeren Rückstreukoeffizienten (vgl. Abbildung 2.10(b)) und eine deutlich größere Sekundärelektronenausbeute als Silizium besitzt ($\eta_{Au} \gg \eta_{Si}$, $\delta_{Au} \gg \delta_{Si}$; Tollkamp (1980)). Einerseits ist dadurch in Abbildung 5.18(a) der Gesamt-Sekundärelektronenbeitrag aus den Gold-Kolloid-Bereichen deutlich höher als aus Regionen des Silizium-Substrats, andererseits ergibt sich des weiteren für die Gold-Cluster ein intensitätsstarker, hochaufgelöster SE1-Anteil, der sich deutlich vom Untergrund der SE2 abhebt. Dies führt bei der in Abbildung 5.18(a) gezeigten Probenzusammensetzung für hohe Primärenergien zu einer Dominanz der hochaufgelösten Information durch die SE1 in der Größenordnung des Sondendurchmessers.

Geht man zu niedrigeren Primärenergien (Abbildung 5.18(b)) über, so wer-

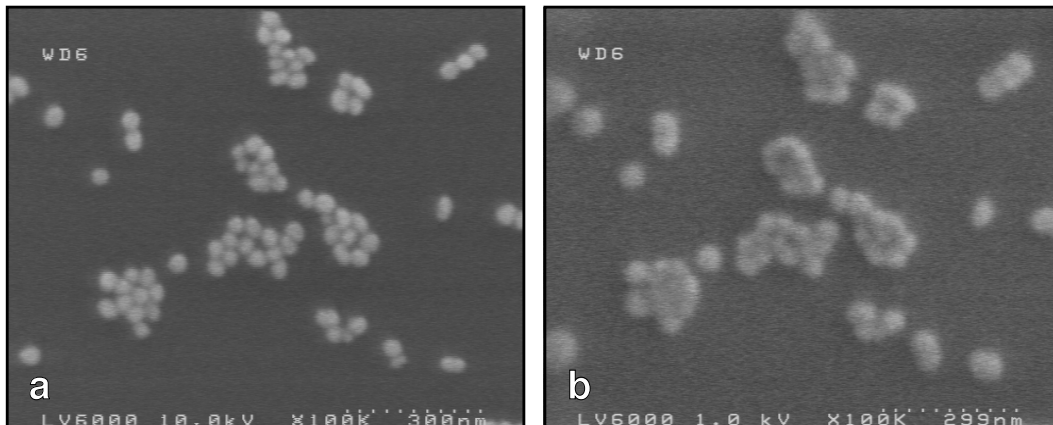


Abb. 5.18: SE-Bilder einer Au-Kolloid-Probe auf einem Si-Wafer zur Demonstration des Auflösungsvermögens bei (a) 10 keV und (b) 1 keV. Aufgrund des im Vergleich zum Gesamt-SE-Signal großen SE1-Anteils liegt hier das Auflösungsvermögen in der Größenordnung der Primärelektronensonde. Wegen der größeren Linsenfehler, größerer elektromagnetischer Störeinflüsse sowie der Ununterscheidbarkeit zwischen SE1 und SE2 ist bei niedrigen Energien das Auflösungsvermögen in diesem Beispiel bei 1 keV schlechter (vgl. auch Abschnitt 1.3 und Abb. 5.17).

den die Au-Cluster deutlich schlechter aufgelöst. Der wesentliche Grund dafür ist, daß einerseits der Sondendurchmesser im Niederenergiebereich aufgrund der größeren Gesamt-Linsenaberrationen gegenüber dem konventionellen Energiebereich um einen Faktor von ca. 2–6 größer ist. Andererseits ist die Strahlsteifheit bei niedrigen Energien deutlich geringer. Die Primärelektronensonde kann daher im Niederenergiebereich aufgrund der größeren Empfindlichkeit bzgl. elektromagnetischer Störfelder in der Objektkammer erheblich verbreitert werden. Darüber hinaus führt die Angleichung der Rückstreuoeffizienten η für Au und Si (vgl. Abbildung 2.10(a)) sowie der im Vergleich zu höheren Primärenergien geringere Unterschied in der Sekundärelektronenausbeute (Tollkamp, 1980) zu einem geringeren Kontrast zwischen Au und Si.

5.2.3.3 Einfluß des Signal/Rausch-Verhältnisses

Neben den beiden auflösungsbestimmenden Größen Sondendurchmesser und Wechselwirkungsvolumen der Elektronendiffusion spielt auch die Nachweisgrenze eines rauschbehafteten Signals bei der Abbildung zweier Objektdetails eine wichtige Rolle. Um ein Signal sicher vom Untergrundrauschen unterscheiden zu können, muß das Signal/Rausch-Verhältnis (SNR) nach Rose (1970) einen Wert von $\text{SNR} \geq 5$ annehmen. Fällt das Signal/Rausch-Verhältnis unter diesen Schwellwert, so können zwei unterschiedliche Objektdetails nicht mehr voneinander unterschieden werden, obwohl die Bedingung für eine Auflösung nach dem Rayleigh-Kriterium (Hecht, 1989) erfüllt sein kann. Ein Defizit im Signal/Rausch-Verhältnis ist häufig ein ernstzunehmendes Problem bei der Energiefilterung bzw. Spektroskopie von Elektronen.

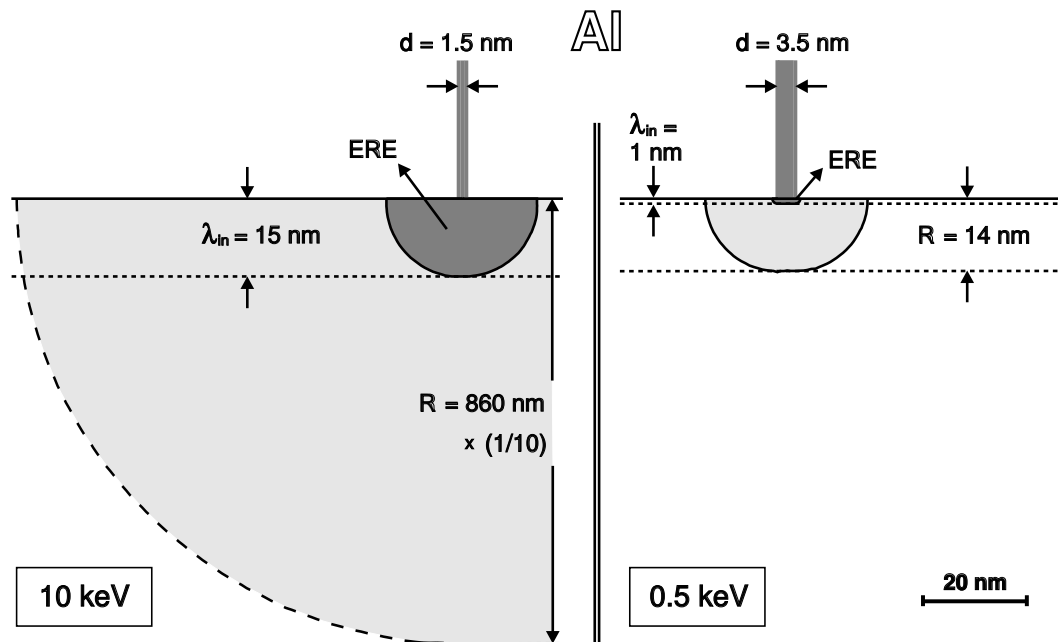


Abb. 5.19: Darstellung der Auflösungsverbesserung durch die Filterung elastisch rückgestreuter Elektronen sowie durch die Reduzierung der Primärenergie für Al bei (a) 10 keV und (b) 0.5 keV. Die Werte für die praktische Reichweite R wurden aus der Arbeit von Schindler (1993) und für λ_{in} aus Kuhr (1998) entnommen. Die eingetragenen Sonden Durchmesser stellen derzeit typische Werte moderner LVSEM dar. Man beachte die 10-fach verkleinerte Darstellung der Reichweite für 10 keV.

5.2.3.4 Auflösungsverbesserung durch elastische Filterung

Eine Möglichkeit, die Oberflächensensitivität und das Auflösungsvermögen eines SEM für alle Primärenergiebereiche zu erhöhen, ist die Energiefilterung der elastisch reflektierten Elektronen (*Zero-loss-Filterung*). Abbildung 5.19 demonstriert den möglichen Gewinn an lateraler Auflösung sowie an Oberflächensensitivität. Schematisch dargestellt ist die Ausdehnung der Elektronendiffusionsbirne in Aluminium für typische Elektronensondendurchmesser bei 10 keV und 1 keV. Mit eingezeichnet ist der Austrittsbereich der elastisch reflektierten Elektronen in der Größenordnung der mittleren inelastischen freien Weglänge λ_{in} , die sowohl das laterale Auflösungsvermögen als auch die Sensitivität in der Tiefe bei elastischer Filterung bestimmt. Die Werte für die praktische Reichweite R wurden aus experimentellen Daten der Arbeit von Schindler (1993) entnommen, die Werte für die inelastische mittlere freie Weglänge λ_{in} aus Monte-Carlo Simulationen von Kuhr (1998).

Deutliche Vorteile durch eine elastische Filterung ergeben sich daher besonders bei der Abbildung von topographischen Oberflächen mit hohen Primärenergien wie in Abbildung 5.17(a) gezeigt. Durch eine elastische Filterung sollte sich dabei eine mit Abbildung 5.17(b) vergleichbare Topographieabbildung ergeben. Darüber hinaus hat eine elastische Filterung bei hohen Primärenergien den Vorteil, daß sich

elektromagnetische Störeinflüsse weniger stark auswirken würden.

5.2.3.5 Abschätzungen für ein hochauflösendes V-LVSEM

Im folgenden werden Abschätzungen zur bestmöglichen lateralen Auflösung eines SEM durch eine Energiefilterung angestellt. Dabei bezieht sich die im folgenden verwendete Bezeichnung „hochauflösendes V-LVSEM“ auf ein derzeit noch hypothetisches SEM, welches in den Energiebereich von $30 \lesssim E \lesssim 500 \text{ eV}$ vordringen könnte und einen Elektronensondendurchmesser in diesem Energiebereich von $d_{\text{eff}} < 1 \text{ nm}$ besäße.

Müllerová und Frank (1993) sowie Pejchl *et al.* (1994) verwenden ein elektrostatisches Linsensystem, das sich unter den Polschuh konventioneller Rasterelektronenmikroskope befestigen läßt. Zusammen mit einem isolierten Probenhalter, der mit einem negativen Hochspannungs-Potential belegt werden kann, ermöglicht dieser Aufbau eine Abbildung mit Primärenergien bis herab zu einer Größenordnung von 1 eV. Die Autoren geben eine erreichbare laterale Auflösung von ca. 90 nm bei 10 eV mit dieser Anordnung an.

Die konventionelle Abbildung mit Sekundärelektronen ist auf eine minimale Auflösungsgrenze von ca. 1 nm beschränkt. Diese Grenze ergibt sich dabei aus der Delokalisierung der unelastischen Streuung bei der Erzeugung von SE und der Verbreiterung der SE-Trajektorien durch die Vielfachstreuung vor dem Verlassen des Objektes. Im Gegensatz zur unelastischen Streuung ist die elastische Streuung am Kern lokalisiert, so daß für die elastisch reflektierten Elektronen die oben genannte Auflösungsbeschränkung nicht gilt. Die Größenordnung des Auflösungsvermögens durch eine elastische Filterung wird maßgeblich durch die inelastische mittlere freie Weglänge λ_{in} bestimmt. Abbildung 5.20 zeigt die von Kuhr (1998) simulierten inelastischen mittleren freien Weglängen λ_{in} und Elektronenreichweiten R für die beiden Beispiele Aluminium und Gold in Abhängigkeit von der Primärenergie.

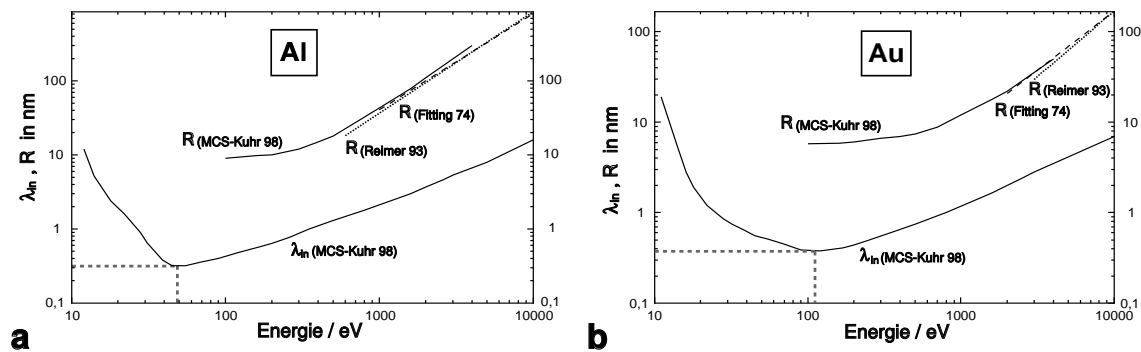


Abb. 5.20: Inelastische mittlere freie Weglänge λ_{in} und die entsprechende praktische Elektronenreichweite R in Abhängigkeit von der Elektronenenergie E für (a) Al und (b) Au. Die Ergebnisse der Monte-Carlo Simulationen (MCS) für λ_{in} und R wurden aus der Arbeit von Kuhr (1998) entnommen, die experimentellen Daten für R von (Schindler, 1993; Reimer, 1993) sowie von Fitting (1974).

Das Minimum von λ_{in} erreicht dabei Werte unterhalb von 1 nm (hier ca. 0.3–0.4 nm) bei Primärenergien in der Größenordnung von ca. 30 bis 100 eV. Diese Eigenschaft ergibt sich nach Berechnungen von Kuhr auch für die Elemente Be, C, Si und Ag. Zur Demonstration der guten Übereinstimmung mit experimentellen Daten wurden die von Fitting (1974) sowie (Schindler, 1993; Reimer, 1993) gemessenen Werte der praktischen Elektronenreichweite R mit eingezeichnet.

Die bestmögliche Auflösung im SEM ist daher durch eine elastische Filterung der reflektierten Elektronen bei einer Primärenergie im Minimum von λ_{in} des betreffenden Elements zu erzielen.

Zur Realisierung eines dazu nötigen hochauflösenden V-LVSEM wären die folgenden Bedingungen zu erfüllen:

- Das im *Very-Low-Voltage*-Bereich deutlich stärker ausgeprägte Kontaminationsproblem ist durch die Verwendung eines Ultrahochvakuums zu beheben.
- Darüber hinaus ist eine bessere Abschirmung oder Kompensation der elektromagnetischen Störfelder in der Objektkammer erforderlich. Zur Minimierung der elektromagnetischen Störeinflüsse sollte der Primärelektronenstrahl die Mikroskopsäule mit hoher Primärenergie (ca. 10 keV) durchlaufen und erst in einem Bereich vor der Probe auf die gewünschte niedrige Energie abgebremst werden.
- Als elektronenstrahlerzeugendes System vereinigt derzeit der Schottky-Emitter die meisten der erforderlichen Eigenschaften. Er liefert große Strahlströme bei einem hohem Richtstrahlwert und einer geringen Energiebreite. Dieser Kathoden-Typ sollte auch bei einer zusätzlich nötigen Monochromatisierung des Primärelektronenstrahls eine ausreichende Intensität gewährleisten.
- Ein derartiges SEM würde den Einsatz von elektromagnetischen Multipol-Elementen zur Korrektur der Linsenaberrationen erfordern; Zach (1989) zeigte, daß sich so bei einer Primärenergie von 500 eV ein Sondendurchmesser von <1 nm erreichen läßt (vgl. auch Abschnitt 1.3).
- Für die energiegefilterte Abbildung wird ein Elektronen-Energiefilter bzw. Elektronen-Spektrometer benötigt, bei dem eine Energieauflösung von ca. $\delta E \lesssim 10$ eV ausreicht. Diesbzgl. zeigen rotationssymmetrische Spektrometer vom polaren toroidalen Ablenkfeld-Typ bzw. vom Zylinder-Spiegel-Typ eine Reihe von Vorteilen. Sie gewährleisten durch ihre 360°-Symmetrie eine vergleichsweise große Raumwinkelerfassung bei hoher Energieauflösung. Darüber hinaus ist der Einfluß auf die Potentialverteilung in der Objektkammer rotationssymmetrisch.

5.3 Kontamination

Ein mit abnehmender Primärenergie verstärkt auftretendes Problem bei analytischen Untersuchungen einer Probe bzw. der Abbildung hochaufgelöster Oberflächendetails stellt die Kontamination dar. Als Kontamination wird das Aufbrechen von Kohlenwasserstoffverbindungen unter Elektronenbeschuß bei anschließender Polymerisation der Spaltprodukte auf der Probe bezeichnet (Hren, 1979; Love *et al.*, 1981). Die ursächlichen Kohlenwasserstoffe stammen im wesentlichen aus Diffusions- und Rotationspumpenölen, Vakuurfetten, Gummidichtungen und Fingerabdrücken. Dabei wird unterschieden zwischen organischen Molekülen, die aus dem Restgas-Vakuum auf die Probe einfallen und Molekülen, die von der Oberfläche bzw. aus dem Innern der Probe stammen.

In der Grafik 5.21 sind Monte-Carlo Simulationen zum Kontaminationsproblem gezeigt.

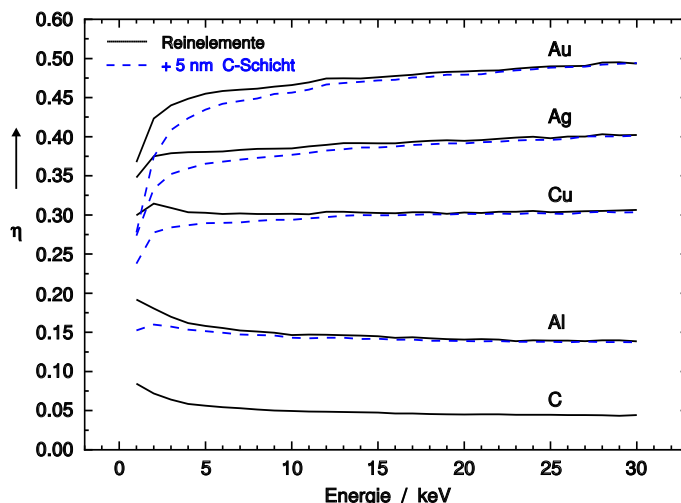


Abb. 5.21: Monte-Carlo Simulation des Einflusses einer 5 nm Kontaminationsschicht auf den Rückstreukoeffizienten η für die Elemente Al, Cu, Ag und Au in Abhängigkeit von der Primärenergie.

Dargestellt ist der Einfluß einer 5 nm Kohlenstoffschicht auf den Rückstreukoeffizienten η für verschiedene Reinelemente in Abhängigkeit von der Elektronenenergie. Unterhalb einer Primärenergie von etwa 5 keV zeigen sich deutlich zunehmende Abweichungen vom Rückstreukoeffizienten der Reinelemente. Die Folge für den Niederenergiebereich ist daher eine reduzierte Bildhelligkeit, die Überdeckung kleiner Objektdetails und die Verfälschung analytischer Informationen.

Der mit abnehmender Primärenergie ansteigende Einfluß der Kontamination ist durch die abnehmende Elektronenreichweite und die steigende Kontaminationsrate proportional zur *Stopping-Power* $S \simeq E^{-0.8}$ begründet. Darüber hinaus zeigt sich bei zunehmender Strahlintensität eine ebenfalls ansteigende Kontaminationsrate.

Detailliertere experimentelle und theoretische Betrachtungen wurden von Hirsch *et al.* (1994) durchgeführt. Entscheidende Größen für die Beschreibung der Kontamination sind dabei die Kohlenwasserstoffdiffusion und die -absorption an der Oberfläche der Probe und der Kohlewasserstoffpartialdruck in der Probenkammer. Postek (1996) behandelt die Möglichkeiten zur Reduzierung der Kontamination in einem LVSEM mit kalter FEG.

Als Maßnahmen zur Reduzierung der Kontamination werden die folgenden Verfahren angewendet:

- **UHV-Vakuumbedingungen:** Dieses Verfahren basiert auf der erheblichen Reduzierung der Kohlenwasserstoffe in der Vakuumkammer und auf der Oberfläche bzw. innerhalb der Probe. Dazu wird unter UHV-Bedingungen gearbeitet. Zur Erreichung des UHV ist neben eines entsprechend ausgelegten aufwendigeren Pumpsystems ein Verzicht auf Gummidichtungsringe und Vakuumfette sowie ein Ausheizen der Vakuumkammer und der Probe bei ca. 400–500°C nötig. In der Elektronenmikroskopie muß jedoch einerseits in der Regel ein schneller Probenwechsel gewährleistet sein, andererseits werden häufig empfindliche Proben untersucht, so daß dieses Verfahren hier nur selten verwendet wird.
- **Heizen der Probe:** Eine andere Möglichkeit der Reduzierung der Kontamination wird durch das Heizen des zu untersuchenden Objektes erzielt. Nach Böngeler (1992) gibt es zwischen dem Rückgang der Kontamination und der Heiztemperatur einen linearen Zusammenhang. Bei Aufheizung der Probe auf bis zu 250°C läßt sich zwar eine erhebliche Abnahme der Kontamination erkennen, es bleibt aber dennoch eine deutliche Kontamination zurück. Eine Reduzierung durch eine weitere Aufheizung ist bei vielen Materialien, besonders aus dem biologischen Bereich, nicht möglich. Weiterhin zeigt sich, daß die Reduzierung der Kontamination im Niederenergiebereich erheblich schwächer ausgeprägt ist als im konventionellen Energiebereich (Ennos, 1954; Ogura *et al.*, 1989).
- **Kühlen der Probe und der Objektumgebung:** Die Kühlung des Objektes und des Objektraumes stellt in der LVSEM die sinnvollste Möglichkeit dar, die Kontamination drastisch zu reduzieren. Dabei wird häufig ein LN₂-Kühlsystem verwendet, bei dem sich sowohl die Objektumgebung allein als auch zusammen mit dem Objekt auf Temperaturen bis herab zu ca. –190°C kühlen läßt. Die Kühlung der Probe bewirkt eine Reduzierung der Kohlenwasserstoffdiffusion an der Oberfläche. Das zusätzliche Kühlen der Objektraumumgebung reduziert den Kohlenwasserstoff-Partialdruck und sorgt dafür, daß die Probe nicht als Kühlfalle wirkt. Dabei ist darauf zu achten, daß die entsprechenden Kühlbleche stets kühler sind als das Objekt selbst. Genauere Untersuchungen zur Reduzierung der Kontamination im LVSEM von Wahlbring (1994) und Püttmann (1993) zeigen, daß eine Kühlung der Probe unter –120°C die Kontamination nahezu gänzlich unterdrückt. Wichtig bei der Realisierung einer

Objekt- und Objektraum-Kühlung ist, daß die Probe in die Objektkammer eingeschleust werden kann, nachdem der Kühltsch auf eine Temperatur von $T < -120^{\circ}\text{C}$ gekühlt wurde. Nur so kann eine Kondensation auf der Probe vermieden und eine deutliche Reduzierung der Kontamination erreicht werden. Untersuchungen von Essers (1997) zur AEAPS bzw. DAPS unter Verwendung einer Objekt- und Objektraum-Kühlung zeigen, daß sich durch die damit erreichte Verbesserung des Vakuums in Objektnähe und die Reduzierung der Kontaminationsrate empfindliche, oberflächensensitive spektroskopische Messungen über einen Zeitraum von ca. 1 h in einem LVSEM mit kalter FE-Kathode durchführen lassen.

Kapitel 6

Zusammenfassung und Ausblick

Im Rahmen dieser Arbeit wurde ein PC-gestützter, modularer Meßaufbau zum Betrieb von Elektronen-Spektrometern in kommerziellen Rasterelektronenmikroskopen entwickelt. Die erstellte Software ermöglicht das genaue „Anfahren“ einer festen Spektrometer-Spannung für die Aufnahme von energiegefilterten Bildern (ESI) und die weitgehend automatisierte Aufzeichnung von Energieverlustspektren (EELS). Zusammen mit der zur Verfügung stehenden Spannungsversorgung ist die Ansteuerung eines Spannungsbereichs von 0 bis ± 9.5 kV mit einer minimalen Schrittweite von 2.4 V und/oder eines Bereichs von 0 bis ± 500 V bei einer minimalen Schrittweite von 0.12 V möglich. Mit diesem Meßaufbau wurden Untersuchungen zur Energiefilterung rückgestreuter und transmittierter Elektronen in einem Niederspannungs-Rasterelektronenmikroskop mit kalter Feldemissionsquelle durchgeführt.

Die Experimente zur Transmission im STEM-Modus des LVSEM erfolgten an dünnen freitragenden Schichten. Zunächst wurde die mögliche Kontraststeigerung mit Abnahme der Primärenergie an einer ca. 20 nm dünnen mit Gold-Inseln bedampften Kohlenstoff-Schicht bis zu einer minimalen Energie von 3 keV untersucht. Mit Hilfe einer für den STEM-Betrieb entwickelten Gegenfeld-Filterlinse und dem dazu gehörigen Szintillations-Detektor für transmittierte Elektronen wurde die zusätzliche Steigerung des Kontrastes durch eine *Zero-loss*-Filterung erreicht. Die Gegenfeld-Filterlinse läßt sich mit der vorhandenen Spannungsversorgung für die Aufnahme von *Zero-loss* gefilterten Bildern in einem Energiebereich von 0–10 keV betreiben; für ungefilterte Aufnahmen steht der gesamte Primärenergiebereich des verwendeten LVSEM von 0.5–30 keV zur Verfügung. Der erhebliche Kontrastgewinn, der durch die im Vergleich zu einem TEM deutlich verringerten Beschleunigungsspannungen sowie einer zusätzlichen *Zero-loss*-Filterung erzielt werden kann, ist besonders für Dünnschnitte aus Biologie und Medizin interessant. Für bestimmte Proben kann daher eine Kontrastierung der Schnitte unterbleiben bzw. erheblich reduziert werden. Der entwickelte Meßaufbau eignet sich mit dem zur Verfügung stehenden Energiebereich für biologische Dünnschnitte in der Größenordnung $t \lesssim 50$ nm.

Das ebenfalls für die Abbildung in Transmission modifizierte Jostsche „sphärische“ Sektorfeld-Spektrometer ermöglicht darüber hinaus nicht nur eine Filterung mit *Zero-loss*-Elektronen, sondern auch eine Abbildung mit Elektronen eines beliebigen

gen Energieverlustes. Durch die Verwendung des Spektrometers im Monochromator-Modus kann derzeit eine absolute Energieauflösung von $\delta E = 2.8 \text{ eV}$ erreicht werden. Diese Grenze ergibt sich durch die Restwelligkeit des Digital/Analog-Wandlers zur Steuerung der Spektrometer-Spannungsversorgung und durch die Elektroden-Spannungsversorgung des Jostschen Spektrometers. Nach Optimierung dieser Komponenten kann mit diesem Aufbau eine Energieauflösung in der Größenordnung der Energiebreite der kalten Feldemissionskathode des S-4000 SEM erreicht werden. Das verwendete Spektrometer kann derzeit aufgrund der mangelnden Überschlagsfestigkeit nur in einem Primärenergiebereich bis maximal 3 keV betrieben werden. Bei dieser Energie konnten sowohl energiegefilterte Bilder als auch EEL-Spektren im *Low-loss*-Bereich einer ca. 18 nm dünnen Formvar- und Aluminium-Schicht aufgezeichnet werden.

Für detailliertere Untersuchungen zur elektronenspektroskopischen Abbildung und Energieverlust-Spektroskopie mit diesem Aufbau ist eine Erhöhung der Spannungsfestigkeit bis auf ca. 10 kV sinnvoll, um den analysierbaren Schichtdickenbereich zu erhöhen. Des weiteren zeigten sowohl die Messungen als auch Monte-Carlo Simulationen, daß eine deutliche Reduktion der Kontamination beispielsweise durch eine Proben- und Objektraum-Kühlung erforderlich ist. Nach entsprechenden Optimierungen des Aufbaus sind neben den oben genannten energetisch hochaufgelösten Untersuchungen in Transmission auch winkelaufgelöste Messungen in Rückstreuung interessant. So erwartet man, daß energiegefilterte Messungen zur Intensitätsverteilung der elastisch reflektierten Elektronen qualitativ den Verlauf des Mottschen Wirkungsquerschnitts im Streuwinkelbereich von $0^\circ < \theta < 90^\circ$ widerspiegeln.

Die Untersuchungen zur Rückstreuung erfolgten an massiven Reinelement- und Vielfachschicht-Proben. Dabei wurden Monte-Carlo Simulationen zur winkelabhängigen Energieverteilung und zum partiellen Rückstreukoeffizienten im Primärenergiebereich von $1\text{--}10 \text{ keV}$ durchgeführt. Die berechneten partiellen Rückstreukoeffizienten verschiedener Elemente für definierte Austrittswinkelbereiche zeigen in Abhängigkeit von der Primärenergie verglichen mit dem Gesamt-Rückstreukoeffizient (η) zum Teil gegenläufige Kurvenverläufe. Spiegeln beispielsweise alle partiellen Rückstreukoeffizienten für Al in Abhängigkeit von der Primärenergie den abnehmenden Verlauf des Gesamt-Rückstreukoeffizient wider, so ist dies für Elemente mit deutlich größeren Ordnungszahlen nicht mehr der Fall. Ag zeigt bis zu einem Austrittswinkelbereich von $\psi \lesssim 40^\circ$ und Au bis zu $\psi \lesssim 20^\circ$ im Niederenergiebereich einen abnehmenden Verlauf der partiellen Rückstreukoeffizienten mit steigender Primärenergie im Gegensatz zum Gesamt-Rückstreukoeffizient. Die winkelabhängigen Energieverteilungen für hohe Primärenergien ($\gtrsim 10 \text{ keV}$) zeigen tendenziell die gleiche Ordnungszahlabhängigkeit wie die Gesamt-Energieverteilungen. Für alle Austrittswinkelbereiche von $0^\circ < \psi < 90^\circ$ wird eine mit steigender Ordnungszahl Z zunehmende wahrscheinlichste Energie E_w des jeweiligen Energiespektrums beobachtet. Dabei ist die Ordnungszahlabhängigkeit für niedrige Austrittswinkel deutlich stärker ausgeprägt als für hohe Austrittswinkel. Mit abnehmender Primärenergie ($E_{PE} \lesssim 4 \text{ keV}$) ist diese Elementzuordnung durch die wahrscheinlichste Ener-

gie nicht mehr gegeben. In Abhängigkeit vom Austrittswinkel bilden sich mit abnehmender Energie und zunehmender Ordnungszahl verstärkt Maxima und Minima von E_w aus. Es kommt zu Überschneidungen der Kurven, so daß eine eindeutige Elementzuordnung an diesen Punkten nicht mehr gewährleistet ist. Die Simulationen ließen sich durch vergleichende Messungen mit einem segmentierten hemisphärischen Gegenfeld-Spektrometer für einen mittleren Austrittswinkelbereich von $30^\circ \leq \psi \leq 50^\circ$ für 1–5 keV Elektronen bestätigen. Für die Winkelbereiche von $0^\circ \leq \psi < 30^\circ$ (*Low-take-off*) und $50^\circ \leq \psi \leq 90^\circ$ (*High-take-off*) ist für einen genauen Vergleich sowohl ein Studium der möglichen Aufladungseffekte in diesen Regionen innerhalb des Spektrometers erforderlich als auch eine Untersuchung des Einflusses von möglichen Streuelektronen. Eine Erweiterung des maximalen Primärenergiebereichs bis auf 10 keV erscheint möglich; entsprechende Tests zur Überschlagsfestigkeit des Spektrometers stehen derzeit noch aus.

Des weiteren wurde ein toroidales Sektorfeld-Spektrometer für eine energiewahlweise Abbildung und die Spektroskopie von rückgestreuten Elektronen erprobt. Dabei standen Untersuchungen zur tiefenselektiven Abbildung verborgener Schichten im Vordergrund. Das verwendete Spektrometer ermöglicht durch die Variation der Spektrometer-Ablenkspannung eine schnelle Abbildung von Schichten aus bevorzugt einer, der BSE-Energie entsprechenden Tiefe. Bei der Interpretation der erhaltenen Bilder ist wie bei allen elektronentomographischen Verfahren zu beachten, daß gleiche Massendicken abgebildet werden. Die spektroskopischen Untersuchungen dazu zeigen eine qualitative Übereinstimmung mit parallel durchgeführten Monte-Carlo Simulationen. Für einen genauen Vergleich ist eine bessere Anpassung des Simulations-Modells an die Spektrometereigenschaften erforderlich. Dabei spielen die genaue Implementierung der relativen Energieauflösung des Spektrometers sowie die Entfaltung der Spektren mit der Transmissionsfunktion eine entscheidende Rolle. Interessant ist es, dieses Spektrometer zukünftig im Monochromator-Modus bei hoher und konstanter Energieauflösung in der Größenordnung $\delta E \lesssim 5 \text{ eV}$ zu betreiben. Dies erleichtert den Vergleich mit theoretischen Daten und bewirkt eine größere und konstante Trennschärfe bei der tiefenselektiven Abbildung. Darüber hinaus ist eine höhere konstante Energieauflösung für die elementspezifische Abbildung interessant. Eine energiegefilterte Abbildung mit höherenergetischen Rückstreuelektronen ermöglicht zudem eine Abbildung von Objekten mit leichten Oberflächenaufladungen. Des weiteren kann durch die energiegefilterte Abbildung mit elastisch reflektierten Elektronen, besonders für hohe Primärenergien und vorwiegend topographische Proben, ein deutlicher Gewinn an lateraler Auflösung im Vergleich zu einer herkömmlichen Abbildung mit Sekundärelektronen erzielt werden.

Weiterhin bietet eine Energiefilterung der elastisch reflektierten Elektronen die Möglichkeit, die für eine SE-Abbildung theoretisch vorgegebene laterale Auflösungsgrenze von ca. 1 nm zu durchbrechen. Aus theoretischen Überlegungen heraus sollte durch eine Abbildung mit elastisch reflektierten Elektronen im Primärenergiebereich von $30 \lesssim E_{PE} \lesssim 100 \text{ eV}$ eine Auflösung von $< 1 \text{ nm}$ erreichbar sein, vorausgesetzt die Auflösungsbegrenzung ist nicht durch die Größe des Sondendurchmessers bestimmt.

Anhang A

A.1 Parameter des S-4000 SEM

A.1.1 Vakuumdaten

In Tabelle A.1 sind die Meßdaten für die einzelnen Vakuumbereiche des S-4000 SEM zusammengestellt.

Tab. A.1: Typische Vakuumbereiche innerhalb des S-4000 SEM; (RP = Rotationspumpe, DP = Öl-Diffusionspumpe, IGP = Ionen-Getterpumpe).

Mikroskopsäulen-Vakuum			Probenkammer- vakuum (RP+DP)
Kath.-Raum, IGP-1	Säulenmitte, IGP-2	Säulenende, IGP-3	
$< 10^{-10}$ hPa	$\approx 2 \cdot 10^{-10}$ hPa	$\approx 7 \cdot 10^{-9}$ hPa	$\leq 7 \cdot 10^{-6}$ hPa

Das Objektkammer-Vakuum ist dabei um mehrere Größenordnungen schlechter als das Mikroskopsäulen-Vakuum. Um eine kontinuierliche Verschlechterung des Säulen-vakuums zu verhindern, wird ein Vakuumventil zwischen diesen beiden Teilbereichen des Mikroskops nur während des Betriebs geöffnet. Ein *Baking*-Vorgang, bei dem der Kathoden- und Mikroskopsäulen-Bereich ausgeheizt wird um niedergeschlagene Restgasmoleküle zu entfernen, wird etwa in jährlichen Zeitabständen durchgeführt.

A.1.2 Sondenstrom

In Abbildung A.1 ist der Sondenstrom in Abhängigkeit von der Primärenergie gezeigt, der mit der kalten Feldemissions-Kathode des S-4000 SEM erreicht werden kann.

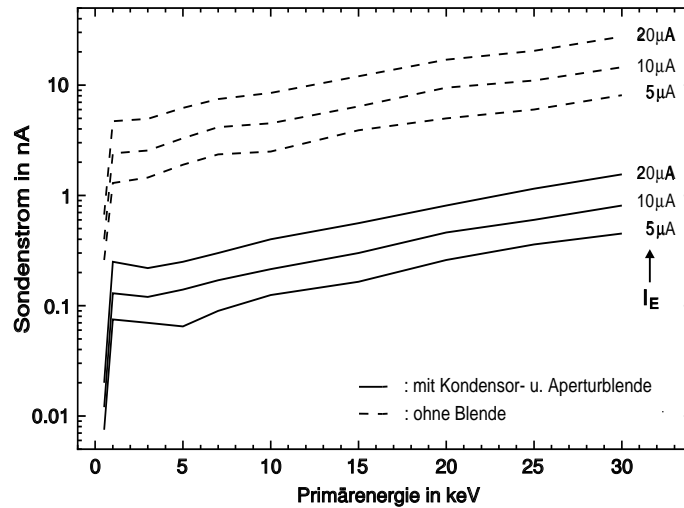


Abb. A.1: Gemessener Sondenstrom der kalten FE-Kathode des S-4000 SEM in Abhängigkeit von der Primärenergie. Parameter ist der Emissionsstrom I_E in μA ; gestrichelt: ohne Kondensor- und Aperturblende; durchgezogen: mit Kondensor- und Aperturblende.

Gestrichelt aufgetragen sind die Messungen ohne Kondensor- und Aperturblende für die unterschiedlichen Emissionsstromwerte $I_E = 5, 10$ und $20 \mu\text{A}$. Diese Meßkurven stellen den maximal möglichen Strahlstrom dar, der in der Probenkammer mit der kalten FE-Kathode des S-4000 SEM erreicht werden kann. Für den maximalen Emissionsstrom von $20 \mu\text{A}$ erreicht er Werte von ca. $5 - 30 \text{ nA}$ für den Primärenergiebereich von $1 - 30 \text{ keV}$. Die durchgezogenen Kurven zeigen die entsprechenden Messungen mit Kondensor- und Aperturblende die für den Abbildungsmodus des Mikroskops interessant sind. Hier ergeben sich maximale Sondenströme von $0.3 - 1.6 \text{ nA}$ bei Primärenergien von $1 - 30 \text{ keV}$. Messungen der Kurzzeitfluktuationen des Sondenstroms ergaben in guter Übereinstimmung mit der Literatur einen Schwankungsbereich von ca. $1 - 4 \%$.

A.2 Ergänzende Tabellen

A.2.1 Eigenschaften verschiedener Szintillatoren

Für die optimale Konstruktion von Szintillator-(Lichtleiter-)Photomultiplier Kombinationen ist es wichtig, die Einzel-Komponenten möglichst gut aufeinander abzustimmen. Dazu ist eine genaue Kenntnis der Szintillator-Eigenschaften, des Transmissions-Verhaltens des Lichtleiters und der wellenlängenabhängigen Signalausbeute des Photomultipliers erforderlich. In Tabelle A.2 sind daher die Eigenschaften, der in der Elektronenmikroskopie verwendeten Szintillator-Materialien aufgeführt. Die Parameter häufig verwendeter Lichtleiter und Photomultiplier sind in Abbildung 5.6 grafisch dargestellt.

Tab. A.2: Eigenschaften verschiedener Szintillator-Materialien nach Egerton (1996) und Autrata (1998), wie sie z. T. für die Abschätzungen zur Optimierung des Jost-Spektrometer-Aufbaus (vgl. Abschnitt 5.1.2) verwendet wurden.

Material	Typ	Peak-Wellenlänge (nm)	Zerfallszeit (ns)	Konversions-effizienz (%)	Schädigungsdosis (Mrad)
NE 102	Plastik	420	2, 4, 7	3	1
NE 901	Li-Glas	395	75	1	10^3
ZnS(Ag)	Polykristall	450	200	12	—
P-47	Polykristall	400	60	7	10^2
P-46	Polykristall	550	70	3	$> 10^4$
CaF ₂ (Eu)	Kristall	435	1000	2	10^4
YAG	Kristall	560	80	5	$> 10^4$
YAP	Kristall	380	30	7	$> 10^4$

A.2.2 Eigenschaften verschiedener Kathodentypen

In Tabelle A.3 sind die charakteristischen Eigenschaften der in der SEM gebräuchlichen Kathodentypen zusammengestellt. Die Informationen beziehen sich im wesentlichen auf Angaben von Schmidt *et al.* (1994) und Reimer (1993). Der Wert für die Lebensdauer eines Schottky-Emitters wurde nach Informationen von Frase (1998) erhalten. Die Angabe für die ungefähre untere Grenze der Lebensdauer einer kalten FEG stützt sich auf die bisherigen eigenen Erfahrungen einer einzigen, weiterhin betriebsbereiten Kathode des in dieser Arbeit verwendeten S-4000 SEM. Größen wie der Richtstrahlwert und der Elektronenemissionsbereich lassen sich schwer experimentell bestimmen und weisen daher größere Fehler auf.

Tab. A.3: Charakteristische Parameter der in der Elektronenmikroskopie eingesetzten Kathodentypen (Schmidt *et al.*, 1994; Reimer, 1993; Broers, 1975).

Kathoden- typ	W	LaB ₆	Schottky- Kathode	geheizte Feld- emissionskathode	kalte Feld- emissionskathode
Kathoden-Temp. in K	2500–3000	1400–2000	1800–2300	1600	300
Austritts- arbeit Φ in eV	4.5	2.7	2.8	4.6	4.6
Energiebreite δE in eV	2–3	1.5	0.8	0.5–0.7	0.2–0.4
Richtstrahlwert β in A/cm ² sr	$(0.3–2) \cdot 10^5$	$(3–20) \cdot 10^5$	$10^7–10^8$ (bei 20 kV)	$10^7–10^8$ (bei 20 kV)	$10^7–10^8$ (bei 20 kV)
Emissionsstrom- dichte j_e in A/cm ²	1–3	20–50	500	$5 \cdot 10^6$	$2 \cdot 10^5$
Emissionsstrom I_e in μ A	100–200	100–200	100–200	20–100	10–30
Elektronen-Emissions- bereich in μ m ²	$\gg 10^3$	$> 10^3$	> 0.3	—	0.03
<i>Cross-over</i> -Ø in μ m Spitzenradius r_s in μ m Virt.-Quellen-Ø in nm	20–50	10–20	0.5–1 $d_{vg} \simeq 10–20$ nm	0.01	0.1 $d_{vg} \simeq 3–10$ nm
Strahlstrom in A	ca. $10^{-6}–10^{-12}$	ca. $10^{-6}–10^{-12}$	ca. $10^{-7}–10^{-12}$	ca. $10^{-7}–10^{-12}$	ca. $5 \cdot 10^{-9}–10^{-12}$
Kurzzeit- stabilität	1 %	1 %	1 %	ca. 7 %	5 %
Langzeit- stabilität	ca. 1 %/h	ca. 1–3 %/h	ca. 1 %/h	ca. 6 %/h	ca. 5 %/15 min
Vakuum in hPa	$10^{-4}–10^{-5}$	$10^{-6}–10^{-7}$	$\leq 10^{-9}$	$\leq 10^{-9}$	$\leq 5 \cdot 10^{-10}$
Lebensdauer t_l in h	ca. 40–100	ca. 500–1000	$9000 \lesssim t_l \lesssim ?$	—	$6000 < t_l \lesssim ?$

A.2.3 Praktische Elektronenreichweiten

Tabelle A.4 zeigt den Reichweiten-Bereich, der mit einem Rasterelektronenmikroskop abgedeckt werden kann. Die praktischen Reichweiten wurden dabei mit Hilfe der Gleichungen 2.15 und 2.16 nach Fitting (1974) berechnet.

Die häufig benötigte Informationstiefe der BSE ergibt sich damit aus $t_{BSE} \approx R/2$. Die in Klammern dargestellten (hohen) Energiebereiche sind dabei in der Regel mit Niederspannungs-Rasterelektronenmikroskopen nicht zu erreichen.

Tab. A.4: Übersichtstabelle der Elektronenreichweiten nach Glg. 2.15 und 2.16 verschiedener Elemente für den Energiebereich eines LVSEM.

Praktische Elektronenreichweite R in nm					
E in keV	C $Z = 6$; $\varrho = 1.2 \text{ g/cm}^3$	Al $Z = 13$; $\varrho = 2.7 \text{ g/cm}^3$	Cu $Z = 29$; $\varrho = 8.96 \text{ g/cm}^3$	Ag $Z = 47$; $\varrho = 10.5 \text{ g/cm}^3$	Au $Z = 79$; $\varrho = 19.3 \text{ g/cm}^3$
0.5	31.6	16.5	6.3	5.6	3.4
1	77.8	40.7	15.6	13.7	8.4
5	630	329	126	111	68
10	1552	811	310	273	168
20	6218	2997	1018	882	510
30	12389	5971	2028	1759	1017
(40)	20204	9738	3308	2868	1658
(50)	29525	14231	4834	4191	2423

A.3 Elektronische Schaltskizzen

A.3.1 Verstärker für das hemisphärische Gegenfeld-Spektrometer

Abbildung A.2 zeigt den für die spektroskopischen Untersuchungen mit dem hemisphärischen Gegenfeld-Spektrometer verwendeten Stromverstärkeraufbau. Die Auswahl eines der acht Eingangsverstärker sowie des Verstärkungsfaktors des Nachverstärkers läßt sich dabei außerhalb des Mikroskopvakuums durchführen.

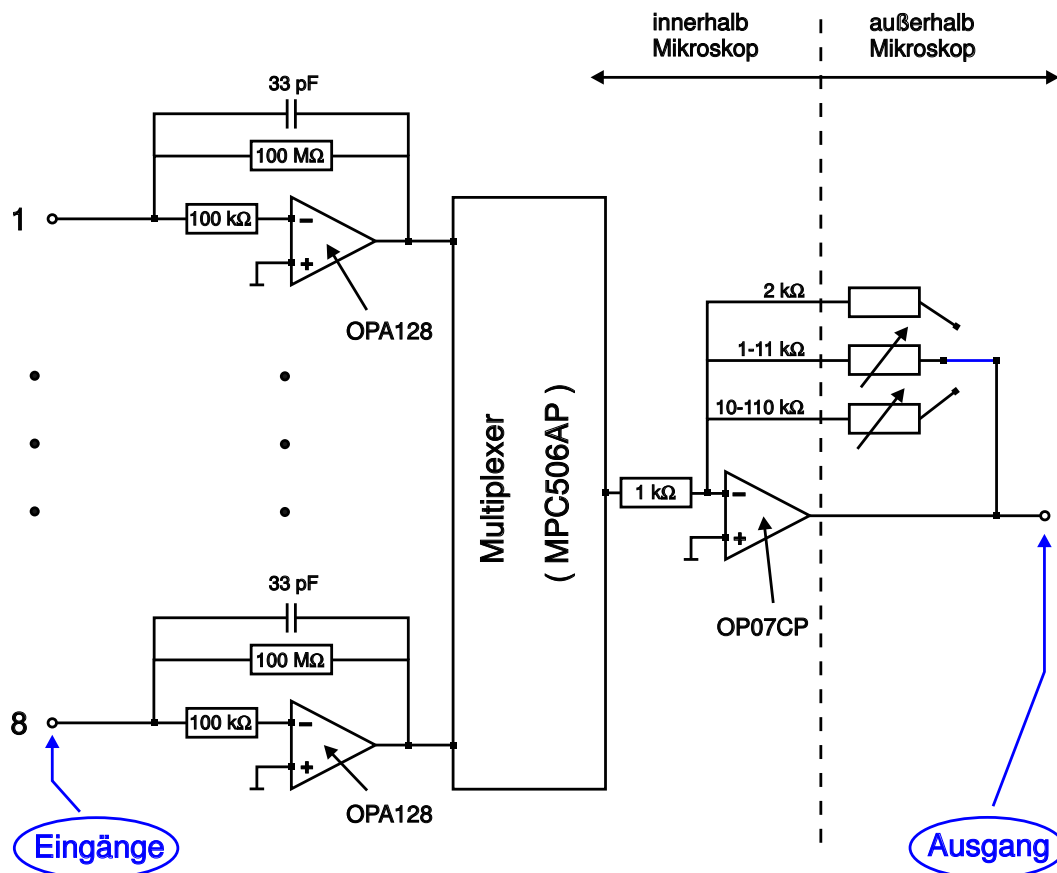


Abb. A.2: Stromverstärker-Aufbau für die acht Segmentringe des hemisphärischen Gegenfeld-Spektrometers aus Abschnitt 5.2.1.

A.3.2 Signalverstärker zur Bild- und Spektrenaufnahme

Im folgenden ist der Signalverstärker gezeigt, wie er zur Nachverstärkung des Photomultiplier-Signals sowohl für die Bild- als auch für die Spektrenaufnahme verwendet wurde. Durch die Reduzierungsmöglichkeit des Maximalverstärkungsfaktors von 300-fach auf 15-fach konnte dieser Schaltungsaufbau auch für die zeitaufgelöste Blendenstrommessung mit Hilfe eines Hochfrequenzastkopfes verwendet werden.

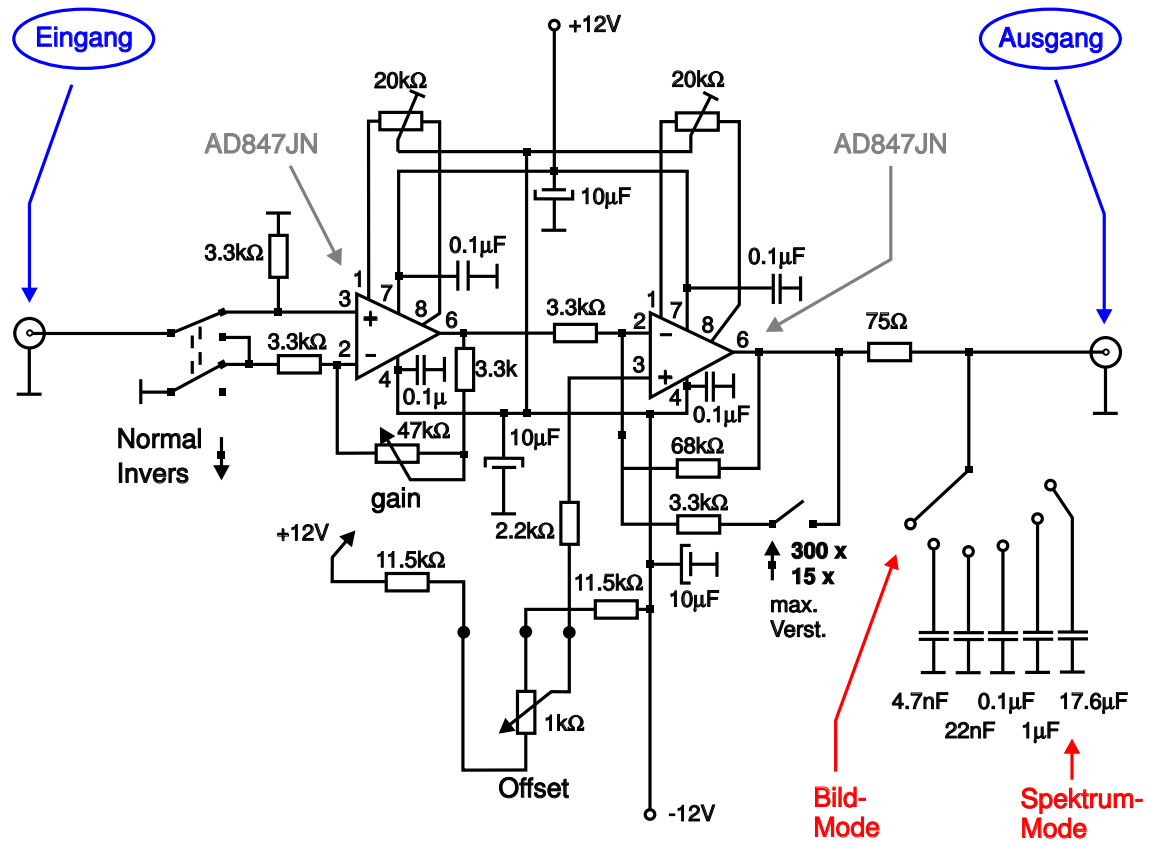


Abb. A.3: Verstärkeraufbau wie er zur Signalverstärkung des Photomultiplier-Ausgangssignals für die Untersuchungen mit der Gegenfeld-Filterlinse (aus Abschnitt 4.2.1), dem toroidalen Sektorfeld-Spektrometer (aus Abschnitt 4.3.1) und dem „sphärischen“ Sektorfeld-Spektrometer (aus Abschnitt 4.3.2) verwendet wurde.

Abkürzungsverzeichnis

ADC	Analog D igital C onverter
ADDA	Analog/ D igital D igital/ A nalog Converter
AE	A uger- E lectron
AEAPS	A uger E lectron A ppearance P otential Spectroscopy
AES	A uger- E lectron Spectroscopy
BSE	B ack S cattered E lectron
CSDA	C ontinuous S lowing D own A pproximation
DAC	D igital A nalog Converter
DAPS	D isappearance P otential Spectroscopy
DP	Öl- D iffusions- P umpe
EDX	E nergy D ispersive X -ray Microanalysis
EELS	E lectron E nergy L oss Spectroscopy
EFTEM	E nergy F iltering T ransmission E lectron M icroscope
ELNES	E nergy L oss N ear E dge S tructure
ERE	E lastically R eflected E lectron
ESI	E lectron Spectroscopic I maging
ETD	E verhardt T hornley D etektor
FE	F ield E mission
FEG	F ield E mission G un
GFE	G eheizte F eld- E mission
GIF	G atan I maging F ilter
GOS	G eneralized O szillator S trength
HV	H och- V akuum, H igh- V oltage
IC	I ntegrated C ircuit
IGP	I onen G etter P umpe
ILE	I onisation- L oss E lectron
KFE	K alte F eld- E mission
KL	K athodolumineszenz
LEED	L ow E nergy E lectron D iffraction
LL-B	L icht L eitfaser- B ündel
LLE	L ow- L oss E lectron
LN ₂	L iquid N itrogen
LVSEM	L ow- V oltage S canning E lectron M icroscope
MCP	M icro- C hannel- P late
MCS	M onte- C arlo S imulation
NE 102	P lastik- S zintillator der Fa. N uclear E nterprises

P-46, P-47	Szintillatormaterial, bestehend aus Yttrium Aluminium Granat und Yttrium Silikat mit ca. 1 % Cerium dotiert
PE	P rimary E lectron
PG	P lexi- G las
PhLE	P hoton- L oss E lectron
PLE	P lasmon- L oss E lectron
PM	P hoto- M ultiplier
PMMA	Poly-Methyl-Methacrylat
RFA	R etarding F ield A nalyzer
RP	R otations- P umpe
RSW	R ao- S ahib und W ittry (-Näherung)
SchE	S chottky- E mission
SE	S econdary E lectron
SE1	SE, durch PE ausgelöst
SE2	SE, durch BSE ausgelöst
SE3	SE, durch BSE in der Probenkammer ausgelöst
SE4	SE, durch Streuelekttronen in der Mikroskopsäule ausgelöst, vorwiegend an der Aperturblende
SEM	S canning E lectron M icroscope
SNR	S ignal to N oise R atio
SSF	S ingle S cattering F unction
STEM	S canning T ransmission E lectron M icroscope
TE	T ransmitted E lectron
TEM	T ransmission E lectron M icroscope
UHV	U ltra H igh V acuum
UV	U ltra- V iolett
UV-LL-B	U V- L icht L eitfaser- B ündel
V-LVSEM	V ery- L ow V oltage S EM
WDX	W avelength D ispersive X -ray Microanalysis
WKB	W entzel K ramer B rillouin
WQ	W irkungs- Q uerschnitt
X-	Röntgenstrahlen
YAG	Y ttrium A luminium G arnet
YAP	Y ttrium A luminium P erofskit

Symbolverzeichnis

A	Atomgewicht
a_H	Bohrscher Atomradius
B	Magnetfeldstärke
C_s	sphärische Fehlerkonstante
C_c	chromatische Fehlerkonstante
d_0	Durchmesser des 1. Cross-over
d_g	geometrischer Strahldurchmesser
d_d	Durchmesser des Beugungsscheibchens
d_s	Durchmesser des sphärischen Fehlerscheibchens
d_c	Durchmesser des chromatischen Fehlerscheibchens
d_{eff}	Durchmesser des effektiven Gesamtfehlerscheibchens
e	Elektronenladung
e^-	Elektron
E	(Primär-) Energie der Elektronen
E_{BSE}	Energie der Rückstreuelektronen
E_F	Fermi-Energie
E_m	Mittlere Energie
E_{PE}	Energie der Primärelektronen
E_{Schw}	Schwellenergie für Szintillations- bzw. Halbleiter-Detektoren
E_{SE}	Energie der Sekundärelektronen
E_{soll}	Sollbahn-Energie
E_{th}	Schwellenergie, ab der die praktische Reichweite der Schichtdicke einer dünnen Schicht entspricht
E_w	wahrscheinlichste Energie
f_{on}	Generalisierte Oszillatorstärke
\vec{F}	Kraft
h	Planksches Wirkungsquantum
\hbar	$h/2\pi$
I_E	Emissionsstrom
I_p	Sondenstrom
$\text{Im}(\dots)$	Imaginär-Teil von (\dots)
J	Ionisierungspotential

j_c	Strahlstromdichte
k	Spektrometerkonstante
K	Kontrast
\vec{k}	Wellenvektor eines einfallenden Elektrons
\vec{k}'	Wellenvektor eines gestreuten Elektrons
m	Teilchenmasse
m_e	Elektronenmasse
N_A	Avogadro-Zahl
$\vec{\nabla}$	Nabla-Operator
\vec{p}	Impuls eines einfallenden Elektrons
\vec{p}'	Impuls eines gestreuten Elektrons
\vec{q}	Impulsübertrag
r	Abstand zwischen einfallendem Elektron und Atomkern
r_s	Spitzenradius einer Kathode
$r(\theta, E)$	Verhältnis zwischen Mott-/Rutherford-Streuquerschnitt
R	Praktische Elektronen-Reichweite
R_a	Abschirmradius ('Wentzel-Modell')
R_B	Bethe-Reichweite
s	zurückgelegte Strecke eines Teilchens in der Zeit t_s
S	Stopping Power
t	Schichtdicke
t_{BSE}	maximale Informationstiefe der BSE
t_s	Flugzeit eines Teilchens für die Strecke s
T	Transmission, Transmissionskoeffizient
T_s	Spektrometer-Transmission
U_0	Beschleunigungsspannung
U_H	Heizspannung
U_{ext}	Extraktionsspannung
v	Geschwindigkeit eines Teilchens
$V(r)$	Atompotential
V_{sz}	Szintillator-Nachbeschleunigungsspannung
V_h	Hilfselektroden-Potential (Jost-Spektrometer)
V_a, V_b	Potential der inneren (a) bzw. äußeren (b) Ablenk- elektrode eines Sektorfeld-Spektrometers
V_W	abgeschirmtes Coulomb-Potential (nach Wentzel)
x_k	Kontrastdicke
x, y, z	Ortskoordinaten
Z	Ordnungszahl
α	Aperturwinkel
β	Richtstrahlwert eines Elektronenemitters
γ_r	Spektrometer-Eintrittswinkel in der Ablenkebene
γ_z	Spektrometer-Eintrittswinkel in der Ebene senkrecht

	zur Ablenkebene
δE	absolute Energieauflösung bzw. Energiebreite
δE_b	absolute Basis-Energieauflösung
δE_r	relative Energieauflösung
δE_{rb}	relative Basis-Energieauflösung
ΔE	Energieverlust
ΔE_{Sp}	Energiefensterbreite
$(d\sigma_{el}/d\Omega)_R$	Rutherfordscher differentieller Streuquerschnitt
$(d\sigma_{el}/d\Omega)_M$	Mottscher differentieller Streuquerschnitt
$(d\sigma_{el}/d\Omega)_{RW}$	abgeschirmter Rutherfordscher differentieller Streuquerschnitt (Wentzel-Modell)
$(d\sigma_{in}/d(\Delta E)d\Omega)$	Doppelt-differentieller WQ der unelastischen Streuung
ΔV	Spannung zwischen den Ablenkelektroden eines Sektorfeld-Spektrometers
ϵ_0	Dielektrizitätskonstante
ϵ	komplexe dielektrische Funktion
ϵ_1	Realteil der dielektrischen Funktion ϵ
ϵ_2	Imaginärteil der dielektrischen Funktion ϵ
ζ	Austrittswinkel der Elektronen bezogen auf die Oberflächennormale $\zeta = 90^\circ - \psi$
η	Rückstreukoeffizient
η_{S_i}	partieller Rückstreukoeffizient bezogen auf den Segmentring S_i des hemisphärischen Gegenfeld-Spektrometers
η_t	Transmission, Transmissionskoeffizient
θ	Streuwinkel
θ_0	Abschirmwinkel der elast. Streuung
θ_g	Grenzwinkel der Kleinwinkelstreuung
λ	Wellenlänge
λ_B	De Broglie Wellenlänge
λ_{el}	mittlere elastische freie Wellenlänge
λ_{in}	mittlere inelastische freie Wellenlänge
λ_{pl}	mittlere freie Weglänge eines Plasmons
λ_{SE}	mittlere Austrittstiefe der SE
ϱ	Dichte
τ	Transmission, Transmissionskoeffizient
φ_k	Kippwinkel bezogen auf die Oberflächennormale
ϕ_s	Ablenkwinkel eines Sektorfeld-Spektrometers
Φ	Potential
Φ_p	Äquipotentiallinie
χ	Azimut-Winkel
ψ	Austrittswinkel der Elektronen bezogen auf die Oberfläche
ω	Kreisfrequenz

Literaturverzeichnis

- Ahn, C. C., Krivanek, O. L.: (1983), *EELS Atlas*, Gatan Inc., 780 Commonwealth Drive, Warrendale, Pennsylvania 15086
- Aristov, V. V., Rau, E. I., Yakimov, E. B.: (1995), ‘Apparatus’ Electron Beam Microtomography in SEM, *Phys. Stat. Sol. (a)* **150**, S. 211–219
- Arnal, F., Verdier, P., Vincensini, P. D.: (1969), Coefficient de retrodiffusion dans le cas d’électrons monocinétique arrivant sur la cible sous une incidence oblique, in: *Compt. rend. Acad. Sci., Paris*, Bd. 268, S. 1526–1529
- Ashcroft, N. W., Mermin, N. D.: (1976), *Solid State Phys.*, Saunders College Publishing, Orlando
- Autrata, R.: (1989), Backscattered electron imaging using single crystal scintillator detectors, *Scanning Microsc.* **3**, S. 739–763
- Autrata, R.: (1998), persönliche Mitteilung
- Autrata, R., Hejna, J.: (1991), Detectors for Low Voltage Scanning Electron Microscopy, *Scanning* **13**, S. 275–287
- Bauer, H., Seiler, H.: (1989), Sekundärelektronen-Spektroskopie, *Beitr. Elektronenmikroskop. Direktabb. Oberfl. (BEDO)* **22**, S. 213–216
- Bethe, H.: (1930), Zur Theorie des Durchgangs schneller Korpuskularstrahlen durch Materie, *Ann. Phys.* **5**, S. 325–400
- Böngeler, R.: (1992), *Rasterelektronenmikroskopie mit niedrigen Energien*, Dissertation, Universität Münster
- Böngeler, R., Golla, U., Kässens, M., Reimer, L., Schindler, B., Senkel, R.: (1992), Measurements of range, backscattering coefficient and secondary electron yield of 0.5-10 keV electrons, in: *Electron Microscopy 1992*, Bd. 3, Proc. 10th Europ. Congr. Electr. Micr., Granada, S. 755–756
- Böngeler, R., Golla, U., Kässens, M., Reimer, L., Schindler, B., Senkel, R., Spranck, M.: (1993), Electron-specimen interactions in Low-Voltage Scanning Electron Microscopy, *Scanning* **15**, S. 1–18

- Brack, K.: (1962), Über eine Anordnung zur Filterung von Elektroneninterferenzen, *Z. Naturforsch.* **17**, S. 1066–1070
- Bracker, P.: (1979), *Testpräparate zur Bestimmung des Auflösungsvermögen eines Rasterelektronenmikroskopes*, Staatsexamensarbeit, Universität Münster
- Broers, A. N.: (1975), Electron sources for scanning electron microscopy, in: *Scanning Electron Microscopy*, Bd. 3, SEM Inc., AMF O'Hare, Chicago, S. 661–670
- Brunt, J. N. H., Read, F. H., King, G. C.: (1977), The realization of high energy resolution using the hemispherical electrostatic energy selector in electron impact spectrometry, *J. Phys. E: Sci. Instr.* **10**, S. 134–139
- Bühning, W.: (1965), Computational improvements in phase shift calculations of elastic electron scattering, *Z. Phys.* **187**, S. 180–196
- Butler, J. W.: (1966), Digital Computer Techniques in Electron Microscopy, in: R. Uyeda, Hrsg., *Proc. 6th Int. Congr. Electron Micros.*, Kyoto, Bd. 1, S. 191–192
- Chamberlain, M. B.: (1982), Instrumentation and methods for scanning Auger microscopy, *SEM 1982* **3**, S. 509
- Chang, C. C.: (1974), Auger electron spectroscopy, in: P. F. Kane, G. B. Larrabee, Hrsg., *Characterization of Solid Surfaces*, Plenum Press, New York, S. 509
- Choi, B. H.: (1973), Cross sections for M-shell ionization in heavy atoms by collision of simple heavy charged particles, *Phys. Rev.* **A7**, S. 2056–2062
- Choi, B. H., Merzbacher, E., Khandelwal, G. S.: (1973), Tables for Born approximation calculation of L-subshell ionization by simple heavy charged particles, *Atomic Data* **5**, S. 291–304
- Cleaver, J. R. A.: (1979), Field emission electron gun system incorporating single-pole magnetic lenses, *Optik* **52**, S. 293
- Colliex, C., Trebbia, P.: (1976), Energy loss spectroscopy in the electron microscope as a tool for microanalysis, in: J. A. Venables, Hrsg., *Developments in Electron Microscopy and Microanalysis*, Academic Press, London, S. 123–128
- Comins, N. R., Hengstberger, M. M. E., Thirlwall, J. T.: (1978), Preparation and evaluation of P-47 scintillators for scanning electron microscope, *J. Phys. E* **11**, S. 1041–1047
- Crewe, A. V., Eggenberger, D. N., Wall, J., Welter, L. M.: (1968a), Electron gun using a field emission source, *Rev. Sci. Instr.* **39**, S. 576–583
- Crewe, A. V., Wall, J., Welter, L. M.: (1968b), A high-resolution scanning transmission electron microscope, *J. Appl. Phys.* **39**, S. 5861–5868

- Cross, J. A.: (1973), False peaks in the energy distribution of secondary electrons measured with a spherical retarding field analyser, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **6**, S. 622–627
- Czyzewski, Z., MacCallum, D. O., Romig, A., Joy, D. C.: (1990), Calculation of Mott scattering cross section, *J. Appl. Phys.* **68**, S. 3066–3072
- Darlington, E. H.: (1975), Backscattering of 10–100 keV electrons from thick targets, *J. Phys. D* **8**, S. 85–93
- Darlington, E. H., Cosslett, V. E.: (1972), Backscattering of 0.5–10 keV electrons from solid targets, *J. Phys. D* **5**, S. 1969–1981
- Dremova, N. N., Drokin, A. P., Zaitsev, S. I., Rau, E. I., Yakimov, E. B.: (1993), Characterization of Multilayered Microstructures and Surface Relief using Backscattered Electrons in a Scanning Electron Microscope, *Bull. Russ. Acad. Sci.* **57**, S. 1305–1310
- Dremova, N. N., Rau, E. I., Robinson, V. N. E.: (1995), Electron Energy Analyzers for Scanning Electron Microscopes, *Instr. Exp. Tech.* **38**, S. 95–99
- Drescher, H., Reimer, L., Seidel, H.: (1970), Rückstreukoeffizienten und Sekundärelektronenausbeute von 10–100 keV Elektronen und Beziehungen zur Rasterelektronenmikroskopie, *Z. Angew. Phys.* **29**, S. 331–336
- Egerton, R. F.: (1996), *Electron energy-loss spectroscopy in the electron microscopy*, Plenum, New York, 2. Aufl.
- E.M.I.: (1990), Photomultiplier-Informationen der Firma E.M.I. - Electron Tube Division
- Ennos, A. E.: (1954), The sources of electron induced contamination in the electron microscope, *Brit. J. Appl. Phys.* **5**, S. 27–31
- Essers, E.: (1997), *Elementanalyse im Rasterelektronenmikroskop mit Hilfe von Auger Electron Appearance Potential Spectroscopy und Disappearance Potential Spectroscopy*, Diplomarbeit, Universität Karlsruhe (TU)
- Everhart, T. E., Thornley, R. F. M.: (1960), Wideband detector for micro-micro-ampere low-energy electron currents, *J. Sci. Instr.* **37**, S. 246–248
- Fitting, H. J.: (1974), Transmission, energy distribution, and SE excitation of fast electrons in thin solid films, *Phys. Stat. Sol. (a)* **26**, S. 525–535
- Fitting, H. J.: (1975), The energy loss of transmitted and backscattered electrons, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **8**, S. 1480–1486
- Frase, G.: (1998), persönliche Mitteilung

- Froitzheim, H., Ibach, H., Lehwald, S.: (1975), Reduction of spurious background peaks in electron spectrometers, *Rev. Sci. Instr.* **11**, S. 1325–1328
- Frosien, J., Plies, E., Anger, K.: (1989), Compound magnetic and electrostatic lenses for low-voltage applications, *J. Vac. Sci. Techn. B* **7**, S. 1874–1877
- Gleichauf, P. H.: (1951), Electrical Breakdown over Insulators in High Vacuum, *J. Appl. Phys.* **22**, S. 535–541
- Golla, U.: (1993), *Messungen zur Transmission und Rückstreuung in einem Low-Voltage Rasterelektronenmikroskop*, Diplomarbeit, Universität Münster
- Golla, U., Schindler, B., Reimer, L.: (1993), Contrast in the transmission mode of a low-voltage scanning electron microscope, *J. Microsc.* **173**, S. 219–225
- Gressus, C. L., Lee-Deacon, O., Yates, K., West, R.: (1983), Reproducibility of electron spectroscopy data with different analyzers, in: *Scanning Electron Microscopy*, SEM Inc., AMF O'Hare, Chicago, S. 77–84
- Haider, M., Zach, J., Schäfer, G.: (1992), A high-resolution low-voltage scanning electron microscope for biological applications, in: *Electron Microscopy 1992*, Bd. 3, Proc. 10th Europ. Congr. Electr. Micr., Granada, S. 729–733
- Haider, M., Zach, J., Wepf, W.: (1994), Physical Aspects of Corrected High Resolution Low Voltage Scanning Electron Microscope, in: *Electron Microscopy 1994*, Proc. 13th Int. Congr. Electr. Micr., Paris, Bd. 1, S. 55–56
- Hall, C. E.: (1953), *Introduction to Electron Microscopy*, McGraw-Hill, New York
- Harting, E., Read, F. H.: (1976), *Electrostatic lenses*, Elsevier Scientific Publishing Company
- Hecht, E.: (1989), *Optik*, Addison Wesley, Bonn
- Heinemann, K., Möllenstedt, G.: (1967), Elektronenmikroskopie mit langsamen Elektronen mittels Zwischenverzögerer, *Optik* **26**, S. 11–21
- Hejna, J.: (1987), A ring scintillation detector for detection of backscattered electrons in the scanning electron microscope, *Scanning Microsc.* **1**, S. 983–987
- Hejna, J.: (1994), Topographic and Material Contrast in Low-Voltage Scanning Electron Microscopy, *Scanning* **17**, S. 387–394
- Hejna, J.: (1996), persönliche Mitteilung
- Helbig, H. F.: (1987), Channel plate detection in low energy SEM, *Scanning Microsc.* **1**, S. 1491–1499

- Herzog, R.: (1935), Ablenkung von Kathoden- und Kanalstrahlen am Rande eines Kondensators, dessen Streufeld durch eine Blende begrenzt ist, *Z. Phys.* **97**, S. 596–602
- Herzog, R.: (1940), Elektronenoptische Zylinderlinsenwirkung der Streufelder eines Kondensators, *Phys. Z.* **41**, S. 18–26
- Hirsch, P., Kässens, M., Püttmann, M., Reimer, L.: (1994), Contamination in a Scanning Electron Microscope and the Influence of Specimen Cooling, *Scanning* **16**, S. 101–110
- Hoffmeister, H., Rau, E. I.: (1998), persönliche Mitteilung
- Hoffmeister, H., Reimer, L., Kohl, H.: (1999), Untersuchungen zu Austrittstiefen und Energiespektren der rückgestreuten Elektronen im Rasterelektronenmikroskop mittels Monte-Carlo Simulation, gepl. Beitr., 29. DGE-Tagung, Dortmund
- Hren, J. J.: (1979), Barriers to AEM: Contamination and etching, in: J. J. Hren, J. I. Goldstein, D. C. Joy, Hrsg., *Introduction to analytical electron microscopy*, Plenum Press, New York, S. 481–505
- Ibach, H.: (1991), *Electron Energy Loss Spectrometers - The Technology of High Performance*, Springer, Berlin
- Inokuti, M.: (1971), Inelastic Collisions of Fast Charged Particles with Atoms and Molecules - The Bethe Theory Revisited, *Rev. Mod. Phys.* **43**, S. 297–346
- Jablonski, A., Gergely, G.: (1989), Mott Factors of P, V, Fe, Ga, As, Pd, In, Ta and W for 500–3000 eV Electrons, *Scanning* **11**, S. 29–42
- Jeol: (1998), Informationen der Fa. Jeol zum JEM-2010F, Field Emission Electron Microscope
- Johnson, S., MacDonald, N. C.: (1989), A program for Monte Carlo simulation of electron energy loss in nanostructures, *J. Vac. Sci. Techn. B* **7**, S. 1513–1518
- Jost, K.: (1979a), Fringing field correction for 127° and 180° electron spectrometers, *J. Phys. E: Sci. Instr.* **12**, S. 1001–1005
- Jost, K.: (1979b), Novel design of a 'spherical' electron spectrometer, *J. Phys. E: Sci. Instr.* **12**, S. 1006–1012
- Joy, D. C.: (1991), An Introduction to Monte Carlo Simulations, in: *Scanning Microsc.*, Bd. 5, Scanning Microsc. Int., AMF O'Hare, Chicago, S. 329–337
- Joy, D. C., Luo, S.: (1989), An empirical stopping power relationship for low-energy electrons, *Scanning* **11**, S. 176–180

- Kanter, H.: (1957), Zur Rückstreuung von Elektronen im Energiebereich von 10–100 keV, *Ann. Phys.* **20**, S. 144
- Kässens, M.: (1995), *Untersuchungen der Rückstreuелеktronen in der Low-Voltage Rasterelektronenmikroskopie*, Dissertation, Universität Münster
- Kässens, M., Hejna, J.: (1995), persönliche Mitteilung
- Kirschner, J.: (1983), Threshold spectroscopies and prospects for their application in the scanning electron microscope, in: *Scanning Electron Microscopy*, Bd. 4, SEM Inc., AMF O'Hare, Chicago, S. 1665–1674
- Knoll, M., Ruska, E.: (1932), Beitrag zur geometrischen Elektronenoptik I und II, *Ann. Phys.* **12**, S. 607
- Kotera, M., Mutara, K., Nagami, K.: (1981a), Monte Carlo simulation of 1–10 keV electron scattering in an aluminium target, *J. Appl. Phys.* **52**, S. 7403–7408
- Kotera, M., Mutara, K., Nagami, K.: (1981b), Monte Carlo simulation of 1–10 keV electron scattering in a gold target, *J. Appl. Phys.* **52**, S. 997–1003
- Kuhr, J. C.: (1998), *Monte-Carlo Simulation der sub-keV-Elektronenstreuung für Anwendungen in der Elektronenmikroskopie und Elektronenspektroskopie*, Dissertation, Universität Rostock
- Kurepa, M. V.: (1987), High resolution electron spectroscopy - recent new achievements, *Vacuum* **37**, S. 3–20
- Kurepa, M. V., Tasić, M. D., Kurepa, J. M.: (1974), A four element energy scanning electron lens system with fixed image position and magnification, *J. Phys. E: Sci. Instr.* **7**, S. 940–944
- Lange, A.: (1966), *Dickemessungen an elektronenmikroskopischen Trägerfolien*, Diplomarbeit, Universität Münster
- Leapman, R. D., Giori, C. E., Swyt, C. R.: (1984), Mass thickness determination by electron energy loss for X-ray microanalysis, *J. Microsc.* **133**, S. 239–253
- Leckey, R. C. G.: (1987), Recent developments in electron energy analysers, *J. Electr. Spectr. and Rel. Phenom.* **43**, S. 183–214
- Leder, L. B., Simpson, J. A.: (1958), Improved Electrical Differentiation of Retarding Potential Measurements, *Rev. Sci. Instr.* **29**, S. 571–574
- Levenson, L. L.: (1983), Fundamentals of Auger electron spectroscopy, *SEM 1983* **4**, S. 1643
- Lewis, H. W.: (1950), Multiple scattering in an infinite medium, *Phys. Rev.* **78**, S. 526–529

- Libby, W. F.: (1947), Measurement of radioactive tracers, *Anal. Chem.* **19**, S. 2
- Liebscher, F. F.: (1979), *Messungen zur Energieverteilung rückgestreuter Elektronen an kompakten Proben*, Diplomarbeit, Universität Münster
- Love, G., Scott, V. D., Dennis, N. M. T., Laurenson, L.: (1981), Sources of contamination in electron optical equipment, *Scanning* **4**, S. 32–39
- Madison, D. H., Merzbacher, E.: (1975), Theory of charged particle excitation, in: B. Crasemann, Hrsg., *Atomic Inner Shell Processes*, Bd. 1, Academic Press, New York, S. 1–72
- Makhov, A. F.: (1961), The penetration of electrons into solids, *Sov. Phys. Solid State* **2**, S. 1934, 1942, 1945
- Marmet, P., Kerwin, L.: (1960), An improved electrostatic electron selector, *Can. J. Phys.* **38**, S. 787–796
- Martinez, G., Sancho, M.: (1983), Four-cylinder electrostatic lens I: potential distribution and focal properties, *J. Phys. E: Sci. Instr.* **16**, S. 625–630
- Mellen, C.: (1998), *Elektronentomographie, 3-dimensionale Rekonstruktion am Raster-Elektronenmikroskop durch Variation der Energie des Primärelektronenstrahles*, Diplomarbeit, Universität Münster
- Merz, H.: (1990), *Moderne Verfahren der Oberflächenphysik A, Materialien zur Vorlesung*, Universität Münster
- Moesch, J.: (1989), *Anwendungen von Monte Carlo Rechnungen auf verschiedene Gebiete der Elektronenmikroskopie*, Diplomarbeit, Universität Münster
- Möllenstedt, G., Rang, O.: (1951), Die elektrostatische Linse als hochauflösendes Geschwindigkeitsfilter, *Z. Angew. Phys.* **3**, S. 187–189
- Mott, N. F., Massey, H. S. W.: (1965), *The theory of atomic collisions*, Oxford Univ. Press, London, 3. Aufl.
- Müllejjans, H., Bleloch, A. L., Howie, A., McMullan, D.: (1991), Electron energy loss and secondary electron emission in coincidence in STEM, in: *Inst. Phys. Conf. Ser.*, Bd. 119, EMAG 91, Bristol, S. 117–120
- Müllejjans, H., Bleloch, A. L., Howie, A., Walsh, C. A.: (1993), Secondary-electron emission from magnesium oxide, *Philos. Mag. Lett.* **68**, S. 145–151
- Müllerová, I., Frank, L.: (1993), Very Low Energy Microscopy in Commercial SEMs, *Scanning* **15**, S. 193–201
- Munro, E.: (1972), Design of electrostatic lenses for field-emission electron guns, in: *Electron Microscopy*, Institute of Physics, London, S. 22

- Nagatani, T., Sato, S., Osumi, M.: (1987), Development of an ultra-high resolution SEM by means of a field emission source and in-lens system, *Scanning Microsc.* **1**, S. 901–909
- Niedrig, H., Rau, E. I.: (1998), Information depth and spatial resolution in BSE microtomography in SEM, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Research B* **142**, S. 523–534
- Niemitz, A.: (1979), *Optimierung von P-47-Szintillatoren für die Rasterelektronenmikroskopie*, Staatsexamensarbeit, Universität Münster
- Nixon, W. C.: (1958), Low voltage electron microscopy, in: *Proc. 4th Int. Congr. Electr. Micr.*, Bd. 1, Springer, Berlin, S. 302–306
- Ogura, K., Ono, A., Kersker, M. H.: (1989), Reduction of contamination using a specimen holder in an ultra high resolution SEM, in: *Proc. 47th Ann. Meeting EMSA*, San Fransico Press, S. 724–725
- Pawley, J. B.: (1984), Low voltage scanning electron microscopy, *J. Microsc.* **136**, S. 45–68
- Pejchl, D., Müllerová, I., Frank, L.: (1994), Separator of Primary and Signal Electrons for Very Low Energy SEM, *Czech. J. Phys.* **44**, S. 269–276
- Postek, M. T.: (1996), An Approach to the Reduction of Hydrocarbon Contamination in the Scanning Electron Microscope, *Scanning* **18**, S. 269–274
- Postek, M. T., Keery, W. J., Frederick, N. V.: (1990), Low-profile high-efficiency microchannel-plate detector system SEM applications, *Rev. Sci. Instr.* **61**, S. 1648–1657
- Püttmann, M.: (1993), *Kontamination in einem Rasterelektronenmikroskop*, Staatsexamensarbeit, Universität Münster
- Raether, H.: (1980), *Excitation of plasmons and interband transition by electrons*, Bd. 88 von *Springer Tracts Mod. Phys.*, Springer, Berlin
- Rao-Sahib, T. S., Wittry, D. B.: (1974), X-ray continuous from thick elemental targets for 10–50 keV electrons, *J. Appl. Phys.* **45**, S. 5060–5068
- Rau, E. I., Robinson, V. N. E.: (1996), An Annular Toroidal Backscattered Electron Energy Analyser for Use in Scanning Electron Microscopy, *Scanning* **18**, S. 556–561
- Rau, E. I., Schindler, B., Reimer, L.: (1996), Energy-Filtered Imaging and Spektroscopy of Multilayered Structures by Backscattered Electrons in SEM, in: *Electron Microscopy 1996*, Proc. 11th Europ. Congr. Electr. Micr., Dublin

- Reimer, L.: (1967), *Elektronenmikroskopische Untersuchungs- und Präparationsmethoden*, Springer, Berlin
- Reimer, L.: (1984), *Transmission Electron Microscopy*, Bd. 36, Springer, Berlin, 1. Aufl., S. 447–453
- Reimer, L.: (1985), *Scanning Electron Microscopy*, Bd. 45, Springer, Berlin
- Reimer, L.: (1989), *Transmission Electron Microscopy*, Bd. 36, Springer, Berlin, 2. Aufl.
- Reimer, L.: (1991), Energy-Filtering Transmission Electron Microscopy, in: *Advances in Electronics and Electron Physics*, Bd. 81, Academic Press, New York, S. 43–126
- Reimer, L.: (1993), *Image Formation in Low-Voltage Scanning Electron Microscopy*, SPIE Optical Engineering Press, Bellingham
- Reimer, L.: (1994), Electron Spectroscopic Imaging, in: L. Reimer, Hrsg., *Energy-Filtering Transmission Electron Microscopy*, Bd. 71, Springer, Berlin, S. 347–400
- Reimer, L.: (1995), *Energy-Filtering Transmission Electron Microscopy*, Bd. 71, Springer, Berlin
- Reimer, L.: (1996a), MOCASIM - Ein Monte Carlo Programm für Forschung und Lehre, in: *Beitr. Elektronenmikroskop. Direktabb. u. Analyse von Oberfl. (BEDO)*, Münster, Bd. 29, S. 11–18
- Reimer, L.: (1996b), *MOCASIM - Monte Carlo Simulation of Electron Diffusion*, Erhältlich bei PLANO W. Plannet GmbH, Ernst-Befort-Strasse 12, D-35578 Wetzlar
- Reimer, L., Böngeler, R., Kässens, M., Liebscher, F., Senkel, R.: (1991), Calculating of Energy Spectra from Layered Structures for Backscattered Electron Spectrometry and Relations to Rutherford Backscattering Spectrometry by Ions, *Scanning* **13**, S. 381–391
- Reimer, L., Gadacz, H.: (1961), Zur Schichtdickenkontrolle bei der elektronenmikroskopischen Schrägbeschattungsmethode, in: *Z. wissenschaftl. Mikrosk. und mikrosk. Techn.*, Bd. 65, Hinzl, Stuttgart, S. 105–112
- Reimer, L., Kässens, M., Wiese, L.: (1996), Monte Carlo simulation program with a free configuration of specimen and detector geometries, *Microchim. Acta* **13**, S. 485–492
- Reimer, L., Lödding, B.: (1984), Calculation and tabulation of Mott Cross-Sections for Large Angle Electron Scattering, *Scanning* **6**, S. 128–151

- Reimer, L., Pfefferkorn, G.: (1977), *Rasterelektronenmikroskopie*, Springer, Berlin
- Reimer, L., Rennekamp, R., Roß-Meßmer, M., Fromm, I., Krah, D.: (1993), *Energieverlustspektroskopie und Energiefilterung in der Transmissions-Elektronenmikroskopie*, Unveränderter Nachdruck des Skriptes des 2. Fortbildungsseminars 1989 ergänzt mit einer zusätzlichen Referatesammlung
- Reimer, L., Riepenhausen, M.: (1985), Detector strategy for secondary and backscattered electrons using multiple detector systems, *Scanning* **7**, S. 221–238
- Reimer, L., Senkel, R.: (1995), Monte Carlo simulations in low voltage scanning electron microscopy, *Optik* **98**, S. 85–94
- Reimer, L., Sommer, K. H.: (1968), Messungen und Berechnungen zum elektronenmikroskopischen Streukontrast für 17–1200 keV Elektronen, *Z. Naturforsch. A* **23**, S. 1569–1582
- Reimer, L., Stelter, D.: (1986), FORTRAN 77 Monte Carlo program for minicomputers using Mott cross-sections, *Scanning* **8**, S. 265–277
- Reimer, L., Tollkamp, C.: (1980), Measuring the backscattering coefficient and the secondary electron yield inside a scanning electron microscope, *Scanning* **3**, S. 35–39
- Reimer, L., Zepke, U., Moesch, J., Schulze-Hillert, S., Roß-Meßmer, M., Probst, W., Weimer, E.: (1992), *EELSpectroscopy. A reference handbook of standard data for identification and interpretation of electron energy loss spectra and for generation of electron spectroscopic images*, Carl Zeiss, Oberkochen
- Rennekamp, R.: (1996), *Untersuchungen zur energiegefilterten Abbildung im Transmissionselektronenmikroskop*, Dissertation, Universität Münster
- Reuter, W.: (1972), The ionization function and its application to the electron probe analysis of thin films, in: *Proc. 6th Int. Congr. X-Ray Optics and Microanalysis*, Univ. Tokyo Press, S. 121–130
- Riddle, G. H. N.: (1978), Electrostatic einzel lenses with reduced spherical aberration for use in field-emission guns, *J. Vac. Sci. Technol.* **15**, S. 857–860
- Riley, M. E., MacCallum, C. J., Biggs, F.: (1975), Theoretical electron-atom elastic scattering cross sections, *Atomic Data Nucl. Data Tables* **15**, S. 443–476
- Robinson, N. E.: (1974), The construction and uses of an efficient backscattered electron detector for scanning electron microscopy, *J. Phys. E* **7**, S. 650–652
- Röhm: (1998), persönliche Mitteilung, Fa. Röhm GmbH, Darmstadt

- Roß-Meßemer, M.: (1989), *Einfluß der Energiefilterung auf die Kontraste amorpher Objekte in einem energiefilternden Transmissionselektronenmikroskop*, Dissertation, Universität Münster
- Rose, A.: (1970), Quantum limitations to vision at low light levels, *Image Technol.* **12**, S. 1315
- Rose, H.: (1990), Inhomogeneous Wien filter as a corrector compensating for the chromatic and spherical aberration of low-voltage electron microscopes, *Optik* **84**, S. 91–107
- Rose, H.: (1998), Elektronenmikroskopie mit atomarer Auflösung, *Phys. Blätter Mai* **98**, S. 411–416
- Rose, H., Krah, D.: (1994), Electron Optics of Imaging Energy Filters, in: L. Reimer, Hrsg., *Energy-Filtering Transmission Electron Microscopy*, Bd. 71, Springer, Berlin, S. 43–149
- Roy, D., Carette, J. D.: (1971), Spectromètres Electrostatiques, Partie III, *Can. J. Phys.* **49**, S. 2138–2159
- Roy, D., Carette, J. D.: (1977), Design of Electron Spectrometers for Surface Analysis, in: H. Ibach, Hrsg., *Topics in Current Physics, Electron Spectroscopy for Surface Analysis*, Springer, Berlin, S. 13–58
- Roy, D., Tremblay, D.: (1990), Design of electron spectrometers, *Reports on Progress in Physics* **53**, S. 1623–1674
- Russel, P. E., Mancuso, J. F.: (1985), Microchannel plate detector for low voltage scanning electron microscopes, *J. Microsc.* **140**, S. 323–330
- Salvat, F., Mayol, R.: (1993), Elastic scattering of electrons and positrons by atoms. Schrödinger and Dirac partial wave analysis, *Comp. Phys. Commu.* **74**, S. 358
- Schattschneider, P.: (1986), *Fundamentals of Inelastic Electron Scattering*, Springer, Wien
- Schattschneider, P., Jouffrey, B.: (1994), Plasmons and Related Excitations, in: L. Reimer, Hrsg., *Energy-Filtering Transmission Electron Microscopy*, Bd. 71, Springer, Berlin, S. 151–224
- Schindler, B.: (1993), *Messung der Reichweite von 0.5–10 keV Elektronen in verschiedenen Elementen*, Diplomarbeit, Universität Münster
- Schindler, B., Kohl, H., Reimer, L.: (1998), Low-Voltage Energy Filtering Scanning Transmission Electron Microscopy with a 'simulated' Spherical Deflection Analyzer, in: *Electron Microscopy 1998, Proc. 14th Congr. Electr. Micr., Cancun*, Inst. of Physics Publishing, Bristol

- Schindler, B., Reimer, L., Kohl, H.: (1997), Winkelaufgelöste Spektroskopie rückgestreuter Elektronen mit einem sphärischen Gegenfeld-Spektrometer in einem Niederspannungs-Rasterelektronenmikroskop, DPG-Tagung, Münster
- Schmid, R., Brunner, M.: (1986), Design and Application of a Quadrupole Detector for Low-Voltage Scanning Electron Microscopy, *Scanning* **8**, S. 294–299
- Schmidt, P. F., Balk, L. J., Blaschke, R., Bröcker, W., Demm, E., Engel, L., Göcke, R., Hantsche, H., Hauert, R., Krefting, E. R., Müller, T., Raith, H., Roth, M., Woodtli, J.: (1994), *Praxis der Rasterelektronenmikroskopie und Mikrobereichsanalyse*, Expert
- Seiler, H.: (1976), Determination of the ‘information depth’ in the SEM, in: *Scanning Electron Microsc.*, Bd. 1, SEM Inc., AMF O’Hare, Chicago, S. 9–16
- Seiler, H.: (1984), Secondary Electron Emission, in: D. F. Kyser, H. Niedrig, D. E. Newbury, R. Shimizu, Hrsg., *Electron Beam Interactions With Solids for Microscopy, Microanalysis & Microlithography*, SEM Inc., AMF O’Hare, Chicago, S. 33–42
- Seiler, H.: (1985), Electron spectroscopy in the scanning electron microscope, *Ultramicroscopy* **17**, S. 1–8
- Senkel, R.: (1993), *Monte-Carlo Simulationen in der Elektronenmikroskopie*, Dissertation, Universität Münster
- Sevier, K. D.: (1972), *Low Energy Electron Spectroscopy*, Wiley-Interscience, New York
- Shimizu, R., Ichimura, S.: (1984), Direct Monte Carlo Simulation of kV Electron Scattering Processes - N(E) Spectra for Aluminum, in: D. F. Kyser, H. Niedrig, D. E. Newbury, R. Shimizu, Hrsg., *Electron Beam Interactions With Solids for Microscopy, Microanalysis & Microlithography*, SEM Inc., AMF O’Hare, Chicago, S. 165–172
- Skinner, D. K., Willis, R. F.: (1972), Refinements to a Standard LEED-Auger System for the Analysis of Electron Emission at Low Primary Beam Energies, *Rev. Sci. Instr.* **43**, S. 731–734
- Sommer, K. H.: (1968), *Messungen und Berechnungen zum elektronenmikroskopischen Streukontrast für 17 bis 1200 keV Elektronen*, Dissertation, Universität Münster
- Spranck, M., Kässens, M., Reimer, L.: (1995), Influence of the Angular Distribution of Backscattered Electrons on Signals at Different Take-Off Angles in Low-Voltage Scanning Electron Microscopy (LVSEM), *Scanning* **17**, S. 97–105

- Steckelmacher, W.: (1973), Energy analyzers for charged particle beams, *J. Phys. E: Sci. Instr.* **6**, S. 1061–1070
- Stolz, H., Möllenstedt, G.: (1971), Beitrag zur Niedervoltelektronenmikroskopie (0.5 bis 4 keV) mittels Zwischenverzögerer, *Optik* **33**, S. 35–46
- Streppel: (1998), persönliche Mitteilung, Fa. Streppel Glasfaser-Optik, Wermelskirchen
- Thümmel, H. W.: (1974), *Durchgang von Elektronen- und Betastrahlung durch Materieschichten*, Akademie-Verlag, Berlin
- Tietze, U., Schenk, C.: (1993), *Halbleiter-Schaltungstechnik*, Springer, Berlin
- Tollkamp, C.: (1980), *Messungen zum Rückstreuoeffizienten und zur Sekundärelektronenausbeute in einem Rasterelektronenmikroskop*, Diplomarbeit, Universität Münster
- Troyon, M.: (1980), A magnetic field emission electron probe forming system, in: P. Brederoo, G. Boom, Hrsg., *Electron Microscopy 1980, Proc. 7th Europ. Congr. Electr. Micr., Leiden*, Bd. 1, S. 56
- Troyon, M.: (1984), A survey of illuminating system and electron guns in Electron Microscopy, in: B. A. Csanady et al., Hrsg., *Electron Microscopy 1984*, Bd. 1, S. 11
- Tuggle, D. W., Li, J. Z., Swanson, L. W.: (1985), Point cathodes for use in virtual source electron optics, *J. Microsc.* **140**, S. 293–301
- Tung, C. J., Ashley, J. C., Ritchie, R. H.: (1979), Electron inelastic mean free paths and energy losses in solids, *Surf. Sci.* **81**, S. 427–439
- Turner, J. N., Hausner, G. G., Parson, D. F.: (1975), An optimized Faraday cage design for electron beam current measurements, *J. Phys. E, Sci. Instr.* **8**, S. 954–957
- van Dorsten, A. C., Premisela, H. F.: (1960), Low Voltage Electron Microscopy, in: *Europ. Congr. Electr. Micr.*, Bd. 1, Delft, S. 101–104
- Volbert, B., Reimer, L.: (1979), Preparation of P-47 scintillators, *Scanning* **2**, S. 107–109
- Volbert, B., Reimer, L.: (1980), Advantages of two opposite Everhart-Thornley detectors in SEM, in: *Scanning Electron Microscopy*, SEM Inc., AMF O'Hare, Chicago, S. 1–10
- Vyatskin, A. Y., Pilyankevich, A. N.: (1964), Some energy characteristics of electron passage through a solid, *Sov. Phys. Solid State* **5**, S. 1662

- Wahlbring, P.: (1994), *Einsatz der digitalen Bildverarbeitung zur quantitativen Auswertung von Bildsignalen in der Transmissions- und Raster-Elektronenmikroskopie*, Dissertation, Universität Münster
- Wells, O. C.: (1979), Effects of collector take-off angle and energy filtering on the BSE image in the SEM, *Scanning* **3**, S. 199–216
- Wells, O. C., Savoy, R. J., Bailey, P. J.: (1984), Backscattered Electron (BSE) Imaging in the Scanning Electron Microscope (SEM) - Measurement of Surface Layer Mass-Thickness, in: D. F. Kyser, H. Niedrig, D. E. Newbury, R. Shimizu, Hrsg., *Electron Beam Interactions With Solids for Microscopy, Microanalysis & Microlithography*, SEM Inc., AMF O'Hare, Chicago, S. 287–298
- Wilska, A. P.: (1960), Low Voltage Electron Microscope, in: A. L. Houwink, Hrsg., *Europ. Congr. Electr. Micr.*, Bd. 1, Delft, S. 105–109
- Wittig, T.: (1995), *Messungen zur Energie- und vollständigen Winkelverteilung gestreuter Elektronen an massiven einatomigen Targets bei 20 kV*, Dissertation, Technische Universität Berlin
- Woo, O. T., Carpenter, G. J. C.: (1992), EELS characterisation of zirconium hydrides, *Microsc. Microanal. Microstruct.* **3**, S. 35–44
- Zach, J.: (1989), Design of a high-resolution low-voltage SEM, *Optik* **83**, S. 30–40
- Zach, J., Haider, M.: (1992), A high-resolution low voltage scanning electron microscope, in: *Electron Microscopy 1992*, Bd. 1, Proc. 10th Europ. Congr. Electr. Micr., Granada, S. 49–53
- Zach, J., Haider, M.: (1994), Correction of Spherical and Chromatic Aberrations in a LVSEM, in: *Electron Microscopy 1994*, Bd. 1, Proc. 13th Int. Congr. Electr. Micr., Paris, S. 199–200
- Zach, J., Rose, H.: (1986), Efficient Detection of Secondary Electrons in Low-Voltage Scanning Electron Microscopy, *Scanning* **8**, S. 285–293
- Zepke, U.: (1991), *Aufzeichnung von Energieverlustspektren zur Erstellung eines EELS-Atlases*, Diplomarbeit, Universität Münster

Danksagung

Diese Arbeit wurde im Physikalischen Institut der Universität Münster durchgeführt.

Herrn Prof. Dr. H. Kohl danke ich für die interessante Aufgabenstellung, Unterstützung dieser Arbeit und den mir gewährten großzügigen Freiraum sowie das in mich gesetzte Vertrauen zur Verwirklichung meiner Ideen. Herrn em. Prof. Dr. L. Reimer danke ich für die fruchtbaren Diskussionen und oft wichtigen Hintergrund-Informationen zum richtigen Zeitpunkt sowie die Bereitstellung seines Programmpakets MOCASIM für einen Großteil der Simulationsrechnungen.

Allen Mitgliedern der elektronenmikroskopischen Abteilung danke ich für die kollegiale Arbeitsatmosphäre und stete Hilfsbereitschaft. Insbesondere danke ich Herrn Dr. R. Senkel für die hilfreiche Unterstützung bei Fragestellungen zur Monte-Carlo Simulation und seine Monte-Carlo Programme. Für die Bereitstellung des ersten Rohbaus des hemisphärischen Gegenfeld-Spektrometers möchte ich Herrn Dr. M. Kässens und darüber hinaus für die Unterstützung bei den ersten Versuchen mit dem fertiggestellten Aufbau Herrn Dr. J. Hejna danken. Herrn C. Mellen und damit insbesondere auch der Firma **Soft Imaging System (SIS)** danke ich für die Bereitstellung von PC-Rechenkapazitäten für einige der z. T. zeitaufwendigen Monte-Carlo Simulationen. Herrn Markus Silder danke ich für die Anfertigung der Photoarbeiten sowie die zahlreichen Tips zu diesem Gebiet.

Bei Herrn Prof. Dr. E. I. Rau möchte ich mich für die fruchtbare und interessante Zusammenarbeit im Rahmen der Untersuchungen mit dem toroidalen Sektorfeld-Spektrometer bedanken.

Den Leitern der Feinmechanischen Werkstatt Herrn W. Papenbrock (a. D.) sowie Herrn W. David und Herrn W. Spiekermann bin ich für die ausgiebigen und hilfreichen Diskussionen zur technischen Realisierung der benötigten Bauteile zu tiefstem Dank verpflichtet. Allen Mitarbeitern der Werkstatt danke ich für die ausgezeichnete und unkomplizierte Zusammenarbeit im besonderen den Herren S. Diekmann, F. Spaleck und J. Riemann für die präzise Anfertigung zahlreicher Bauteile.

Den Mitarbeitern der elektrischen Werkstatt danke ich für die mir geleistete Hilfe, insbesondere den Herren J. Coellen und I. Thalmann. Hervorzuheben ist darüber hinaus das besondere Engagement von Herrn W. May, der die benötigten elektronischen Schaltungen entwickelt und konstruiert hat und durch wertvolle Tips zur Lösung zahlreicher elektronischer Probleme beitrug.

Mein Dank gilt auch Herrn Dr. S. Fischer für die großzügige und unkomplizierte

Bereitstellung des Jost-Analysators. Ihm und Herrn Dr. D. Sundermann danke ich darüber hinaus für hilfreiche Diskussionen bzgl. dieses Spektrometertyps. Dadurch wurden mir die Untersuchungen in Transmission zur energiegefilterten Abbildung und Spektroskopie im Niederenergiebereich ermöglicht.

Der Deutschen Gesellschaft für Elektronenmikroskopie danke ich für die finanzielle Unterstützung zur Teilnahme an mehreren Tagungen. Den Herren Dirk Berger und Georg Frase sowie den Firmen Nissei Sangyo (Deutschland), Jeol, Plano, Streppel Glasfaser-Optik, Fug und Röhlm möchte ich für die freundliche und schnelle Zusendung von hilfreichem Informationsmaterial danken.

Allen Freunden, die mir mit Verständnis und Kritik weitergeholfen haben, insbesondere Herrn Dr. Renko Ungruhe für die vielseitige Unterstützung, sei dafür herzlich gedankt. Mein Dank gilt ferner Ute, Renko, Hilmar und Christian für die gewissenhafte Durchsicht des Manuskripts.

Meiner Familie danke ich für die Ermöglichung des Studiums und die Nachsicht bzgl. meines ständigen Zeitmangels. Familie Golla möchte ich an dieser Stelle für die zahlreichen unterstützenden Worte danken.

Nicht zuletzt ein ganz besonderes Dankeschön an meine Verlobte Dr. Ute Golla für den moralischen Beistand sowie das persönliche Engagement, besonders während der schwierigen Phasen bei der Anfertigung dieser Arbeit. Ohne ihre ausdauernde Unterstützung hätte diese Arbeit nicht in dieser umfangreichen Form beendet werden können.



