

WISSENSCHAFTLICH-TECHNISCHE BERICHTE

FZR-262

Juni 1999

ISSN 1437-322X

Robert Weber

**Präzipitation von SiO_2 in Silizium nach einer
Sauerstoff-Hochdosisimplantation**

Archiv-Ex.:

Herausgeber:
FORSCHUNGSZENTRUM ROSSENDORF
Postfach 51 01 19
D-01314 Dresden
Telefon +49 351 26 00
Telefax +49 351 2 69 04 61
<http://www.fz-rossendorf.de/>

Als Manuskript gedruckt
Alle Rechte beim Herausgeber

FORSCHUNGSZENTRUM ROSSENDORF

WISSENSCHAFTLICH-TECHNISCHE BERICHTE

FZR-262

Juni 1999



Robert Weber

**Präzipitation von SiO_2 in Silizium nach einer
Sauerstoff-Hochdosisimplantation**

Dissertation

Präzipitation von SiO_2 in
Silizium nach einer
Sauerstoff-Hochdosisimplantation

Dissertation

zur Erlangung des akademischen Grades

Doctor rerum naturalium
(Dr.rer.nat.)

vorgelegt

der Fakultät Mathematik und Naturwissenschaften
der Technischen Universität Dresden

von

Diplom-Physiker Robert Weber

geboren am 26.10.1964 in Offenbach am Main

Gutachter: Prof. Dr. Möller
Prof. Dr. Gösele
Prof. Dr. Hauffe

Eingereicht am: 13.10.1998
Tag der Verteidigung: 30.03.1999

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	4
2	Theoretische und experimentelle Grundlagen	7
2.1	Theorie	7
2.1.1	Keimbildung	8
2.1.2	Wachstum	9
2.1.3	Ostwald Reifen	10
2.1.3.1	Mean-Field Ansatz	10
2.1.3.2	Vielteilchendiffusion Ansatz	11
2.1.3.3	Thermodynamischer Ansatz	12
2.1.3.4	Elastische Wechselwirkungen	12
2.2	Punktmodell zum Präzipitationsverlauf	14
2.3	Experimentelles System	17
2.3.1	Si-O System	17
2.3.2	Implantation	22
2.3.3	Implantiertes Si-O System	24
2.3.3.1	Defektprofile	24
2.3.3.2	Keimbildung	25
2.3.3.3	Wachstum	26
2.3.3.4	Übergang Wachstum/Reifen	27
2.3.3.5	Materialakkumulation	27
2.3.4	Vergrabene SiO ₂ -Schichten	28
3	Experimentelle Technik	32
3.1	Transmissionselektronen-Mikroskopie	33
3.2	Rasterelektronen-Mikroskopie	34
3.2.1	Probenpräparation	37
3.2.1.1	Schrägschliff	37
3.2.1.2	Ätzung der Proben	38
3.3	Datenauswertung	39
3.3.1	Bildverarbeitung	39
3.3.2	Datenanalyse	41
3.3.2.1	Beschränktes Meßfenster	42
3.3.2.2	Dichte und mittlerer Radius der Präzipitate	43
3.3.2.3	Präzipitatgrößenverteilung	44
3.3.2.4	Punktstatistische Größen	45
3.3.3	Datenaquisition am Schrägschliff	47
3.4	Rutherford-Rückstreu-Spektroskopie und Gitterführung	50
3.5	Atomkraft-Mikroskopie	51
3.6	Experimentelle Durchführung der Untersuchungen	52

3.6.1	Allgemeine Implantations- und Ausheilbedingungen	52
3.6.2	Materialakkumulation	53
3.6.3	Reifungsbeginn	54
3.6.4	Zeitlicher Reifungsverlauf	54
4	Ergebnisse	56
4.1	Analysemethoden	56
4.1.1	Rutherford-Rückstreu-Spektroskopie und Gitterführung . .	56
4.1.2	Atomkraft-Mikroskopie	56
4.1.3	Rasterelektronen-Mikroskopie	57
4.1.3.1	Zusammensetzung der Ätzlösung	58
4.1.3.2	Abbildungsprozeß	62
4.1.3.3	Bildfilterung	64
4.1.3.4	Bildsegmentation	64
4.1.3.5	Präzipitatgröße	66
4.1.3.6	Untersuchungsvolumen	66
4.1.3.7	Auflösung der Tiefeninformation	67
4.2	Implantationsexperimente	68
4.2.1	Variation der Implantationstemperatur bei 200 keV	68
4.2.2	Variation der Dosis	69
4.2.3	Variation der Ausheiltemperatur	70
4.2.4	Variation der Implantationstemperatur und der Ausheildauer	70
4.2.4.1	Tiefenprofile	72
4.2.4.2	Korrelationen und Verteilungen	75
5	Diskussion	85
5.1	Ausgangsbedingungen zum Reifen	85
5.1.1	Randbedingungen und Profilformen	85
5.1.2	300 keV Implantationsenergie	86
5.1.3	200 keV Implantationsenergie	87
5.2	Zeitliche Entwicklung des Reifens	88
5.2.1	Reifen in der Tiefe	88
5.2.2	Reifung im zweiten Präzipitatband	92
5.2.2.1	Paarkorrelationen	92
5.2.2.2	Nächste Nachbarn-Verteilung	93
5.2.2.3	Radiusverteilung	94
5.2.2.4	Radienkorrelationen	95
5.2.3	Spannungen beim Reifen	98
5.2.3.1	Akkommodationsvolumen	98
5.2.3.2	Elastische Wechselwirkungen	101
5.3	Modellierungsansatz zum Reifen	102
5.3.1	Annahmen zum Reifungsmodell	103
5.3.2	Annahmen zur Präzipitatverteilung	104

6 Zusammenfassung	106
A Chemisches Ätzen	108
B Punktstatistik	112
C Punktfelder	116
D Bildmanipulation	120
E Stereobild-Auswertung	126
F Statistische Datenanalyse	127
G Materialparameter für das Si-O System	130

1 Einleitung

Mit dem Voranschreiten der Miniaturisierung und dem kompakteren Aufbau elektronischer Schaltungen ist die Einführung neuer methodischer und technologischer Verfahren verbunden [1]. Bei engerer Packung der immer kleiner werdenden Bauelemente wächst die Bedeutung der Substrate [2]. Diese müssen nicht nur eine ausreichende Isolierung zwischen den Bauelementen gewährleisten [3], sondern auch so beschaffen sein, daß geringere Betriebsspannungen zu realisieren sind [4]. Die physikalischen Grenzen, die dabei erreicht werden, fordern mitunter die neue und kostspielige Konzeption nicht nur einzelner Bauelemente, sondern auch gesamter Schaltungen [5].

Vor diesem Hintergrund ist das zunehmende Interesse an Silicon-On-Insulator (SOI)-Substraten zu sehen, die ursprünglich wegen ihrer guten Strahlenresistenz nur in wenigen Bereichen Anwendungen fanden. Die dünnen dielektrischen Schichten der SOI-Substrate (100 nm - 500 nm) liegen nur wenige 100 nm unterhalb der Oberfläche. Dieser schmale Bereich ist für den Aufbau von halbleitenden Bauelementen ausreichend. Von sehr unterschiedlicher Natur sind dabei die Verfahren zur Herstellung der SOI-Substrate: Zonenschmelzverfahren, Waferbonding und Separation by Implanted OXYgen (SIMOX). Substrate, gefertigt nach den beiden zuletzt genannten Techniken, werden seit kurzem auch kommerziell angeboten. Ein Vergleich der Verfahren räumt jeder Methode gewisse, insgesamt aber keiner einen entscheidenden Vorteil ein [6]. Bei der Beurteilung der unmittelbar unterhalb der Bauelemente liegenden isolierenden Schicht muß beachtet werden, daß diese Schicht idealerweise über einen homogenen inneren Aufbau verfügt, die Grenzflächen atomar eben sind und eine hohe Parallelität zur Oberfläche aufweisen.

Nach grundlegenden Arbeiten, die bis in die frühen sechziger Jahre zurückreichen (Überblick in [2, 7]), gelang es Izumi et al. [8] 1978 eine funktionsfähige CMOS-Schaltung auf einem SIMOX-Substrat aufzubauen. Der implantierte Sauerstoff verbindet sich bei diesem Verfahren mit dem Silizium des Substrates zu Siliziumdioxid. Das nach der Implantation gaußförmige SiO_2 -Tiefenprofil wird bei der sich anschließenden Ausheilung in das kastenförmige Tiefenprofil der späteren Schicht überführt. Die Entwicklung des Konzentrationsprofils während der Implantation kann unter Berücksichtigung von Sputtereffekten, Volumenaufweitung etc. mit einem Simulationsprogramm berechnet werden [9]. Auch in weiteren theoretischen Modellen lassen sich nur mit stark vereinfachenden Annahmen Aussagen zur Dicke und Tiefe der erzeugten vergrabenen Schichten treffen [10].

Das Ziel der Arbeit bestand darin, den Präzipitationsverlauf während der Ausheilung möglichst genau nachzuzeichnen. Ein tiefgreifendes Verständnis für die an der Entwicklung der vergrabenen Schichten beteiligten physikalischen

Vorgänge ist von großem technologischen Interesse. Mittels dieser Kenntnisse könnte eine Integrierung der Schichtbildung in Prozeßsimulatoren erfolgen und die Entwicklungszyklen neuer Schaltungskonzepte könnten damit erheblich verkürzt werden. Nur wenige experimentelle bzw. theoretische Untersuchungen liegen bislang für Systeme vor, die sich mit inhomogenen Materialverteilung beschäftigen [11, 12, 13, 14]. Das geringe Interesse dabei in Bezug auf SIMOX-Strukturen ist bedingt durch die dort vordringlich zu bearbeitende und technologisch relevantere Fragestellung nach der Reduzierung des Defektaufkommens im oberflächennahen Bereich.

Das methodische Vorgehen zur Beschreibung der Präzipitation in dieser Arbeit orientierte sich zu Beginn noch an Untersuchungen für Metallegierungen [15]. Die dort ablaufenden Prozesse weisen ebenfalls eine hohe Übersättigung auf, verfügen aber über eine homogene Materialverteilung. Die am häufigsten verwendeten Beschreibungsgrößen sind die Anzahl der Präzipitate, die mittlere Präzipitatgröße und die Präzipitatgrößenverteilung. Die zeitliche Entwicklung dieser Größen, die den Präzipitationverlauf wiedergeben, läßt sich in Potenzgesetzen ausdrücken. Die physikalischen Grundlagen der einzelnen Stadien der Präzipitation werden in entsprechenden Modellen wiedergegeben (Keimbildung [16, 17], Wachstum [18, 19], Reifen [20, 21]). Bei sehr hohen Übersättigungen gewinnen weiterhin die räumliche Anordnung der Präzipitate und das direkte Wechselwirken der Präzipitate immer mehr an Bedeutung [22].

Ein theoretisches Modell einschließlich Simulationen, das das Problem der Reifung in Systemen mit inhomogener Materialverteilung erfaßt, wurde kürzlich in [23] vorgestellt. Grundlegend dafür ist die Untersuchung des individuellen Wachstums eines jeden Präzipitates in einem vorgegebenen Ensemble. So besteht die Möglichkeit, den Strukturbildungen nachzugehen, die sich auf dem Weg zum Entstehen einer vergrabenen Schicht ergeben [24]. Selbstorganisierenden Prozessen, wie sie auch in anderen physikalischen Systemen der Natur wiederzufinden sind [25], wurden dafür schon früh in betracht gezogen [26]. Den Bedingungen vor dem Einsetzen des Reifungsprozesses kommt – die Simulationsergebnisse beachtend – bei dieser Betrachtung eine zentrale Bedeutung zu.

Ein Vergleich der detaillierten Simulationen mit den experimentellen Daten der durchgeführten Untersuchungen soll, um dem großen numerischen Aufwand der Rechnungen gerecht zu werden, möglichst umfassend sein. Dieses Vorgehen schließt bei der Betrachtung des physikalischen Systems neben Größenverteilungen und Dichte die Anordnung der Präzipitate im Raum mit ein. Mit der Einführung von Abstandsmaßen können die relativen Positionen der Präzipitate zueinander festhalten und Korrelationen erstellt werden. Statistische Verfahren erlauben, daß die ermittelten Größen nicht nur repräsentativ für das Beobachtungsgebiet sind, sondern auch bezüglich des betrachteten Volumens. Auf der

vollständigen dreidimensionalen Rekonstruktion der Präzipitanordnung wurde bei der Datenauswertung verzichtet und ein einfacher zu handhabender schichtweiser Aufbau des Präzipitationsgebietes vorgezogen. Mit den aus den Experimenten gewonnenen Informationen lassen sich so die Annahmen in der theoretischen Modellierung überprüfen. Es gilt dabei, den Einfluß des hohen Volumenanteils des präzipitierenden Materials, die elastischen Wechselwirkungen der Präzipitate und die inhomogene Materialverteilung auf die Entwicklung geeignet zu beurteilen und eventuelle Wechselwirkungen zwischen diesen Einflußgrößen herauszufinden.

Der Verlauf der Präzipitation in den mit Sauerstoff implantierten Si-Substraten ist gleichermaßen bestimmt durch die inhomogene O-Verteilung wie auch durch die für Implantationen typische Defekterzeugung. Im Si-O System wirken Defekte nachhaltig auf das Wachstumsverhalten der SiO₂-Präzipitate ein, so daß die nahe beieinanderliegenden Implantations- und Schädigungsprofile sich nicht mehr unabhängig voneinander entwickeln. Untersuchungen eines unabhängigen Sauerstoffprofils sind nur in Systemen möglich, deren inhomogene Materialverteilung mittels eines epitaktischen Verfahrens [27] oder sehr hoher Implantationsenergien im MeV Bereich hergestellt wurden [28]. Diese können aber in Bezug auf die Schichtbildung in SIMOX-Substraten nur von theoretischem Interesse sein.

Die Gliederung der Arbeit beginnt mit dem die theoretischen und experimentellen Grundlagen einführenden Abschnitt 2. Dort werden die Beschreibungsmöglichkeiten für einen Phasenübergang erster Ordnung und die Eigenschaften des experimentellen Systems zusammengestellt. In Abschnitt 3 werden die analytischen Meßtechniken und die zur Auswertung der erhaltenen Daten benötigten Verfahren besprochen, sowie die Experimente und die experimentellen Bedingungen für die Untersuchungen vorgestellt. Der Ergebnisteil (vgl. Abs. 4) dokumentiert die Anpassung der analytischen Methoden und der Datenauswertung an das Si-O Materialsystem. Weiterhin werden die Resultate aus den verschiedenen Experimenten zusammengefasst. Die Diskussion in Abschnitt 5 beschäftigt sich damit, die Bedingungen zu charakterisieren, unter welchen sich ein selbstorganisierender Prozeß einzustellen vermag, und den Einfluß weiterer am Präzipitationsgeschehen beteiligter physikalischer Vorgänge zu bestimmen. In der Zusammenfassung werden die erarbeiteten Erkenntnisse noch einmal in einem Überblick kurz beschrieben.

2 Theoretische und experimentelle Grundlagen

Eine detaillierte Betrachtung der Keimbildung, des Wachstums und des Reifens, der einzelnen Stufen eines Phasenüberganges erster Ordnung, folgt in den Abschnitten 2.1.1 - 2.1.3. Neben den klassischen Ansätzen zur Modellbildung, deren Gültigkeitsbereiche sich auf Gas (Flüssig)/Flüssig-Phasenübergänge beschränken, werden vor allem für das Reifen (vgl. Abs. 2.1.3) Modelle besprochen, die die Betrachtung eines Festkörper/Festkörper-Phasenüberganges erlauben. Das besondere Interesse liegt dabei auf dem Einfluß, der von hohen Volumenanteilen an präzipitierenden Material ausgeht, und auf den Spannungen, die in Festkörpern aufzutreten vermögen. Die Möglichkeiten, den Präzipitationsverlauf mit den Konzepten der geometrischen Statistik mitzuverfolgen, werden in Abschnitt 2.2 beschrieben. Gesondert sind im Abschnitt 2.3 die Eigenschaften des Si-O Materialsystems zusammengefasst. Dies geschieht getrennt für die geringen Konzentrationen der Sauerstoffverunreinigungen in Si-Substraten (vgl. Abs. 2.3.1) und den hohen Konzentrationen an Sauerstoff für implantierte Si-Substrate (vgl. Abs. 2.3.3 und 2.3.4).

2.1 Theorie

Wird einem physikalischen Einstoff-System eine zweiter Stoff in überlöslicher Konzentration zugeführt, steigt bei konstant gehaltenen Druck und Temperatur die das System beschreibende freie Enthalpie. Als Folge setzt ein Prozeß ein, der das thermodynamische Gleichgewicht wiederherstellt und eine Minimierung der freien Enthalpie bewirkt. Dies geschieht mittels eines Phasenübergangs erster Ordnung, der sich durch die Bildung von Keimen – einer zweiten Phase – auszeichnet. Die Änderungen in der freien Enthalpie können bei der Bildung von Keimen und dem Wachstum der daraus entstehenden Präzipitate in einen Volumen- und einen Oberflächenanteil eingeteilt werden. Keimbildung und Wachstum sind Zustände weit ab vom Gleichgewicht und zeichnen sich durch das Binden des übersättigten Stoffes an Präzipitate aus. Mit diesem Vorgang ist die Bildung von Volumen und neuer Oberfläche verbunden. Bei nur noch geringfügiger Übersättigung endet das freie Wachstum der Präzipitate. In einem weiteren Schritt folgt das Reifen, das die gespeicherte Energie der zuvor aufgebauten Oberfläche wieder freigibt. Die damit einhergehende Minimierung der freien Enthalpie fällt nicht mehr so stark aus wie bei der Keimbildung. Zu beachten gilt, daß die Löslichkeit eines kleinen Präzipitates, das einen große Krümmungsradius aufweist, höher liegt als bei einem großen Präzipitat mit kleinem Krümmungsradius. D.h., es setzt ein konkurrierendes Wachstum ein, bei welchem die großen Präzipitate bevorzugt weiter wachsen und kleine Präzipitate schrumpfen bzw. in Lösung gehen. Die Näherung an den thermischen Gleichgewichtszustand erfolgt asymptotisch und nur noch langsam. Insgesamt wird dadurch das Verhältnis Gesamtoberfläche zu Gesamtvolumen aller Präzipitate verkleinert. Im idealen Fall liegt am Ende

des Reifen lediglich ein einzelnes Präzipitat vor, das das gesamte Material der Übersättigung in sich trägt.

Für die Beschreibung des Präzipitationsverlaufes wird im folgenden einschränkend angenommen [15], daß ein Flüssig-Flüssig-Phasenübergang betrachtet wird, die Präzipitate von sphärischer Form sind, eine homogene Materialverteilung vorliegt und Präzipitate nur einzelne Atome / Moleküle mit der Umgebung austauschen.

Voraussetzung für ein mathematisch einfach zu handhabendes Modell zur Keimbildung und zum Wachstum ist ein stationärer Zustand, in dem die Keime (Präzipitate) im dynamischen Gleichgewicht mit ihrer Umgebung sind. Eine konstante Übersättigung erlaubt weiterhin eine getrennte Behandlung der Keimbildung und des Wachstums. In jüngerer Zeit werden auch Keimbildungs- und Wachstumsprozesse mit Erfolg gemeinsam betrachtet [17, 18, 29]. Für die Reifung hingegen wird ein geschlossenes System angenommen, d.h., es gilt Materialerhaltung. Damit ist das Wachstum eines Präzipitates mit dem Wachstum aller anderen Präzipitate verknüpft. Die Lösungen der verschiedenen Modellansätze zum Reifen können aufgrund der Komplexität des Problems immer nur Näherungen sein [22].

2.1.1 Keimbildung

Für die Bildung von Keimen mit dem Radius r muß die Energie ΔG aufgebracht werden [20]:

$$\Delta G = -\frac{4}{3}\pi r^3 \Delta G_v + 4\pi r^2 \sigma, \quad (1)$$

wobei σ für die Grenzflächenenergie pro Einheitsoberfläche steht und ΔG_v die Änderung der freien Energie pro Volumeneinheit ist, die von der Bildung von Präzipitaten herrührt. In einem System mit konstantem Druck und gleichbleibendem Volumen entspricht dies der Differenz des chemischen Potentials der in einem Präzipitat enthaltenen Partikel (Index α) der zweiten Phase und der durch diese verdrängten Matrixpartikel (Index β) [30]

$$\Delta G_v = (n_\alpha(\mu_\alpha - \mu_\beta))/\Omega. \quad (2)$$

Mit dem Nullsetzen der ersten Ableitung von ΔG ergibt sich ein kritischer Radius r_c , der den Übergang von Keimen in einen stabilen Zustand charakterisiert

$$r_c = (2\sigma/\Delta G_v). \quad (3)$$

In verschiedenen Modellansätzen zur Keimbildung werden noch zusätzliche Effekte, wie fließende Grenzflächen, Oberflächenkrümmung usw., mitberücksichtigt [16], auf die aber an dieser Stelle nicht weiter eingegangen werden soll.

Die Keimbildung selbst kann heterogen erfolgen, d.h. Keime entstehen an strukturell ausgezeichneten Stellen der Wirtsmatrix. Bei einer homogenen Keimbildung hingegen bilden sich in der Wirtsmatrix fortwährend Keime durch Dichtefluktuationen und zerfallen aber auch wieder. Die Verweildauer dieser im Raum

statistisch verteilten Keime erhöht sich, sobald diese auf einen dem kritischen Radius vergleichbaren oder größeren Radius anwachsen. Die Häufigkeit, mit der Keime einer Größe $r > r_c$ in einem stationären System auftreten, ist [20]

$$J = K \cdot \exp(-\Delta G/kT). \quad (4)$$

Der im Exponenten stehende Ausdruck gibt die Wahrscheinlichkeit der Bildung eines Keims an, während in dem präexponentiellen Faktor K die Kinetik der Aufbaureaktion eingeht.

2.1.2 Wachstum

Im Anschluß an die Bildung der Keime folgt deren Wachstum. Die in der Wirtsmatrix in überlöslicher Konzentration vorhandenen Atome der zweiten Phase werden an die Keime gebunden. Dieser Vorgang läßt aus den Keimen Präzipitate entstehen. Das Wachstum der Präzipitate kann mit dem Fluß j an Material durch deren Präzipitatoberfläche beschrieben werden und steht über

$$j = -\frac{Dc}{kT} \text{grad } \mu_\alpha, \quad (5)$$

in enger Verbindung mit dem Gradienten des chemischen Potentials. Darin bezeichnet D den Diffusionskoeffizienten, T die Temperatur, k die Boltzmann Konstante und c die Konzentration des gelösten Stoffes. Der Gradient läßt sich durch die Änderung des thermodynamischen Potentials ΔG des Gesamtsystems, bestehend aus der Matrix und dem Präzipitat, ersetzen und es folgt [30]

$$j = -\frac{Dc}{kT} \frac{1}{L} \frac{\partial \Delta G}{\partial n_\alpha}, \quad (6)$$

Δn_α bezeichnet dabei die Differenz der Teilchenzahl in dem Präzipitat, die mit der Änderung des chemischen Potentials einhergeht.

Es wird beim Wachsen zwischen dem Transport von Material aus der Umgebung zur Oberfläche der Präzipitate und dem Einbau des Materials in die Präzipitate unterschieden. Ist die zum Einbau des Materials benötigte Zeit gegenüber der Diffusionszeit zu vernachlässigen, liegt ein diffusionsbestimmtes Wachstum vor, im umgekehrten Fall ein reaktionsbestimmtes Wachstum. Für eine diffusionsbestimmte Wachstumsrate entspricht L , die Weite der inhomogenen Region zwischen Präzipitat und Matrix, gerade dem Radius des Präzipitates. Für ein reaktionsbestimmtes Wachstum nimmt L einen konstanten Wert an. Mit Ω , dem Molekularvolumen des Stoffes der zweiten Phase, und

$$\frac{dr}{dt} = -j\Omega, \quad (7)$$

das die Wachstumsrate mit dem Fluß durch die Präzipitatoberfläche verbindet, ergibt sich [30]

$$\frac{dr}{dt} = -\frac{Dc\Omega^2}{kT} \frac{1}{r} \frac{\partial \Phi}{\partial V_\alpha} = \frac{2\sigma Dc\Omega^2}{kT} \frac{1}{r} \left(\frac{1}{r_c} - \frac{1}{r} \right). \quad (8)$$

Wird $1/r$ größer als $1/r_c$, so ist \dot{r} positiv und das Präzipitat wächst. Ist $1/r$ jedoch kleiner als $1/r_c$ und damit \dot{r} negativ, löst sich das Präzipitat auf. Es wird weiterhin angenommen, daß die Wachstums- und Auflösungsrate von gleicher Größe sind, ein Umstand, der nur für Volumenanteile $\phi \ll 1$ gültig ist [31].

2.1.3 Ostwald Reifen

2.1.3.1 Mean-Field Ansatz Obwohl die Mechanismen, die zum Materialtransport während des Ostwald Reifens führen, bekannt sind, ist eine Beschreibung für eine große Anzahl von Präzipitaten schwierig. Die Diffusionsgleichung eines jeden einzelnen an dem Vorgang beteiligten Präzipitates müßte dazu gelöst werden. Von Lifshitz, Slyozov und Wagner (LSW) [32, 33] wurde ein Mean-Field-Ansatz entwickelt, der die Beschreibung des Reifens für ein einzelnes Präzipitat in einem effektiven Medium ermöglicht. Es wird in diesem Ansatz ein sehr geringer Volumenanteil der Präzipitate $\phi \rightarrow 0$ vorausgesetzt. Die aufzustellende Größenverteilungsfunktion $N(r)$ gibt die Anzahl der Präzipitate mit Radius r pro Einheitsvolumen wieder. Durch Vernachlässigen des Entstehens bzw. des Verschwindens von Präzipitaten ist in einfacher Weise eine Kontinuitätsgleichung im r -Raum aufzustellen

$$\frac{\partial N}{\partial t} + \frac{\partial(N \cdot \dot{r})}{\partial r} = 0, \quad (9)$$

worin \dot{r} die Wachstumsrate der Präzipitate vom Radius r in Gegenwart der Konzentration $c(t)$ des in der Wirtsmatrix gelösten Stoffes ist. Die Konzentration ist nicht als unabhängig anzunehmen, sondern an die Massenerhaltung des Systems gebunden. Wird die anfängliche Konzentration gegen die in den Präzipitaten aufgenommene Materialmenge bilanziert, folgt

$$c(t) = c_o - \Omega \int N(r, t) dr, \quad (10)$$

wobei c_o die Konzentration vor Präzipitationsbeginn ist und Ω das molare Volumen der Präzipitate.

Im Größenverteilungsraum nimmt \dot{r} eine dominierende Rolle ein und muß, da in diese Funktion die physikalischen Grundlagen des Reifens eingehen, sorgfältig ausgearbeitet werden. Aus \dot{r} geht der Mean-Field-Charakter dieses Ansatzes hervor, bei welchem angenommen wird, daß ein Präzipitat nicht direkt mit den umliegenden Präzipitaten, sondern ausschließlich über das gemittelte gemeinsame

Konzentrationsfeld wechselwirkt. Unter Berücksichtigung der Materialerhaltung konnten LSW für $t \rightarrow \infty$ die zeitunabhängige Form von N nachweisen

$$N(p) = ap^2 \left(\frac{3}{3+p} \right)^{\frac{7}{8}} \left(\frac{\frac{3}{2}}{\frac{3}{2}-p} \right)^{\frac{11}{3}} \exp \left(\frac{-p}{\frac{3}{2}-p} \right), \quad (11)$$

worin $p = r/r_c$ und a eine Konstante ist. Die Unabhängigkeit der Präzipitatgrößenverteilung von den Anfangsbedingungen und die Skalierbarkeit durch p zeigen das selbstähnliche Verhalten des Reifens auf [30]. Die Präzipitatgrößenverteilung stimmt allein für den Fall der unendlich verdünnten Lösungen mit den experimentellen Ergebnissen überein und fällt für höhere Volumenanteile breiter und symmetrischer aus [34].

Effekte, die bei höheren Volumenkonzentrationen auftreten, werden z.B. in dem störungstheoretischen Ansatz von Marder [35] berücksichtigt. Der Störungsterm erster Ordnung steigt dabei mit r/λ an, wobei λ die Abschirmlänge der Diffusionswechselwirkung ist. Da weiterhin $\lambda \sim \frac{1}{2} \frac{r}{\phi}$ gilt, besteht eine mittelbare Abhängigkeit von λ zum Volumenanteil der Präzipitate. Mit $\phi \approx 0.1$ ist der Volumenanteil schon so groß, daß die Abschirmlänge vergleichbar zum Präzipitatabstand wird und Effekte höherer Ordnung immer stärker zur Geltung kommen [36].

2.1.3.2 Vielteilchendiffusion Ansatz Die verschiedenen in diesem Bereich ausgearbeiteten Reifungsmodelle unterscheiden sich in dem jeweiligen Mittelungsverfahren, nicht jedoch in den zugrunde liegenden Gleichungen [22]. In den Vielteilchendiffusionsmodellen werden die wachsenden und schrumpfenden Präzipitate durch Punktquellen bzw. Senken beschrieben. Das sich stetig verändernde Konzentrationsfeld Θ mit N Präzipitaten kann mit der Lösung der Poissongleichung

$$\nabla^2 \Theta = 4\pi \sum^N B_i \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i) \quad (12)$$

beschrieben werden, worin B_i die Quell- bzw. Senkenstärke des i -ten Präzipitates ist, N die Anzahl der Quellen bzw. Senken und δ die Dirac-Funktion. Mit \mathbf{r} wird der Ort eines beliebigen Feldpunktes beschrieben, und \mathbf{r}_i ist der Ort des i -ten Punktteilchens. Unter Zuhilfenahme der Potentialtheorie und einem zu dem im LSW-Modell erweiterten Ausdruck der Massenerhaltung werden in den Modellen verschiedene statistische Mittelungsverfahren mit dem Ziel verwendet, einen geeigneten Wert für \dot{r} und $B(r) = r^2 \dot{r}$ zu bestimmen. Mit diesem von ϕ und dem jeweiligen Modell abhängigen Ausdruck wird in Verbindung mit der Kontinuitätsgleichung und der Massenerhaltung der Verlauf der Reifung beschrieben.

Allen Modellen gemeinsam sind die schon im LSW-Modell gefundene Unabhängigkeit von $B(r)$ von der Zeit, eine invariante und skalierbare Größenverteilungsfunktion, die breiter und symmetrischer als bei LSW für $t \rightarrow \infty$ ausfällt, und die funktionelle Abhängigkeit der Wachstumskonstanten von dem Volumenanteil ϕ . Der jeweilige Gültigkeitsbereich der unterschiedlichen Modelle führt zu

geringen Abweichungen der Ergebnisse. Da aber entsprechende experimentelle Untersuchungen noch ausstehen, kann im Augenblick keinem Modell der Vorzug eingeräumt werden.

2.1.3.3 Thermodynamischer Ansatz Den bisherigen Reifungsmodellen liegen allein kinetische Gleichungen zugrunde. Aussagen zum Reifen sind somit nur von beschreibender Natur [22]. Die energetische Analyse in [30] gibt einen detaillierteren Aufschluß über den Ursprung des Reifens.

Die Verteilung der Präzipitate, die explizit in den vorhergehenden Ansätzen miteingeschlossen ist, wird nun durch ein ideales Ensemble von s gleichgroßen Präzipitaten ersetzt. Ausgehend von diesem Präzipitatensemble kann die freie Enthalpie des Systems direkt minimiert werden. Für ein zweiphasiges System bei konstantem äußeren Druck, konstanter Temperatur und inkompressiblen Präzipitaten gilt

$$\Delta G = \sum_{j=1}^s (\mu_{2\alpha}^{(j)} - \mu_{2\beta}) n_{2\alpha} + \sigma^{(j)} A^{(j)} + \sum_{i=1}^2 (\mu_{i\beta} - \mu_i) n_i. \quad (13)$$

Die erste Summenbildung erfaßt den energetischen Beitrag aller Präzipitate bezüglich der zweiten Komponente, wobei der erste Term die relative chemische Energie berücksichtigt und der zweite die Oberflächenenergie. Die zweite Summe gibt die gesamte durch die einzelnen Komponenten in dem System gespeicherte chemische Energie an.

Dieser Ansatz, der nur Aussagen zu dem mittleren Präzipitatradius trifft, kann weiterhin aufgrund seiner einfachen mathematischen Struktur ohne großen Aufwand um weitere energetische Terme erweitert werden.

2.1.3.4 Elastische Wechselwirkungen Für den Präzipitationsverlauf in Festkörpern sind neben dem hohen Volumenanteil der zweiten Phase noch die zu erwartenden Spannungen von großer Bedeutung. Spannungen können von außen dem Festkörper aufgeprägt werden oder, wie im Folgenden angenommen, durch die Volumenfehlانpassung des von der Matrix zur Verfügung V_m gestellten und dem von dem Präzipitat benötigten Volumen V_p entstehen [37]. Das die Präzipitate umgebende Spannungsfeld führt zu Dichteänderungen in der Matrix und beeinflusst damit auch das chemische Potential. Soll ein gleichförmiges chemisches Potential beibehalten werden, müssen – als dem Ausdruck eines thermodynamischen Gleichgewichtes – Störungen durch das Spannungsfeld mit einer lokalen Änderung der Konzentration des gelösten Stoffes ausgeglichen werden. Ein Wechselwirken der Präzipitate schließt damit nicht mehr allein deren Löslichkeit, sondern auch das elastische Feld mit ein. Die elastische Wechselwirkung führt im Vergleich mit einer rein diffusiven Wechselwirkung zu stärker ausgeprägten Effekten. Wird weiterhin die $1/r^3$ Abnahme des elastischen und die $1/r$ -Abnahme des

diffusiven Felds berücksichtigt, erklärt sich der in unmittelbarer Nähe zum Präzipitat vorherrschende elastische Einfluß, der erst bei größeren Entfernungen einer diffusiven Wirkung weicht. Bei der Betrachtung elastischer Wechselwirkungen sind weiterhin die Randbedingungen, die mit einem kohärenten bzw. inkohärenten Einbau der Präzipitate in die Matrix verbunden sind, zu beachten [16, 38], ebenso wie der Einfluß der Spannungen auf die Form der Präzipitate [39].

In dem auf den Prinzipien der Vielteilchenansätze basierenden Modell [37, 40] zur Beschreibung der diffusiven und elastischen Wechselwirkungen gehen Annahmen ein über:

- die elastische Homogenität der Matrix, die eine Superposition der elastischen Felder der Präzipitate erlaubt;
- die Isotropie der Matrix, die Lösungen für sphärische Präzipitate gewährleistet;
- die Unabhängigkeit der elastischen Konstanten von der Konzentration des gelösten Stoffes und von der Stärke des elastischen Feldes.

Die zu den Modellen durchgeführten Simulationen [41] zeigen, daß gegenüber dem diffusiven Fall ein an die Größe und die Umgebung der Präzipitate gebundenes verstärktes, vermindertes bzw. inverses Reifen sowie eine Migration der Präzipitate – in eine durch das elastische Potential vorgegebene bevorzugte Richtung – auftritt. Das modifizierte Reifungsverhalten und die Präzipitatomigration können eine starke räumliche Reorientierung der Präzipitate bewirken, die z.B. zu dem Aufbau eines Supergitters führt. Eine weitere Besonderheit besteht in der Koexistenz zweier sehr nahe beieinanderliegender Präzipitate, die durch die elastische Wechselwirkung einen energetisch günstigeren Zustand als ein einzelnes Präzipitat einzunehmen vermögen.

Für eine grobe Abschätzung der sich ausbildenden Spannungen auf die einzelnen Stadien der Präzipitation bietet sich das thermodynamische Modell an [30]. Der Term der elastischen Energie besitzt mit dem Auftreten einer Volumenfehlانpassung $\delta = V_m - V_p$ des Präzipitates einen nicht verschwindenden Wert. Nabarro [42] folgend, verfügt die elastische Energie für ein Präzipitat in einem unendlich ausgedehnten Festkörper über die Form

$$\Phi^e = \frac{E}{9(1-\gamma)} \delta^2 V_p, \quad (14)$$

mit E dem Elastizitätsmodul und γ der Poisson Zahl. Die Volumenfehlانpassung der Präzipitate bedingt eine Erweiterung des thermodynamischen Potentials

$$\Delta G = n_v(\mu_v - \mu_s) + \sigma A + \Phi^e. \quad (15)$$

Für den kritischen Radius r_c – dem Maximum von ΔG – bedeutet dies einen zusätzlichen konstanten Term im Nenner, der dessen Wert vergrößert. Die Wachstumsraten der Präzipitate hingegen bleiben unverändert [30]. Für ein reifendes

System tritt dadurch nur eine zeitliche Verzögerung des Wachstumsprozesses ein, aber keine qualitativ neue Wachstumsdynamik wie im Fall von einem Φ^ϵ , das sich schneller vergrößert als das Präzipitatvolumen [43]. Das Potential Φ^ϵ von Präzipitaten mit dem Radius r , zu welchen sich in einem Abstand $r_m < 10r$ weitere Präzipitate befinden, bedarf einer Korrektur

$$\left(1 - \frac{r^3}{r_m^3}\right)\epsilon\delta^2V. \quad (16)$$

Φ^ϵ verschwindet für $r = 0$ bzw. $r_m = r$ und besitzt bei

$$r = \frac{r_m}{\sqrt[3]{2}} \quad (17)$$

ein Maximum. Im Vergleich zu einem Präzipitat, das sich in einer unendlich ausgedehnten Matrix befindet, nimmt die elastische Energie – dem Korrekturterm folgend – in Anwesenheit weiterer Präzipitate in der näheren Umgebung ab. Damit verbunden ist eine lokale Verringerung des kritischen Radius, aus dem ein gegenüber dem restlichen System verändertes Wachstum resultiert. Wie in [40] gibt dieser Ansatz zwei nahe beieinanderliegenden Präzipitaten die Möglichkeit, sich selbst gegen ein Auflösen zu stabilisieren bzw. zu einem inversen Reifen. Für den Einbau von Gleichung (16) in das thermodynamische Modell (Gl. (15)) wird aber von allen Präzipitaten ein gleich hoher Beitrag des elastischen Potentials angenommen. Erst an dieser Stelle geht der zuvor beschriebene Effekt bei der Integration in ein Mean-Field Modell verloren.

2.2 Punktmodell zum Präzipitationsverlauf

Eine Menge von Punkten läßt sich zu einem Punktfeld zusammenfassen. Punktfelder wiederum können mittels mathematischer Modelle beschrieben werden ([44], vgl. Anhang B). Die räumliche Anordnung der Punkte ist mit den Methoden des Abschnittes 3.3.2.4 und den Beispielen aus Anhang C zu analysieren. Ein Punkt repräsentiert dabei z.B. ein Präzipitat, dessen Schwerpunkt mit den Koordinaten x, y festgehalten wird. Weitere Eigenschaften eines Präzipitates, z.B. der Radius, werden mit den Marken m eines Punktes wiedergegeben.

Unter Verwendung von Punktmodellen sollen die einzelnen Präzipitationsstadien noch einmal beschrieben werden. Die Position der Präzipitate gewinnt vor allem beim Reifen in Systemen mit hohen Volumenanteilen durch das direkte Wechselwirken immer mehr an Bedeutung (vgl. Abs. 2.1.3.2). Es kann dabei nicht mehr uneingeschränkt von einer zufälligen Verteilung der Präzipitate ausgegangen werden [22].

Zunächst werden verschiedene Konzepte, die auch die Grundlage für die Interpretation von Streuexperimenten [45, 46, 47] bilden, im Zusammenhang mit der Keimbildung und Wachstum besprochen.

Keimbildung

Die Gesamtheit der erzeugten Keime kann mittels Poisson-Felder dargestellt werden. Lediglich bei sehr hohen Übersättigungen mit hohen Keimdichten kommt es zu Störungen in der Nahordnung. Da sich Keime nicht überlappen können, nehmen diese einen Mindestabstand zueinander ein (random discs [48]). Daraus folgt, daß bis auf einen Abstand in der Größenordnung eines Keimradius eine zufällige Verteilung erhalten bleibt.

Wachstumsphase

Werden Keimbildungs- und Wachstumsphase als unabhängig voneinander angenommen, bleibt die Poisson-Verteilung der Präzipitate somit auch während der Wachstumsphase erhalten und die Radienverteilung behält ihre nach der Keimbildung eingenommene Form bei. Ein direktes Wechselwirken der Präzipitate soll zunächst noch als vernachlässigend angenommen werden (vgl. Abs. 5.2.2.3). Der Zuwachs des mittleren Präzipitatriadius beträgt während der Wachstumsphase bei konstanter Übersättigung

$$r = K_{1/2} \cdot t^{1/2} \quad \text{mit} \quad K_{1/2} = \left(\frac{2D\delta\mu c}{c_\alpha kT} \right)^{1/2}. \quad (18)$$

Die Präzipitate vermögen aus einem Gebiet der Ausdehnung $M = \sqrt{D \cdot t}$ Material zum Wachstum zu schöpfen und es sollten dort keine weiteren Präzipitate gefunden werden [46]. Zur Beschreibung dieser mit den Präzipitaten verbundenen neuen Eigenschaft wird jedem Punkt neben dem Radius eine weitere Marke zugeordnet ([44], vgl. Abs. 3.3.2.4), deren Größe die Ausdehnung des Einflußbereiches des Präzipitates wiedergibt (vgl. Abs. 2.3.3.4).

Für die Beschreibung des Zusammenhangs zwischen Marken- und Radienverteilungen erscheint in besonderer Weise der Formalismus des Stienen-Modells als geeignet (vgl. Anhang C). Wird eine Entwicklung der Marken proportional zu den Radien angenommen [45, 47] und die $t^{1/2}$ -Abhängigkeit beider Größen berücksichtigt, geht Gleichung (78) (vgl. Anhang C) über in

$$N_V(r, t) = \alpha \cdot D(r, t) \quad \text{mit} \quad 0 < \alpha < 1. \quad (19)$$

$N_V(r, t)$ stellt dabei die Radienverteilung und $D(r)$ die Nächste Nachbarn-Verteilung dar. Da Radienverteilung und Markenverteilung sich nur durch einen konstanten Faktor unterscheiden, können sie für die Dauer der Wachstumsphase gewinnbringend gleichgesetzt werden. Mit α wird dann ein Maß dafür angegeben, wie dicht die durch die Marken aufgespannten Bereiche in dem zu untersuchenden Punktmuster vorliegen (vgl. Anhang C). Bei einem freien Wachstum verfügt α über einen nur geringen Wert, d.h., die Ausdehnung der Verarmungsbereiche um die Präzipitate ist im Vergleich zu den Abständen der Präzipitate nur gering.

Die von den Marken aufgespannten Bereiche berühren sich in diesem Fall selten oder gar nicht, d.h., die Präzipitate wechselwirken kaum. So liegt es nahe $N_V(r, t)$ und $D(r, t)$ als unabhängig voneinander zu betrachten. Damit entzieht sich diese Präzipitationsphase innerhalb dieses Modells einer analytischen Behandlung. Die Nahordnung um die Präzipitate in dem Punktmuster nimmt eine Form an, die derjenigen von Gasen ähnlich ist [49].

Für die Nachbildung dieser komplexen Präzipitationsverläufe bleibt nur die Simulation eines Ensembles von Präzipitaten entsprechend z.B. dem Mehl-Johnson-Modell [50, 51] oder nach Reiß [52].

Reifungsphase

Für die Entwicklung des mittleren Radius beim Reifen in Abhängigkeit von der Zeit ergibt sich unabhängig von dem bestehenden Volumenanteil der präzipitierenden Phase bei konstanter Übersättigung

$$r = K_{1/3} \cdot t^{1/3} \quad \text{mit} \quad K_{1/3} = \left(\frac{8Dc\sigma}{9c_\alpha^2 kT} \right)^{1/3}. \quad (20)$$

Die für das Wachstum typische Verarmungszone um ein Präzipitat, verliert beim Reifen an Bedeutung, da die Übersättigung (vgl. Abs. 2.1.3) nur noch geringfügig über dem Gleichgewichtswert liegt. Der Einflußbereich eines Präzipitates ist damit neu – in Abhängigkeit vom Radius – zu definieren. Verändert sich die Radienverteilung entsprechend den Reifungsmodellen des Abschnittes 2.1.3, ergibt sich im Rahmen des Stienen-Modells eine Erweiterung für α , die eine Abhängigkeit vom Radius und der Zeit [21] einschließt

$$N_V(r, t) = \alpha(r, t) \cdot D(r, t) \quad \text{mit} \quad \alpha(r, t) \simeq 1. \quad (21)$$

Die zeitliche Entwicklung eines reifenden Systems kann innerhalb des Stienen-Modells durch Anpassung der Präzipitatchichte nachgebildet werden. Dies geschieht unter der Annahme, daß sich das für die Radienverteilung gefundene selbstähnliche Verhalten mit der Zeit (vgl. Abs. 2.1.3) auf die räumliche Verteilung der Präzipitate übertragen läßt [53] – α verliert dadurch nach der Normierung auf z.B. den kritischen Radius (vgl. Abs. 2.1.3.1, 5.2.3.2) die Zeitabhängigkeit. Die für unterschiedliche Zeitpunkte erzeugten Punktmuster stellen jeweils eine mögliche Realisation dar und sind im Gegensatz zu den direkten Simulationen unabhängig voneinander. Die nun in einem hohen Maß wechselwirkenden Präzipitate gestalten die Anordnung der Präzipitate im Raum ähnlich denjenigen von Punktmodellen für Flüssigkeiten [49].

Der Übergang vom Wachstum zum Reifen ist von einem Umordnungsprozeß der Präzipitate begleitet und wird in Abschnitt 5.2.2.3 besprochen.

2.3 Experimentelles System

Die bei der Halbleiterproduktion überwiegend verwendeten Si-Substrate werden nach dem Czochralski (CZ)-Verfahren gewonnen [54]. Diese Substrate weisen Sauerstoff als natürliche Verunreinigung auf mit Konzentrationen von $5 \times 10^{17} \text{O}^+ \text{cm}^{-3}$ bis $2 \times 10^{18} \text{O}^+ \text{cm}^{-3}$ und liegen bis zu Temperaturen von 1200°C über der Löslichkeit im thermischen Gleichgewicht [55]. Weitere physikalische Größen zum Si-O System sind in Anhang G angegeben. Die Präzipitation des Sauerstoffes kann durch die Wahl geeigneter Verfahrensschritte in dem für die Halbleiterbauelemente wichtigen oberflächennahen Bereich eingeschränkt werden [56, 57]. Darüber hinaus gettern die SiO_2 -Präzipitate metallische Verunreinigungen und verbessern die mechanischen Eigenschaften des Substrates. Daher ist den mit wesentlich geringeren Sauerstoff-Konzentrationen verunreinigten Float Zone (FZ)-Substraten nicht immer ein Vorzug einzuräumen.

Neben den SiO_2 -Präzipitaten bildet der Sauerstoff verschiedene Arten von Clustern aus, die sich elektrisch aktivieren lassen. Zur Klärung der Struktur thermischer Donatoren, die schon bei Temperaturen von 400°C entstehen, existieren mehrere sehr unterschiedliche Modellansätze [58]. Auch über die Struktur der neuen thermischen Donatoren, die sich bei Temperaturen von über 600°C bilden, ist augenblicklich wenig bekannt [59]. Es wird vermutet, daß neben Sauerstoff-Clustern [60] die Donatoren Keime einer Präzipitation sind [61].

Die nachfolgende Beschreibung der Präzipitation im Si-O System berücksichtigt nicht nur die für das Materialsystem spezifischen Eigenschaften, sondern schließt auch einige Erweiterungen, die sich durch die Festkörper/Festkörper-Lösung ergeben, ein. Eine gesonderte Betrachtung erfahren die implantierten Systeme, bei welchen die Implantationsschäden und das inhomogene Materialprofil von herausragender Bedeutung sind.

2.3.1 Si-O System

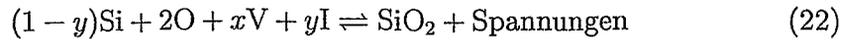
Viele der in Si-Substraten zu beobachtenden Vorgänge stehen in Verbindung mit atomaren Fehlern (Defekten) des Si-Kristallgitters [62]. Diese Fehlern ergeben sich aus unbesetzten Plätzen, den Leerstellen (V) in dem Kristallgitter und aus Atomen, die auf Zwischengitterplätzen (I) liegen. Si-Atome auf Zwischengitterplätzen (Eigenzwischengitteratomen) werden mit Si_I bezeichnet, Sauerstoff mit O_I und andere die Si-Matrix dotierende Stoffe in entsprechender Weise. Den atomaren Defekten ist es durch Akklomeration weiterhin möglich, die bestehende Kristallstrukturen lokal zu stören [63]. Eine Kette von Defekten entlang einer Kristallrichtung bilden eindimensionale Liniendefekte. Zusammenhängende Bereiche von Defekten in einer Kristallebene ergeben meist zweidimensionale Stapelfehler und beliebig ausgeformte Defektcluster Volumendefekte, z.B. Präzipitate oder Blasen.

Bei der Präzipitation des Sauerstoffes in dem Si-Kristall als SiO_2 erhöht sich

nach der Oxidation das pro Si-Atom beanspruchte Volumen um einen Faktor 2.2. Dieses zusätzlich benötigte Volumen (Akkomodationsvolumen) kann nur über den Aufbau von Spannungen oder/und Leerstellen bzw. Eigenzwischengitteratomen bereitgestellt werden [64]. Die benötigten Defekte können auf unterschiedliche Weise entstehen:

- im Volumen auf thermischem Wege durch Frenkelpaarbildung,
- durch Bestrahlung der Matrix mit Elektronen- oder Ionenstrahlen,
- an der Grenzfläche zwischen Si-Matrix und dem Präzipitat durch den Ausstoß eines Eigenzwischengitteratoms bei der Bildung eines SiO₂-Moleküls.

Die Gleichgewichtsreaktion nimmt dabei die Form an



x und y bezeichnen jeweils den Anteil an Leerstellen (V)¹ bzw. Eigenzwischengitteratomen (I) bei der Bereitstellung des Akkomodationsvolumens. Eine hohe Konzentration an Eigenzwischengitteratomen, wie sie nach einer Implantation oder während des Wachstums vorliegt, verlagert das Gleichgewicht auf die linke Seite der Reaktionsgleichung und schränkt die Bildung von SiO₂ und damit das Wachstum von SiO₂-Präzipitaten ein. Die Bilanzierung der Materialflüsse von und zur Präzipitatoberfläche erfolgt unter Beachtung von Gleichung (22). Unter der Annahme, daß das Konzentrationsfeld um ein Präzipitat durch die Lösung der Laplace-Gleichung anzunähern ist, geht

$$j_l^i = D_l C_l^{eq} \frac{S_l^\infty - S_l^i}{r_p}, \quad l = O, V, I, \quad (23)$$

hervor. Dabei bezeichnet C eine Konzentration und der Index ∞ steht für den Konzentrationswert im Abstand $r \rightarrow \infty$, i für den Wert an der Grenzfläche des Präzipitates und eq gibt den Gleichgewichtswert wieder. Die auf den Gleichgewichtswert einer gegebenen Temperatur normierte Übersättigung wird mit S bezeichnet. Mit dem Massenwirkungsgesetz

$$(S_O^i)^2 (S_V^i)^x (S_I^i)^{-y} = \exp\left(\frac{\Phi^e}{kT}\right) \quad (24)$$

und unter Einbeziehung der Gleichungen

$$\frac{\partial}{\partial x} \frac{\partial \Delta G}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial y} \frac{\partial \Delta G}{\partial t} = 0 \quad (25)$$

kann eine möglichst effektive Minimierung der freien Enthalpie erreicht werden [65]. Es gilt weiterhin

$$x + y + d = 1, \quad (26)$$

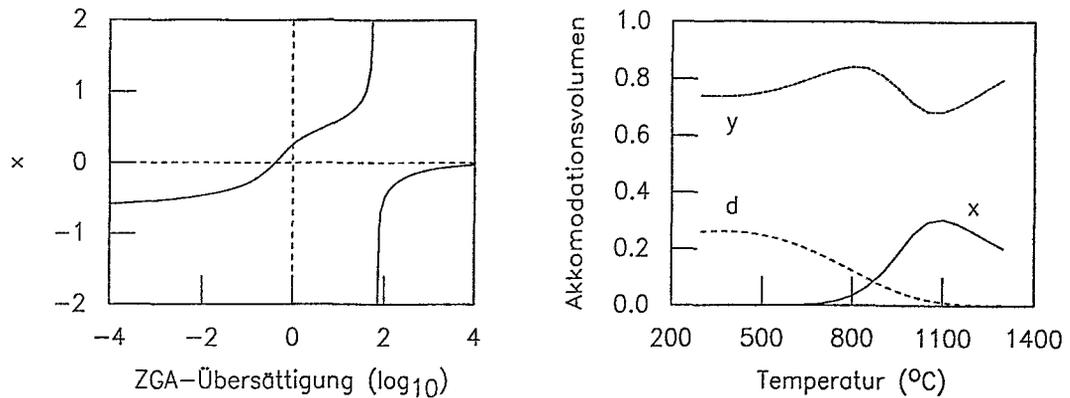


Abbildung 1: Links: Abhängigkeit des Leerstellenanteils (x) von der Eigenzwischengitteratom (ZGA)-Konzentration bei der Bereitstellung des Akkomodationsvolumens für $S_I^\infty S_V^\infty \neq 1$ bei 1000°C . Rechts: Änderung des Beitrags der Eigenzwischengitteratom (y)- und Leerstellenanteil (x) sowie der Volumenfehlanspassung (d) am Akkomodationsvolumen mit zunehmender Temperatur für $S_I^\infty S_V^\infty = 1$. Die Sauerstoffkonzentration beträgt in allen Abbildungen $C_O^\infty = 1 \times 10^{18} \text{O}^+ \text{cm}^{-3}$.

mit d dem Volumenanteil, der durch Spannungen entsteht. Aus den Gleichungen (23) - (26) lassen sich durch numerische Integration die Anteile für x , y und d für das Wachstum der Präzipitate bestimmen.

Bei der Auswertung des Gleichungssystems ist der Temperaturbereich oberhalb von 1000°C mit einer zügigen Rekombination der Defekte im Volumen des Si-Substrates – dies entspricht $S_I^\infty S_V^\infty = 1$ – von demjenigen unterhalb dieser Temperatur zu unterscheiden. Experimentelle Untersuchungen zeigen, daß bei den niedrigeren Temperaturen die Rekombination nicht mehr diffusionsbestimmt ist, sondern vielmehr von dem Auftreten einer Reaktionsbarriere abhängt [66, 67]. Leerstellen- und Eigenzwischengitteratomkonzentrationen stehen infolgedessen nicht mehr in einem Gleichgewicht und es gilt $S_I^\infty S_V^\infty \neq 1$. In Abbildung 1 (links) ist der Leerstellenanteil (x) bei der Bildung des Akkomodationsvolumens für den Fall $S_I^\infty S_V^\infty \neq 1$ gegen S_I^∞ aufgetragen – mit einem konstanten Wert für $S_V^\infty = 1$. Der Argumentation von Huh et al. [65] folgend – angenommen wird ein einzelnes Präzipitat in einem unendlich großen Si-Gitter –, lassen sich drei Bereiche für das Wechselwirken von Leerstellen, Eigenzwischengitteratomen und dem Sauerstoff beim Präzipitatwachstum unterscheiden:

- Für $S_I^\infty \ll 1$ wachsen Präzipitate unter Freisetzung von mehr als nur ei-

¹ Besteht keine Verwechslungsmöglichkeit, werden im Folgenden immer Si_I mit I und Si_V mit V bezeichnet.

nem Eigenzwischengitteratom (der Leerstellenanteil fällt damit unter $x < 1$ (Gl. (26) mit $d = 0$)), um deren großer Untersättigung entgegenzuwirken. Dies geschieht, obwohl gleichzeitig Leerstellen entstehen, die die Gesamtenergie des Systems anheben. Durch den höheren Energiebetrag, der durch den Ausgleich des Eigenzwischengitteratomdefizites frei wird, senkt dieser Weg dennoch die Gesamtenergie des Systems effektiv ab.

- In einem für S_I^∞ mittleren Bereich steigt x weiter an, bis es mit $S_I^\infty S_V^\infty > 1$ divergiert. Umgekehrt zu dem vorher Dargestellten, wachsen die Präzipitate nun unter der gleichzeitigen Aufnahme von Eigenzwischengitteratomen und Leerstellen. Der energetische Anstieg durch die Ausbildung einer Untersättigung an Leerstellen fällt so gering aus, daß gegenüber einem Zustand ohne diesen zusätzlichen Vorgang ein tieferliegendes Minimum erreicht wird.
- Bei den höchsten Werten für S_I^∞ kommt dem Abbau der Übersättigung eine vordringliche Bedeutung zu und resultiert in dem Sichaflösen der Präzipitate. Die Anhebung der Gesamtenergie des Systems durch den gelösten Sauerstoff wird durch den Energieverlust mehr als kompensiert, der mit dem Sinken der Eigenzwischengitteratomkonzentration einhergeht.

Die beschriebenen Vorgänge verlaufen ausschließlich an der Oberfläche der Präzipitate.

In Abbildung 1 (rechts) sind die Verläufe für den Anteil der Leerstellen, der Eigenzwischengitteratome und die Volumenfehlpassung in Abhängigkeit von der Temperatur aufgetragen. Aufgrund der Rekombination der Defekte im Volumen $S_I S_V = 1$ stellt sich das thermodynamische Gleichgewicht ein. Im Bereich geringer Temperaturen nimmt die Volumenfehlpassung ihren größten Wert an und kommt mit den Eigenzwischengitteratomen allein bei einem verschwindenden Leerstellenanteil für das Akkomodationsvolumen auf. Die Erzeugung des Akkomodationsvolumens wird im mittleren Temperaturbereich von allen Größen gemeinsam getragen. Das Absinken der Volumenfehlpassung gegen Null für hohe Temperaturen spiegelt den aus Experimenten bekannten weitgehend spannungsfreien Zustand der Präzipitate in der Matrix wieder (vgl. Abs. 5.2.3). Ein Vergleich mit den Kurven, die bei Vernachlässigung der Volumenfehlpassung entstehen, zeigt eine starke Korrelation zwischen der Volumenfehlpassung und dem Eigenzwischengitteratomanteil. Der Leerstellenanteil liefert erst bei höheren Temperaturen weitgehend unabhängig von der Verspannung eines Präzipitates einen Beitrag zum Akkomodationsvolumen.

Für den kritischen Radius r_c ergibt sich [68]:

$$\begin{aligned} r_c &= \frac{2\sigma\Omega}{EkT \ln(S_O^\infty)^2 (S_V^\infty)^x (S_I^\infty)^{-y} - 6\mu\delta\varepsilon\Omega} \\ E &= (1 + \delta - \varepsilon)^{-3} \end{aligned} \quad (27)$$

$$\delta = \left(\frac{V_p - V_m}{V_m} \right)^{1/3}$$

$$\varepsilon = \frac{\delta}{\left(1 + \frac{4\mu}{3K} \right)},$$

mit ε als Verspannung, K als Kompressibilität der Präzipitate und μ als Scherspannung der Si-Matrix. Um ein Präzipitat der Größe r zu erhalten, ist in die Matrix ein Präzipitat der Größe $(1 + \delta - \varepsilon)r$ einzusetzen. Die sich ergebende Volumenänderung dV ändert die Energie der Verspannungen um $(6\mu\delta\varepsilon)dV$. Die Verwendung dieser Formel ist durch die nur sehr ungenügenden Möglichkeiten zur Messung von Punktdefektkonzentrationen eingeschränkt (vgl. Abs. 2.3.3.1). Eine ausreichend hohe Übersättigung an Eigenzwischengitteratomen ($S_T^\infty \rightarrow (S_O^\infty)^2$) bewirkt, daß das Präzipitatwachstum ($r_c \rightarrow \infty$) vollständig zum Erliegen kommt.

Die sich während des Wachstums der Präzipitate aufbauende Überkonzentration an Eigenzwischengitteratomen verzögert rückwirkend den weiteren Einbau von Sauerstoff. Die auftretenden Konzentrationsgefälle für die Eigenzwischengitteratome erfahren durch deren hohe Diffusionsgeschwindigkeit (vgl. Anhang G) einen schnellen Ausgleich. Im Einklang mit der geringeren Diffusionskonstanten und den Überlegungen zu Gleichung (22) wird das Präzipitatwachstum in der Wachstumsphase vom Konzentrationsfeld des Sauerstoffes bestimmt [64, 69]. In einem aus zwei unterschiedlich großen Präzipitaten bestehenden System wird der Ausstoß an Eigenzwischengitteratomen, durch das Wachsen des größeren Präzipitates, das Wachstum des Kleineren zunächst einschränken und später dessen Auflösung einleiten [70]. Durch die hohe Diffusionsgeschwindigkeit der Eigenzwischengitteratome wird das Wechselwirken der Präzipitate zuerst durch diese und nicht durch den diffundierenden Sauerstoff vermittelt. Der sich einstellende Effekt verfügt über eine Erscheinung, die dem des Reifens ähnlich ist.

Die Morphologie der Präzipitate erschließt sich nur bei einer detaillierten Betrachtung der auf die Präzipitate einwirkenden Einflüsse, welche im thermodynamischen Potential berücksichtigt sind [71]. Mit zunehmender Verspannung ändert sich die Gestalt der Präzipitate und nimmt nacheinander eine sphärische, zylindrische und plattenartige Form an. Weiterhin stellt eine Variation der Volumenenergie die sphärische Gestalt als eine energetisch besonders günstige Form heraus. Beim Einwirken eines elastischen Potentials wird aber gerade für die sphärischen Form die meiste Energie benötigt. Die beiden Beiträge stehen in einem Festkörper in steter Konkurrenz. Der Beitrag der Grenzflächenenergie fällt sehr viel kleiner aus, wirkt durch seine Anisotropie aber nachhaltig auf die Orientierung der Präzipitate in der Matrix und die Ausrichtung der Grenzflächen ein.

Bei 650°C - 950°C führen Spannungs- und Oberflächenenergie [72] zu Präzipitaten mit einer scheibenförmige Gestalt und amorpher Struktur, die durch Versetzungsschleifen und Stapelfehler im umgebenden Kristall stabilisiert werden. Die Verspannungen der scheibenförmigen Präzipitate können neben dem Ausstoß an

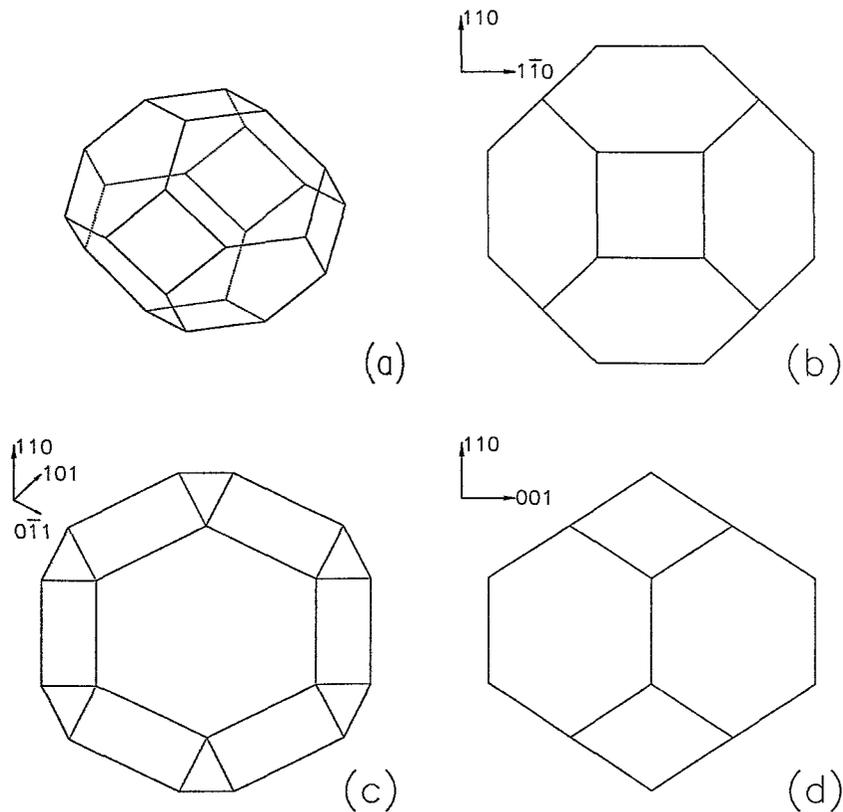


Abbildung 2: a.) Form von SiO_2 -Präzipitaten bei hoher Temperatur und in Projektion entlang der b.) $[001]$, c.) $[\bar{1}11]$ und d.) $[\bar{1}10]$ -Richtung.

Eigenzwischengitteratomen z.B. auch durch einen Übergang in eine facettierte Form bei höheren Temperaturen vermindert werden. Facettierte, amorphe Präzipitate entstehen bei $950^\circ\text{C} - 1200^\circ\text{C}$ (Abb. 2). Diese gehen bei einem weiteren Temperaturanstieg in günstiger zu beschreibende sphärische Teilchen über.

2.3.2 Implantation

Mittels der Ionenimplantation werden Ionen in einem Festkörper deponiert. Die Ionen treten während dieses Vorganges mit den Atomen der Festkörpermatrix in Wechselwirkung. Es wird angenommen, daß der Energieaustausch in Abhängigkeit von der Projektilenergie auf zwei voneinander unabhängige Arten erfolgt, nämlich über elastische Kernstöße und unelastische elektronische Wechselwirkungen. Bei der elektronischen Wechselwirkung handelt es sich um den Energietransport vom bewegten Ion auf die Elektronenhülle der Targetatome, woraus sich nur geringe Ablenkungen des Ions ergeben. Bei Kernstößen wird kinetische

Energie auf das gestoßene Atom als Ganzes übertragen, woraus Ablenkungen der Geschößteilchen mit großen Winkeln resultieren. Der Energieverlust führt zur Abbremsung der Ionen.

Die Bildung von Defekten und Störungen im Gitter erfolgt durch den Energieübertrag von Projektil- zum Targetatom. Sobald dieser über der Verlagerungsenergie liegt. Die Bahn der einzelnen Gitteratome und das sich ergebende Gesamtbild der Gitterstörungen hängt von den charakteristischen Parametern der Stoßvorgänge ab. Die endgültigen Lagen der eingeschossenen Ionen bilden, da diese nicht alle den gleichen Weg im Target zurücklegen, ein Konzentrationsprofil, das näherungsweise mit einer gaußförmigen Verteilung beschrieben werden kann. Für das hochenergetische Ion (z.B. 2 MeV O^+ [28]) ist die Bahn im wesentlichen eine Gerade in der ursprünglichen Bewegungsrichtung, da hauptsächlich elektronische Abbremsung vorliegt, verbunden mit geringer Streuung am Ende auf Grund von Kernstößen. Bei niedrigeren Energien (z.B. 50 keV O^+ [73]) folgt das Ion einer zufälligen Bahn (random walk) mit vielen starken Ablenkungen, wobei der Bahnabstand zwischen den Stößen mit fallender Energie abnimmt. Es kann die gesamte Weglänge R definiert werden, die das Ion zurücklegt und die auf das Lot der Substratoberfläche projizierte Weglänge R_p bzw. die Weglänge R_{\perp} senkrecht zum Lot. Es läßt sich zeigen, daß nur bei einem geringen Anteil gestoßener Atome die übertragene Energie für eine Verlagerung ausreicht. Folglich bleibt ein großer Teil der gestoßenen Atome an ihren Gitterplätzen gebunden, jedoch mit einer erhöhten kinetischen Energie. Aus thermodynamischer Sicht ist dies gleichbedeutend mit einem lokalen Ansteigen der Temperatur, so daß zusätzlich zur Kaskade versetzter Atome ein entsprechender thermisch angeregter Bereich (thermal spike) existiert.

Bei hohen Dosen im Bereich von 10^{18} Ionen/cm² und typischen Implantationsenergien von 200 keV treten im Mittel 50 Verlagerungen je implantiertem Ion (dpa) auf [74]. Für eine Rekristallisation des geschädigten Gitters ist es notwendig, die Matrix schon während der Implantation zu heizen. Ungewöhnlich ist die Ausbildung eines Leerstellenbandes nahe der Oberfläche, das gemeinsam mit einer Verspannung der Matrix in diesem Bereich auftritt. Diese Spannungen werden als Ursache für die Entstehung von Defekten angesehen [75], die sich von der Oberfläche aus bis zu dem implantierten Gebiet erstrecken (threading dislocations). Spannungen dieser Art lassen sich für Dosen unterhalb von 0.8×10^{18} Ionen/cm² durch eine Temperung nach der Implantation bei 900°C vermeiden [74, 75]. Es bilden sich dabei blasenförmige Agglomerate aus Leerstellen, die für einen Abbau der Spannungen in dem Gitter sorgen. Für Dosen oberhalb dieses Schwellwertes sind in diesem Bereich ausgedehnte Defekte zu beobachten, die als Folge einer Präzipitation der Punktdefekte entstanden sind. Diese lassen sich auch bei sehr hohen Temperaturen nur noch in einem begrenzten Umfang durch Ausheilung beseitigen.

2.3.3 Implantiertes Si-O System

Zur Präzipitation in implantierten Systemen bestehen zur Zeit keine Modelle, die mit denjenigen der Abschnitte 2.1.1 - 2.1.3 vergleichbar sind. Das Ineinandergreifen und der zeitliche Verlauf der verschiedenen Präzipitationsstadien, unter Berücksichtigung der Defektprofile in Systemen mit inhomogener Materialverteilung, wird in den folgenden Abschnitten dargestellt. Dabei stützt sich die Beschreibung auf verschiedene Literaturstellen und gibt eine Übersicht über den aktuellen Erkenntnisstand.

2.3.3.1 Defektprofile Die Defektprofile, die sich während der Implantations- und Ausheilphase ausbilden, werden aufgrund der unterschiedlich ablaufenden Reaktionen getrennt voneinander betrachtet.

TRIM-Simulationen [76] zur Implantation sagen für den Bereich des höchsten Energieverlustes der implantierten Ionen die Bildung eines Leerstellenbandes voraus, was sich indirekt über Verzerrungen der Si-Matrix experimentell nachweisen läßt [77]. Das Leerstellenband verliert mit der schon bei Raumtemperatur nicht verschwindenden Diffusivität für Leerstellen seine Form [77, 78]. Die Ausläufer des Profils reichen somit von der Oberfläche bis in das Substrat hinein. Unabhängig davon bleiben die in dem Defektmaximum bevorzugt ausgebildeten ausgedehnten Defekte erhalten. Mit einem Ansteigen der Diffusivität für Leerstellen im Temperaturbereich über 500°C wird dieser Prozeß immer mehr durch die Bildung von Keimen für Leerstellencluster verdrängt [74, 77].

Während der Implantation und dem ersten Wachstum der Präzipitate baut sich in Oberflächennähe eine Überkonzentration an Eigenzwischengitteratomen auf. Die implantationsgeschädigte Substratoberfläche stellt durch die dort stattfindende Rekristallisation eine Senke für Eigenzwischengitteratome dar [79]. Dies und eine fehlende Rekombination im Volumen (vgl. Abs. 2.3.1) läßt ein Ungleichgewicht in den Defektkonzentrationen entstehen [80]. Ein weiterer thermisch induzierter Prozeß führt wiederum im Temperaturbereich oberhalb 500°C zu einem verstärkten Abtrag des Siliziums an der Substratoberfläche [81]. Dies bedingt eine weitere Verbreiterung der inhomogenen Defekt- und Sauerstoffprofile.

Wird für die Ausheilungsphase angenommen, daß sich die Konzentrationen für die Defekte dem thermischen Gleichgewicht genähert haben (vgl. Abs. 3.6.1), erfolgt die Erzeugung von Eigenzwischengitteratomen bzw. Leerstellen nur noch durch das Wachstum bzw. das Sichauflösen der reifenden Präzipitate. Eine Überkonzentration von Eigenzwischengitteratomen (Leerstellen) bedingt, unter Einhaltung von $S_I^\infty S_V^\infty = 1$ (vgl. Abs. 2.3.1), eine Unterkonzentration an Leerstellen (Eigenzwischengitteratomen). Die zur Oberfläche diffundierenden Eigenzwischengitteratome erfahren das dort befindliche Schutzoxid (vgl. Abs. 3.6.1) als eine Barriere. Eine verminderte Rekristallisation der Eigenzwischengitteratome an der SiO₂/Si-Grenzschicht wurde ebenfalls beobachtet [82]. Dies führt zu einer Anreicherung der Eigenzwischengitteratome in dem oberflächennahen Bereich.

Neben dem beschriebenen Abbau der Defektüberkonzentrationen an der Präzipitatoroberfläche (vgl. Abs. 2.3.1) und der Rekombination im Volumen stehen noch die Rekombination mit den Leerstellen zur Verfügung, die bei dem Auflösen von Präzipitaten entstehen, und die Ausbildung ausgedehnter Defekte [65]. Insgesamt ist während der Ausheilung von einer weitgehend gleichmäßigen Tiefenverteilung der Defekte, zumindest im oberflächennahen Bereich, auszugehen.

2.3.3.2 Keimbildung In einem implantierten Substrat sind für zu bildende und bereits gebildete Keime verschiedene Ursprünge zu unterscheiden. Zunächst sind durch die thermische Vorgeschichte Zahl und Größe [83] von bestehenden Keimen vorgegeben. Die Keime liegen gleichförmig verteilt in der Matrix vor, ausgenommen lediglich ein verarmter, oberflächennaher Bereich, der wenige μm in das Substrat hineinreicht [84]. Die Zahl der mit der Implantation neu entstehenden Keime im Implantationsbereich überwiegt diejenige der bereits bestehenden Keime beträchtlich. Dies ist an einem nicht mehr gleichmäßigen Dichteprofil der Keime über der Tiefe zu erkennen. Vielmehr orientiert sich die Verteilung an dem durch die Implantation erzeugten Sauerstoff- und Defektprofil (vgl. Abs. 2.3.1, 2.3.3.1). Da der Keimbildungsprozeß in CZ-Substraten nicht endgültig geklärt ist [84], wird für die Situation der implantierten Proben angenommen, daß ausgedehnte Defekte die Vorläufer für sich später heterogen entwickelnde Keime bilden. Eine Erhöhung der Implantationstemperatur (vgl. Abs. 4.2.4.1) führt zu einer steigenden Diffusivität des Sauerstoffes [85] und einem Rückgang der Dichte an ausgedehnten Defekten (vgl. Abs. 2.3.4). Unter diesen Bedingungen ist ein Übergang von einer heterogenen zu einer homogenen Keimbildung nicht ausgeschlossen (vgl. Abs. 5.1.3).

Die hohen Übersättigungen an Sauerstoff lassen Keimbildung und Wachstum fließend ineinander übergehen [15, 18]. Dieser Vorgang ist durch das inhomogene Materialprofil mit der Tiefe unterschiedlich stark ausgeprägt. Mit einer angenommenen homogenen Keimbildung werden die Keime in Abhängigkeit von der Sauerstoffübersättigung erzeugt, wobei die Defektkonzentration nahe am Gleichgewichtswert liegen soll. Die Implantationsdauer gibt dabei den Zeitraum vor, in dem die Keimbildung stattfindet. Daraus resultiert ein breites Präzipitattiefenprofil und in den parallel zur Substratoberfläche liegenden Tiefenbereichen eine breite Radienverteilung. Im Fall einer heterogenen Keimbildung soll eine erhöhte Konzentration an Eigenzwischengitteratomen angenommen werden. Keime entstehen wiederum kontinuierlich, stehen nun aber direkt in Verbindung mit der Entwicklung des Defektprofils. Durch die Implantation und das Wachstum der Keime erhöht sich die Eigenzwischengitteratomkonzentration und läßt damit den kritische Radius anwachsen. Infolgedessen stagniert das Wachstum der kleinsten Keime bzw. führt zu deren Auflösung. Besonders davon betroffen sind die Bereiche des Implantationsprofils, die am Rand liegen und nur eine geringe Konzentration an Sauerstoff aufweisen. Insgesamt fällt die minimale Größe eines Keimes mit

dem von der Eigenzwischengitteratomkonzentration abhängigen kritischen Radius zusammen. Die Radiusverteilung in einem parallel zur Oberfläche liegenden Tiefenbereich wird daraus folgend bei einer heterogenen Keimbildung/Wachstum eine andere Form annehmen als bei einer homogenen Keimbildung.

In Gebieten mit erhöhter Leerstellenkonzentration werden andererseits Keimbildungs- und Wachstumsraten einen größeren Wert einnehmen [86]. Welchen Einfluß diese Vorgänge auf die Anfangsbedingungen zur Reifungsphase haben, wird in Abschnitt 5.1 besprochen.

2.3.3.3 Wachstum Die Wachstumsphase der Präzipitate verläuft überwiegend während des Aufheizens der Proben zur angestrebten Ausheiltemperatur (vgl. Abs. 2.3.3.4, 3.6.1). Im Gegensatz zur Keimbildung und zum Reifen ändern sich somit die Umgebungsbedingungen kontinuierlich und die Aufheizrate gewinnt an Bedeutung. Das Zusammenwirken der verschiedenen Größen wird in [87, 88] mittels eines Vergleiches zwischen konventionellen Ofen- und Rapid Thermal Annealing (RTA)-Ausheilungen an CZ-Material dargestellt. SIMOX-Substrate, die eine Zwischenausheilung mit RTA durchlaufen, verfügen über eine nicht erwünschte, hohe Konzentration an ausgedehnten Defekten [89].

Niedrige Aufheizraten erlauben es, das System in einem Zustand nahe am thermodynamischen Gleichgewicht zu halten (vgl. Abs. 2.3.1, 3.6.1). Die Überkonzentrationen der Defekte werden bis zum Erreichen der Ausheiltemperatur an die Gleichgewichtswerte für Frenkelpaare herangeführt. Damit erhalten auch kleinere Keime in den äußeren Bereichen der Präzipitatverteilungen mit einem niedrigen Sauerstoffanteil die Möglichkeit zum Wachstum. Es stellt sich weiterhin eine breite Größenverteilung durch die zu unterschiedlichen Zeiten und an unterschiedlichen Orten gebildeten Keime ein. Eine geringe Aufheizrate (vgl. Abs. 3.6.1) läßt das Substrat für einen längeren Zeitraum im Temperaturbereich um 900°C verweilen. Dies begünstigt das Wachstum der Leerstellenblasen, deren Keime bei höheren Implantationstemperaturen gebildet werden. Der sich in diesen Blasen sammelnde Sauerstoff wird mit Erreichen höherer Temperaturen ebenso wie die Leerstellen wieder freigegeben ([77], vgl. Abs. 2.3.3.1). Sauerstoff und Leerstellen unterstützen nun das Wachstum der bereits bestehenden Präzipitate. Bei den höheren Temperaturen wird die Bildung ausgedehnter Defekte wirksam verhindert und die Entstehung eines dem Implantationsmaximum vorgelagerten weiteren Präzipitatbandes unterbunden.

Eine hohe Aufheizrate hingegen setzt das System nahezu unvermittelt den Bedingungen der Hochtemperaturbehandlung aus. Der sprunghaft ansteigende Wert für den kritischen Radius zwingt nun viele Keime, die bei kleineren Raten noch die Möglichkeit zum Wachstum hätten, dazu, sich rasch aufzulösen. Ein kleiner mittlerer Radius und eine schmale Radiusverteilung sind das Resultat am Ende der Wachstumsphase [89]. Die Präzipitatbänder sollten infolgedessen ein Profil von geringerer Breite und höherer Dichte aufweisen als bei der Verwendung

von geringeren Aufheizraten.

2.3.3.4 Übergang Wachstum/Reifen Der Übergangsbereich, in dem die Wachstumsphase ihren Abschluß findet und das Reifen beginnt, ist für Temperaturen größer als 1100°C zu erwarten. Temperaturen in diesem Bereich erlauben dem auf Zwischengitterplätzen befindlichen Sauerstoff ungehindert zu diffundieren [84]. Dieser Temperaturbereich wird auch bevorzugt für das Wachstum von Keimen bei Präzipitationsuntersuchungen in CZ-Material verwendet. Weiterhin sind anders als bei N_2 -implantierten Proben kaum an Stickstoff verarmte Bereiche rund um die Präzipitate zu erkennen [90]. Aus diesen Bereichen stammt das zum Wachstum benötigte Material. Die durch die Implantation erzeugten Defekte modifizieren das Diffusionsverhalten des Sauerstoffes und verlagern den Beginn des Wachstum bzw. Reifens zu niedrigeren Temperaturen.

Geringe Aufheizraten lassen das Reifen schon vor dem eigentlichen Erreichen der Ausheiltemperatur beginnen. Daß dennoch Ausheilzeit und Reifungsdauer gleichzusetzen sind, liegt an der bei niedrigeren Ausheiltemperaturen nur langsam voranschreitenden Reifung (vgl. Abs. 2.3.4).

2.3.3.5 Materialakkumulation Das Sauerstoff-Konzentrationsniveau liegt im implantierten Gebiet sehr viel höher als die thermische Gleichgewichtskonzentration. Die an den Rändern der Verteilung in Lösung gehenden Präzipitate stabilisieren die Präzipitate im Inneren und verzögern dadurch deren Auflösung [91]. Übersteigt der Volumenanteil im Inneren der Verteilung ein vorgegebenes Maß und genügt die Form der Verteilung verschiedenen Anforderungen ([23], vgl. Abs. 5.2.1), läuft die Verteilung nicht mehr auseinander, sondern verjüngt sich. Die inhomogene Materialverteilung bleibt immer nur für einen bestimmten Zeitraum erhalten, solange keine vergrabene Schicht entsteht. Weiterhin ist die Bildung meist zweier Präzipitabänder zu beobachten. Es liegen mehrere Modellsätze vor [26, 92], die den Ursprung dieser Bänder zu beschreiben versuchen.

Durch Simulation [52] läßt sich eine Strukturbildung nachbilden, die sich allein durch das Reifen in einem System mit inhomogener Materialverteilung herausbildet (Selbstorganisation). Betrachtet wird die Entwicklung der Strukturbildung, beginnend an der Grenzfläche (Abb. 3a), die den Bereich der als gleichgroß angenommenen Präzipitate von dem unbesetzten Bereich trennt. Parallel dazu wird die Änderungen der Materialkonzentration verfolgt – die Gleichgewichtskonzentration verfügt zur einen Seite der Grenzfläche hin über einen der Größe der Präzipitate angemessenen und konstanten Wert, zur anderen Seite fällt der Wert auf S_{∞}^0 ab. Das Auflösen der äußersten Präzipitate aufgrund des bestehenden Konzentrationsgradienten führt zunächst zu einem lokalen Anstieg der Konzentration (Abb. 3b). Zu dem Abbau dieser Überkonzentration diffundiert das Material nicht nur in immer größere Tiefen, sondern auch in die Präzipitatschicht hinein. Die weiter in der Schicht befindlichen Präzipitate fangen unter Aufnahme

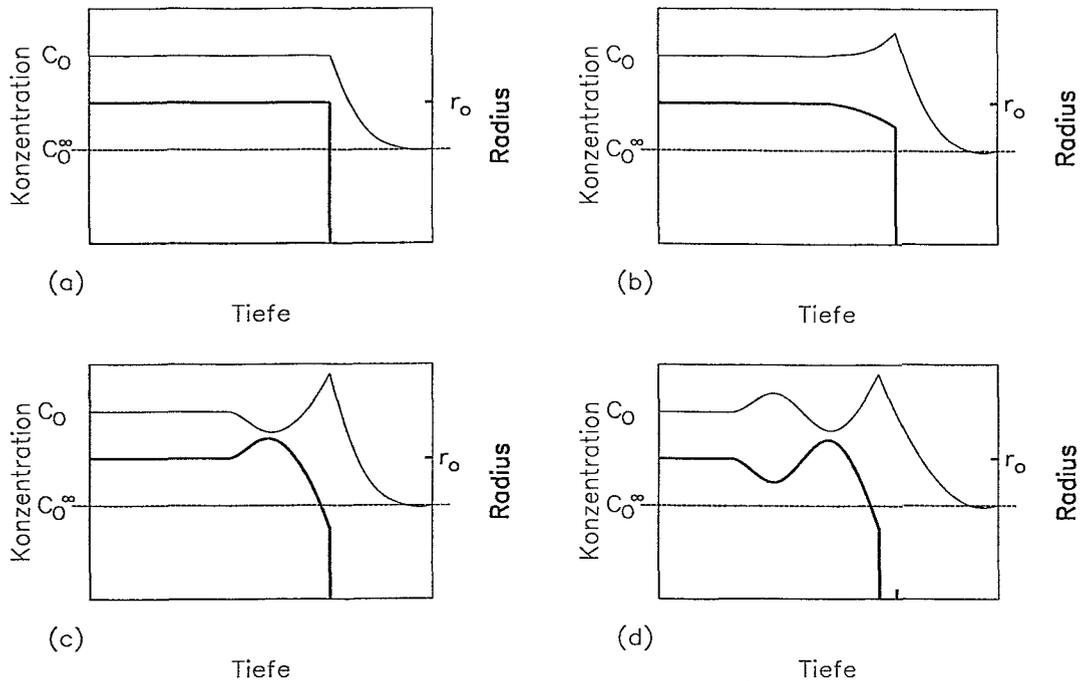


Abbildung 3: Verlauf des Selbstorganisationsprozesses wie er von Stoemenos [26] vorgeschlagen und mit den Simulationen von Reiß [52] bestätigt wurde (nähere Erläuterungen siehe Text).

des Materials an zu wachsen (Abb. 3c). In der Folge binden diese Präzipitate aber auch immer mehr Material, das aus tieferen Bereichen der Schicht stammt. Es entsteht in der Schicht analog zum Beginn des Umverteilungsprozesses ein an Material verarmter Bereich (Abb. 3d), der Ausgangspunkt einer erneuten Materialakkumulation ist [52]. Die Ausführungen lassen sich in einfacher Weise auf z.B. rechteckige Tiefenprofile erweitern (vgl. Abs. 5.2.1). Es gilt: je mehr das Radienprofil eine Rechteckform annimmt – z.B. das Maximum einer Gaußverteilung verflacht –, werden Strukturbildungen, die als Folge des Reifens auftreten, immer wahrscheinlicher.

2.3.4 Vergrabene SiO₂-Schichten

Der Volumenanteil des Sauerstoffs liegt in SIMOX-Substraten um 3-4 Größenordnungen über dem des CZ-Materials. Die Implantation hoher Dosen an Sauerstoff bewirkt zusammen mit der Bildung und dem Wachstum der Keime ein hohe De-

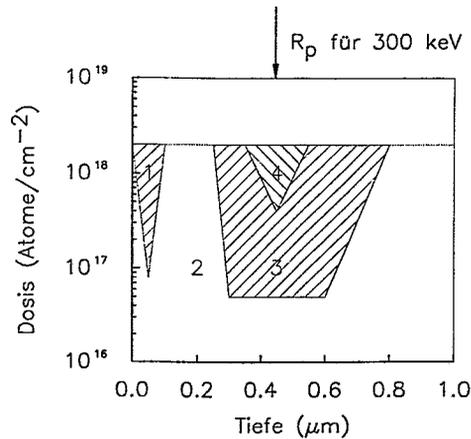


Abbildung 4: In implantierten Substraten werden folgende Bereiche gefunden: (1) einkristallines Si mit Defekten, (2) einkristallines Si mit geringer Defektdichte, (3) einkristallines Si mit Defekten, (4) sauerstoffreiche amorphe Schicht mit unoxidiertem Si.

fektdichte. Nach den Präzipitationsmodellen wird für eine hohe Übersättigung an Sauerstoff ein Ansteigen der Präzipitatzwachstumsrate und der Präzipitatzdichte vorhergesagt. Es kann für Präzipitate kein unabhängiges Wachstum mehr angenommen werden, wie es für CZ-Material gefunden und durch das Modell von Ham [93] beschrieben wird. Mit den Wechselwirkungen der in hoher Dichte vorliegenden Präzipitate setzt schon früh das Reifen ein (vgl. Abs. 2.3.3.4). Diesem schließt sich eine Koaleszenzphase an. Die Präzipitate verschmelzen miteinander zu großen Clustern und beginnen eine geschlossene homogene Schicht zu bilden.

Die günstigsten Wachstumsbedingungen für die Präzipitate bieten die Tiefenbereiche mit den höchsten Übersättigungen an Sauerstoff und/oder hoher Leerstellendichte. Die dort befindlichen Präzipitate wachsen schnell und binden in einem hohen Maß den Sauerstoff der Umgebung an sich. Dieser Materialfluß, der zur Schichtmitte hin gerichtet ist, führt zum Zusammenziehen des Profils und zu steileren Flanken.

Für das Reifen wichtige Größen, wie z.B. Präzipitatgrößen- und Defektverteilung, werden mit der Wahl der Implantations- und Temperparameter festgelegt. Mit diesen Prozeßparametern sind die im folgenden zusammengestellten phänomenologischen Vorgänge verknüpft:

- Dosis

In Abhängigkeit von der Dosis sind im implantierten Substrat verschiedene Regionen entsprechend Abbildung 4 zu unterscheiden. Um schon während der Implantation eine geschlossene vergrabene Schicht zu erzeugen, sind Dosen um $1.8 \times 10^{18} \text{O}^+/\text{cm}^2$ (bei 200 keV) notwendig. Unter der Ausnut-

zung des Aufsteilungseffektes durch das Reifen und dem Koaleszieren in der Temperphase ist eine geschlossene Schicht auch schon bei Implantation niedrigerer Dosen um $0.8 \times 10^{18} \text{O}^+/\text{cm}^2$ bei 200 keV möglich.

- Substrattemperatur

Für Substrattemperaturen kleiner 300°C entsteht während der Implantation amorphes Si und führt in dem nachfolgenden Ausheilschritt zur Bildung von Zwillingdefekten oder polykristallinem Si. Höhere Substrattemperaturen ($\geq 400^\circ\text{C}$) verhindern die Amorphisierung des Si und die Leerstellen, die zwischen der Oberfläche und dem Maximum des Implantationsprofil entstehen (Abb. 4, Bereich 2), diffundieren bis in das sauerstoffreiche Gebiet, das bei 200 keV ca. 400 nm tief unter der Substratoberfläche liegt. Dort stellen die Leerstellen das für die Präzipitation des Sauerstoffes benötigte Akkommodationsvolumen zur Verfügung. Dies führt dazu, daß der implantierte Sauerstoff im Vergleich zum Sauerstoff im CZ-Material ($\sim 750^\circ\text{C}$) schon bei niedrigeren Temperaturen zu präzipitieren beginnt.

- Energie

Die projizierte Ionenreichweite R_p , die von der Energie der Ionen abhängt, steht in Beziehung mit der Tiefe, in der sich die vergrabene Schicht ausbildet. Die longitudinale Standardabweichung ΔR_p zu R_p wiederum bestimmt die Dicke der Schicht und damit auch die Menge an Sauerstoff, die für eine geschlossene Schicht zu implantieren ist [94]. Die Implantation nur geringer Dosen bei niedrigen Energien verkürzt die Implantationszeit und führt zu vergrabenen Schichten mit einer geringen Welligkeit in den Grenzflächen [95]. Die bei niedrigen Energien vorwiegend durch Kernstöße abgebremsten Ionen hinterlassen jedoch ein defektreiches Gebiet, das sich mitunter von der Oberfläche bis hin zur Grenzschicht der vergrabenen Schicht erstreckt und erst mit der Temperung aufgelöst werden kann.

- Ausheiltemperatur/Dauer

Die Güte der SIMOX-Strukturen (geringe Welligkeit der Grenzflächen und homogener Aufbau der vergrabenen Schicht) steigt mit zunehmender Ausheiltemperatur [96]. Bei gleicher Ausheildauer weisen die Proben mit höherer Ausheiltemperatur eine fortgeschrittenere Reifung auf. Es wird angenommen, daß den Präzipitaten bei den höchsten Temperaturen ein spannungsfreies Reifen in der Si-Matrix möglich ist. Der geschwindigkeitsbestimmende Prozeß für die Reifung liegt bei der Erzeugungsrate von Frenkelpaaren, die eine arrheniusförmige Abhängigkeit von der Temperatur besitzt. So sind die Temperergebnisse nach Temperaturbehandlungen bei hohen Temperaturen und kurzen Zeiten mit denjenigen bei niedrigeren Temperaturen und langen Zeiten äquivalent.

- Aufheiz-und Abkühlraten

Eine sehr hohe Aufheizrate, wie sie in RTA-Anlagen erzielt wird (z.B. von Raumtemperatur auf 1300°C in 2 s [89]), versetzen das Si-O-System nach der Implantation sofort in den Zustand der Ausheilung. Die Folgen sind eine sehr hohe Dichte an Präzipitaten mit einer geringen mittleren Größe und eine hohen Dichte an ausgedehnten Defekten [75, 89]. Die Temperung im konventionellen Ofen, die vergleichsweise zu RTA nur geringe Aufheizraten zulassen (mehrere Minuten bis Stunden), weisen hingegen nur eine geringe Defektdichte auf. Die Präzipitatdichte ist im Vergleich zu derjenigen nach der Keimbildung geringer und die mittlere Präzipitatgröße größer, denn das Reifen setzt schon vor dem Erreichen der eigentlichen Ausheiltemperatur ein.

Eine hohe Qualität der SIMOX-Substrate wird mit den Verfahren erreicht, die über Mehrfachimplantationen [97, 98] bzw. Mehrstufentemperaturen [77] die Präzipitatverteilung modifizieren. Die gesamte in das Silizium zu implantierende Dosis an Sauerstoff bleibt bei den Mehrfachimplantationen unverändert. Jedoch werden die Dosen für den einzelnen Implantationsschritt so gewählt, daß nach einer Zwischentemperatur eine möglichst geringe Defektdichte und Präzipitate mit geringer Größe vorliegen. Bei verschiedenen Temperaturen sind die Vorgänge der Defekterzeugung und -vernichtung sowie die des Reifens aufgrund ihrer thermischen Natur unterschiedlich stark ausgeprägt. Können z.B. bei 900°C Spannungen und Defekte für niedrige Implantationsdosen weitgehend abgebaut werden [75, 77], so ist die Temperatur noch zu niedrig für ein nennenswertes Reifen der Präzipitate. Die sich insgesamt ergebende Trennung der defektbildenden und der Wachstums- und Reifungsprozesse schlägt sich unmittelbar in den morphologischen Eigenschaften der SIMOX-Substrate [74] nieder. Mit einer mehrfachen Wiederholung des Implantations- und Ausheilzyklus wurde erstmals in [99] die Herstellung einer quasi-defektfreien Si-Deckschicht beschrieben.

3 Experimentelle Technik

Die zur Untersuchung von SIMOX-Substraten am häufigsten verwendeten Analyse- und Charakterisierungsverfahren sind Transmissionselektronen-Mikroskopie (TEM), Rasterelektronen-Mikroskopie (Scanning Electron Microscopy, SEM), Sekundärionen-Massenspektroskopie (SIMS), Rutherford-Rückstreu-Spektroskopie (RBS) und Augerelektronen-Spektroskopie (AES). Mit TEM-Untersuchungen lassen sich durch direkte Abbildung Informationen über die Morphologie einzelner Präzipitate gewinnen, sowie Aussagen treffen über die Größe bzw. Dichte, gemittelt über die Gesamtheit aller Präzipitate und das Auftreten ausgedehnter Defekte. Zur Bestimmung des Konzentrationstiefenprofils des Sauerstoffes in Si-Substraten werden überwiegend SIMS, RBS oder AES verwendet. Aufgrund der Meßbedingungen (Strahlfleck bzw. Analysebereich) integrieren diese Methoden Informationen über einen Flächenbereich [100]. Diese Größen können nur indirekt Auskunft über das Reifungsverhalten der Präzipitate geben, da mit ihnen keine Rückschlüsse auf z.B. Radienverteilungen möglich sind (vgl. Abs. 2.1.3). Zusätzliche Informationen über die Qualität der Si-Deckschicht und die chemische Bindung des Sauerstoffes in der Si-Matrix sind über Untersuchungen mit RBS / Gitterführung bzw. AES (Analyse der Lage und Form der Augerlinien) zu gewinnen. Mit dem SEM werden über das Anätzen von Defekten und Präzipitaten deren Dichten bestimmt.

Die hier vorliegenden Untersuchungen konzentrieren sich auf einen unterstöchiometrischen Bereich, d.h. Implantationsdosen bis $1 \times 10^{17} \text{O}^+ \text{cm}^{-2}$ anstatt der für eine Schichtbildung notwendigen Dosis von mindestens $7 \times 10^{17} \text{O}^+ \text{cm}^{-2}$ bei Implantationsenergien von 300 keV. Für den Vergleich mit den Ergebnissen theoretischer Modellierungen eignen sich besonders Meßgrößen, die Präzipitattendichte und Präzipitatradien erfassen. Schon mittlere Präzipitatanzahl und mittlerer Präzipitatradius können jedoch mittels Neutronen-Streuungen [45] und Mikro-Infrarot-Spektroskopie [101] nicht bestimmt werden, da die zur Verfügung stehenden Streuvolumina zu gering bemessen sind. Die Untersuchungen stützen sich so auf direkt abbildende Verfahren wie TEM (vgl. Abs. 3.1) und SEM (vgl. Abs. 3.2). Mit dem SEM lassen sich nicht nur die Radienverteilungen bestimmen, sondern auch die Anordnung der Präzipitate im Substrat (vgl. Abs. 3.3.3).

Besonders die SEM-Analyse erfordert einen hohen Aufwand bezüglich der präparativen Techniken und der Auswertung. Grundlegende Überlegungen werden in den Abschnitten 3.2.1 und 3.3 dargestellt und die Anpassung an das zu betrachtende Materialsystem in Abschnitt 4.1.3 vorgenommen. Die hierbei erarbeitete Methodik stützt sich auf das Zusammenwirken von Verfahren aus so unterschiedlichen Bereichen wie der Photogrammetrie, Metallographie, Bilderkennung und der geometrischen Statistik. Insgesamt ergibt sich damit eine neuartige Analysemethodik für die Untersuchung von implantierten Systemen. Die getroffenen elementaren Annahmen ermöglichen eine einfache Übertragung der Methode auf andere Systeme mit inhomogener Materialverteilung.

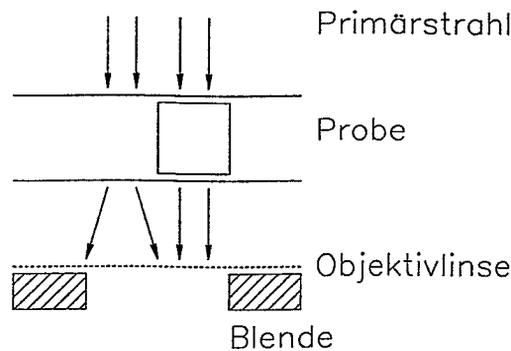


Abbildung 5: Entstehung des Streukontrastes in einem TEM, dargestellt an einer amorphen Probe mit einem Hohlraum.

Der letzte Abschnitt 3.6.1 geht auf die allgemeinen Implantations- und Ausheilbedingungen der Reifungsexperimente ein.

3.1 Transmissionselektronen-Mikroskopie

Aus der Wechselwirkung Elektronensonde-Objekt entsteht eine Vielfalt von Signalen, die spezifische Informationen von oberflächennahen Schichten oder aus dem Volumen eines Festkörpers liefern. Bei der Transmission von Elektronen mit einer Energie im Bereich 200 keV - 400 keV durch Materie können die elastisch gestreuten Elektronen genutzt werden, um Strukturen und strukturelle Defekte mit hoher räumlicher Auflösung abzubilden und zu analysieren [103].

Ähnlich wie bei Lichtmikroskopen wird bei Transmissionselektronen-Mikroskopen ein Linsensystem benutzt, um ein vergrößertes Abbild eines Objektes zu erzeugen. Der kleinste auflösbare Abstand zwischen zwei Objektpunkten, r_{\min} , ist theoretisch von der Größenordnung der Wellenlänge der verwendeten Strahlung abhängig. Für beschleunigte Elektronen können daher, wegen der im Vergleich zu Lichtwellenlängen viel kürzeren Wellenlänge λ , wesentlich kleinere Objektabstände aufgelöst werden (einige 1/10 nm im Vergleich zu einigen 1/10 μm im Fall der Lichtmikroskopie). Die Wellenlänge der mit 300 keV beschleunigten Elektronen liegt bei 0.197 nm. Die erreichbare Grenzauflösung wird nicht allein durch λ bestimmt, sondern auch durch Linsenfehler, insbesondere die sogenannte sphärische Abberation der Objektivlinse. Hochauflösende Elektronenmikroskopie mit Beschleunigungsspannungen von 200 kV oder 300 kV können kleinste Objektabstände $r_{\min} \leq 0.25 \text{ nm}$ auflösen und stellen hohe Anforderungen an die Stabilität der Spannungs- und Stromversorgung, sowie an die mechanischen Komponenten, z.B. Probenhalter.

Die für die TEM-Untersuchungen herangezogenen Abbildungstechniken be-

schränken sich auf die Hellfeld-Abbildung mit einem durchgehenden Strahl und die Dunkelfeld-Abbildung mit einem abgebeugten Strahl zur Bilderzeugung. Die Entstehung von Streukontrast ist für den Fall einer amorphen Probe mit einem Hohlraum in Abbildung 5 schematisch dargestellt. Elastisch in große Winkel gestreute Elektronen werden durch die Objektivblende absorbiert und führen zu einer Abnahme der transmittierten Intensität. Kontrast wird also für Probenbereiche mit einer unterschiedlichen Elektronenabsorption erzeugt. Ursachen können sein: Unterschiede in der Probendichte, Hohlräume oder Einschlüsse und verschiedene Massendichten.

Die mit dem Elektronenmikroskop durchstrahlbare Probendicke ist abhängig vom Material, von der Energie der Elektronen und von den Abbildungsbedingungen und fordert Schichten mit einer Dicke unter $1 \mu\text{m}$. Die einzelnen Arbeitsschritte zur normalen für TEM-Untersuchungen und Querschliffpräparation für Cross-Section-TEM (XTEM)-Untersuchungen sind ausführlich in [102] beschrieben.

3.2 Rasterelektronen-Mikroskopie

In einem Rasterelektronenmikroskop (SEM) liegt die Energie der Elektronen des Analysestrahls typischerweise im Bereich von 2 - 30 keV. Die Wechselwirkung zwischen den Elektronen und der Materie ist auf den oberflächennahen Bereich (bis in ca. $1 \mu\text{m}$ Tiefe) oder die Oberfläche selbst beschränkt [103]. Unelastische gestreute Elektronen geben ebenso Informationen über den chemischen Zustand wie auch über die Topologie der Oberfläche.

Die Probe wird in dem SEM punktweise in einem Raster durch einen Elektronenstrahl abgetastet. Die dadurch verursachte Emission von Elektronen und Photonen wird detektiert und verarbeitet. Anders als beim TEM dienen die Elektronenlinsen nicht direkt zu Abbildungszwecken, sondern zur Fokussierung und Ablenkung des Elektronenstrahls, der sich über die Probe bewegt.

Das elektrische Signal, das die Informationen für die Erzeugung eines Bildes in dem SEM enthält, wird überlagert durch statistische Fluktuationen des Elektronenstrahls und der Effizienz der verschiedenen Emissions-Prozesse. Ein sichtbarer Kontrast entsteht aber nur dann, wenn der Signal-Elektronenstrom um einen Faktor 5 höher liegt als der Elektronenstrom des durch Fluktuationen entstehenden Rauschens. Durch mehrere Messungen läßt sich das Rauschen herausmitteln, wobei gleichzeitig die Qualität des aufgenommenen Bildes angehoben wird.

Das Auflösungsvermögen des SEM erfährt eine Beschränkung durch die Größe des Durchmessers des Elektronenstrahls

$$d = \sqrt{\frac{I_b \pi^2}{4\alpha^2 \beta}} \quad (28)$$

Hierbei ist α der Öffnungswinkel, β der Richtstrahlwert der Elektronenquelle, der die Stromdichte (Am^{-2}) in einem Raumwinkel von einem Sterian angibt, und I_b der Elektronenstrom, der für die Ausbildung eines minimalen Kontrastes einen bestimmten Wert nicht unterschreiten darf. Der Richtwert für Feldemissionskathoden fällt 100x höher aus als der für LaB₆-Kathoden, deren Wert wiederum den von Wolframkathoden um den Faktor 10 übersteigt. Daraus leitet sich für Elektronenquellen mit einem hohen Richtwert bei konstantem I_b eine höhere laterale Auflösung ab bzw. bei konstantem d ein höheres Signal- zu Rauschsignal Verhältnis.

Nach dem Einfall von Primärelektronen der Energie E_0 weist die Energieverteilung der emittierten Elektronen ein Maximum in der Nähe von E_0 auf. Dem Maximum lassen sich rückgestreute Elektronen zuordnen, die unmittelbar nach dem ersten Stoßprozeß wieder aus dem Substrat austreten. Die mittlere Energie der rückgestreuten Elektronen beträgt das 0.5 - 0.6-fache der Primärenergie, und der Rückstreukoeffizient liegt bei 0.2 - 0.4. Das zweite bei niedrigen Energien zu findende Maximum wird den Sekundärelektronen (SE) zugerechnet. Diese Elektronen sind Produkte inelastischer Streuungen, die die einfallenden Elektronen mit dem Probenmaterial erfahren. Da sekundäre und rückgestreute Elektronen physikalisch nicht zu unterscheiden sind, werden nach einer allgemein anerkannten Übereinkunft alle Elektronen <50 eV als Sekundärelektronen bezeichnet [103]. Die mittlere Energie dieser Elektronen liegt bei 4 eV und ist unabhängig von der Energie des einfallenden Strahls. Der Sekundärelektronenkoeffizient wiederum weist eine starke Bindung an das Material und die Energie der Primärelektronen auf. Für Energien um 2 keV werden Beträge um 1 und für höhere Energien um 0.1 bestimmt. In SEM-Aufnahmen entsteht so aufgrund der unterschiedlichen Sekundärelektronenausbeute der Materialien der Materialkontrast. Dem zu beobachtenden topologischen Kontrast liegt ein Ansteigen der Zahl ausgelöster Sekundärelektronen an geneigten Flächen zugrunde. Das Sekundärelektronen-Signal I^* bei einer Neigung θ verhält sich wie

$$I^* \propto \exp(C(1 - \cos \theta)) \quad (29)$$

mit C als einem konstanten Faktor.

Der in die Proben eindringende Elektronenstrahl erleidet durch die zahlreichen Streuungen der Elektronen eine fortschreitende Auffächerung. Das Aufweiten des Elektronenstrahls führt zu einem Zustand der annähernd isotropen Ausbreitung der Elektronen, der auch als Volumendiffusion interpretiert werden kann. Mit dem Erreichen der Diffusionstiefe x_D stellt sich eine vollständige Volumendiffusion ein, die für nicht allzu kleine Kernladungszahlen Z

$$\frac{x_D}{s_0} = \frac{25}{6Z} \quad (30)$$

beträgt. Der Schwerpunkt s_0 des Wechselwirkungsvolumens verschiebt sich mit wachsendem Z zusehends zu kleineren relativen Eindringtiefen x/s_0 . Im Fall

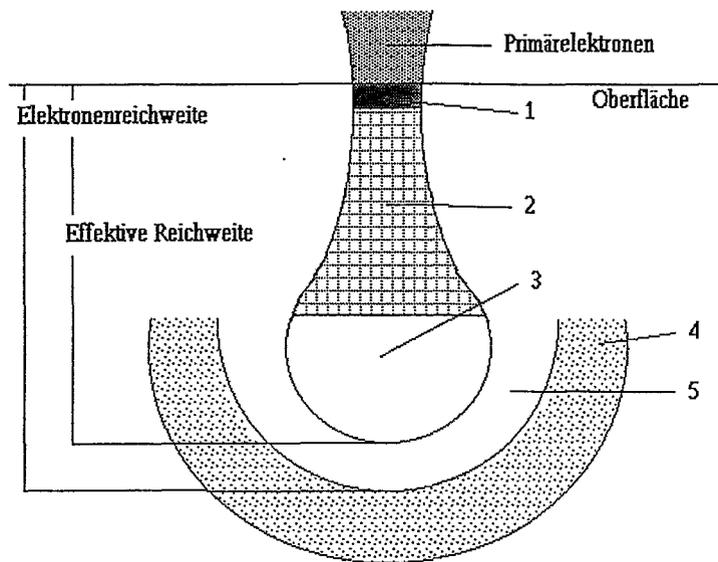


Abbildung 6: Schematische Darstellung der Wechselwirkung zwischen Elektronenstrahl und Probe. 1-Sekundärelektronen, 2-Rückstreuelektronen, 3-Primäranregung, 4-Sekundäranregung, 5-Bremsstrahlung.

kleiner Kernladungszahlen wird der Elektronenstrahl verhältnismäßig tief in die Probe eindringen, ehe die Auffächerung des Strahls eintritt. Diese "tropfenförmige" Gestalt (Abb. 6) tritt bei Proben mit höheren Kernladungszahlen und der schnelleren Auffächerung des einfallenden Elektronenstrahls immer mehr in den Hintergrund. Der nach Archard [104] als Kugelsegment zu denkende gesamte Bereich des Wechselwirkungsvolumens besitzt den Durchmesser $d_w = 2(x_R - x_D)$, x_R bezeichnet die maximale Reichweite der Elektronen. Für kleine Kernladungszahlen ergibt sich infolgedessen $d_w \approx x_R$ und für hohe Kernladungszahlen $d_w \approx 2x_R$.

In unmittelbarer Nähe zum Eintrittspunkt des Primärelektronenstrahls werden Sekundärelektronen direkt ausgelöst, in größeren Entfernungen nur noch durch die im angeregten Volumen rückgestreuten Elektronen. Die Sekundärelektronen entfernen sich vom Ort ihrer Entstehung im Mittel lediglich um eine Absorptionslänge (1 nm - 10 nm). Daraus folgt, daß die direkt emittierten Sekundärelektronen eine sehr hohe Auflösung von Informationen über die Probenoberfläche und den oberflächennahen Bereich erlauben und die rückgestreuten Elektronen lediglich einen Beitrag zum Signalhintergrund geben. Der Anteil der direkt ausgelösten Elektronen liegt im Vergleich zur gesamten Sekundärelektronenausbeute bei weniger als 40% [105]. Die erzielbare Auflösung bei Abbildungen von Oberflächenstrukturen mittels Sekundärelektronen ist stark über Gleichung (28) an den Richtstrahlwert der Elektronenquelle gebunden, hängt aber auch von der Absorptionslänge des Probenmaterials ab, die eine natürliche untere Grenze für

den Strahldurchmesser darstellt.

3.2.1 Probenpräparation

Bei den meisten SEM-Untersuchungen beschränken sich die Vorbereitungen der Proben meist auf das Reinigen der Oberfläche. Mitunter befindet sich jedoch das Beobachtungsgebiet nicht an der Oberfläche, sondern im Volumen der Probe. Mit den verschiedenen Schlifftechniken der Metallographie läßt sich aber eine neue geeignetere Oberfläche herstellen, die das Beobachtungsgebiet offenlegt (vgl. Abs. 3.2.1.1).

Für eine Abbildung der zu untersuchenden Oberfläche ist eine geeignete Kontrastierungsmethode zu bestimmen, die die unterschiedlichen Oberflächenregionen, z.B. Präzipitate (Objekte) und Si-Oberfläche (Hintergrund), voneinander abhebt. Ein nicht ausreichender Materialkontrast kann durch einen topologischen Kontrast kompensiert werden, der bei der Anätzung der Oberfläche entsteht (vgl. Abs. 3.2.1.2).

Eine weitere wichtige Voraussetzung für alle Untersuchungen im SEM ist die Leitfähigkeit der Probenoberfläche. Diese wird gegebenenfalls mit einem aufgedampften dünnen leitfähigen C- bzw. Au-Film hergestellt. Diese Schichten verhindern ein elektrisches Aufladen der Oberfläche, das den einfallenden Strahl störend beeinträchtigt und zu Verzerrungen des Bildes führt (vgl. Abs. 4.1.3.7).

3.2.1.1 Schrägschliff Mit den Sekundärelektronen sind nur Informationen aus den zur Oberfläche nächstliegenden Schichten zu gewinnen. Eine Präparation von Senkrecht- und Schrägschliffen ermöglicht auch Untersuchungen im Volumen einer Probe. Diese Schliffe entsprechen bezüglich der Perspektive Querschnitts- und planparallelen Proben bei TEM-Untersuchungen. Schrägschliffe mit sehr flachen Winkeln bieten durch die Streckung eine Erweiterung des Beobachtungsbereiches (Abb. 7). Für Untersuchungen in einer bestimmten Tiefe ergibt sich dadurch ein Datenaufkommen, das höher liegt als bei XTEM-Messungen und damit eine verbesserte statistische Zuverlässigkeit gewährleistet. Im Gegensatz zu den Proben bei XTEM, bei welchen präparationsbedingt meist ein Keil durchleuchtet wird, wird bei den Schrägschliffen ausschließlich dessen oberflächennaher Bereich untersucht. Dadurch bleibt über dem Schliffwinkel die Information der Tiefe, in der sich die Präzipitate befinden, weitgehend erhalten. Beschreibungsgrößen mit einer Abhängigkeit von der Tiefe werden aber infolgedessen nicht aus übereinander, sondern vielmehr aus nebeneinander liegenden Tiefenbereichen gewonnen (Abb. 7, 10h). Durch Mittelung über die Präzipitate innerhalb eines Tiefenbereiches werden deren Beschreibungsgrößen bestimmt. Ein Vergleich mit anderen Tiefenbereichen beschränkt sich auf die in dieser Weise gewonnenen Informationen. Mit diesen Eigenschaften eignet sich die Schrägschliffmethode dazu, besonders Volumina zu untersuchen, die senkrecht zur angeschliffenen Oberfläche über einen inhomogenen Aufbau verfügen.

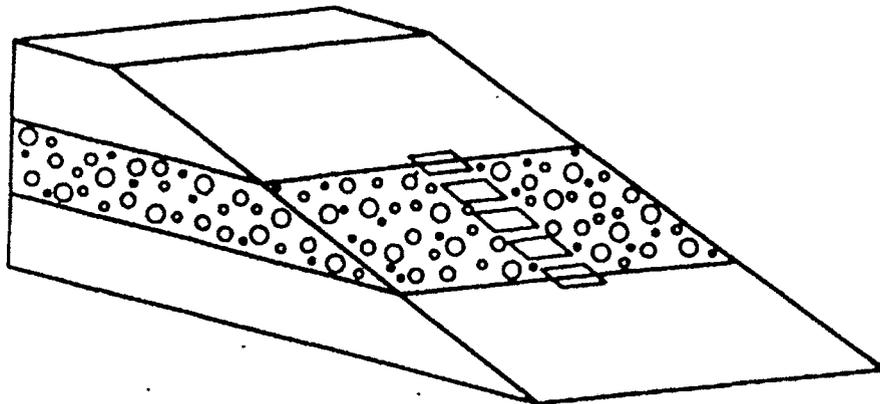


Abbildung 7: Skizze einer schräggeschliffenen Probe mit inhomogener Materialverteilung. Auf dem Schrägschliff eingezeichnet befinden sich die in einer Reihe angeordneten Beobachtungsfenster. Die Fenster stimmen mit den im SEM erfaßten Flächen überein.

Die für die Anfertigung eines solchen metallographischen Schliffes notwendigen Arbeitsschritte [106] führen generell zu Schädigungen der Bereiche der Probe, die unter der neu gebildeten Oberfläche liegen. Dieser Bereich kann sich bei groben Schleifmitteln bis zu einigen μm Tiefe erstrecken. Mit den in jedem neuen Arbeitsschritt feiner gewählten Schleifmitteln wird der im vorhergehenden Schritt geschädigte Bereich entfernt und der neu entstehende Schädigungsbereich ist von einem geringeren Ausmaß. Doch zeigt sich, daß eine Feinpolitur allein zur Herstellung eines Schrägschliffes mit sehr kleinem Winkel ausreicht und nachfolgende Präparationsschritte dadurch nicht nachhaltig beeinträchtigt werden [107]. Der Schliffwinkel wird mit einer optischen Methode mit einer Genauigkeit von $\pm 0.05^\circ$ vermessen.

Weitere Möglichkeiten, 'Schrägschliffe' zu erzeugen, sind mit Ionenstrahl [108, 109]- bzw. chemischem [110] Ätzen gegeben.

3.2.1.2 Ätzung der Proben Die zu untersuchenden SiO_2 -Präzipitate weisen gegenüber der Si-Matrix in SEM-Aufnahmen nur einen geringen Materialkontrast auf. So können die Präzipitate ausschließlich über einen topographischen Kontrast, der sich bei dem Anätzen der Präzipitate einstellt, beobachtet werden. Für eine tiefenaufgelöste Auswertung von Schrägschliffen ist daher auf eine nur geringe Ätztiefe (~ 50 nm anstatt $10 \mu\text{m}$ bei herkömmlichen Präzipitatätzungen [111]) zu achten. Entsprechend Abbildung 2 wird eine rechteckige Form für die Präzipitate, die sich in einem Si-Substrat mit (100)-Orientierung befinden, erwartet. Die Wahl und Zusammensetzung der Ätzlösungen ist in Abschnitt 4.1.3.1 beschrie-

ben.

Für eine hohe Reproduzierbarkeit des Ätzverfahrens ist eine strikte Einhaltung aller Prozessschritte und Parameter geboten. Dem eigentlichen Ätzvorgang geht die Beseitigung von Verunreinigungen und Bearbeitungsrückständen voran [112]. Für jede nachfolgende Ätzung ist ein neuer Lösungsansatz zu verwenden. Die Menge des Ansatzes muß so groß bemessen werden, daß die durch den Ätzvorgang freiwerdende Reaktionswärme zu keiner nennenswerten Temperaturerhöhung führt. Die bei Raumtemperatur durchgeführten Ätzungen sind darüberhinaus gegenüber Schwankungen der Umgebungstemperatur noch relativ unempfindlich [113]. Von der Verwendung eines Ultraschallbades wurde abgesehen, da sich in Abhängigkeit von der eingestrahlten Energie die Ätzcharakteristiken der Defekte verändern [114] und gleiches für die Präzipitate nicht ausgeschlossen werden kann. Die zu ätzenden Substratflächen sollten nach unten zeigen, so daß auch ohne mechanische Bewegung der Proben eine Wiederablagerung des gelösten Siliziums auf der Probenoberfläche verhindert wird [111]. Den Ätzlösungen, die auf HNO_3 als Oxidationsmittel (vgl. Anhang A) basieren, wurde vor dem Ätzen ein Tropfen Alkohol zugesetzt, um einen ausreichend hohen Anteil an HNO_2 in der Lösung zu gewährleisten und damit einen sofortigen Beginn des Ätzvorganges nach dem Eintauchen der Probe zu erzielen.

3.3 Datenauswertung

Der Ort und die Größe der Präzipitate in dem Beobachtungsgebiet sollen mit der SEM-Analyse bestimmt werden. Die Extraktion der gewünschten Informationen aus den Bildern setzt verschiedene bildverarbeitende Methoden voraus, die in Abschnitt 3.3.1 dargestellt werden. Die notwendigen Anpassungen der Methoden an das gegebene Bildmaterial werden, da es sich um eigenständige Resultate handelt, in den Abschnitten 4.1.3.2 - 4.1.3.4 eingehender ausgeführt. Die Verfahren der statistischen Aufbereitung des Datenmaterials sind Gegenstand des Abschnittes 3.3.2. Es werden dabei nicht nur Dichte und Radienverteilungen betrachtet, sondern auch Korrelationen erfasst, die Auskunft über die Anordnung der Präzipitate zueinander geben. Abschnitt 3.3.3 beschäftigt sich schließlich damit, welche Rückschlüsse die Informationen des angeätzten Schrägschliffes auf die Präzipitatverteilungen im Volumen des Substrates zulassen.

3.3.1 Bildverarbeitung

Die Auswertung der SEM-Bilder [161] ist eng verknüpft mit der Interpretation des Bildinhaltes und berücksichtigt die Vorgänge bei der Bildentstehung (vgl. Abs. 3.2). Die Helligkeit eines jeden Bildpunktes repräsentiert das Ergebnis der punktweise durchgeführten Meßprozesse. Die Helligkeitswerte sind im Hinblick auf eine elektronische Bearbeitung der Bilder diskretisiert.

Bei der elektronischen Bearbeitung muß das 'Erkennen' der mit den Präzipitaten assoziierten Bildregionen in Vorschriften festgehalten werden, die durch einen Algorithmus bzw. eine Folge von Algorithmen einfach abzuarbeiten sind. Zunächst gilt es den Bildinhalt soweit wie möglich zu vereinfachen, d.h. zusammenhängende Regionen sollten über ein homogenes Inneres verfügen und die Konturen leicht zu detektieren sein. Die Teilung des Bildes in Regionen erfolgt bei der Segmentation, die die Bildobjekte vom Bildhintergrund trennt. Durch Angabe von Ort, Größe, Umfang, etc. werden die Bildobjekte in einem weiteren Schritt charakterisiert.

Bildrekonstruktion: Das in einem SEM erzeugte Bild ist das Produkt eines Faltungsprozesses aus dem gerasterten Objekt und dem Profil des Elektronenstrahls (vgl. Abs. 3.2). Bei hohen Vergrößerungen nähern sich die von einem Bildpunkt und die von dem Elektronenstrahl überdeckten Flächen einander an. Der Anteil an Informationen aus der Umgebung des Bildpunktes, der mit dem Elektronenstrahl noch miterfaßt wird, nimmt zu. Die Konturen der abgebildeten Objekte verlieren dabei an Schärfe und erscheinen größer. Die Rekonstruktion (vgl. Anhang F) des ursprünglichen Bildinhaltes gründet sich auf der genauen Kenntnis des Profils des Primärelektronenstrahls, welcher aber durch

- Rauschen in den Linsen- und Quellströmen [115]
- die Neu- und Nachjustierung des SEMs bei Wechsel der Proben bzw. der Aufnahme von Bildreihen

einer ständigen Veränderung unterliegt (vgl. Abs. 4.1.3.2). Eine Annäherung an die Form des Elektronenstrahlprofils und damit an der Faltungsfunktion ergibt sich durch die vereinfachenden Annahmen über dessen Konstanz im gesamten Bildbereich, der Rotationssymmetrie und einer einfachen Parametrisierbarkeit [116, 117, 118].

Bildfilterung: Der Einfluß von Rauschquellen während des Bildentstehungsprozesses verursacht räumlich nicht korrelierte Schwankungen in der Helligkeit (Grauwerte) der Bildpunkte. Die Grauwerte der fehlerhaften Bildpunkte heben sich von ihrer Umgebung ab und genügen aufgrund des thermischen Rauschens der Elektronik bei einer elektronischen Bildaufnahme einer gaußförmigen Verteilung. Ein signalabhängiges Verhalten des Rauschens ist bei dem Vorhandensein von Photodetektoren im Signalweg zu erwarten. Rauschen, das sich aus vereinzelten stark überhöhten Impulsen zusammensetzt, tritt z.B. bei der Datenübertragung auf. Die Glättung des Rauschens basiert auf der Auswertung der Informationen, die der Umgebung eines Bildpunktes zu entnehmen sind. Die sehr

unterschiedlichen methodischen Ansätze (vgl. Anhang D), die mitunter nur eine einzelne Rauschart zu glätten vermögen, erschweren die Wahl eines geeigneten Filters bei einem gegebenen Bildverarbeitungsproblem. Die Beurteilung eines Filters kann durch einen Vergleich der Glättungseigenschaften für verschiedene Rauscharten, Erhaltung der zu untersuchenden Bildregionen und der Komplexität des Algorithmus erfolgen (vgl. Abs. 4.1.3.3).

Bildsegmentation: Mit der Segmentation wird das Bild in Regionen eingeteilt, welche ein gemeinsames Merkmal aufweisen. Häufig sind es die Grauwerte oder die Textur (Struktur der Bildregion, z.B. Muster), die zur Charakterisierung einer Region ausreichen. Nicht gleichmäßig ausgeleuchtete Bilder [119], Schattenbildung und Rauschen [120] gehören zu den am häufigsten auftretenden Problemen, die eine Segmentation erschweren. Eine weitere Klassifizierung der segmentierten Regionen, die über z.B. Größe und Form hinausreichen, führt in den Bereich der Bilderkennung (z.B. können über Hough-Transformationen [121] Geraden und kreis- bzw. ellipsenförmige Gebilde direkt bestimmt werden). Zur Segmentation existiert keine allgemeingültige Theorie, weshalb zu einer bestehenden Problemstellung auf heuristischem Weg ein geeigneter Bildbearbeitungsablauf entwickelt werden muß. Allgemein lassen sich drei Klassen von Segmentationsmethoden unterscheiden: Texturbestimmung, Regionenwachstums und Kantenextraktion [122]. Hierbei zeigt sich häufig, daß zu einer zufriedenstellenden Segmentation die Kombination mehrerer Verfahren erforderlich ist und mitunter auch eine manuelle interaktive Korrektur (vgl. Abs. 4.1.3.4).

3.3.2 Datenanalyse

Allgemein bilden Präzipitate mit der diese umgebenden Matrix ein räumliches Gefüge. In vielen Fällen erlaubt die undurchsichtige Matrix keine direkten Untersuchungen der Präzipitativorkommen. Alternativen sind mit Streuexperimenten gegeben und bei einer festen Konsistenz der Matrix durch Auswertung von Anschliffen – ebene Schnitte durch das Matrixvolumen. Bei einem Anschliff der Probe ist zu beachten, daß auch die Präzipitate im Volumen mitangeschliffen werden. Die auf dem Schliff zu beobachtenden Präzipitatschnittflächen entsprechen damit nicht mehr der tatsächlichen Präzipitatgröße. Die Umrechnung der aus den Anschliffen erhaltenen Daten auf für das Matrixvolumen repräsentative Größen ist Gegenstand der quantitativen Gefügeanalyse [123]. Zufriedenstellend gelingt dies für Größen wie Anzahl, mittlerer Radius oder Radiusverteilung der Präzipitate, doch kann die räumliche Anordnung der Präzipitate nicht immer vollständig rekonstruiert werden.

Die Methoden zur statistischen Ermittlung der Kenngrößen des Gefüges gehen von dessen Translationsinvarianz aus. Steht zur Beobachtung der Schlifffläche nur ein einzelnes Fenster begrenzter Größe zur Verfügung, ist ein strenger Nach-

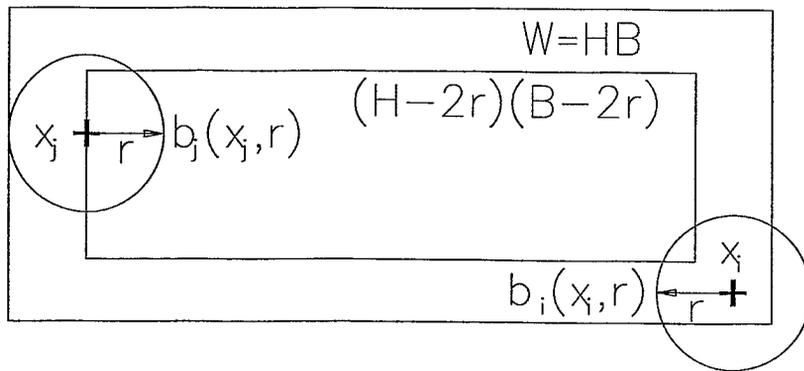


Abbildung 8: Befindet sich ein Präzipitat bzw. dessen Einflußsphäre mit Radius r und Mittelpunkt x_i nicht mehr vollständig im Beobachtungsfenster, ergeben sich Schätzfehler. In $(H-2r)(B-2r)$ liegen alle Präzipitate x_j , für die der ganze Kreis $b_j(x_j, r)$ in W enthalten ist.

weis der Homogenität und der Isotropie sehr schwierig [124]. In vielen Fällen werden diese Eigenschaften, gestützt durch eine geeignete Diskussion des vorliegenden Datenmaterials, angenommen, wie auch im folgenden (vgl. Abs. 3.3.3, 4.2.4, 4.2.4.2). Eine in der quantitativen Gefügeanalyse sehr häufig anzutreffende weitere Annahme ist die näherungsweise kugelförmige Gestalt der zu untersuchenden Objekte.

3.3.2.1 Beschränktes Meßfenster Zur Bestimmung der Präzipitatchichte wird ein rechteckiges Beobachtungsfenster auf den SEM-Aufnahmen der Probenoberfläche festgelegt. Die Wahl der Größe des Beobachtungsfensters sollte dabei einen repräsentativen Ausschnitt wiedergeben. Ein zu kleiner Beobachtungsausschnitt kann ein ansonsten homogenes Gefüge inhomogen erscheinen lassen. Andererseits besteht die Möglichkeit, daß der ausgewählte Ausschnitt eine homogene Struktur wiedergibt, während das tatsächliche Gefüge jedoch inhomogen ist. Die charakteristischen Größen zu den im Meßfeld befindlichen Präzipitaten (Zahl, Schnittfläche, etc.) sind zu ermitteln und bei der Bestimmung der entsprechenden Dichten auf die Fläche des Feldes zu beziehen. Doch entsteht durch die den Meßrand schneidenden Schnittfiguren ein systematischer Bildrandfehler ([125], Abb. 8). Eine von einer Vielzahl vorgeschlagener Korrekturmöglichkeiten besteht darin, nur diejenigen Präzipitatschnittflächen auszuwerten, die vollständig im Meßfeld enthalten sind. Die Bezugsfläche entspricht aber nicht mehr der Fläche

des gesamten Meßfeldes, sondern jeder Präzipitatschnittfläche wird ein eigenes Meßfenster zugeordnet, dessen seitliche Begrenzungen um eine Radiuslänge der Schnittfläche zu dem Meßrand eingerückt sind. Innerhalb dieses neu definierten Fensters kann die Präzipitatschnittfläche an einer beliebigen Stelle positioniert werden, ohne daß diese den Meßrand schneidet. Für die Präzipitatsdichte $N_A(r)$ im Meßfenster ergibt sich der Ausdruck

$$N_A(r) = \frac{1}{(H - 2r)(B - 2r)} N(r) \quad (31)$$

wobei $N(r)$ die ausgezählten Präzipitate zum Radius r sind, H für die Höhe und B für die Breite des Meßfeldes steht.

3.3.2.2 Dichte und mittlerer Radius der Präzipitate Mit der von Salykov [126] entwickelten Methode der reziproken Durchmesser läßt sich die Präzipitatsdichte N_V (gemittelt über alle Radien) im Volumen durch die einfache Formel angeben

$$N_V = \frac{1}{\pi} \sum_j d_j^{-1} N_A(r_j), \quad (32)$$

mit d dem Durchmesser der Präzipitate. Für den mittleren Radius folgt

$$\bar{r} = \frac{\pi}{4} (\bar{d}^{-1})^{-1} \quad (33)$$

und für dessen Standardabweichung gilt

$$\sigma(r) = \sqrt{\frac{2}{\pi} \frac{\bar{d}}{\bar{r}} - \bar{r}^2}. \quad (34)$$

Bisher wurde lediglich ein zweidimensionaler Schnitt durch das zu untersuchende Volumen angenommen mit der Ausdehnung $t = 0$. In der Literatur werden verschiedene Verfahren zur Ermittlung verschiedener Größen auch für $t > 0$ diskutiert [127]. Dabei werden nun die in einem begrenzten Volumen eingeschlossenen Präzipitate betrachtet. Lösungen zu diesem Problem können meist nur für bestimmte Grenzfälle angegeben werden, die sich nicht selten sehr aufwendig gestalten. Dies liegt begründet in z.B. der nicht-sphärischen Form der Präzipitate oder dem Verdecktwerden kleinerer Präzipitate durch größere Präzipitate [128]. So ist schon im einfachsten Fall mit sphärischen Präzipitaten die Kenntnis der Radienverteilung eine notwendige Voraussetzung und häufig sind mehrere Messungen an Proben mit unterschiedlichen Dicken t gefordert. An Bedeutung gewinnt die Verdeckung kleinerer Präzipitate nach der empirisch gewonnenen Beziehung

$$b \frac{t}{\bar{r}} < 0.5, \quad (35)$$

b entspricht dabei dem Volumenanteil und t der Dicke der Probe bzw. der Ätztiefe. Häufig lassen sich weiterhin aufgrund der begrenzten Auflösung des Abbildungsprozesses der Präzipitate solche mit einem Radius $< r_o$ nicht mehr beobachten. Das Erfassen von Präzipitaten mit Radien $> r_o$ führt zu einem Fehler in der Ermittlung des Wertes für den mittleren Präzipitarradius. Das Verhältnis zwischen ermitteltem mittleren Radius und dem tatsächlichen Wert r_a ist gegeben durch

$$r_a = \bar{r} \frac{\int_{r/r_o}^{\infty} r' N_V(r') dr'}{\int_{r/r_o}^{\infty} N_V(r') dr'} \quad (36)$$

mit $N_V(r)$ als Präzipitatgrößenverteilung. Für eine bekannte Präzipitatgrößenverteilung kann zu jedem r_o/r auch ein r_a/r angegeben werden, aus welchem der mittlere Präzipitarradius im Volumen folgt.

Eine zu der zuvor beschriebenen umgekehrte Vorgehensweise besteht darin, eine Radienverteilung vorzugeben und alle Größen zur Beschreibung des Systems daraus abzuleiten (unter Beachtung von Gleichung (35) und (36)). Zur Auswertung von TEM-Aufnahmen werden in [129] die Werte für die in den Umrechnungsformeln auftretenden Parameter dieser Methode numerisch genähert.

Zur Bestimmung der Dichte wird in der vorliegenden Arbeit letztgenanntes Verfahren unter Annahme einer gaußförmigen Verteilung der Präzipitarradien verwendet.

3.3.2.3 Präzipitatgrößenverteilung Der Zusammenhang der Präzipitatgrößenverteilung im Volumen $N_V(r)$ und der Schnittflächenverteilung einer Schlieffläche $N_A(s)$ geht aus der Integralgleichung

$$N_A(s) = \frac{2s}{t + 2\bar{r}} \int_s^{\infty} \frac{N_V(r)}{\sqrt{r^2 - s^2}} dr + \frac{t}{t + 2\bar{r}} N_V(s) \quad (37)$$

hervor. Die Auflösung von Gleichung (37) bei gegebenen $N_A(s)$ nach $N_V(r)$ führt auf ein mathematisches Inversionsproblem [130]. Allen Lösungsmethoden (z.B. [126, 131, 132]) zu dem zuerst von Wicksell formulierten Problem [133] haften gemeinsame prinzipielle Fehler an, die resultieren aus:

- der begrenzten Anzahl gemessener Schnittkreisdurchmesser
- der Diskretisierung der Verteilungsfunktion
- Abweichung der Präzipitatform von der angenommenen Kugelgestalt.

Die Untersuchungen zur Güte der verschiedenen Lösungsmethoden zeigt aber auch, daß die verschiedenen Verfahren durchaus sehr unterschiedlich auf geringe Unsicherheiten der Eingangsgrößen reagieren [123].

Das für die Berechnung der Radienverteilungen verwendete Verfahren orientiert sich an dem in [131] beschriebenen und einfach zu implementierenden Expectation-Maximization (EM)-Algorithmus.

3.3.2.4 Punktstatistische Größen Eine wichtige Größe für die Beschreibung eines Punktfeldes P ist die Punktdichte λ . Eine Schätzung $\hat{\lambda}$ zu λ ergibt sich aus

$$\hat{\lambda} = \frac{N_A}{A(W)} \approx \int_0^\infty N_A(r) dr, \quad (38)$$

wobei $A(W)$ die Fläche eines konkreten Meßfeldes W ist und N_A die Anzahl von Punkten in W .

Die Paarkorrelationsfunktion² $g(r)$ gibt Auskunft weiterhin über die relative Häufigkeit von Punktabständen und ist ein wichtiges Hilfsmittel bei der statistischen Analyse eines Punktfeldes. Eine anschauliche Bedeutung erhält die Paarkorrelationsfunktion, indem zwei infinitesimal kleine disjunkte Kreise W_1 und W_2 mit den Flächen dF_1 bzw. dF_2 im Abstand r angenommen werden. Dann ist die Wahrscheinlichkeit dafür, daß in jedem der Kreise ein Punkt des Punktfeldes P liegt, näherungsweise gleich

$$g(r)\lambda^2 dF_1 dF_2. \quad (39)$$

Die Punktkorrelationsfunktion ist eine Größe zweiter Ordnung. Die Unabhängigkeit von der Punktdichte λ erlaubt es, auch Punktfelder mit unterschiedlichen Punktdichten miteinander zu vergleichen. Für die Interpretation der Punktkorrelationsfunktion kann bei Werten größer (kleiner) als 1 von einer über- (unter-) durchschnittlichen Repräsentanz an Punktpaaren in einem Abstand r ausgegangen werden. Physikalisch läßt sich eine anziehende bzw. abstoßende Wechselwirkung zwischen den Punkten annehmen, die die Nahordnung der Punkte bestimmt. Für größere Entfernungen r werden die Wechselwirkungen nachlassen und sich ein Wert bei $g(r) = 1$ einstellen.

Für die Schätzung der Paarkorrelationsfunktion $g(r)$ (vgl. Abs. 2.2, Anhang B) liegen mehrere Verfahren vor, die sich im wesentlichen nur durch die verwendete Korrektur bezüglich des Meßrandes unterscheiden. Die Schätzung nach Ohser [134]

$$\widehat{g(r)} = c \sum_{i=1}^{n-1} \sum_{j=i+1}^n k(\|x_i - x_j\| - r) \quad \text{mit} \quad 0 < r < d \quad (40)$$

²Der Abstand zwischen zwei Punkten wird hier mit r bezeichnet. Es sollen damit Symbole, wie sie in der Literatur Verwendung finden, beibehalten werden. Wo eine Verwechslungsmöglichkeit besteht, wird die Bedeutung der Symbole nochmals wiedergegeben.

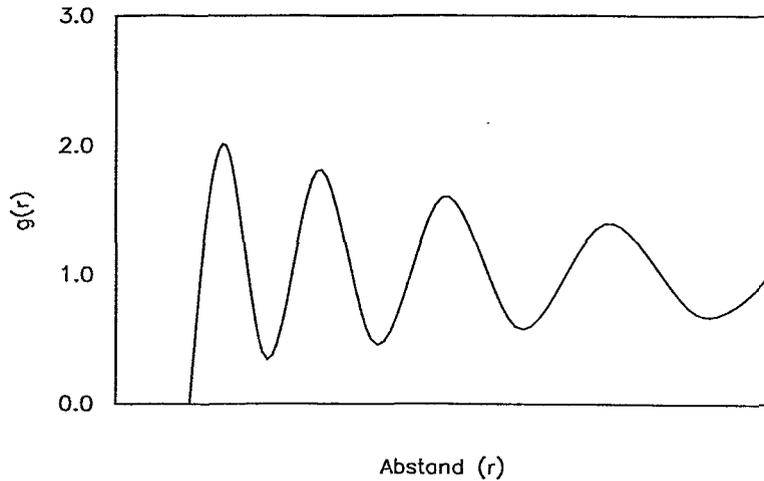


Abbildung 9: Form einer Paarkorrelationsfunktion $\bar{g}(r)$ zu einem Punktmuster mit deutlich ausgeprägter Nahordnung.

$$c = \frac{A(W)^2}{n(n-1)\pi r \bar{f}_W(r)}$$

verwendet eine Kernfunktion k [135, 136], die Informationen nicht nur lokal an einem Punkt erfaßt, sondern auch Informationen aus dem umliegenden Gebiet in geeignet gewichteter Form berücksichtigt. Mit $\bar{f}_W(r)$ wird die isotropisierte Mengenkovarianz [123] angegeben.

Den Punkten eines Feldes lassen sich weiterhin Marken zuordnen, mit welchen zusätzliche Eigenschaften der Punkte, z.B. Radius, erfaßt werden können. Unter Nutzung von Gleichung (40) läßt sich weiterhin auch ein Ausdruck für die Markenkorelation $k_f(r)$ angeben

$$\widehat{k_f(r)} = \frac{c}{\widehat{g(r)} \bar{m}^2} \sum_{i=1}^{n-1} \sum_{j=i+1}^n f(m_i, m_j) k(\|x_i - x_j\| - r) \quad \text{mit } 0 < r < d. \quad (41)$$

Die Funktion $f(m_1, m_2) = m_1 m_2$ wird für Marken genutzt, die die Größe der Objekte beschreiben, die durch die Punkte repräsentiert werden. Große (kleine) Werte für $f(m_1, m_2)$ liegen dann vor, wenn die Marken große (kleine) Werte annehmen. Mit der Division durch $\widehat{g(r)}$ wird eine Unabhängigkeit von dem bestehenden Punktmuster erreicht, und die Normierung bzgl. \bar{m}^2 vereinfacht bei der Interpretation die Unterscheidung zwischen Bereichen mit einem statistisch hohen Aufkommen an großen bzw. kleinen Marken.

3.3.3 Datenaquisition am Schrägschliff

Der das Innere einer Probe offenlegende Schrägschliff kann auf unterschiedliche Weise mit einer abbildenden Methode (z.B. SEM oder AFM) untersucht werden. Es ist dabei die absolute Tiefenskala, die senkrecht zur Substratoberfläche gemessen wird, zu unterscheiden von der gestreckten Tiefenskala auf dem Schrägschliff. Weiterhin lassen sich Positionen innerhalb des Substrates relativ zur Oberfläche bzw. dem Beginn des Beobachtungsgebietes angeben. Wobei letzterem – durch bessere Vergleichsmöglichkeiten bezüglich der zu beobachtenden Strukturen – der Vorzug eingeräumt wird. Größe und Form des Beobachtungsgebietes ist bei experimentellen Untersuchungen besondere Beachtung zu schenken (Abb. 7). Schließt das Beobachtungsgebiet bei einer geringen Vergrößerung die gesamte interessierende Tiefe ein, sind die zu vermessenden Details mitunter nicht mehr aufzulösen. Eine höhere Vergrößerung hingegen, die ausreichende Informationen über die Beobachtungsgrößen liefert, erfaßt nur noch einen Teil des gesamten Tiefenbereiches. Um dennoch den gesamten Tiefenbereich untersuchen zu können, muß daher eine Bildreihe erstellt werden. Bestehen besondere hohe Anforderungen an die statistische Zuverlässigkeit, sind die Betrachtungen auf ein Bildfeld zu erweitern (vgl. Abs. 5.2.2).

Zur Auswertung muß dann aus den Einzelaufnahmen wieder ein zusammenhängendes Bild gebildet werden. Ein Vorgang, der dem Bildzuordnungsproblem der Photogrammetrie [137] entspricht. Für ein sich über alle Bilder erstreckendes einheitliches Koordinatensystem ist das Überlappen der Einzelbilder notwendig. In den überlappenden Bildbereichen sind geeignete Paßpunkte auszuwählen, die das Wiederausammenfügen der Bilder erleichtern. Um die Bildzuordnung möglichst einfach zu gestalten, sollten bei der Aufnahme jegliche Verdrehungen der Bilder zueinander vermieden werden, wodurch ausschließlich translatorische Verschiebeoperationen bei der Auswertung zu beachten sind.

Die weiter oben dargestellten abgeleiteten statistischen Größen fordern alle die Isotropie des zu untersuchenden Systems. Die implantierten Proben hingegen weisen wegen dem Konzentrationsprofil eine in der Tiefe nicht homogene Präzipitatverteilung auf, weshalb lediglich eine Translationsinvarianz in den Richtungen parallel zur Oberfläche vorliegt. Unter Ausnutzung dieser Symmetrie lassen sich Tiefenklassen festlegen. Innerhalb dieser Klassen der Breite $t_{T-Klasse}$ wird eine näherungsweise homogene Verteilung der auszuwertenden Objekte angenommen. Mit dem veränderten Geltungsbereich können die Auswertegrößen nicht mehr für das gesamte Untersuchungsvolumen, sondern nur noch lokal für eine bestimmte Tiefe definiert werden. Analog zu den Größenklassen bei den Präzipitatgrößenverteilungen gewährleisten Tiefenklassen mit endlicher Breite auch eine für statistische Auswertungen ausreichend große Präzipitatzahl.

Das Anätzen der Proben zur Erzeugung eines topographischen Kontrastes für die SEM-Untersuchung (vgl. Abs. 3.2.1.2) legt Präzipitate bis zu einer Tiefe

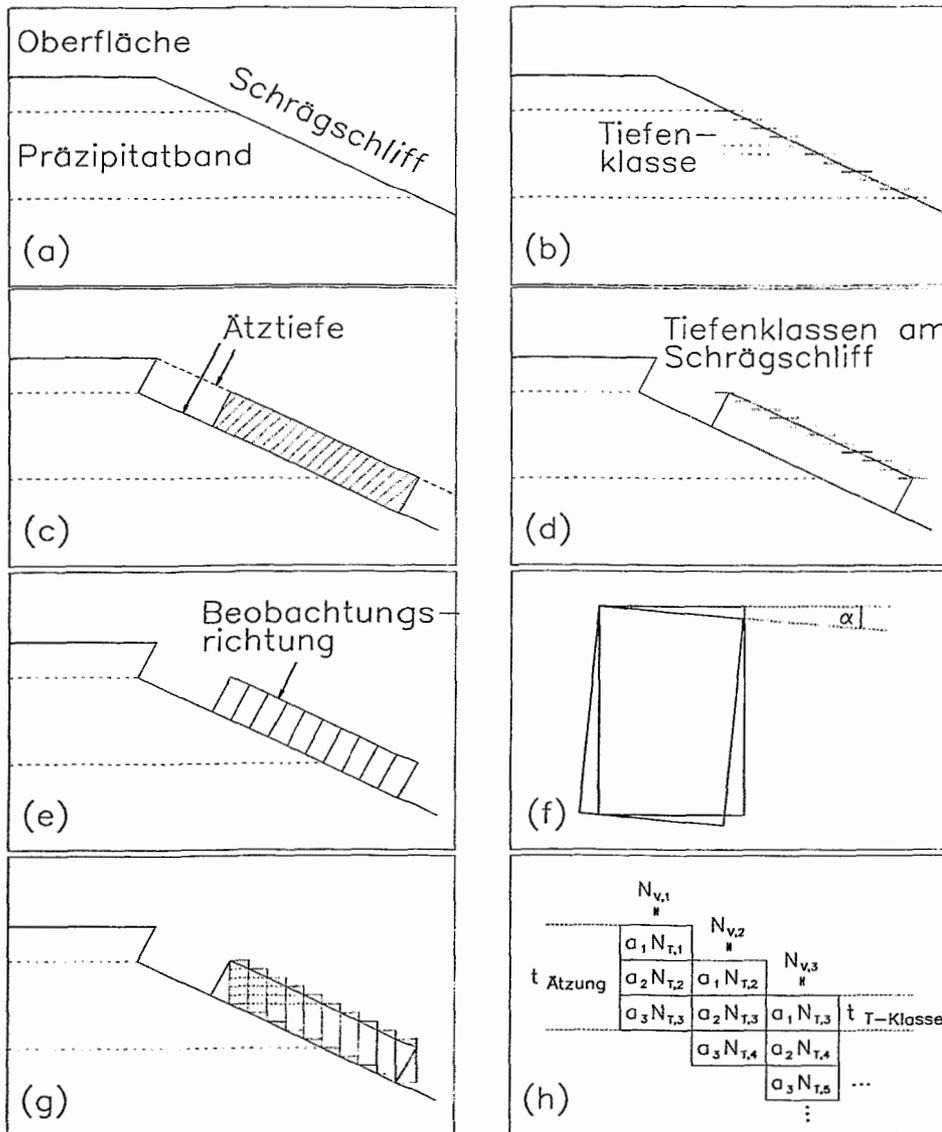


Abbildung 10: Darstellung der Schritte, die für eine Auswertung eines Schrägschliffes notwendig sind: a) Präzipitatband im Volumen und dem zu untersuchenden Schrägschliff, b) Einteilung des Präzipitatbandes in äquidistante Tiefenklassen, c) angeätztes Präzipitatband, d) Übertrag der Tiefenklassen auf das angeätzte Präzipitatband, e) Beobachtungsvolumen für die jeweilige Tiefenklasse, f) näherungsweise Deckungsgleichheit des Beobachtungsvolumens mit dem um einen kleinen Winkel α gedrehten Volumen, g) Vergleich der gedrehten Volumina mit dem gesamten Beobachtungsbereich, h) graphische Formulierung des Inversionsproblems (siehe Text), wobei t_T -Klasse der Breite einer Tiefenklasse entspricht.

$t_{\text{Ätzung}}$ offen (Abb. 10c, vgl. Abs. 4.1.3.6). Die vorangegangene Betrachtung zur Erstellung von Tiefenklassen, die sich auf ebene Anschliffe der Dicke $t = 0$ bezog, muß nunmehr auf Anschliffe mit endlicher Ausdehnung erweitert werden. Die Einteilung des angeätzten Bereiches kann sich dabei über mehrere Tiefenklassen erstrecken (Abb. 10d). Insgesamt liegt eine Konvolution des Tiefenprofils mit dem Ätzprofil vor.

Für die Beschreibung der Konvolution im Tiefenprofil wird eine vereinfachende geometrische Darstellung verwendet (Abb. 10e-h). Die angeätzten Bereiche werden in Rechtecke geteilt mit der Höhe $t_{\text{Ätzung}}$ und der Breite t_{Schliff} . Letztere ist so gewählt, daß die von dem Rechteck auf dem Schrägschliff überstrichene Tiefe gerade der Breite der Tiefenklasse $t_{T\text{-Klasse}}$ entspricht (Abb. 10d, e). Der nächste Schritt besteht in der Drehung der Rechtecke. Der kleine Winkel (die Schliffwinkel der Experimente liegen zwischen $0.5^\circ - 1.2^\circ$), den Schlifffläche und Oberfläche einschließen, gewährleistet einen nur geringen Fehler zwischen der ursprünglichen und der vereinfachten Darstellung (Abb. 10f, g). Die Anzahl k der Tiefenklassen, die immer ungerade gewählt wird, ergibt sich aus

$$t_{\text{Ätzung}} < kt_{T\text{-Klasse}} < t_{\text{Ätzung}} + t_{T\text{-Klasse}}. \quad (42)$$

Für die Faltungsfunktion wird angenommen, daß alle Tiefenklassen einen gleichen Beitrag leisten. Auf die beiden Randklassen $(1, k)$ wird ein Rest, der aus dem Mißverhältnis zwischen Ätztiefe und der Klassenbreite folgt, gleichmäßig verteilt. Die diskretisierte Faltungsfunktion a_n ($n = 1 \dots k$) nimmt folgende Gestalt an

$$a_n = \begin{cases} \frac{t_{\text{Ätzung}} - (k-2)t_{T\text{-Klasse}}}{2}, & n = 1 \wedge n = k, \\ 1, & 1 < n < k. \end{cases} \quad (43)$$

Die Bestimmung der Präzipitatanzahl $N_{T,m}$ (der Index T steht für eine in Tiefenklassen eingeteilte Beobachtungsgröße und m gibt die jeweils unter Betrachtung stehende Tiefenklasse an) mittels der aus den gemessenen Größen $N_{A,n}$ erhaltenen Anzahl $N_{V,n}$ folgt aus (Abb. 10h)

$$N_{V,m} = \sum_{n=1}^k \frac{a_n N_{T,m-q(n)}}{\sum_{i=1}^k a_i} \quad \text{mit} \quad q(n) = k/2 + n - 1. \quad (44)$$

Dies entspricht einer Faltung mit gleitendem Mittelwert und festen Gewichten. Eine Invertierung kann mit den Methoden aus Anhang F vorgenommen werden.

Aufwendiger gestaltet sich die Ermittlung des mittleren Radius $\bar{r}_{T,m}$, dem Quotienten aus der Summe aller Radien und der Präzipitatanzahl

$$\bar{r}_{V,m} = \frac{\sum_{n=1}^k a_n N_{T,m-q(n)} \bar{r}_{T,m-q(n)}}{\sum_{i=1}^k a_i N_{T,m-q(n)}}. \quad (45)$$

Entgegen zur Präzipitanzahl liegt nun ein lokal gewichteter, gleitender Mittelwert vor. Für die Auflösung dieses Ausdruckes wurden die Ergebnisse zur Bestimmung von $N_{V,m}$ mitverwendet und damit angenommen, daß diese repräsentativ sind.

Radiengrößenverteilungen bzw. Punktmuster gehören zu den Beobachtungsgrößen, die in Tiefenbereichen parallel zur Oberfläche gewonnen werden und in Ergänzung zu den vorhergehenden Größen den inneren Aufbau dieser Bereiche detaillierter beschreiben (vgl. Abs. 3.2.1). Eine statistisch zuverlässige Ermittlung bei diesen Größen erfordert eine größere Anzahl an Präzipitaten und damit einen ausgedehnteren Tiefenbereich, als es bei der Bestimmung von Dichte und mittlerem Radius notwendig ist. Die Breite dieser neu zu definierenden Tiefenklassen wird nach unten beschränkt durch die Homogenitätsforderung (vgl. Abs. 3.3.2) und nach oben durch die Breite der zu untersuchenden Struktur (Präzipitatband, vgl. Abs. 4.2). Die Umrechnung der Radienverteilung erfolgt nach den Formeln des Abschnittes 3.3.2.3. Für die Untersuchung der Punktmuster wird vereinfachend angenommen, daß die auszuwertenden Projektionen der Präzipitattendurchmesser repräsentativ für das Gefüge in den jeweiligen Tiefenbereichen sind. Der Fehler, der zu den tatsächlichen Durchmessern auftritt, kann aufgrund der zur Präzipitatgröße vergleichsweise großen Ätztiefe als nur gering angesehen werden. So besteht die Möglichkeit, das Gefüge als zweidimensionales Gebilde aufzufassen, und die in Abschnitt 3.3.2.4 vorgestellten Modelle direkt zur Beschreibung heranzuzuziehen.

3.4 Rutherford-Rückstreu-Spektroskopie und Gitterführung

Die Rutherford-Rückstreu-Spektroskopie nutzt die elastischen Wechselwirkungen leichter, energiereicher Ionen (z.B. 1.5 MeV $^4\text{He}^+$) beim Durchdringen eines Festkörpers zur Analyse von Atomverteilungen in diesem aus [138]. Die Tiefenprofile, von z.B. implantierter Schichten, lassen sich durch die Energieverteilung der von den Targetatomen unter einem gegebenen Winkel zurückgestreuten Ionen ermitteln. Die Energie des rückgestreuten Ions hängt dabei von der Masse und der Ordnungszahl der Atomkerne ebenso ab, wie von der Tiefe, in der der Stoß stattfindet [139].

Für leichte Elemente in einer schweren Matrix, wie z.B. Sauerstoff in Silizium, überlagern sich die Energiespektren der Elemente. In diesen Fällen ist die Konzentrationsbestimmung mit Schwierigkeiten behaftet und der Fehler kann bei bis zu 10 Atomprozent liegen.

In implantierten Proben ist neben dem Materialprofil noch die durch die Implantation hervorgerufene Defektverteilung von Interesse. Gitterführung-Untersuchungen werten dazu die Energieverteilung der längs einer Kristallrichtung

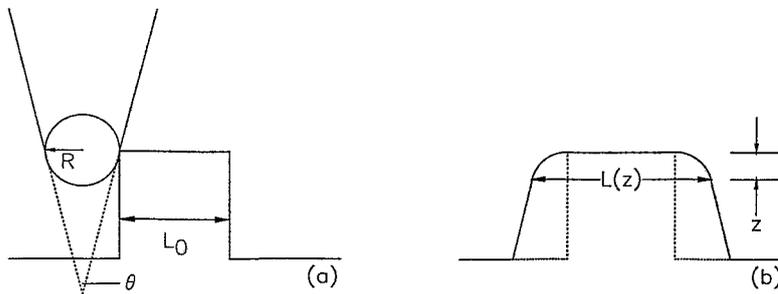


Abbildung 11: (a) Modellierung der Abbildung einer rechteckigen Oberflächenstruktur der Breite L_0 mittels einer AFM-Spitze, für welche eine sphärische Gestalt angenommen wird mit Radius R . (b) Resultat des Abbildungsvorganges, wobei $L(z)$ die Abbildungsbreite in einem Abstand z von dessen oberer Begrenzung angibt.

eingeschossenen Ionen aus, die eine erhöhte Rückstreuung an Gitteratomen, versetzten Gitteratomen der Matrix und an Fremdatomen erfahren. Ionen, die beim Durchlaufen einer geschädigten Schicht gestreut werden, durchlaufen im folgenden das Kristallgitter in einer beliebigen Richtung (Dechanneling). Deren Rückstreausbeute liegt höher als die der sich weiterhin in Kristallrichtung bewegenden Ionen. Die Berechnung des tatsächlichen Defektprofils von implantierten Proben aus der gemessenen Energieverteilung, in der sich die zuvor beschriebenen Effekte überlagern, ist ein aufwendiges Unterfangen und nur schwer lösbar.

3.5 Atomkraft-Mikroskopie

Zur direkten Abbildung der Strukturen einer Oberfläche wird ein Atom-Kraft-Mikroskop (AFM) häufig verwendet. Bei dem AFM bewegt sich dabei eine an einem Cantilever fixierte Spitze rasterförmig über die zu untersuchende Oberfläche. Die Höheninformation wird gewonnen durch einen Laserstrahl, der von der rückwärtigen Seite der Spitze in einen geteilten Photodetektor reflektiert wird. Aus der Verteilung der Lichtintensität in den beiden Elementen des Detektors läßt sich die Auf- und Abbewegung der Spitze verfolgen und Informationen über die Topologie gewinnen. Aufgrund der mechanischen Eigenschaften des Cantilevers werden für die Bestimmung absoluter Höheninformationen Korrekturen erforderlich [140].

Obwohl die Auflösung eines AFM für glatte Oberflächen von atomarer Größenordnung sein kann, sind bei ausgeprägteren Strukturen die Einflüsse durch den endlichen Durchmesser der Meßspitze zu beachten ([141, 142], Abb. 11). Die

Rekonstruktion eines mit dem AFM erstellten Bildes ist sehr aufwendig. Für einfachere Strukturen stehen speziell entwickelte Verfahren zur Verfügung [143].

3.6 Experimentelle Durchführung der Untersuchungen

Die Untersuchungen sollen die Abhängigkeiten der Reifungsergebnisse von den Anfangsbedingungen zum Reifen herausstellen. Ziel ist es dabei, näheren Aufschluß über den Ursprung der in implantierten Proben zu beobachtenden Strukturen zu erlangen (vgl. Abs. 2.3.3.5). Für diese Untersuchung zum Reifen von SiO₂-Präzipitaten in einer Si-Matrix werden die zuvor beschriebenen Analyseverfahren ex-situ verwendet. Auf den Präzipitationsverlauf kann somit nur über die Beobachtung eines unter festgelegten Bedingungen und nach einer bestimmten Zeit unterbrochenen Experimentes geschlossen werden. Für verschiedene Implantations- und Ausheilparameter ist der Einfluß auf die Präzipitation meist nur qualitativ bekannt (vgl. Abs. 2.3.4). Der Vergleich mit Simulationen [52] zur Erstellung einer realistischen Modellierung erfordert eine möglichst große Vielfalt an Reifungsergebnissen. Dies gibt den Rahmen und die Randbedingungen zur Planung der Experimente grob vor. Dabei waren folgende Aspekte zu berücksichtigen:

- Gewährleistung eines einfachen Nachweises der Präzipitate;
- Bestimmung eines Parameterbereiches, der Reifungsuntersuchungen erlaubt;
- Bestimmung des Reifungsbeginns;
- Bereitstellung eines breiten Spektrums an Anfangsbedingungen;
- Verfolgung des zeitlichen Verlaufes des Reifens.

Günstige Bedingungen für experimentelle Untersuchungen ergeben sich bei nur geringen Überkonzentrationen an Defekten, da diese im Gegensatz zum Sauerstoff nicht direkt nachzuweisen sind und eine Auswertung erschweren (vgl. Abs. 2.3.4).

3.6.1 Allgemeine Implantations- und Ausheilbedingungen

Für die Implantation und das Ausheilen waren verschiedene technologische Aspekte zu beachten. Neben der Implantationsenergie und der Implantationstemperatur, die immer zu den einzelnen Experimenten in Abschnitt 4.2 angegeben werden, war allen Implantationen gemeinsam:

- die Verdrehung des Substrates um einen geringen Winkel ($\sim 7^\circ$) zum einfallenden Ionenstrahl, um ein Kanalisieren der Ionen zu verhindern;
- eine konstante Implantationstemperatur über die gesamte Bestrahlungszeit [144];

- ein Ionenstrom von $1 \mu\text{A}/\text{cm}^2$, der durch den Implanter vorgegeben ist.

Die für die Ausheilphase variierten Größen, die Temperatur und die Dauer, werden wie zuvor an entsprechender Stelle ebenfalls explizit in Abschnitt 4.2 angegeben. Vor der eigentlichen Temperaturbehandlung wurde auf der Probe ein Schutzoxid abgeschieden. Das Oxid verhindert bei den hohen Ausheiltemperaturen eine chemische Reaktion der Si-Oberfläche mit den Restgasanteilen an Sauerstoff und H_2O in der N_2 -Ausheilatmosphäre. Über die Reaktion



würde es zu einem unregelmäßigen Abtrag von Si kommen, das weiterhin die Bildung eines zufälligen Musters von Gruben auf der Si-Oberfläche begünstigt. Die Rauigkeit der zuvor glatten Oberfläche nähme im Verlauf dieses Prozesses deutlich zu [81]. Mit dem Sputtern des SiO_2 bei niedrigen Substrattemperaturen ($<500^\circ\text{C}$) konnte eine zusätzliche Temperaturbelastung, die den Präzipitationsverlauf beeinträchtigen könnte, vermieden werden.

Die Aufheiz- und Abkühlungsphasen der Proben sind wichtige Stadien des Präzipitationsverlaufes (vgl. Abs. 2.3.1, 2.3.3.3). Die gewählten geringen Aufheiz- und Abkühlraten von $5^\circ\text{C}/\text{min}$ gewährleisteten das Einstellen des lokalen thermodynamischen Gleichgewichtes für Präzipitate und Matrix [26]. Sehr hohe Temperaturraten, wie sie bei RTA-Prozessen erzielt werden, versetzen das System in einen Zustand weit entfernt vom thermodynamischen Gleichgewicht. Der Angleich an die veränderte Situation beeinträchtigt den Präzipitationsverlauf nachhaltig ([89, 145], vgl. Abs. 2.3.4).

Eine Auswertung von Experimenten mit RTA-Zwischenausheilung ist nicht möglich, da die entstehenden sehr kleinen Präzipitate mit dem SEM nach den beschriebenen Präparationsschritten nicht aufgelöst werden können (vgl. Abs. 4.1.3.4). Auch im XTEM wären die Präzipitate von den in hoher Konzentration vorhandenen Defekten nur schwer zu unterscheiden [74]. Vorteilhaft wäre hier die Verwendung von Substraten mit einer (110)-Kristallorientierung, die aber für die technologische Anwendung keinerlei Bedeutung haben [144]. Die neue Beobachtungsperspektive würde gewährleisten, daß die nach einem Anätzen freigelegten Ränder der Präzipitate (Abb. 2) senkrecht zur Substratoberfläche stehen und einen sehr scharfen Kontrast erzeugen. In einem SEM mit einem hohen Richtwert (vgl. Abs. 3.2) ließen sich diese kleinen Präzipitaten mitunter noch auflösen.

3.6.2 Materialakkumulation

Die Implantationsenergie lag mit 300 keV am oberen Ende des für SIMOX-Substrate üblichen Bereiches. Damit sollte eine größere Separation zwischen dem Defekt- und dem Sauerstoffband erreicht werden [74]. Da die Volumenkonzentration an Sauerstoff die eigentliche den Präzipitationsverlauf bestimmende Größe ist,

mußte bei höherer Implantationsenergie die zunehmende Breite des Sauerstoff-Profiles mit einer steigenden Dosis kompensiert werden. Die Volumenkonzentration sollte so hoch liegen, daß ein Reifungsprozeß der gebildeten Präzipitate sicher eintrat, aber andererseits so gering sein, daß eine Koaleszenz der Präzipitate weitgehend ausgeschlossen werden konnte. Eine untere Grenze für die Dosis war mit der natürlichen Verunreinigung der Si-Substrate ($>10^{15}\text{O}^+\text{cm}^{-2}$) vorgegeben. Die an SIMOX-Substraten durchgeführten Experimente (vgl. Abs. 2.3.4) legten eine Dosis größer als $4.0 \times 10^{17}\text{O}^+\text{cm}^{-2}$ nahe, da Proben mit höheren implantierten Dosen nach der Ausheilung weitgehend geschlossene vergrabene Schichten aufweisen. Der Bereich der implantierten Dosen erstreckte sich daher von $1 \times 10^{16}\text{O}^+\text{cm}^{-2}$ bis $1 \times 10^{17}\text{O}^+\text{cm}^{-2}$. Die Implantationstemperatur betrug 500°C und die Temperaturen während der Ausheilung 1100°C bzw. 1250°C .

3.6.3 Reifungsbeginn

Für die Untersuchungen zum Reifen waren unterschiedliche Ausheiltemperaturen von besonderem Interesse. Für den Reifungsverlauf in implantierten Si-O-Systemen gilt: je höher die Ausheiltemperatur ist, desto geringer ist die Ausheildauer bei gleichem Reifungsergebnis (vgl. Abs. 2.3.3.4). Mit der Ausheiltemperatur läßt sich damit das Ende der Wachstumsphase festlegen, das gekennzeichnet ist durch den vollständigen Einbau des implantierten Sauerstoffes. Gleichzeitig wird mit diesem Zustand der Beginn der Reifungsphase bestimmt, in der es zur Umverteilung des implantierten Sauerstoffes kommt. In Systemen mit homogener Materialverteilung mündet der Reifungsprozeß unabhängig vom Zustand zu Beginn des Reifens immer in einem selbstähnlichen Verhalten (vgl. Abs. 2.1.3.1). Dagegen kann in Systemen mit inhomogener Materialverteilung und der Möglichkeit zur lokalen Akkumulation von Material nicht davon ausgegangen werden. Die Bedeutung des Zustandes zu Beginn des Reifens auf den Fortgang der Präzipitation bzw. Simulation wird in Abschnitt 5.3.2 eingehender besprochen.

Die Proben waren bei 300 keV mit einer Dosis von $1 \times 10^{17}\text{O}^+\text{cm}^{-2}$ und einer Temperatur von 500°C implantiert. Die Ausheilung erfolgte für zwei Stunden bei Temperaturen von 1000°C , 1100°C , 1200°C und 1250°C .

	1000°C	1100°C	1200°C	1250°C
1×10^{16}	/	XTEM	/	XTEM
3×10^{16}	/	XTEM	/	XTEM/SEM
1×10^{17}	XTEM	XTEM	XTEM/SEM	XTEM/SEM

3.6.4 Zeitlicher Reifungsverlauf

Ausgehend von unterschiedlichen Anfangsbedingungen war die Untersuchung des zeitlichen Verlaufs des Reifens der Gegenstand dieser Arbeit. Hauptparameter waren hierbei die Implantationstemperatur und die Ausheildauer.

Die Anfangsbedingungen wurden durch die Implantationstemperaturen bestimmt, die zwischen 230°C bis 650°C lagen. Die Implantationsenergie betrug für alle Proben 300 keV. Die Entwicklung in der Zeit wurde mit Ausheilungen der Proben bei 1300°C für die Dauer von 1, 2, 4 und 8 Stunden verfolgt.

	230°C	300°C	400°C	500°C	600°C	650°C
1 h	SEM	SEM	SEM	SEM/RBS	SEM	SEM
2 h	SEM	SEM	SEM	SEM/RBS	SEM	SEM
4 h	SEM	SEM	SEM	SEM/RBS	SEM	SEM
8 h	SEM	SEM	SEM	SEM/RBS	SEM	SEM

In einem weiteren Experiment sollten die Änderungen untersucht werden, die durch ein Näherrücken des Defekt- und des Sauerstoffprofils entstehen. Der Vergleich mit den zuvor beschriebenen Experimenten beschränkte sich nur auf die Anfangsbedingungen zum Reifen und wurden ausschließlich mit XTEM durchgeführt. Die Implantationsenergie lag nunmehr bei 200 keV, einen für die Herstellung von SIMOX-Substraten typischen Wert. Die für diese Energie untersuchten Proben waren mit einer Dosis von $1 \times 10^{17} \text{O}^+ \text{cm}^{-2}$ implantiert und die Implantationstemperatur variierte von 200°C bis 700°C in 100°C Schritten. Die Ausheiltemperatur betrug 1300°C und die Ausheilzeit zwei Stunden.

	200°C	300°C	400°C	500°C	600°C	700°C
2 h	XTEM	XTEM	XTEM	XTEM	XTEM	XTEM

4 Ergebnisse

Nach der Beschreibung der verschiedenen Analysemethoden im vorangegangenen Kapitel werden im folgenden die Grenzen und Möglichkeiten dieser Methoden aufgezeigt in Bezug auf das gewählte Materialsystem und die zu untersuchende Präzipitation und Strukturbildung (vgl. Abs. 4.1.1 - 4.1.3). Besondere Aufmerksamkeit kommt dabei den Besonderheiten der Bildauswertung zu, die zur Auswertung der SEM-Untersuchungen an Schrägschliffen herangezogen wurden (vgl. Abs. 4.1.3.3 - 4.1.3.5).

Die Auswertung der Implantationsexperimente gliedert sich in die notwendige Charakterisierung des implantierten Zustandes (vgl. Abs. 4.2.1 - 4.2.3) und der eigentlichen Untersuchung zur zeitlichen Entwicklung des Reifens (vgl. Abs. 4.2.4). Mit den erstgenannten Experimenten können geeignete Parameterbereiche ausgewiesen werden, die zum einen das Reifen des Systems ermöglichen und zum anderen erlauben, die zeitliche Entwicklung des Systems zu verfolgen. Die Ergebnisse des zweiten Teils der Untersuchungen sollen dann Aufschluß geben über die Entstehung und Strukturbildung für Si-O Systeme mit inhomogener Materialverteilung.

4.1 Analysemethoden

4.1.1 Rutherford-Rückstreu-Spektroskopie und Gitterführung

Die Detektion des Sauerstoffprofils in der Si-Matrix gestaltet sich auch nach dem Ausheilen und der damit verbundenen Aufteilung des Profils als schwierig (Abb. 12). Die Teile des Profils mit geringeren Sauerstoffkonzentrationen bleiben wegen der Überlagerung mit dem Si-Spektrum der Matrix im RBS-Spektrum verborgen. Anders als bei Sekundär-Ionen-Massen-Spektroskopie (SIMS)-Untersuchungen zu Proben mit vergleichbaren Implantationsparametern [146] sind damit nur beschränkte Aussagen über den Gesamtsauerstoffgehalt in der Probe möglich. Doch können RBS-Daten bei bekannter Präzipitatchichte als Ergänzung zur Bestimmung des mittleren Radius hinzugezogen werden. Diese Information ist, da keine Wachstumsgesetze formuliert werden können (vgl. Abs. 5.2.2.3), nur von begrenztem Wert für die vorgestellten Untersuchungen. Die relative Positionen der Maxima stimmen weiterhin mit denjenigen der SEM-Untersuchungen überein.

4.1.2 Atomkraft-Mikroskopie

Die Untersuchungen wurden mit einem RasterscopeTM 3000 von Danish Micro Engineering durchgeführt. Die Oberfläche einer bei 500°C implantierten und für zwei Stunden bei 1300°C ausgeheilten Probe ist in Abbildung 13 zu sehen. Die Präparation der Probe erfolgte analog zu der in einem SEM untersuchten Probe (vgl. Abs. 3.2.1). Eine Gegenüberstellung von AFM- und SEM-Aufnahmen

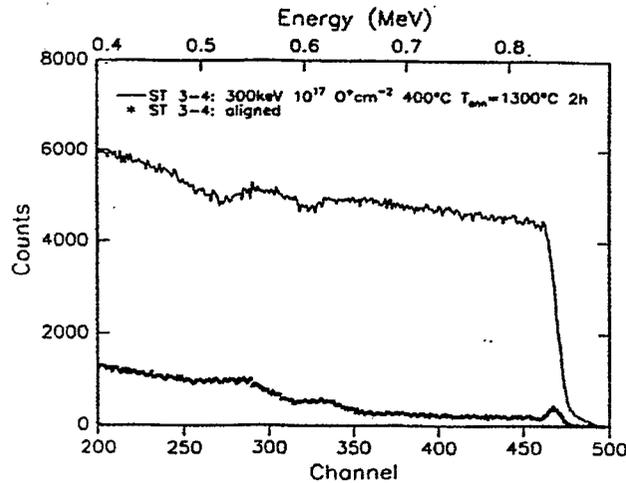


Abbildung 12: RBS-Spektrum einer bei 400°C implantierten und für 2 h bei 1300°C ausgeheilten Probe. Die obere Kurve ist das nichtkanalisierte Profil, das untere Profil ist in Gitterführungsrichtung (100) des Si-Substrates gemessen.

derselben Proben (Abb. 13 und 15) mit ähnlicher Auflösung zeigt deutlich den Unterschied in der Darstellung der Präzipitate durch die verschiedenen Abbildungsprinzipien.

Der Querschnitt durch ein angeätztes Präzipitat verfügt nicht wie der Quader in Abbildung 11b über eine rechteckige Form, sondern ist vielmehr trapezförmig (vgl. Abs. 4.1.3.4), und die Faltung (vgl. Abs. 3.5) mit der pyramidenförmigen Abtastspitze läßt ein komplexeres Abbild entstehen. Der Ätzprozeß bewirkt weiterhin eine ungleichmäßige Wölbung der Substratoberfläche und einen fließenden Übergang an den Präzipitaträndern (vgl. Abs. 4.1.3.4). Dadurch entsteht das Problem, eine geeignete Begrenzung der Präzipitate zu finden, um deren Größe bestimmen zu können. Insgesamt zeigt sich, daß ähnlich wie beim SEM (vgl. Abs. 4.1.3) eine sorgfältige Nachbereitung der Meßergebnisse notwendig ist.

Das SEM bietet hier durch den 'differentiellen' Abbildungsvorgang, der die Neigung von Oberflächen herausstellt (vgl. Abs. 3.2), Vorteile gegenüber dem AFM (vgl. Abs. 4.1.3.4, 4.1.3.6).

4.1.3 Rasterelektronen-Mikroskopie

Für die Untersuchungen wurde ein DSM 962 von Carl Zeiss mit einer Wolfram-Kathode verwendet. Einzelne Aspekte der Probenpräparation (vgl. Abs. 4.1.3.1) und der Bildauswertung (vgl. Abs. 4.1.3.3 - 4.1.3.6) zu den SEM-Aufnahmen wurden in Hinblick auf das Si-O Materialsystem gesondert untersucht. Die Aus-

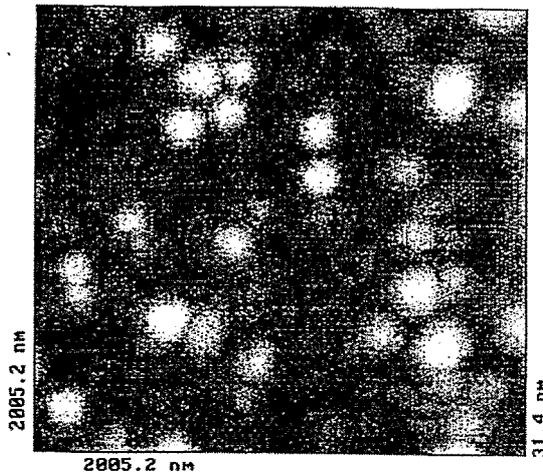


Abbildung 13: AFM-Aufnahme einer angeätzten bei 500°C implantierten und für 2h bei 1300°C ausgeheilten Probe. Zur Erzeugung eines topographischen Kontrastes wurde die Probe analog zur SEM-Präparation einer selektiven Ätzung der SiO₂-Präzipitate unterzogen.

wertung der Tiefenprofile wird abschließend in Abschnitt 4.1.3.7 besprochen.

4.1.3.1 Zusammensetzung der Ätzlösung In der Literatur werden unterschiedliche Lösungen zur Defekt-, Dotierungs- und Präzipitatätzung beschrieben [106, 112]. Die Kenntnis der Ätzmechanismen (vgl. Anhang A) vereinfacht die Wahl eines geeigneten Ätzlösungssystems für die gegebene Problemstellung. Diese besteht hier im formerhaltenden Freilegen der sich in Oberflächennähe befindlichen SiO₂-Präzipitate (vgl. Abs. 3.2.1). Die Ätzlösung muß daher bestimmten Charakteristiken genügen:

- geringe Si-Ätzrate, für die Reproduzierbarkeit der Ergebnisse;
- hohe differentielle Si/SiO₂-Ätzrate, die die Kontrastbildung fördert und eine Erosion der SiO₂-Präzipitate während der Ätzung verhindert;
- geringe Aufrauung der Si-Oberfläche und geringe Neigung zum Defektanätzen, zur besseren Differenzierung der SiO₂-Präzipitate von dem Si-Substrat;
- isotropes (nicht richtungsabhängiges) Ätzverhalten der Lösung, das die Erhaltung der Präzipitatform gewährleistet;
- Entwicklung eines topographischen Kontrastes im SEM schon nach geringen Ätztiefen.

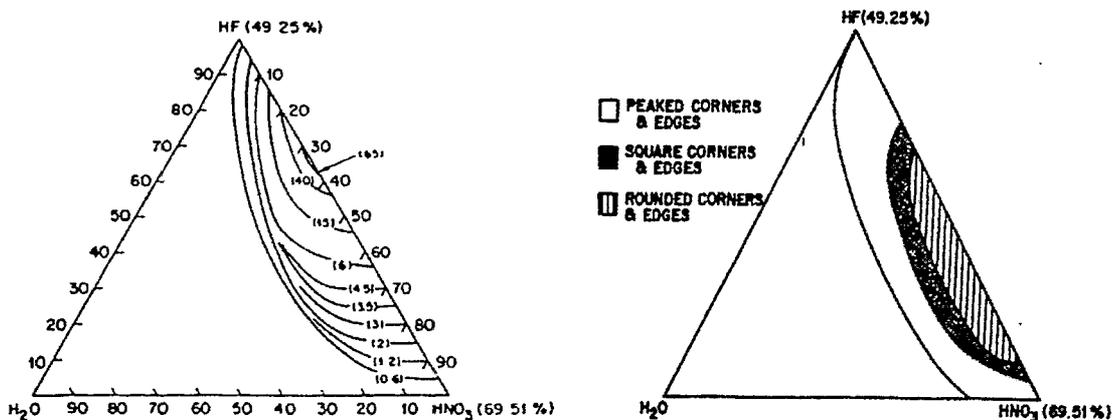


Abbildung 14: Eigenschaften des $\text{HNO}_3/\text{H}_2\text{O}$ -Ätzsystems in Bezug auf Si-Oberflächen nach Schwartz et al. [147]. a.) Ätzraten in μm und b.) Beschreibung der auftretenden Rauigkeiten.

Die Messungen der Ätzraten und Rauigkeiten wurden sowohl an unbehandelten Si-Substraten als auch an Schrägschliffen vorgenommen. Dabei war ein Teil der zu untersuchenden Flächen mit einem thermisch gewachsenen Oxid bedeckt. Die Ätzraten ergaben sich aus einer Regression der nach vier Ätzzeiten (1, 2, 3 und 4 min) abgetragenen SiO_2 - bzw. Si-Schichtendicken. Die Ätztiefe zu jedem Zeitpunkt stellte einen Mittelwert aus an fünf verschiedenen Punkten vorgenommenen Einzelmessungen dar. Die Ätztiefen wurden mit einem Dektak 8000 und die Änderung der Oxiddicke wurde mittels eines Ellipsometers vermessen. Der Si-Abtrag ergab sich dann aus der Höhendifferenz einer in das Substrat geätzten Kante. Die Kante entstand bei dem Übergang eines mit Photolack bedeckten zu dem eines unbedeckten Oberflächenbereiches während der Ätzung. Unter Verwendung eines AFM wurden die relativen Rauigkeiten der Flächen bestimmt und miteinander verglichen.

Ausgangspunkt der zunächst noch an unimplantierten Substraten durchgeführten Untersuchungen sind die von Schwartz und Robbins in [147, 148] beschriebenen Diagramme in Abbildung 14. In diesen sind die Si-Ätzraten (a) und Rauigkeiten (b) nach Ätzungen mit $\text{HNO}_3/\text{H}_2\text{O}$ bzw. Essigsäure/HF-Lösungen in Abhängigkeit von den Zusammensetzungen aufgetragen. Die in den Meßreihen ermittelten Si-Ätzraten für eine ungeschliffene und geschliffene Oberfläche weichen nur geringfügig voneinander ab. Dies zeigt den geringen Einfluß der Nachpolitur bei der Erstellung eines Schrägschliffes auf die Si-Kristallstruktur (vgl. Abs. 3.2.1). Die ermittelten differentiellen Ätzraten stellen lediglich eine obere Grenze dar, da in den vorgestellten Versuchsreihen ein thermisches Oxid verwendet wurde [149]. Dieses weist im Vergleich zu den Si-reicheren vergrabenen Oxiden eine geringere Dichte und eine niedrigere Ätzrate auf.

In einer Versuchsreihe zu dem $\text{HNO}_3/\text{H}_2\text{O}/\text{HF}$ -System wurden die differentiellen und die Si-Ätzzraten für Zusammensetzungen 100:0:1, 90:10:1, 80:20:1 und 70:30:1 bestimmt. Eine eindeutige Verringerung der Si-Ätzzrate bei einem gleichzeitigen Ansteigen der differentiellen Ätzzrate ist für einen zunehmenden Wasseranteil in der Ätzzlösung zu verzeichnen. Die niedrigste Si-Ätzzrate liegt mit 300 nm/min jedoch weit über dem angestrebten Wert von nur wenigen nm pro Minute.

Eine weitere Senkung der Si-Ätzzrate wird mit einer Erhöhung des HNO_3 -Anteils erreicht. Mit verdünnten HNO_3/HF -Lösungen (100:1, 300:1, 1000:1) läßt sich für den höchsten Wert eine Senkung der Si-Ätzzrate bis in den gewünschten Bereich von ca. 20 nm/min erzielen. Das Verhältnis der differentiellen Si/SiO₂-Ätzzraten überschreitet nicht den Wert von ca. 60.

Das Ausmaß, in dem sich die Rauigkeit der Si-Oberfläche nach einer Ätzung in einer Lösung mit einem 10% Essigsäureanteil verringert, wurde für verschiedene HNO_3/HF -Verdünnungsgrade festgehalten. Bei einer mäßigen bis geringen Änderung der Si-Ätzzrate verbessert sich die Oberflächenbeschaffenheit mit dem Essigsäurezusatz. Dieser Effekt tritt mit zunehmender Ätztiefe immer deutlicher hervor.

Die Untersuchungen zur Morphologie angeätzter Präzipitate wurden mit dem SEM durchgeführt. Mit den gewählten Ätzzlösungen, die eine sehr hohe HF-Verdünnung aufwiesen, ist nach 30 nm Si-Abtrag der topologische Kontrast für die Ausbildung von Ätzartefakten, die deutlich von der Umgebung zu unterscheiden sind, ausreichend. Diese treten in Tiefen auf, in welchen die vergrabenen Präzipitatabänder (vgl. Abs. 4.2.4, 5.1.2) zu erwarten sind. In dem Tiefenbereich, in dem sich die Präzipitate befinden, ist eine erhöhte Rauigkeit des Si-Substrates festzustellen. Diese nimmt aber mit der Zunahme der Konzentration an Essigsäure ab. In der Tiefe des Si-Substrates liegt hingegen unabhängig von der Essigsäure-Konzentration eine glatte Oberfläche vor. Es liegt daher der Schluß nahe, daß für den Bereich der Präzipitatabildung ein immer noch über dem Sättigungsgleichgewicht liegender Anteil an gelöstem Sauerstoff vorhanden ist.

Daß die verwendeten Ätzzlösungen tatsächlich für die Präzipitate einen topologischen Kontrast erzeugen, ist leicht bei einem Vergleich der Form der Ätzfiguren in Abbildung 2 bzw. in den planaren TEM-Aufnahmen in [150] zu erkennen. Längere Ätzzeiten legen eine neue Form von Ätzartefakten frei, die charakteristisch für Kristalldefekte [106, 112] sind. Das Kontrastieren von Kristalldefekten nach nur geringen Si-Abtragungen stellt zudem Anforderungen an die Ätzzlösung, die sich von denjenigen der Präzipitatabätzung deutlich unterscheiden [151]. Zusätzlich treten sehr kleine runde und große Präzipitate auf, bei denen eine Verrundung der Ecken bzw. der Verlust einer einfachen geometrischen Form durch Koaleszenz festzustellen ist (Abb. 15c).

Eine Besonderheit stellen die vereinzelt auftretenden Verbindungen zwischen zwei Präzipitaten dar. Die Ursache dieser Erscheinung ist in einer erhöhten Kon-

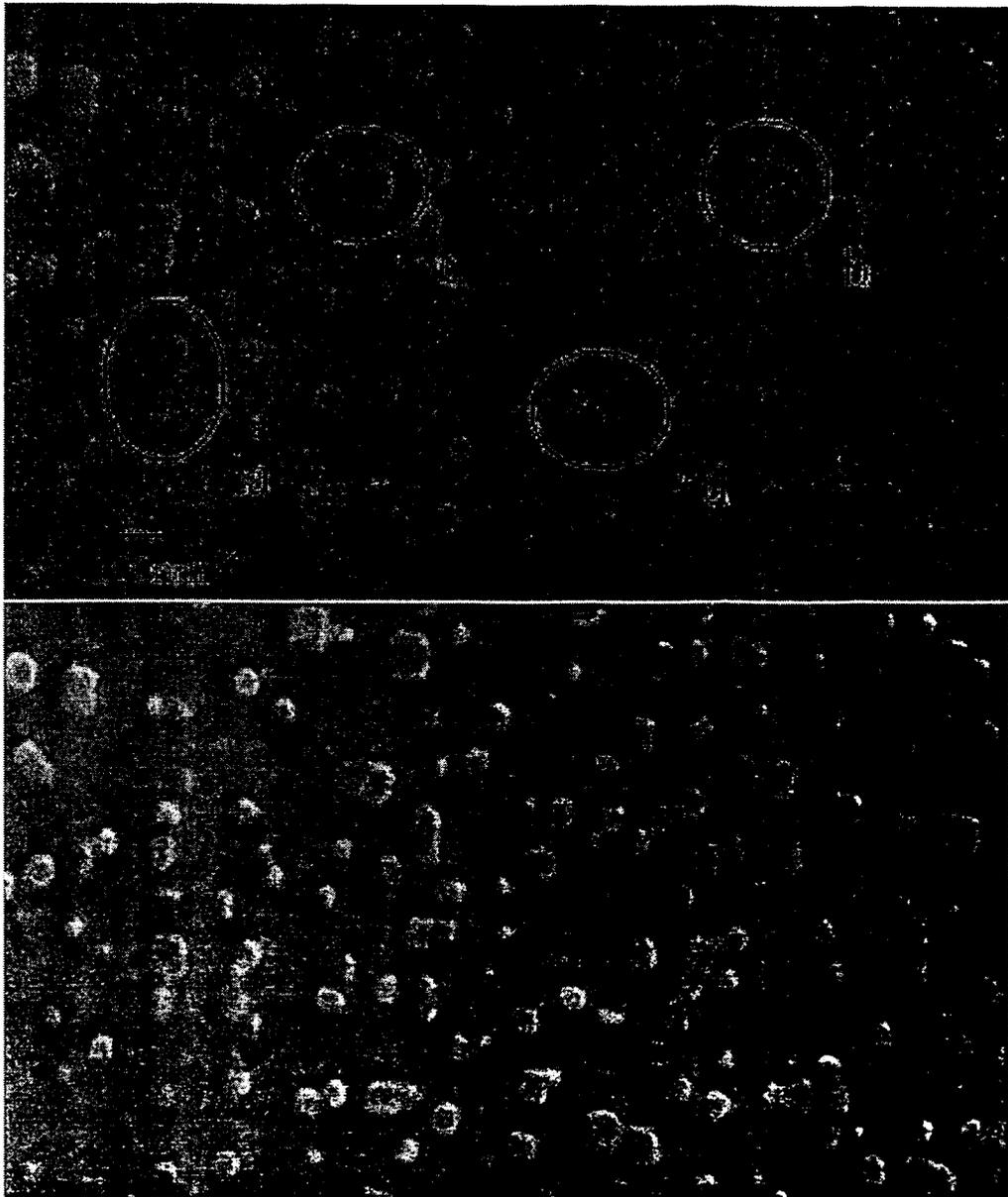


Abbildung 15: Links: (a) wechselwirkende, (b) nahe beieinanderliegende, (c) koaleszierende Präzipitate einer angeätzten Probe, (d) aufgrund der Tiefenlage unterschiedlich stark angeätzte Präzipitate. Rechts: gefiltertes SEM-Bild. Die Proben wurden bei 600°C implantiert, für 2h bei 1300°C ausgeheilt und entsprechend den Ausführungen im Text folgend präpariert.

zentration an Sauerstoff zu sehen. Ein ähnliches Verhalten kann ebenfalls in Dotierungsätzen [152, 153] beobachtet werden, deren Ätzcharakteristik sich mit der Konzentration des Dotanden ändert. Die Verringerung der Ätzrate zeigt einen Bereich erhöhter Sauerstoffkonzentration an und deutet somit auf ein Wechselwirken der beiden Präzipitate über eine 'Sauerstoffbrücke' hin (Abb. 15a). Eine andere, sehr viel schwächer ausgeprägte Erscheinung mit einer ähnlichen Ursache ist in der Ausbildung von Diffusionsvorhöfen zu sehen (vgl. Abs. 2.3.3.4).

Ein Vergleich der Präzipitatätzfiguren mit denjenigen von Ätzlösungen, die oxidischonende Eigenschaften [106] aufweisen, bzw. die zur Ätzung für Präzipitate in CZ-Material herangezogen werden, führt zu keiner weiteren qualitativen Verbesserung der Ätzcharakteristik. Aufgrund des höheren Wasseranteils und der veränderten Oxidationskraft der Ätzlösungen werden Defekte bei vergleichbarer Ätztiefe früher sichtbar, die Oberflächenrauhigkeit nimmt zu, und der Kontrast für die Präzipitate stellt sich erst später ein. Lösungssysteme mit einem stärkeren Oxidationsmittel als HNO_3 können mit z.B. Chrom [154] dargestellt werden. Eine Verdünnung mit Wasser im Verhältnis 1:4 ergibt eine Si-Ätzrate von 100 nm/min. Deutlich treten die Präzipitate in der SEM-Aufnahme hervor, und eine Erhöhung des Essigsäure-Anteils führt zur Glättung des Si-Substrates.

4.1.3.2 Abbildungsprozeß Der implementierte Algorithmus zur Rekonstruktion der SEM-Aufnahmen regularisiert das bestehende inverse Problem unter Verwendung der verallgemeinerten Kreuz-Validierung als Optimalitätskriterium (vgl. Anhang F). Die fließenden Konturen der Bildobjekte (vgl. Abs. 4.1.3.4) und das Fehlen von Bilddetails mit senkrechten Kanten lassen bei der Parametrisierung des Faltungskerns (vgl. Anhang D) einen großen Freiraum. Für die Faltungskerne wird entsprechend dem Elektronenstrahlprofil eine gaußverteilte Form angenommen. Der Faltungskern verfügt nach einer Anpassung meist über eine Größe, die 5×5 Bildpunkte selten überschreitet, d.h. der Elektronenstrahldurchmesser³ liegt den Vergrößerungsfaktor beachtend unter 30 nm. Daß keine nennenswerte Verschärfung der Objektkonturen zu erkennen ist, liegt an der durch den hohen Rauschanteil der SEM-Bilder [155] bedingten starken Regularisierung, die eine starke Glättung zur Folge hat (Abb. 16). Auffällige Rekonstruktionsartefakte [156], die meist die Objekte ringförmig einschließen, sind durch den Einfluß der starken Regularisierung nicht zu beobachten.

Die Bildverbesserung mit dem Differentiellen Hysterese Verfahren (DHP) [157] trägt vielen der in Abschnitt 3.2 angeführten Abbildungsfehler durch das SEM Rechnung bzw. ist daher gut geeignet. Das Verfahren glättet nicht nur den Bildinhalt, sondern erhöht zudem den Kontrast und nimmt Unschärfen heraus. Die für die Präzipitate typischen Strukturen treten stärker hervor. Eine Veränderung in

³Die Auflösung des SEM wird mit dem Abstand gleichgesetzt, bei dem zwei nahe beieinanderliegende Objekte gerade noch zu unterscheiden sind. Dieser Abstand liegt bei den untersuchten SEM-Aufnahmen unter 28 nm.

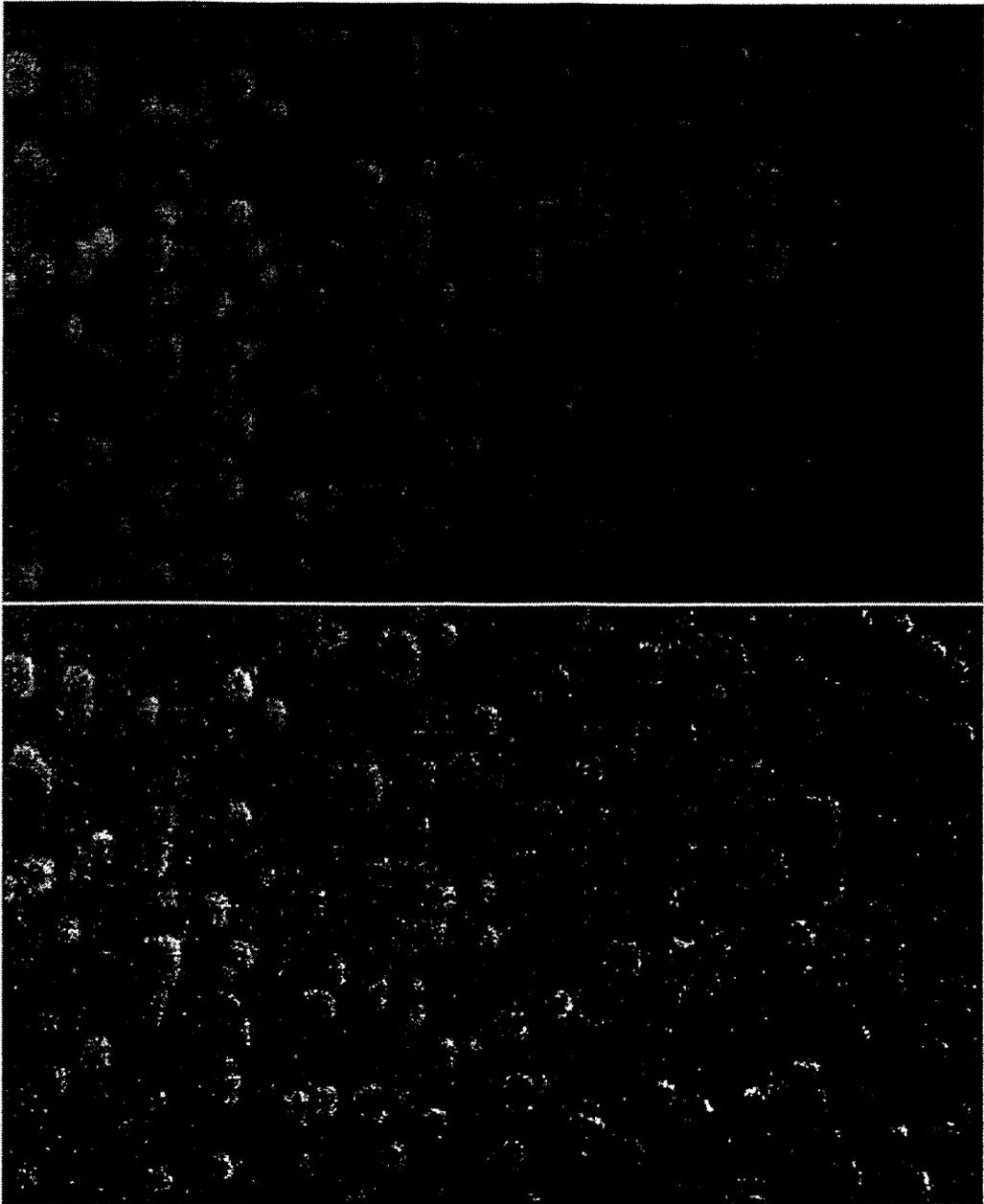


Abbildung 16: Rekonstruiertes (links) und mit dem DHP-Verfahren (rechts) bearbeitetes SEM-Bild. Implantations- und Ausheilparameter sind dem vorhergehenden Bild zu entnehmen.

der Präzipitatdarstellung bleibt jedoch aus. In Hinblick auf die Segmentation (vgl. Abs. 4.1.3.4) ergeben sich keine nennenswerten Vorteile, da eine Möglichkeit für die direkte Anpassung der Objekte [158] an eine einfach zu parametrisierende Form fehlt (vgl. Abs. 4.1.3.4).

Die sehr rechenintensiven Rekonstruktionsverfahren werden nur für vereinzelte Untersuchungen herangezogen (vgl. Abs. 4.1.3.5).

4.1.3.3 Bildfilterung Ein für alle SEM-Aufnahmen typischer Bildinhalt ist in Abbildung 15 wiedergegeben. Es heben sich in diesem die Präzipitate vom Substrat durch die große Helligkeit der Präzipitatränder ab. Diese Änderung der Grauwerte an den Präzipitaträndern erstreckt sich meist über unterschiedlich große Bereiche, bildet aber nur selten einen abrupten Übergang (vgl. Abs. 4.1.3.4). Die Präzipitate selbst sind von solcher Größe, daß sich ihre Zahl und Form durch das Hintergrundrauschen nicht nennenswert verändert. Zum Quantifizieren des Rauschens läßt sich eine Standardabweichung sowohl für den Hintergrund σ_H [159] als auch für signaltragenden Bereiche σ_S [160] angeben. Ein Vergleich der Werte einer SEM-Aufnahme mit denjenigen eines rekonstruierten Bildes – einer naheliegenden Realisation für eine rauschfreie Vorlage – zeigt mit Unterschieden von $\Delta\sigma_H = 16.0$ bzw. $\Delta\sigma_S = 0.2$ in den Standardabweichungen zwar ein starkes Hintergrundrauschen, aber nur ein geringeres signalabhängiges Rauschen. Die Grauwertverteilung zeigt zudem einen hohen Anteil an Datenaussetzern – einzelne Bildpunkte, deren Grauwerte sich deutlich von denjenigen umgebender Bildpunkte unterscheiden.

Das günstigste Verhalten in Bezug auf eine nachfolgende Segmentation zeigen von den in Anhang D beschriebenen Filtern die adaptiven Rangordnungsfiler [161]. Diese weisen bei einer hohen Rauschunterdrückung eine nur geringe Verbreiterung der Objektkonturen auf und glätten sehr effizient den stark ver-rauschten Bildhintergrund.

4.1.3.4 Bildsegmentation Für eine weiterführende Auswertung der SEM-Aufnahmen werden Informationen über Anzahl, Position und Größe der Präzipitate benötigt. Der Form und der inneren Struktur der Präzipitate hingegen wird nur eine geringe Beachtung geschenkt, ebenso ist die Beschaffenheit des Substrates von keinem weiteren Interesse. Mit diesen Gegebenheiten bietet sich die Reduzierung des Bildinhaltes lediglich auf Objektbereiche (einzelne Präzipitate) und einen einheitlichen Hintergrund (Substrat) an.

Die angeätzten größeren Präzipitate der SEM-Aufnahmen verfügen über keine einheitliche Form. Die Präzipitate aus einer (100)-Kristallrichtung betrachtet, sind nicht durch senkrecht abfallende Flächen begrenzt, vielmehr durch die geneigten Flächen des Pyramidenstumpfes (Abb. 2). Im Einklang mit den Abbildungseigenschaften des SEM (vgl. Abs. 3.2) erscheinen die geneigten Flächen nicht als scharfe Übergänge, sondern bilden breite helle Bereiche aus. Das Innere

des Pyramidenstumpfes nimmt denselben Grauwert wie die umgebende Si-Matrix an. Beim Umlaufen der die Präzipitate begrenzenden Ränder ist eine beständige Änderung der Grauwerte festzustellen. Das Auffinden geschlossener Konturen mittels der Präzipitatränder gestaltet sich schwierig, da der vorhandene Kontrast nicht immer ausreicht. Die kleineren Präzipitate hingegen sind an einer runden Form und einem Grauwertmaximum in deren Mittelpunkt zu erkennen. Sowohl für die Präzipitate als auch den Hintergrund sind keine markanten Texturen festzustellen, die zur Segmentierung genutzt werden könnten. Unregelmäßigkeiten der Grauwertverteilung in kleinen Bereichen des Hintergrundes sind lokalen Schwankungen des Ätzvorganges, aber auch z.B. nicht ausreichend angeätzten Präzipitaten zuzuordnen (vgl. Abs. 4.1.3.1, Anhang A). Änderungen des Hintergrundes über größere Gebiete sind meist mit einem ungleichmäßigen Verlauf der Ätzung in Verbindung zu bringen. Dies ist zurückzuführen auf den Materialaustausch zwischen geätzter Oberfläche und dem Volumen der Lösung.

Insgesamt ergibt sich der visuelle Eindruck einer Schattenbildung. Dies kann auch nicht durch eine Veränderung der Probenorientierung verhindert werden. Typisch ist dies ebenfalls für Si-Präzipitate in vergrabenen SiO₂-Schichten [162], obwohl diese unter grundverschiedenen Bedingungen aufgenommen wurden.

Die zuvor beschriebene Grauwertverteilung der Objekte und des Hintergrundes erlauben keine Segmentation der Bilder in einem einzelnen Schritt [161, 163, 164, 165]. Vielmehr sind die Bilder zuerst soweit zu modifizieren, bis mit Hilfe eines geeigneten Segmentationsalgorithmus die verschiedenen Bildregionen eindeutig voneinander unterschieden werden können. Eine Hintergrundkompensation tritt der ungleichmäßigen Ausleuchtung des Bildes und den Unregelmäßigkeiten des Ätzvorganges entgegen. Eine weitere Vereinfachung des Bildinhaltes wird auch bei Verfahren mit mehrfachen Schwellwerten [161] erzielt. Diese beschränken die ursprünglich ca. 80 Graustufen umfassende Grauwertdynamik der SEM-Aufnahmen auf z.B. 8 Grauwerte. Die Präzipitate heben sich nun von weiten Bereichen des Hintergrundes ab, doch erlaubt die variierende Grauwertverteilung innerhalb der Präzipitate noch immer keine eindeutige Segmentation. Daher wird ein Gradientenbild erstellt, mit dessen Unterstützung sich die Konturen der Objekte hervorheben lassen und eine Unterscheidung zwischen dem Inneren eines Präzipitates und dem Hintergrund erlaubt. Bei einigen wenigen Präzipitaten fehlen auch bei sorgfältiger Aufbereitung des Bildmaterials Teile der Kontur und müssen nachträglich angefertigt werden. Dies geschieht manuell, da Algorithmen zur Ergänzung von Konturen [166] sehr rechenintensiv und aufwendig zu implementieren sind. Die Konturen werden dann mit Hilfe eines Regionenwachstumsverfahrens [122] ausgefüllt, das zu einem Binärbild führt und den Abschluß der Segmentation bildet.

Stellenweise sind mehrere Präzipitate durch Sauerstoffbrücken bzw. mangelnde Auflösung in einem Objekt zusammengefaßt. Eine Trennung nahe beieinanderliegender Präzipitate läßt sich über eine Analyse der Konturform erreichen. Der

Bereich mit der am stärksten ausgeprägten Verjüngung wird für eine Separation herangezogen. Weitere implementierte Methoden sind das der invarianten Momente [122] und das Wasserscheideverfahren (vgl. Anhang D). Die Anforderungen dieser Verfahren an die Grauwertverteilung, Größe der Objekte und Formgebung werden durch die Darstellung der Präzipitate in den SEM-Aufnahmen jedoch nur teilweise erfüllt. Die Möglichkeit einer automatischen Auswertung ohne eine manuelle Korrektur ist somit nicht gegeben.

Für Proben mit einer Temperaturbehandlung unter 1250°C reicht die Auflösung der Präzipitate nicht mehr für eine Bildanalyse aus (vgl. Abs. 4.1.3.5).

4.1.3.5 Präzipitatgröße Lassen sich Anzahl und Position der segmentierten Objekte leicht feststellen, bleiben die Angaben zur Präzipitatgröße mit einer gewissen Unsicherheit behaftet. Die Korrektur der Abbildungsfehler nach der Rekonstruktion der SEM-Aufnahmen fallen aufgrund der starken Regularisierung nur gering aus (vgl. Abs. 4.1.3.2). Der Fehler nach einer weniger Rechenzeit benötigten Filterung ist vergleichbar mit dem der rekonstruierten Bilder und wird zur Bildbearbeitung bevorzugt. Es sind die nicht senkrecht abfallenden Ränder der Präzipitate (vgl. Abs. 4.1.3.4), die einen breiten Freiraum für das Festlegen der Präzipitatbegrenzung bei der Segmentation erlauben. Das Anätzen und Goldbedampfen der Proben verwischt den Übergang zwischen Hintergrund und Präzipitat noch zusätzlich. Eine nachträgliche Korrektur der Radiengrößen, die die verschiedenen Aspekte berücksichtigt, kann daher nur als grob angesehen werden.

Für die Diskussion der ermittelten Radiengrößen wird im folgenden angenommen, daß sich die Größe der segmentierten Objekte proportional (bis auf einen additiven Faktor, der dem Abbildungsfehler entspricht) zu denjenigen der Präzipitate ist. Dies sollte insbesondere innerhalb einer Bildreihe gewährleistet sein, da nur eine geringe Varianz in den Beiträgen der Fehlerquellen vorliegt. Die durchzuführenden Betrachtungen beschränken sich so auf relative Radiengrößen und es werden nur Zusammenhänge innerhalb einer Probe herausgestellt. Eine Normierung der gemessenen Radien auf das Probenmittel erlaubt, mit entsprechenden Vorbehalten, den Vergleich von Meßergebnissen mehrerer Proben unterschiedlichen Ursprungs. Dies geschieht analog zu dem Vorgehen in der Metallkunde bei Untersuchungen zum Reifen in unterschiedlichen Materialsystemen [134].

4.1.3.6 Untersuchungsvolumen Für die Messungen der charakteristischen Größen ist eine genaue Kenntnis der Tiefenausdehnung des untersuchten Volumens notwendig. Das Volumen, das mit dem SEM abgebildet wird, erstreckt sich von der Ebene, die relativ zur Substratoberfläche das tiefstgelegene gerade noch aufgelöste Präzipitat erfaßt, bis zu der Ebene des am weitesten herausragenden Präzipitates. Einen ersten Anhaltspunkt für die Ermittlung dieser Beobachtungsgrenzen bietet die Ätztiefe, die sich wie bei der Ermittlung der Ätzraten an einer

Ätzstufe bestimmen läßt. Zu beachten ist, daß SEM-Aufnahmen von Proben mit Ätztiefen unter 20 nm aufgrund eines unzureichenden topologischen Kontrastes einer Auswertung nicht zugänglich sind (vgl. Abs. 4.1.3.1). Die Tiefe $t_{\text{Ätzung}}$ aus Abbildung 10 muß für den Angleich an die Tiefenausdehnung des Beobachtungsvolumens um den Bereich, in dem Präzipitate nicht kontrastiert werden können, korrigiert werden.

Ein direkterer Zugang zu der in Frage stehenden Tiefeninformation liegt in der Analyse von Stereobildpaaren [167]. Zwei um den Basisabstand B verschobene Bilder erlauben eine Nachbildung der topographischen Gegebenheiten der Probenoberfläche (vgl. Anhang E). Die Genauigkeit, mit der das auszumessende Tiefenintervall zu bestimmen ist, hängt mit dem Basisabstand und dem Vergrößerungsmaßstab der Abbildungen zusammen. Ein Basisabstand von nur wenigen μm – einem typischen Wert für die SEM-Untersuchungen – läßt einen Fehler von ± 10 nm für die errechneten Tiefen annehmen. Erwartungsgemäß fallen die Werte der Stereobildauswertung geringer aus als die der Ätztiefenmessung.

4.1.3.7 Auflösung der Tiefeninformation Das für die SEM-Aufnahmen notwendige Anätzen der Proben legt einen Tiefenbereich offen, über dem Dichte und mittlerer Radius der Präzipitate nur als gefaltete Größen zu ermitteln sind (vgl. Abs. 3.3.3). Die Entfaltung der ursprünglichen Tiefenprofile kann:

- zunächst parameterfrei erfolgen. Dem schließt sich eine Modellierung des entfalteten Tiefenprofils an eine gegebene Funktion an.
- in der direkten Anpassung des vermessenen Tiefenprofils an eine gegebene gefaltete Modellfunktion [158, 168] bestehen.

In beiden Verfahren werden die Modellparameter so gewählt, daß die Unterschiede zwischen experimentell ermittelten Daten und den parametrisierten Modellfunktionen – festgehalten in einer χ^2 -Funktion [169] – minimal ausfallen. In die χ^2 -Funktion geht als Annahme die Gaußverteilung der Größen ein, welche aber nicht immer als gegeben vorausgesetzt werden kann. Im Fall poissonverteilter empirischer Daten bietet sich als Ersatz für die χ^2 -Funktion das Matushita-Maß [170] an. Die Verwendung dieses Maßes bietet weiterhin den Vorteil, daß keine zusätzlichen Parameter (z.B. Stärke des Rauschens) nötig sind und in den eingeteilten Tiefenklassen nicht unbedingt Objekte/Präzipitate enthalten sein müssen. Bei einer hohen Anzahl von Datenpunkten und dem Übergang von einer poisson- zu einer gaußförmigen Verteilung der Daten ergibt sich für das Matushita-Maß wieder das durch die χ^2 -Funktion vorgegebene Verhalten [170]. In dem Anpassungsprozeß gehen durch die Regularisierung des Problems noch zusätzlich verfügbare Informationen über das Profil ein (vgl. Anhang F).

Welche der beiden Vorgehensweisen zur Gewinnung der Tiefeninformationen hinzugezogen wird, ist über die Simulation eines entsprechenden Punktmusters zu ermitteln. Die Präzipitatverteilung im Volumen wird mit einem Geburts-

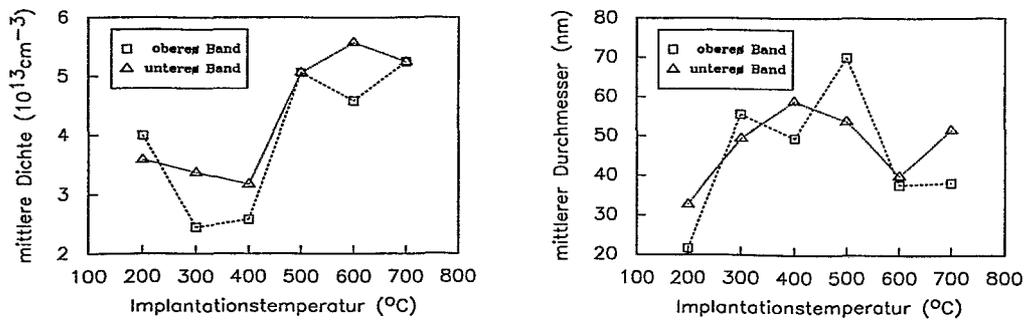


Abbildung 17: Dichte (links) und mittlerer Durchmesser (rechts) der mit 200 keV implantierten und für 2h bei 1300°C ausgeheilten Proben in Abhängigkeit von der Implantationstemperatur. Unter Annahme der Ausbildung einer Zwei-Band-Struktur wird für die Auswertung die sichtbare Präzipitatanammlung in ein oberes und ein unteres Präzipitatband unterteilt.

und Sterbe-Algorithmus erzeugt [171]. Dabei wird eine Zwei-Band Struktur (vgl. Abs. 2.3.3.5) mittels zweier gaußförmiger Maxima entlang der Tiefenachse angenommen. Die Punkte halten zudem einen Mindestabstand voneinander ein, um das Nicht-Überlappen der Präzipitate mitzuberücksichtigen. Eine Ebene, die das Volumen unter einem Winkel α zur Oberfläche schneidet, entspricht dem Schrägschliff des experimentellen Systems. Präzipitate, die im Abstand d senkrecht zu dieser Ebene liegen, werden, um einen angeätzten Schrägschliff nachzubilden, auf diese projiziert. Die direkte Anpassung an die simulierten Daten erweist sich insgesamt als das zuverlässigere Verfahren. So lassen sich zwei symmetrisch angeordnete Gaußverteilungen noch in einem Abstand von 50 nm auflösen. Dabei beträgt der Schliffwinkel 1° und 2000 ausgezählte Präzipitate angenommen sowie eine Verteilungsbreite von 100 nm.

4.2 Implantationsexperimente

4.2.1 Variation der Implantationstemperatur bei 200 keV

Die XTEM-Untersuchungen zeigen die erwartete polyedrische Form (Abb. 2) für die beobachteten Präzipitate in allen Proben. Die für die weiteren Untersuchungen benötigten Präzipitattendichten setzen die Kenntnis des Beobachtungsvolumens voraus. Höhe und Breite können direkt aus den XTEM-Aufnahmen übernommen werden. Die Tiefe ist aus dem präparationsbedingt keilförmigen Beobachtungsvolumen [102] zu bestimmen. Dies geschieht bei gegebener Beschleunigungsspannung und damit bekannter Wellenlänge des analysierenden Elektronenstrahls über die Auswertung der in den XTEM-Aufnahmen erscheinenden Interferenz-

muster.

Eine strenge Anordnung der Präzipitate in zwei Bändern wie in [172] ist bei einer visuellen Betrachtung der XTEM-Aufnahmen in keiner Probe wahrzunehmen. Auch kann eine Konzentration der großen Präzipitate in zwei getrennten Tiefenbereichen nicht erkannt werden. Besteht dennoch eine lockere Anordnung der Präzipitate in zwei Tiefenbereichen, liegt es nahe das Beobachtungsvolumen für die Untersuchungen entsprechend zu teilen (Abb. 17). So werden für einen oberen und einen unteren Präzipitatbereich separate Betrachtungen zum mittleren Radius und der Dichte durchgeführt. Die eingeteilten gleichgroßen Bereiche stellen aber nur eine Näherung dar, da die tatsächliche Verteilung der Präzipitate in den vermuteten Bändern nicht gleichmäßig sein muß.

In Abbildung 17 sind für Implantationstemperaturen unter 400°C geringere Werte für die Präzipitatchichte zu verzeichnen als für Temperaturen über 500°C. In nahezu allen Proben, mit Ausnahme der bei 200°C implantierten Probe, liegt die Dichte des unteren Präzipitatbereichs über derjenigen der darüber befindlichen Hälfte. Der mittlere Präzipitatchdurchmesser, der in beiden Bereichen immer vergleichbare Werte annimmt, durchläuft bei 500°C ein Maximum. Der Volumenanteil (dem Produkt aus Dichte und mittlerem Radius) wird für die Implantationstemperatur von 500°C maximal und zeigt eine hohe Akkumulation von Sauerstoff an. Ein weit unter dem Durchschnitt liegender Wert ergibt sich für 200°C. Für alle Implantationstemperaturen außer derjenigen für 500°C befindet sich die größere gebundene Menge an Sauerstoff im unteren Präzipitatbereich.

4.2.2 Variation der Dosis

In der XTEM-Probe zu der niedrigsten Dosis, der in Abschnitt 3.6.2 beschriebenen Experimente, befinden sich nur vereinzelte Präzipitate, und eine Schätzung der Präzipitatchichte von $1 \times 10^{10} \text{cm}^{-3}$ ist mit der Größenordnung vergleichbar, die in CZ-Material gefunden wird. Die Probe mit einer implantierten Dosis von $3 \times 10^{16} \text{O}^+ \text{cm}^{-2}$ und einer Ausheiltemperatur von 1250°C zeigt die Ausbildung eines einzelnen Präzipitatbandes. Ein Vergleich mit der bei 1100°C ausgeheilten Probe läßt eine Verschmälerung der Sauerstoffverteilung erkennen und eine Verbreiterung der Radienverteilung. Nach der Implantation von $1 \times 10^{17} \text{O}^+ \text{cm}^{-2}$ und einer Ausheilung bei 1250°C von zwei Stunden sind zwei Dichtemaxima zu erkennen. Die Werte für die mittlere Präzipitatgröße in den Bändern liegen nur geringfügig über den Werten der die Bänder umgebenden Bereiche. In der mit einer Temperatur von 1100°C ausgeheilten Probe der gleichen Dosis ist wiederum eine weitgehend homogene Verteilung der Präzipitate festzustellen und die Variation der Präzipitatgrößen nur gering ausgeprägt. In den reifenden Systemen ist keine Koaleszenz der Präzipitate zu erkennen. Über andere auf das Reifen einflußnehmende Größen, die mit den Implantationsbedingungen festgelegt sind (wie z.B. die Defektverteilung), lassen sich keine Aussagen treffen.

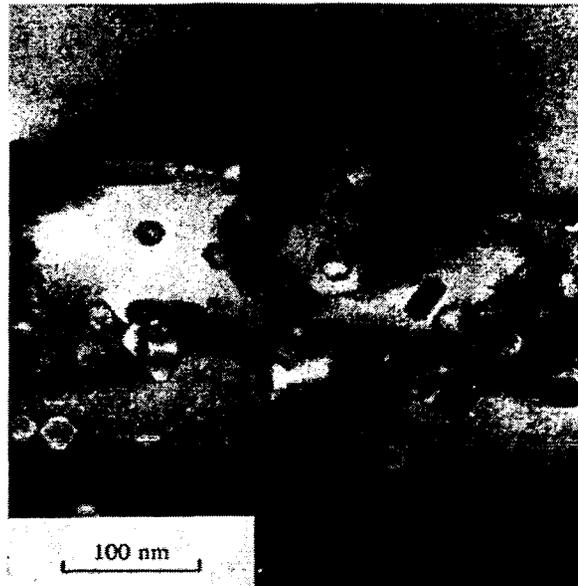


Abbildung 18: XTEM-Aufnahme einer bei 500°C mit einer Dosis von $1 \times 10^{17} \text{O}^+/\text{cm}^2$ implantierten und für 2h bei 1250°C ausgeheilten Probe.

4.2.3 Variation der Ausheiltemperatur

Die Form der Präzipitate in den XTEM Aufnahmen (vgl. Abs. 3.6.3) entspricht ebenfalls dem Schnitt durch den Stumpf einer Bi-Pyramide (Abb. 2). Nur die kleinsten Präzipitate besitzen eine sphärische Form. Eine Abrundung der Kanten bei den größeren Präzipitaten, wie sie nach Ausheilungen bei sehr hohen Temperaturen auftritt [89], ist nicht zu beobachten. In den XTEM-Aufnahmen sind mit den ausgedehnten Defekten weitere Kontraste vorhanden, die diejenigen der Präzipitate überlagern. Bei Temperaturen größer als 1200°C kann für die Proben nur noch eine geringe Defektdichte festgestellt werden.

Für die Temperatur von 1200°C liegt die Größe der Präzipitate durchschnittlich bei weniger als 20 nm. Eine eingehendere Auswertung der Größenverteilung ist aufgrund der hohen Defektdichte aber nicht möglich.

Die sich bei hohen Temperaturen ausbildende Zwei-Band-Struktur (vgl. Abs. 2.3.3.5) ist in der bei 1250°C ausgeheilten Probe schon in Ansätzen zu erkennen. Die Konzentration größerer Präzipitate liegt in den beiden Tiefenbereichen der Bänder höher als in deren unmittelbaren Umgebung.

4.2.4 Variation der Implantationstemperatur und der Ausheildauer

Die Analysen der Proben zu den Experimenten mit der Implantationsenergie von 300 keV in Abschnitt 3.6.4 wurden nach qualitativen XTEM-Untersuchungen der

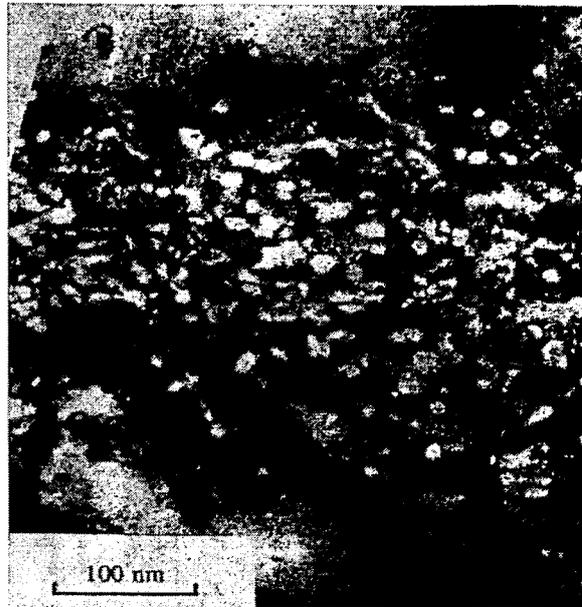


Abbildung 19: XTEM-Aufnahme einer bei 500°C mit einer Dosis von $1 \times 10^{17} \text{O}^+/\text{cm}^2$ implantierten und für 2h bei 1200°C ausgeheilten Probe.

Abschnitte 4.2.2 und 4.2.3 ausschließlich mit dem SEM durchgeführt.

Allgemein wird für alle Proben angenommen, daß die Präzipitat- und Radienverteilung in dem untersuchten Beobachtungsfenster repräsentativ für die gesamte Probe ist (vgl. Abs. 3.3.2.1). Untersuchungen, die speziell die Translationsinvarianz und die Isotropie der Präzipitatverteilung analysieren, wurden nicht durchgeführt. Es gilt zu bedenken, daß zur Bestimmung eines Meßfehlers nur unter bestimmten Umständen (Ergodizität der Präzipitatverteilung [124, 135]) eine Vergrößerung des Beobachtungsfensters auch zu einer abnehmenden Varianz der gemittelten Größen (z.B. Präzipitatchichte) führt. Mit der Untersuchung größerer Flächen [137] (von Beobachtungsfenster an mehreren weit verstreuten Stellen) wird die lokale (globale) Translationsinvarianz und Isotropie geprüft. Beide Eigenschaften sind jedoch schon Bestandteil der zuvor beschriebenen Annahmen. Mit diesen hypothetischen Ergebnissen ließen sich Aussagen z.B. über die Homogenität der Implantation machen, die für die Reifungsuntersuchungen nur von eingeschränktem Interesse wären.

Vom statistischen Standpunkt aus ist mit den SEM-Untersuchungen gegenüber den konventionellen XTEM-Untersuchungen ein deutlicher Vorteil zu verzeichnen. Doch reichen die Analysen mit ca. 100 ausgezählten Präzipitaten pro Tiefenklasse nicht an die in der Metallographie üblichen z.T. mehrere tausend Präzipitate umfassenden Untersuchungen heran. D.h. es müßte ca. ein Zehnfaches an Bildmaterial ausgewertet werden. Das würde bei nunmehr noch fünf Bildern pro

Probe und vierundzwanzig Proben bedeuten, daß über tausend SEM-Bilder aufzunehmen wären. Für eine allgemeine Betrachtung der Reifungsphänomene ist die Qualität der erhaltenen Ergebnisse jedoch hinreichend. Messungen mit größerer Präzision sind Untersuchungen ausgewählter Aspekte vorbehalten und damit Gegenstand weiterführender eigenständiger Arbeiten.

4.2.4.1 Tiefenprofile Für die Bestimmung der mittleren Radien und der Dichten (Abb. 20, 21) wurde das Beobachtungsgebiet auf dem Schrägschliff in 10 nm breite Intervalle der absoluten Tiefenskala (gemessen senkrecht zur Oberfläche) eingeteilt (vgl. Abs. 3.3.3). Die Tiefenangaben beziehen sich auf den Beginn des Beobachtungsgebietes, das mit dem zur Oberfläche nächstliegenden Präzipitat zusammenfällt. Die Auswertung der Meßgrößen (vgl. Abs. 3.3.2.2 - 3.3.2.4) erfolgte getrennt für jedes dieser Intervalle. Die Zahl der zu untersuchenden Präzipitate in einer Probe variierte von 1000 bis 2500. Der genaue Wert hängt in einem hohen Maße von dem durch die gewählten Präparationsparameter bestimmten absoluten Präzipitataufkommen, der Ätztiefe und dem Schliffwinkel ab. In den einzelnen Tiefenintervallen befanden sich jedoch immer mindestens 100 Präzipitate, ausgenommen sind dabei die Randbereiche. Eine weitere Ausdehnung der Intervalle zur Glättung der Kurven würde charakteristische Merkmale soweit verbreitern, daß diese nicht mehr erkannt werden können [136].

Eine parametrische Anpassung der Kurven erfolgte unter Verwendung von gaußförmigen Verteilungsfunktionen und einer Faltungsfunktion, die sich aus dem Ätzprofil ergibt (vgl. Abs. 3.3.3, Anhang F). Bei den abgebildeten Anpassungskurven handelt es sich um eine Rückfaltung der erhaltenen parametrischen Funktionen. Das soll einen besseren Vergleich mit den empirischen Daten ermöglichen. Die Kurven des mittleren Radius sind nicht immer eindeutig mit gaußförmigen Verteilungen anzupassen, und es erscheinen stückweise definierte polynomische Funktionen ersten Grades günstiger. Eine numerische Behandlung dieses Entscheidungsproblems [173] zwischen den beiden Verteilungsfunktionen soll zugunsten einer rein visuellen Inspektion zurückgestellt werden, da in jedem Fall die Bedeutung von Datenausreißern für das Profil vor einer numerischen Behandlung festzulegen ist. Aus Gründen der Übersicht werden die Radienverteilungen ausschließlich mit gaußförmigen Profilen parametrisch angepaßt. Mittlerer Radius, Dichte und die zugeordneten Anpassungskurven sind für eine qualitative Betrachtung Abschnitt 2.3.3.5 folgend in einem Graphen zusammengefaßt (Abb. 20 und 21).

Entsprechend zu den Experimenten zur Variation der Implantationstemperatur (vgl. Abs. 4.2.1) werden in Abbildung 20 die Proben mit einer Ausheilzeit von zwei Stunden dargestellt.

In den Kurven zu den Proben mit einer Implantationstemperatur unterhalb von 600°C sind mindestens zwei Dichtemaxima zu erkennen, deren Formen nähe-

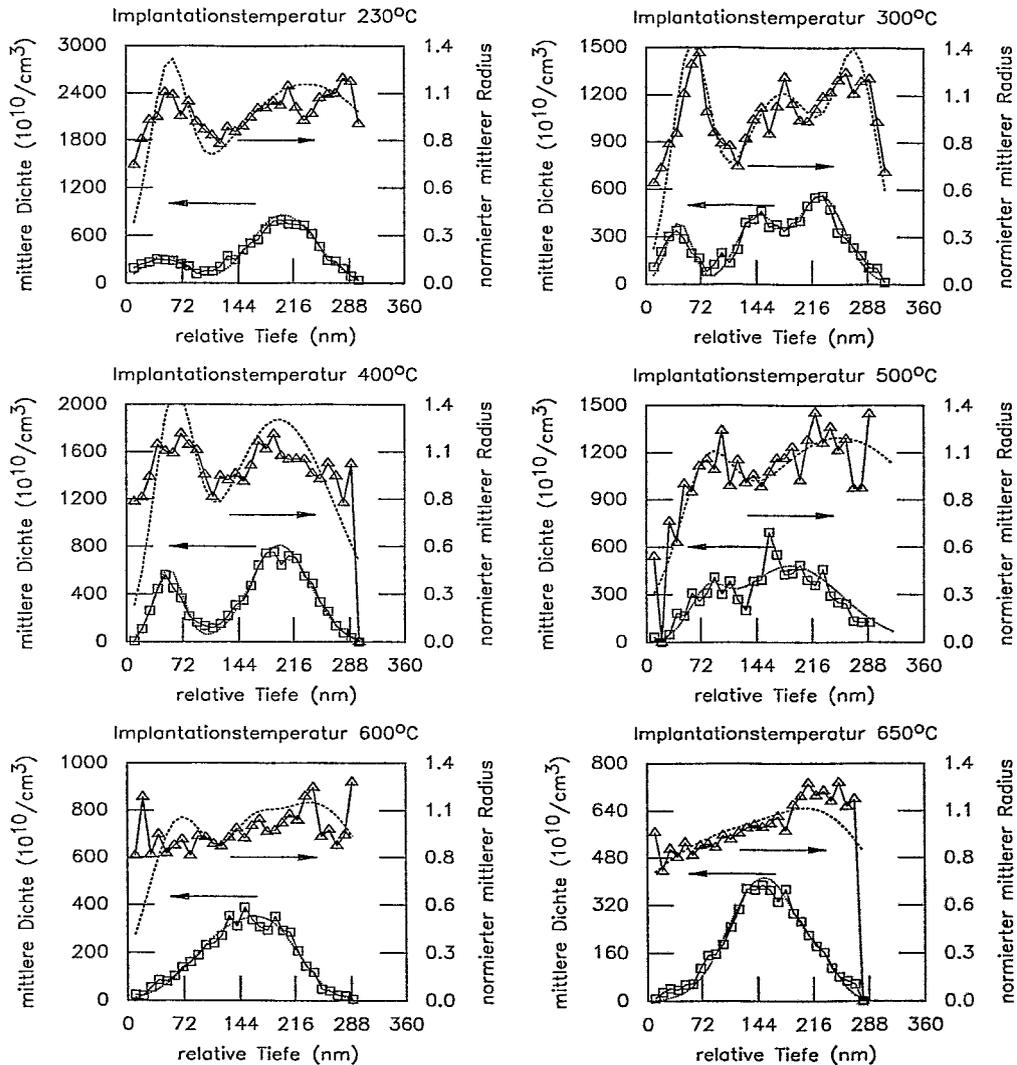


Abbildung 20: Probenreihe mit Implantationstemperatur zwischen 230°C und 650°C jeweils ausgeheilt bei 1300°C für 2h. Dargestellt sind die bestimmten Werte für die mittlere Dichte (\square) und der normierte mittlere Radius (\triangle). Die Normierung bezieht sich dabei auf den mittleren Radius aller Präzipitate in der jeweiligen Probe. Die Anpassung an die Dichte und Radius sind mit der durchgezogenen bzw. gestrichelten Linie in dem Diagramm wiedergegeben.

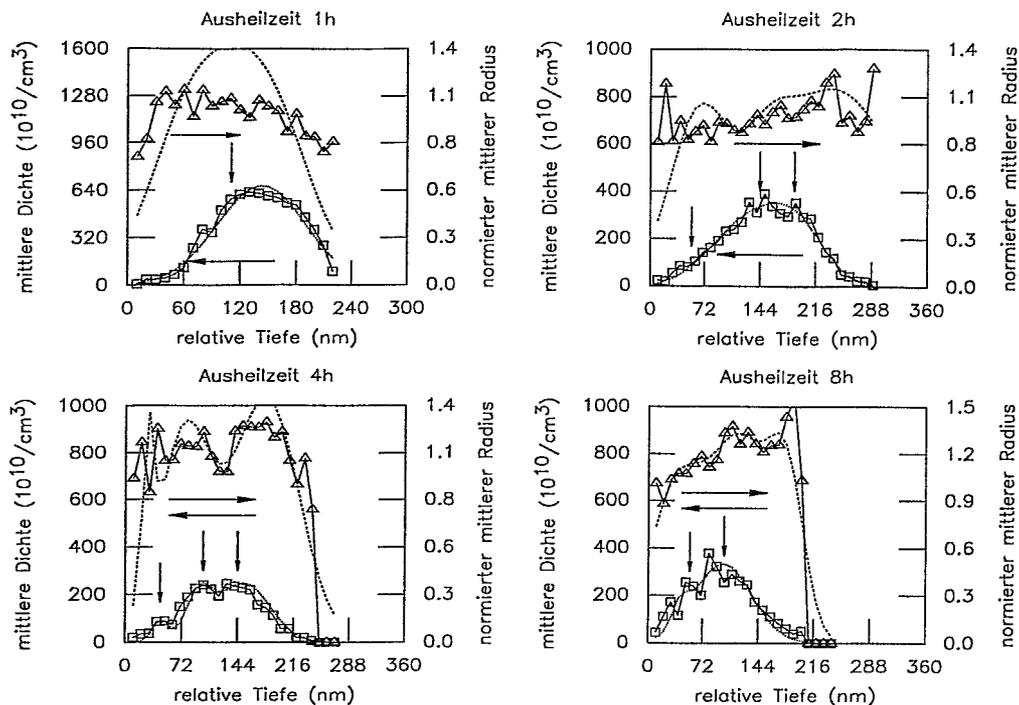


Abbildung 21: Probenreihe der bei 600°C implantierten und bei 1300°C für unterschiedliche Zeiten ausgeheilten Proben. Die Größen und Symbole entsprechen denjenigen der vorhergehenden Abbildung. Die senkrechten Pfeile kennzeichnen die für die Anpassung verwendeten Positionen der Dichtemaxima.

rungsweise einer Gaußverteilung folgen. Das Dichteverhältnis der beiden Maxima zueinander fällt bei Temperaturen bis 500°C zugunsten des tiefergelegenen zweiten Maximums aus. Ein Zusammenwachsen der beiden Maxima beginnt mit der Implantation bei 500°C und mündet für die Implantation bei 650°C in einem vollständigen Auflösen des ersten näher zur Oberfläche gelegenen Maximums in dem zweiten Maximum. Das so verbleibende Maximum verfügt über ein stark asymmetrisch verlaufendes Tiefenprofil mit einer abgeflachten Spitze. Bei den Implantationstemperaturen von 300°C und 600°C fällt weiterhin die Aufspaltung des zweiten Dichtemaximums auf.

Den ersten – näher zur Oberfläche gelegenen – Radiusmaxima können bis zu einer Implantationstemperatur von 500°C analog zu den Dichtemaxima gaußförmige Profile angepaßt werden. Für Temperaturen über 500°C lassen sich keine verlässlichen Aussagen zur Position des ersten Maximums mehr gewinnen. Die Radiusprofile bilden beginnend in der Tiefe des zweiten Dichtemaximums ein breites flaches Maximum aus. Diese Struktur in den Radiusprofilen ist kein Fal-tungsartefakt (vgl. Abs. 4.1.3.6) und wird in Abschnitt 5.2.1 noch eingehender

besprochen.

Die Entwicklung der Strukturbildung während der Ausheilung wird exemplarisch anhand der bei 600°C implantierten Proben in Abbildung 21 aufgezeigt. Die Ausheilzeiten betragen 1, 2, 4 und 8 Stunden. Die Trennung des ersten von dem zweiten Dichtemaximum ist im Vergleich zu den bei geringerer Temperatur implantierten Proben nur noch gering ausgebildet. Das erste Dichtemaximum löst sich nach achtstündiger Ausheilung vollständig auf, wogegen das zweite Maximum erhalten bleibt. Die nach vier Stunden Ausheilung zu beobachtende Strukturbildung im zweiten Dichtemaximum fällt nicht ganz so tiefgreifend aus wie diejenige der bei 300°C implantierten und für zwei Stunden ausgeheilten Probe. Die einmal entstandene Struktur bei der Probe mit der niedrigeren Implantationstemperatur löst sich schnell wieder auf. Hingegen ist in der Kurve für die Probe mit der höheren Implantationstemperatur nach einer achtstündigen Ausheilzeit die Doppelgaußverteilung in abgeschwächter Form noch vorhanden. Auffällig ist bei beiden Implantationstemperaturen die flache Kurvenform des mittleren Radius im Bereich des zweiten Dichtemaximums bevor die Strukturbildung einsetzt (vgl. Abs. 5.2.1).

4.2.4.2 Korrelationen und Verteilungen Zur Charakterisierung der lateralen Struktur der Präzipitatbänder werden zu den Größen des vorhergehenden Abschnittes noch diejenigen der räumlichen Statistik und Radiusverteilungen hinzugezogen (vgl. Abs. 3.3.2.4). Durch die ex-situ durchgeführten Untersuchungen steht der Analyse für jeden Zeitpunkt der Zeitreihen eine andere Probe zur Verfügung. D.h., daß für eine Beschreibung der Entwicklung innerhalb einer Zeitreihe nur gemittelte Größen hinzugezogen werden können. Die folgenden Betrachtungen gehen dabei besonders auf die Strukturbildung im zweiten tieferliegenden Dichtemaximum ein.

Für entstehende Meßfehler behalten die Überlegungen aus Abschnitt 4.2.4 weiterhin ihre Gültigkeit, wobei die Zahl der erfaßten Präzipitate sich hier auf 300 - 400 beläuft. Darüberhinaus gibt es in der geometrischen Statistik verschiedene Methoden, um die Homogenität eines Poisson-Punktfeldes zu überprüfen [135]. Doch liegen gerade in den Abweichungen zu einer Poisson-verteilten Präzipitanordnung die für die Reifungsuntersuchungen relevanten Informationen (vgl. Abs. 5.2.2.4). Um einen ein-prozentigen Fehler festzustellen, werden bei parametrisch zu beschreibenden Punktfelder (verschiedene Cluster-, Hard-Core-, Soft-Core-Modelle) in der geometrischen Statistik hundert unabhängige Punktmuster simuliert. Für jedes der Punktmuster wird die gewählte Korrelation bestimmt. Der größte bzw. kleinste Korrelationswert zu einem jeden Abstand gibt dann den gesuchten Fehlerbereich an. Der numerische und rechentechnische Aufwand für die Parameterbestimmung zu den Punktmodellen ist sehr hoch [174]. Der Fehler, der sich durch die verwendeten Algorithmen ergibt, hängt von dem jeweils gewählten Punktmodell als auch von dem zu untersuchenden Parameterbereich

ab. Der gesamte Vorgang der Fehleranalyse läßt sich somit nur bedingt für Reihenuntersuchungen automatisieren [175].

Paarkorrelationen In Abbildung 22 sind die Paarkorrelationen für Proben mit unterschiedlichen Implantationstemperaturen (300°C, 600°C und 650°C) und Ausheilzeiten aufgetragen. Der Hard-Core-Abstand liegt zwischen 40 - 60 nm und die Reichweite der maximalen Wechselwirkung reicht bis in Entfernungen von ca. 300 nm. Die Form der Korrelationsfunktionen gleicht derjenigen, wie sie für Soft-Core-Modelle erwartet werden (vgl. Abs. 3.3.2.4).

Die für die Implantationstemperaturen von 300°C zusammengestellten Paarkorrelationen weisen für alle Ausheilzeiten einen Hard-Core-Abstand von ca. 20 nm auf. Dabei fällt der Anstieg in dem Bereich des Übergangs von einer Nah- zu einer Fernordnung der Präzipitate unterschiedlich steil aus. Ein niedriges erstes Maximum bildet sich allein nach einer vier Stunden dauernden Ausheilung aus. Der Hard-Core-Abstand für die bei 600°C implantierten Proben stimmt nach ein und zwei Stunden bzw. vier und acht Stunden überein. Ähnliches trifft auch auf die Proben mit der Implantationstemperatur von 650°C zu. Hier ist jedoch eine Zunahme des Hard-Core-Abstandes mit der Zeit festzustellen.

Nächste Nachbarn Typische Nächste Nachbarn-Verteilungen [135] von Präzipitaten sind in Abbildung 23 dargestellt. In einer Zusammenstellung der Kurven mit der höchsten Ausheilzeit ist die weitgehend symmetrische Gestalt zu beachten. Lediglich zu großen Abständen hin bilden sich teilweise ausgedehnte schnell abfallende Ausläufer aus. Der mittlere Wert für das Maximum – dem Bereich mit der größten Wahrscheinlichkeit ein nächstgelegenes Präzipitat aufzufinden – liegt bei 150 - 200 nm. Eine Ausnahme bildet die Probe, die bei einer Temperatur von 230°C implantiert ist. Für diese nimmt der mittlere Abstand mit 100 nm einen geringeren Wert ein.

In den Kurven zu den Proben mit einer Implantationstemperatur von 300°C ist eine Veränderung der Nächste Nachbarn-Verteilungsfunktion festzustellen. Die ursprüngliche Gaußform erhält mit zunehmender Zeit einen sich immer stärker ausbildenden Ausläufer zu großen Abständen hin. Die Form der Verteilung verändert sich zwischen zwei und vier Stunden nur sehr wenig. Die Hard-Core-Abstände sind wie schon bei den Paarkorrelationen gleich groß, während der mittlere Abstand aber mit der Zeit anwächst. Ein vergleichbares Verhalten bezüglich der Veränderung der Form der Verteilungsfunktion ist für die Proben zur Implantationstemperatur von 600°C festzustellen. In dem Zeitabschnitt, der sich von der ersten zur zweiten Stunde erstreckt, entwickelt sich die Verteilung nur in einem geringen Umfang weiter. Ein solcher Bereich geringer Veränderung besteht ebenfalls für bei 650°C implantierte Proben von der vierten bis zur achten Stunde der Ausheilung. Die Verteilungen verbreitern sich ansonsten deutlich mit der Zeit. Zu verzeichnen ist weiterhin eine Vergrößerung des mittleren Abstandes

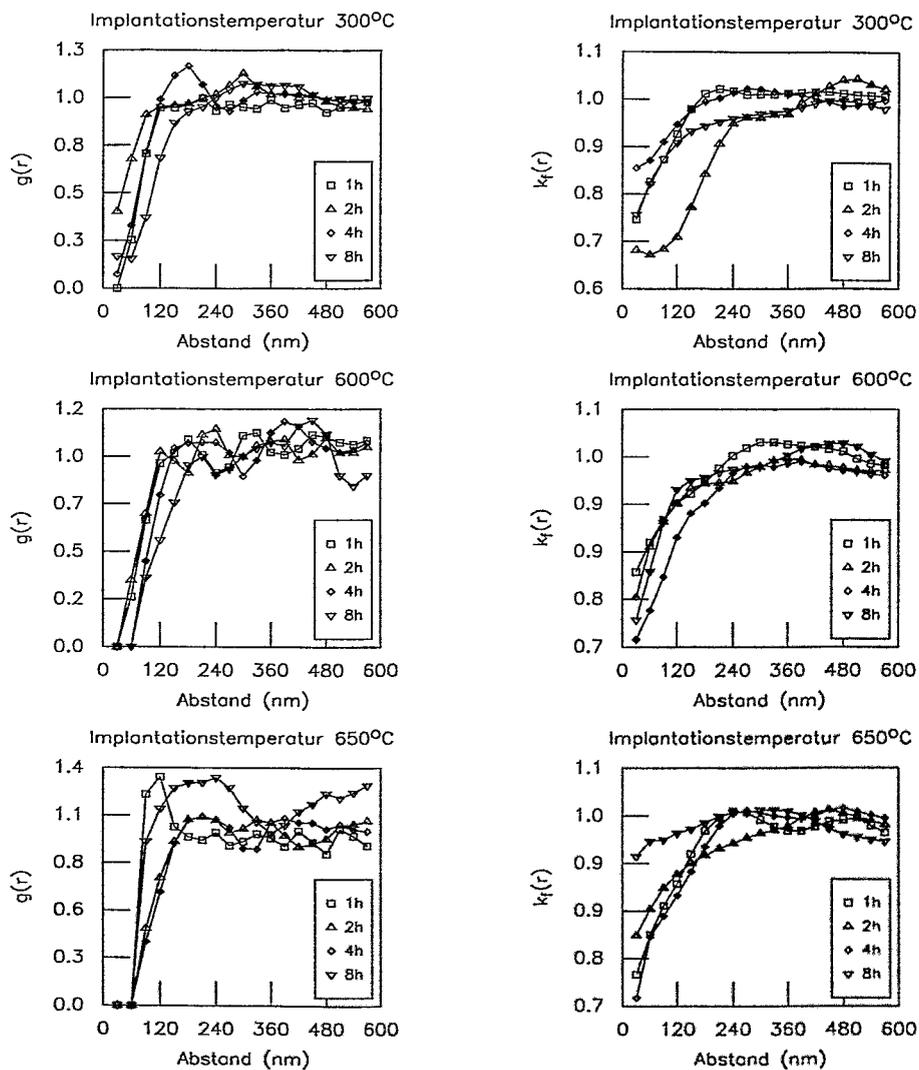


Abbildung 22: Paarkorrelationsfunktion $g(r)$ und Markovkorrelationsfunktion $k_f(r)$ im zweiten Dichtemaximum für Implantationstemperaturen von 300°C, 600°C und 650°C zu den angegebenen Ausheilzeiten.

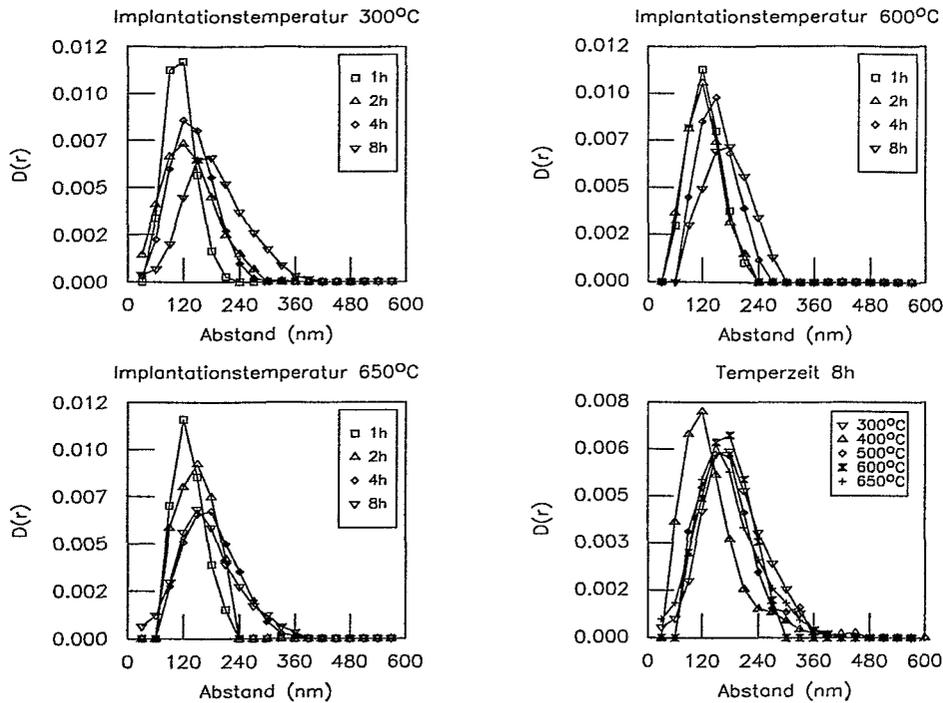


Abbildung 23: Nächste Nachbarn-Funktion $D(r)$ im zweiten Dichtemaximum für Implantationstemperaturen von 300°C , 600°C und 650°C zu den angegebenen Ausheilzeiten. Rechts unten: Nächste Nachbarn-Funktion $D(r)$ im zweiten Dichtemaximum nach einer Ausheilzeit von 8h zu den angegebenen Implantationstemperaturen.

mit anhaltender Ausheildauer.

Radienverteilung Die gemessenen Radienverteilungen, die zur Beschreibung des Reifens unerlässlich sind, werden in Abbildung 24 dargestellt. In den Proben mit einer achtstündigen Ausheilung sind drei Formen von Radienverteilungen zu unterscheiden:

- eine asymmetrische Form mit einer Verschiebung des Schwerpunktes zu niedrigeren Radien ergibt sich für die Proben mit den Implantationstemperatur von 300°C und 600°C . Gleiches gilt für die bei 400°C und 500°C implantierten Proben, jedoch verfügen diese über einen geringeren mittleren Radius.
- eine weitgehend symmetrische Form behält die Probe mit der höchsten Implantationstemperatur bei.
- eine Ausnahme bildet wie schon bei den Nächste Nachbarn-Verteilungen die

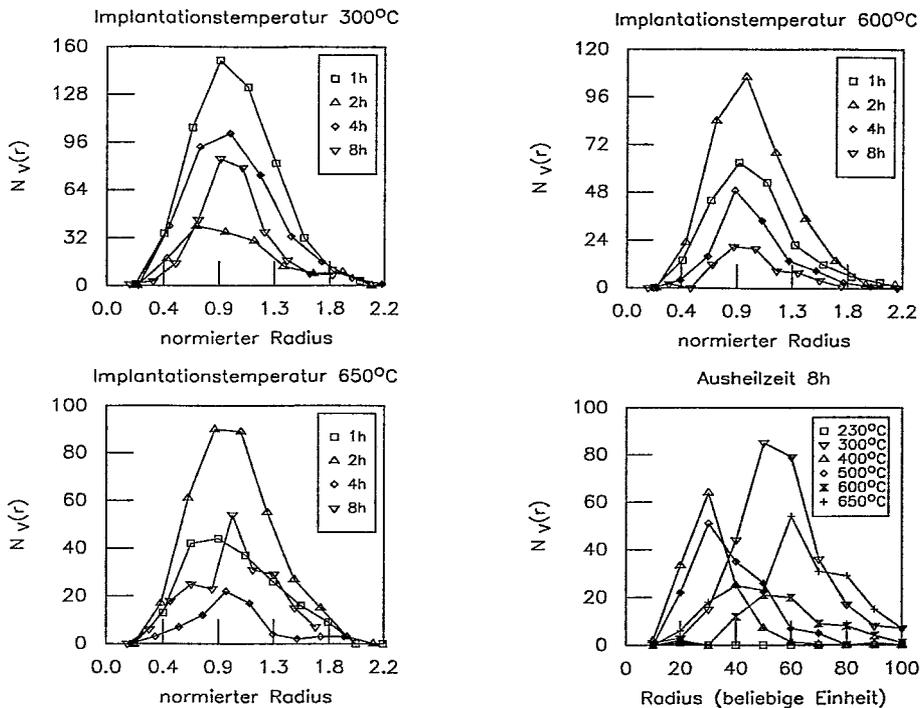


Abbildung 24: Normierte Radienverteilung $N_V(r)$ im zweiten Dichtemaximum für Implantationstemperaturen von 300°C, 600°C und 650°C zu den angegebenen Ausheilzeiten. Rechts unten: Normierte Radienverteilung $N_V(r)$ im zweiten Dichtemaximum nach einer Ausheilzeit von 8h zu den angegebenen Implantationstemperaturen.

Probe mit der Implantationstemperatur von 230°C, deren Radienverteilung über einen breiten Tiefenbereich einen nahezu konstanten Verlauf annimmt.

Allen dargestellten Untersuchungen zur zeitlichen Entwicklung der Radienverteilung gemeinsam ist die Änderung der Radienverteilung von einer rechtsschiefen zu einer mehr symmetrischen Form. Die Proben mit der Implantationstemperatur von 300°C und 600°C, die durch eine Aufspaltung des zweiten Dichtemaximums gekennzeichnet sind, durchlaufen einen Zwischenzustand mit einer Verteilungsform, deren Vorderseite einen Knick aufweist, um steiler anzusteigen und eine hintere Seite, die über eine mehr ründliche Form verfügt. Eine ähnliche Verteilungsform, nur nicht ganz so ausgeprägt, läßt sich auch für die einstündige Ausheilung einer bei 650°C implantierten Probe erkennen.

Radienkorrelationen Das Wachstum der Präzipitate beim Reifen und unter dem Einfluß von Spannungen ist eng an deren Größe (vgl. Abs. 2.1.3.4) gebunden. So liegt es nahe, Veränderungen in der Präzipitatverteilung auch in

Abhängigkeit der Präzipitatgröße zu untersuchen. Die bei hohen Volumenanteilen zunehmenden direkten Wechselwirkungen können damit durch geeignet aufgestellte Radienkorrelationsfunktionen erfasst werden.

Ein erster Ansatz ergibt sich mit der der Paarkorrelation nahestehenden Markenkorrelation $k_f(r)$ (vgl. Abs. 3.3.2.4). In Abbildung 22 sind keine spezifischen Merkmale zu erkennen, die einen Zusammenhang mit den physikalischen Vorgängen in den Proben herstellen (vgl. Abs. 5.2.2). Die in die Korrelationen eingehenden Präzipitatgrößen sind nicht weiter unterteilt und geben ein nur sehr undifferenziertes Bild der Präzipitatverteilung wieder. Im folgenden werden Korrelationen vorgestellt, die die Beziehungen zwischen Präzipitaten unterschiedlicher Größe stärker mitberücksichtigen.

Radienkorrelationen $g_{ss}(r)$ und $g_{bs}(r)$

Für einen Reifungsprozeß mit wachsenden und in Lösung gehenden Präzipitaten können Korrelationsfunktionen angegeben werden, die zwischen Präzipitatgrößen unterscheiden, die über (Index b) bzw. unter (Index s) dem kritischen Radius liegen. Der kritische Radius wird dabei mit dem mittleren Radius gleichgesetzt ([34], vgl. Abs. 5.2.3.2).

Die Korrelation $g_{ss}(r)$ gibt die Dichteverteilung kleiner Präzipitate in der Umgebung kleiner Präzipitate wieder und $g_{bs}(r)$ diejenige kleiner Präzipitate in der Umgebung großer Präzipitate. Für das zu untersuchende Reifen wird in der Umgebung großer Präzipitate ein häufigeres Auftreten von kleinen Präzipitaten erwartet, die den stattfindenden Umverteilungsprozeß andeuten. Daraus ergibt sich, daß nur eine geringe Wahrscheinlichkeit dafür besteht, kleine Präzipitate in der Umgebung kleiner Präzipitate anzutreffen [49].

Für alle Proben charakteristisch ist der bis zu einer Entfernung von ca. 300 nm hohe Korrelationswert für $g_{ss}(r)$. Ausnahmen bilden lediglich die Proben bei 300°C/4h (Implantationstemperatur/Ausheilzeit), 300°C/8h und 600°C/8h, deren Werte auch unter das Gleichverteilungsniveau mit dem Wert 1 fallen.

Die Korrelationsfunktion $g_{bs}(r)$ zeigt bei der Implantationstemperatur von 300°C im Bereich bis 150 nm eine große Veränderung in der Präzipitatverteilung an. Mit dem Übergang von der zwei- zur vierstündigen Ausheilung ist ein deutlicher Wechsel von niedrigen zu hohen Korrelationswerten zu verzeichnen. Gleiches kann für die bei 600°C implantierten Probenreihe beobachtet werden. Der Wechsel in den Korrelationswerten findet jedoch in umgekehrter Richtung statt. In der Probe mit einer Implantationstemperatur von 650°C fällt der sehr hohe Korrelationswert nach einer achtstündigen Ausheilung auf. Die verbleibenden Korrelationsfunktionen weisen weiterhin nur noch geringe Abweichungen von einer Gleichverteilung in $g_{bs}(r)$ auf.

Radienkorrelationen $g_{\parallel ss}(r)$ und $g_{\parallel bb}(r)$

Für die Untersuchungen zu dem Aufbau von Spannungen findet eine Korrelationsfunktion Verwendung, die Präzipitate mit gleichem Radius (mit einer To-

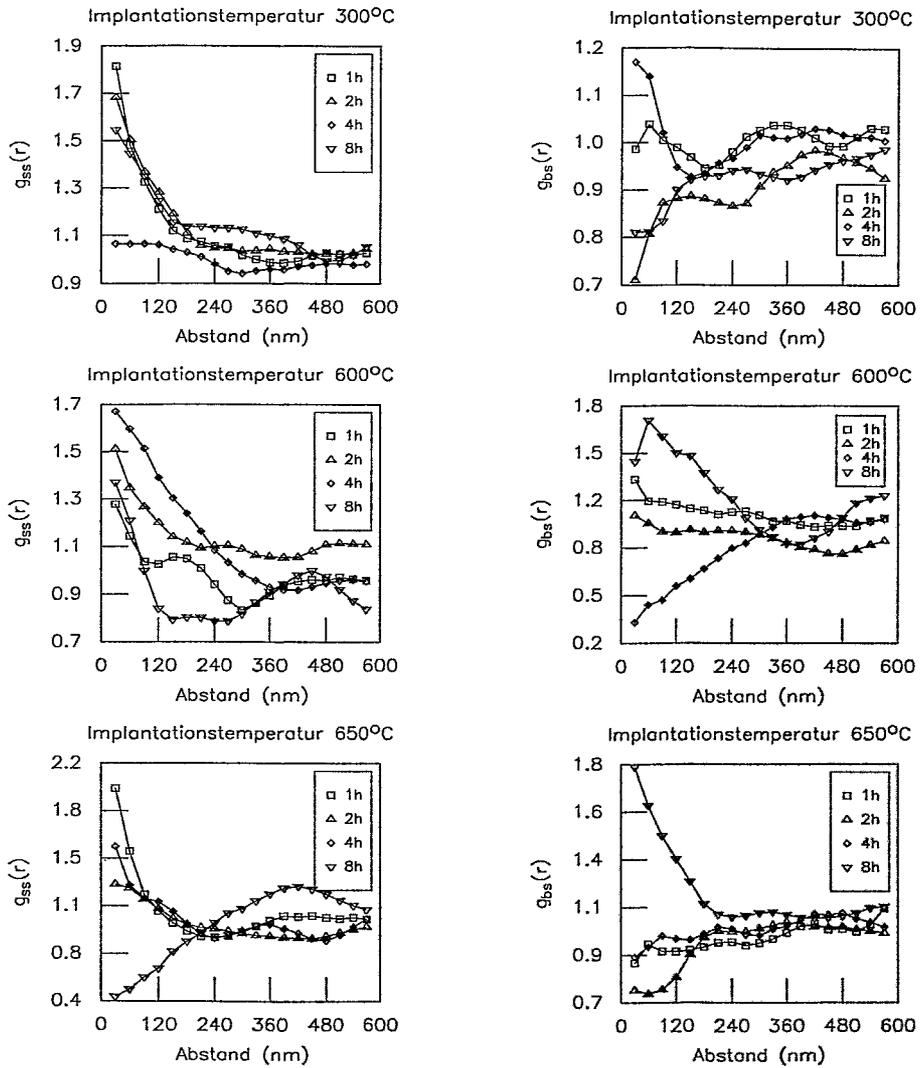


Abbildung 25: Radienkorrelationen $g_{ss}(r)$ und $g_{bs}(r)$ (s-kleine, b-große Präzipitate) im zweiten Dichtemaximum für eine Implantationstemperatur von 300°C, 600°C und 650°C zu den angegebenen Ausheilzeiten.

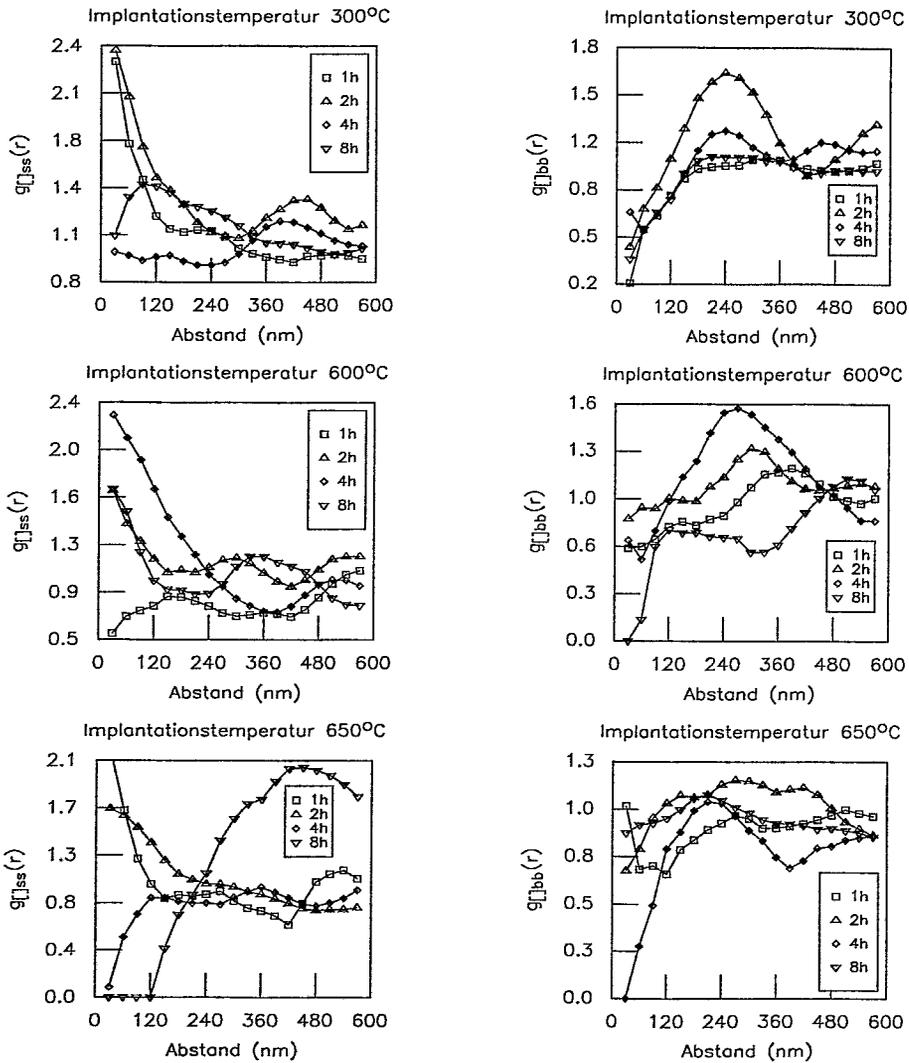


Abbildung 26: Radienkorrelationen $g_{[]ss}(r)$ und $g_{[]bb}(r)$ (s-kleine, b-große Präzipitate, [] gleichgroße Präzipitate mit bis zu einer 10%-igen Radiusabweichung - siehe Text) im zweiten Dichtemaximum für Implantationstemperaturen von 300°C, 600°C und 650°C zu den angegebenen Ausheilzeiten.

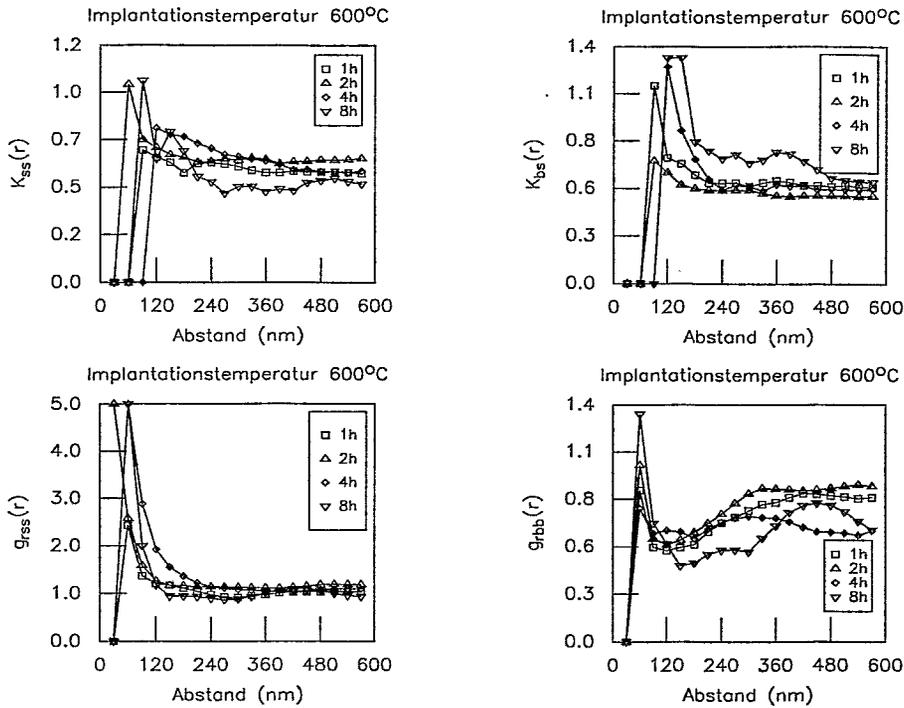


Abbildung 27: Radialkorrelationen $K_{ss}(r)$, $K_{bs}(r)$, $g_{ss}(r)$ und $g_{bb}(r)$ (s-kleine, b-große Präzipitate, r Abstand der Präzipitate) im zweiten Dichtemaximum für die Implantationstemperatur von 600°C zu den angegebenen Ausheilzeiten.

leranz von 10%) bei geringen Abständen berücksichtigt. Bei fast allen Proben sind hohe Korrelationswerte bei geringen Entfernungen für $g_{ss}(r)$ zu finden. Der Abfall auf das Gleichverteilungsniveau stellt sich bei 300°C/2h und 600°C/4h erst in einer Entfernung von ca. 250 nm ein und wird sonst meist schon nach 100 nm erreicht. Ungewöhnlich ist für 300°C/4h die Gleichverteilung der gleichgroßen kleinen Präzipitate und für 300°C/4h das Maximum in 100 nm Entfernung. Es kann daher mit dieser speziellen Korrelationsfunktion auf einen Vorgang zurückgeschlossen werden, der nicht mehr allein auf dem Aufbau von Spannungen beruht (vgl. Abs. 5.2.2.4). Eine weitere Veränderung ist bei den Proben mit der Implantationstemperatur von 600°C bei dem Übergang von einstündigen zu längeren Ausheilzeiten zu finden. Eine anfangs nur geringe Dichte an gleichgroßen kleinen Präzipitaten für kleine Abstände erhöht sich mit zunehmender Ausheilzeit. Für eine Ausheilzeit von vier Stunden kann in der Probe mit der Implantationstemperatur von 650°C ein nur allmählicher Anstieg bis zum Niveau der Gleichverteilung festgestellt werden. Nach acht Stunden bildet sich vor dem Erreichen der Gleichverteilung zunächst ein Maximum bei 400 nm aus. Bemerkenswert für die Markenkorrelationsfunktion $g_{bb}(r)$ sind die sehr ausgeprägten

Maxima der Proben 300°C/2h, 600°C/4h, und 650°C/4h, die in Abständen größer als 200 nm liegen. Für diesen noch zu besprechenden physikalischen Vorgang (vgl. Abs. 5.2.2.4) sind in den Proben 300°C/4h und 600°C/2h entsprechende jedoch schwächer ausgebildete Maxima wiederzufinden.

Weitere Radienkorrelationen

Die Korrelationen $K_{ss}(r)$ und $K_{bs}(r)$ erfassen jeweils das Verhältnis der Zahl kleiner Präzipitate in der Umgebung eines kleinen bzw. großen Präzipitates zur Zahl aller Präzipitate bis zum Abstand r [44]. Ein Vergleich der Korrelationsfunktionen $K_{ss}(r)$ mit $g_{ss}(r)$ bzw. $K_{bs}(r)$ mit $g_{bs}(r)$ anhand der bei 600°C implantierten Probe zeigt, daß Änderungen in den Dichtefunktionen deutlicher hervortreten (Abb. 27).

Detailliertere Informationen über nahe beieinander liegende Präzipitate sollen mit dem Verhältnis Radius/Abstand der Präzipitate zugänglich werden. In Abbildung 27 sind sowohl für $g_{ss/r}(r)$ als auch $g_{bb/r}(r)$ sehr hohe Korrelationswerte zu finden. Die Unsicherheiten, die sich durch den Abstand als Bestandteil der Normierungsgröße ergeben, lassen diese Größe für eine systematische Auswertung jedoch als ungeeignet erscheinen.

Untersuchungen der Größe $B(r) = r^2 \hat{r}$ ([49, 176], vgl. Abs. 2.1.3.2) setzen, um eine ausreichende Genauigkeit von \hat{r} zu gewährleisten, in-situ Verfahren voraus.

5 Diskussion

Ein Vergleich der experimentellen Ergebnisse (vgl. Abs. 4.2.4) mit theoretischen Simulationen [23] soll Hinweise auf die Mechanismen zur Bildung der beobachteten Strukturen liefern. Zunächst noch gilt das Interesse den Anfangs- und Randbedingungen zum Reifen (vgl. Abs. 5.1). Anschließend wird in Abschnitt 5.2 die zeitliche Entwicklung des Reifens diskutiert, wobei sich für die Strukturbildungen zwei unterschiedliche Ursachen bestimmen lassen (vgl. Abs. 5.2.1). Abschließend werden in Abschnitt 5.3 die gewonnenen Erkenntnisse hinzugezogen, um die für die Simulationen verwendeten Annahmen noch einmal zu überprüfen.

5.1 Ausgangsbedingungen zum Reifen

Das Verständnis der Zusammenhänge zwischen dem Reifungsprozeß und den Bedingungen zu Beginn des Reifens erfordert zunächst genaue Kenntnis der bestehenden Randbedingungen (vgl. Abs. 5.1.1). Dabei muß berücksichtigt werden, daß das Reifen schon während der Aufheizphase beginnt (vgl. Abs. 2.3.3.4). Aufschluß darüber, inwieweit die Strukturen sich schon vor dem Reifen ausbilden bzw. erst im Verlauf des Reifens entstehen, gibt Abschnitt 5.1.2. Welche Änderungen aus einer weniger stark ausgeprägten Separation von Defekt- und Sauerstoffprofilen folgen, wird in Abschnitt 5.1.3 dargestellt und diskutiert.

5.1.1 Randbedingungen und Profilformen

Der Präzipitationsverlauf unterliegt während des Ausheilprozesses durch den Einfluß von Oberfläche und dem Substratvolumen asymmetrischen Randbedingungen (vgl. Abs. 2.3.3.5). Das Schutzoxid kann durch seine planare Grenzfläche zum Si-Substrat als ein SiO_2 -Präzipitat mit dem Radius $r = \infty$ angesehen werden. Es begrenzt den reifenden Bereich zur Oberfläche hin und die Gleichgewichtskonzentration des Sauerstoffes bildet den Abschluß zum Volumen des Substrates. Ein Präzipitatband wird daher an der der Oberfläche zugewandten Seite Präzipitate aller Größen auflösen, während auf der der Oberfläche abgewandten Seite, abgeschirmt durch den vorhergehenden Prozeß, zunächst nur die Präzipitate von unterkritischer Größe in Lösung gehen. Die sich ausbildenden Diffusionsströme sind nicht mehr länger als isotrop anzusehen, sondern sie verfügen über Komponenten senkrecht und parallel zur Oberfläche.

Das in den untersuchten Proben (vgl. Abs. 3.6.4) näher zur Oberfläche gelegene erste Präzipitatband – dessen Ursprung später in Abschnitt 5.1.2 diskutiert wird – schirmt in einem hohen Maße durch sein Auflösen das tieferliegende Band gegenüber dem Oberflächenoxid ab. Doch anstatt seine Profilform zu verlieren, bleibt die Form des ersten Bandes bis zur Implantationstemperatur von 400°C weitgehend erhalten. Das tiefergelegene zweite Präzipitatband gibt bei der Ausheilung gleichfalls Sauerstoff frei, der teilweise in Richtung des ersten Bandes

diffundiert. Zwischen den Bändern stellt sich für die Diffusionsströme ein dynamisches Gleichgewicht ein. Ähnlich wie beim Mean-Field-Ansatz des Reifens werden die Wechselwirkungen der beiden Bänder über ein gemittelttes Konzentrationsfeld vermittelt. Ist die Abschirmung durch das erste Band nicht mehr vollständig, ergibt sich auch für das zweite Band ein resultierender Diffusionsstrom in Richtung zur Oberfläche. Insgesamt verzögert sich somit der Auflösungsprozeß für beide Bänder. Für Implantationstemperaturen über 400°C lösen sich die nicht mehr so stark ausgeprägten ersten Bänder (vgl. Abs. 5.1.2) in Richtung zur Oberfläche als auch zum zweiten Band hin schneller auf (vgl. Abs. 5.2.1).

Lösen sich die kleinsten Präzipitate auf der zur Oberfläche abgewandten Seite des zweiten Maximums durch den Einfluß des Volumens auf, fallen die Veränderungen im Dichteprofil nur gering aus. Hingegen führt bei der Bestimmung des mittleren Radius der Verlust der kleinsten Radien zu einer Verschiebung zu größeren Werten hin. Somit kann in Tiefen, die sich zum Volumen hin dem zweiten Dichtemaximum anschließen, ein immer noch sehr hoher Wert für den mittleren Radius festgestellt werden (Abb. 20).

5.1.2 300 keV Implantationsenergie

Die beiden bis zu einer Implantationstemperatur von 400°C (Abb. 20) zu beobachtenden Dichtemaxima zeichnen sich durch eine nahezu unveränderte Breite und einem gleichbleibenden Abstand aus (vgl. Abs. 4.2.4). Würde die Bildung der Struktur auf eine durch das Reifen hervorgerufene Selbstorganisation zurückgehen (vgl. Abs. 2.3.3.5, 5.2.1), müßten zu allen Implantationstemperaturen die Dichte- und Radienprofile ähnlich aussehen. Die verschiedenen Zustände würden jeweils nur ein anderes Stadium des Reifungsprozeß repräsentieren. Die unterschiedlichen Entwicklungsstände der beiden Dichtemaxima könnten mit der Asymmetrie der Randbedingungen (vgl. Abs. 2.3.3.5, 5.1.1) in Verbindung gebracht werden. Doch wäre dann die Konstanz in Breite und Abstand der Dichtemaxima ungewöhnlich. Dieser Abstand hängt bei einem Selbstorganisationsprozeß von dem Radiustiefenprofil ab ([52], vgl. Abs. 5.2.1). Für alle Implantationstemperaturen müßten sich dazu aber gleiche Dichte- und Radiustiefenprofile ausbilden. Dies ist aufgrund der vielfältigen Veränderungen in den Sauerstoff- und Defekt-Tiefenprofilen mit zunehmender Implantationstemperatur (vgl. Abs. 2.3.4) jedoch nur wenig wahrscheinlich.

Das Leerstellenband mit seiner hohen Dichte an ausgedehnten Defekten (vgl. Abs. 2.3.3.1) ist als Ursache für das erste Dichtemaximum wahrscheinlicher, da auch in diesem Bereich das Sauerstoff-Implantationsprofil nur noch sehr flach verläuft. Die nur geringe Änderung der Form des ersten Dichtemaximums in den Proben bis zu einer Implantationstemperatur von 500°C kann auf die niedrige Mobilität der ausgedehnten Leerstellendefekte zurückgeführt werden. Die mit zunehmender Implantationstemperatur einhergehende Verringerung der Präzipitattichte ist mit einem verstärkten Ausheilen der Defekte während der Implan-

tion und der Aufheizphase (vgl. Abs. 2.3.3.3, 2.3.4) zu erklären. Ein gaußförmiges Radiusprofil ergibt sich durch die im Defektprofil als erstes gebildeten Keime, deren Wachstum sofort beginnt. Die Dichteverteilung im zweiten Maximum resultiert aus dem Implantationsprofil des Sauerstoffs. Die Größe und Verteilung der Radien ist über Gleichung (27) verknüpft mit dem einsetzenden Rekristallisationsprozeß. Eine Verringerung der bei niedrigen Implantationstemperaturen sehr hohen Konzentration an Eigenzwischengitteratomen bewirkt eine Senkung des kritischen Radius. Dies bedingt neben höheren Wachstumsraten, daß sich immer weniger Keime wieder auflösen. Infolgedessen geht das zunächst über weite Bereiche näherungsweise konstante Radiusprofil mit zunehmender Implantationstemperatur immer mehr in eine gaußverteilte Form über.

Das bei Implantationstemperaturen von über 500°C immer schwächer ausgeprägte erste Dichtemaximum verschmilzt mit der zur Oberfläche gerichteten Flanke des dominanten zweiten Maximums und löst sich in diesem mit fortschreitender Zeit und/oder höherer Implantationstemperatur auf. Konnte der Materialaustausch bislang noch durch über die Bänder gemittelte Konzentrationsfelder nachvollzogen werden, müssen nun in einem höheren Maße die direkten Wechselwirkungen zwischen den Präzipitaten beachtet werden. Es sind die zwischen den Bändern liegenden Präzipitate, die bei den Proben zu den höheren Implantationstemperaturen das Wechselwirken der Bänder vermitteln.

Auf den Einfluß des Umverteilungsprozesses vom ersten in das zweite Dichtemaximum auf den Präzipitationsverlauf wird in Abschnitt 5.2.1 eingegangen.

5.1.3 200 keV Implantationsenergie

Die Präzipitatdichten der bei 200 keV implantierten Proben (vgl. Abs. 4.2.1) verfügen für die beiden eingeteilten Bänder über einen sprunghaften Übergang in Abhängigkeit von der Implantationstemperatur (Abb. 17). Mit der Erhöhung der Substrattemperatur und der zunehmenden Rekristallisation der implantationsgeschädigten Si-Matrix folgt eine kontinuierliche Abnahme in der Defektkonzentration. Dies hat eine geringere Anzahl an ausgedehnten Defekten zur Folge und damit verbunden auch eine geringe Dichte an heterogen gebildeten Keimen [177]. Die sich ergebende kleinere kritische Keimgröße läßt hingegen eine größere Zahl an Keimen am Wachstumsprozeß teilnehmen. Überlagern sich zwei Vorgänge dieser Art mit gegenläufigen Wirkungen, kann sich ein Extremum ausbilden. Der zu beobachtende sprunghafte Übergang jedoch legt einen weiteren physikalischen Vorgang nahe, z.B. einen Übergang von der angenommenen heterogenen zu einer homogenen Keimbildung (vgl. Abs. 2.3.3.2). Die Rate für homogene Keimbildung bei Implantationstemperaturen unterhalb von 500°C fällt durch die hohe Defektkonzentration geringer aus als diejenige für heterogene Keimbildung. Bei Implantationstemperaturen über 500°C ist das Verhältnis der beiden Keimbildungsraten umgekehrt.

In der Untersuchung zur Implantationsenergie von 300 keV (Abb. 20, vgl.

Abs. 4.2.4) ist gleichfalls bei 500°C ein sprunghafter Übergang in der Dichte festzustellen. Jedoch liegt das Dichteverhältnis in umgekehrter Form vor. Ein Vergleich der Präzipitatdichten bzw. Keimbildungsraten kann aber aufgrund der unterschiedlichen Implantationsenergie nur von qualitativer Natur sein. Der breitere Implantationsbereich führt bei gleichbleibender Implantationsdosis zu einer geringeren Defektdichte. D.h. daß bei Implantationstemperaturen unterhalb von 500°C ein größerer Anteil der heterogen gebildeten Keime über die Möglichkeit zum Wachsen verfügt. Steigt die Implantationstemperatur über 500°C, ist aufgrund der geringeren Sauerstoffkonzentration im Sauerstoffprofil mit einer niedrigeren Rate für die homogene Keimbildung zu rechnen. Die Rate fällt darüber hinaus sogar noch unter den Wert für die heterogene Keimbildung. Wie zuvor wird damit die Annahme bestätigt, daß die Keimbildung nicht ausschließlich homogen bzw. heterogen erfolgt.

Für die Implantationstemperatur von 200°C ist ein ungewöhnlich kleiner mittlerer Radius festzustellen. Hinzu kommt eine niedrige Dichte, was zu einer nur schwach ausgebildeten Selbststabilisierung der Präzipitansammlung führt (vgl. Abs. 2.3.3.5). Dies hat zur Folge, daß die beiden Bänder sich vorzeitig auflösen. Bei der Implantationstemperatur von 500°C verdeutlicht der größere mittlere Radius des ersten Bandes die verstärkte Aufnahme des durch die Leerstellenblasen bei hohen Temperaturen abgegebenen Sauerstoffes durch die Präzipitate (vgl. Abs. 2.3.1). Das Vorhandensein von Keimen in diesem Bereich zeigt aber auch, daß mit der niedrigen Aufheizrate (vgl. Abs. 2.3.3) nicht alle durch die Implantation erzeugten Leerstellen durch Leerstellenblasen gebunden werden konnten. Das Ausheilungsintervall im Bereich um 900°C ist damit nicht von ausreichender Dauer, um eine vollständige Auflösung des ersten näher zur Oberfläche befindlichen Präzipitatbandes zu bewirken. Die mittleren Radien nehmen im Temperaturbereich homogener Keimbildung wieder leicht ab.

5.2 Zeitliche Entwicklung des Reifens

Der für die Beschreibung des Reifens wichtige Materialfluß ist eng an den Ausdruck $B(r) = r^2 \dot{r}$ ([22, 49, 176], vgl. Abs. 2.1.3.2) für die treibende Kraft gebunden. Die Zeitableitung in dem Ausdruck verhindert eine direkte experimentelle Untersuchung. Möglich ist nur eine mittelbare Analyse über die Auswertung der Zeitreihen (vgl. Abs. 3.6.4). Das besondere Interesse liegt auf dem Strukturierungsprozeß, der sich im zweiten Dichtemaximum vollzieht.

5.2.1 Reifen in der Tiefe

Entsprechend den Überlegungen zur Geometrie des betrachteten implantierten Systems (vgl. Abs. 3.3.3) liegt es nahe, die treibende Kraft in eine senkrechte und eine parallel zur Oberfläche verlaufende Komponente zu unterteilen. In dieser Erweiterung zu dem Modell aus Abschnitt 2.3.3.5 können nun auch Mate-

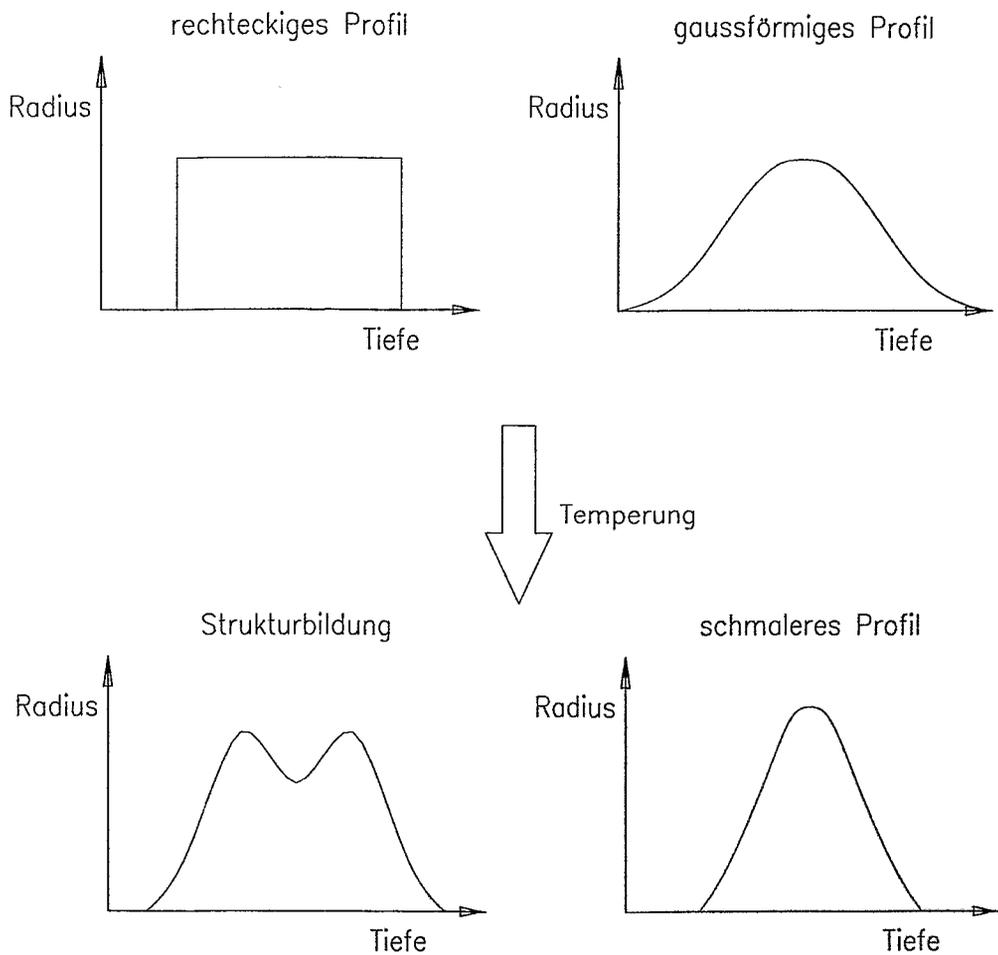


Abbildung 28: Bedingungen, die nach Simulationen von Reiß [52] einen Selbstorganisationsprozeß erlauben.

rialflüsse innerhalb einer Schicht mitberücksichtigt werden.

Die über einen weiten Bereich konstante Radienverteilung im zweiten Maximum der Proben mit Implantationstemperaturen von 300°C und 600°C erfüllt die in Abschnitt 2.3.3.5 beschriebenen Anfangsbedingungen, die einen Strukturierungsprozeß einleiten (Abb. 28). Am deutlichsten ausgeprägt ist dieser selbstorganisierende Vorgang bei der Implantationstemperatur von 300°C nach zwei Stunden (Abb. 20) bzw. bei der Implantationstemperatur von 600°C nach vier Stunden (Abb. 21). Dieser Vorgang zeigt mit den Überlegungen aus Abschnitt 5.1.2 auf einen zweiten Mechanismus zur Strukturbildung hin, der nun aber Folge und gleichzeitig auch Teil des während der Ausheilung verlaufenden Reifungsprozesses ist (vgl. Abs. 2.3.3.5).

Das tiefergelegene Präzipitatband teilt sich dabei weiter auf und in den beiden neuen 'Bändern' akkumuliert sich durch die Strukturierung immer mehr Material. Das Binden von Material aus der unmittelbaren Umgebung der neuen Bänder wird durch einen Reifungsprozeß parallel zur Oberfläche im Inneren der Bänder verstärkt und ermöglicht deren Separation. Dieser Vorgang bleibt in dem Modell des Abschnittes 2.3.3.5 vernachlässigt, da die Selbstorganisation nur anhand einer eindimensionalen Kette von Präzipitaten beschrieben wurde. Doch liegen die Bänder so nahe beieinander, daß diese noch direkt miteinander wechselwirken können. Die Trennung der Bänder hängt somit von dem Verhältnis des Radius der Präzipitate zu dem Abstand der Bänder ab.

Für die Implantationstemperatur von 300°C wird nach achtstündiger Ausheilung das Auflösen des zweiten Maximums festgestellt. Hingegen konnte bei der Implantationstemperatur von 600°C nach derselben Ausheilzeit durch das Auflösen des ersten Maximums soviel Sauerstoff im zweiten Maximum akkumuliert werden, daß der Reifungsprozeß des Systems nach der achtstündigen Ausheilung noch nicht abgeschlossen ist. Weiterhin bleibt die Aufspaltung im zweiten Maximum erhalten und zeichnet sich durch eine asymmetrische Höhenverteilung aus – verursacht durch das Oberflächenoxid.

Insgesamt stellt sich für eine selbstorganisierende Strukturbildung im zweiten Dichtemaximum das Vorhandensein des ersten Dichtemaximums als notwendig heraus. Nur mit diesem läßt sich die Bedingung eines über einen ausgedehnten Tiefenbereich konstanten Radiusprofils (Abb. 28) experimentell realisieren. In Übereinstimmung mit den simulierten Ergebnissen [23] verfügt die Steilheit der Flanken in dem Dichteprofil über einen nicht zu vernachlässigenden Einfluß auf den Strukturierungsprozeß.

In dem Präzipitatband der bei 650°C implantierten Proben ist das erste Präzipitatband nahezu vollständig in dem zweiten Präzipitatband integriert. Der Sauerstoffanteil in dem dominierenden Band ist so hoch, daß ein Reifungsprozeß innerhalb des Bandes einsetzt. Unter der Annahme, daß der Anteil der treibenden Kraft senkrecht zur Oberfläche zu vernachlässigen ist – angrenzende und die

parallel zur Oberfläche gelagerten Tiefenbereiche sind unabhängig voneinander –, entwickelt sich in einem solchen Band ein quasi-zweidimensionales Reifen. Die dort ablaufende Umverteilung an Material läßt die bestehende Tiefenstruktur unverändert und schließt in diesem Bereich eine selbstorganisierte Strukturbildung nahezu aus. Erst das Wechselwirken mit umliegenden Bereichen ermöglicht eine Diffusion von Material in das Band und führt zu einer Materialakkumulation. Die selbststabilisierende Wirkung dieses Vorganges zeigt sich in dem Abflachen des Dichtetiefenprofils, das einem Konzentrationsprozeß der großen Präzipitate im Dichtemaximum entspricht und ebenfalls in Simulationen zu beobachten ist (Abb. 28).

Die beiden Präzipitatbänder der bei 400°C implantierten Proben sind mit den gaußförmigen Dichte- und Radiusprofile von einfacher Form, die keinerlei Strukturbildung erkennen läßt. Zu beobachten ist lediglich das Auflösen der Präzipitate in den Bändern. Insgesamt ist von einer weitgehend unabhängigen Entwicklung der beiden Bänder auszugehen.

Im Gegensatz dazu ist in den Proben mit der Implantationstemperatur von 500°C ein anderes Verhalten zu beobachten. Nach der längsten Ausheilzeit bilden die beiden Präzipitatbänder nur noch ein einziges Band. Für die kürzeren Ausheilzeiten ist mit geringer Dichte und im Vergleich zum zweiten Maximum kleineren Präzipitaten die abschirmende Wirkung des ersten Präzipitabandes ganz oder teilweise aufgehoben. Das erste Band löst sich verstärkt in Richtung zur Oberfläche hin auf. Die Wirkung der Oberfläche beeinflusst so auch das zweite Präzipitatmaximum. Dieses gibt größere Mengen an Material an der Vorderseite frei, das bei der Diffusion zur Oberfläche die Möglichkeit besitzt, sich an den Präzipitaten der Rückseite des ersten Dichtemaximums anzulagern. Insgesamt ergibt sich der Eindruck, daß das erste Dichtemaximum sich in Richtung des zweiten bewegt.

Die Probenreihe zur tiefsten Implantationstemperatur von 230°C ist geprägt durch die implantationsbedingte Amorphisation des Si-Gitters [178]. Nach achtstündiger Ausheilzeit ergibt sich ein einzelnes Präzipitatband mit Präzipitaten von beachtlicher Größe und z.T. mit nicht-sphärischen Formen. Das im Vergleich zur Präzipitatgröße schmale Band läßt auf eine Anordnung der Präzipitate in einer Ebene schließen. So scheint sich in dem ersten Präzipitatband durch die Amorphisation so viel Material zu binden [146], daß das zweite Band vor dem Einfluß der Oberfläche abgeschirmt wird. Ein weitgehend ungestörtes Wachstum im zweiten Band akkumuliert im weiteren Verlauf der Präzipitation genügend Material, um das erste Band vollständig aufzulösen und den Reifungsprozeß innerhalb des Bandes mit dem Einfluß der Oberfläche konkurrieren zu lassen.

Um eine vollständige Separation der Bänder zu erreichen, ist ein günstigeres

Verhältnis von Präzipitatriadius zu Präzipitatbandbreite notwendig. Eine RTA-Zwischenausheilung nach der Implantation (vgl. Abs. 3.6.1) würde die Anzahl an kleinen Präzipitaten erhöhen und somit die Strukturbildung begünstigen. Dem gegenüber steht aber eine Erhöhung des Defektaufkommens bei der RTA-Ausheilung (vgl. Abs. 2.3.3.3, 3.6.1) und die Größen der Präzipitate, die eine Untersuchung mit dem SEM ausschließen (vgl. Abs. 4.1.3.4).

5.2.2 Reifung im zweiten Präzipitatband

Für eine weitergehende Untersuchung des Selbstorganisationseffektes werden die nachfolgenden Betrachtungen auf das Innere des zweiten Dichtemaximum, d.h. auf das zweite tiefergelegene Präzipitatband beschränkt.

Die Nah- und Fernordnung sowie die Radienkorrelationen in dem Präzipitatband geben Informationen über die treibenden Kräfte senkrecht und parallel zur Oberfläche. Änderungen in diesen Kräften und damit in der Präzipitatverteilung werden durch die weitgehende Unbeweglichkeit der Präzipitate in einem Festkörper bestimmt. Eine Veränderung der Anordnung kann beim Reifen nur noch über das Auflösen von Präzipitaten erreicht werden. In den die Präzipitatverteilung modellierenden Punktmodellen entspricht dies einer Verdünnung des Punktmusters. Fällt ein Punkt eines Poisson-Feldes, der zufällig und unabhängig von allen anderen ausgewählt wurde, aus dem Punktmuster heraus, entsteht ein neues wiederum poissonverteiltes Punktmuster [135]. Mehrere Verdünnungen dieser Art lassen sich in einer einzelnen Verdünnungsprozedur zusammenfassen [44].

In Systemen mit hohen Volumenanteilen stehen mit dem direkten Wechselwirken der Präzipitate Wege offen z. B. die Art des Punktmodelles für die Anordnung der Präzipitate zu ändern (vgl. Abs. 5.2.2.4). Befindet sich in der Nähe eines Präzipitates mit unterkritischem Radius ein weiteres von einer noch geringeren Größe, wird sich das größere Präzipitat aufgrund der direkten Wechselwirkung langsamer auflösen, mitunter sogar wachsen. Diese Abhängigkeit des Auflösungsprozesses von der Umgebung des Präzipitates modifiziert nachhaltig die Nahordnung im Punktmuster.

Mit der Einführung zeitabhängiger Größen in bereits bestehende Punktmodelle [49, 53, 179] ist eine erste Näherung an einen die Präzipitation erfassenden raum-zeitlichen Kontext gegeben. Eine solche Vorgehensweise unterscheidet sich von derjenigen in den Reifungsmodellen des Abschnittes 2.1.3 durch den geometrisch-statistischen Ansatz (vgl. Anhang C). Dabei werden ähnlich wie in der Thermodynamik dynamische durch statistische Argumente ersetzt [180]. Aber wie schon bei den Reifungsmodellen ist ein Übertragen dieser Ansätze auf Systeme mit inhomogener Materialverteilung nicht ohne Einschränkungen möglich.

5.2.2.1 Paarkorrelationen Die experimentell bestimmten Paarkorrelationen entsprechen alle einem Soft-Core-Feld. Neben dem Hard-Core-Abstand kann nur noch die Steilheit des Anstiegs der Paarkorrelation Auskunft über die Form der

Verteilung der Marken geben (vgl. Anhang C). Der schnelle Anstieg in den Flanken der experimentellen Paarkorrelationen weist auf Markenverteilungen mit einem zu kleineren Marken verschobenen Schwerpunkt hin.

Über diesen qualitativen Vergleich mit theoretischen Funktionen (Abb. 33, vgl. Anhang C) hinaus, lassen sich ohne zusätzlichen Informationen (vgl. Abs. 5.2.2.4) keine weiteren Aussagen zu den Paarkorrelationen treffen. Der Zugang zu Informationen über das Verhältnis von Radien- zu Markenverteilung (vgl. Abs. 2.2, 3.3.2.4) könnte indirekt über den Wert von α (Gl. (19), (21)) darüber Auskunft geben, wie groß der Anteil der in einer Schicht wachsenden ($\alpha < 1$) bzw. reifenden Präzipitate ($\alpha \approx 1$) ist (vgl. Abs. 5.2.2.3). Doch läßt sich die Größe des Einflußbereiches der Präzipitate, aus dem sich die Markenverteilung ergibt, nicht experimentell ermitteln. Durch Anpassung bei bekannter Radienverteilung und Dichte kann der Wert $\alpha(r, t)$ des Stienen-Modells (Gl. (21)) bestimmt werden. Dies aber setzt ein parametrisches Modell voraus, das den gesuchten Zusammenhang zwischen Radien- und Markenverteilung schon beschreibt.

5.2.2.2 Nächste Nachbarn-Verteilung Die Nächste Nachbarn-Verteilung, die nur die Korrelationen nächstgelegener Punkte erfaßt, ist ähnlich wie schon zuvor die Paarkorrelationsfunktionen in einem bestimmten Maß von der Markenverteilung abhängig. Die Marken eines 'typischen' Punktes, ebenso wie diejenigen eines potentiellen nächsten Nachbars, ergeben sich aus der für die bestehende Präzipitatverteilung ermittelten Markenverteilung. Für ein Hard-Core-Modell entspricht die Nächste Nachbarn-Verteilung einer Dirac Delta-Funktion, wenn die durch die Marken aufgespannten Bereiche alle unmittelbar aneinandergrenzen. Dies wird für Punktmuster mit sehr hoher Punktdichte erwartet. Ein nur dünn besetztes Punktmuster hingegen führt zu einer durch die statistische Erhebung bedingten Verbreiterung der Nächste Nachbarn-Verteilung. Weit bedeutender sind aber die Verbreiterungen, die sich durch eine rechteckige Markenverteilung ergeben. Nachbarschaftsbeziehungen zwischen Punkten mit nur kleinen oder nur großen Marken treten in einem weit geringeren Maße auf als diejenigen zwischen Marken mit unterschiedlichen Größen. Dies weist darauf hin, daß eine Nächste Nachbarn-Verteilung ebenfalls als eine Funktion einer Konvolution der Markenverteilung mit sich selbst anzusehen ist.

Die in Abhängigkeit von der Temperzeit zu beobachtende Verbreiterung der Verteilung geht zurück auf die sich mit der Dünnung des ursprünglichen Punktmusters verschlechternde Statistik und das allgemeine Auflösen der Bandstruktur (vgl. Abs. 2.3.3.5). Ausgenommen von diesem Verhalten sind die bei 300°C und 600°C implantierten Proben mit der Ausheildauer zwischen zwei und vier Stunden bzw. ein und zwei Stunden. Dies zeigt einen Umverteilungsprozeß in dem Präzipitatband an oder aber eine Akkumulation von Sauerstoff, wie bei den Proben der Implantationstemperatur von 650°C nach vier- und achtstündiger Temperzeit (vgl. Abs. 5.2.2.3).

5.2.2.3 Radiusverteilung Der Übergang von einem wachsenden in ein reifendes System kann den Radienverteilungen entnommen werden. Die Verteilungen aller Proben weisen zu Beginn der Ausheilung einen zu kleineren Radien verschobenen Schwerpunkt auf. Für die Implantationstemperaturen 300°C, 600°C und 650°C geht die Verteilung mit zunehmender Temperzeit in eine Form über, die mehr an ein reifendes System erinnert. Der Schwerpunkt der Verteilung verschiebt sich dabei zu größeren Radien. Die Radienverteilungen zu den verbleibenden Implantationstemperaturen ändern hingegen ihre Form mit zunehmender Temperzeit kaum und deuten auf einen Auflösungsprozeß der Präzipitatbänder hin. Ähnlich zu den Nächste-Nachbarn-Verteilungen kann eine Verzögerung in der Entwicklung der Radienverteilungen der strukturbildenden Zeitreihen zur Implantationstemperatur von 300°C bzw. 600°C beobachtet werden und legt einen kausalen Zusammenhang nahe.

Für Systeme mit homogener Materialverteilung wird der Übergang vom Wachstum zum Reifen in [15, 29] betrachtet. Bei höheren Anfangsübersättigungen ($K_{1/2} > K_{1/3}$, Gl. (18) und (20)) zeichnet sich der beide Präzipitationsphasen verbindende Zeitbereich durch eine Wachstumsrate t^β mit $\beta < 0.2$ für den mittleren Präzipitatradius aus (vgl. Abs. 2.2). Der Wert des Exponenten liegt damit unter dem für das Wachstum und dem des Reifens. In [29] wird nur ein vager Hinweis auf die Ursache dieses verzögerten Wachstums gegeben, der das Auflösen der Präzipitate geringer Größe bei einem verschwindenden Wachstum der größeren Präzipitate postuliert. Die Vorstellungen des Abschnittes 2.2 zu Punktmustern legen bei hohen Übersättigungen ein häufiges Berühren der durch die Marken aufgespannten Einflußbereiche der Präzipitate nahe. Die für den Übergang notwendigen Änderungen in der Nahordnung und Radienverteilung (vgl. Abs. 2.1.3.2, 2.2) ergeben sich durch die direkte Wechselwirkung der Präzipitate. Damit ein globaler Reifungsprozeß entsteht, müssen sich alle lokalen Wechselwirkungen diesem unterordnen, d.h. Präzipitate mit unterkritischer Größe dürfen sich z.B. nicht mehr gegenseitig stabilisieren. Die Zeit, die für das aufeinander Abstimmen aller lokalen Ereignisse benötigt wird, führt insgesamt zu einem verzögerten Einsetzen des Reifens. Anders stellt sich die Situation für ein System mit geringer Übersättigung dar ($K_{1/2} < K_{1/3}$), in dem der Austausch des Materials über ein gemeinsames Konzentrationsfeld erfolgt. Dies fordert nur einen Angleich der Radienverteilung, wobei der Übergang vom Wachstum zum Reifen sich nun fließend einstellt. Der Wert für β sinkt dabei nicht unter den für das Reifen charakteristischen Wert.

Die Beziehungen sowohl zwischen Korrelations- als auch Radienverteilungen in einem reifenden System sind an die Zeitkonstanten der dafür verantwortlichen Prozesse gebunden. Das zügige Auflösen der kleinsten Präzipitate läßt schnelle Änderungen der Korrelations- und Radienverteilungen zu. Größere Präzipitate hingegen benötigen mehr Zeit für ein vollständiges Auflösen und behaupten damit

länger ihre Position. Werden mittlerer und kritischer Radius gleichgesetzt ([34], vgl. Abs. 5.2.3.2), zeigt sich, daß der Unterschied zwischen den gemittelten Radien der sich auflösenden und der wachsenden Präzipitate immer geringer wird. Daraus kann eine gegenseitige Stabilisierung der Präzipitate im Bereich des mittleren (kritischen) Radius abgeleitet werden. Die Zeitkonstanten hängen damit von der Radienverteilung ab. Diesen Überlegungen folgend wird das Reifen von einer Änderung der Radienverteilung eingeleitet, deren Einfluß auf die Korrelationsverteilung sich mit einer zeitlichen Verzögerung einstellt.

Die Stabilitätsregion bei der Implantationstemperatur von 600°C für ein und zwei Stunden der Temperung ist, den zuvor dargestellten Überlegungen folgend, mit einem Umordnungsprozeß verbunden. Die selbstorganisierende Strukturbildung in diesen Proben setzt eine Radientiefenverteilung (vgl. Abs. 5.2.1) und eine Radienverteilung in dem zweiten Band voraus, die einen primären Materialfluß senkrecht zur Oberfläche erlaubt. Der geringe Anteil an kleineren Radien in der Radienverteilungen nach vierstündiger Ausheilzeit legt nahe, daß ein Reifen parallel zur Oberfläche nur in einem beschränktem Umfang stattfindet (vgl. Abs. 4.2.4.2, 5.2.2.4). Da die Separation der im Entstehen befindlichen neuen Bänder nicht vollständig entwickelt ist, ist die Überlagerung eines zweiten Vorganges zu vermuten. Die Ausformung der wieder fast symmetrischen Radienverteilung nach der acht Stunden währenden Ausheilung würde damit zu einem Zeitpunkt beginnen, zu dem die Strukturbildung noch nicht abgeschlossen ist. Weiteren Aufschluß über diesen Vorgang können aber erst die Radienkorrelationen im nächsten Abschnitt geben. Die Radienverteilungen für die Implantationstemperatur von 300°C und einer zweistündigen Ausheilung lassen sich in analoger Weise interpretieren.

5.2.2.4 Radienkorrelationen Weitere Informationen über die räumliche Anordnung der Präzipitate geben die Radienkorrelationen. Das Hauptaugenmerk liegt nun nicht mehr auf dem eigentlichen Nachweis des Reifens in einer Schicht, in der Tiefe bzw. dem Auflösen der Präzipitate. Vielmehr gilt das Interesse der Erschließung zusätzlicher charakteristischer Merkmale dieser Vorgänge.

Wie in Abschnitt 4.2.4.2 gezeigt wurde, ist mit dem Unterscheiden zwischen kleinen und großen Radien und einem hohen Wert für $g_{bs}(r)$ bei geringen Abständen ein Reifungsvorgang verbunden. Ein zusätzlich niedriger Wert für $g_{ss}(r)$ bei geringeren Abständen – ebenfalls typisch für das Reifen [49] – wird nur für die bei 650°C implantierte und für 8 Stunden getemperte Probe beobachtet. Dieses Reifen beschränkt sich nach Abschnitt 5.2.1 auf das Innere des Präzipitatbandes und führt zu einer Selbststabilisierung des Bandes.

Auffällig für die Proben mit den Implantationstemperaturen von 300°C und 600°C, in welchen das Reifen in der Tiefe am stärksten ausgeprägt ist, sind die

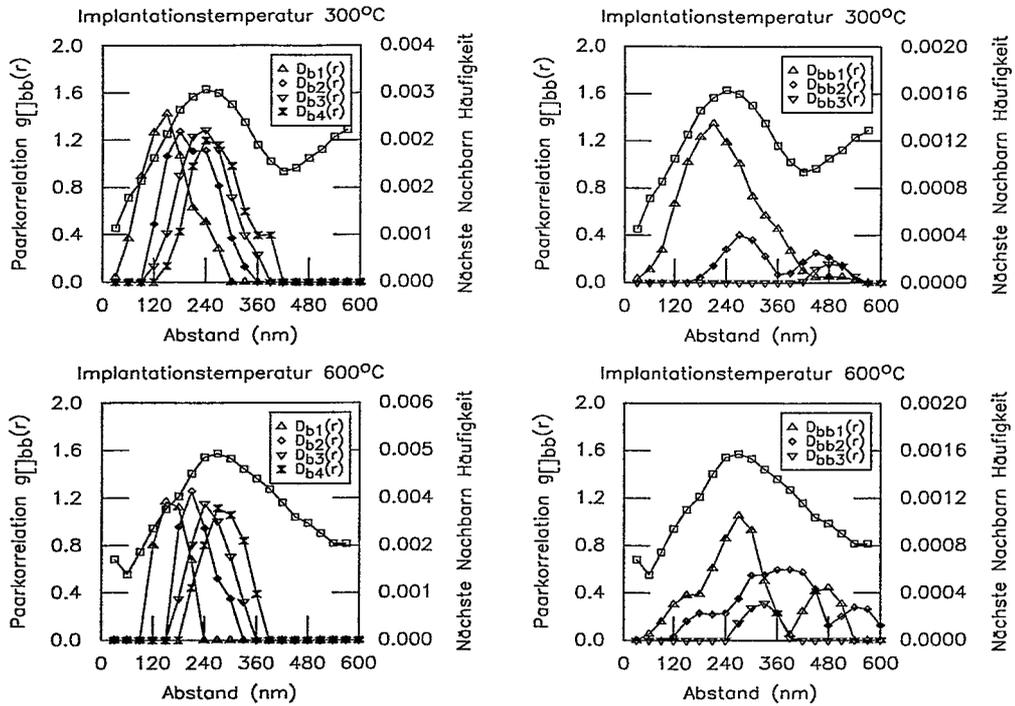


Abbildung 29: Links (a): Vergleich der ersten vier nächsten Nachbarn um große Präzipitate herum $D_{b(1-4)}(r)$ mit der Korrelationsfunktion $g_{bb}(r)$ (vgl. Abs. 4.2.4.2). Rechts (b): Vergleich $g_{bb}(r)$ mit der Nächsten Nachbarn-Verteilung $D_{bb(1-3)}(r)$. Die großen Präzipitate sind in fünf Größenklassen eingeteilt, wobei die drei kleinsten Klassen dargestellt sind. Die Proben wurden bei 300°C (600°C) implantiert und für 2h (4h) ausgeheilt.

geringe Dichte kleiner Präzipitate in der Umgebung großer Präzipitate. Das Material zum Wachstum der großen Präzipitate resultiert somit nicht mehr aus einem Umverteilungsprozeß innerhalb der Schicht, als vielmehr einem Wechselwirken mit angrenzenden Schichten.

Ein ausgeprägtes Maximum bei der Korrelation großer Präzipitate gleicher Größe (Abb. 26) deutet auf eine besondere Ordnung hin. Der Vergleich in Abbildung 29a zwischen $g_{\square bb}(r)$ und $D_b(r)$ – der Nächste Nachbar-Korrelation um große Präzipitate – zeigt, daß das Maximum in $g_{\square bb}(r)$ bei den Proben mit einer Implantationstemperatur von 300°C bzw. 600°C nach zwei bzw. vier Stunden Temperung mit dem des vierten Nachbarn $D_{b4}(r)$ zusammenfällt. So besteht die Möglichkeit, daß sich in den Bereichen zwischen gleichgroßen großen Präzipitaten weitere Präzipitate befinden. Deren Größe würde unter derjenigen der umgebenden großen Präzipitate liegen. Dies geht aus den Nächsten Nachbarn-Korrelationen für große Präzipitate hervor, die zusätzlich noch in fünf Größenklassen $D_{bb(1-5)}(r)$ unterteilt sind (Abb. 29b). Das Maximum von $g_{\square bb}(r)$ stimmt weitgehend mit dem von $D_{bb1}(r)$ für beide Implantationstemperaturen überein und die Häufigkeiten in den verbleibenden Größenklassen sind nur gering ausgeprägt. Diese kleineren Präzipitate mindern den Einfluß, den die gleichgroßen großen Präzipitate aufeinander ausüben. Dieser Einfluß dürfte aufgrund der vergleichbaren Größe der Präzipitate ohnehin nicht allzu stark ausgebildet sein. Insgesamt wird damit der Aufbau von Bereichen innerhalb einer Schicht angedeutet, die wechselseitig nur wenig Material austauschen. Die großen Präzipitate tragen somit, indem sie bevorzugt mit den benachbarten Schichten Material austauschen, den Strukturierungsprozeß senkrecht zur Oberfläche.

Es liegt nahe, die Anordnung der gleichgroßen großen Präzipitate durch ein Soft-Core-Feld darzustellen. Der Einflußbereich der Präzipitate läßt sich darin nicht mehr in Abhängigkeit von deren Radien festlegen (vgl. Abs. 2.2), sondern wird vielmehr von der umgebenden Ordnung bestimmt. Die in dem Punktmuster mit entsprechend gewählten Marken aufgespannten Bereiche können dabei weitere Punkte enthalten. Wie bei einem Soft-Core-Feld gibt die Breite des Maximums der Korrelationsfunktion an, wie dicht bzw. regelmäßig die gleichgroßen großen Präzipitate angeordnet sind (vgl. Abs. 3.3.2.4, Anhang C). Bei einem hohen Ordnungsgrad, der eine geringe Breite der Korrelationsfunktion bedingen würde, wäre die Ausbildung z.B. von hexagonalen Zellen denkbar. Strukturen dieser Art sind für reifende Systeme in zwei Dimensionen untersucht worden [176].

Bislang wenig Beachtung fanden die häufig anzutreffenden hohen Werte für $g_{ss}(r)$ und $g_{\square ss}(r)$ bei kleinen Abständen. Das Umordnen der Präzipitate wird, wie in Abschnitt 5.2.2.3 ausgeführt, von dem Auflösen der kleinen Präzipitate geprägt. Allerdings tragen nur diejenigen kleinen Präzipitate zur Modifizierung der Präzipitatanordnung bei, die nicht wie beim Reifen zufällig ausgewählt sind. Damit wird ein lokal gleichmäßiges Ausdünnen der Präzipitatanordnung vermieden bis die Umordnung abgeschlossen ist.

Mit diesen Vorstellungen läßt sich das Modell von den eindimensionalen Ketten (vgl. Abs. 2.3.3.5) mithilfe der Korrelationsfunktionen auf drei Dimensionen erweitern. In der nachfolgenden Aufstellung von Korrelationsfunktionen spiegeln sich die für eine Präzipitationsphase typischen Eigenschaften wieder.

Reifen in einem Präzipitatband	$g_{ss}(r) < 1$; $r =$ geringer Abstand $g_{bs}(r) > 1$; $r =$ geringer Abstand
Reifen in der Tiefe	$g_{ss}(r) < 1$; $r =$ geringer Abstand $g_{bb}(r) > 1$; $r =$ mittlerer Abstand
Umordnung in einem Präzipitatband	$g_{ss}(r) > 1$; $r =$ geringer Abstand
Auflösen eines Präzipitantes	$g_{ss}(r) < 1$; $r =$ geringer Abstand $g_{bs}(r) < 1$; $r =$ geringer Abstand
Elastische Wechselwirkungen	$g_{ss}(r) > 1$; $r =$ geringer Abstand $g_{ss}(r) > 1$; $r =$ geringer Abstand

Die Präzipitation in den untersuchten Proben ist beständigen Veränderungen unterworfen, so daß sich meist nur Übergangs- und Mischphasen erfassen und charakterisieren lassen. Für die bei 300°C implantierten Proben (Abb. 25) kann nach zweistündiger Ausheilung ein Reifen senkrecht zur Oberfläche, nach vier Stunden ein Reifen parallel zur Oberfläche und nach acht Stunden ein Auflösen der zuvor gebildeten Strukturen festgestellt werden (vgl. Abs. 5.2.2.3). Die Proben mit der Implantationstemperatur von 600°C zeigen nach vier Stunden Ausheilung ein Reifen senkrecht zur Oberfläche und nach acht ein Reifen parallel zur Oberfläche. Der hohe $g_{ss}(r)$ -Wert bei kurzen Abständen weist auf einen noch nicht abgeschlossenen Umstrukturierungsprozeß hin. Detailliertere Betrachtungen zu den einzelnen Vorgängen und deren Zusammenwirken sind aufgrund des nur groben Rasters der vier Ausheilzeiten nicht möglich.

Für Untersuchungen, die die Dynamik erfassen sollen (vgl. Abs. 2.1.3.2, 5.2), können ebenfalls geeignete Korrelationsfunktionen angegeben werden [176].

5.2.3 Spannungen beim Reifen

Vor der eigentlichen Diskussion des Einflusses der elastischen Wechselwirkung auf den Reifungsverlauf (vgl. Abs. 5.2.3.2) wird die Möglichkeit des Aufbaus von Spannungen während der Ausheilphase in Abschnitt 5.2.3.1 dargestellt. Die Stärke der Wechselwirkung entscheidet über die Notwendigkeit ihrer Berücksichtigung in den Annahmen für eine Simulation (vgl. Abs. 5.3.1).

5.2.3.1 Akkomodationsvolumen Für den Temperaturbereich oberhalb von 1000°C der Ausheilphase gilt näherungsweise $S_I^\infty S_V^\infty = 1$ (vgl. Abs. 2.3.1). Ein Wechselwirken nahe beieinanderliegender Präzipitate schließt aber lokale Schwankungen in den Defektkonzentrationen nicht aus und würde damit wiederum zu einem Ungleichgewicht der Frenkeldefektpaare führen. Die räumliche Ausdehnung

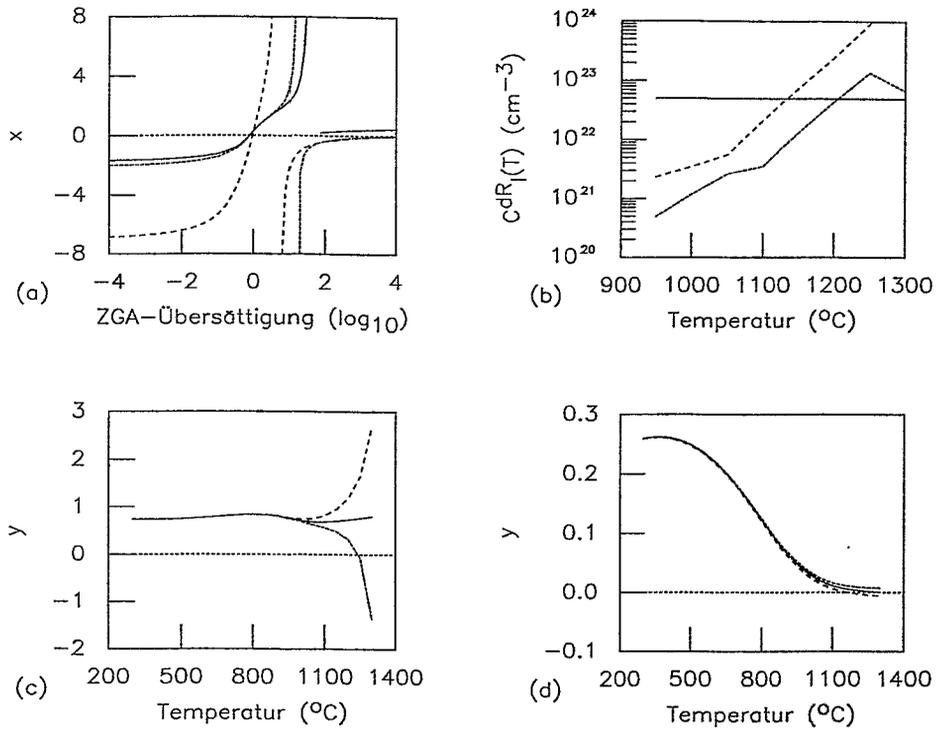


Abbildung 30: Anteile der Eigenzwischengitteratome (y), Leerstellen (x) und Spannungen (d) an der Bereitstellung des Akkomodationsvolumens für $S_I^{\infty} S_V^{\infty} \neq 1$. Die Sauerstoffkonzentration beträgt in allen Abbildungen $C_O^{\infty} = 1 \times 10^{18} \text{O}^+ \text{cm}^{-3}$. (a): (—) Leerstellenanteil bei 1100°C ohne Spannungen, (- - -) 1200°C ohne Spannungen und (- · -) 1100°C mit Spannungen in Abhängigkeit der Eigenzwischengitteratom(ZGA)-Konzentration. (b): Änderung der Unstetigkeit von x mit der Eigenzwischengitteratom-Konzentration in Abhängigkeit von der Temperatur, (- - -) ohne Spannungen, (- · -) mit Spannungen, (—) Zahl der Si-Atome im Si-Gitter. Entwicklung des Eigenzwischengitteratom-Anteils (c) und der Spannungen (d) mit zunehmender Temperatur, (—) $S_I^{\infty}=1.0$, (- - -) $S_I^{\infty}=1.1$ und (- · -) $S_I^{\infty}=0.9$.

und der zeitliche Bestand dieses Ungleichgewichts wäre jedoch stark durch die vorherrschende hohe Rekombinationsrate beschränkt.

Das in Abschnitt 2.3.1 vorgestellte Modell von Huh et al. [65] zur Bestimmung der Anteile von Eigenzwischengitteratomen, Leerstellen und Spannungen am Akkomodationsvolumen soll bis in den Bereich der höchsten Ausheiltemperaturen von 1300°C erweitert und diskutiert werden.

Wie an den gerechneten Kurven für 1000°C und 1200°C in Abbildung 30a zu erkennen ist, nimmt S_I^∞ für den Übergang $dR = 0$ (Unstetigkeitsstelle von x) zu höheren Temperaturen hin ab. Schon das Vorhandensein geringer Übersättigungen an Eigenzwischengitteratomen reicht nun aus, um Präzipitate wieder aufzulösen (vgl. Abs. 2.3.1), d.h. kleine Präzipitate in der Nähe von größeren Präzipitaten lösen sich schneller auf. Abbildung 30b zeigt den Verlauf der absoluten Grenzkonzentration $C_I^{dR=0}$ bei zunehmender Temperatur, einem anschaulichen Maß für das zum Auflösen eines Präzipitates benötigte Aufkommen an Eigenzwischengitteratomen. Der weitgehend monotone Anstieg der Grenzkonzentration weist auf eine immer mehr an Einfluß gewinnende Rekonstruktion des Si-Gitters im Volumen hin. Für die Übersättigung an Eigenzwischengitteratomen ergibt sich durch die maximale Anzahl von Si-Atomen in einem Si-Gitter einer vorgegebenen Größe eine physikalische Obergrenze und ist ebenfalls in Abbildung 30b eingetragen.

Entsprechend zu Abbildung 1 ist in Abbildung 30c der Eigenzwischengitteratomanteil y gegen die Temperatur für $S_I^\infty S_V^\infty \neq 1$ aufgetragen. In der damit verbundenen Abbildung 30d wird deutlich, daß der bislang noch nicht eingehender betrachtete Spannungsanteil d am Akkomodationsvolumen bei hohen Temperaturen nicht auf Null abfällt. Aus den Abbildungen 30a und 30b geht weiterhin hervor, daß sich bei Berücksichtigung des Spannungsanteils eine puffernde Wirkung einstellt, die das Auflösen der SiO₂-Präzipitate zu größeren Übersättigungen an Eigenzwischengitteratomen hin hinauszögert. Der $C_I^{dR=0}$ -Wert liegt bei hohen Temperaturen jedoch über der eingezeichneten physikalischen Obergrenze für die Übersättigung an Eigenzwischengitteratomen, so daß allein durch eine hohe Konzentration an Eigenzwischengitteratomen kein SiO₂-Präzipitat mehr aufzulösen ist. Nach dem Überschreiten von $C_I^{dR=0}$ strebt der x -Wert wie im spannungslosen Fall einem Grenzwert zu, der nun von Null verschieden ist. In diesem Verhalten spiegeln sich die natürlichen Beschränkungen, die mit dem Aufbau von Spannungen verbunden sind. Zum einen führen nur Spannungsanteile $d \leq 1$ zu physikalisch sinnvollen Ergebnissen, doch schon lange zuvor ist eine Umwandlung der amorphen SiO₂-Präzipitate in eine Hochdruckphase [84] zu erwarten und würde eine Erweiterung der bestehenden Betrachtung erfordern. Andererseits bei großen negativen Werten ergibt sich das Bild einer Blase im Si-Gitter, die nur unzureichend mit SiO₂-Molekülen gefüllt ist und ebenfalls einen sehr unwahrscheinlichen Zustand darstellt. Die benötigte Energie zur Erniedrigung der Gesamtenergie des Systems für $d \neq 0$ liegt damit meist über dem für die gleichzeitige Erzeugung

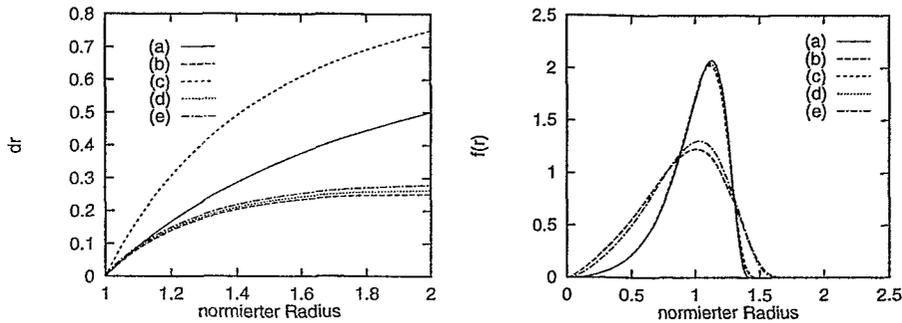


Abbildung 31: Wachstumsrate dr (links) und Radienverteilung $f(r)$ (rechts) für (a) diffusionsbestimmtes Wachstum, sowie Wachstum unter Berücksichtigung des elastischen Potentials ((c) $\delta = 0.4 / r_m=10 / T=400^\circ\text{C}$, (d) $\delta = 0.1 / r_m=4 / T=1300^\circ\text{C}$) und (e) des Volumenanteils ($\Phi = 0.1$) (vgl. Abs. 2.1.3.4). Die Radien sind auf den mittleren Radius normiert.

von Eigenzwischengitteratomen und Leerstellen. Der Energiebereich, in dem der Aufbau von Spannungen begünstigt ist, ist demzufolge eng begrenzt.

Für die Dauer, in der die Spannungen aufrecht erhalten werden können, besteht für die Präzipitate die Möglichkeit der elastischen Wechselwirkung. Übergitter aus SiO_2 -Präzipitaten [181] und in großer Nähe zueinander befindlichen Präzipitate [41] geben experimentelle Hinweise, die diese Überlegungen unterstützen.

5.2.3.2 Elastische Wechselwirkungen Nachdem im vorhergehenden Abschnitt der Aufbau von Spannungen während des Ausheilens nicht ausgeschlossen wurde, ist dem Einfluß von elastischen Wechselwirkungen auf den Präzipitationsverlauf tiefgreifender nachzugehen (vgl. Abs. 2.1.3.4).

Die Paarkorrelationsfunktionen wurden für eine Analyse der Stärke der elastischen Wechselwirkungen (vgl. Abs. 2.1.3.4, 3.3.2.4) auf sich im Raum wiederholende Strukturen hin untersucht. Im Unterschied zu den statistischen Modellen, z.B. Hard-Core oder Soft-Core, liegt darum das Interesse auf den sich dem ersten Maximum anschließenden Maxima der Paarkorrelationsfunktion [135]. Diese Maxima sind bei den untersuchten Proben jedoch nur unzureichend bzw. nicht ausgebildet. Anhand der Korrelationsfunktionen der Abschnitte 4.2.4.2 konnte kein Übergitter nachgewiesen werden, wie dies in [181] geschah. In Übereinstimmungen mit den Überlegungen zur Reichweite der Spannungsfelder (vgl. Abs. 5.2.3.1) ist daher eine elastische Wechselwirkung über große Distanzen auszuschließen.

Welche Änderungen lokal beschränkte Spannungen bewirken, soll in einem Vergleich von Systemen mit unterschiedlichen Volumenanteilen abgeschätzt werden. Zunächst bleiben die Betrachtungen auf Systeme mit homogener Materialverteilung beschränkt, da diese mathematisch einfach zu beschreiben sind. In Erweiterung zu der Entwicklung des mittleren Radius im thermodynamischen

Modell (vgl. Abs. 2.1.3.3) werden Radienverteilungen (Abb. 31) betrachtet. Die Radienverteilungen folgen aus dem Mean-Field-Ansatz Sauthoff's [182], in dem entsprechend Abschnitt 2.1.3.4 Korrekturterme für elastische Wechselwirkungen berücksichtigt wurden. Für den vorliegenden Spannungstyp ergaben sich keine qualitativen Änderungen des Reifungsverlaufes in Bezug auf den mittleren Radius (Abb. 31, vgl. Abs. 2.1.3.4). Dieses Ergebnis überträgt sich auf die Radienverteilungen, da die Abweichungen der Kurven mit Volumenanteilen $\Phi = 0$ und $\Phi = 0.1$ zu den entsprechenden Kurven mit Spannungsanteil nur geringfügig ausfallen.

Die auffällig hohen Korrelationen kleiner gleichgroßer Präzipitate bei geringen Abständen für Proben in der Umordnungsphase (Abb. 26) weisen auf Cluster mit 2 - 4 Präzipitaten hin. Am Beispiel zweier kleiner Präzipitate wird der Einfluß der Spannungen deutlich: es ist nicht mehr das kleinere der beiden, das sich zwangsläufig auflöst, vielmehr besteht nun die Möglichkeit, daß sich beide gegenseitig stabilisieren. Daraus ergibt sich eine Verzögerung im Reifungsgeschehen und die Cluster können als langlebige Zeugen einer Umordnung aufgefaßt werden (vgl. Abs. 5.2.1, 5.2.2.3). Dies schlägt sich weiterhin in der Verschiebung des Schwerpunktes in der Radienverteilung zu kleineren Radien hin nieder (vgl. Abs. 4.2.4.2). Falls aber das kleinere der beiden Präzipitate auf Kosten des größeren wächst und dabei eine überkritische Größe erreicht, kommt es gegenüber dem spannungslosen Fall zu einer neuen Anordnung in der Präzipitatverteilung. Die starke lokale Beschränkung der elastischen Wechselwirkung zwischen den Präzipitaten läßt jedoch nur geringfügige Veränderungen für den gesamten Präzipitationsverlauf und damit auch in der Radienverteilung erwarten.

Bei dem direkten Wechselwirken geht die Bedeutung des kritischen Radius für das gesamte System als Schwellwert für die Unterscheidung zwischen großen und kleinen Präzipitaten immer mehr zugunsten des lokalen kritischen Radius verloren.

5.3 Modellierungsansatz zum Reifen

Da augenblicklich keine befriedigenden analytischen Modelle existieren, um reale Systeme mit inhomogener Materialverteilung zu beschreiben, müssen die experimentellen Ergebnisse anhand von Simulationen diskutiert werden (vgl. Abs. 5.2). Mit den Simulationen liegt aber lediglich ein auf Annahmen gestützter Algorithmus vor. Im folgenden soll zunächst nach dem einfachsten Modellansatz gesucht werden, der die experimentellen Ergebnisse in Bezug auf das Reifen in Systemen mit inhomogener Materialverteilung noch ausreichend wiedergibt. Damit wird ein Rahmen vorgegeben, in dem ein tieferegreifendes Verständnis für die physikalischen Prinzipien des Systems ermöglicht wird. Ist ein solches Modell erstellt, dann können weitere Mechanismen wie z.B. Spannungen und Defekte mit eingebaut werden, soweit dies nicht schon erforderlich war.

5.3.1 Annahmen zum Reifungsmodell

In Systemen mit homogener Materialverteilung und einem geringen Volumenanteil steht die Wechselwirkung der Präzipitate mit dem Diffusionsfeld im Vordergrund (vgl. Abs. 2.1.3.1). Der Aufbau eines Tiefenprofils für Systeme mit inhomogener Materialverteilung aus Schichten erscheint daher naheliegend. Der gegenseitige Einfluß der Schichten aufeinander kann dabei über den Materialfluß durch die Grenzflächen beschrieben werden. Mit einfachen Modifikationen der Modelle [15, 29] zur Präzipitation in homogen verteilten Systemen läßt sich auch der Präzipitationsverlauf in inhomogen verteilten Systemen nachvollziehen. In Prozeßsimulatoren [183, 184] können somit SiO₂-Präzipitatverteilungen in CZ-Substraten unter Berücksichtigung der Defektprofile nach den unterschiedlichsten Wärmebehandlungen mit großer Genauigkeit bestimmt werden.

Implantierte Systeme hingegen weisen lokal einen sehr viel höheren Volumenanteil auf. Die große Nähe der Präzipitate in den Proben ist an der vergleichbaren Größenordnung der Abstände und Durchmesser der Präzipitate zu erkennen (vgl. Abs. 5.2.2.2). Weiterhin ist zu beobachten, daß die Breite der Maxima bzw. Präzipitatbänder nur dem weniger mittlerer Präzipitatchdurchmesser entsprechen. Die Bedeutung des Flusses durch eine Grenzschicht geht dabei verloren. Die Verwendung eines Vielteilchenansatzes erscheint daher geboten. Für die direkt wechselwirkenden Präzipitate werden in einem ersten Näherungsschritt, analog zu Monopolen in einem elektrischen Feld, punktförmige Quellen/Senken angenommen (vgl. Abs. 2.1.3.2). Die in einem Festkörper meistens vorhandenen elastischen Spannungen fordern (vgl. Abs. 2.1.3.4), daß gleichermaßen das Diffusionsfeld des Sauerstoffes, das Spannungsfeld und gegebenenfalls das Diffusionsfeld der Defekte (vgl. Abs. 2.3.1) zu bestimmen ist. Dabei ergibt sich die Notwendigkeit, aufwendiger gestaltete Quellen bzw. Senken zu verwenden, die im elektrischen Analogon z.B. Quadropolen entsprechen [41]. Die experimentellen Untersuchungen belegen jedoch, daß sich das elastische Wechselwirken der Präzipitate auf geringe Abstände beschränkt und für das Reifen nur von untergeordneter Bedeutung ist (vgl. Abs. 5.2.3.2). Der numerische Aufwand für die Simulation kann dadurch gering gehalten werden, ohne daß große qualitative Nachteile zu erwarten wären.

Aufwendiger gestaltete Quellen/Senken werden aber auch in Systemen mit stark inhomogenen Präzipitatverteilungen und lokalen Volumenanteilen > 0.1 erforderlich [34]. Der konstante isotrope Materialfluß durch die Oberfläche des Präzipitates, der bei Verwendung der Monopolnäherung angenommen wird, wird dabei der Anisotropie des umgebenden Konzentrationsfeldes nicht mehr gerecht. Für die Präzipitate besteht nun die Möglichkeit zu wandern [49], aber auch Formen nicht-sphärischer Gestalt anzunehmen ([185, 186], Abb. 18). So sind z.B. in SIMOX-Substraten häufig längliche parallel zur Oberfläche ausgerichtete Präzipitate zu beobachten.

Der Einfluß der Defektprofile, soweit diese sich über große Tiefenbereiche ho-

mogen darstellen lassen, geht nicht explizit in die Rechnungen ein und sollte bei der Simulation des Reifens allein in einer Verschiebung der Zeitskala festzustellen sein. Die in den Abschnitten 2.3.1 und 2.3.3.1 besprochenen Vorgänge wirken zwar auf die Geschwindigkeit des Reifungsprozesses ein, rufen bei einer gleichförmigen Defektkonzentration aber prinzipiell keine neuen Phänomene hervor.

5.3.2 Annahmen zur Präzipitatverteilung

Die in [52] durchgeführten Simulationen erlauben nicht nur die Bestimmung von Radienverteilungen, sondern liefern auch die räumliche Verteilung der Präzipitate. Den Untersuchungen vorangestellt sind die Bestimmung der Ausgangsbedingungen zu Beginn der Reifungsphase, von welchen das Reifen in einem starken Maße abhängt (vgl. Abs. 4.2.4). Der fließende Übergang zwischen dem Wachstum und der Reifungsphase jedoch verwehrt eine eindeutige Festlegung des Reifungsbeginnes (vgl. Abs. 2.3.3.4). Zudem können experimentelle Ergebnisse erst für schon im Reifen begriffene Systeme gewonnen werden (vgl. Abs. 4.1.3.4). Für die Festlegung eines Anfangszustandes ergeben sich die folgenden Möglichkeiten:

- Definition eines Anfangszustandes

Aus einfachen Formen, z.B. Rechteck- oder Gauß-Verteilungen, werden idealisierte Dichte- und Radienprofile erstellt. Diese entsprechen dem experimentell kaum zugänglichen Zustand zum Ende des Wachstums (vgl. Abs. 4.2.3). Die gewählten Formen stützen sich qualitativ auf Aussagen zur Dichte und dem mittleren Radius aus XTEM-Untersuchungen (Abb. 19). Die Simulationen zu den unterschiedlichen Profilformen geben Auskunft über die notwendigen Bedingungen für das Auftreten von Selbststabilisation und Selbstorganisation [52]. Diese Vorgehensweise ermöglicht die Diskussion (vgl. Abs. 5.2.2) zu den experimentellen Reifungsdaten der Abschnitte 4.2.1 und 4.2.4.

- Experimentelle Anfangsbedingungen

Für eine genaue Nachbildung des Reifungsgeschehens müssen aus den experimentellen Ergebnissen solche Informationen bestimmt werden, die in die Simulationen nutzbringend eingearbeitet werden können. Die Angabe von Mittelwerten und Varianzen zu den Dichten und Radien der Präzipitate allein ist in Systemen mit hohen Volumenanteilen nicht mehr ausreichend. Bei vergleichbarer Dichte und Radienverteilung sind es die Radienkorrelationen, die entscheiden, welchen Verlauf die Reifung nimmt (vgl. Abs. 5.2.2.4). Die Korrelationen geben mit vor, ob zu Beginn der Simulation das System in der Tiefe bzw. Schicht reift, oder sich im Stadium des Wachstums bzw. der Auflösung befindet. Sollen höhere Momente der Radienverteilung bzw. Korrelationen bei der Aufstellung der Anfangsbedingungen mitverwendet werden, sind aus Gründen der Statistik aber größere Beobachtungsfenster

in den einzelnen Tiefenbereichen zu wählen (vgl. Abs. 3.3.3). Bestehende parameterfreie Verfahren für ein Umrechnen der Korrelationsfunktionen in ein Potential des Gibbs-Feldes, wie es zur Erzeugung von Punktmustern benötigt wird, sind numerisch sehr aufwendig und für Reihenuntersuchungen nur bedingt geeignet ([174, 175], vgl. Abs. 4.2.4.2).

Mit den nur näherungsweise bestimmbareren Anfangsbedingungen sind lediglich qualitative Vergleiche zwischen experimentellen Daten und den Simulationsergebnissen möglich.

Für eine weitere Zusammenführung experimenteller und theoretischer Ergebnisse könnten Keimbildung und Wachstum mit in die Simulation integriert werden. Doch sind beide Präzipitationsphasen für das vorliegende System experimentell wiederum nicht zugänglich. Die zu treffenden zusätzlichen Annahmen würden abermals nur einen qualitativen Vergleich des Präzipitationsverlaufes erlauben.

Eine stärkere Ausrichtung der Experimente auf den Selbstorganisationsprozeß wäre, wie in den Abschnitten 2.3.3.3, 3.6.1, 5.2.1 besprochen, nur bedingt möglich.

6 Zusammenfassung

Im Rahmen dieser Arbeit wurde Sauerstoff in Silizium implantiert, um den Präzipitationsverlauf und speziell das Reifen während der Ausheilung zu untersuchen. Die Bildung von Präzipitaten und deren Anordnung in zwei Bändern ist für dieses System mit einer inhomogenen Materialverteilung eine häufig zu beobachtende Erscheinung. Das Hauptaugenmerk der Arbeit lag somit in der Bestimmung der beteiligten Strukturierungsprozesse und der an diese gebundenen notwendigen Bedingungen. Mit einer speziell entwickelten Analysemethodik an Schrägsliffen unter Verwendung eines SEM konnten Position und Größe der entstehenden Präzipitate, den Beschreibungsgrößen für das System, ermittelt werden. Diese Vorgehensweise gewährleistete gegenüber der konventionellen XTEM-Analyse eine statistisch höhere Zuverlässigkeit. Erstmals wurden darüberhinaus für das System Korrelationen untersucht, die Auskunft über die Anordnung der Präzipitate zueinander geben und damit die Möglichkeit eines umfassenderen Vergleiches mit Ergebnissen aus Simulationen bieten.

Für das Offenlegen des Strukturierungsmechanismus wurde eine Dosis von $1 \times 10^{17} \text{O}^+ \text{cm}^{-2}$ bei $230^\circ\text{C} - 650^\circ\text{C}$ in Si-Substrate implantiert und bei 1300°C für ein bis acht Stunden ausgeheilt. Neben dem Einfluß der Anfangsbedingungen auf das Reifen konnte so ebenfalls der zeitliche Verlauf der Präzipitation erschlossen werden.

Trotz der weit gefächerten Bedingungen zum Reifungsbeginn blieb die Streuung des Abstandes der beiden Präzipitatabänder nur gering und ein Zusammenhang der Bänder mit dem Defekt- und dem Sauerstoffband erscheint angemessen. Die nachlassende Ausbildung des ersten näher zur Oberfläche gelegenen Bandes mit zunehmender Implantationstemperatur geht auf einen vom Reifen unabhängigen physikalischen Vorgang zurück. Diese Eigenschaften der beiden Präzipitatabänder weisen auf einen Ursprung hin, der noch vor dem Einsetzen des Reifens liegt.

Es zeigte sich aber auch, daß in dem tiefergelegenen Band eine weitere Aufspaltung in den Proben zur Implantationstemperatur von 300°C und 600°C zu beobachten ist. Ein Vergleich mit durchgeführten Simulationen deutet nun auf einen durch das Reifen bedingten Selbstorganisationsprozeß hin. Hervorzuheben ist dabei das Anordnen gleichgroßer großer Präzipitate, das sich aus dem Verlauf entsprechender Korrelationsfunktionen ergibt. Analog zu dem Verarmungsbereich eines einzelnen wachsenden Präzipitates in einer übersättigten Lösung kann nun diesen großen Präzipitaten ein Einflußbereich zugeordnet werden, in dem sie unabhängig von benachbarten Präzipitaten gleicher Größe wachsen können. Kleinere Präzipitate, die sich durchaus in diesem neu definierten Einflußbereich befinden können, schirmen die größeren voneinander ab, so daß Bedingungen geschaffen

werden, die einen verstärkten Materialfluß senkrecht zur Oberfläche erlauben. Hingegen sind bei Implantationstemperaturen von 650°C die Korrelationsfunktionen denjenigen für ein Reifen in Systemen mit homogener Materialverteilung ähnlich. Dies deutet auf einen Materialfluß hin, der hauptsächlich parallel zur Oberfläche verläuft. In Erweiterung zu den aus den Simulationen abgeleiteten Modellvorstellungen konnte somit nachgewiesen werden, daß neben den Radienverteilungen die Anordnung der Präzipitate von großer Bedeutung für das Reifen in Systemen mit hohen Volumenanteilen und inhomogener Materialverteilung sind.

Bei der Präzipitation in einem Festkörpersystem sind auftretenden Spannungen besondere Beachtung zu schenken. Betrachtungen zur Stärke der verschiedenen bei der Präzipitation beteiligten Mechanismen schlossen das Auftreten elastischer Wechselwirkungen zwischen Präzipitaten während der Ausheilung nicht gänzlich aus. Doch zeigten die Radienkorrelationsfunktionen, daß die Wechselwirkungen auf nur sehr kurze Abstände beschränkt bleiben. Der Präzipitationsverlauf wird dadurch lediglich verzögert, unterliegt aber keiner qualitativen Veränderung. Für die Simulationen zur Selbstorganisation konnte damit die Annahme von zu vernachlässigenden elastischen Wechselwirkungen experimentell überprüft werden.

Die Vorgehensweise bei der Bildanalyse der SEM-Aufnahmen und der Beschreibung des Reifens in einem implantierten System – mittels Tiefenverteilung und der aufgestellten Korrelationsfunktionen – sind so allgemein gehalten, daß sie in einfacher Weise auf andere Systeme mit inhomogener Materialverteilung zu übertragen sind. Weitere Arbeitsfelder stellen dabei z.B. Untersuchungen zur Dispersion von Si-Nanopartikeln in amorphen dünnen SiO₂-Schichten dar.

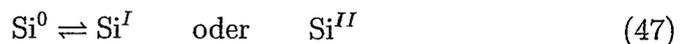
A Chemisches Ätzen

Ätzen von Silizium

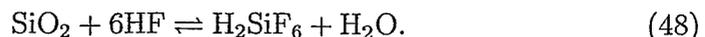
Naßchemische Verfahren sind bei der Halbleiterbearbeitung von großer Bedeutung. Mit wäßrigen Lösungen lassen sich so unterschiedliche Ziele wie Reinigung von Oberflächen [187, 188], Anätzen von Defekten [112, 113], Herstellung von dreidimensionalen Strukturen [189] oder photochemische Energiegewinnung [190] verfolgen. Viele der zu den naßchemischen Behandlungen alternativen Verfahren stützen sich auf Plasma- bzw. Ionenstrahltechniken [1]. Die bei diesen Verfahren mit der Oberfläche und dem Volumen des Siliziums wechselwirkenden Ionen stören dessen geordnete Struktur und werden bei der fortschreitenden Miniaturisierung von Halbleiterbauelementen als Behandlungsmethode immer kritischer.

In fast allen angesprochenen Anwendungsgebieten naßchemischer Verfahren geht die Wirkung von den ätzenden Eigenschaften der verwendeten Lösungen aus und verläuft in zwei Stufen:

- das an der Oberfläche elementar vorliegende $\text{Si}(0)$ wird zu $\text{Si}(I)$ bzw. $\text{Si}(II)$ oxidiert



- das oxidierte Silizium geht direkt oder als Oxid in Lösung



Die Oxidation des Siliziums erfolgt durch die Reduktion eines in der Lösung befindlichen Oxidationsmittels. Da beide Reaktionen gleichzeitig, aber unabhängig voneinander ablaufen, handelt es sich um eine Redoxreaktion, die derjenigen in einer elektrochemischen Zelle [191] entspricht. Die Potentiale der beteiligten Halbzellen legen den Verlauf der Reaktion fest. Das Potential der Kathode, das durch die Oxidationskraft des Oxidationsmittels vorgegeben ist, wird gegen eine Wasserstoff-Normalelektrode gemessen. Die Lösung besitzt dabei definitionsgemäß einen pH-Wert von 0, wobei Ätzungen bei höheren pH-Werten eine Korrektur des Potentials um 55meV/pH erfordern. Das Potential der anodischen Halbzelle ist mit der Austrittsarbeit der Elektronen aus dem Silizium gegeben. Da die Nullpunkte der für die beiden Halbzellen benutzten Energieskalen nicht übereinstimmen, müssen diese mit der Potentialdifferenz von -4.5eV/pH , die sich für die Wasserstoff-Normalelektrode gegen das Vakuumniveau ergibt, umgerechnet werden. Bei dem Eintauchen des Siliziums in die Ätzlösung – das Silizium ist eine zweifach-Elektrode, da es sowohl die Funktion einer Anode als auch einer Kathode wahrnimmt – gleicht sich das Fermi-niveau des Halbleiters dem Potential der umgebenden Lösung an. Liegt das elektromotorische Potential der Lösung tiefer als das des ursprünglichen Fermi-niveaus, setzt ein Fluß von Elektronen aus dem Silizium in die Lösung zur Reduzierung des dortigen Oxidationsmittels ein.

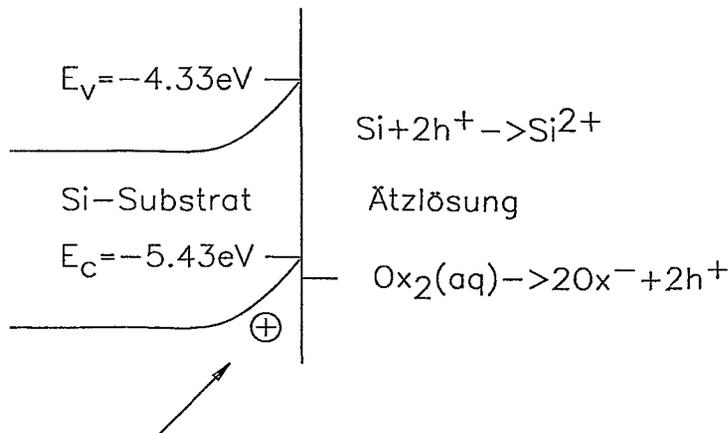
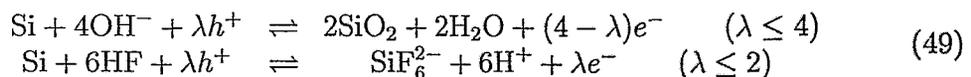


Abbildung 32: Potentialverlauf an der Si(100)/Lösung-Grenzfläche

Infolgedessen bildet sich an der Grenzschicht in dem Silizium eine positive Raumladungszone und in der Lösung eine elektrische Doppelschicht mit einem Überschuss an OH^- -Ionen aus. Die Potentialdifferenz, die sich über der Grenzschicht aufbaut, bewirkt eine Bandverbiegung in dem Silizium, die einen weiteren Zufluß an Elektronen zur Oberfläche verhindert. Die Akkumulation von Löchern in Oberflächennähe und der saure Charakter einer umgebenden HF-Lösung führt zu folgenden Reaktionsgleichungen für die Oxidation des Siliziums:



Die erste Reaktion tritt bevorzugt in Lösungen mit einem nur geringen HF-Anteil auf. Das oxidierte Silizium formt zunächst einen $\text{Si}(\text{OH})_x$ -Zwischenzustand aus, der später in SiO_2 zerfällt. Das Oxid des Siliziums bildet schließlich in der HF-haltigen Lösung eine lösliche H_2SiF_6 -Verbindung aus. Ein Zunehmen der HF-Konzentration in der Lösung führt zu einem verstärkten Auftreten der zweiten Reaktion, die ein direktes Auflösen des Siliziums durch das HF bewirkt.

Für die Siliziumätzung in basischer Umgebung können dieselben Modellvorstellungen herangezogen werden [192, 193].

Ein gleichmäßiges Anätzen der Si-Elektrodenoberfläche setzt voraus, daß für alle Bereiche der Oberfläche der anodische und der kathodische Charakter im zeitlichen Mittel ausgeglichen sind [194]. Daß sich dennoch nach einem Anätzen des Siliziums dessen Oberfläche aufraut, kann auf sehr unterschiedliche Gründe zurückgeführt werden:

- Es treten lokale statistisch verteilte Unregelmäßigkeiten des Ätzprozesses auf, die einem gleichmäßigen Ätzen nicht widersprechen.
- Bei einem zu geringen Oxidationspotential und/oder einem zu hohen Anteil an HF in der Ätzlösung ist die Ausbildung einer durchgängigen Oxidschicht auf den Si-Elektroden nicht mehr gewährleistet. Das einmal an willkürlicher Stelle gebildete Oxid wird sofort aufgelöst und hinterläßt dort Ätzgrübchen im Si [148, 154].
- Die Si-Oberfläche besitzt durch die Wasserstoffterminierung der freien Valenzen in wäßrigen Lösungen einen hydrophoben Charakter [195]. Der Ätzangriff einer wäßrigen Lösung ohne einen Zusatz, der eine verbesserte Oberflächenbenetzung zuläßt, wird zu einem lokal unterschiedlichen Ätzverhalten führen.
- Während des Ätzvorganges kann es in Abhängigkeit der Umgebungsbedingungen und der Oxidationsstufe des Si in Oberflächennähe zu Blasenbildungen (H_2) kommen [196]. In den betroffenen Oberflächenbereichen wird durch einen geometrischen Abschattungseffekt ein weiteres Anätzen des Si verzögert [197].

Erfährt das Oberflächenpotential der Si-Elektrode eine lokale Modifizierung durch Defekte [198], ist ein präferenzielles Anätzen möglich. Liegt das Potential dieser Gebiete über dem des Si-Grundmaterials, werden diese bei einer entsprechenden Wahl des Oxidationspotentials der Ätzlösung bevorzugt oxidiert und damit selektiv angeätzt. Die Einstellung des Oxidationspotentials erfolgt über die Wahl des Oxidationsmittels und dessen Verdünnung [154, 191]. Sehr häufig zur Anwendung kommende Oxidationsmittel sind CrO_3 [154, 199, 200] und HNO_3 [112, 113], deren Potentiale ausreichend tief liegen, um Si gleichmäßig anzuätzen bzw. chemisch zu polieren. Noch tiefer liegende Potentialeinstellungen können durch Lichteinstrahlung [191] und von außen angelegte Spannungsquellen [112, 201] erreicht werden, führen jedoch allein zu dickeren Oxiden und zur Dissoziation des Wassers.

Die Temperaturabhängigkeit des Ätzvorganges hängt von der Kinetik an der Si/Lösung-Grenzfläche ab. Für Ätzungen bei Raumtemperatur in Lösungen mit einem niedrigliegenden Potential, die eine geschlossene Oxidschicht ausbilden, wurde als geschwindigkeitsbestimmender Schritt die Diffusion des HF zur Grenzfläche gefunden. Temperaturänderungen der Umgebung um wenige Grad Celsius sind in diesem Bereich von geringer Bedeutung. Ätzungen, die bei höheren Temperaturen durchgeführt werden, insbesondere bei HNO_3 -Lösungen, besitzen einen sehr komplexen Verlauf und auch Temperaturdifferenzen wirken sich deutlicher aus [147].

Ätzen von Siliziumdioxid

Bei dem Ätzen bzw. Auflösen von SiO_2 in HF handelt es sich um einen komplexen, rein chemischen Prozeß. Läßt sich die Reaktion gemäß Gleichung (48) in Summenform darstellen, ist es jedoch nicht möglich, einen geradzahligen Reaktionsgrad zu bestimmen. Daraus ist zu schließen, daß mehrere Reaktionen parallel zueinander verlaufen. In Abhängigkeit von der HF-Konzentration und dem pH-Wert der Lösung liegen mehrere Fluorwasserstoffverbindungen im Gleichgewicht miteinander vor [202]



und besitzen eine unterschiedliche Wirkung auf den SiO_2 -Auflösungsprozeß. Für HF_2^- -Ionen konnte nachgewiesen werden, daß diese ein inhomogenes Auflösungsverhalten verursachen und damit zu unregelmäßigen Strukturen der Si-Oberfläche Anlaß geben. Das Anlösen des SiO_2 durch HF hingegen ist ein gleichmäßig ablaufender Prozeß und durch einen hohen HF-Anteil bzw. Einstellung der Lösung auf einen sehr geringen pH-Wert zu realisieren [203].

B Punktstatistik

Ein Punktprozeß Φ im \mathbf{R}^n ist definiert als eine Untermenge eines meßbaren Raumes $[\mathbf{N}, \mathcal{N}]$, deren Elemente mit Hilfe einer Zufallsvariablen ausgewählt wurden [124]. Der Raum \mathbf{N} baut sich aus den Mengen φ im \mathbf{R}^n auf, die den folgenden Bedingungen genügen:

- die Untermenge φ ist lokal begrenzt (jede begrenzte Untermenge des \mathbf{R}^n enthält nur eine endliche Anzahl von Punkten x_n);
- die Untermengen sind einfach, so daß $x_i \neq x_j$ wenn $i \neq j$.

Häufig wird $\{x_n\}$ vereinfachend durch φ ersetzt. Die Verteilungsfunktion, die einen Punktprozeß $\Phi(B) = \{x_n\} = \sum 1_B(x)$ beschreibt, ist bestimmt durch die Wahrscheinlichkeiten

$$P(Y) = P(\Phi \in Y) \quad \text{in} \quad \mathcal{N}. \quad (51)$$

Ein Punktprozeß kann somit als eine Zufallsmenge von diskreten Punkten mit $x \in \Phi$ oder aber als Zufallsmaß angesehen werden, das die Zahl der Punkte innerhalb einer Menge B angibt. Eine Verteilungsfunktion P heißt stationär, wenn deren Statistik unter Translation

$$P(\Phi \in Y) = P(\Phi_x \in Y) \quad (52)$$

invariant bleibt mit $\Phi_x = \{x_n - x\}$ und einer Verschiebung x . Die Isotropie der Verteilungsfunktion zu einem Punktprozeß läßt sich in ähnlicher Weise formulieren

$$P(\Phi \in Y) = P(r\Phi \in Y) \quad (53)$$

mit $r\Phi$ der Rotation eines Punktprozesses. Stationarität und Isotropie ergeben einen bewegungsinvarianten Zustand, der für eine beliebige euklidische Verschiebung im \mathbf{R}^n die Form der Verteilungsfunktion erhält.

Analog zu den Methoden der Statistik besteht die Möglichkeit, die Form der Verteilungsfunktion zu charakterisieren. Grundlegend dabei sind die Momente 1. Ordnung $\mu^{(1)}$ (Mittelwert) und 2. Ordnung $\mu^{(2)}$ (Varianz) der Verteilung, die nunmehr dimensionsbehaftet sind. Das Maß für $\mu^{(1)}$ ist das Intensitätsmaß $\Lambda(B)$

$$\begin{aligned} \mu^{(1)} = \Lambda(B) &= E\Phi(B) \\ &= E \sum_{x \in \Phi} 1_B(x) \\ &= \int \sum_{x \in \Phi} 1_B(x) P(d\varphi) \\ &= \int \int 1_B(x) \varphi(dx) P(d\varphi) \end{aligned} \quad (54)$$

und entspricht der mittleren Anzahl der Punkte in B . Die Mittelwertbildung \bar{E} wurde unter Beachtung des Campell Theorems durch eine Integration über B mit der Verteilungsfunktion P ersetzt. Andererseits ist auch die Darstellung

$$\mu^{(1)} = \Lambda(B) = \int \varphi(dx)P(d\varphi) \quad (55)$$

für $\Lambda(B)$ möglich, so daß sich das Integrationsmaß $\Lambda(dx)$

$$\Lambda(B) = \int 1_B(x)\Lambda(dx) \quad (56)$$

definieren läßt. Das Λ -Integral kann unter Verwendung der Intensität $\lambda(x)$ in ein Volumenintegral umgewandelt werden

$$\Lambda(B) = \int 1_B(x)\lambda(x)dx. \quad (57)$$

Liegt ein stationärer Punktprozeß mit $\lambda(x) = \lambda$ vor, vereinfacht sich der Ausdruck weiter zu

$$\Lambda(B) = \lambda \int 1_B(x)dx = \lambda v_n(B) \quad (58)$$

$v_n(B)$ gibt das n -dimensionale Volumen von B an.

Das Moment 2. Ordnung $\mu^{(2)}$ ist auf \mathbb{R}^{2n} definiert durch

$$\begin{aligned} \mu^{(2)} = E(\Phi(B_1)\Phi(B_2)) &= E \sum_{x,y \in \Phi} 1_{B_1}(x)1_{B_2}(y) \\ &= \int \sum_{x,y \in \Phi} 1_{B_1}(x)1_{B_2}(y)\mu^{(2)}(d(x_1, x_2)). \end{aligned} \quad (59)$$

Für eine weitere Vereinfachung von $\mu^{(2)}$ wird das faktorielle Moment 2. Ordnung $\alpha^{(2)}$ eingeführt, das auf \mathbb{R}^{2n} definiert ist durch

$$E \sum_{x,y \in \Phi}^{\neq} 1_{B_1}(x)1_{B_2}(y) = \int 1_{B_1}(x)1_{B_2}(y)\alpha^{(2)}(d(x_1, x_2)) \quad (60)$$

mit \sum^{\neq} der Summation über alle Punkte $x \neq y$ in φ . Auch zu dieser Integration kann ein Volumenintegral angegeben werden

$$\int 1_{B_1}(x)1_{B_2}(y)\alpha^{(2)}(d(x_1, x_2)) = \int 1_{B_1}(x)1_{B_2}(y)\zeta^{(2)}(x_1, x_2)dx_1dx_2 \quad (61)$$

mit der Produktdichte $\zeta^{(2)}(x_1, x_2)$. Ein stationärer Punktprozeß führt zu einer Abhängigkeit von $\zeta^{(2)}(x_1, x_2)$, indem nur noch der Abstand h der Punkte x und y eingeht.

Wird in $\alpha^{(2)}(x, y)$ y durch $x + h$ ersetzt

$$\begin{aligned} & \int \sum_{x, y \in \Phi}^{\neq} 1_{B_1}(x) 1_{B_2}(y) P(\varphi) \\ &= \int \sum_{x \in \Phi} 1_{B_1}(x) 1_{B_2}(x+h) P^1(\varphi) \\ &= \int \int 1_{B_1}(x) 1_{B_2}(x+h) \varphi(d(x, x+h)) P^1(\varphi), \end{aligned} \quad (62)$$

wobei durch die Verteilungsfunktion P^1 wie schon bei \sum^{\neq} alle Punktpaare mit $h = 0$ ausgeschlossen sind. Ein zu $\alpha^{(2)}(x_1, x_2)$ häufiger verwendetes Maß in der statistischen Geometrie ist das Campell-Maß C . Bei diesem erfolgt die Integration nicht mehr über die beiden voneinander unabhängigen Variablen x und y , sondern nach der Ersetzung von y durch $x + h$ nur noch von x und der Umgebung φ des Punktes x . C^1 bezeichnet weiterhin ein Campell-Maß mit $\varphi \setminus \{x\}$. Es liegt nahe, unter Voraussetzung der Bewegungsinvarianz die Information aus den Umgebungen aller Punkte zu sammeln und in der eines 'typischen' Punktes zusammenzufassen

$$\begin{aligned} & \int \int 1_{B_1}(x) 1_{B_2}(x+h) \varphi(d(x, x+h)) P^1(\varphi) \\ &= \int \int 1_{B_1}(x) 1_{B_2}(x+h) \varphi(dh) P_0^1(\varphi) \\ &= \lambda^2 \int \int 1_{B_1}(x) 1_{B_2}(x+h) K(dh) dx. \end{aligned} \quad (63)$$

Das reduzierte Moment-Maß 2. Ordnung $\lambda K(B)$ gibt die mittlere Zahl an Punkten in der Umgebung φ eines typischen Punktes an.

Das Moment 2. Ordnung ist nun durch eine Volumenintegration darzustellen

$$\mu^{(2)}(B_1 \times B_2) = \Lambda(B_1 \wedge B_2) + \alpha^{(2)}(B_1 \times B_2). \quad (64)$$

Für Varianzen und Kovarianzen, die sich aus dem Moment 2. Ordnung ableiten lassen, gilt

$$\begin{aligned} cov(B_1, B_2) &= E\Phi(B_1)\Phi(B_2) - E\Phi(B_1)E\Phi(B_2) \\ &= \mu^{(2)}(B_1 \times B_2) - \Lambda(B_1)\Lambda(B_2) \\ &= \alpha^{(2)}(B_1 \times B_2) \end{aligned} \quad (65)$$

und

$$var(B) = \alpha^{(2)}(B \times B) \quad (66)$$

mit $B_1 = B_2$.

Neben diesen Momenten zweiter Ordnung lassen sich bei Vorliegen eines markierten Punktfeldes auch Korrelationen zwischen den Marken beschreiben. Analog zu $\alpha^{(2)}$ ist ein Maß $\alpha_f^{(2)}$ gemäß

$$\alpha_f^{(2)}(B_1 \times B_2) = \sum_{[x_1; m_1] \in N} \sum_{[x_2; m_2] \in N}^{\neq} f(m_1, m_2) 1_{B_1}(x_1) 1_{B_2}(x_2) \quad (67)$$

mit – angenommen die Marken repräsentieren die mit den Punkten verbundenen Radien –

$$f(m_1, m_2) = m_1 \cdot m_2 \quad (68)$$

zu definieren. Die Summation erfolgt wie in Gl. (60) nun aber über die Paare $[x_1; m_1], [x_2; m_2]$ aus B_1 bzw. B_2 mit der durch das \neq -Zeichen angedeuteten Einschränkung $x_1 \neq x_2$. Für die nichtnegative Testfunktion $f(m_1, m_2)$ liegen immer dann große Werte vor, wenn beide Marken über einen hohen Wert verfügen. Unter Beibehaltung der weiter oben ausgeführten Vorgehensweise kann zu $\alpha_f^{(2)}$ eine Dichtefunktion $\varrho_f^{(2)}$ angegeben werden. Der Quotient

$$\aleph_f(x_1, x_2) = \frac{\varrho^{(2)f}(x_1, x_2)}{\varrho^{(2)}(x_1, x_2)} \quad \text{mit} \quad \varrho^{(2)}(x_1, x_2) \quad (69)$$

kann als bedingter Erwartungswert angesehen werden. Der Mittelwert von $f(x_1, x_2)$ wird unter der Bedingung, daß x_1 und x_2 Punkte des Feldes sind (mit den Marken m_1 und m_2), gebildet. Durch eine Normierung entsteht die Markenkorrrelationsfunktion $k_f(r)$,

$$k_f(r) = \frac{\aleph_f(r)}{\aleph_f(\infty)} \quad \text{mit} \quad \aleph_f(\infty) = \bar{m}^2 \quad \text{und} \quad r \geq 0. \quad (70)$$

Die Größe $\aleph_f(\infty)$ kann mit Hilfe der Markenverteilung M berechnet werden:

$$\aleph_f(\infty) = \int \int f(m', m'') M(dm') M(dm''). \quad (71)$$

Entsprechend der jeweils vorliegenden Aufgabenstellung lassen sich auch andere Funktionen $f(m_1, m_2)$ wählen.

Weitere Verteilungsfunktionen, mit deren Hilfe ein Punktprozeß beschrieben werden kann, sind die Verteilung der nächsten Nachbarn D und die Verteilung des 1. Kontaktes H .

- Die nächste Nachbarn-Verteilung gibt die mittlere Anzahl der nächsten Nachbarn in der Umgebung eines typischen Punktes im \mathbf{R}^n an.
- Die Verteilung des 1. Kontaktes ermittelt die mittlere Entfernung eines beliebigen "typischen" Ortes im \mathbf{R}^n zu einem Punkt des Punktprozesses.

C Punktfelder

Poisson-Feld

Grundlage für die Analyse und Modellierung vieler translationsinvarianter Punktfelder P ist das Poisson-Punktfeld. Charakteristisch für dieses Feld ist die poissonförmige Verteilung von Punkten in einer beliebigen, aber beschränkten Menge W mit der Fläche $A(W)$. Bei beliebigen, einander nicht schneidenden und beschränkten Mengen W_1, \dots, W_n ist die Anzahl der Punkte N_1, \dots, N_n stochastisch unabhängig. Poisson-Felder eignen sich besonders zur Beschreibung von rein zufälligen Punktmustern ohne jede Wechselwirkung zwischen den Punkten.

Hard-Core-Feld

Hard-Core-Felder sind mathematische Modelle für zufällige Systeme von Mittelpunkten einander nicht überlappender Kreise mit einem Radius R . Die Punktdichte beträgt

$$\lambda = \frac{1 - \exp(-\lambda_p c)}{c}, \quad (72)$$

wobei $c = 4\pi R^2$ und λ_p die Punktdichte des zugrundeliegenden Poissonschen Punktfeldes ist. Die dazugehörige Paarkorrelationsfunktion läßt sich mit

$$g(r) = \begin{cases} 0, & 0 \leq r < 2R, \\ \frac{2}{h(r)-c} \left(\frac{1}{\lambda} \frac{1 - \exp(-\lambda_p h(r))}{\lambda^2 h(r)} \right), & 2R \leq r \leq 4R, \\ 1, & r > R, \end{cases} \quad (73)$$

angeben, wobei

$$h(r) = 2c - \bar{f}_{b(0,2R)}(r) \quad \text{mit} \quad r \geq 0 \quad (74)$$

ist.

Soft-Core-Feld

Eine Erweiterung zu den Hard-Core-Feldern ist unter der Annahme von Punkten mit voneinander unabhängigen Marken (Kreisradien), die einer vorgegebenen Verteilung genügen, möglich. Die Realisierung eines Soft-Core-Feldes besteht darin, einem poissonverteilten Punktmuster alle diejenigen Punkte zu entnehmen, deren Mittelpunkte in dem Kreis eines anderen Punktes mit einem größeren Radius liegen. Das aus diesem Dünnungsprozeß erhaltene Punktmuster ist, wiederum wie das Ursprüngliche, stationär und isotrop [204]. Rechnungen zu Soft-Core-Punktfelder befinden sich in [44].

Typische Formen der Paarkorrelationsfunktion zu den verschiedenen Punktmodellen sind in Abbildung 33 wiedergegeben. In der die räumliche Ordnung be-

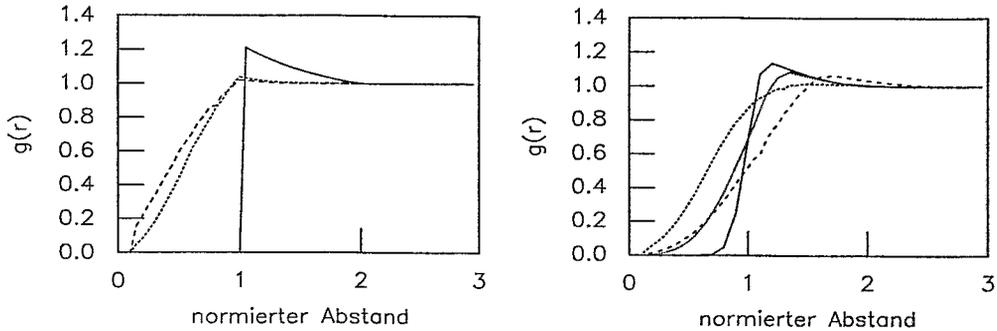


Abbildung 33: Paarkorrelationsfunktion $g(r)$ links:(—) Hard-Core mit Mindestabstand 1, (- - -) Soft-Core-Modell mit gleichmäßiger Radienverteilung zwischen 0 und 1, (- - -) Soft-Core-Modell mit gleichmäßiger Radienverteilung zwischen 0.5 und 1, rechts (—) Soft-Core-Modell mit gaußförmiger Radienverteilung ($\sigma = 0.1$), (- - -) Soft-Core-Modell mit gaußförmiger Radienverteilung ($\sigma = 0.4$), (- - -) Soft-Core-Modell mit LSW-Radienverteilung für reaktionsbestimmtes Wachstum, ($\cdot \cdot \cdot$) Soft-Core-Modell mit LSW-Radienverteilung für diffusionsbestimmtes Wachstum.

schreibenden Paarkorrelationsfunktion findet nun gleichermaßen eine Mittelung über die Positionen der Punkte als auch über deren Radien statt. Die Form der Paarkorrelationsfunktion steht damit in Verbindung mit der Radienverteilung. Eine Radienverteilung, die nur einen Wert enthält, wird durch ein Hard-Core-Feld repräsentiert. Radien, die mit derselben Häufigkeit in einer Radienverteilung auftreten, ergeben die einfachste Form für ein Soft-Core-Modell mit einem Ansteigen der Paarkorrelation bis zu dem Hard-Core-Abstand der größten Radien, um dann wieder abzufallen. Der Übergang zu einer gaußförmigen Radienverteilung mit im Vergleich zu einer gleichmäßigen Verteilung weniger häufig auftretenden kleinen und großen Radien, äußert sich in einem stärkeren Anwachsen der Paarkorrelation und einem breiteren und flacheren Maximum im Bereich des größten Hard-Core-Abstandes. Mit dem Verhältnis des normierten Abstands zur Breite der Radienverteilung lassen sich unterschiedlichste Felder erzeugen – mit Punkten, die unabhängig verstreut erscheinen bis hin zu denjenigen, die einer lockeren Ordnung folgen (vgl. Abs. 2.2).

Gibbs-Feld

Zur Modellierung von Punktmustern mit direkt vorgebbaren Wechselwirkungen zwischen den Punkten sind besonders Gibbssche Punktfelder geeignet. Die Verteilung dieser Felder kann durch die chemische Aktivität α und das Paarpotential $\varphi(r)$ beschrieben werden. Während α die Intensität λ beeinflusst, bestimmt φ die

Art der Verteilung, für z.B. das sehr einfache Strauss-Potential [135] ergibt sich

$$\varphi(r) = \begin{cases} \infty, & 0 \leq r \leq h_1, \\ b, & h_1 < r \leq h_2, \\ 0, & r > h_2, \end{cases} \quad (75)$$

mit h_1 dem Hard-Core Abstand, h_2 dem maximalen Wechselwirkungsabstand und dem Parameter b , der eine beliebige anziehende bzw. abstoßende Kraft festlegt. Das homogene und isotrope Gibbs-Feld genügt der folgenden Mittelwertbeziehung:

$$\lambda E_0(T(N \setminus \{0\})) = E \left[T(N) \exp(-\alpha - \sum_{x \in N} \varphi(\|x\|)) \right] \quad (76)$$

Auf der linken Seite steht ein Palmischer Erwartungswert (siehe Anhang B). $T(N)$ ist eine Funktion, die einem Punktfeld eine nicht negative Zahl zuordnet. Für ein Punktmuster P wird der Ausdruck

$$E(x, X) = \alpha + \sum_{y \in X} \varphi(\|x - y\|) \quad x \in P \quad (77)$$

als Energie gedeutet, die notwendig ist, um zu P den Punkt x hinzuzufügen. Größen wie Punktdichte und Punktkorrelationen lassen sich für Gibbs-Felder nur schwierig rechnerisch ermitteln und so nehmen Simulationsmethoden einen großen Raum in der Betrachtung von Gibbs-Feldern ein [135, 205].

Zufällige Mengen

Wird jedem Punkt ('Keim') eines Poissonfeldes unabhängig eine zufällige Menge ('Korn') zugeordnet und besteht die Möglichkeit der gegenseitigen Überdeckung der Mengen, liegt die Realisation eines Boole'schen Modelles vor [123, 135].

In dem Modell von Stienen [206] wird eine solche Überdeckung ausgeschlossen. Für die poissonverteilten Punkte mit Radius r existieren eine Nächste Nachbar-Verteilung $D(r)$ und eine Radiusverteilung $N_V(r)$, wobei gilt

$$N_V(r) = \alpha \cdot D(r) \quad \text{mit} \quad 0 < \alpha \leq 1. \quad (78)$$

Wird ein solches in drei Dimensionen erstelltes Modell durch eine Ebene geschnitten, sind in dieser ausschließlich sich nicht überlappende Kreise zu finden. Die Verteilung $N_V(r)$ geht der durch Wicksell beschriebenen Transformation ([207], vgl. Abs. 3.3.2.3) folgend in die zweidimensionale Verteilung $N_A(r)$ über. Die Mittelpunkte der Kreise bilden wiederum ein stationäres und isotropes Punktmuster, das aber nicht länger poissonverteilt ist. Für kurze Abstände treten verstärkt Korrelationen auf und ergeben eine Nahordnung.

Mit Gleichung (78) wird anders als in den vorhergehenden Modellen explizit zwischen Marken- (repräsentiert durch die Nächste Nachbar-Verteilung) und Radienverteilung unterschieden. Nur für den Grenzfall $\alpha = 1$ fallen beide Verteilungen wieder zusammen und es läßt sich die Radienverteilung $N_V(r)$ direkt mit der Nächste Nachbar-Verteilung eines Poisson-Feldes angeben. Bei bekanntem $N_A(r)$ sind Punktmuster zu diesem Modell auch durch Soft-Core-Felder darzustellen. Die Anpassung des Modells an reale Systeme erfordert darüberhinaus Erweiterungen, die α in eine von Radien, der Zeit usw. abhängige Größe verwandeln. Für Werte $\alpha < 1$ geht dabei aufgrund der statistischen Natur der Verteilungen der eindeutige Zusammenhang zwischen Radien und Marken verloren. Eine Bestimmung der Radienverteilung aus dem Punktmuster ist nicht mehr möglich.

D Bildmanipulation

Filter

Faltungsfilter

Die Erstellung eines Frequenzspektrums [208] für ein mit Rauschen überlager-tes Bild zeigt, daß die Frequenzen des unkorrelierten Rauschens höher liegen, als diejenigen Frequenzen, die den Objekten des Bildes zuzuordnen sind. Eine Tief- paßfilterung, die die hohen Frequenzen aus dem Spektrum dämpft, kann durch eine gewichtete Summe Q der Grauwerte P

$$Q = A \sum_{i=1}^N H_i P_i \quad (79)$$

mit A , einer Konstanten, und N , der Größe des Faltungskerns, erfolgen. Der Fal- tungskern H weist mit ausschließlich positiven Elementen Tiefpaßeigenschaften auf. Ein sehr häufig verwendeter Filterkern der Größe 3×3 ist:

$$\begin{array}{|c|c|c|} \hline 1 & 1 & 1 \\ \hline 1 & 1 & 1 \\ \hline 1 & 1 & 1 \\ \hline \end{array}$$

Größere Faltungskerne lassen sich in entsprechender Weise bilden. Diese Filter eignen sich besonders, um Rauschen mit kontinuierlicher und gleichförmiger oder gaußförmiger Verteilung zu unterdrücken. Bilddetails gehen jedoch verloren, da in das zentrale Pixel des Faltungskerns auch die Bildinformationen der umgebenden Pixel einfließen. Liegt Rauschen mit einem Impulsverhalten vor, führt der Impuls zu einer fehlerhaft gewichteten Summe und das Filterergebnis verschlechtert sich.

Rangordnungsfilter

Ein Rangordnungsfilter ordnet die Grauwerte der in einem Fenster der Größe $n \times n$ enthaltenen Pixel in aufsteigender Reihenfolge. Das Resultat wird in einem Vektor der Länge $N = n \cdot n$ gespeichert. Erhält das zentrale Pixel des Fensters den kleinsten (1), den größten (N) oder den mittleren ($N/2 + 1$) Grauwert, liegt ein Minimum-, Maximum- bzw. Medianfilter vor. In dem Medianfilter werden posi- tive wie auch negative Impulse, die die gewichteten Summen bei den Faltungsfil- tern verfälschten, in dem Glättungsvorgang ausgeschlossen. Darüberhinaus blei- ben Bilddetails, z.B. Kanten, in einem höheren Maße als bei den Faltungsfiltern erhalten, Punkte und Linien hingegen werden wie Impulse behandelt und gehen verloren. Theoretische Untersuchungen über das Verhalten der Medianfilter sind in [209] zu finden.

Mehrstufenfilter

Bilddetailinformationen finden in mehrstufig konzipierten Filtern bei der Bestimmung eines geeigneten Grauwertes für das zu untersuchende Pixel stärkere Berücksichtigung. Die Berechnung erfolgt nicht mehr in einem quadratischen Fenster, sondern über eindimensionale Linien in horizontaler, vertikaler Richtung und den beiden Diagonalen, die durch das zentrale Pixel verlaufen. In jeder dieser Linien wird eine gewichtete Summe oder der Median ermittelt und aus den vier Werten und dem Grauwert des zentralen Pixels wiederum eine gewichtete Summe bzw. der Median gebildet. Diese Filter zeichnen sich durch einen besonders hohen Grad der Erhaltung von Details in den vier durch die Linien vorgegebenen Richtungen aus. Insgesamt liegt die Glättungswirkung unter der den Faltungsfiltern bzw. Medianfiltern vergleichbaren Filtergröße. Diese Filterklasse ist in [209] eingehender beschrieben.

Adaptive Filter

Häufig kommt es vor, daß Bilder, die unter vergleichbaren Bedingungen aufgenommen werden, über unterschiedliche Rauschstatistiken verfügen oder auch, daß innerhalb eines Bildes die Rauschstatistik lokalen Veränderungen unterworfen ist. Im adaptiven Filter [210] werden verschiedene Rauschgrößen wie die Varianz des Signalwertes σ_q^2 [160] und die Varianz des Hintergrunds σ_r^2 [159] ermittelt und die Wirkung des Filters entsprechend angepaßt. Die Glättungseigenschaften eines adaptiven Filters hängen von der Genauigkeit ab, mit welcher die jeweiligen Rauschgrößen bestimmt werden. Der Signal-Adaptive-Median Filter (SAM) [211] geht von einem Bild $y(k, l)$, aufgebaut aus niederfrequenten $x_n(k, l)$ und hochfrequenten $x_h(k, l)$ Komponenten $y(k, l) = x_n(k, l) + x_h(k, l)$, aus. Unstrukturierte und homogene Bildregionen werden vornehmlich durch die niederfrequenten Komponenten $x_n(k, l)$ dargestellt, Bilddetails und das zu unterdrückende Rauschen sind in den hochfrequenten Komponenten $x_h(k, l)$ enthalten. Der niederfrequente Anteil kann über einen gewichteten Mittelwert oder den Median und der hochfrequente Anteil durch eine Subtraktion des niederfrequenten Anteils vom Signal ermittelt werden. Für das Ausgangssignal des SAM Filters ergibt sich

$$y(k, l) = \bar{x}(k, l) + b(k, l) [x(k, l) - \bar{x}(k, l)] \quad (80)$$

mit

$$b(k, l) = 1 - \frac{\bar{x}(k, l) \cdot \sigma_q^2 + \sigma_r^2}{\sigma_x^2(k, l)}, \quad (81)$$

wobei $\sigma_x^2(k, l)$ die lokale Varianz und die Form des Koeffizienten b einem signalabhängigen, multiplikativen Rauschen des Bildes anzupassen ist. Mit dem Koeffizienten b besteht die Möglichkeit, in einem verrauschten Bild Details zu lokalisieren und diese Information weiter für die Wahl einer geeigneten Fenstergröße zu nutzen. Der Filtervorgang beginnt mit einer Fenstergröße von 5×5 Pixel

und wird in homogenen Bildregionen erhöht, solange der Koeffizient b unter einem bestimmten Schwellwert b_t liegt bzw. sich verringert, sobald in der Nähe von Bilddetails der Koeffizient den Schwellwert überschreitet. Die Mindestfenstergröße beträgt 3×3 und die maximale Fenstergröße 11×11 .

Segmentation

Hintergrund

Dem Bildsignal kann ein unerwünschtes Hintergrundsignal überlagert sein, das sowohl durch den Bilderfassungsvorgang als auch durch Inhomogenitäten der Vorlage hervorgerufen wird. Eine geeignete Hintergrundkompensation filtert die informationstragenden Bereiche heraus. Eine Annäherung des Hintergrundes erfolgt z.B. stückweise über die Einteilung des Bildes in gleich große Regionen und das Gleichsetzen des Hintergrundes mit dem in der jeweiligen Region bestimmten Helligkeitsmittelwert. Das Originalbild OR und der Hintergrund TP können unter Zuhilfenahme eines Kompensationsfaktors k

$$ER = \frac{1}{1-k}(OR - k \cdot TP) \quad (82)$$

punktweise subtrahiert werden.

Schwellwerte

Viele der zu analysierenden Bilder können grundsätzlich auch als Binärbild dargestellt werden, z.B. die Präzipitate weiß und der Hintergrund schwarz bzw. umgekehrt. Diese grobe Vereinfachung des Bildinhaltes, unter Verlust der Information zur Helligkeitsverteilung, ist meist eine Vorbedingung für eine weitere Klassifizierung des Bildinhaltes. Die einfachste Lösung, nämlich die Anwendung einer konstanten Grauwertschwelle S , mit $0 \leq S \leq 255$ und der Grauwerttransformation

$$y(x) = \begin{cases} 0, & x < S, \\ 255, & \text{sonst,} \end{cases} \quad (83)$$

ist meistens nur unter sehr günstigen Bedingungen erfolgversprechend. Für die Binärisierung eines Bildes werden die Schwellen entsprechend den Gegebenheiten der Helligkeitsverteilung gewählt. Bei einer bimodalen Verteilung kann von einer Grauwertanhäufung für das Objekt und einer für den Hintergrund ausgegangen werden. Es lassen sich auch Verfahren mit einer statistischen Grundlage angeben, die z.B. die Varianz der Grauwerte, die über der Schwelle liegen, mit der Varianz der Grauwerte, die unterhalb der Schwelle liegen, angleichen [212]. Die Schwellen müssen nicht notwendigerweise für das gesamte Bild definiert sein, sondern lassen sich auch nach den lokalen Gegebenheiten festlegen [208]. Bilder mit einem

größeren Detailreichtum liegen nach einer Segmentation mit mehreren Schwellwerten vor. Die Schwellen können wieder als konstant oder nach statistischen Gesichtspunkten für das gesamte Bild oder lokal gewählt werden [122].

Kantendetektion

Hebt sich das zu segmentierende Objekt über einen von dem Hintergrund unterschiedlichen Grauwert ab, zeichnet sich der Objektrand durch einen Grauwertsprung - eine Kante - aus. Die Erstellung eines Kantenbildes, in dem der Grauwert eines Bildpunktes proportional zur Steilheit und zur Sprunghöhe einer eventuell durch den Bildpunkt verlaufenden Kante ist, kann unter Verwendung z.B. eines Gradientenfilters erreicht werden. Implementiert wird dieser als Faltungsfiler mit den orientierten Faltungskernen D_x und D_y

$$\begin{bmatrix} -1 & 0 & 1 \\ -1 & 0 & 1 \\ -1 & 0 & 1 \end{bmatrix} \quad \text{und} \quad \begin{bmatrix} -1 & -1 & -1 \\ 0 & 0 & 0 \\ 1 & 1 & 1 \end{bmatrix}$$

Die Verknüpfung der Faltungsergebnisse erfolgt über die Operation

$$G = |D_x| + |D_y|. \quad (84)$$

Sobald dem Bild ein Rauschen überlagert ist, sinkt die Zuverlässigkeit des Filterergebnisses, da Rauschsignale versehentlich als Kanten detektiert werden können. Theoretische Untersuchungen zur Qualität von Kantendetektoren [213] weisen dem Filter mit der Form der 1. Ableitung einer Gaußfunktion

$$f(x) = -x \cdot \exp\left(-\frac{x^2}{2\lambda^2}\right) \quad (85)$$

die größte statistische Zuverlässigkeit bei der Erkennung einer Kante, der besten Lokalisierung der Kantenposition und der höchsten Trennschärfe zwischen eng beieinanderliegenden Kanten zu. Für Kanten, die nicht sprunghaft, sondern schrittweise ansteigen, kann ebenfalls ein optimaler Kantendetektor gefunden werden, der von der Form dem Kantendetektor für steile Kanten sehr ähnlich ist.

Wasserscheiden (Watersheds)

Verschiedene Verfahren der Bildverarbeitung betrachten Bilder als Grauwertgebirge bzw. topographische Reliefs [214]. Der Grauwert eines Pixels repräsentiert in dieser Betrachtungsweise ein bestimmtes Höheniveau und topographische Begriffe wie Auffangbecken und Wasserscheiden, die sich auf Grauwertbilder übertragen lassen. Diese Begriffe sind Anleihen aus der Natur: trifft ein Regentropfen auf ein topographisches Relief, so folgt er dem Relief und verliert solange an

Höhe, bis er ein lokales Minimum erreicht. Das Einzugsgebiet eines Minimums (Auffangbecken) wird durch Wasserscheiden begrenzt und durch diese benachbarten Auffangbecken getrennt. Der Verlauf der Wasserscheiden wird über das Fluten des Reliefs bestimmt (Abb. 34). Jedes lokale Minimum besitzt eine Öffnung, durch welche Wasser in das Relief einzudringen vermag, und eine Wasserscheide liegt vor, wenn beim Fluten ein weiteres Ansteigen des Wasserniveaus zum Zusammenschluß zweier Auffangbecken führt. Dieses Verfahren ermöglicht die Segmentation nicht nur von Objekten, die sich durch Grauwerte auszeichnen, die sich oberhalb eines für das gesamte Bild konstanten Schwellwertes befinden, sondern vielmehr auch von Objekten, die ein zusammenhängendes Gebiet bilden, dessen Grauwerte sich, z.B. aufgrund von Beleuchtungseffekten, monoton ändern und sich über einen größeren und für jedes Objekt unterschiedlichen Grauwertbereich erstrecken. Fallen die Grenzen des Einzugsgebietes nicht mit den Rändern der Objekte zusammen, ist es günstiger, zunächst eine Kantendetektion durchzuführen. Die hellen Bereiche des Kantenbildes, die Ränder der Objekte, bilden Wasserscheiden und die dunkleren, homogenen Bereiche die Auffangbecken. Häufig liegt auch nach diesen Schritten eine Übersegmentierung des Bildes vor. Trifft dies nur für den Hintergrund zu, können bei einem ausreichenden a priori Wissen über Form oder Grauwertverteilung der Objekte diese herausgefiltert werden. Eine Alternative auch bei einer Übersegmentierung der Objekte bietet sich in den Clustern der bestehenden Segmente mit Hilfe der Graphentheorie an.

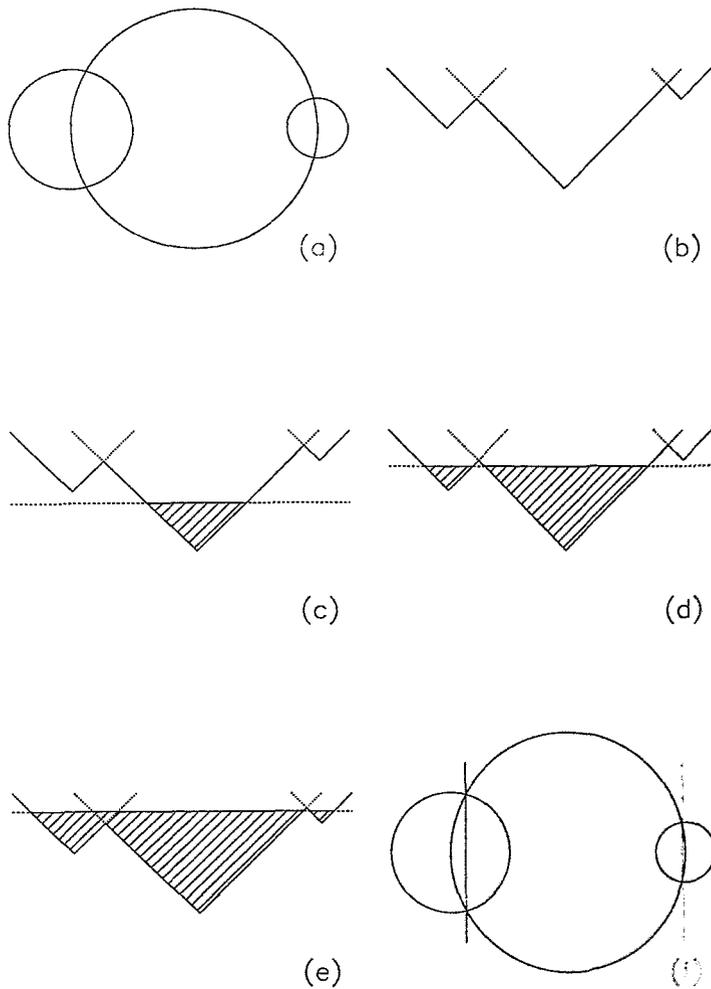


Abbildung 34: Segmentation mit Hilfe von Wasserscheiden. a.) zu segmentierendes Objekt, b.) Grauwertverteilung des Objektes bzw. aus den Abstandsverhältnissen innerhalb des Objektes abgeleiteten Grauwertverteilung, c.) Fluten der Region des Objektes mit dem globalen Minimum, d.) Fluten der Region des Objektes mit dem nächsten lokalen Minimum, e.) Fluten des Objektes bis zur Segmentationsgrenze, f.) segmentiertes Objekt.

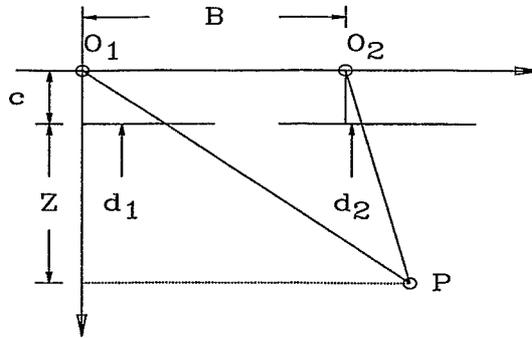


Abbildung 35: Darstellung der benötigten Strahlenbündel zur Rückgewinnung der Tiefeninformation aus Stereobildpaaren.

E Stereobild-Auswertung

Die Photogrammetrie beschäftigt sich mit der Extraktion räumlicher Informationen zu Objekten aus Photographien. Notwendig dafür sind zwei Aufnahmen des gleichen Objektes aus unterschiedlichen Aufnahmepositionen heraus. Die Auswertung gestaltet sich besonders einfach, wenn die beiden Aufnahmerichtungen normal zur Basis stehen und parallel sind (Abb. 35). Werden lineare und nicht-lineare Verzerrungen bei dem Aufnahmeprozess vernachlässigt, sind Bild- und Objektkoordinaten in einer Richtung (x-Achse) festgelegt durch [122]

$$\begin{aligned} X &= Z \frac{d_1}{-c} && \text{für das erste Bild} \\ X &= B + Z \frac{d_2}{-c} && \text{für das zweite Bild.} \end{aligned} \quad (86)$$

Die gesuchte Höhe Z des Punktes P folgt durch Gleichsetzen der beiden Formeln

$$Z = \frac{c \cdot B}{d_1 - d_2} = \frac{c \cdot B}{p} \quad (87)$$

mit der x-Parallaxe p . Die Genauigkeit der indirekt gewonnenen Höheninformation kann bei einer fehlerfreien Konstante c und einer fehlerfreien Aufnahmebasis B angegeben werden mit

$$\sigma_z = \frac{c \cdot B}{p^2} \sigma_p = \frac{Z}{c} \frac{Z}{B} \sigma_p. \quad (88)$$

Für das Auffinden gemeinsamer Punkte in beiden Aufnahmen sind merkmals-, korrelations- oder helligkeitsbasierte Verfahren [137] hinzuzuziehen. Unter Voraussetzung zuverlässiger Merkmale wie z.B. des Schwerpunktes von Objekten erweisen sich merkmalsbasierte Verfahren als günstig. In beiden Stereoaufnahmen müssen dazu die Objekte gut zu erkennen und von einfacher Form sein.

F Statistische Datenanalyse

Häufig stellen die aus Experimenten gewonnenen Daten den Ausgangspunkt für eine weitergehende Auswertung dar und sind mit der größtmöglichen Genauigkeit zu ermitteln. Die Daten als Produkt eines komplexen Meßvorganges unterliegen einer Vielzahl von Einflüssen:

- diskrete Werte der als n-Tupel vorliegenden Datensammlung
- physikalischer Meßprozeß
 - endliche Breite der Gerätefunktionen
 - Eingriff in die Struktur des Objektes durch Probenpräparation
- Unsicherheiten
 - die dem physikalischen Problem entstammen
 - Rauschquellen, die den gesamten Meßprozeß begleiten.

In einem ersten Auswerteschritt werden unter Verwendung der Methoden der Inversen Theorie [215] und Beachtung der erwähnten Störquellen die den Messungen unterliegenden Daten parameterfrei genähert. Danach, soweit es die Form der Kurven zu den Daten erlauben, kann eine parametrische Anpassung durchgeführt werden.

Die nachfolgenden Betrachtungen beschränken sich auf häufig auftretende Faltungsprozesse, die die Form einer Fredholm'schen Integralgleichung erster Art annehmen:

$$F(x) = \int (k(x-y) * f(y)) dy \quad (89)$$

mit dem linearen Faltungskern k (auch Impulsantwort). Für diesen Integralgleichungstyp läßt sich auch bei dem Vorhandensein einer analytischen Lösung allgemein zeigen, daß schon geringe Abweichungen in $F(x)$ (z.B. Rauschen) zu nicht-linearen und divergenten Änderungen in den Lösungen für $f(y)$ Anlaß geben (ill posed problem) [216]. Selbst in einer in diskretisierter Form formulierten Aufgabenstellung, repräsentiert durch ein Gleichungssystem der Gestalt

$$Ax = b, \quad A \in R^{n \times n} \quad (90)$$

mit Vektoren x, b der Länge m Faltungsmatrix A der Größe $n \times n$, bleibt das Inversionsproblem in seinem Kern erhalten. Die Konditionszahl der Matrix A , häufig der Einfachheit wegen durch $(A_{max} - A_{min}) / A_{max}$ mit A_{max}, A_{min} den maximalen bzw. minimalen Eigenwerten von A dargestellt, schätzt den Grad des Problems ab. Eine Lösung des Problems besteht immer in einer Näherung, gemäß z.B. der Methode der letzten Quadrate $\|b - Ax\|_2 \rightarrow \min$ oder der totalen letzten Norm

(TLN) [217].

Erreicht wird eine Näherung durch das Überführen des Problems in eine geeignetere Form (well posed problem) oder aber über eine Modellierung von $f(y)$ durch eine parametrisierbare Form, dies jedoch setzt ein schon vorhandenes Wissen über eben diese Form voraus.

Der erstgenannte Weg stützt sich stark auf die Eigenwertanalyse der Faltungsmatrix mit Hilfe z.B. von SVD-, QR- oder Choleskyzerlegung. Kann die Konditionszahl bestimmt werden, ergibt sich eine sehr einfache und effiziente Methode, das zugrundeliegende Gleichungssystem in eine handhabbarere Form zu überführen. Dazu sind die unterhalb eines bestimmten Grenzwertes liegenden Eigenwerte durch einen Nullwert zu ersetzen (Truncated SVD). In dem aufwendigeren Regularisierungsansatz, in dem der Ausdruck

$$\|b - Hx\|_2 + \lambda\|Qx\|_2 \rightarrow \min \quad (91)$$

zu minimieren ist, ergibt sich die Schätzung

$$\hat{x}(\lambda) = (H^t H + \lambda Q^t Q)^{-1} H^t b = A(\lambda) b \quad (92)$$

mit Q , dem Regularisierungsoperator (meist einem diskretisierten Ableitungsoperator), und λ , einem Lagrangeparameter. Die Bedeutung von Q ist zweigeteilt

- kleine Eigenwerte von H nahe Null, nicht Null werden zu lassen, wobei die größeren Werte unverändert bleiben,
- bereits bestehendes Wissen über b , z.B. Glattheit der Kurve [216] oder Bildmerkmale [218], miteinfließen lassen.

Der Ausdruck Gleichung (91) setzt sich aus zwei Termen zusammen, dem Ersten, der die Übereinstimmung zwischen Originalbild und Rekonstruktion angibt und dem Zweiten, der die über Q bestimmte Gleichförmigkeit der Rekonstruktion anzeigt. Das Festlegen des Parameters λ , der das Verhältnis zwischen den beiden Termen in Gleichung (91) abwägt, erfolgt durch statistische Optimalitätskriterien [167]. Ein häufig zur Anwendung kommendes parameterfreies Kriterium ist die verallgemeinerte Kreuz-Validierung [219]:

$$GCV(\lambda) = \frac{\|I - HA(\lambda)b\|^2}{(\text{Spur}(I - HA(\lambda)))^2} \quad (93)$$

mit I , einer Einheitsmatrix. Entsprechend der gestellten Anforderungen an die Lösung des Entfaltungsproblems müssen Regularisierungsmethode und Optimalitätskriterium immer wieder neu bestimmt werden.

In manchen Aufgabenstellungen ist ferner die Faltungsmatrix selbst nicht bekannt. Liegt keine weitere Information über den Faltungskern vor, d.h. sind Eigenschaften wie Ortsinvarianz, Isotropie, Form, etc. nicht bekannt, muß eine doppelt blinde Entfaltung durchgeführt werden [220]. Wesentliche Vereinfachungen

hingegen ergeben sich mit dem Einarbeiten von einem schon vorhandenen Wissen über den Faltungskern und dessen Parametrisierung. Gemäß [221] wäre nur noch ein um die den Faltungskern beschreibende Parametermenge erweitertes Gleichungssystem zu lösen. Die neu eingeführten Parameter verändern das Minimierungsproblem insofern, daß nun nicht mehr ein einzelnes Minimum vorliegt, sondern vielmehr aus einer Schar von lokalen Minima das absolute Minimum zu bestimmen ist. Diese neue Situation stellt vor allen Dingen besondere Ansprüche an die zu verwendenden Suchalgorithmen, auf die nicht weiter eingegangen werden soll.

Die Rekonstruktionsalgorithmen lassen sich mit Einschränkungen auch auf mehrdimensionale Daten, z.B. den zwei Dimensionen eines Bildes [222], erweitern. Ein Bild, gefaltet mit einer linearen und rauminvarianten Funktion und dem zusätzlich ein gaussförmiges Rauschen überlagert ist, kann formal in Anlehnung an Gleichung (89) in diskreter Form wiedergegeben werden durch

$$g = Hf + n \quad (94)$$

mit g , f und n , dem gefalteten Bild, dem Originalbild und dem Rauschen in lexikographisch geordneten Vektoren der Größe $M^2 \times 1$ (bei einer Bildauflösung von $M \times M$ Pixel) und der Faltungsmatrix H der Größe $M^2 \times M^2$. Die spezielle Form der Vektoren und der Faltungsmatrix lassen eine Transformation des Problems in den Fourier-Raum zu [223]. Mit n , einem stochastischen Prozeß, über dessen Charakteristik meist nur sehr wenig bekannt ist, läßt sich keine exakte Invertierung des Problems durchführen. Schon das nach dem Einlesen in dem Bild vorhandene Quantisierungsrauschen (bei 256 Graustufen entspricht dies ungefähr 40 dB) wird mit der aus Gleichung (94) abgeleiteten pseudo-inversen Schätzung

$$f^+ = (H^t H)^{-1} H^t g \quad (95)$$

so sehr verstärkt, daß es eine Rekonstruktion nur noch mit den weiter oben eingeführten Methoden erlaubt. Ein Vergleich unterschiedlicher Algorithmen zur Rekonstruktion eines Bildes ist in [224] zusammengefaßt.

G Materialparameter für das Si-O System

Materialparameter wie sie in [65] verwendet werden:

$$D_O = 0.2 \exp(-2.56 \text{ eV}/k_B T) \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$$

$$C_O^{eq} = 1.53 \times 10^{21} \exp(-1.03 \text{ eV}/k_B T) \text{ cm}^{-3}$$

$$D_I = 9.14 \times 10^{-6} \exp(-0.44 \text{ eV}/k_B T) \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$$

$$C_I^{eq} = 5.0 \times 10^{30} \exp(-4.4 \text{ eV}/k_B T) \text{ cm}^{-3}$$

$$D_V = 0.15 \exp(-2.03 \text{ eV}/k_B T) \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$$

$$C_V^{eq} = 2.0 \times 10^{23} \exp(-2.0 \text{ eV}/k_B T) \text{ cm}^{-3}$$

$$\mu_\alpha = 6.81 \times 10^{10} \text{ Pa}$$

$$K_\beta = 3.44 \times 10^{10} \text{ Pa}$$

$$\Omega_\alpha = 20.1 \text{ \AA}$$

$$\gamma = 2000 \text{ ergs cm}^{-2}$$

Literatur

- [1] S.M.Sze, VSLI Technology 2nd edition, McGrawHill New York (1988).
- [2] M.Bruel, J.Margail, C.Jaussaud, A.J.Auberton-Hervé, J.Stoemenos, Microelectronic Engineering **8** (1988) 149.
- [3] D.K.Sadana, H.J.Hovel, J.L.Freeouf, S.F.Chu, Mat.Res.Soc.Symp. Proc. **316** (1994) 699.
- [4] C.Claey, E.Simon, J.Electrochem.Soc. **141** (1994) 2522.
- [5] R.H.Yan, A.Ourmayd, K.F.Lee, IEEE Trans. **ED-39** (1992) 1704.
- [6] H.H.Hosack, Mat.Res.Soc.Symp.Proc. **316** (1994) 687.
- [7] K.J.Reeson, Nuc.Inst.Meth.B **19/20** (1987) 269.
- [8] K.Izumi, M.Doken, H.Ariyoshi, Electron Lett. **14** (1978) 593.
- [9] H.Jäger, Nuc.Inst.Meth.B **15** (1986) 748.
- [10] Y.Li, J.A.Kilner, Mat. Sci. Eng., **12** (1992) 41.
- [11] D.W.Brown, Z.A.Munir, R.G.Musket, Nuc.Inst.Meth.B **59/60** (1991) 627.
- [12] Y.Jaylakshmi, B.Khalil, D.Beysens, Phys.Rev.Lett. **69** (1992) 3088.
- [13] R.S.Daley, R.Musket, Nuc.Inst.Meth.B **80/81** (1993) 802.
- [14] L.C.Nistor, J.van Landuyt, J.D.Barton, D.E.Hole, N.D.Skelland, P.D.Townsend, J.Non-Cryst.Solids **162** (1993) 217.
- [15] R.Wagner, R.Kampmann, Materials Science and Technology Vol.5, edited by P.Haasen, VCH Weinheim (1993).
- [16] G.M.Pound, Metall.Trans.A **16** (1985) 487.
- [17] H.Trinkaus, M.H.Yoo, Phil.Mag.A **55** (1987) 269.
- [18] J.S.Langer, A.J.Schwartz, Phys.Rev.A **21** (1980) 948.
- [19] G.Sundar, J.J.Hoyt, S.Spooner, Phys.Rev.B **46** (1992) 14266.
- [20] M.Kahlweit, Grenzflächenerscheinungen, Steinkopff, Darmstadt (1981).
- [21] W.W.Mullins, J.Appl.Phys. **59** (1986) 1341.
- [22] P.W.Voorhees, J.Stat.Phys. **38**, (1985) 231.

- [23] S.Reiss, H.Heinig, *Nuc.Inst.Meth.B* **84** (1994) 444.
- [24] P.L.F.Hemment, K.J.Reeson, J.A.Kilner, R.J.Chater, C.Marsh, G.R.Booker, G.K.Celler, J.Stoemenos, *Vacuum* **36** (1986) 877.
- [25] R.Mahnke, J.Schmelzer, G.Röpke, *Nichtlineare Phänomene und Selbstorganisation*, B.G.Teubner Stuttgart (1992).
- [26] J.Stoemenos, *Solid State Phenomena* **1&2** (1988) 115.
- [27] S.Mantl, H.L.Bay, *Appl.Phys.Lett.* **61** (1992) 267.
- [28] S.Ellingboe, M.C.Ridgway, P.J.Schultz, *J.Appl.Phys.* **73** (1993) 1133.
- [29] J.Bartels, U.Lembke, R.Pascova, J.Schmelzer, I.C.Gutzow, *J.Non-Cryst.Solids* **136** (1991) 181.
- [30] H.Ulbricht, J.Schmelzer, R.Mahnke, F.Schweitzer, *Thermodynamics of finite systems and the kinetics of first-order phase transitions*, Teubner-Texte Band 17, Leipzig (1988).
- [31] M.Cable, D.J.Evans, *J.Appl.Phys.* **38** (1967) 2899.
- [32] I.M.Lifshitz, V.V.Slyozov, *J.Phys.Chem.Solids* **19** (1961) 35.
- [33] C.Wagner, *Z.Elektrochemie* **65** 581 (1961)
- [34] A.J.Ardell, *Acta.Metall.* **20** (1972) 61.
- [35] M.Marder, *Phys.Rev.Lett.* **55** (1985) 2953.
- [36] C.W.Beenakker, J.Ross, *J.Chem.Phys.* **84** (1986) 3857.
- [37] W.C.Johnson, P.W.Voorhees, D.E.Zupon, *Met.Trans.* **20A** (1989) 1175.
- [38] R.V.Ramanujan, H.I.Aaronson, P.H.Leo, *Met.Trans.* **20A** (1989) 1277.
- [39] A.Maheshwari, A.J.Ardell, *Phys.Rev.Lett.* **70** (1993) 2305.
- [40] T.A.Abinandanan, W.C.Johnson, *Acta metall.mater.* **41** (1992) 17.
- [41] T.A.Abinandanan, W.C.Johnson, *Acta metall.mater.* **41** (1992) 27.
- [42] F.R.N.Nabarro, *Proc.Phys.Soc.* **A175** (1940) 519.
- [43] J.Möller, J.Schmelzer, I.Gutzow, R.Pascova, *phys.stat.sol.(b)* **180** (1993) 315.
- [44] D.Stoyan, *Statistics* **19** (1988) 45.

- [45] J.S.Pedersen, *Phys.Rev.B* **47** (1993) 657.
- [46] A.Guinier, C.B.Walker, *Acta Metall.* **1** (1953) 568.
- [47] A.Vrij, *J.Chem.Phys.* **71** (1979) 3267.
- [48] A.Baddeley, J.Møller, *Int.Stat.Rev.* **57** (1989) 89.
- [49] O.Krichevsky, J.Stavans, *Phys.Rev.Lett.* **70** (1993) 1473.
- [50] J.Møller, *Adv.Appl.Prob.* **24** (1992) 814.
- [51] J.Møller, *Adv.Appl.Prob.* **27** (1995) 367.
- [52] S.Reiss, Dissertation, TU Dresden (1996).
- [53] D.Stoyan, K.Wiencek, *Materials Characterisation* **26** (1991) 167.
- [54] W.Zulehner, D.Huber, *Crystals* **8** (1982) 1.
- [55] B.O.Kolbesen, A.Mühlbauer, *Solid State Electron.* **25** (1982) 759.
- [56] K.Nagasawa, Y.Matsushita, S.Kishino, *Appl.Phys.Lett.* **37** (1980) 175.
- [57] K.Yamamoto, S.Kishino, Y.Matsushita, T.Izuka,
Appl.Phys.Lett. **36** (1980) 195.
- [58] B.Bourett, Proc. 13th Int.Conf. Defects in Semiconductors, Metallurgical Soc., Warrendale PA (1985) 129.
- [59] A.Kanamori, M.Kanamori, *J.Appl.Phys.* **50** (1979) 8095.
- [60] S.M.Hu, *J.Appl.Phys.* **52** (1981) 3974.
- [61] T.Hallberg, J.L.Lindström, *J.Appl.Phys.* **72** (1992) 5130.
- [62] C.Claeys, J.Vanhellemont, *Rad.Eff. and Defects in Solids* **127** (1994) 267.
- [63] C.Claeys, J.Vanhellemont, in *Advanced Silicon & Semiconducting Silicon-Alloy Based Materials & Devices*, ed. J.F.A.Nijs, IOP Publishing Ltd, Bristol/Philadelphia (1994).
- [64] W.J.Taylor, U.M.Gösele, T.Y.Tan, *Mat.Chem.Phys.* **34** (1993) 166.
- [65] J.-Y.Huh, T.Y.Tan, U.Gösele, *J.Appl.Phys.* **77** (1995) 5563.
- [66] D.A.Antoniadis, I.Moskowitz, *J.Appl.Phys.* **53** (1982) 6788.
- [67] T.Y.Tan, U.Gösele, *Appl.Phys.A* **37** (1985) 1.

- [68] J.Vanhellemont, C.Claeys, *J.Appl.Phys.* **62** (1987) 3960.
- [69] A.Bourett, *Mat.Res.Soc.Symp.Proc.* **59** (1986) 223.
- [70] B.P.R.Marioton, U.Gösele, *J.Appl.Phys.* **63** (1988) 4661.
- [71] W.A.Tiller, S.Oh, *J.Appl.Phys.* **64** (1988) 375.
- [72] W.A.Tiller, S.Hahn, F.A.Ponce, *J.Appl.Phys.* **59** (1986) 3255.
- [73] A.K.Robinson, Y.Li, C.D.Marsh, R.J.Chater, P.L.F.Hemment, J.A.Kilner, G.R.Booker, *Mat.Sci.Eng.B* **12** (1992) 41.
- [74] D.S.Zhou, O.W.Holland, J.D.Budai, *Appl.Phys.Lett.* **63** (1993) 3581.
- [75] D.Venables, K.S.Jones, *Nuc.Inst.Meth.B* **74** (1993) 65.
- [76] J.F.Ziegler, J.P.Biersack, U.Littmark, *The Stopping, Range of Ions in Solids*, Pergamon Press Inc., New York, 1985.
- [77] D.Venables, K.S.Jones, *Appl.Phys.Lett.* **60** (1992) 3147.
- [78] A.Uedono, L.Wei, Y.Tabuki, H.Kondo, S.Tanigawa, J.Sugiura, M.Ogasawara, *Mat.Sci.Forum* **105-110** (1992) 1479.
- [79] S.M.Hu, *Mater.Res.Soc.Symp.Proc.* **59** (1986) 249.
- [80] J.Vanhellemont, A.Romano-Rodriguez, *Appl.Phys.A* **57** (1993) 521.
- [81] S.Nakashima, K.Izumi, *J.Mater.Res.* **5** (1990) 1919.
- [82] R.A.B.Devine, W.L.Warren, J.B.Xu, I.H.Wilson, P.Paillet, J.-L.Leray, *J.Appl.Phys.* **77** (1995) 175.
- [83] N.I.Puzanov, A.M.Eidenzon, *Semicond.Sci.Technol.* **7** (1992) 406.
- [84] G.Cerofolini, L.Meda, *Physical Chemistry of, in, on Silicon*, Springer Series in Materials Science 8, Springer-Verlag, Berlin (1989).
- [85] A.S.Oates, R.C.Newman, J.M.Tucker, G.Davies, E.C.Lightowlers, *Mater.Res.Soc.Symp.Proc.* **59** (1986) 59.
- [86] F.Shimura, H.Tsuya, *J.Electrochem.Soc.* **129** (1982) 2089.
- [87] G.A.Hawkins, J.P.Lavine, *J.Appl.Phys.* **65** (1989) 3644.
- [88] C.Maddalon-Vinante, E.Ehret, D.Barbier, *J.Appl.Phys.* **79** (1996) 2707.
- [89] J.D.Lee, J.C.Park, S.J.Krause, P.Roitman, M.K.El-Ghor, *Mat.Res.Soc.Symp.Proc.* **235** (1992) 133.

- [90] E.H.teKaat, J.Betz, Mater.Res.Soc.Symp.Proc. **45** (1985) 329.
- [91] A.Yoshino, K.Kasama, Sakamoto, Nuc.Inst.Meth.B **39** (1989) 203.
- [92] P.L.F.Hemment, K.J.Reeson, J.A.Kilner, R.J.Chater, C.Marsh, G.R.Booker, J.R.Davies, G.K.Celler, Nuc.Inst.Meth.B **21** (1986) 129.
- [93] F.S.Ham, J.Phys.Chem.Solids **6** (1958) 335.
- [94] D.H.Douglas-Hamilton, R.P.Dolan, H.E.Friedman, Nuc.Inst.Meth.B **21** (1987) 158.
- [95] Y.Li, J.A.Kilner, A.K.Robinson, P.L.F.Hemment, C.D.Marsh, J.Appl.Phys. **70** (1991) 3605.
- [96] J.Stoemenos, K.J.Reeson, A.K.Robinson, P.L.F.Hemment, J.Appl.Phys. **69** (1991) 793.
- [97] T.F.Cheek, D.Chen, Mat.Res.Soc.Symp.Proc. **107** (1988) 223.
- [98] J.Margail, J.Stoemenos, C.Jaussaud, M.Bruel, Appl.Phys.Lett. **54** (1988) 526.
- [99] A.Yoshino, M.Sugiyama, T.Morikawa, H.Tamegai, J.Appl.Phys. **75** (1994) 3892.
- [100] Practical Surface Analysis, Second Edition, ed. D.Briggs, M.P.Seah, John Wiley & Sons, Chichester (1990).
- [101] A.Borghesi, B.Pivac, A.Sassella, J.Crystal Growth **126** (1993) 63.
- [102] A.Strecker, U.Salzberger, J.Mayer, Prakt.Metallogr. **30** (1993) 482.
- [103] H.Bethge, J.Heydenreich (Hrsg.), Elektronenmikroskopie in der Festkörperphysik, VEB Deutscher Verlag der Wissenschaften, Berlin (1982).
- [104] G.D.Archard, J.Appl.Phys. **32** (1961) 1505.
- [105] D.C.Joy, Scanning Electron Microscopy, in Material Science and Technology edited by P.Haasen, VCH Weinheim (1993).
- [106] F.Beck, Präparationstechniken für die Fehleranalyse an integrierten Halbleiterschaltungen, VCH Verlagsgesellschaft, Weinheim (1988).
- [107] H.F.Kappert, K.F.Heidemann, B.Grabe, E.teKaat, phys.stat.sol.(a) **47** (1978) 751.
- [108] R.Voigtmann, W.Moldenhauer, Surf. and Interface Anal. **13** (1988) 167.

- [109] I.R.Barkshire, M.Prutton, *J.Appl.Phys.* **77** (1995) 1082.
- [110] C.M.Hsu, D.S.McPhail, *Nuc.Inst.Meth.B* **101** (1995) 427.
- [111] K.S.Cho, *J.Electrochem.Soc.* **142** (1995) 1647.
- [112] A.F.Bogenschütz, *Ätzpraxis für Halbleiter*, Hanser Verlag, München (1967).
- [113] T.C.Chandler, *J.Electrochem.Soc.* **137** (1990) 944.
- [114] D.G.Schimmel, *J.Electrochem.Soc.* **126** (1979) 479.
- [115] L.Guan, R.K.Ward, *IEEE Trans. ASSP-37* (1989) 589.
- [116] S.J.Reeves, R.M.Mersereau, *IEEE Trans. IP-1* (1992) 301.
- [117] G.Pavlovic, A.M.Tekalp, *IEEE Trans. IP-1* (1992) 497.
- [118] R.L.Lagendijk, J.Biemon, D.E.Boeke, *IEEE Trans. ASSP-38* (1990) 1181.
- [119] S.K.Nayar, K.Ikeuchi, T.Kanade, *IEEE Trans. PAMI-13* (1991) 611.
- [120] M.Spann, R.Wilson, *Image segmentation and Uncertainty*, Research Studies Program, Letchworth (1988).
- [121] H.Heikki, P.Hirvonen, L.Xu, E.Oja, *Image Vision Computing* **13** (1995) 239.
- [122] P.Haberäcker, *Praxis der digitalen Bildverarbeitung und Mustererkennung*, Hanser, München (1995).
- [123] J.Ohser, U.Lorz, *Quantitative Gefügeanalyse*, Deutscher Verlag für Grundstoffindustrie, Leipzig Stuttgart (1994).
- [124] D.Stoyan, W.S.Kendall, J.Mecke, *Stochastic Geometry and its Applications*, Akademie Verlag, Berlin (1987).
- [125] A.J.Baddeley, L.M.Cruz-Orive, *Adv.Appl.Prob.* **28** (1996) 356.
- [126] S.A.Salykov, *Stereometrische Metallographie*, Deutscher Verlag für Grundstoffindustrie, Leipzig (1974).
- [127] K.Voss, D.Stoyan, *Biom.J.* **27** (1985) 919.
- [128] E.H.Nembach, *Z.Metallkde.* **62** (1971) 291.
- [129] C.Schlesier, E.Nembach, *Mat.Sci.Eng.A* **119** (1989) 199.

- [130] R.Gorenflo, 2nd Int.Workshop on Transform Methods & Special Functions, Varna/Bulgaria 1996, Science Technology Publishing (SCTP) Singapore.
- [131] B.W.Silverman, M.C.Jones, D.W.Nychka, J.D.Wilson, J.Royal Statist.Soc.B 52 (1990) 271.
- [132] S.Mase, Adv.App.Prob. 27 (1995) 350.
- [133] S.D.Wicksell, Biometrika 17 (1925) 84.
- [134] J.Ohser, H.Tscherny, Grundlagen der quantitative Gefügeanalyse, Deutscher Verlag für Grundstoffindustrie, Leipzig (1988).
- [135] D.Stoyan, H.Stoyan, Fraktale Formen Punktfelder, Akademie Verlag, Berlin (1992).
- [136] M.P.Wand, M.C.Jones, Kernel Smoothing, Monographs on Statistics, Applied Probability 60, Chapman & Hall, London (1995)
- [137] C.Heipke, Overview of image matching techniques, Lehrstuhl für Photogrammetrie und Fernerkundung, TU München (1996).
- [138] K.Jensen, G.C.Farlow, Nuc.Inst.Meth.B 59/60 (1991) 643.
- [139] H.Ryssel, I.Ruge, Ion Implantation, Wiley, New York (1986).
- [140] N.A.Burnham, Appl.Phys.Lett. 63 (1993) 114.
- [141] M.Nagase, H.Namatsu, K.Kurihara, K.Iwadate, K.Murase, Jpn.J Appl.Phys. 34 (1995) 3382.
- [142] U.D.Schwarz, H.Haefke, Appl.Phys.A 59 (1994) 33.
- [143] K.L.Westra, D.J.Thompson, J.Vac.Sci.Technol.B 12 (1994) 3176.
- [144] I.H.Wilson, Ion Beam Modification of Insulators, edited by P.Mazzoldi, G.Arnold, Elsevier Science Publishers B.V (North Holland) (1987).
- [145] J.Blake, J.C.Gelpey, D.M.Lee, L.Rowland, G.A.Rozgonyi, Mat.Res.Soc.Symp.Proc. 107 (1988) 61.
- [146] A.B.Danilin, A.A.Malinin, V.N.Mordkovich, V.V.Saraikin, Vyletalina, Nuc.Inst.Meth.B 82 (1993) 431.
- [147] B.Schwartz, H.Robbins, J.Electrochem.Soc. 108 (1961) 365.
- [148] B.Schwartz, H.Robbins, J.Electrochem.Soc. 123 (1976) 1903.
- [149] K.Vanheusden, A.Stesmans J.Appl.Phys. 69 (1991) 6656.

- [150] K.Suekoka, N.Ikeda, T.Yamamoto, S.Kobayashi, *Jpn.J.Appl.Phys.* **33** (1994) L1507.
- [151] L.F.Giles, A.Nejim, P.L.F.Hemment, *Materials Chemistry and Physics* **35** (1993) 129.
- [152] T.T.Sheng, R.B.Marcus, *J.Electrochem.Soc.* **128** (1981) 881.
- [153] D.M.Maher, B.Zhang, *J.Vac.Sci.Technol.B* **12** (1994) 347.
- [154] K.H.Yang, *J.Electrochem.Soc.* **131** (1984) 1140.
- [155] K.-R.Peters, University of Connecticut Health Center, persönliche Mitteilung.
- [156] N.F.Law, D.T.Nguyen, *Electronics Letters* **31** (1995) 1734.
- [157] K.-R.Peters, *Proc. Ann. MSA Meeting*, **53** (1995) 642.
- [158] G.Groisman, J.R.Parker, *Computers in physics*, **7** (1993) 87.
- [159] P.Meer, J.-M.Jolion, A.Rosenfeld, *IEEE Trans. PAMI-12* (1990) 216.
- [160] R.Bernstein, *Signal Processing II: Theories and Applications*, ed. H.W.Schüssler, Elsevier Science Publishing B.V (North Holland) (1983) 239.
- [161] verwendete Bildanalysesysteme:
- Xite (X-based Image processing Tools and Environment)
Image Processing Laboratory, Department of Informatics, University of Oslo, Norway
<ftp://ftp.ifi.uio.no/pub/blab/xite>
 - NIH-Image (National Insitute of Health, Bethesda, Maryland, USA)
<ftp://zippy.nimh.nih.gov/pub/nih-image>
- [162] J.Margail, J.M.Lamure, A.M.Papon, *Mat.Sci.Eng.B* **12** (1992) 27.
- [163] P.A.Amato, M.Lelental, R.C.Bowen, *J.Mater.Res.* **8** (1993) 2799.
- [164] D.Gorokhov, Ecole des Mines de Paris, persönliche Mitteilung.
- [165] G.J.Pursey, The University of Reading, Reading,U.K., persönliche Mitteilung.
- [166] H.Rue, O.K.Husby, Department of Mathematical Sciences, NTNU, Norway (1997).

- [167] A.M.Thompson, J.C.Brown, J.W.Kay, D.M.Titterington, *IEEE Trans. PAMI-13* (1991) 326.
- [168] I.R.King, *The Restoration of HST Images, Spectra II*, eds. R.J.Hanisch, R.L.White, Space Telescope Science Institute (1994) 221.
- [169] D.L.Banks, S.E.Fienberg, *Multivariate Statistics in Encyclopedia of Physical Science and Technology* **15** (1992) 779.
- [170] K.Matshita, *Ann. Math. Stat.* **26** (1955) 631.
- [171] B.D.Ripley, *J.Royal Statist.Soc.B* **39** (1977) 172.
- [172] K.J.Reeson, A.K.Robinson, P.L.F.Hemment, C.D.Marsh, K.N.Christensen, G.R.Booker, R.J.Chater, J.A.Kilner, G.Harbeke, E.F.Steigmeir, G.K.Celler, *Microelectronic Engineering* **8** (1988) 163.
- [173] B.Droge, *Some simulation results on cross-validation and competitors for model choice*, Humboldt Universität Berlin (1995).
- [174] P.J.Diggle, T.Fiksel, P.Grabarnik, Y.Ogata, D.Stoyan, M.Tanemura, *Int.Stat.Rev.* **62** (1994) 99.
- [175] P.J.Diggle, D.J.Gates, A.Stibbard, *Biometrika* **74** (1987) 763.
- [176] N.Masbaum, *Technischer Report 94-176*, Mathematisches Institut, Universität zu Köln, (1994).
- [177] G.Sundar, J.J.Hoyt, *J.Phys.Condens.Matter* **4** (1992) 4359.
- [178] N.Hatzopoulos, R.Chater, U.Bussmann, P.L.F.Hemment, J.A.Kilner, *Mat.Sci.Eng.B* **12** (1992) 37.
- [179] S.Hartmann, G.Schneider, F.Mücklich, G.Petzow, *Prakt.Met.Sonderbd.* **26** (1995) 127.
- [180] R.J.Jelitto, *Theoretische Physik 6: Thermodynamik und Statistik*, AULA-Verlag Wiesbaden (1985).
- [181] A.H. van Ommen, B.H.Koek, M.P.A.Viegers, *Appl.Phys.Lett.* **48** (1986) 1062.
- [182] G.Sauthoff, M.Kahlweit, *Acta Met.* **17** (1969) 1501.
- [183] M.Schrems, P.Pongratz, M.Budil, H.W.Pötzl, J.Hage, E.Guerrero, D.Huber, *Semiconductor Silicon 1990*, edited by H.R.Huff, Electrochemical Society, Pennington (1991) 144.

- [184] I.Clejan, S.T.Dunham, *J.Appl.Phys.* **78** (1995) 7327.
- [185] W.W.Mullins, R.F.Sekerka, *J.Appl.Phys.* **34** (1963) 323.
- [186] P.W.Bates, X.Chen, X.Deng, *Electronic J. of Differential Equations* **1995** (1995) 1.
- [187] T.Ohmi, T.Isagawa, M.Kogure, T.Imaoka, *J.Electrochem.Soc.* **140** (1993) 804.
- [188] T.Ohmi, T.Imaoka, T.Kezuka, J.Takano, M.Kogure, *J.Electrochem.Soc.* **140** (1993) 811.
- [189] U.Schnakenberg, W.Benecke, B.Löchel, *Sensors and Actuators A21-A23* (1990) 1031.
- [190] R.Memming, *Topics in Chemistry* **143** (1988) 79.
- [191] Y.Seo, M.H.Yun, K.S.Nahm, *J.Vac.Sci.Technol.* **B11** (1993) 70.
- [192] H.Seidel, L.Csepregi, A.Heuberger, H.Baumgärtel, *J.Electrochem.Soc.* **137** (1990) 3612.
- [193] L.Chen, M.Chen, C.Lien, C.Wan, *J.Electrochem.Soc.* **142** (1995) 170.
- [194] H.Kaesche, *Z.Metallkde.* **61** (1970) 94.
- [195] H.J.Lewerenz, T.Blitzer, M.Gruyters, K.Jacobi, *J.Electrochem.Soc.* **140** (1993) L44.
- [196] M.J.Eddowes, *J.Electroanal.Chem.* **280** (1990) 297.
- [197] G.S.Hsaio, J.A.Virtanen, R.M.Penner, *Appl.Phys.Lett.* **63** (1993) 1119.
- [198] H.Alexander, H.Teichler, *Materials Science and Technology Vol.5*, edited by P.Haasen, VCH Weinheim (1993).
- [199] F.Secco d'Aragona, *J.Electrochem.Soc.* **119** (1972) 948.
- [200] M.Wright Jenkins, *J.Electrochem.Soc.* **124** (1977) 757.
- [201] M.Petersen, *Proc.IEEE* **70** (1982) 426.
- [202] H.Kikuyama, M.Waki, M.Miyashita, T.Yabune, N.Miki, J.Takano, T.Ohmi, *J.Electrochem.Soc.* **141** (1994) 366.
- [203] S.Verhaverbeke, I.Teerlinck, C.Vinckier, G.Stevens, R.Cartuyvels, M.M.Heynes, *J.Electrochem.Soc.* **141** (1994) 2852.

- [204] J.Mecke, R.Schneider, D.Stoyan, W.Weil, Stochastische Geometrie, Birkhäuser, Basel Boston Berlin (1990).
- [205] K.Sivakumar, J.Goutsias, Technical Report John Hopkins University Baltimore/ECE 96 18 (1996).
- [206] J.Stienen, Dissertation, RWTH Aachen (1982).
- [207] D.Stoyan, L.von Wolfersdorf, J.Ohser, Math.Nachr. **146** (1990) 33.
- [208] P.Zamperoni, Methoden der digitalen Bildsignalverarbeitung, 2.Auflage, Vieweg, Braunschweig (1991).
- [209] I.Pitas, A.N.Venetsanopoulos, IEEE Proc. **80** (1992) 1893.
- [210] J.S.Lee, IEEE Trans. **PAMI-2** (1980) 165.
- [211] R.Bernstein, IEEE Trans. **CAS-34** (1987) 1275.
- [212] N.Otsu, IEEE Trans. **SMC-9** (1979) 62.
- [213] H.D.Tagare, R.J.P.deFigueiredo, IEEE Trans. **PAMI-12** (1990) 1186.
- [214] L.Vincent, P.Soille, IEEE Trans. **PAMI-13** (1991) 583.
- [215] A.K.Louis, P.Maaß, Invers Problems **6** (1990) 427.
- [216] P.C.Hansen, Numerical Algorithms **6** (1994) 1.
- [217] H.Park, J.B.Rosen, S.Van Huffel, Proc. 3rd Workshop on SVD, Signal Processing, Leuven (1994).
- [218] L.B.Lucy, The Restoration of HST Images, Spectra II, eds. R.J.Hanisch, R.L.White, Space Telescope Science Institute (1994) 79.
- [219] N.P.Galatsanos, A.Katsaggelos, IEEE Trans. **IP-1** (1992) 322.
- [220] T.G.Stockham, T.M.Cannon, R.B.Ingebretsen, Proc.IEEE **63** (1975) 678.
- [221] V.E.Johnson, W.H.Wong, X.Hu, C.-T. Chen, IEEE Trans. **PAMI-13** (1991) 413.
- [222] G.M.Richter, STSDAS Help System (Version 1.0), European Southern Observatory (1991).
- [223] A.M.Tekalp, H.Kaufman, in Digital Image Processing: Techniques and Application vol.67, ed. C.T.Leondes, Academic Press, San Diego (1994).
- [224] I.C.Busko, ASP Conference Series, eds. D.R.Crabtree, R.J.Hanisch, J.Barnes, (1994) 61.

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich mich bei allen bedanken, die mir bei der Durchführung dieser Arbeit zur Seite standen und zu ihrem Gelingen beigetragen haben. Meinen Eltern bin ich sehr verbunden, ohne deren Vertrauen und Zuversicht diese Arbeit nicht hätte entstehen können.

Mein besonderer Dank gilt

Prof. Dr. Möller für die Ermöglichung der Arbeit und die Möglichkeit internationale Konferenzen und eine Sommerschule zu besuchen.

Herrn Dr. Skorupa für die tatkräftige fachliche und organisatorische Unterstützung sowie seinem Vertrauen in meine Arbeitsphilosophie.

Frau Beatus und Frau Schnabel für die Präparation der Proben. Ein Unterfangen, das – aufgrund der nur geringen Größe der Proben – sehr viel Aufmerksamkeit erforderte.

Frau Dr. Müller und Frau Christalle für Ihre unermüdliche und schwierige Arbeit am SEM, der Grundlage für viele durchgeführte Untersuchungen.

Maximilian Dobler für die kritische Durchsicht des Manuskripts, die mich zu einigen grundsätzlichen Änderungen bewog.

Ramona Hansel und Annett Dudek für ihre große Geduld beim Korrekturlesen.

Desweiteren möchte ich mich bei allen bedanken, die mit mir zusammengearbeitet haben und mir fachliche und praktische Hilfe jeglicher Art haben zukommen lassen: Herrn Schneider für die Durchführung der Implantationen, Herrn Müller für die Temperungen, Dr. Vöhse und Prof. Stoemenos für die XTEM-Aufnahmen, M. Mäder für die Durchführung der RBS/C-Messungen und natürlich allen anderen auch, die ich an dieser Stelle nicht erwähnt habe.