

Untersuchung der Elementverteilung an  
Ausscheidungen mit Hilfe des energiefilternden  
Transmissionselektronenmikroskops  
(EFTEM)

Anne-Kathrina Rokahr

Diplomarbeit im Fach Physik  
Physikalisches Institut der  
Westfälischen Wilhelms-Universität  
August 2002



Untersuchung der Elementverteilung an  
Ausscheidungen mit Hilfe des energiefilternden  
Transmissionselektronenmikroskops  
(EFTEM)

Anne-Kathrina Rokahr

Diplomarbeit im Fach Physik  
Physikalisches Institut der  
Westfälischen Wilhelms-Universität  
August 2002

# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2</b>	<b>Quantitative und qualitative Auswertung von Elementverteilungsbildern</b>	<b>2</b>
2.1	Wechselwirkungen zwischen Strahlelektronen und dem Objekt . . . . .	2
2.2	Elektronen-Energieverlust-Spektroskopie . . . . .	5
2.3	Aufbau eines Transmissions-Elektronen-Mikroskops . . . . .	7
2.4	Elementverteilungsbilder . . . . .	10
2.5	Das Signal-zu-Rausch-Verhältnis . . . . .	11
2.6	Stromdichte in der Bildebene . . . . .	15
<b>3</b>	<b>Experiment</b>	<b>22</b>
3.1	Erstellung der Probe und die Probenpräparation . . . . .	22
3.2	Die Messung . . . . .	24
<b>4</b>	<b>Simulation</b>	<b>28</b>
4.1	Das Programm zur Simulation der Probenstruktur . . . . .	28
4.2	Das Signal-zu-Rauschverhältnis (SNR) in Sauerstoffverteilungsbildern	32
4.3	Simulationsergebnisse . . . . .	33
<b>5</b>	<b>Auswertung</b>	<b>38</b>
5.1	Vergleich von Messung und Experiment des Bildsignals . . . . .	38

<b>6 Zusammenfassung und Ausblick</b>	<b>41</b>
<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>43</b>

# Kapitel 1

## Einleitung

Ein Transmissionselektronenmikroskop mit abbildendem Energiefilter (EFTEM) ermöglicht es, Bilder einer Probe aufzunehmen, zu denen nur Strahlelektronen beitragen, die einen bestimmten Energieverlust erlitten haben. Der gewählte Energieverlust der Strahlelektronen steht im direkten Zusammenhang mit Anregungen innerer Schalen der Probenatome. Diese Anregungsenergien sind element- und schalenspezifisch. Werden nur Elektronen zur Abbildung verwendet, deren Energieverlust der Anregung einer inneren Schale eines bestimmten Probenelements entspricht, erhält man nach Abzug eines probenspezifischen Untergrunds ein Elementverteilungsbild, welches die zweidimensionale Projektion der Verteilung des ausgewählten Elements wiedergibt. Beim Abbildungsvorgang machen sich jedoch auch gerätespezifische Einflüsse des EFTEM bemerkbar, wodurch die reale Struktur des Objektes verändert abgebildet wird. Um quantitative Aussagen über die Probengeometrie machen zu können, sind daher begleitende Rechnungen notwendig. Diese ermöglichen es außerdem, genauere Aussagen über die Ausdehnung der Elementverteilung in der Probe zu machen. Ziel der vorliegenden Arbeit ist es, unbekannte Ausscheidungen in einer Siliziumdiffusionsprobe zu charakterisieren. Dazu werden Elementverteilungsbilder der Ausscheidungen erstellt und diese dann mit Simulationsrechnungen verglichen.

## Kapitel 2

# Quantitative und qualitative Auswertung von Elementverteilungsbildern

### 2.1 Wechselwirkungen zwischen Strahlelektronen und dem Objekt

Bei der Transmission hochenergetischer Elektronen durch einen Festkörper treten elastische wie unelastische Streuprozesse an diesem auf. Die elastische Elektronenstreuung wird durch die Wechselwirkung der einfallenden Elektronen mit dem Atomkern verursacht. Da die Masse des Elektrons im Vergleich zu der des Atomkerns relativ klein ist, ist der Energieübertrag auf den Atomkern, und somit der Energieverlust des Elektrons, gering. Da in der Transmissionselektronenmikroskopie nur Streuwinkel berücksichtigt werden, die kleiner sind als 100 mrad, ist der Energieverlust deutlich kleiner als 1 eV. Elastisch gestreute Elektronen sind somit von Elektronen ohne Energieverlust ("Zero-loss-Elektronen") nicht unterscheidbar. Sie werden in der Elektronenmikroskopie zur Bildentstehung in HRTEM-Aufnahmen ("high re-

solution transmission electron microscopy“) mit hoher Ortsauflösung verwendet. Die unelastische Streuung resultiert aus der Wechselwirkung des einfallenden Primärelektrons mit den gebundenen Hüllenelektronen der Atome. Das Primärelektron kann bei dieser Wechselwirkung einen Energieverlust  $\Delta E \leq E_{kin}$  erleiden. Das Hüllenelektron geht durch die Anregungsenergie  $\Delta E = E_f - E_i$  vom Grundzustand  $\Psi_i$  in einen angeregten Zustand  $\Psi_f$  über. Diese Anregung kann in unbesetzte gebundene Zustände, wie auch in das Kontinuum erfolgen. Aus diesem Zusammenhang ergeben sich je nach Element und Schale, aus der das Hüllenelektron stammt, charakteristische Ionisationskanten im Elektronen-Energieverlust-Spektrum (EELS). Diese charakteristischen Ionisationskanten können zur Analyse der chemischen Zusammensetzung des Präparates verwendet werden. Zur Beschreibung der unelastischen Streuung wird der doppelt differenzielle Wirkungsquerschnitt (WQS) verwendet. Dieser gibt die Wahrscheinlichkeit einer Streuung in das Raumwinkelement  $d\Omega$  mit einem Energieverlust zwischen  $E$  und  $E + \delta E$  an. Für kleine Streuwinkel ( $\theta_0 \leq 10$  mrad) kann die Dipolnäherung (s.u.) verwendet werden [5]. Damit ergibt sich der doppelt differenzielle WQS zu

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE} = \frac{4a_H E_H^2}{E E_0} \frac{df}{dE} \frac{1}{\theta^2 + \theta_E^2}. \quad (2.1)$$

Dabei ist  $a_H$  der Bohrsche Radius,  $E_H = 13,6 \text{ eV}$  die Rydbergenergie,  $E_0$  die kinetische Energie des einfallenden Elektrons,  $E$  der Energieverlust,  $df/dE$  die generalisierte Oszillatorstärke,  $\theta$  der Streuwinkel und  $\theta_E$  der charakteristische Streuwinkel. Der charakteristische Streuwinkel berechnet sich aus  $E_0$  und  $E$  zu

$$\theta_E = \frac{E}{2E_0}. \quad (2.2)$$

Zwischen der verwendeten Dipolnäherung und dem genaueren Zentralfeldmodell treten erst bei großen Aperturwinkeln ( $\theta = 40$  mrad) und kleinen Energieverlusten signifikante Unterschiede auf [1]. Diese Unterschiede lassen mit wachsendem Energieverlust nach, so dass wir bei den großen Energieverlusten ( $\Delta E \geq 100$  eV), die



in dieser Arbeit betrachtet werden, die Dipolnherung verwenden knnen. Die Integration des doppelt differenziellen WQS ber den Raumwinkel  $\Omega = \pi\theta_0^2$  (wobei  $\theta_0$  der Objektivaperturwinkel ist) und ein Energieintervall  $\delta E$  (Energiefensterbreite) um den Energieverlust  $E$  ergibt den partiellen WQS

$$\sigma(\Theta_B, \theta_0, E, \delta E) = \int_{E-\frac{\delta E}{2}}^{E+\frac{\delta E}{2}} \int_0^{\theta_0} \frac{d^2\sigma}{d\Omega dE} d\Omega dE. \quad (2.3)$$

Der partielle Wirkungsquerschnitt ist ein Ma fr die Wahrscheinlichkeit einer Innerschalenanregung mit Energiebertrag im Energiefenster  $[E - \delta E/2, E + \delta E/2]$  und einem vom Detektor erfaten Winkelbereich der Streuverteilung  $\theta_0$ .  $\Theta_B$  bezeichnet den Beleuchtungsaperturwinkel. Die Zerlegung von  $\sigma$  in einen energie- und einen winkelabhngigen Teil ermglicht es,  $\sigma$  in Abhngigkeit von Gerteparametern zu untersuchen. Unter Vernachlssigung der Variation des charakteristischen Streuwinkels  $\theta_E$  innerhalb des Energiefensters gilt [1]

$$\sigma(\Theta_B, \theta_0, E, \delta E) = \tilde{c}_S(E) \delta E \tilde{\sigma}(\Theta_B, \theta_0, \theta_E). \quad (2.4)$$

Dabei ist  $\tilde{\sigma}(\Theta_B, \theta_0, \theta_E)$  der normierte Wirkungsquerschnitt. Die Abhngigkeit von der Energiefensterbreite  $\delta E$  und dem Energieverlust  $E$  wird durch den Parameter  $\tilde{c}_S$  beschrieben. Im Fall axialer Beleuchtung ( $\Theta_B = 0$ ) erhlt man

$$\tilde{\sigma}(\Theta_B = 0, \theta_0, \theta_E) = 4\pi a_H^2 \ln\left(1 + \frac{\theta_0^2}{\theta_E^2}\right). \quad (2.5)$$

## 2.2 Elektronen-Energieverlust-Spektroskopie

Die Detektion der Elektronen, die ein Präparat durchdrungen haben, als Funktion ihres Energieverlustes, ergibt ein Elektronen-Energieverlust-Spektrum. Ein EEL-Spektrum ("Electron Energy Loss") läßt sich in drei Bereiche unterteilen. Der erste Bereich ist der "Zero-Loss"-Peak. Dieser entsteht durch ungestreute und elastisch gestreute Elektronen. Der "Low-Loss"-Bereich schließt sich an den "Zero-Loss"-Bereich an. Er erstreckt sich bis ca. 50 eV und wird sowohl durch Plasmonen- als auch Interbandanregungen geprägt. Der "Low-Loss"-Bereich gibt daher Aufschluß über die Elektronenstruktur des Präparates, jedoch nicht über die Elemente in der Probe. Ab einem Energieverlust von ca. 50 eV beginnt der dritte Bereich des EEL-Spektrums. Dieser besteht aus den charakteristischen Kanten, die auf die Anregung innerer Schalen einzelner Atome in der Probe zurückzuführen sind. Die Ionisationskanten weisen je nach Element verschiedene Schwellenenergien und Formen auf, an denen die Elemente in der Probe zu identifizieren sind. Die Kanten eines Elements werden jeweils nach der inneren Schale benannt, welche angeregt wurde: K-, L-, M-, N- und O-Kante. Der Verlauf einer Kante besitzt eine Feinstruktur. Diese läßt sich wiederum in zwei Bereiche aufteilen: "energy loss near edge structure" bis etwa 50 eV Energieverlust oberhalb des Kantenansatzes und "extended energy loss fine structure". In beiden Bereichen sind Informationen über die lokale Umgebung des Atoms enthalten (Bindungszustände, Elemente...). In Abbildung 2.1 ist zur Veranschaulichung eines EELS das Spektrum eines h-BN-Partikels gezeigt. Anhand eines EELS können jedoch nicht nur qualitative sondern auch quantitative Aussagen über die Konzentration eines Elements in der Probe getroffen werden. Ist  $I_a(\delta E_a, \theta_0)$  die Anzahl der detektierten Strahlelektronen, die am Element  $a$  innerhalb eines Streuwinkelbereichs  $\theta_0$  und einem Energieintervall  $\delta E_a$  gestreut wurden, so ist [15]

$$I_a(\delta E_a, \theta_0) = I_0 n_a \sigma_a(\delta E_a, \theta_0). \quad (2.6)$$

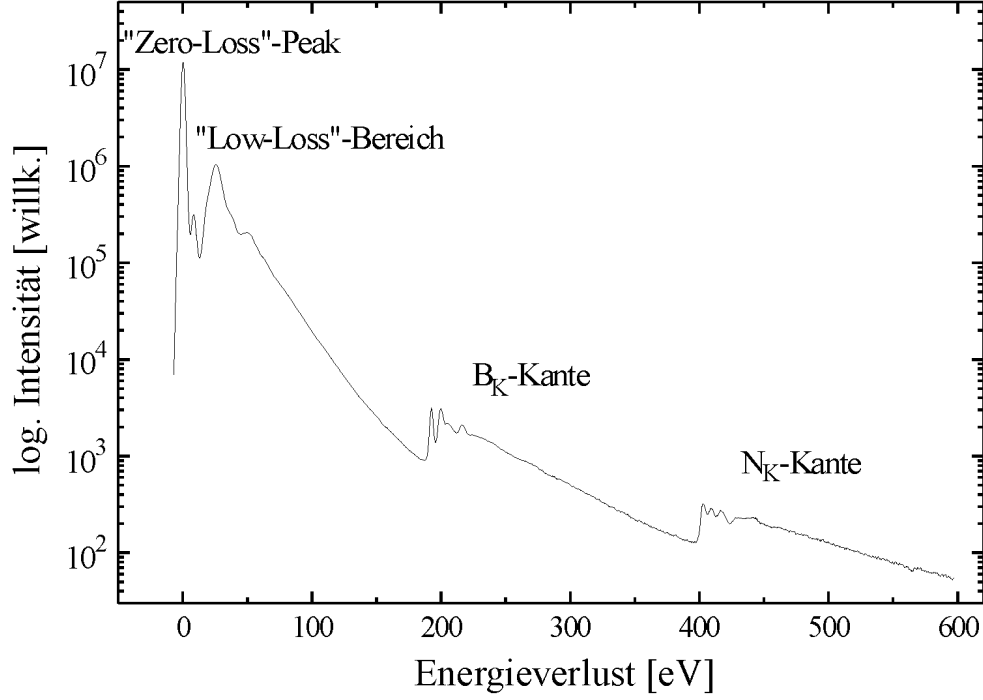


Abbildung 2.1: Typisches EEL-Spektrum am Beispiel eines h-BN-Partikels aus [13].

$I_0$  ist die Anzahl der einfallenden Strahlelektronen,  $n_a$  die Flächenteilchendichte der Atome im durchstrahlten Volumen und  $\sigma_a(\delta E_a, \theta_0)$  ist der Wirkungsquerschnitt der betrachteten Innerschalenanregung. Formel (2.6) gilt nur für dünne Proben, da die Mehrfachstreuung nicht berücksichtigt wird. in der Praxis wird  $I_0$  durch den “Zero-Loss“-Peak im EELS abgeschätzt. Dies ist graphisch in Abbildung 2.2 dargestellt. Das Verhältnis von zwei in der Probe enthaltenen Elementen erhält man durch Umformung der Gleichung (2.6) in

$$n_a = \frac{I_a}{I_0} \frac{1}{\sigma_a}. \quad (2.7)$$

Und somit ergibt sich

$$\frac{n_a}{n_b} = \frac{\sigma_b}{\sigma_a} \frac{I_a}{I_b}. \quad (2.8)$$

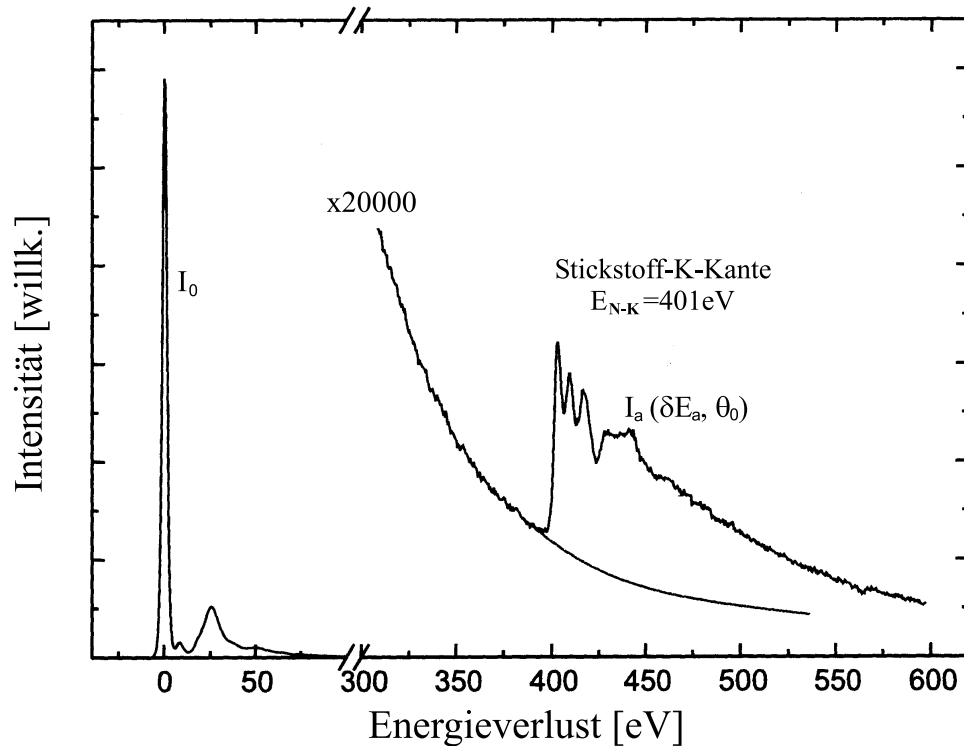


Abbildung 2.2: Aus den untergrundkorrigierten Intensitäten der Ionisationskante  $I_a$  und des Low-Loss-Bereichs  $I_0$  können absolute Elementkonzentrationen nach Gleichung (2.7) bestimmt werden (aus [13]).

## 2.3 Aufbau eines Transmissions-Elektronen-Mikroskops

Abb. 2.3 zeigt den schematischen Aufbau eines „Energie-Filternden-Transmissions-Elektronen-Mikroskops“ (EFTEM). Die aus einer Glüh- oder Feldemissionskathode austretenden Elektronen werden durch ein elektrisches Feld zur Anode hin beschleunigt. Anschließend bildet ein Kondensorlinsensystem die Elektronen auf das zu untersuchende Präparat ab. In der Brennebene des Kondensorlinsensystems befindet sich der Crossover der realen Quelle, welcher als effektive Quelle bezeichnet wird.

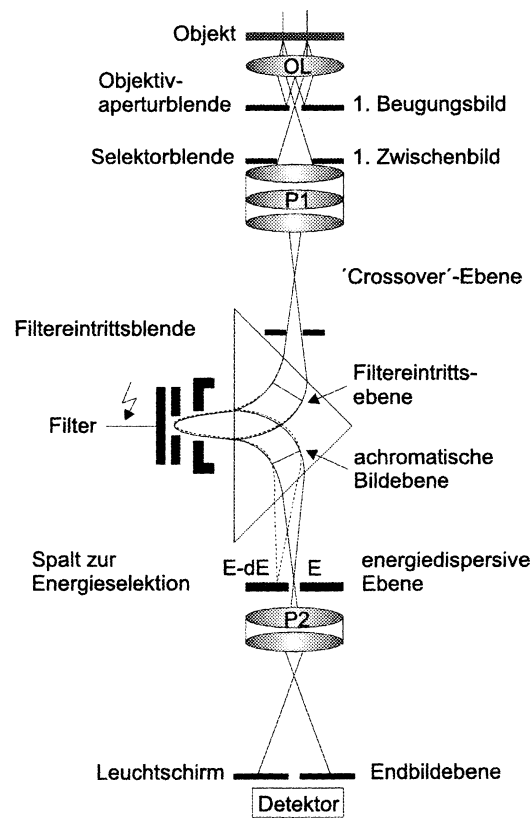


Abbildung 2.3: Schematischer Strahlengang des Zeiss EM 902 (aus [13]).

Nachdem die Elektronen das Objekt entweder ungestreut, elastisch oder unelastisch gestreut verlassen haben, werden sie durch magnetische Linsensysteme in die Endbildebene abgebildet. Elektronen mit zu großen Streuwinkeln werden durch die Objektivaperturblende ausgeblendet, da diese nur Elektronen im Strahlengang belässt, deren Wellenvektoren nach der Streuung einen Winkel  $\theta \leq \theta_0$  mit der optischen Achse einschließen. In der Endbildebene kann das Bild mit Hilfe einer Photoplatte oder einer CCD-Kamera aufgenommen werden. Mit Hilfe eines Energiefilters findet eine Selektion der Elektronen nach ihrem Energieverlust statt. Der Energiefilter bildet Elektronen mit jeweils unterschiedlichen kinetischen Energien in die energiedispersive Ebene räumlich getrennt ab. Die energiedispersive Ebene kann in die Endbil-

ebene abgebildet werden. In diesem Fall wird der Energiefilter im Spektrummodus (EELS) betrieben. Der zweite Modus des Energiefilters ist der Abbildungsmodus (ESI: “electron-spectroscopic imaging“). Dabei wird eine Schlitzblende in die energiedispersive Ebene eingebracht. Diese dient als Energiefenster, welches nur Elektronen mit einem Energieverlust  $E$  im Energieverlustintervall  $[E + \delta E/2, E - \delta E/2]$  passieren läßt. Lediglich Elektronen mit Energieverlusten im vorgegebenen Energiefenster werden in die Endbildebene abgebildet.

## 2.4 Elementverteilungsbilder

Ein Elementverteilungsbild stellt die zweidimensional projizierte Verteilung eines bestimmten Elements in der untersuchten Probe dar. Für die Erstellung werden mit Hilfe eines Energiefilters Elektronen mit Energieverlust  $E_s$  oberhalb der Ionisationskante einer Innerschalenanregung zur Abbildung benutzt. Das bedeutet, dass zur Intensität in jedem Bildpunkt eines Bildes nur solche Elektronen beitragen, deren Energieverlust in dem jeweils eingestellten Energiefenster  $[E - \delta E/2, E + \delta E/2]$  liegt. Das Signal, das in jedem Bildpunkt aufgenommen wird, setzt sich aus der charakteristischen Intensität  $I_S$  und dem Untergrundsignal  $I_U$  zusammen. Das Untergrundsignal stammt von der Anregung der Atomschalen niedrigerer Bindungsenergien. Um ein Elementverteilungsbild zu erhalten, muß dieser Untergrund von der Ionisationskante subtrahiert werden.

$$I_S = I_{Bild} - I_U \quad (2.9)$$

Zur Bestimmung des Untergrundsignals  $I_U$  werden zusätzlich zum elementsensitiven Bild weitere Bilder mit Energieverlusten unterhalb der charakteristischen Ionisationskante aufgenommen. Nach der Formel [4]

$$I_U(E) = a_{ij} E^{r_{ij}} \quad (2.10)$$

wird aus diesen Bildern der spektrale Verlauf des Untergrundes in jedem Bildpunkt  $(i, j)$  berechnet und in den Kantenbereich extrapoliert.  $E$  bezeichnet den Energieverlust und  $a$  und  $r$  sind Parameter, die man durch einen Fit mit einer Potenzfunktion analytisch aus den Bildern berechnen kann. Eines der gängigsten Verfahren zur Untergrundkorrektur ist die Drei-Fenster-Methode [4, 5]. Pun et. al. [14] berechneten die Extrapolation des Untergrundes mittels des genaueren “Weighted-Least-Square-Fit” Verfahrens, das in Abbildung 2.4 schematisch dargestellt wird. Näheres zu dieser Methode findet man auch bei Müller [12].

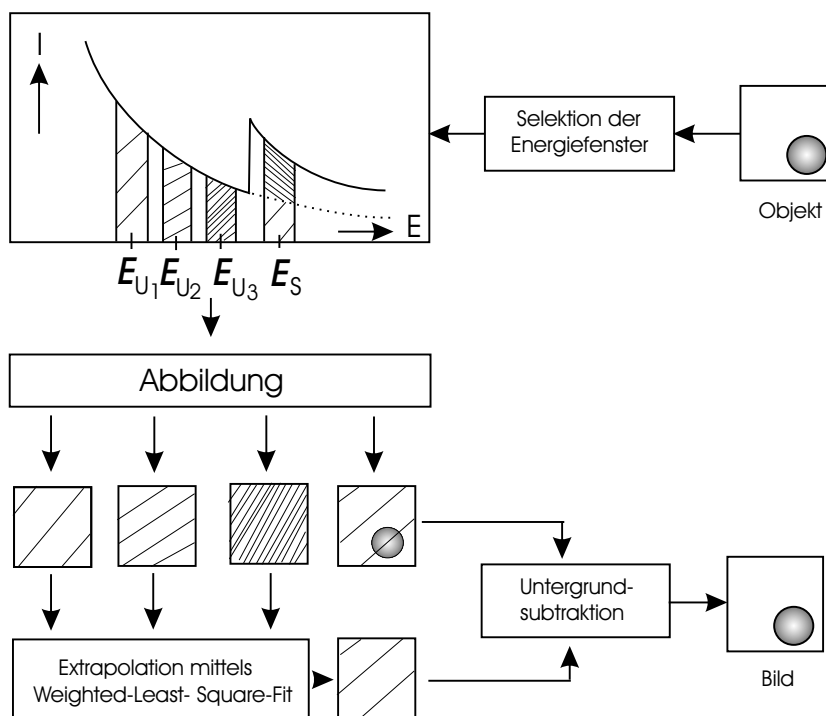


Abbildung 2.4: Schematische Darstellung der Erzeugung eines Elementverteilungsbildes nach dem WLSF-Verfahren. Die Energien  $E_{U1}$ ,  $E_{U2}$ ,  $E_{U3}$  und  $E_S$  bezeichnen die Energiefensterpositionen zur Untergrund- bzw. Signalaufzeichnung. Die Untergrundkorrektur wird pixelweise durchgeführt.

## 2.5 Das Signal-zu-Rausch-Verhältnis

Jedes Elementverteilungsbild enthält neben dem Elementsignal auch das Rauschen. Dieses Rauschen hat zwei Ursachen. Die eine Quelle für das Rauschen sind die statistischen Eigenschaften der unelastischen Streuprozesse, die andere das Rauschen des Detektors. Ist der Rauschanteil im Bild zu groß, lassen sich eventuell keine sicheren Elementsignale mehr nachweisen.

Unter der Annahme, dass die Coulomb-Wechselwirkung der Strahlenelektronen untereinander vernachlässigt werden kann, sind die Emission und Detektion der zur Bildentstehung beitragenden Elektronen statistisch unabhängige Ereignisse. Die An-



zahl der Elektronen  $N_{ij}$ , die im Bildpunkt (Pixel) an der Stelle  $\vec{\rho}_{ij}$  detektiert werden, lassen sich folglich mit der Fermi-Dirac-Statistik beschreiben, welche auf Grund der geringen Teilchendichte im Elektronenstrahl in Näherung durch eine Poisson-Verteilung beschrieben werden kann [1]

$$P(N_{ij}) = \frac{< N_{ij} >^{N_{ij}}}{(N_{ij})!} \exp[-< N_{ij} >]. \quad (2.11)$$

Die Varianz ist

$$var(N_{ij}) = < (N_{ij} - < N_{ij} >)^2 > = < N_{ij} > \quad (2.12)$$

mit

$$< N_{ij} > = \frac{\tau}{e} \int_{\Delta F_{ij}} j(\vec{\rho}) d^2 \vec{\rho}$$

und der Pixelfläche  $\Delta F_{ij}$ , der Stromdichte in der Bildebene  $j(\vec{\rho})$ , der Elementarladung  $e$  und der Belichtungszeit  $\tau$ . Die Gesamtintensität  $N_{ij}$  enthält einen Untergrund  $N_{ij}^U$ , der vom Gesamtsignal abgezogen wird, um das elementspezifische Signal  $N_{ij}^S$  zu erhalten

$$N_{ij}^S = N_{ij} - N_{ij}^U. \quad (2.13)$$

Daraus ergibt sich für die Mittelwerte der Intensitäten des Elementverteilungsbildes

$$< N_{ij}^S > = < N_{ij} > - < N_{ij}^U > \quad (2.14)$$

mit

$$< N_{ij}^S > = \frac{\tau}{e} \int_{\Delta F_{ij}} j_S(\vec{\rho}) d^2 \vec{\rho} \quad (2.15)$$

$$< N_{ij}^U > = \frac{\tau}{e} \int_{\Delta F_{ij}} j_U(\vec{\rho}) d^2 \vec{\rho}. \quad (2.16)$$

Für die Varianz der Intensitäten des Elementverteilungsbildes  $var(N_{ij}^S)$  ergibt sich somit

$$var(N_{ij}^S) = var(N_{ij}) + var(N_{ij}^U). \quad (2.17)$$

Dieses läßt sich auch schreiben als [4]

$$\begin{aligned}
 var(N_{ij}^S) &= < N_{ij} > + var(N_{ij}^U) \\
 &= \underbrace{< N_{ij}^S > + < N_{ij}^U >}_{< N_{ij} >} + var(N_{ij}^U) \\
 &= < N_{ij}^S > + \underbrace{\left( 1 + \frac{var(N_{ij}^U)}{< N_{ij}^U >} \right) < N_{ij}^U >}_{< N_{ij}^U > + var(N_{ij}^U)} \\
 var(N_{ij}^S) &= < N_{ij}^S > + h_{ij} < N_{ij}^U > .
 \end{aligned} \tag{2.18}$$

mit

$$h_{ij} = 1 + \frac{var(N_{ij}^U)}{< N_{ij}^U >} . \tag{2.19}$$

Dabei ist  $h_{ij}$  ein Maß für die Qualität des Untergrundabzugs. Der Parameter  $h_{ij}$  gibt an, wie stark die statistische Unsicherheit  $var(N_{ij})$  durch den Fehler bei der Extrapolation des Untergrundes vergrößert wird. In einer idealen Untergrundkorrektur wäre  $h = 1$ .

Der zweite Rauschanteil wird durch den Detektionsprozeß der Elektronen mit einer Slow-Scan-CCD-Kamera hervorgerufen. Als Maß für das Detektorrauschen wird die “detection quantum efficiency“ (DQE) verwendet. Ausführliche Darstellungen der Herleitung und Bestimmung des Detektorrauschens sind bei Hülk [7], de Ruijter [18] und Kujawa [10] zu finden.

In einem Elementverteilungsbild wird für jeden Bildpunkt das Verhältnis des Signals zur Unsicherheit des Signals bestimmt, um herauszufinden, ob es möglich ist, Informationen über das Objekt aus dem Elementverteilungsbild zu erhalten. Dieser Quotient heißt Signal-zu-Rausch-Verhältnis (“Signal-to-noise-ratio“ (SNR))

$$\left( \frac{S}{N} \right)_{ij} = \frac{< N_{ij}^S >}{\sqrt{var N_{ij}^S}} . \tag{2.20}$$

Durch Einsetzen von Gleichung (2.18) und Verwendung der DQE erhält man für das SNR

$$\left(\frac{S}{N}\right)_{ij} = \frac{\langle N_{ij}^S \rangle}{\sqrt{\langle N_{ij}^S \rangle + h_{ij} \langle N_{ij}^U \rangle}} \sqrt{DQE}. \quad (2.21)$$

Ist das Signal-zu-Untergrund-Verhältnis (SUV)

$$\left(\frac{S}{U}\right)_{ij} = \frac{\langle N_{ij}^S \rangle}{\langle N_{ij}^U \rangle} \quad (2.22)$$

klein gegen den Parameter  $h$ , reduziert sich das SNR zu der einfachen Form

$$\left(\frac{S}{N}\right)_{ij} \approx \frac{\langle N_{ij}^S \rangle}{\sqrt{h_{ij} \langle N_{ij}^U \rangle}} \sqrt{DQE}. \quad (2.23)$$

Liegt das betrachtete Element in einer Matrix vor, ist diese Bedingung in der Regel erfüllt [1]. Mit wachsendem SNR wird die Genauigkeit einer quantitativen Auswertung höher. Kann das Auftreten des nachzuweisenden Elementes als sicher vorausgesetzt werden und ist

$$\text{SNR} \geq 3 \dots 5, \quad (2.24)$$

so gilt nach Rose [17] ein Signal in einem verrauschten Bild als sichtbar. Ohne Vorwissen wird ein  $\text{SNR} \geq 5$  als Nachweisgrenze verwendet. Müller [13] zeigte jedoch, dass mittels eines multivariaten Analyseverfahrens zur Segmentierung von Elementverteilungsbildern auch Elementverteilungsbilder mit  $\text{SNR} \leq 3$  gesicherte Ergebnisse liefern können.

## 2.6 Stromdichte in der Bildebene

Neben dem Rauschen verfälschen auch die Abbildungsfehler des Mikroskops das Signal, so daß die wirkliche Struktur der Probe im Elementverteilungsbild fehlerhaft abgebildet wird. Die Wellenfunktionen der einfallenden und der gestreuten Elektronen werden nach der quantenmechanischen Streutheorie bestimmt.  $H_E$  und  $H_0$  seien die Hamiltonoperatoren des einfallenden Elektrons und der Hüllenelektronen,  $V_{EK}$  das Wechselwirkungspotenzial des einfallenden Elektrons mit dem Coulombpotenzial der Atomkerne und  $V_{EE}$  das Wechselwirkungspotenzial des einfallenden Elektrons mit den Hüllenelektronen. Für das Gesamtsystem, bestehend aus Elektron und Target, ergibt sich [1]

$$H = H_E + H_0 + V_{EE} + V_{EK}. \quad (2.25)$$

Nach Born lautet die Wellenfunktion  $\Psi$  des Gesamtsystems ohne Austauscheffekte dann

$$\Psi(\vec{r}, \vec{R}) = \exp(i\vec{k}_0 z) \Phi_0(\vec{R}) + \sum_m \varphi_{m0}(\vec{r}) \Phi_m(\vec{R}). \quad (2.26)$$

Hier bezeichnen  $\vec{R}$  und  $\vec{r} = (\vec{\rho}, z)$  die Positionen der Elektronen des Targets bzw. des stoßenden Elektrons.  $\Phi_0$  ist der Grundzustand des Targets. Dessen angeregter Zustand ist  $\Phi_m$ . Die Propagation der Streuwelle im Elektronenmikroskop wird durch  $\varphi_{m0}(\vec{r})$  beschrieben. Bei großer Entfernung vom Target ( $r \rightarrow \infty$ ) gilt für die Streuwelle die Beziehung

$$\varphi_{m0}(\vec{r}) = f_{m0}(\vec{k}_m, \vec{k}_0) \frac{\exp(i k_m r)}{r}. \quad (2.27)$$

$\vec{k}_0$  und  $\vec{k}_m$  beschreiben die Wellenvektoren des einfallenden Elektrons und des gestreuten Elektrons. Die Streuamplitude  $f_{m0}$  beschreibt die Anregung des Targets aus dessen Grundzustand  $\Phi_0$  in den angeregten Zustand  $\Phi_m$ . Anwendung der Fresnelnäherung [2] auf die Kugelmwelle (2.27) ergibt für die Streuwelle in der Umgebung der Bildebene

$$\varphi_{m0}(\vec{\rho}, z) = \frac{\exp(i k_m z)}{i \lambda_m} \int f_{m0}(\vec{k}_m, \vec{k}_0) T_a(\vec{\theta}, E_{m0}) \exp(i k_m \vec{\theta} \vec{\rho}) d^2 \vec{\theta}. \quad (2.28)$$

Dabei ist  $E_{m0}$  der Energieverlust. Die Transmissionsfunktion

$$T_a(\vec{\theta}, E_{m0}) = A(\vec{\theta}) \exp(-i\gamma(\vec{\theta}, E_{m0})) \quad (2.29)$$

beschreibt die Einflüsse in der Objektivaperturblende und der Linse mit

$$A(\vec{\theta}) = \begin{cases} 1 & : |\vec{\theta}| \leq \theta_o \\ 0 & : \text{sonst.} \end{cases} \quad (2.30)$$

$A(\vec{\theta})$  wird als Aperturfunktion bezeichnet. Die Linsenfehler  $C_S$  (sphärische Aberrationskonstante) und  $C_C$  (chromatische Aberrationskonstante) und die Defokussierung  $\Delta f$  rufen eine Phasenverschiebung  $\gamma(\vec{\theta}, E_{m0})$  hervor

$$\gamma(\vec{\theta}, E_{m0}) = k_m \left( C_S \frac{\theta^4}{4} - \Delta f \frac{\theta^2}{2} - C_C \frac{E_s - E_{m0}}{2E_0} \right). \quad (2.31)$$

Hierbei ist  $E_0$  die Energie der einfallenden Elektronen,  $E_{m0}$  der Energieverlust und  $E_s$  die Lage des zur energiegefilterten Abbildung verwendeten Energiefensters. Die Koordinate  $\vec{\rho}$  in der Bildebene ist mit dem Kehrwert der Vergrößerung auf die Dimension im Objekt zurückskaliert. Zur Stromdichte tragen alle Anregungen mit der Energie  $E_{m0}$ , die aus dem Grundzustand  $|0\rangle$  in einen Endzustand  $|m\rangle$  des Objektes führen, bei

$$j(\vec{\rho}') = \sum_m j_{m0}(\vec{\rho}'), \quad (2.32)$$

wobei

$$j_{m0} = \frac{e\hbar}{2im_0} \left( \varphi_{m0}^* \frac{\partial \varphi_{m0}}{\partial z} - \varphi_{m0} \frac{\partial \varphi_{m0}^*}{\partial z} \right) \quad (2.33)$$

ist. Der Stern (\*) bezeichnet komplex konjugierte Größen.

Einsetzen der Gleichung (2.28) in Gleichung (2.33) ergibt für die Stromdichte in der Bildebene einen Ausdruck, der es ermöglicht, die Abbildung mit unelastisch gestreuten Elektronen jeder Art zu beschreiben [9]

$$j(\vec{\rho}) = j_0 \sum_m \frac{k_m}{k_0 \lambda_m^2} \int B(\vec{\Theta}) \left| \int f_{m0}(\vec{k}_m, \vec{k}_0) T_a(\theta, E_{m0}) \exp(ik_m \vec{\theta} \vec{\rho}) d^2 \theta \right|^2 d^2 \vec{\Theta}. \quad (2.34)$$

Die Stromdichte läßt sich in einen Untergrundanteil  $j_U(\vec{\rho})$  und in ein elementspezifisches Signal  $j_S(\vec{\rho})$  zerlegen

$$j(\vec{\rho}) = j_S(\vec{\rho}) + j_U(\vec{\rho}). \quad (2.35)$$

Unter Vernachlässigung des Einflusses der Feinstruktur, die der Ionisationskante der freien Atome überlagert ist, ist die Wellenfunktion des Targets gleich dem antisymmetrisierten Produkt der Wellenfunktion freier Atome. Alle Atome des zu untersuchenden Elements liefern den gleichen Beitrag zum charakteristischen Signal  $j_S(\vec{\rho})$ . Durch Verwendung eines dünnen Präparates ( $d = 30\text{\AA} - 300\text{\AA}$ ) wird der Beitrag der Mehrfachstreuung zum Signal vernachlässigbar klein. In diesem Fall kann für die Anregung des Targets aus dem Grundzustand  $|0\rangle$  in den angeregten Zustand  $|m\rangle$  die 1. Born'sche Näherung angewandt werden. Für die Streuamplitude  $f_{m0}$  ergibt sich dann

$$f_{m0}(\vec{k}_m, \vec{k}_0) = -\frac{m_0}{2\pi\hbar^2} \langle \vec{k}_m m | V_{EE} | \vec{k}_0 0 \rangle. \quad (2.36)$$

Dabei ist  $m_0$  die Ruhemasse des Elektrons und  $V_{EE}$  das Wechselwirkungspotenzial des einfallenden Elektrons mit den Hüllenelektronen. Wie bereits in Kapitel 2.2 beschrieben, weist der Verlauf einer Ionisationskante eine Feinstruktur auf, die auf Festkörpereffekte zurück zu führen ist. Zur Aufnahme von einem Elementverteilungsbild werden Energiefenster von einigen eV Breite verwendet, so daß sich diese Feinstruktureinflüsse im Mittel aufheben. Dies hat zur Folge, daß man jedes Atom als unabhängig betrachten und den unelastischen Streuvorgang als Anregung eines einzelnen Atoms  $j$  an der Position  $R_j = (\vec{\rho}_j, z_j)$  beschreiben kann. Für die Quantenzahl  $m$ , die den angeregten Zustand des Targets beschreibt, werden die Quantenzahlen  $j$  und  $n$  eingesetzt. Diese beschreiben, welches Atom  $j$  in den Zustand  $|n\rangle$  angeregt worden ist. Die Streuamplitude  $f_{m0}$  ergibt sich dann zu [1]

$$f_{(jn)0}(\vec{q}) = \exp(i\vec{q}\vec{R}_j) f_{n0}^A(\vec{q}) \quad (2.37)$$

mit dem Streuvektor  $\vec{q} = \vec{k}_0 - \vec{k}_n$ . Die Streuamplitude für die unelastische Streuung an einem Atom im Ursprung wird dabei mit dem Matrixelement

$$\begin{aligned} f_{n0}^A(\vec{q}) &= -\frac{m_0}{2\pi\hbar^2} \langle \vec{k}_n n | V_A | \vec{k}_0 0 \rangle \\ &= -\frac{2}{q^2 a_H} \langle n | \exp(i\vec{q}\vec{r}) | 0 \rangle \end{aligned} \quad (2.38)$$

beschrieben.  $a_H$  bezeichnet den Bohr'schen Radius.  $V_A$  ist das Wechselwirkungspotenzial des einfallenden Elektrons mit den  $Z$  Elektronen eines Atoms.

$$V_A = \frac{\hbar^2}{m_0 a_H} \sum_{\nu=1}^Z \frac{1}{|\vec{r} - \vec{r}_\nu|}. \quad (2.39)$$

Dabei sind  $\vec{r}_\nu$  die Elektronenpositionen. Um die Dipolnäherung einzuführen, wird die Exponentialfunktion in der Gleichung (2.38) nach Potenzen von  $\vec{q}\vec{r}$  entwickelt

$$\exp(i\vec{q}\vec{r}) = 1 + i(\vec{q}\vec{r}) + O((\vec{q}\vec{r})^2). \quad (2.40)$$

Da bei kleiner Beleuchtungsapertur  $\theta_B$  und kleiner Objektivapertur  $\theta_0$  nur Prozesse mit kleinem Streuvektor  $\vec{q}$  zum Bild beitragen, können alle Terme, bis auf den der 1. Ordnung, vernachlässigt werden. Da  $|n\rangle$  und  $|0\rangle$  orthogonal zueinander sind ( $\langle n|0\rangle = \delta_{n0}$ ), ergibt sich für die Streuamplitude in der Dipolnäherung [9]

$$f_{n0}^A(\vec{q}) = -\frac{2i}{q^2 a_H} \langle n | \vec{q}\vec{r} | 0 \rangle \quad (2.41)$$

$$= -\frac{2i\vec{q}}{q^2 a_H} \underbrace{\langle n | \vec{r} | 0 \rangle}_{\text{Dipolmatrixelement}}. \quad (2.42)$$

Berger [1] hat das genauere Zentralfeldmodell mit der Dipolnäherung in Hinblick auf die Gültigkeit der Dipolnäherung für die Simulation von Elementverteilungsbildern verglichen. Er fand heraus, daß erst bei großen Objektivaperturen ( $\theta=40\text{mrad}$ ) in Zusammenhang mit kleinen Energieverlusten ( $E \leq 100 \text{ eV}$ ) signifikante Differenzen zwischen Zentralfeld- und Dipolnäherung auftreten. Für die Stromdichte eines Atoms im Ursprung ergibt sich damit

$$j_A(\vec{\rho}) = j_0 \sum_n \frac{k_n}{k_0 \lambda^2} \int B(\vec{\Theta}) \left| \int f_{n0}^A(\vec{q}) T_a(\vec{\theta}, E_{n0}) \exp(ik_n \vec{\theta} \vec{\rho}) d^2 \vec{\theta} \right|^2 d^2 \vec{\Theta}. \quad (2.43)$$

Die Bilder aller Probenatome addieren sich zum Gesamtbild  $j_s(\vec{\rho})$

$$j_s(\vec{\rho}) = \int n_s(\vec{\rho}) j_A(\vec{\rho} - \vec{\rho}') d^2 \vec{\rho}'. \quad (2.44)$$

Dieser Ausdruck läßt sich als Faltung der Elementverteilung, die durch die Atome pro Flächenelement  $n_s(\vec{\rho})$  dargestellt wird, mit der Stromdichte eines Atoms im Ursprung  $j_A(\vec{\rho})$  beschreiben:

$$j_s(\vec{\rho}) = n_s(\vec{\rho}) * j_A(\vec{\rho}), \quad (2.45)$$

wobei  $n_s(\vec{\rho})$  durch

$$n_s(\vec{\rho}) = \sum_j \delta(\vec{\rho} - \vec{\rho}_j) \quad (2.46)$$

gegeben ist. Abbildung 2.5 stellt das Prinzip der Entstehung des Gesamtbildes  $j_s(\vec{\rho})$  dar. Die Fouriertransformation von Gleichung (2.44) führt zur Standardform jeder linearen Abbildungstheorie

$$J_s(\vec{\Omega}) = N_s(\vec{\Omega}) J_A(\vec{\Omega}) \quad (2.47)$$

mit

$$J_s(\vec{\Omega}) = \int j_s(\vec{\rho}) e^{ik\vec{\Omega}\vec{\rho}} d^2 \vec{\rho} \quad (2.48)$$

und

$$J_A(\vec{\Omega}) = \int j_A(\vec{\rho}) e^{ik\vec{\Omega}\vec{\rho}} d^2 \vec{\rho} \quad (2.49)$$

und

$$N_s(\vec{\Omega}) = \int n_s(\vec{\rho}) e^{ik\vec{\Omega}\vec{\rho}} d^2 \vec{\rho} \quad (2.50)$$

$J_s$  und  $J_A$  sind die fouriertransformierten Stromdichten und  $N_s$  ist die Fouriertransformierte der Elementverteilung  $n_s(\vec{\rho})$ .  $n_s(\vec{\rho})$  und  $N_s(\vec{\Omega})$  sind bei einem vorgegebenen Objekt bekannt. Zur Bestimmung von  $J_s(\vec{\Omega})$  bleibt also nur noch die Größe  $J_A(\vec{\Omega})$  zu berechnen. Es gilt

$$J_A(\vec{\Omega}) = j_0 \sigma_s H(\vec{\Omega}). \quad (2.51)$$



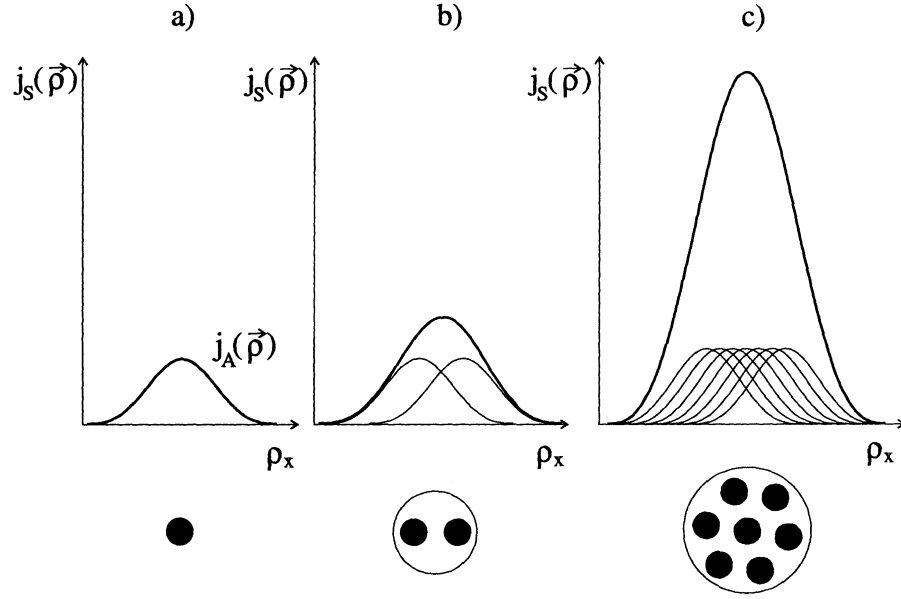


Abbildung 2.5: Veranschaulichung der Entstehung des elementspezifischen Signals von a) einem Atom, b) einem Cluster mit zwei und c) einem Cluster mit sieben Atomen. Das Bild  $j_S$  (dicke Linie) entsteht durch Addition der Einzelatombilder  $j_A$  (dünne Linie) unter Berücksichtigung der einzelnen Atompositionen. Im Fall a) stimmen  $j_A$  und  $j_S$  überein (aus [3]).

Dabei ist  $\sigma_S$  der partielle Wirkungsquerschnitt für die unelastische Streuung in das Energiefenster  $\delta E$  und die Apertur  $\theta_0$ .  $H(\vec{\Omega})$  ist die inelastische Übertragungsfunktion des Mikroskops [11], welche die Bedingung

$$H(0) = 1 \quad (2.52)$$

erfüllt. Berger [1] berechnete diese Funktion und Knippelmeyer [8] führte relativistische Korrekturen ein. Einsetzen der Gleichung (2.51) in (2.47) führt zu

$$J_S(\vec{\Omega}) = j_0 \sigma_S N_S(\vec{\Omega}) H(\vec{\Omega}). \quad (2.53)$$

Um den Einfluß des Detektors auf das Meßsignal zu berücksichtigen, muß die Modulationsübertragungsfunktion  $M(\vec{\Omega})$  des Detektors [1, 7] berechnet werden. Dabei

ist

$$M(\vec{\Omega}) = D(\vec{\Omega})S(\vec{\Omega}) = \int m(\vec{\rho})e^{ik\vec{\Omega}\vec{\rho}}d^2\vec{\rho}. \quad (2.54)$$

Die Übertragungsfunktion eines idealisierten Detektors ist hierbei

$$D(\vec{\Omega}) = \int d(\vec{\rho})e^{ik\vec{\Omega}\vec{\rho}}d^2\vec{\rho}. \quad (2.55)$$

Die Übertragungseigenschaften des Szintillators werden durch

$$S(\vec{\Omega}) = \int s(\vec{\rho})e^{ik\vec{\Omega}\vec{\rho}}d^2\vec{\rho} \quad (2.56)$$

berücksichtigt. Für die Stromdichte im Elementverteilungsbild ergibt sich somit

$$\begin{aligned} j_S(\vec{\rho}) &= \frac{k^2}{4\pi^2} \int J_S(\vec{\Omega})e^{-ik\vec{\Omega}\vec{\rho}}d^2\vec{\Omega} \\ &= \frac{k^2}{4\pi^2} \int j_0 \sigma_S N_S(\vec{\Omega}) H(\vec{\Omega}) M(\vec{\Omega}) \exp(-ik\vec{\Omega}\vec{\rho}) d^2\vec{\Omega}. \end{aligned} \quad (2.57)$$

## Kapitel 3

# Experiment

### 3.1 Erstellung der Probe und die Probenpräparation

Die untersuchte Probe ist eine von der Firma Wacker Siltronic GmbH hergestellte  $\langle 100 \rangle$ -orientierte, einkristalline, versetzungsfreie, hoch reine Siliziumprobe mit einer Bordotierung von  $7,7 \cdot 10^{25} \text{m}^{-3}$ . Diese Probe wird für Golddiffusionsversuche in Quader der Größe  $8 \times 16 \times (0,7 - 1,5) \text{ mm}^3$ , längs der (111)-Seitenfläche, zerteilt. Die polierten und gereinigten Proben werden in einer Widerstandsverdampfungsanlage bei einem Restdruck von  $10^{-6} \text{ hPa}$  auf den beiden großen Seitenflächen mit einer ca. 50 nm dicken, hoch reinen (99,9998 %) Goldschicht bedampft. Diese werden unter einem Restdruck von etwa  $10^{-6} \text{ hPa}$  in Quarzglasampullen eingekapselt und bei  $1000^\circ\text{C}$  und einer effektiven Glühzeit von 4800 Sekunden zum Glühen gebracht. Das Gold diffundiert dabei in das Innere des Siliziums. Bei diesem Vorgang bilden sich vermutlich auch Ausscheidungen in der Probe. Aus der so gewonnenen Probe werden Plättchen mit 3 mm Radius herausgesägt, deren Dicke durch Lappen auf etwa  $150 \mu\text{m}$  gebracht wird. Zur weiteren Dünnung werden zwei Ätzungen vorgenommen. Bei der ersten Ätzung entstehen in der Mitte der beiden großen, gegenüberliegenden

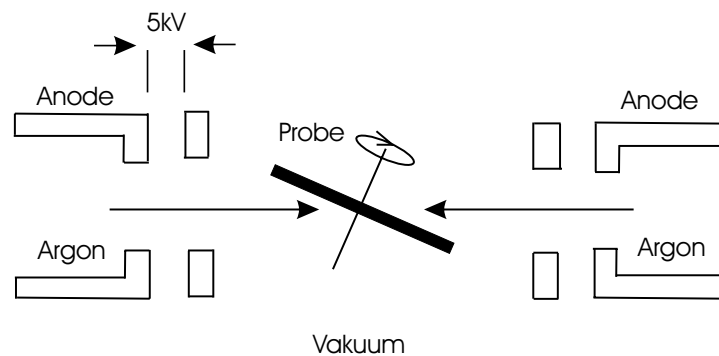


Abbildung 3.1: Schematischer Aufbau einer Ionendünnanlage.

Seiten der Probe mittels einer hoch ätzenden Flüssigkeit (CP6-Lösung, bestehend aus 2 Teilen  $\text{HNO}_3$  (konz.), 1 Teil  $\text{HF}$  (50 %-ig) und 1 Teil  $\text{CH}_3\text{COOH}$  (konz.)) 40-70  $\mu\text{m}$  tiefe Krater. Anschließend wird die gesamte Probe in einer schwachabtragenden Ätzlösung (8 Teile  $\text{HNO}_3$  (konz.) und 1 Teil  $\text{HF}$  (50 %-ig)) über einer Lampe solange bewegt, bis ein Bereich der Probe rot durchschimmert. Eine ausführliche Darstellung dieser Probenpräparationen ist bei Griesse [6] zu finden. Zur abschließenden Dünnung wird die Probe in einer Ionendünnanlage (Duo Mill 600 der Firma Gatan GmbH) für ca. 6 Stunden unter  $12^\circ$  Neigung gedünnt. Hierbei werden durch eine Hochspannung von 5 kV Argon-Ionen beschleunigt. Diese tragen beim Auftreffen auf der rotierenden Probe Atome aus ihrer Oberfläche ab. Ein schematischer Aufbau der Ionendünnanlage ist in Abbildung 3.1 zu sehen. Nach diesem Dünnungsschritt beträgt die Probendicke noch ca. 30-100 nm und ist damit zur Untersuchung im TEM geeignet.

## 3.2 Die Messung

Die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Messungen wurden am Zeiss EM 902 mit Castaing-Henry-Filter bei einer Beschleunigungsspannung von 80 kV durchgeführt. Da die aufgenommenen Bilder später digital weiterverarbeitet werden sollten, wurde ausschließlich die Slow-Scan CCD-Kamera MSC 794 der Firma Gatan GmbH zur Aufnahme der Bilder verwendet. Die Kamera verfügt über  $1024 \times 1024$  Bildpixel mit einer Abmessung von  $24 \times 24 \mu\text{m}^2$ . Aneinandergrenzende Pixel können wahlweise zusammengefaßt werden (Binning). Die Kamera ist mit einem YAG-Szintillator ausgestattet. Zur Aufnahme des Sauerstoffverteilungsbildes wurden drei Vorkantenbilder zur Untergrundkorrektur bei 430 eV, 470 eV und 510 eV Energieverlust und ein Bild auf der K-Kante des Sauerstoffs bei 550 eV Energieverlust aufgenommen. In den Abbildungen 3.2 a) bis d) sind diese Aufnahmen zu sehen. Die Fensterbreite beträgt in allen vier Bildern 32 eV und die Belichtungszeit betrug jeweils 70 Sekunden. Die Vergrößerung in der Kameraebene beträgt ca. 80000. Die Kamera wurde im "Binning zwei" Modus betrieben, so dass je  $2 \times 2$  Pixel zu einem zusammengefasst werden. Die Größe des Objektivaperturwinkels betrug 28.5 mrad. Die vier Bilder wurden driftkorrigiert und zu einem Elementverteilungsbild zusammengefaßt. Das Untergrundsignal wurde mittels des "Weighted-Least-Square-Fit" -Verfahrens (WLSF) aus den drei Vorkantenbildern berechnet (siehe Kap. 2.4). Das Elementverteilungsbild ist in Abbildung 3.3 zu sehen. In den drei Vorkantenbildern werden Signale detektiert, die nicht vom Sauerstoff stammen. In allen drei Bildern tritt ein dunkler Bereich deutlich hervor. Im Bild auf der Kante wird das Sauerstoffsignal zuzüglich des Untergrundes aufgezeichnet. Daher ist der in den Vorkantenbildern dunkle Bereich nun heller. Im Elementverteilungsbild ist das Sauerstoffsignal in diesem Bereich signifikant höher als das der Umgebung. Es handelt sich bei dem Partikel folglich um einen sauerstoffhaltigen Cluster. Die Ausscheidung hat im Elementverteilungsbild Abb. 3.3 eine kreisförmige Gestalt, deren Radius im Bild ca. 17 nm beträgt. Da im

Elementverteilungsbild nur eine Projektion des Oxidclusters zu sehen ist, kann an dieser Stelle noch keine weitere Aussage über die genaue, dreidimensionale Gestalt der Ausscheidung gemacht werden. Die Annahme einer kugelförmigen Geometrie der sauerstoffhaltigen Ausscheidung mit 17 nm Radius bietet sich in diesem Fall jedoch an, da andere transmissionsmikroskopische Untersuchungen an ähnlichen Proben von Rodriguez [16] auf eine Kugelgestalt der Ausscheidung hinweisen. Um in dieser Frage zu weiteren Erkenntnissen zu gelangen, ist es sinnvoll, Modellrechnungen mit dieser Annahme durchzuführen und diese dann mit den gemessenen Signalen zu vergleichen.

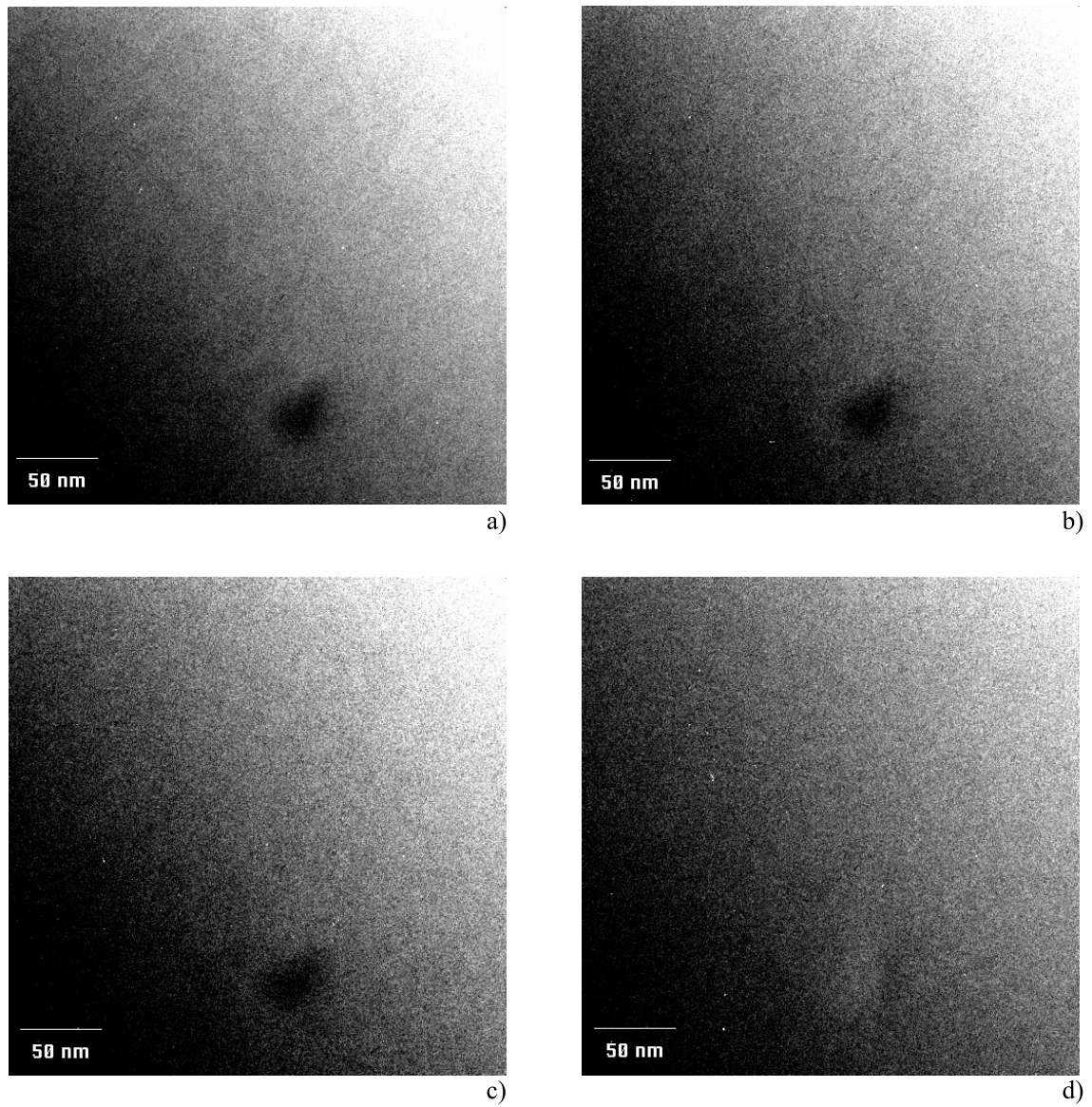


Abbildung 3.2: Vorkantenbilder zur Untergrundkorrektur bei a) 430 eV , b) 470 eV und c) 510 eV Energieverlust. d) ist die Abbildung bei 550 eV Energieverlust (Sauerstoff K-Kante).

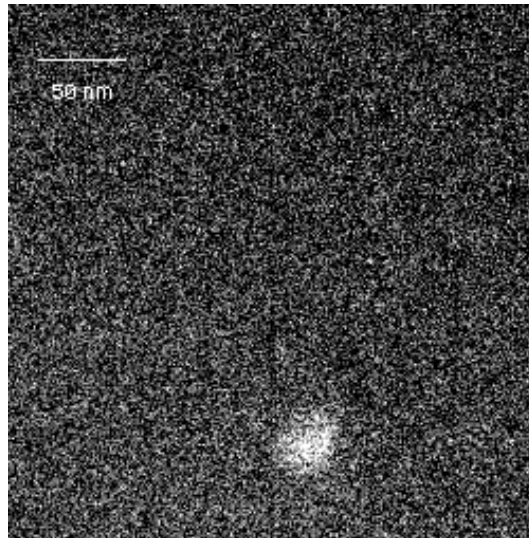


Abbildung 3.3: Elementverteilungsbild der Oxidausscheidung in Silizium.

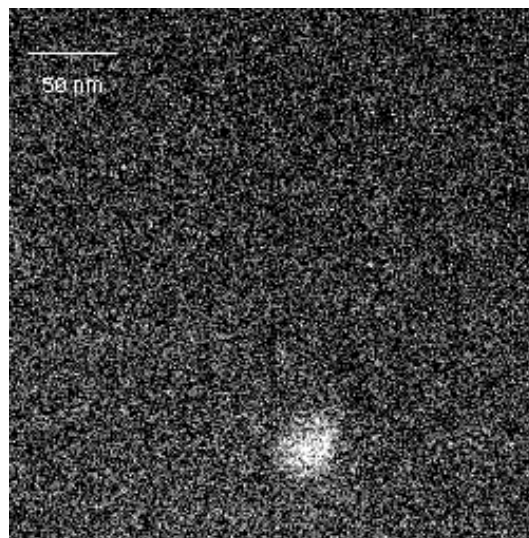


Abbildung 3.4: Signal-zu-Rausch-Verhältnis-Bild der Oxidausscheidung in Silizium.



# Kapitel 4

## Simulation

### 4.1 Das Programm zur Simulation der Probenstruktur

Bei der Simulation der Verteilung des interessierenden Elements wird eine kugelförmige Verteilung mit Radius  $r_p$  in einer homogenen Matrix der Dicke  $d$  angenommen. Abbildung 4.1 stellt dieses anschaulich dar. Die kugelförmige Elementverteilung wird durch

$$n_s(\vec{\rho}) = \begin{cases} n_s & : |\vec{\rho}| \leq r_p \\ 0 & : \text{sonst} \end{cases} \quad (4.1)$$

beschrieben. Die Kugel stellt eine Idealisierung der realen Form der Ausscheidung dar. Da sie radialsymmetrisch ist, ist die mathematische Behandlung besonders einfach. Bei der Betrachtung des CCD-Chips der Kamera wird zur einfacheren mathematischen Behandlung von runden Pixeln der Fläche  $F = \pi r_D^2$  ausgegangen, die flächengleich mit denen in der Realität auftretenden rechteckigen ( $F = \Delta x \Delta y$ ) oder quadratischen Pixeln ( $F = \Delta x^2$ ) sind. Für die idealisierte Impulsantwortfunktion

Modell der Probenstruktur

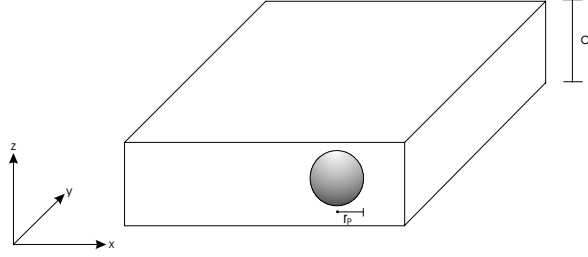
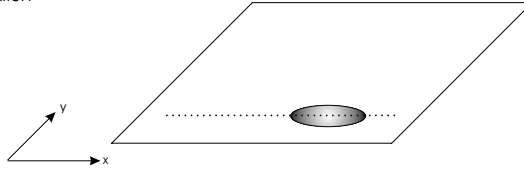
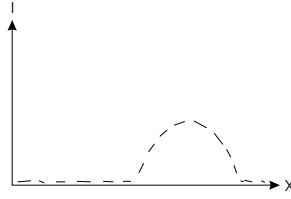
Modell der Abbildung,  
entspricht der Projektion  
in die x-y-EbeneIntensitätsverlauf entlang  
der gepunkteten Linie

Abbildung 4.1: Darstellung der simulierten Objektform mit dem Radius des homogenen Clusters  $r_P$  und der Dicke der Trägermatrix  $d$ .

aus Gleichung (2.54) des Detektors ergibt sich

$$m(\vec{\rho}) = \begin{cases} \frac{1}{\pi r_D^2} & : |\vec{\rho}| \leq r_D \\ 0 & : \text{sonst.} \end{cases} \quad (4.2)$$

Der Detektor wurde auch in Bezug auf die in Kapitel 2.5 erwähnte Detection Quantum Efficiency (DQE) idealisiert. Für die DQE wird ein Wert von 0,5 angenommen [7]. Bei der Simulation des Intensitätsverlaufs im Elementverteilungsbild wird nach Gleichung (2.57) die normierte Sauerstoff-Verteilung  $n_s(\vec{\rho})/n_s$  fouriertransformiert, mit der Übertragungsfunktion des Detektors  $M(\vec{\Omega})$  und des Mikroskops  $H(\vec{\Omega})$  mul-

tipliziert und in den Ortsraum rücktransformiert.

$$f(\vec{\rho}) = \frac{k^2}{4\pi^2} \int N(\vec{\Omega}) M(\vec{\Omega}) H(\vec{\Omega}) \exp(-ik\vec{\Omega}\vec{\rho}) d^2\vec{\Omega} \quad (4.3)$$

Der Anteil der Intensität, der durch die Streuung der Elektronen an der betrachteten Elementsorte verursacht wird und an der Pixelposition  $\vec{\rho}$  gemessen wird, ist mit  $f(\vec{\rho})$  beschrieben. Für das Objekt in Abbildung 4.1 gilt nach Gleichung (2.50)

$$\begin{aligned} N(\vec{\Omega}) &= \int \frac{n_s(\vec{\rho})}{n_s} \exp(ik\vec{\Omega}\vec{\rho}) d^2\vec{\rho} \\ &= 4\pi r_p^3 \frac{j_1(k\Omega r_p)}{k\Omega r_p} \end{aligned} \quad (4.4)$$

mit der sphärischen Besselfunktion  $j_1(x)$ . Die Fouriertransformierte der Impulsantwortfunktion des Detektors läßt sich nach Gleichung (2.54) und (4.2) als

$$\begin{aligned} M(\vec{\Omega}) &= \int m(\vec{\rho}) \exp(ik\vec{\Omega}\vec{\rho}) d^2\vec{\rho} \\ &= \frac{2J_1(k\Omega r_D)}{k\Omega r_D} S(\Omega) \end{aligned} \quad (4.5)$$

schreiben, wobei  $J_1$  die zylindrische Besselfunktion 1. Ordnung und  $S(\Omega)$  die Szintillatorübertragungsfunktion nach Hülk [7] ist. Auf Grund der Radialsymmetrie der Funktionen  $m(\vec{\rho})$  und  $n(\vec{\rho})$  kann Gleichung (4.3) umgeschrieben werden zu

$$f(\rho) = \frac{k^2}{2\pi} \int N(\Omega) M(\Omega) H(\Omega) J_0(k\Omega\rho) \Omega d\Omega \quad (4.6)$$

$J_0$  ist die Besselfunktion 0. Ordnung. Die Funktionen  $N(\Omega)$  und  $M(\Omega)$  sind analytisch zugänglich. Zur Berechnung von  $H(\Omega)$  wurden das nichtrelativistisch rechnende Programmpaket CDCTF von Berger [1] und das relativistisch rechnende Programmpaket RCDCTF von Knippelmeyer [8] verwendet und verglichen. Um geräteunabhängige Ergebnisse zu erhalten, wird eine Normierung der in der Rechnung eingehenden Größen durchgeführt. Dabei verwenden wir für:

$$\text{den Objektivaperturwinkel} \quad \theta_n = \sqrt[4]{\frac{\lambda}{C_S}} \quad (4.7)$$

$$\text{die Defokussierung} \quad \Delta f_n = \sqrt{C_S \lambda} \quad (4.8)$$

$$\text{die Energiefensterbreite} \quad \delta E_n = \frac{\sqrt{C_S \lambda}}{C_C} e U_0 \quad (4.9)$$

$$\text{den Pixelradius} \quad d_n = \sqrt[4]{C_S \lambda^3}. \quad (4.10)$$

Mit Hilfe dieser Faktoren können die normierten Parameter angegeben werden:

$$\text{normierter Objektivaperturwinkel} \quad \vartheta_0 = \frac{\theta_0}{\theta_n}, \quad (4.11)$$

$$\text{normierte Defokussierung} \quad \Delta = \frac{\Delta f}{\Delta f_n}, \quad (4.12)$$

$$\text{normierte Energiefensterbreite} \quad \kappa = \frac{\delta E}{\delta E_n}, \quad (4.13)$$

$$\text{normierte Pixelbreite} \quad \Delta \hat{x} = \frac{\Delta x}{d_n}. \quad (4.14)$$

Für das Elektronenmikroskop 902 der Firma Zeiss (EM 902) mit 80 kV Beschleunigungsspannung und den Fehlerkonstanten  $C_C$  und  $C_S$ , das für die Messungen verwendet wurde, ergeben sich die Werte zu

$$\theta_n = 6.3 \text{ mrad}$$

$$\Delta f_n = 958 \text{ Å}$$

$$\delta E_n = 6.6 \text{ eV}$$

$$d_n = 6.3 \text{ Å}$$

Für den Intensitätsverlauf im Elementverteilungsbild erhalten wir

$$f(\rho) = \frac{k^2}{2\pi} \int 4\pi r_p^3 \frac{j_1(k\Omega r_p)}{k\Omega r_p} \frac{2J_1(k\Omega r_D)}{k\Omega r_D} S(\Omega) H(\Omega) J_0(k\Omega \rho) \Omega d\Omega. \quad (4.15)$$

Das Intensitätsprofil und das Signal-zu-Rauschverhältnis werden mit dem Programmpaket KUGEL.FOR berechnet, das im Rahmen dieser Arbeit zur Simulation der Abbildung der vorliegenden Probenstruktur entwickelt wurde. Tabelle 4.1 zeigt die Teile des Programms und Abbildung 4.5 die Programmstruktur.

## 4.2 Das Signal-zu-Rauschverhältnis (SNR) in Sauerstoffverteilungsbildern

Die kugelförmige Struktur der Oxidausscheidung im Silizium wird ausgehend von der allgemeinen Gleichung (2.21) untersucht. Unter Verwendung der Gleichungen (2.15), (2.16) und (4.15) und der Dosis  $D = \frac{i_0}{e} \tau$  erhält man für die Mittelwerte des Signals  $\langle N_{ij}^S \rangle$  und des Untergrundes  $\langle N_{ij}^U \rangle$

$$\langle N_{ij}^S \rangle = DN_S \sigma_S f(\Delta x) \quad (4.16)$$

$$\langle N_{ij}^U \rangle = D n_U \sigma_U \Delta x^2 \quad (4.17)$$

Dabei ist  $N_S$  die Anzahl der Elektronen, die von dem elementspezifischen Signal herrühren und in einem Pixel an der Stelle  $\rho$  auftreffen.  $n_U$  ist die Flächenteilchendichte der Silizium-Atome,  $\sigma_S$  und  $\sigma_U$  die Wirkungsquerschnitte des Sauerstoffs in der Ausscheidung und der Siliziumatome in der Probe. Einsetzen von (4.16) und (4.17) in (2.23) führt für das SNR im Sauerstoffverteilungsbild auf

$$\left( \frac{S}{N} \right) = f(\Delta x) \frac{\sqrt{(DQE) D N_S^2 \sigma_S^2}}{\sqrt{h n_U \sigma_U \Delta x^2}}. \quad (4.18)$$

Durch optimale Einstellung der Geräteparameter kann man das SNR maximieren [1]. Dieses ist nötig, um sinnvolle Aussagen über das Elementverteilungsbild machen zu können. Verwendung der normierten Parameter nach Gleichungen (4.7-4.10) in Gleichung (4.18) führt auf [3]

$$\left( \frac{S}{N} \right) = f(\Delta \hat{x}) \frac{\sqrt{(DQE) D N_S^2 \sigma_S^2} \sqrt{\frac{\delta E}{\delta E_n} \frac{\ln \left( 1 + \frac{\theta_0^2}{\theta_E^2} \right)}{\ln 10}}}{\sqrt{h n_U \sigma_U d_n^2 \Delta \hat{x}^2}}. \quad (4.19)$$

### 4.3 Simulationsergebnisse

Die relativistisch berechnete inelastische Übertragungsfunktion (ITF) von Knippelmeyer [8] und die nicht relativistisch berechnete inelastische Übertragungsfunktion von Berger [1] sind für die bei den Messungen verwendeten Parameter bestimmt worden und in Abbildung 4.2 dargestellt. Man erkennt nur sehr geringe Abweichungen zwischen den Werten der beiden Funktionen. Dieses lässt sich mit der bei den Messungen verwendeten geringen Beschleunigungsspannung von 80 kV und dem großen Objektivaperturwinkel von 28,5 mrad erklären [8]. Da sich keine signifikanten Unterschiede zwischen den relativistisch und nicht relativistisch berechneten Werten der inelastischen Übertragungsfunktion ergeben, wird im Folgenden für die Simulationsrechnungen aufgrund der kürzeren Rechenzeit nur noch die nichtrelativistisch bestimmte ITF verwendet. Abbildung 4.3 zeigt die Übertragungsfunktion des realen Detektors  $M(\Omega)$  für die Annahme runder Pixel. Um den Einfluss der

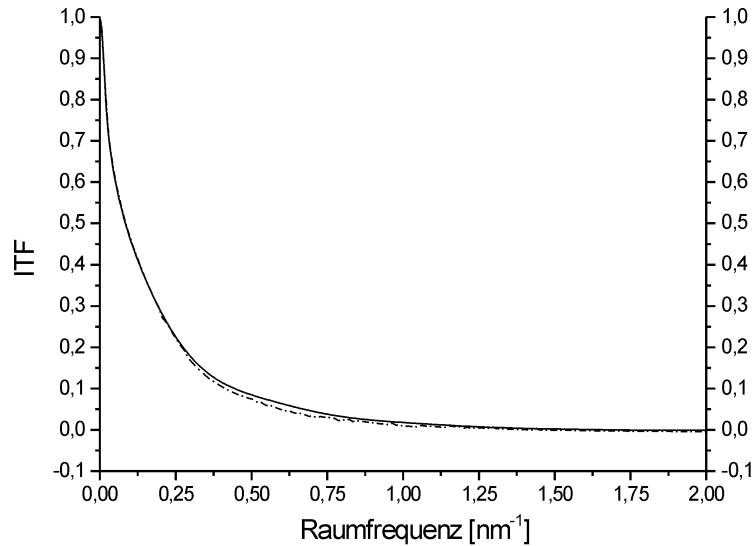


Abbildung 4.2: Vergleich der nicht relativistisch (durchgezogenen Linie) und relativistisch (gepunktete Linie) berechneten inelastischen Übertragungsfunktionen (ITF).

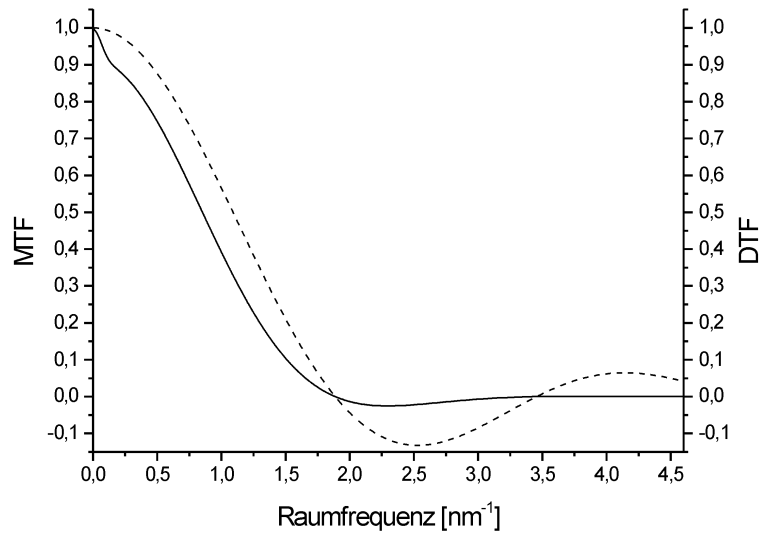


Abbildung 4.3: Übertragungsfunktion des idealisierten (gestrichelte Linie) und realen Detektors (durchgezogene Linie) mit runden Pixeln.

Szintillatorfunktion  $S(\Omega)$  auf  $M(\Omega)$  (MTF) zu verdeutlichen, ist auch die idealisierte Detektorfunktion  $D(\Omega)$  (DTF), die im Wesentlichen der zylindrischen Besselfunktion 1. Ordnung entspricht, in dieser Abbildung aufgetragen. Man erkennt, dass  $S(\Omega)$  einen dämpfenden Einfluss auf  $D(\Omega)$  hat. Die Detektorfunktion  $M(\Omega)$  nimmt mit wachsenden Raumfrequenzen ab und nimmt ab ca.  $2 \text{ nm}^{-1}$  Werte nahe Null an. Strukturen, die kleiner als  $0,5 \text{ nm}$  sind, können bei den gewählten Geräteeinstellungen nicht mehr abgebildet werden. In Abbildung 4.4 sind die Einflüsse der verschiedenen Übertragungsfunktionen auf die Abbildung eines kugelförmigen Objektes in der Probe dargestellt. Die durchgezogene Linie entspricht dem Linescan des Intensitätsverlaufs der Projektion einer Kugel entlang des Radius von  $16 \text{ nm}$ . Dieser Verlauf entspricht dem einer Abbildung mit idealem Mikroskop. Bei der Berechnung der gepunkteten Linie wurde der Einfluss der realen Detektorfunktion  $M(\Omega)$  berücksichtigt. Da die Detektorübertragungsfunktion mit wachsenden Raumfrequenzen abnimmt (s.o.), verändert sie den Signalverlauf besonders stark für hohe

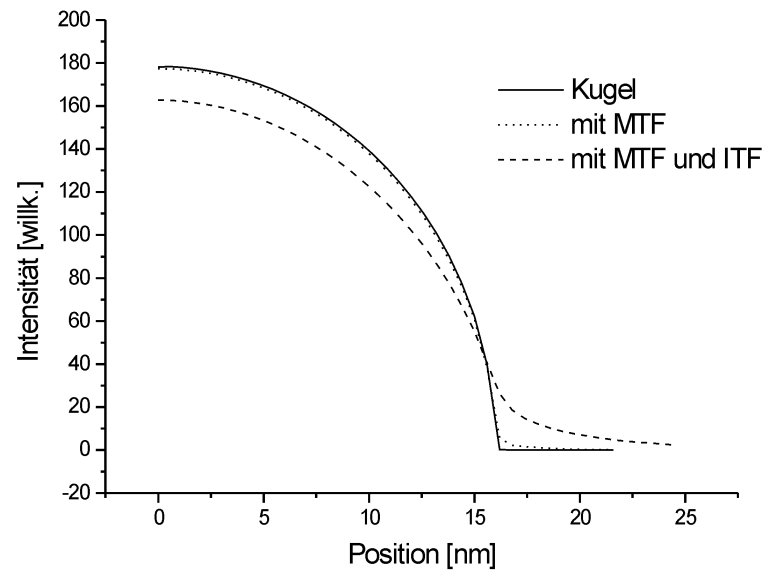


Abbildung 4.4: Einfluß der verschiedenen Übertragungsfunktionen auf ein kugelförmiges Objekt.

Raumfrequenzen. Diese liegen an der Grenze der Kugelprojektion vor. Nur dort ist eine Abweichung vom Intensitätsverlauf der Abbildung eines idealen Mikroskops zu erkennen. Die Berechnung des Signals, das dem Messignal entspricht, berücksichtigt die inelastische Übertragungsfunktionen des Mikroskops  $H(\Omega)$  (ITF) sowie des Detektors (vgl. Kapitel 2.6). Die gestrichelte Linie in Abbildung 4.4 stellt diesen Signalverlauf dar. Die Intensitätsverteilung wird deutlich gedämpft und verbreitert. Die Projektion der Kugel erhält dadurch im Bild einen scheinbar größeren Radius.



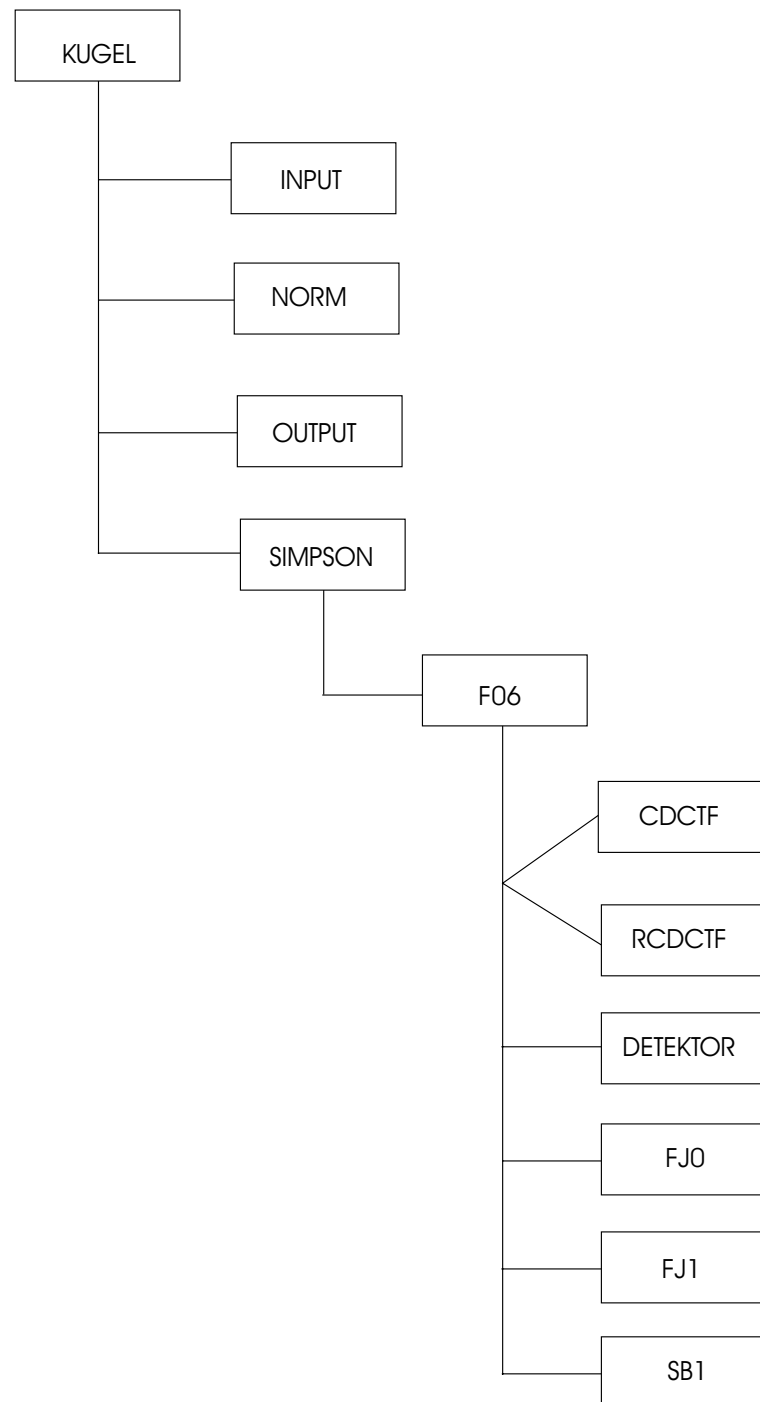


Abbildung 4.5: Schema des Programmes KUGEL.FOR.

Name	Typ	Funktion
KUGEL.FOR	Hauptprogramm	Berechnung und Ausgabe des Intensitätsverlaufs und des SNR im Elementverteilungsbild
INPUT.FOR	Unterprogramm	Eingabe der Geräte- und Probandaten
NORM.FOR	Unterprogramm	Normierung der Eingabedaten, Berechnung der Dosis
OUTPUT.FOR	Unterprogramm	Ausgabe von ausgewählten Zwischenergebnissen
SIMPSON.FOR	Unterprogramm	Integrationsroutine nach dem Simpson-Verfahren
F06.FOR	Funktion	Berechnung der Funktion $f(\rho)$
CDCTF.FOR bzw. RCDCTF.FOR	Unterprogramm	Berechnung der nichtrelativistischen bzw. relativistischen Übertragungsfunktion des Mikroskops
FJ0.FOR	Funktion	Berechnung der zylindrischen Besselfunktion 0. Ordnung
FJ1.FOR	Funktion	Berechnung der zylindrischen Besselfunktion 1. Ordnung
SB1.FOR	Funktion	Berechnung der sphärischen Besselfunktion 1. Ordnung
DETEKTOR.FOR	Unterprogramm	Berechnung der Übertragungsfunktion des Detektors
SZINTILLATOR.FOR	Funktion	Berechnet die Übertragungseigenschaften des Szintillators

Tabelle 4.1: Kurzbeschreibung des Programms KUGEL.FOR und dazugehöriger Unterprogramme

# Kapitel 5

## Auswertung

### 5.1 Vergleich von Messung und Experiment des Bildsignals

Die Signalthöhe des Sauerstoffverteilungsbildes (vgl. Abbildung 3.3) wird entlang des Durchmessers des Clusters über einen Probenbereich von ca. 80 nm bestimmt. Dieses Signal ist in Abbildung 5.1 als schwarze Linie dargestellt. Der Radius der Oxidausscheidung läßt sich an Hand des Linescans auf ca. 17 nm bestimmen. Die Dicke der Probe wurde an Hand einer Thicknessmap [4] auf ca. 90 nm bestimmt. Im Vergleich zum geringen Radius ist die gesamte Dicke der Probe groß, was ein erhöhtes Rauschen im Signalverlauf zur Folge hat. Das Sauerstoffsignal weist bei etwa 0 nm sein Maximum auf. Dieses stimmt mit der Lage des Clustermittelpunktes überein. Ausgehend vom Maximum fällt das Signal in analoger Weise zu beiden Seiten hin ab, bis es ab ca. -20 nm bzw. +20 nm um den konstanten Wert von 20 Einheiten schwankt. Das Sauerstoffsignal für Probenstellen außerhalb des Clusters sinkt also nicht auf Null ab, was sich durch eine gleichmäßige Oxidation der Probenoberfläche erklären läßt. In der Simulation wurde von einem Clusterradius von 16 nm ausgegangen. Beschleunigungsspannung, Objektivaperturwinkel, Belich-

tungszeit, Vergrößerung, Energieverlust und Energiefensterbreite wurden wie im Experiment eingestellt (vgl. Kapitel 3.2). In Abbildung 5.1 stellt die gepunktete Linie das Ergebnis dieser Simulationsrechnung dar. Der qualitative Verlauf stimmt im Bereich des Clusters gut mit der Messung überein. Jedoch liegt der Intensitätsverlauf um einen konstanten Faktor unterhalb des gemessenen Signals. Berücksichtigt man eine gleichmäßige Oberflächenoxidation in der Rechnung, die in Abbildung 5.1 von der gestrichelten Linie repräsentiert wird, so gibt die Simulation den Verlauf der Meßkurve über den gesamten Probenausschnitt gut wieder.

Wie in Kapitel 2.5 ausgeführt, ist das Signal-zu-Rausch-Verhältnis (SNR) ein Mass für die Zuverlässigkeit des gemessenen bzw. berechneten Signals. Das experimentell bestimmte SNR ist in Abbildung 5.2 als durchgezogene Linie aufgetragen. Der Verlauf des SNR ist ähnlich dem des gemessenen Sauerstoffsignals in Abbildung 5.1 und ebenfalls stark verrauscht. Das Rauschen ist auch hier auf den geringen Radius der Oxidausscheidung im Vergleich zur großen Dicke der Probe zurück zu führen. Die Simulationsrechnung wurde wieder für die verwendeten Geräteparameter und einen Ausscheidungsradius von 16 nm durchgeführt. Die gestrichelte Linie zeigt den Verlauf des simulierten SNR welches für den Siganlverlauf mit Offset bestimmt wurde. Die Berücksichtigung der Oberflächenoxidation der Probe in der Rechnung führt wie beim Sauerstoffsignal zu einer sehr guten Übereinstimmung von Messung und Simulation über den betrachteten Probenbereich. Die Höhe des SNR ist sowohl für die Simulation als auch in der Messung kleiner als drei. Die Ergebnisse genügen daher nicht dem Rosekriterium. Müller [13] zeigte jedoch, dass mittels eines multivariaten Analyseverfahrens zur Segmentierung von Elementverteilungsbildern auch Elementverteilungsbilder mit  $\text{SNR} \leq 3$  gesicherte Ergebnisse liefern können. Der Vergleich von Simulation und Messung untermauert also die Annahme einer kugelförmigen sauerstoffhaltigen Ausscheidung von etwa 16 nm Radius in der Siliziumprobe.

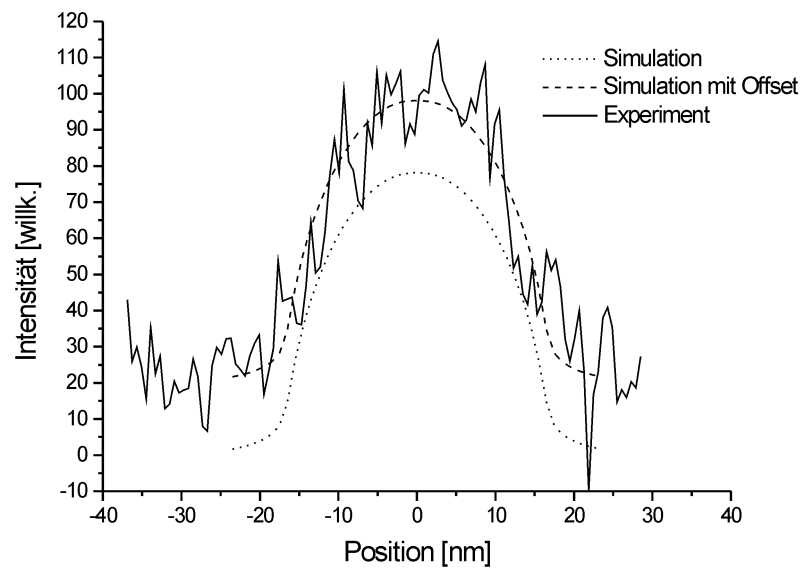


Abbildung 5.1: Linescan des gemessenen und simulierten Intensitätsverlaufs durch den Mittelpunkt des Clusters.

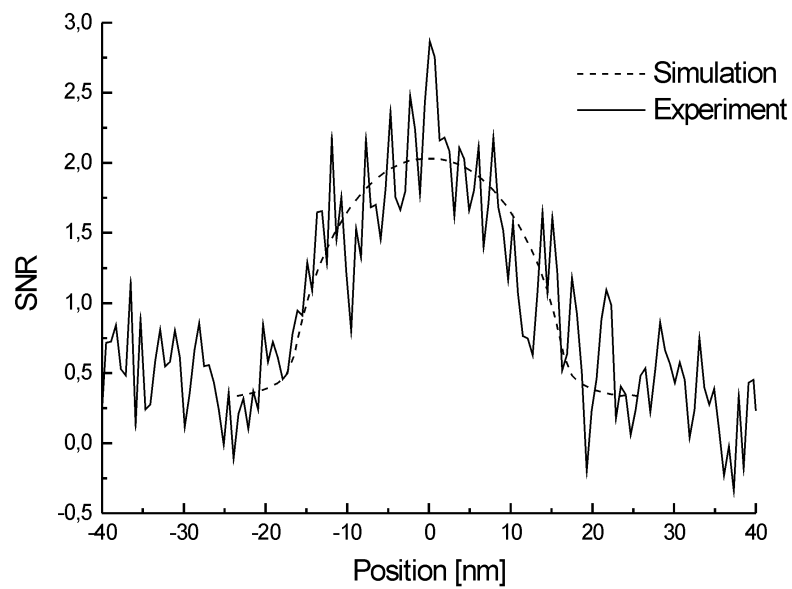


Abbildung 5.2: Linescan des gemessenen und simulierten Signal-zu-Rausch-Verhältnisses durch den Mittelpunkt des Clusters.

## Kapitel 6

# Zusammenfassung und Ausblick

Ziel dieser Arbeit war es, unbekannte Ausscheidungen in einer Siliziumdiffusionsprobe durch Untersuchungen an einem repräsentativen Cluster mit einem energiefilternden Transmissionselektronenmikroskop zu charakterisieren. Die gewonnenen Messergebnisse wurden durch begleitende Simulationsrechnungen untermauert und ergänzt. Grundlage der Simulationsrechnungen ist die Theorie zur Übertragungsfunktion von Berger, die auf der linearen Abbildungstheorie basiert. Durch die Aufnahme eines Sauerstoffverteilungsbildes konnte Sauerstoff in der Ausscheidung nachgewiesen werden. Die Simulationsrechnungen für einen kugelförmigen oxidhaltigen Cluster von 16 nm Radius und die in den Messungen eingestellten Geräteparameter beschreiben den im Experiment gefundenen Profilverlauf gut. Unterschiede ergeben sich vor allem durch die Dicke der Probe von ca. 90 nm, die im Vergleich zum Clusterradius relativ groß ist und somit für Rauschen und ein kleines SNR im Elementverteilungsbild sorgt. Für die verwendeten Geräteparameter, besonders durch die Verwendung einer großen Objektivaperturblende von 28,5 mrad, unterscheiden sich die Rechnungen für die nichtrelativistische, inelastische Übertragungsfunktion von Berger und die relativistisch korrigierte Übertragungsfunktion von Knippelmeyer nur unwesentlich. Die Ergebnisse dieser Arbeit bestimmen die Cluster als oxidhaltig.

ge, kugelförmige Ausscheidungen mit Radien zwischen 14 nm und 20 nm. Aufgrund der Dicke der Probe, der Oberflächenoxidation und der geringen Radien der Ausscheidungen war es nicht möglich, an Hand eines EELS das Verhältnis von Silizium zu Sauerstoff innerhalb des Clusters zu bestimmen. Daher ist es nicht möglich zu entscheiden, ob die Ausscheidungen aus Siliziumoxid oder Siliziumdioxid bestehen. Unter Verwendung einer extrem dünnen Probe und eines kleinen Objektivaperturwinkels wäre diese Unterscheidung eventuell möglich.

# Literaturverzeichnis

- [1] A. Berger: Abbildung von Elementverteilungen mit hoher Ortsauflösung im Transmissions-Elektronenmikroskop, Dissertation, Institut für Angewandte Physik der TH Darmstadt (1993)
- [2] A.Berger, H. Kohl: Microsc. Microanal. Mikrostruct. **3** (1992) 159
- [3] J. Eckardt: Optimierung von Geräteparametern für den Nachweis kleiner Teilchen in hochauflösenden Elementverteilungsbildern, Diplomarbeit, Universität Münster (1996)
- [4] R. F. Egerton: *Electron-Energy-Loss Spectroscopy in the Electron Microscope*, Plenum Press, New York (1986)
- [5] R. F. Egerton: Ultramicroscopy **28** (1989) 215
- [6] A. Griesse: Charakterisierung von Leerstelleneigenschaften in Silicium und Germanium mittels der interstitiell- substitutionellen fremddiffusion, Dissertation, Universität Münster (2000)
- [7] C. Hülk: Charakterisierung von CCD-Kamerasystemen in der Transmissions-elektronenmikroskopie und deren Einsatz bei der Erstellung von Elementverteilungsbildern, Dissertation, Universität Münster (1998)



- [8] R. Knippelmeyer: Bestimmung von Übertragungsfunktionen zur quantitativen Auswertung von Elementverteilungsbildern, Dissertation, Universität Münster (2000)
- [9] H. Kohl, H. Rose: Ultramicroscopy **16** (1985) 265
- [10] S. Kujawa und D. Krah: Ultramicroscopy **46** (1992) 395
- [11] F. Lenz: *Transfer of image information in electron microscope*. In: Electron microscopy in material science (ed. by U.Valdre), Academic Press, New York (1971)
- [12] I. Müller: Berechnung von Elementverteilungsbildern und ihrer Fehlergrenzen durch Auswertung elektronenmikroskopischer Bilderserien, Diplomarbeit, Universität Münster (1997)
- [13] I. Müller: Einsatz eines multivariaten Analyseverfahrens zur Segmentierung von Elementverteilungsbildern, Dissertation, Universität Münster (2001)
- [14] T. Pun, J.R. Ellis, M. Eden: J. of Microscopy **135** (1984) 295
- [15] L. Reimer: *Transmission Electron Microscopy. Physics of Image Formation and Microanalysis*, Springer Series in Optical Sciences **36**, Springer, Berlin (1997)
- [16] A. Rodriguez: Persönliche Mitteilung (2002)
- [17] A. Rose: Image Technol. **12** (1970) 13
- [18] W.J. de Ruijter: Micron **26** (1995) 247

# Danksagung

Allen Mitgliedern der elektronenmikroskopischen Abteilung danke ich für die Unterstützung und die angenehme Atmosphäre. Besonders bedanken möchte ich mich bei

- Prof. Dr. Kohl für die Anregung zu dieser Arbeit, sein förderndes Interesse und die Möglichkeit der Anfertigung dieser Diplomarbeit in seiner Arbeitsgruppe,
- Andreas Thesing, für die Einweisung an den Geräten und der Hilfe bei allen Fragen, die ich an ihn hatte,
- Mi Young Park für die Einweisung in ihr Programm und die ständige Diskussionsbereitschaft,
- André Rodriguez für die Bereitstellung und Vorpräparation der Probe,
- Benedikt Gralla für die Hilfe im Umgang mit der Hardware,
- Markus Silder für die Unterstützung bei der Probenpräparation,
- Hilmar Hoffmeister für die Unterstützung bei allen LATEX-Fragen und die vielen Denkanstöße
- und meinen Eltern und meinem Bruder für den Glauben an mich und ihre unermüdliche Unterstützung in allem was ich bisher unternommen habe.

Hiermit versichere ich, dass ich die Arbeit selbständig verfasst und keine anderen als die angegebenen Hilfsmittel verwendet habe.

Münster, 27.08.2002



