

# Defektuntersuchungen in Festkörpern

mit der

## Bonner Positronen-Mikrosonde

**Dissertation**

zur

Erlangung des Doktorgrades (Dr. rer. nat.)

der

Mathematisch - Naturwissenschaftlichen Fakultät

der

Rheinischen Friedrich - Wilhelms - Universität Bonn

vorgelegt von

**Ulrike Männig**

aus

Lüdenscheid

Bonn 2000



Angefertigt mit Genehmigung  
der Mathematisch - Naturwissenschaftlichen Fakultät  
der Rheinischen Friedrich - Wilhelms - Universität Bonn

Referent: Prof. Dr. Karl Maier  
Korreferent: Prof. Dr. Peter David  
Tag der Promotion:



*„Damit das Mögliche entsteht,  
muß immer wieder das Unmögliche versucht werden.“*

Hermann Hesse



---

# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2</b>	<b>Defekte in Festkörpern</b>	<b>3</b>
2.1	Festkörper allgemein . . . . .	3
2.2	Fehlstellen . . . . .	4
2.3	Strahlenschädigungen . . . . .	5
2.3.1	Bestrahlung mit Ionen . . . . .	6
2.3.2	Bestrahlung mit Elektronen . . . . .	13
2.4	Simulation von Ionenbestrahlungen - TRIM . . . . .	19
2.5	Plastische Verformung durch Schleifen . . . . .	20
2.6	Spannungsoptik . . . . .	22
<b>3</b>	<b>Positronen als Fehlstellensonden</b>	<b>23</b>
3.1	Positronenquellen . . . . .	23
3.2	Positronen in Materie . . . . .	24
3.2.1	Thermalisierung . . . . .	24
3.2.2	Positronendiffusion . . . . .	25
3.2.3	Zerstrahlung . . . . .	26
3.3	Langsame Positronen . . . . .	28
3.3.1	Eindringtiefen von Positronen . . . . .	29
3.4	Positronium . . . . .	30
3.5	Meßmethoden . . . . .	32
3.5.1	Messung der Doppler-Verbreiterung . . . . .	32
3.5.2	Lebensdauer-Messungen . . . . .	33

3.5.3	Winkelkorrelation . . . . .	33
3.5.4	Positronen-Reemissions-Mikrosonde . . . . .	34
3.6	Auswertung . . . . .	34
3.6.1	Untergrund . . . . .	34
3.6.2	Auswertung von S- gegen W-Parameter . . . . .	35
3.7	Faltungintegral . . . . .	35
<b>4</b>	<b>Die Positronenmikrosonde</b>	<b>37</b>
4.1	Aufbau und Funktionsweise . . . . .	37
4.2	Quelle . . . . .	39
4.3	Moderator . . . . .	41
4.4	Weitere Bauteile . . . . .	41
4.5	Geplante Veränderungen . . . . .	42
<b>5</b>	<b>Strahlenschäden in Molybdän: Experimente und Diskussion</b>	<b>43</b>
5.1	Eigenschaften von Molybdän . . . . .	43
5.2	Probenpräparation . . . . .	44
5.3	Elektronenbestrahlung . . . . .	45
5.4	Großflächige Bestrahlung . . . . .	47
5.4.1	Bestrahlung mit Protonen . . . . .	48
5.4.2	Bestrahlung mit Alphateilchen . . . . .	49
5.5	Kleinflächige Bestrahlung mit Protonen . . . . .	51
5.5.1	Bestrahlung von Wolfram - Vergleich mit Positronen-Reemissions-Mikrosonde . . . . .	57
5.6	Vergleich der verschiedenen Messungen in Molybdän . . . . .	59
5.7	Zusammenfassung der Ergebnisse . . . . .	60
<b>6</b>	<b>Strahlenschäden in Si und SiO<sub>2</sub>: Experimente und Diskussion</b>	<b>62</b>
6.1	$\alpha$ -bestrahltes Si . . . . .	62
6.1.1	Eigenschaften von Silizium . . . . .	62



---

6.1.2	Messungen . . . . .	63
6.1.3	Diskussion der Ergebnisse . . . . .	68
6.2	$\alpha$ -bestrahltes SiO <sub>2</sub> . . . . .	68
6.2.1	Eigenschaften von SiO <sub>2</sub> . . . . .	68
6.2.2	Messungen . . . . .	70
6.2.3	Diskussion der Ergebnisse . . . . .	74
<b>7</b>	<b>Lokal geschädigtes GaAs: Messungen und Diskussion</b>	<b>76</b>
7.1	Eigenschaften GaAs . . . . .	76
7.2	Messungen . . . . .	77
7.3	Diskussion der Ergebnisse . . . . .	82
	<b>Zusammenfassung</b>	<b>84</b>
	<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>85</b>
	<b>Danksagung</b>	<b>89</b>
	<b>Lebenslauf</b>	<b>91</b>



# Kapitel 1

## Einleitung

Der zerstörungsfreien Werkstoffprüfung kommt gerade in den anwendungstechnischen Bereichen eine herausragende Bedeutung zu. Die Methode der Positronenannihilation ist hierfür besonders prädestiniert, da sie zusätzlich noch hochempfindlich ist. Sie wird als Standardverfahren schon seit einigen Jahrzehnten benutzt und die physikalischen Prozesse zum Beispiel des Positroneneinfangs oder der Positroniumbildung sind recht gut verstanden, obwohl natürlich in vielen Bereichen wie zum Beispiel den Auswerteverfahren noch Forschungsbedarf besteht.

Die Bonner Positronenmikrosonde ermöglicht erstmals Untersuchungen mittels Positronenannihilation mit einer räumlichen Auflösung im Mikrometerbereich. Es handelt sich hierbei um eine Kombination von einer radioaktiven Positronenquelle und einem konventionellen Raster-Elektronen-Mikroskop.

In dieser Arbeit wird zuerst der prinzipielle Aufbau sowie weitere am Gerät vorgenommenen Verbesserungen erläutert. Im Hauptteil werden dann Messungen an verschiedenen bestrahlten Molybdän-Proben, bestrahlte Silizium- und Quarz-Proben, sowie mechanische Ritze in Gallium-Arsenid vorgestellt und interpretiert.

Für die Fragestellung nach dem exakten Einfangprozess von Positronen in Defekte ist Molybdän ein gutes Probenmaterial, denn in ihm bleiben auch die Einfachleerstellen bei Raumtemperatur stabil und werden erst bei Aufheizen auf ca. 500°C beweglich. Der Temperatureinfluss, sowie die Einflüsse verschiedener Bestrahlungsarten (Elektronen-, Protonen- und Alpha-Bestrahlung) und -Dosen wurde untersucht. Um dieselben Proben auch mit einer Positronen-Reemissions-Mikrosonde untersuchen zu können, wurden ebenfalls Wolfram-Proben mit Protonen bestrahlt und in beiden Apparaturen untersucht.

Eine weitere Fragestellung ist das exakte Schädigungsprofil nach einer Bestrahlung. Dazu wurden unterschiedlich dicke Proben – Mo, Si und SiO<sub>2</sub> – mit Protonen bzw. Alphateilchen bestrahlt und das Defektprofil in den bestrahlten Bereichen gemessen. Die erhaltenen Ergebnisse wurden mit Simulationen des Programms TRIM verglichen.

Als letztes wurden Einkornritzversuche von Diamanten in Gallium-Arsenid-Proben der Firma Freiburger<sup>1</sup> mit verschiedenen Positronen-Energien (30 kV wie alle anderen Messungen auch und zusätzlich 20 kV) untersucht. Anhand dieser Versuche sollen die genauen Defektentstehungsparameter bei Säge- und Schleif-Prozessen in der industriellen Fertigung von Wafern erforscht werden. Bei den hier vorgestellten Messungen war die Abhängigkeit der Defektentstehung von der kristallographischen Richtung des Ritzes von Bedeutung. In Zukunft ist die Untersuchung der Abhängigkeit von weiteren experimentellen Parametern wie zum Beispiel der Schleifgeschwindigkeit geplant.

---

<sup>1</sup>Freiberger Compound Materials GmbH, Am Junger Löwe Schacht 5, 09599 Freiberg

---

# Kapitel 2

## Defekte in Festkörpern

### 2.1 Festkörper allgemein

In Festkörpern haben die Atome im Mittel feste Positionen zueinander, wobei allerdings ihre Verbindung elastisch ist. Das heißt, die Atome können um ihre Gleichgewichtslage schwingen (Phononen). Man unterscheidet Metalle, Halbleiter und Isolatoren nach Art der Bindung zwischen den Atomen. Eine andere Art der Unterscheidung ergibt sich durch die Anordnung der Atome im Festkörper: Liegt eine periodische Struktur vor, so spricht man von kristallin, ansonsten von amorph. In diesem Abschnitt soll kurz auf die herausragenden Eigenschaften der in dieser Arbeit untersuchten Materialien eingegangen werden. Hierbei wird kein Anspruch auf Vollständigkeit erhoben sondern zu diesem Zwecke auf die Fachliteratur verwiesen [Kit83], [Ger95], [Ber92].

Bei **Metallen** bilden die Valenzelektronen aller Atome ein Elektronengas, das sich relativ frei durch das Gitter bewegen kann (Metallbindung). Da durch die Elektronen keine Richtungen vorgegeben werden, bevorzugen Metalle dichteste Kugelpackungen. Die Übergangsmetalle Molybdän und Wolfram haben dagegen beide bcc-Struktur (kubisch raumzentriert, **body-centered cubic**), da neben der metallischen auch kovalente Bindungsanteile vorhanden sind.

Die **Halbleiter** sind in der Regel – und dies gilt im speziellen für Silizium und Gallium-Arsenid – kovalent gebunden. Diese haben jeweils 4 durch die Valenzstruktur vorgegebenen Bindungen, welche tetraedrisch angeordnet sind und eine relativ offene aber sehr feste Struktur bilden. Als Folge sind diese Materialien hart und spröde.

Diese Aufstellung ist natürlich nicht vollständig, in Salzen zum Beispiel gibt es eine ionische Bindung. Die Übergänge von einer Bindungsart zur anderen sind manchmal fließend.

Im Gegensatz zu den Kristallen haben **amorphe** Festkörper zwar eine Nah- aber keine Fernordnung der Atome. Die Nahordnung ist in Siliziumdioxid durch die te-

traedrisch angeordneten kovalenten Bindungen zwischen Sauerstoff- und Siliziumatomen gegeben. In kristallinem Quarz finden sich diese zu einer relativ offenen Gitterstruktur zusammen, wohingegen sich in amorphem Zustand, dem Glas, eine zufällige Konfiguration mit wesentlich mehr freiem Volumen herausbildet.

## 2.2 Fehlstellen

In der Realität trifft man nie auf perfekte Kristallstrukturen, sondern es treten verschiedene Arten von Fehlstellen auf. Je nach Art und Bearbeitung des Festkörpers haben sie stark unterschiedliche Konzentration und bestimmen maßgeblich dessen Eigenschaften, sei es mechanisch, elektrisch oder optisch.

Als **nulldimensionale** Defekte bezeichnet man Punktdefekte wie Einzelleerstellen, bei denen ein Atom im Gitter fehlt (Schottky-Defekt). Wenn das überzählige Atom auf einem Zwischengitterplatz sitzt, werden die beiden nulldimensionalen Fehler zusammen als Frenkel-Defekt bezeichnet. Ist ein Atom einer anderen Sorte an Stelle eines Gitteratoms eingebaut, so handelt es sich um ein Fremdatom. Bei Festkörpern erreicht die Leerstellenkonzentration maximal  $10^{21} \text{ cm}^{-3}$  [Ber92].

Einzelleerstellen entstehen durch verschiedene Prozesse, zum Beispiel unter Temperatureinwirkung. Es bildet sich ein thermisches Gleichgewicht der atomaren Leerstellenkonzentration  $C_V$ , welches man wie folgt beschreiben kann:

$$C_V = \exp\left(\frac{S_V^F}{k}\right) \cdot \exp\left(\frac{-H_V^F}{kT}\right) \quad (2.1)$$

$H_V^F$  : Leerstellenbildungsenthalpie  
 $S_V^F$  : Leerstellenbildungsentropie  
T : Temperatur in Kelvin  
k : Boltzmann-Konstante

Des Weiteren kann man Leerstellen durch plastische Verformung oder auch durch Bestrahlung erzeugen (siehe Kap. 2.3). Ab einer bestimmten Leerstellenbeweglichkeit lagern sie sich aneinander an und bilden Mehrfachleerstellen bis hin zu größeren Clustern.

Unter **eindimensionalen** Defekten versteht man die Versetzungen. Ihre Dichte reicht von  $10^3 \text{ m}^{-2}$  in Si-Einkristallen bis  $10^{16} \text{ m}^{-2}$  in kalt gewalztem Metall.

Man kann sie sich als die Ränder von ins perfekte Gitter eingeschobenen oder dort fehlenden Netzebenenanteilen vorstellen. Sie sind wegen der Fehlanpassung mit der Umgebung von mechanischen Spannungsfeldern umgeben, über die sie miteinander wechselwirken können. Beschrieben werden sie durch den Burgersvektor  $\vec{b}$  ([Kit83]).

Je nach dessen Richtung bezüglich der Versetzungslinie  $\vec{V}$  unterscheidet man Stufenversetzung ( $\vec{b}$  senkrecht  $\vec{V}$ ) und Schraubenversetzungen ( $\vec{b}$  parallel  $\vec{V}$ ), meist liegt aber eine Kombination von beiden vor. Teilweise lagern sie sich aneinander an und bilden so stabilere Konfigurationen. Eine solche stabile Konfiguration kann unter mechanischer Belastung neue Versetzungen emittieren, wobei sie selbst unverändert bleibt (Frank-Read-Quelle).

Die große Bedeutung der Versetzungen für die Festkörperphysik wird bei der Betrachtung von plastischer Verformung deutlich: Im fehlerfreien Kristall ist plastische Verformung unter Anlegung realistischer Schubspannungen nicht möglich, da *alle* Atome einer Netzebene *gleichzeitig* verschoben werden müßten. Bei einem realen Kristall führt das Anlegen einer äußeren Kraft zu einer Verformung, welche auf atomarer Ebene durch Wandern der Versetzungen erfolgt. Vergleichbar mit dem Bewegen eines schweren Teppichs mittels einer Falte schiebt sich die Versetzung durch Lösen und Knüpfen von Bindungen zwischen direkt benachbarten Atomen mit minimalem Energieverbrauch durch den Kristall. Tritt sie an die Oberfläche, so entsteht eine atomare Stufe. Im Kristallinneren werden unter Belastung neue Versetzungen erzeugt und bei größeren Konzentrationen können diese sich gegenseitig behindern oder schneiden. Bei Schneidprozessen entstehen zusätzlich auch Leerstellen, die sich je nach Beweglichkeit an die Versetzungslinie anlagern oder am Entstehungsort verweilen [Kit83].

Als **zweidimensionale** Defekte bezeichnet man innere Grenzflächen, wie Korngrenzen, Phasengrenzflächen aber auch die Oberfläche des Festkörpers. Die Anpassung zwischen wenig verschieden orientierten Körnern geschieht unter anderem auch durch Bildung von Versetzungen (Kleinwinkelkorngrenzen).

**Dreidimensionale** Defekte sind Ausscheidungen, Hohlräume oder Gasbläschen. Diese letzten beiden werden hier nicht weiter betrachtet.

## 2.3 Strahlenschädigungen

Im Rahmen dieser Arbeit wurden durch Teilchenbeschuß (z.B. Ionen aus einem Beschleuniger) Fehlstellen in verschiedensten Materialien erzeugt und mit einer Positronenmikrosonde untersucht. Hierbei ist es von großem Interesse, die erzeugten Fehlstellen in ihrer Art und Konzentration möglichst genau zu kennen, um die gemessenen Positronensignale richtig deuten zu können und neuartige Meßeffekte zu erkennen.

Im folgenden wird deshalb ausführlich auf die grundlegenden Prozesse bei Bestrahlungen von Festkörpern mit Elektronen und leichten Ionen und die dabei erzeugten Fehlstellen eingegangen. Da es bei der Bestrahlung von  $\text{SiO}_2$  auch zu Änderungen des Brechungsindex durch mechanische Spannungen kommt, schließt sich ein kurzes

Kapitel über Spannungsoptik an.

Es gibt verschiedene Prozesse, die dazu beitragen, daß in einen Festkörper eingeschossene Ionen ihre Energie verlieren. Die beiden wichtigsten sind [Rys78]:

- unelastische Stöße mit Elektronen, d.h. elektronische Abbremsung durch Ionisation oder Anregung von Atomen oder Molekülen
- elastische Kernstöße mit Verlagerung des getroffenen Kerns

Einen geringeren Beitrag im hier verwendeten Energiebereich erbringen folgende Prozesse:

- Emission von Cherenkov-Strahlung
- Kernreaktionen
- Bremsstrahlung

Aufgrund ihrer sehr stark unterschiedlichen Massen müssen bei den folgenden Betrachtungen Elektronen und Positronen auf der einen Seite und leichte Ionen (wie in diesem Fall Protonen und Alphateilchen) auf der anderen Seite getrennt betrachtet werden. Die für die letztere Gruppe angeführten Näherungen schließen allerdings die schweren Ionen wie zum Beispiel Sauerstoff nicht mit ein.

### 2.3.1 Bestrahlung mit Ionen

Man definiert die Bremsquerschnitte  $S_e$  für die elektronische bzw.  $S_n$  für die Kernabbremsung von leichten Ionen (p,  $\alpha$ ) wie folgt:

$$S_{e,n} = -\frac{1}{N} \left( \frac{dE}{dx} \right)_{e,n}$$

Hierbei ist N die Zahl der Atome pro Volumen des Targets, E die Energie der einfallenden Ionen und x die im Target zurückgelegte Strecke. In Abbildung 2.1 ist der prinzipielle Verlauf der Bremsquerschnitte in Abhängigkeit von der Energie abgebildet. Diese sind außerdem sowohl von der Masse des Bestrahlungs- als auch des Target-Atoms abhängig. Die Werte  $E_1$  bis  $E_3$  sind typische Energien: unterhalb von  $E_2$  dominiert die Kernabbremsung, oberhalb von  $E_3$  gilt die Theorie nach Bethe-Bloch [Leo87]. Der Bereich dazwischen wurde unter anderem von Lindhard, Scharff und Schiott (LSS-Theorie [Rys78]) beschrieben. Typische Werte dieser Energien für die Bestrahlung von Silizium mit Bor-Ionen:  $E_1 = 3 \text{ keV}$ ,  $E_2 = 17 \text{ keV}$  und  $E_3 \approx 3 \text{ MeV}$ .



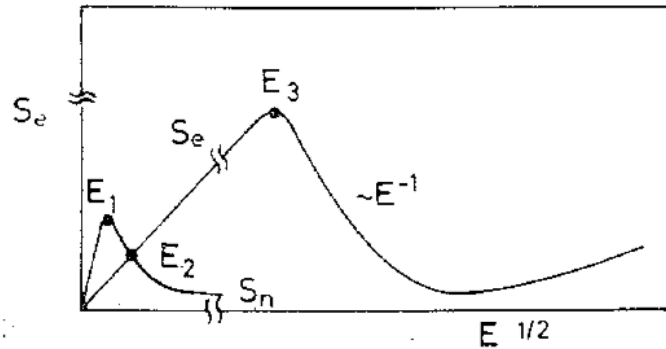


Abbildung 2.1: Bremsquerschnitte  $S_e$  (elektronische Abbremsung) und  $S_n$  (Kernabbremsung) für Ionen in Materie als Funktion der Wurzel ihrer Energie  $E$  (Werte für Bor-Ionen in Si:  $E_1 = 3 \text{ keV}$ ,  $E_2 = 17 \text{ keV}$  und  $E_3 \approx 3 \text{ MeV}$ ) [Rys78].

Unter der Annahme, daß Kern- und elektronische Abbremsung unabhängig voneinander erfolgen, läßt sich der Energieverlust pro Wegeinheit schreiben:

$$-\frac{dE}{dx} = N [S_n(E) + S_e(E)]$$

Woraus sich für die mittlere Reichweite  $R$  eines Teilchens mit Energie  $E$  im amorphen Medium ergibt:

$$R = \frac{1}{N} \int_0^E \frac{dE'}{S_n(E') + S_e(E')}$$

### Abbremsung durch Kernstöße

Der Energieverlust  $dE$  eines Ions durch elastische Kernwechselwirkung in einer Schicht  $dx$  ist proportional der atomaren Dichte  $N$  und der Summe aller im Einzelstoß übertragenen Energien  $T_n$

$$S_n(E) \cdot N = - \left( \frac{dE}{dx} \right)_n = N \int_0^\infty T_n(E, p) 2\pi p dp = N \int_0^{T_m} T_n d\sigma(E, T_n)$$

$d\sigma$  ist der differentielle Wirkungsquerschnitt,  $p$  der Stoßparameter (siehe dazu Abb. 2.2) und  $T_m$  die beim zentralen Stoß maximal übertragbare Energie. Die Berechnung von  $T_n$  für den Stoß eines Teilchens mit Masse  $M_1$  und Energie  $E$  mit einem ruhenden Teilchen der Masse  $M_2$  ist aus der klassischen Mechanik wohlbekannt:

$$T_n(E, p) = E \frac{2M_1M_2}{(M_1 + M_2)^2} (1 - \cos\Phi)$$

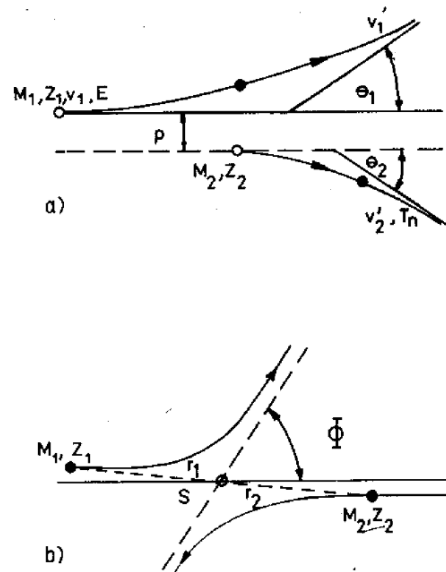


Abbildung 2.2: 2-Teilchen-Stoß: a) im Laborsystem, b) im Schwerpunktsystem.

hierbei ist  $\Phi$  der Ablenkwinkel im Schwerpunktsystem und berechnet sich unter Benutzung eines Wechselwirkungspotentials. Für die maximal übertragbare Energie ergibt sich

$$T_m = 4 \frac{M_1 M_2}{(M_1 + M_2)^2} E$$

Unter Verwendung eines geeigneten Potentials für die Wechselwirkung ergibt sich für den differentiellen Wirkungsquerschnitt die folgende Näherung. Da bei Verwendung des Coulomb-Potentials der Abschirmeffekt der Elektronen vernachlässigt wird, benutzt man hier das Thomas-Fermi-Potential und erhält [Rys78]:

$$\frac{d\sigma}{dt} = 2\pi a^2 t^{3/2} f(t^{1/2}) \quad (2.2)$$

- a: Abschirmparameter, von der Größenordnung des Bohr-Radius  
 $f(t^{1/2})$ : universelle Streufunktion, von LSS [Rys78] tabellarisch angegeben

### Elektronische Abbremsung

Im Bereich **niedriger Energien** führt sowohl die Annahme eines freien Elektrogases als auch die Annahme, daß Ion und Targetatom während des Stoßes ein Quasimolekül bilden, zu einer Proportionalität des Bremsquerschnitts und der Geschwindigkeit der Ionen, also der Wurzel aus der Energie der Ionen. Die letztere

Annahme führt zu einer allgemeiner anwendbaren Theorie. Es ergibt sich für den Bremsquerschnitt:

$$S_e = \int_0^\infty T_e(E, p) 2\pi p dp \quad \text{p: Stoßparameter}$$

Das stoßende Teilchen 1 verliert während der Bildung eines Quasimoleküles seine Energie an das ruhende Teilchen 2 durch Impuls- und Energieaustausch. Der gesamte Energieverlust von Teilchen 1 ist näherungsweise [Rys78]:

$$T_e = \frac{4,3 \cdot 10^{-8} (Z_1 + Z_2)^{5/2}}{[1 + 3,1 \cdot 10^7 (Z_1 + Z_2)^{1/2} p]^5} \cdot v \quad \text{in [eV]}$$

mit  $v$  in cm/s und  $p$  in cm. Für den Bremsquerschnitt ergibt sich durch Integration

$$S_e(v) = 2,34 \cdot 10^{-23} (Z_1 + Z_2) v \quad \text{in [eVcm}^2\text{]}$$

Im Bereich **hoher Energien** gilt die Theorie nach Bethe-Bloch [Leo87], welche die quantenmechanische Erweiterung der klassischen Berechnungen von Bohr ist.

$$-\frac{dE}{dx} = 2\pi N_a r_e^2 m_e c^2 \rho \frac{Z}{A} \frac{z^2}{\beta^2} \left[ \ln \left( \frac{2m_e \gamma^2 v^2 W_{max}}{I^2} \right) - 2\beta^2 \right]$$

In der Praxis werden normalerweise noch 2 Korrekturen angebracht: die *Dichte-Korrektur*  $\delta$  und die *Schalen-Korrektur*  $C$ , so daß sich ergibt:

$$-\frac{dE}{dx} = 2\pi N_a r_e^2 m_e c^2 \rho \frac{Z}{A} \frac{z^2}{\beta^2} \left[ \ln \left( \frac{2m_e \gamma^2 v^2 W_{max}}{I^2} \right) - 2\beta^2 - \delta - 2\frac{C}{Z} \right] \quad (2.3)$$

$2\pi N_a r_e^2 m_e c^2 =$	0,1535 MeVcm <sup>2</sup> /g
$r_e:$	klassischer Elektronenradius
$m_e:$	Elektronenmasse
$N_a:$	Avogadro-Zahl = $6,022 \cdot 10^{23} \text{ mol}^{-1}$
$I:$	mittlere Anregungsenergie des Absorbermaterials
$Z:$	Kernladungszahl des Absorbermaterials
$A:$	atomare Massenzahl des Absorbermaterials
$\rho:$	Dichte des Absorbermaterials
$z:$	Ladungszahl des einfallenden Teilchens
$\beta:$	$\frac{v}{c}$ des einfallenden Teilchens
$\gamma:$	$1/\sqrt{1-\beta^2}$
$W_{max}:$	maximaler Energieübertrag bei einem einzelnen Stoß

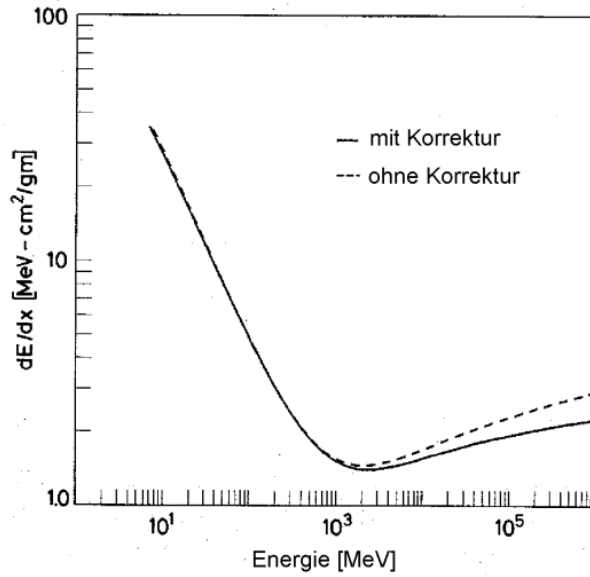


Abbildung 2.3: Energieverlust hochenergetischer Protonen in Materie nach Bethe-Bloch mit und ohne Dichte- und Schalen-Korrektur [Leo87].

**Reichweiteverteilung**

Die Verteilung der gestoppten Ionen im Material ist aber nicht scharf, sondern in guter Näherung gaußverteilt, da es sich bei der Energieabgabe um statistische Prozesse handelt. Man erhält also eine mittlere Eindringtiefe mit einer bestimmten Streuung (Abb. 2.4). Diese Streuung wird umso breiter, je größer die Anfangsenergie also auch je größer die Eindringtiefe ist. Im Gegensatz dazu findet die Energieabgabe über die gesamte Tiefe hinweg statt. Sie erreicht ein Maximum kurz vor der mittleren Eindringtiefe der Ionen und fällt dann auf Null ab (siehe Abb. 2.5). Das heißt bei Bestrahlung von Folien, die dünn gegen die Eindringtiefe der Ionen sind, erhält man eine weitgehend homogene Schädigung über die ganze Probendicke hinweg.

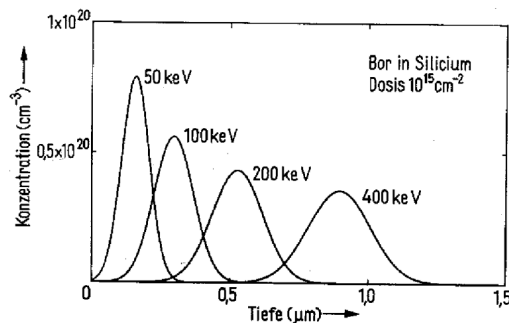


Abbildung 2.4: Theoretische Reichweiteverteilung von Bor-Ionen verschiedener Energien in Silizium [Rys78].

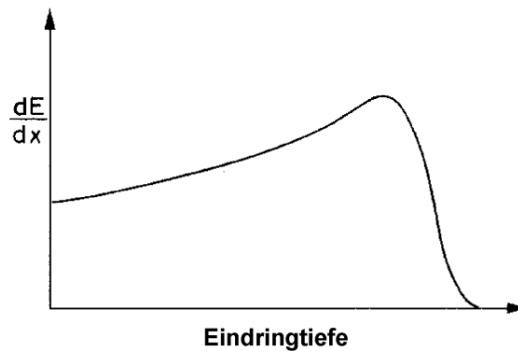


Abbildung 2.5: Energieabgabe von Ionen in Materie als Funktion der Tiefe.

### Defekterzeugung durch Ionenbestrahlung

Bei der Bestrahlung eines Festkörpers mit hochenergetischen Ionen wird durch Stöße soviel Energie übertragen, daß man den getroffenen Bereich im Kristall als eine überhitzte Schmelze betrachten kann. Den nachfolgenden Prozeß kann man sich als Explosion vorstellen, von der sich eine Art Schockwelle in alle Richtungen ins Material ausbreitet [Ber92]. Hierdurch wird viel Energie abgegeben und nach kurzer Zeit (ca.  $5 \cdot 10^{12}$  s) relaxiert das System. Einige Atome haben aber viel größere Energie als ihre Verlagerungsenergie und lösen somit Ersetzungskaskaden entlang dichtest gepackter kristallographischer Richtungen aus (siehe Abb. 2.6).

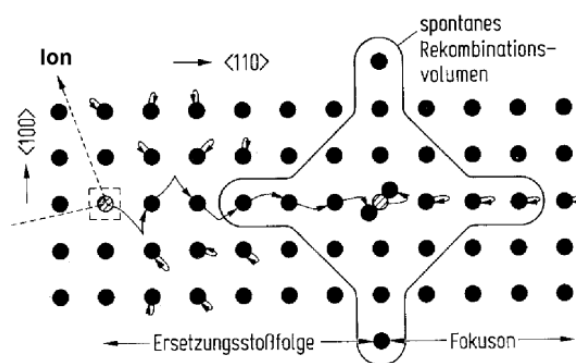


Abbildung 2.6: Defekterzeugung bei Bestrahlung mit Ionen: Ein von links eintreffendes Ion löst eine Ersetzungstoßfolge aus. Das erzeugte Frenkel-Paar ist nur stabil, wenn die Leerstelle außerhalb des spontanen Rekombinationsvolumens ist [Ber92].

Sie lassen eine Leerstelle an ihrer ursprünglichen Position zurück. Erst wenn die Energie des stoßenden Atoms unter die Verlagerungsenergie sinkt, kommt die Kaskade zum Erliegen und ein Zwischengitteratom bleibt zurück. Ist dieses nun weit genug von der anfänglichen Leerstelle entfernt, so spricht man von einem stabilen Frenkel-Paar, ansonsten rekombinieren Leerstelle und Zwischengitteratom wieder (spontanes Rekombinationsvolumen). Die Defekterzeugung durch Ersetzungsstoßfolgen ist günstiger als eine weite Bewegung der direkt gestoßenen Atome durch das Gitter, da so größere Abstände von Leerstelle und Zwischengitteratom und somit stabilere Defekte erzeugt werden können (Abb. 2.6). Es entstehen auch Mehrfach-leerstellen und andere Kombinationen von Defektclustern zum Beispiel durch Subkaskaden, die breiter aufstreuen und sich überlagern (Abb. 2.7). Das Gitter ist vor allem nach Bestrahlung mit hochenergetischen Ionen sehr stark gestört und enthält einen „Zoo“ der verschiedenartigsten Defekte.

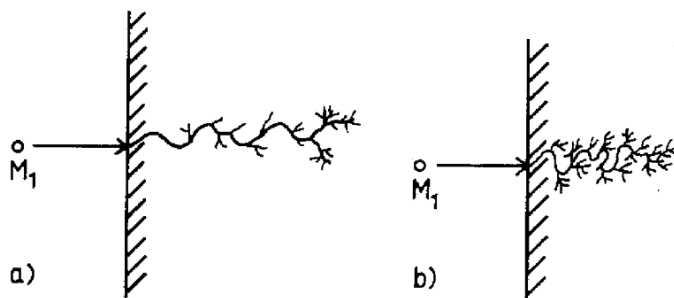


Abbildung 2.7: Aufstreuung der Stoßkaskaden: a) leichtes Projektil,  $M_1 < M_{Targetatom}$ , b) schweres Projektil  $M_1 > M_{Targetatom}$ , Bildung von Subkaskaden [Rys78].

Im Gegensatz zu Metallen, wo eine fast vollständige Relaxation der Gitterstruktur erfolgt, ist dies bei kovalent gebundenen Materialien wie zum Beispiel Silizium oder Siliziumdioxid nicht möglich. Meist ist der Abkühlungsprozess schneller als die für die Ausbildung der kristallinen Struktur benötigte Zeit und es bleibt je nach Bestrahlungsdosis ein amorphes Gebiet zurück.

Für die in dieser Arbeit vorgestellten Experimente waren die lateralen Aufstreuungen von Interesse. Bestrahlt man eine zur Hälfte mit einer scharfkantigen Maske abgedeckte Oberfläche senkrecht mit parallelen Strahlen, so erwartet man unterhalb der Maske defektfreies Material und im nicht abgedeckten Material Strahlenschäden. Durch die Stoßprozesse ist natürlich eine seitliche Aufstreuung bedingt, so daß auch unterhalb der Maske Defekte feststellbar sind. In Abb. 2.8 ist ein solcher Verlauf dargestellt. Zusätzlich zu der Aufstreuung der Ionen und damit der erzeugten Defekte verändert sich auch die Defektkonzentration und eventuell auch die Art der Defekte mit zunehmender Tiefe, da die pro Wegintervall abgegebene Energie mit der Tiefe zunimmt (Abb. 2.5).

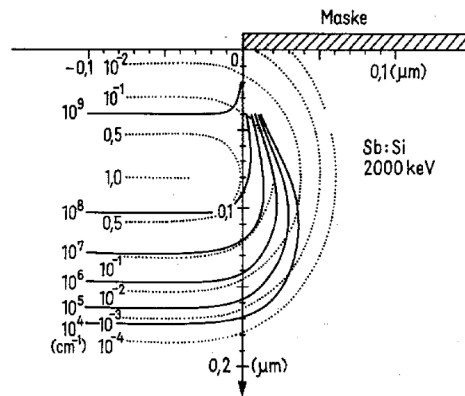


Abbildung 2.8: Defektverteilung im Bereich einer Kante für eine mit 200 keV Sb Ionen implantierte Si-Probe. Durchgezogene Kurven: Defektkonzentration in  $cm^{-3}$ , gestrichelte Kurven: Konturlinien gleicher Dotierungskonzentration [Rys78].

### 2.3.2 Bestrahlung mit Elektronen

Etwas schonender ist die Bestrahlung mit **MeV-Elektronen**: Hierbei werden hauptsächlich Frenkelpaare und kaum größere Defekte erzeugt, da die übertragene Energie auf Grund der geringeren Masse der Elektronen wesentlich kleiner ist. Derart bestrahlte Proben eignen sich also besonders gut zur Untersuchung von Einfachleerstellen.

#### Elektronische Abbremsung

Auch im Fall von Elektronen- bzw. Positronenbestrahlung erfolgt die Hauptenergieabgabe über elektronische Abbremsung. Die vorher für Ionen vorgestellte Bethe-Bloch-Formel muß hierbei allerdings etwas modifiziert werden, da die stoßenden Teilchen zum einen wesentlich leichter sind, sich also nach einem Stoß nicht unabgelenkt weiterbewegen, und zum anderen die Elektronen ununterscheidbar von ihren Stoßpartnern sind. Hieraus ergibt sich ebenfalls, daß die maximal übertragbare Energie genau die kinetische Energie des einfallenden Teilchens ist. Für die Bethe-Bloch-Formel ergibt sich bei Elektronenbestrahlung [Leo87]:

$$-\frac{dE}{dx} = 2\pi N_a r_e^2 m_e c^2 \rho \frac{Z}{A} \frac{1}{\beta^2} \left[ \ln \frac{\tau^2(\tau+2)}{2(I/m_e c^2)^2} + F(\tau) - \delta - 2\frac{C}{Z} \right]$$

Hierbei ist  $\tau$  die kinetische Energie des einfallenden Teilchens in Einheiten von  $m_e c^2$ .

$$F(\tau) = 1 - \beta^2 + \frac{\tau^2}{8} - \frac{(2r+1)\ln 2}{(\tau+1)^2} \quad \text{bei } e^-$$

$$F(\tau) = 2\ln 2 - \frac{\beta^2}{12} \left( 23 + \frac{14}{\tau + 2} + \frac{10}{(\tau + 2)^2} + \frac{4}{(\tau + 2)^3} \right) \quad \text{bei } e^+$$

Die übrigen Konstanten siehe Gl. 2.2.

## Bremsstrahlung

Da Elektronen und Positronen eine so geringe Masse haben, spielt bei höheren Energien die Bremsstrahlung eine wichtige Rolle für die Energieabgabe. Werden die Teilchen im elektrischen Feld eines Atoms abgebremst, so strahlen sie Energie ab. Dieser Prozeß nimmt mit steigender Teilchenenergie stark zu und wird ab einer Energie von einigen 10 MeV zum dominierenden Prozeß der Energieabgabe (siehe Abb. 2.9). Diese Bremsstrahlung kann für technisch relevante Energien bei allen schwereren Teilchen ausgeschlossen werden, da sich die Emissionswahrscheinlichkeit umgekehrt proportional zum Quadrat der Teilchenmasse verhält. Das ca. 200 mal schwerere Myon hat also schon eine etwa 40 000 mal geringere Emissionwahrscheinlichkeit. Da bei allen im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Elektronenbestrahlungen 1 MeV-Elektronen benutzt wurden, wird auf dieses Phänomen nicht weiter eingegangen.

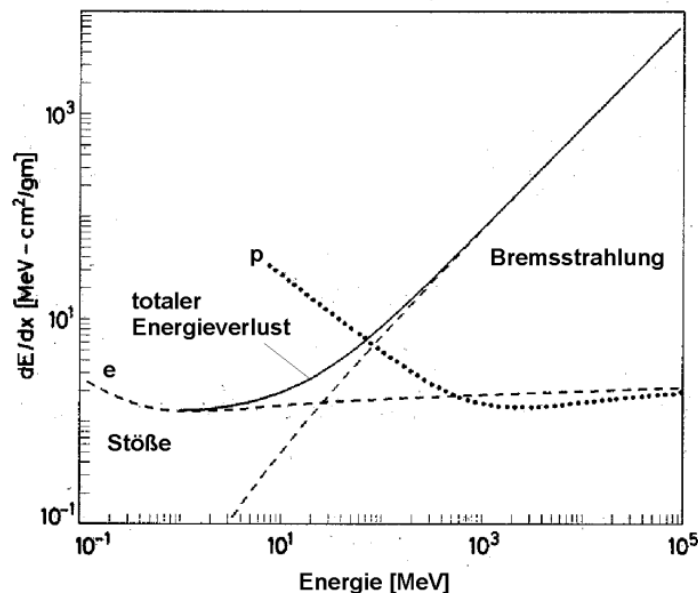


Abbildung 2.9: Bremsquerschnitte für Elektronen bzw. Positronen und Protonen als Funktion der Energie: ab einigen 10 MeV dominiert die Bremsstrahlung.



### Defekterzeugung durch Elektronenbestrahlung

Die Kinetik der Defekterzeugung kann mit Hilfe von Ratengleichungen für die Konzentrationen  $C$  wie folgt beschrieben werden [Siz68]:

$$\frac{dC_v}{dt} = K_0 - K_{iv}C_iC_v - K_{vs}C_vC_s \tag{2.4}$$

$$\frac{dC_i}{dt} = K_0 - K_{iv}C_iC_v - K_{is}C_iC_s \tag{2.5}$$

- mit  $i$  : Zwischengitteratom („interstitial“)
- $v$  : Leerstelle („vacancy“)
- $s$  : unerschöpfliche Senke (z.B. Oberfläche, Versetzung)
- $K_{xy}$  : Ratenkonstanten für im Index angegebene Reaktionen
- $K_0$  : Produktionsrate von Punktdefekten
- $K_{iv}C_iC_v$  : Rekombination von Leerstelle und Zwischengitteratom
- $K_{vs}C_vC_s$  : Vernichtung von Leerstellen an Senken

Die Zeitabhängigkeit von  $C_v$  und  $C_i$  nach diesen Gleichungen ist wegen der vielen Parameter kompliziert zu berechnen. Es können allerdings Näherungen für verschiedene Fälle angegeben werden, die üblicherweise in doppelt-logarithmischen Diagrammen dargestellt werden.

Für den in dieser Arbeit vorliegenden Fall von thermisch unbeweglichen Leerstellen, beweglichen Zwischengitteratomen und hoher Defektkonzentration können folgende zeitliche Bereiche näherungsweise beschrieben werden (siehe Abb. 2.10, Notation siehe [Siz68]).

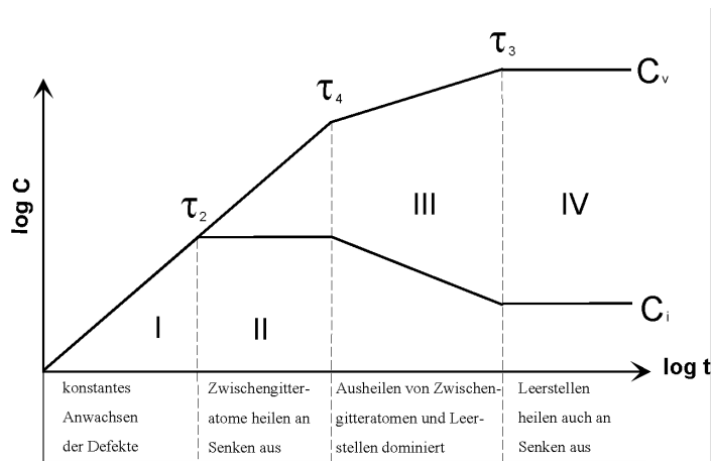


Abbildung 2.10: Defekterzeugung durch Elektronenbestrahlung;  $C_i$  = Konzentration der Zwischengitteratome,  $C_v$  = Konzentration der Leerstellen; zu den Bereichen I bis IV siehe Text.

**Bereich I:**

Zu Beginn der Bestrahlung ist die Defektkonzentration so gering, daß die Vernichtung der erzeugten Defekte an den als unerschöpflich angenommenen Senken (zum Beispiel Oberfläche, als gleichmäßig verteilt angenommene Versetzungen) vernachlässigt werden kann. Die Konzentration der Leerstellen  $C_v$  ist gleich der der Zwischengitteratome  $C_i$  und steigt linear mit der Zeit  $t$  (Produktionsrate  $K_0$ ):

$$\frac{dC_i}{dt} = \frac{dC_v}{dt} = K_0$$

$$\Leftrightarrow C_i = C_v = K_0 t$$

**Bereich II:**

Ab der Zeit  $\tau_2$  können die beweglichen Zwischengitteratome an den Senken ausheilen und es bildet sich ein quasi-stationärer Zustand zwischen ihrer Bildung und Ausheilung. Dies hat keinen Einfluß auf die Leerstellenkonzentration, die weiter linear mit der Zeit ansteigt. Die Konzentrationen bewegen sich also auseinander.

$$\frac{dC_i}{dt} = 0 = K_0 - K_{is}C_sC_i$$

mit der Zeitkonstanten  $\tau_2 = (K_{is}C_s)^{-1}$ . Für die Konzentrationen ergibt sich:

$$C_i = \frac{K_0}{K_{is}C_s} \quad \text{und} \quad C_v = K_0 t$$

**Bereich III:**

Diese Näherung kann nicht mehr aufrecht gehalten werden, wenn die immer weiter ansteigende Konzentration der Leerstellen für einen genügend hohen Beitrag der Ausheilung von Leerstellen und Zwischengitteratomen sorgt.  $\tau_4$  ist die Zeit, nach welcher der Ausheilprozess der Zwischengitteratome an Senken und Leerstellen gleich wahrscheinlich ist:

$$K_{is}C_sC_i = K_{iv}C_iC_v \approx K_{iv}C_iK_0\tau_4$$

$$\Rightarrow \tau_4 = \frac{K_{is}C_s}{K_0K_{iv}}$$

für Zeiten  $t > \tau_4$  ergibt sich näherungsweise [Siz68]:

$$C_i(t) = \left[ \frac{K_0}{K_{iv}K_{is}C_s t} \right]^{1/2} \quad \text{und} \quad C_v(t) = \left[ \frac{K_0K_{is}C_s t}{K_{iv}} \right]^{1/2} \quad (2.6)$$

**Bereich IV:**

Nach Erreichen der Zeit  $\tau_3$ , der Zeitkonstanten für den langsamsten Prozeß der Leerstellenausheilung an Senken, wird ein Gleichgewicht erreicht. Aus

$$\frac{dC_v}{dt} = -K_{vs}C_sC_v$$

folgt

$$\tau_3 = \frac{1}{K_{vs}C_s}$$

Außerdem gilt für die an den Senken s ausheilenden Konzentrationen

$$K_{vs}C_v^{(s)} = K_{is}C_i^{(s)}$$

Im Fall von tiefer Temperatur und hoher Senkendichte ergeben sich folgende Näherungen:

$$C_v^{(s)} \approx \sqrt{\frac{K_0K_{is}}{K_{iv}K_{vs}} + \frac{K_{is}^2C_s^2}{4K_{iv}^2}} - \frac{K_{is}C_s}{2K_{iv}} \quad \text{und} \quad C_i^{(s)} \approx \sqrt{\frac{K_0K_{vs}}{K_{iv}K_{is}}}$$

**Berechnung der Defektkonzentration**

Unter Benutzung der oben angegebenen Formeln lassen sich nun die durch die Bestrahlung erzeugten Defektkonzentrationen in Abhängigkeit von Strahlstromdichte und Bestrahlungsdauer berechnen. Die hierzu benötigten Formeln und Größen werden kurz zusammengefaßt, wobei für alle experimentell bedingten Parameter die Werte der tatsächlich durchgeführten Bestrahlung am Hochspannungs-Transmissions-Elektronenmikroskop (HTEM) in Stuttgart eingesetzt wurden.

Verlagerungsrate  $K_0$ :

Die Schwellenenergie für Atomverlagerung in Mo bei Raumtemperatur beträgt etwa 34 eV [LaB91]. Daraus ergibt sich für den totalen Wirkungsquerschnitt für Atomverlagerungen  $\sigma \approx 15 \cdot 10^{-28} \text{ m}^2$  [Sig98]. Für die Strahlstromdichte gilt in dem zur Bestrahlung benutzten Abbildungsmodus des HTEMs:

$$j = I \cdot 2,749 \cdot 10^{26} \left[ \frac{e}{s \cdot \text{cm}^2} \right]$$

Wobei der Strom I in Ampère angegeben ist. Hieraus ergibt sich bei einem Strahlstrom von  $1 \cdot 10^{-9} \text{ A}$ :

$$K_0 = \sigma j = 4 \cdot 10^{-6} \text{ s}^{-1}$$

Für die Ratenkoeffizienten gilt [Siz68]:

$$K_{is} = 4\pi r_{si} D_i / \Omega$$

mit  $r_{si} \approx a_0$ : Wechselwirkungsabstand von Senke und Zwischengitteratom,  $\Omega \approx a_0^3$ : atomares Volumen;  $a_0 \approx 3 \cdot 10^{-10} \text{ m}$ : Gitterkonstante von Molybdän,  $D_i$ : Diffusionskonstante der Zwischengitteratome.

Aus der Annahme der Gleichverteilung der Senken ergibt sich für deren Konzentration  $C_s$ :

$$C_s = \frac{\pi^2}{L^2} \cdot \frac{\Omega}{4\pi r_{sv,si}} = \frac{\pi a_0^2}{4L^2}$$

mit  $r_{sv,si} \approx a_0$  und  $L$ : mittlerer Abstand der Senken (hier: Versetzungen). Durch Multiplikation ergibt sich:

$$K_{is} C_s = \frac{\pi^2 D_i}{L^2} \quad \text{bzw.} \quad K_{vs} C_s = \frac{\pi^2 D_v}{L^2} \quad (2.7)$$

und eingesetzt in Gleichung 2.6 folgt

$$C_v(t) = \sqrt{\frac{K_0 t \pi^2 D_i}{K_{iv} L^2}}$$

Unter Benutzung der Beziehung [Siz68]  $K_{iv} = 4\pi r_{iv} (D_i + D_v) / \Omega$  erhält man für den Fall  $D_i \gg D_v$ :

$$K_{iv} = \frac{4\pi D_i}{a_0^2} \quad (2.8)$$

woraus sich ergibt:

$$C_v = \sqrt{\frac{K_0 \pi a_0^2 t}{4L^2}}$$

Für die Berechnung der Defektkonzentration nach Elektronenbestrahlung wurden folgende Parameter benutzt [LaB91], [Phi80]:

Gitterkonstante  $a_0 = 3 \cdot 10^{-10} \text{ m}$

Versetzungskonzentration:  $10^{-7}$  bis  $10^{-8}$  Versetzungen pro  $\text{cm}^2$

Abstand Senken:  $L = 2 \cdot 10^{-6} \text{ m}$

*Zwischengitteratome:*

Wanderungsenergie:  $H_i^M = 0,083 \text{ eV}$

Diffusionskonstante:  $D_i = 8 \cdot 10^{-8} \frac{\text{m}^2}{\text{s}}$  (für  $T$  ca. 400 K)

Zeitkonstante:  $\tau_2 = (K_{is} C_s)^{-1} = 5 \cdot 10^{-6} \text{ s}$  (nach Gl. 2.7)

Ratenkonstante:  $K_{iv} = 10^{13} \text{ s}^{-1}$  (nach Gl. 2.8)

*Leerstellen:*

$$H_V^M = 1,3 \text{ eV}$$

$$D_v = 4 \cdot 10^{-23} \frac{\text{m}^2}{\text{s}} \quad (\text{für } T \text{ ca. } 400 \text{ K})$$

$$\tau_3 = (K_{vs} C_s)^{-1} = 10^{10} \text{ s} \quad (\text{nach Gl. 2.7})$$

Anhand der errechneten Zeitkonstanten  $\tau_2 = 5 \cdot 10^{-6} \text{ s}$  und  $\tau_3 = 10^{10} \text{ s}$  läßt sich leicht ersehen, daß die Defekterzeugung bei den durchgeführten Bestrahlungen immer im Bereich III erfolgten.

Alle diese Größen sind mit relativ großen Fehlern behaftet, weswegen die errechneten Leerstellenkonzentrationen nur einen Eindruck von der Größenordnung geben können. Der größte Fehler entsteht durch die unbekannte Temperatur am Bestrahlungsort während der Bestrahlung. Diese läßt sich nicht messen und nur sehr schwer abschätzen und übertrifft die Effekte anderer Fehlerquellen bei weitem. Zu nennen sind hier Instabilitäten im Strahlstrom, in der Größe des Strahlflecks und der Strahlposition. Allerdings sind diese Fehler bei allen Meßpunkten gleich anzusehen, so daß die Werte untereinander vergleichbar sind.

## 2.4 Simulation von Ionenbestrahlungen - TRIM

**TRIM** (the **T**ransport of **I**ons in **M**atter) ist ein Programm zur Monte-Carlo-Simulation der Abbremsung und Streuung von implantierten Ionen in amorphen Materialien. Hierbei werden neben der Reichweite der gestoppten Ionen auch die erzeugten Defektverteilungen und Phononen berechnet. Es basiert auf dem von Biersack entwickelten Reichweiten-Algorithmus und der von Ziegler aufgestellten Theorie des Abstoppens von Ionen in Materie. Dies ist ausführlich in [Bie80] und [Zie85] diskutiert.

Das Programm wird weltweit zur Simulation von Bestrahlungsexperimenten benutzt und gilt als hinreichend zuverlässig für die Berechnung der Ionenverteilung. Weniger realistisch sind dagegen die errechneten Fehlstellenverteilungen.

Die Methode besteht darin, möglichst vielen Ionen auf ihrem individuellen Weg durch das Target zu folgen. Dieser Weg beginnt mit einer bestimmten Energie, Position und Richtung. Das Teilchen erfährt nun durch Kernstöße Richtungsänderungen, wobei nur Stöße zwischen 2 Partnern berücksichtigt werden (**BCA** = Binary Collision Approximation). Zwischen den Stößen hat es eine gewisse freie Weglänge, welche energieabhängig ist. Es verliert durch Stöße und elektrische Wechselwirkung Energie, erzeugt Leerstellen und Ersetzungsstoßfolgen und bleibt schließlich stecken.

Die Energieverluste durch elektrische Abbremsung und Kernabbremsung werden als unabhängig voneinander behandelt. Das bedeutet, die Teilchen verlieren ihre

Energie einerseits in diskreten Portionen durch Kernstöße und andererseits kontinuierlich durch elektrische Wechselwirkungen. Die Berechnungen basieren auf der klassischen Stoßtheorie, wie sie in Kapitel 2.3.1 dargestellt ist. Da aber nur endliche Computerrechenzeiten möglich sind, müssen geeignete Näherungen eingeführt werden. Für *kleine* Energien, wo die Kernstreuung und der Energieverlust hierdurch besonders wichtig sind, benutzt das Programm das Potential von Molière [Bie80]. Der elektronische Energieverlust wird nach Lindhard und Scharff berechnet. Für *große* Energien ergibt das unabgeschirmte Coulomb-Potential die besten Ergebnisse, der elektrische Energieverlust ergibt sich nach Bethe-Bloch. Der Bereich zwischen kleinen und großen Energien wird durch das Interpolationsschema von Biersack überbrückt.

Das Programm ist für Energien im Bereich von 0,1 keV bis hin zu vielen MeV anwendbar. Eine obere Grenze ergibt sich aus der Nichtbeachtung von relativistischen Effekten. Es betrachtet die Atome des Targets als zufällig verteilt, Effekte durch die Gitterstruktur wie zum Beispiel Channeling oder auch Kernreaktionen werden nicht berücksichtigt.

Zu sämtlichen in dieser Arbeit vorgestellten Bestrahlungsexperimenten wurden Simulationen mit dem Programm **TRIM92** als Vergleich durchgeführt. Da allerdings keine Sekundäreffekte wie Defektdiffusion und -rekombination simuliert werden, können keine absoluten Defektkonzentrationen berechnet werden. Auch die berechneten Defektverteilungen sind mit großen Fehlern behaftet.

## 2.5 Plastische Verformung durch Schleifen

Im Rahmen dieser Arbeit wurden Untersuchungen zur Defekterzeugung durch Schleifen mit einem einzigen Diamantkorn durchgeführt, weswegen auf die beim Schleifen auftretenden Prozesse kurz eingegangen wird [Dub97]:

Im Gegensatz zum Drehen oder Fräsen handelt es sich beim Schleifen um einen Spanprozess mit geometrisch unbestimmten Schneiden. Durch unregelmäßig geformte Hartstoffkörner, welche zum Beispiel in einer Schleifscheibe gebunden sind, wird durch mechanische Einwirkung Material des Werkstoffs abgetragen. Meist bilden die Körner mehrere Schneiden, die nur wenige Mikrometer ins Material eindringen. Es kommt nicht nur zu einer Spanabnahme, sondern auch zu elastischen und plastischen Verformungen ohne Spanabnahme. Als Schneidstoffe werden sprödharte Materialien wie Diamant, kubisches Bornitrid, Siliziumkarbid, Korund und andere benutzt.

Der **Spanbildungsmechanismus** ist in Abb. 2.11 dargestellt: Aufgrund des oftmals stark negativen Spanwinkels  $-\gamma$  am Einzelkorn kommt es zu elastischen Verformungen des Werkstoffs (1). Es folgen plastische Verformungen (2), bis die eigentliche

Spanabnahme (3) stattfindet. Aufgrund der Form des Kornes treten hohe Reibungskräfte zwischen Korn und Werkstoff auf. Die hierbei auftretende Energieumsetzung

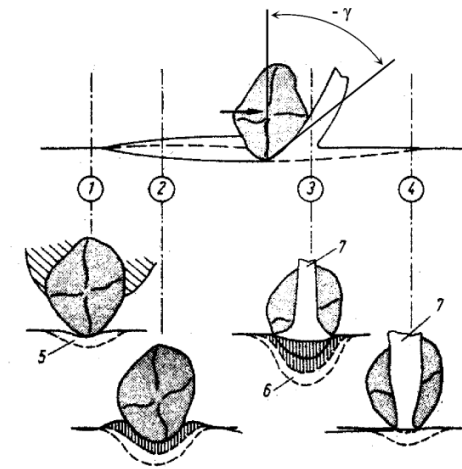


Abbildung 2.11: Die Phasen der Spanbildung: 1 elastische Verformung, 2 plastische Verformung, 3 und 4 Spanabnahme, 5 Zone elastischer Verformung, 6 Zone plastischer Verformung, 7 Span. Es tritt ein negativer Spanwinkel  $-\gamma$  auf [Dub97]. Oberes Bild: Schleifrichtung in der Zeichenebene, unteres Bild: Schleifrichtung senkrecht zur Zeichenebene.

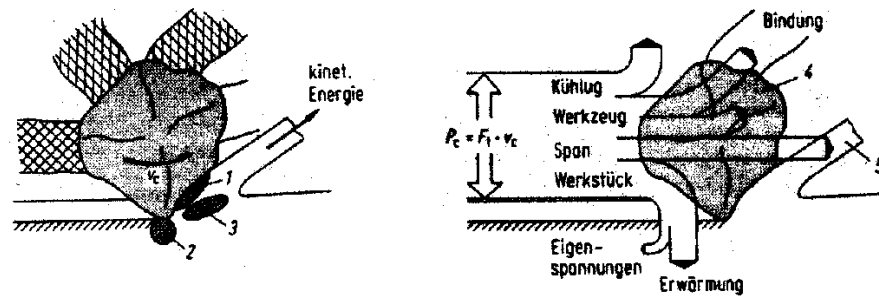


Abbildung 2.12: Energieumsetzung bei der Spanbildung. Links: Effekte der Energieumsetzung, rechts: Energieflüsse. 1 Reibung, 2 Trennung, 3 Scherung, 4 Korn, 5 Span [Dub97].

ist in Abb. 2.12 verdeutlicht: Die zugeführte mechanische Energie wird nahezu ausschließlich in Wärme umgesetzt. Der größte Teil der entstandenen Wärmemenge fließt in das Werkstück, kleinere Teile in das Korn, die Bindung und die Umgebung (Kühlschmiermittel, Luft). Durch Einsatz von Kühlschmiermitteln kann die Temperatur des Werkstücks gesenkt und die Gefahr thermischer Randzonenschädigungen gemindert werden.

## 2.6 Spannungsoptik

Mechanische Spannungen können die optischen Eigenschaften eines Festkörpers beeinflussen. Homogenes Glas wie zum Beispiel amorphes  $\text{SiO}_2$  (Quarzglas) ist optisch isotrop. Übt man hierauf nun in eine Richtung einen Druck aus, so ändert sich in diese Richtung die Dichte und es tritt Doppelbrechung auf. Dies läßt sich in den meisten Gläsern recht einfach erklären: Die vorhandenen Ionen kommen sich in Druckrichtung näher, was zu einer Anziehung zwischen Kationen und der Elektronenhülle der leicht polarisierbaren Sauerstoffionen führt. Die Elektronenhülle wird also in Druckrichtung langgezogen und ergibt für senkrecht zur Druckrichtung schwingendes Licht eine größere Brechzahl (negative Indikatrix). Nur für wenige Gläser ergibt sich der entgegengesetzte Effekt, für den unter anderem die Pb-Konzentration verantwortlich ist [Vog92].

Diesen Effekt macht man sich bei der Untersuchung von mechanischen Belastungen von Bauteilen zunutze [Hec89]: Das zu untersuchende Objekt wird aus einem spannungsoptisch aktiven Material nachgebaut, den gleichen Belastungen ausgesetzt und zwischen gekreuzten Polarisationsfiltern beobachtet. Das resultierende Streifenmuster (Abb. 2.13) ergibt Aufschluß über den Spannungsverlauf im Objekt, welcher auch quantitativ ausgewertet werden kann [Mac92].

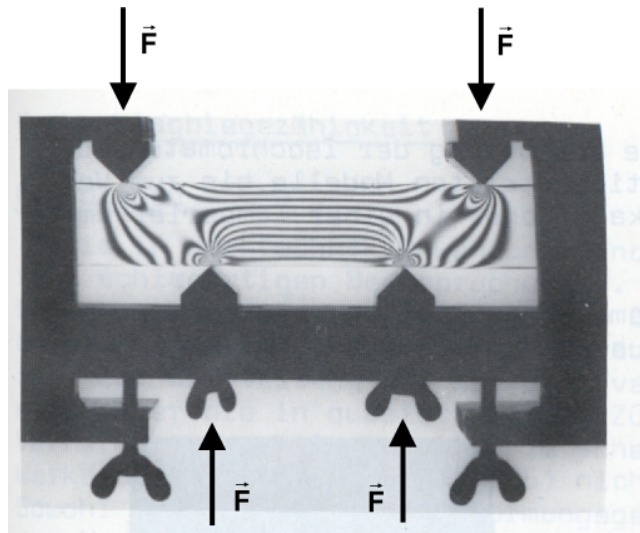


Abbildung 2.13: Ein durch äußere Kräfte  $\vec{F}$  auf Biegung beanspruchter Stab aus spannungsoptisch aktivem Material zwischen gekreuzten Polarisationsfiltern [Mac92].



## Kapitel 3

# Positronen als Fehlstellensonden

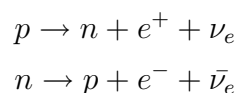
Positronen sind die Antiteilchen der Elektronen. Sie haben identische Masse aber entgegengesetzte Ladung. Ihre Existenz wurde erst theoretisch vorhergesagt und später experimentell bestätigt [Hau79]. Die Meßmethoden der Positronenspektroskopie beruhen darauf, daß die ins Material eingebrachten Positronen mit einem Elektron in zumeist 2  $\gamma$ -Quanten zerstrahlen. Hierbei wird Information über den Impuls des Elektrons und insgesamt über die Defekte im Material von außen meßbar zugänglich. Von großem Vorteil gegenüber anderen Meßmethoden sind die hohe Empfindlichkeit und die Zerstörungsfreiheit dieser Methode.

Im Vakuum ist ein Positron stabil ( $\tau_{1/2} > 2 \times 10^{21}$  Jahre [Sch88]), wohingegen es in Materie in  $10^{-10}$  bis  $10^{-9}$  s mit einem Elektron zerstrahlt. In Isolatoren kann sich ein wasserstoffähnlich gebundener Zustand aus Elektron und Positron – das Positronium – bilden, welcher in Kap. 3.4 näher beschrieben wird.

### 3.1 Positronenquellen

Positronen entstehen zum Beispiel beim radioaktiven Zerfall neutronenarmer Kerne, beim Zerfall der Myonen in der Höhenstrahlung oder über Paarproduktion unter Benutzung eines Beschleunigers. Die durch Paarbildung erzeugten Positronenzählraten sind um ein Vielfaches höher, als sie mit radioaktiven Quellen vertretbarer Aktivität erzeugt werden können. Bei Benutzung von Quellen ergibt sich allerdings der Vorteil, nicht an ein Großgerät gebunden zu sein.

Als  $\beta$ -Teilchen bezeichnet man die beim Zerfall instabiler Kerne via schwacher Wechselwirkung freigesetzten Elektronen oder Positronen:



Aufgrund des 3-Teilchen-Prozesses haben die emittierten Teilchen ein kontinuierliches Energiespektrum mit einer maximalen kinetischen Energie, die nahezu der

gesamten Energiedifferenz zwischen den Kernniveaus entspricht. Die für Positronenmessungen gebräuchlichste Quelle ist das  $^{22}\text{Na}$ , siehe dazu Abb. 3.1. Es hat eine hohe Positronenausbeute von 90 %, ein fast zeitgleich mit dem Positron entstehendes  $\gamma$ -Quant von 1275 keV und eine Lebensdauer von 2,6 Jahren, was akzeptabel für den Einbau in größere Experimente ist. Andere mögliche Quellen sind  $^{64}\text{Cu}$ ,  $^{58}\text{Co}$  und  $^{18}\text{F}$ .

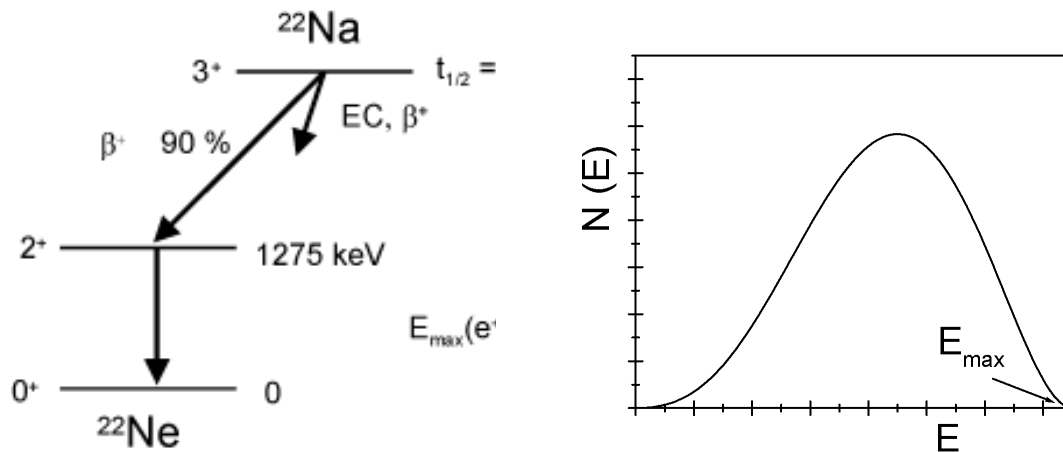


Abbildung 3.1: Zerfallsschema von  $^{22}\text{Na}$  und typisches Energiespektrum der Positronen aus einer radioaktiven Quelle [Mar77]; Maximalenergie der Positronen bei  $^{22}\text{Na}$ : 544 keV.

## 3.2 Positronen in Materie

### 3.2.1 Thermalisierung

Auf Grund ihrer kinetischen Energie von einigen 100 keV dringen die Positronen einige Zehntel Millimeter ins Material ein, wobei sie bei jedem Stoß mit einem Elektron Energie verlieren (siehe Kap. 2.3.2). Wenn die Positronenenergie kleiner als die Energielücke der Elektronen im Material ist, so ist keine Energieabgabe durch Stöße mit Elektronen mehr möglich. Weitere Energieabgabe erfolgt durch Phononen- und Plasmonenanregung.

Die hiernach vorliegenden Positronen sind im thermischen Gleichgewicht ( $E_{kin} = \frac{3}{2}kT \approx 0,4\text{ eV}$  bei Raumtemperatur) mit ihrer Umgebung. Dies ist möglich, obwohl Positronen Fermionen sind, denn während ihrer Lebensdauer ist im Mittel immer nur ein Positron in der Probe und dieses kann trotz des Pauli-Verbots den energetisch niedrigsten Zustand einnehmen. In Metallen und Halbleitern dauert diese Thermalisierung ca. 3 ps, was wesentlich kürzer als die mittlere Lebensdauer von 100-200 ps ist [Wes73]. Damit wird die Zerstrahlung aus nichtthermischen Zuständen unbedeutend.

### 3.2.2 Positronendiffusion

Das Positron kann nun als freies Teilchen im Gitter diffundieren (Abb. 3.2), was durch die Diffusionsgleichung beschrieben wird. In Festkörpern hat der Positronendiffusionskoeffizient einen Wert von  $D \approx 10^{-4} \text{ m}^2/\text{s}$  [Leo87], woraus sich mit einer mittleren Lebensdauer der Positronen von  $\tau_{e^+} \approx 100 \text{ ps}$  eine Diffusionslänge im Bereich von  $0,1 - 0,4 \mu\text{m}$  ergibt ( $\bar{x} = \sqrt{6D\tau_{e^+}}$ ) [Sch88].

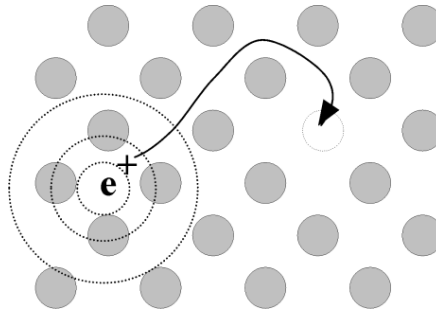


Abbildung 3.2: Das thermalisierte Positron diffundiert durch den Festkörper und wird in einer Leerstelle (gestrichelt dargestellt) eingefangen.

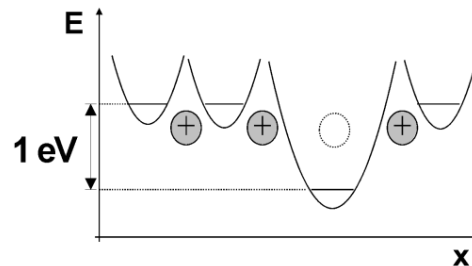


Abbildung 3.3: Potentialverlauf im Umfeld einer Leerstelle. Der Positroneneinfang ist sehr effizient (Einfangrate  $\approx 10^{15} \text{ s}^{-1}$  in Einheiten der Leerstellenkonzentration).

Trifft ein Positron während der Diffusion zum Beispiel auf eine Leerstelle, welche wegen der fehlenden Kernladung ein Potentialminimum von ca.  $1 \text{ eV}$  Tiefe darstellt, so kann es diese mit seiner geringen thermischen Energie von ungefähr  $0,4 \text{ eV}$  bei Raumtemperatur nicht mehr verlassen. Das Positron ist in einer sogenannten Haftstelle gefangen (Abb. 3.3) und zerstrahlt mit einem Elektron der Umgebung. Je höher die Haftstellenkonzentration im Material ist, um so mehr Positronen werden eingefangen, was sich deutlich in den gemessenen Zerstrahlungsparametern zeigt. Aufgrund ihrer hohen Beweglichkeit sind Positronen aktive Sonden, die schon auf geringste Leerstellenkonzentrationen (ab  $10^{-7} - 10^{-6}$  pro Atom) empfindlich sind.

### 3.2.3 Zerstrahlung

Die Zerstrahlung oder auch Annihilation ist der Prozeß, in dem die Masse von Elektron und Positron in elektromagnetische Strahlung umgewandelt wird. Diese Energie wird in Materie fast immer in Form von 2 entgegengesetzt emittierten  $\gamma$ -Quanten von je 511 keV frei. Das Auftreten von 3- $\gamma$ -Zerstrahlung ist um einen Faktor der Größe  $\alpha$  ( $\alpha = 1/137$ ) unwahrscheinlicher. Die Lebensdauer  $\tau$  eines Positrons im Material ist im unpolarisierten Fall ausschließlich abhängig von der Elektronendichte am Positronenort. Es gilt für die Zerstrahlungswahrscheinlichkeit  $\Gamma_{(2)}$  in 2  $\gamma$ -Quanten [Wes73]:

$$\Gamma_{(2)} = \frac{1}{\tau} = \sigma_{(2)} v n_e = \pi r_0^2 c n_e$$

Mit  $\sigma_{(2)}$  Wirkungsquerschnitt für die 2- $\gamma$ -Zerstrahlung,  $v$  Positronengeschwindigkeit,  $c$  Lichtgeschwindigkeit,  $n_e$  Elektronendichte und  $r_0 = e^2/m_0c^2$  klassischer Elektronenradius.

In vielen Gitterfehlern wie zum Beispiel Einfach- oder Mehrfachleerstellen herrscht eine erniedrigte Elektronendichte, welche im Lebensdauerspektrum als zusätzliche Komponente zur Zerstrahlung im ungestörten Gitter meßbar ist. Hierauf beruht die physikalische Bedeutung der Lebensdaueremessung in der Festkörperphysik.

Die beiden Zerstrahlungsquanten sind im Gegensatz zum Schwerpunktsystem der beiden Teilchen im Laborsystem weder exakt entgegengesetzt noch haben sie immer eine Energie von genau 511 keV [DeB49]. Diese Abweichungen sind auf den Dopplereffekt durch den Impuls des Elektrons zurückzuführen (Abb. 3.4) und werden bei Messungen der **Dopplerverbreiterung** und der **Winkelkorrelation** ausgenutzt. Der Impuls des thermischen Positrons ist hierbei vernachlässigbar. Für die Winkelabweichung  $\theta$  gilt:

$$\theta \approx \frac{P_T}{m_0c}; \quad P_T : \text{Transversalimpuls}$$

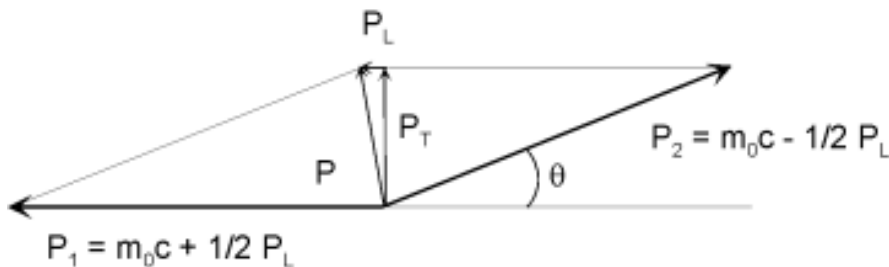


Abbildung 3.4: Zerstrahlung von Elektron und Positron im Laborsystem: Die Transversalkomponente  $P_T$  ihres Impulses  $P$  führt zu einer Winkelabweichung  $\theta$  von  $180^\circ$ , die Longitudinalkomponente  $P_L$  zu einer Dopplerverbreiterung der Annihilationslinie.

### Energie der Annihilationsquanten

Wie schon aus Abb. 3.4 ersichtlich, verändert der Elektronenimpuls auch den Impuls und damit die Energie der emittierten  $\gamma$ -Quanten. Da die Richtung des Impulses statistisch verteilt ist, erfährt die 511 keV-Zerstrahlungslinie durch den Longitudinalimpuls  $P_L$  eine Dopplerverbreiterung. Diese ist umso größer, je größer der Impuls der Elektronen ist:  $E = m_0c^2 \pm \frac{1}{2}P_Lc$ . Zerstrahlt ein Positron nun in einer Leerstelle, so sind die Partnerelektronen mit größerer Wahrscheinlichkeit aus dem Leitungsband und haben im Mittel einen geringeren Impuls als bei einer Zerstrahlung auf einem Zwischengitterplatz. Eine hohe Defektkonzentration führt also zu einer geringeren Dopplerverbreiterung als eine niedrige.

Die Form der Zerstrahlungslinie setzt sich aus einem breiten Anteil der Zerstrahlung im ungestörten Gitter und einem schmalen aus der Zerstrahlung in Haftstellen zusammen, deren Summe mit der apparativen Auflösung gefaltet ist. Je nach Deformationsgrad verändern sich die Anteile der beiden erstgenannten in der Linie. Es zeigte sich, daß die Halbwertsbreite auf diese Veränderungen relativ un sensitiv ist, und so wird die Linienform durch die sogenannten S- und W-Parameter quantifiziert (siehe Abb. 3.5 und 3.9). Der S-Parameter ist definiert als der Quotient

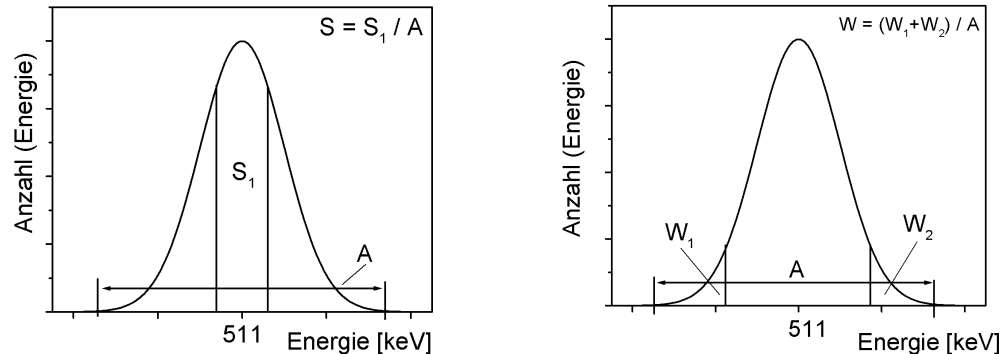


Abbildung 3.5: Zur Definition von S- und W-Parameter: Es wird jeweils der Quotient der angegebenen Flächen und der Gesamtfläche A gebildet.

der Fläche eines mittleren Bereiches unterhalb der Linie ( $S_1$  in Abb. 3.5) geteilt durch die gesamte Fläche A unter der Linie. Diese Größe ist natürlich sowohl von der willkürlichen Wahl der Fenster als auch von der apparativen Auflösung extrem abhängig. Die Fenster werden normalerweise so gewählt, daß S etwa gleich 0,5 ist. Der Absolutwert des S-Parameters ist also, wenn überhaupt, nur nach einer vorherigen Eichung zwischen unterschiedlichen Apparaturen vergleichbar. Deswegen wird auch häufig ein relativer S-Parameter angegeben. Das bedeutet, alle Meßwerte werden durch einen Bezugswert geteilt. Dieser Bezugswert kann zum Beispiel der

S-Parameter einer defektfreien Probe sein. Bei Messungen an derselben Apparatur und gleicher Auswertung sind die Werte natürlich direkt vergleichbar. Analog ist der W-Parameter über den Quotient der Summe zweier Flächen  $W_1$  und  $W_2$  unter den Flanken der Linie mit der Gesamtfläche definiert. Durch Auswertung beider Parameter ergeben sich bei Halbleitern häufig noch genauere Erkenntnisse über die Art der vorliegenden Defekte (Siehe dazu Kap. 3.6.2).

### 3.3 Langsame Positronen

Um eine Strahlführung mit Positronen aufzubauen, müssen Teilchen identischer Energie vorliegen. Bei Benutzung einer radioaktiven Quelle mit ihrem kontinuierlichen Energiespektrum ist es von großem Vorteil, einen Moderator zu benutzen. Diese speziellen Materialien erhöhen die Intensität der Positronen einer bestimmten Energie um bis zu 6 Größenordnungen im Vergleich zum gefilterten Energiespektrum (siehe Abb. 3.6), was einer Effizienz<sup>1</sup> von bis zu  $10^{-3}$  entspricht. Des Weiteren haben die moderierten Positronen eine sehr geringe Energiebreite und werden hauptsächlich senkrecht von der Moderatoroberfläche emittiert. Die höchste Effi-

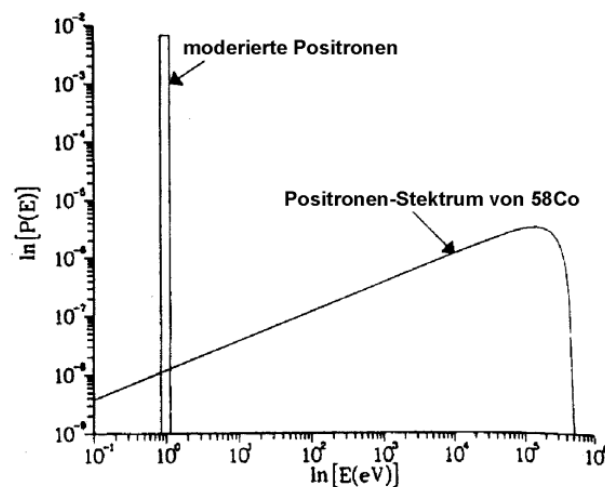


Abbildung 3.6: Vergleich des Positronenflusses aus einer  $^{58}\text{Co}$ -Quelle mit und ohne Moderator [Sch88].

zienz haben hierbei die festen Edelgase. Festes Neon und Krypton erreichen zum Beispiel eine deutlich bessere Effizienz als  $10^{-3}$ , ein Wolfram-Einkristall maximal  $10^{-3}$  in (110)-Richtung [Sch88]. Hier geht entscheidend die Moderatorgeometrie mit

<sup>1</sup>Als Effizienz wird in dieser Arbeit das Verhältnis von moderierten Positronen zur Gesamtzahl aller von der Quelle emittierten Positronen verstanden.

ein, ein Einkristall moderiert in Rückstreurichtung aufgrund der besseren Oberfläche besser als eine dünne Folie. Während in Durchstrahlrichtung der Moderator nur so dick sein darf, daß die Positronen die gegenüberliegende Oberfläche noch erreichen [Ton97].

Auch Kupfer und Molybdän haben Moderationseigenschaften, sind in ihrer Effizienz jedoch wesentlich schlechter. Die festen Edeltgaschichten verschmutzen je nach Vakuumqualität relativ schnell und müssen somit immer wieder (an der hauseigenen Apparatur ca. jede Stunde [Mae96]) erneuert werden (Wiederbedeckungsrate bei  $10^{-6}$  mbar: 1 Atomlage pro Sekunde). Ein Wolfram-Moderator muß vor Benutzung im Ultrahochvakuum ausgeheizt werden und ist, solange er in diesem Vakuum bleibt, bis zu einem Jahr oder auch länger benutzbar.

Das Prinzip der Moderation beruht auf der negativen Austrittsarbeit  $\varphi_+$  für Positronen an der Oberfläche. Diese setzt sich analog zur Elektronen-Austrittsarbeit  $\varphi_-$  aus dem Anteil des Festkörperinneren, dem Chemischen Potential ( $\mu_+$  bzw.  $\mu_-$ ), und dem Oberflächenanteil, der Dipolbarriere  $D$ , zusammen [Sch88]:

$$\begin{aligned}\varphi_+ &= -D - \mu_+ \\ \varphi_- &= +D - \mu_-\end{aligned}$$

Das Chemische Potential berücksichtigt die Abstoßung bzw. Anziehung durch Atomkerne und Elektronenhüllen. Die Dipolbarriere berücksichtigt hauptsächlich die Erweiterung der Elektronenverteilung ins Vakuum. Aufgrund der entgegengesetzten Ladung wirkt  $D$  für Elektronen anziehend und für Positronen abstoßend. Hieraus folgt für die meisten Materialien ein  $\varphi_+$  nahe Null und für einige eines kleiner Null.

Alle Positronen, die zur Oberfläche diffundieren können, erfahren diese nach außen gerichtete Kraft der Dipolbarriere und werden mit nahezu derselben Energie von wenigen eV, je nach Material, senkrecht aus der Oberfläche emittiert. Hier können sie nun von elektrischen und magnetischen Ziefeldern abgesaugt, gebündelt und auf die gewünschte Bahn beschleunigt werden.

In Wolfram zum Beispiel beträgt diese Energie 2,6 eV mit der sehr geringen Verbreiterung von 75 meV [Fis86].

### 3.3.1 Eindringtiefen von Positronen

Das Eindringen von Positronen aus einer **Quelle** mit Energien bis zu einigen hundert keV in einen Festkörper wird durch ein exponentielles Gesetz für die Intensität  $I(z)$  der Positronen in Abhängigkeit ihrer maximalen Energie  $E_{max}$  und der Dichte des Festkörpers  $\rho$  beschrieben [Pus94]:

$$I(z) = I_0 \cdot e^{-\alpha_+ z}, \quad \alpha_+ \approx 17 \frac{\rho(g/cm^3)}{E_{max}^{1,43}(MeV)} (cm^{-1})$$

Die Positronen dringen bis zu einige Zehntel Millimeter in das Material ein. Da ihre laterale Aufstreuung, d.h. die Aufstreuung senkrecht zur Einfallsrichtung, in der gleichen Größenordnung ist [Val84], erhält man bei Messungen mit einer Quelle immer eine Integration über ein großes Volumen.

Für **niederenergetische** Positronen (bis 30 keV) müssen Oberflächeneffekte berücksichtigt werden, was in guter Übereinstimmung mit experimentellen Ergebnissen mit Monte-Carlo-Simulationen gelungen ist [Val84].

Das Implantationsprofil von langsamen Positronen in Materie kann mit der von Markhov 1961 für Elektronen angegebenen Funktion beschrieben werden [Pus94].

$$P(z) = \frac{mz^{m-1}}{z_0^m} \exp \left[ - \left[ \frac{z}{z_0} \right]^m \right]$$

mit  $z_0 = \frac{\bar{z}}{\Gamma[(1/m) + 1]}$

Hierbei ist  $\bar{z}$  die mittlere Eindringtiefe,  $m$  ein dimensionsloser Parameter und  $\Gamma(x)$  die Gamma-Funktion. Für  $\bar{z}$  ergibt sich ein einfacher Zusammenhang, in den außer der Positronenenergie  $E$  und der Dichte  $\rho$  des Materials noch materialabhängige Fitparameter  $A$  und  $n$  eingehen, welche für viele Materialien bestimmt und tabelliert wurden ([Pus94], [Gho95]).

$$\bar{z} = \frac{A}{\rho} E^n$$

Abbildung 3.7 zeigt einige nach Ghosh berechnete mittlere Eindringtiefen, Werte für  $\text{SiO}_2$  aus [Lyn92] und für  $\text{GaAs}$  aus [Boe98].

## 3.4 Positronium

Zusätzlich zu den bisher beschriebenen Prozessen kann sich im Vakuum, in Gasen und in Isolatoren ein wasserstoffähnlicher gebundener Zustand aus Elektron und Positron bilden, das Positronium. In Metallen verhindert die gegenseitige Abschirmung im freien Elektronengas diese Bindung des Positrons an ein ausgezeichnetes Elektron.

Das Positronium hat eine Bindungsenergie von 6,8 eV. Je nach Ausrichtung der Spins von Elektron und Positron existieren 2 verschiedene Zustände: der Singulett-Zustand  $1^1S_0$  (**Parapositronium**) und der Triplett-Zustand  $1^3S_1$  (**Orthopositronium**). Der Singulett-Zustand liegt  $8,4 \cdot 10^{-4}$  eV unterhalb des Triplettts.

Aus Gründen der Spinerhaltung können diese Zustände nur in gerade bzw. in ungerade Anzahlen von  $\gamma$ -Quanten zerstrahlen. Hierbei ist die 2- und 3- $\gamma$ -Zerstrahlung mit Abstand am häufigsten. Die Zerstrahlung in 1 Quant ist nur in Anwesenheit



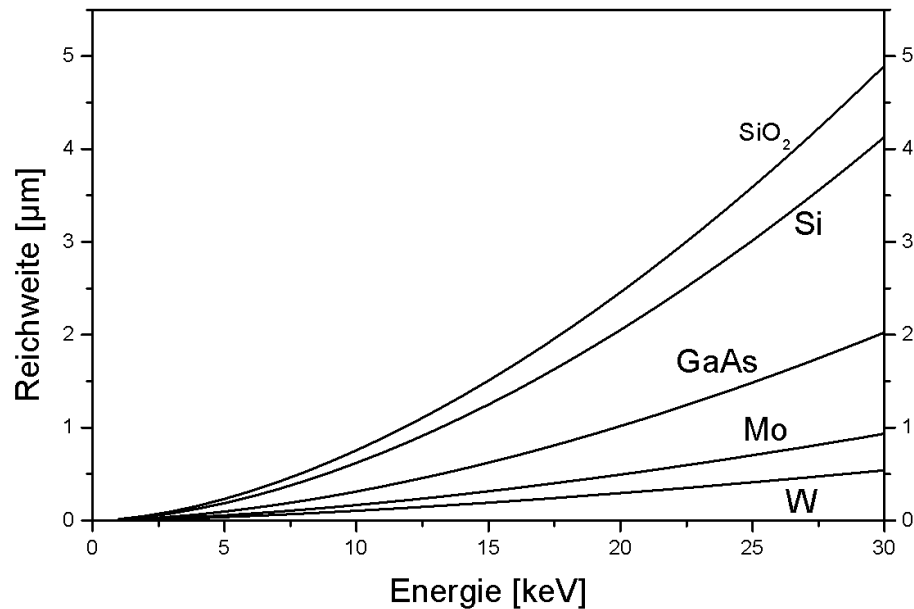


Abbildung 3.7: Mittlere Positronenreichweite in Materie nach [Gho95], [Lyn92] und [Boe98].

eines Kerns zur Aufnahme des Rückstoßimpulses möglich. Mehr- $\gamma$ -Zerstrahlungen werden dann immer um einen Faktor der Größe  $\alpha$  ( $\alpha = 1/137$ ) unwahrscheinlicher als die Zerstrahlung in 2 Quanten und die Lebensdauer dieser Zustände dementsprechend länger. Im Vakuum ergeben sich als Lebensdauer für den Singulett-Zustand 125 ps, welche in etwa derjenigen von freien Positronen in Metallen entspricht, und für den Triplett-Zustand 142 ns. In Materie allerdings gibt es mehrere Prozesse, die einen Übergang des Ortho- zum Parapositronium ermöglichen. Zum Beispiel kann das Elektron des Orthopositroniums seinen Spin mit einem Elektron aus der Umgebung austauschen, so daß nun antiparallele Spins vorliegen und der Zustand schneller in 2  $\gamma$ -Quanten zerstrahlen kann (Ortho-Para-Konversion). Das Positron des Orthopositroniums kann aber auch mit einem Elektron der Umgebung mit antiparallelem Spin zerstrahlen (Pick-Off). Wegen der großen Effizienz dieser Prozesse sind dann fast nur noch 2- $\gamma$ -Zerfälle zu beobachten.

Energetisch wurde das Auftreten von Positronium von Ore beschrieben [Hau79]. Um ein Elektron mit der Ionisierungsenergie  $E_i$  einzufangen, muß die kinetische Energie  $E$  des Positrons größer als  $E_i - E_{PS}$  sein, mit  $E_{PS}$  gleich der Bindungsenergie des Positroniums. Ist  $E$  größer als  $E_i$ , so hat das gebildete Positronium-, „Atom“ eine kinetische Energie und zerfällt rasch durch elektrische Anregungen. Erst wenn die kinetische Energie des Positroniums kleiner als die niedrigste elektronische Anre-

gungsenergie  $E_{ex}$  ist, ist die Bildung von Positronium sehr wahrscheinlich.

$$E_i - E_{PS} < E < E_{ex} \quad \text{Ore-Gap}$$

Die Anzahl der in Form von Positronium vorliegenden Positronen hängt mit dem freien Volumen im Festkörper zusammen, da die Größe ungefähr der doppelten Größe des Wasserstoffatoms entspricht. Je mehr freies Volumen vorliegt, zum Beispiel Mikrorisse, Hohlräume in einer offenen Gitterstruktur oder Leerstellencluster, desto größer ist der Positroniumsanteil. Im Energiespektrum macht sich dies durch eine schmale Dopplerverbreiterung der Annihilationslinie bemerkbar, da der geringe Gesamtimpuls des thermalisierten Positroniums nun auch einen kleinen Elektronenimpuls beinhaltet. Ein hoher Positroniumsanteil sorgt demnach für eine Vergrößerung des S-Parameters. Zusätzlich tritt im Energiespektrum eine relativ hohe Zählrate unterhalb des 511 keV-Photopeaks durch die  $3\gamma$ -Zerstrahlung des Vakuum-Positroniums auf.

## 3.5 Meßmethoden

### 3.5.1 Messung der Doppler-Verbreiterung

Um die exakte Form der Annihilationslinie zu messen, benötigt man einen hochauflösenden Germanium-Detektor (Energieauflösung des in dieser Arbeit benutzten Detektors: 1,24-1,28 keV bei 478 keV). Dessen Signale werden nach entsprechender Verstärkung in einen Analog-Digital-Wandler weitergeleitet und mit einem Computer mit Vielkanalanalysator-Karte ausgewertet. Um Schwankungen der Elektronik zu unterdrücken, wird immer eine Quelle mit nur einer einzigen  $\gamma$ -Linie unterhalb von 511 keV mitgemessen und die Elektronik auf diese stabilisiert (hier  $^7\text{Be}$  mit 478 keV) (siehe Abb. 3.9). Dies ist unbedingt notwendig, da schon geringe Schwankungen der Verstärkung den Meßeffect bei weitem überwiegen können. Der prinzipielle Aufbau bei Benutzung eines Positronenstrahls ist in Abb. 3.8 skizziert.

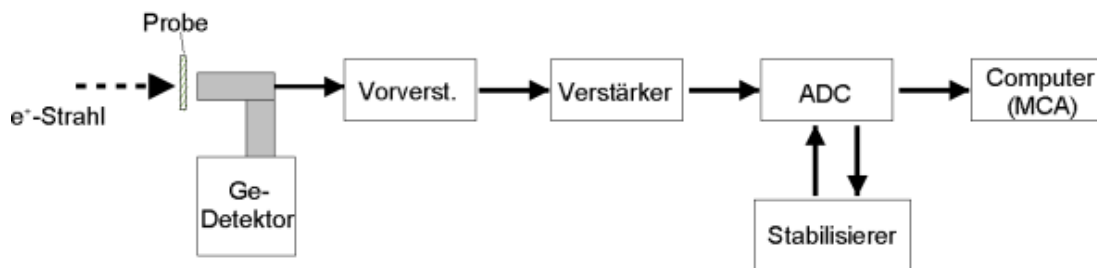


Abbildung 3.8: Schaltung zur Messung der Linienform bei der Positronenannihilation. Der Positronenstrahl trifft auf die Probe und die Zerstrahlungsquanten werden vom Detektor gemessen.

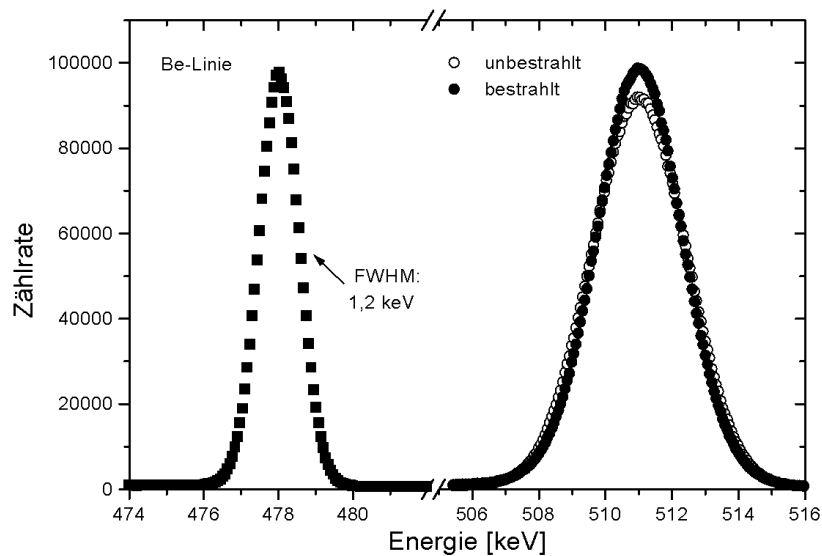


Abbildung 3.9: Energiespektrum der Zerstrahlungslinien von bestrahltem und unbestrahltem Molybdän und die zugehörige Monitorlinie des  ${}^7\text{Be}$  bei 478 keV.

### 3.5.2 Lebensdauer-Messungen

Für diese Art der Messung bietet sich das  ${}^{22}\text{Na}$ -Isotop an: Das im Rahmen der zu messenden Zeiten gleichzeitig mit dem Positron entstehende 1275 keV- $\gamma$ -Quant wird als Start-Signal zur Markierung des Positroneneintritts ins Material, die 511 keV-Quanten als Stop-Signal gemessen. Meist werden Zeit- und Energie-Signale getrennt gemessen und die richtigen Zeitsignale mittels einer Koinzidenz mit den Energiesignalen herausgefiltert.

### 3.5.3 Winkelkorrelation

Zur Messung der Winkelabweichung der zwei 511 keV-Quanten von der  $180^\circ$ -Geometrie werden heute ortsauflösende  $\gamma$ -Detektoren benutzt. Gemessen wird das Koinzidenzsignal der Detektoren für verschiedene Winkel zwischen ihnen. Die Auflösung beträgt typischerweise  $< 1$  mrad, was wesentlich besser als die entsprechende Energieauflösung der Germaniumdetektoren ist. Für vernünftige Zählraten müssen die Positronenquellen ca. 100 mal stärker (10 mCi - 1 Ci) als bei Lebensdauer- oder Dopplerverbreiterungsmessungen sein. Die nur durch die Geometrie begrenzte Auflösung kann auf Kosten der Zählrate beliebig hoch gewählt werden. Aus diesem Grund ist die Winkelkorrelation eine wichtige Meßmethode zur Bestimmung von Fermiflächen.

### 3.5.4 Positronen-Reemissions-Mikrosonde

Es können auch die aus der Probe reemittierten Positronen mittels einer Strahlführung abgebildet und gemessen werden. Auch mit dieser Methode wurde bereits eine gute räumliche Auflösung erreicht. Allerdings können nur Proben, die Positronen reemittieren, gemessen werden.

Da einige Proben an der Positronen-Reemissions-Mikrosonde an der *University of East Anglia, Norwich*, durchgeführt wurden, wird auf dieses spezielle Gerät etwas ausführlicher eingegangen. Für detailliertere Informationen sei auf die entsprechenden Veröffentlichungen ([Goo94], [Col96]) verwiesen.

Die Positronen werden mittels einer 1 GBq  $^{22}\text{Na}$ -Quelle erzeugt und anschließend durch einen Wolfram-Moderator moderiert. Die Positronen werden elektromagnetisch zu einem Strahl geformt und auf 0,95 keV beschleunigt. Der Strahl wird nun unter einem Einfallswinkel von  $45^\circ$  auf die Probe gelenkt und die aus der Probe reemittierten Positronen mittels einer senkrecht über der Probenoberfläche stehenden Objektivlinse auf einen ortsempfindlichen Detektor, ein Channel-Plate, abgebildet.

Ein Strahlfluß von 1600 - 2400 Positronen pro Sekunde trifft die Probe auf einem Fleck mit knapp  $100\ \mu\text{m}$  Durchmesser. Die Abbildung der reemittierten Positronen hat eine Vergrößerung um den Faktor 80 und ergibt eine laterale Auflösung von ca.  $10\ \mu\text{m}$ . Bei der in [Col96] beschriebenen Messung in einem ausgeheizten Nickel-Netz wurden Zählraten von  $45\ \text{s}^{-1}$  mit einem Signal-Untergrund-Verhältnis von 13:1 erreicht.

Neben Abbildungen von Netzen wurden bereits erfolgreich Messungen an Sauerstoffimplantierten SiC-Proben durchgeführt ([Bur99]).

## 3.6 Auswertung

In dieser Arbeit wurden ausschließlich Dopplerspektren gemessen und ausgewertet. Es sollen deshalb an dieser Stelle einige Details der Auswertung besprochen werden.

### 3.6.1 Untergrund

Bei der Berechnung der S- oder W-Parameter wird erst ein linearer Untergrund von den Linien abgezogen. Hierzu wird jeweils rechts und links vom 511 keV-Peak der Untergrund gemittelt und zwischen diese beiden Werte eine Gerade gelegt. Diese wird als Untergrund von den Meßwerten abgezogen.

Da im Fall der Mikrosonde moderierte Positronen vorliegen, man also ein gutes Stück von der Quelle entfernt ist, können die 1275 und vor allem die 511 keV  $\gamma$ -

Quanten aus anderweitiger Zerstreuung von Positronen sehr effektiv abgeschirmt werden. Die Positronen im Strahl treffen zusätzlich nahezu zu 100 % die Probe, so daß bei einer Zählrate von 550 counts pro Sekunde im Photopeak lediglich ein Untergrund von 3 counts pro Sekunde herrscht. Diese Meßmethode ist also äußerst untergrundarm. Ein zusätzlicher Untergrund aus der Zerstrahlung der von der Probe zurückgestreuten Positronen ist für jede Energie und jedes Material konstant.

### 3.6.2 Auswertung von S- gegen W-Parameter

Die Auswertung der Annihilationslinie mittels S- oder W-Parameter kann nicht die volle Information ausschöpfen. Eine in einigen Fällen bessere Möglichkeit bietet die Kombination beider Parameter [Cle96]:

Der gemessene S-Parameter wird als Linearkombination der einzelnen S-Parameter von unterschiedlichen Defekttypen verstanden.

$$S = f_{bulk}S_{bulk} + f_{surf}S_{surf} + \sum f_j S_j$$

Hierbei sind die  $f_i$  mit  $\sum f_i = 1$  die Anteile der Zerstrahlung im Inneren (bulk), an der Oberfläche (surf) und in anderen Defekten j. Unter der Annahme von lediglich zwei verschiedenen Zuständen, in denen die Positronen zerstrahlen können, vereinfacht sich der Ausdruck.

$$S = f_1 S_1 + f_2 S_2 \quad \text{mit} \quad f_1 + f_2 = 1$$

$$\Rightarrow S - S_1 = f_2(S_2 - S_1)$$

Für W ergibt sich ein analoger Ausdruck, so daß man  $f_2$  eliminieren kann.

$$S = R(W - W_1) + S_1 \quad \text{mit} \quad R = \frac{S_2 - S_1}{W_2 - W_1}$$

Im angenommenen Fall von nur zwei verschiedenen Positronenzuständen ergibt sich bei einer Auftragung des S- gegen den W-Parameter eine Gerade mit der Steigung R. Da R aber defektspezifisch ist, können sich bei mehreren Beiträgen Geraden verschiedener Steigungen ergeben. Die Steigungen sind aber häufig sehr ähnlich, so daß es von Vorteil ist, nicht nur eine gleichmäßige Mischung aller Defekte sondern möglichst jeden Defekttyp einmal als vorherrschende Sorte zu haben.

Diese Methode wurde schon vielfach erfolgreich an Halbleitern angewendet (z.B. Si in [Cle96], GaAs in [Boe98]). Bei Metallen ist sie bisher meist ohne Erfolg geblieben.

## 3.7 Faltungsintegral

Um einen Teil der Messungen auszuwerten, war es nötig, eine Faltung des als gaußförmig genäherten Strahlprofils mit einer stufenförmigen Defektverteilung zu

bestimmen. Zur besseren Übersicht sei dies hier kurz dargestellt:

$$f_1(t, A, b) = A \cdot e^{-t^2/b}$$
$$f_2 = \begin{cases} 0 & : t < -t_1 \\ 1 & : -t_1 \leq t \leq t_1 \\ 0 & : t > t_1 \end{cases}$$

Hierbei ist A die Amplitude und b die Breite der Gaußkurve sowie  $2 \cdot t_1$  die Breite der Stufe. Für die Faltung gilt allgemein:

$$F(x) = (f_1 * f_2)(x) = \int_{-\infty}^{\infty} f_1(t) \cdot f_2(x - t) dt$$

hieraus ergibt sich im vorliegenden Fall:

$$F(x) = -\frac{1}{2} A \sqrt{b} \sqrt{\pi} \cdot \operatorname{Erf} \left[ \frac{-t_1 + x}{\sqrt{b}} \right] + \frac{1}{2} A \sqrt{b} \sqrt{\pi} \cdot \operatorname{Erf} \left[ \frac{t_1 + x}{\sqrt{b}} \right]$$

mit der Errorfunktion  $\operatorname{Erf} = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \cdot \int_0^{+x} e^{-u^2} du$

Diese Funktion wurde bei der Auswertung der Messungen an bestrahltem Silizium und Quarz an die Meßdaten angefitet.

## Kapitel 4

# Die Positronenmikrosonde

Die Positronenmikrosonde wurde von dem Institut für Strahlen- und Kernphysik in Zusammenarbeit mit der Firma Leo Elektronenmikroskopie GmbH<sup>1</sup> entwickelt und aufgebaut. Sie stellt erstmals einen langsamen Positronenstrahl mit einem Strahldurchmesser von wenigen Mikrometern zur Verfügung. Es können also orts aufgelöste Messungen der Dopplerverbreiterung der Annihilationsstrahlung durchgeführt werden. Die Positronenenergie kann für tiefenabhängige Messungen zwischen ca. 7 und 30 keV variabel eingestellt werden. Die Messungen sind extrem untergrundfrei (130 - 550 counts pro Sekunde bei einem Untergrund von 0,7 - 3 c/s im 511 keV-Photopeak). Es handelt sich um ein Laborgerät mit Genehmigung nach der Strahlen- und Röntgenschutzverordnung und kann in jedem einigermaßen schwingungsgedämpften Labor aufgestellt werden. Auf das Gesamtkonzept und die Positronenquelle sind Patente angemeldet ([DPA96], [DPA96a]).

### 4.1 Aufbau und Funktionsweise

Die Positronenmikrosonde ist eine Kombination eines Raster-Elektronenmikroskops (REM)<sup>2</sup> mit einer kleinen Positronenquelle und einem Moderator (siehe Abb. 4.1). Positron und Elektron haben betragsmäßig die gleiche spezifische Ladung, unterscheiden sich aber im Vorzeichen. Dies führt dazu, daß sie in demselben Magnetfeld um den gleichen Betrag, aber in verschiedene Richtungen abgelenkt werden. Die **Elektronenkanone** befindet sich mit der dazugehörigen Beschleunigungsspannung und Absaugelektrode auf der rechten Seite. Der Elektronenstrahl wird mittels eines elektromagnetischen **Prismas** auf die optische Achse der REM-Säule fokussiert. In diesem Modus sind REM-Abbildungen bis zu einer Auflösung von 12 nm möglich. Auf der gegenüberliegenden Seite der Elektronenkanone wurde eine **<sup>22</sup>Na-Quelle** mit einem speziell geformten **Wolfram-Moderator** eingebaut. Beide liegen auf positiver Hochspannung. Die mit wenigen eV Energie austretenden Positronen werden

<sup>1</sup>LEO Elektronenmikroskopie GmbH, Carl-Zeiss-Str. 56, D-73446 Oberkochen

<sup>2</sup>Typ EM 960 A der Fa. LEO

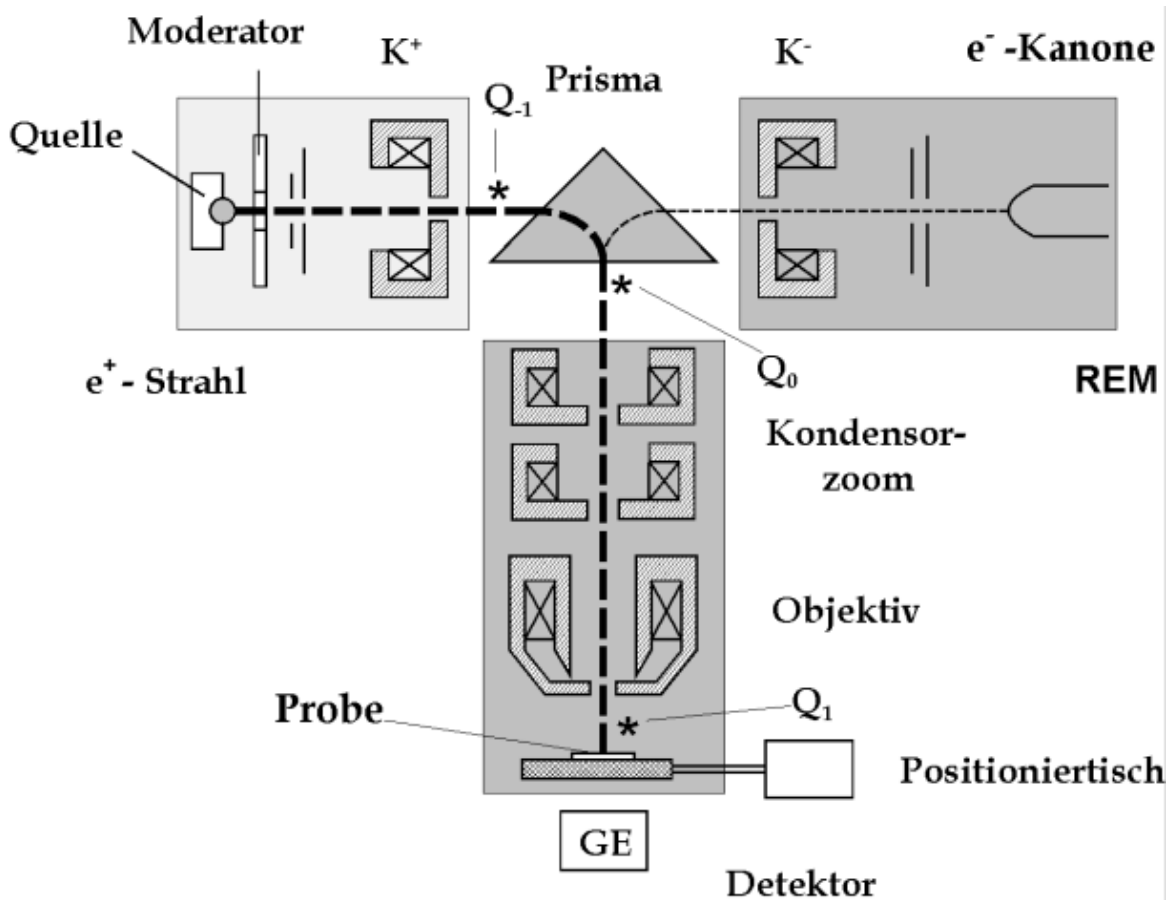


Abbildung 4.1: Schematischer Aufbau der Mikrosonde: Von links kommt der Positronenstrahl und von rechts der Elektronenstrahl des Rasterelektronenmikroskops (REM). Mithilfe der jeweiligen Kondensoren ( $K^+$  für Positronen,  $K^-$  für Elektronen) und Strahljustiersystemen werden die Strahlen auf das elektromagnetische Prisma justiert und dort auf denselben Strahlengang in der Säule abgelenkt. Ein Kondensorzoom und ein Objektiv fokussieren den jeweiligen Strahl auf die Probe. An den mit \* markierten Stellen können die Szintillationsdetektoren  $Q_{-1}$ ,  $Q_0$  bzw.  $Q_1$  in den Strahlengang geschoben werden.

mittels einer Ziehspannung abgesaugt und dann auf Erdpotential hin beschleunigt. Mit diversen elektromagnetischen Strahljustiersystemen (nicht abgebildet) und einem Kondensator  $K^+$  wird der Positronenstrahl geformt, bis zu 4-fach verkleinert und auf das Prisma justiert, so daß er ebenfalls auf die REM-Achse abgebildet werden kann. In der Säule findet im **Kondensorzoom** eine weitere Verkleinerung statt. Mit Hilfe des **Objektives** wird der Strahl schließlich auf die Probe fokussiert, so daß ein Positronenstrahldurchmesser von  $12\ \mu\text{m}$  und kleiner erreicht werden kann. Theoretisch ist derselbe Strahldurchmesser wie bei Elektronen möglich, in der Praxis setzt die mit besserer Fokussierung kleiner werdende Strahlintensität eine Grenze. Außer-



dem ist es wegen der Diffusionslänge der Positronen in Materie von einigen 100 nm nicht sinnvoll, den Strahldurchmesser unter  $1\ \mu\text{m}$  zu wählen (siehe Kap. 3).

Durch die spezielle Geometrie von Quelle und Moderator kann erstmals ein Strahldurchmesser im Mikrometerbereich erzeugt werden, ohne daß am Ort der Probe ein zusätzliches Magnetfeld herrscht. Es sind also keine Einschränkungen bezüglich der magnetischen Eigenschaften der Proben gegeben, ebenso ist keine spezielle Probenpräparation nötig.

Im Gegensatz zum Elektronenmodus, wo der Strahl über einen ausgewählten Bereich rastert und so ein Bild erzeugt, wird der Positronenstrahl immer in der Strahlengangmitte gehalten. Mit Hilfe des mikrometergenauen **x-/y-Positioniertisches** kann jede gewünschte Stelle der Probe in den Strahl gefahren werden. Gemessen wird die Energie der Vernichtungsstrahlung mit dem unter der Probe befindlichen hochauflösenden **Germanium-Detektor**.

Die bereits erwähnten Strahljustiersysteme bestehen aus Luftspulen. Um den Positronenstrahl in das Prisma zu justieren, kann sowohl der Winkel des Strahls verändert („alignment“) als auch ein Parallelversatz („precendering“) in 2 Richtungen durchgeführt werden. Dies ist sowohl vor dem Prisma als auch danach möglich. Für die Justierung des Positronenstrahls sind an 3 Stellen (siehe \* in Abb. 4.1) Szintillationszähler in den Strahlengang einführbar. Diese messen direkt die auftreffenden Positronen und nicht die Vernichtungsstrahlung. Der oberste,  $\mathbf{Q}_{-1}$ , wird für die Positionierung von Quelle und Moderator auf die optische Achse der Apparatur benötigt. Der zweite,  $\mathbf{Q}_0$ , dient der Grobeinstellung der Strahljustiersysteme. Zur Erreichung einer guten Zählrate und eines kleinen Strahldurchmessers sind nun noch feinere Änderungen in allen Parametern der Strahlführung notwendig. Für diese Optimierung nach Zählrate wird der unterste Szintillator  $\mathbf{Q}_1$  benötigt. Des weiteren wird mit ihm der Strahldurchmesser bestimmt, indem der Strahl mit einer sehr geraden Kante schrittweise abgeschattet wird.

Für eingehendere Beschreibungen des Aufbaus sei hier auf [Ton97], [Gre96], [Gre97] und citeHaa97 verwiesen.

## 4.2 Quelle

Um einen Positronenstrahl mit kleinem Durchmesser zu erhalten, benötigt man von Anfang an eine kleine Phasenraumzelle, da nach dem Satz von Liouville das Phasenraumvolumen bei Benutzung konservativer Kräfte konstant ist. Es muß zudem mit dem der Elektronenkanone vergleichbar sein, da sonst keine Abbildung mit derselben Optik möglich ist. Nur durch Wirken von nicht-konservativen Kräften wie Remoderation oder Ausblenden kann man das Phasenraumvolumen verringern, allerdings geht dadurch viel Strahlintensität verloren. Dies führt zu der Forderung

nach einer kleinen Quelle. Die *effektive* Quelle aber ist die Oberfläche des Moderators, aus der die langsamen Positronen austreten, zum Beispiel das Innere einer Bohrung. Es ist nicht sinnvoll, die Quelle größer als die Moderatorbohrung zu machen, da die Positronen aus dem äußeren Teil der Quelle nicht zum Strahl beitragen können. Nachteil dieses ungenutzten Teils der Quelle ist natürlich die unnötig erhöhte  $\gamma$ -Strahlung, die abgeschirmt werden muß. Eine weitere Anforderung betrifft die Reinheit des radioaktiven Isotops. Es sollten so wenig Fremdatome wie möglich vorhanden sein sein, da die Positronen wegen der Selbstabsorption ab einer bestimmten Tiefe nicht mehr aus der Quelle herauskommen können. Eine dickere Quelle führt wieder zu einer Erhöhung der Untergrundstrahlung ohne Nutzen für die Positronenausbeute.

Die Herstellung der hier verwendeten Quellen erfolgte durch Eintrocknen einer so hoch wie möglich mit  $^{22}\text{Na}$  angereicherten NaCl-Lösung in einem Trichter mit einer  $300\ \mu\text{m}$  dicken Bohrung (siehe Abb. 4.2). Die Vorderseite der Bohrung ist mit einer dünnen Folie aus leichtem Material verschlossen, um so wenig Positronen wie möglich zu absorbieren. Anschließend wurden die eingetrockneten Salzkristalle von der Trichterwand in die Bohrung hinunter gekratzt und der Trichter zur Abschirmung mit einem massiven Stopfen verschlossen, siehe dazu [Ton97] und [Haa97].

Die erste Quelle wurde 1996 hergestellt, hatte anfänglich ca.  $700\ \mu\text{Ci}$  und befand sich in einem mit einer  $10\ \mu\text{m}$  dicken Aluminium-Folie verschlossenen Messing-Trichter. 1999 wurde eine neue Quelle in einem Gold-Trichter eingetrocknet. Sie hat ca.  $1,5\ \text{mCi}$  und ist mit einer  $2\ \mu\text{m}$  dicken Mylar- und einer  $6\ \mu\text{m}$  dicken Aluminium-Folie abgedeckt. Der Trichter war jeweils mit einem Tantal-Stopfen verschlossen, der in diese Richtung emittierte Positronen zurückstretet und  $\gamma$ -Quanten absorbiert.

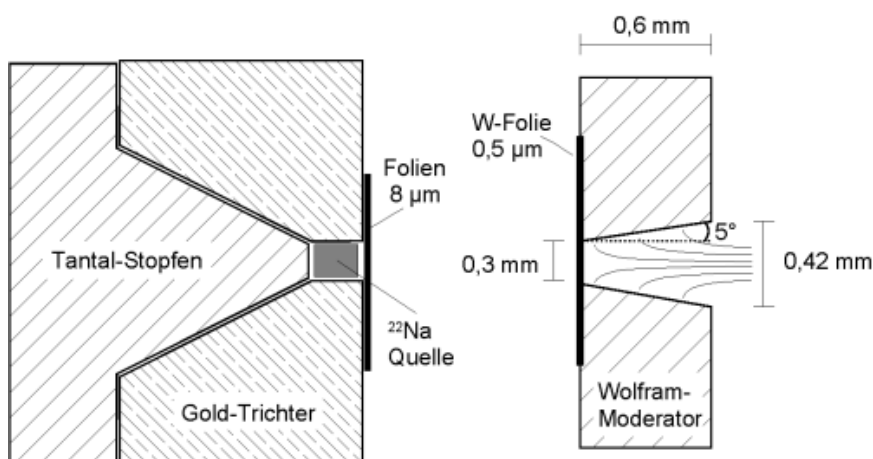


Abbildung 4.2: Die kleine Quelle und der Kombinationsmoderator mit den eingreifenden Feldlinien (nicht maßstabsgetreu).

## 4.3 Moderator

Wie schon erwähnt, ist die Form des Moderators von entscheidender Bedeutung für das Phasenraumvolumen und die Effizienz. Nach Versuchen mit reinen Reflexions- und Transmissionsmoderatoren wurde eine Kombination von beiden als neuer Moderatortyp entwickelt.

Bei einem **Reflexionsmoderator** ist die absorbierende Oberfläche gleichzeitig auch die Fläche, die die moderierten Positronen senkrecht emittiert (siehe Kap. 3.3). Es wurde zuerst ein 0,7 mm dicker W-Einkristall mit einer geraden Bohrung von 0,4 mm Durchmesser und danach einer mit einer leicht konischen Bohrung benutzt. Die konische Bohrung hatte quellseitig 300  $\mu\text{m}$  und auf der anderen Seite 420  $\mu\text{m}$  Durchmesser. Bei dieser Geometrie kann das Feld der angelegten Beschleunigungsspannung weiter in die Bohrung hineingreifen und erhöht somit die Effizienz [Lyn89].

Der **Transmissionsmoderator** besteht aus einer dünnen Folie. Die Positronen dringen auf der einen Seite ein, diffundieren zur anderen Seite und treten senkrecht aus der Oberfläche heraus. Die Impulsunschärfe ist wesentlich geringer, da ja kaum Transversalimpuls vorliegt. Nachteilig ist aber die im Vergleich zum konischen Reflexionsmoderator nur etwa halb so große Effizienz [Lyn89].

Um die positiven Eigenschaften beider Moderatortypen auszunutzen und die Effizienz zu steigern, wurde auf einen konischen Reflexionsmoderator quellseitig eine 0,5  $\mu\text{m}$  dicke W-Folie aufgeschweißt (siehe Abb. 4.2). Dieser Moderator erbringt eine Effizienz von  $1 \times 10^{-4}$  und einen genügend kleinen Phasenraum.

Nachdem der Moderator ins Vakuum eingebracht wurde, muß er mehrfach ausgeheizt werden, um Verunreinigungen erst zu binden und dann auszugasen ([Gre96]). Ohne diese Prozedur wären keine Moderationseigenschaften vorhanden. Von entscheidender Bedeutung ist es natürlich weiterhin, daß die Quelle genau hinter der Moderatorbohrung ist. Zu diesem Zwecke lassen sich sowohl Quelle als auch Moderator in alle drei Raumrichtungen bewegen und der Moderator um 2 Achsen drehen. Diese geometrische Justage erfordert große Sorgfalt.

## 4.4 Weitere Bauteile

### Prisma

Die Ablenkung beider Strahlen um 90° wird durch ein Castaignfilter [Cas64] bewerkstelligt, welches die Firma LEO früher als Energiefilter in Transmissions-Elektronenmikroskopen eingesetzt hat. Hier werden auch die moderierten und nachbeschleunigten Positronen von den restlichen hochenergetischen Positronen des  $\beta$ -Spektrums getrennt. Es besteht aus einem Elektromagneten mit zwei pris-

menförmigen Polschuhen mit kleiner Remanenzfeldstärke. Beim Umschalten von Elektronen auf Positronen muß das Feld nicht umgeplot werden. Nur bei anderen Teilchenenergien sind auch andere Prismenstromwerte nötig.

### Szintillationsdetektoren

Zum direkten Positronennachweis während der Justierung werden Szintillatoren in den Strahlengang geschoben. Das Lichtsignal wird zur Rauschunterdrückung geteilt, gleichzeitig auf 2 Photomultiplier gegeben und mittels einer Koinzidenzschaltung ausgewertet. Die beiden oberen,  $Q_{-1}$  und  $Q_0$ , bestehen aus Plastikszintillator (Ne102A), während für den untersten  $Q_1$  Cäsiumjodid wegen der höheren Empfindlichkeit im niederenergetischen Bereich gewählt wurde. Dieser Detektor wird auch während des Strahlbetriebes immer wieder zur Bestimmung von Durchmesser und Position des Positronenstrahls benötigt. Da er aber im Elektronen-Betrieb auf Grund des wesentlich höheren Teilchenflusses zerstört würde, wurde eine Hydraulikvorrichtung gebaut, so daß er nun ohne Belüften der Targetkammer aus dem Strahlengang herausgefahren werden kann. Hiermit ist ein schnelles Umschalten von Positronen- auf Elektronenbetrieb in wenigen Minuten möglich.

### Germanium-Detektor

Der Germanium-Detektor befindet sich so nah wie möglich unter der Probe, um einen großen Raumwinkel zu erfassen, und hat eine Auflösung von ca. 1,28 keV bei 478 keV ( $^7\text{Be}$ ). Während des Meßbetriebes wird die  $\gamma$ -Linie einer  $^7\text{Be}$ -Quelle permanent mitgemessen und die Elektronik auf diese stabilisiert.

## 4.5 Geplante Veränderungen

Ein zusätzlich angelegtes Magnetfeld am Probenort soll durch Zusammenziehen der Magnetfeldlinien den Positronenstrahldurchmesser weiter verringern. Dazu laufen bereits erste Versuche mit einer unterhalb der Probe angebrachten **Magnetlinse**. Ein Strahldurchmesser von  $1\ \mu\text{m}$  sollte so erreichbar sein.

Ein **ortsauflösender Siliziumdetektor** mit einer Auflösung von  $1\ \mu\text{m}$  soll ein 2-dimensionales Abbild des Strahlprofils online messen [Ng99]. Dies würde die Optimierung des Strahles wesentlich vereinfachen und andere Strahlengänge, zum Beispiel mit Fokus zwischen den Kondensoren, ermöglichen.

## Kapitel 5

# Strahlenschäden in Molybdän: Experimente und Diskussion

### 5.1 Eigenschaften von Molybdän

Molybdän ist auch bei hohen Temperaturen stabil (Schmelztemperatur: 2885 K) und wird bei Bestrahlung mit Neutronen wenig aktiviert. Diese Eigenschaften machen Molybdän unter anderem als Material für die inneren Wände von Kernreaktoren interessant, weswegen schon viele Messungen an Bestrahlungsdefekten in Molybdän unternommen wurden.

Im Rahmen dieser Arbeit fiel die Wahl des Probenmaterials auf Molybdän, da hier die Einfachleerstellen bei Raumtemperatur noch nicht beweglich sind. Zusätzlich liegt die Verlagerungsenergie mit ca. 34 eV weit genug unter der von 1 MeV Elektronen übertragenen Stoßenergie ( $T_{max} = 41,2$  eV), so daß Strahlenschäden erzeugt werden können.

Mittels Restwiderstandsmessungen von stark bestrahlten Mo-Proben wurden verschiedene Ausheilstufen festgestellt (siehe Abb. 5.1). Hierbei variieren die Temperaturen dieser Stufen mit der Bestrahlungsart und -stärke [LaB91], [Eld76]. Gemeinsam ist ihnen eine Stufe bei ca. 150 - 300 °C (Stufe III) und eine bei ca. 600 - 700 °C (Stufe IV).

Während es in der Literatur als sicher gilt, daß die Zwischengitteratome (ZG) schon ab ca. 40 K beweglich sind [Tan92], ist es nicht klar, auf welchem Prozeß die Stufe III beruht. Wie schon 1976 von Seeger dargestellt, konkurrieren 2 Modellvorstellungen [Pet77]: Nach dem *1-ZG-Modell* rührt die Stufe III in allen Metallen von beweglichen Einfachleerstellen her. Nach dem *2-ZG-Modell* gibt es Metalle, in denen die schon vorher beweglichen Zwischengitteratome in einen anderen, stabileren Zwischengitterzustand übergehen. Wenn diese „neuen“ Zwischengitteratome beweglich werden, ist Stufe III erreicht, während die Beweglichkeit von Einfachleerstellen dann zu Stufe IV führt. Messungen mit Positronenannihilation von Eldrup [Eld76],

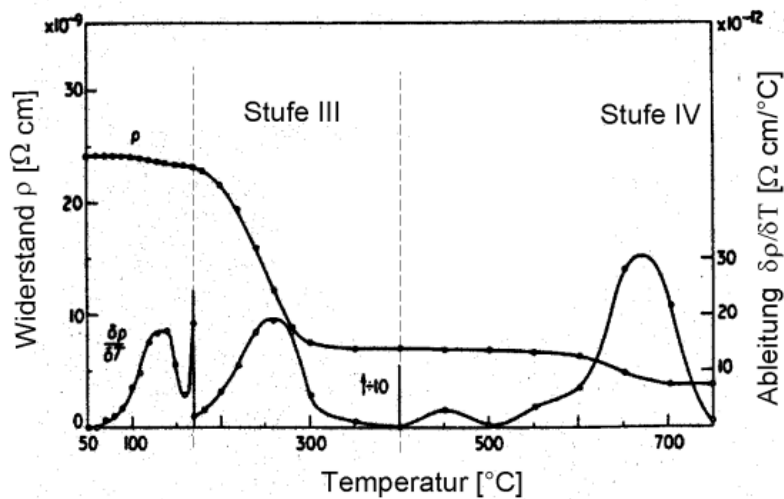


Abbildung 5.1: Restwiderstandsmessungen an elektronenbestrahltem Molybdän: Isochrones Ausheilen mit einer Heizrate von  $1^{\circ}\text{Cmin}^{-1}$ . Angegeben sind die Ausheilstufen III und IV. Die Ableitung  $\delta\rho/\delta T$  ist aus darstellungstechnischen Gründen zwischen 170 und  $400^{\circ}\text{C}$  um den Faktor 10 verkleinert [Eld76].

Petersen [Pet77] und Naidu [Nai85] an Molybdän wurden mit dem 1-ZG-Modell ausgewertet.

Die Schwelle der Verlagerungsenergie  $E_d$  liegt bei 34 eV, so daß bei allen nachfolgend beschriebenen Bestrahlungsexperimenten die im Stoß maximal übertragene Energie darüber liegt. Hierbei liegt die von 1 MeV Elektronen übertragene Energie nur wenig über  $E_d$  und es entstehen nahezu nur Leerstellen und Zwischengitteratome. Bei Bestrahlung mit hochenergetischen Ionen dagegen werden Stoßkaskaden ausgelöst und große Defektcluster erzeugt.

## 5.2 Probenpräparation

Die Proben hatten eine Reinheit von 99,9% und lagen als unterschiedlich dicke Folien vor<sup>1</sup>. Alle Proben wurden zuerst im Vakuum (ca.  $4 \times 10^{-7}$  mbar) bis kurz unter den Schmelzpunkt ausgeheizt.

Soweit nicht anders beschrieben, wurden die Proben mit Epoxidharz auf Cu-Netzchen<sup>2</sup> geklebt. Dies erleichterte die Handhabbarkeit der dünnen Folien, die ja keiner zusätzlichen mechanischen Belastung ausgesetzt werden durften, und die bestrahlten Stellen waren einfach und sicher wiederzufinden. Eine zusätzliche Kontaktierung mit Leitsilber verhinderte Aufladungen insbesondere bei den elektronenmikroskopischen Aufnahmen. Es wurde peinlich darauf geachtet, daß Kleber und

<sup>1</sup>Goodfellow GmbH, D-61213 Bad Nauheim

<sup>2</sup>Standardprobenträger für Elektronenmikroskopie, bezogen von: Plano, W. Plannet GmbH, Ernst-Befort-Straße 12, D-35578 Wetzlar

Leitsilber nur am Rand der Probe und nicht an den nachher mit Positronen zu messenden Stellen war (siehe Abb. 5.2). Die genaue Probenposition wurde mit Hilfe des Szintillationszählers durch Abschatten des Positronenstrahls mit den freien Cu-Stäbchen bestimmt. Die Dicke der Proben ist entweder wie gekauft angegeben oder die Proben wurden per Elektropolieren<sup>3</sup> auf die richtige Dicke gebracht. Der Fehler in der Dickenangabe beträgt  $\pm 1 \mu\text{m}$ .

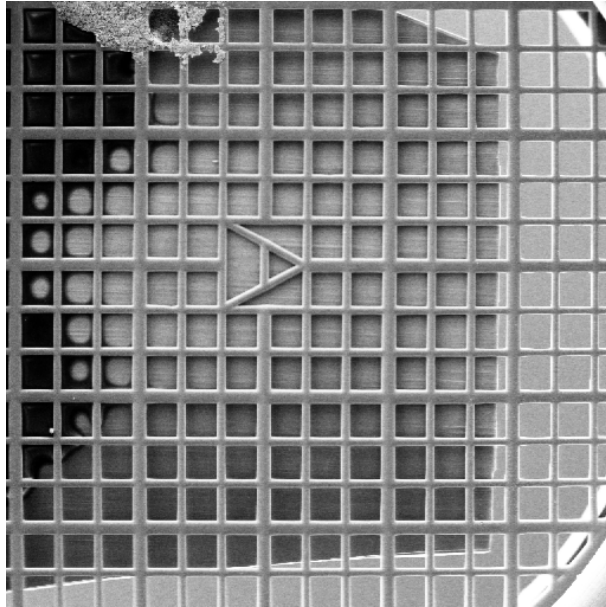


Abbildung 5.2: Raster-Elektronenmikroskopische Aufnahme einer typischen Molybdän-Probe: Die  $15 \mu\text{m}$  dicke Folie wurde hinter ein ca.  $12 \mu\text{m}$  dickes Kupfer-Netzchen geklebt. Der Epoxidharzkleber ist links am Rand als schwarzer Schatten, das Leitsilber links oben als Krümel erkennbar. Breite der offenen Maschen des Netzchens:  $100 \mu\text{m}$ , Breite der Stege:  $25$  bzw.  $35 \mu\text{m}$ .

## 5.3 Elektronenbestrahlung

Die Mo-Proben wurden am Hochspannungs-Transmissions-Elektronenmikroskop (AEI) des *Max-Planck-Instituts für Metallforschung* in Stuttgart<sup>4</sup> bestrahlt. Von Vorteil war hier die hohe Strahlstomdichte, da für die Positronenmikrosonde nur eine kleine Fläche bestrahlt werden mußte (ca.  $40 \mu\text{m}$  im Durchmesser). Erste Testmessungen an Mo-Proben waren sehr erfolgversprechend und wurden bereits in [Mae99] veröffentlicht. Sie führten zu einigen Verbesserungen, die im folgenden beschrieben werden.

<sup>3</sup>Elektropolieren von Molybdän: 25 ml Schwefelsäure und 125 ml Methylalkohol; Kathode aus Edelstahl; Spannung: 12 V; Temperatur:  $10^\circ\text{C}$ ; dann sofort mit Alkohol abspritzen.

<sup>4</sup>Heisenbergstraße 1, 70569 Stuttgart

Als Probe diente eine Mo-Folie von  $15\ \mu\text{m}$  Dicke, die wie oben beschrieben ausgeheilt und aufgeklebt wurde. Die Bestrahlung fand bei einer Energie von 1 MeV und  $4,7 \times 10^{-10}\ \text{A}$  bei Punkt 1 und ca.  $10 \times 10^{-10}\ \text{A}$  bei allen anderen Punkten statt (siehe Abb. 5.3).

Teilchenart	Energie	Punkt	Strom
Elektronen	1 MeV	1	$4,7 \times 10^{-10}\ \text{A}$
Elektronen	1 MeV	2,3,4	$10 \times 10^{-10}\ \text{A}$

Tabelle 5.1: Bestrahlungsparameter der mit Elektronen bestrahlten Mo-Proben.

Der Bestrahlungsfleck hatte einen Durchmesser von  $44 \pm 2\ \mu\text{m}$ . Die Bestrahlungsdosis wurde durch unterschiedliche Bestrahlungsdauern verändert, so daß die Bedingungen für alle Proben außer Punkt 1 die gleichen waren.

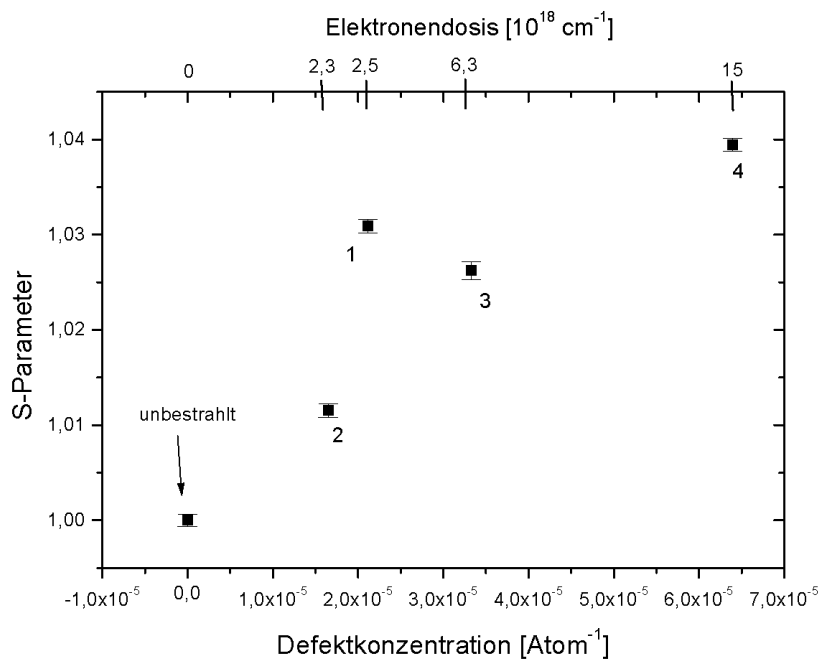


Abbildung 5.3: Positronenmessung an elektronenbestrahltem Molybdän in Abhängigkeit von der erzeugten Defektkonzentration beziehungsweise Elektronendosis. Der Elektronenstrahlstrom beträgt bei Punkt 1 ca.  $4,7 \times 10^{-10}\ \text{A}$  und ca.  $10 \times 10^{-10}\ \text{A}$  bei allen anderen Punkten, die Bestrahlungsdauern liegen zwischen 1 und 15 Stunden.

Die Eindringtiefe der bei den Messungen benutzten 30 kV-Positronen beträgt ca.  $1\ \mu\text{m}$ . Das Auffinden des bestrahlten Fleckes geschah mit Hilfe einer groben Vor-



positionierung durch Abschatten des Szintillators durch das Kupfer-Netz und den Rand der Molybdän-Folie. Anschließend rasterte der Positronenstrahl den in Frage kommenden Bereich in kleinen Schritten ab. Da der bestrahlte Fleck exakt mittig getroffen werden mußte, waren mehrere eng nebeneinanderliegende Scans mit einer Statistik von ca. 200 000 counts im 511 keV-Peak nötig. Die ermittelten Punkte wurden dann mit ca. 2 Millionen counts im Peak gemessen.

Die Berechnung der Defektkonzentration erfolgte wie in Kapitel 2 beschrieben, wobei als größte Unsicherheit die Temperatur am Bestrahlungsort hinzugerechnet werden muß. Der Fehler im Absolutwert der errechneten Defektkonzentration kann also schätzungsweise bis zu einer halben Größenordnung betragen, weswegen auf Fehlerbalken verzichtet wurde. Die Werte untereinander sind aber gut vergleichbar.

Zu erkennen ist, daß sich bei gleichen Bestrahlungsbedingungen ein in guter Näherung linearer Anstieg des S-Parameters mit steigender Defektkonzentration ergibt. Nur Punkt 1 weicht hiervon ab, hier war der Elektronenstrahlstrom allerdings auch wesentlich geringer. Der maximale Hub im S-Parameter beträgt ca. 4 %.

### Diskussion

Die Temperatur der Probe während der Bestrahlung kann nicht gemessen, sondern nur abgeschätzt werden. Sie liegt auf jeden Fall weit unterhalb von 500°C, was eine untere Abschätzung der Ausheiltemperatur für Einfachleerstellen ist, wie die großen Meßeffekte beweisen. Da der S-Parameter von Punkt 1 allerdings wesentlich höher als die durch alle anderen Punkte anpaßbare Gerade ist, läßt sich vermuten, daß bei den Punkten mit höherem Strahlstrom trotzdem schon eine nicht vernachlässigbare Anzahl von Defekten während der Bestrahlung ausgeheilt sind. Da bei der Bestrahlung Leerstellen und Zwischengitteratome gleichermaßen erzeugt werden, können diese sich bei höherer Temperatur in größerem Maße gegenseitig vernichten. Allerdings ist durch Auftragen des S- gegen den W-Parameter (siehe dazu Kap. 3.6.2) auch bei Variation der Fenster nichts über den Typ dieser Defekte zu entnehmen (Abb. 5.13).

Der sehr gut erkennbare lineare Anstieg des S-Parameters mit der errechneten Defektkonzentration bestätigt die in Kap. 2.3.2 erläuterte Abhängigkeit der Defekterzeugung von der Wurzel aus der Bestrahlungsdauer bei Elektronenbestrahlung.

## 5.4 Großflächige Bestrahlung

Hier wurden ausgeheizte Molybdän-Folien von 15  $\mu\text{m}$  Dicke am Bonner Isochronzyklotron mit hochenergetischen Protonen und Alpha-Teilchen in zwei verschiedenen Geometrien bestrahlt:

*1. Probengeometrie:*

Die Folien wurden großflächig auf einen wassergekühlten Aluminium-Probenhalter aufgeklebt, um eine Erwärmung während der Bestrahlung zu verhindern. Aufgrund des großen Strahldurchmessers betrug der Radius des bestrahlten Bereichs etwa 1,5 mm. Bei diesen Bestrahlungen wurden wegen des großen Impulsübertrags nicht nur Frenkel-Defekte, sondern große Leerstellencluster erzeugt. Für die Positronenmessungen wurden die Proben nicht von ihren Haltern entfernt, um keine neuen Defekte durch mechanische Verformung zu erzeugen. Die Eindringtiefe der Positronen von ca.  $1\mu\text{m}$  war allerdings auch weitaus kleiner als die Probendicke, so daß keine Meßeffekte durch den Kleber auftreten konnten. Nach einmaliger Bestrahlung wurden die Proben dann jeweils eine halbe Stunde lang bei verschiedenen Temperaturen an Luft ausgeheilt und anschließend bei Raumtemperatur gemessen. Das Tempern erfolgte allerdings nur bis  $260^\circ\text{C}$ , da sonst Ausgasungen des Klebers befürchtet wurden. Diese Ausgasungen könnten sich auf die Oberfläche setzen und die zu messenden Effekte somit verfälschen.

*2. Probengeometrie:*

Hier wurden die Mo-Folie nicht geklebt, sondern von einem Plättchen mit einem 3 mm dicken Loch, durch welches die Bestrahlung stattfand, an die gekühlte Unterlage gepreßt. Der Wärmekontakt war also genau am Entstehungsort der Wärme nicht optimal. Vorteil hierbei war, daß die Folie nicht mit Klebstoff benetzt wurde und auf höhere Temperaturen geheizt werden konnte.

**5.4.1 Bestrahlung mit Protonen**

Es wurde eine Probe in der 1. Geometrie bestrahlt. Die Bestrahlung erfolgte mit 14 MeV Protonen, einem Strahlstrom von  $1\mu\text{A}$  und dauerte 10 Minuten. Die anfänglich vorhandene Leerstellenkonzentration errechnet sich mit Hilfe des Programms TRIM (siehe dazu Kap. 2.4) überschlagsmäßig zu  $3 \times 10^{-5}$  pro Atom.

Teilchenart	Energie	Strom	Defektkonzentration
Protonen	14 MeV	$1 \times 10^{-6}$ A	$3 \times 10^{-5}$

Tabelle 5.2: Bestrahlungsparameter der mit Protonen großflächig bestrahlten Mo-Proben.

Die Positronenmeßergebnisse sind in Abb. 5.4 dargestellt. Durch das Ausheizen steigt der S-Parameter erst an und erreicht ab  $120^\circ\text{C}$  ein Plateau ca. 3,8 % über dem Wert im unbestrahlten Material.

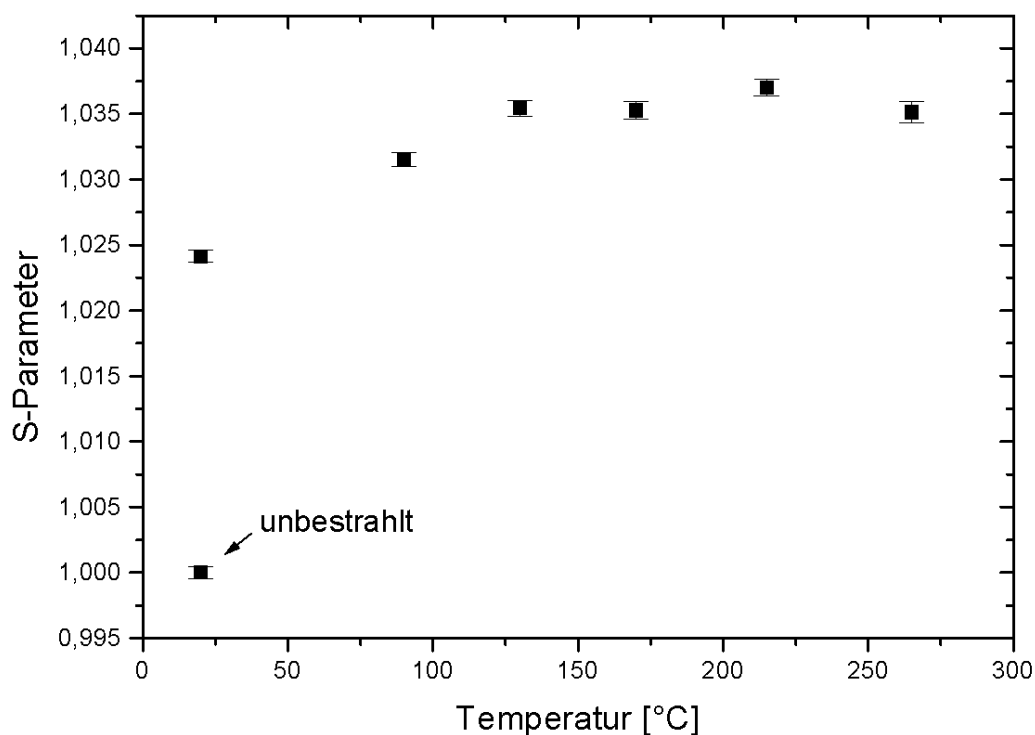


Abbildung 5.4: Messung des S-Parameters an protonenbestrahltem Molybdän: die Bestrahlung erfolgte bei Raumtemperatur, anschließend wurde getempert.

### 5.4.2 Bestrahlung mit Alphateilchen

Die 1. Probe (1. Geometrie) wurde mit 52 MeV Alphateilchen bei einem Strom von  $1 \mu\text{A}$  5 Minuten lang bestrahlt, die 2. (2. Geometrie) mit 56 MeV Energie bei 200 nA 25 Minuten lang. Die Bestrahlungszeiten wurden so gewählt, daß nach der Bestrahlung bei beiden Proben eine Leerstellenkonzentration von ca.  $3 \times 10^{-5}$  vorlag (TRIM). Hierbei wurde allerdings der Einfluß der Probentemperatur vernachlässigt.

Teilchenart	Probengeometrie	Energie	Strom	Defektkonzentration
Alphas	1. mit Kleber	52 MeV	$1 \times 10^{-6} \text{ A}$	$3 \times 10^{-5}$
Alphas	2. ohne Kleber	56 MeV	$2 \times 10^{-7} \text{ A}$	$3 \times 10^{-5}$

Tabelle 5.3: Bestrahlungsparameter der mit Alphateilchen großflächig bestrahlten Mo-Proben.

Probe 1 wurde wie die protonenbestrahlte Probe unter Normaldruck an Luft bis  $260^\circ\text{C}$  ausgeheizt, Probe 2 bei ungefähr  $5 \times 10^{-6} \text{ mbar}$  bis  $600^\circ\text{C}$  mit jeweils einem Fehler in der Temperatur von ca.  $\pm 8^\circ\text{C}$ .

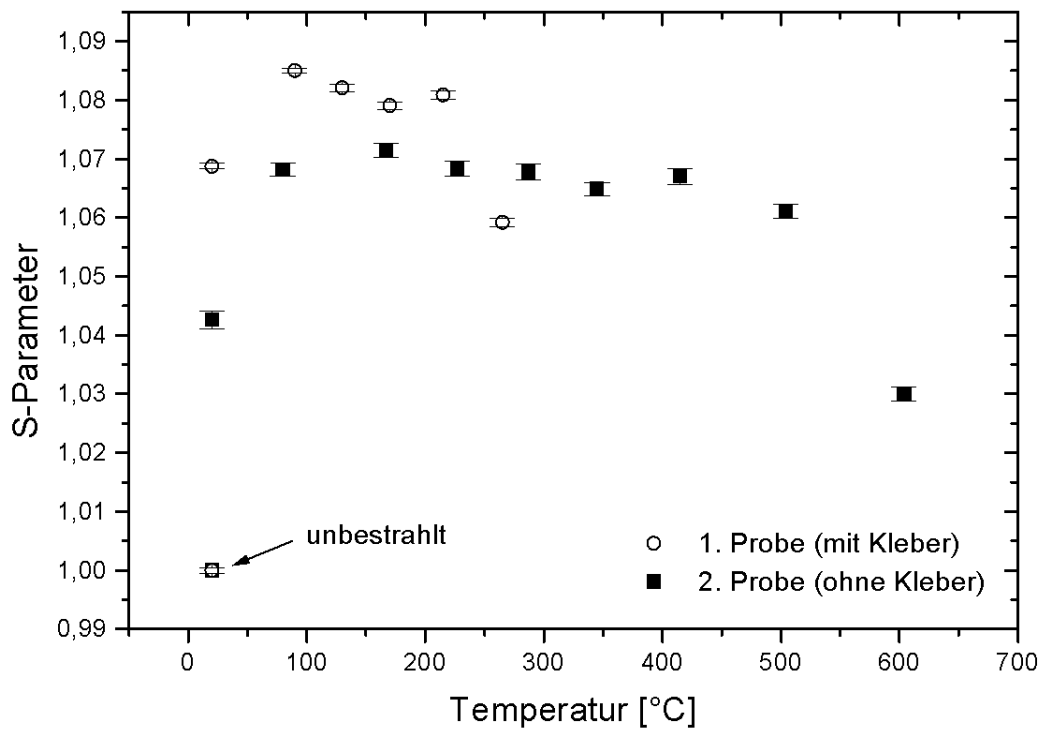


Abbildung 5.5: Alpha-Bestrahlung von Molybdän; danach Temperung, Fehler in der Temperatur: ca.  $\pm 8^\circ\text{C}$ . 1. Probe: 1. Geometrie (gute Kühlung aber geklebt), 2. Probe: 2. Geometrie (schlechte Kühlung, nicht geklebt).

Auch bei den mit Alpha-Teilchen bestrahlten Proben steigt der S-Parameter mit beginnender Erwärmung an (Abb. 5.5), um dann oberhalb von  $100^\circ\text{C}$  eine Art Plateau zu erreichen. Bei Probe 1 sinkt der S-Parameter langsam und erreicht bei  $260^\circ\text{C}$  einen niedrigeren Wert als bei Raumtemperatur. Bei Probe 2 zieht sich das Plateau bis zu wesentlich höheren Temperaturen hin und fällt erst ab  $500^\circ\text{C}$ . Bei  $600^\circ\text{C}$  sind es nur noch 2% Hub gegenüber dem Wert der unbestrahlten Probe. Zur Kontrolle wurde auch eine unbestrahlte Probe jeweils mit ausgeheizt und gemessen: Der S-Parameter blieb im Rahmen der Fehler konstant.

## Diskussion

Bei Probe 1 steigt der S-Parameter nach der Bestrahlung um ca. 7% im Vergleich zum unbestrahlten Wert, bei Probe 2 ergeben sich nur 4%. Der Unterschied ist vermutlich darin begründet, daß bei Probe 1 (1. Geometrie) die Kühlung während der Bestrahlung optimal war. Probe 2 (2. Geometrie) hingegen wurde nur mittels eines Ringes an die Unterlage gepreßt, so daß zwar außen ein guter Wärmekontakt herrschte, innen im bestrahlten Bereich aber nicht. Um den Nachteil auszugleichen,

wurde bei Probe 2 ein geringerer Strahlstrom gewählt, eine gewisse Erwärmung lag aber während der Bestrahlung offensichtlich trotzdem vor. Wie bei den Elektronenbestrahlungen konnten die erzeugten Zwischengitteratome mit den Leerstellen zum Teil ausheilen was zu einem kleineren S-Parameter führt.

Der maximale Hub im S-Parameter erreicht hier mit ca. 8,5 % seinen höchsten Wert, da der Impulsübertrag bei Bestrahlung mit Alpha-Teilchen am höchsten ist und somit auch wesentlich mehr und größere Defekte erzeugt wurden.

Der S-Parameter steigt mit steigender Temperatur, was auf ein Zusammenlagern der Leerstellen zu Mehrfachleerstellen und größeren Agglomeraten hindeutet. Eine erhöhte Zwischengitteratombeweglichkeit, wie im 2-ZG-Modell angenommen, würde diesen Effekt, der genau bei der Temperatur der Stufe III auftritt, nicht erklären. Im Gegensatz zu einer Erhöhung der Temperatur während der Bestrahlung sind hier die Zwischengitteratome längst ausgeheilt [Pet77], [Tan92] und die verbliebenen Leerstellen liegen in großer Konzentration vor. Bei einer Erhöhung der Temperatur können diese sich nur zusammenlagern oder an Senken wie Versetzungen oder der Oberfläche ausheilen. Da die Leerstellenbeweglichkeit mit der Temperatur zunimmt, dominiert am Anfang wegen ihrer hohen Konzentration die Agglomeration der Leerstellen. Bei höheren Temperaturen können die Leerstellen dann auch an den weiter entfernten Senken ausheilen.

Nach Erreichen eines Plateaus fällt der S-Parameter wieder. Der frühe Abfall des S-Parameters der Probe der 1. Geometrie kann auf ausgasende Kleberbestandteile zurückzuführen sein. Die hiervon unbelastete Probe der 2. Geometrie zeigt diesen Abfall erst ab 500-600°C, was der Stufe IV entspricht. Das Ausheilen der Leerstellclustern wird hier zum dominierenden Prozess, ihre Konzentration nimmt ab.

Diese Ergebnisse sprechen für das 1-ZG-Modell, also dafür, daß die Stufe III in Molybdän durch bewegliche Leerstellen zustande kommt.

## 5.5 Kleinflächige Bestrahlung mit Protonen

Die Idee war, das laterale Defektprofil nach einer Protonenbestrahlung zu messen. Unter Benützung eines sehr fein fokussierten Protonenstrahls konnten die Proben auf einem scharfkantigen Bereich bestrahlt werden. Um nun das Schadensprofil durch die Bestrahlung tiefenabhängig zu messen, wurden Proben unterschiedlicher Dicken benützt. Die Positronenmessungen erfolgten dann jeweils sowohl auf der Eintritts- als auch auf der Austritts-Seite der Protonen, so daß der Unterschied immer direkt verglichen werden konnte. Die Ergebnisse wurden anschließend mit Simulationen des Programms TRIM verglichen.

An der *Leipziger Ionen-Nanosonde*<sup>5</sup> wurden die Mo-Proben mit Protonen kleinflächig bestrahlt. Da hier die Erzeugung der benötigten Defektkonzentration wesentlich schneller vonstatten ging als bei den Elektronenbestrahlungen, konnte ein ganzer Streifen definierter Länge und Breite ( $80 \times 10 \mu m$ ) bestrahlt werden. Ein Protonenstrahl von  $1 \mu m$  Durchmesser schädigte diesen Streifen unter schnellem Abrastern sehr gleichmäßig, wobei der Strahlstrom  $20 \text{ pA}$  bei  $2250 \text{ keV}$  Energie betrug. Unter diesen Bedingungen sollte sich die Probe am Bestrahlungsort erfahrungsgemäß nicht weiter als  $50^\circ\text{C}$  aufheizen [Vog99].

Teilchenart	Energie	Strom	Protonendosis	Defektkonzentration
Protonen	2,25 MeV	$20 \times 10^{-12} \text{ A}$	$1,25 \times 10^{16} \text{ cm}^{-2}$	ca. $3 \times 10^{-5}$

Tabelle 5.4: Bestrahlungsparameter der mit Protonen kleinflächig bestrahlten Mo-Proben.

Die Messung mit dem Positronenstrahl (Strahldurchmesser:  $12 \times 20 \mu m^2$ ) erfolgte nun senkrecht zur Längsachse des bestrahlten Streifens, so daß der bestrahlte Bereich immer voll getroffen wurde (siehe Abb. 5.6). Die genaue Positionsbestimmung fand auch hier wieder mittels der Maschen der Kupfer-Netze statt.

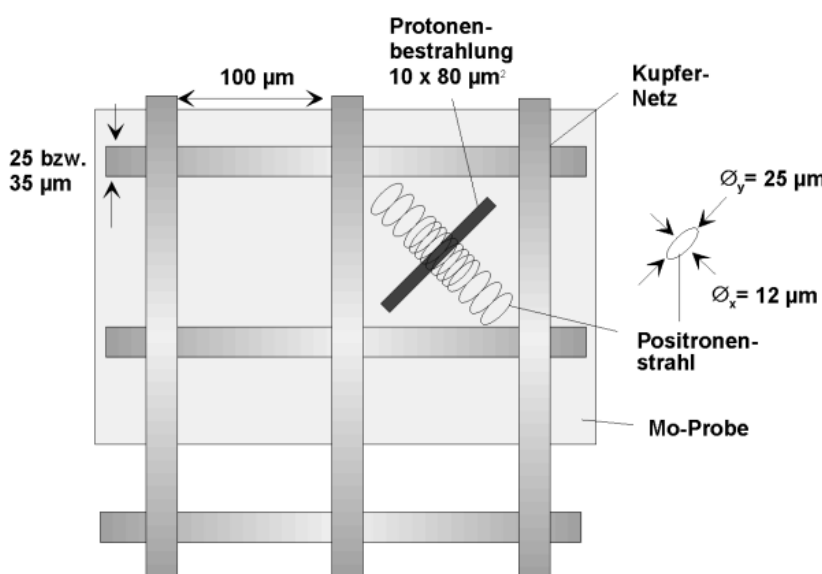


Abbildung 5.6: Schemazeichnung einer an der Leipziger Nanosonde mit Protonen bestrahlten Probe: Das Molybdän befand sich hinter einem Kupfer-Netzchen. Diagonal in eine Netzmasche des Gitters wurde mit Protonen bestrahlt, die danach mit Positronen untersuchten Punkte sind durch Ellipsen gekennzeichnet.

<sup>5</sup>Uni Leipzig, Fakultät für Physik und Geowissenschaften, Linnestr. 5, D-04103 Leipzig

Bei den Positronenmessungen quer zum bestrahlten Streifen erhielt man ein S-Parameterprofil wie es exemplarisch in Abb. 5.7 dargestellt ist. Dieses Profil ist zusätzlich zum Schadensprofil auch vom Durchmesser des Positronenstrahls (ca.  $12\ \mu\text{m}$  in dieser Richtung) abhängig. Zur Auswertung wurden an die Meßkurven Gaußfunktionen angefitet<sup>6</sup>, welche, wie in Abb. 5.7 zu sehen, die Meßdaten im Rahmen der Fehler recht gut anpassen. Diese Form und die Breite von ca.  $20\ \mu\text{m}$  des gemessenen Defektprofils entspricht exakt einer Faltung aus einer  $10\ \mu\text{m}$  breiten Stufenfunktion mit einer  $12\ \mu\text{m}$  breiten Gaußfunktion.

In Abb. 5.8 ist für die dickste Probe der direkte Vergleich für eine Messung in Protonen-Eintritts- und -Austrittsrichtung und der jeweilige Fit gezeigt. Das Defektprofil ist auf der Austrittsseite mit  $14\ \mu\text{m}$  wesentlich schmaler als auf der Eintrittsseite ( $22\ \mu\text{m}$ ). Der S-Parameter sinkt auf der Eintrittsseite im unbestrahlten Bereich auf einen höheren Wert ab, als bei allen anderen Proben. Dies wird auf Oberflächeneffekte etwa durch leichte Verschmutzung zurückgeführt, hat aber keinen Einfluß auf die ermittelte Breite der Defektverteilung.

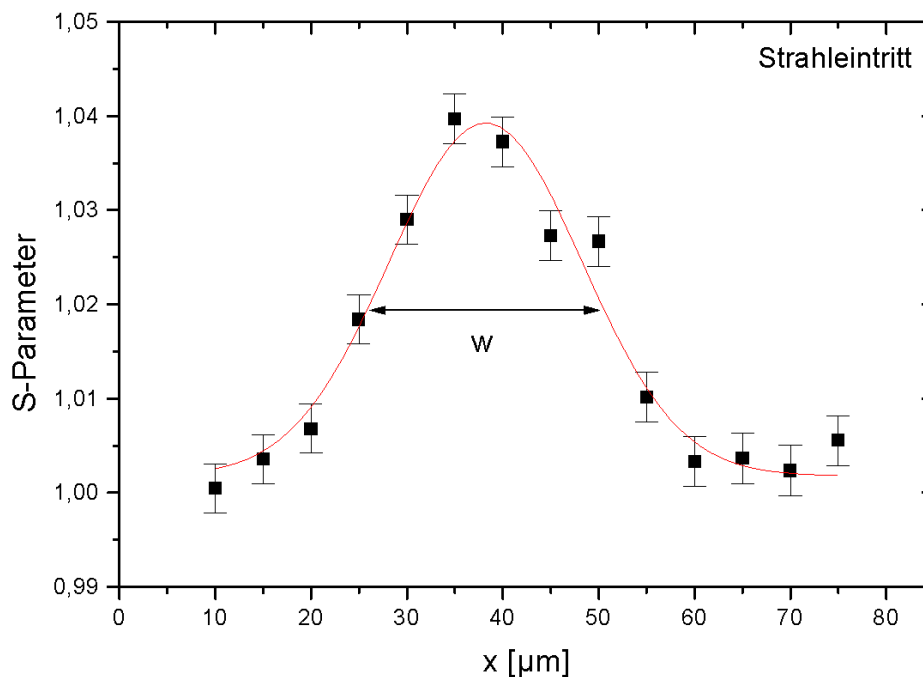


Abbildung 5.7:  $25\ \mu\text{m}$  dickes Molybdän, protonenbestrahlt, Messung in Protonen-Eintrittsrichtung: Beispiel eines Gauß-Fits an die Meßdaten. Fit-parameter:  $w = 2\sigma$ -Breite der Gauß-Kurve.

<sup>6</sup>Es wurde auch eine Faltung des gaußförmigen Strahlprofils mit dem stufenförmigen Strahlprofil der Defektverteilung (siehe hierzu 3.7) an die Meßdaten angepaßt. Hierbei ergab sich aber eine vollkommene Übereinstimmung der beiden Kurven, so daß die hier durchgeführten Gauß-Fits den Anforderungen vollauf genügen.

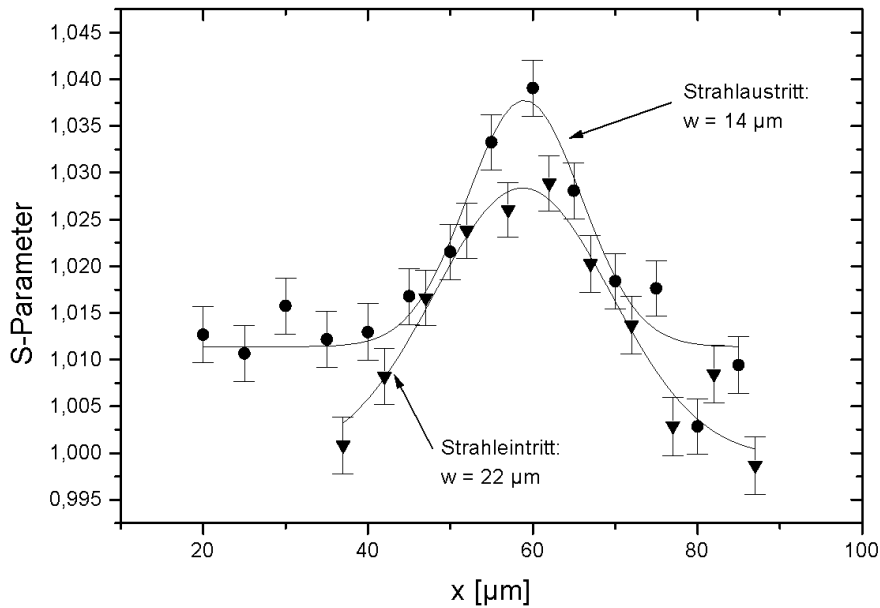


Abbildung 5.8: 26,5  $\mu\text{m}$  dickes Molybdän: Scan über einen protonenbestrahlten Bereich, von beiden Seiten mit Positronen gemessen. Die Breite  $w$  der Kurven ist in Protonen-Austrittsrichtung kleiner als in Eintrittsrichtung.

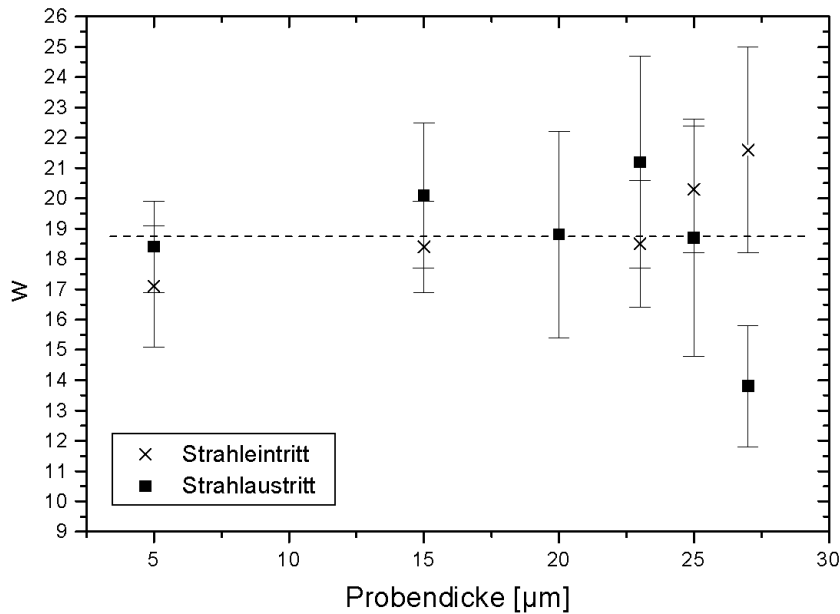


Abbildung 5.9: Aus den Fits ermittelte  $w$ -Werte für verschiedene Probedicken sowie für Messungen in Protonenein- und -austrittsrichtung. Man erkennt nur für die dickste Probe einen signifikanten Abfall in Austrittsrichtung.



Die durch den Fit ermittelten Werte  $w$  für die 2-Sigma-Breite der Gaußfunktion und der maximale S-Parameter sind ein Maß für die Art der Defektverteilung. In Abbildung 5.9 sind die  $w$ -Werte in Abhängigkeit von der Probendicke abgebildet. Man erkennt trotz der relativ großen Fehler, welche hauptsächlich auf die schlechte Statistik bei den Positronenmessungen zurückzuführen sind, daß die Breite des bestrahlten Bereiches bis auf den letzten Wert konstant ist. Für den letzten Meßwert, in einer Tiefe, wo schon ein Großteil der Protonen stecken geblieben ist, erhält man eine wesentlich schmalere Verteilung.

### Simulation mit TRIM:

Die Simulation der durchgeführten Bestrahlung mit dem Programm **TRIM92** ergibt folgende Ergebnisse (siehe Abb. 5.10 und Abb. 5.11):

- mittlere Eindringtiefe:  $22,4 \mu\text{m}$  Streuung:  $1 \mu\text{m}$
- laterale Projektion:  $1,5 \mu\text{m}$  Streuung:  $2 \mu\text{m}$
- radiale Projektion:  $2,3 \mu\text{m}$  Streuung:  $1,7 \mu\text{m}$

Im Gegensatz zu der in Abb. 5.10 gezeigten maximalen radialen Streuung ist zum Vergleich mit den Messungen die mittlere radiale Aufstreuung („radiale Projektion“) von Interesse. Der ermittelte Wert dieser Größe, die die seitliche Entfernung angibt, in der unter einer Maske die Schädigung auf die Hälfte abgesunken ist, ist im Vergleich zu den hier benutzten  $20 \mu\text{m}$  des Positronenstrahldurchmessers viel zu klein, um nachgewiesen werden zu können.

### Diskussion

Die gemessenen Defektprofile von Protonenein- und -austritt bei allen Proben bis auf die dickste stimmen im Rahmen der Fehler und der möglichen Auflösung überein. Eine Aufstreuung der Defekte mit zunehmender Tiefe ist nicht auszumachen, was verständlich ist, da die mit TRIM erhaltenen Werte unterhalb der Nachweisgrenze liegen.

Die dickste Probe ist mit ihren  $ca. 26,5 \pm 1 \mu\text{m}$  um einiges dicker als die mittlere Eindringtiefe der Protonen in Molybdän ( $ca. 22,4 \mu\text{m}$  mit  $1 \mu\text{m}$  Streuung nach TRIM). Abzüglich  $1 \mu\text{m}$  Positroneneindringtiefe ist klar, daß nur die durch die am weitesten eingedrungenen Protonen erzeugten Fehlstellen gemessen worden sein können. Es wird vermutet, daß es Protonen oder auch von ihnen erzeugten Ersetzungsstoßfolgen in exakt gerader Richtung möglich ist, ein wenig weiter in das Material einzudringen als die mittlere Protoneneindringtiefe. Da dies aber nur für die gerade Richtung

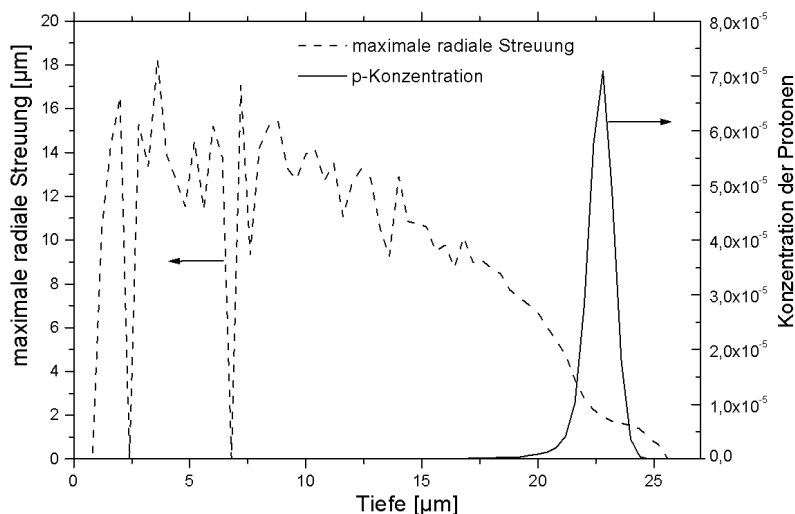


Abbildung 5.10: Eindringtiefe und maximale radiale Streuung bei Bestrahlung von Mo mit 2,25 MeV Protonen (TRIM92). Wegen zu geringer Statistik schwanken die Werte für die maximale radiale Streuung sehr stark.

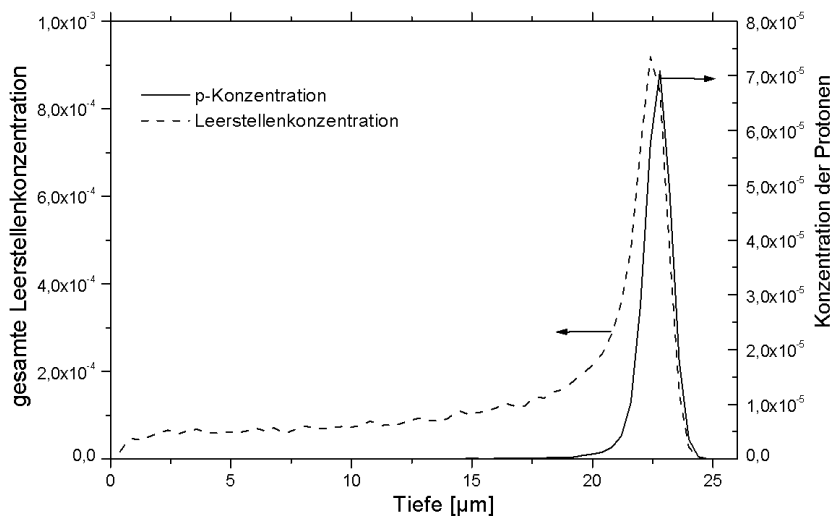


Abbildung 5.11: Gesamte Leerstellenkonzentration (direkt erzeugte und durch Rückstreuung entstandene) und Eindringtiefe bei Bestrahlung von Molybdän mit 2250 keV Protonen, Simulation mit TRIM92.

gilt, entspricht die laterale Breite dieser Verteilung nur noch ca.  $2/3$  der Einschubbreite. Eine mögliche Erklärung wäre, daß die Protonen channeln. Die Körner in den Proben sind ca.  $100 \mu\text{m}$  groß, aber channeln ist nur in bestimmten kristallographischen Richtungen möglich. Da aber die Ausrichtung der Körner zufällig war, ist diese Erklärung nicht sehr wahrscheinlich.

Ein Vergleich mit TRIM ergibt (Abb. 5.10), daß die laterale Projektion der erzeug-

ten Defekte in Tiefen oberhalb der mittleren Eindringtiefe nur noch sehr gering ist. Dies ist aber nicht gleichbedeutend mit einer Verschmälerung des Defektprofils.

Das Entstehen von Spannungsfeldern durch lokales mechanisches Quellen der Probe während der Bestrahlung ist bei diesen Dosen nicht möglich.

### 5.5.1 Bestrahlung von Wolfram - Vergleich mit Positronen-Reemissions-Mikrosonde

Dieselbe kleinflächige Bestrahlung mit Protonen wurde mit Wolfram-Proben durchgeführt (bestrahlter Streifen:  $10 \times 80 \mu\text{m}$ , 2250 keV Strahlenergie, 20 pA Strahlstrom).

Teilchenart	Energie	Strom	Protonendosis
Protonen	2,25 MeV	$20 \times 10^{-12}$ A	$1,25 \times 10^{16} \text{ cm}^{-2}$

Tabelle 5.5: Bestrahlungsparameter der mit Protonen kleinflächig bestrahlten W-Proben.

Die Proben wurden vorher bis ca.  $3300^\circ\text{C}$  im Vakuum ausgeheizt und ebenfalls auf Kupfernetzchen aufgeklebt. Die gemessenen Ergebnisse sollten mit denen des Positronen-Reemissions-Mikroskops an der University of East Anglia, England<sup>7</sup> verglichen werden. Da in Wolfram der Anteil der reemittierten Positronen wesentlich größer als bei Molybdän ist, wurden diese Proben zum testen der Methode präpariert.

#### Ergebnisse mit der Positronen-Mikrosonde

Das Meßverfahren erfolgte analog zu dem vorher dargestellten. Es wurde jeweils die Strahleintritts- und -austrittsseite einer 5 und einer  $15 \mu\text{m}$  dicken Wolfram-Probe vermessen. In Abb. 5.12 ist exemplarisch ein Querscan über einen bestrahlten Streifen dargestellt. Zu erkennen ist, daß der S-Parameter einen Hub von ca. 2% hat, was sich bei allen vier Messungen ergibt. Die Breite von ca.  $18 \pm 2,3 \mu\text{m}$  ist ebenfalls bei allen ähnlich und vergleichbar mit den an den Molybdän-Proben gemessenen Breiten (Positronenstrahldurchmesser: ca.  $12 \mu\text{m}$  quer zum bestrahlten Streifen).

Die Messungen mit der Positronenmikrosonde ergeben Ergebnisse, die mit den an Molybdän gemessenen übereinstimmen. Die Breiten der Kurven sind ähnlich, was aus den gleichen Defektprofilen und Strahldurchmessern resultiert. Der Hub im S-Parameter ist mit ca. 2% etwas geringer als bei Molybdän. Dies ist durch die etwas

<sup>7</sup>School of Physics, University of East Anglia, Norwich NR4 7TJ, UK

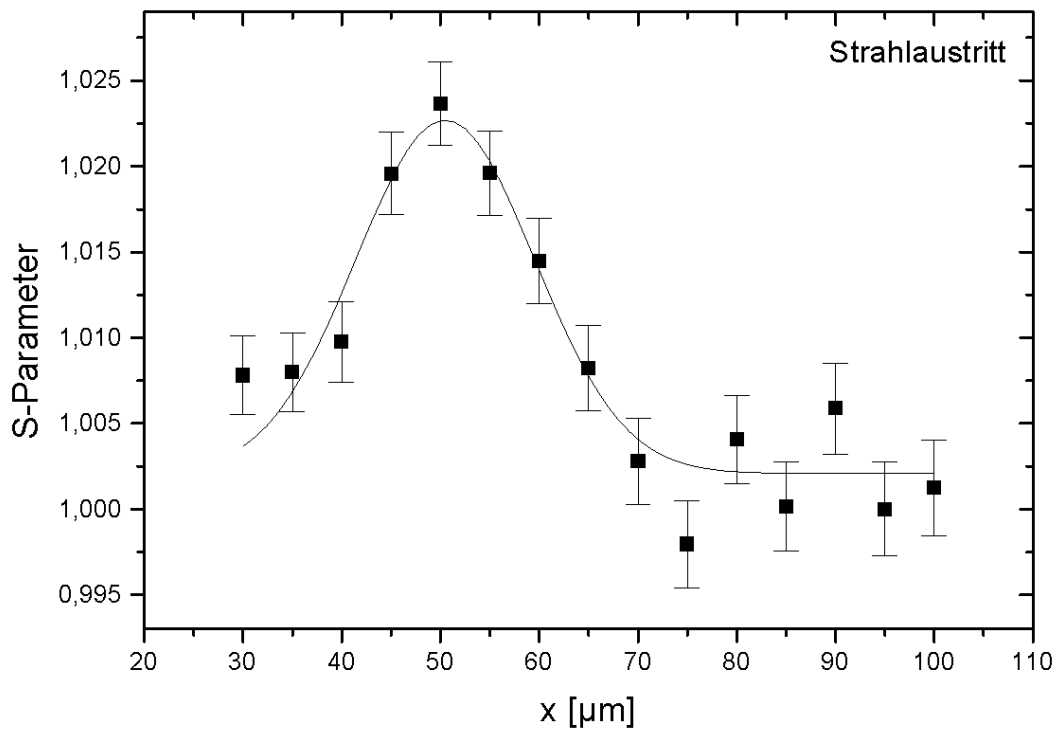


Abbildung 5.12: Positronenmessung einer kleinflächig mit Protonen bestrahlten Wolfram-Probe (Dicke:  $15 \mu\text{m}$ , Strahlaustrittsseite).

höhere Verlagerungsenergie ( $T_d(W) \approx 50 \text{ eV}$ ,  $T_d(Mo) \approx 34 \text{ eV}$ ) und die dadurch geringere Defektkonzentration erklärbar.

### Ergebnisse mit dem Positronen-Reemissions-Mikroskop

Auch bei längerem Messen kann kein Unterschied in der Reemission von bestrahltem und unbestrahltem Wolfram festgestellt werden. Dieses Ergebnis wurde in verschiedenen Messungen an unterschiedlichen Proben bestätigt. Die erzeugte Defektkonzentration hat anscheinend die Diffusionslänge der Positronen nicht genug verringert.

Die Diffusionslänge für Positronen in defektfreiem Wolfram ist  $1000 \text{ \AA}$ . Diese Diffusionslänge wird durch die Bestrahlungsdefekte (Bestrahlungsdosis:  $1,25 \times 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ ) um ca. 30% kleiner, was aber immer noch größer als die mittlere Eindringtiefe von  $160 \text{ \AA}$  (bei  $0,95 \text{ keV}$  Strahlenergie) ist. Der Anteil der reemittierten Positronen wird dadurch um ca. 3,3% verringert, was mit der bestehenden Apparatur auch in mehreren Wochen nicht meßbar ist [Col99].

Hier sind die Vorteile der Bonner Mikrosonde besonders augenfällig, sie hat keine

Einschränkungen für das Probenmaterial, eine gute Ortsauflösung und nach Einbau der neuen Quelle eine wesentlich bessere Zählrate.

## 5.6 Vergleich der verschiedenen Messungen in Molybdän

Zum Vergleich sind alle bisherigen Meßwerte noch einmal in einem S-/W-Plot dargestellt (Abb. 5.13). Hierbei ist also die vorher mit relativ hoher Unsicherheit angegebene Defektkonzentration herausgefallen. Wie leicht zu erkennen ist, liegen alle Werte recht gut auf einer Geraden. Auch bei Variation der Fensterbreiten für S- und

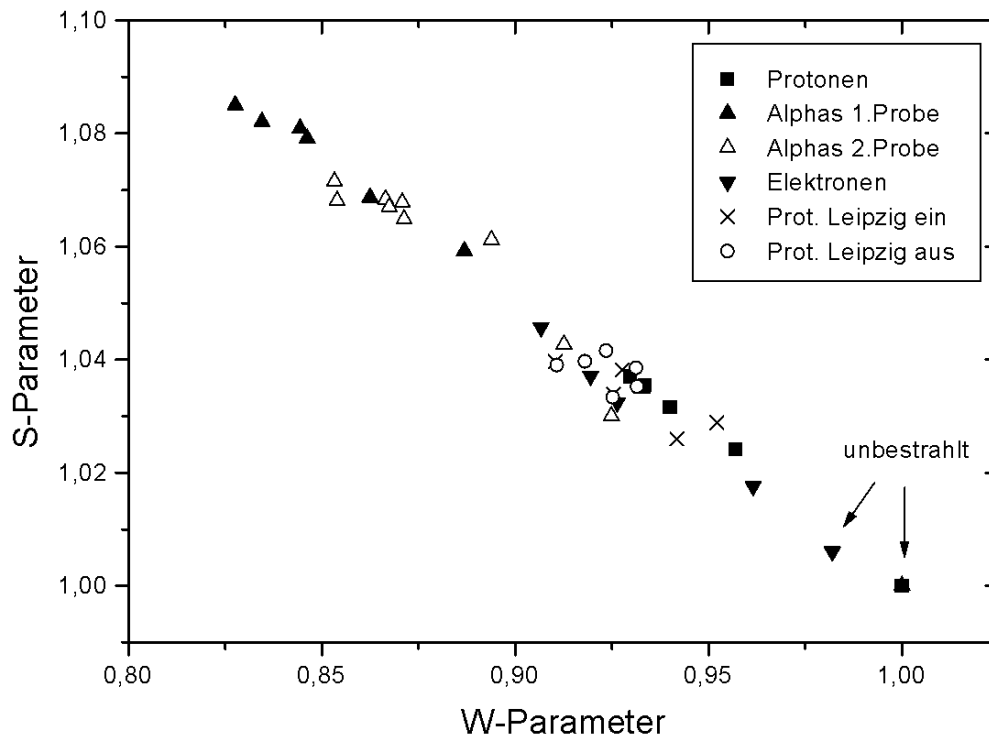


Abbildung 5.13: Vergleich von Elektronen-, Protonen- und Alpha-bestrahltem Molybdän, teils getempert, teils an der Leipziger Nanosonde mit Protonen bestrahlt (siehe dazu vorherige Plots).

W-Parameter bleiben die Punkte auf einer Geraden, es ist also keine Unterscheidung der verschiedenartigen Defekttypen erreichbar. In den elektronenbestrahlten Proben liegen sicherlich fast nur Einzelleerstellen vor, wohingegen die Alpha-bestrahlten Proben vor allem nach den Temperaturen eine hohe Zahl von Mehrfachleerstellen enthalten (siehe dazu Kap. 2.3).

Im Gegensatz zu Halbleitern unterscheiden sich wohl bei Metallen die lokalen Elektronenimpulse in unterschiedlichen Defekten nicht stark genug für eine Unterscheidung im S-/W-Plot, da das Elektronengas weitgehend homogen verteilt ist.

## 5.7 Zusammenfassung der Ergebnisse

An den elektronenbestrahlten Mo-Proben konnte ein fast linearer Zusammenhang zwischen errechneter Defektkonzentration und dem gemessenen S-Parameter nachgewiesen werden. Dies bestätigt die zuvor erläuterte Proportionalität zwischen erzeugter Defektkonzentration und der Wurzel aus der Bestrahlungszeit. Bei Benutzung eines höheren Strahlstromes sinkt der S-Parameter allerdings, da die Temperatur am Bestrahlungsort offensichtlich steigt und die entstehenden Leerstellen direkt mit den Zwischengitteratomen ausheilen. Nach einer vorherigen Eichmessung könnte auf diese Weise sogar die ansonsten nicht meßbare Temperatur während der Bestrahlung bestimmt werden, diese ist allerdings auch stark vom jeweiligen Probenmaterial und der Wärmeisolierung des Probenhalters abhängig.

Die Messungen an großflächig mit Protonen und Alpha-Teilchen bestrahlten Mo-Proben wurden nach verschiedenen Temperschritten durchgeführt. Hierbei ist eine anfängliche Zunahme des S-Parameters mit der Temperatur zu beobachten, welche durch ein Zusammenlagern der beweglich werdenden Leerstellen zu erklären ist. Im Gegensatz zu einer Temperaturerhöhung während der Bestrahlung sind hier die Zwischengitteratome bereits ausgeheilt und können nicht zu einer Vernichtung der Leerstellen führen. Die Ergebnisse sprechen stark für das 1-Zwischengitteratom-Modell, nach dem die Stufe III durch bewegliche Leerstellen zustande kommt.

Die Defektprofile nach kleinflächiger Protonen-Bestrahlung konnten tiefenabhängig grob nachvollzogen werden. Die laterale Aufstreuung der Defekte kann in Übereinstimmung mit TRIM nicht nachgemessen werden, allerdings ist in großer Tiefe eine Verschmälerung des Defektprofiles zu erkennen. Dies kann darauf beruhen, daß ein Teil der Protonen auf geradem Flug um einiges tiefer als die mittlere Reichweite ins Material eingedrungen ist oder Ersetzungsstoßfolgen in gerader Richtung sehr weit kommen können. Da die Körner in der Folie in der Größenordnung von  $100\ \mu\text{m}$  sind, könnte dieser Effekt durch Channeling zustande kommen, was aber relativ unwahrscheinlich ist, da die Ausrichtung der Körner zufällig war.

Bei der gleichen Bestrahlung von Wolfram ergaben sich ähnliche Ergebnisse, für einen Vergleich mit Messungen des Positronen-Reemissions-Mikroskops war aber die erzeugte Defektkonzentration zu gering, was die Stärken der Bonner Mikrosonde aufzeigt.

Nach einer Auftragung der gewonnenen Meßpunkte im S- gegen W-Plot kann man sagen, daß auch bei stark unterschiedlichen Bestrahlungen, in denen verschiede-

ne Defekttypen entstanden sein müssen, keine Unterscheidung der verschiedenen Typen mit Hilfe der Messung der Doppler-Verbreiterung in Metallen möglich ist.

## Kapitel 6

# Strahlenschäden in Si und SiO<sub>2</sub>: Experimente und Diskussion

Ähnlich wie bei den Messungen an kleinflächig bestrahltem Molybdän soll hier die laterale Aufstreuung von Ionen in Si und SiO<sub>2</sub> untersucht werden. Hintergrund ist die Idee, eine Methode zur einfachen Produktion von optischen Elementen für Lichtleiter aufzuzeigen.

Da die Lichtleiter über ihre gesamte Breite gleichmäßig geschädigt werden sollten, wurden Ionen höherer Energie als die in Leipzig zur Verfügung stehenden benötigt. Die Bestrahlungen wurden deswegen mit 54-56 MeV Alpha-Teilchen am hauseigenen Isochron-Zyklotron durchgeführt. Um eine laterale Aufstreuung messen zu können, benötigte man sehr gerade Kanten des bestrahlten Bereiches. Diese und eine zusätzliche Verminderung der Winkeldivergenz des Strahls sollten durch einen vor die Probe gesetzten Kollimator erreicht werden. Zum testen der Methoden wurde mit der Bestrahlung von Silizium begonnen, da bereits bestrahlte Silizium-Proben mit Positronen untersucht worden waren [Mae96].

### 6.1 $\alpha$ -bestrahltes Si

#### 6.1.1 Eigenschaften von Silizium

Durch die große Bedeutung von Silizium in der Elektronik ist dieses Material schon seit langem Objekt intensiver Forschungen, unter anderem auch mit der Methode der Positronenvernichtung. Eine Zusammenfassung der bisher untersuchten Defekttypen ist zum Beispiel in [Hau95] zu finden. In [Rea95] wird mehr auf die anwendungstechnischen Details in integrierten Schaltkreisen eingegangen, während es neben unzähligen Untersuchungen an bestrahltem Silizium (z.B. [Kei88], [Eic97]) auch Messungen an plastisch verformten Proben gibt [Kra93].

Abgesehen von den in der Literatur veröffentlichten Ergebnissen waren aus vor-



hergehenden Messungen an protonenbestrahlten Proben [Mae96] die Bestrahlungsparameter weitgehend bekannt. Da für diese Messungen durch einen eigens dafür gebauten Kollimator bestrahlt werden mußte, wurde für die ersten Messungen das schon besser bekannte Silizium ausgewählt.

### 6.1.2 Messungen

Als erster Test wurde eine Si-Probe mit 54 MeV  $\alpha$ -Teilchen durch einen Kollimator mit einem Schlitz von  $0,1 \times 3 \text{ mm}^2$  bestrahlt. Um den auf die Probe treffenden Strom messen zu können, mußte der Kollimator von der wassergekühlten Probenhalterung isoliert werden. Der Großteil des Strahlstromes traf den Kollimator und die dabei deponierte Wärme wurde über die Si-Probe abgeführt. Der durch den Schlitz des Kollimators auf die Probe treffende Strom wurde auf ca. 0,5 nA geregelt. Die anschließende Positronenmessung ergab keinen Unterschied zwischen bestrahltem und unbestrahltem Bereich. Es ist zu vermuten, daß zu wenig Defekte erzeugt wurden und diese Defekte wegen unzureichender Kühlung sofort wieder ausgeheilt sind.

Für die folgenden Bestrahlungen wird ein neuer,  $100 \mu\text{m}$  breiter Kollimator gebaut (siehe dazu Schemazeichnung Abb. 6.1). Die Energie der Alpha-Teilchen betrug wiederum 54 MeV bei einem Strahlstrom von ca. 10 nA auf dem Target.

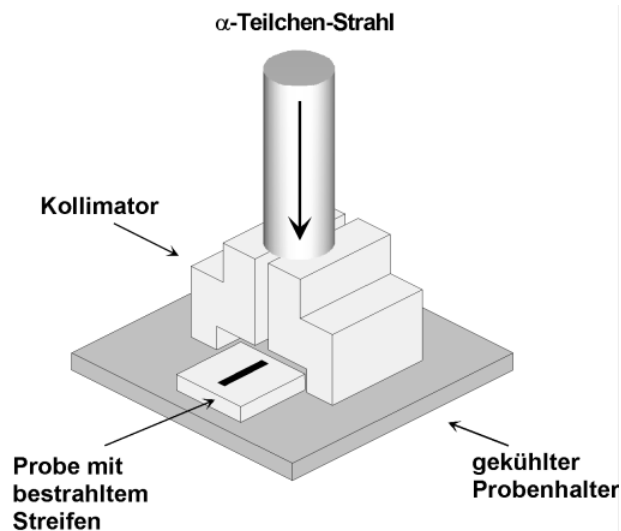


Abbildung 6.1: Schema einer Protonenbestrahlung durch einen Kollimator. Breite des Kollimators:  $100 \mu\text{m}$ , Durchmesser des Protonenstrahls: ca. 3 mm.

Um diesen zu messen, wurde das Target gegen den Rest des Probenhalters und den darauf montierten Aluminium-Kollimator isoliert. Wichtig war ein guter Wärmekontakt des Kollimators mit der Wasserkühlung, da ihn der größte Teil des

Teilchenart	Energie	Strom	Dosis
$\alpha$ -Teilchen	54 MeV	$10 \times 10^{-12}$ A	ca. $1 \times 10^{15}$ cm <sup>-2</sup>

Tabelle 6.1: Bestrahlungsparameter der mit  $\alpha$ -Teilchen bestrahlten Si-Proben.

Strahls trifft (Strahldurchmesser ca. 3 mm). Eine elektrische Isolierung der Probe gegen den Probenhalter beinhaltete aber ebenfalls eine Isolierung gegen die Kühlung, was bei dem geringen Strahlstrom allerdings als unproblematisch angesehen wurde. Der durch die Probe auf ein Kupfer-Plättchen fallende Strom wurde mit Hilfe eines Nanoampèremeßgerätes während der Bestrahlung kontinuierlich gemessen und auf einen konstanten Wert geregelt. Hierbei wurden natürlich auch die durch Streuung des Strahls an den Kollimatorinnenwänden herausgelösten Elektronen und Sekundärionen gemessen, soweit sie die Probe durchdringen konnten. Der gemessene Strom war also nicht als exakte Größe sondern nur als Richtwert zum Vergleich der verschiedenen Proben und vor allem während der Bestrahlung selbst von Bedeutung. Allerdings entsprach der Anteil des gemessenen Stromes am Gesamtstrom in etwa dem Anteil der Fläche des Kollimator-Schlitzes an der gesamten Strahlquerschnittsfläche.

Wie in Abb. 6.1 zu erkennen, sollte sich ein bestrahlter Bereich der Breite  $100 \mu\text{m}$  und einer Länge von ca. 3 mm ergeben. Für die Positronenuntersuchungen wurde wieder ein Scan senkrecht zum bestrahlten Streifen durchgeführt. Es wurden 2 verschieden dicke Proben verwendet, deren Ober- und Unterseite jeweils vermessen wurden. Außerdem wurde das dickere Target mit einer Diamantdrahtsäge senkrecht zum Kollimatorschlitz und zur Strahlrichtung schonend durchgesägt (siehe Abb. 6.2) und die anschließend polierte Stirnfläche an verschiedenen Stellen untersucht, was unterschiedlichen Eindringtiefen entsprach. Da Silizium bei Raumtemperatur nicht plastisch verformbar ist, sollten nach sorgfältigem mechanischen Polieren bis auf eine Körnung von  $6 \mu\text{m}$  keine zusätzlichen Defekte vorliegen. Die Ergebnisse wurden mit denen aus dem Programm TRIM erhaltenen Simulationsergebnissen verglichen.

In Abb. 6.3 ist eine exemplarische Meßkurve eines Positronenscans über einen bestrahlten Streifen dargestellt. Wie leicht zu erkennen ist, ist der Verlauf der Meßwerte weit von dem einer Gauß-Kurve entfernt und wesentlich eher durch die in Kap. 3.7 erklärte Faltung aus Gauß- und Stufenfunktion anzunähern. Dies ist aus den physikalischen Sachverhalten auch leicht einsichtig: War in den vorangehenden Messungen an Protonen-bestrahlten Molybdän-Proben der Positronen-Strahldurchmesser ( $12 \mu\text{m}$ ) fast genauso groß wie die Breite der Defektverteilung ( $10 \mu\text{m}$ ), so ist er nun mit  $20 \mu\text{m}$  wesentlich geringer als die  $100 \mu\text{m}$ , die jetzt vorliegen. Des weiteren beträgt die Breite der Defektverteilung nicht  $100 \mu\text{m}$  wie der Kollimator sondern ca.  $200 \mu\text{m}$ .

Da sich bei einer freien Wahl der Fitparameter der Faltungsfunktion sehr große Feh-

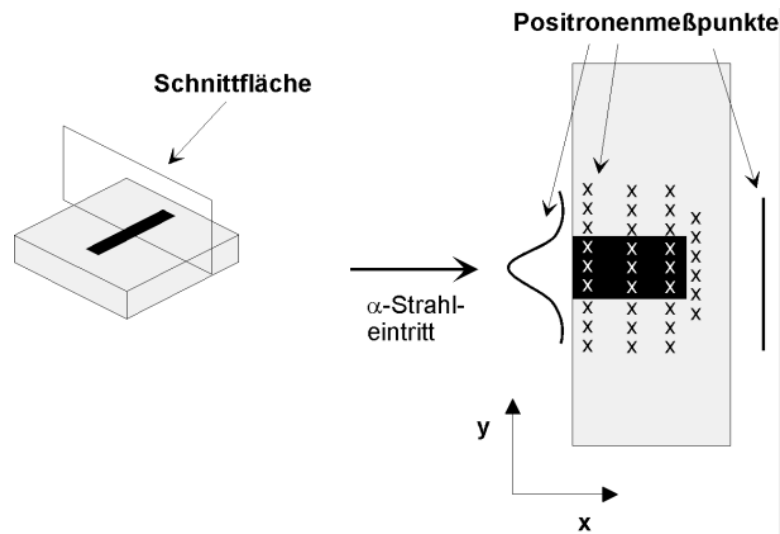


Abbildung 6.2: Die bestrahlten Proben wurden durchgesägt, die Stirnflächen poliert und anschließend für verschiedene  $x$ -Werte - also für verschiedene Tiefen mit Positronen gemessen.

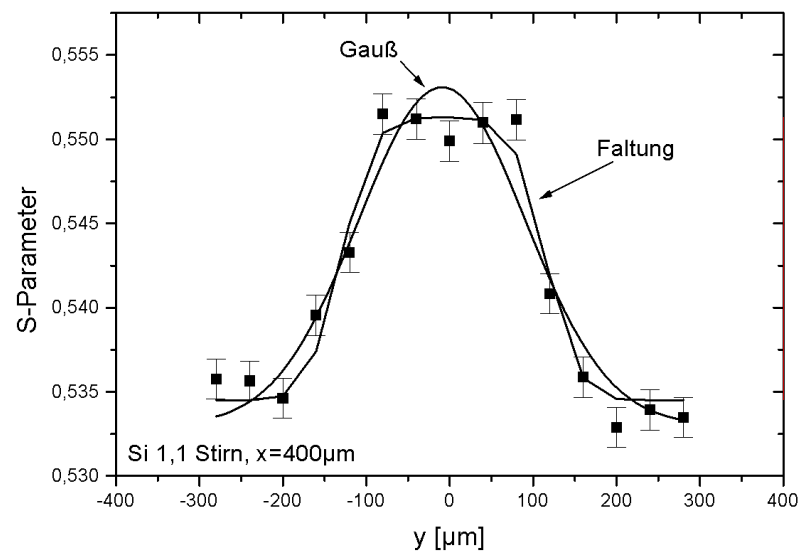


Abbildung 6.3: Beispiel eines Positronenscans über eine durch einen Kollimator mit 54 MeV Alphateilchen bestrahlte Silizium-Probe (Dicke 1,1 mm), Entfernung von der Oberfläche in Bestrahlungsrichtung:  $x = 400 \mu\text{m}$ .

ler der erhaltenen Parameter ergaben, wurde zur Auswertung jeweils die Breite der Gaußfunktion als fest gewählt (in einer Größe, die bei allen Meßdaten zu einem akzeptablen Ergebnis führte) und der andere Parameter - die Breite der Stufe - angepaßt. Die für den Fit benötigte Breite der Gaußkurve beträgt ca.  $140 \mu\text{m}$  und ist wesentlich größer als es dem realen Positronenstrahldurchmesser von  $20 \mu\text{m}$  ent-

sprechen würde. Es fällt auf, daß sich die so bestimmte Breite des Defektprofils mit der Tiefe verringert ( Abb. 6.4). Der hiervon abweichende Meßwert bei 500  $\mu\text{m}$  Tiefe stammt von der Strahlaustritts-Seite der dünneren Probe und muß durch Oberflächeneffekte zu erklären sein.

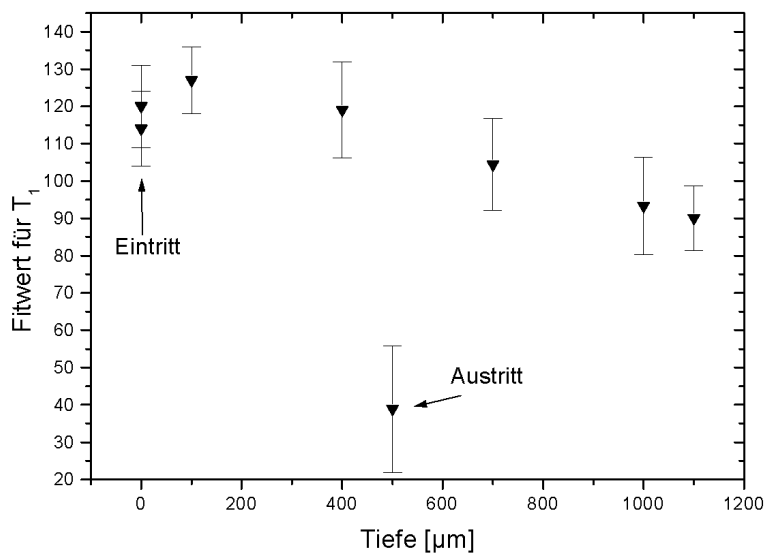


Abbildung 6.4: Ergebnisse der Fitfunktion bei konstantem  $b$  (entspricht  $140 \mu\text{m}$ ) in Abhängigkeit von der Tiefe. Die Breite der Defektverteilung sinkt sukzessive mit der Eindringtiefe. Mittlere Eindringtiefe der  $\alpha$ -Teilchen:  $1,18 \pm 0,01 \text{ mm}$ .

In Abb. 6.5 ist der S-Parameter längs des bestrahlten Streifens, also für verschiedene Tiefen, aufgetragen. Da die mittlere Reichweite der  $\alpha$ -Teilchen größer als die Proben-  
dicke ist, ist der Wert des S-Parameters über den ganzen Bereich hinweg konstant. Zu beiden Seiten der Probe fällt er stark ab, da die Positronen jeweils im Proben-  
halter aus mechanisch bearbeitetem Messing zerstrahlen. Die Form des gemessenen Defektprofils scheint sich mit zunehmender Tiefe (Abb. 6.6) zu ändern. Auf der Oberfläche der Einschuß-Seite der Alpha-Teilchen ergibt sich ein plateauförmiger Verlauf. Mit zunehmender Tiefe werden die Flanken immer flacher, bis sich schließlich in der Mitte eine Spitze ausbildet.

Ergebnisse der TRIM-Simulation ( $54 \text{ MeV } \alpha$  in Si):

- mittlere Eindringtiefe:  $1,18 \pm 0,01 \text{ mm}$
- laterale Projektion:  $16 \mu\text{m}$ , Streuung:  $23 \mu\text{m}$
- radiale Projektion:  $25 \mu\text{m}$ , Streuung:  $21 \mu\text{m}$

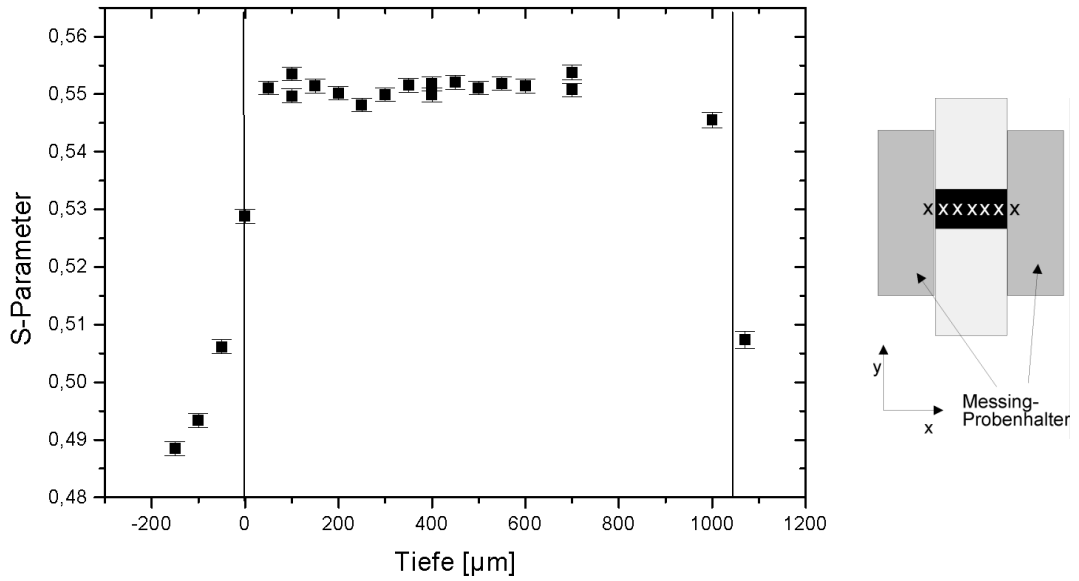


Abbildung 6.5: S-Parameter längs eines bestrahlten Streifen einer ca. 1,1 mm dicken Si-Probe. Der S-Parameter ist über die ganze Tiefe hinweg konstant und fällt an beiden Enden stark ab (Messung des Messing-Probenhalters).

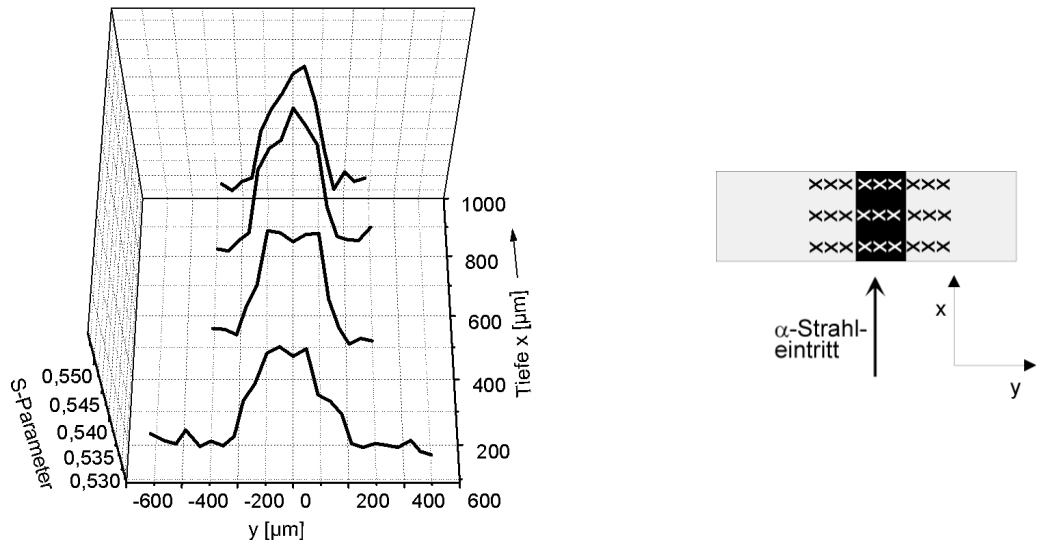


Abbildung 6.6: Die Form des Defektprofils ändert sich mit der Tiefe: erst hat es in der Mitte ein Plateau, nachher eine Spitze. Zur Größe der Fehlerbalken siehe Abb. 6.3.

Die großen Fehler der Simulation beruhen auf unzureichender Statistik, es wurden zwar 99 999 Ereignisse berechnet, aber nur ein kleiner Teil trägt zur Aufstreuung bei.

Bei der Bestrahlung von Silizium mit Alpha-Teilchen werden einige instabile Phosphorisotope erzeugt, die wichtigsten sind aber reine  $\beta^-$ -Emitter, können also die Messung nicht beeinträchtigen:

$$\begin{aligned} {}^{29}\text{Si}(\alpha, p){}^{32}\text{P}: & \quad t_{1/2}=14,3 \text{ d} \\ {}^{30}\text{Si}(\alpha, p){}^{33}\text{P}: & \quad t_{1/2}=25,3 \text{ d} \end{aligned}$$

### 6.1.3 Diskussion der Ergebnisse

Der S-Parameter des bestrahlten Bereichs ist größer als der im unbestrahlten Silizium. Dies beruht auf den bei der Bestrahlung erzeugten Leerstellen und Leerstellenagglomeraten und ist ein allseits bekannter Effekt.

Die Defektverteilung ist wesentlich breiter, als nach Benutzung eines 100  $\mu\text{m}$  breiten Kollimators und unter einer Annahme der von TRIM berechneten *Lateralen Range* von 16  $\mu\text{m}$  erwartet wird: Der Grund hierfür können Alpha-Teilchen sein, die durch die unteren Ecken des Aluminium-Kollimators dringen. Die Reichweite von 54 MeV Alpha-Teilchen in Aluminium beträgt  $1,06 \pm 0,01 \text{ mm}$ . Mit dem durch den Kollimator vorgegebenen Öffnungswinkel des Strahles ist so aber nur eine Verbreiterung um ca. 40-50  $\mu\text{m}$  zu erklären. Es müssen also auch unter einem größeren Winkel gestreute Teilchen zu diesem Defektprofil beitragen. Beide Prozesse führen zu einem Energieverlust der Teilchen, so daß eine durch sie verursachte Verbreiterung des Defektprofils mit zunehmender Tiefe in der Probe abnimmt, was die beobachteten Phänomene erklären würde.

Zur Eindringtiefe läßt sich sagen, daß die Alpha-Teilchen durch die 1,1 mm dicke Probe hindurch gekommen sind, was mit der Berechnung von TRIM ( $1,18 \pm 0,01 \text{ mm}$ ) im Einklang steht.

## 6.2 $\alpha$ -bestrahltes SiO<sub>2</sub>

### 6.2.1 Eigenschaften von SiO<sub>2</sub>

Amorphes SiO<sub>2</sub> ist aus vielen technischen Anwendungen nicht mehr wegzudenken. Dennoch sind viele Details, zum Beispiel die strukturelle Anordnung der SiO<sub>4</sub>-Tetraeder oder das Verhalten bei Bestrahlung, wenig bekannt.

Das grundlegende Bauelement der  $\text{SiO}_2$ -Struktur wird von einem Silizium-Atom gebildet, welches tetragonal von 4 Sauerstoff-Atomen umgeben ist. Die kovalenten Bindungen zwischen O-Si-O schließen einen Winkel von  $109,5^\circ$  ein. Während die Tetraeder im kristallinen Quarz regelmäßig angeordnet sind, bilden sich im amorphen  $\text{SiO}_2$  ungeordnete Vernetzungen mit einem wesentlich größeren freien Volumen (siehe Abb. 6.7) [Vog92]. Hierbei treten zur Anpassung Verzerrungen des Tetraederwinkels auf, was leicht möglich ist, da die Bindungsenergie in einem größeren Winkelbereich ähnliche Werte besitzt.

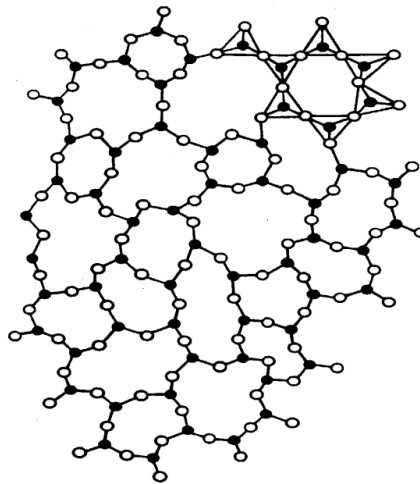


Abbildung 6.7: Ungeordnete Vernetzung der  $[\text{SiO}_2]$ -Tetraeder, welche im oberen Teil exemplarisch eingezeichnet sind (4. Sauerstoffatom jeweils über oder unter der Zeichenebene).

Untersuchungen von Bestrahlungseffekten an amorphem  $\text{SiO}_2$  wurden zum Beispiel von der französischen Telekom durchgeführt [Dev94]. In [Sno95] wird die Erzeugung von mechanischen Spannungen und deren Ausheilung durch Ionenbestrahlung untersucht. Aber auch Messungen mit Positronen zum freien Volumen bei Anlegen von hydrostatischem Druck sind erfolgreich durchgeführt worden [Hug97].

In der Nachrichtentechnik werden schon seit über 20 Jahren **Glasfaserkabel** für die Fernübertragung von Daten genutzt. Das Licht wird mittels LEDs oder Halbleiterlasern eingespeist und mit Photodioden ausgelesen. Von Vorteil gegenüber früher gebräuchlichen Kupfer-Leitungen ist hier die riesige Datenrate und die Unempfindlichkeit gegenüber elektromagnetischen Störfeldern.

Aufgebaut sind die Glasfasern aus mehreren  $\text{SiO}_2$ -Schichten mit unterschiedlichem Brechungsindex. Das Licht wird im optisch dichteren Kernmaterial durch Totalreflexion am optisch dünneren Mantel geführt. Damit die Pulse aufgrund von unterschiedlichen Weglängen bei verschiedenen Strahlengängen nicht auseinanderlaufen, wurden Glasfasern mit einem kontinuierlichen Übergang der Brechungsindizes entwickelt. Diese sind allerdings nicht ganz einfach herzustellen. Zur Variation des

Brechungsindex werden geringe Mengen anderer Elemente zugegeben: Germanium erhöht den Brechungsindex, Fluor oder Bor erniedrigen ihn. Neben der hier beschriebenen Faser mit „Gradientenprofil“ gibt es je nach Verwendungszweck noch viele andere, siehe z.B. [Ber92], [Fun88] und [Fun98].

Optische Bauelemente können mit einer Variation des Brechungsindex arbeiten. Diese Überlegung führte zu den im folgenden vorgestellten Bestrahlungsexperimenten.

Mittlerweile wurden auch optische Fasern aus Plexiglas (Polymethylmetacrylat, PMMA) entwickelt und auf den Markt gebracht. Diese Fasern sind zwar billig in der Herstellung, haben aber Nachteile in den Übertragungseigenschaften. Die Dämpfung ist bis zu 100 mal höher als bei herkömmlichen Glasfaserkabeln, so daß die PMMA-Fasern im Moment nur für Kurzstreckenübertragungen attraktiv sind.

## 6.2.2 Messungen

Die amorphen SiO<sub>2</sub>-Proben (Herasil SV) wurden genau wie die Si-Proben durch einen 100  $\mu\text{m}$  breiten Kollimator mit 56 MeV Alpha-Teilchen bestrahlt.

Teilchenart	Energie	Strom	Dosis
$\alpha$ -Teilchen	56 MeV	$10 \times 10^{-12}$ A	ca. $1 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$

Tabelle 6.2: Bestrahlungsparameter der mit  $\alpha$ -Teilchen bestrahlten SiO<sub>2</sub>-Proben.

Es wurden 2 unterschiedlich dicke Proben gewählt (0,5 und 1,85 mm) und an beiden jeweils von beiden Seiten gemessen. Die dickere wurde anschließend mit einer Diamantdrahtsäge durchgesägt, die Sägefläche bis auf 6  $\mu\text{m}$  poliert und nun auf der Stirnseite quer über den bestrahlten Bereich gemessen (siehe Abb. 6.2).

Aus der lichtmikroskopischen Aufnahme mit gekreuzten Polarisationsfiltern (Abb. 6.8) ist ersichtlich, daß durch die Bestrahlung der Brechungsindex für verschiedene Polarisations Ebenen verschieden wird. Bei geeigneter Einstellung der Polarisationsfilter hebt sich dieser Bereich aus dem optisch isotropen unbestrahlten Material als weißer Streifen heraus. Auch an den Enden des Streifens sind helle Bereiche zu sehen. Die Positronenmeßergebnisse (Abb. 6.9) zeigen im bestrahlten Bereich einen niedrigeren S-Parameter als im unbestrahlten - also genau entgegengesetzt zu den Ergebnissen im Silizium. Bei amorphem SiO<sub>2</sub> handelt es sich um einen Isolator mit viel freiem Volumen, in dem sich Positronium bildet. Da im Positronium der Elektronenimpuls sehr klein ist, äußert sich die Bildung von Positronium in einer schmalen Zerstrahlungslinie und somit in einem großen S-Parameter (siehe dazu Kap. 3.4). Die Positroniumsbildung im SiO<sub>2</sub> wird durch die Bestrahlung und die daraus resultierende Verringerung des freien Volumens zum Teil unterdrückt [Hug97].





Abbildung 6.8: Bestrahlte  $\text{SiO}_2$ -Probe, im Lichtmikroskop mit gekreuzten Polarisationsfiltern fotografiert. Der bestrahlte Streifen ist im Gegensatz zur Umgebung nicht mehr optisch isotrop.

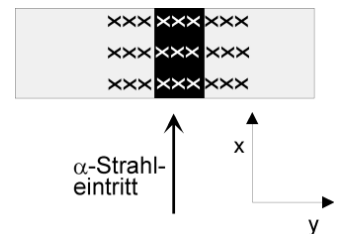
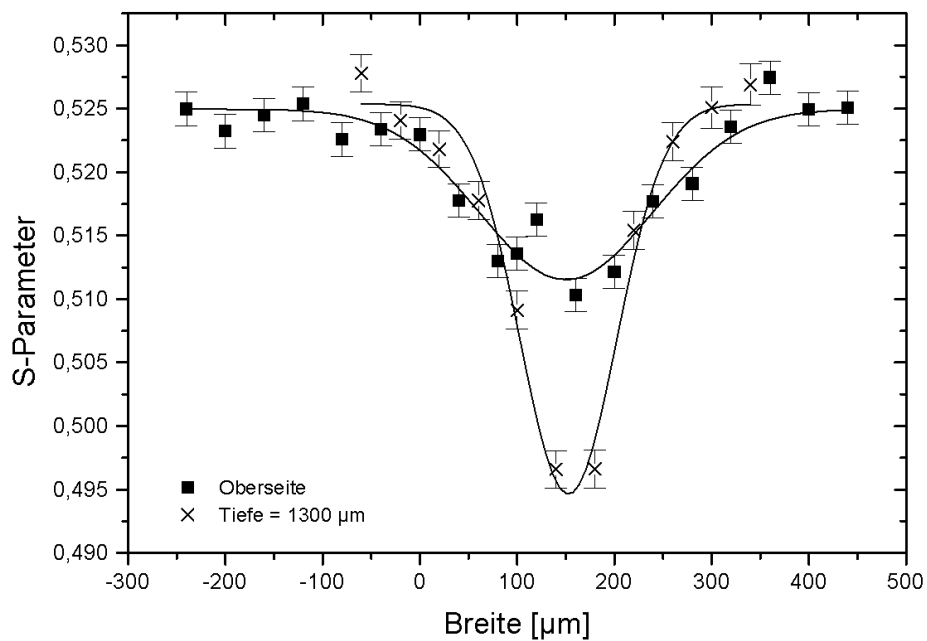


Abbildung 6.9: Mit Alpha-Teilchen bestrahlte  $\text{SiO}_2$ -Probe: Vergleich von Querscans an der Oberfläche und in 1,3 mm Tiefe (mittlere Eindringtiefe der Ionen nach TRIM:  $1,17 \pm 0,07$  mm). Das Defektprofil ist gaußförmig, es wird mit der Tiefe schmaler und der minimale S-Parameter kleiner.

Der größte Unterschied in der Linienform tritt zwischen der Oberflächenmessung und der Messung in ca. 1,3 mm Tiefe auf, was in Abb. 6.9 gut zu erkennen ist. Die mittlere Eindringtiefe von 56 MeV  $\alpha$ -Teilchen in SiO<sub>2</sub> beträgt nach TRIM  $1,17 \pm 0,07$  mm (laterale Projektion:  $14 \mu\text{m}$  mit  $19 \mu\text{m}$  Streuung, radiale Projektion:  $21 \mu\text{m}$  mit  $16 \mu\text{m}$  Streuung).

Da die gemessene Form der Defektverteilung gaußförmig ist, werden sowohl Gauß-Funktionen als auch die Faltung aus Gauß- und Stufenfunktion angepaßt, da dies ja den experimentellen Tatsachen eher entsprechen würde. In Abb. 6.10 sind die ermittelten Breiten  $w$  in Abhängigkeit der Tiefe dargestellt. Für die Faltung mußte wiederum der Parameter für die Breite der Gauß-Funktion fest gewählt werden, um akzeptable Ergebnisse zu erhalten. Diese Breite entsprach etwa einer Breite von  $98 \mu\text{m}$ . Beide Auswertungen zeigen deutlich eine Verringerung der Breite ab  $0,4$  mm Tiefe, weswegen die mit mehr Fehlern behaftete Auswertung der Faltung nicht weiter beachtet wird.

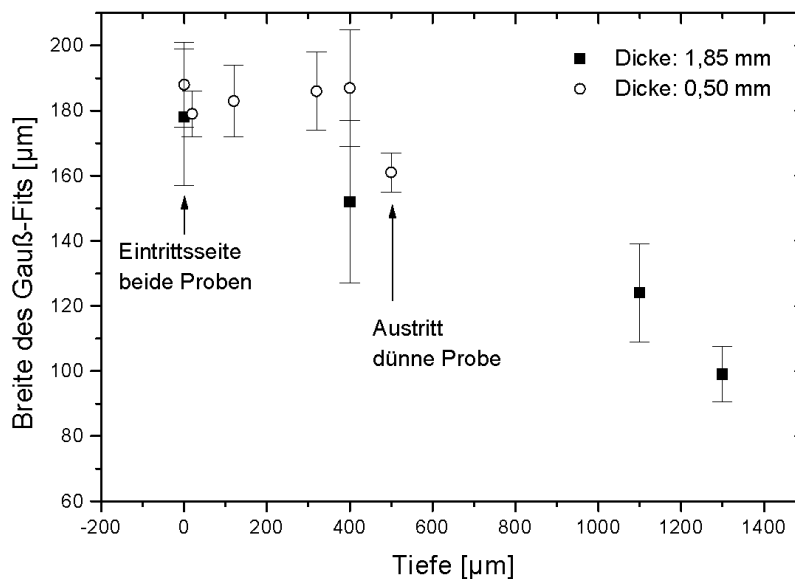


Abbildung 6.10: Breite eines Gauß-Fits an die Meßdaten in Abhängigkeit von der Tiefe und für 2 verschieden dicke Proben. Ab  $400 \mu\text{m}$  wird die Breite sukzessive kleiner.

Der für jede Tiefe minimale S-Parameter ist in Abb. 6.11 zu sehen. Es ergibt sich ein konstanter Wert, der am Ende der Ioneneindringtiefe stark abfällt. Der Absolutwert des Plateaus ist allerdings für beide Proben aufgrund unterschiedlicher Bestrahlungsdosen verschieden. Die absolute Bestrahlungsdosis konnte bei den Experimenten nur der Größenordnung nach geschätzt werden, weil die Strommessung nur die

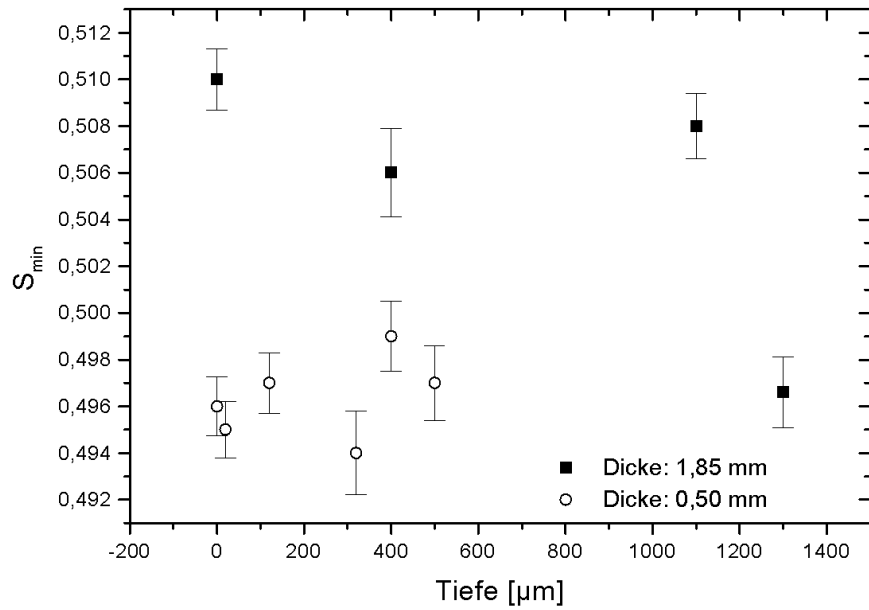


Abbildung 6.11: Minimaler S-Parameter in Abhängigkeit von der Tiefe. Gegen Ende der Eindringtiefe wird der Wert kleiner. Die dünnere Probe wurde mit größerer Dosis bestrahlt, was den Hub im S-Parameter verursacht.

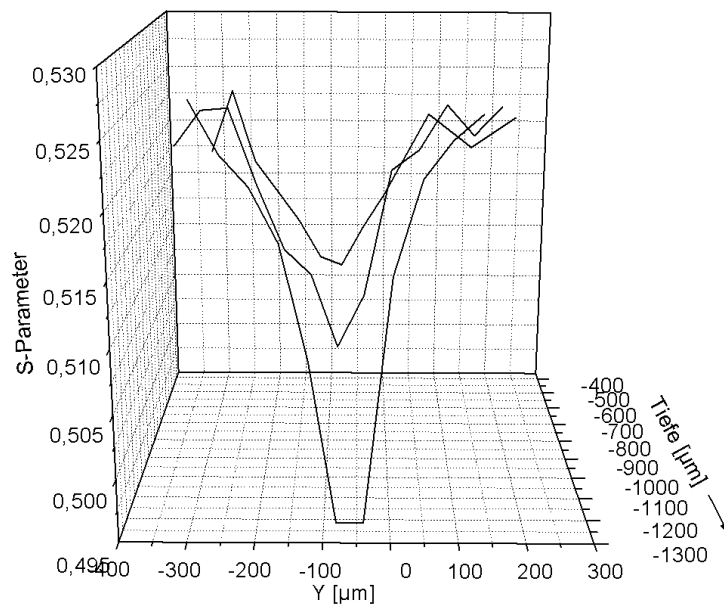


Abbildung 6.12: Die Form der Defektverteilung für 400, 1100 und 1300  $\mu\text{m}$  Tiefe.

durch die Probe gelangte Ladung berücksichtigte und außerdem stark schwankte.

Im Gegensatz zur Si-Probe scheint die prinzipielle Form des Defektprofils für alle Tiefen gleich zu bleiben (Abb. 6.12). Sie wird lediglich mit zunehmender Tiefe schmaler und tiefer.

### 6.2.3 Diskussion der Ergebnisse

Der S-Parameter im unbestrahlten Material ist höher als im bestrahlten. Dies resultiert aus einem veränderten Positroniumsanteil: Im unbestrahlten SiO<sub>2</sub> bildet sich Positronium, da es sich um einen Isolator handelt und zudem viel freies Volumen vorhanden ist. Bei der Bestrahlung werden Defekte erzeugt und zusätzlich findet eine makroskopische Verringerung der Dichte statt. Dies führt zu einem geringeren Positroniumsanteil und damit zu einer größeren Dopplerverbreiterung.

Die Dichteänderung beruht auf einer kompletten Änderung der Netzstruktur. Während der Bestrahlung werden sukzessive sämtliche Bindungen aufgebrochen und finden sich zu einem dichteren, aber immer noch amorphen Netzwerk wieder zusammen [Sno95]. Zusätzlichen Einfluß auf die Positroniumbildung haben die durch die Bestrahlung erzeugten positiv geladenen Defekte (z.B. ein nur noch dreifach koordiniertes Si-Atom), die Elektronen binden und somit das Positron keinen Partner zur Positroniumbildung findet [Suz94]. Des weiteren können aber auch negativ geladene Defekte wie Sauerstoff-Leerstellen Positronen einfangen und so den Positroniumsanteil verringern [Ued94].

Neben der Verringerung des S-Parameters bei Bestrahlung müßte auch der Anteil von  $\gamma$ -Quanten mit geringerer Energie als im 511 keV-Peak vertreten ansteigen („peak to valley“). Hierbei handelt es sich um einen sehr kleinen Effekt, da die Lebensdauer für Positronium in Festkörpern nur 1,5 ns beträgt. Im Gegensatz zum Positronium im Vakuum zerstrahlt das Positronium im Festkörper überwiegend über Pick Off in 2  $\gamma$ -Quanten. Aufgrund zu geringer Statistik ist der geringe Anteil an 3- $\gamma$ -Zerstrahlung jedoch aus den Daten nicht nachzuweisen.

Die Änderung der makroskopischen Dichte im bestrahlten Streifen [Nis73] geht wegen der auftretenden mechanischen Spannungen einher mit einer Änderung des Brechungsindex für verschiedene Polarisationsrichtungen im SiO<sub>2</sub>. Dies beruht auf der Spannungsdoppelbrechung und ist bei Betrachtung durch gekreuzte Polarisationsfilter gut zu beobachten (Abb. 6.8).

Im Gegensatz zu den Si-Messungen hat das Defektprofil in SiO<sub>2</sub> eine gut durch eine Gaußkurve anzunähernde Form. Obwohl die Kollimatoren baugleich sein sollten, ist nicht ganz klar, ob dieser Unterschied nicht nur durch die Kollimatoren kommt. In der Auswertung wurde bei den SiO<sub>2</sub>-Messungen eine Gaußfunktion angefitet und nur zum Vergleich einmal wie beim Silizium eine Faltung aus Gauß und Stufe.

Hierbei war der als konstant gewählte Wert der Gaußkurvenbreite mit ca.  $98\ \mu\text{m}$  wesentlich kleiner als beim Si (ca.  $140\ \mu\text{m}$ ). Beide Auswertemethoden ergaben eine erst konstante und ab  $400\ \mu\text{m}$  Tiefe abnehmende Breite der Defektverteilung. Zur Erklärung tragen wie beim Si die im Kollimator gestreuten und durch den Kollimator dringenden Ionen bei. Für genauere Auswertungen der Defektprofile sollte auf jeden Fall ein neuer Kollimator zur Erzeugung eines exakt begrenzten Teilchenstrahls benutzt werden.

Weiterhin sehr interessant ist der minimale S-Parameter in der Mitte der Defektverteilung in Abhängigkeit der Tiefe (Abb. 6.11). Er ist bis  $1100\ \mu\text{m}$  Tiefe konstant und fällt dann beim letzten Wert um 2-3% ab. Dieser sehr große Effekt deutet auf eine weitere Verringerung des Positroniumsanteils hin. Da die Ionen mit sinkender Energie immer mehr Energie pro Wegeinheit abgeben, erzeugen sie auch gegen Ende ihrer Bahn im Festkörper mehr Defekte („Bragg-Peak“). Während dieser Defektanstieg im Positronensignal einen großen Effekt erzeugt, ist optisch zwischen gekreuzten Polarisationsfiltern kein Unterschied zu dem restlichen bestrahlten Bereich zu erkennen. Es scheint so, daß ab einer bestimmten Bestrahlungsdosis die Dichteerhöhung zum Erliegen kommt, also eine Art Sättigung vorliegt und keine weiteren mechanischen Spannungen mehr erzeugt werden. Dies steht in Einklang mit Messungen von [Dev94], die ergaben, daß die Dichte sich nur bis ca. 3% vergrößert.

# Kapitel 7

## Lokal geschädigtes GaAs: Messungen und Diskussion

### 7.1 Eigenschaften GaAs

Galliumarsenid ist ein wichtiges Material für spezielle elektronische Anwendungen zum Beispiel im Mobilfunkbereich. Es ist nicht so gut zu handhaben und auch noch nicht so erforscht wie Silizium, aber gerade für die hochfrequenten Anwendungen durch dieses nicht zu ersetzen. Neben der Erforschung der Fehlstellen (z.B. in [Geb97]) werden natürlich ständig Forschungen für bessere und somit auch billigere Produktionswege durchgeführt, sowohl im Ziehverfahren der Einkristalle aus der Schmelze als auch in der Herstellung der Wafer durch Sägen und Polieren. Gerade hier treten enorme Verluste auf: Die Sägeblätter dürfen nicht zu dünn sein, da sie sonst mechanisch nicht stabil genug sind, zum anderen sind die gesägten Oberflächen stark mechanisch verformt und müssen chemisch oder chemomechanisch abpoliert werden.

In Abb. 7.1 ist eine mit einem Transmissions-Elektronen-Mikroskop (TEM) gemachte Aufnahme eines dünnen Schnittes quer zu einem Kratzer zu sehen. Die Waferoberfläche ist oben als schräge Linie zu erkennen, die schwarzen Linien sind Versetzungslinien. Das linke Bild zeigt den linken Rand des Ritzes und den Übergang ins undeformierte Material. Im rechten Bild ist analog die rechte Seite des Ritzes zu erkennen. Es ist deutlich zu sehen, daß die Versetzungen von der Oberfläche aus ins Material hineindringen. Die Aufnahmen wurden an dem Institut für Elektronenmikroskopie und Analytik GbR in Halle gemacht, wobei sich die Probenpräparation als äußerst aufwendig erwies, da keine zusätzlichen Defekte ins Material eingebracht werden durften.

Zur großflächigen Untersuchung der durch das Sägen entstandenen oberflächennahen Defekte haben sich in letzter Zeit Messungen mit langsamen Positronen bewährt ([Boe98]). Um die grundlegenden Prozesse der Defektentstehung und ihre Abhängigkeit von verschiedenen Produktionsparametern zu erforschen, wurden

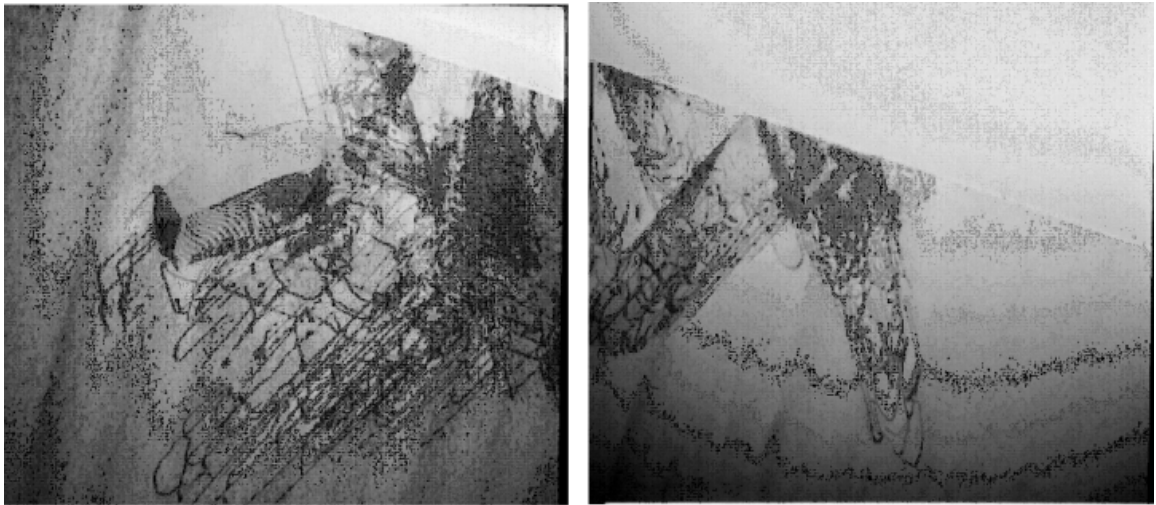


Abbildung 7.1: Transmissions-Elektronen-Mikroskop-Aufnahme eines Schnittes quer zum Ritz. Links und rechts sind jeweils die beiden Ränder des Ritzes und der Übergang zum undeformierten Material zu sehen. Die als schwarze Linien sichtbaren Versetzungslinien laufen von der Oberfläche aus ins Material hinein [Inst. f. Elektronenmikroskopie und Analytik GbR, Halle].

von der Firma Freiburger<sup>1</sup> und der TU Berlin<sup>2</sup> Untersuchungen an Einkornritzen durchgeführt [Uhl99]. Hierzu wurden an der TU Berlin mit einem einzelnen Diamantkorn kurze Ritze erzeugt, die sowohl in der Waferoberfläche beginnen als auch enden. Diese Ritze wurden nun mit der Positronenmikrosonde auf ihre Defektverteilung hin untersucht.

## 7.2 Messungen

Wie in Abb. 7.2 zu sehen, treten beim Eintritt des Korns Schleifspuren auf. Bei ausreichender Eindringtiefe des Korns bricht das Material aus, um dann bei geringerer Tiefe wieder Schleifspuren zu hinterlassen [Uhl99]. Das Auftreten dieser Spur verwundert bei diesem an sich hochspröden Material sehr und ist in seinen physikalischen Ursachen noch nicht verstanden.

Zur Untersuchung dieser Proben ist die Positronenmikrosonde ideal geeignet, da hier die erforderliche laterale Auflösung, die hohe Empfindlichkeit der Positronen auf Fehler und eine Variation ihrer Eindringtiefe zur Verfügung stehen.

Zuerst wurden Positronenmessungen quer zur Ritzrichtung durchgeführt, um die genaue Position des maximal geschädigten Bereiches festzustellen (Abb. 7.3). Der

<sup>1</sup>Freiberger Compound Materials GmbH, Am Junger Löwe Schacht 5, 09599 Freiberg

<sup>2</sup>Institut für Werkzeugmaschinen und Fabrikbetrieb, Technische Universität Berlin

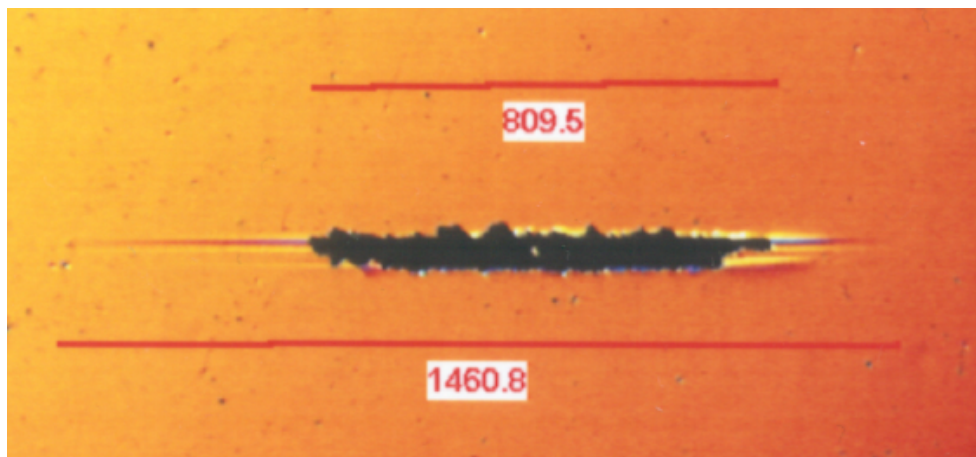


Abbildung 7.2: Ein mit einem Diamantkorn in GaAs erzeugter Ritz im Lichtmikroskop: Am Anfang und Ende sind Schleifspuren zu erkennen, dazwischen ist das Material herausgebrochen (Längenangaben in Mikrometern) [Freiberger Compound Materials GmbH, TU Berlin].

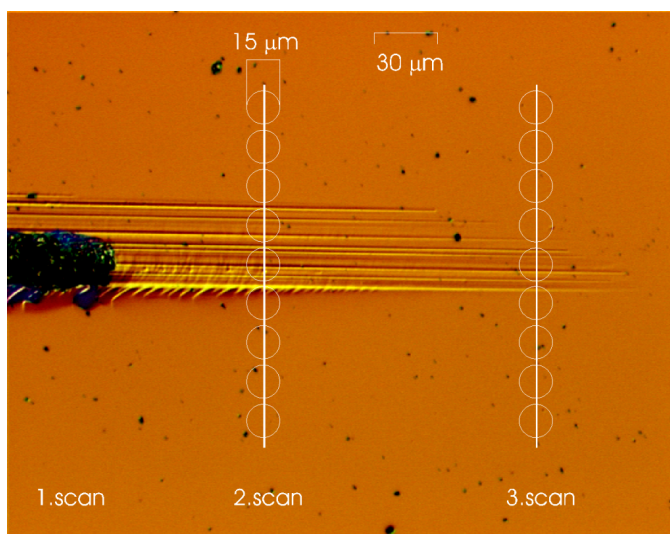


Abbildung 7.3: Der Bereich des Ritzes mit Schleifspuren: Weiß eingezeichnet sind die Positronenmeßpunkte für die zuerst durchgeführten Querscans zur Bestimmung der Ritzmitte [Freiberger Compound Materials GmbH, TU Berlin].

Positronenstrahl war bei allen Messungen immer in der jeweils interessierenden Richtung kleiner oder gleich  $20\ \mu\text{m}$  breit und hatte  $30\ \text{keV}$  Strahlenergie. Die Oberfläche des Wafers war eine  $\langle 100 \rangle$ -Ebene. Die Querscans erfolgten nicht nur an einer Stelle, sondern am Anfang und Ende des ausgebrochenen Bereiches und an meh-



reren Stellen dazwischen. Nachdem so die Richtung festgelegt war, konnte nun der Defektverlauf in der Mitte des Ritzes über dessen ganze Länge hinweg vermessen werden.

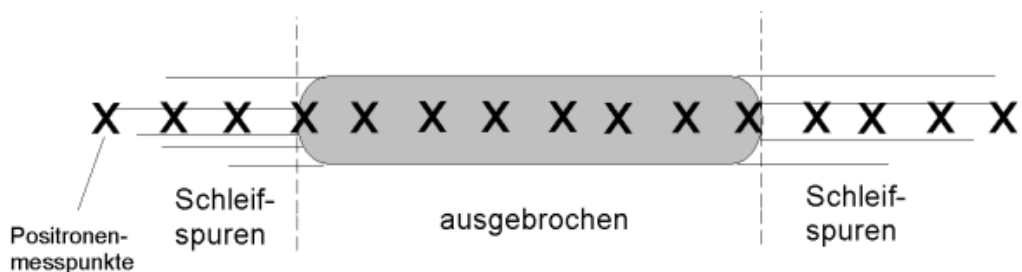
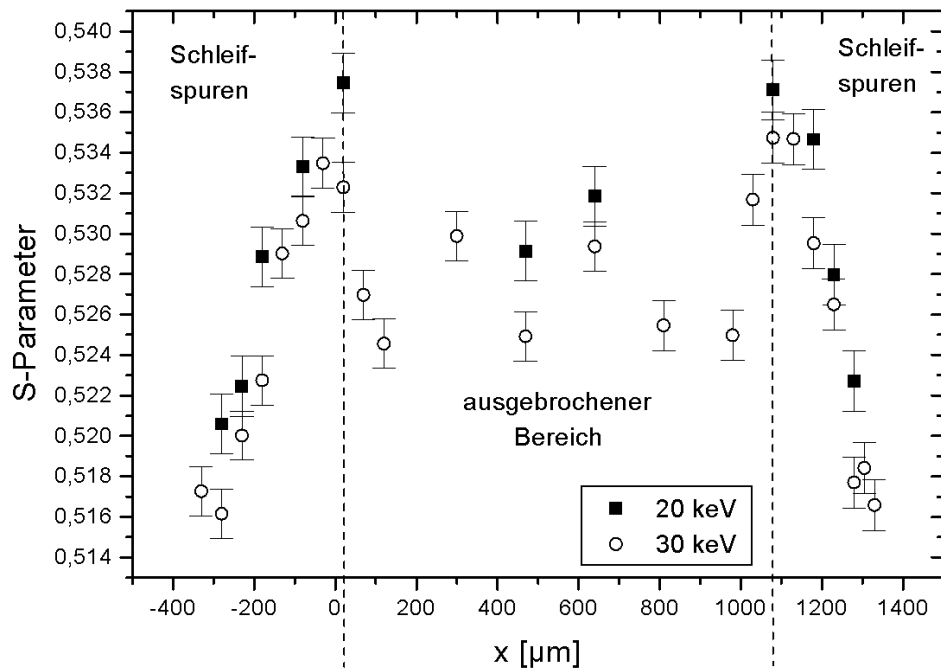


Abbildung 7.4: Positronenmessung längs eines Ritzes in GaAs bei 30 und 20 kV. Der S-Parameter steigt im Bereich der Schleifspuren an und erreicht sein Maximum, wenn das Material ausbricht. Der S-Parameter liegt für die Messungen mit 20 keV Strahlenergie immer über den mit 30 keV gemessenen Werten.

In Abb. 7.4 sind Positronenmessungen längs eines Ritzes mit 30 und 20 keV Strahlenergie gezeigt. Es ist deutlich ein Ansteigen des S-Parameters im Bereich der Schleifspuren bis zum Beginn des spröden Abtrages zu erkennen, wo ein Maximum von 4% Hub gegenüber dem Wert in undeformiertem Material erreicht wird. Im ausgebrochenen Bereich dazwischen streut der S-Parameter um einen Wert von ca.

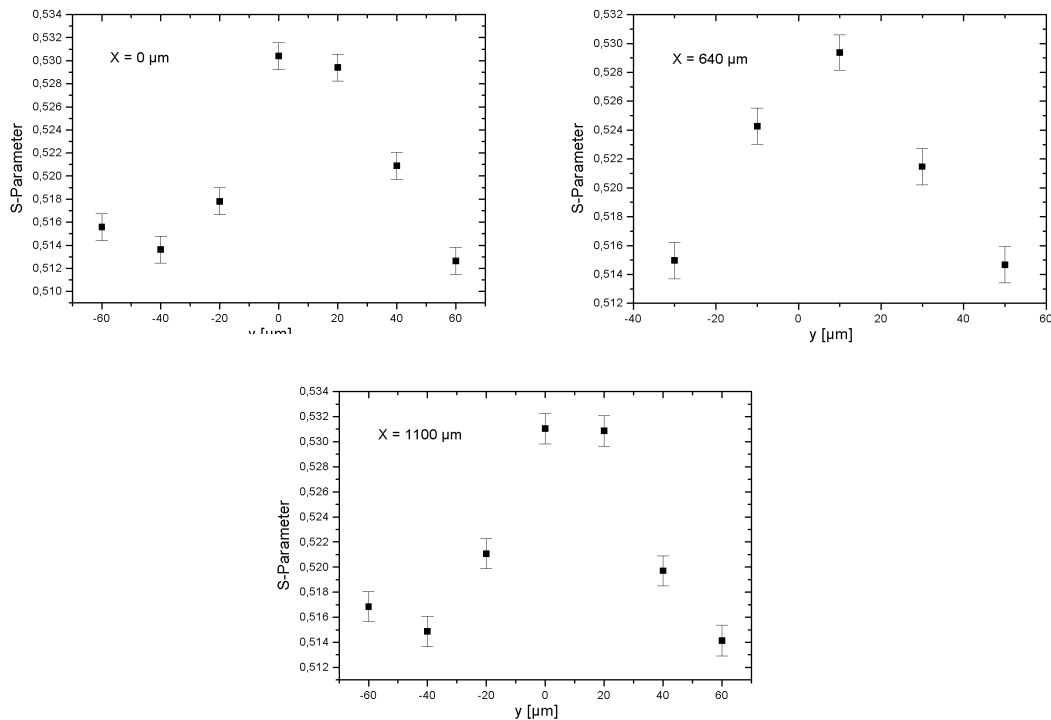


Abbildung 7.5: Exemplarische Messungen quer über den Ritz. Zu den x-Positionen siehe Abb. 7.4.

2% Hub. Gut zu sehen ist weiterhin die Symmetrie zwischen Ein- und Austrittsrichtung des Diamantkorns. Die Bewegungsrichtung scheint keinen Einfluß auf die Defektkonzentration zu haben. Die Messung bei 20 kV Beschleunigungsenergie, das entspricht genau der halben Eindringtiefe, spiegelt exakt denselben Verlauf wieder. Der S-Parameter liegt allerdings etwas über den anderen Meßwerten, da die Erzeugung der Defekte ja von der Oberfläche aus stattfand und die Defektkonzentration abnimmt, je tiefer man in das Material eindringt.

Aus den exemplarisch abgebildeten Messungen quer zum Ritz (Abb. 7.5) ist ersichtlich, daß der Defektverlauf an verschiedenen Stellen ähnlich ist. Mit einem Positronenstrahldurchmesser von ca.  $20 \mu\text{m}$  oder darunter stammt das Meßsignal bei den Längsmessungen vollständig aus dem inneren Bereich des Ritzes.

In Abb. 7.6 sind die Meßwerte des S-Parameters für 30 kV Strahlenergie gegen den W-Parameter aufgetragen. Zusätzlich wurde noch eine Si-dotierte GaAs-Probe mit 30 keV zum Vergleich gemessen. Die Dotierung erfolgte mit  $4 \times 10^{19} \text{cm}^{-3}$ , was bedeutet, daß vollständiger Einfang der Positronen in Gallium-Leerstellen vorliegt [Eic99]. Aus den verschiedenen Graphen wird deutlich, welchen Einfluß eine Veränderung der Berechnungsgrenzen der Parameter hat. Je weiter auseinander die beiden Flächen für den W-Parameter liegen, umso mehr entfernen sich die in der Eichprobe gemessenen Werte von den anderen Werten. Diese bleiben wei-

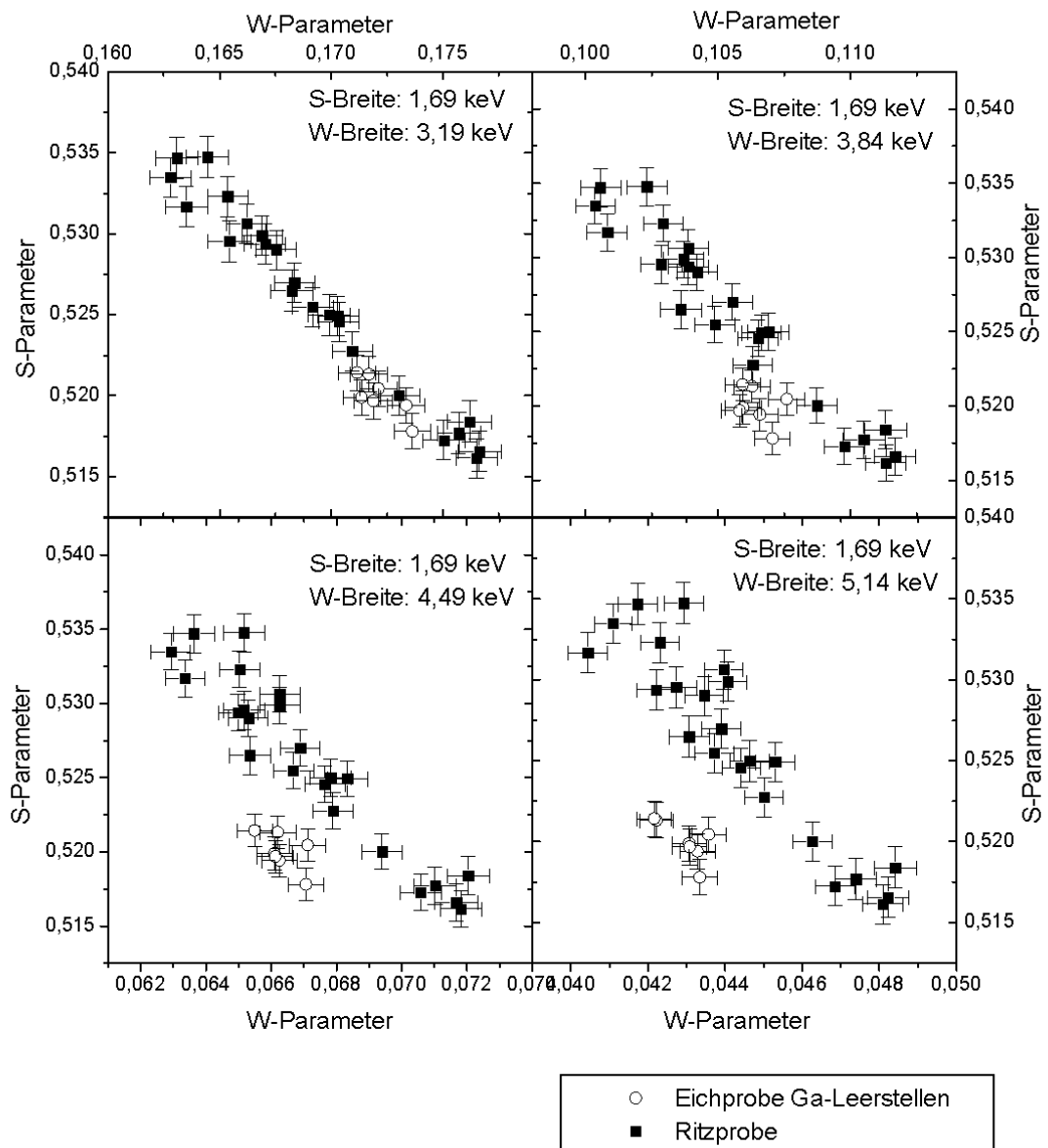


Abbildung 7.6: Auftragung von S- gegen W-Parameter bei 30 kV und einer Si-dotierten Eichprobe (vollständiger Einfang in Ga-Leerstellen). Es wurde der Abstand der beiden für die Berechnung des W-Parameters benötigten Flächen, was als W-Fenster bezeichnet wird, variiert und dabei das Fenster des S-Parameters konstant gehalten. Je breiter das W-Fenster gewählt wird, umso weiter entfernen sich die in der Eichprobe gemessenen Werte von der durch die geritzte Probe bestimmten Gerade. Es handelt sich also nicht um denselben Defekttyp.

terhin auf einer Geraden, allerdings mit breiterer Streuung. Durch eine analoge Veränderung des Fensters zur Berechnung des S-Parameters bei konstantem W-Parameter-Fenster kann keine Separation der Werte erreicht werden. Diese Separation

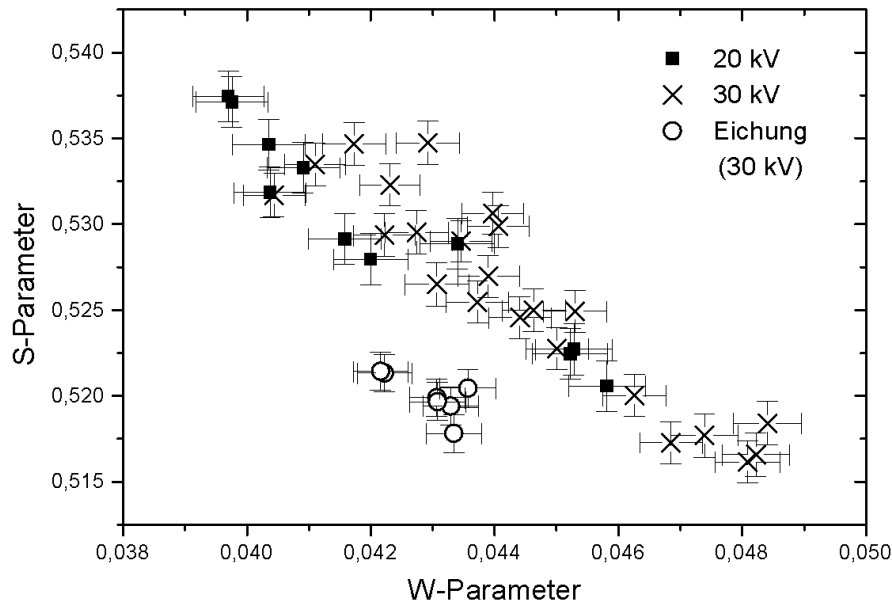


Abbildung 7.7: S-/W-Plot mit größtem W-Fenster: Die Werte im Ritz liegen für 20 und 30 keV Strahlenergie auf einer Geraden und lassen sich von den Werten der Eichprobe (vollständiger Einfang der Positronen in Ga-Leerstellen) gut unterscheiden.

tion in der S-/W-Darstellung ist auch bei den Messungen mit 20 keV Strahlenergie möglich, wie aus Abb. 7.7 ersichtlich ist.

### 7.3 Diskussion der Ergebnisse

Es kann festgestellt werden, daß die Positronenmikrosonde zur Untersuchung von Ritzen in GaAs gut geeignet ist. Der Verlauf aller Teilbereiche der Ritze kann gut nachvollzogen werden und die Defektdichte befindet sich genau im Empfindlichkeitsbereich der Positronen.

An allen Übergangspunkten zum ausgebrochenem Bereich werden starke Anstiege im S-Parameter gemessen. An diesen Stellen wird das Material offensichtlich extrem belastet und dementsprechend hohe Defektkonzentrationen erreicht.

Die gemessenen S-Parameter sind für 20 keV Strahlenergie fast immer höher als für 30 keV, was plausibel ist, da die Defekterzeugung von der Oberfläche aus vonstatten geht. Der prinzipielle Verlauf ist aber für alle Orte gleich.

Der Darstellung der Meßdaten im S-/W-Plot kann entnommen werden, daß im Ritz kein vollständiger Einfang in Ga-Leerstellen wie in der Eichprobe stattfin-

det. Dies ist aufgrund der starken mechanischen Deformation und den dabei entstandenen Versetzungen und teils agglomerierten Leerstellen verschiedener Typen einsichtig. Auch kann man aus der sich mit größerem W-Fenster immer breiter werdenden Streuung der im Ritz gemessenen Werte darauf schließen, daß hier eine Überlagerung der verschiedensten Defekttypen vorliegt. Die Werte sind allerdings statistisch auf den ganzen Ritzbereich verteilt.

Weitere Meßreihen mit der Positronen-Mikrosonde an Ritzproben in GaAs sind bereits in Arbeit. Nach dieser erfolgversprechenden Messung besteht die berechtigte Hoffnung, auf diese Weise ein besseres Verständnis für die Defekterzeugung in GaAs-Oberflächen durch mechanisches Bearbeiten zu erlangen. Zusätzliche Messungen der Positronenlebensdauer sind am Positronenmikrostrahl in Garching/München geplant. Hierbei ergeben sich vielleicht genauere Aufschlüsse über die Defektzusammensetzung.

## Zusammenfassung

In dieser Arbeit werden Defekte, die durch Bestrahlung oder mechanische Verformung in Festkörpern erzeugt wurden, mit der Methode der Positronenannihilations-Spektroskopie untersucht. Für diese Messungen stand mit der Bonner Positronen-Mikrosonde erstmals ein langsamer Positronenstrahl mit einem Durchmesser von wenigen Mikrometern zur Verfügung.

Ein Schwerpunkt war die Untersuchung der Aufstreuung von Ionen in Materie. Hierzu wurde das durch Bestrahlung erzeugte Defektprofil tiefenabhängig in Molybdän, Silizium und amorphem  $\text{SiO}_2$  gemessen. Die gemessene Defektkonzentration nimmt am Ende der Teilchenbahn zu und das Defektprofil scheint schmaler zu werden. An  $\text{SiO}_2$  läßt sich wegen einer Veränderung der Dichte durch die Bestrahlung Spannungsdoppelbrechung beobachten.

Es wurde versucht, verschiedene Defekttypen in einem Metall an Hand der Form der Zerstrahlungslinie voneinander zu unterscheiden wie es in Halbleitern möglich ist. Hierzu wurden Molybdän-Proben mit Elektronen, Protonen und  $\alpha$ -Teilchen bestrahlt und zum Teil getempert, um möglichst unterschiedliche Defekttypen zu erzeugen. In Stufe III wird die Bildung von Leerstellenclustern beobachtet.

In GaAs wurden mechanisch mit einem einzigen Diamanten eingebrachte Ritze untersucht. Es konnte der Defektverlauf entlang zweier solcher Ritze mit unterschiedlichen Winkeln zwischen der Ritz-Richtung und der (110)-Richtung untersucht werden. Durch Vergleich der Ergebnisse mit einer Eichprobe ergab sich, daß kein vollständiger Einfang der Positronen in Ga-Leerstellen vorliegt.

---

## Literaturverzeichnis

- [Ber92] Bergmann, Schaefer, *Lehrbuch der Experimentalphysik*, Band 6, Walter de Gruyter, 1992
- [Bie80] J. P. Biersack, L. G. Haggmark, *Nuc. Instr. Meth.*, **174** (1980), 257 - 269
- [Boe98] F. Börner, S. Eichler, A. Polity, R. Krause-Rehberg, R. Hammer, M. Jurisch, *J. Appl. Phys.* **84** 4 (1998) 2255 - 2262
- [Bur99] C. P. Burrows, A. P. Knights, P. G. Coleman, *Appl. Surf. Sci.*, **149** (1999), Nr. 1-4, 135 - 139
- [Cas64] R. Castaing, L. Henry, *Journal de Microscopie*, **3** (1964), 133 - 152
- [Cle96] M. Clement, J. M. M. de Nijs, P. Balk, H. Schut, A. van Veen, *J. Appl. Phys.* **79** 12 (1996) 9029 - 9036
- [Col96] P. G. Coleman, A. Goodyear, C. P. Burrows, *Appl. Surf. Sci.*, **116** (1997) 184 - 186
- [Col99] P. Coleman, Norwich/GB, private Mitteilung
- [DeB49] S. DeBenedetti, C. E. Cowan, W. R. Konneker, *Phys. Rev.*, **76** (1949), 440
- [Dev94] R. A. B. Devine, *Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B*, **91** (1994) 378 - 390.
- [DPA96] Patentanmeldung vom 6.12.96 beim deutschen Patentamt München, Titel „Elektronenmikroskop mit Positronenzusatz“
- [DPA96a] Patentanmeldung vom 6.12.96 beim deutschen Patentamt München, Titel „Positronenquelle“
- [Dub97] Dubbel, *Taschenbuch für den Maschinenbau*, Springer Verlag, 1997
- [Eld76] M. Eldrup, O. E. Morgensen, J. H. Evans, *J. Phys. F*, **6**, 4 (1976) 499 - 521
- [Eic97] S. Eichler, J. Gebauer, F. Börner et al., *Phys. Rev. B* **56**, 3, 1393 - 1403
- [Eic99] S. Eichler, mündliche Mitteilung, 1999

- [Fis86] D. A. Fischer, K. G. Lynn, D. W. Gidley, *Phys. Rev.*, **33** (1986) 4479
- [Fun88] *Funkschau* **6** (1988) ab S. 46
- [Fun98] *Funkschau* **5** (1998) Arbeitsblätter
- [Geb97] J. Gebauer, R. Krause-Rehberg, S. Eichler et al., *Appl. Phys. Lett.* **71** 5, (1997) 638 - 640
- [Ger95] H. Vogel, *Gerthsen Physik*, Springer Verlag, 1995
- [Gho95] V. J. Ghosh, *Appl. Surf. Sci.* **85** (1995) 187 - 195
- [Goo94] A. Goodyear, P. G. Coleman, *Appl. Surf. Sci.* **85** (1994) 98 - 105
- [Gre96] H. Greif, Dissertation, Uni Bonn (1996)
- [Gre97] H. Greif, M. Haaks, U. Holzwarth, U. Männig, et al., *Appl. Phys. Lett.* **71** (1997) 2115 - 2117
- [Haa97] M. Haaks, Diplomarbeit, Uni Bonn (1997)
- [Hau79] P. Hautojärvi, A. Vehanen in *Topics in Current Physics*, Band 12, Springer-Verlag, 1979
- [Hau95] P. Hautojärvi, *J. de Physique IV, Colloque C1*, **5**, (1995) C1-3 - C1-25
- [Hec89] E. Hecht, *Optik*, Addison-Wesley, 1989
- [Hug97] C. Hugenschmidt, Dissertation, Uni Bonn (1997)
- [Kei88] J. Keinonen, M. Hautala, E. Rauhala et al., *Phys. Rev. B*, **37** 14 (1988) 8269-8277
- [Kit83] C. Kittel, *Einführung in die Festkörperphysik*, Oldenbourg Verlag, München, Wien, 1983
- [Kra93] R. Krause-Rehberg, M. Brohl, H. S. Leipner, T. Drost, A. Polity, U. Beyer, H. Alexander, *Phys. Rev. B*, **47** 20 (1993) 13266-13276
- [LaB91] Landolt-Börnstein, New Series III/25 *Atomic Defects in Metals*, Springer Verlag 1991
- [Leo87] W. R. Leo, *Techniques for Nuclear and Particle Physics Experiments*, Springer-Verlag, 1987
- [Lyn89] K. G. Lynn, E. Gramsch, S. G. Gusmar, P. Sferlazzo, *Appl. Phys. Lett.*, **55** (1989), 87 - 89
- [Lyn92] K. G. Lynn, P. Asoka-Kumar, *Mat. Sci. For.*, **105 - 110** (1992) 359 - 368



- 
- [Mac92] E. Macherauch, *Praktikum in Werkstoffkunde*, Vieweg, Braunschweig/Wiesbaden, 1992
- [Mae96] U. Männig, Diplomarbeit, Uni Bonn (1996)
- [Mae99] U. Männig, K. Bennewitz, H. Bihl, M. Haaks, W. Sigle, C. Zamponi, K. Maier, *Appl. Surf. Sci.* **149** (1999) 217-220
- [Mar77] Marmier, *Kernphysik I*, vdf-Verlag, ETH Zürich, 1977
- [Nai85] S. V. Naidu, A. Sen Gupta, R. Roy, P. Sen, R. K. Bhandari, *Phil. Mag. A*, **52**, 2 (1985) 255 - 266
- [Ng99] J. S. T. Ng, P. Holl, K. Hansen, J. Kemmer, P. Lechner, U. C. Müller, L. Strüder, submitted to Elsevier (1999)
- [Nis73] E. EerNisse, *J. of Appl. Phys.* **45**, 1, (1973) 167 - 174
- [Pet77] K. Petersen, *Phil. Mag.*, **36**,2 (1977) 385 - 390
- [Phi80] F. Phillipp, Dissertation, Uni Stuttgart (1980)
- [Pus94] M. J. Puska, R. M. Nieminen, *Pev. Mod. Phys.* **66** 3 (1994)
- [Rea95] A. H. Reader, H. Schut, R. A. Hakvoort, A. van Veen, *J. de Physique IV*, Colloque C1, **5**, (1995) C1-27 - C1-36
- [Rys78] H. Ryssel, I. Ruge, *Ionenimplantation*, Teubner, Stuttgart, 1978
- [Sch88] P. J. Schultz, K. G. Lynn, *Rev. Mod. Phys.* **60** 3 (1988) 701 - 773
- [Sch92] G. Schatz, A. Weidinger, *Nukleare Festkörperphysik*, Teubner Stuttgart, 1992
- [Sig98] W. Sigle, MPI Stuttgart, mündliche Mitteilung
- [Siz68] R. Sizmann, *J. Nuc. Mat.* **69 & 70** (1968) 386 - 412
- [Sno95] E. Snoeks, T. Weber, A. Cacciato, A. Polman, *J. Appl. Phys.* **78**, 7 (1995) 4723 - 4732
- [Suz94] R. Suzuki, Y. Kobayashi, K. Awazu, T. Mikado, et al., *Nuc. Instr. and Meth. in Phys. Res. B* **91** (1994) 410 - 412
- [Tan92] H. Tanimoto, H. Mizubayashi, R. Masuda, S. Okuda, Y. Tagishi, *Phys. Stat. Sol. (a)* **129** (1992) 343 - 352
- [Ton97] M. Tongbhoyai, Dissertation, Uni Bonn (1997)

- [Ued94] A. Uedono, S. Watauchi, Y. Ujihira, O. Yoda, *Hyp. Int.* **84** (1994) 225 - 230
- [Uhl99] E. Uhlmann, H. Engel, R. Hammer, C. Paesler, *Berichte aus der Fertigungstechnik*, Shaker Verlag, Aachen, 1999
- [Val84] S. Valkealahti, R. M. Nieminen, *Appl. Phys. A*, **35** (1984) 51
- [Vog92] W. Vogel, *Glaschemie*, Springer Verlag, 1992
- [Vog99] J. Vogt, Uni Leipzig, mündliche Mitteilung
- [Wes73] R. N. West, *Adv. Phys.* **22** (1973) 263 - 383
- [Zie85] J. F. Ziegler, J. B. Boersack, U. Littmark, *The Stopping and Range of Ions in Solids*, Pergamon Press, New York, 1985

---

## Danksagung

Ich danke besonders meinem Doktorvater Prof. Karl Maier für seine engagierte, sehr persönliche Betreuung und für die Ermöglichung dieser interessanten Arbeit. Gerne bedanke ich mich auch bei der „Chefin“ Frau Gerlinde Maier für die familiäre Atmosphäre bei so vielen Anlässen.

Herrn Prof. Peter David danke ich für die Übernahme des Korreferates und so manches erheiternde und ernste Gespräch.

Der gesamten „Maierbande“, seien sie aktuell oder ehemalig, möchte ich für ein gutes und kollegiales Arbeitsklima danken:

Thomas Albrecht, Moritz Beckmann, Christoph Bommas, Carsten Bühner, Christoph Deckers, Uli Grünwald, Sabine Hansen, Uwe Holzwarth, Christoph Hugenschmidt, Dieter Platzek, Joachim Reske, Stephan Roth, Markus Stumm, Tobias Wider und Joachim Schüth für die Durchsicht der Arbeit.

Ein besonderes Dankeschön gilt der Miksosondenmannschaft: Matz Haaks, Christiane Zamponi, Holger Greif, Martin Tongbhoyai und Karsten Bennewitz.

Den Festangestellten des ISKP, den Mannschaften von Zyklotron und Massenseparator, der Feinmechanik- und der Elektronikwerkstatt, aber auch den Sekretärinnen möchte ich ebenfalls meinen Dank für ihre Unterstützung aussprechen.

Ich danke der Firma LEO Elektronenmikroskopie GmbH für die gute und fruchtbare Zusammenarbeit. Stellvertretend möchte ich mich sehr herzlich bei den Herren Huber und Bihl für ihre große Hilfsbereitschaft bedanken.

Dr. Sigle und Dr. Phillipp vom Max-Planck-Institut in Stuttgart danke ich für die Ermöglichung der Bestrahlungen am HTEM und die Hilfe bei den Auswertungen. Ich bedanke mich auch bei Petra Schaaff, die mich zu diesen Anlässen bei sich aufnahm und Andi Siegle, der sich immer Zeit für mich nahm.

Ich danke Dr. Stefan Eichler und Ralf Hammer von der Firma Freiburger Compound GmbH für die Bereitstellung der Galliumarsenid-Proben und wertvolle Informationen und Diskussionen.

Dr. Vogel von der Universität Leipzig danke ich für die Durchführungen der Bestrahlungen an der Ionen-Nanosonde.

Ebenfalls möchte ich mich bei Prof. Coleman von der Universität Norwich für die Untersuchungen der Wolfram-Proben mit der Positronen-Reemissions-Sonde bedanken.

Allen wissenschaftlich Tätigen des Instituts danke ich für die allseitige Hilfsbereitschaft.

Der Deutschen Forschungsgemeinschaft möchte ich für die finanzielle Unterstützung danken.

Meiner Familie und meinen Freunden bin ich dankbar, daß sie immer an mich geglaubt haben und mich nach Kräften unterstützten.

Bei allen sonstigen Problemen kann und konnte ich immer auf Dich zählen: Jochen, ich danke Dir für deine Liebe und Dein Vertrauen. Du gibst mir immer wieder die Kraft und den Mut weiterzumachen.

Alle, die ich bis jetzt vergessen habe und die in irgendeiner Weise am Erfolg meiner Arbeit beteiligt waren, sei an dieser Stelle mein Dank ausgesprochen.

# Lebenslauf

## **Persönliche Daten**

---

Name: Ulrike Männig  
Anschrift: Provinzialstraße 58 b, 53127 Bonn  
Geburtsdatum: 24. März 1972  
Geburtsort: Lüdenscheid  
Familienstand: ledig

## **Schulbildung**

---

09/78 - 08/82 Grundschule Spormecke, Schalksmühle  
09/82 - 06/91 Bergstadt Gymnasium Lüdenscheid  
06/91 Abitur

## **Hochschulausbildung**

---

10/91 - 11/96 Rheinische Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn  
Studium der Physik  
12/95 - 11/96 Diplomarbeit in Physik  
unter Leitung von Prof. Dr. Karl Maier  
am Institut für Strahlen- und Kernphysik  
der Universität Bonn  
seit 12/96 Beginn der Dissertation  
unter Leitung von Prof. Dr. Karl Maier  
am Institut für Strahlen- und Kernphysik  
der Universität Bonn

## **Berufliche Tätigkeiten**

---

12/95 - 11/96 Studentische Hilfskraft im ISKP  
seit 12/96 wissenschaftliche Mitarbeiterin am ISKP

