

# Positronen in der Materialforschung

**R. Krause-Rehberg**

Universität Halle

Hahn-Meitner-Institut Berlin  
in der Helmholtz-Gemeinschaft

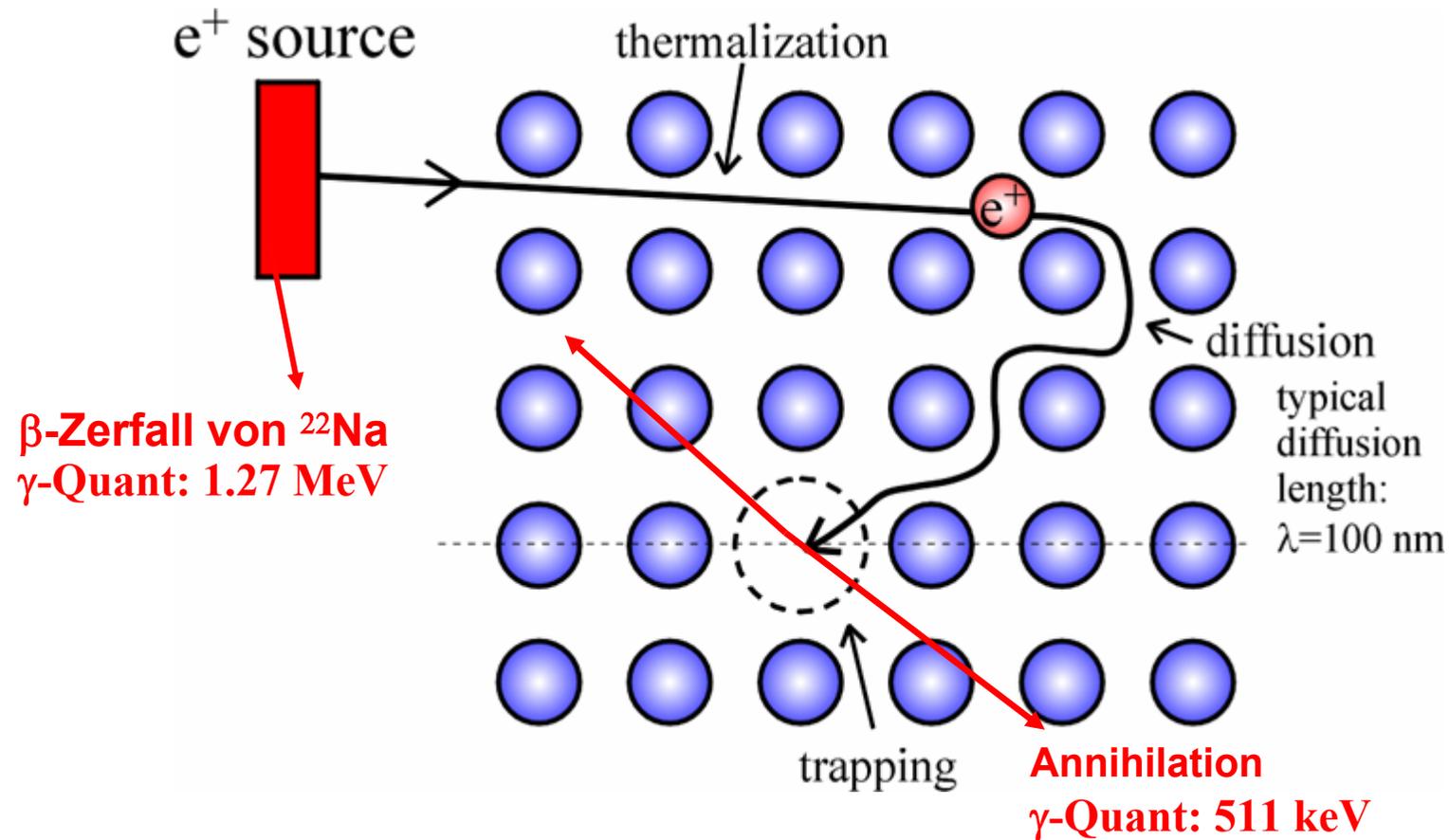


Berlin, 8. Juli 2003

- Defektnachweis mit Positronen
- Experimente nach Hochenergie-Selbstimplantation in Si
- Geplante hochintensive Positronenquellen in Deutschland

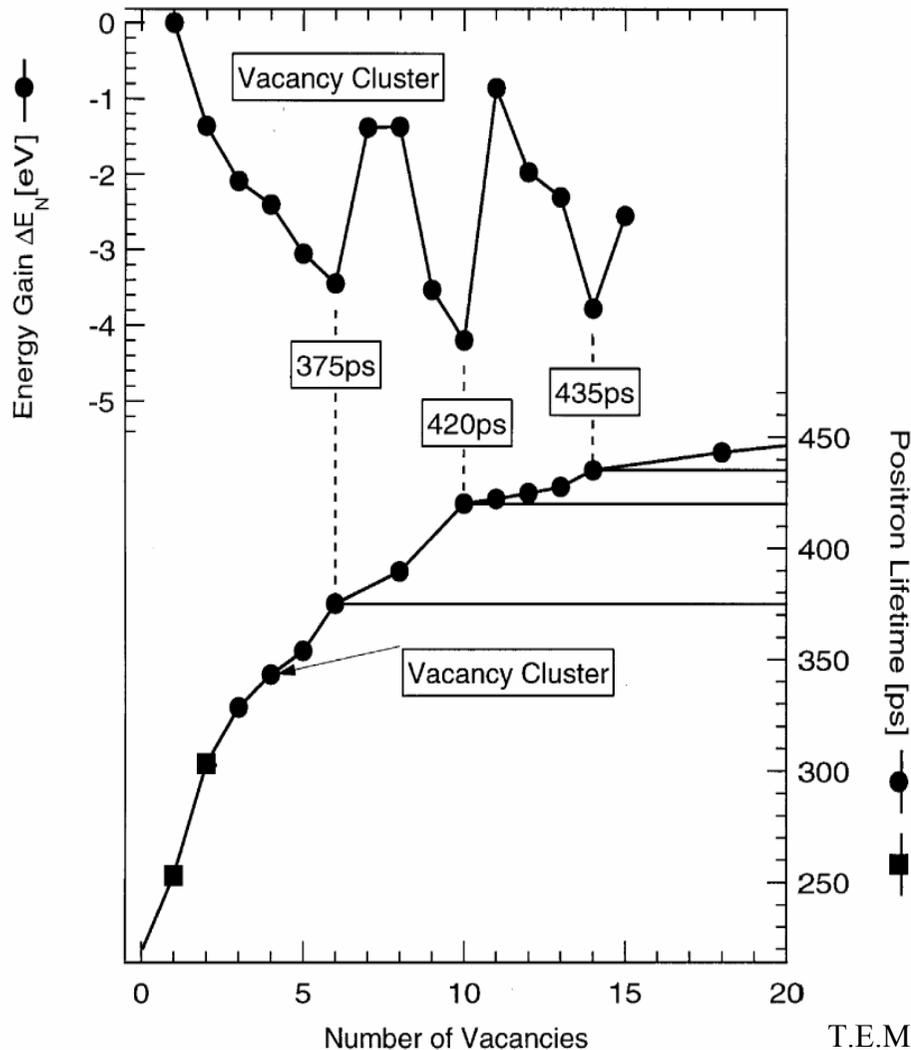


# Defektnachweis mit Positronen



- Positronen-Wellenfunktion wird im Defekt lokalisiert (z.B. Leerstellen)
- Annihilationsparameter ändern sich, wenn Positron im Defekt zerstrahlt
- Defekte können nachgewiesen werden (Identifizierung und Quantifizierung)

# Theoretische Berechnung der Lebensdauer für Leerstellen-Agglomerate in Si

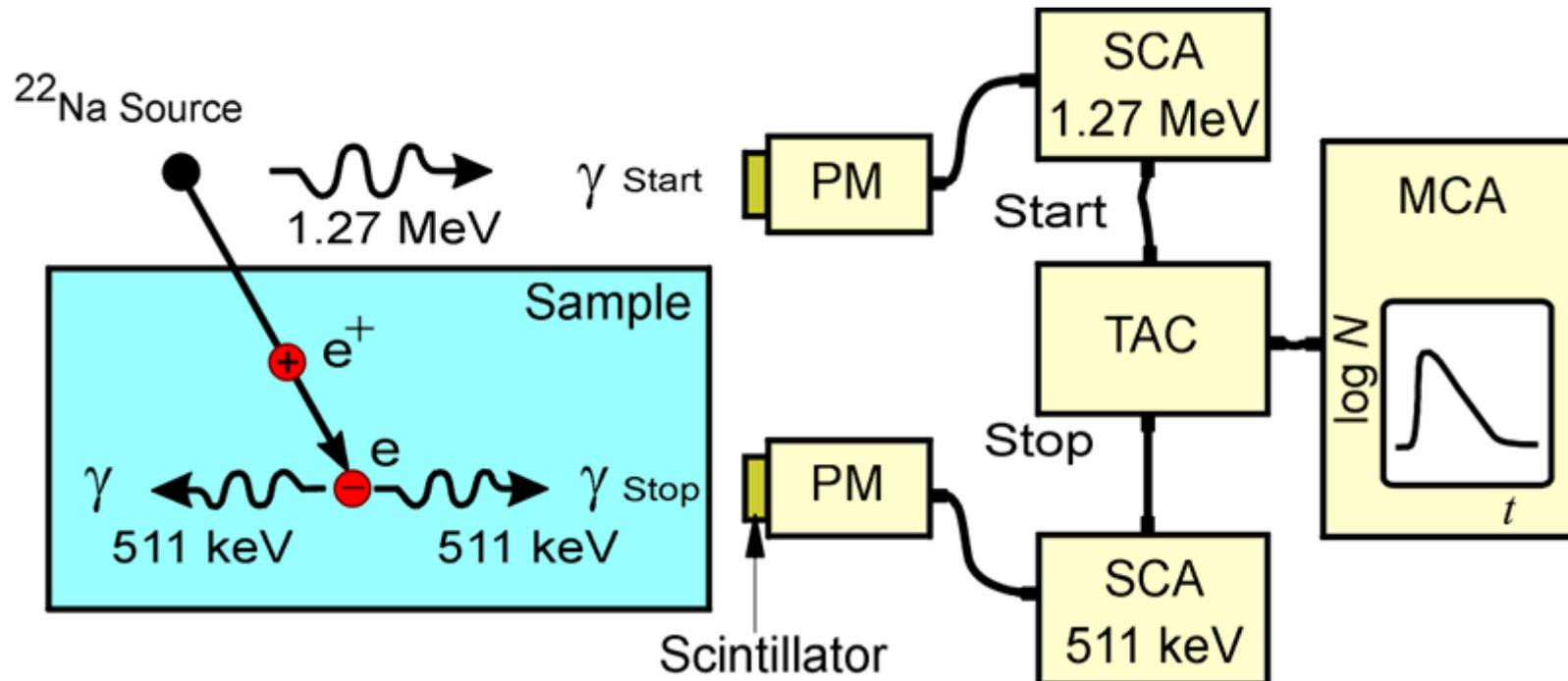


T.E.M. Staab et al., Physica B 273-274 (1999) 501

- es existieren bestimmte Leerstellen-Konfigurationen mit besonders hohem Energiegewinn
- „Magic Numbers“: 6, 10 und 14
- Positronenlebensdauer steigt mit Cluster-Größe
- ab ca.  $n = 10$  Sättigungseffekt, d.h. exakte Größe dann nicht mehr zu ermitteln



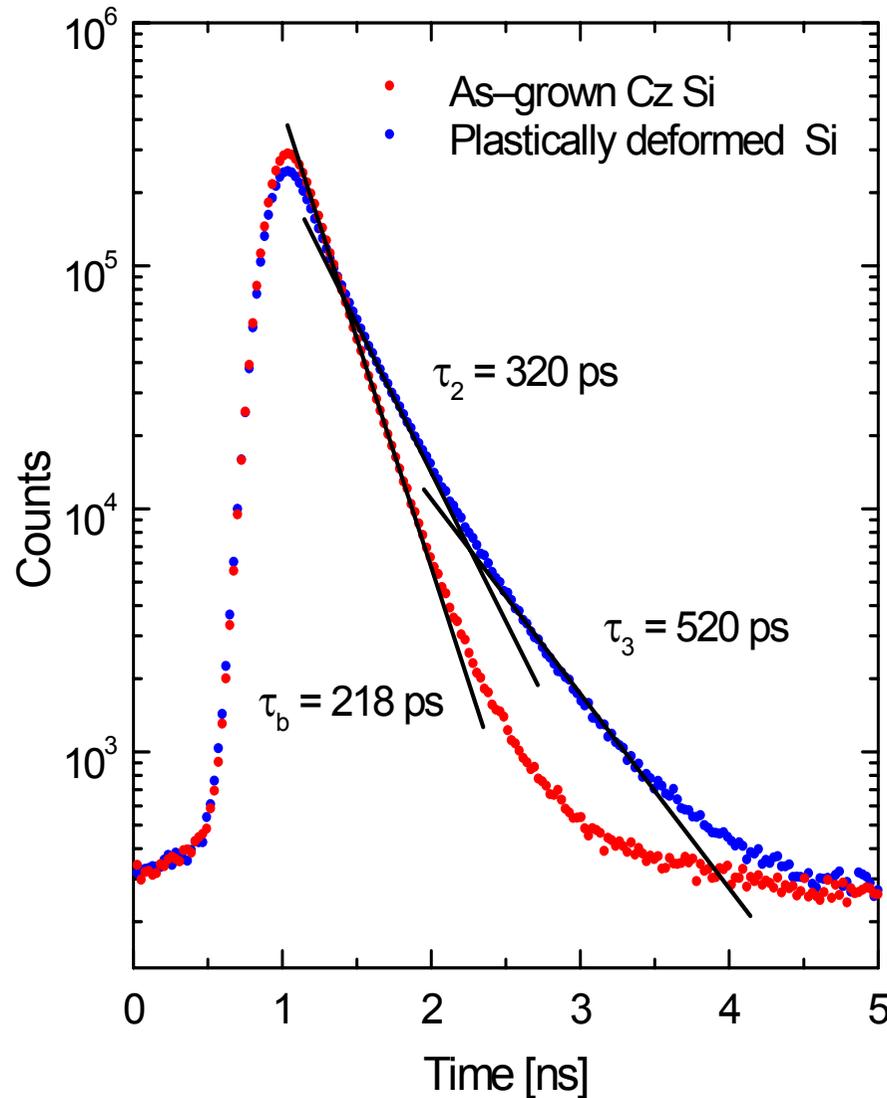
# Die Messung der Positronenlebensdauer



Positronenlebensdauer: Zeitdifferenz zwischen  $1.27\text{ MeV}$   $\gamma$ -Quant ( $\beta^+$ -Zerfall) und einem  $0.511\text{ MeV}$   $\gamma$ -Quant (Annihilation)

PM=Sekundärelektronenvervielfacher; SCA=Einkanalanalysator (Constant-Fraction Typ)  
TAC=Zeit-Impulshöhen-Konverter; MCA= Vielkanalanalysator

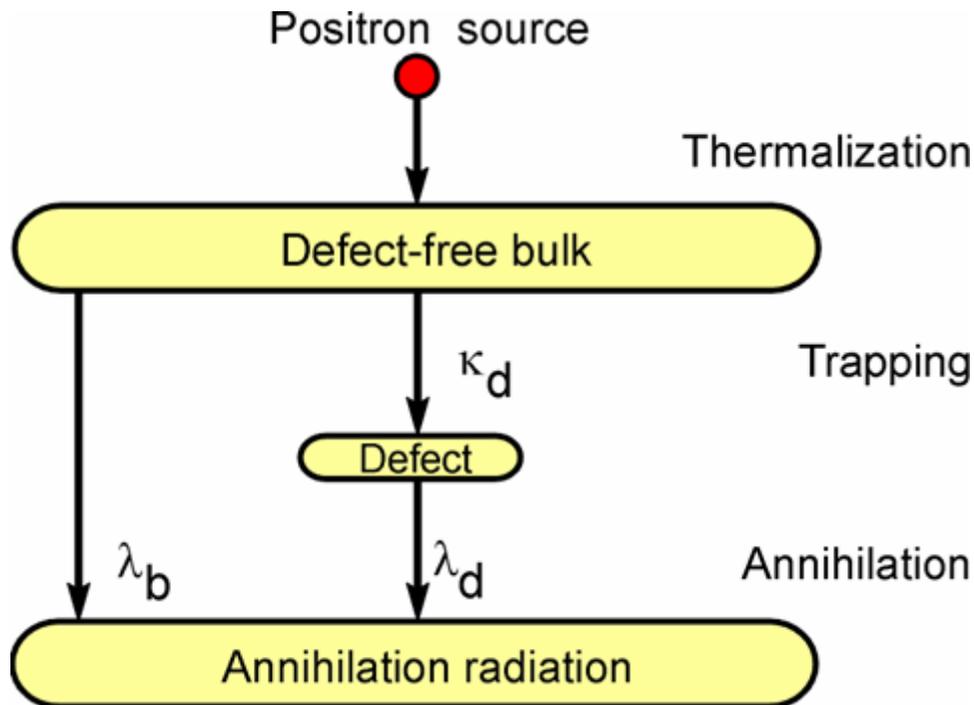
# Positronenlebensdauer-Spektren



- Lebensdauerspektren bestehen aus exponentiellen Zerfallstermen
- Einfang von Positronen in Defekte mit offenem Volumen führt zu langen Komponenten im Spektrum
- Spektralanalyse wird mittels nichtlinearer Anpassroutinen durchgeführt
- Ergebnis: Lebensdauern  $\tau_i$  und Intensitäten  $I_i$

$$N(t) = \sum_{i=1}^{k+1} \frac{I_i}{\tau_i} \exp\left(-\frac{t}{\tau_i}\right)$$

# Positroneneinfang durch einen Defektyp



$$\frac{dn_b(t)}{dt} = -(\lambda_b + \kappa_d)n_b(t)$$

$$\frac{dn_d(t)}{dt} = -\lambda_d n_d(t) + \kappa_d n_b(t)$$

Lösung ist das Zerfallsspektrum der Positronen:

$$D(t) = I_1 \exp\left(-\frac{t}{\tau_1}\right) + I_2 \exp\left(-\frac{t}{\tau_2}\right)$$

Abkürzungen:

$$\tau_1 = \frac{1}{\lambda_b + \kappa_d}, \quad \tau_2 = \frac{1}{\lambda_d},$$

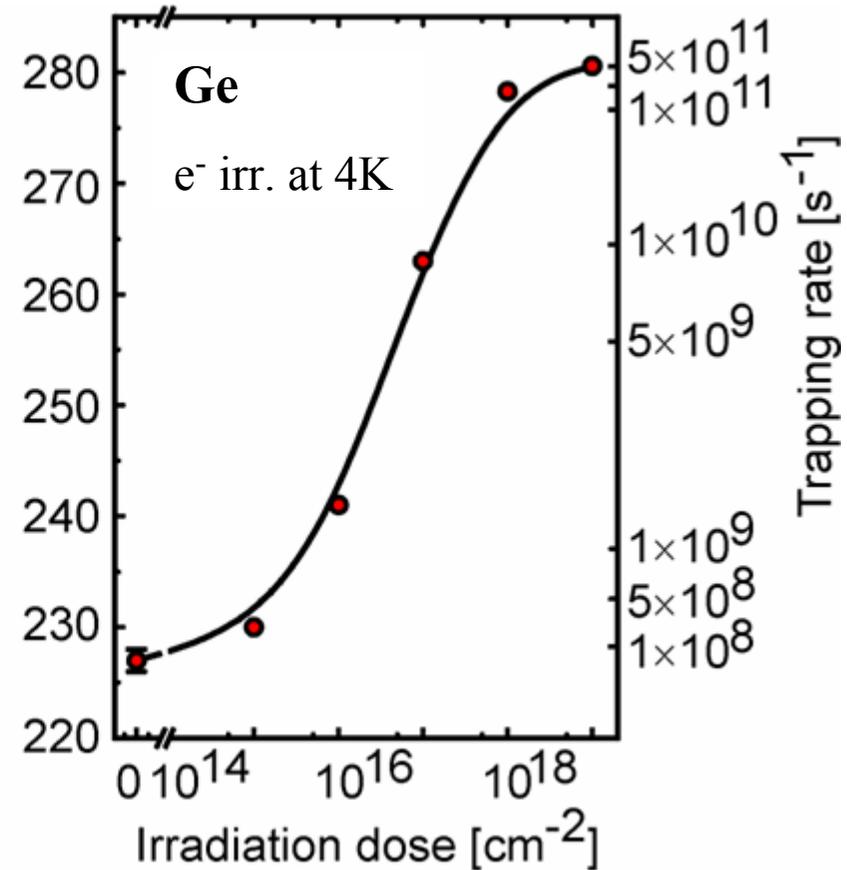
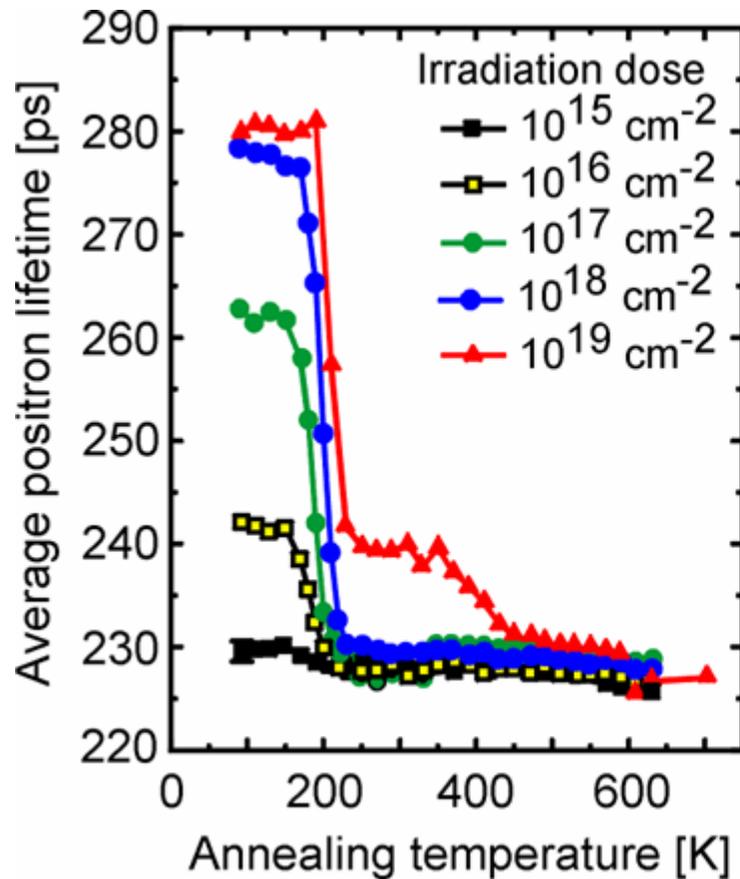
$$I_1 = 1 - I_2, \quad I_2 = \frac{\kappa_d}{\lambda_b - \lambda_d + \kappa_d}$$

Die  $\tau_i$  und  $I_i$  werden gefittet  $\Rightarrow$  **Ergebnis:**  
Einfangrate  $\kappa$

$$\kappa_d = \mu C_d = \frac{I_2}{I_1} \left( \frac{1}{\tau_b} - \frac{1}{\tau_d} \right)$$

# Defekte in Ge nach Elektronenbestrahlung

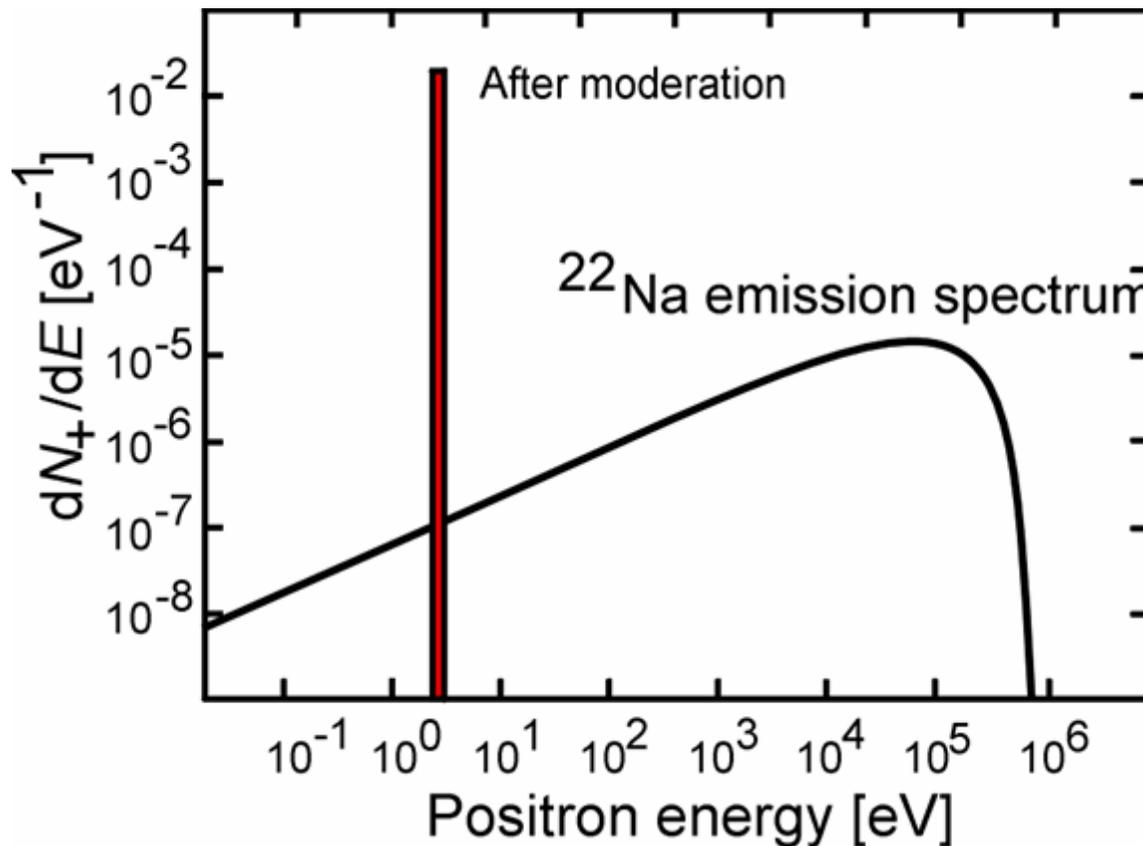
- 2 MeV-Elektronenbestrahlung induziert Frenkelpaare
- Ausheilstufe bei 200 K
- bei hohen Bestrahlungsdosen bilden sich Doppelleerstellen



Polity et al., Phys. Rev. B **55** (1997) 10480

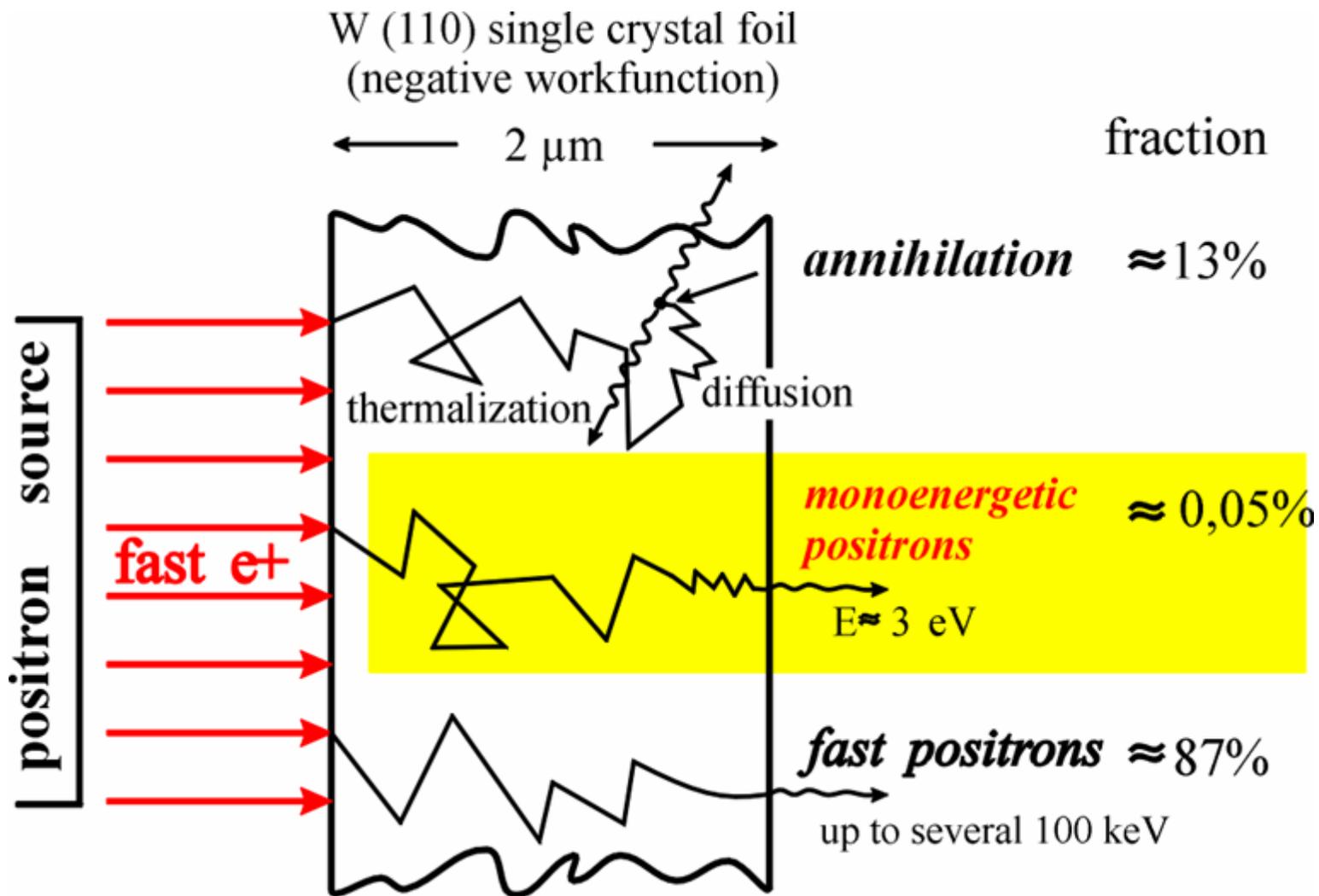


# Informationstiefe der Positronen-Messung



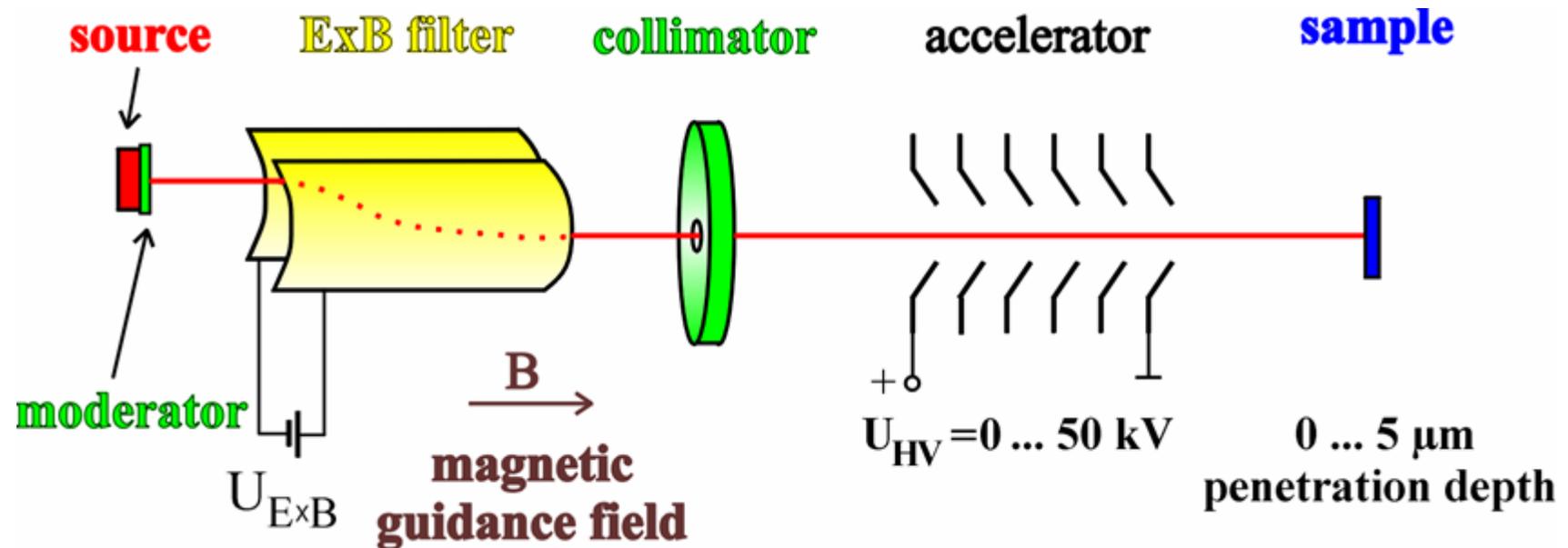
- Positronen aus  $\beta^+$ -Zerfall: breites Emission-Spektrum bis 540 keV
- tiefe Implantation in Probe
- ungeeignet für Untersuchung dünner Schichten
- monoenergetische Positronen nötig
- Moderation mittels Metallfolien

# Moderation von Positronen

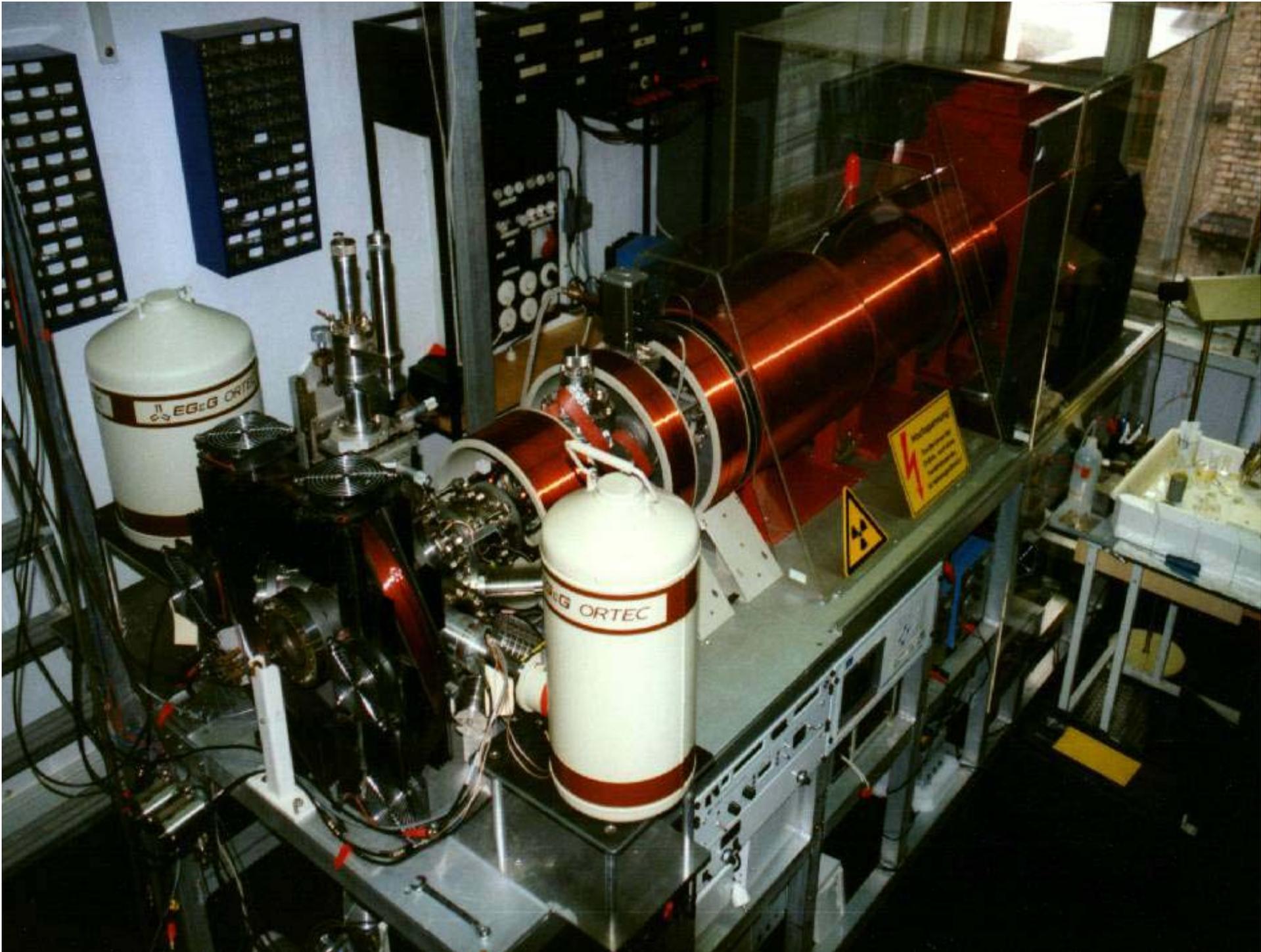


Effektivität der Moderation:  $\approx 10^{-4}$

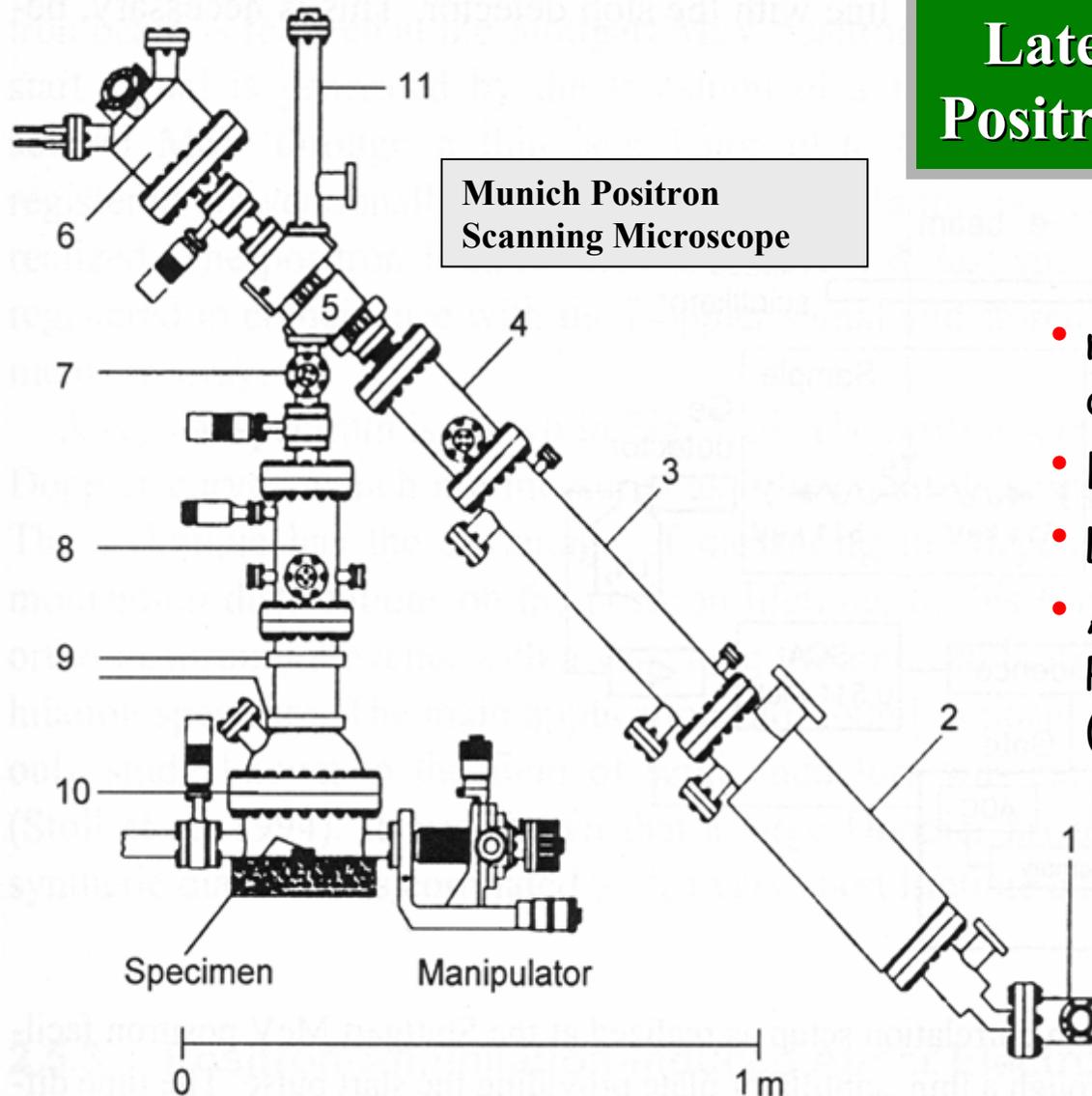
# Das Positronen-Strahlsystem in Halle



- Spot Durchmesser: 5mm
- Zeit für eine Doppler-Messung: 20 min
- Zeit für Tiefenscan: 8 h



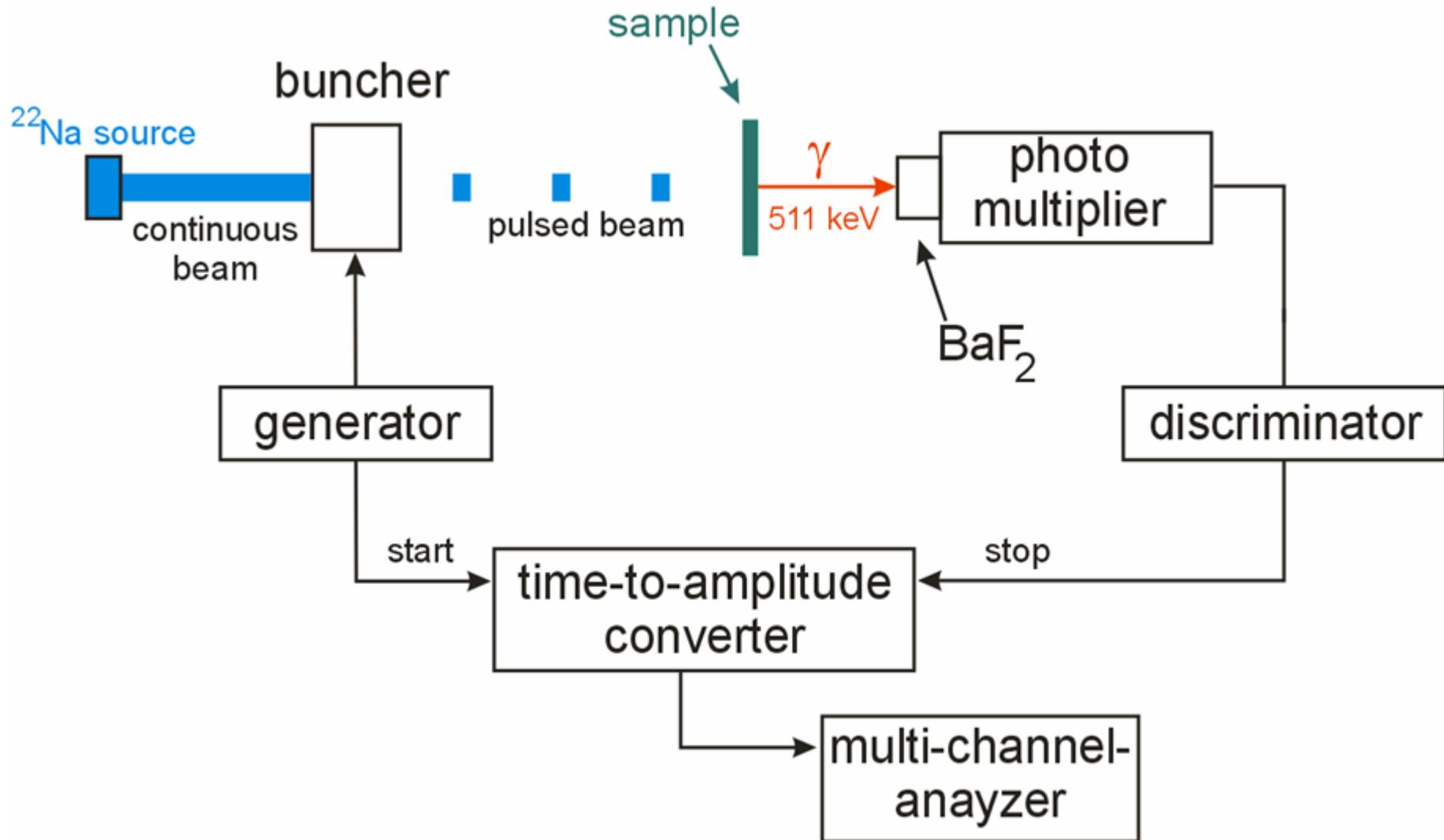
## Laterale Auflösung mittels Positronen-Raster-Mikroskop



- monoenergetische Positronen durch Moderation
- laterale Auflösung ca.  $2 \mu\text{m}$
- Lebensdauer-Messung möglich
- Auflösung prinzipiell durch Positronendiffusion limitiert (ca. 100nm)

W. Triftshäuser et al., NIM B **130** (1997) 265

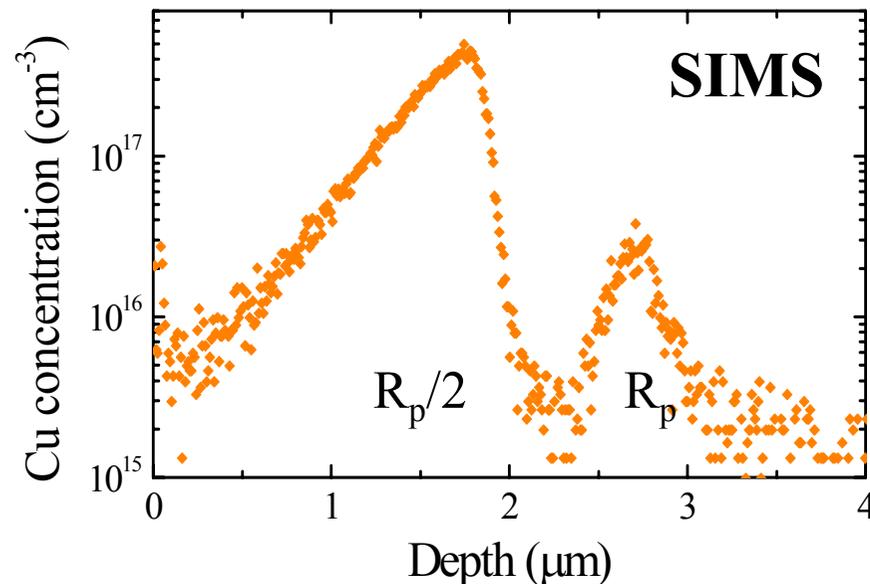
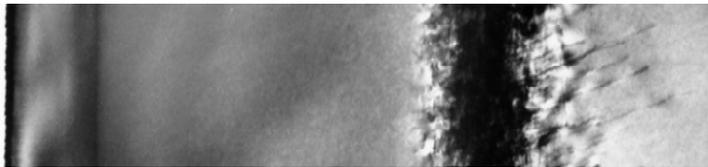
# Die Positronenlebensdauer-Messung am Münchener Positronen-Raster-Mikroskop



# Defekte nach Selbstimplantation in Si - der Rp/2 Effekt

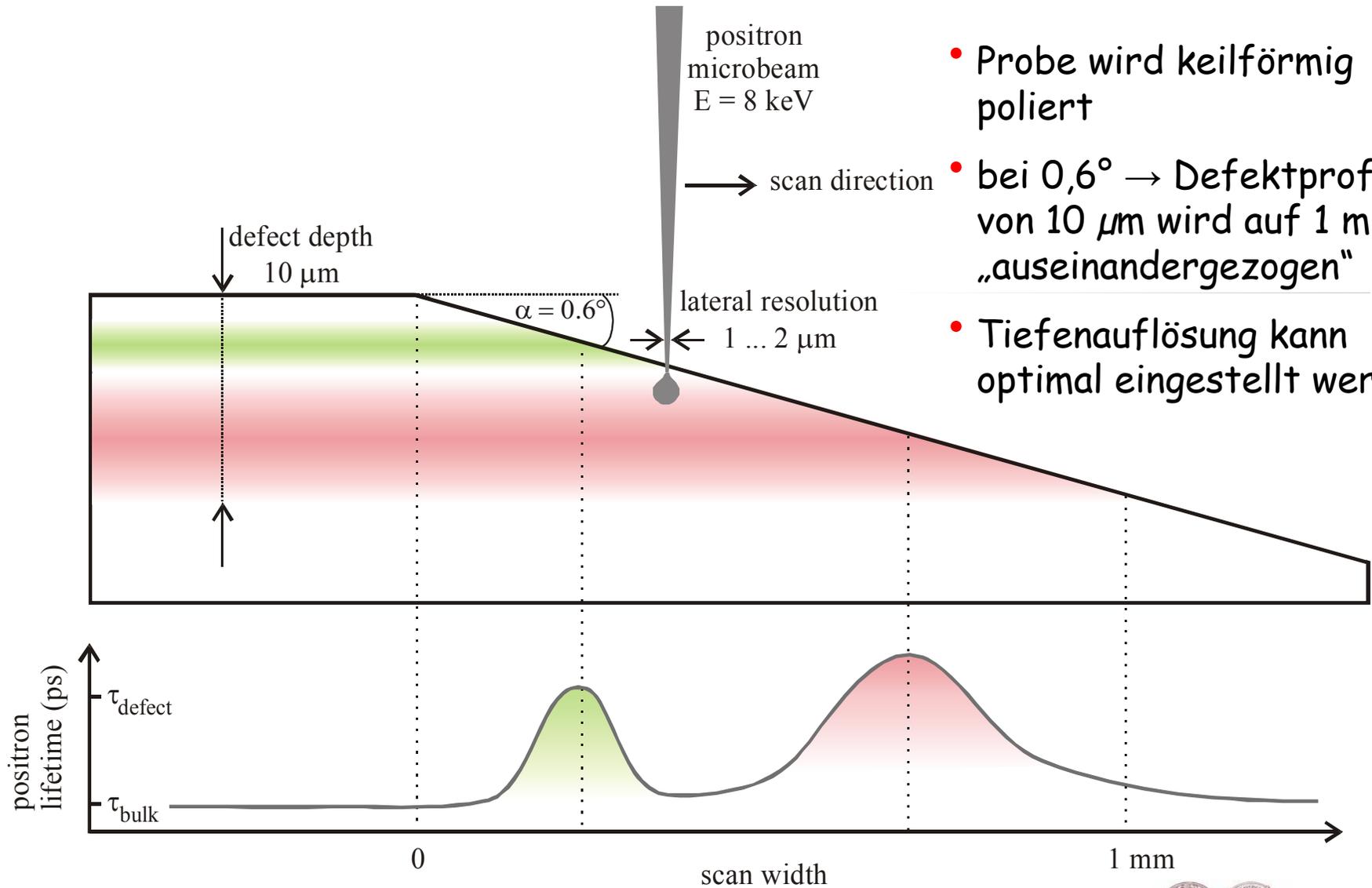
- nach Hochenergie-Selbstimplantation von Si (3.5 MeV;  $5 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ ) und kurzer Ausheilung (900°C, 30s): zwei neue Getterzonen bei  $R_p$  und  $R_p/2$  ( $R_p$  = projected range of  $\text{Si}^+$ )
- findet man experimentell mit SIMS nach Cu-Kontamination von der Rückseite und Diffusions-Temperung

Cross section TEM image by P. Werner, MPI Halle



- bei  $R_p$ : Getterung durch interstitielle Versetzungsringe (gebildet durch Überschuss-Si während RTA-Ausheilung)
- aber keine Defekte mit TEM bei  $R_p/2$  sichtbar
- in Literatur: leerstellenartige aber auch interstitielle Defekte diskutiert
- **Welcher Natur sind diese Defekte?**

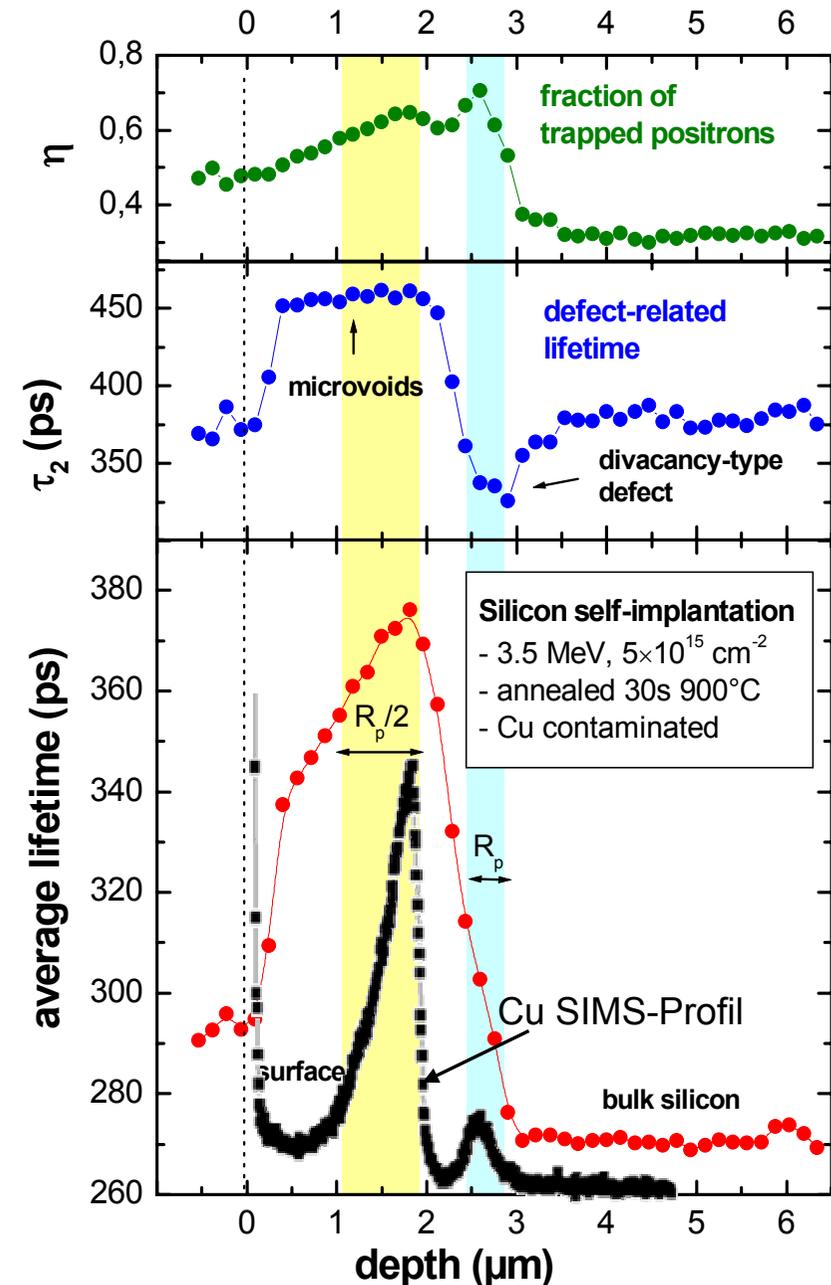
# Tiefenprofil-Messungen mit einem Positronen-Mikrostrahl



- Probe wird keilförmig poliert
- bei  $0,6^\circ$  → Defektprofil von  $10 \mu\text{m}$  wird auf 1 mm „auseinandergezogen“
- Tiefenauflösung kann optimal eingestellt werden

# Untersuchung zum $R_p/2$ Effekt

- 45 Lebensdauer-Spektren entlang Keil ( $\alpha = 0.81^\circ$ ) entsprechen geometrischer Tiefenauflösung von 155 nm
- Positronenenergie 8 keV  $\Rightarrow$  mittlere Eindringtiefe 400 nm
- ergibt optimale Tiefenauflösung
- beide Defekt-Regionen gut sichtbar:
  - Leerstellencluster mit ansteigender Dichte bis  $2 \mu\text{m}$  (bei  $R_p/2$ )
  - in  $R_p$  Bereich: Lebensdauer  $\tau_2 = 330$  ps; offenes Volumen entspricht dem einer Doppelleerstelle; Defekt wird durch Versetzungsringe stabilisiert
- exzellente Übereinstimmung mit SIMS-Profil von gegetertem Cu



R. Krause-Rehberg et al., Appl. Phys. Lett. 77 (2000) 3932

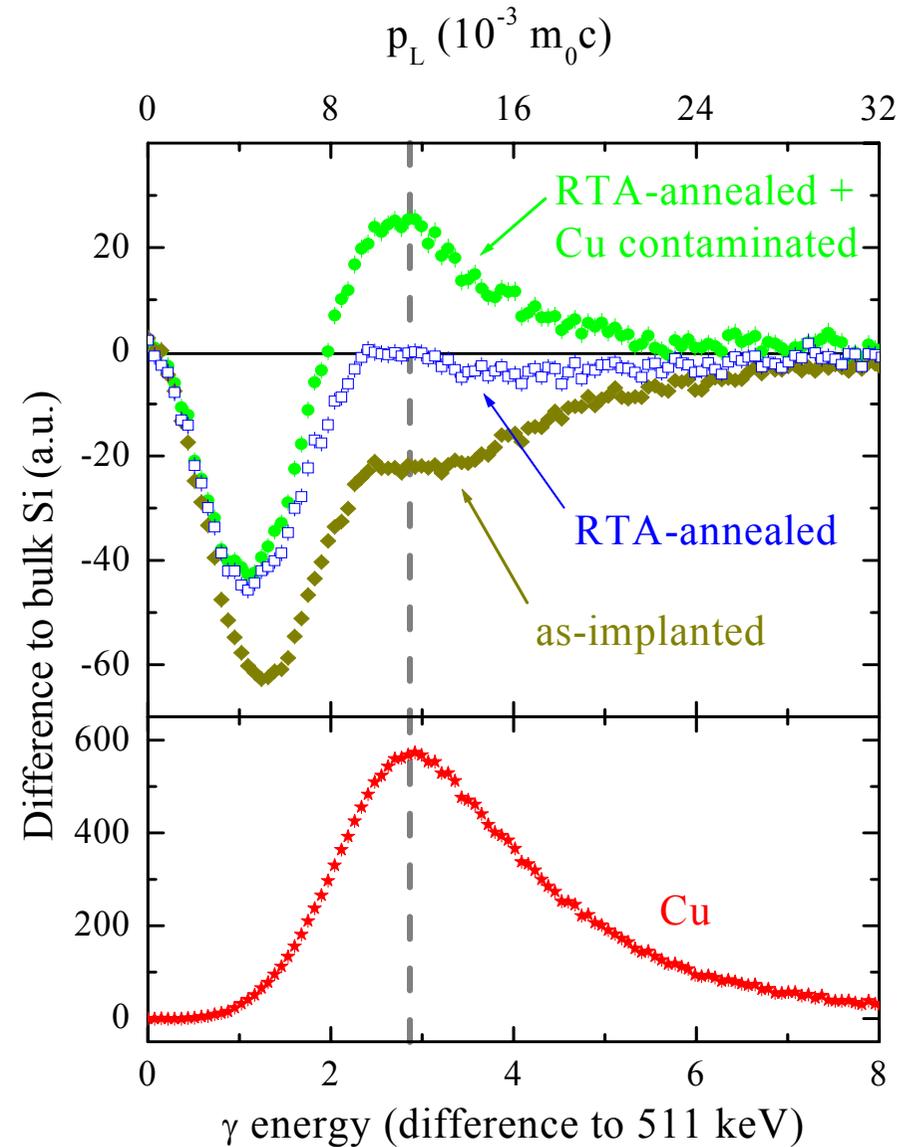


# Nachweis von Cu mit Doppler-Koinzidenz

- Probe durch chemisches Abdünnen in  $R_p/2$ -Region präpariert
- Doppler-Koinzidenz zeigt Cu in den Leerstellen-Agglomeraten

## Getterzentren:

- $R_p/2$ : Leerstellencluster
- $R_p$ : Versetzungsringe



## Notwendig: intensive Positronenquellen für Nutzergruppen

- bei Verwendung von Isotopenquellen: Zeit / Spektrum  $10^4 \dots 10^5$  s
- intensive Positronenquellen notwendig, die für Nutzergruppen frei zugänglich sind
- Positronenerzeugung bspw. durch Paarbildung an hochenergetischen Elektronen-LINAC's ( $E > 10$  MeV)
- weltweit drei Projekte:
  - LLNL (Livermore, USA): LINAC-System mit  $e^+$ -Mikrostrahl, aber kein freier Zugang für Nutzergruppen -> vor kurzem eingestellt!
  - FRM-II Garching: u.a. Ankopplung des Positronen-Raster-Mikroskops
  - EPOS im FZR (Rossendorf): hochintensive Strahlungsquelle ELBE wird genutzt; einmalige primäre Elektronen-Zeitstruktur dieses LINACs zur direkten Positronen-Erzeugung
- EPOS = ELBE POSitron Source; ist als externer Messplatz des IWZ der Uni Halle geplant; freier Zugang für Nutzergruppen

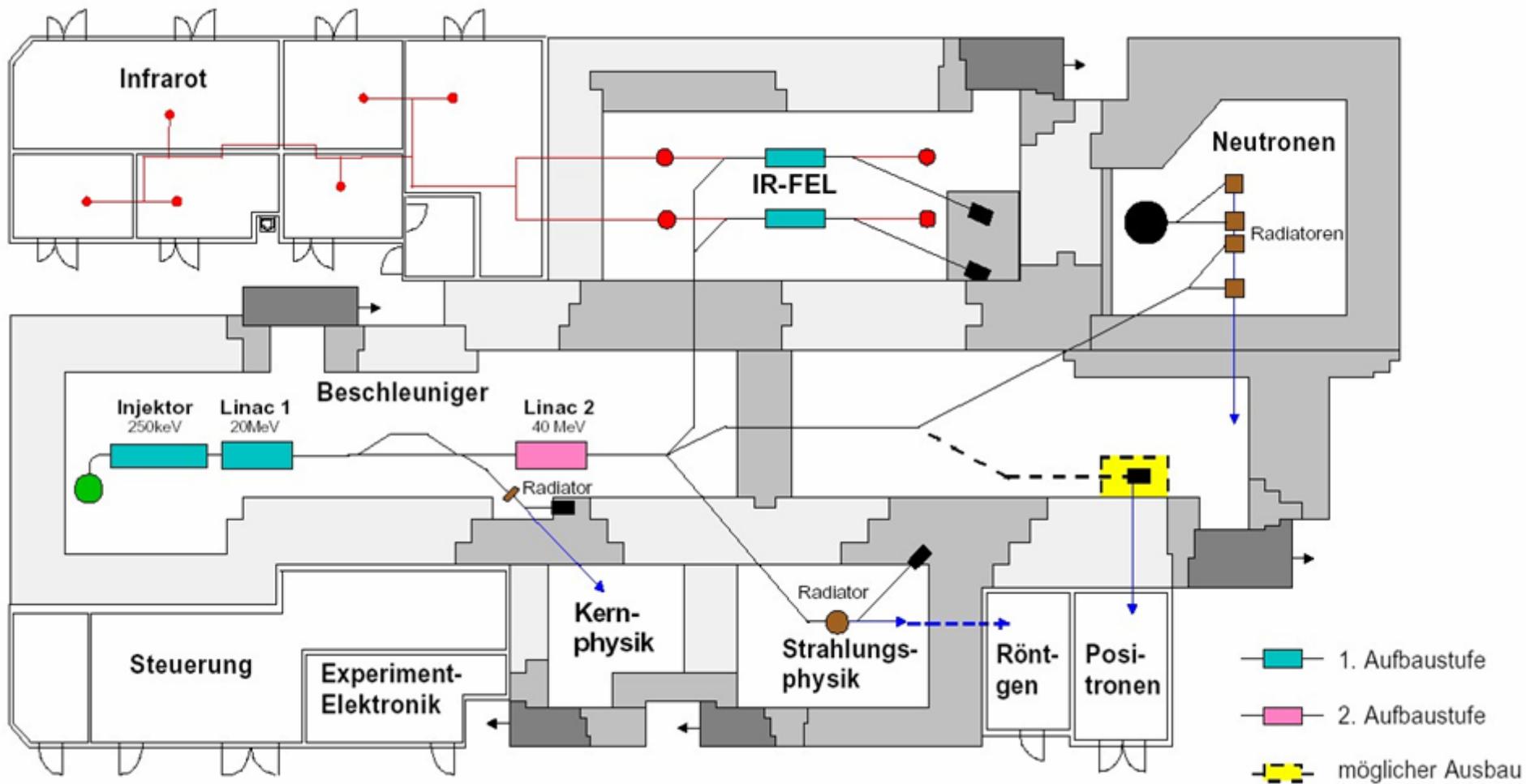


## EPOS = ELBE Positron Source

- EPOS kombiniert erstmalig alle Techniken der Positronenannihilation
- besonders hohe Datenrate durch Multidetektorsystem (z.B. 16 Detektoren für Lebensdauer-Spektroskopie)
- wichtigste Daten:
  - Zählrate  $> 10^6 \text{ s}^{-1}$  (konventionell ca.  $10^3 \text{ s}^{-1}$ ); wichtig für kinetische Untersuchungen
  - erstmalig auch Lebensdauern bis  $> 100 \text{ ns}$  messbar (Nanovoids in „low-k materials“)
  - gute laterale Auflösung ( $< 100 \mu\text{m}$ ), aber keine Mikroskopie geplant
  - extrem gute Zeitauflösung und Peak/UG-Verhältnis durch koinzidente Messung von Lebensdauer- und Doppler-Spektren
  - völlig neuartiges Detektorsystem mit digitaler Messung
  - dadurch: kein Abgleich von elektronischen Komponenten vor Ort mehr erforderlich
  - volle Systemkontrolle über Internet



# Grundriss der ELBE-Halle

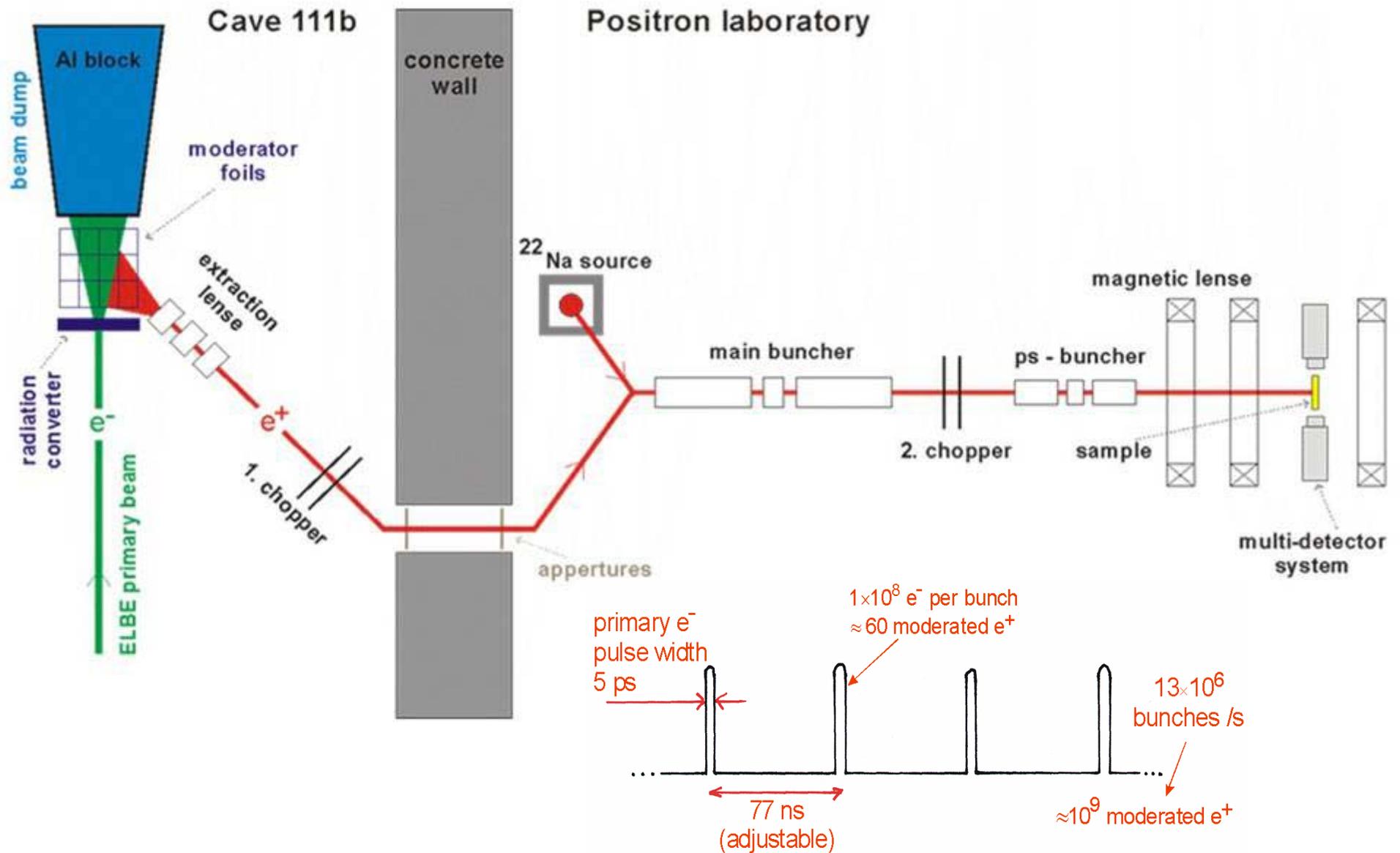






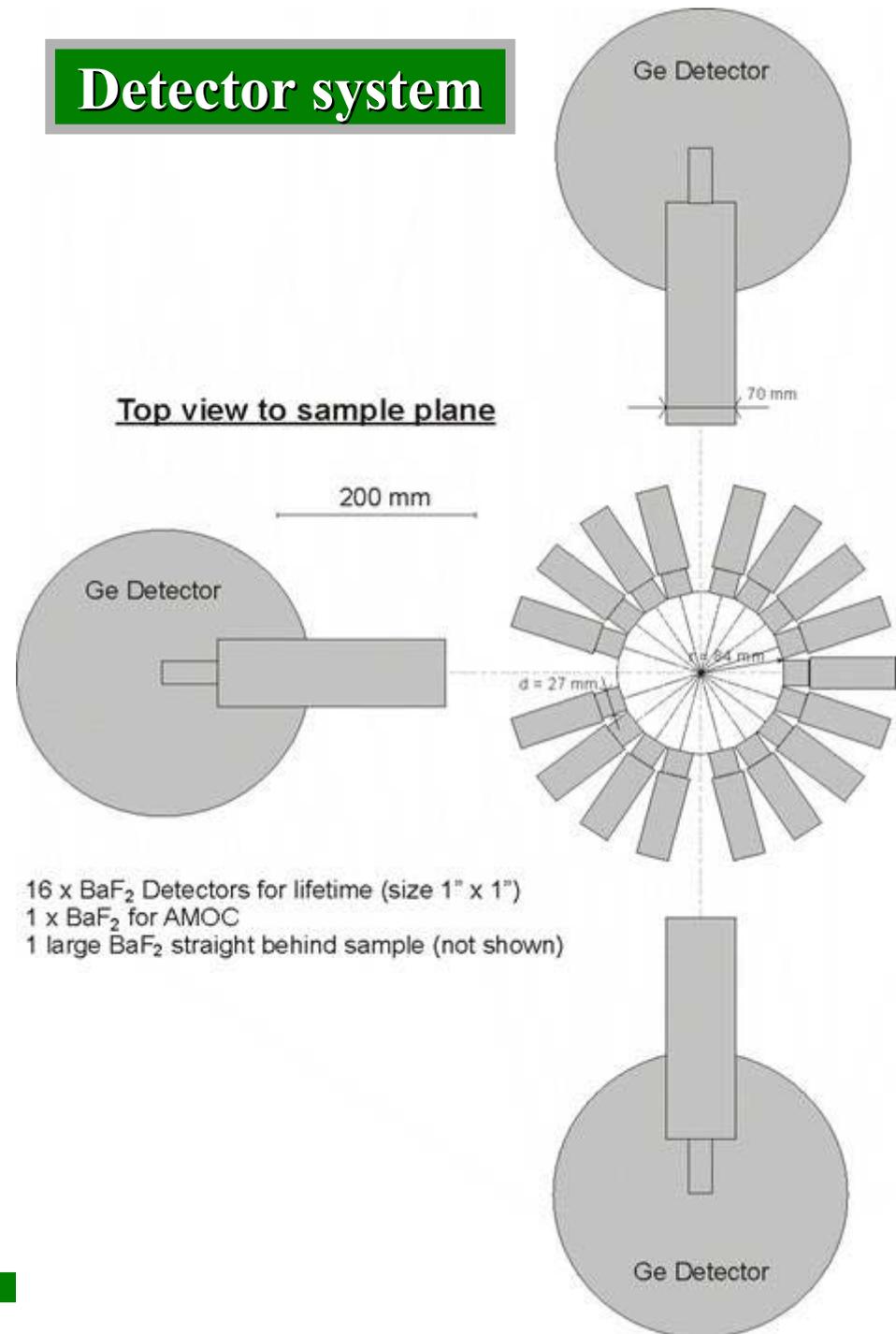
Mai 2003

# EPOS (ELBE Positron Source)

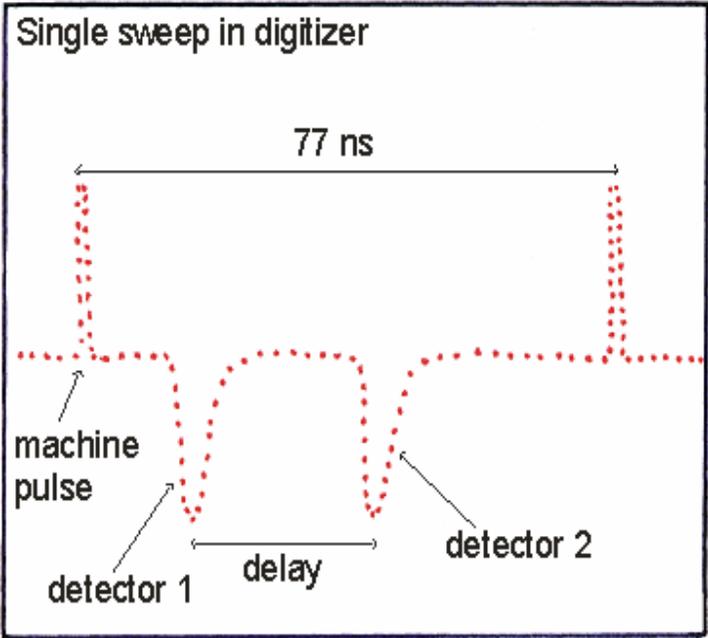
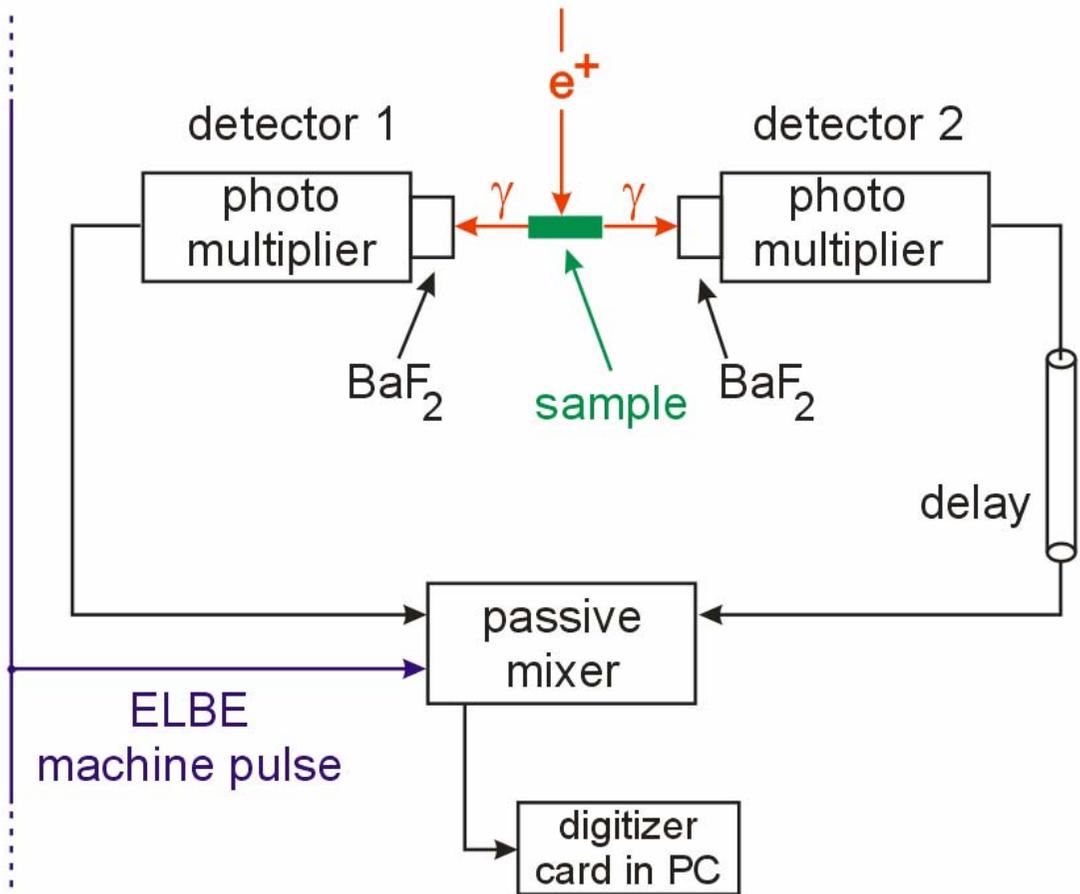


- **3 experiments:** lifetime spectroscopy (16 BaF<sub>2</sub> detectors); Doppler coincidence (2 Ge detectors), and AMOC (1 Ge and 1 BaF<sub>2</sub> detector)
- arrangement of all detectors in a plane
- one **large extra BaF<sub>2</sub>** behind the sample for detection with high counting rate (no coincidence possible)
- advantages of **digital detection system:**
  - lifetime: almost nothing to adjust; time scale exactly the same for all detectors; easy realization of coincidence
  - Doppler: better energy resolution and pile-up rejection expected
- disadvantage: large number of data

## Detector system



# Digitale Lebensdauermessung



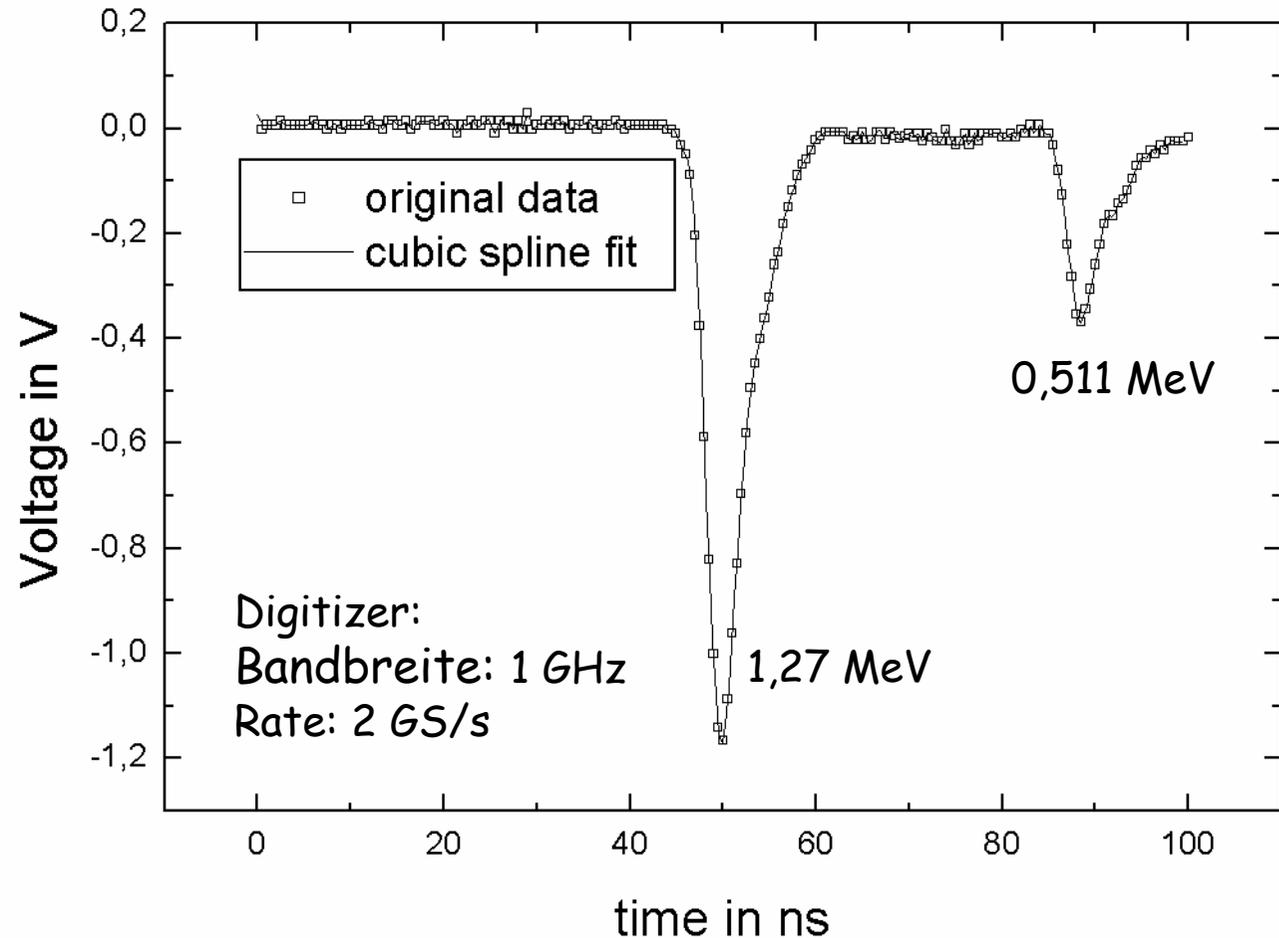
Digitizer:

- > 1 GHz analoge Bandbreite
- Sample-Rate 2...5 GS/s

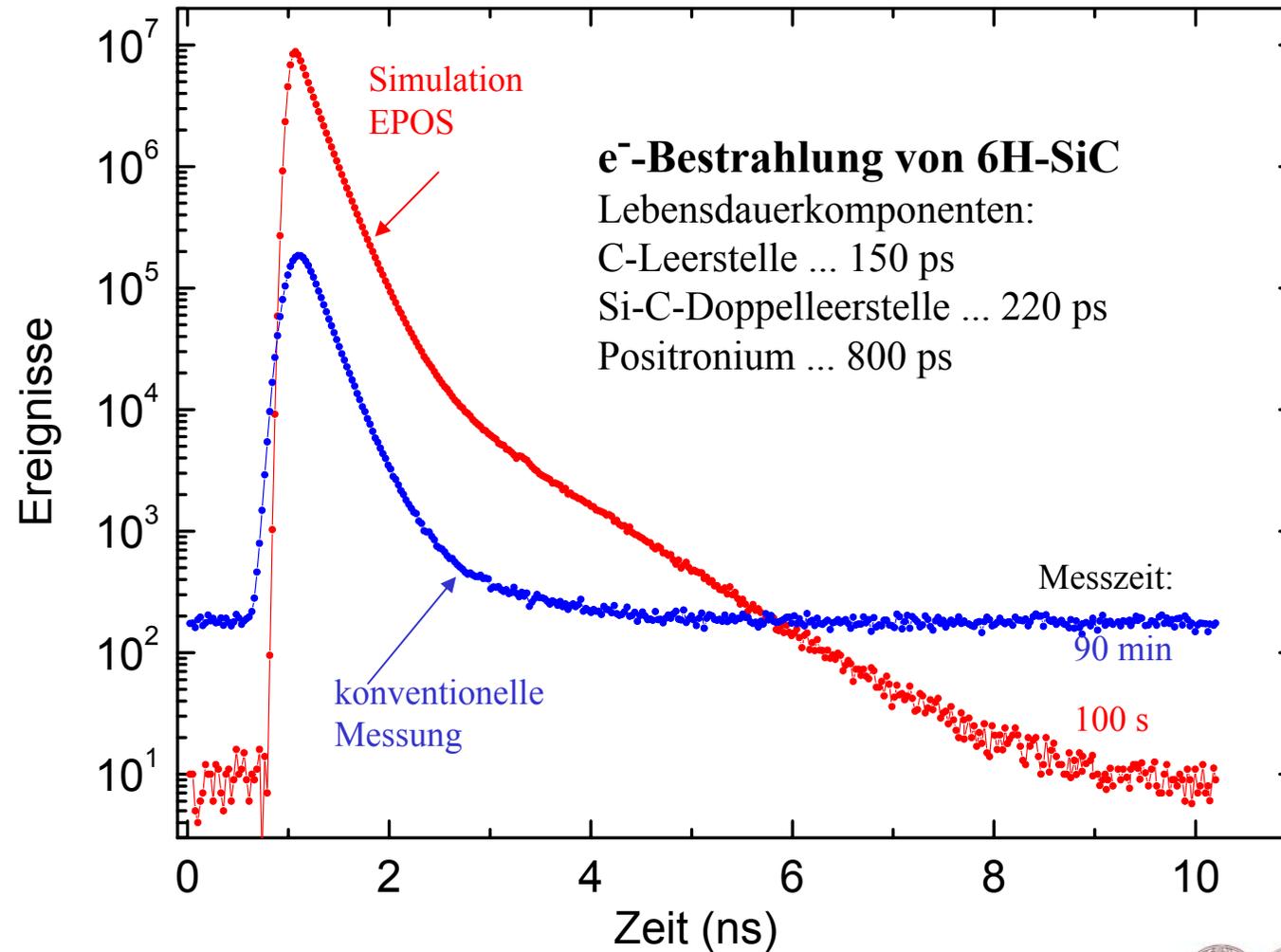


# Digitale Lebensdauermessung

- Sweep zweier passiv gemischter SEV-Anodensignale (XP2020)
- konventionelle Messung mit  $^{22}\text{Na}$
- externe Verzögerung betrug 35 ns
- durchgezogene Linie ist Anpassung an die gemessenen Punkte mit kubischen Splines



- Spektrenqualität wird erheblich besser durch Koinzidenzmessung
- Beispiel: MC-Simulation von Spektren



# Anwendungsspektrum von EPOS

- Anwendung für die volle Breite der Materialwissenschaften
- durch besonders kurze Messzeiten (Spektrum in 100 ms): in-situ Studium der Defektkinetik (Diffusion, Ausscheidungsprozesse, Defektausheilung, ...)
- Tribology (oberflächennahe Defekte)
- Polymerphysik (Poren; Interdiffusion; ...)
- „low-k materials“ (dünne hoch-poröse Schichten für elektronische Bauteile)
- Defekte in Halbleitern, Keramiken and Metallen (an Oberfläche und im Volumen)
- Epitaxie-Schichten (Wachstums- und Anpassdefekte)
- Strahlungshärte (z.B. Weltraummaterialien)
- ...



# Zeitplan

	1. Jahr	2. Jahr	3. Jahr
Laborräume			
Simulation Konverterkammer			
Simulation Strahlführung			
Konverterkammer und Strahlführung durch Tunnel			
Simulation Strahlenschutz			
Aufbau erster Chopper / Buncher			
Test des Konverters/Transportlinie			
Fertigstellung Vakuumsystem			
Quellenhalter f. 22-Na-Quelle			
zweiter Chopper und Einzellinse			
Probenkammer			
Kammer für Isotopenquelle			
Test komplettes Transportsystem			
Detektorsystem und Software			
Messplatz-Automatisierung			
Justierung der Beamfokussierung			
Optimierung der Zeitauflösung			



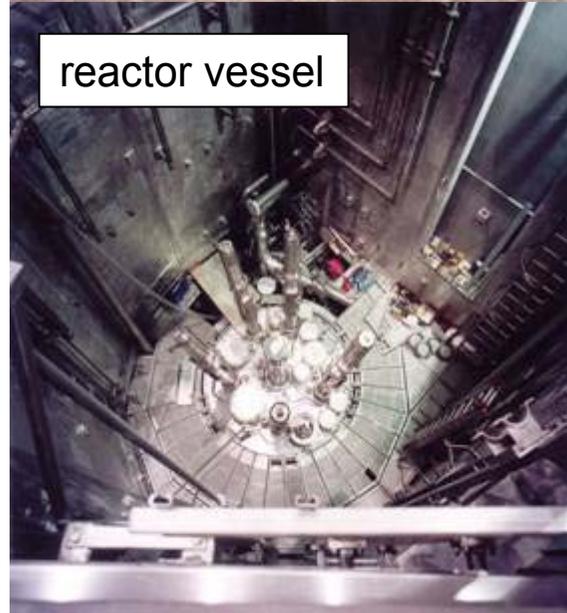
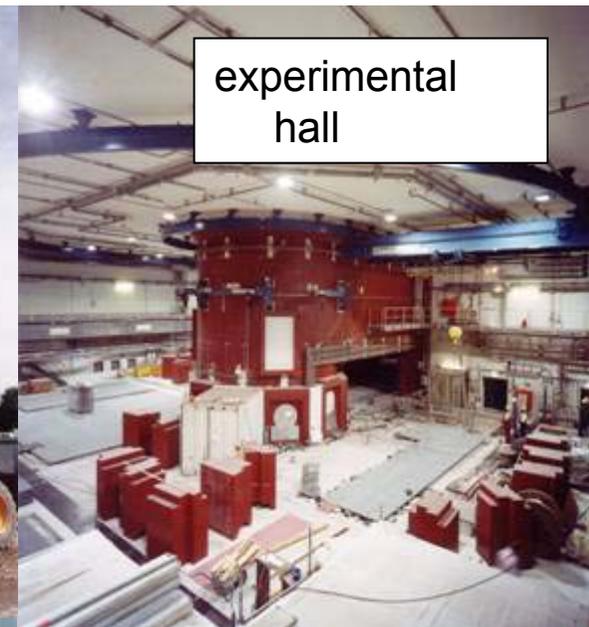
## Probleme für EPOS

- extrem hohes Datenaufkommen durch digitale Messung; könnte Messgeschwindigkeit bei Lebensdauer-Spektroskopie limitieren
- Strahlenschutz-Maßnahmen an Konverterkammer (Simulationen notwendig)
- aber: keine wesentlichen technischen Schwierigkeiten
- Finanzierung noch offen
- für Umsetzung in 3 Jahren benötigen wir Unterstützung der zukünftigen Nutzer (Softwareentwicklung; Werkstattkapazität)



# Forschungsreaktor FRM-II, München

- neuer Reaktor wird jetzt nach dritter Teilgenehmigung hochgefahren
- Positronenquelle mittels Reaktion:  $^{113}\text{Cd}(n,\gamma)^{114}\text{Cd}$
- drei  $\gamma$  Quanten  $\rightarrow$  Paarbildung
- kontinuierlicher Positronenstrahl
- $\approx 10^{10}$  moderierte  $e^+/s$  erwartet



Fotos: Stand Juli 2000

## Zusammenfassung und Ausblick

- Positronen: wertvolle Methode zur Charakterisierung von Werkstoffen in allen Bereichen
- Stand der Technik: Einsatz von Positronen-Mikrostrahl mit Positronen-Lebensdauer-Spektroskopie
- notwendig: intensivere Positronenquellen, z.B. EPOS oder FRM-II

**Vortrag als PDF-File:**

**<http://positron.physik.uni-halle.de>**

