

Materialforschung mit Positronen

R. Krause-Rehberg

Universität Halle

Martin-Luther-Universität

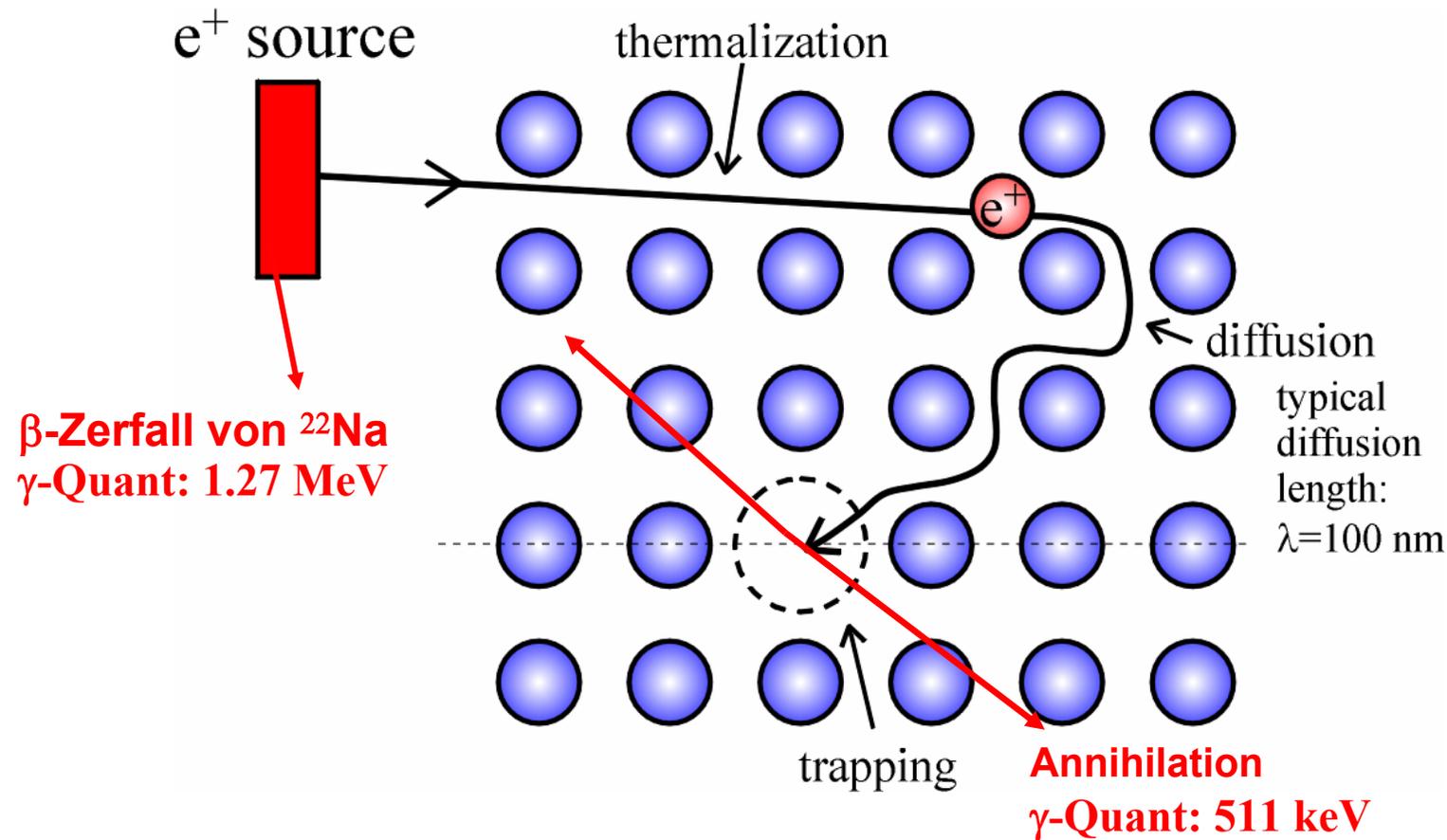


Halle-Wittenberg

- Nachweis von Kristalldefekten mit Positronen
- materialwissenschaftliche Forschung mit Positronen
 - zerstörungsfreie Prüfung von Stahl
 - aushärtbare Al-Legierungen
 - elektronenbestrahltes Ge
 - Defekte in GaAs
 - $R_p/2$ -Effekt in Si
- Zusammenfassung und Ausblick

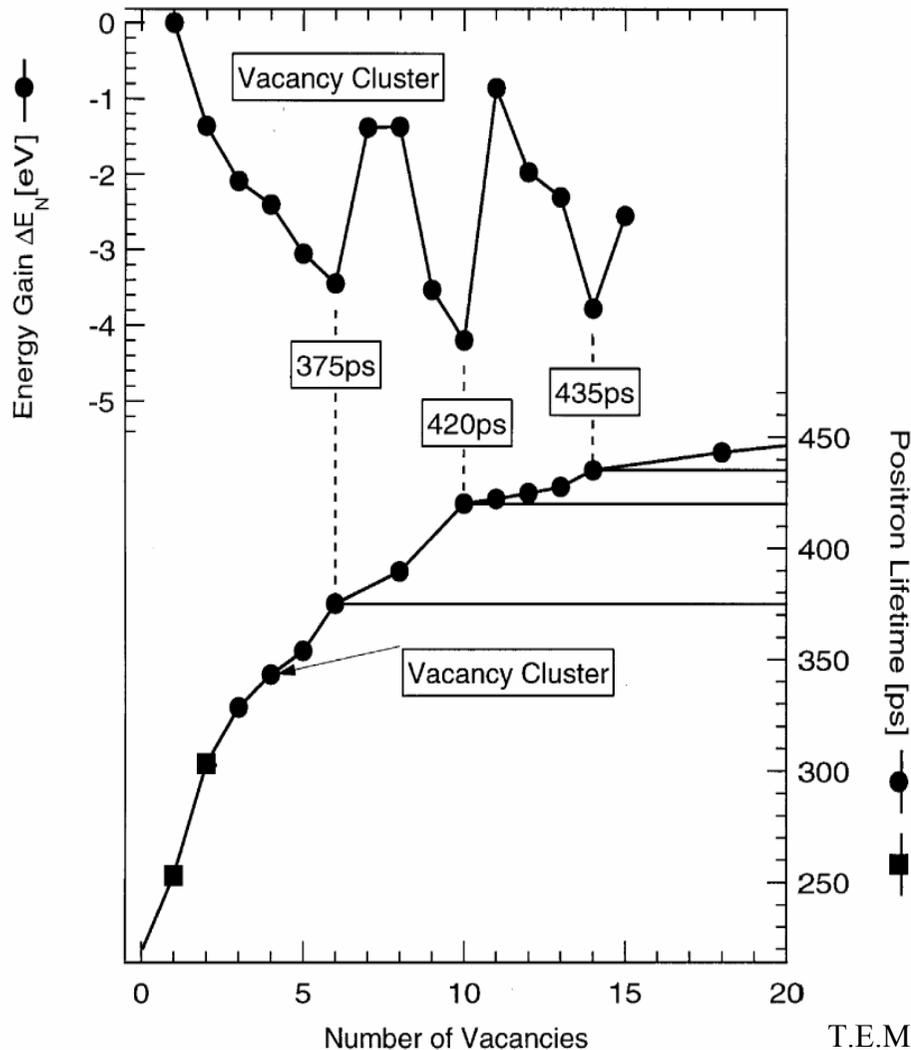


Defektnachweis mit Positronen



- 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

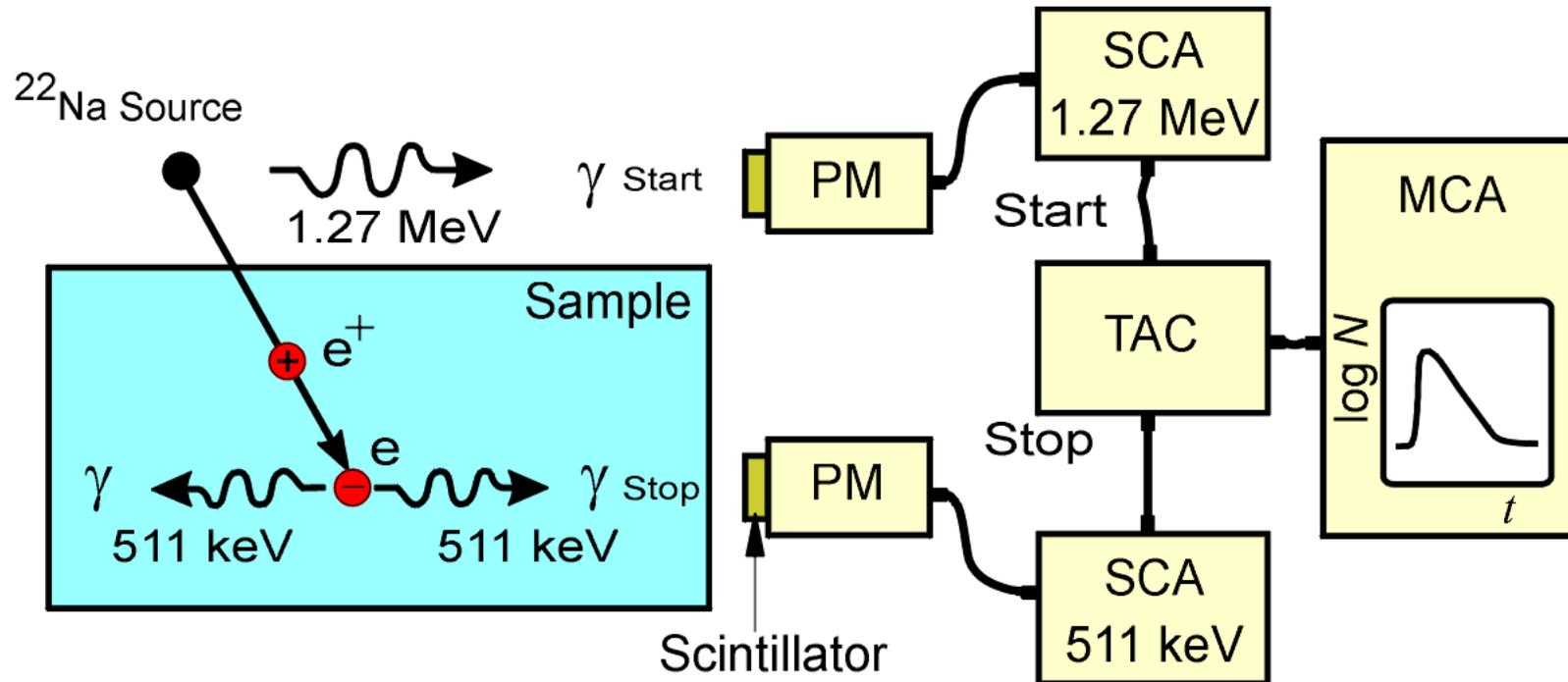


T.E.M. Staab et al., Physica B 273-274 (1999) 501

- 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



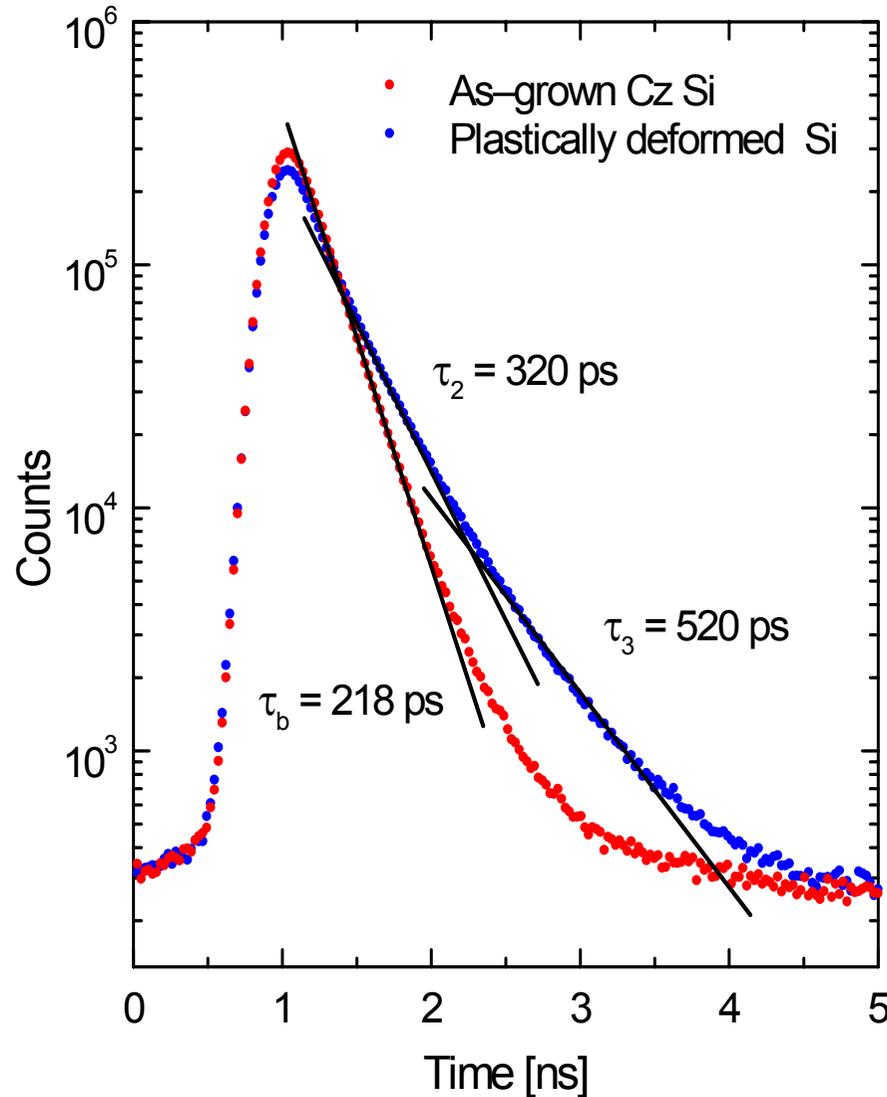
Die Messung der Positronenlebensdauer



Positronenlebensdauer: Zeitdifferenz zwischen 1.27 MeV γ -Quant (β^+ -Zerfall) und einem 0.511 MeV γ -Quant (Annihilation)

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

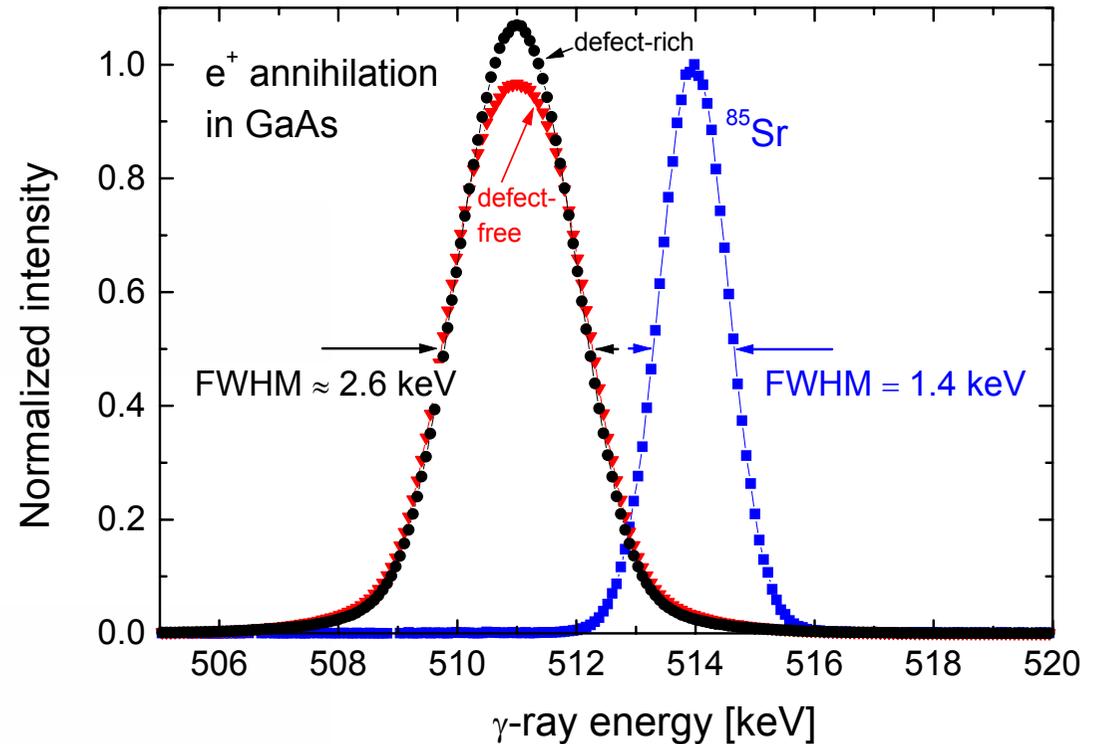
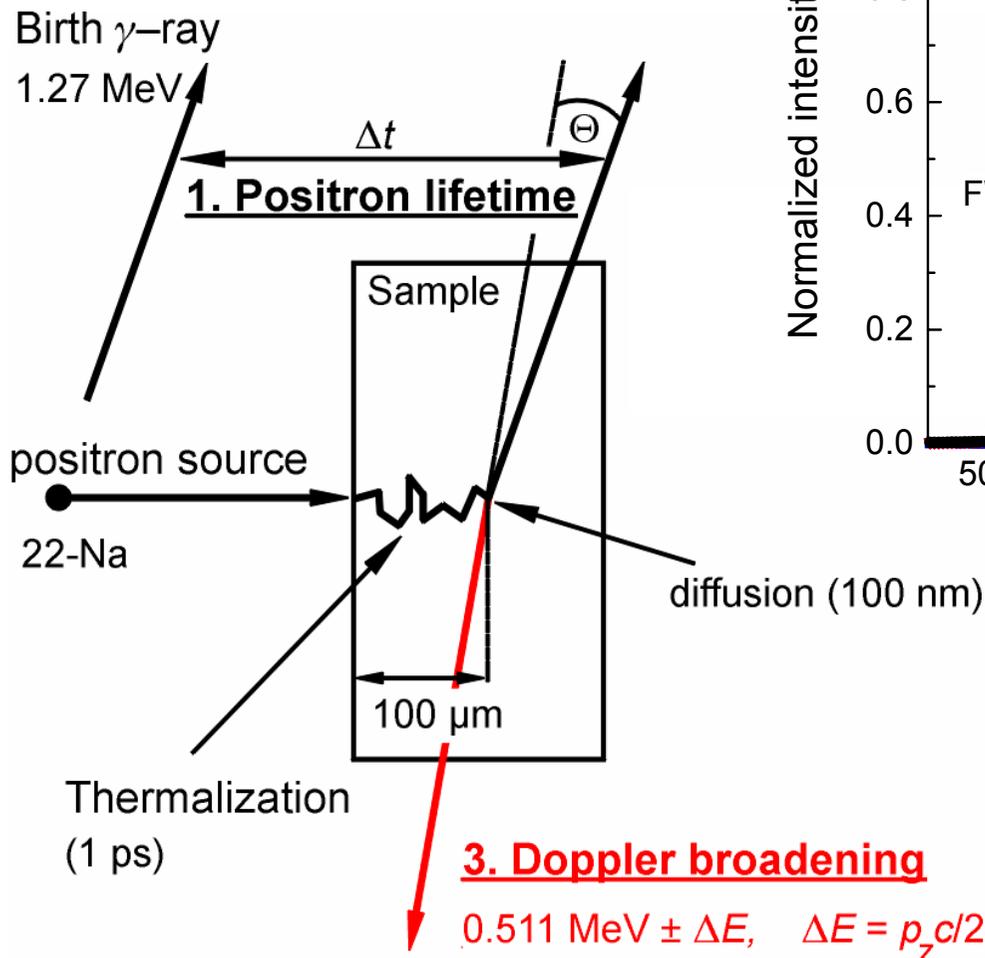
Positronenlebensdauer-Spektren



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

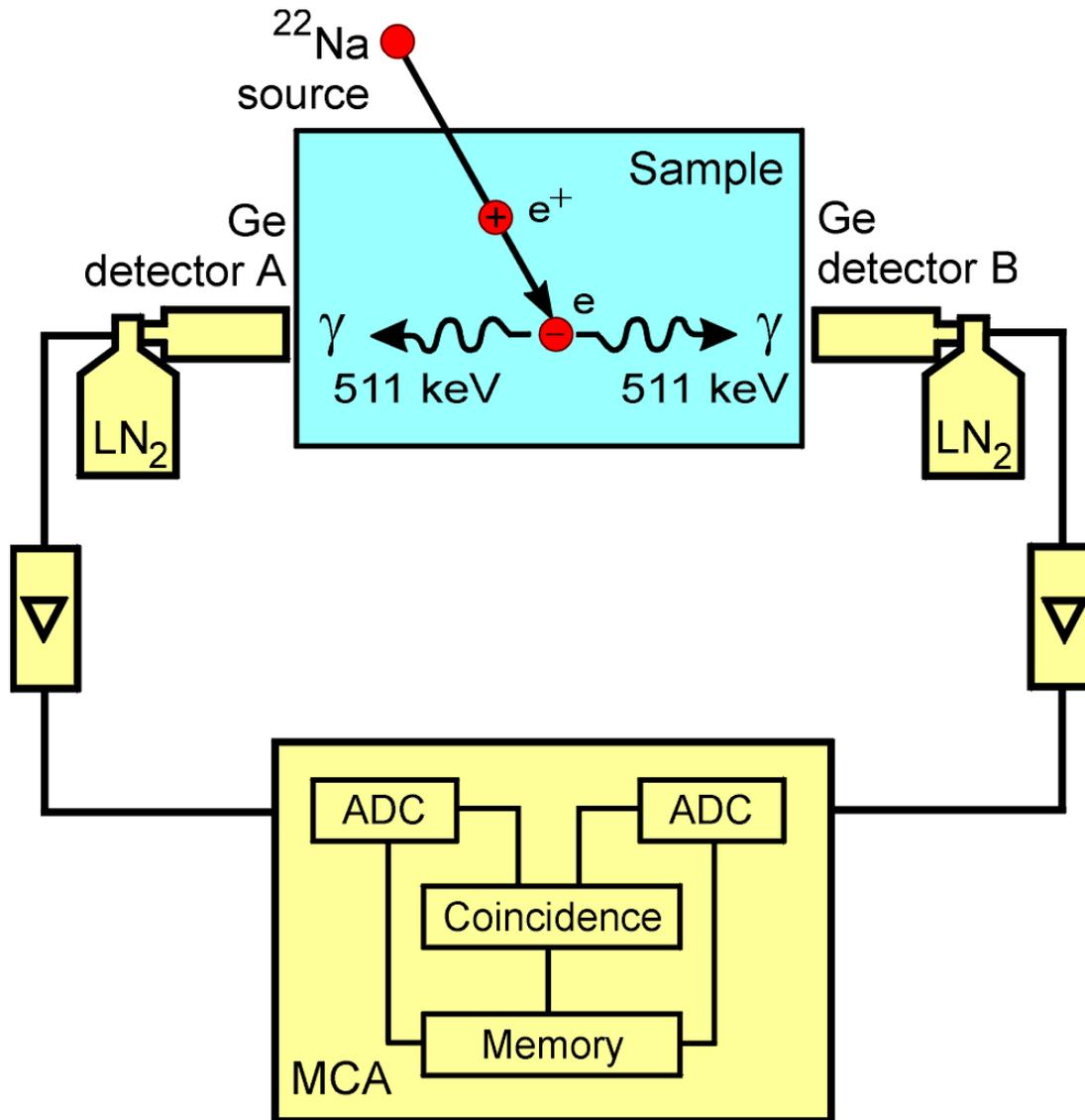
$$N(t) = \sum_{i=1}^{k+1} \frac{I_i}{\tau_i} \exp\left(-\frac{t}{\tau_i}\right)$$

Die Dopplerverbreiterung der Annihilationslinie



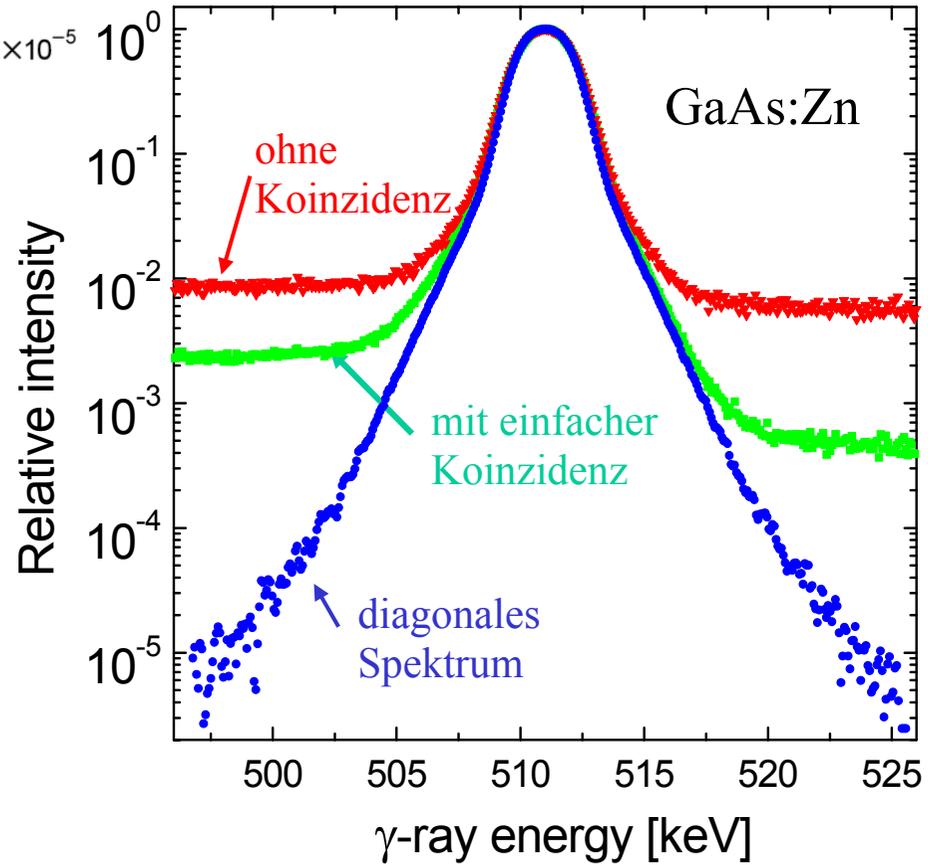
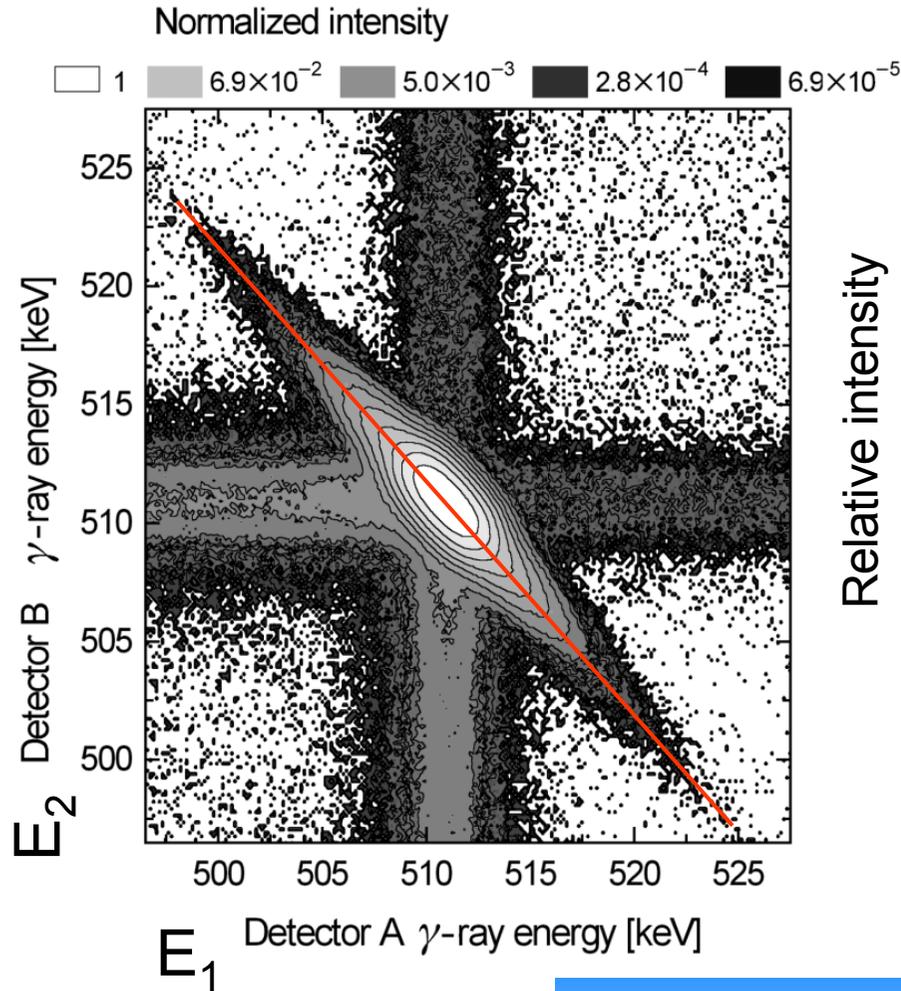
- Elektronenimpuls in Ausbreitungsrichtung der 511 keV γ -Quanten führt zur Dopplerverbreiterung der Annihilationslinie
- wird mittels energiedispersiver Ge-Reinstdetektoren gemessen

Die Doppler-Koinzidenz-Spektroskopie



- koinzidenter Nachweis des zweiten Annihilationsquants reduziert den Untergrund
- Benutzung eines zweiten Ge-Detektors verbessert die Energieauflösung

Doppler-Koinzidenz-Spektren



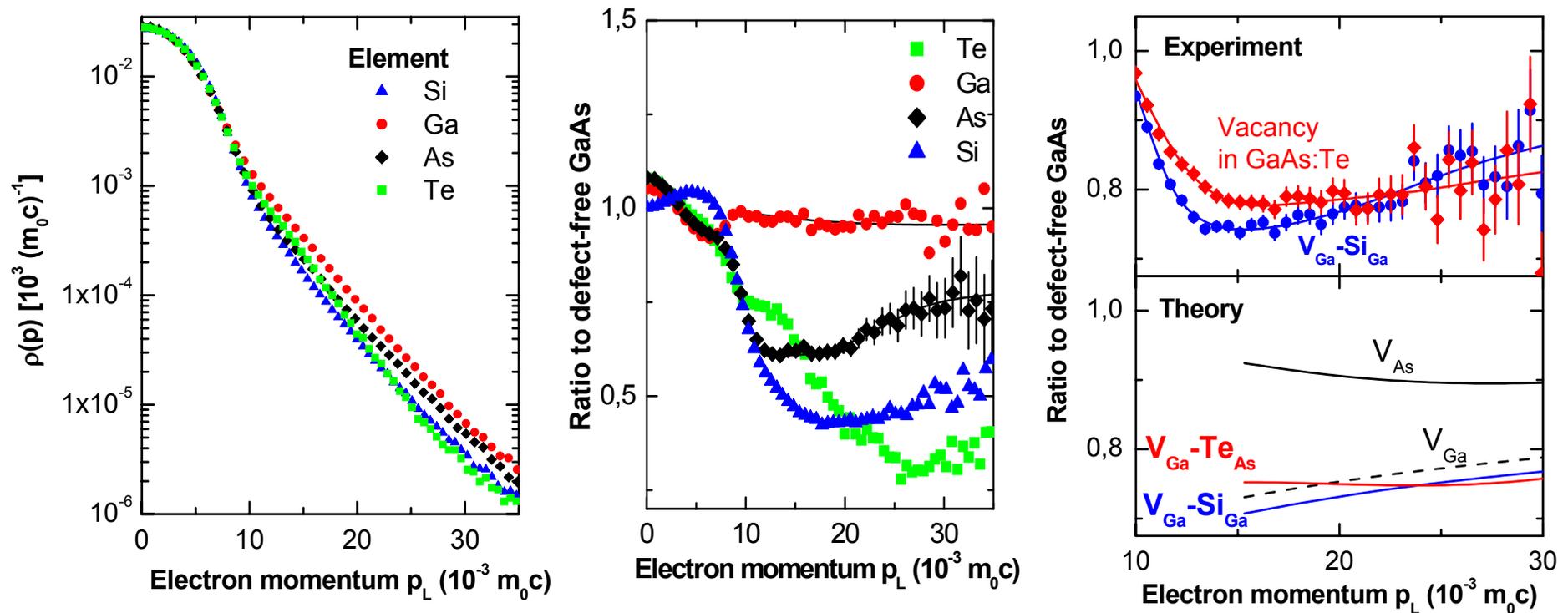
$$E_1 + E_2 = 2 m_0 c^2 = 1022 \text{ keV}$$

ist Gleichung der diagonalen Geraden



Doppler-Koinzidenz-Spektroskopie in GaAs

- chemische Sensitivität bei hohen Elektronenimpulsen (Core-Elektronen)
- ein einzelnes Fremdatom in direkter Umgebung einer Leerstelle ist nachweisbar
- Beispiel: $V_{\text{Ga}}\text{-Te}_{\text{As}}$ in GaAs:Te



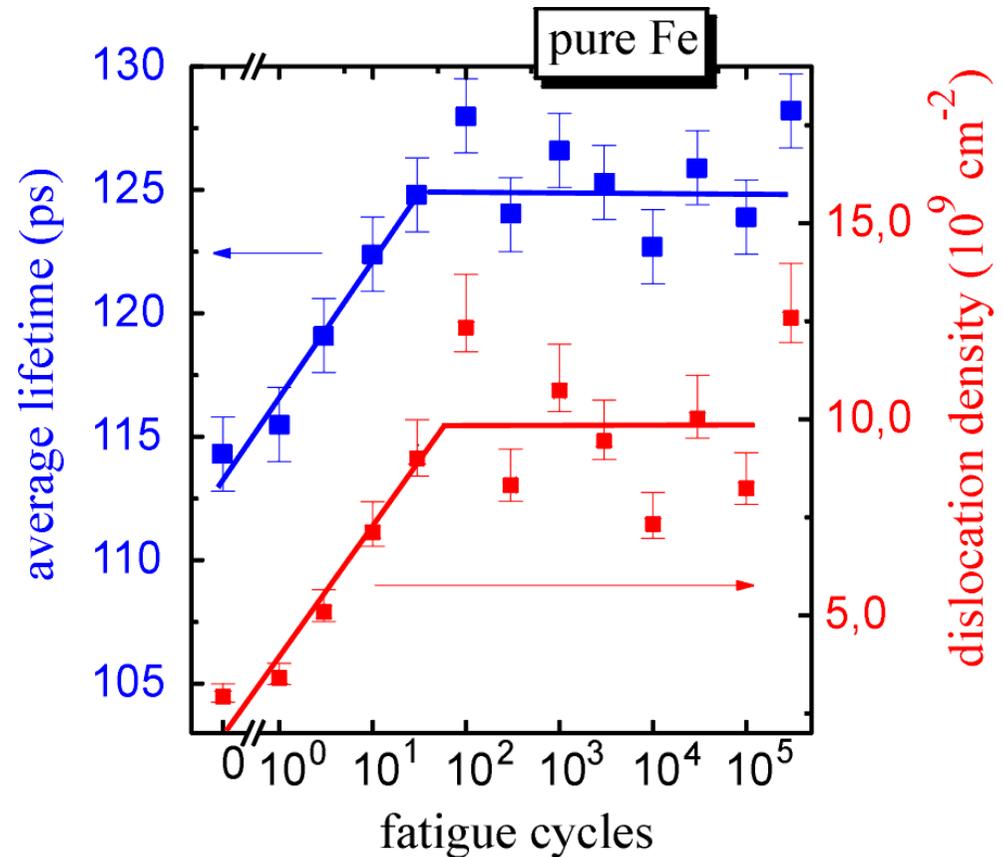
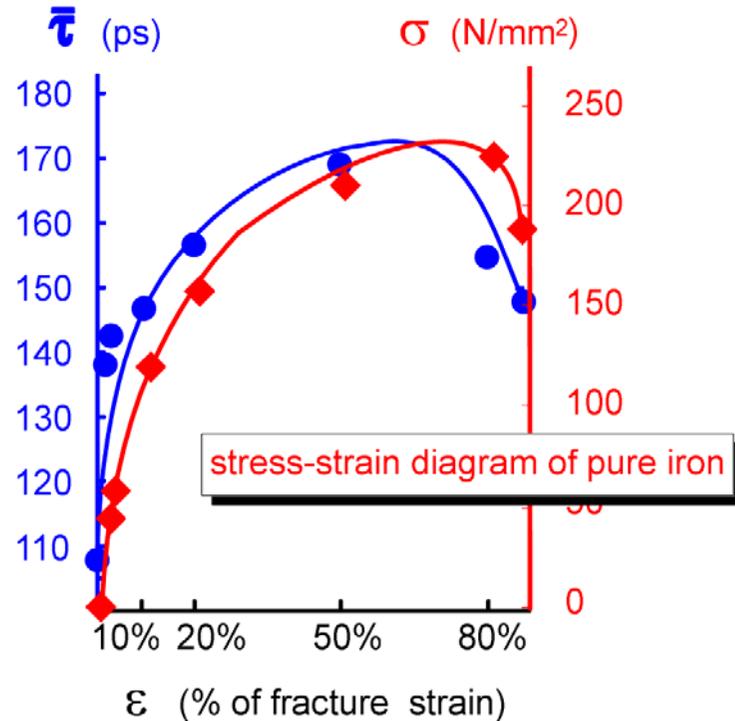
J. Gebauer et al., Phys. Rev. B **60** (1999) 1464



Defekte in Eisen im Zugversuch und nach Ermüdung

- ausgedehnte Studie von Defekten in mechanisch geschädigtem Eisen und Stahl
- Positronen sind sehr empfindlich: Nachweis der Defektgeneration bereits im Hookeschen Bereich der Spannungs-Dehnungs-Kurve
- Leerstellencluster und Versetzungen sind nachweisbar

average positron lifetime in pure iron after tensile strain

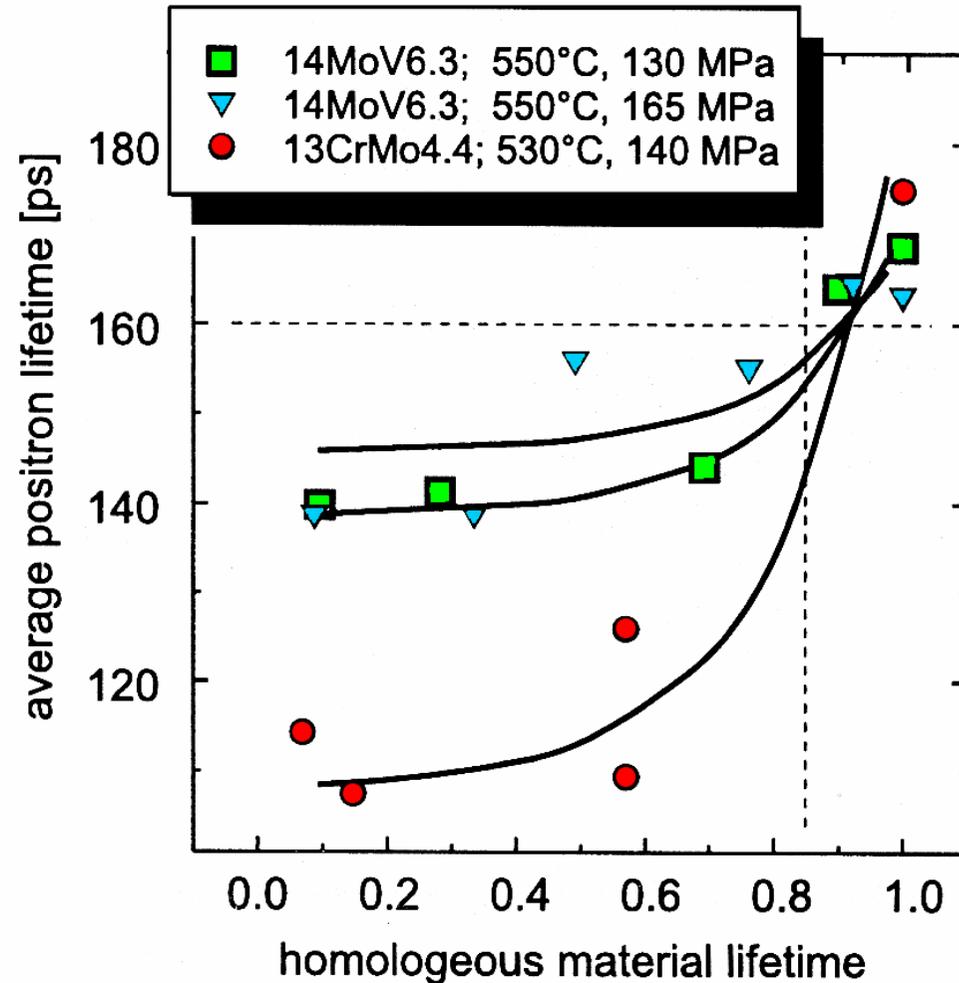
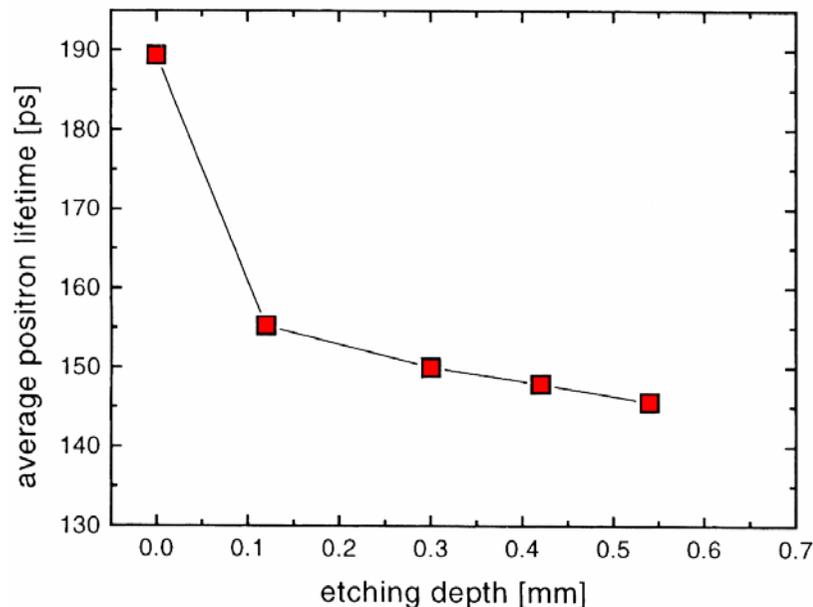


Somieski et al., J. Physique IV 5, C1/127-134 (1995)



Hochtemperatur-Kriechen von Stahl

- beim Kriechen bilden sich Defekte
- mit Positronen Versetzungen und Leerstellencluster nachweisbar
- Defekte in oberflächennahen Schicht konzentriert
- Versuch dauerte > 14 Monate
- Positronen eignen sich prinzipiell zur Vorhersage der Lebensdauer einer Komponente

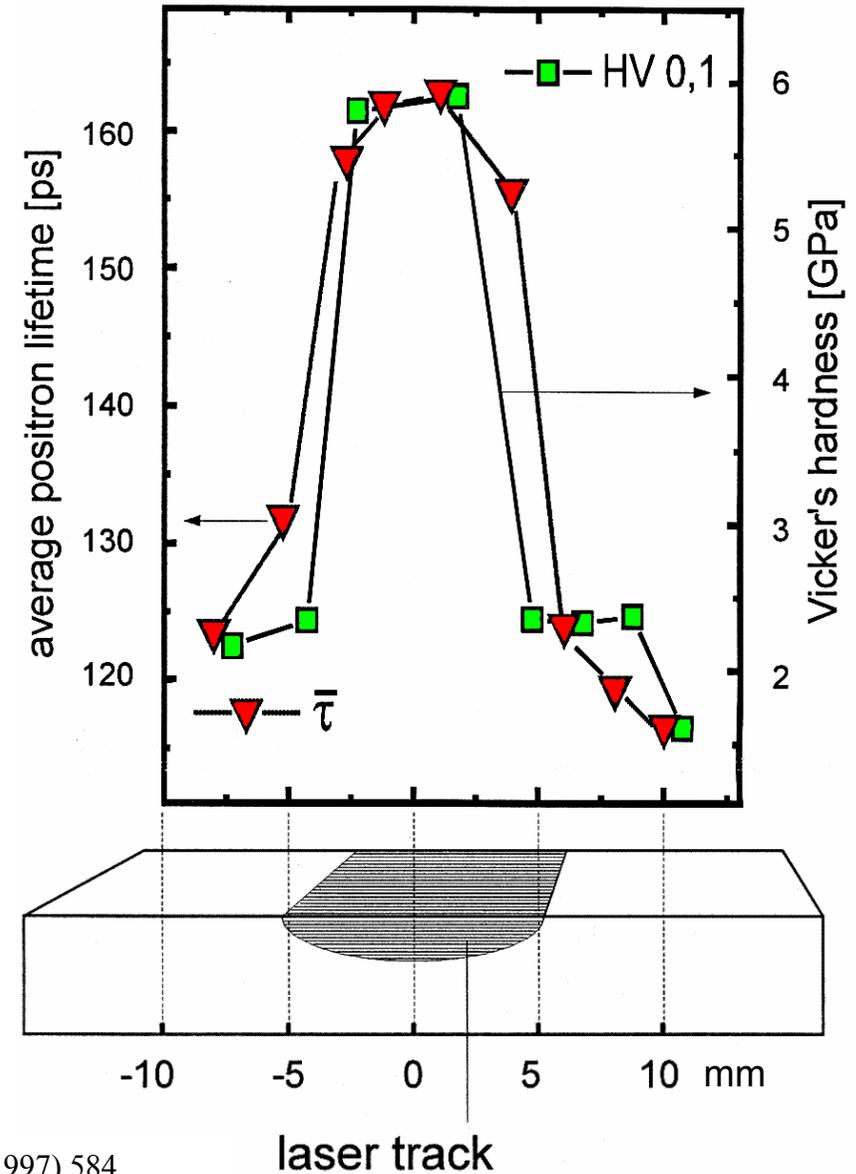


B. Somieski and R. Krause-Rehberg,
Fatigue Fract. Engng. Mat. Struct. **24** (2001) 267



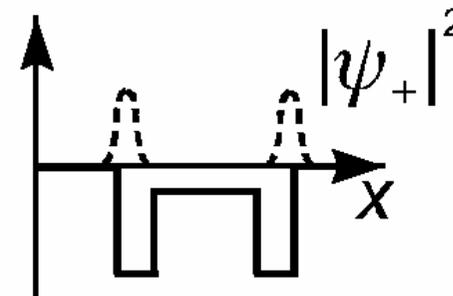
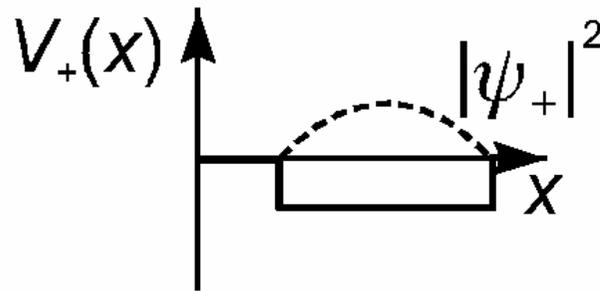
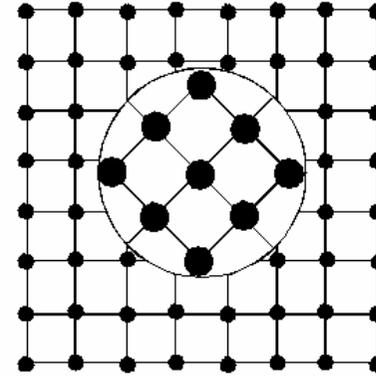
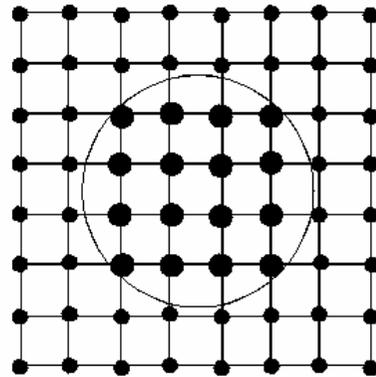
Laserhärtung von Ck60-Stahl

- oberflächliche Laserbehandlung führt zur Härtung von Stählen
- Ursache: martensitische Transformation durch Abschreckung
- Energieeintrag von 20 MJ/m^2 führt zu Sättigungseffekt: Umwandlung ist dann vollständig
- kein Effekt für reines Eisen zu beobachten



Somieski et al., Mat. Sci. Forum 255-257 (1997) 584

Einfang von Positronen in Ausscheidungen



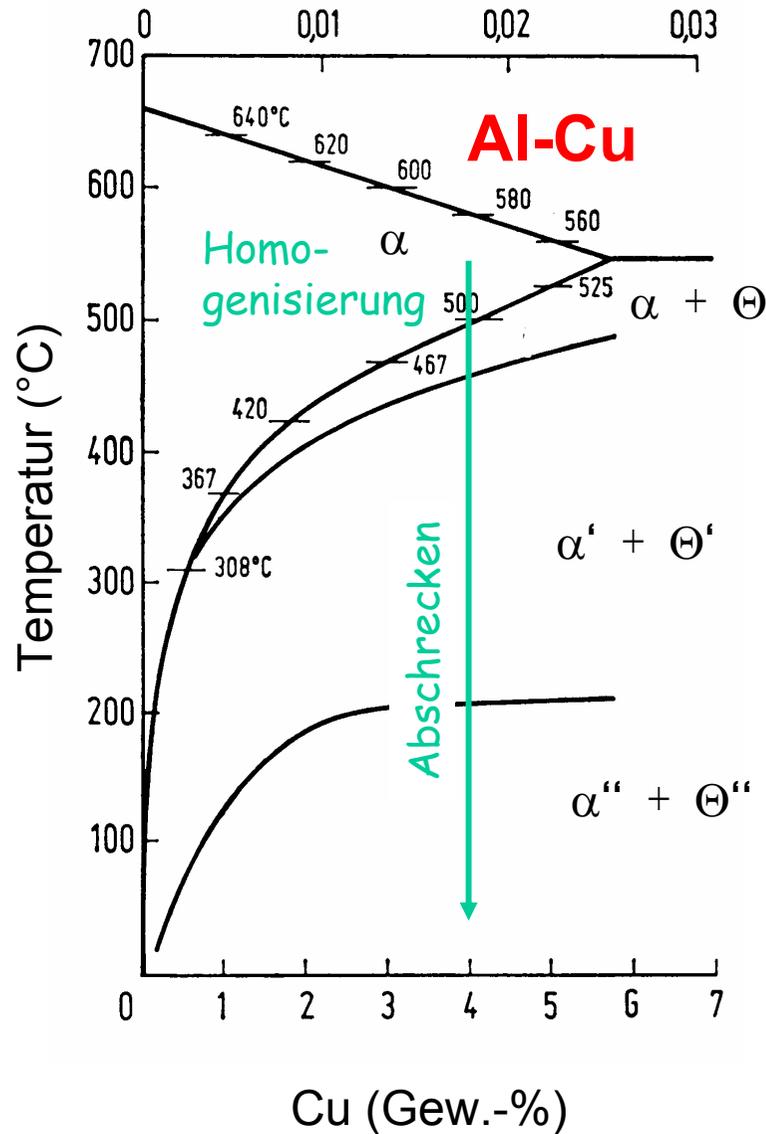
vollkohärent, defektfrei

teil-/inkohärent

GPZ in AlZn, AlAg

AlSi, AlCu, Al 2024, Al 6013

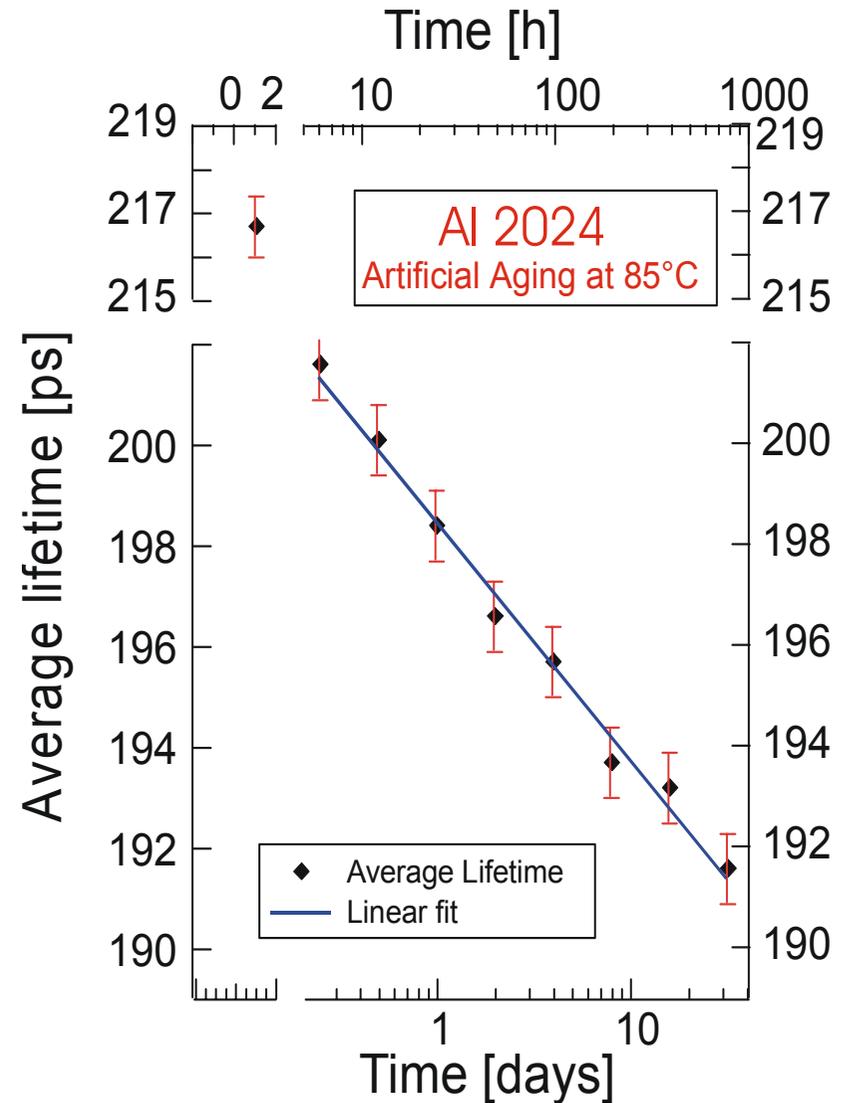
Ausscheidungshärtung am Beispiel Al-Cu



- Homogenisierung bei 550°C löst Cu in Al
- Abschrecken zu RT: Übersättigung
- Gleichgewicht (Θ -Phase: CuAl₂) wird bei RT nicht erreicht: metastabile Zwischenprodukte Θ'' (auch Guinier-Preston-Zonen genannt) und Θ'
- sind zunächst vollkohärent und haben ausgedehntes Spannungsfeld
- behindern Versetzungsbewegung, d.h. Härte nimmt stark zu

Alterung von Al 2024

- Al 2024 (AlCuMg-Legierung „Dural“) wird seit langem im Flugzeugbau eingesetzt
- Warmauslagerung bei 85°C
- exponentielle Änderung der Positronenlebensdauer beobachtet
- GPZ-2 (oder Θ'' -Teilchen) bestehen aus parallelen Lagen mit Cu-Gehalt zwischen 25 und 45% (FIM-Messungen)
- Änderung der Positronen-Lebensdauer reflektiert Änderung der chemischen Komposition bei Warmauslagerung (Erhöhung des Cu-Anteils)

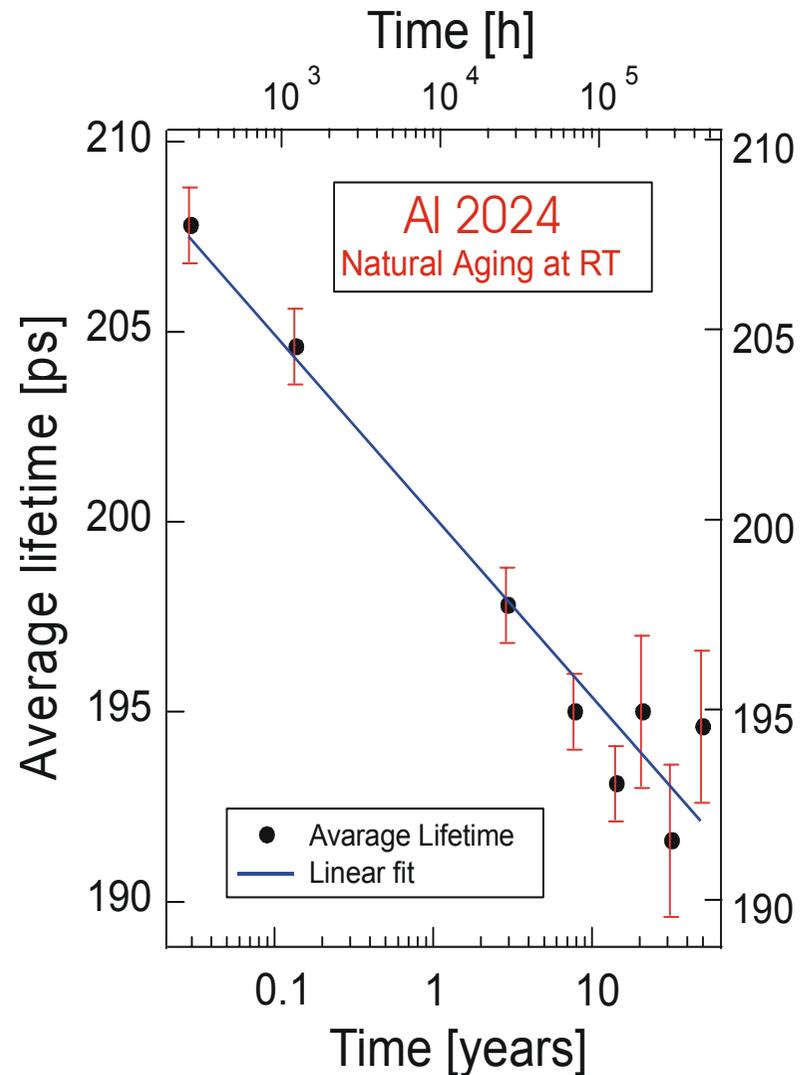


T. Staab et al., J. Mater. Sci., 35 (2000) 4667



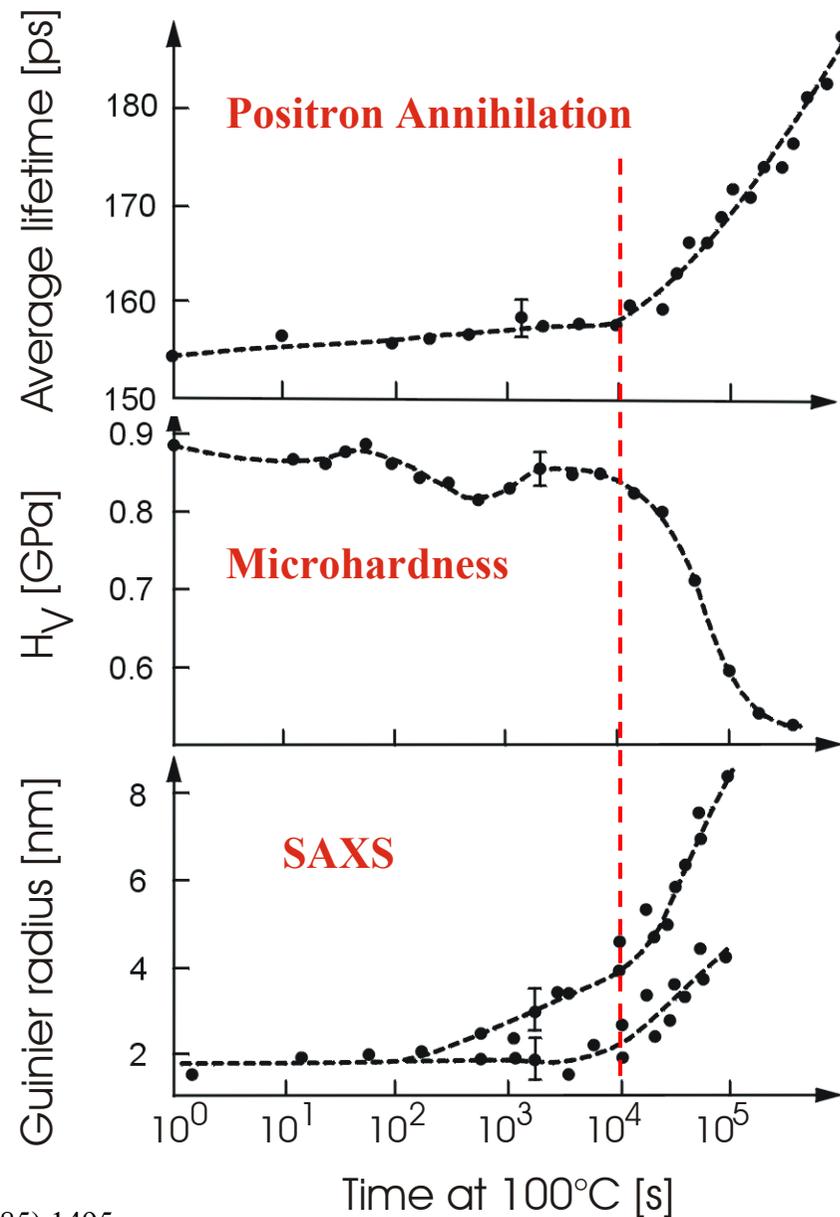
Alterung von Al 2024

- Alterung bei Raumtemperatur ändert die Lebensdauer in gleicher Weise
- entsprechend längere Zeiten erforderlich
- noch nach Jahren sind Änderungen im Gefüge zu beobachten
- mechanische Eigenschaften bleiben aber im Toleranzbereich (getestet durch DASA GmbH Bremen)



Alterung von Al-Zn(15at%)

- nach Homogenisieren und Abschrecken: defektfreie GPZ
- Sättigungseinfang der Positronen
- Warmauslagerung von Al-Zn (15 at%): Wachstum der GPZ
- werden ellipsoidal
- starker Härteeinbruch
- Positronen detektieren Versetzung an Ausscheidung
- Übergang vollkohärente GPZ zu teilkohärenten α'_R -Teilchen
- direkter Nachweis bereits der ersten Anpassversetzung mit Positronen

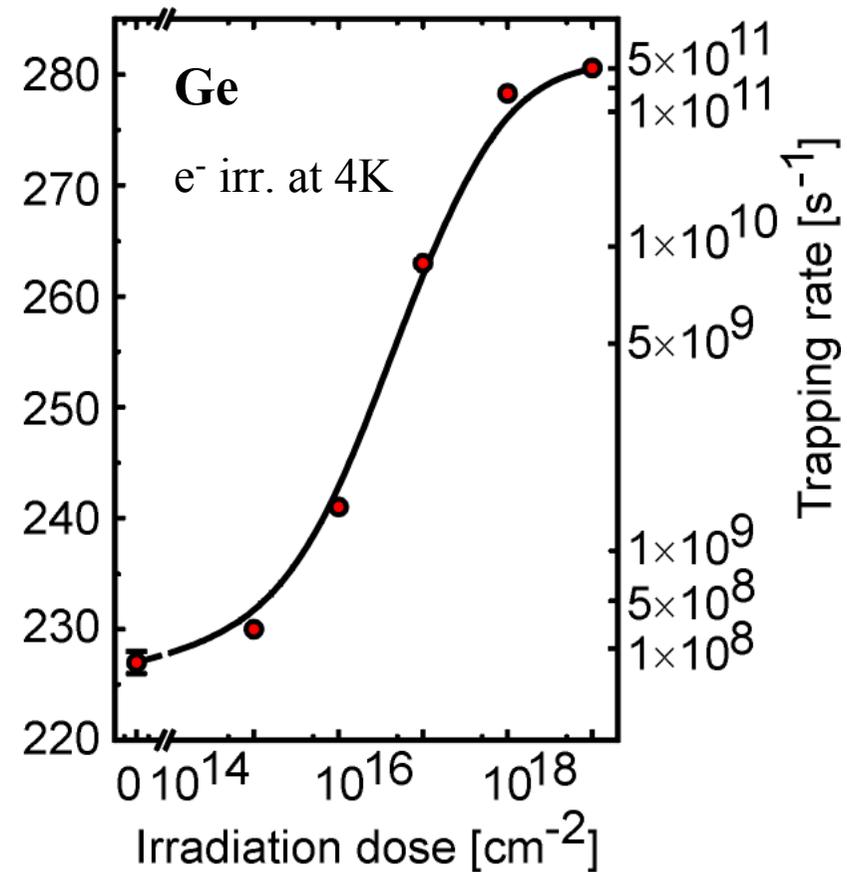
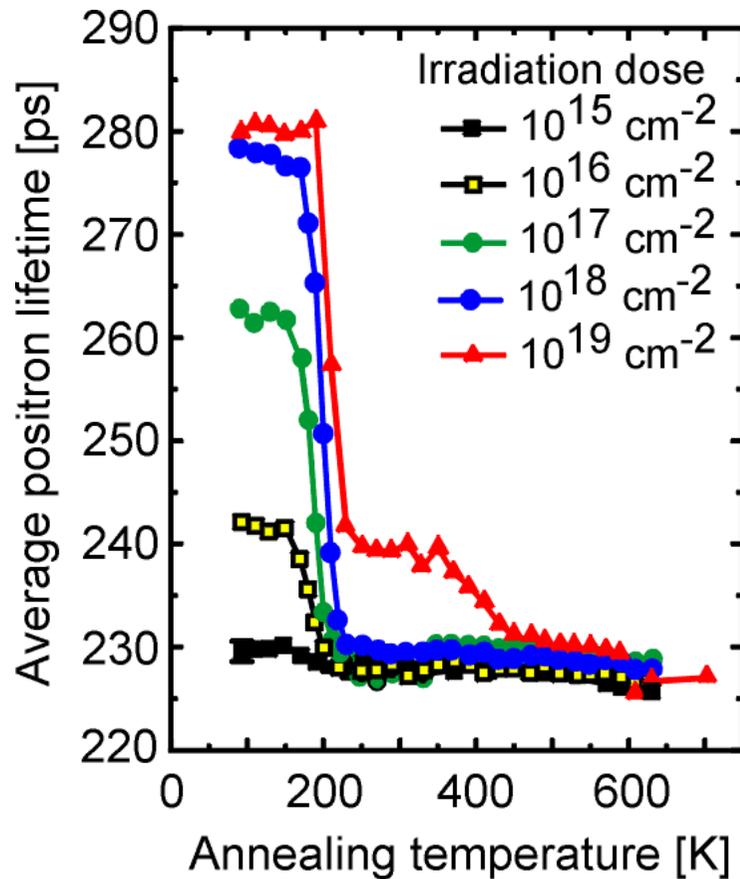


R. Krause et al., Cryst. Res. Technol. **20** (1985) 1495



Defekte in Ge nach Elektronenbestrahlung

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

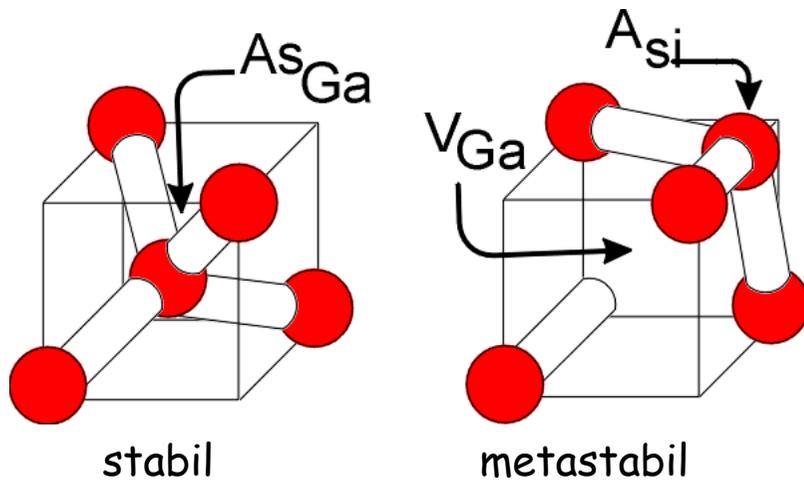


Polity et al., Phys. Rev. B **55** (1997) 10480



Die Natur des EL2-Defektes

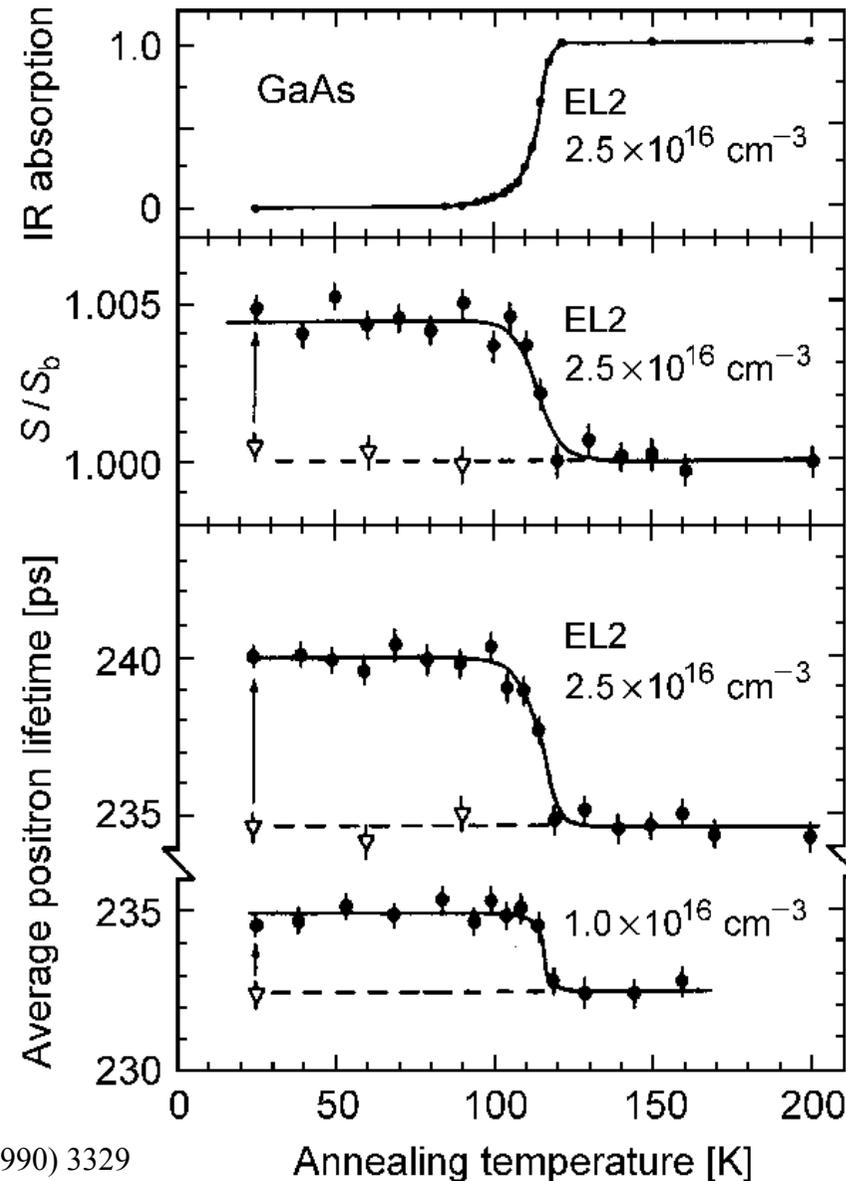
- einer der meist untersuchten Kristalldefekte überhaupt
- zeigt Metastabilität bei tiefen Temp. nach Beleuchtung



(Dabrowski 1988, Chadi 1988)

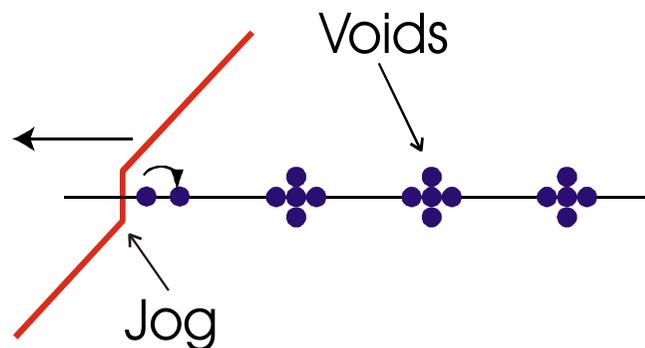
- es existierten viele Strukturmodelle
- das oben gezeigte Modell wurde durch die Positronenannihilation bestätigt

Krause et al., Phys. Rev. Lett. 65 (1990) 3329

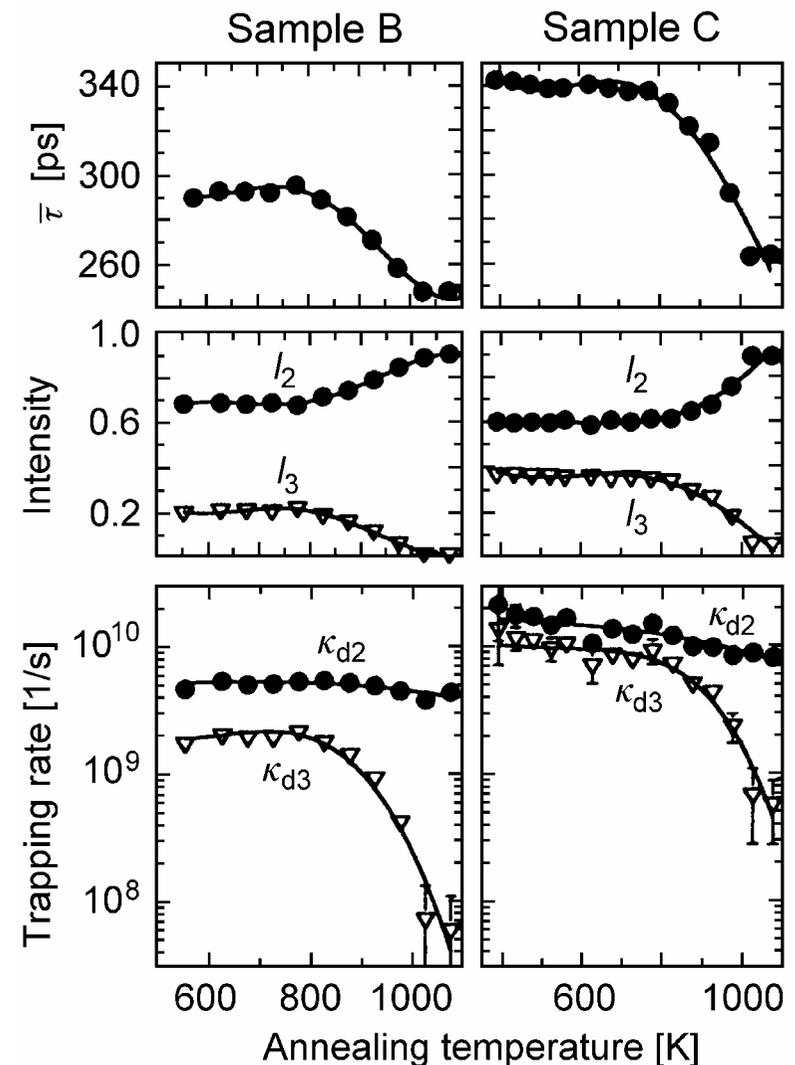


Defekte nach plastischer Deformation in GaAs

- nach plastischer Deformation bei hoher Temperatur Positroneneinfang in Leerstellencluster ($\tau_3 = 450$ ps) und in Versetzungen ($\tau_2 = 265$ ps)
- Leerstellen entstehen beim "Jog-dragging", d.h. wenn nicht gleitfähige Jogs infolge Verztzungsbewegung durch Gitter gezogen werden
- Ketten von Leerstellen energetisch ungünstig
- Bildung von Leerstellenclustern



- Cluster heilen aus, die Versetzungen nicht

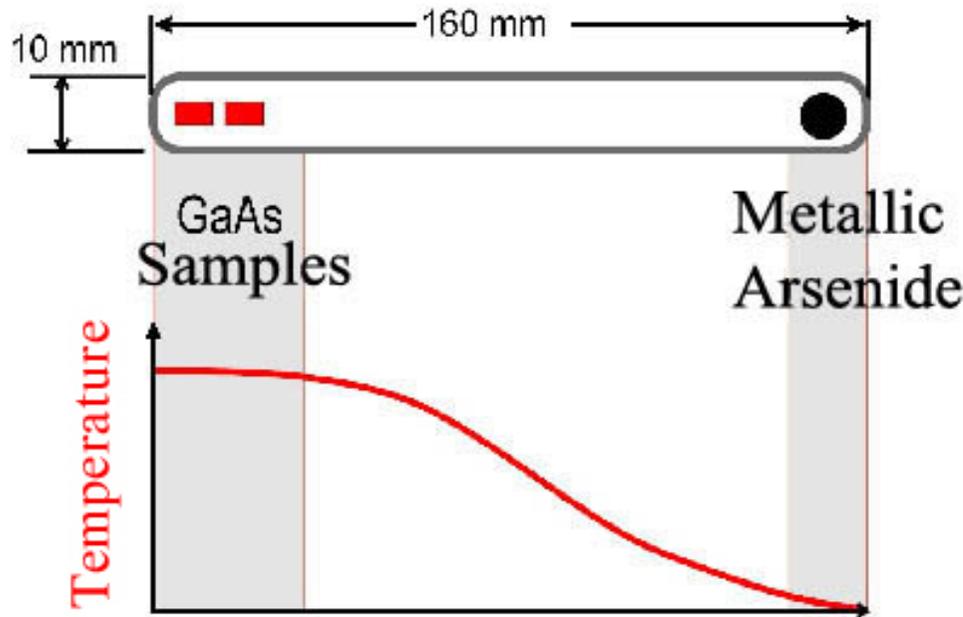


R. Krause-Rehberg et al., Phys. Rev. B **49** (1994) 2385



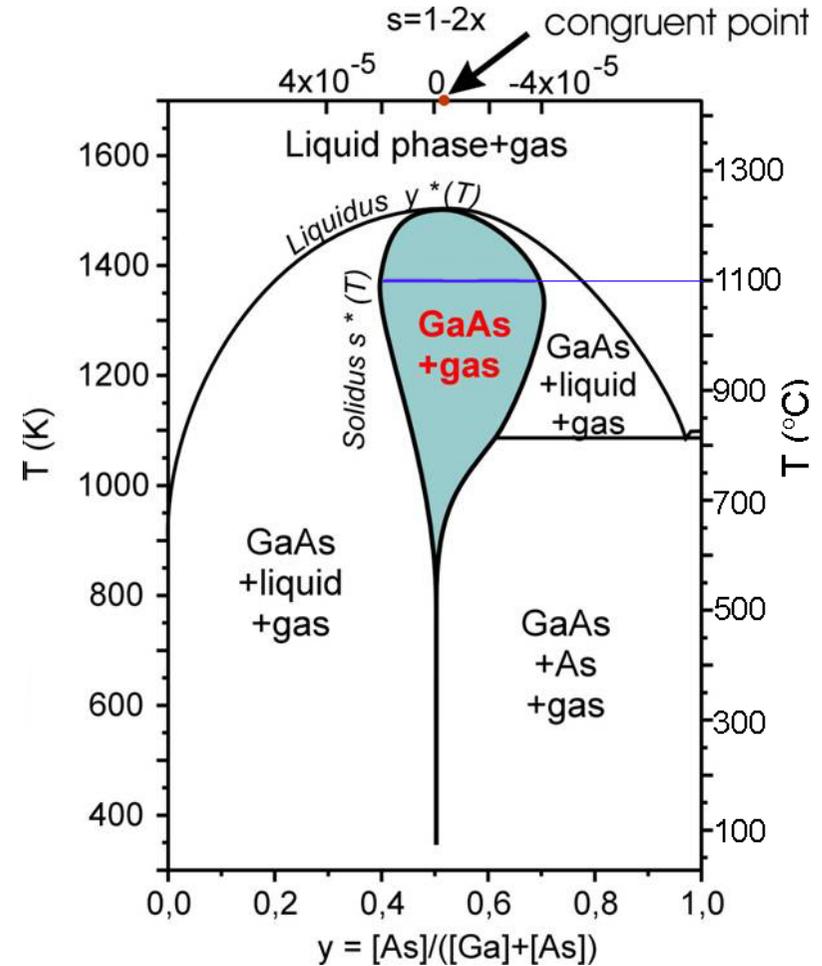
GaAs: Temperung unter definiertem As-Partialdruck

- Zwei-Zonen-Ofen: unabhängige Kontrolle von Probertemperatur und As-Partialdruck
- erlaubt freies Navigieren im Existenzgebiet im Phasendiagramm



$T_{\text{sample}}: 1100^{\circ}\text{C}$

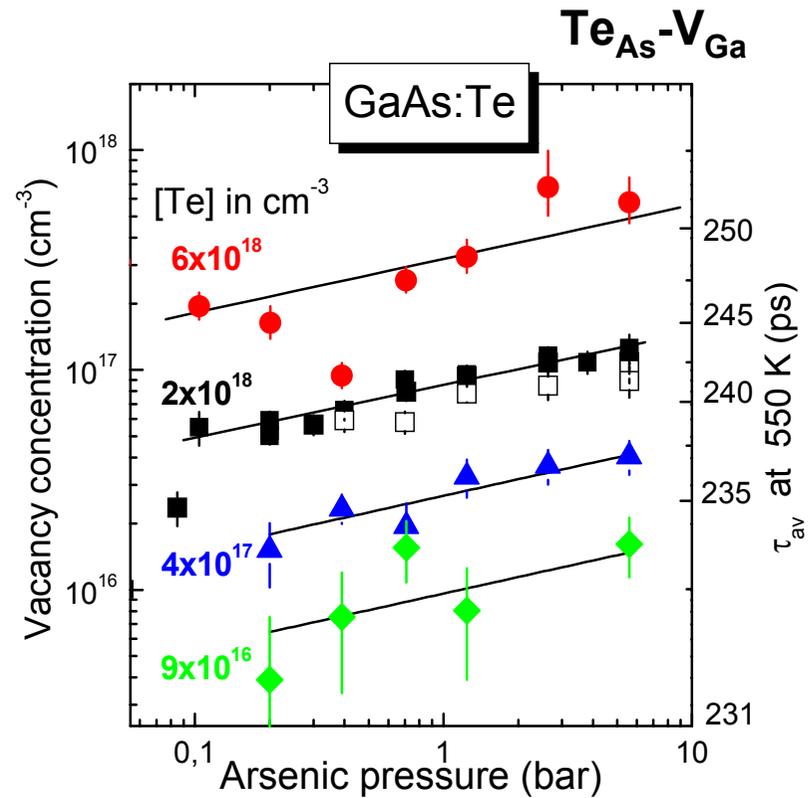
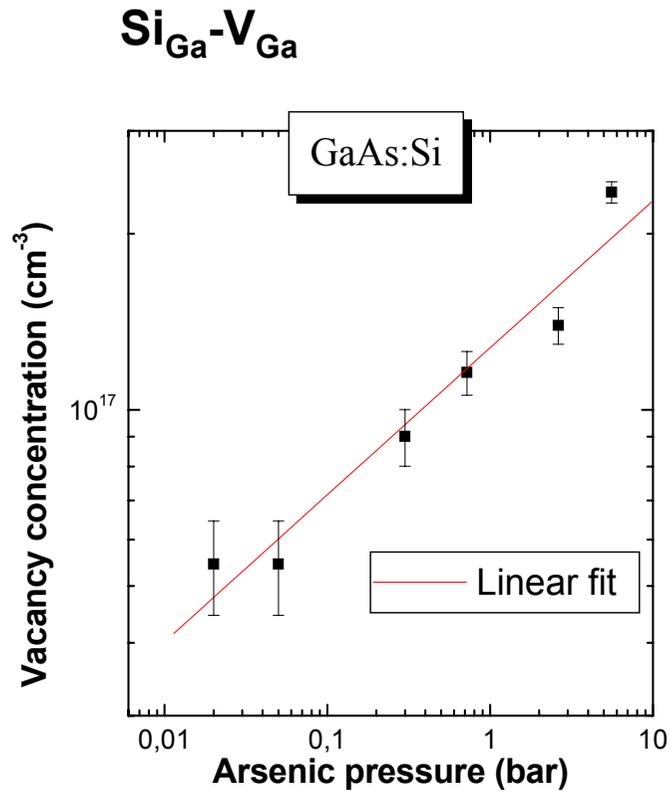
T_{As} : determines As-partial pressure



H. Wenzl et al., J. Cryst. Growth **109** (1991) 191



Experimente in n-GaAs



Thermodynamische Reaktion:
 $\frac{1}{4} \text{As}_4^{\text{gas}} \leftrightarrow \text{As}_{\text{As}} + \text{V}_{\text{Ga}}$

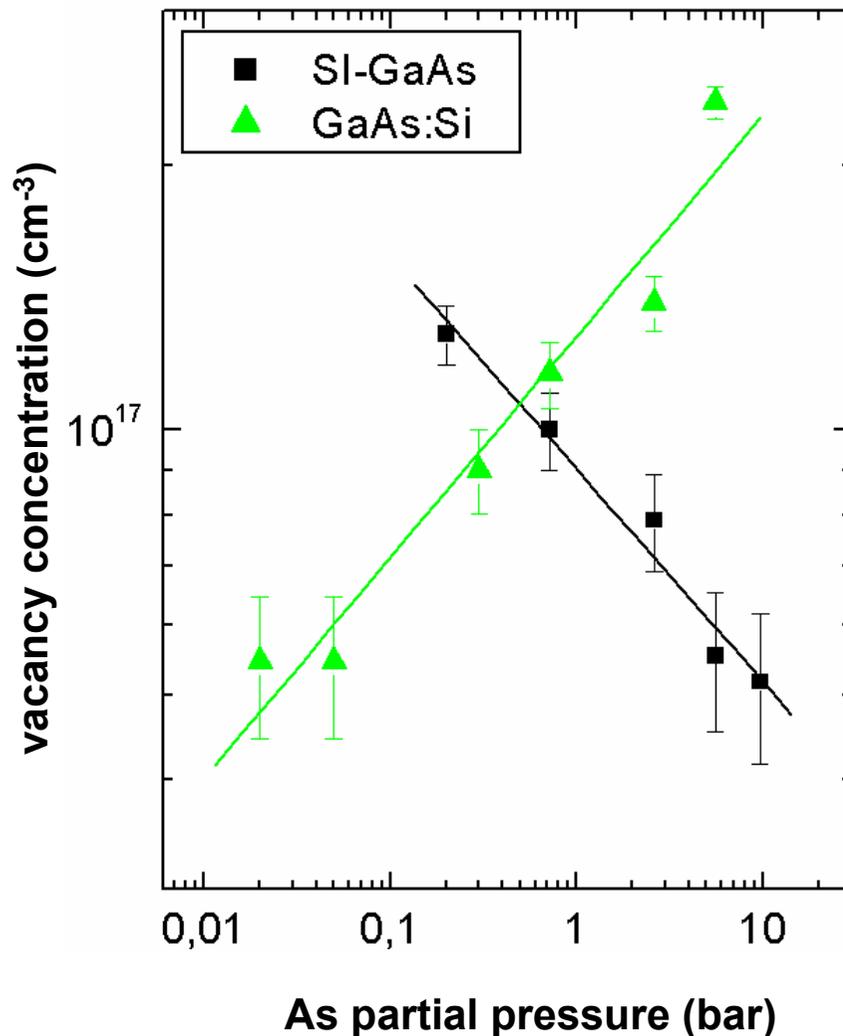
Massenwirkungsgesetz:
 $[\text{V}_{\text{Ga}}] = K_{\text{VG}} \times p_{\text{As}}^{1/4}$

J. Gebauer et al., Physica **B** 273-274 (1999) 705

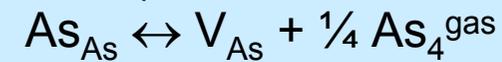
Fit: $[\text{V}_{\text{Ga}}\text{-Dopant}] \sim p_{\text{As}}^n$
 $\rightarrow n = 1/4$



Vergleich von n-dotiertem und undotiertem GaAs



Thermodynamische Reaktion:



Massenwirkungsgesetz:

$$[\text{V}_{\text{As}}] = K_{\text{VAs}} \times p_{\text{As}}^{-1/4}$$

Fit: $[\text{V-complex}] \sim p_{\text{As}}^n$

$$\rightarrow n = -1/4$$

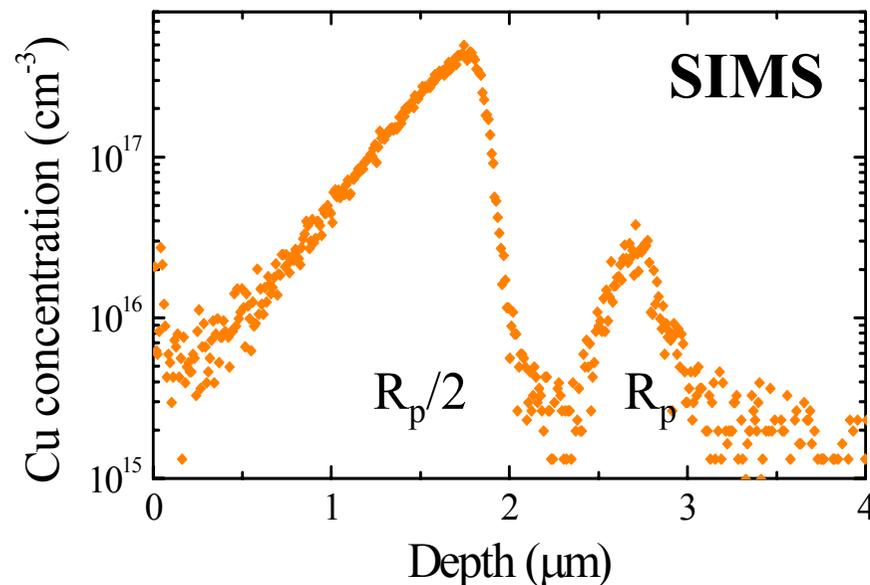
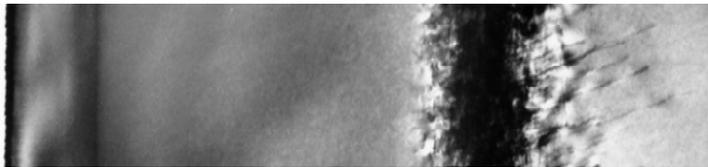
As-Leerstelle



Defekte nach Selbstimplantation in Si - der $R_p/2$ Effekt

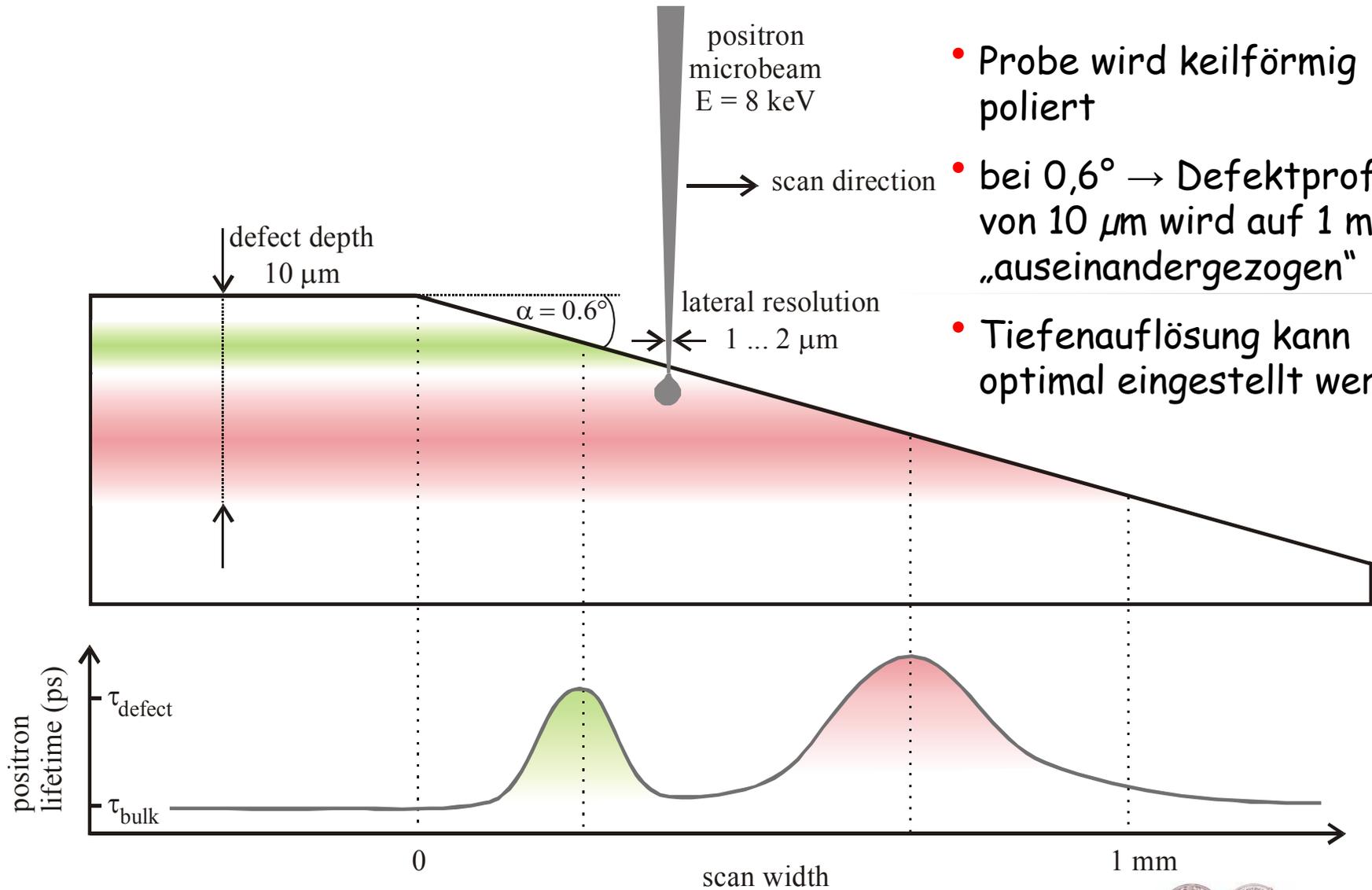
- nach Hochenergie-Selbstimplantation von Si (3.5 MeV ; $5 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$) und kurzer Ausheilung (900°C , 30s): zwei neue Getterzonen bei R_p und $R_p/2$ ($R_p = \text{projected range of Si}^+$)
- findet man experimentell mit SIMS nach Cu-Kontamination von der Rückseite und Diffusions-Temperung

Cross section TEM image by P. Werner, MPI Halle



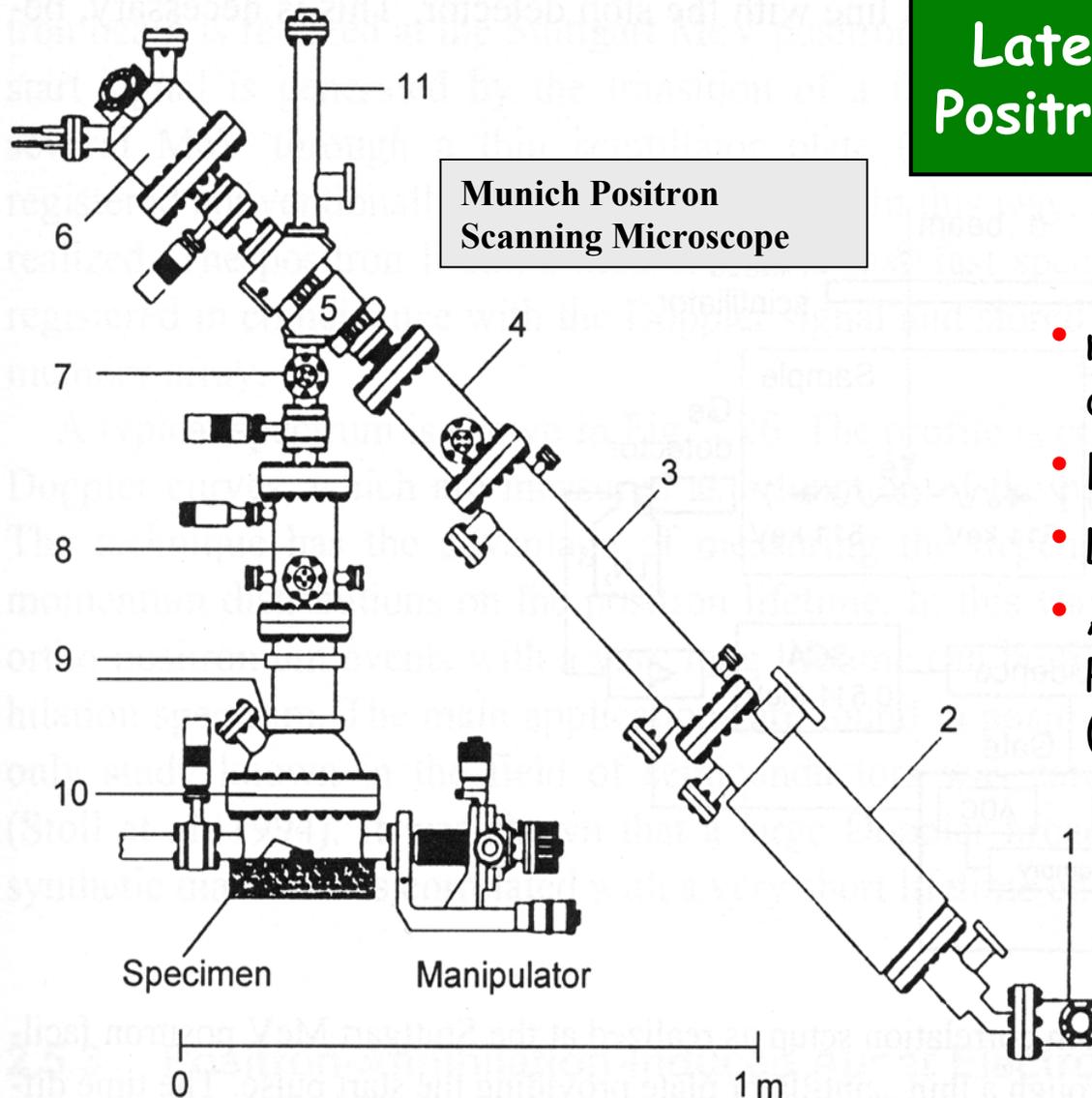
- bei R_p : Getterung durch interstitielle Versetzungsringe (gebildet durch Überschuss-Si während RTA-Ausheilung)
- aber keine Defekte mit TEM bei $R_p/2$ sichtbar
- in Literatur: leerstellenartige aber auch interstitielle Defekte diskutiert
- **Welcher Natur sind diese Defekte?**

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

Laterale Auflösung mittels Positronen-Raster-Mikroskop

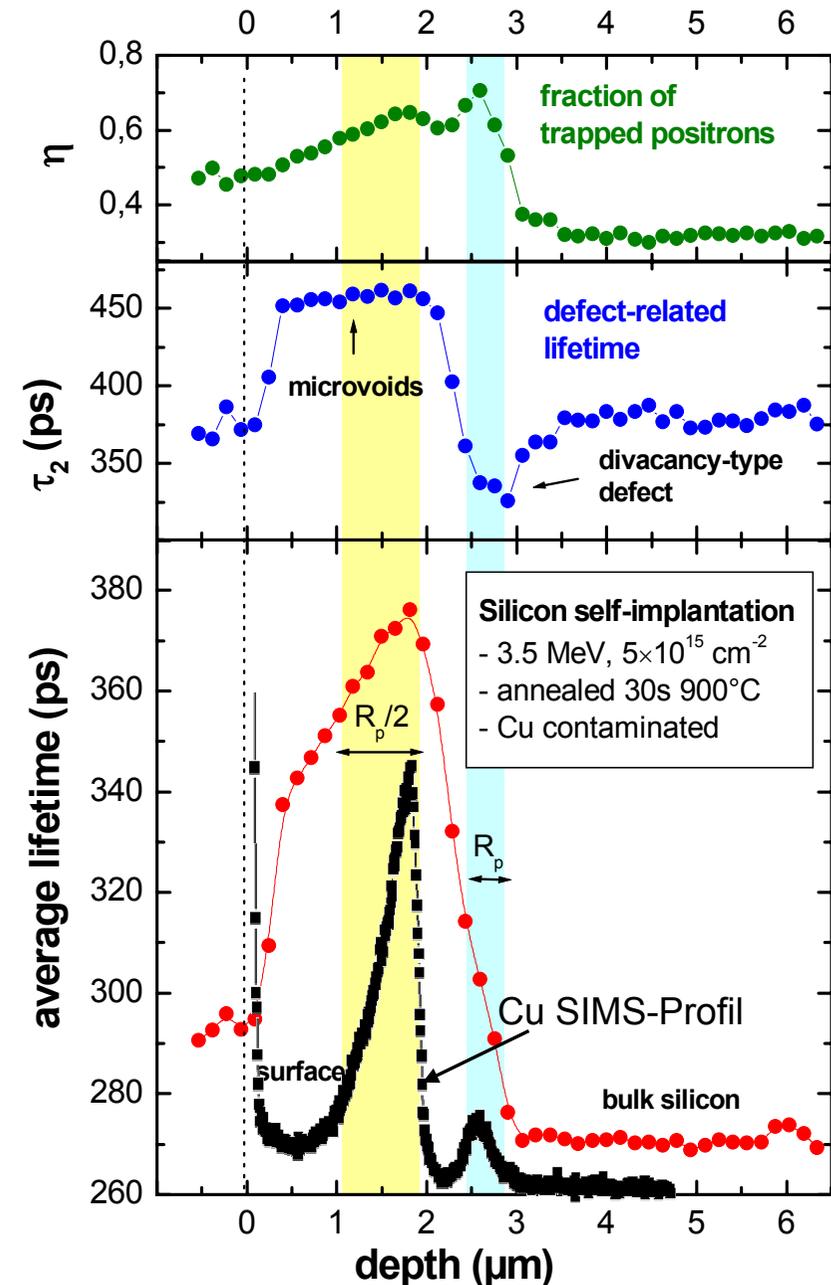


- monoenergetische Positronen durch Moderation
- laterale Auflösung ca. $2 \mu\text{m}$
- Lebensdauer-Messung möglich
- Auflösung prinzipiell durch Positronendiffusion limitiert (ca. 100nm)

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

Untersuchung zum Rp/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 gegettertem Cu



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

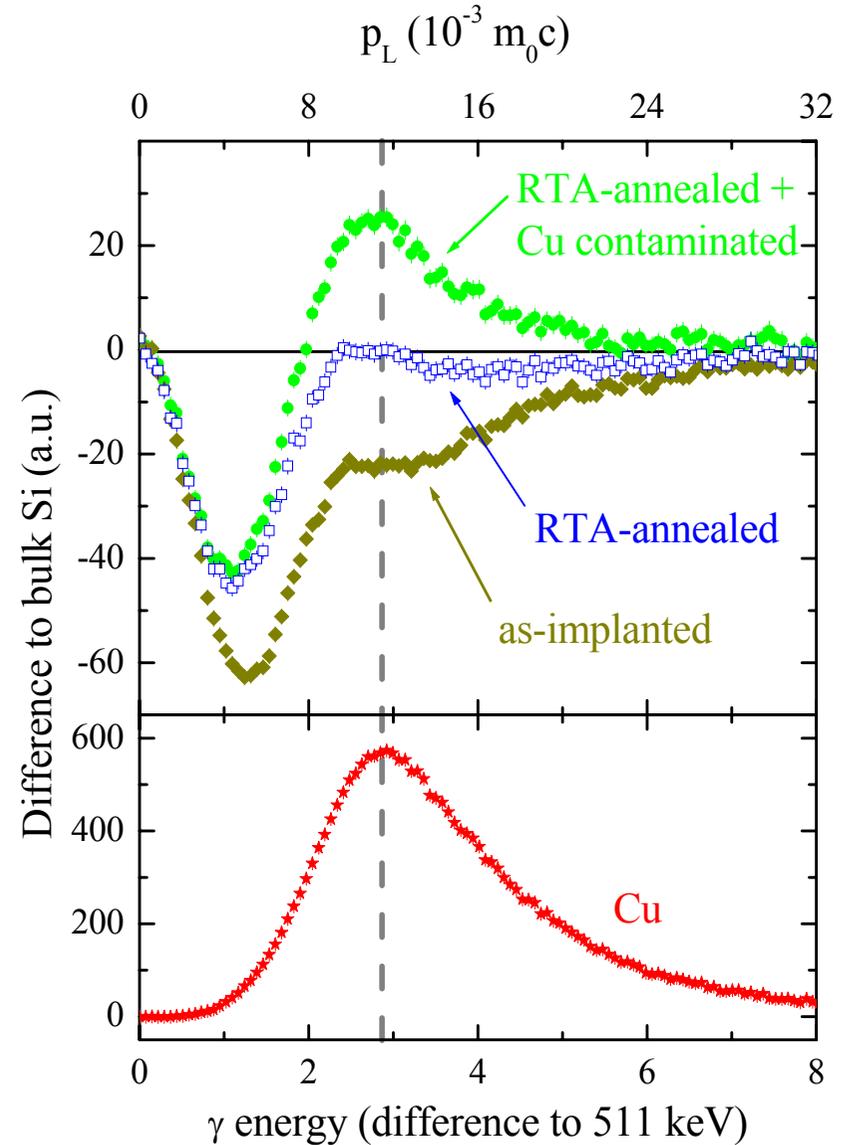


Nachweis von Cu mit Doppler-Koinzidenz

- 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



Forschungsthemen im Halleschen Positronenlabor

- thermische Leerstellen in Metallen und Legierungen
- **aushärtbare Al-Legierungen**
- **Defekte in Halbleitern (eingewachsen, bestrahlt)**
- **plastische Deformation von Metallen und Halbleitern**
- Sintern von Metallpulvern
- **Defektchemie in Verbindungshalbleitern**
- **Rolle von Leerstellen bei der Diffusion in Halbleitern**
- nanokristallines Ni
- **Polymere (offenes Volumen, Interdiffusion)**
- **nanoporöse Gläsern (Hohlräume 1...100 nm)**

fettgedruckte Themen sind aktuell in Bearbeitung



Zusammenfassung und Ausblick

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

Vortrag als PDF-File:

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



Herzlichen Dank

Günter Dlubek und

Elke Döhring

Robert Mühlberg

Jürgen Tittes

Hans-Jürgen Ehrhardt

Kimmo Saarinen

Angelika Polity

Jürgen Feuerstake

Dirk Beier

Uwe Peitz

Uwe Beyer

Juliane Scholz

Thomas Anhofer

Henning Salz

Thoralf Abgarjan

Andreas Kupsch

Steffen Bonß

Stefan Eichler

Christian Hübner

Mario Arloth

Christoph Nagel

Matthias Heiler

Jörg Gebauer

Bertram Somieski

Claudia Hahn

Steffen Huth

Thomas Engelbrecht

Frank Rudolf

Hartmut Leipner

Hans-Theo Langhammer

Frank Börner

Konrad Petters

Mike Lausmann

Frank Redmann

Torsten Staab

Ahmed Massoud

Mona Mohsen

Vladimir Bondarenko

Atsuo Kawasuso

Ilham Al-Qaradawi

Normen Hedwig

(chronologische Reihenfolge)

