

Konzeption und Aufbau des Positronenstrahlsystems MePS, PAS-Messungen an porösen low-k-Schichten

Dissertation

zur Erlangung des Doktorgrades der Naturwissenschaften
(Dr. rer. nat.)

der

Naturwissenschaftlichen Fakultät II - Chemie, Physik und Mathematik

der Martin-Luther-Universität
Halle-Wittenberg

vorgelegt von

Herrn Dipl. Phys.

MARCO JUNGSMANN

geboren am 24. Februar 1971 in Halle (Saale)

Halle (Saale), 12. Dezember 2014

Datum der öffentlichen Verteidigung
01. Juni 2015

Gutachter:

1. Prof. Dr. R. Krause-Rehberg
2. Prof. Dr. E. Zschech
3. PD Dr. H. Leipner

Inhaltsverzeichnis

Abbildungsverzeichnis	1
1 Einleitung	5
2 Materialuntersuchungen mit Positronen	7
2.1 Positronengeneration	8
2.2 Die Wechselwirkung von Positronen mit Materie	9
2.2.1 Thermalisation	9
2.2.2 Diffusion und Positroneneinfang	10
2.2.3 Zerstrahlung	12
2.3 Positroniumbildung und Zerstrahlung des Positroniums	13
2.4 Das Tao-Eldrup-Modell	16
2.5 Positronenstrahlsysteme	17
2.6 Das Positronenstrahlsystem POSSY	18
2.7 Positronen-Annihilations-Lebensdauer-Spektroskopie (PALS)	19
2.8 Auswertung des Lebensdauerspektrums	21
2.9 Die Doppler-Verbreiterungs-Spektroskopie	24
2.10 Germaniumdetektoren	25
2.11 Messung der relativen 3γ -Annihilationsrate	27
3 MePS-System	29
3.1 ELBE-Übersicht	29
3.2 Das MePS-System	30
3.3 Der Konverter	32
3.4 Moderator	33
3.5 Einzellinse	37
3.6 Strahlführung	40
3.7 Simulationen und Messungen zum Zeitverhalten des Positronenstrahls	44
3.8 Untersuchungen ohne zeitverbessernde Elemente	45
3.9 Chopper	49
3.10 Der 26 MHz Buncher	52
3.11 Simulationen mit Chopper und Buncher	55
3.12 Ansterelektronik	59
3.13 Reflektierte Positronen	62
3.14 Beschleuniger	64
3.15 Die Probenkammer	66
3.16 Zeitauflösung der SEV	67
3.17 Zusammenfassung und Ausblick	69
4 PAS-Messungen an low-k-Schichten	71

4.1	low-k-Materialien	71
4.1.1	Klassifizierung von porösen Materialien	73
4.1.2	Herstellung von porösen low-k-Schichten	74
4.1.3	Pore-Sealing	76
4.1.4	Möglichkeiten zur Charakterisierung der porösen low-k-Schichten	77
4.1.5	Selbstorganisierende low-k-Materialien	78
4.2	PAS-Untersuchungen an low-k-Schichten	79
4.2.1	PALS-Messungen der low-k-Schichten	80
4.2.2	S- und W-Parametermessungen der low-k-Schichten	84
4.2.3	Messung der relativen 3γ -Annihilationsrate	87
4.2.4	Temperaturabhängige Messung des S-Parameters	89
4.2.5	Zusammenfassung	90
4.3	PAS-Untersuchungen an selbstorganisierenden low-k-Schichten	92
4.3.1	Vergleich von einem Referenzspektrum mit und ohne Bleiblende	92
4.3.2	Messungen der relativen 3γ -Annihilationsrate an selbstorganisierenden low-k-Schichten	94
4.3.3	Zusammenfassung	99
5	Zusammenfassung und Ausblick	101
	Abkürzungsverzeichnis	104
	Abkürzungsverzeichnis	105
	Literaturverzeichnis	107
	Erklärung	116
	Lebenslauf	118
	Danksagung	120
	Publikationsliste	122

Abbildungsverzeichnis

2.1	Zerfall ^{22}Na	8
2.2	Makhov Profile für Si	10
2.3	Trappingmodell	11
2.4	Feynman-Diagramm	12
2.5	Schematische Darstellung der verschiedenen Positronenexperimente .	13
2.6	Positroniumbildung	14
2.7	Tao-Eldrup-Modell	16
2.8	Positronenstrahlsystem POSSY	18
2.9	Analoger Positronen-Lebensdauer-Messplatz	20
2.10	Digitaler Positronen-Lebensdauer-Messplatz	20
2.11	Abhängigkeit der Ps-Lebensdauer von der Porengröße	23
2.12	Lebensdauerspektrum einer low-k-Schicht	23
2.13	Dopplerverbreiterung: Messplatz und aufgenommenes Spektrum . . .	25
2.14	Störungen im Spektrum eines Ge-Detektors	26
2.15	Energiegrenzen zur Bestimmung der 3γ -Annihilationsrate	27
2.16	Versuchsanordnung zur Bestimmung der 3γ -Annihilationsrate	28
3.1	Schematische Darstellung des MePS-Messplatzes	31
3.2	Energieverteilung der Positronen nach Verlassen des Konverters . . .	32
3.3	Konverter	33
3.4	Positronen-Emissions-Spektrum ^{22}Na	34
3.5	Moderationsprinzip und Winkelverteilung der moderierten Positronen	34
3.6	Temperatur des Moderators in Abhängigkeit von der Stärke	35
3.7	Abfall der Positronenzählrate bei einem Platinmoderator	36
3.8	Abhängigkeit der Positronenzählrate vom Elektronenstrahlstrom . . .	37
3.9	Moderator und Absauggitter	37
3.10	Einzellinse mit Magnetfeld	38
3.11	Simulation zum Eintreten der Positronen in das Magnetfeld	39
3.12	Temperaturverlauf in der Einzellinse	40
3.13	Strahlführung im Labor	41
3.14	Drift der Positronen im Rohrbogen	41
3.15	Auswirkungen eines inhomogenen Magnetfeldes auf die Positronen . .	42
3.16	Elektronenspot	43
3.17	Auswirkungen der Doppelblende auf das Spektrum	46
3.18	Schematische Darstellung des Energie Analyzers	46

3.19	Gegenfeldmessungen mit und ohne Blende	47
3.20	Lebensdauerspektren in Abhängigkeit von der Gegenspannung	48
3.21	Gemessenes und simuliertes Spektrum	49
3.22	Schematische Darstellung des Choppers	50
3.23	Wirkungsweise des Choppers	51
3.24	Schematische Darstellung des Bunchers	52
3.25	Bunchersignal	53
3.26	Vergleich: gemessenes und simuliertes Lebensdauerspektrum	54
3.27	Simulation zur Strukturierung des Untergrundes durch den Buncher	55
3.28	Zeitauflösung bei verschiedenen Gaußpulsen am Chopper	56
3.29	Positronenausbeute in Abhängigkeit vom Choppersignal	57
3.30	Vergleich: Chopperpuls gemessen und simuliert	57
3.31	Simulation mit einem zur Verfügung stehenden Puls	58
3.32	Abhängigkeit des Zeitfokusses durch einen Jitter in der Buncherspannung	59
3.33	Ansteuerelektronik für Chopper und Buncher	60
3.34	DDS-Phasenstabilisierung	60
3.35	Abhängigkeit der Buncherspannung von der Positronenenergie	61
3.36	Reflektierte Positronen	62
3.37	Zeitverhalten des Positronenstrahls mit und ohne Rohrbogen	63
3.38	Zeitauflösung mit Bogen	64
3.39	Beschleuniger	65
3.40	Detektorzählrate in Abhängigkeit vom Magnetfeld	67
3.41	Versuchsanordnung zur Messung der Zeitauflösung von SEV-Röhren	68
3.42	FWHM und transit time spread einer SEV-Röhre	69
4.1	Parasitäre Kapazitäten in Schaltkreisen	71
4.2	Spin Coating	74
4.3	Porosität versus k , E , H	75
4.4	Pore-Sealing	76
4.5	Anordnung der Poren in low- k -Materialien	78
4.6	Makhov Eindringprofil und Halbwertsbreite der Informationstiefe	79
4.7	Low- k -Spektren bei 5 keV Implantationsenergie der Positronen	81
4.8	PALS-Untersuchungen an den verdichteten Schichten	82
4.9	Porengrößenverteilung bei 6 keV Implantationsenergie	83
4.10	Anteil der in der TiN-Schicht gestoppten Positronen	84
4.11	Messung des S-Parameters in den low- k -Schichten	85
4.12	Messung des W-Parameters in den low- k -Schichten	86
4.13	TEM: TiN in der low- k -Schicht	87
4.14	relative 3γ -Annihilationsrate	88
4.15	Temperaturabhängige S-Parametermessung	90
4.16	Restgasanalyse einer erhitzten low- k -Schicht	91
4.17	Siliziumspektrum mit und ohne Bleiblende	93

4.18 3γ -Annihilationsrate ohne Blende	94
4.19 3γ -Annihilationsrate mit Blende	95
4.20 Vergleich PEV18 und NP124 mit und ohne Blende	97
4.21 Gesamtzählrate mit Blende	98

Kapitel 1

Einleitung

Die immer weiter wachsenden Ansprüche an die digitale Informationsverarbeitung machen es erforderlich, schnellere Halbleiterbauelemente für die Computerherstellung zu entwickeln. Neben der Leistungssteigerung in Bezug auf die Geschwindigkeit und die Ausfallsicherheit ist es aber auch notwendig, ökologisch vertretbare Lösungen zu entwickeln, die den Energieverbrauch der Halbleiterbauelemente verringern.

Eine Möglichkeit, diese Forderungen zum Erfolg zu führen, liegt im Einsatz von low-k-Materialien als Isolator in elektronischen Halbleiterbauelementen, wie zum Beispiel Prozessoren. Ein Ansatzpunkt ist die Herstellung von porösen Schichten auf der Basis von SiO_2 .

Neben der Charakterisierung dieser porösen Materialien auf elektrische, mechanische und thermische Eigenschaften ist auch die Porengröße sowie die Frage, ob es sich um isolierte Poren oder Porensysteme handelt, von großem Interesse.

Für die Bestimmung der Porengrößen von porösen Systemen existieren nur sehr wenige aufwendige Methoden, die aber gerade im unteren Nanometerbereich Limitierungen aufweisen. Eine Herausforderung besteht darin, dass die porösen Schichten nur Stärken von einigen hundert Nanometern besitzen und diese Schichten mit metallischen Verbindungen versiegelt werden, wodurch einige Messmethoden wie die ellipsometrische Porosimetrie nicht mehr angewendet werden können.

Als eine vielversprechende Messmethode für Porengrößen hat sich die Positronen-Annihilations-Lebensdauer-Spektroskopie (PALS) etabliert. Mit dieser Messmethode ist es möglich, die Materialien zerstörungsfrei zu untersuchen. Dabei wird ausgenutzt, dass sich in vielen Materialien Elektron-Positron-Paare (Positronium) bilden können. Die Lebensdauer von Positronium ist dabei stark von der Porengröße abhängig und kann mit einem Positronen-Annihilations-Lebensdauer-Messplatz ermittelt werden.

Da mit der konventionellen Positronen-Annihilations-Lebensdauermessung Schichtdicken von einigen hundert Nanometern keine Informationen liefern, ist es notwendig, einen monoenergetischen Positronenstrahl zu verwenden. Die Implantationsenergien der Positronen können bei einem monoenergetischen Positronenstrahl zwi-

schen wenigen Elektronenvolt bis 30 keV eingestellt werden. So kann man bei den zu untersuchenden Materialien Informationen von der Oberfläche bis zu einer Tiefe von einigen Mikrometern erhalten.

Ein Ziel dieser Arbeit ist es, das in den letzten Jahren in Rossendorf aufgebaute Positronenstrahlsystem MePS (**M**onoenergetic **P**ositron **S**pectroscopy) zu beschreiben und die zur Inbetriebnahme notwendigen Überlegungen, Simulationen und Messungen vorzustellen.

MePS gehört zu dem 2004 begonnenen Projekt EPOS (**E**LBE **P**ositron **S**ource). Ein weiteres Teilprojekt von EPOS ist der GiPS-Messplatz (**G**amma-induced **P**ositron **S**pectroscopy). Mit diesem Messplatz können Informationen in Volumenmaterialien von bis zu einigen Zentimetern Stärke gewonnen werden. Mit den schon bestehenden konventionellen Positronen-Annihilations-Lebensdauer-Messplätzen ist es somit möglich, Informationen in einem Bereich von wenigen nm bis zu mehreren Zentimetern zu bekommen.

Weiterhin werden die mit MePS durchgeführten Messungen an low-k-Schichten vorgestellt. Diesen Untersuchungen folgten Messungen am Positronenstrahlsystem POSY an der Martin-Luther-Universität Halle-Wittenberg. Mit beiden Strahlsystemen konnten Informationen über die zur Verfügung gestellten Proben gewonnen werden, die mit anderen Untersuchungsmethoden nicht zugänglich sind.

Im Kapitel 2 werden die Grundlagen der Positronen-Annihilations-Spektroskopie (PAS) erläutert. Auf das Positronenstrahlsystem MePS wird im Kapitel 3 eingegangen. Dabei werden die einzelnen Komponenten des Strahlsystems beschrieben sowie die Simulationen und Messungen vorgestellt, welche die Voraussetzung für die in Kapitel 4 vorgestellten Positronen-Annihilations-Lebensdauermessungen waren. Eine Zusammenfassung und ein Ausblick werden am Ende der Arbeit gegeben.

Kapitel 2

Materialuntersuchungen mit Positronen

Das Positron wurde im Jahre 1928 von Dirac als Antiteilchen des Elektrons vorhergesagt. Anderson konnte dieses Teilchen 1932 erstmals in einer Nebelkammer nachweisen [Ande33]. In der Natur entstehen Positronen durch Paarbildung, welche durch die Höhenstrahlung hervorgerufen wird. Weiterhin können sie durch den Zerfall von solaren Myonen entstehen [Haak09]. Für Positronenexperimente müssen Positronen jedoch künstlich erzeugt werden. Treffen diese Positronen im Festkörper auf Elektronen, können sie unter Aussendung von zwei oder mehr γ -Quanten zerstrahlen.

Das Positron hat bis auf die entgegengesetzte Ladung die gleichen physikalischen Eigenschaften wie das Elektron und ist im Vakuum stabil. Die positive Ladung des Positrons führt dazu, dass es zur Untersuchung von Defekten in Festkörpern verwendet werden kann. In einem idealen Kristall wird das Positron von den positiv geladenen Atomrümpfen abgestoßen und hält sich vorwiegend im Zwischengitter auf.

Ein Defekt, in dem die Dichte der positiven Ladungsträger geringer ist als im umgebenden Gitter, bildet ein attraktives Potenzial für Positronen. Das trifft vor allem bei Defekten in Metallen zu, dessen Gitterfehlstellen prinzipiell ungeladen sind. Diese attraktiven Potenziale stellen für die Positronen eine Falle dar, in der diese eingefangen werden können.

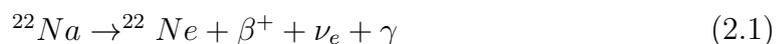
Die vom Gitter unterschiedliche Elektronendichte und Elektronenimpulsverteilung in den Defekten führt dazu, dass sich die Lebensdauer der Positronen sowie die Energie der bei der Zerstrahlung entstehenden γ -Quanten ändern.

Während seiner Lebensdauer im idealen Gitter (> 100 ps) sieht das Positron 10^6 bis 10^7 atomare Positionen [Haak09]. Daraus resultiert die hohe Empfindlichkeit der Positronenspektroskopie auf geringe Defektkonzentrationen.

2.1 Positronengeneration

Um Positronen zu erzeugen, gibt es mehrere Möglichkeiten. Am häufigsten wird ein radioaktives Isotop, zum Beispiel ^{22}Na , verwendet. ^{22}Na ist als $^{22}\text{Na}_2\text{CO}_3$ erhältlich und wird unter Verwendung eines 66 MeV Protonenbeschleunigers und eines Magnesiumtargets im iThemba LABS (Südafrika, Faure) hergestellt.

Das ^{22}Na zerfällt zu 90,4 Prozent unter Aussendung eines Positrons und eines Elektronenutrinos in einen angeregten Zustand von ^{22}Ne . Die überschüssige Energie von 540 keV wird als kinetische Energie auf das Positron und das Elektronneutrino aufgeteilt. Der Grundzustand wird nach Aussendung eines γ -Quanten mit einer Energie von 1274 keV innerhalb von 3,7 ps erreicht (Abb. 2.1).



Durch die fast gleichzeitige Aussendung des Positrons und des γ -Quants ist dieses Isotop besonders für die Positronen-Lebensdauer-Spektroskopie geeignet. Das γ -Quant dient dabei als Startquant für die Zeitmessung, das bei der Zerstrahlung des Positrons und eines Elektrons auftretende γ -Quant als Stoppquant.

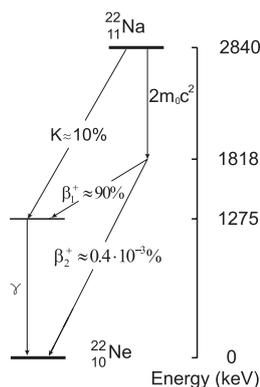


Abb. 2.1: Der instabile Kern $^{22}_{11}\text{Na}$ zerfällt mit 90,4 % Wahrscheinlichkeit durch β^+ -Strahlung in einen angeregten Kern $^{22}_{10}\text{Ne}$. Dieser Kern wandelt sich sofort unter Abgabe eines γ -Quants mit einer Energie von 1,274 MeV in den stabilen Zustand $^{22}_{10}\text{Ne}$ um.

Eine weitere Möglichkeit ist die Erzeugung von Positronen durch Paarbildung. Dabei wechselwirkt ein hochenergetisches γ -Quant mit einem Atomkern oder einem Elektron der Atomhülle. Die hochenergetischen γ -Quanten können durch die Bremsstrahlung von Elektronen aus Linearbeschleunigern oder durch den γ -Zerfall angeregter Kernzustände in Kernreaktoren erzeugt werden [Baue00]. Im Jahre 1969 wurde erstmals ein 55 MeV Elektronen-Linearbeschleuniger zur Erzeugung langsamer Positronen verwendet [Cost72].

Die Bildung eines Elektron-Positron-Paares ist ab einer Energie der γ -Quanten von $E = 2mc^2$ plus der Rückstoßenergie des beteiligten Atomkerns möglich. Haben die γ -Quanten eine höhere Energie, wird diese dem Elektron und Positron als kinetische Energie mitgegeben. Die Energie kann sich beliebig auf das Elektron und das Positron verteilen, sodass die erzeugten Positronen eine kontinuierliche Energieverteilung aufweisen.

Bei konventionellen Messungen wird das durch dünne Folien umschlossene ^{22}Na

zwischen zwei identischen Proben positioniert. Beachtet werden muss aber, dass sowohl das Quellmaterial selbst sowie das zum Verschließen verwendete Material einen Beitrag zur Lebensdauer beisteuert. Dieser Beitrag wird mit einer bekannten Referenzprobe ermittelt und bei der Auswertung der zu vermessenden Proben berücksichtigt.

Für viele Anwendungen ist die Verwendung eines radioaktiven Isotops nicht geeignet. Die kinetische Energie der Positronen ist kontinuierlich auf einen Bereich bis 540 keV verteilt. Daraus ergibt sich je nach Dichte des Materials ein Eindringprofil von bis zu einem Millimeter. Besonders eine Untersuchung von dünnen Schichten und Schichtstrukturen wird dadurch unmöglich.

2.2 Die Wechselwirkung von Positronen mit Materie

2.2.1 Thermalisation

Unabhängig davon, ob radioaktive Isotope oder monoenergetische Positronenstrahlensysteme als Positronenquelle verwendet werden, ist die kinetische Energie dieser Positronen um ein vielfaches höher als die thermische Energie der Positronen im Festkörper. Dringen die Positronen in den Festkörper ein, thermalisieren sie innerhalb weniger Pikosekunden. Danach befindet sich das Positron im thermischen Gleichgewicht mit dem Festkörper. Da sich bei den verwendeten Quellaktivitäten zur gleichen Zeit nicht mehrere Positronen im Festkörper befinden, kann die Energie des Positrons durch eine Maxwell-Boltzmann-Verteilung beschrieben werden. Im Mittel beträgt die kinetische Energie des Positrons $3/2$ kT.

Die Mechanismen, die zur Thermalisation der Positronen führen, hängen dabei von der Energie der Positronen und den zu untersuchenden Materialien ab [Pusk94]. Bei hohen Positronenenergien (einige 100 keV) dominiert die inelastische Streuung der Positronen an Elektronen. Von etwa 0,5 eV bis einigen 100 keV kommt es zu plasmonischen Anregungen [Pusk94] [Haak03]. Für Positronen mit Energien im eV-Bereich können in Metallen Leitungsbandelektronen angeregt werden und in Halbleitern Elektron-Loch-Paare entstehen [Krau99]. Besitzen die Positronen Energien im Bereich von einigen meV bis 1 eV, kommt der Prozess der Phononenstreuung hinzu [Perk70].

Unter Berücksichtigung dieser Thermalisationsprozesse kann mithilfe von Monte-Carlo-Simulationen das Eindringprofil für verschiedene Positronenenergien und Materialien ermittelt werden. Dabei müssen zwei Fälle unterschieden werden. Konventionelle Quellen liefern ein kontinuierliches Positronenenergiespektrum. In der Simulation muss die Verteilung der Positronenenergien für das jeweilige radioaktive Isotop sowie das Profil für jede Energie berücksichtigt werden. Aus diesen Berechnungen [Bran77] [Pusk94] ergibt sich ein empirisch ermitteltes Implantationsprofil $S_p(\bar{z})$.

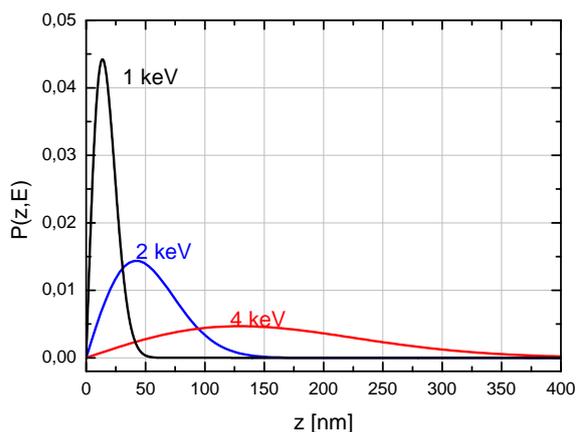


Abb. 2.2: Makhov Profil für drei verschiedene Energien am Beispiel von Silizium ($\rho = 2,33$).

$$S_p(\bar{z}) = 1 - \exp\left(17 \frac{\rho}{E_{max}^{1.43}}\right) \quad (2.2)$$

Die Eindringtiefe ist von der Dichte ρ [g/cm^3] und der maximalen Positronenenergie E_{max} [MeV] des verwendeten β -Strahlers abhängig. Für die Bestimmung der mittleren Eindringtiefe wird $S_p(\bar{z})=1-1/e$ gesetzt. Die maximale Eindringtiefe ist definiert als $S_p(\bar{z})=0,999$ [Krau99]. Daraus ergibt sich für Silizium eine mittlere Eindringtiefe von etwa $50 \mu\text{m}$ und eine maximale Eindringtiefe von $750 \mu\text{m}$.

Bei monoenergetischen Positronenstrahlsystemen muss für die Berechnung der Eindringtiefe nur die jeweilige Positronenenergie betrachtet werden. Das Eindringtiefenprofil kann durch das Makhov Profil dargestellt werden [Makh61] (Abb. 2.2). Dieses Profil wurde ursprünglich für das Eindringen von Elektronen in den Festkörper verwendet und auf monoenergetische Positronen übertragen.

$$P(z, E) = \frac{mz^{m-1}}{z_0^m} \exp\left(-\left(\frac{z}{z_0}\right)^m\right) \quad \text{mit} \quad z_0 = \frac{\bar{z}}{\Gamma(1+1/m)} \quad \text{und} \quad \bar{z} = \frac{AE^r}{\rho} \quad (2.3)$$

Dabei ist E die kinetische Energie [keV], mit der die Positronen auf die Probe treffen, ρ ist die Dichte in g/cm^3 und $\Gamma()$ die Gammafunktion. Die mittlere Eindringtiefe kann durch \bar{z} angegeben werden. Die Parameter A , n , m sind material- und energieabhängige Werte, welche empirisch bestimmt wurden. Für einige Metalle und Halbleiter sind diese in [Valk83] [Asok90] aufgelistet. Für praxisorientierte Rechnungen werden $A=40 \mu\text{g cm}^{-2} \text{keV}^{-r}$, $m=2$ und $r=1,6$ verwendet [Veha87].

2.2.2 Diffusion und Positroneneinfang

Nachdem das Positron auf thermische Energie abgebremst wurde, diffundiert es durch das Gitter und verhält sich wie ein geladenes Teilchen. Die Positronen werden von den positiv geladenen Atomrümpfen abgestoßen, wodurch die Aufenthaltswahrscheinlichkeit der Positronen im Zwischengitter am höchsten ist. Die Bewegung der Positronen lässt sich durch einen dreidimensionalen Random-Walk beschreiben

[Pusk94]. In defektfreien Materialien kann die Diffusionsweglänge L_+ der Positronen und die Diffusionskonstante D_+ durch

$$L_+ = \sqrt{\tau_b D_+} \quad \text{mit} \quad D_+ = \tau_r \frac{k_B T}{m^*} \quad (2.4)$$

angegeben werden [Krau99]. Die Diffusionsweglänge liegt in einem Bereich zwischen 200 nm und 500 nm [Haak09]. Dabei wird die Diffusionsweglänge durch die endliche Positronenlebensdauer τ_b begrenzt. τ_r ist die Relaxationszeit für die dominierenden Streumechanismen. Die effektive Positronenmasse m^* beträgt etwa 1,3 bis 1,7-mal der Ruhemasse des Positrons [Lynn88].

Befinden sich Störungen im Kristallgitter (Einzelleerstellen, Mehrfachleerstellen, Versetzungen), bildet sich durch den fehlenden Atomkern ein negatives Potenzial aus. In diesem Potenzial kann das Positron lokalisiert werden [Gold65]. Die Bindungsenergie des Positrons an den Defekt ist von der Tiefe der Potenzialmulde abhängig. Bilden sich nur flache Fallen aus (50-100 meV), wie zum Beispiel bei Versetzungen, können die thermalisierten Positronen mit einer kinetischen Energie von 40 meV bei Raumtemperatur aus diesen entkommen [Smed80]. Um flache Fallen nachzuweisen, sind Tieftemperaturmessungen notwendig.

Bei größeren Bindungsenergien, wie sie z.B. bei Leerstellen vorkommen (0,5-1 eV), handelt es sich um tiefe Fallen. Ein Entkommen ist für das Positron sehr unwahrscheinlich.

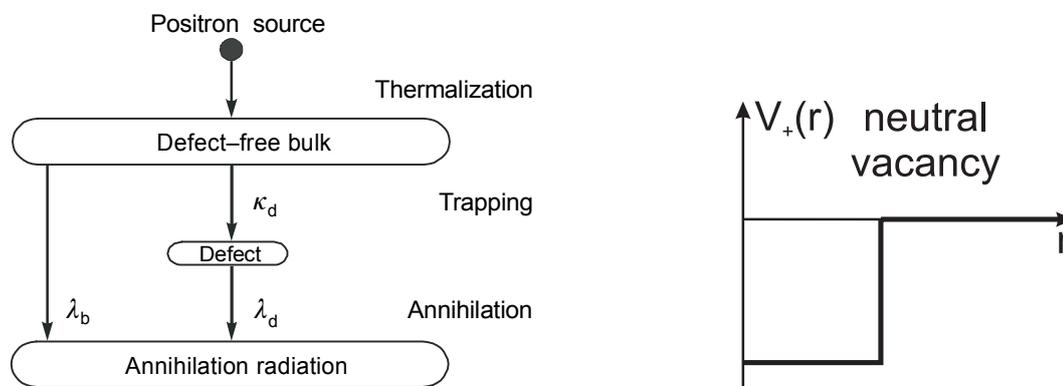


Abb. 2.3: links: Darstellung des Trappingmodells für einen Defekttyp. Die Positronen können mit der Annihilationsrate $\lambda_b = 1/\tau_b$ im defektfreien Material annihilieren. Mit der Trappingrate κ_d können sie weiterhin in einem Defekt lokalisiert werden und zerstrahlen dort mit der Annihilationsrate $\lambda_d = 1/\tau_d$. Quelle: [Krau99]

rechts: Schematische Darstellung für einen neutralen Defekt, wie er zum Beispiel in Metallen vorkommt.

Mit dem Trappingmodell [Seeg74] [Krau99] werden die Wahrscheinlichkeiten beschrieben, dass das Positron im Zwischengitter oder in den Defekten annihiliert. Es wird bei diesem Modell davon ausgegangen, dass keine Wechselwirkung der Positronen untereinander besteht, die Positronen nicht während der Thermalisation

eingefangen werden und die Defekte homogen verteilt sind.

Die Einfangrate κ_d am Beispiel nur eines vorhandenen Defekttypes kann mit

$$\kappa_d = \mu_d C = I_2 \left(\frac{1}{\tau_1} - \frac{1}{\tau_2} \right) = \frac{I_d}{I_b} \left(\frac{1}{\tau_b} - \frac{1}{\tau_d} \right) \quad (2.5)$$

angegeben werden. Dabei ist τ_b die reduzierte Bulklebensdauer und τ_d die Defektlebensdauer mit den zugehörigen Intensitäten I_b und I_d . C ist die Defektkonzentration und der Trappingkoeffizient μ_d ist eine material- und defektabhängige Konstante. Durch die Lebensdauer τ_d können weiterhin Informationen über den Defekttyp gewonnen werden. Die lokale Elektronendichte in einem Defekt ist abhängig von der Art des Defektes. Bei Mehrfachleerstellen ist die Elektronendichte geringer als bei Einzelleerstellen. Dadurch sinkt die Wahrscheinlichkeit, dass das Positron mit einem Elektron annihiliert. Als Folge vergrößert sich die gemessene Positronenlebensdauer τ_d .

2.2.3 Zerstrahlung

Während der Diffusion durch den Festkörper oder nach dem Einfang in einen Defekt wechselwirkt das Positron mit einem Elektron, was zu einer Zerstrahlung beider Partner führt. Beide Teilchen geben ihre Ruheenergie und die kinetische Energie in Form von γ -Quanten ab. Am wahrscheinlichsten ist dabei die Zerstrahlung in zwei

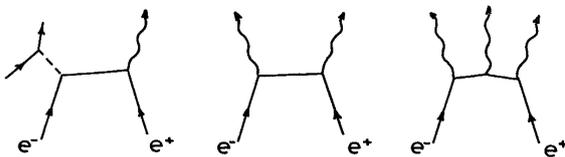


Abb. 2.4: Feynman-Diagramm für die Zerstrahlung eines Elektron-Positron-Paares unter Aussendung von einem, zwei und drei γ -Quanten. Quelle: [West73]

γ -Quanten [West73] im Winkel von 180° zueinander. Die Zerstrahlung unter Aussendung von einem oder mehr als zwei Photonen ist ebenfalls möglich. Für eine Einzel-Photon-Annihilation ist ein weiterer Partner, zum Beispiel ein weiteres Elektron oder ein Atomkern notwendig (Abb. 2.4). Dieser zusätzliche Partner kann den Rückstoßimpuls kompensieren. Die Wahrscheinlichkeit einer 2γ -Annihilation ist gegenüber der 1γ -Annihilation und der 3γ -Annihilation beträchtlich größer [West73]. Das Verhältnis der Wahrscheinlichkeiten kann in Potenzen der Feinstrukturkonstante α angegeben werden und beträgt:

$$\frac{\sigma_3}{\sigma_2} = \alpha \quad \frac{\sigma_1}{\sigma_2} = \alpha^4 \quad \text{mit} \quad \alpha = \frac{1}{137} \quad (2.6)$$

Für die weiteren Betrachtungen wird bis auf die Ausnahme bei der Positroniumbildung nur von einer 2γ -Annihilation ausgegangen.

Da der Impuls des thermalisierten Positrons bei Raumtemperatur vernachlässigt werden kann ($\approx 0,04$ eV), trägt nur der transversale Impuls des Elektrons bei der 2γ -Annihilation zur Abweichung von den 180° bei. Diese Abweichung kann mit der gestörten Winkelkorrelationsmessung nachgewiesen werden. Der longitudinale Beitrag des Impulses in Bezug zur Ausbreitungsrichtung der γ -Quanten führt zu einer Dopplerverschiebung und wird mit der Doppler-Verbreiterungs-Spektroskopie ermittelt.

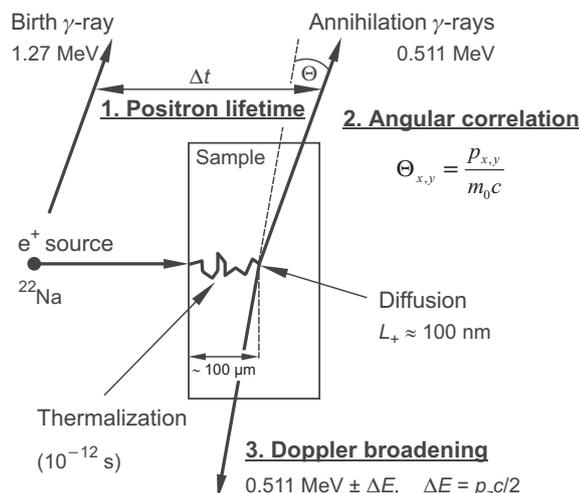


Abb. 2.5: Schematische Darstellung der verschiedenen Positronenexperimente. Nachdem das Positron in die Probe eingedrungen ist, thermalisiert es innerhalb weniger ps. Anschließend diffundiert das Positron durch das Material. Die Positronenlebensdauer kann als Zeitdifferenz zwischen dem 1.27 MeV Start- γ -Quant und eines der 0.511 MeV Stopp- γ -Quanten gemessen werden. Die Dopplerverbreiterung, die durch den Impuls der Elektronen verursacht wird, kann mit einem energieauflösenden Germaniumdetektor bestimmt werden. Die Winkelabweichung der Annihilationsquanten wird mit Hilfe der Winkelkorrelationsmessung bestimmt. Quelle: [Krau99]

Eine weitere bedeutende Messgröße, die Lebensdauer eines Positrons im Festkörper, wird mit der Positronen-Annihilations-Lebensdauer-Spektroskopie ermittelt. Hier wird die Zeitdifferenz zwischen der Entstehung des Positrons und der Zerstrahlung des Positrons gemessen. Da beim Zerfall von ²²Na gleichzeitig mit der Entstehung des Positrons ein γ -Quant mit einer Energie von 1274 keV entsteht, kann dieses als Startsignal genutzt werden. Eines der bei der Zerstrahlung erzeugten γ -Quanten mit der Energie von 511 keV fungiert als Stoppsignal.

2.3 Positroniumbildung und Zerstrahlung des Positroniums

Diffundiert ein Positron in Materie und trifft mit einem Elektron zusammen, können diese annihilieren oder es bildet sich ein gebundenes Elektron-Positron-Paar. Die-

ser gebundene Zustand wird als Positronium (Ps) bezeichnet und wurde erstmals 1951 experimentell nachgewiesen [Deut51]. Positron und Elektron bewegen sich dabei um einen gemeinsamen Schwerpunkt und können quantenmechanisch wie das Wasserstoffatom behandelt werden. Durch die reduzierte Masse des Systems liegen die Energieeigenwerte des Ps etwa bei der Hälfte der entsprechenden Eigenwerte des Wasserstoffs. Daraus ergibt sich eine Ps-Bindungsenergie von $E_B = 6,8 \text{ eV}$. Der mittlere Durchmesser des Positroniums mit $0,106 \text{ nm}$ ergibt sich aus dem doppelten Wert des Bohrschen Atomradius.

Positronium bildet sich in Oxiden, Gläsern, Ionenkristallen, organischen und anorganischen molekularen Flüssigkeiten und Feststoffen sowie in Gasen. In Metallen und Halbleitern bildet sich normalerweise kein Positronium. Eine Ausnahme bilden hier poröse Halbleiter [Dann95].

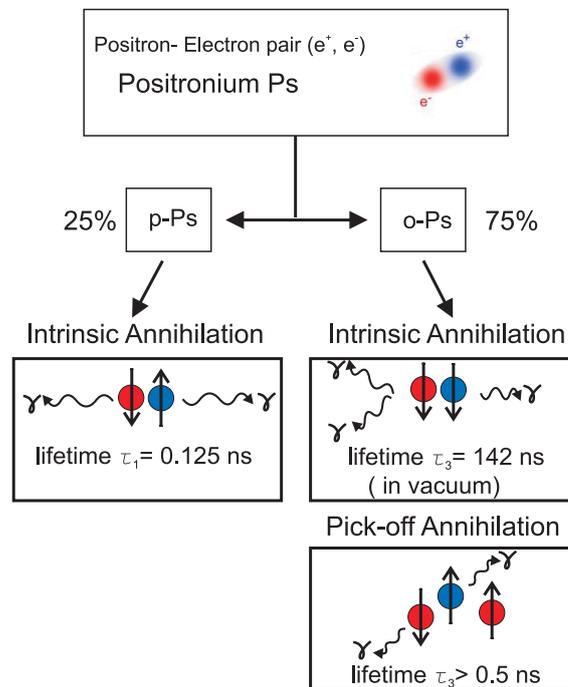


Abb. 2.6: Schematische Darstellung der Positroniumbildung. Das mit einer Wahrscheinlichkeit von 25 Prozent entstehende p-Ps zerfällt intrinsisch innerhalb von $0,125 \text{ ns}$ und ist für Positronen-Lebensdauermessungen unbedeutend. Die Lebensdauer des o-Ps beträgt im Vakuum 142 ns und kann durch pick-off Annihilation oder Quenching verkürzt werden. Aus der veränderten Lebensdauer kann auf die Größe von offenem Volumen im Bereich von $0,5 \text{ nm}$ bis 100 nm geschlossen werden.

Für die Bildung von Positronium existieren verschiedene Modelle. Die am weitesten akzeptierten sind die von Ore [Ore49] und Morgensen [Morg74]. Ore geht davon aus, dass ein Positron in der Endphase der Thermalisation auf ein Molekül oder Atom trifft und dieses ionisiert. Mit einem dabei frei werdenden Elektron bildet sich das Positronium. Bei dem Modell von Morgensen (Spur-Modell) wandert das thermalisierte Positron am Ende der Ionisationsspur zu einem der freigesetzten Positronen.

Das Positronium liegt je nach Kopplung der Spins von Elektron und Positron in zwei Grundzuständen vor (Abb. 2.6). Bei dem para-Positronium (p-Ps), welches den Singulett-Zustand 1S_0 beschreibt, sind die Spins von Elektron und Positron antiparallel gerichtet. Der Triplett-Zustand 3S_1 des Elektron-Positron-Paares wird als ortho-Positronium (o-Ps) bezeichnet. Die Spins sind parallel zueinander ausgerichtet. Eine Zerstrahlung des Positroniums in nur ein γ -Quant ist aufgrund der Energie und Impulserhaltung nicht möglich.

Für die Bestimmung der Anzahl der entstehenden γ -Quanten muss die C-Parität betrachtet werden. Diese ist bei der starken Wechselwirkung und der elektromagnetischen Wechselwirkung eine Erhaltungsgröße. Für ein n-Photonensystem gilt $C = (-1)^n$. Für ein Fermion-Antifermion System gilt $C = (-1)^{L+S}$. Im Grundzustand besitzt das Positronium den Bahndrehimpuls $L=0$. Daraus folgt, dass das p-Ps nur in eine geradzahlige Anzahl von γ -Quanten zerstrahlen kann, das o-Ps nur in eine ungeradzahlige Anzahl von γ -Quanten [West73].

Für p-Ps ist der wahrscheinlichste Zerfall in zwei γ -Quanten mit einer Energie von jeweils 511 keV mit einer mittleren Lebensdauer von 0,125 ns. Für o-Ps ist ein 3γ -Zerfall am wahrscheinlichsten. Die Energie von 1022 keV wird dabei auf die entstehenden γ -Quanten verteilt und kann zwischen nahezu null und 511 keV liegen. Die Wahrscheinlichkeit, dass die Positronen höhere Energien innerhalb dieses Bereiches besitzen, steigt linear an [Gidl06]. Die Lebensdauer des o-Ps beträgt im Vakuum etwa 142 ns. Das Zerfallen in eine andere Anzahl von γ -Quanten ist für p-Ps und o-Ps ebenfalls möglich, die Wahrscheinlichkeit dafür wird aber auch hier durch Potenzen von $\alpha = \frac{1}{137}$ verringert [Stro75].

Für die Positronium-Lebensdauermessungen hat das p-Ps keine Bedeutung. Aufgrund der kurzen Lebensdauer von 0,125 ns nimmt es die Umgebung kaum wahr und liefert keine Informationen über die Probe. Die Lebensdauer des o-Ps dagegen kann durch verschiedene Prozesse (Quenching) verkürzt werden. Dabei wird es in p-Ps umgewandelt und annihiliert vor der intrinsischen Zerstrahlung des o-Ps. Die Lebensdauer kann zum Beispiel durch magnetische Felder [Morg95] oder durch Sauerstoff in den Poren [He07] verkürzt werden.

Der bedeutendste und für die meisten porosimetrischen Messungen ausgenutzte Effekt ist jedoch die Zerstrahlung über den pick-off Prozess. Beim pick-off Prozess wird das Elektron mit gleichgerichtetem Spin gegen ein Elektron mit entgegengesetztem Spin aus der Umgebung ausgetauscht. Das so entstandene p-Ps zerstrahlt im Vergleich zur o-Ps Lebensdauer sofort. Die Wahrscheinlichkeit der pick-off Annihilation in Poren steigt mit einer Verkleinerung der Poren, da innerhalb einer festen Zeitspanne mehr Stöße mit den Porenwänden erfolgen. Dadurch verringert sich die Lebensdauer des Ps und es kann mit verschiedenen Modellen auf die Porengröße geschlossen werden.

2.4 Das Tao-Eldrup-Modell

Ein vereinfachtes quantenmechanisches Modell zur Bestimmung der Porengröße aus der o-Ps Lebensdauer wurde von Tao [Tao72] und Eldrup [Eldr81] entwickelt. In diesem einfachen aber bewährten Modell ist das Positronium in einem unendlich hohen Potenzialtopf lokalisiert (Abb. 2.7). Eine pick-off Annihilation kann nur erfolgen, wenn sich das Positronium in dem Bereich r_p bis δr , also in den Porenwänden befindet. Dieses Modell betrachtet den Grundzustand des o-Ps und ist nicht anwendbar auf Mesoporen.

$$\lambda_{2\gamma} = 2ns^{-1}W = 2ns^{-1} \left[1 - \frac{r_p}{r_p + \delta r} + \frac{1}{2\pi} \sin \frac{2\pi r_p}{r_p + \delta r} \right] \quad \text{mit} \quad \lambda_{2\gamma} = \frac{1}{\tau_{2\gamma}} \quad (2.7)$$

Beschränkend ist dabei die De-Broglie-Wellenlänge des Positroniums mit etwa 6 Nanometern [Dull01]. Das o-Ps muss bei größeren Poren als gaußförmiges Wellenpaket beschrieben werden, welches sich zwischen den Energiewällen des Hohlraumes bewegt. Weiterhin liegen die Energieniveaus in großen Hohlräumen dicht beieinander, sodass bei Raumtemperatur auch höhere Energiezustände besetzt werden können. Die Besetzung der höheren Energiezustände ist temperaturabhängig und steigt mit wachsender Temperatur an. Daraus ergibt sich, dass bei unveränderter Hohlraumgröße die o-Ps Lebensdauer mit steigender Temperatur abnimmt. Da in Gleichung 2.7 die Wahrscheinlichkeit W für größere Hohlräume kleiner wird, kann die intrinsische 3γ -Zerstrahlung gegenüber der pick-off Zerstrahlung nicht mehr vernachlässigt werden.

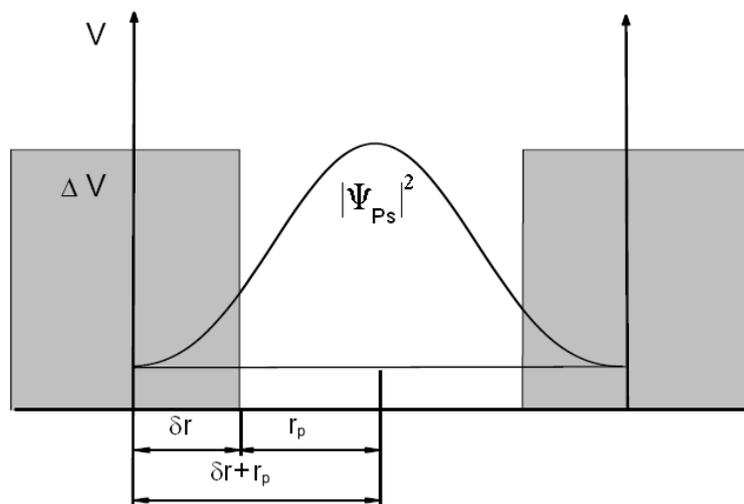


Abb. 2.7: Schematisch dargestellt ist das Potenzial V in einem Hohlraum mit dem Radius r_p . δr beschreibt die Überlappung der Ps-Wahrscheinlichkeitsdichte $|\Psi_{Ps}(r)|^2$ mit den den Hohlraum umgebenden Molekülen. Der Radius $r_0 = \delta r + r_p$ wird im Tao-Eldrup-Modell als Radius des Potenzialtopfes mit unendlich hohen Wänden angenommen. Quelle: [Krau99]

2.5 Positronenstrahlssysteme

Aus der Notwendigkeit, dünne Schichten zu untersuchen, sind zahlreiche Positronenstrahlssysteme entwickelt worden. Für Positronenstrahlssysteme, welche zur Doppler-Verbreiterungs-Spektroskopie verwendet werden, nutzt man ^{22}Na -Quellen mit einer Anfangsaktivität von etwa 50 mCi. Die generierten Positronen werden durch ein Material mit negativer Austrittsarbeit für Positronen moderiert und anschließend durch Geschwindigkeitsfilter von den schnellen Positronen getrennt. Für den Strahltransport werden meist magnetische Felder verwendet. Es können damit Zählraten von bis zu 10000 Ereignissen pro Sekunde erreicht werden.

Für Positronen-Lebensdauermessungen sind diese Strahlssysteme ohne die Verwendung von Choppern und Bunchern nicht geeignet, da aufgrund der hohen Aktivität und der räumlichen Entfernung kein zeitlicher Bezug zwischen Entstehung und Annihilation der Positronen hergestellt werden kann. Aufbauten, die für die zeitliche Strukturierung des kontinuierlichen Strahls Chopper und Buncher verwenden, können mit Zählraten von bis zu 1000 Ereignissen pro Sekunde betrieben werden [Ohda07] [Wang08]. Die Zeitauflösungen dieser Systeme liegen im Bereich zwischen 250 ps und 600 ps.

Für den Aufbau von Strahlssystemen für Positronen-Lebensdauermessungen mit höheren Zählraten eignen sich gepulste Elektronen-Linearbeschleuniger. Die durch die Elektronen beim Auftreffen auf das Target erzeugte Bremsstrahlung generiert dabei Elektron-Positron-Paare. Ein Positronenstrahlssystem dieser Art ist an der Universität Tsukuba in Japan aufgebaut. Damit werden Zählraten von 10^4 Ereignissen pro Sekunde erreicht. Die Zeitauflösung liegt bei ≈ 300 ps [Suzu03].

Ein weiteres System dieser Art wurde im Rahmen dieser Arbeit von der Martin-Luther-Universität Halle-Wittenberg am Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf entwickelt und aufgebaut (Kapitel 3). Bei einem Elektronenstrahlstrom von 5 Prozent der möglichen Intensität beträgt die Zählrate $0,96 \times 10^4$ Ereignisse pro Sekunde bei einer Zeitauflösung von 650 ps. Bei den vorgestellten Messungen ist noch kein Chopper integriert. Mit dem Einsatz des Choppers sollte die Zeitauflösung des Systems 200 bis 250 ps betragen.

Die Erzeugung von Positronen aus Bremsstrahlung, die durch den γ -Zerfall angeregter Kernzustände entsteht, wird am Forschungsreaktor München (FRM II) praktiziert. Aus dem kontinuierlichen Positronenstrahl wird durch ein Chopper-Buncher System ein gepulster Strahl erzeugt. In München können Zählraten von $1,4 \times 10^4$ Ereignissen pro Sekunde erreicht werden. Die Zeitauflösung des Systems wird mit 240 ps angegeben [Sper08].

2.6 Das Positronenstrahlsystem POSSY

Zur Untersuchung von dünnen Schichten, wie die in Kapitel 4.2 beschriebenen low-k-Schichten, eignet sich das Positronenstrahlsystem POSSY an der Martin-Luther-Universität Halle-Wittenberg (Abb. 2.8). Neben der Messung des S-Parameters und des W-Parameters kann damit in porösen Schichten tiefenabhängig die relative 3γ -Annihilationsrate bestimmt werden.

Zur Erzeugung der Positronen wird eine ^{22}Na -Quelle mit einer Anfangsaktivität von 50 mCi verwendet. Die erzeugten Positronen treffen auf den Moderator, welcher aus mehreren Wolframnetzen besteht. Die moderierten Positronen mit einer Energie von etwa 3 eV werden mit einem Gitter elektrostatisch abgesaugt und auf eine Transportenergie von 28 eV beschleunigt. Dieser Bereich wird aus strahlenschutztechnischen Gründen mit einer 20 cm starken Bleiburg abgeschirmt. Über dem Netz befindet sich ein Wolframzylinder mit einer 10 mm großen Bohrung, um eine Abschirmung nach oben zu gewährleisten.

Die Positronen werden mit einem longitudinalen magnetischen Führungsfeld mit einer Stärke von 70 bis 150 Gauß bis zur Probe geführt. Dieses Feld beginnt unterhalb der Quelle und reicht bis hinter die Probe. Zur Korrektur des Strahlengangs und der Justage des Strahls auf die Probe werden mehrere Sattelspulen verwendet.

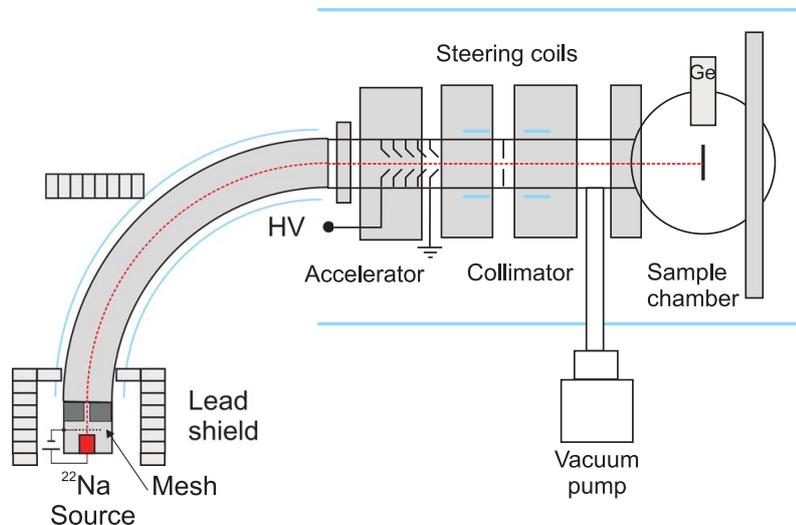


Abb. 2.8: Schematische Darstellung des Positronenstrahlsystems POSSY:

Die grauen Bereiche markieren die Position der Spulen, welche für das Führungsfeld verantwortlich sind. Die blauen Linien kennzeichnen die Position der für die Korrektur notwendigen Sattelspulen und der Erdmagnetfeldkompensationsspulen.

Der Rohrbogen vor dem Beschleuniger dient als Energiefilter für die moderierten Positronen. Durch die Sattelspulen, welche auf dem Bogen aufgebracht sind, wird das senkrecht zum Strahl erzeugte Magnetfeld so eingestellt, dass sich die Auswirkungen durch die Zentrifugalkraft und das magnetische Feld auf die langsamen Positronen aufheben. Besitzen die Positronen höhere Energien, überwiegt die durch die Zentri-

fugalkraft hervorgerufene Krümmungsdrift (Abschnitt 3.6), sodass diese Positronen am Vakuumsystem oder an der Blende vor dem Beschleuniger annihilieren.

Mit dem mehrstufigen Beschleuniger werden die Positronen auf die Implantationsenergie von bis zu 25 keV beschleunigt. Der Bereich in Richtung der ^{22}Na -Quelle liegt dabei auf einem positiven Hochspannungspotenzial und ist elektrisch isoliert aufgebaut. Dieser Bereich wird durch ein in das Vakuumsystem eingebautes Glasrohr elektrisch vom Vakuumsystem auf der Probenseite getrennt.

Eine weitere Blende dient der räumlichen Begrenzung des Strahls. Mit dem davor liegenden Sattelspulenpaar kann der Strahl so beeinflusst werden, dass er die Blende passiert. Das zweite Sattelspulenpaar ist für die Justage auf die Probe notwendig. Die Werte für die durch die Spulen fließenden Ströme müssen für jede Implantationsenergie bestimmt werden.

In einer Entfernung von 30 mm zur Probe und senkrecht zum Strahlensystem befindet sich der Ge-Detektor, mit dem die Annihilationsquanten detektiert werden.

2.7 Positronen-Annihilations-Lebensdauer-Spektroskopie (PALS)

Die konventionelle und am meisten verbreitetste Positronen-Annihilations-Lebensdauerermessung wird mit einem radioaktiven Isotop durchgeführt. Dazu wird häufig ^{22}Na verwendet. Zwischen zwei identischen Proben mit einer ausreichenden Stärke wird die ^{22}Na -Quelle positioniert. Die aus der Quelle austretenden Positronen werden in den Proben gestoppt und annihilieren so fast ausschließlich in dem zu untersuchenden Material. Etwa 10 Prozent der Positronen annihilieren im Quellmaterial und in der Hülle des Quellmaterials. Dieser Fakt muss bei der späteren Auswertung berücksichtigt werden.

Beim Zerfall des Isotops wird zeitgleich mit der Erzeugung eines Positrons ein γ -Quant mit einer Energie von 1.27 MeV emittiert. Dieses Quant kann als Startquant für die Messung verwendet werden. Annihiliert das Positron mit einem Elektron in der zu untersuchenden Probe, entstehen zwei γ -Quanten mit einer Energie von jeweils 511 keV. Eines dieser γ -Quanten bildet das Stoppsignal.

Die Zeitdifferenz zwischen dem 1,27 MeV γ -Quant und eines der 511 keV γ -Quanten wird mit dem in Abbildung 2.9 schematisch dargestellten Messplatz aufgenommen. Die beiden γ -Quanten werden mithilfe eines Szintillators detektiert und in ein für den nachfolgenden Sekundärelektronenvervielfacher (SEV) sichtbares Lichtsignal umgewandelt. Dieses löst in der Photokathode Elektronen aus, die durch die Dynoden des SEV vervielfältigt werden und an der Anode ein Signal mit einer Anstiegszeit von etwa ein bis zwei Nanosekunden erzeugen.

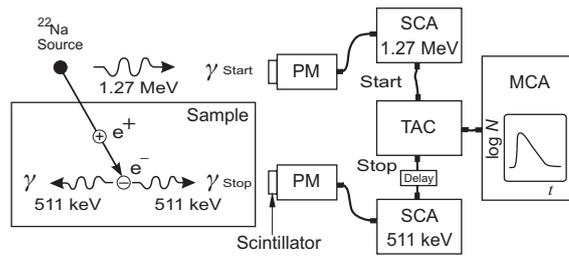


Abb. 2.9: Schematische Darstellung eines analogen PALS-Messplatzes. Die Positronenlebensdauer ergibt sich aus der Messung der Zeitdifferenz zwischen dem 1,27 MeV Start- γ -Quant und einem der beiden 0,511 MeV Stopp- γ -Quanten. Quelle: [Krau99]

In den beiden Single-Channel Analyzern (SCA) werden die Signale auf die Impulshöhe untersucht. Da die Impulshöhe mit der Energie der γ -Quanten korreliert, können mit dem SCA die Energiefenster so eingestellt werden, dass eine Unterscheidung der 511 keV und 1,27 MeV γ -Quanten möglich ist.

Der Time to Amplitude Converter (TAC) misst die Zeitdifferenz der Signale und wandelt diese in eine Spannung um. Das Startsignal bewirkt, dass ein Kondensator mit einem konstanten Strom geladen wird. Das Stoppsignal beendet diesen Vorgang. Aus der danach anliegenden Spannung am Kondensator kann die Zeitdifferenz zwischen den beiden Signalen ermittelt werden, die an einen Vielkanalanalysator (MCA) weitergegeben wird. Liegt die Spannung in einem der Intervalle des MCA, erhöht sich der Wert im jeweiligen Intervall um eins. Daraus ergibt sich nach etwa drei Millionen Ereignissen ein Lebensdauerspektrum.

In den letzten Jahren haben sich in der Positronen-Annihilations-Lebensdauer-Spektroskopie auch digitale Messplätze etabliert. Eine schematische Darstellung der Komponenten ist in Abbildung 2.10 gegeben. Die Verwendung dieser Messplätze wird durch die folgenden Vorteile gegenüber analogen Messplätzen favorisiert.

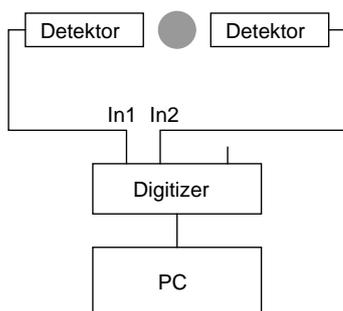


Abb. 2.10: Schematische Darstellung eines digitalen PALS-Messplatzes. Die Signale der Detektoren werden an einen Analog-Digital-Wandler übertragen. Die digitale Weiterverarbeitung wird durch einen Computer realisiert. Quelle: [Kril08]

Im analogen Messplatz wird die Zeit pro Kanal durch die Länge des Messintervalls und die Kanalzahl des MCA beschränkt. Die maximale Kanalzahl bei den in Halle verwendeten Ortec 919 Modulen beträgt 16384 Kanäle. Bei einem Messintervall von 2 ms, welches bei der Messung von langen Lebensdauerkomponenten üblich ist, beträgt die Zeit pro Kanal 125 ps. Dadurch können kurze Lebensdauerkomponenten nicht mehr ausreichend gut aufgelöst werden. Diese Beschränkung existiert bei einem

digitalen Messplatz nicht. Die Zeit pro Kanal richtet sich nach der elektronischen Auflösung und beträgt bei den in Halle verwendeten digitalen Messplätzen 10 ps.

Ein weiterer Vorteil liegt in der geringeren Störanfälligkeit. Analoge Messplätze reagieren durch die komplexe Elektronik stark auf Temperaturänderungen. Versuche haben gezeigt, dass Temperaturschwankungen von 10 K während einer Messung dazu führen, dass die Spektren nicht mehr vernünftig ausgewertet werden konnten.

Bei der Positronen-Lebensdauer messung mit radioaktiven Isotopen ist zu beachten, dass sich in der Probe in dem eingestellten Messintervall nur ein Positron befinden darf. Das Intervall richtet sich nach den zu erwartenden Lebensdauerkomponenten. Wird bei langen Lebensdauerkomponenten das Messintervall zu kurz eingestellt oder eine zu große Quellaktivität verwendet, erhöht sich der Untergrund, da auch unkorrelierte Ereignisse in das Spektrum aufgenommen werden. Lange Lebensdauerkomponenten mit geringen Intensitäten gehen darin unter und können mit der Auswertesoftware nicht mehr bestimmt werden. Bei zu erwartenden kurzen Lebensdauerkomponenten, wie sie in Metallen und Halbleitern vorkommen, werden Quellen mit einer Aktivität von bis zu 50 μCi verwendet. Bei sehr langen Lebensdauerkomponenten in porösen Materialien sollte die Aktivität der Quellen 5 μCi nicht überschreiten. Ausführlichere Informationen und eine Abschätzung der Quellstärke in Abhängigkeit von der zu erwartenden Lebensdauer werden in [Thra06] gegeben.

2.8 Auswertung des Lebensdauerspektrums

Die Wahrscheinlichkeit, dass ein Positron innerhalb der Probe in einer bestimmten Zeit mit einem Elektron zerstrahlt, kann durch eine exponentielle Zerfallsfunktion beschrieben werden. Das Positronen-Lebensdauerspektrum von defektfreien, aus einem Element bestehenden Metallen und Halbleitern, besteht aus nur einer Zerfallsfunktion. Diese Lebensdauer τ_b wird in der Literatur als Bulklebensdauer bezeichnet.

Da die Positronenlebensdauer eine Funktion der Elektronendichte am Annihilationsort ist, verändern Defekte in den Materialien die Lebensdauer der Positronen. Sind Defekte, wie zum Beispiel Einzelleerstellen, Mehrfachlehrstellen oder Versetzungen vorhanden, liefert jeder Defekttyp eine weitere Positronen-Lebensdauerkomponente τ_i mit einer Intensität I_i , welche von der Defektkonzentration abhängig ist. Daraus ergibt sich ein Lebensdauerspektrum $N(t)$, welches aus der Summe von m Exponentialfunktionen besteht.

$$N(t) = \sum_{i=1}^m \frac{I_i}{\tau_i} e^{-\frac{t}{\tau_i}} \quad (2.8)$$

Bei der Auswertung der Spektren muss berücksichtigt werden, dass $N(t)$ mit mindestens einer Zeitauflösefunktion $R(t)$ gefaltet wird. $R(t)$ lässt sich dabei hinreichend genau durch eine Gaußkurve beschreiben und wird durch die Elektronik, den

Szintillator, den SEV und den Versuchsaufbau hervorgerufen.

$$N^*(t) = G [R(t) * N(t) + U] \quad (2.9)$$

G gibt dabei die gesamte Anzahl der Ereignisse im Spektrum an, U bezeichnet den Untergrund.

Vor der Auswertung der Spektren muss die Halbwertsbreite (FWHM) der ZeitaufLösungsfunktion bestimmt werden. Weiterhin wird bei Verwendung eines radioaktiven Isotopes zur Positronenerzeugung dessen Anteil (Isotop, Hülle) am Lebensdauerpektrum ermittelt. Dazu wird eine Messung mit einer Referenzprobe durchgeführt. Als Referenzprobe verwendet man ein Material mit vergleichbarer Dichte und einer bekannten einkomponentigen Positronenlebensdauer (z.B. Si, Fe).

Die Bestimmung der Quellkorrektur entfällt bei Positronen-Lebensdauer-Strahlsystemen. Es muss hier auch davon ausgegangen werden, dass die ZeitaufLösungsfunktion nicht mit einer Gaußfunktion angepasst werden kann. Das macht sich besonders bei kurzen Lebensdauerkomponenten bemerkbar. Die Halbwertsbreite der ZeitaufLösungsfunktion von konventionellen PALS-Messplätzen liegt bei etwa 200 ps. Damit lassen sich im Lebensdauerpektrum Zeiten von 50 ps auflösen. Liegen zwei durch verschiedene Defekte verursachte Lebensdauerkomponenten näher als 50 ps beieinander, können diese nicht voneinander getrennt werden. Das führt besonders bei der Untersuchung von Metallen zu Schwierigkeiten in der Interpretation der Ergebnisse, weshalb oft nur die mittlere Lebensdauer angegeben wird.

Bei den in Kapitel 4 untersuchten low-k-Schichten muss beachtet werden, dass sich die Positronenlebensdauer aus mindestens drei Komponenten zusammensetzt. Die kurze Lebensdauerkomponente $\tau_1 = 0,125$ ns wird durch die intrinsische Zerstrahlung des para-Positroniums hervorgerufen. Der Anteil kann je nach Material zwischen 25 % und 40 % betragen.

Die zweite Lebensdauerkomponente $\tau_2 = 0,4...0,5$ ns wird durch Positronen hervorgerufen, die kein Positronium gebildet haben und in den Poren oder subnanometergroßen Hohlräumen der amorphen Matrix annihilieren.

$\tau_3 = 1,5...4$ ns ist auf eine pick-off Annihilation des ortho-Positroniums in den subnanometergroßen Hohlräumen zurückzuführen.

Eine vierte Lebensdauerkomponente zeigt sich, wenn in dem Material Poren vorhanden sind. Diese Lebensdauer kann bis zur Vakuumlebensdauer des o-Pos (142 ns) reichen und beschränkt damit die Größe der zu untersuchenden offenen Volumen. Ab etwa 100 nm Porengröße kann mit PALS keine Aussage mehr über die Größe der Poren getroffen werden. Die Abhängigkeit der Positronenlebensdauer von der Porengröße ist in Abbildung 2.11 dargestellt. Dabei handelt es sich um eine Eichkurve für Controlled Pore Glass (CPG) [Thra06].

Ein aufgenommenes Lebensdauerpektrum ist in Abbildung 2.12 dargestellt. Es handelt sich dabei um eine low-k-Schicht mit gefüllten Poren. Das Spektrum wur-

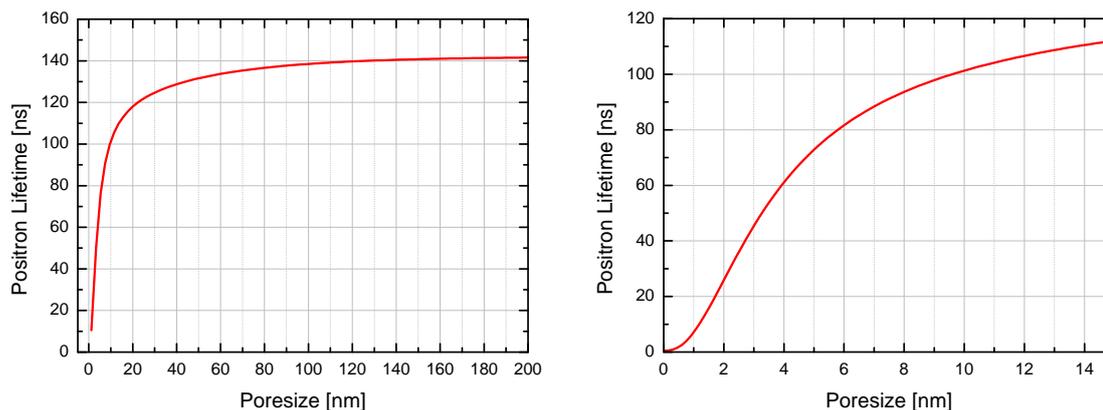


Abb. 2.11: Dargestellt ist die Ps-Lebensdauer in Abhängigkeit vom Porendurchmesser in porösem Glas (CPG). Der besonders sensible Bereich reicht bis zu einem Porendurchmesser von 10 nm.

de mit dem Positronenstrahlssystem MePS aufgenommen. Die Halbwertsbreite der Zeitauflösfunktion beträgt je nach Implantationsenergie etwa 500 ps. Damit ist es nicht möglich, τ_1 aufzulösen. τ_1 beinhaltet in diesem Fall die p-Ps Eigenzerstrahlung und die Positronen, die kein Positronium gebildet haben. Weiterhin ist in τ_1 die Bulklebensdauer von Silizium (219 ps) enthalten, da die Messung mit einer Implantationsenergie von 5 keV aufgenommen wurde und ein Teil der Positronen das Substrat erreicht. τ_2 wird durch die Annihilation des o-Ps in den subnanometergroßen Hohlräumen hervorgerufen.

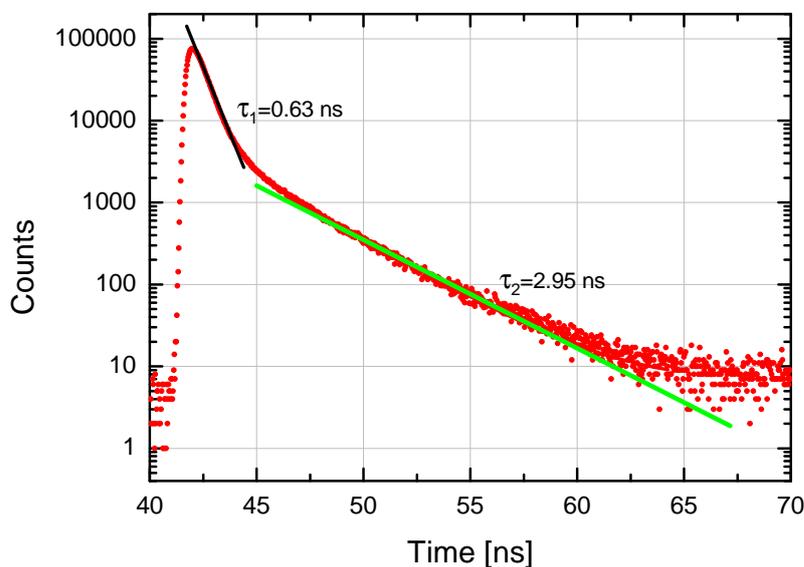


Abb. 2.12: Positronen-Lebensdauerspektrum einer low-k-Schicht: Die Lebensdauerkomponenten wurden durch einen Fit mit dem Programm Origin 8.5 berechnet. Dieser Fit berücksichtigt nicht die Auflösungsfunktion. Mit dem Auswerteprogramm LT 9.0 wurde für $\tau_1 = 0,53$ ns und $\tau_2 = 2,97$ ns ermittelt.

Für die Bestimmung der Positronenlebensdauer stehen verschiedene Programme (LT 9, LT 10, MELT, CONTIN) zur Verfügung. Für die Auswertung der low-k-

Materialien wurde das Programm LT 9.0 verwendet [Kans96]. In LT wird die Funktion 2.8 mit der Zeitauflösungsfunktion $R(t)$ gefaltet und nach einer nichtlinearen Methode der kleinsten Quadrate an die Messwerte angepasst. Untersuchungen haben ergeben, dass neuere Versionen von LT nicht für die Auswertung von langen Lebensdauerkomponenten geeignet sind. Vergleiche durch einen Fit mit dem Programm Origin 8.5 zeigen, dass das Programm LT 9.2 ab einer Lebensdauer von etwa 40 ns einen deutlich zu hohen Wert ausgibt.

2.9 Die Doppler-Verbreiterungs-Spektroskopie

Die Doppler-Verbreiterungs-Spektroskopie ist ebenfalls zur Bestimmung der Gitterfehlerdichte geeignet. Dabei wird die Impulserhaltung ausgenutzt. Die Komponente des Impulses des Elektron-Positron-Paares in Ausbreitungsrichtung der Annihilationsquanten führt zu einer Dopplerverschiebung der 511 keV γ -Quanten. Die Energie der γ -Quanten ergibt sich dann aus

$$E = m_0c^2 \pm \frac{cp}{2} \text{ mit } p = \sqrt{2mE}.$$

Dabei ist m_0 die Ruhemasse des Elektrons, p der Impuls des Elektron-Positron-Paares und c die Lichtgeschwindigkeit. Es wird davon ausgegangen, dass das Positron zum Zeitpunkt der Annihilation nur thermische Energie besitzt. Diese beträgt nach

$$E_{kin} = \frac{3}{2}kT$$

0,038 eV bei Raumtemperatur. Im Vergleich zur Elektronenenergie von bis zu mehreren Elektronenvolt kann dieser Wert vernachlässigt werden.

Für den Fall, dass der Impuls eines an der Annihilation beteiligten Elektrons einer Energie von 5 eV entspricht, wird die Energie der Annihilationsquanten um ± 1.13 keV verschoben. Da die Auflösung des Germaniumdetektors auch in diesem Bereich liegt, kann die Verschiebung eines einzelnen Ereignisses nicht vermessen werden. Werden jedoch mehrere Ereignisse aufgenommen, entsteht eine in Abbildung 2.13 dargestellte Kurve. Die Verbreiterung dieser Kurve kann dann eine Aussage darüber liefern, ob die Positronen in Defekten oder in einem nahezu defektfreien Material annihilieren.

Aus den Spektren der Doppler-Verbreiterungs-Spektroskopie können zwei Parameter gewonnen werden. Der S-Parameter wurde von MacKenzie [Mack70] eingeführt und ist definiert als der Quotient der Fläche unter dem zentralen Teil der Annihilationslinie und dem Gesamtintegral $S = A_s/A$ (Abb. 2.13).

Ein weiterer Parameter ist der W-Parameter. Dieser gibt Informationen über die chemische Umgebung des Annihilationsortes, wie zum Beispiel die nächsten Nachbarn eines Defektes, wieder. Durch Vergleichsmessungen an reinen Materialien können die Elemente identifiziert werden. Definiert ist der W-Parameter als Quotient des hochenergetischen Teiles der Annihilationslinie durch das Gesamtintegral $W = A_w/A$.

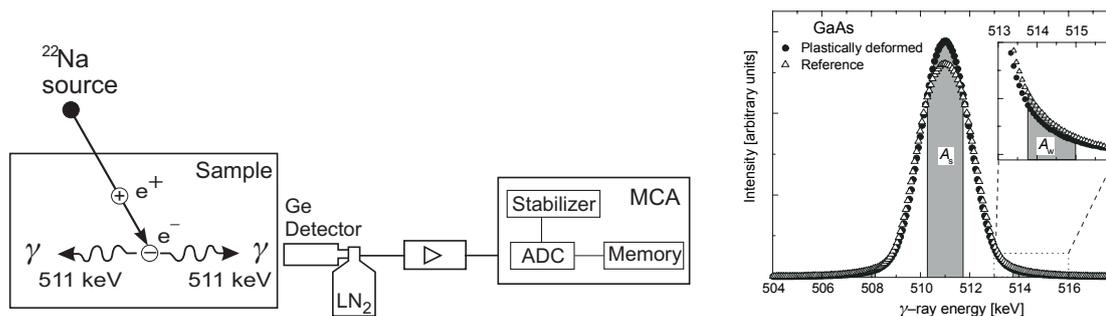


Abb. 2.13: links: Schematische Darstellung eines Messplatzes für die Doppler-Verbreiterungs-Spektroskopie. Die erhaltenen Daten können auch zur Bestimmung der relativen 3γ -Annihilationsrate herangezogen werden. Die bei der Annihilation entstehenden γ -Quanten werden mit einem durch flüssigen Stickstoff gekühlten Germaniumdetektor detektiert. Die Impulshöhe des Signals ist proportional zur Energie der γ -Quanten. Über einen Vorverstärker gelangt das Signal an einen MCA und wird dort den einzelnen Kanälen zugeordnet. Durch eine Kalibration mit anderen bekannten Isotopen wird die Energie pro Kanal bestimmt. Quelle: [Krau99]
rechts: Dargestellt ist ein gemessenes Spektrum in dem für die S- und W-Parameterauswertung interessanten Bereich nach der Untergrundkorrektur. Quelle: [Krau99]

Diese beiden Parameter sind von der apparativen Auflösung abhängig. Weiterhin hat die Wahl der Kanalanzahl für die Auswertung einen Einfluss auf die erhaltenen Ergebnisse. Um die Werte mit anderen Spektrometern zu vergleichen, müssen diese normiert werden.

2.10 Germaniumdetektoren

Für die Untersuchung des S-Parameters und der relativen 3γ -Annihilationsrate werden zur Analyse der Annihilationsquanten Germaniumdetektoren verwendet. Diese Halbleiterdetektoren zeichnen sich durch eine sehr gute Energieauflösung (1,0 keV-1,7 keV) aus.

Ein Halbleiterdetektor funktioniert prinzipiell wie eine in Sperrichtung geschaltete Diode. Durch die angelegte Hochspannung wird die Sperrschicht vergrößert. Ionisierende Strahlung kann dann in der Sperrschicht Elektron-Loch-Paare erzeugen. Diese werden durch das elektrische Feld abgesaugt und gesammelt. Die dabei erhaltene Ladung ist proportional zu der Energie, die die Photonen im Detektormaterial abgeben.

Nimmt man ein Spektrum mit einem Ge-Detektor auf, sind im Spektrum die Effekte, welche durch den Photoeffekt, den Comptoneffekt und die Paarbildung verursacht werden, sichtbar. Ein mit einem Ge-Detektor aufgenommenes Spektrum einer Messung mit dem Positronenstrahlsystem POSSY ist in Abbildung 2.14 dargestellt.

Neben dem 511 keV Vernichtungspeak, welcher durch den Photoeffekt hervorgerufen wird, ist ein niederenergetischer Untergrund zu erkennen. Dieser setzt sich vor allem aus dem Comptonuntergrund und dem Untergrund durch mehrfache Comptonstreuung zusammen.

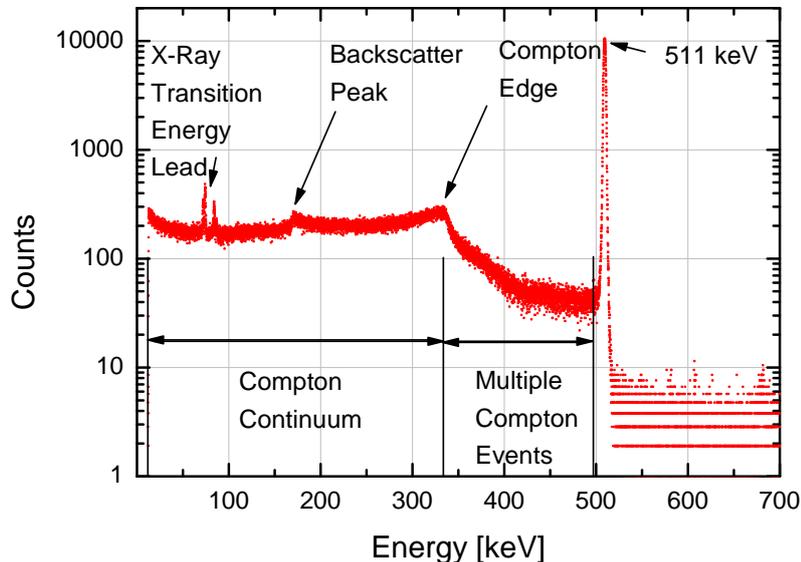


Abb. 2.14: Dargestellt ist ein Spektrum, welches mit einem Ge-Detektor aufgenommen wurde. Neben dem durch den Photoeffekt hervorgerufenen 511 keV Peak wird ein nicht unbedeutender Teil des Spektrums durch Comptonstreuung im Detektor oder dem umgebenden Material verursacht.

Ein Teil des Untergrundes entsteht durch die Wechselwirkung der Vernichtungsquanten mit dem Detektormaterial selbst. Der Comptonuntergrund wird durch Photonen erzeugt, die im Detektorkristall einen Teil ihrer Energie durch Comptonstreuung verlieren und danach den Detektor verlassen. Die maximale Energie, die die Photonen bei einer Streuung um $\Phi=180^\circ$ an ein Elektron im Detektormaterial abgeben können, ist im Spektrum als Comptonkante sichtbar und kann mit der Gleichung 2.10 berechnet werden.

$$E_e(\Phi) = E_\gamma \left(1 - \frac{1}{1 + \frac{E_\gamma}{m_e c^2} (1 - \cos(\Phi))} \right) \quad (2.10)$$

Bei einem Spektrum, welches durch γ -Quanten mit einer Energie von $E_\gamma=511$ keV erzeugt wird, liegt die Comptonkante bei 340 keV. Der Bereich zwischen der Comptonkante und dem 511 keV Peak entsteht durch mehrfache Comptonstreuung.

Der Rückstreupeak entsteht ebenfalls durch Comptonstreuung. In diesem Fall aber durch ein Photon, welches außerhalb des Detektormaterials (Vakuumkammer, Bleiabschirmung, Detektorgehäuse) gestreut wird. Die Lage im Spektrum ergibt sich aus der Differenz der Energie des Photons und dem nach Gleichung 2.10 berechneten Wert für eine 180° Streuung des Photons am Elektron. Für ein 511 keV Annihilationsquant liegt dieser Peak bei 171 keV.

Ganz links im Spektrum sind bei etwa 74 keV und 85 keV zwei weitere Peaks zu erkennen. Diese werden durch die charakteristische Röntgenstrahlung von Blei erzeugt, welches zur Abschirmung verwendet wird [Seve12] [Debe88].

Durch Paarerzeugung verursachte Störungen können nicht beobachtet werden, da die Energie der Annihilationsquanten zu gering ist. Durch die gute Abschirmung der Positronenquelle und die große Entfernung gelangen auch nicht ausreichend 1,27 MeV Quanten der ^{22}Na -Quelle in die Nähe des Detektors, um diese Effekte im Spektrum zu beobachten.

2.11 Messung der relativen 3γ -Annihilationsrate

Orthopositronium kann im Inneren einer porösen Probe in zwei oder drei Photonen zerstrahlen. Bei kleinen Poren zerstrahlt der überwiegende Teil des o-Ps durch pick-off Annihilation in zwei γ -Quanten. In Abhängigkeit von der Porengröße ist aber auch eine intrinsische 3γ -Annihilation möglich.

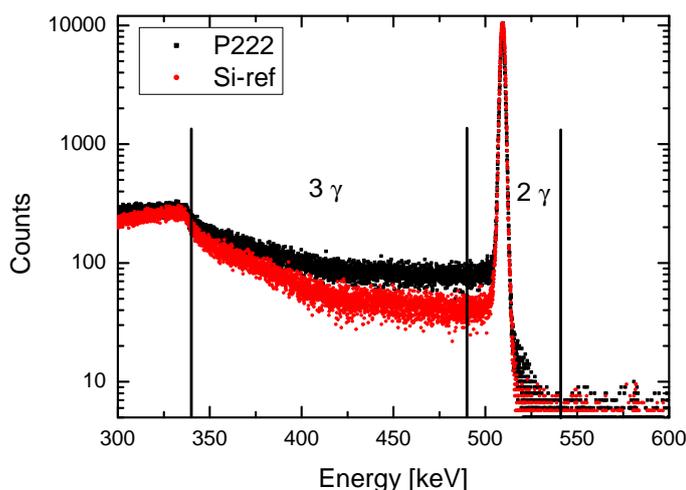


Abb. 2.15: Teil zweier mit einem Ge-Detektor aufgenommenen Energiespektren. Im Silizium bildet sich im Gegensatz zu einem low-k-Material kein Positronium. Die Anzahl der detektierten Ereignisse im Bereich von 340 keV bis 490 keV ist daher in der Siliziumprobe geringer und kommt ausschließlich durch die in Abschnitt 2.10 aufgeführten Mechanismen zustande.

Als Maß für die Ps-Ausbeute und den Anteil der o-Ps-Eigenzerstrahlungen in 3γ -Quanten wird die relative 3γ -Annihilationsrate angegeben. Die 3γ -Annihilationsrate erhält man durch Integration über der Annihilationslinie im Bereich von 340 keV bis 490 keV. Für die 2γ -Rate wird über die Zählrate im Energiebereich von 491 keV bis 541 keV integriert (Abb. 2.15) [Dlub02]. Die relative 3γ -Annihilationsrate berechnet sich aus $R = 3\gamma/(2\gamma + 3\gamma)$ und wird auch als $3\gamma/(2\gamma + 3\gamma)$ -Ratenverhältnis

bezeichnet. Für die Auswertung der Annihilationsrate können die mit einem Germaniumdetektor aufgenommenen Spektren der Doppler-Verbreiterungs-Spektroskopie verwendet werden.

Die Wahrscheinlichkeit einer intrinsischen 3γ -Annihilation des o-Ps steigt durch eine Vergrößerung und Intensität der Poren an. Auch die Ausbildung von Porensystemen führt durch die Vergrößerung des für das Positronium spürbaren offenen Volumens zu einer Erhöhung der relativen 3γ -Annihilationsrate [Petk03]. Bildet sich ein zur Oberfläche hin offenes Porensystem, kann das Positronium den Festkörper verlassen und zerfällt im Vakuum vor der Probe durch die 3γ -Eigenzerstrahlung.

Mithilfe dieser Auswertung können verschiedene Fragen beantwortet werden. Dafür ist es aber hilfreich, zwei Detektoren zu verwenden (Abb. 2.16). Mit dem Ge-Detektor, welcher keine Abschirmblende besitzt, werden die Annihilationen in und außerhalb der Probe detektiert. Der Detektor mit Abschirmung detektiert nur die Annihilationen innerhalb der Probe [Dlub02][Jean03].

Um eine Aussage über eine zur Oberfläche hin offene Porosität treffen zu können, ist es notwendig, die Positronen so tief in den Festkörper zu implantieren, dass sich auf der Oberfläche kein Positronium bildet. Gibt es eine Differenz der 3γ -Annihilationsrate beider Detektoren, kann daraus geschlossen werden, dass es sich um eine zur Oberfläche hin offene Porosität handelt [Jean03]. Mit dieser Methode kann auch untersucht werden, ob die auf porösen Materialien aufgetragenen Deckschichten die porösen Materialien sicher verschließen [Sun01].

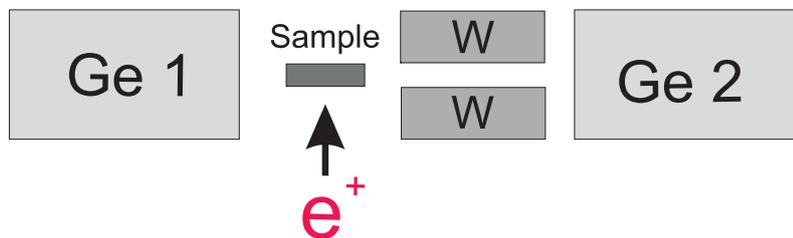


Abb. 2.16: Dargestellt ist die Versuchsanordnung zur Bestimmung der 3γ -Annihilationsrate. Mit dem linken Detektor werden die Zerstrahlungen in der Probe und im Vakuum aufgenommen. Der rechte Detektor registriert durch die Abschirmblende fast nur die Ereignisse aus dem Inneren der Probe.

Kapitel 3

MePS-System

In diesem Kapitel wird das Positronenstrahlsystem MePS (**M**onoenergetic **P**ositron **S**pectroscopy) beschrieben. Dazu wird kurz auf die ELBE-Halle (**E**lektronen **L**inearbeschleuniger mit hoher **B**rillanz und niedriger **E**mittanz) eingegangen, in welcher der gepulste Elektronenstrahl für die Positronengeneration erzeugt wird. Einem groben Überblick über MePS folgen Abschnitte über den Aufbau, die Funktion und die durchgeführten Untersuchungen mit den einzelnen Komponenten des Positronenstrahlsystems.

3.1 ELBE-Übersicht

Die ELBE-Halle befindet sich im Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf (HZDR). Kernstück der ELBE-Halle ist ein supraleitender Linearbeschleuniger.

Die Elektronen werden mit einer 250 keV-thermionischen Elektronenkanone erzeugt. Diese Quelle liefert einen gepulsten Elektronenstrahl mit einer Frequenz von 13 MHz. Zur Komprimierung der Pulse werden zwei HF-Buncher verwendet. Mit zwei supraleitenden Linearbeschleunigern kann eine Energie von 40 MeV auf den Elektronenstrahl übertragen werden. Der Elektronenpuls besitzt bei 13 MHz eine maximale Bunchladung von 77 pC ($4,8 \times 10^8 e^-$) pro Bunch. Im Mikropulsbetrieb wird eine Pulsbreite von 1 ps bis 5 ps erreicht. Die Wiederholfrequenz kann nach Nutzerwünschen mit $13/2^n$ MHz eingestellt werden (Entwicklungsstand 2011) [Ste98].

Der so erzeugte Elektronenstrahl wird von mehreren Nutzergruppen zur Erzeugung von Sekundärstrahlung verwendet. So wird mit einem Freie-Elektronen-Laser kohärente Infrarotstrahlung (3-200 μm) erzeugt. Weiterhin werden quasimonochromatische Röntgenstrahlung (10-100 keV), polarisierte Bremsstrahlung (≤ 30 MeV) und ein Strahl freier Neutronen generiert.

Für Materialuntersuchungen mit Positronen stehen zwei Messplätze zur Verfügung. Mit dem GiPS-Messplatz (**G**amma-induced **P**ositron **S**pectroscopy) können Messungen mit Positronen an Volumenproben durchgeführt werden. Dabei wird mit dem Elektronenstrahl ein gepulster Photonenstrahl erzeugt und auf die zu untersuchende Probe gelenkt. Durch die Wechselwirkung der hochenergetischen Photonen

mit der Probe werden im Inneren Elektron-Positron-Paare erzeugt. Die generierten Positronen zerstrahlen wiederum mit den Elektronen in der Probe. Aus den Lebensdauermessungen und Dopplerkoinzidenzmessungen erhält man Informationen über Defekte in der ganzen Probe.

Im MePS-System werden mit dem Elektronenstrahl durch Paarerzeugung Elektron-Positron-Paare in einem Konverter erzeugt. Ein Teil der Positronen kann moderiert werden und wird über ein magnetisches Führungssystem in das Labor geleitet. Mit Hilfe eines Beschleunigers vor der zu untersuchenden Probe kann die kinetische Energie der monoenergetischen Positronen verändert werden. Dadurch ist es möglich, dünne Schichten tiefenabhängig zu untersuchen.

3.2 Das MePS-System

In Abbildung 3.1 ist das MePS-System schematisch dargestellt. Der von ELBE bereitgestellte Elektronenstrahl wird durch ein wassergekühltes Berylliumfenster in die Konverterkammer geleitet. Dadurch wird das MePS-Vakuum vom ELBE-Vakuum getrennt.

In der Konverterkammer trifft der Elektronenstrahl auf den wassergekühlten Konverter. In diesem werden über die daraus resultierende Bremsstrahlung Elektron-Positron-Paare erzeugt. Die generierten Positronen treffen danach auf den Moderator. Dieser erzeugt aus dem kontinuierlichen Spektrum der Positronen monoenergetische Positronen. Es werden aber auch im Moderator durch die Bremsstrahlung Positronen erzeugt, welche ebenfalls moderiert werden.

Um die Positronen auf die Transportenergie von 2 keV zu beschleunigen und den Positronenstrahl auf einen geringeren Durchmesser zu fokussieren, wird eine Extraktionslinse verwendet. Diese besteht aus einer elektrostatischen Einzellinse [Brue34] [Wain54] und einem Gitter [Koeg04]. Das Gitter ist auf der ersten Elektrode der Einzellinse angebracht und steht parallel zum Moderator 3.9. Der Moderator ist elektrisch isoliert aufgebaut und liegt auf einem positiven Potenzial von 2 keV. Die erste und dritte Elektrode der Einzellinse liegen auf Massepotenzial, die mittlere Elektrode kann mit einer negativen oder positiven Spannung so eingestellt werden, dass der Fokus des Positronenstrahls am Beginn des Magnetfeldes liegt.

Das magnetische Führungsfeld hat eine Feldstärke von 75 ± 3 Gauß und verhindert die Aufweitung des Positronenstrahls bis zur Probe. Über das magnetische Führungssystem gelangen die Positronen in das Labor. Zur Kompensation des Erdmagnetfeldes und zur Positionierung des Positronenstrahls in der Mitte der Vakuumanordnung sind 34 Sattelpulenpaare angeordnet (Stand 2011).

Bevor die Positronen im Labor die für das Timing notwendigen Komponenten erreichen, wird der Strahl mit einigen Blenden auf einen Durchmesser von 6 mm begrenzt. Für das Timing werden ein Chopper und ein Buncher benötigt. Das ist notwendig,

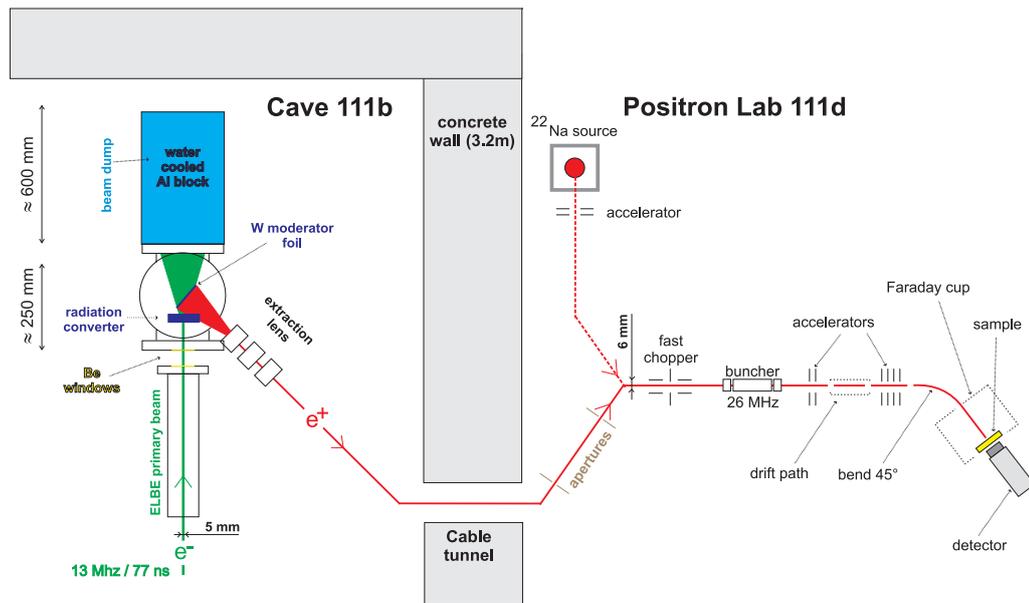


Abb. 3.1: Schematische Darstellung des MePS-Messplatzes. Die grundlegenden Elemente sind dabei der Konverter zur Erzeugung der Bremsstrahlung und einen Teil der Positronen. Im Moderator werden durch die Bremsstrahlung ebenfalls Positronen generiert, er soll aber hauptsächlich einen Teil der Positronen moderieren. Die moderierten Positronen werden durch eine Einzellinse mit aufgesetztem Gitter auf eine Energie von 2 keV beschleunigt und in ein Magnetfeld fokussiert. Das Magnetfeld ist für einen nahezu verlustfreien Transport der Positronen bis zur Probe notwendig. Im Labor werden die Positronen durch ein Chopper-Buncher System zeitlich auf die Probe fokussiert und können mit einem Beschleuniger auf die gewünschte Implantationsenergie beschleunigt werden. Ein SEV mit BaF₂-Szintillator registriert die γ -Quanten der Annihilation und stellt die Signale zur Aufnahme des Lebensdauerspektrums zur Verfügung.

da sich der Zeitfokus des Positronenstrahls durch den Transport aufweitet. Mit dem Chopper wird ein Zeitfenster realisiert, in welchem die Positronen den Chopper passieren können. Für die restliche Zeit wird der Positronenstrahl ausgeblendet. Der Buncher komprimiert den Positronenstrahl zeitlich, sodass die Positronen in einem sehr schmalen Zeitfenster auf die Probe treffen. Dabei werden die Positronen, die den Buncher vor dem Normpositron erreichen, abgebremst und die Positronen, die den Buncher später erreichen, beschleunigt. Angestrebt wird eine Zeitauflösung des Systems von etwa 200 ps Halbwertsbreite (FWHM).

Im Anschluss an das Timing-System ist ein Vorbeschleuniger und ein Beschleuniger installiert. Zwischen beiden befindet sich die Driftstrecke. Diese Driftstrecke ermöglicht es, den Zeitfokus bei gleichbleibender Amplitude am Buncher auf die Probe zu fokussieren. Mit dem Endbeschleuniger können die Positronen bis auf 25 keV beschleunigt werden.

Nach dem Beschleuniger schließt sich ein Rohrbogen an. Dieser ist notwendig, da von der Probe rückgestreute Positronen den Beschleuniger wieder erreichen können, in diesem reflektiert werden und erneut auf die Probe gelangen. Diese Positronen

würden Nebenpeaks im Spektrum verursachen und eine Auswertung erschweren oder unmöglich machen. Der Faradaykäfig in der Probenkammer verhindert, dass die Positronen das äußere Massepotenzial des Vakuumsystems sehen. Weiterhin kann dieser mit einer von der Beschleunigerspannung verschiedenen Spannung betrieben werden, um Störungen im Spektrum zu vermeiden.

Hinter der Probenkammer befindet sich ein Sekundärelektronenvervielfacher (SEV) mit Szintillator. Mit diesem werden die bei der Annihilation entstehenden γ -Quanten detektiert. Für die Lebensdauermessung wird das Signal aus dem SEV als Startsignal verwendet. Der Maschinenpuls vom ELBE-System, welcher zeitlich mit dem Elektronenstrahl korreliert ist, stellt das Stoppsignal bereit. Diese Variante hat den Vorteil, dass nur Daten verarbeitet werden, wenn im Detektor ein 511 keV γ -Quant detektiert wird. Bei Verwendung eines digitalen Lebensdauermissplatzes kann so die Systemauslastung wesentlich verringert werden.

Geplant ist eine Erweiterung des Systems durch die Integration einer konventionellen ^{22}Na -Quelle. So kann das System auch genutzt werden, wenn der Elektronenstrahl für andere Experimente bereitgestellt wird.

3.3 Der Konverter

Durch die Bewegungsenergie der Elektronen wird aufgrund der Wechselwirkung mit der Materie im Konverter Bremsstrahlung erzeugt. Diese Bremsstrahlung generiert bei ausreichender Energie durch die Wechselwirkung des Photons mit dem Coulombfeld eines Atomkerns oder eines Elektrons ein Elektron-Positron-Paar. Die Dichte des Materials ist dabei entscheidend für die Positronenausbeute.

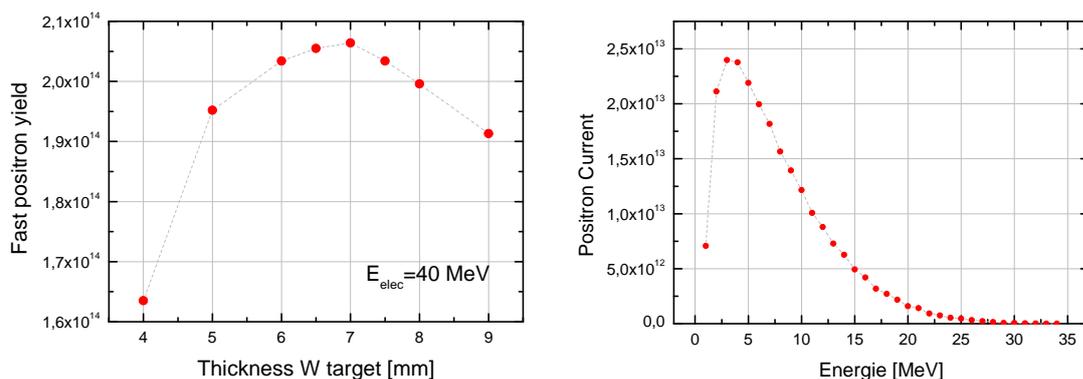


Abb. 3.2: links: Simulierte Abhängigkeit der Positronenausbeute von der Stärke des Konvertermaterials. Quelle: [Sach04] (verändert)
rechts: Simulierte Energieverteilung der Positronen nach Verlassen des Konverters. Quelle: [Krau06] (verändert)

Damit eine hohe Ausbeute an Bremsstrahlung und somit an Positronen erreicht wird, wird als Konvertermaterial Wolfram verwendet. Um eine Aussage über die optimale Stärke und die daraus resultierende Positronenausbeute zu machen, wurden am

Forschungszentrum Dresden-Rossendorf Monte-Carlo-Simulationen mit dem Code MCNP-4C2 [Brie00] durchgeführt.

Die Ergebnisse zeigen, dass die optimale Stärke des Konvertermaterials bei 7 mm liegt (Abb. 3.2). Die zugehörige Energieverteilung der Positronen ist ebenfalls dargestellt. Das Intensitätsmaximum der Positronenenergie nach Verlassen des Konverters liegt bei etwa 3 MeV.

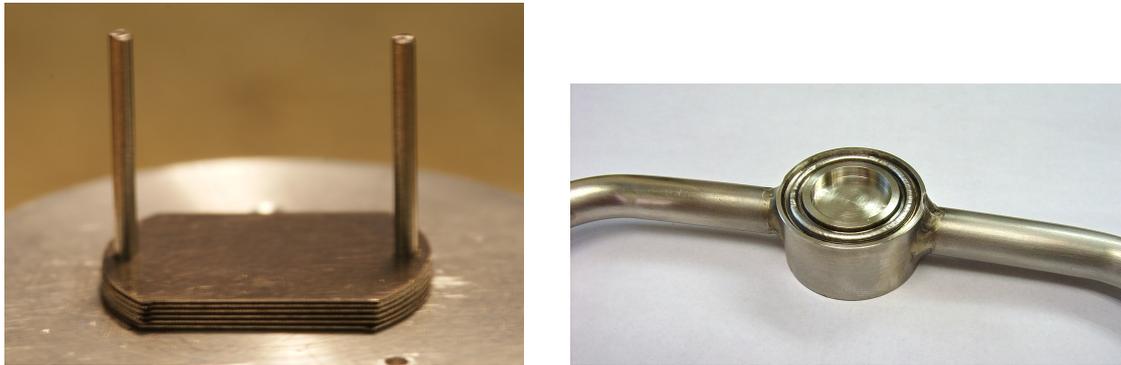


Abb. 3.3: links: Wolframplatten mit Abstandshaltern
rechts: Fertig aufgebauter Konverter mit Anschlüssen für die Wasserkühlung

Ursprünglich sollte als Konvertermaterial gesintertes Wolfram verwendet werden. Dieses ermöglicht durch die offenen Kanäle eine direkte Wasserkühlung. Untersuchungen haben aber gezeigt, dass das Material aufgrund des nur geringen Wasserdurchflusses ungeeignet ist. Daraufhin wurde der Konverter aus 50 Wolframplättchen mit einer Stärke von jeweils $100\ \mu\text{m}$ aufgebaut. Zwischen den Plättchen befinden sich Abstandshalter (Abb. 3.3), sodass ein ausreichender Wasserdurchfluss gewährleistet wird, um den Wärmeeintrag von 14,7 kW sicher abzuleiten [Sach04].

3.4 Moderator

Um aus den generierten Positronen monoenergetische Positronen zu gewinnen, gibt es zwei Möglichkeiten. Die gewünschten Energien können durch Geschwindigkeitsfilter separiert werden oder es wird ein Moderator verwendet (Abb. 3.4). Mit der ersten Möglichkeit können aufgrund der hohen Energieverteilung nur sehr wenige monoenergetische Positronen erzeugt werden. Die Verwendung eines Moderators ist hier die bessere Variante.

Bei der Moderation wird die Tatsache ausgenutzt, dass einige Metalle für Positronen eine negative Austrittsarbeit besitzen. Geeignete Materialien für die Moderation sind Platin und Wolfram [Huge02] [Reur06]. Abbildung 3.5 zeigt schematisch, welche Vorgänge im Moderator ablaufen. Ein großer Teil der Positronen verlässt den Moderator mit einer kontinuierlichen Energieverteilung. Diese Positronen wirken sich störend auf die Messung aus und müssen vor dem Auftreffen auf die Probe eliminiert werden.

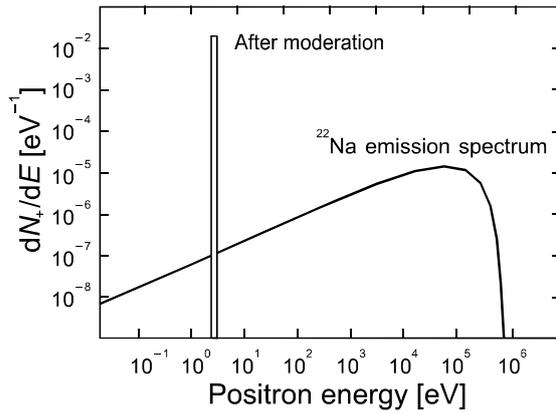


Abb. 3.4: Schematische Darstellung der Energieverteilung von Positronen, welche von einer ^{22}Na -Quelle emittiert werden. Durch die Verwendung eines Moderators im Gegensatz zu einem Geschwindigkeitsfilter steigt die Effizienz um mehrere Größenordnungen an. Quelle: [Krau99]

Ein weiterer Teil der Positronen verliert im Moderator so viel Energie, dass diese die Oberfläche nicht mehr erreichen und im Material annihilieren. Ein sehr geringer Teil, bei der Verwendung von konventionellen ^{22}Na -Quellen etwa 10^{-4} Positronen, thermalisiert im Moderator und gelangt durch Diffusion gerade an die Oberfläche. Dort verlassen diese Positronen durch die negative Austrittsarbeit des Materials für Positronen den Moderator mit einer wohldefinierten Energie von etwa 3 eV. Da die Positronen nicht nur senkrecht zur Oberfläche austreten (Abb. 3.5), können sie in longitudinaler Richtung eine Energieverschmierung von 3 eV besitzen. Bei einer Länge des Strahlsystems von 10,84 m kann es dadurch zu Laufzeitunterschieden von 0,306 ns kommen.

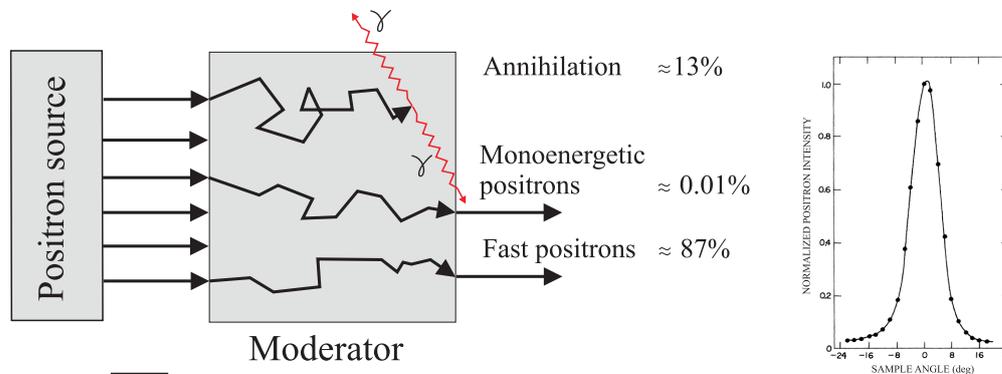


Abb. 3.5: links: Dargestellt ist das Prinzip der Positronenmoderation in einem $2\ \mu\text{m}$ starken Wolframmoderator für eine konventionelle ^{22}Na -Quelle. Die Effektivität des Moderators hängt entscheidend von der Diffusionsweglänge der Positronen im Moderatormaterial ab.

rechts: Winkelverteilung der austretenden moderierten Positronen. Quelle: [Fisc86]

Um möglichst viele moderierte Positronen zu erhalten ist es notwendig, die Diffusionsweglänge an der Oberfläche im Moderator so groß wie möglich zu halten. Die Diffusionsweglänge ist von der Defektkonzentration abhängig. Eine Verringerung der Defektkonzentration kann durch Ausheilung des Moderators erreicht werden. In [Reur06] konnte ermittelt werden, dass die Moderatoreffektivität einer $3\ \mu\text{m}$ star-

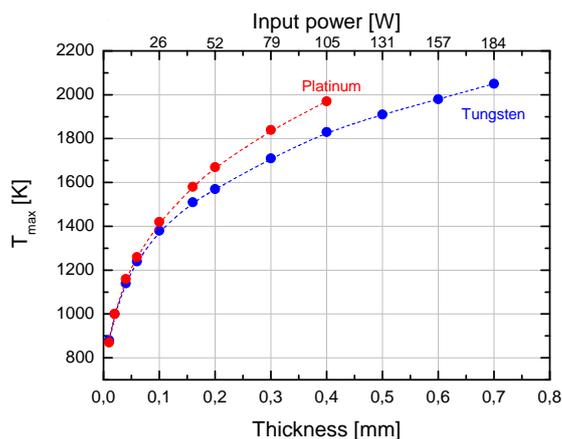


Abb. 3.6: Dargestellt ist die maximal erreichbare Temperatur des Moderators in Abhängigkeit von der Stärke der Moderatorplatte und dem sich daraus ergebenden Wärmeeintrag [Wern11].

ken Wolframfolie durch das Ausheilen bei $1000\text{ }^{\circ}\text{C}$ von $0,004 \times 10^{-4}$ auf $2,3 \times 10^{-4}$ gesteigert werden kann.

Für die Auswahl des Moderators im MePS-System muss berücksichtigt werden, dass der Elektronenstrahl Defekte im Moderator erzeugt. Weiterhin kommt es durch den Elektronenstrahl zu einem beträchtlichen Energieeintrag. In [Krau06] wurden Simulationen vorgestellt, die zeigen, dass die aus dem Konverter austretenden Positronen ein Intensitätsmaximum bei 3 MeV besitzen (Abb. 3.2). Die mittlere Eindringtiefe der Positronen in Wolfram beträgt bei dieser Energie etwa 1 mm. Simulationen zum thermischen Verhalten haben aber gezeigt, dass sich eine 1 mm starke Wolframoder Platinfolie zu stark erhitzen würde (Abb. 3.6).

Die sich in geringer Entfernung befindliche Linse mit dem Absauggitter würde sich über den Schmelzpunkt von Edelstahl erwärmen. Basierend auf den Simulationen [Wern11] wurde eine Moderatorstärke von $125\text{ }\mu\text{m}$ gewählt. Dabei erhitzt sich der Moderator bei voller Leistung des Elektronenstrahls auf $1100\text{ }^{\circ}\text{C}$.

Vor dem Hintergrund, dass die durch den Elektronenstrahl verursachten Defekte während des Betriebes ausgeheilt werden sollen, eignet sich unter diesen theoretischen Betrachtungen Platin am besten. Die Ausheiltemperatur für Defekte kann grob mit $2/3$ der Schmelztemperatur abgeschätzt werden. Bei einer Schmelztemperatur von $1768\text{ }^{\circ}\text{C}$ für Platin ergibt sich eine Ausheiltemperatur von etwa $1100\text{ }^{\circ}\text{C}$, welche mit der Temperatur bei voller Leistung des Elektronenstrahls identisch ist.

Aus diesem Grund wurde für die ersten Versuche ein Platinmoderator verwendet. Es stellte sich aber heraus, dass dieser Moderator nicht effizient ist und die Zählrate im Betrieb stark abfällt (Abb. 3.7). Eine Elektronenstoßheizung, mit der der Moderator während des Betriebes erhitzt werden konnte, führte zu der Überzeugung, dass die Moderationseigenschaften von Platin bei höheren Temperaturen stark vermindert werden und dieses Material nicht für MePS geeignet ist.

Unabhängige Versuche am HZDR und am MPI Halle beschäftigten sich zu dieser Zeit mit der Effizienzsteigerung von Wolframmoderatoren. Am MPI Halle wurde untersucht, ob sich Wolframnetze besser für die Moderation eignen als Folien. Die Untersuchungen am MPI Halle basieren auf Veröffentlichungen von Weng und Saito

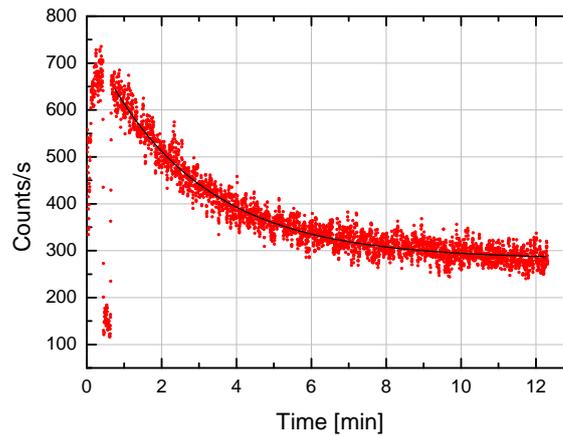


Abb. 3.7: Abfall der Zählrate bei Verwendung eines Platinmoderators. Zu Beginn der Messung wurde der Moderator schon einige Zeit vom Elektronenstrahl getroffen (Fädeln des Elektronenstrahls auf den Konverter). Daher kann keine Aussage über die maximale Zählrate gemacht werden. Der Einbruch der Zählrate nach etwa einer Minute wird durch den kurzzeitigen Ausfall des Elektronenstrahls hervorgerufen.

[Weng04, Sait02]. Es konnte nachgewiesen werden, dass Wolframnetze bessere Moderationseigenschaften besitzen als planare Wolframflächen. Vermutet wird, dass die Steigerung der Effektivität durch die größere Oberfläche erreicht wird.

Am HZDR wurden Wolframfolien untersucht, die mit einer Blitzlampe behandelt wurden [Skor04]. Die Energie des Lichtblitzes kann so eingestellt werden, dass das Wolfram über den Schmelzpunkt von 3422 °C erhitzt wird. Durch die kurze Wärme einwirkung ($1\text{-}3\text{ ms}$) wird aber nur die Oberfläche aufgeschmolzen. Diese Methode erlaubt es, auch dünne Folien und Netze ($\geq 2\mu\text{m}$) zu behandeln. Untersuchungen mit DBS zeigten, dass durch diese Behandlung eine Diffusionsweglänge der Positronen von $175 \pm 42\text{ nm}$ erreicht wird [Anwa12].

Diese Untersuchungen wurden verwendet, um für das MePS-System einen Moderator zu entwickeln, der beides kombinierte. Da eine Montage von Netzen in der Konverterkammer aus Stabilitätsgründen nicht möglich ist, wurden auf einer Wolframplatte mit einer Stärke von $125\ \mu\text{m}$ 10 Wolframnetze aufgebracht. Die Wolframplatte wurde mit einer bewährten Rezeptur [Weng04, Sait02] geätzt und die Oberfläche mit der Blitzlampe aufgeschmolzen. Die Netze wurden durch Ätzen von $25\ \mu\text{m}$ Drahtstärke auf $10\ \mu\text{m}$ abgedünnt und ebenfalls mit der Blitzlampe behandelt.

Unter Verwendung dieses Moderators konnte die Zählrate gegenüber dem Platinmoderator um den Faktor 20 gesteigert werden. Mit einem Elektronenstrahlstrom von $48\ \mu\text{A}$ wurde eine Zählrate von 9400 Impulsen pro Sekunde mit einem BAF-Detektor erreicht. Während der Strahlzeit über 72 Stunden konnte kein Abfall der Zählrate beobachtet werden, was zu der Überzeugung führt, dass der Einfluss der Schädigung des Moderators durch den Elektronenstrahl überschätzt wurde. In einem Bereich von $1\ \mu\text{A}$ bis $49\ \mu\text{A}$ Elektronenstrahlstrom ist der Anstieg der Zählrate linear (Abb. 3.8). Sollte dieses Verhalten bis $0,5\ \text{mA}$ erhalten bleiben, kann man

davon ausgehen, dass bei der Hälfte der Elektronenstrahlleistung eine Zählrate von 98000 Ereignissen pro Sekunde zu erwarten ist.

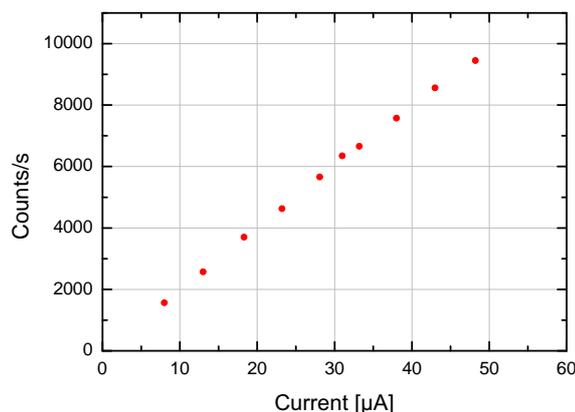


Abb. 3.8: Abhängigkeit der Positronenzählrate vom Elektronenstrahlstrom.

3.5 Einzellinse

Um die moderierten Positronen auf die Transportenergie zu beschleunigen, wird der Moderator auf ein positives Potenzial von 2 kV gelegt. Auf dem ersten Linsenstück, welches sich auf Massepotential befindet, ist ein Gitter mit einer offenen Fläche von 90 Prozent angebracht (Abb. 3.9). Das dazwischen erzeugte elektrische Feld beschleunigt die Positronen auf die Transportenergie von 2 keV.

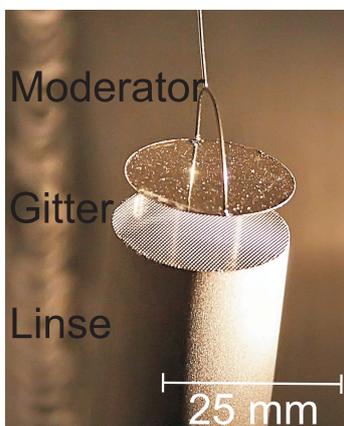


Abb. 3.9: Dargestellt ist die Anordnung des Moderators und des oberen Teiles der Einzellinse mit dem Absauggitter.

Mit der elektrostatischen Einzellinse wird der Durchmesser des Positronenstrahls reduziert. Im idealen Zustand, die Positronen bewegen sich alle parallel zur Achse der Einzellinse, ist ein großer Abstand zwischen Linse und Fokus (und somit auch dem Beginn des Magnetfeldes) zu wählen. Bei einer Verringerung des Eintrittswinkels der Positronen in das Magnetfeld verringert sich auch der Gyrationradius der Positronen und somit der Durchmesser des gesamten Positronenstrahls.

Bei der zurzeit verwendeten Anordnung beginnen die Magnetfeldspulen in einer Entfernung von 330 mm, vom Moderator aus betrachtet. Wie in Abbildung 3.10 dar-

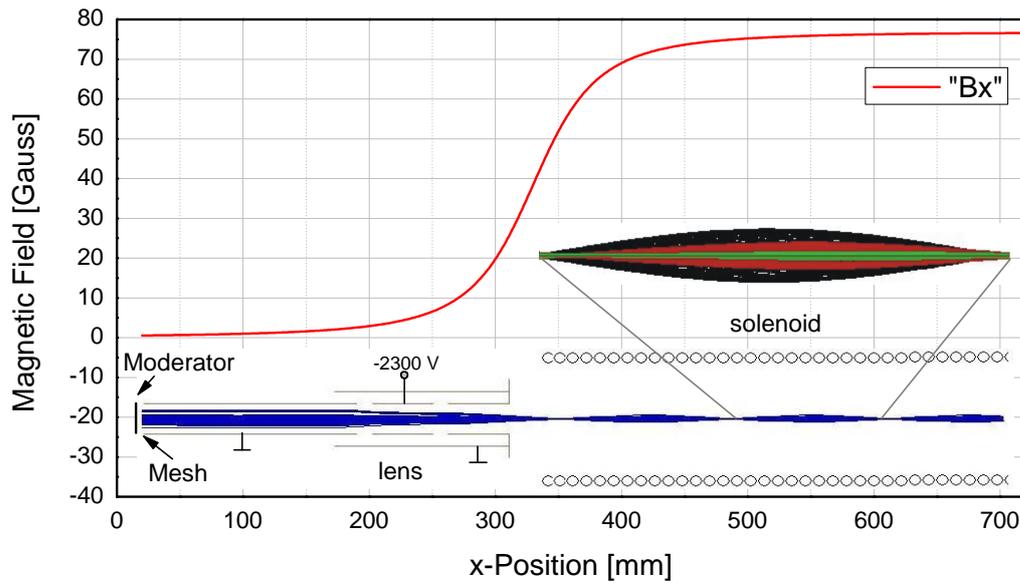


Abb. 3.10: Im unteren Teil der Grafik ist eine Simulation des Strahlengangs mit dem Programm SIMION 8.1 dargestellt. Zu erkennen ist die fokussierende Wirkung der Einzellinse und die Oszillation des Positronenstrahldurchmessers im Magnetfeld. Das Magnetfeld in x-Richtung, welches durch die Führungsspulen erzeugt wird, ist rot dargestellt.

gestellt, liegt ein Teil der Einzellinse bei diesem Abstand aber noch im Magnetfeld. Simulationen mit dem Programm Simion 8.1, welches auch durch Spulen erzeugte Magnetfelder berücksichtigt, haben aber gezeigt, dass sich ein in dieser Stärke vorhandenes Magnetfeld nur geringfügig auf die Funktion der Einzellinse auswirkt. Farblich dargestellt ist der Positronenstrahldurchmesser unter der Annahme, dass die Positronen am Moderator in einem vorgegebenen Durchmesser starten (Tab. 3.1).

Farbe	Durchmesser Moderator	Durchmesser Positronenstrahl
schwarz	16 mm	6,5 mm
rot	8 mm	3,2 mm
grün	2 mm	0,8 mm

Tab. 3.1: Abhängigkeit des Strahldurchmessers vom Durchmesser der aktiven Moderatorfläche

Der frühzeitige Eintritt in das magnetische Führungsfeld hat jedoch den Nachteil, dass dadurch ein Teil der longitudinalen Energiekomponente der Positronen aus den weiter vom Zentrum des Moderators entfernten Bereichen in eine transversale Energiekomponente umgewandelt wird. Diese transversale Energiekomponente von bis zu 9 eV führt zu einem Gyrationradius von 1,4 mm. Weiterhin verändert sich durch die Erniedrigung der longitudinalen Energiekomponente die Flugzeit der Positronen aus diesen Bereichen gegenüber den Positronen aus der Mitte des Moderators. Dieser Flugzeitunterschied beträgt bis zur Probe 0,92 ns.

Ursprünglich war ein Moderator-Fokus-Abstand von 1100 mm geplant. Es hat sich

aber gezeigt, dass bei dieser Entfernung die Zählrate um eine Größenordnung abfällt. Berücksichtigt man in den Simulationen nur den nicht senkrechten Austritt der Positronen aus dem Moderator, kann dieses Verhalten nicht erklärt werden. Es muss davon ausgegangen werden, dass die Inhomogenität des elektrischen Beschleunigungsfeldes, welches durch das Absauggitter hervorgerufen wird, einen Anteil zur transversalen Energie der Positronen beisteuert. Der Einfluss des Gitters kann mit dem zur Verfügung stehenden Programm nicht ausreichend simuliert werden.

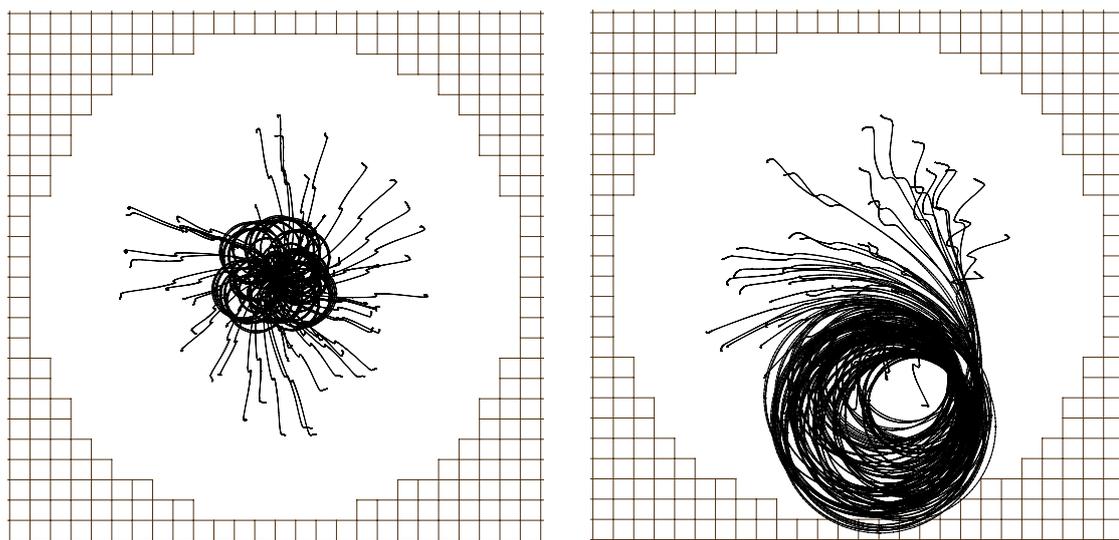


Abb. 3.11: links: Der durch die Einzellinse hervorgerufene Fokus des Positronenstrahls tritt axial in das Magnetfeld ein. Der Durchmesser des gesamten Positronenstrahls wird durch die am weitesten vom Zentrum des Moderators startenden Positronen bestimmt.
rechts: Der Fokus des Positronenstrahls liegt 10 mm außerhalb der Achse des Magnetfeldes. Es kommt zu einer Gyration des gesamten Positronenstrahls. (Ein Kästchen entspricht 1 mm.)

Ein kritischer Punkt in der Strahlführung ist der Eintritt in das Magnetfeld. Weicht der Fokus von der Achse des Magnetfeldes ab, wird durch transversale Magnetfeldkomponenten ein Teil der longitudinalen Energie der Positronen in eine transversale Energiekomponente umgewandelt, wodurch sich der Gyrationradius der Positronen weiter vergrößert. Außerdem kommt es zu einer Gyration des gesamten Positronenstrahls, was eine weitere Nutzung unmöglich macht. Der Eintritt der Positronen im Zentrum und 10 mm außerhalb vom Zentrum des Magnetfeldes werden in Abbildung 3.11 miteinander verglichen.

Da sich ein Großteil des ersten Linsenstückes im aufgestreuten Elektronenstrahl befindet, muss der Energieeintrag in diesem Bereich durch dünne Rohrwände minimiert werden. Die durch zerspannende Arbeiten erfolgte Reduzierung der Wände hat seine Grenzen bei einer Wandstärke von $100\ \mu\text{m}$. Zur weiteren Reduktion wurde das Linsenstück elektrolytisch geätzt. Damit wurde eine Wandstärke von $50\ \mu\text{m}$ erreicht. Ein weiterer Vorteil des elektrolytischen Ätzens besteht darin, dass die Oberfläche sehr rau wird, wodurch sich die Wärmeabstrahlung des Linsenstückes erhöht.

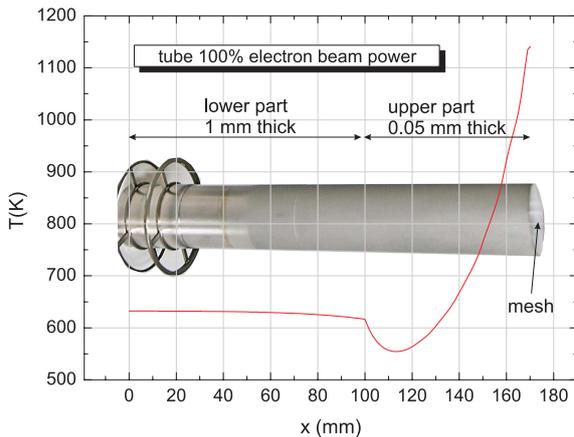


Abb. 3.12: Dargestellt ist die maximal erreichbare Temperatur im ersten Teilstück der Einzellinse aus Edelstahl bei voller Strahlleistung.

Ob die Reduzierung der Wandstärke ausreichend ist, wurde im Zusammenhang mit der thermischen Analyse für den Moderator untersucht [Wern11]. Die Ergebnisse sind in Abbildung 3.12 dargestellt und zeigen, dass die Temperatur mit voller Elektronenstrahlleistung im oberen Teil des Linsenstückes bei 1150 K liegt. Ein Aufschmelzen ist somit nicht zu erwarten.

3.6 Strahlführung

Um elektrisch geladene Teilchen über eine große Distanz zu transportieren, bietet sich eine elektrostatische oder eine magnetische Strahlführung an. Für die Auswahl der jeweiligen Methode muss berücksichtigt werden, dass die Positronen den Moderator nicht senkrecht, sondern mit einer in Abschnitt 3.4 dargestellten Winkelverteilung verlassen. Eine elektrostatische Strahlführung müsste daher aus einem Linsensystem aufgebaut werden. Weiterhin besteht keine geradlinige Verbindung zwischen der Positronengeneration im Cave und der Probenkammer im Labor. Aus strahlenschutztechnischer Sicht werden die Positronen durch einen Tunnel unter der 3,2 Meter starken Betonwand in das Labor geführt. Die dazu benötigten drei Rohrbögen machen einen elektrostatischen Transport sehr schwierig.

Aufgrund dieser Schwierigkeiten werden die Positronen durch ein Längsmagnetfeld mit einer Stärke von 75 Gauß, beginnend 330 mm nach dem Moderator, über die Distanz von 10,84 Metern in das Labor auf die Probe geführt. Dabei gehen keine Positronen verloren, da die transversale Energiekomponente der Positronen im Magnetfeld zu einer Gyration führt.

Um ein homogenes Magnetfeld zu erzeugen, wurden die Windungen im ersten Teil des Strahltransportes direkt auf die Bögen und die geraden Vakuumrohre aufgebracht. Im Labor wurde das Magnetfeld teilweise durch Helmholtzspulen fortgesetzt. Dadurch können technische Änderungen am System mit einem geringen Aufwand durchgeführt werden. Weiterhin muss das Magnetfeld nicht durch elektrische und mechanische Zuführungen unterbrochen werden (Abb. 3.13). Um ein über die gesamte Distanz einheitliches Magnetfeld zu erzeugen [Jung08], wurde das Programm

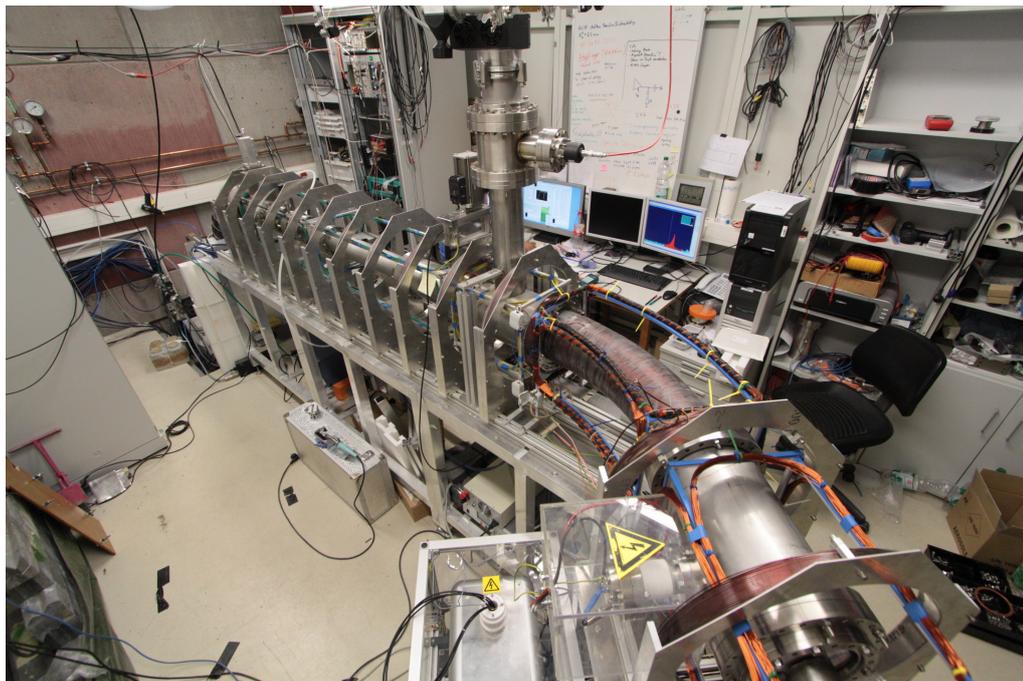


Abb. 3.13: Dargestellt ist der Aufbau des Positronenstrahlsystems im Labor. Neben Spulen, die direkt auf das Vakuumrohr aufgebracht wurden, werden auch Helmholtzspulenanordnungen verwendet.

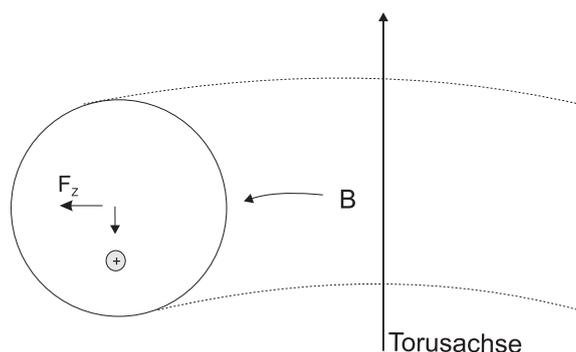


Abb. 3.14: Drift eines elektrisch geladenen Teilchens in einem Rohrbogen.

mfield.m [Bond04] verwendet. Die Abweichung des Magnetfeldes beträgt ± 3 Gauß. Über den für das Längsmagnetfeld verantwortlichen Spulen wurden 34 Sattelspulenpaare angeordnet. Diese kompensieren den Einfluss des Erdmagnetfeldes auf den Positronenstrahl. Weiterhin kann der Positronenstrahl so durch die Blenden und Rohrbögen gefädelt werden. Ein Sattelspulenpaar hat auf einer geradlinigen Strecke etwa eine Länge von einem Meter. An kritischen Stellen wurde diese Länge verkürzt, um zusätzliche Einstellmöglichkeiten zu erhalten.

Die auf den Bögen aufgebrauchten Korrekturspulen haben auch die Aufgabe, die Radialdrift und die Krümmungdrift [Schm07] der moderierten Positronen zu kompensieren. Die Krümmungdrift kommt dadurch zustande, dass die elektrisch geladenen Teilchen den Feldlinien des Magnetfeldes folgen. Dadurch unterliegen sie einer Zentrifugalkraft, welche eine Drift bewirkt (Abb. 3.14). Die Gradientendrift wird durch die höhere Windungsdichte an der Innenseite des Bogens und des daraus resultie-

renden höheren Magnetfeldes gegenüber der Außenseite des Bogens hervorgerufen.

Eine besondere Herausforderung ist der störungsfreie Transport des Positronenstrahls durch das Magnetfeld. Wichtig dabei ist, dass der Strahl besonders an den Verbindungsstellen zwischen zwei Spulen des Führungsfeldes im axialen Zentrum des Magnetfeldes verbleibt. Je weiter der Strahl aus der Mitte rückt, umso mehr machen sich die dann nicht mehr in Strahlrichtung verlaufenden Magnetfeldlinien bemerkbar (Abb. 3.15 rechts). Das äußert sich darin, dass ein Teil der longitudinalen Energie der Positronen in eine transversale Komponente umgewandelt wird.

Da der Strahl eine Ausdehnung von etwa 6 mm hat, können sich auch bei einer axialen Strahlführung unterschiedliche Transportenergien herausbilden, die sich in Laufzeitunterschieden der Positronen äußern. Weiter von der Achse entfernte Positronen verlieren bei den in Abbildung 3.15 verwendeten Parametern longitudinal 0,085 eV. Durch die vielen Übergänge im Strahlsystem führt dieser Effekt zu einer weit höheren Energieverschmierung.

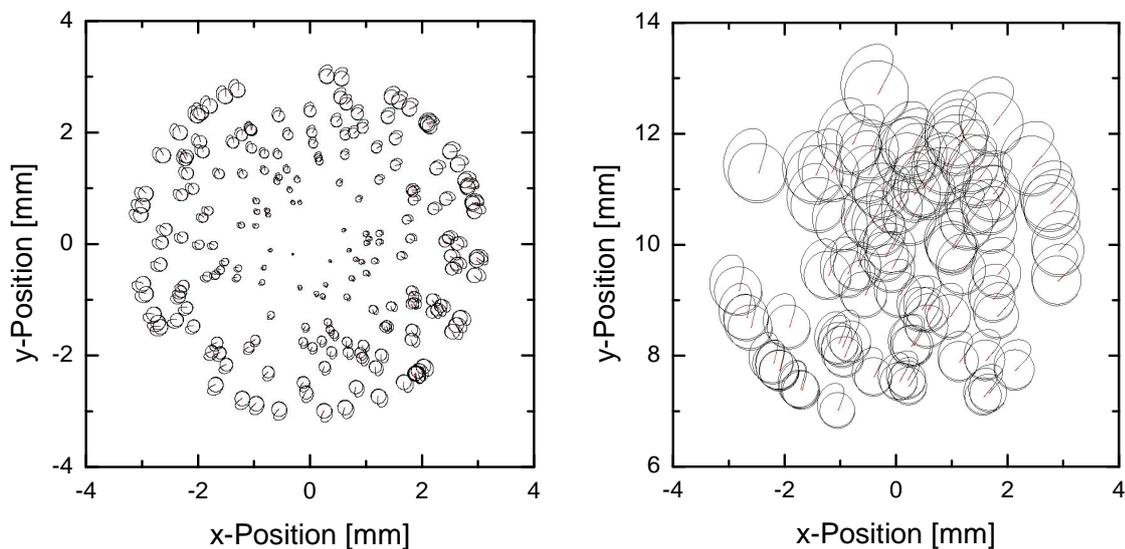


Abb. 3.15: links: Auswirkung eines Magnetfeldüberganges auf einen Positronenstrahl mit einem Durchmesser von 6 mm. Der Spulendurchmesser beträgt 104 mm, der Abstand der beiden Spulen zueinander 10 mm. Daraus ergibt sich eine maximale Magnetfeldabweichung (longitudinal) von 9 % bei 76 Gauß. Der Gyrationdurchmesser der am weitesten vom Zentrum entfernten Positronen beträgt nach dem Passieren des Übergangs 0,26 mm, was einer transversalen Energie von 0,085 eV entspricht.

rechts: Einfluss desselben Magnetfeldübergangs für einen Strahl, dessen Zentrum 10 mm von der Magnetfeldachse abweicht. Der größte Gyrationdurchmesser beträgt 1,26 mm. Das entspricht einer transversalen Energie von 1,96 eV.

Eine Möglichkeit, die Störungen so gering wie möglich zu halten, ist eine Einstellung des Positronenstrahls an den Magnetfeldübergängen auf die Mitte des Strahltransportsystems. Dazu müssten an diesen Stellen Blenden angebracht werden. Mit

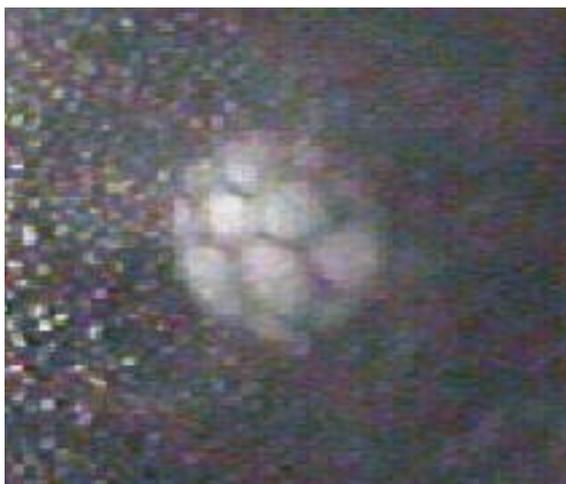


Abb. 3.16: Dargestellt ist der Elektronenspot auf dem mit Fluoreszenzfarbe bestrichenen Sichtflansch des Kameragehäuses. Die Abbildung des Beschleunigungsgitters deutet darauf hin, dass der Strahl durch das Magnetfeld nur geringfügig beeinflusst wird.

einem seitlich positionierten Detektor kann dann die Annihilationsstrahlung verwendet werden, um den Positronenstrahl zu justieren. Eine Detektion der Annihilationsstrahlung ist aber auf den ersten fünf Metern bis in das Labor nicht möglich. Durch die hohe Gammadosisleistung, welche im Cave und im Tunnel bei eingeschaltetem Elektronenstrahl vorhanden ist, können Untergrund und Annihilationssignal nicht getrennt werden, sodass diese Möglichkeit erst nach den ersten fünf Metern genutzt werden kann. Im ersten Teil des Strahlsystems wurden die Werte für die erforderlichen Ströme in den Korrekturspulen mit einem Elektronenstrahl ermittelt.

Startet man Positronen und Elektronen auf beiden Seiten eines Magnetfeldes gegeneinander, ist durch die unterschiedliche Ladung der Weg beider Teilchen der gleiche, nur mit unterschiedlicher Richtung. Die Ströme der Korrekturspulen können somit mit einem Elektronenstrahl justiert werden, welcher in der Probenkammer startet und in Richtung Cave führt. Die in der Probenkammer erzeugten Elektronen werden mithilfe einer Blende und eines Gitters auf die Transportenergie von 2 keV beschleunigt. Um die Elektronen im Rohrsystem an den jeweils kritischen Stellen zu detektieren, wird eine Kamera in ein vakuumdichtes, fahrbares Gehäuse eingesetzt. Auf der Seite zur Elektronenquelle wird ein Sichtflansch mit Fluoreszenzfarbe bestrichen. Die Kamera kann dann mittels Drähten durch das gesamte Rohrsystem gezogen werden, wobei bei jeder neuen Einstellung das Vakuum im Strahlsystem gebrochen werden muss. An den kritischen Punkten werden die jeweils letzten Sattelspulen so eingestellt, dass der durch die Elektronen erzeugte Spot in der Mitte des Fensters liegt.

Eine Aufnahme ist in Abbildung 3.16 dargestellt. Der Elektronenstrahl besitzt einen Durchmesser von 2 mm. Der Abstand der Quelle zur Kamera beträgt 2,7 m. Deutlich zu erkennen ist, dass die Struktur des Beschleunigungsgitters sichtbar ist. Aus den geringfügigen Verzerrungen kann geschlossen werden, dass der Strahl mit diesem Durchmesser bei axialer Strahlführung durch das Magnetfeld kaum beeinflusst wird.

Nach der Ermittlung der Ströme für die Korrekturspulen wurde eine konventionelle ^{22}Na -Quelle installiert, wie sie auch im Positronenstrahlsystem POSSY verwendet

wird. Nach kleinen Korrekturen im vorderen Bereich des Magnetfeldes (Quellenseite) konnte der Positronenstrahl in das Labor geführt werden. In dem sich anschließenden Experiment zum Strahltransport der durch Paarbildung generierten Positronen zeigte sich jedoch, dass die Schwierigkeit nicht im Strahltransport selbst, sondern in der Erhaltung einer vernünftigen Zeitstruktur liegt. Nur durch eine optimale Einstellung der Sattelspulen kann eine verwertbare Zeitstruktur des Positronenstrahls erreicht werden.

3.7 Simulationen und Messungen zum Zeitverhalten des Positronenstrahls

Ein sehr wichtiger Punkt für spätere PALS-Messungen mit dem Positronenstrahlsystem ist das Zeitverhalten des Positronenstrahls. Angestrebt wird, dass alle Positronen eines Bunches zur gleichen Zeit die Probe treffen. Dass die Zeitstruktur des Elektronenbunches nicht auf den Positronenstrahl übertragen werden kann und der Strahl zeitlich aufgeweitert wird, hat mehrere Ursachen.

Die Länge des Elektronenbunches (5 ps) spielt dabei keine entscheidende Rolle. Ein erster Einfluss kommt vom Moderator. Dort können sich die Positronen aufgrund der Bulklebensdauer von Wolfram bis zu 100 ps aufhalten, bevor die moderierten Positronen den Moderator verlassen.

Die Startenergie der Positronen vom Moderator beeinflusst ebenfalls das Zeitverhalten, da sich durch die unterschiedlichen Geschwindigkeiten der Positronen der Zeitfokus auf der Probe vergrößert. Die Austrittsarbeit von Wolfram beträgt etwa 3 eV. Durch den unterschiedlichen Austrittswinkel der Positronen aus dem Moderator kann der longitudinale Differenzbeitrag zwischen nahezu null und drei Elektronenvolt liegen. Bei MePS kann es dadurch bis zur Probe zu Laufzeitunterschieden von 0,3 ns kommen.

Durch die Rohrbögen kommt es ebenfalls zu Laufzeitunterschieden der Positronen, da diese durch die Ausdehnung des Strahls (6 mm Durchmesser) unterschiedliche Strecken zurücklegen. Die Wegdifferenz beträgt bei den geometrischen Gegebenheiten 20 mm, was bei einer Transportenergie von 2 keV einer Zeitdifferenz von 0,75 ns entspricht.

Durch die in Abschnitt 3.5 beschriebene Einzellinse und den nicht senkrechten Eintritt in das Magnetfeld kann es bei der gegebenen Geometrie des Aufbaus zu Flugzeitunterschieden der Positronen von 0,92 ns kommen.

Um diese Laufzeitunterschiede zu kompensieren, wird ein Chopper-Buncher System verwendet. Der Chopper blendet Positronen aus, die nicht im vorgegebenen Zeitfenster ankommen. Ursprünglich sollte der Chopper nur den Untergrund an Positronen unterdrücken, es zeigte sich aber, dass der Zeitfokus auf der Probe ohne zeitverbessernde Elemente größer ist als erwartet.

Der Buncher fokussiert die den Chopper passierenden Positronen zeitlich auf die Probe. Ähnliche Systeme werden schon erfolgreich im Positronenstrahlssystem PLEPS in München [Baue00] und Tsukuba (Japan) verwendet. Aufgrund der verschiedenen Strahlparameter muss dieses System für MePS neu modifiziert werden.

In den folgenden Abschnitten wird auf das Zeitverhalten und die dafür erforderlichen Komponenten des Positronenstrahls eingegangen. Neben den Simulationen werden auch die durchgeführten Messungen vorgestellt.

Die vorgestellten Simulationen wurden mit dem Programm Simion 8.0 [Manu08] durchgeführt. Dieses Programm erlaubt es, die Trajektorien der Positronen in magnetischen und elektrischen Feldern zu simulieren. Die Simulationen berücksichtigen nicht den Einfluss der Übergänge des Magnetfeldes auf den Positronenstrahl. Die Möglichkeit, einzelne Spulen in die Simulation aufzunehmen, ist erst ab der Version 8.1 gegeben. Eine Neuberechnung konnte im zeitlichen Rahmen dieser Arbeit nicht durchgeführt werden.

Durch die Programmiersprache Lua ist es möglich, zeitabhängige Simulationen durchzuführen. Die Vorteile gegenüber den vorangegangenen Versionen liegen darin, dass komplexe Geometrien aus CAD-Programmen importiert werden können. Durch die 64 Bit Kompatibilität können auch große Räume simuliert werden. Einschränkend ist, dass eine Simulation mit 200000 Teilchen auf dem verwendeten 8-Kern-Rechner etwa 24 Stunden benötigt.

3.8 Untersuchungen ohne zeitverbessernde Elemente

Nachdem der Positronenstrahl erfolgreich in das Labor geführt wurde, wurden Messungen vorgenommen, die die zeitliche Struktur des Strahls aufklären. Dazu wurde ein in Abschnitt 2.7 vorgestellter Lebensdauermissplatz verwendet. Als Startsignal wurde ein bei der Zerstrahlung entstehendes γ -Quant genutzt. Für das Stoppsignal wurde der von ELBE zur Verfügung gestellte Maschinenpuls verwendet. Diese Variante besitzt den Vorteil, dass nur dann Ereignisse aufgenommen werden, wenn eine Annihilation detektiert wird. Die entstehenden Spektren müssen für die Auswertung gespiegelt werden.

Eines der ersten aufgenommenen Spektren ist in Abbildung 3.17 dargestellt. Neben dem Hauptpeak sind dabei Störungen zu erkennen, die eine Lebensdauermessung unmöglich machen. Veränderungen des Längsmagnetfeldes sowie der Korrekturfelder konnten diese Störungen nicht beseitigen, zeigten aber, dass die Störpeaks ihre Position und Größe veränderten.

Die Untersuchungen ließen darauf schließen, dass die Positronen nicht nur einen, sondern mehrere diskrete Wege nehmen. Der Grund für dieses Verhalten konnte jedoch nicht geklärt werden.

Bei den folgenden Versuchen wurde auch eine in [Jung08] vorgestellte Doppelblende

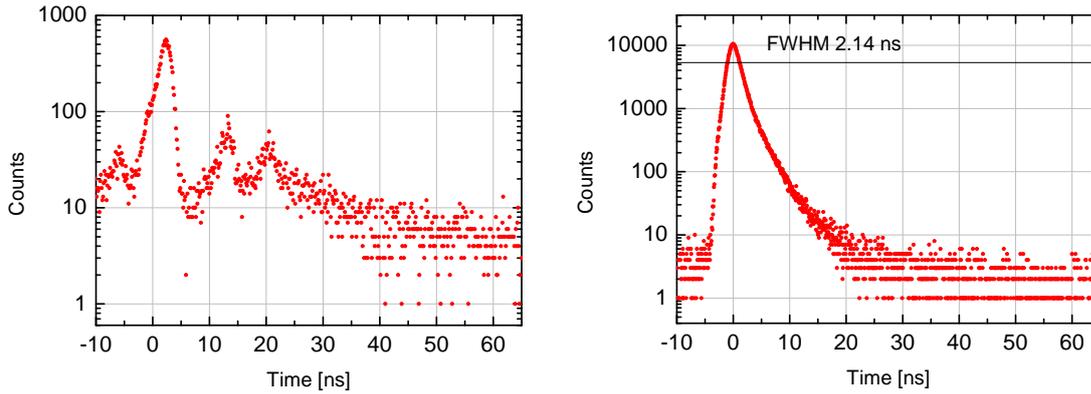


Abb. 3.17: links: Dargestellt ist eines der ersten Lebensdauerspektren, die mit dem Positronenstrahlssystem MePS aufgenommen wurden.
rechts: Aufgenommenes Spektrum bei Verwendung einer Doppelblende.

in das System integriert. Diese dient dazu, den Strahl sicher auf einen vorgegebenen Durchmesser zu begrenzen. Der Abstand der Blenden zueinander beträgt die Hälfte einer Gyrationlänge. Dadurch wird erreicht, dass Positronen mit einem großen Gyrationradius, welche die erste Blende noch passieren, an der zweiten Blende annihilieren. Es zeigte sich, dass dadurch auch die Störungen im Spektrum beseitigt wurden (Abb. 3.17 rechts). Weiterhin wurde das Peak-zu-Untergrund-Verhältnis entscheidend verbessert.

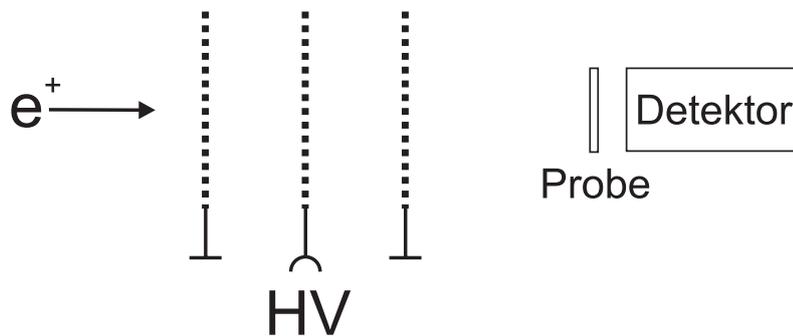


Abb. 3.18: Schematische Darstellung des Energie Analyzers. Durch eine an der mittleren Elektrode anliegenden positiven Spannung werden die Positronen zwischen den ersten beiden Gittern abgebremst und zwischen dem zweiten und dritten Gitter wieder auf die Transportenergie beschleunigt. Ist das Potenzial größer als die kinetische Energie der Positronen, werden die Positronen reflektiert und können die Probe nicht erreichen.

Die bei den ersten Messungen verwendete einzelne Blende führte nicht zu diesem Ergebnis. Daraus kann geschlossen werden, dass es sich um einen Hauptstrahl und mehrere gyrierende Nebenstrahlen handelt. Es erklärt auch, warum eine Änderung des Führungsmagnetfeldes die Position und die Intensität der Nebenpeaks im Spektrum verändert. Ändert man die Stärke des Längsmagnetfeldes, ändert sich auch die Gyrationlänge des Strahls und eine zweidimensionale Ebene senkrecht zum Strahl wird an verschiedenen Stellen durchflossen. Dadurch ist es möglich, dass die gyrie-

renden Strahlen die einzelne Blende passieren oder daran annihilieren.

Da sich die auf die Positronen übertragene Energie von 2 keV bei einem gyrierenden Strahl in eine longitudinale und transversale Energiekomponente aufteilt, wurden weitere Versuche mit einem Energieanalysator durchgeführt (Abb. 3.18). Mit diesen Gegenfeldmessungen sollten auch Informationen gewonnen werden, warum der Strahl eine von der Theorie stark abweichende zeitliche Ausdehnung von etwa 25 ns besitzt (Abb. 3.17 rechts).

Der Energieanalysator besteht aus drei Netzen, welche sich im Strahlgang der Positronen befinden (Abb. 3.18). Die beiden äußeren Netze liegen auf Massepotenzial, an das innere Netz wird ein positives Potenzial angelegt. Besitzen die Positronen eine größere kinetische Energie als das Potenzial an der Mittelelektrode, werden die Positronen zwischen den ersten beiden Netzen abgebremst, können aber das mittlere Netz passieren. Zwischen dem zweiten und dem dritten Netz werden sie wieder auf die Transportenergie beschleunigt. Ist die kinetische Energie der Positronen kleiner, werden die Positronen zwischen der ersten und der zweiten Elektrode reflektiert und können den Energieanalysator nicht passieren.

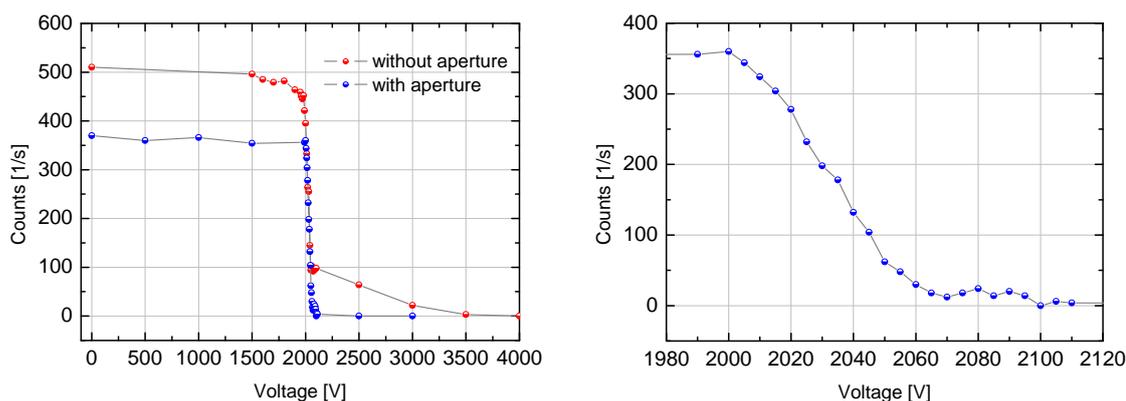


Abb. 3.19: links: Abhängigkeit der Zählrate von der angelegten Gegenspannung für den Strahl ohne und mit eingebauter Doppelblende. Durch die Doppelblende werden Positronen mit geringen oder zu hohen Energien ausgeblendet.
rechts: Darstellung eines Bereiches bei der Messung mit Doppelblende

Die Probe und der Detektor zur Ermittlung der Zählrate befinden sich einen Meter hinter dem Energiefilter. Dadurch wird sichergestellt, dass die in den Netzen annihilierenden Positronen keinen Einfluss auf die Messung haben.

Die Ergebnisse sind in Abbildung 3.19 dargestellt. Bei der Messung ohne Blende fällt die Zählrate schon bei einer Gegenspannung von unter 2 kV ab. Etwa 10 Prozent der Positronen haben eine geringere Energie als die geforderte Transportenergie. Die meisten Positronen werden bei einer Gegenspannung von 2 kV bis 2,07 kV detektiert. Es ist aber auch ersichtlich, dass etwa 20 Prozent der Positronen eine Energie zwischen 2,07 keV und 3,5 keV besitzen. Bei diesen Positronen kann es sich nicht um moderierte Positronen handeln. Um auszuschließen, dass es sich dabei um einen Fehler in der Messanordnung handelt, wurde am Moderator eine negative Spannung

angelegt. Moderierte Positronen werden so nicht zur Linse hin beschleunigt. Es zeigte sich jedoch, dass die höherenergetischen Positronen weiterhin detektiert werden konnten. Die Herkunft dieser Positronen ist noch nicht geklärt.

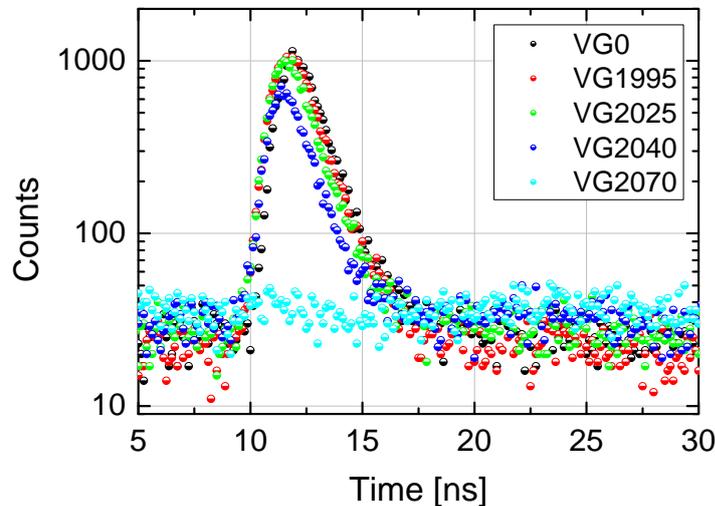


Abb. 3.20: Zeitspektren des Positronenstrahls in Abhängigkeit von der Gegenspannung. Ab einer Gegenspannung von 2700 V ist keine Zeitstruktur ersichtlich. Die Spektren wurden nach dem Einbau der Doppelblende aufgenommen.

Bei den Gegenfeldmessungen mit der Doppelblende fällt die Zählrate erst ab einer Gegenspannung von 2 kV ab. Auch werden keine Positronen bei einer Gegenspannung über 2,07 kV detektiert. Die langsamen und zu schnellen Positronen werden durch die Doppelblende erfolgreich ausgeblendet. Physikalisch nicht zu erklären ist, warum Positronen mit einer Startenergie von 2 keV den Energieanalysator auch bei Gegenspannungen zwischen 2 kV und 2,07 kV passieren können. Um die Vermutung zu bestätigen, dass der Energieanalysator eine Ungenauigkeit besitzt, wurden Messungen mit demselben Energieanalysator am Positronenstrahlsystem SPONSOR am HZDR durchgeführt. Der Verlauf der Zählrate in Abhängigkeit von der Gegenspannung hatte einen ähnlichen Verlauf, obwohl davon ausgegangen werden kann, dass die moderierten Positronen nur eine Energieverteilung von 3 eV aufweisen. Für weitere Untersuchungen ist es deshalb erforderlich, einen besseren Energieanalysator zu entwickeln.

Um die Energieverteilung dennoch abzuschätzen, wurden bei verschiedenen Gegenspannungen Lebensdauermessungen durchgeführt. Die Messungen beinhalten gleich viele Ereignisse im ganzen Spektrum. Dadurch erhöht sich zu höheren Gegenspannungen der Untergrund im Spektrum bei einer gleichzeitigen Verringerung des Maximums. Die Entfernung zwischen Moderator und Probe beträgt 8 Meter. Die Flugzeitdifferenz zwischen Positronen mit einer Energie von 2 keV und 2,07 keV würde 5,1 ns betragen, was bei einer Überlagerung der Spektren sichtbar wäre.

Die in Abbildung 3.20 dargestellten Ergebnisse zeigen aber, dass die Spektren nicht

um diese Zeit verschoben sind. Normiert man die Spektren auf das Maximum, ist nur eine Differenz von 450 ps zu erkennen. Es muss also davon ausgegangen werden, dass der Energieanalysator eine große Ungenauigkeit besitzt.

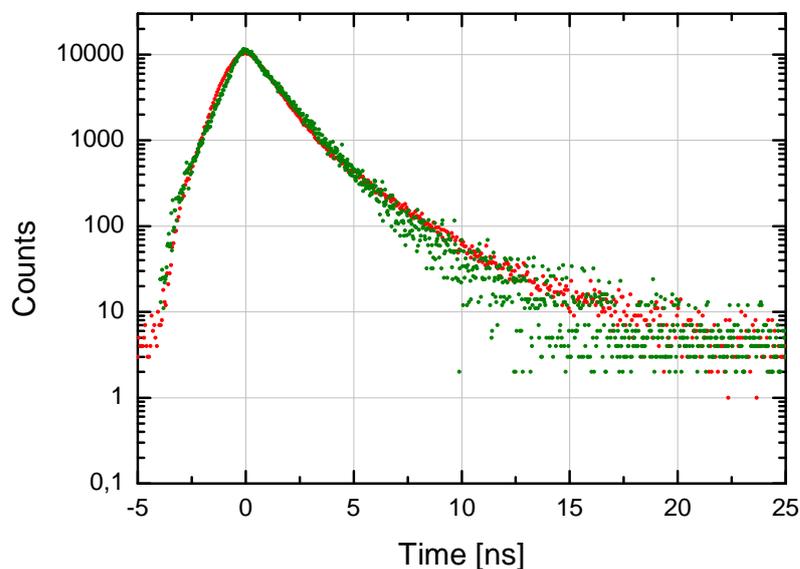


Abb. 3.21: Dargestellt ist rot das real gemessene Lebensdauerspektrum und grün das mit 4 Exponentialfunktionen angenäherte Spektrum für die Simulationen mit Simion.

Der Grund für die von der Theorie abweichende Zeitstruktur konnte bis jetzt nicht geklärt werden. Für die im weiteren Verlauf durchgeführten Simulationen wurde davon ausgegangen, dass die Positronen mit der ohne zeitverbessernde Maßnahmen gemessenen Zeitverteilung starten. Mithilfe von einer ansteigenden Exponentialfunktion (0,719 ns, 39,9 %) und drei abfallenden Exponentialfunktionen (3,468 ns, 4,2 %; 2,582 ns, 5,5 %; 1,322 ns, 50,4 %) werden die Anfangsbedingungen für die Simulation im Programm SIMION 8.0 generiert. Weiterhin wurden bei der Berechnung der Trajektorien die Energieverschmierung von 3 eV und die Laufzeitunterschiede in den Rohrbögen berücksichtigt. Ein Vergleich des gemessenen Spektrums und des so erhaltenen simulierten Spektrums ist in Abbildung 3.21 dargestellt.

3.9 Chopper

Der in Abschnitt 3.10 beschriebene Buncher kann nur wirkungsvoll arbeiten, wenn die zeitliche Ausdehnung des eintreffenden Positronenstrahls nicht zu groß ist.

Messungen am aufgebauten System (Abb. 3.21) haben gezeigt, dass der Positronenstrahl eine Gesamtbreite von bis zu 25 ns besitzt. Für eine zeitlich fokussierende Wirkung des Bunchers ist dieser Positronenbunch zu breit.

Damit die Positronen den Buncher nur in einem vorgegebenen Zeitintervall erreichen, wird ein Chopper verwendet. Ziel ist es, den Positronenstrahl in einem vorgegebenen

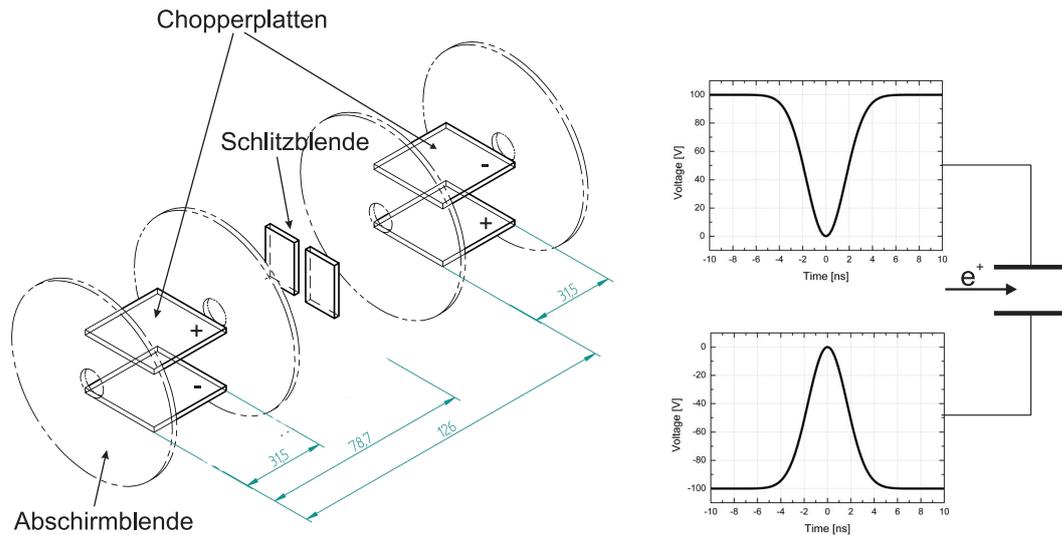


Abb. 3.22: links: Schematische Darstellung des Choppers: An einem Plattenpaar werden zeitgleich 2 Pulse mit entgegengesetzter Polarität angelegt. Diesen Pulsen wird eine Gleichspannung überlagert, sodass sich nur im Bereich der Spitzen kein ausreichend großes elektrisches Feld zwischen den Platten aufbaut. In dieser Zeit können die Positronen den Chopper ungehindert passieren. Das zweite Plattenpaar soll die transversale Energiekomponente, die auf die Positronen im ersten Plattenpaar übertragen wurde, kompensieren. rechts: Signal, welches an das erste Chopperplattenpaar angelegt wird.

Zeitintervall unverändert passieren zu lassen. Für die restliche Zeit soll der Strahl ausgeblendet werden.

Der Aufbau ist schematisch in Abbildung 3.22 dargestellt. Das Prinzip dieses Aufbaus hat sich am Positronenstrahlsystem PLEPS bewährt und wurde an das MePS-Strahlsystem angepasst. Liegt an dem ersten Plattenpaar mit einer Länge von $1/4$ der Gyrationlänge eine Spannung an, wird durch das auf den Positronenstrahl wirkende elektrische Feld eine transversale Energiekomponente in y -Richtung übertragen. Diese führt dazu, dass die Positronen durch das Längsmagnetfeld eine Gyrationbewegung ausführen (Abb. 3.23). Die einstellbare Schlitzblende ist in einer Entfernung von einer halben Gyrationlänge (von der Mitte des ersten Plattenpaares) angeordnet. An dieser Stelle annihilieren die nicht gewünschten Positronen. Liegt an den Platten eine Spannung an, die nur einen kleinen Gyrationradius bewirkt, können die Positronen die Schlitzblende ungehindert passieren.

Ein dafür ideales elektrisches Signal ist ein Rechteckimpuls, dem eine Gleichspannung überlagert ist. Bei der verwendeten Transportenergie von 2 keV wird für das vollständige Ausblenden des Positronenstrahls eine Spannung von mindestens 150 Volt benötigt. Parameter, die diesen Wert beeinflussen, sind der Durchmesser des Positronenstrahls und die Öffnung der Schlitzblende. Technisch ist es aber nicht möglich, dieses Signal zu erzeugen. Für die Simulationen mit dem Programm Simion 8.0 wurde deshalb ein einer Gleichspannung überlagerter Gaußpuls verwendet (Abb. 3.22).

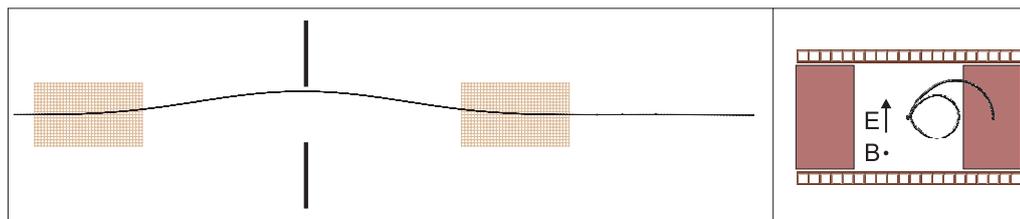


Abb. 3.23: Dargestellt ist die Bewegung eines geladenen Teilchens im Chopper.

Rechts: Ansicht auf die x-y-Ebene. Das Führungsmagnetfeld verläuft senkrecht zur Zeichenebene. Wird durch eine Spannung an den Platten ein elektrisches Feld erzeugt, gyriert das Teilchen im Magnetfeld. Erreichen die Positronen in der Nähe des Sollzeitpunktes den Chopper, wird nur eine geringe transversale Energie auf die Teilchen übertragen. Der Gyrationradius ist klein genug, um die Schlitzebene zu passieren. Auf Teilchen, die nicht in der Nähe dieses Zeitpunktes den Chopper erreichen, wird eine höhere transversale Energie übertragen, sodass sie durch den größeren Gyrationradius an der Blende annihilieren.

Links: Ansicht auf die x-z-Ebene. Dargestellt ist ein Teilchen, welches durch einen nur geringen Energieübertrag die Schlitzebene passieren kann.

Weiterhin muss beachtet werden, dass die Positronen 1,2 ns benötigen, um ein Chopperplattenpaar zu durchqueren. Das bedeutet, dass auf ein Teilchen an verschiedenen Stellen zwischen den Chopperplatten ein anderes elektrisches Feld wirkt. Berücksichtigt man diesen Punkt sowie die Verwendung eines Gaußpulses, muss das erforderliche Signal bei einem Strahldurchmesser von 6 mm und einer Öffnung der Schlitzebene von 10 mm über 200 V betragen, um den Positronenstrahl außerhalb des gewählten Zeitfensters sicher auszublenden.

Da an den Chopperplatten die meiste Zeit die überlagerte Gleichspannung anliegt, spüren die Positronen dieses Feld auch in einiger Entfernung. Dadurch wird eine Energiekomponente in longitudinaler Richtung auf die Positronen übertragen. Es ist deshalb notwendig, vor und nach den Chopperplattenpaaren eine Blende zu installieren. Diese muss so nah wie möglich an die Platten reichen. Der Abstand muss aber auch so gewählt werden, dass keine Überschläge stattfinden.

Werden die Platten mit einer symmetrischen Spannung angesteuert, befindet sich in der Mitte zwischen den Platten eine virtuelle Masse. Simulationen haben gezeigt, dass dadurch eine Energieänderung der Positronen in longitudinaler Richtung weiter verringert wird. Günstig wirkt sich dabei aus, dass pro Platte nur ± 100 V benötigt werden, um die Positronen auszublenden.

Auch auf einen Teil der Positronen, die sich in dem gewünschten Zeitfenster befinden, wird eine transversale Energiekomponente übertragen. Um einen Teil dieser transversalen Energie abzubauen, wird ein zweites Plattenpaar verwendet. Das zweite Plattenpaar beginnt eine Gyrationlänge nach dem Beginn des ersten Plattenpaares. Das elektrische Feld ist um die Zeit einer Gyrationdauer phasenverschoben und entgegengesetzt zum elektrischen Feld im ersten Plattenpaar gerichtet.

Simulationen, die diese Faktoren berücksichtigen, werden im Abschnitt 3.11 vorgestellt.

3.10 Der 26 MHz Buncher

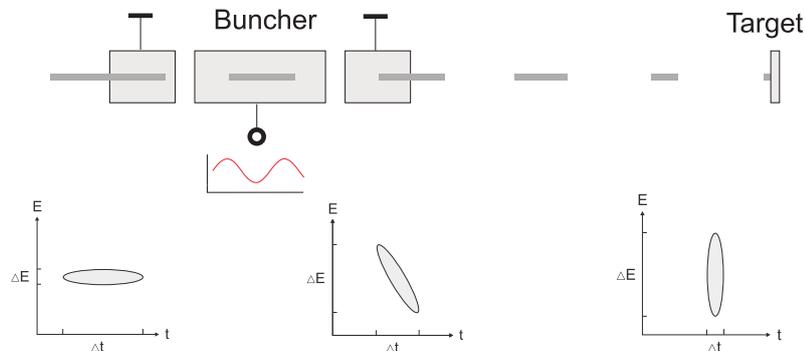


Abb. 3.24: Mit dem Buncher wird ein ausgedehnter Positronenpuls zeitlich auf die Probe fokussiert. Dazu werden die beiden äußeren Rohrelektroden auf Massepotenzial gelegt und die innere Elektrode an eine phasenstabile Sinusspannung angeschlossen. Die Teilchen durchlaufen beim Passieren des Bunchers zwei Verzögerungs- oder Beschleunigungsstrecken, je nachdem, ob die Positronen vor oder nach dem Normpositron den Buncher erreichen. Quelle: [Jung08]

Für die zeitliche Fokussierung des Positronenstrahls auf die Probe wird ein Doppelschlitzbuncher verwendet. Positronen, die vor dem Normpositron eintreffen, werden dabei abgebremst, Positronen die zu spät kommen, beschleunigt. Mit dieser Methode gehen keine Positronen verloren. Da nach dem Liouville-Theorem das sechsdimensionale Phasenraumvolumen, welches durch die Orts- und Impulskoordinaten aufgespannt wird und bei ausschließlich konservativ wirkenden Kräften auf die Teilchen erhalten bleibt, verursacht man durch den Zeitfokus auf der Probe eine erhöhte Verteilung in der Energie der Positronen. Bei den verwendeten Implantationsenergien ab 1 keV kann diese Abweichung bei den PALS-Messungen in Bezug auf die Eindringtiefe vernachlässigt werden.

Die Wirkungsweise ist in Abbildung 3.24 dargestellt. An die mittlere Rohrelektrode wird eine mit dem ELBE-Signal synchronisierte phasenstabile Sinusspannung angelegt, die äußeren beiden Rohrelektroden liegen auf Massepotenzial. Die Phase der Sinusspannung wird so eingestellt, dass das Normpositron die beiden Schlitze während des Nulldurchgangs passiert. Aus der Transportenergie der Positronen von 2 keV und der verwendeten Sinusspannung mit einer Frequenz von 26 MHz ergibt sich ein Abstand der Spalte von 508,6 mm. Die Phase muss weiterhin so gewählt werden, dass die zu zeitig eintreffenden Positronen abgebremst werden und die zu spät kommenden Positronen beschleunigt werden.

Für eine bestmögliche zeitliche Komprimierung des Teilchenstrahls mit einem Buncherspalt sollte das elektrische Signal folgender Gleichung entsprechen [Lync78].

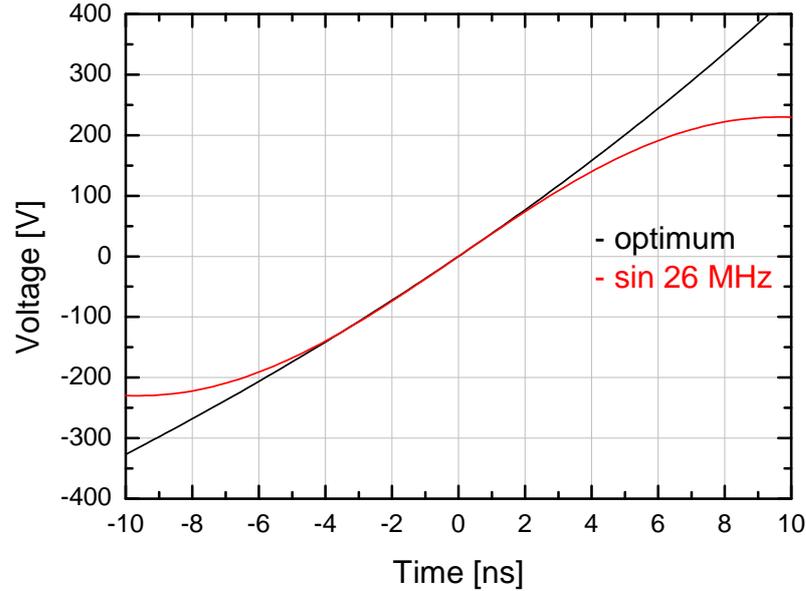


Abb. 3.25: Dargestellt ist der optimale Spannungsverlauf am Buncher und die verwendete Sinusspannung mit einer Frequenz von 26 MHz und einer Amplitude von 230 V. Die Energie der Positronen beträgt 2 keV, der Abstand vom Eintritt in den Buncher bis zur Probe beträgt 2,835 m.

$$U(t) = E_P \left(\left(1 - \frac{t}{t_f}\right)^{-2} - 1 \right) \quad (3.1)$$

Bei den notwendigen Spannungen ist die Erzeugung der Pulsform nicht möglich. Die Form des Pulses kann aber mit einer Sinusspannung angenähert werden. Ein Vergleich zwischen idealer Pulsform und der verwendeten Sinusspannung ist in Abbildung 3.25 dargestellt. Mit einem idealen Buncher kann bei der vorgegebenen Geometrie des Positronenstrahlsystems ein Positronenbunch von etwa 6 ns verarbeitet werden. Bei einer realitätsnahen Betrachtung müssen jedoch folgende Punkte mitberücksichtigt werden.

Für einen potenzialfreien Weitertransport der Teilchen muss ein Doppelschlitzbuncher verwendet werden. Die Entfernung der beiden Schlitze richtet sich nach der Flugstrecke des Normpositrons mit 2 keV in einer halben Periodendauer des Sinussignals. Positronen, die vor oder nach dem Normpositron den Buncher erreichen, besitzen eine abweichende kinetische Energie zwischen den beiden Buncherspalten und erreichen den zweiten Spalt nicht genau bei der um 180° verschobenen Phasenlage. Weiterhin muss berücksichtigt werden, dass die Spalten geometrisch ausgedehnt sind und die Positronen eine Durchlaufzeit in den Spalten besitzen. Eine analytische Berechnung der maximalen Pulsbreite des Positronenstrahls vor dem Buncher ist unter diesen Bedingungen nicht möglich. Im folgenden Kapitel werden aber die Ergebnisse von Simulationen vorgestellt, die diese Faktoren berücksichtigen.

Mit den im Abschnitt 3.8 bestimmten Anfangsbedingungen wurde untersucht, ob die simulierten Spektren und die gemessenen Spektren unter Verwendung des Bun-

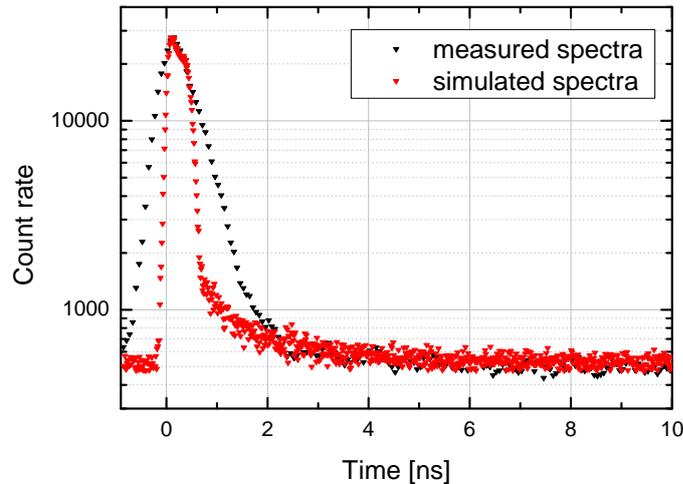


Abb. 3.26: Die Halbwertsbreite des gemessenen und des simulierten Spektrums bei Verwendung des Bunchers (ohne Chopper) ist etwa gleich. Bei dem simulierten Spektrum sind die ansteigenden und abfallenden Flanken jedoch steiler. Der Grund für die Abweichung könnte in einer nicht genau eingestellten Buncheramplitude oder einer Phasenverschiebung der Sinusspannung liegen. Bei der Einstellung des Bunchers wurde nur die Halbwertsbreite und nicht der ganze Impuls betrachtet. Die Simulationen wurden erst später durchgeführt und berücksichtigen nicht die Lebensdauer der Positronen in der Kupferprobe.

chers übereinstimmen. Beide Spektren sind im direkten Vergleich in Abbildung 3.26 dargestellt. Es zeigt sich, dass die Halbwertsbreite beider Spektren annähernd übereinstimmt. Die ansteigende und abfallende Flanke ist jedoch bei dem gemessenen Spektrum deutlich schlechter. Eine Erklärung dafür konnte nicht gefunden werden. Es muss abgewartet werden, wie sich die Spektren unter Einbeziehung des Choppers gestalten.

Ein weiteres Detail, welches betrachtet werden muss ist, ob es einen Untergrund an Positronen gibt, welcher durch den Buncher strukturiert wird. Um die Größe des Bunchers zu begrenzen, wird dieser mit einer Frequenz von 26 MHz betrieben. Die höchste Messfrequenz liegt bei 13 MHz. Wird eine lange Lebensdauerkomponente in der Probe vermutet, kann die Pulsfrequenz des Elektronenstrahls auf $13/8$ MHz verringert werden. Existiert ein Untergrund an Positronen, äußert sich das im Spektrum durch periodische Störungen in Abständen von 38,5 ns. Um das Verhältnis zwischen Untergrund und Störungen zu ermitteln wurde simuliert, wie der Buncher einen Untergrund strukturieren würde. Dazu wurden in der Simulation Teilchen zu zufällig generierten Zeiten gestartet.

In Abb. 3.27 ist links ein simulierter Untergrund und rechts ein gemessenes Spektrum dargestellt. Das in der Simulation durch den Buncher erzeugte Peak-zu-Untergrund-

Verhältnis beträgt etwa 30:1. In der rechten Abbildung müsste ein solcher Peak bei 60,1 ns deutlich zu sehen sein. Dass das nicht so ist, spricht dafür, dass kein Untergrund an Positronen am Buncher vorhanden ist. Aus diesem Grund ist ein weiterer Chopper, welcher bei Lebensdaueremessungen mit 13/8 MHz eingesetzt werden sollte, nicht notwendig.

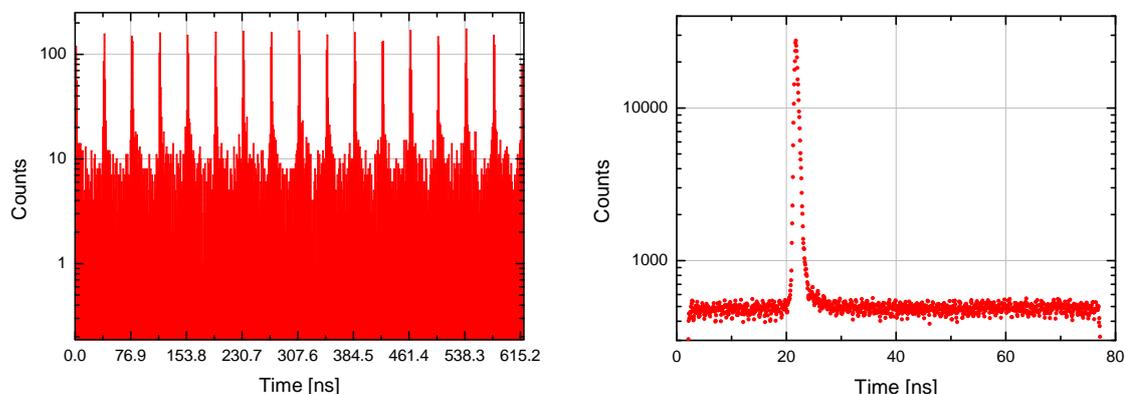


Abb. 3.27: links: Simuliert wurde ein Untergrund an Positronen, der durch den Buncher strukturiert wird.
rechts: Ein real aufgenommenes Spektrum mit Buncher. Es ist keine Strukturierung bei 60,1 ns sichtbar, wie es bei einem Untergrund an Positronen zu erwarten wäre.

3.11 Simulationen mit Chopper und Buncher

In diesem Abschnitt wird die Frage geklärt, welche Parameter der elektrische Impuls an den Chopperplatten besitzen muss, um mit dem Strahlsystem eine akzeptable Zeitaufösung zu erreichen. Bei vorangegangenen Simulationen [Sach04] [Butt11] wurde davon ausgegangen, dass es sich bei dem Puls um ein Rechtecksignal handelt.

Nach dem heutigen technischen Stand ist es aber nicht möglich, ein Rechtecksignal mit einer Pulshöhe von 100 V zu generieren. Deshalb muss geklärt werden, ob ein Signal mit ansteigenden und abfallenden Flanken geeignet ist, um den Chopper zu betreiben.

Bei den Simulationen muss berücksichtigt werden, dass auf die Teilchen beim Passieren der Chopperplatten nicht die ganze Zeit dasselbe elektrische Feld wirkt. Die Zeit, die ein Positron für die Durchquerung der Chopperplatten benötigt, beträgt 1,2 ns. In dieser Zeit verändert sich das elektrische Signal und damit das elektrische Feld zwischen den Platten. Weiterhin müssen auch die elektrischen Potenziale des Vakuumsystems sowie der Blenden vor und hinter den Chopperplatten berücksichtigt werden (Abb. 3.22). Zum jetzigen Zeitpunkt besitzt der Strahl vor dem Eintritt in den Chopper einen Durchmesser von 6 mm. Das führt dazu, dass trotz der Verwendung einer symmetrischen Spannung zur Ansteuerung des Choppers unerwünschte

transversale und longitudinale Energiekomponenten auf die Positronen übertragen werden können. Das betrifft die Positronen, die nicht in der Ebene der virtuellen Masse in den Chopper eintreten.

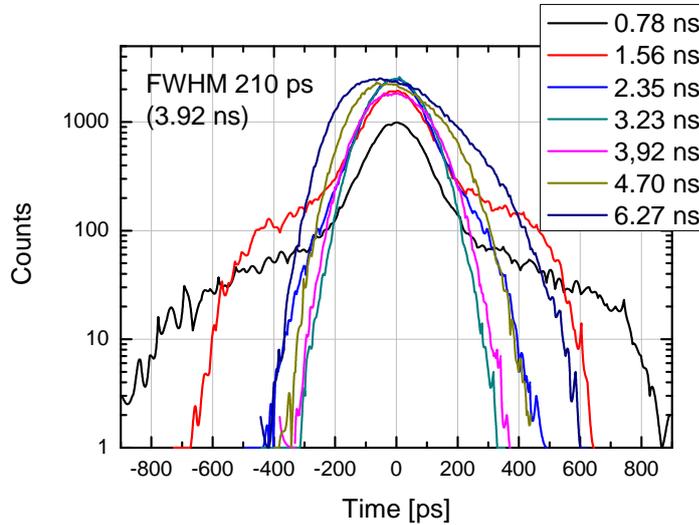


Abb. 3.28: Abgebildet sind die Zeitauflösungen für verschiedene Halbwertsbreiten der Gaußpulse. Die Amplitude der Gaußpulse beträgt 100 V. In der Simulation wurde eine Zeitauflösung des SEV mit 140 ps berücksichtigt. Zu erkennen ist, dass eine Halbwertsbreite des Gaußpulses zwischen 2,35 ns und 3,92 ns eine gute Zeitauflösung erwarten lässt. Bei größeren Werten wird das Signal verbreitert. Kleinere Werte sorgen zwar für eine bessere Zeitauflösung (FWHM), das gesamte Signal wird aber breiter.

Mit Simion 8.1 ist es möglich, die genannten Einflüsse zu berücksichtigen. In dem Programm können an einzelne Elektroden des Aufbaus verschiedene Spannungen angelegt werden. Durch die implementierte Programmiersprache Lua können diese Spannungen auch einen zeitabhängigen Verlauf besitzen. Die gegebene Geometrie wird in einzelne Zellen unterteilt. Erreicht ein Teilchen diese Zelle, wird mit den zu dieser Zeit an den Elektroden anliegenden Spannungen das elektrische Feld berechnet. Daraufhin wird die Trajektorie in dieser Zelle ermittelt. Den elektrischen Feldern ist das magnetische Führungsfeld von 75 Gauß überlagert.

Für die Simulation der Chopperpulse wurde eine Gaußfunktion verwendet, welche von einer Gleichspannung überlagert ist (Abb. 3.22).

$$U = U_{max} - U_{max} e^{-0.5 \frac{t-t_0}{\sigma}} \quad (3.2)$$

U_{max} bezeichnet dabei die maximale Spannung am Chopper. t_0 ist die Zeit, die das Normpositron mit einer Energie von 2 keV vom Moderator bis zur Mitte der Chopperplatten benötigt und t ist die Zeit, die das für die Simulation relevante Positron unterwegs ist. Mit σ wird die Pulsbreite eingestellt.

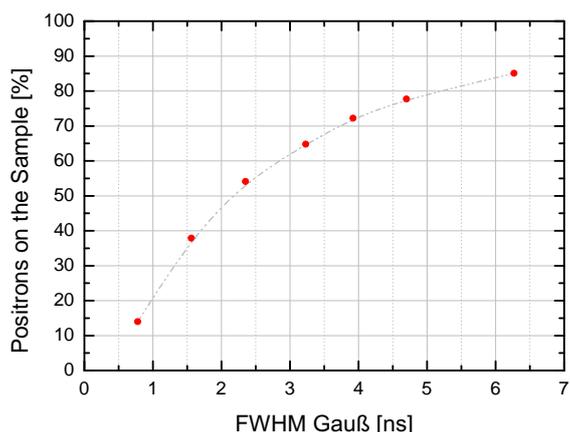


Abb. 3.29: Anteil der Positronen, die die Probe bei verschiedenen Halbwertsbreiten der Gaußpulse erreichen. Bei der idealen Halbwertsbreite von 3,23 ns bis 3,91 ns erreichen 65 Prozent bis 72 Prozent der Teilchen die Probe.

Mit den in Abbildung 3.21 dargestellten Anfangsbedingungen und der Verwendung des Bunchers wurde simuliert, welche Halbwertsbreite die an den Chopperplatten anliegenden Pulse besitzen müssen, um eine bestmögliche Zeitauflösung der Positronen-Lebensdauermessungen zu erhalten. Bei der Simulation wurde ebenfalls die Zeitauflösung der SEV-Messsonde mit 140 ps berücksichtigt.

Die simulierten Daten zeigen, dass sich ein Optimum zwischen 2,35 ns FWHM und 3,92 ns FWHM befindet. Durch die Verwendung von schmalere Pulsen kann die Halbwertsbreite noch weiter verringert werden. Es zeigt sich aber, dass die Pulse eine unvorteilhafte Form besitzen und sich Teile im Spektrum ausbilden, die weit von t_0 entfernt sind. Ein Spektrum mit einer solchen Zeitauflösungsfunktion lässt sich mit den zur Verfügung stehenden Lebensdauer-Auswerteprogrammen nicht analysieren. Der Grund für die weit auslaufenden Flanken ist in dem Verhältnis der Pulsdauer

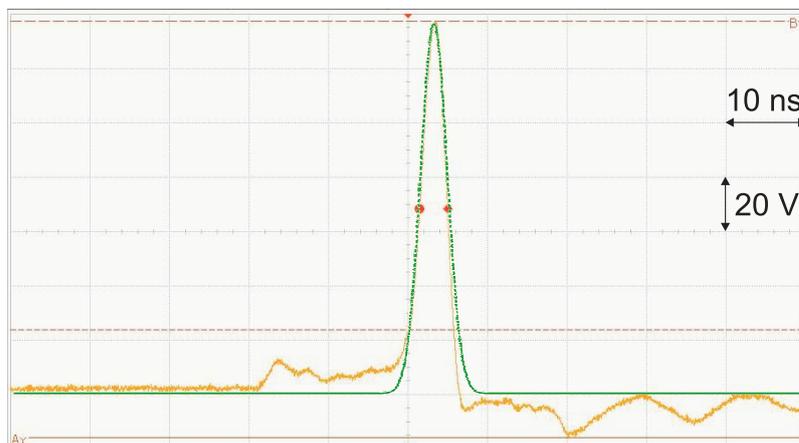


Abb. 3.30: Die gelben Werte stellen den gemessenen Puls dar, welcher mit den schnellen Schaltern generiert wurde. Die grünen Werte zeigen einen Gaußpuls mit einer Amplitude von 135 V und einer Halbwertsbreite von 3,95 ns. Der gemessene und der simulierte Puls stimmen dabei sehr gut überein.

und der Zeit, die die Positronen in den Chopperplatten zurücklegen, zu suchen. Bei einem ungünstigen Verhältnis wird auf einen Teil der Positronen eine höhere longitudinale Energie übertragen.

Weiterhin muss auch die Ausbeute der Positronen berücksichtigt werden. Bei zu kurzen Pulsen wird ein Großteil ausgeblendet (Abb. 3.29). Bei der optimalen Halbwertsbreite zwischen 2,35 ns und 3,92 ns erreichen 65 bis 72 Prozent der Positronen die Probe.

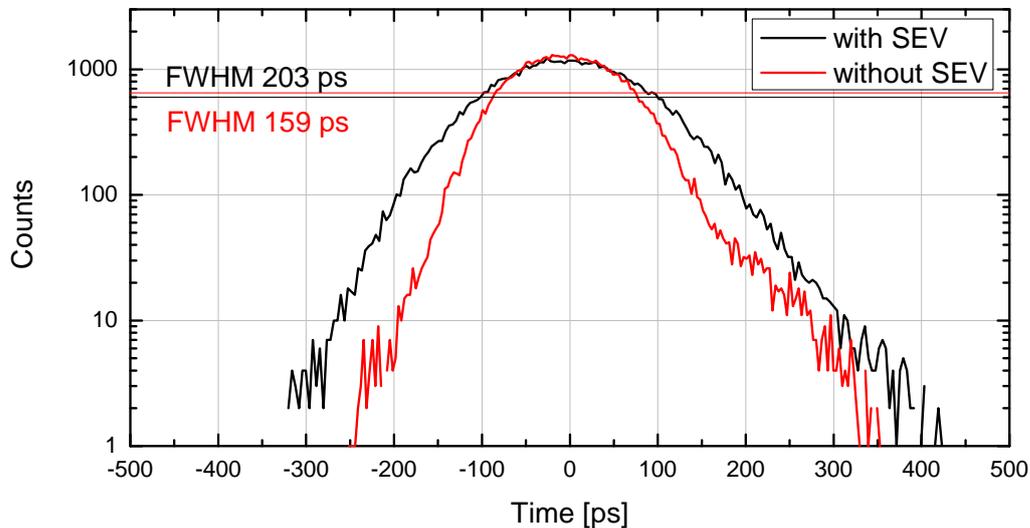


Abb. 3.31: Dargestellt ist die Simulation mit dem in Abbildung 3.30 simulierten Gaußpuls. Ohne Berücksichtigung des Detektors kann eine Zeitauflösung von 159 ps erreicht werden. Berücksichtigt man eine Zeitauflösung des Detektors von 140 ps, beträgt die Halbwertsbreite des simulierten Signals 203 ps.

Mit diesen Vorgaben wurde am HZDR nach einer Möglichkeit gesucht, einen Puls mit diesen Anforderungen zu erzeugen. Step Recovery Dioden [Grek81] konnten die Anforderungen der Pulshöhe bedienen, die Pulsbreite von einer Nanosekunde ist jedoch zu gering. Weiterhin kann bei diesen Pulshöhen die Ausfallsicherheit der Dioden nicht gewährleistet werden. Marx-Generatoren erreichten sowohl die Pulsbreite sowie die geforderte Spannung, die Wiederholfrequenz beläuft sich aber nur auf etwa 100 kHz. Ebenso ist nicht gewährleistet, dass der Generator kontinuierlich die geforderten Pulse liefert.

Die neuen, schnellen MOSFET-Schalter der Firma IXYS können alle gestellten Anforderungen erfüllen. Die Schalter können Pulse mit den geforderten Halbwertsbreiten und einer Spannung von weit über 100 V erzeugen. Ein so generierter Puls ist in Abbildung 3.30 dargestellt. Die Pulshöhe beträgt 135 V mit einer Halbwertsbreite von 3,95 ns. Ein Gaußpuls mit denselben Parametern ist über diesen Puls gezeichnet. Die beiden Pulse stimmen im Peakbereich sehr gut überein. Die Schwingungen des gemessenen Pulses um die Nulllinie wirken sich auf die Funktion des Choppers nicht aus, da die Spannung von 100 V, bei einer Überlagerung mit einer 135 V Gleichspannung, immer überschritten ist. Die Simulation mit diesen Parametern in Abbildung 3.31 zeigt, dass mit diesem Puls theoretisch eine Zeitauflösung von 203 ps zu erreichen ist.

Einen weiteren Einfluss auf den Zeitfokus hat die Phasenstabilität der Sinusspan-

nung. Ein Jitter im Nulldurchgang kann sich im gemessenen Spektrum bemerkbar machen. Temperaturänderungen, die auf die Lichtleiterkabel, den Buncherschwingkreis und die Ansteuerelektronik während einer Messung einwirken, könnten diese Schwankungen in der Phasenstabilität verursachen.

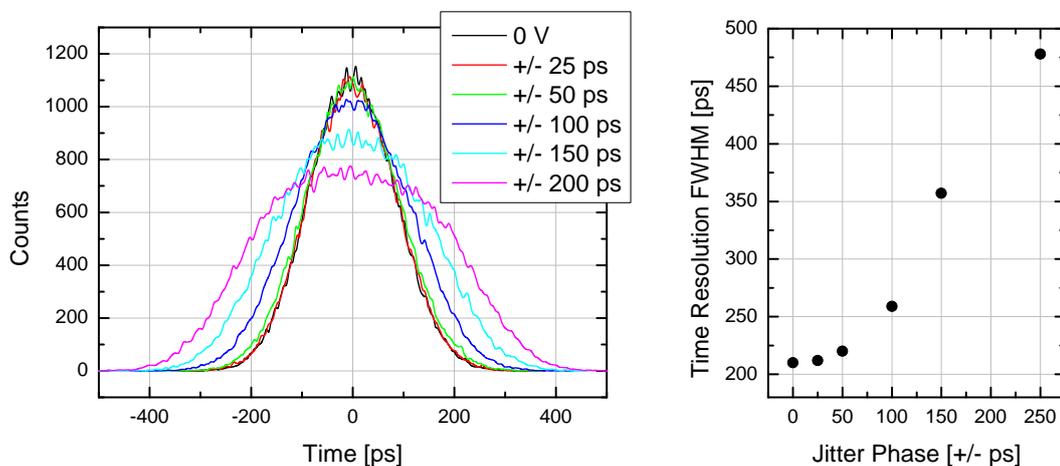


Abb. 3.32: Dargestellt ist rechts die Zeitauflösung des Systems unter Berücksichtigung des Detektors in Abhängigkeit der Größe des Jitters beim Nulldurchgang der Buncherspannung. Links sind die zugehörigen Halbwertsbreiten aufgetragen.

Um Informationen zu erhalten, in welchem Bereich sich diese Schwankungen nur geringfügig auf die Zeitauflösung des Systems auswirken, wurden Simulationen durchgeführt. Dabei wurde die Phase für jedes Teilchen durch einen Zufallsgenerator im gewählten Bereich verschoben. Die in Abbildung 3.32 dargestellten Ergebnisse der Simulationen zeigen, dass sich ein Jitter bis ± 50 ps kaum im Spektrum auswirkt. Die Halbwertsbreite der Zeitauflösung unter Berücksichtigung der Zeitauflösung des Detektors steigt dabei von 210 ps auf 220 ps.

Die Messung des Jitters gestaltet sich schwierig, sollte aber aufgrund der Ergebnisse durchgeführt werden. Ähnliche Simulationen wurden auch für Schwankungen in der Amplitude durchgeführt. Es zeigte sich aber, dass eine Veränderung der Amplitude um $\pm 5\%$ keinen Einfluss auf die Zeitauflösung des Systems besitzt. Diese Genauigkeit kann mit der vorhandenen Elektronik eingehalten werden.

3.12 Ansteuerelektronik

Für Messungen im Pikosekundenbereich ist es notwendig, dass die Ansteuerelektronik für den Chopper und den Buncher sehr stabil arbeitet. Dabei muss besonders auf die Phasenstabilität geachtet werden. Des Weiteren muss sich die Phase aufgrund der räumlichen Trennung an den einzelnen Komponenten (Chopperplattenpaare, Buncher) verschieben lassen.

Die Phasenverschiebung der einzelnen Signale erfolgt mithilfe einer DDS-Elektronik

(Direct Digital Synthesis). Ausgangspunkt für die Zeitelektronik ist ein Mitec-Signal (Abb. 3.33), welches aus dem Muttertakt des ELBE-Beschleunigers generiert wird. Dieses Signal wird über ein Lichtleiterkabel in das Positronenlabor geführt und mit Hilfe eines Mitec-Empfängers in ein elektrisches Signal umgewandelt. Das generierte Sinussignal wird einem Phasenschiebermodul mit einem internen, spannungskontrollierten Quarzoszillator zugeführt.

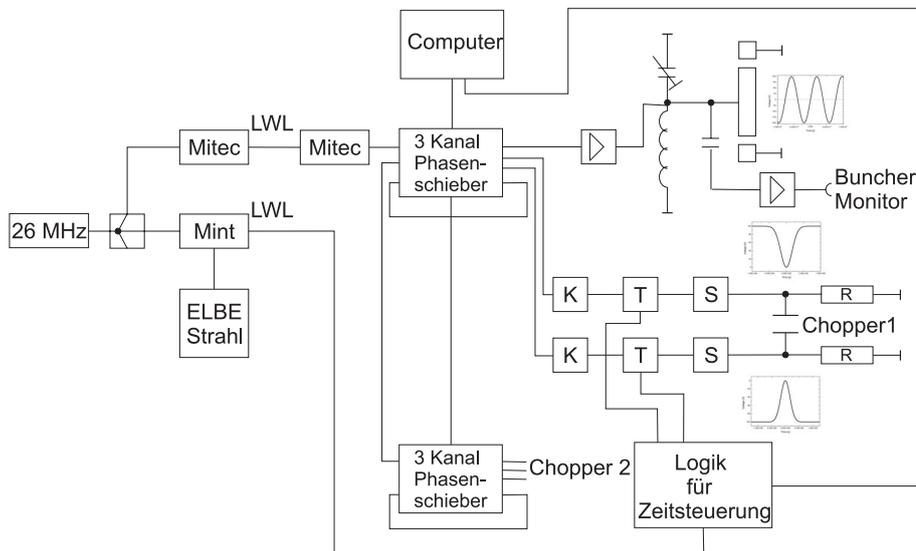


Abb. 3.33: Blockschaltbild der Ansterelektronik für den Chopper und den Buncher.
K Komparator, **T** Treiber für die schnellen Schalter, **S** schnelle Schalter,
LWL Lichtleiterkabel, **R** Abschlusswiderstand 50 Ohm (Stand 02.2013)

Mit einem Phasenschiebermodul können drei phasenverschobene Sinusspannungen erzeugt werden. Der vierte Ausgang wird an den Phasenkomparator am Eingang des Moduls angeschlossen. Liegt eine Phasendifferenz zwischen Ausgang und dem Mitec-Signal vor, wird durch eine Ladungspumpe und einen Tiefpassfilter die Spannung am VCO (voltage controlled oscillator) leicht verändert, wodurch sich eine Änderung der Frequenz ergibt (Abb. 3.34). Ist die richtige Phase erreicht, stabilisiert sich der Oszillator auf die Frequenz des Mitec-Signals. Das Phasenschiebermodul kann so Störungen in der Mitec-Strecke kompensieren.

Für den Betrieb des MePS-Systems sind ein Signal für den Buncher und vier Signale für den Chopper erforderlich. Diese müssen unabhängig voneinander eine Möglichkeit zur Verstellung der Phase besitzen. Die Phase kann in $360^\circ/2^{14}$ Schritten

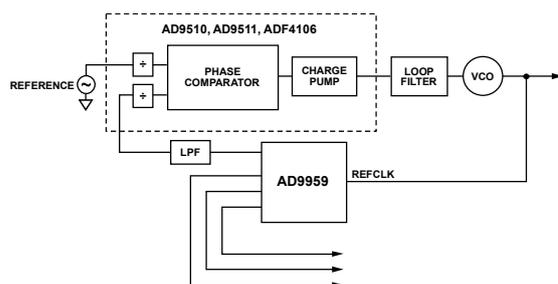


Abb. 3.34: Schematische Darstellung der Phasenstabilisierung. Quelle: [Anal05]

verstellt werden. Für den Buncher besteht weiterhin die Möglichkeit zur Regelung der Amplitude.

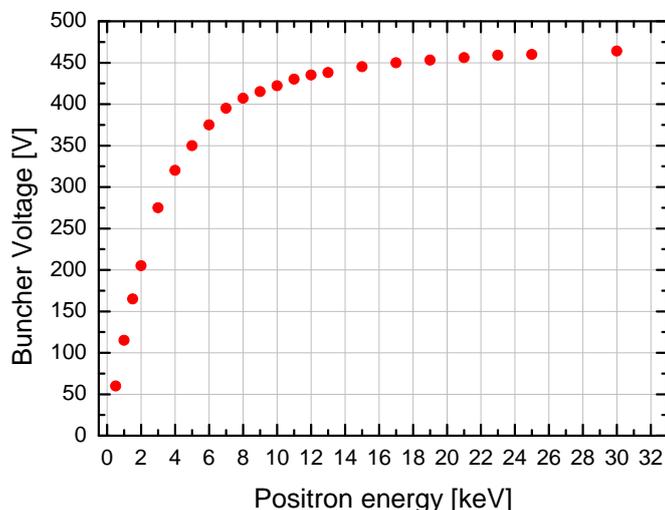


Abb. 3.35: Dargestellt ist die benötigte Amplitude der Sinusspannung in Abhängigkeit von der Implantationsenergie der Positronen, um einen optimalen Zeitfokus auf der Probe zu erhalten.

Das Signal für den Buncher wird einem Verstärker zugeführt. In diesem ist ein Stehwellenmesser integriert. Damit kann die Fehlanpassung des Verstärkers an den Buncherschwingkreis, welcher durch die Kapazität der Buncherelektrode und der Induktivität der Spule gegeben ist, gemessen werden. Mit einem zur Buncherelektrode parallel geschalteten verstellbaren Kondensator wird diese Fehlanpassung korrigiert. Die Fehlanpassung kommt dadurch zustande, dass sich bei Temperaturveränderungen, welche durch unterschiedliche Buncheramplituden oder äußere Einflüsse hervorgerufen werden, die Induktivität der Spule ändert. Deshalb weicht die Resonanzfrequenz von der 26 MHz Eingangsfrequenz ab.

Für die Auswahl des Verstärkers ist es notwendig, die maximal nötige Buncheramplitude zu bestimmen. Die Ergebnisse der durchgeführten Simulationen sind in Abbildung 3.35 dargestellt. Aufgrund der Simulationen wurde der für die Sinusspannung verwendete Verstärker ausgewählt. Es können Amplituden von 600 V erreicht werden, was für die geforderten Implantationsenergien der Positronen bis 30 keV ausreichend ist.

Ein am Buncher kapazitiv ausgekoppeltes Signal wird an ein Oszilloskop weitergegeben, um die Amplitude und die Phasenlage gegenüber dem Mitec-Signal zu überwachen.

Die vier weiteren Sinussignale der Phasensteuerung werden an jeweils einen Komparator weitergeleitet, welcher daraus einen 20 ns breiten TTL-Impuls erzeugt. Diese

TTL-Signale werden den Pulstreibern für die schnellen Schalter zugeführt. Ein Pulsstreiber erzeugt daraus ein Rechtecksignal mit einer Breite von 4 ns. Zur galvanischen Trennung werden diese Signale über einen Ringkerntrafo den schnellen Schaltern zugeführt. Die schnellen Schalter sind isoliert aufgebaut und liegen auf einem positiven oder negativen Potenzial. Durch die Spannungspulse der Schalter kann die jeweils angesteuerte Chopperplatte kurzzeitig auf Massepotenzial gebracht werden. Zurzeit werden Spannungspulse von 135 V mit einer Halbwertsbreite von 3,95 ns favorisiert. Mit der Programmieroberfläche LabVIEW wurden die für die Änderung der Parameter notwendigen Programme erstellt. Die Werte können in Abhängigkeit von der Energie gespeichert werden und stehen damit für weitere Messungen zur Verfügung.

3.13 Reflektierte Positronen

Nicht alle Positronen, welche die Probe erreichen, verbleiben in der Probe. Ein großer Teil kann remittiert oder durch elastische Streuprozesse reflektiert werden. Die Anzahl der reflektierten Positronen ist dabei abhängig von der Ordnungszahl der Probe und der Implantationsenergie der Positronen (Abb. 3.36).

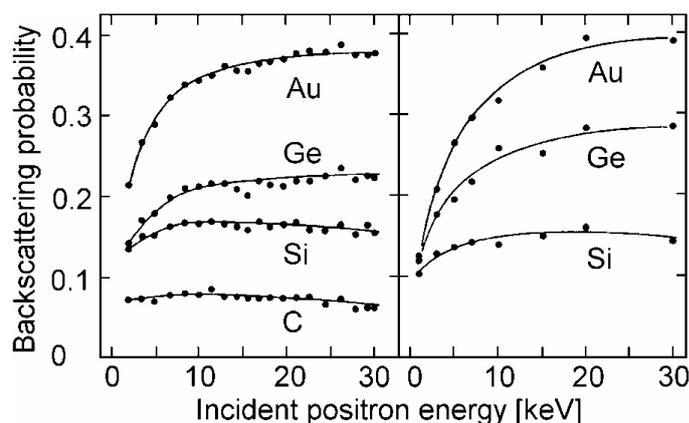


Abb. 3.36: Dargestellt sind die durch Monte-Carlo-Simulationen (rechts) und experimentelle Untersuchungen (links) ermittelten Rückstreuwahrscheinlichkeiten in Abhängigkeit von der Positronenimplantationsenergie für verschiedene Elemente [Mäki92] [Mass94]. Quelle: [Krau99]

Da die Energie der reflektierten Positronen zwischen nahezu null und der Implantationsenergie variiert, ist es schwierig, einen geeigneten Geschwindigkeitsfilter zu entwickeln. In anderen Strahlsystemen, wie zum Beispiel am PLEPS am FRM II, wird ein $E \times B$ -Filter verwendet [Baue00]. Die Spektren weisen jedoch Störungen auf. Das kommt zum einen dadurch zustande, dass einige Positronen den Beschleuniger trotz dieser Maßnahme erreichen. Ein weiterer Grund ist, dass am Anfang der Probenkammer eine Blende mit 5 mm Durchmesser integriert ist. Diese ist für die Funktion des $E \times B$ -Filters notwendig. Positronen, die in einem kleinen Winkel zur Senkrechten der Probenoberfläche reflektiert werden, können diese Blende passieren

und werden im $E \times B$ -Filter vernichtet. Werden die Positronen von der Probe mit einem stark von der Senkrechten abweichenden Winkel reflektiert, haben diese einen größeren Gyrationradius im Magnetfeld und können an der Blende annihilieren.

Um Störungen im Spektrum durch rückgestreute Positronen zu vermeiden, wurde an MePS ein 45° Bogen als Rückstreufilter integriert. Positronen, die den Beschleuniger verlassen, werden mithilfe der Sattelspulen auf die Probe geführt. Die Radialdrift (Abschnitt 3.6) wird durch das Magnetfeld der Sattelspulen kompensiert. Für Positronen, die von der Probe reflektiert werden, gilt das nicht mehr. Die beiden Kräfte addieren sich und die Positronen annihilieren je nach Energie, die nach der Rückstreuung noch vorhanden ist, an verschiedenen Stellen im Rohrbogen. Durch die große Entfernung zum Detektor und die unterschiedlichen Annihilationsorte sind die Zerstrahlungen im Spektrum nicht als Peak sichtbar.

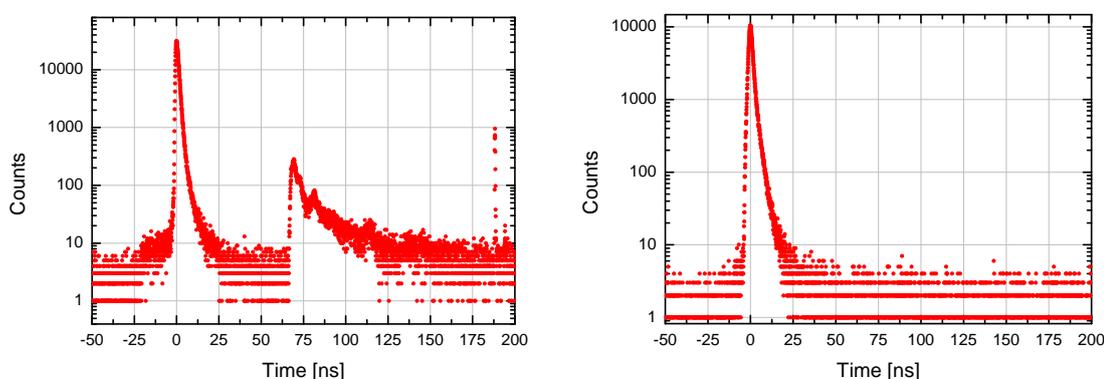


Abb. 3.37: links: Dieses Spektrum wurde ohne den Rohrbogen als Rückstreufilter aufgenommen. Deutlich zu erkennen sind Störungen im Spektrum, welche durch reflektierte Positronen hervorgerufen werden, die wieder auf die Probe beschleunigt wurden.

rechts: Dargestellt ist das Spektrum mit Rohrbogen. Der Nebenpeak ist nicht mehr sichtbar.

Beide Spektren wurden ohne den Buncher aufgenommen.

Um den Unterschied mit und ohne Filter deutlich zu machen, wurde der Bogen für die erste Messung mit eingeschaltetem Beschleuniger nicht installiert. Die Messungen ohne und mit Bogen sind in Abbildung 3.37 dargestellt. Zu erkennen ist, dass die ohne Bogen vorhandenen Störungen vollständig eliminiert werden. Ein weiterer Vorteil, der sich aus dem Einbau des Bogens ergibt ist, dass die Detektoren außerhalb der Achse der Strahlführung durch die Blenden und den Chopper liegen. Gammaquanten, die an diesen Stellen durch die Zerstrahlung der Positronen entstehen, können durch eine Bleiabschirmung den Detektor nicht mehr erreichen.

Um festzustellen, in welchem Maße die Zeitauflösung des Systems durch den längeren Weg beeinflusst wird, wurden Simulationen durchgeführt. Dabei wird davon ausgegangen, dass sich die Probenkammer direkt hinter dem Beschleuniger befindet oder ein Bogen mit einem Winkel von $22,5^\circ$ oder 45° mit einem Radius von 800 mm verwendet wird (Abb. 3.38). Deutlich zu erkennen ist, dass sich die Zeitauflösung unter

2 keV Positronenenergie bei Verwendung eines 45° Bogens verschlechtert. Verwendet man einen $22,5^\circ$ Bogen, ist diese Verschlechterung erst unter 1 keV Positronenenergie relevant. Die Verschlechterung der Zeitauflösung liegt in der Tatsache begründet, dass sich durch die Verwendung der Bögen die Strecke zwischen Buncher und Probe erhöht. Für die ersten Testmessungen wurde ein 45° Bogen verwendet. Das liegt zum einen daran, dass sich dadurch der Detektor besser gegen die Annihilationsstrahlung, die im Chopper und in den Blenden entsteht, abschirmen lässt. Weiterhin sinkt die Wahrscheinlichkeit, dass rückgestreute Positronen den Beschleuniger erreichen.

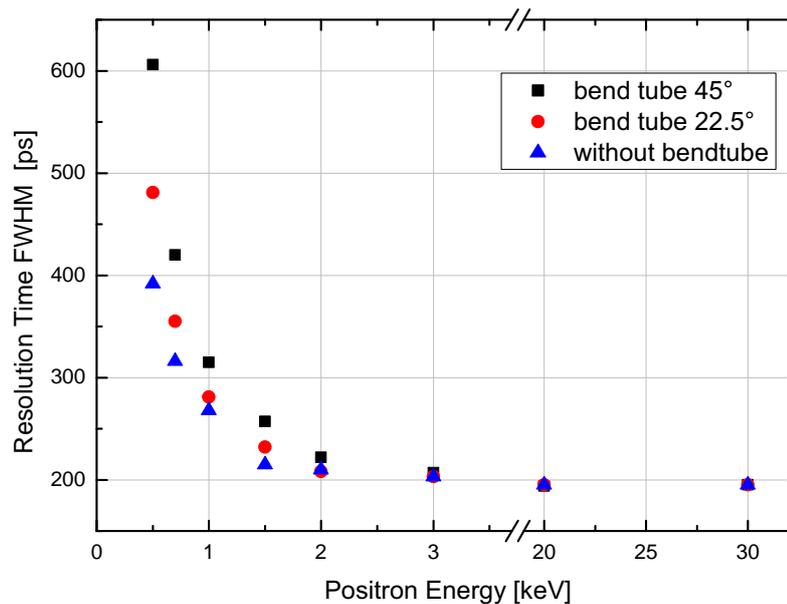


Abb. 3.38: Dargestellt ist die Zeitauflösung des Systems mit Detektor. Für Energien über 2 keV führt der Bogen mit $22,5^\circ$ und der Bogen mit 45° zu keiner deutlichen Verschlechterung der Zeitauflösung. Unter 2 keV verschlechtert sich die Zeitauflösung für den 45° Bogen. Die Zeitauflösung ist aber noch akzeptabel. Bei Positronenenergien unter 1 keV ist eine deutliche Abweichung von der Zeitauflösung des Systems ohne Bogen zu erkennen.

3.14 Beschleuniger

Bei der Entwicklung des Beschleunigers mussten mehrere Faktoren berücksichtigt werden. Um den Strahl nicht unnötig aufzuweiten, darf im Beschleuniger nur wenig transversale Energie auf den Strahl übertragen werden. Da der Strahl einen Durchmesser von 6 mm besitzt, kommt es aber gerade in den Randbereichen durch die dort nicht senkrecht zum Strahl verlaufenden Äquipotenzialflächen zu einem Energieübertrag. Diese transversale Komponente führt zu einer Gyration der Positronen. Gerade an der ersten und der letzten Elektrode des Hauptbeschleunigers lässt sich das aber nicht vermeiden.

Durch eine Vergrößerung des Innendurchmessers der Beschleunigerelektroden kann dieser Effekt verringert werden. Es muss dabei aber ein Kompromiss aufgrund der Größe des Beschleunigers eingegangen werden. Weiterhin ist die Geometrie der Elektroden entscheidend. In Abbildung 3.39 ist der verwendete Beschleuniger dargestellt. Die gesamte Beschleunigereinheit besteht aus einem Vorbeschleuniger, einer Driftstrecke und dem Hauptbeschleuniger. Der Hauptbeschleuniger besteht aus 6 Beschleunigungsstufen, die über $1\text{ G}\Omega$ Widerstände verbunden sind. Bei einer Beschleunigung der Positronen im Hauptbeschleuniger mit 15 kV wird der Strahl von 6 mm auf $6,9\text{ mm}$ aufgeweitet, was bei einer Probengeometrie von $10\text{ mm} \times 10\text{ mm}$ vertretbar ist.

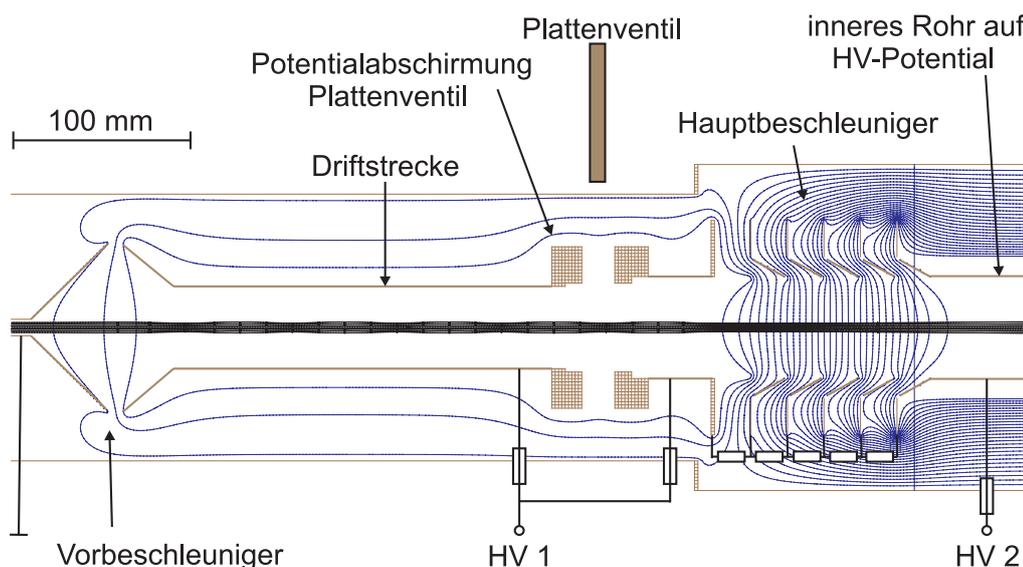


Abb. 3.39: Dargestellt ist die Beschleunigereinheit mit Vorbeschleuniger, Driftstrecke und Hauptbeschleuniger. Das Plattenventil dient zur Trennung des Vakuums während des Probenwechsels. Die Position ist die letztmögliche vor dem Beschleuniger. Eine Positionierung kurz vor dem Vorbeschleuniger war aus geometrischen Gründen nicht möglich (Führungsspulen). Die Potenzialabschirmung ist aber ausreichend, um eine Beeinflussung des Strahls durch das Massepotential des Vakuumsystems zu verhindern. Um Überschlüge zu vermeiden, muss die Hochspannung am Vorbeschleuniger beim Schließen des Plattenventils abgeschaltet werden.

Die Beschleunigerstufe soll auch dazu dienen, den zeitlichen Fokus auf die Probe zu verändern. Das ist zwar mit dem Buncher möglich, indem man die Amplitude der Sinusspannung verändert. Eine Erhöhung der Amplitude bewirkt aber auch eine Veränderung der Temperatur im Schwingkreis des Bunchers und verändert die Phasenlage und die Güte des Schwingkreises. Beide Parameter müssen nachgestellt werden, um den Zeitfokus auf die Probe zu erhalten. Da die Temperatur aber erst nach einiger Zeit stabil ist, verkürzt sich dadurch die effektive Messzeit.

Eine einfachere Möglichkeit besteht darin, die Amplitude am Buncher fest einzustellen. Die verschiedenen Laufzeiten der Positronen in Abhängigkeit von der Beschleunigungsspannung können damit kompensiert werden, dass die Positronen im

Vorbeschleuniger abgebremst werden und die Driftstrecke so langsamer durchlaufen. Je höher die Endbeschleunigung ist, umso mehr müssen die Positronen im Vorbeschleuniger abgebremst werden.

3.15 Die Probenkammer

Die zurzeit verwendete Probenkammer wurde für die ersten Experimente relativ einfach aufgebaut. Vor der Entwicklung einer Probenkammer mit Probenwechsler und Temperaturregelung sollten Informationen gewonnen werden, ob die Dimensionen der Probenkammer ausreichend sind. Bei einer zu kleinen Probenkammer können reflektierte Positronen in der Nähe der Probe annihilieren und das Lebensdauerpektrum stören. Die Probenkammer besteht aus einem Edelstahlrohr (160 mm) mit einem unterhalb angebrachten Stutzen für die Hochspannungszuführung. In der Probenkammer befindet sich der Faradaykäfig aus einem engmaschigen Netz. Dieser sorgt dafür, dass die Positronen das Massepotenzial der Probenkammer nicht sehen. Der Probenhalter kann am Faradaykäfig isoliert angebracht werden, um die Probe auf ein anderes Potenzial zu bringen. Die Messungen der Zeitstruktur zeigen jedoch, dass ein vom Faradaykäfig verschiedenes Potenzial am Probenhalter bis zu Energien von 10 keV nicht notwendig ist. Bei einer besseren Zeitauflösung des Systems durch die Verwendung des Choppers muss diese Aussage jedoch überprüft werden.

Um den Strahl auf die Probe zu fokussieren, sind in Abhängigkeit von der Energie vier Parameter zu verändern. Eine Blende mit einem Durchmesser von 6 mm ist am Anfang der Probenkammer eingebaut, um den Strahl mittig in die Kammer zu leiten. Dazu werden die Ströme in den zwei Sattelspulenpaaren des Rohrbogens so verändert, dass die Zählrate auf der Probe maximal wird. Bei maximaler Zählrate wird dann ein Spektrum aufgenommen. Sind vor dem Hauptpeak Störungen zu erkennen, annihilieren einige Positronen an der Blende.

Die korrekte Fokussierung auf die Probe wird mit den Sattelspulen der Probenkammer vorgenommen. Dazu wird für diese Einstellungen temporär eine Blende im Abstand von 60 mm vor der Probe eingebaut. Mit einer LabVIEW-Programmeinheit können die Ströme in den über der Probenkammer horizontal und vertikal angebrachten Sattelspulen verändert werden. Die erhaltene Zählrate in Abhängigkeit von den Spulenströmen kann danach graphisch dargestellt werden. Daraus lassen sich die optimalen Einstellungen ermitteln, um den Strahl durch die Blende auf die Probe zu justieren. Die so erhaltenen Spulenströme werden mit den jeweiligen Positronenenergien gespeichert und können für die Messung der einzelnen Proben vom Steuerprogramm abgerufen werden.

Die Annihilationsquanten werden mit einem BaF-Szintillator detektiert. Ein SEV wandelt die durch den Szintillator erzeugten Photonen in ein elektrisches Signal um. Der SEV mit Szintillator befindet sich axial ausgerichtet hinter der Probe. Zwischen Probe und Detektor befindet sich ein Sichtflansch, der diese elektrisch voneinander

trennt. Der SEV ist neben der vom Hersteller mitgelieferten μ -Metallabschirmung von einem weiteren 1 mm starken zur Probe hin geschlossenen μ -Metallzylinder umgeben.

Untersuchungen haben ergeben, dass die vom Hersteller vorgesehene Abschirmung nicht ausreicht (Abb. 3.40) und die Zählrate bei einer zu den magnetischen Feldlinien parallelen Ausrichtung in Abhängigkeit von der Stärke des magnetischen Feldes schnell abfällt. Durch die nur zylindrische, zur Probe hin nicht geschlossenen Abschirmung können die Feldlinien in den SEV durchgreifen und somit den Weg der Elektronen zwischen den Dynoden beeinflussen.

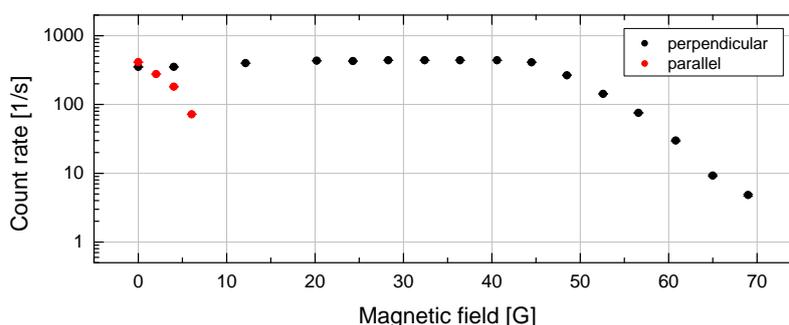


Abb. 3.40: Der SEV-Detektor wurde senkrecht und parallel zu den Magnetfeldlinien positioniert. Bei einer parallelen Positionierung kann das Magnetfeld in den Detektor eindringen, da die μ -Metallabschirmung des Herstellers aus einem offenen Zylinder besteht. Die Zählrate bricht weit vor der eines senkrecht zu den Magnetfeldlinien liegenden Detektors ein.

Das ursprünglich geplante Multidetektorsystem aus 8 Detektoren wurde nicht fertiggestellt. Versuche, die Spektren mehrerer Detektoren zusammenzulegen, sind noch nicht erfolgreich abgeschlossen. Dazu sind weitere Untersuchungen an konventionellen Lebensdauer messplätzen mit mehr als zwei Detektoren notwendig. Mittels Simulationen muss auch geklärt werden, wie die μ -Metallabschirmungen das Magnetfeld und somit den Positronenstrahl beeinflussen.

3.16 Zeitauflösung der SEV

Neben der Zeitauflösung des Systems ist auch die Zeitauflösung der SEV entscheidend. Dazu wurden Untersuchungen mit einem Picosecond Injection Laser (PIL) mit einer Wellenlänge von 375 nm durchgeführt. Die Pulsbreite des Lasers beträgt 36 ps FWHM, der Jitter 2,5 ps.

Der Aufbau ist in Abbildung 3.41 dargestellt. Über einen x-y-Tisch kann die Position des den Laser übertragenden Lichtleiterkabels über zwei Schrittmotore zweidimensional verstellt werden, sodass an jeder Position der SEV-Röhre eine Messung

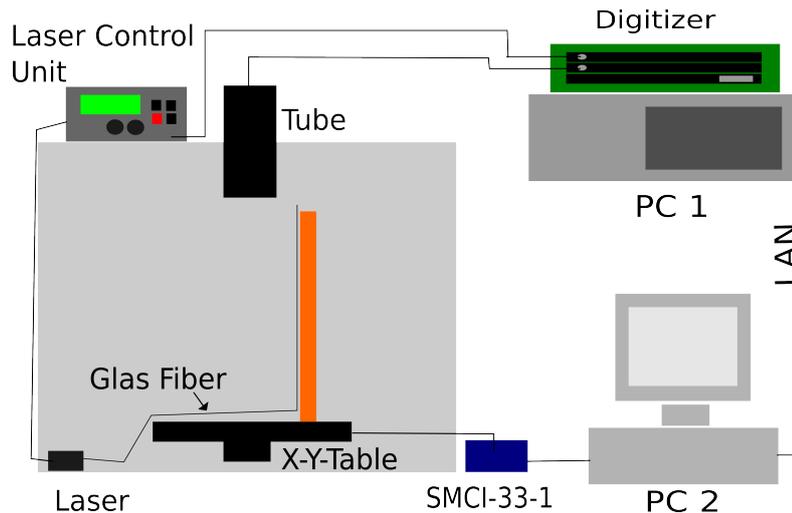


Abb. 3.41: Aufbau des Messplatzes zum Vermessen der SEV. Das den Laser ansteuernde Kontrollgerät liefert ein Startsignal an den Digitizer. Das Stoppsignal liefert die Anode der zu untersuchenden SEV-Röhre. Die Signale werden vom Digitizer verarbeitet und im PC1 als Lebensdauerspektrum abgespeichert. Mit einem zweiten PC werden die Steuereinheit für den verstellbaren x-y-Tisch angesprochen und das Lebensdauerprogramm gesteuert. Die erhaltenen Daten können graphisch dargestellt werden. Quelle: [Haeb12]

durchgeführt werden kann. Mit dem Digitizer des digitalen Lebensdauermeßplatzes werden die Triggersignale der Laser-Ansteuerung und die Signale des SEV verarbeitet und dem Rechner zur Erstellung eines Lebensdauerspektrums zugeführt. Für realitätsnahe Messungen wurde der Laser mit einer Wiederholrate von 1 kHz betrieben.

Aus den Einzelspektren können die Halbwertsbreite und die relative Durchlaufzeit (TTS, transit time spread) bestimmt werden. Ein exemplarisches Beispiel für die Untersuchung einer Hamamatsu-Sonde vom Typ 3378-50 ist in Abbildung 3.42 dargestellt. Deutlich zu erkennen ist, dass die Halbwertsbreite der Spektren ortsabhängig ist.

Darauf aufbauend wurde mit dieser Messanordnung untersucht, ob die Position eines von einem von 35 mm Durchmesser auf 20 mm Durchmesser reduzierten BaF-Szintillators einen Einfluss auf die Zeitauflösung der Messung hat [Haeb12]. Es zeigte sich, dass die Positionierung des 20 mm Szintillators in der Mitte der SEV-Röhre zur besten Zeitauflösung führt. Mit einem konventionellen Lebensdauermeßplatz konnte unter Verwendung von 2 Röhren des Typs 3378-50 eine Zeitauflösung von 178 ps erreicht werden. Die Zeitauflösung einer SEV-Röhre mit einem 20 mm BaF-Szintillator beträgt damit 126 ps.

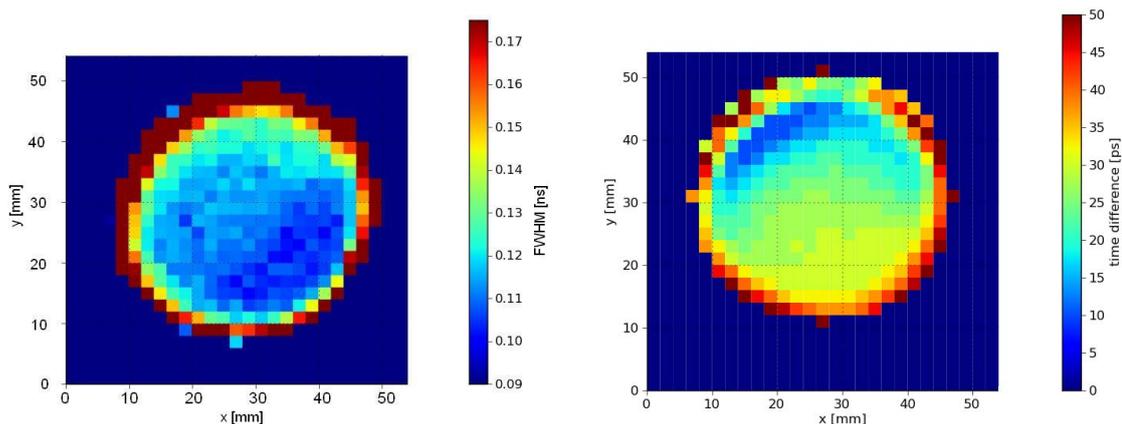


Abb. 3.42: links: Dargestellt ist die Halbwertsbreite der aufgenommenen Zeitspektren in Abhängigkeit von der Position des Lasers bei einer Betriebsspannung der Röhren von 3,5 keV. Durch die Verwendung von Szintillatoren mit einem maximalen Durchmesser von 35 mm kann der Randbereich der 40 mm Röhren vernachlässigt werden. Die Halbwertsbreite der Pulse liegt im Bereich zwischen 100 ps bis 130 ps.

rechts: Abgebildet ist die relative Zeitdifferenz des Maximums (TTS) von den aufgenommenen Spektren in Abhängigkeit von der Position des Lasers. Für die am weitesten auseinander liegenden Maxima ergibt sich ein Wert von 25 ps.

3.17 Zusammenfassung und Ausblick

Mit dem Positronenstrahlsystem MePS ist es seit September 2011 möglich, tiefenaufgelöste PALS-Messungen durchzuführen (Baubeginn in Rossendorf 2007). Trotz der fehlenden Chopper-Einheit besitzt das System eine Zeitauflösung von unter 600 ps. Damit können zum Beispiel poröse Materialien untersucht werden.

In diesem Kapitel wurde gezeigt, wie durch die Weiterentwicklung des Moderators die Zählrate erheblich gesteigert werden konnte. Durch den für MePS nur zeitlich begrenzt zur Verfügung stehenden Elektronenstrahl ist es dadurch erst möglich geworden, Proben in einer angemessenen Zeit zu untersuchen.

Die Qualität der Spektren konnte durch die Verwendung einer Doppelblende erheblich verbessert werden. Auch der als Rückstreufilter dienende Rohrbogen hat sich bestens bewährt. Die durch diese Maßnahmen erhaltenen Lebensdauerspektren sind bei korrekter Einstellung der Strahlführung nahezu ungestört.

Simulationen mit dem Programm SIMION 8.1 lassen darauf schließen, dass unter Verwendung des Choppers eine Zeitauflösung (mit Detektor) von 210 ps zu erreichen ist.

Wie in anderen Strahlsystemen wird aber auch die Weiterentwicklung von MePS eine große Rolle spielen. So konnten die Strahlparameter am FRM II in München durch umfangreiche Maßnahmen erheblich verbessert werden [Sper08] [Huge12]. Die nur begrenzt zur Verfügung stehende Strahlzeit erschwert dabei jedoch zeitaufwendige

Untersuchungen.

Die große zeitliche Verbreiterung des Positronenstrahls kann nicht mit theoretischen Betrachtungen geklärt werden. Durch den Einsatz der Doppelblende ist es zwar gelungen, einen Teil der störenden Positronen auszublenden, die Ursache dafür wurde aber nicht behoben. Es muss davon ausgegangen werden, dass die höherenergetischen Positronen nicht durch das Linsensystem oder die Strahlführung generiert werden. Eine Analyse ist daher sehr schwierig. Für die Positronen mit geringerer Energie gibt es jedoch mehrere Erklärungen.

Durch den Einschuss in das Magnetfeld und den Transport in diesem kann ein Teil der longitudinalen Energiekomponente in eine transversale Komponente umgewandelt werden. Durch die fehlende und auch nicht mögliche Diagnose auf den ersten 5 Metern des Strahlsystems ist eine Fehlersuche in diesem Bereich kaum möglich.

Ein Ansatzpunkt zur Lösung des Problems ist die Verwendung eines Spiders [Stoe99] zu Beginn des Magnetfeldes. Dieser wird in anderen Strahlsystemen verwendet, um die Positronen aus einem magnetischen Führungsfeld auszukoppeln, ohne dass die Teilchen den Magnetfeldlinien folgen können.

Weitere intensive Entwicklungsarbeit sollte auch am Linsensystem vorgenommen werden. Der Abstand zwischen dem Gitter auf dem oberen Linsenstück zum Moderator beträgt zurzeit etwa 4 mm. Die Zwischenräume des Gitters haben einen Durchmesser von etwa 0,5 mm. Dieses Verhältnis sollte durch eine Erhöhung des Abstandes vergrößert werden, um den Einfluss der Inhomogenitäten im elektrischen Feld durch das Gitter zu verringern. Bei einer Vergrößerung des Abstandes ist es aber auch notwendig, die Durchmesser der Flächen vom Moderator und dem Netz zu vergrößern, um einen Einfluss des sich in der Nähe befindenden Konverters zu verhindern.

Weiterhin könnte die Beschleunigung der Positronen auf die Transportenergie nicht nur zwischen Moderator und Gitter, sondern mehrstufig mit einer konzentrischen Anordnung von Moderator und Extraktionselektroden erfolgen [Koeg10]. Ein solcher Aufbau ist durch den hohen Energieeintrag des Elektronenstrahls an dieser Stelle sehr aufwendig und erfordert ein hohes Maß an Entwicklungsarbeit und feinmechanischen Fertigkeiten, verspricht jedoch eine Verbesserung der Strahlparameter. Durch eine damit verbundene Reduzierung des Strahldurchmessers können auch die Laufzeitunterschiede in den Bögen verringert werden.

Kapitel 4

PAS-Messungen an low-k-Schichten

4.1 low-k-Materialien

In den letzten Jahren wurde die Dichte der Transistoren in mikroelektronischen Bauelementen, insbesondere in Computerchips, stark erhöht. Diese Entwicklung lässt sich aber aufgrund unerwünschter Effekte nicht beliebig fortsetzen. Durch die Miniaturisierung verlängern sich die Leiterbahnen bei gleichzeitiger Erniedrigung des Leiterbahnenquerschnittes.

Dieser Umstand führt dazu, dass der Widerstand steigt. Weiterhin schränken die Kapazitäten, welche durch die Miniaturisierung an Bedeutung gewinnen, die Verarbeitungsgeschwindigkeiten der Signale ein. Um diese Faktoren zu berücksichtigen, wird ein vereinfachtes Modell (Abbildung 4.1) betrachtet [Bohr95]. Bei dem Modell wird davon ausgegangen, dass eine Leiterbahn sich zwischen 2 weiteren Leiterbahnen befindet. Diese wiederum befinden sich zwischen 2 Metallisierungsebenen. Die Leiterbahnbreite und die Abstände zwischen den Leiterbahnen ist gleich. Ebenso entspricht die Leiterbahnhöhe dem Abstand zwischen der Leiterbahn und der Metallisierungsebene. Aus dem Modell ergeben sich 2 Kapazitäten C_L zwischen den Leiterbahnen und zwei Kapazitäten C_M zwischen der betrachteten Leiterbahn und den beiden Metallisierungsebenen. Geht man davon aus, dass das Dielektrikum überall homogen ist und der Aufbau einem idealen Plattenkondensator entspricht, ergibt sich für C_L und C_M

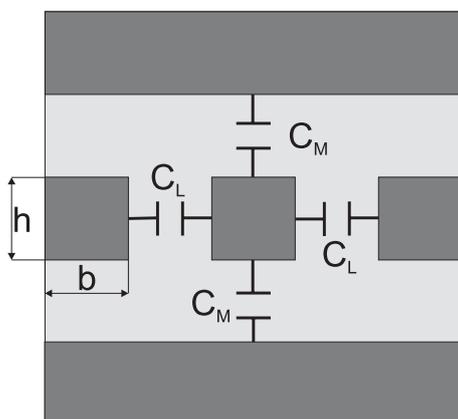


Abb. 4.1: Einfaches Modell erster Ordnung für die parasitären Kapazitäten in integrierten Schaltungen. Die dunklen Bereiche stellen die Leiterbahnen und die Metallisierungsebenen dar, die hellen Bereiche das Dielektrikum.

$$C_L = \epsilon_0 \epsilon_r \cdot \frac{hl}{b} \quad (4.1)$$

$$C_M = \epsilon_0 \epsilon_r \cdot \frac{bl}{h} \quad (4.2)$$

Der Parameter l bezeichnet dabei die Ausdehnung der Leiterbahnen in die Zeichenebene.

Für die mittlere Leiterbahn wird der Widerstand über

$$R = \rho \frac{l}{bh} \quad (4.3)$$

berechnet.

Das Produkt aus dem Widerstand und den parasitären Kapazitäten gibt die Signalverzögerung an, die durch das Aufladen und Entladen des Systems nicht zu umgehen ist.

$$\tau = \epsilon_0 \epsilon_{rel} \rho l^2 \frac{h^2 + b^2}{b^2 h^2} \quad (4.4)$$

Um die Zeitkonstante zu verringern, wurden die Leiterbahnen miniaturisiert, was jedoch aufgrund der sich dann erhöhenden Stromdichten an seine Grenzen stößt. Die bei hohen Stromdichten nicht zu vernachlässigende Elektromigration führt dazu, dass Leiterbahnen unterbrochen werden [Lloy95] [Meye02]. Der spezifische Widerstand kann durch die Verwendung von Kupfer ($\rho=0,0178 \Omega mm^2/m$) statt Aluminium ($\rho=0,0278 \Omega mm^2/m$) gesenkt werden, stellt die Herstellung aber vor neue Herausforderungen, da Kupfer leicht in andere Materialien diffundiert. Zur Vermeidung der Diffusion des Kupfers in die Isolationsschichten sind zusätzliche Barrierschichten notwendig.

Die Verkürzung der Signalleitungen stößt auch an ihre Grenzen. Ein erheblicher Fortschritt konnte aber durch die senkrechte Anordnung der Transistoren erreicht werden. Eine weitere Verringerung der Zeitkonstante ist durch die Erniedrigung der Dielektrizitätskonstante der Isolationsmaterialien möglich (Tab. 4.2).

SiO₂ besitzt eine relativ hohe Dielektrizitätskonstante. Es wird deshalb nach Alternativen für SiO₂ gesucht. Ideal ist ein k -Wert von 1, welcher im Vakuum auftritt.

Das Vakuum-Isolierverfahren (air gaps) [Stol95] für Kupferleiter wird teilweise bei der Chipfertigung verwendet. Dazu werden zwischen den Leiterbahnen Opferschichten aufgebracht, die später durch geeignete Ätzlösungen wieder entfernt werden. Diese Möglichkeit kann jedoch nur begrenzt verwendet werden, da die mechanische Stabilität sowie die Wärmeableitung ein Problem darstellen.

Zur Erniedrigung der Dielektrizitätskonstante bei einer ausreichenden Stabilität

der Isolationsschichten können auch Materialien mit wenigen polaren Bindungen verwendet werden. Dadurch wird die Polarisierbarkeit gesenkt. Das erreicht man zum Beispiel durch die Verwendung von organischen Siliziumdioxiden (organosilicate Glass, OSG) als Isolationsmaterial. Nichtporöse OSG-Materialien besitzen einen k-Wert von etwa 2,8 [Klos02]. Weitere Materialien mit den zugehörigen Dielektrizitätskonstanten sind in Tabelle 4.1 aufgeführt.

Material	k-value
Silicon Dioxide (SiO_2)	4.0-4.5
Fluorinated Silicate Glass (FSG or SiOF)	3.2-3.6
Hydrogen Silsesquioxane (HSQ)	2.8-3.0
Methyl Silsesquioxane (MSQ)	2.7
Organosilicate glass (OSG)	2.8-3.0
Organic aromatic polymers	2.6-2.9

Tab. 4.1: Aufgeführt sind häufig verwendete Isolationsmaterialien in Halbleiterbauelementen mit der zugehörigen Dielektrizitätskonstante [Hoof05].

Eine weitere Möglichkeit liegt in der Senkung der Dipoldichte. Geeignete Materialien sind mikroporöse Schichten mit viel freiem Volumen. Zurzeit werden in der Halbleiterindustrie durch CVD oder spin-on-Verfahren abgeschiedene mikroporöse Schichten verwendet. Für poröse OSG-Materialien werden damit k-Werte von unter 2 erreicht (Abb. 4.3).

4.1.1 Klassifizierung von porösen Materialien

Durch die IUPAC (International Union of Pure and Applied Chemistry) wurde eine Klassifizierung von porösen Materialien nach der Porengröße (Durchmesser) vorgenommen [Meye95]. Poren mit einem Durchmesser $D_P < 2$ nm werden als Mikroporen bezeichnet. Liegt der Durchmesser der Poren im Bereich von $2 \text{ nm} \leq D_P \leq 50 \text{ nm}$, handelt es sich um Mesoporen. Bei einem Durchmesser von $D_P > 50$ nm spricht man von Makroporen.

Weiterhin sind poröse Materialien durch ihren Porositätsgrad $\Phi = \frac{V_P}{V}$ gekennzeichnet. V bezeichnet das gesamte Volumen und V_P gibt das Volumen der Poren an.

Bei Materialien mit einem geringen Porositätsgrad handelt es sich im Allgemeinen um isolierte Poren. Steigt der Porositätsgrad an, können die einzelnen Poren untereinander verbunden sein. Es handelt sich dabei um eine offene Porosität. Im Folgenden wird auch der Begriff „zur Oberfläche hin offene Porosität“ verwendet. Damit wird ausgesagt, dass die Porensysteme bis an die Oberfläche der Schicht reichen.

Handelt es sich um Materialien mit isolierten Poren, wird auch eine Unterteilung in kubische Poren, sphärische Poren und zylindrische Poren vorgenommen. Ein Zugang zur Porengeometrie durch verschiedene Messmethoden ist jedoch besonders bei den Mikroporen nur schwer möglich und beschränkt sich auf theoretische Modelle.

4.1.2 Herstellung von porösen low-k-Schichten

Die Erzeugung des freien Volumens wird zurzeit mit zwei technologischen Prozessen erreicht.

Bei der konstruktiven Porosität werden durch die Einbringung von Fremdatomen oder funktionellen Gruppen in die SiO_2 -Matrix die Bindungsverhältnisse verändert. Dadurch wird die Materialstruktur aufgeweitet. Durch dieses Verfahren wird auch die Polarisierbarkeit des Materials verringert.

Die subtraktive Porosität beschreibt ein Verfahren, bei dem nach der Schichtabscheidung Teile des Materials aus der Schicht entfernt werden. Dazu wird die Ausgangssubstanz (Precursor) mit einem Porengenerator (Porogen) versetzt. Als Porogen können Monomere, Polymere oder Makromoleküle verwendet werden.

Dieses Gemisch wird im spin-on-Verfahren (Rotationsbeschichtung) (Abb. 4.2 a, b) oder durch eine plasmaunterstützte chemische Gasphasenabscheidung (PECVD) auf dem Substrat abgeschieden. PECVD hat gegenüber CVD den Vorteil, dass bei der Herstellung der Schichten die Temperatur niedriger gehalten werden kann. CVD-Prozesse finden bei etwa $400\text{ }^\circ\text{C}$ bis $500\text{ }^\circ\text{C}$ statt. Verwendet man die plasmaunterstützte chemische Gasphasenabscheidung, reichen Temperaturen von $300\text{ }^\circ\text{C}$ bis $350\text{ }^\circ\text{C}$ aus. Dadurch kann eine Schädigung der in vorangegangenen Herstellungsprozessen aufgebrauchten Strukturen vermindert werden. In der Produktion ist die Schichtabscheidung durch PECVD gegenüber dem spin-on-Verfahren bei der Verwendung von Porogenen vorzuziehen, da mit diesem Verfahren eine gleichmäßige Beschichtung dreidimensionaler Strukturen (Vertiefungen in Wafern) möglich ist.

Während der sich anschließenden Trocknung (Pre-bake) verbleibt das Porogen innerhalb der Schicht (Abb. 4.2 c). Nachfolgend wird das Porogen durch eine thermische Behandlung (Final-cure) aus dem Material ausgetrieben. Die Temperatur ist dabei abhängig von dem verwendeten Porogen. Um ein weiteres Ausgasen bei nachfolgenden Prozessschritten zu vermeiden, erfolgt die Behandlung oberhalb der notwendigen Temperatur bei über $400\text{ }^\circ\text{C}$ [Schu08].

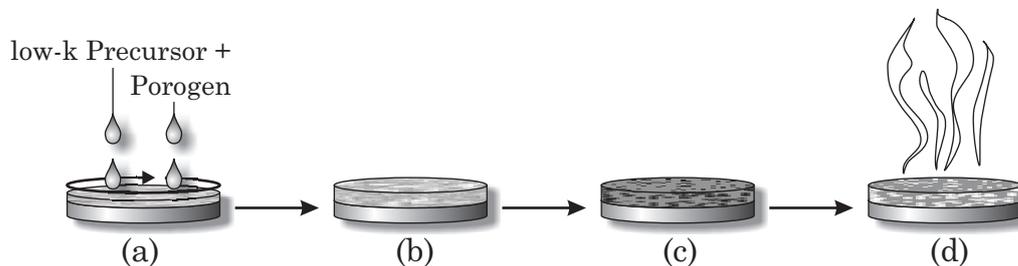


Abb. 4.2: Dargestellt ist der Prozess für die Erzeugung subtraktiver Porosität durch Rotationsbeschichtung. Quelle: [Schu08]

Durch rein thermisches Heizen ist der Wärmeeintrag sehr groß, sodass schon vorhandene Strukturen verändert werden können. Das Elektronenstrahlheizen [Miya04] oder das Heizen mit UV-Licht [Jous09] verkürzt die Behandlungszeit erheblich, wo-

durch der Wärmeeintrag stark verringert wird. Ein großer Vorteil der UV-Behandlung liegt darin, dass durch die Verwendung geeigneter Wellenlängen bestimmte Bindungen aufgebrochen werden können. Dadurch wird das Gerüst der Ausgangssubstanz nicht beschädigt und die Bildung von Si-H, welches für eine Feuchtigkeitsaufnahme verantwortlich ist, wird verhindert.

Eine weitere Möglichkeit zur Herstellung von low-k-Schichten wird durch die subtraktive Porosität innerhalb eines Sol-Gel-Prozesses erreicht. Ausgangspunkt ist eine kolloidale Lösung von Feststoffpartikeln (Sol). Für eine Solsynthese werden als Ausgangsmaterialien oftmals Alkoholate von Metallen oder Nichtmetallen verwendet. Das Gemisch geliert durch Hydrolyse und Kondensationsvorgänge, wodurch der Vernetzungsgrad und die Viskosität ansteigen (pre-Gelation). Dieser Prozess kann durch Katalysatoren gesteuert werden und findet in einer gesättigten Atmosphäre statt. Dadurch wird ein Entweichen des Lösungsmittels verhindert.

Erreicht das Stoffgemisch eine definierte Viskosität, wird es im spin-on-Verfahren auf das Substrat gebracht. Bei fortschreitender Vernetzung bildet sich daraufhin ein stabiles Netzwerk (post-Gelation).

Im Anschluss wird die Schicht getrocknet, wobei das Lösungsmittel in einer ungesättigten Atmosphäre verdunstet. Die durch dieses Verfahren synthetisierten Materialien (Xerogele, Aerogele) unterscheiden sich durch das Trocknungsverfahren [Schu08].

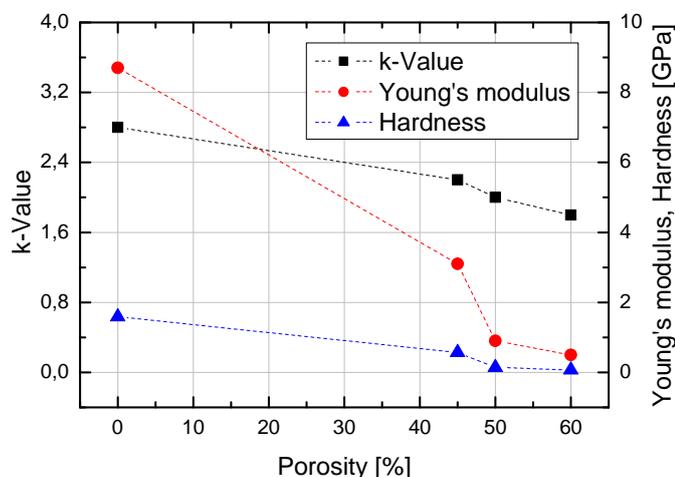


Abb. 4.3: Abhängigkeit der Dielektrizitätskonstante, des E-Modulus und der Härte von der Porosität eines OSG-Materials. Quellen: [Klos02][Schu08]

Erfolgt die Trocknung unter Normalbedingungen, kann die Aerogelstruktur durch Kapillarkräfte und Oberflächenspannungen zerstört werden. Dadurch wird die Schicht verdichtet und schrumpft. Die Porosität dieser Schichten kann bis zu 50 Prozent betragen.

Durch eine überkritische Trocknung lässt sich die Zerstörung der Aerogelstruktur vermeiden. Bei einem ausreichend hohen Druck und einer hohen Temperatur verschwindet die Phasengrenze Flüssigkeit-Gas. Dadurch kann sich keine Oberflächenspannung ausbilden, die zur Schrumpfung führt. Mit diesem Verfahren lassen sich Materialien herstellen, die eine Porosität von über 99 Prozent besitzen [Rebe91].

Bei der Verwendung von porösen Materialien in der Mikroelektronik muss jedoch beachtet werden, dass eine Erhöhung der Porosität durch eine Senkung der mechanischen Stabilität gekennzeichnet ist (E-Modul, Härte) (Abb. 4.3). Weiterhin verschlechtert sich das Durchbruchverhalten beim Anlegen eines elektrischen Feldes durch die erhöhten Feldstärken an den Porenwänden [Yian05]. Auch die Veränderung der chemischen Stabilität und eine verringerte thermische Leitfähigkeit [Schu08] sowie ein von Kupfer verschiedener Ausdehnungskoeffizient [Kaji03] sorgen dafür, dass bei der Verwendung von low-k-Materialien Kompromisse bezüglich der theoretisch erreichbaren Dielektrizitätskonstante eingegangen werden müssen.

4.1.3 Pore-Sealing

Low-k-Materialien mit einem hohen Porositätsgrad besitzen offene Porensysteme, die auch bis an die Oberfläche der Schicht reichen. Durch die poröse Struktur können bei weiteren Verarbeitungsschritten Flüssigkeiten und Gase in die low-k-Matrix gelangen. Weiterhin muss vermieden werden, dass das Kupfer der Leiterbahnen in die low-k-Schicht eingebracht wird.

Um das zu verhindern, wird eine metallische Barrierschicht zwischen die isolierende low-k-Schicht und das Kupfer eingebracht. Dadurch wird auch ein oberflächliches Verschließen der Porensysteme erreicht (Pore-Sealing).

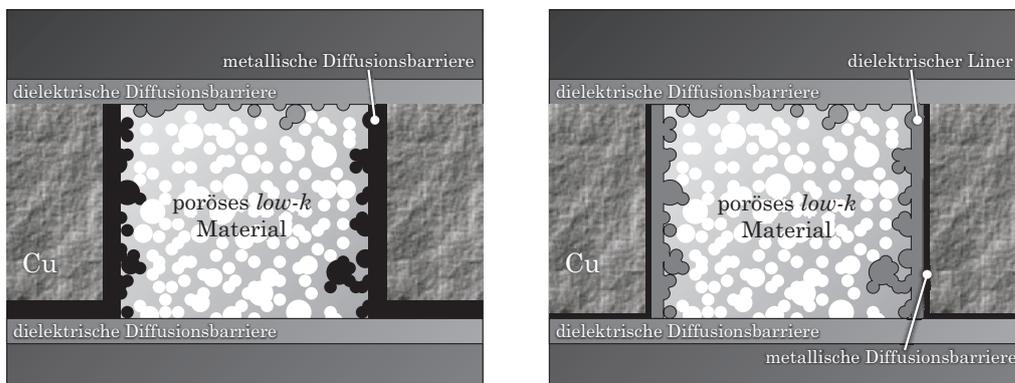


Abb. 4.4: links: Pore-Sealing ohne Verwendung eines dielektrischen Liners.
rechts: Vor dem Aufbringen der metallischen Diffusionsbarriere wird ein dielektrischer Liner auf der low-k-Schicht abgeschieden. Quelle: [Schu08]

Als Barrierematerial wird häufig TaN [Heil05] oder TiN [Satt02] verwendet. Scheidet man das Barrierematerial direkt auf der porösen low-k-Schicht ab, ist die Dicke der Barrierschicht durch die Rauigkeit der low-k-Schicht-Oberfläche vorgegeben. Auch kann das Barrierematerial in die Porensysteme eindringen (Abb. 4.4). Dadurch werden die Elektrodenabstände verringert, was mit einer Erhöhung der elektrischen Feldstärken und einer Erhöhung der Kapazität zwischen den Leiterbahnen verbunden ist.

Ein Lösungsansatz ist das Abscheiden eines Liners (z.B. SiO_2) auf der Oberfläche der

porösen low-k-Schicht [Mour03]. Dadurch können auch Unebenheiten in der low-k-Schicht ausgeglichen werden, wodurch sich die notwendige Stärke der Barrierschicht verringert [Schu08].

Eine andere Möglichkeit wird bei der Plasmabehandlung ausgenutzt. Bei dieser Behandlung wird die Oberfläche der porösen low-k-Schicht unter Verwendung von inerten Gasen (z.B. Argon) mechanisch verdichtet. Die chemischen Bindungen des low-k-Materials werden dabei nur geringfügig beeinflusst [Schu08].

4.1.4 Möglichkeiten zur Charakterisierung der porösen low-k-Schichten

Neben der mechanischen Stabilität, den elektrischen und chemischen Eigenschaften der low-k-Schichten ist vor allem die Porosität hinsichtlich der Porengröße und des Porositätsgrades von Bedeutung. Als Charakterisierungstechniken für poröse Materialien können dabei grundsätzlich Stickstoff-Tieftemperatur-Adsorption, Quecksilberintrusion, die Elektronenmikroskopie und die Röntgenkleinwinkelstreuung verwendet werden. Die beiden ersten Methoden können jedoch nur bei offenen Porensystemen und bei Porengrößen $> 4,9$ nm angewendet werden. Die Transmissions-Elektronen-Mikroskopie (TEM) liefert nur bei ausreichend großen Poren brauchbare Ergebnisse und ist mit einem hohen Präparationsaufwand verbunden. TEM-Untersuchungen an den zur Verfügung stehenden Proben konnten die mit PALS nachgewiesenen Poren nicht auflösen. Für die Röntgenkleinwinkelstreuung werden Proben mit größeren Schichtdicken benötigt. Weiterhin ist eine Auswertung meist nur mit großem mathematischen Aufwand und in Verbindung mit anderen Messmethoden aussagekräftig. Eine tiefenabhängige Charakterisierung der Schichten hinsichtlich der Porengröße und des Porositätsgrades sind mit diesen Messtechniken nicht möglich.

Die zur Verfügung stehenden Proben wurden im Vorfeld mit einer weiteren Messmethode, der ellipsometrischen Porosimetrie (EP) untersucht. Die ellipsometrische Porosimetrie nutzt die Änderungen der optischen Eigenschaften der porösen Filme während der Adsorption und Desorption von Methylbenzol und bestimmt die Menge des Adsorbates in den Poren. Diese Messmethode kann nur bei low-k-Schichten verwendet werden, deren Oberfläche nicht durch eine Plasmabehandlung oder durch das Aufbringen einer metallischen Diffusionsbarriere abgeschlossen ist.

Um diese Beschränkungen zu umgehen, bietet sich die Positronen-Annihilations-Lebensdauer-Spektroskopie an. Mit dieser Messmethode können auch Schichten mit isolierten Poren und Schichten, die durch eine Plasmabehandlung oder eine metallische Diffusionsbarriere verschlossen sind, untersucht werden.

4.1.5 Selbstorganisierende low-k-Materialien

Die Erhöhung der Porosität der low-k-Schicht führt dazu, dass die Schichten an mechanischer Stabilität verlieren. Deshalb wurden am Fraunhofer-Institut IZFP-D Versuche unternommen, die Anordnung der Poren zu strukturieren (Abb. 4.5) [Seif10]. Durch die Strukturierung kommt es nicht zu einer zufälligen Verbindung der Poren, wodurch sich die Stabilität bei einer gleichzeitigen Erhöhung der Porosität verbessert. Neben den verbesserten mechanischen Eigenschaften sind diese Materialien auch hydrophob [Smir11].

Die Verfahrensweise zur Herstellung von selbstorganisierenden porösen Materialien wurde in [Beck92] erstmals beschrieben. Die Ausgangsmaterialien waren in wässriger Lösung vorliegende amphiphile Moleküle (Tenside) und Silika-Ausgangssubstanzen (Precursor). Durch die Selbstassemblierung der Tenside bilden sich Mizellen. Die hydrophoben Enden der Tenside lagern sich in der Mitte aneinander an. Die hydrophilen Kopfgruppen (Alkylgruppen) sind nach außen zur wässrigen Phase ausgerichtet.

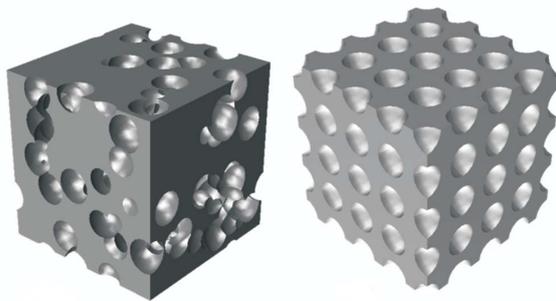


Abb. 4.5: Vergleich zwischen nicht organisierten und organisierten low-k-Materialien. Bei den nichtorganisierten Schichten können sich schon bei geringer Porosität Porensysteme ausbilden, was die Stabilität der Schicht beeinflusst. Quelle: [Yeap13]

Die Mizellen bilden dabei die Vorlage für die späteren Poren und übernehmen die Aufgabe des Porogens. Durch die Länge der Alkylgruppe kann der gewünschte Porendurchmesser eingestellt werden. Durch die Zugabe des Silika-Precursors ordnen sich die Mizellen. Im Anschluss kommt es zu einer Kondensation der Silikatanionen des Precursors an den Mizellen und somit zur Entstehung einer Netzwerkstruktur um die Mizellen [Muet10] [Jaeh08].

Das Material wird daraufhin durch das spin-on-Verfahren in der gewünschten Schichtdicke auf das Substrat aufgebracht. Durch eine thermische Behandlung werden die organischen Bestandteile ausgetrieben, wodurch eine poröse Schicht zurückbleibt.

Die in Abschnitt 4.3 untersuchten Organosilicate Glass (OSG)-Schichten mit einheitlichen Mikroporen wurden in einem ähnlichen selbstorganisierenden Prozess erzeugt [Smir11]. Dazu wurde eine auf Alkohol basierende hydrolysierte alkylierte Siliziumdioxidlösung mit amphiphilic Triblock-Copolymeren in einem Sol-Gel-Prozess hergestellt [Zhao98]. Diese Lösung wird durch das spin-on-Verfahren auf das Si-Substrat gebracht. Die amphiphilic Triblock-Copolymere dienen dabei als Porogen. Durch eine Wärmebehandlung wird das Polymer ausgetrieben und hinterlässt ein geordnetes

poröses SiO_2 -Netzwerk mit Alkylgruppen. Die Alkylgruppen passivieren dabei die Oberflächen der Poren und der Schicht.

Die für die PAS-Untersuchung zur Verfügung gestellten low-k-Schichten besitzen einen k-Wert von 1,82 bis 2,45. Die Porosität liegt zwischen 24 % und 49 %.

4.2 PAS-Untersuchungen an low-k-Schichten

Die verschiedenen low-k-Schichten wurden mit den Positronenstrahlssystemen MePS (Lebensdauer-Spektroskopie) und POSSY (Doppler-Verbreiterungs-Spektroskopie) untersucht. Für beide Systeme ist es erforderlich, die Eindringtiefen bei den verschiedenen Positronenenergien zu bestimmen. Exemplarisch sind dazu für einige Energien die Eindringprofile und die Halbwertsbreite der Verteilung in Abhängigkeit von der Implantationsenergie der Positronen dargestellt (Abb. 4.6).

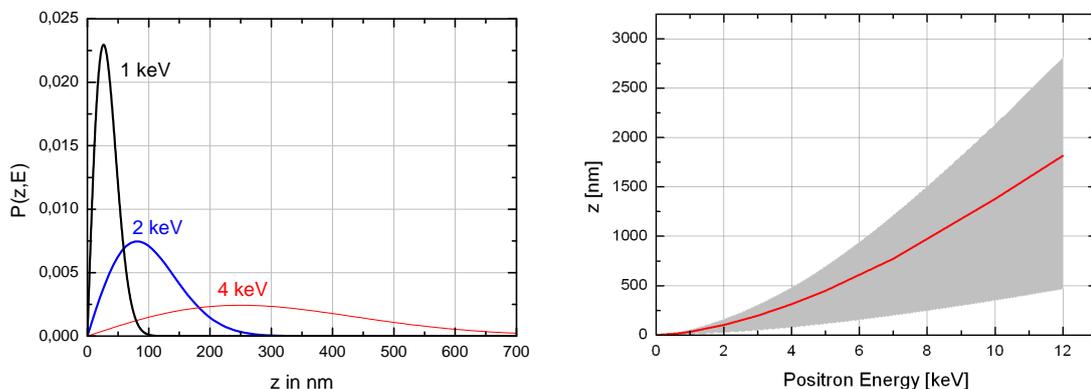


Abb. 4.6: links: Makhov Eindringprofil für verschiedene Positronenimplantationsenergien bei einer Dichte von $1,21 \text{ g/cm}^3$.

rechts: Die rote Linie zeigt die mittlere Eindringtiefe der Positronen in Abhängigkeit von der Implantationsenergie der Positronen. Die Halbwertsbreite der Makhov-Verteilung ist grau dargestellt.

Für kleine Implantationsenergien bis etwa 2 keV liegt die mittlere Eindringtiefe im Bereich von wenigen Nanometern bis 100 nm. Es ist aber ersichtlich, dass die gemessenen Spektren zu höheren Energien hin Informationen aus einem weiten Bereich der Schicht enthalten. Beachtet werden muss ebenfalls, dass bei Implantationstiefen, welche sich im Bereich der Diffusionsweglänge der Positronen bewegen (je nach Material bis zu 100 nm), die Positronen wieder die Oberfläche der Schicht erreichen können. Dort werden sie, sofern es sich nicht um Materialien mit einer negativen Austrittsarbeit für Positronen handelt, im Oberflächenpotenzial gefangen.

Die Positronen können im Oberflächenpotenzial mit einem Elektron zerstrahlen oder Positronium bilden. Im ersten Fall kann durch die geringere Elektronendichte an der Oberfläche eine lange Lebensdauer von bis zu 500 ps auftreten und so einen Beitrag zur PALS-Messung geben, der nicht der Struktur zuzuschreiben ist. Bildet sich

Positronium, bleibt es durch seine Neutralität nicht mehr im Oberflächenpotenzial gefangen und kann in das Vakuum entweichen. Dort wird es in drei γ -Quanten zerstrahlen und sich in der relativen 3γ -Annihilationsrate widerspiegeln.

4.2.1 PALS-Messungen der low-k-Schichten

Die mit der Positronen-Annihilations-Lebensdauer-Spektroskopie untersuchten low-k-Schichten wurden mit dem in Abschnitt 4.1 beschriebenen spin-on-Verfahren zur Erzeugung einer subtraktiven Porosität hergestellt. Alle Proben wurden einer Wärmebehandlung zum Austreiben des Porogens ausgesetzt. Die Zeit dieser Behandlung liegt im Sekundenbereich. Die Probe **N1A** wurde nach diesem Prozess nicht weiterbehandelt. Bei den Proben **N3A** und **N5A** wurde die Oberfläche zusätzlich durch eine Plasmabehandlung mit 300 W und 600 W verdichtet. Eine TiN-Schicht mit einer Stärke von 10 nm und 20 nm wurde auf den Proben **N7A** und **N9A** aufgebracht. Eine Plasmaverdichtung wurde bei diesen beiden Proben nicht durchgeführt. Weitere Informationen über die Herstellung der Proben sind aufgrund der Geheimhaltung nicht verfügbar.

Mit PALS soll festgestellt werden, welche Größe die entstandenen Poren haben und ob sich diese durch die Behandlung der Schichten verändern. Die PALS-Messungen wurden am in Kapitel 2 vorgestellten MePS-System durchgeführt. Es handelte sich dabei um die ersten Messungen, die mit diesem Aufbau durchgeführt wurden. Die Zeitauflösung des Systems von unter 600 ps ist ausreichend, da die zu erwartenden langen Lebensdauerkomponenten, welche Informationen über die Porengröße liefern, im Nanosekundenbereich liegen.

Die Spektren für Proben dieser Beschaffenheit setzen sich aus mindestens drei Lebensdauerkomponenten zusammen (Abschnitt 2.3). Durch die Zeitauflösung von 600 ps ist es aber nicht möglich, die Komponenten für Parapositronium (125 ps), die ohne Positroniumbildung annihilierenden Positronen in den Poren (500 ps) und die bei größeren Positronenimplantationsenergien auftretende Komponente von Silizium (219 ps) voneinander zu trennen. Diese Lebensdauerkomponenten können bei der Auswertung nur in einer Lebensdauerkomponente τ_1 zusammengefasst werden.

Eine zweite und dritte Lebensdauerkomponente der bei diesen Untersuchungen erhaltenen Spektren ist für die Auswertung die entscheidende Größe. Durch das in Abschnitt 2.4 vorgestellte Tao-Eldrup-Modell kann von den langen Lebensdauerkomponenten auf die Porengröße in den Schichten geschlossen werden.

Um Informationen über die gesamte Schicht zu bekommen, wurden Positronenimplantationsenergien von 2 keV bis 10 keV in 1 keV Schritten gewählt. Da die Ansterelektronik für den Beschleuniger zu diesem Zeitpunkt noch nicht fertiggestellt war, konnte nicht unter einer Implantationsenergie von 2 keV gemessen werden.

Als Beispiel sind die Spektren aller Proben bei einer Implantationsenergie von 5 keV in Abbildung 4.7 dargestellt. Deutlich zu erkennen ist, dass die unbehandelte

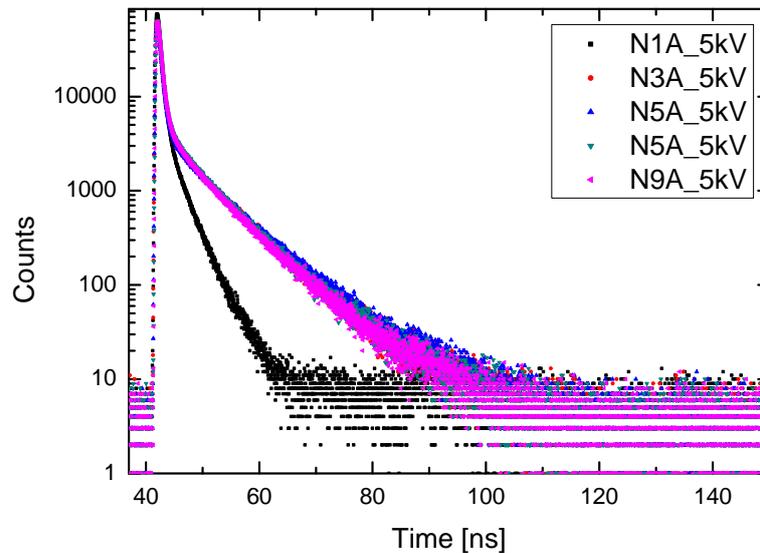


Abb. 4.7: Dargestellt sind die Lebensdauerspektren der low-k-Schichten bei der gleichen Implantationsenergie von 5 keV. Diese Energie entspricht einer mittleren Eindringtiefe von 450 nm. Zu erkennen ist, dass die unbehandelte Probe N1A eine kürzere Lebensdauerkomponente besitzt. Die Lebensdauerkomponenten der anderen Proben zueinander unterscheiden sich nur geringfügig.

Probe N1A eine geringere Lebensdauer als die behandelten Proben aufweist. Die Lebensdauerspektren der plasmaverdichteten low-k-Schichten und die mit den TiN-Schichten verschlossenen low-k-Schichten haben nur geringe Abweichungen voneinander.

Die unbehandelte Probe N1A

Die Auswertung mit dem Programm LT 9.2 zeigt, dass die unbehandelte Probe N1A eine lange Lebensdauerkomponente $\tau_2 = 2,99 \text{ ns} \pm 0,09 \text{ ns}$ besitzt (Abb. 4.8). Das entspricht einer Hohlraumgröße von $d = 0,72 \text{ nm} \pm 0,08 \text{ nm}$. Die Unsicherheit in der Bestimmung der Hohlraumgröße kommt vor allem dadurch zustande, dass keine Aussagen über die Geometrie dieser Hohlräume getroffen werden kann. Die geringe Erhöhung der Lebensdauer bei 2 keV kommt durch den Einfluss von Oberflächeneffekten zustande. Es kann davon ausgegangen werden, dass die Schicht bezüglich der Hohlraumgröße sehr homogen ist. Diese Lebensdauerkomponente kann durch Vergleiche mit anderen PALS-Messungen der Methyl-Silsesquioxane Matrix zugeschrieben werden [Gidl06]. Es handelt sich hierbei nicht um Hohlräume, die durch einen Herstellungsprozess für die Erzeugung subtraktiver Porosität entstehen (Abb. 4.2). Eine weitere lange Lebensdauerkomponente, welche die Anwesenheit von größeren Poren anzeigt, wurde in der Probe nicht nachgewiesen. Diese sollte jedoch nach dem Austreiben des Porogens vorhanden sein. Es muss davon ausgegangen werden, dass die Zeit der thermischen Behandlung nicht ausreichend ist. Zur Klärung

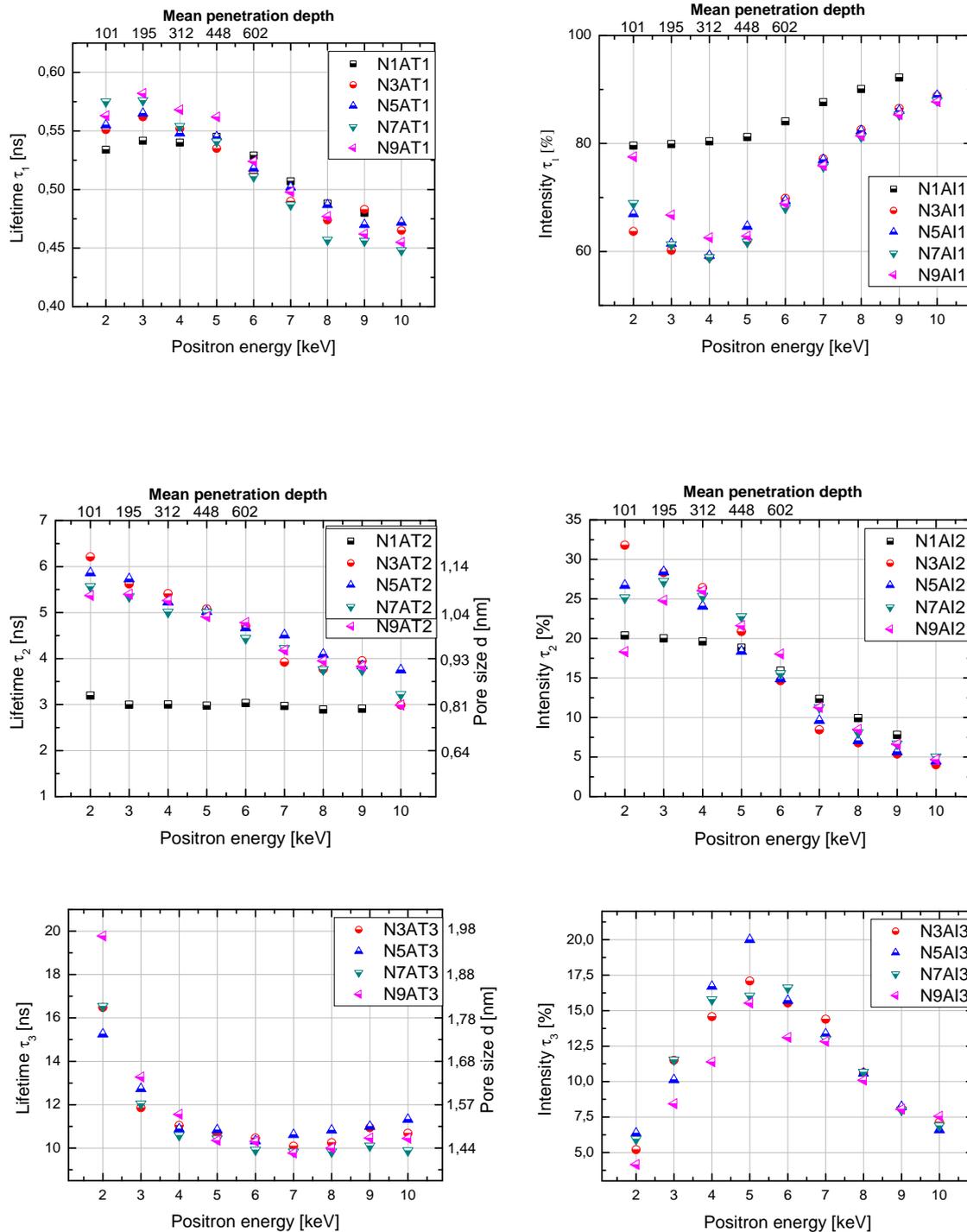


Abb. 4.8: Dargestellt sind die Lebensdauerkomponenten τ_1 bis τ_3 mit den dazugehörigen Intensitäten für die untersuchten low-k-Schichten in Abhängigkeit von der Implantationsenergie der Positronen. Weiterhin ist für τ_2 und τ_3 der nach dem erweiterten Tao-Eldrup-Modell berechnete Porendurchmesser angegeben.

dieses Sachverhaltes wird auf den Abschnitt 4.2.4 verwiesen.

Plasmaverdichtete und mit einer TiN-Schicht versehenen low-k-Schichten

Bei den behandelten Proben ist eine Auswertung mit zwei längeren Lebensdauerkomponenten τ_2 und τ_3 sowie einer langen Lebensdauerkomponente τ_2 unter Berücksichtigung einer Größenverteilung der Poren möglich. Die Varianz und die Residuen zeigen dabei kaum Unterschiede. Wird nur eine lange Lebensdauerkomponente angenommen, liegt die Porengrößenverteilung im Bereich von 0,6 nm bis 1,8 nm (Abb. 4.9). Eine Auswertung mit zwei langen Lebensdauerkomponenten, bei der eine Komponente eine Verteilung in der Porengröße aufweist, verschlechtert die Varianz und die Residuen deutlich.

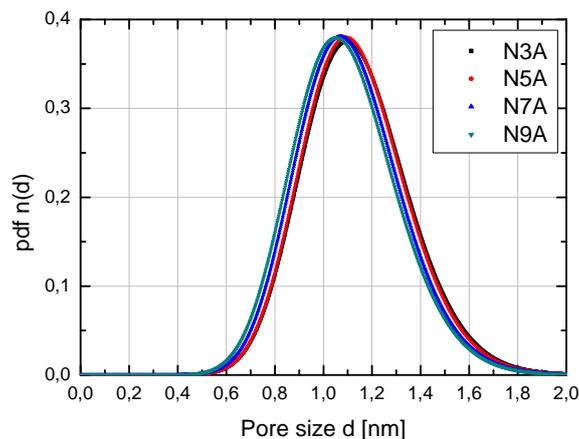


Abb. 4.9: Porengrößenverteilung in den low-k-Schichten bei einer Implantationsenergie der Positronen von 6 keV. Die Auswertung erfolgte unter Annahme einer langen Lebensdauerkomponente mit einer Verteilung.

Unter Beachtung von vorangegangenen Untersuchungen an ähnlichen Materialien [Gidl06] kann die Auswertung nur mit zwei langen Lebensdauerkomponenten erfolgen. Die Komponente τ_2 stammt dabei von der Methyl-Silsesquioxane Matrix. Mithilfe einer weiteren langen Lebensdauerkomponente τ_3 können Aussagen über die Größe der Poren getroffen werden. Die Entstehung der Poren in den Schichten kann damit erklärt werden, dass die Proben während der Plasmaverdichtung und dem Aufbringen der TiN-Schichten längere Zeit einer thermischen Belastung ausgesetzt waren. Diese Belastung scheint im Gegensatz zum eigentlichen Curing-Prozess auszureichen, um das Porogen aus der Schicht zu entfernen.

In der Abbildung 4.8 sind die erhaltenen Ergebnisse dargestellt. In der ersten Positronenlebensdauerkomponente τ_1 sind die Lebensdauer des p-Ps, der Positronen, die kein Positronium in den Poren gebildet haben und die Bulklebensdauer vom Silizium enthalten. In der Schicht (5 keV Implantationsenergie der Positronen) liegt diese bei $540 \text{ ps} \pm 20 \text{ ps}$. Zu höheren Eindringtiefen der Positronen nimmt der Wert der Lebensdauerkomponente τ_1 ab, da mehr Positronen das Bulkmaterial erreichen und somit die Lebensdauerkomponente vom Silizium einen höheren Beitrag leistet. Das spiegelt sich auch im Anstieg der Intensität für diese Lebensdauerkomponente wider.

Die Erhöhung der Intensität I_1 für die behandelten Proben mit einer Implantationsenergie der Positronen von weniger als 4 keV lässt sich darauf zurückführen,

dass durch das Aufbringen der TiN-Deckschicht in diesem Schichtbereich keine Positroniumbildung stattfindet. Durch die erhöhte Dichte werden weiterhin viele Positronen in der TiN-Schicht gestoppt. Die durch die Plasmabehandlung verdichteten Schichten verhalten sich ähnlich. Da Informationen zur Stärke und zur Dichte der verdichteten Schicht fehlen, kann der Anteil der in diesem Bereich gestoppten Positronen nicht bestimmt werden. Dadurch ist es auch nicht möglich, Aussagen über das Vorhandensein von Poren in diesem Schichtbereich zu treffen.

Für die Proben mit der aufgetragenen TiN-Deckschicht wird in Abb. 4.10 eine Abschätzung über den Anteil der gestoppten Positronen in diesen Schichten angegeben. Bei einer Implantationsenergie von 2 keV und einer TiN-Schichtdicke von 20 nm werden 40 % der Positronen auf thermische Energie abgebremst. Da sich die Diffusionsweglänge der Positronen ebenfalls in diesem Bereich bewegt, ist eine Aussage darüber, wie viele Positronen nur Informationen aus der TiN-Schicht liefern, nicht möglich.

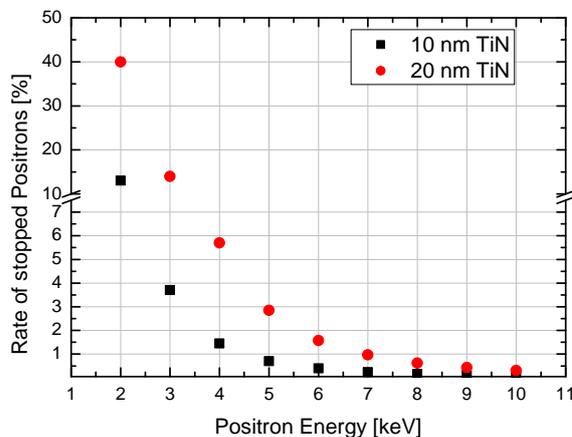


Abb. 4.10: Aufgetragen ist der Anteil der Positronen in Abhängigkeit von der Implantationsenergie, welche in der TiN-Schicht mit einer Stärke von 10 nm und 20 nm thermalisiert werden.

Die dritte Lebensdauerkomponente τ_3 der behandelten Proben nimmt von kleinen Implantationsenergien bis zu einer Implantationsenergie von 5 keV ab. Die Intensität I_3 steigt dagegen in diesem Bereich an. Daraus kann gefolgert werden, dass sich in den oberen Bereichen der low-k-Schicht durch die Plasmabehandlung und das Aufbringen der TiN-Schicht größere, aber weniger Poren als in den tieferen Schichtbereichen bilden. Um die Ergebnisse der PALS-Messungen zu verifizieren, wurden S- und W-Parametermessungen an den gleichen Proben durchgeführt. Diese werden im folgenden Kapitel vorgestellt.

4.2.2 S- und W-Parametermessungen der low-k-Schichten

S-Parameter

Der in Abschnitt 2.9 beschriebene S-Parameter ist sensitiv auf die Porengröße und den Volumenanteil der Poren am Gesamtvolumen. Bei den untersuchten porösen Materialien muss aber auch der Einfluss der vermehrten Positroniumbildung berücksichtigt werden. Die bei der Zerstrahlung des o-Ps beteiligten Elektronen sind

nicht an den Atomen gebunden. Dadurch kommt es nur zu einer geringen Doppolverbreiterung, was zu einem schmaleren Peak führt. Diese drei Informationen können bei der S-Parameterauswertung nicht getrennt werden und erschweren eine Interpretation der gewonnenen Daten.

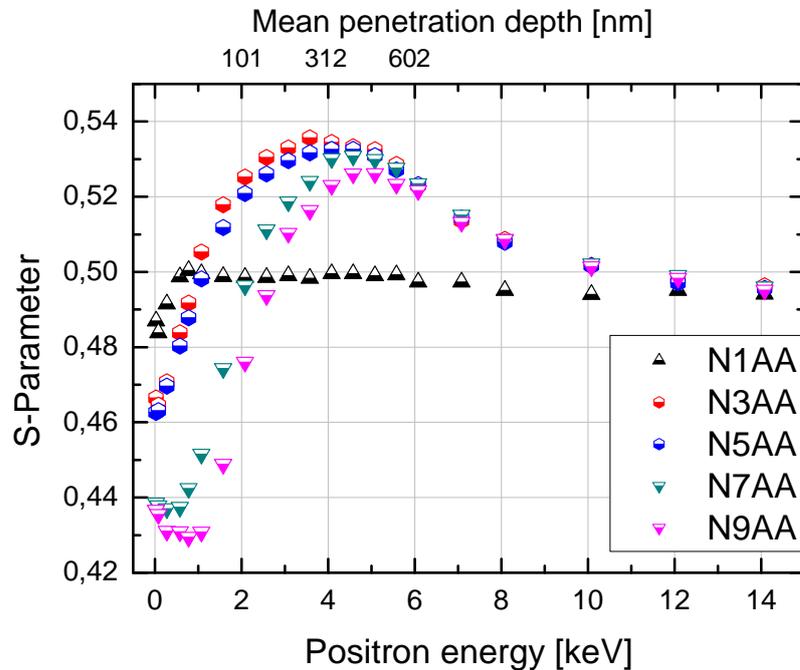


Abb. 4.11: S-Parameter der low-k-Schichten in Abhängigkeit von der Implantationsenergie der Positronen.

Um abzuschätzen, ob Veränderungen in den Schichten stattfinden, ist dieser Parameter jedoch ausreichend. Dabei muss jedoch beachtet werden, dass gerade bei geringen Implantationsenergien der Positronen auch die Oberfläche einen Einfluss auf die erhaltenen Daten besitzt.

Die in Abbildung 4.11 gezeigten Messwerte wurden mit dem Positronenstrahlsystem SPONSOR [Anwa12a] am HZDR ermittelt. Dieses System ist ähnlich dem in Abschnitt 2.6 vorgestellten Positronenstrahlsystem POSSY an der MLU Halle-Wittenberg.

Wie schon bei den PALS-Messungen ermittelt, ist die Schicht der unbehandelten Probe N1A sehr homogen. Der S-Parameter besitzt ab einer mittleren Eindringtiefe der Positronen von 14 nm keine signifikanten Unterschiede. Das Fehlen einer Veränderung des S-Parameters zwischen der Schicht und dem Si-Substrat kann nicht interpretiert werden. Möglich ist ein zufällig gleicher S-Parameter.

Der Abfall im oberflächennahen Bereich kann mit der Bildung von Positronium an der Oberfläche begründet werden. Der Einfluss ist aber nur bis zu einer Implantationsenergie von 0,6 kV, welche einer mittleren Eindringtiefe von 14 nm entspricht, zu beobachten. Die plasmaverdichteten low-k-Schichten sowie die mit einer TiN-Deckschicht versehenen Schichten zeigen jedoch eine starke Änderung des

S-Parameters über einen großen Bereich. Bei den mit TiN beschichteten low-k-Schichten ist bei geringen Implantationsenergien ein deutliches Plateau zu erkennen. Ab 0,8 keV /1,5 keV (10 nm /20 nm Deckschicht) steigt der S-Parameter bis zum Maximum an. Dieses Verhalten steht im Einklang mit der Intensität I_3 der PALS-Messungen. Das Abfallen des S-Parameters zu höheren Energien hin ist wieder auf den Einfluss des Si-Substrates zurückzuführen.

Bei den plasmaverdichteten Schichten ist dieses Plateau nicht zu erkennen, was mit einem kontinuierlichen Übergang erklärt werden kann. Deutlich wird aber, dass beide Verfahren zu Veränderungen und Inhomogenitäten in der Schicht führen. Diese Inhomogenitäten sind jedoch nicht gewünscht. Aufgrund dieser Erkenntnis werden Fertigungsschritte optimiert, die die Verdichtung der Oberfläche mit einem geringeren Energieeintrag ermöglichen.

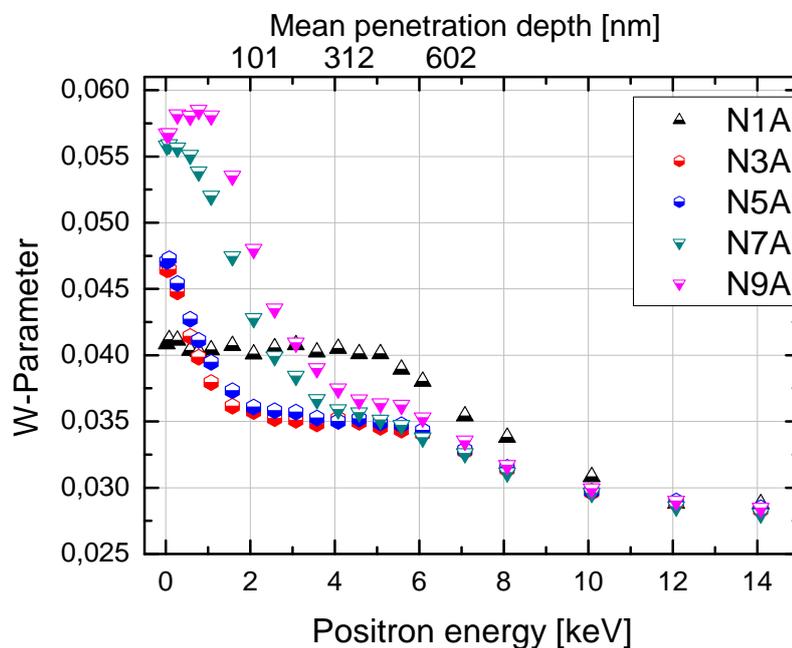


Abb. 4.12: W-Parameter der low-k-Schichten in Abhängigkeit von der Implantationsenergie der Positronen.

W-Parameter

Der W-Parameter wurde aus demselben Datensatz ermittelt und ist sensitiv auf die chemische Umgebung des Ortes der Annihilation (Abschnitt 2.9). Die Probe N1 in Abb. 4.12 zeigt dabei ein sehr homogenes Verhalten. Daraus kann geschlossen werden, dass sich die chemischen Eigenschaften in der Schicht nicht ändern.

Bei den plasmaverdichteten Proben fällt der W-Parameter von der Oberfläche bis zu einer mittleren Eindringtiefe der Positronen von 150 nm ab. Die Plasmaverdichtung führt somit zu einer Inhomogenität der chemischen Umgebung des Annihilationsortes. Zwischen einer mittleren Eindringtiefe der Positronen von 150 nm bis 450 nm

zeigt sich ein Plateau. In diesem Bereich verändert sich die chemische Umgebung für die an der Annihilation beteiligten Positronen nicht.

Die mit einer Deckschicht aus TiN versehenen Proben zeigen ein ähnliches Verhalten. Deutlich zu erkennen sind auch hier die unterschiedlich starken TiN-Deckschichten. Der Abfall des W-Parameters bis zu einer mittleren Eindringtiefe der Positronen von 450 nm zeigt, dass diese Behandlung die Schicht stärker verändert als die plasmaverdichteten Schichten. Neben einer chemischen Veränderung, welche durch die thermische Einwirkung verursacht wird, ist es in diesem Fall auch möglich, dass das TiN in die Schicht eindringt und dadurch eine Erhöhung des W-Parameters in der Schicht hervorruft.

Untersuchungen mit der Transmissions-Elektronen-Mikroskopie haben gezeigt, dass TiN in die Probe eindringt und diese Vermutung nicht ausgeschlossen werden kann (Abb. 4.13). Durch die in Abschnitt 4.1.3 aufgeführten Arbeitsschritte kann das Eindringen von TiN in die low-k-Schicht jedoch verhindert werden.

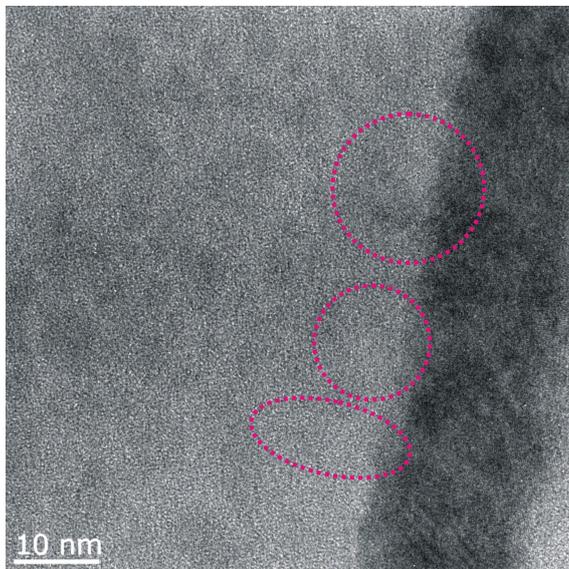


Abb. 4.13: Die low-k-Schicht (links) wird mit einer TiN-Schicht (dunkler Bereich) abgeschlossen. In den markierten Bereichen sind Gitterstrukturen zu erkennen, die auf das Vorhandensein von TiN in der low-k-Schicht zurückzuführen sind.

4.2.3 Messung der relativen 3γ -Annihilationsrate

Durch die Messung der relativen 3γ -Annihilationsrate kann eine Abschätzung darüber getroffen werden, ob sich verschiedene Proben hinsichtlich der Anzahl und der Größe der Poren voneinander unterscheiden. Diese Information kann genutzt werden, um die Proben für ein geplantes PALS-Experiment auszuwählen.

Trifft das Positron auf ein poröses Material, besteht die Möglichkeit, dass sich zwischen den Molekülen oder an den Porenwänden Positronium bildet. Das zwischen den Molekülen gebildete Positronium diffundiert zu den Poren und wird von diesen gefangen. Das o-Ps kann dann an den Porenwänden über die pick-off Annihilation in zwei γ -Quanten zerstrahlen. Ein Teil des o-Ps zerstrahlt im Inneren der Poren durch Selbstannihilation in drei γ -Quanten. Der Anteil der 3γ -Annihilation nimmt

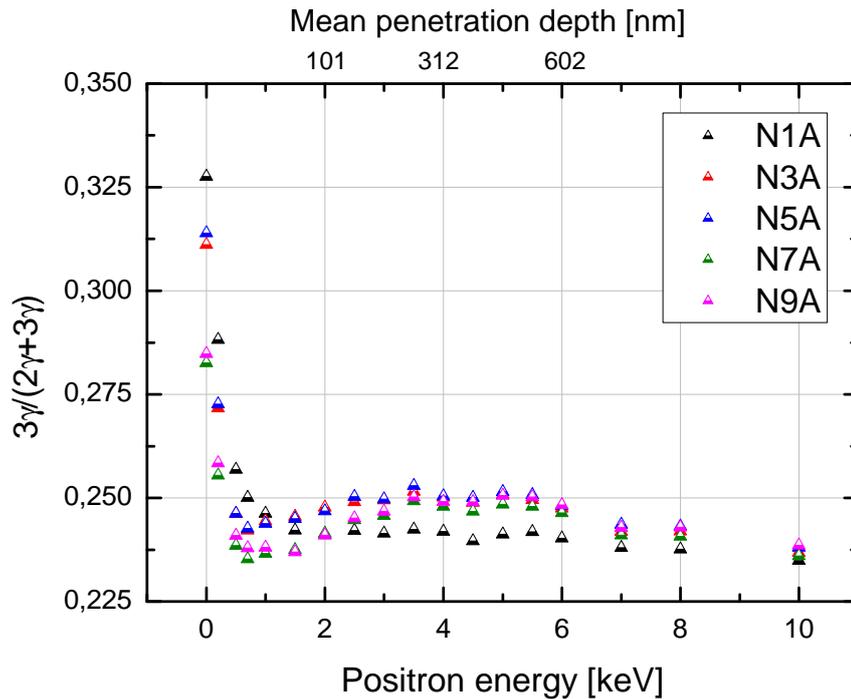


Abb. 4.14: Dargestellt ist die relative 3γ -Annihilationsrate. Bei der unbehandelten Probe fällt die Rate bis zu einer Energie von 1,5 keV ab. Danach ist nur noch ein geringfügiger Abfall zu erkennen. Die behandelten Proben zeigen ebenfalls einen Abfall, steigen aber im Inneren der Probe an, um sich dann im Substrat den Werten der unbehandelten Probe anzunähern.

mit zunehmender Größe der Poren zu. Berühren sich die einzelnen Poren, wirkt es für das Positronium wie eine größere Pore. Der Anteil der 3γ -Annihilation wird dadurch ebenfalls erhöht.

Die in Abbildung 4.14 dargestellte Messung der relativen 3γ -Annihilationsrate zeigt, dass sich die Proben nach der Behandlung von der Probe N1A unterscheiden. Die erhöhte relative 3γ -Annihilationsrate in der Nähe der Schichtoberfläche ist auf die Bildung von Positronium an der Oberfläche zurückzuführen. Bei der unbehandelten Schicht N1A bleibt der Wert ab einer mittleren Eindringtiefe der Positronen von 63 nm nahezu konstant und wird nur noch durch den Einfluss des Si-Substrates bei höheren Implantationsenergien erniedrigt.

Das Ratenverhältnis der plasmaverdichteten Schichten und der mit einer TiN-Deckschicht versehenen Schichten fällt bis zu einer Implantationsenergie der Positronen von 0,8 keV ab. Danach steigt das Ratenverhältnis wieder an, bis sich der Einfluss des Si-Substrates bemerkbar macht. Diese Ergebnisse zeigen, dass in den behandelten Proben mehr oder größere Poren vorhanden sind. Obwohl mit dieser Messung keine qualitative Aussage über die Porengröße und Anzahl der Poren möglich ist, könnte dieses Verfahren durch den relativ geringen Aufwand in der Produktion zur

Qualitätskontrolle eingesetzt werden.

4.2.4 Temperaturabhängige Messung des S-Parameters

Die in Kapitel 4.2 dargestellten Ergebnisse der PALS-Messung zeigen, dass sich die Porengröße der unbehandelten Probe von den Porengrößen der behandelten Proben unterscheidet. Alle Proben haben dabei den Curing-Prozess durchlaufen. Es sollte sich deshalb kein Porogen in den low-k-Schichten befinden. Die durchgeführten Messungen zeigen aber, dass in der unbehandelten Probe N1A keine Poren vorhanden sind, sich das Porogen also vermutlich noch in der Schicht befindet. Zur Überprüfung dieser Aussage wurden temperaturabhängige Messungen mit der Doppler-Verbreiterungs-Spektroskopie durchgeführt. Als Messsystem wurde das Positronenstrahlensystem POSSY in Halle verwendet.

Um die Einflüsse auf das Material so gering wie möglich zu halten, wird ein Probenhalter mit integrierter Heizung verwendet. Die Probe kann während der gesamten Messzeit im Vakuum verbleiben. Die Probe wird dann auf die jeweilige Temperatur erhitzt. Die Temperatur wird 30 Minuten konstant gehalten und danach mithilfe von flüssigem Stickstoff, welcher von außen durch den Probenhalter geführt werden kann, schnell abgekühlt.

Die Messungen starten bei Raumtemperatur. Die Temperatur wird für die einzelnen Messungen in mehreren Schritten bis auf 718 K erhöht. Dabei zeigt sich, dass sich auch bei geringen Temperaturen Veränderungen in der low-k-Schicht abzeichnen (Abb. 4.15). Aufgrund der Tatsache, dass sich die Probe längere Zeit an der Luft befand, muss überprüft werden, ob es sich dabei um eingetretene Gase oder Feuchtigkeit handelt. Die Erhöhung der S-Parameterwerte mit der Temperatur lassen den Schluss zu, dass bestimmte Bestandteile des Porogens bei verschiedenen Temperaturen ausgetrieben werden. Auf Messungen über 718 K wurde verzichtet, da die Schicht bei höheren Temperaturen zerstört wird.

Die Ergebnisse führten dazu, dass an einer Probe der gleichen Serie N1A eine Restgasanalyse durchgeführt wurde. Dazu wurde die Probe im Vakuum auf eine Temperatur von 300 °C erwärmt. Die Verbindung zum Massenspektrometer und zur Pumpstation wurde erst nach einiger Zeit wieder hergestellt, da sich bei den dünnen Schichten das nur in geringen Mengen austretende Porogen schlecht nachweisen lässt. Die erhaltenen Daten sind in der Grafik 4.16 dargestellt.

Die Untersuchung wurde in drei Schritten durchgeführt. Die erste und zweite Messung gibt Aufschluss über den Einfluss der Vakuumkammer und des reinen Matrixmaterials SiCOH auf die Untersuchung. Bei der dritten Messung wird die low-k-Schicht analysiert. Bei geringen Massenzahlen (bis etwa 40) unterscheiden sich die Ergebnisse kaum voneinander. Zu größeren Massenzahlen hin sind Abweichungen zwischen den ersten beiden und der letzten Analyse erkennbar. Es zeigt sich, dass aus der porösen Probe Kohlenwasserstoffe austreten, die dem Porogen zugeschrieben

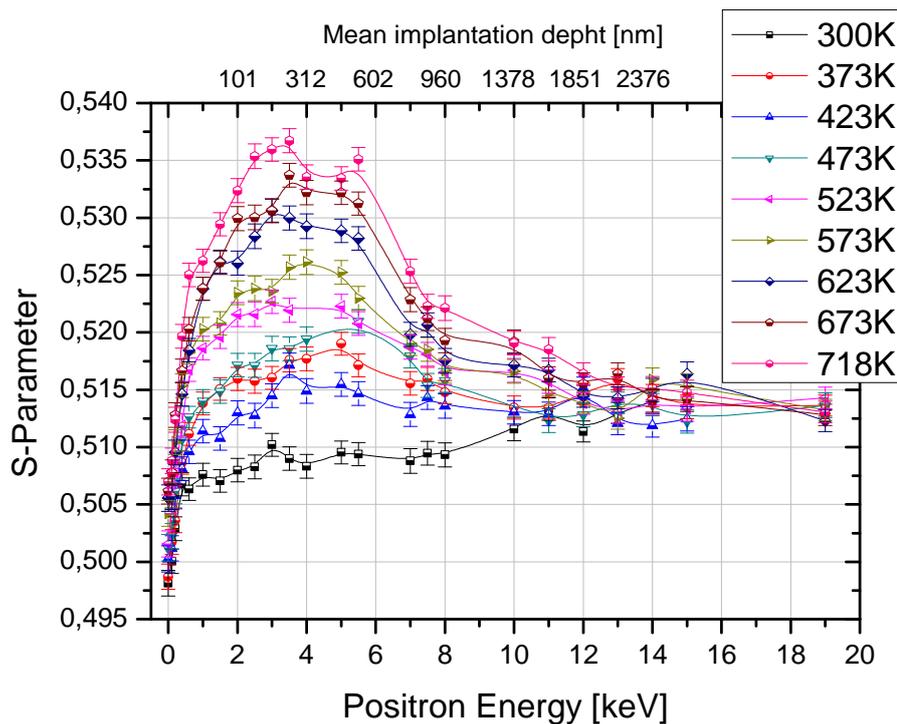


Abb. 4.15: Dargestellt ist die Veränderung des S-Parameters in Abhängigkeit von der Temperatur. Die Probe wurde 30 Minuten auf die gewünschte Temperatur gebracht und danach wieder abgekühlt. Durch einen Hard- und Softwarewechsel am Positronenstrahlssystem wurde die Probe nicht bei allen Energien komplett vom Strahl getroffen. Das zeigt sich besonders deutlich bei einer Energie von 4 keV und 5 keV.

werden können. Die Vermutung, dass der eigentliche Curing-Prozess nicht ausreichend ist, um das Porogen aus der Schicht zu entfernen, hat sich damit bestätigt.

4.2.5 Zusammenfassung

In den vorangegangenen Abschnitten wurde gezeigt, wie die Positronen-Annihilations-Spektroskopie zur Untersuchung von porösen low-k-Schichten eingesetzt werden kann. Dabei hat sich die Aufgabenstellung während der Untersuchung verändert. Am Anfang der Untersuchungen sollte nur die Größe der Poren bestimmt werden. Die PALS-Messungen am MePS-System lieferten diese Information. Gleichzeitig stellte sich aber die Frage, warum die Probe N1A keine Poren enthält. Durch die temperaturabhängige S-Parametermessung konnte die Vermutung, dass sich das Porogen noch in der Probe befindet, erhärtet werden. Daraufhin durchgeführte massenspektrometrische Untersuchungen konnten einen Austritt von Kohlenwasserstoffen aus der Schicht nachweisen.

Weiterhin zeigte sich, dass auch die W-Parametermessungen sowie die Auswertung

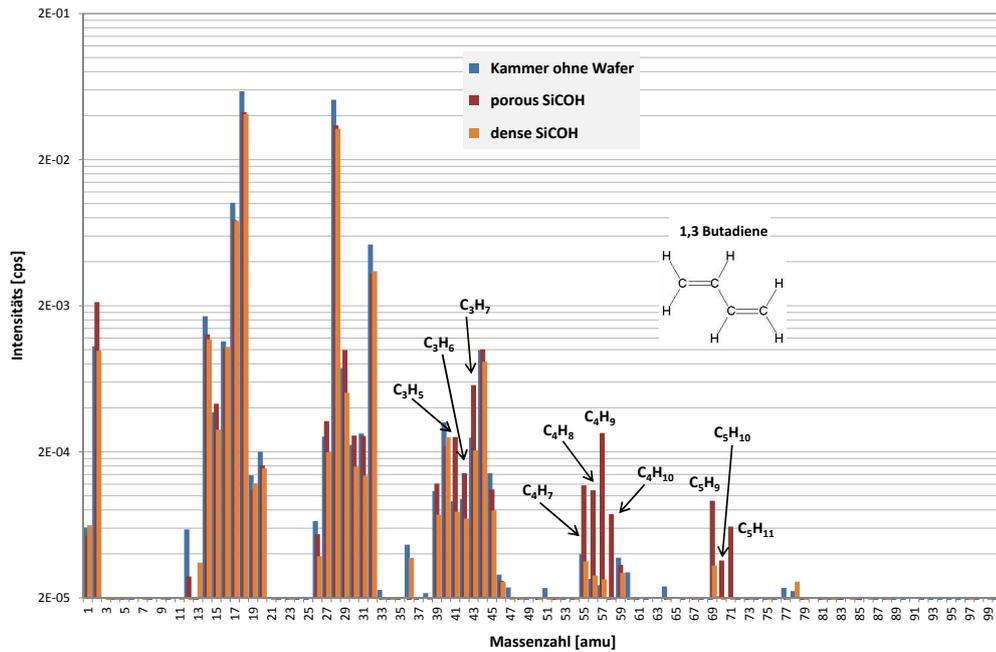


Abb. 4.16: Die Restgasanalyse zeigt, dass sich viele organische Bestandteile in der low-k-Schicht befinden, welche durch die Erwärmung der Probe auf 300 °C aus der Probe ausgetrieben werden. Quelle: [Ahne13]

der relativen 3γ -Annihilationsrate Informationen über die low-k-Schichten liefern. Die W-Parametermessung zeigt, dass durch die Plasmaverdichtung und die TiN-Beschichtung chemische Veränderungen in der Schicht hervorgerufen werden, die nicht nur die Oberfläche der Schicht betreffen. Durch die Messung der relativen 3γ -Annihilationsrate konnten die Ergebnisse der PALS-Messung bestätigt werden, dass sich die Probe N1A hinsichtlich der Porosität in der Schicht von den anderen Proben unterscheidet. Da die Messung der 3γ -Annihilationsrate im Gegensatz zur PALS in relativ kurzer Zeit mit einem geringeren Aufwand durchgeführt werden kann, ist ein Einsatz dieser Untersuchungsmethode in der Qualitätskontrolle nicht auszuschließen.

4.3 PAS-Untersuchungen an selbstorganisierenden low-k-Schichten

Für die Messungen an den selbstorganisierenden low-k-Schichten wurde das Positronenstrahlsystem POSSY in Halle verwendet. Mit diesem Positronenstrahlsystem können Informationen über die Dopplerverbreiterung (Abschnitt 2.9), die relative 3γ -Annihilationsrate (Abschnitt 2.11) und die Gesamtzählrate gewonnen werden.

Ziel der Untersuchungen ist die Beantwortung der Frage, ob der Übergang von isolierten Poren zu offenen Porensystemen in den low-k-Schichten detektiert werden kann. Dazu werden Messungen mit und ohne Blende vor dem Ge-Detektor durchgeführt (Abschnitt 2.11). Geht man davon aus, dass die Poren periodisch angeordnet sind und die gleiche Größe besitzen, muss der Übergang von isolierten Poren zu einem offenen Porensystem bei einer spezifischen Porosität erfolgen. Ausgewählte Proben sollen später im Positronen-Lebensdauerstrahlsystem MePS auf die Größe der Poren untersucht werden.

Für die Untersuchung wurden 9 low-k-Schichten bereitgestellt. Die Werte hinsichtlich der Porosität und der Dielektrizitätskonstante sind in Tabelle 4.2 aufgeführt. Die letzten beiden Ziffern der Bezeichnung geben die bei der Herstellung angestrebte Dielektrizitätskonstante/10 an. Die Buchstaben vor den Ziffern bezeichnen die verschiedenen Herstellungsvariationen. Die Stärke der Schichten liegt in einem Bereich zwischen 500 nm bis 550 nm.

Probennummer	k-Wert	Porosität in %
NP124	n.a.	0
P224	2,45	24
P122	2,25	31
P222	2,25	31
PA22	2,27	30
PC20	2,05	40
PEV20	2,01	42
PWL18	1,92	45
PEV18	1,91	49

Tab. 4.2: Herstellerinformationen für die Porosität und die Dielektrizitätskonstanten der untersuchten low-k-Schichten.

4.3.1 Vergleich von einem Referenzspektrum mit und ohne Bleiblende

Um den Einfluss des Messaufbaus auf das Spektrum zu untersuchen, wurde ein Silizium-Referenzspektrum mit und ohne Blende vermessen (Versuchsaufbau Abb. 2.16) und auf die Gesamtzählrate normiert (Abb. 4.17). Die Messungen wurden für

die Siliziumprobe und die low-k-Schichten hintereinander ausgeführt. Zuerst wurden die Spektren ohne Blende aufgenommen, danach wurden die Messungen mit Blende durchgeführt.

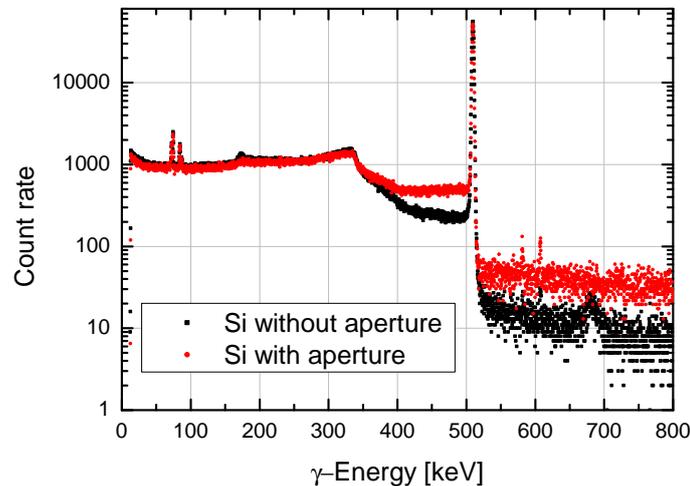


Abb. 4.17: Dargestellt sind zwei Siliziumspektren bei einer Positronenimplantationsenergie von 2 keV.

Bei der Messung mit Blende ist rechts neben dem Annihilationspeak gegenüber der Messung ohne Blende ein erhöhter Untergrund zu erkennen. Diese Erhöhung lässt sich auf die um den Faktor drei längere Messzeit zurückführen. Der Untergrund wird durch die Untergrundstrahlung und die beim Zerfall der ^{22}Na -Quelle entstehenden 1,27 MeV γ -Quanten hervorgerufen. Weiterhin werden in diesem Bereich Ereignisse von zwei bei der gleichen Annihilation entstehenden γ -Quanten sichtbar. Da beide γ -Quanten in einem Winkel von 180° emittiert werden, können nur ein direktes und ein Compton-gestreutes γ -Quant ein Signal liefern. Zu sehen ist das bei der Messung ohne Blende an der Strukturierung bei 682 keV. Dieses Signal ergibt sich aus der Summe des 511 keV Peaks und dem Rückstreupeak von 171 keV für außerhalb des Detektormaterials gestreute γ -Quanten. Bei der Messung mit der Blende ist dieses Signal nicht mehr sichtbar, da die Wahrscheinlichkeit, dass am Material der Probenkammer gestreute γ -Quanten den Detektor erreichen, sehr gering ist. Aus diesem Grund ist auch der bei 171 keV liegende Rückstreupeak nicht so stark ausgeprägt.

Links neben dem Annihilationspeak ist bei der Verwendung der Bleiblende im Bereich des Untergrundes durch mehrfache Comptonstreuung eine höhere Zählrate als ohne Blende zu erkennen. Dafür ist die Comptonstreuung in der Bleiblende und nicht die im Detektormaterial verantwortlich. Die Differenz der Zählrate nimmt für kleiner werdende Energien ab, da γ -Quanten mit großen Streuwinkeln und somit geringeren Energien nicht detektiert werden.

Durch den Einfluss der Comptonstreuung in der Bleiblede lassen sich die im folgenden erhaltenen Daten (mit und ohne Blende) quantitativ nur schlecht miteinander vergleichen. Es ist am Beispiel der Messung der Gesamtzählrate mit und ohne Blende keine genaue Aussage darüber möglich, welcher Anteil des Positroniums bei einem zur Oberfläche hin offenen Porensystem die Probe verlassen kann.

4.3.2 Messungen der relativen 3γ -Annihilationsrate an selbstorganisierenden low-k-Schichten

Zu Beginn der Untersuchungen wurden die selbstorganisierenden low-k-Schichten ohne Bleiblede zwischen Probe und Detektor vermessen. Bei diesen Messungen sind alle Zerstrahlungen innerhalb und außerhalb der Probe sichtbar. Aus den erhaltenen Daten wird in Abhängigkeit von der Implantationsenergie der Positronen die relative 3γ -Annihilationsrate bestimmt. Die Ergebnisse sind in Abbildung 4.18 dargestellt.

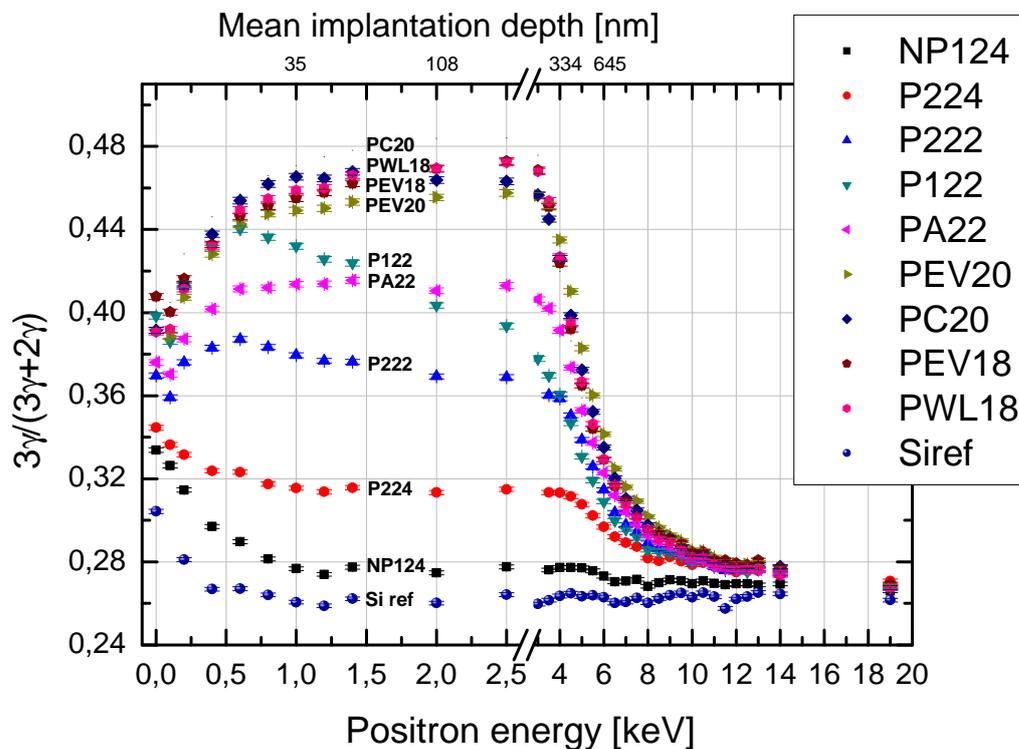


Abb. 4.18: relative 3γ -Annihilationsrate: Aufgenommen wurden die Daten ohne Blende. Es sind alle Zerstrahlungen innerhalb und außerhalb der Probe sichtbar.

An der Oberfläche (27 eV Implantationsenergie) liegt die relative 3γ -Annihilationsrate zwischen 0,334 und 0,407. Der für die jeweilige Probe erhaltene Oberflächenwert ist aber vom weiteren Verlauf der Messwerte abhängig. Durch die nicht zu vernachlässigende Diffusionsweglänge der Positronen in der Probe gehen auch Informationen aus etwas tieferen Teilen der Schicht in den Oberflächenwert ein. Eine Interpretation der Daten bis etwa 1 keV Implantationsenergie ist daher schwer möglich.

Im Bereich von 1 keV bis 2,5 keV bildet die relative 3γ -Annihilationsrate bis auf einige Proben ein Plateau. Ab einer Energie von 3 keV ist der Einfluss des Si-Substrates erkennbar.

Wie zu erwarten, nimmt die relative 3γ -Annihilationsrate mit steigender Porosität zu. Ein deutlicher Sprung, der auf einen Übergang von isolierten Poren zu einem offenen Porensystem hinweist, ist aber nicht vorhanden. Betrachtet man die Proben mit einer angestrebten Dielektrizitätskonstante von 2,2, stellt man fest, dass sich die Proben deutlich voneinander unterscheiden.

Während die Schicht PA22 ein deutliches Plateau zwischen 1 keV und 2,5 keV besitzt, weichen die Kurven der Schichten P122 und P222 zu höheren Implantationsenergien der Positronen von diesem Verlauf ab. Bis zu einer Implantationsenergie von 0,6 keV steigt das Ratenverhältnis dieser beiden Proben an. Ab 0,8 keV sinkt das Ratenverhältnis jedoch kontinuierlich ab. Das Abfallen der relativen 3γ -Annihilationsrate kann darauf hindeuten, dass die Anzahl oder die Größe der Poren mit zunehmender Tiefe in der Schicht abnimmt.

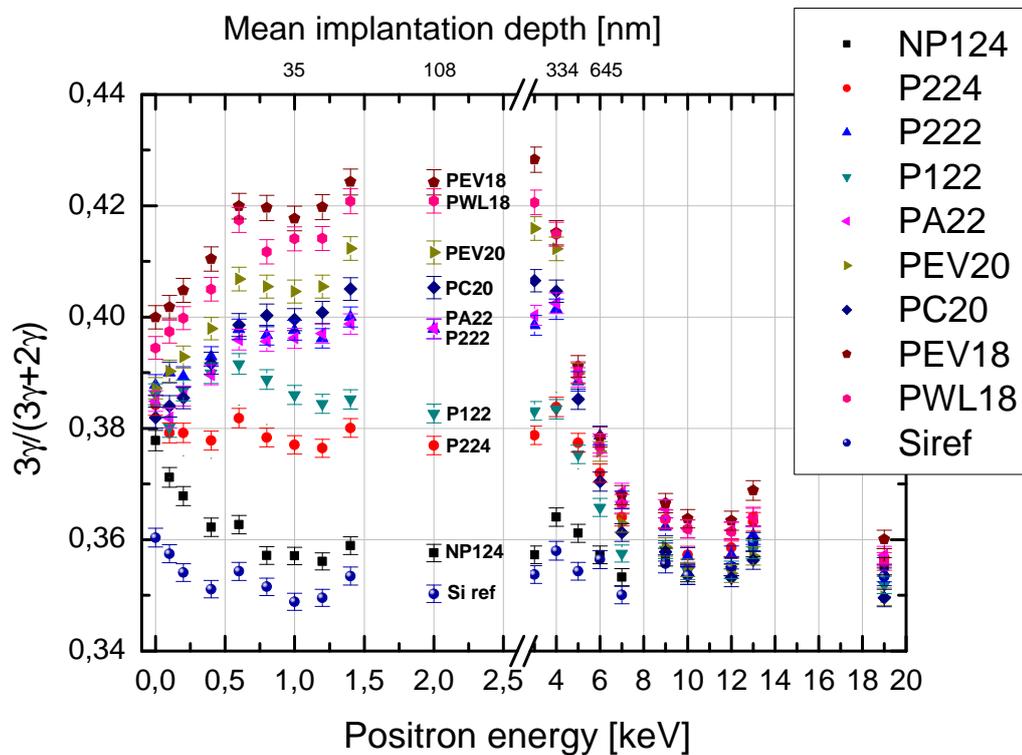


Abb. 4.19: relative 3γ -Annihilationsrate: Aufgenommen wurden die Daten mit der Blende. Es sind fast nur Zerstrahlungen innerhalb der Probe sichtbar.

Die Schichten mit einer angestrebten Dielektrizitätskonstante von 1,8 und 2,0 besitzen die höchsten Werte für die relative 3γ -Annihilationsrate. Die Werte liegen jedoch dicht beieinander und korrelieren nicht mit der Reihenfolge der Werte für die Porosität aus Tabelle 4.2. Bei einer Erhöhung der Porosität von 40 % auf 49 % ist jedoch ein Zusammenhang zwischen der Porosität und dem Messwert für die relative 3γ -Annihilationsrate zu erwarten.

Im Folgenden sind die gleichen Proben mit einer 3 cm starken Bleiblenne zwischen der Probe und dem Detektor vermessen worden (Abb. 4.19). Die Spaltbreite der Blende entspricht der Stärke der Probe (0,8 mm). Sichtbar sind bei dieser Messung fast nur die Zerstrahlungen, die in der Probe stattfinden. Thermalisiertes Positronium besitzt nach Formel 4.5 eine mittlere Geschwindigkeit von 8,26 $\mu\text{m}/\text{ns}$. Bei einer Lebensdauer von 142 ns kann das Positronium somit 1,17 cm zurücklegen. Da es sich bei der Lebensdauer um eine abfallende Exponentialfunktion handelt, können auch weitere Strecken zurückgelegt werden.

$$E_{th} = \frac{3}{2}k_B T \quad v_{th} = \sqrt{\frac{2E_{th}}{m}} \quad (4.5)$$

Kann das Positronium die Probe durch ein zur Oberfläche hin offenes Porensystem verlassen, findet ein Teil der Zerstrahlungen außerhalb des Sichtbereiches des Detektors statt.

Auch bei den Messungen mit Blende ist zu erkennen, dass sich die relative 3γ -Annihilationsrate mit steigender Porosität erhöht. Ein deutlicher Sprung, der einen Übergang von isolierten Poren zu einem offenen Porensystem anzeigt, ist aber auch bei diesen Messwerten nicht zu erkennen.

Vergleicht man die Reihenfolge der Proben mit den Werten für den Porositätsgrad, so ist ersichtlich, dass die relative 3γ -Annihilationsrate mit dem Porositätsgrad korreliert. Lediglich die Probe P122 zeigt einen unerwarteten Verlauf, da sich die Messwerte im Bereich von 1 keV bis 4 keV näher an einer Probe mit geringerer Porosität bewegen. Im Vergleich zu den Messungen ohne Blende liegen die Messwerte für die relative 3γ -Annihilationsrate der Proben PA22 und P222 im Bereich von 1 keV bis 2,5 keV nahe beieinander. Daraus kann gefolgert werden, dass sich die Größe oder die Anzahl der Poren in der Schicht nicht wesentlich ändert. Es muss davon ausgegangen werden, dass die Ursache für die unterschiedlichen Verläufe der Messwerte in Abbildung 4.18 für die Proben mit einer angestrebten Dielektrizitätskonstante von 2,2 durch 3γ -Annihilationen außerhalb der Probe liegt.

Um Informationen über das Verhältnis der Zerstrahlungen innerhalb und außerhalb der Schichten zu erhalten, wurde die Gesamtzählrate mit und ohne Blende ausgewertet. Ein Vergleich der Messungen mit den Proben NP124 und PEV18 ist in Abbildung 4.20 dargestellt. Die Messwerte wurden durch das Verhältnis bei 19 keV aufeinander normiert. Ein Vergleich der Schicht NP124 mit und ohne Blende zeigt, dass der Verlauf der Messwerte ähnlich ist. Die Abweichung der Messwerte im oberflächennahen Bereich kommt durch Oberflächeneffekte zustande. Das sich an der Oberfläche gebildete Positronium entweicht in das Vakuum. Dadurch kann die Zerstrahlung nicht mehr von dem Detektor mit Blende erfasst werden.

Bei der Schicht PEV18 ist ein deutlicher Unterschied zwischen den Messwerten zu erkennen. Die Anzahl der detektierten Zerstrahlungen ist bei den Messungen mit Blende deutlich geringer als bei denen ohne Blende. Bei einer Implantationsenergie

von 2 keV werden unter Verwendung der Blende 32 % weniger Ereignisse detektiert. Das ist ein deutliches Zeichen dafür, dass ein Teil des in der Probe gebildeten Positroniums die Probe verlassen kann und bei der Messanordnung mit Blende nicht mehr detektiert wird.

Da der Unterschied auch bei hohen Implantationsenergien beobachtet wird, müssen die Porensysteme über die ganze Schicht ausgedehnt sein. Ab einer Implantationsenergie von 4 keV steigt die Zählrate für die Messanordnung mit Blende an, da sich der Einfluss des Si-Substrats bemerkbar macht.

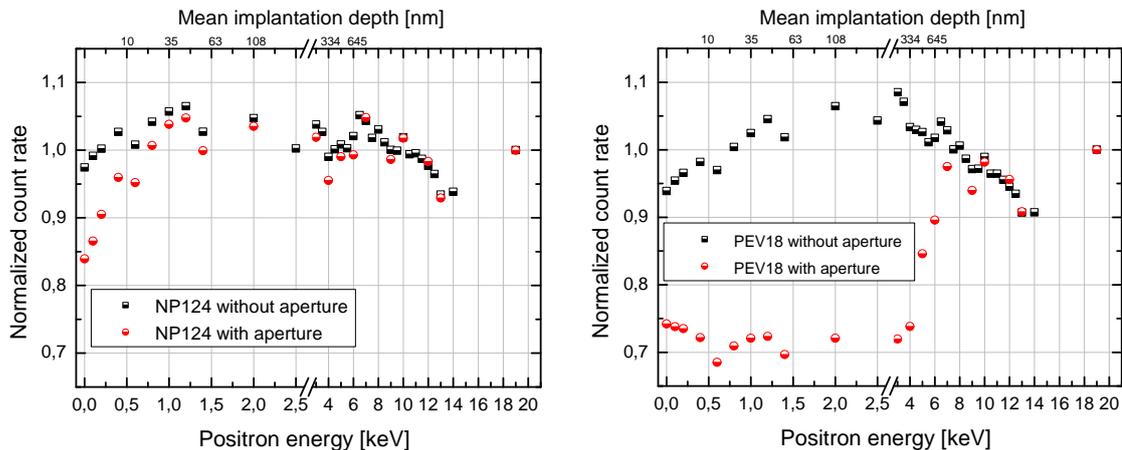


Abb. 4.20: Verlauf der Gesamtzählrate in Abhängigkeit von der Positronenimplantationsenergie am Beispiel der Probe NP124 und PEV18. Die Messungen wurden mit und ohne Blende zwischen Probe und Detektor durchgeführt. Aufgrund der längeren Messzeit für die Anordnung mit Blende wurden weniger Datenpunkte aufgenommen.

Bei der Auswertung der Daten muss beachtet werden, dass auch der Messaufbau einen Einfluss auf die Gesamtzählrate hat. So erreichen bei unterschiedlichen Implantationsenergien nicht gleich viele Positronen die Probe. Hauptgrund dafür ist die Blende zwischen den beiden Korrekturspulen (Abschnitt 2.6). Weiterhin ist die Anzahl der rückgestreuten Positronen von der Implantationsenergie abhängig.

Aus diesem Grund wurden die Werte auf eine Silizium-Referenzprobe normiert. Nicht berücksichtigt ist dabei, dass auch beim Silizium Oberflächeneffekte auftreten. Der Verlauf der Kurven in Oberflächennähe lässt sich dadurch nur schlecht interpretieren.

Betrachtet man die in Abbildung 4.21 dargestellten Ergebnisse, welche die Gesamtzählrate mit Blende darstellen, ist jetzt ein deutlicher Sprung zu erkennen. Bei den low-k-Schichten mit einer angestrebten Dielektrizitätskonstante von 1,8 und 2,0 (40 % - 49 % Porosität) annihilieren weit weniger Positronen in der Probe als bei den Proben mit einer höheren Dielektrizitätskonstante (24 % - 31 % Porosität). Der Verlauf der Kurven zeigt, dass das Positronium auch bei hohen Positronenimplantationsenergien die Schicht wieder verlassen kann. Das ist nur möglich, wenn es sich um ein ausgedehntes und zur Oberfläche hin offenes Porensystem handelt.

Mit einer sich weiter erhöhenden Porosität im Bereich zwischen 40 % und 49 % vergrößert sich der Wert für das außerhalb der Probe zerstrahlende Positronium nur geringfügig. Diese Veränderung weist aber darauf hin, dass bei einem Porositätsgrad von 40 % noch einige Verbindungen unterbrochen sind.

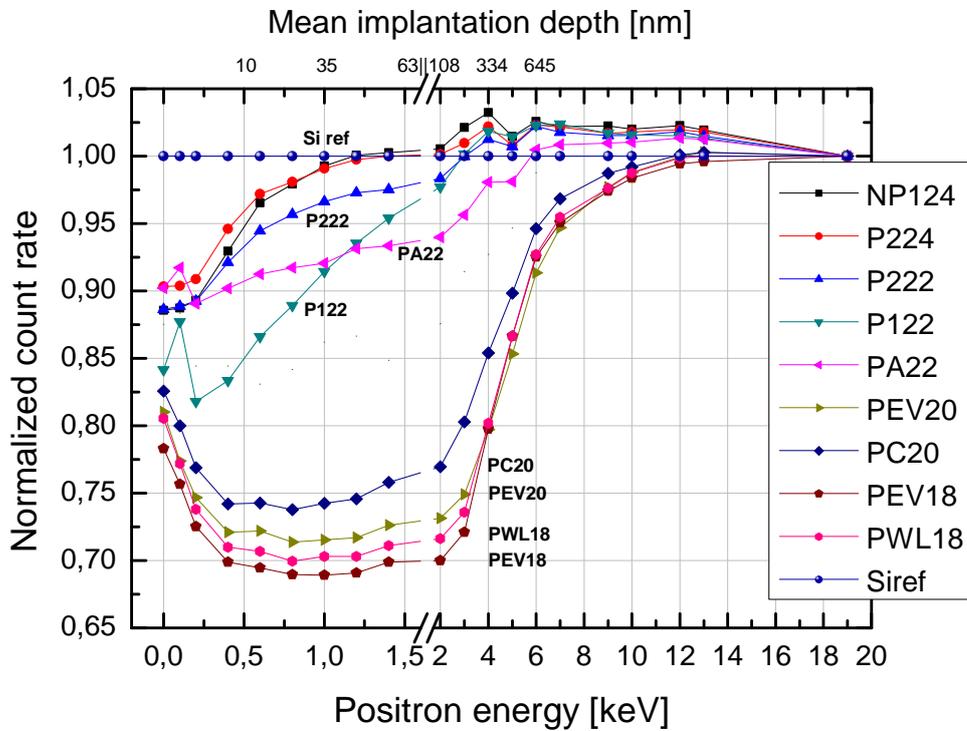


Abb. 4.21: Gesamtzählrate mit Blende: Für die Daten in der Grafik wurden alle Ereignisse im Spektrum summiert (0-541 keV). Um Fehler, die durch Einflüsse des Messaufbaus hervorgerufen werden können zu minimieren, wurden die Daten auf die Messwerte einer Silizium-Referenzprobe normiert.

Betrachtet man den Verlauf der Kurve für die low-k-Schicht P122, kann die Frage beantwortet werden, warum in Abbildung 4.18 die relative 3γ -Annihilationsrate zu geringen Implantationsenergien zunimmt. In dieser Schicht scheint sich schon ein zur Oberfläche hin offenes Porensystem auszubilden. Das Porensystem ist aber an vielen Stellen unterbrochen. Dadurch verringert sich die Wahrscheinlichkeit, dass das Positronium aus tieferen Bereichen der low-k-Schicht die Oberfläche erreicht und die Schicht verlassen kann.

Vergleicht man den Verlauf der Proben PA22 und P222, zeigt sich, dass aus der Probe PA22 mehr Positronium austreten kann als bei der Probe P222. Es muss somit ein teilweise offenes Porensystem vorhanden sein, welches sich auch über die gesamte Schicht ausdehnt. Diese Erkenntnis deckt sich auch mit den Ergebnissen der relativen 3γ -Annihilationsrate. Bei der Messung der 3γ -Annihilationsrate ohne Blende unterscheiden sich die Kurven beider Proben voneinander, bei den Messungen mit Blende überlagern sich beide Kurven. Die Erhöhung der 3γ -Annihilationsrate bei der Probe PA22 (Messung ohne Blende) kommt also ausschließlich durch die Annihilation des Positroniums außerhalb der Probe zustande.

4.3.3 Zusammenfassung

Die Untersuchungen an den selbstorganisierenden low-k-Schichten haben gezeigt, dass mit der Methode der Positronen-Annihilations-Spektroskopie Aussagen über das Vorhandensein von offenen Porensystemen getroffen werden können. Es zeigte sich aber, dass die Auswertung der 3γ -Annihilationsrate keine eindeutige Interpretation zulässt. Als bessere Methode für diese Fragestellung hat sich die Auswertung nach der Gesamtzählrate ergeben. Aus diesen Ergebnissen ist eindeutig zu erkennen, dass sich bei den Proben mit über 40 % Porosität ein zur Oberfläche hin offenes Porensystem ausgebildet hat. Für die Proben mit einer Porosität von 30 % kann gesagt werden, dass sich die Proben je nach Herstellungsprozess stark voneinander unterscheiden. Es wird vermutet, dass sich bei etwa 30 % Porosität ein offenes Porensystem ausbildet. Diese Aussage muss aber noch durch weitere Untersuchungen bestätigt werden. Dafür ist es wichtig, dass die Messungen der Gesamtzählrate mit Blende für Proben mit einer Porosität zwischen 30 % und 40 % durchgeführt werden.

Kapitel 5

Zusammenfassung und Ausblick

Der erste Teil der vorliegenden Arbeit beschreibt den Aufbau des Positronenstrahlsystems MePS für tiefenabhängige PALS-Messungen am HZDR. Neben der Beschreibung der einzelnen Komponenten wurden die wichtigsten Simulationen und Messungen vorgestellt, welche für den Betrieb des Strahlsystems notwendig waren. Für den erfolgreichen Transport des Positronenstrahls waren umfangreiche Berechnungen des Magnetfeldes notwendig. Gerade an den Spulenübergängen wurde viel Wert auf eine größtmögliche Homogenität des Magnetfeldes gelegt. Da eine Berechnung der Trajektorien für den Strahltransport einen unverhältnismäßig hohen Aufwand bedeutet hätte (das in diesem Bereich nicht homogene Erdmagnetfeld, die umgebenden Materialien und die Abweichungen bei der Umsetzung des Aufbaus hätten in den Simulationen mitberücksichtigt werden müssen), wurden die Parameter für die zur Korrektur notwendigen Sattelspulen experimentell bestimmt. Dazu wurde ein Elektronenstrahl von der Laborseite durch das Strahlsystem in das Cave geführt.

Nach dem erfolgreichen Transport der Positronen in das Labor zeigte sich, dass die Effektivität und Stabilität des verwendeten Platinmoderators nicht ausreichend war. Durch die Verwendung eines speziellen Wolframmoderators konnte die Zählrate um den Faktor 20 gesteigert werden. Es zeigte sich aber auch, dass die Zeitstruktur des Positronenstrahls nicht für PALS-Messungen geeignet ist. Neben einem Hauptpeak waren noch mehrere Nebenpeaks im Spektrum sichtbar. Diese Nebenpeaks konnten jedoch durch die Verwendung einer Doppelblende eliminiert werden. Die Zeitauflösung des Systems betrug zu diesem Zeitpunkt etwa 2 ns.

Mit dem Buncher konnte die Zeitauflösung bis auf unter 600 ps verringert werden. Dadurch wurden Messungen an porösen Materialien mit langen Lebensdauerkomponenten möglich.

Ein weiteres Problem stellten die von der Probe rückgestreuten Positronen dar. Im Gegensatz zu anderen Positronenstrahlsystemen wurde hier statt eines $E \times B$ -Filters ein Rohrbogen zur Eliminierung der rückgestreuten Positronen verwendet. Der Rohrbogen hat gegenüber dem $E \times B$ -Filter bei Energien unter 2 keV einen negativen Effekt auf die Zeitauflösung. Der geringere Aufwand und die nahezu vollständige Eliminierung der rückgestreuten Positronen rechtfertigt diese Entscheidung.

Die letzte große Herausforderung stellt der Chopper dar. An dieser Kompo-

te wurde lange gearbeitet. Erst die Verfügbarkeit der schnellen MOSFET-Schalter der Firma IXYS brachten den Durchbruch. Die vorgestellten Simulationen zeigen, dass bei dem Aufbau und dem durch die schnellen Schalter erzeugten Signal eine Zeitauflösung von unter 210 ps möglich ist.

Im zweiten Teil der Arbeit wurden PAS-Untersuchungen an low-k-Schichten vorgestellt. Durch die Messungen an den low-k-Schichten konnte bestätigt werden, dass sich das MePS-Strahlssystem trotz der zu dieser Zeit noch fehlenden Baugruppe (Chopper) für die Messung langer Lebensdauerkomponenten eignet. Es wurde eine Zeitauflösung von unter 600 ps erreicht. Die gemessenen Spektren weisen keine Störungen auf, wie sie in anderen PALS-Strahlssystemen vorkommen.

Die Messungen am MePS-Strahlssystem lieferten Informationen über die Größe und die relative Anzahl der Poren. Gerade bei low-k-Schichten mit aufgetragenen Deckschichten sind diese Erkenntnisse mit anderen Messmethoden nicht zugänglich. Bei den Untersuchungen wurde festgestellt, dass das Porogen der Ausgangsschicht durch die Wärmebehandlung nicht ausgetrieben wurde. Es bestand die Vermutung, dass erst durch nachfolgende Prozessschritte das Porogen aus der Schicht ausgetrieben wird. Temperaturabhängige S-Parametermessungen am Positronenstrahlssystem POSSY erhärteten diese Vermutung. Die am Fraunhofer-Institut ENAS durchgeführten massenspektroskopischen Untersuchungen bestätigten die Ergebnisse der PAS-Messungen.

Bei einer weiteren Probenserie handelt es sich um selbstorganisierende low-k-Schichten. Es sollte untersucht werden, ab welchem Porositätsgrad die Poren ein offenes Porensystem bilden. Mit dem Positronenstrahlssystem POSSY wurde die relative 3γ -Annihilationsrate bestimmt. Aus dem Vergleich der Messungen mit und ohne Blende vor dem Ge-Detektor sollte dieser Punkt bestimmt werden. Im Verlauf der Untersuchungen zeigte sich, dass sich die Auswertung der Gesamtzählrate unter Verwendung des Ge-Detektors mit Blende besser für diese Fragestellung eignet.

Ausblick Die PAS-Messungen an den low-k-Schichten haben gezeigt, dass sich PAS gut zur Charakterisierung dieser Schichten eignet. Besonders bei den selbstorganisierenden low-k-Schichten sind jedoch noch einige Untersuchungen notwendig. Dass sich ein offenes Porensystem bei einem Porositätsgrad zwischen 30 % und 40 % ausbildet, konnte durch die Untersuchungen belegt werden. Um diesen Punkt zu konkretisieren, sind weitere Messungen in diesem Bereich notwendig.

Durch die Messungen an den low-k-Schichten konnte gezeigt werden, dass sich das MePS-System für PALS-Untersuchungen eignet. Eine große Herausforderung für weitere Entwicklungen ist dabei die Verringerung der Zeitauflösung des Systems. Durch die Verwendung des Choppers sollte eine Zeitauflösung von etwa 210 ps möglich sein.

Eine Zeitauflösung in diesem Bereich ist auch notwendig, um geplante Projekte

an diesem Messplatz zu realisieren. Eine besondere Bedeutung kommt dabei dem AIDA-Projekt zu. Durch die Erweiterung des MePS-Systems sollen Untersuchungen der Defektentstehung in neuartigen Materialien für die Energiewende durchgeführt werden. In einer Vakuumkammer sollen dabei Schichtabscheidung, Ionenimplantation, Tempern/Kühlen sowie PAS und Widerstandsmessung kombiniert werden. Nach der Ausbaustufe I, welche am Positronenstrahlsystem SPONSOR am HZDR getestet wird, soll in der Ausbaustufe II die Wechselwirkung dieser defektreichen Materialien mit Wasserstoff am Positronenstrahlsystem MePS untersucht werden.

Aber auch die beantragten Strahlzeiten von anderen Forschungsgruppen zeigen, dass ein großes Interesse an MePS besteht. Um die Erwartungen der künftigen Nutzer zu erfüllen, sind jedoch ständige Weiterentwicklungen durch engagierte Wissenschaftler am Strahlsystem notwendig.

Abkürzungsverzeichnis

ϵ_0	elektrische Feldkonstante
ϵ_r	Dielektrizitätszahl
ρ	Dichte
ρ	spezifischer Widerstand
τ	Zeitkonstante bei Lade- und Entladevorgängen
τ_b	Positronen-Bulklebensdauer
τ_r	Relaxationszeit für Streuprozesse
C_L	Kapazität zwischen zwei Leitungen
C_M	Kapazität zwischen Leiter und Metallisierungsebene
D_+	Diffusionskonstante
E_{max}	Maximale Positronenenergie des β -Strahlers
k_b	Boltzmann-Konstante
L_+	Diffusionsweglänge
R	elektrischer Widerstand
$S_p(\bar{z})$	Stopp Profile für Positronen aus β^+ Strahlern
CVD	chemical vapour deposition
DBS	Doppler-broadening spectroscopy
DDS	Direct Digital Synthesis
ELBE	E lectron L inac for beams with high B rilliance and low E mittance
EPOS	E LBE P ositron S ource
FWHM	Full Width at Half Maximum
GiPS	G amma-induced P ositron S pectroscopy
MePS	M onoenergetic P ositron S pectroscopy
Mitec	Hersteller für Kurzeitelektronik
MOSFET	metal oxide semiconductor field-effect transistor
o-Ps	Orthopositronium
OSG	organische Siliziumdioxide, (organosilicate glass)
P(z,E)	Makhov Profile für monoenergetische Positronen
p-Ps	Parapositronium
PALS	Positronen-Annihilations-Lebensdauer-Spektroskopie
PAS	Positronen-Annihilations-Spektroskopie
PECVD	plasma-enhanced chemical vapour deposition
PLEPS	P ulsed L ow E nergy P ositron S ystem
PLL	phase-locked loop, Phasenregelschleife
Ps	Positronium

SEV	Sekundärelektronenvervielfacher
T	Temperatur
TEM	Transmissions-Elektronen-Mikroskopie
TTL	Transistor-Transistor-Logik
TTS	transit time spread
VCO	voltage-controlled oscillator

Literaturverzeichnis

- [Ahne13] private communication. Frau Dr. N. Ahner: Messungen im Fraunhofer Institut Chemnitz
- [Anal05] ANALOG DEVICES 4-Channel, 500 MSPS DDS with 10-Bit DACs: Datasheet; (2005)
- [Ande33] C. D. Anderson: The positive elektron; Phys. Rev. 43, 491-494 (1933)
- [Anwa12a] W. Anwand, G. Brauer, M. Butterling, H.R. Kissener, A. Wagner Design and Construction of a Slow Positron Beam for Solid and Surface Investigations; Defect and Diffusion Forum Vol.331 pp 25-40 (2012)
- [Asok90] P. Asoka-Kumar, K. G. Lynn: Implantation profile of low-energy positrons in solids; Appl. Phys. Lett. 57, 1634 (1990)
- [Anwa12] W. Anwand, M. Butterling, J.M. Johnson, A. Wagner: Flash lamp annealing of W foils and meshes; Präsentation im HZDR (2012)
- [Baue00] W. Bauer-Kugelmann: Technische Weiterentwicklungen am gepulsten Positronenstrahlssystem PLEBS; Universität der Bundeswehr München; Institut für Nukleare Festkörperphysik (2000)
- [Beck92] J. S. Beck, J. C. VartUli, W. J. Roth, M. E. Leonowicz, C. T. Kresge, K. D. Schmitt, C. T-W. Chu, D. H. Olson, E. W. Sheppard, B. McCullen, J. B. Higgins, J. L. Schlenkert: J. Am. Chem. SOC., Vol. 114, No. 27, 10835 (1992)
- [Bohr95] M. T. Bohr: Interconnect Scaling-The Real Limiter to High Performance ULSI: Electron Devices Meeting page 241-244 (1995)
- [Bond04] V. Bondarenko: Quellcode mfield.m; MLU Halle (2004)
- [Bran77] W. Brandt, R. Paulin: Positron implantation-profile effects in solids; Phys. Rev. B 15, 2511 (1977)
- [Brie00] J.F. Briesmeister: MCNP-TM-A General Monte-Carlo N-particle Transport Code, Version 4C, LA-13709-M, Los Alamos; (2000)
- [Brue34] E. Brüche, O. Scherzer: Geometrische Elektronenoptik; Verlag von Julius Springer, Berlin (1934)
- [Butt11] M. Butterling, M. Jungmann, V. Bondarenko, S. Sachert, G. Brauer, W. Anwand, R. Krause-Rehberg: Monte-Carlo simulations for timing-system of EPOS at ELBE in Research Centre Dresden-Rossendorf; Journal of

- Physics: Conference Series 265 012027 (2011)
- [Cole99] P. Coleman: Positron Beams and their applications; World Scientific Publishing Co. Pte. Ltd. (1999)
- [Cost72] D. G. Costello, D. E. Groce, D. F. Herring, J. Wm. McCowan: Evidence for the Negative Work Function Associated with Positrons in Gold; Phys. Rev. B, Volume 5, No. 4 (1972)
- [Dann95] S. Dannefaer, T. Bretagnon, A. Foucaran, T. Taliercio, D. Kerr: Positron lifetime spectroscopy of n-type and p-type porous silicon; Thin Solid Films 255 171-173 (1995)
- [Debe88] K. Debertin, R. G. Helmer: Gamma- and X-Ray Spectrometry with Semiconductor Detectors ; Elsevier Science B. V. (1988)
- [Deut51] M. Deutsch: Evidence for the Formation of Positronium in Gases; Phys. Rev. 82, 455-456 (1951)
- [Dlub02] G. Dlubek Die Charakterisierung der Mesoporosität in low-k Materialien mit der Methode der Positronenannihilation: Möglichkeiten und Grenzen; ITA Institut für innovative Technologien GmbH Köthen (2002)
- [Dull01] T. L. Dull, W. E. Frieze, D. W. Gidley, J. N. Sun and A. F. Yee: Determination of Pore Size in Mesoporous Thin Films from the Annihilation Lifetime of Positronium; J. Phys. Chem. B, 105, 4657-4662 (2001)
- [Eldr81] Eldrup M, Lightbody D, Sherwood JN.: The temperature-dependence of positron lifetimes in solid pivalic acid; Chem. Phys. 63:51-58 (1981)
- [Fale02] C. V. Falub, S. W. H. Eijt, P. E. Mijnaerends, H. Schut, A. van Veen : Magnetic focusing of an intense slow positron beam for enhanced depth-resolved analysis of thin films and interfaces; Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 488, 478-492; ELSEVIER-Verlag (2002)
- [Fisc86] D. A. Fischer, K. G. Lynn: High-resolution angle-resolved positron re-emission spectra from metal surfaces; Phys. Rev. B 33, 4479 (1986)
- [Gidl06] D. W. Gidley, H.-G. Peng, and R. S. Vallery: POSITRON ANNIHILATION AS A METHOD TO CHARACTERIZE POROUS MATERIALS; Annu. Rev. Mater. Res. 36:49-79 (2006)
- [Grek81] Grekhov, I.V., Kardo-Sysoev, A.F., Kostina, L.S., Shenderoy S.V.: High-Power Subnanosecond Switch; Electronics Letters, Volume 17, Issue 12 (1981)
- [Gold65] V.I. Gol'danski, A. V. Ivanova, E.P. Prokop'ev: Annihilation of positrons in alkali metal hydrides; Sov. Phys. Jetp Volume 20 Number 2 (1965)
- [Grei96] H. Greif: Der Bonner Feinfokuspositronenstrahl; Mathematisch-Naturwissenschaftliche Fakultät der Rheinischen Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn; Dissertation (1996)

- [Haak03] M. Haaks: Positronenspektroskopie an Ermüdungsrissen und Spanwurzeln; Dissertation Rheinischen Friedrich - Wilhelms Universität Bonn (2003)
- [Haak09] M. Haaks: Materialforschung mit Positronen: Von der Doppler-Spektroskopie zur Vorhersage des Ermüdungsbruchs; Habilitationsschrift (2009)
- [He07] Y. J. He, H. Y. Zhang, Y. B. Chen, H. Y. Wang and T. Horiuchi: Positron annihilation lifetime in mesoporous silica MCM-41 at different vacuum levels; *J. Phys.: Condens. Matter* 13 2467-2472 (2001)
- [Haeb12] J. Haeberle: Defektstudie an Fe-Cr-Legierungen; Diplomarbeit (2012)
- [Heil05] L. Heiliger: Method for sealing porous materials during chip production and compounds therefor; Patentschrift EP 1516026 A1 Infineon Technologies AG (2005)
- [Herr10] M. Herrmann: Das Konzept des effektiven Indenters für die Ermittlung des Elastizitätsmoduls und der Fließgrenze dünner Schichten: Technische Universität Chemnitz: Dissertation: (2010)
- [Huge02] C. Hugenschmidt, G. Kögel, R. Repper, K. Schreckenbach, P. Sperr, W. Triftshäuser: First platinum moderated positron beam based on neutron capture; *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 198, 220-229 (2002)
- [Huge12] Christoph Hugenschmidt, Christian Piochacz, Markus Reiner, Klaus Schreckenbach: The NEPOMUC upgrade and advanced positron beam experiments; *New Journal of Physics* 14 055027 (2012)
- [Hoof05] R.J.O.M. Hoofman, G.J.A.M. Verheijden, J. Michelon, F. Iacopi, Y. Travalay, M.R. Baklanov, Zs. Tökei, G.P. Beyer: Challenges in the implementation of low-k dielectrics in the back-end of line; *Microelectronic Engineering* 80 337-344 (2005)
- [Hyod09] Toshio Hyodo, Takashi Nakayama, Haruo Saito, Fuminori Saito, Ken Wada: The quenching of ortho-positronium; *Phys. Status Solidi C* 6, No. 11, 2497-2502 502 (2009)
- [Jean03] Y. C. Jean, P. E. Mallon, D. M. Schrader: Positron and Positronium Chemistry; World Scientific Publishing Co. Pte. Ltd (2003)
- [Jous09] V. Jousseane, O. Gourhant, A. Zenasni, M. Maret, J. P. Simon: Grazing incidence small angle x-ray scattering study of the structure of nanoporous ultralow-k dielectrics prepared by plasma enhanced chemical vapor deposition; *APPLIED PHYSICS LETTERS* 95, 022901 (2009)
- [Kaji03] A. Kajita: Hybrid reliable Cullow-k dual damasence interconnect technology with hybrid (PAE/SiOC) dielectrics for 65nm-node high performance eDRAM; IEEE International Interconnect Technology Conference (IITC),

- pages 9-11 (2003)
- [Jaeh08] S. Jähnert: Untersuchung von reinen Stoffen in periodisch mesoporesen Silikamaterialien mit thermophysikalischen Methoden und in-situ Röntgenkleinwinkelstreuung; Dissertation, Mathematisch-Wissenschaftlichen Fakultät, Humboldt-Universität Berlin (2008)
- [Jung08] M. Jungmann: Konzeption und Simulation des Positronenstrahlsystems EPOS; Diplomarbeit Martin-Luther-Universität Halle-Wittenberg (2008)
- [Kans96] J. Kansy: Microcomputer program for analysis of positron annihilation lifetime spectra; Nuclear Instruments and Methods Volume 374, Issue 2 (1996)
- [Klos02] G. Kloster, T. Scherban, G. Xu, J. Blaine, B. Sun, Y. Zhou: Porosity Effects on Low-k Dielectric Film Strength and Interfacial Adhesion; Interconnect Technology Conference, Proceedings of the IEEE 2002 International (2002)
- [Koeg04] G. Kögel, private communication with R. Krause-Rehberg. (2004)
- [Koeg10] G. Kögel, private communication. (2010)
- [Krau99] R. Krause-Rehberg, H. S. Leipner: Positron Annihilation in Semiconductors; Springer-Verlag (1999)
- [Krau06] R. Krause-Rehberg, S. Sachert, G. Brauer, A. Rogov, K. Noack: EPOS-An intense positron beam projekt at the ELBE radiation source in Rossendorf; Applied Surface Science 252, 3106-3110; ELSEVIER-Verlag (2006)
- [Kril08] A. Krille: Aufbau und Optimierung eines digitalen Positronen-Lebensdauer-Spektrometers; Diplomarbeit (2008)
- [Laak05] A. Laakso: Construction of a pulsing system for low-energie positrons; Helsinki University of Technology Espoo, Finland; Dissertation (2005)
- [Lind79] H. Lindner: Atom und Kernphysik; VEB Fachbuchverlag Leipzig (1979)
- [Lloy95] J.R. Lloyd, J.J. Clement: Electromigration in copper conductors; Thin Solid Films 262 135-141 (1995)
- [Lync78] F. J. LYNCH, R. N. LEWIS, L. M. BOLLINGER, W. HENNING and O. D. DESPE: BEAM BUNCHER FOR HEAVY IONS; NUCLEAR INSTRUMENTS AND METHODS 159 245-263 (1979)
- [Lynn88] P. J. Schultz, K. G. Lynn: Rev. Mod. Phys 60, 701 (1988)
- [Mack70] I.K. MacKenzie, J.A. Eady, R.R. Gingerich: The interaction between positrons and dislocations in copper and in an aluminum alloy; Physics Letters A Volume 33, Issue 5, Pages 279-280 (1970)
- [Maex03] K. Maex, M. R. Baklanov, D. Shamiryan, F. Iacopi, S. H. Brongersma et al.: Low dielectric constant materials for microelectronics; J. Appl. Phys. 93, 8793 (2003)

- [Makh61] A. F. Makhov: Sov. Phys. Sol. State 2 (1961)
- [Mäki92] J. Mäkinen, S. Palko, J. Martikainen, P. Hautojärvi: J. Phys. Condensed Matter, 4, p. L503 (1992)
- [Mass94] G. R. Massoumi, W. N. Lennard, Peter J. Schultz, A. B. Walker, and Kjeld O. Jensen: Experimental and Monte-Carlo studies of electron and positron backscattering; AIP Conference Proceedings, Volume 303 (1994)
- [Meye95] K. Meyer, P. Lorenz, B. Böhl-Kuhn, P. Klobes: Porous Solids and their Characterisation; Cryst. Res. Technol. 29, 7, 903-930 (1994)
- [Manu08] D. J. Manura, D. A. Dahl: Simion 8.0; Ion trajectory simulation software, User Manual; (2008)
- [Meye02] Herrmann, E. Langer, E. Zschech: In situ SEM observation of electromigration phenomena in fully embedded copper interconnect structures; Microelectronic Engineering 64 375-382 (2002)
- [Miya04] H. Miyamjima, K. Fujita, R. Nakata, T. Yoda, and N. Hayasaka: The Application of Simultaneous eBeam Cure Method for 65 nm node CU/Low-k Technology with Hybrid (PAE/MSX) Structure; IEEE International Interconnect Technology Conference, 222-224 (2004)
- [Morg74] O. E. Mogensen: Spur reaction model of positronium formation; Journal of Chemical Physics, Vol. 60, No.3 (1974)
- [Morg95] O. E. Mogensen: Positron Annihilation in Chemistry; Springer-Verlag Berlin Heidelberg New York (1995)
- [Mour03] T. Mourier, V. Jousseau, F. Fusalba, Ch. Lecomte, P. Maury, G. Passermard, PH. Haumesser, S. Maitrejean, M. Cordeaut. R. Pantel, F. Pierr'. M. Fayollet, H. Feldis: Porous low k pore sealing process study for 65 nm and below technologies; Interconnect Technology Conference Proceedings of the IEEE 2003 International (2003)
- [Muet10] D. Mütter: Sorption von Fluiden in mesoporösen Silikamaterialien; Dissertation, Mathematisch-Wissenschaftlichen Fakultät, Humboldt-Universität Berlin (2010)
- [Norr05] K. Norrman, A. Ghanbari-Siahkali, N. B. Larsen: Studies of spin-coated polymer films; Annu. Rep. Prog. Chem., Sect. C, 101, 174-201 (2005)
- [Perk70] A. Perkinst, J.P. Carbotte: Effect of the Positron-Phonon Interaction on Positron Motion; Phys. Rev. B 1, 101-107 (1970)
- [Pusk94] M. J. Puska and R. M. Nieminen: Theory of positrons in solids and on solid surfaces; Rev. Mod. Phys. 66, 841-897 (1994)
- [Ohda07] T. Ohdaira, M. Muramatsu, R. Suzuki, Y. Kobayashi, M. Takanawa, N. Hashimoto, K. Takao, and Y. Kobayashi: Development of a Na-22 based pulsed slow positron beam for depth-selective PALS; phys. stat. sol. (c)

- 4, No. 10, 4020-4022 (2007)
- [Ore49] A. Ore: Aarb. Naturvit. rekke , University Bergen; (1949)
- [Petk01] Mihail P. Petkov, Marc H. Weber, and Kelvin G. Lynn: Porosity characterization by beam-based three-photon positron annihilation spectroscopy; APPLIED PHYSICS LETTERS VOLUME 79, NUMBER 23 (2001)
- [Petk03] M. P. Petkov, C. L. Wang, M. H. Weber and K. G. Lynn: Positron Annihilation Techniques Suited for Porosity Characterization of Thin Films; J. Phys. Chem. B, 107, 2725-2734 (2003)
- [Rebe91] G. Reber: EIGENSCHAFTEN UND EINSATZMOEGLICHKEITEN VON AEROGELFENSTERN IM VERGLEICH MIT KONVENTIONELLEN SOWIE EVAKUIERTEN FENSTERN; DISSERTATION Philosophisch-Naturwissenschaftliche Fakultät der Universität Basel (1991)
- [Reur06] F. Reurings, A. Laakso, K. Rytsölä, A. Pelli, K. Saarinen: Compact positron beam for measurement of transmission moderator efficiencies and positron yields of encapsulated sources; Applied Surface Science 252 3154-3158 (2006)
- [Rogo06] R. Krause-Rehberg, S. Sachert, G. Brauer, A. Rogov, K. Noack: EPOS-An intense positron beam project at the ELBE radiation source in Rossendorf; Applied Surface Science 252, 3106-3110 (2006)
- [Sach04] S. Sachert: Konzeption des Positronenmessplatzes EPOS an der Strahlenquelle ELBE; MLU Halle; Diplomarbeit (2004)
- [Sach06] S. Sachert, G. Brauer, A. Rogov, K. Noack: EPOS-An intense positron beam project at the ELBE radiation source in Rossendorf; Applied Surface Science 252 3106-3110 (2006)
- [Sait02] Fuminori Saito, Yasuyuki Nagashima: A high-efficiency positron moderator using electro-polished tungsten meshes; Applied Surface Science 194, 13-15 (2002)
- [Satt02] A. Satta, M. Baklanov, O. Richard, A. Vantomme, H. Bender, T. Conard, K. Maex, W.M. Li, K.-E. Elers, S. Haukka: Enhancement of ALCVDE TiN growth on Si-O-C and a-SiC:H films by O -based plasma treatments; Microelectronic Engineering 60 59-69 (2002)
- [Schm07] J. Schmitt: Vorlesungsskript Kosmischer Magnetismus; <ftp://ftp.hs.uni-hamburg.de/pub/outgoing/schmitt/kosmag/>
- [Schu08] K. Schulze: Beiträge zur Technologieentwicklung für die Erzeugung von Airgap - Strukturen in Metallisierungssystemen in integrierten Schaltkreisen; Dissertation: (2008)
- [Seeg74] A. Seeger: The Study of Defects in Crystals by Positron Annihilation; Appl. Phys. 4 183 (1974)

- [Seif10] g. Seifert, H. Hermann, K. Zagorodniy, E. Zschech: Insulation Material for integrated circuits and use of said integrated circuits; United States Patent Application Publication (2010)
- [Seve12] U. J. van Severen: ORTEC News; (2012)
- [Skor04] W. Skorupa, D. Panknin, W. Anwand, M. Voelskow, G. Ferro, Y. Monteil, A. Leycuras, J. Pezoldt, R. McMahon, M. Smith, J. Camassel, J. Stoemenos, E. Polychroniadis. P. Godignon, N. Mestres, D. Turover, S. Rushworth and A. Friedberger: Flash Lamp Supported Deposition of 3C-SiC (FLASiC) - a promising technique to produce high quality cubic SiC layers; Materials Science Forum Vols. 457-460 pp 175-180 (2004)
- [Smed80] L.C. Smedskjaer, M. Manninen, M.J. Fluss: An alternative interpretation of positron annihilation in dislocations; J. Phys. F 10 2237 (1980)
- [Smir11] E. A. Smirnov, K. Vanstreels, P. Verdonck, I. Ciofi, D. Shamiryman, M. R. Baklanov, M. Phillips: Evaluation of a New Advanced Low-k Material; Japanese Journal of Applied Physics 50 05EB03 (2011)
- [Sper08] P. Sperr, W. Egger, G. Kögel, G. Dollinger, C. Hugenschmidt, R. Repper, C. Piochacz: Status of the pulsed low energy positron beam system (PLEPS) at the Munich Research Reactor FRM-II; Applied Surface Science 255 35-38 (2008)
- [Stein98] Peter vom Stein: Hochfrequenz Elektroneninjektoren für cw-Beschleuniger; Dissertation Technische Universität Dresden, Fakultät Mathematik und Naturwissenschaften (1998)
- [Stoe99] W. Stoeffl, P. Asoka-Kumar, R. Howell: The positron microprobe at LLNL; Applied Surface Science 149 1-6 (1999)
- [Stolz95] R. A. Stoltz et al: Method of forming air gap dielectric spaces between semiconductor leads; United States Patent (1995)
- [Stro75] M. A. Strosio: Positronium: A Review of the Theory; Physics Reports 22, No.5 215-277 (1975)
- [Suda07] K. Sudarshan, D. Dutta, S. K. Sharma, A. Goswami and P. K. Pujari: Air quenching of positronium in mesoporous materials: positron porosimetry; J. Phys.: Condens. Matter 19 386204 (2007)
- [Sun01] J. N. Sun, D. W. Gridley, T. L. Dull, W. E. Frieze, A. F. Yee, E. T. Ryan, S. Lin, J. Wetzel: Probing diffusion barrier integrity on porous silica low-k films using positron annihilation lifetime spectroscopy; Journal of Applied Physics, Volume 89, Number 9 (2001)
- [Suzu03] R. Suzuki, T. Ohdaira, Y. Kobayashi, K. Ito, Y. Shioya, T. Ishimaru: Positron and positronium annihilation in silica-based thin films studied by a pulsed positron beam; Radiation Physics and Chemistry 68 339-343 (2003)

- [Tao72] Tao SJ.: Positronium annihilation in molecular substances; *J. Chem. Phys.* 56:5499-510 (1972)
- [Thra06] S. Thraenert, E.M. Hassan, R. Krause-Rehberg; Ortho-positronium lifetime measurement - positron source activity and statistics; *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 248 336-339 (2006)
- [Vale05] R. Valentini: LSO Szintillationskristalle für PAC Applikationen; Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn; Diplomarbeit (2005)
- [Valk83] S. Valkealahti and R. M. Nieminen: Monte-Carlo Calculations of keV Electron and Positron Slowing Down in Solids; *Applied Physics A Volume* 32, Number 2 (1983)
- [Valk84] S. Valkealahti and R. M. Nieminen: Monte Carlo Calculations of keV Electron and Positron Slowing Down in Solids; *Appl. Phys. A* 35, 51-59 (1984)
- [Veha87] A. Vehanen, K. Saarinen, P. Hautajarvi, H. Huomo: Profiling multilayer structures with monoenergetic positrons; *PHYSICAL REVIEW* 8 VOLUME 35, NUMBER 1 (1987)
- [Wain54] E. A. Wainrib, W. I. Miljutin: *Elektronenoptik*; VEB Verlag Technik Berlin (1954)
- [Wang08] B. Wang at al.: Development and application of the intense slow positron beam at IHEP; *Chinese Physics C (HEP NP)* (2008)
- [Weng04] H. M.Weng, C. C. Ling: Tungsten mesh as positron transmission moderator in a monoenergetic positron beam; *Physics Research B* 225, 397-401 (2004)
- [West73] R.N. West: Positron studies of condensed matter; *Advances in Physics*,22:3, 263-383 (1973)
- [Wern11] M Werner, E Altstadt, M Jungmann, G Brauer, K Noack, A Rogov and R Krause-Rehberg; Thermal analysis of EPOS components: *Journal of Physics: Conference Series* 265 012028 (2011)
- [Yeap13] Kong-Boon Yeap, Malgorzata Kopycinska-Mueller, Lei Chen, Yu Chen, Marco Jungmann, Reinhard Krause-Rehberg, Sukesh Mahajan, Joost Vlassak, Martin Gall and Ehrenfried Zschech: The effect of the pore topology on the elastic modulus of organosilicate glasses; *Journal of Materials Research*, Volume 28, Issue 09, pp 1262-1268 (2013)
- [Yian05] K. Y. Yiang, W. J. Yoo, and Ahila Krishnamoorthy: Effect of Porosity on Electrical Stability of Hydrocarbon Polymeric Low-k Dielectric; *IEEE TRANSACTIONS ON ELECTRON DEVICES*, VOL. 52, NO. 10, OCTOBER (2005)
- [Zhao98] D. Zhao, J. Feng, Q. Huo, N. Melosh, G. H. Fredrickson, B. F. Chmelka, G. D. Stucky: Triblock Copolymer Syntheses of Mesoporous Silica with

Periodic 50 to 300 Angstrom Pores; Science 279, 548 (1998)

- [Zsch06] E. Zschech , M.A. Meyer, S.G. Mhaisalkar, A.V. Vairagar, A. Krishnamoorthy, H.J. Engelmann, V. Sukharev: Effect of interface modification on EM-induced degradation mechanisms in copper interconnects; Thin Solid Films 504 279 - 283 (2006)

Erklärung

Hiermit erkläre ich an Eides statt, dass ich die vorliegende Arbeit selbstständig und ohne unzulässige Hilfe Dritter verfasst und nur die angegebenen Quellen und Hilfsmittel verwendet habe. Ergebnisse aus anderen wissenschaftlichen Arbeiten wurden als solche gekennzeichnet. Diese Arbeit wurde bisher weder im In- noch Ausland in gleicher oder ähnlicher Form in einem Prüfungsverfahren vorgelegt.

Marco Jungmann

Halle (Saale), den 12. Dezember 2014

Lebenslauf

Persönliche Angaben

Marco Jungmann, geboren in Halle am 24. Februar 1971

Beruflicher Werdegang

seit 01/2013: TÜV NORD, Sachverständiger nach Röntgen- und Strahlenschutzverordnung

07/2008-04/2013: Martin-Luther-Universität Halle-Wittenberg, Fachgruppe Positronenannihilation, Wissenschaftlicher Mitarbeiter

11/2004-05/2008: Forschungszentrum Dresden-Rossendorf, Studentischer Mitarbeiter

08/1993-07/2002: Jungmann Tankstellen GmbH, Stellvertretender Geschäftsführer

08/1990-07/1993: Autosattlerei Jochen Jungmann, Mitarbeiter

05/1989-07/1990: Wehrdienst in Halle-Lettin

09/1987-04/1989: Zentralwerkstatt Gräfenhainichen, Ausbildung zum Elektromonteuer

Akademischer Werdegang

07/2008-09/2014 Promotionsstudium an der Martin-Luther-Universität Halle-Wittenberg in der Fachgruppe Positronenannihilation, Betreuer der Arbeit: Prof. Dr. Krause-Rehberg

05/2007-05/2008 Diplomarbeit an der Martin-Luther-Universität Halle-Wittenberg

10/2002-04/2007 Physikstudium an der Martin-Luther-Universität Halle-Wittenberg

09/1999-06/2002 Allgemeine Fachhochschulreife (Abitur) am Kolleg und Abendgymnasium Halle

09/1977-06/1987 Polytechnische Oberschule

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich mich bei allen bedanken, die mich in den vergangenen Jahren unterstützt haben. Danken möchte ich vor allem Prof. Dr. Krause-Rehberg, der mich mit seiner Begeisterung für die Positronenannihilation und dem Glauben an das Gelingen des MePS-Projekts motiviert hat. Als Betreuer meiner Arbeit unterstützte er mich mit seinen Hinweisen und Ratschlägen bei der Realisierung des Projekts. Von ihm habe ich sehr viel gelernt, auch Dinge, die über das Projekt hinausgingen.

Weiterhin möchte ich der feinmechanischen Werkstatt der MLU Halle-Wittenberg, insbesondere Herrn Benkwitz, Lothar Büttner, Sven Bölling und Gerald Jakob danken. Mit ihrer Hilfsbereitschaft, ihren Anregungen und Erfahrungen sowie der soliden Umsetzung der von mir angefertigten Konstruktionszeichnungen haben sie einen großen Anteil am Gelingen des MePS-Projekts. Ebenso möchte ich der Abteilung Elektronik, besonders Andreas Müller danken. Ohne seine Hilfe, seine Kenntnisse und die Bereitschaft, uns nach Rossendorf zu begleiten, hätte dieses Projekt nicht umgesetzt werden können. Auch für die langen abendlichen Diskussionen in Rossendorf möchte ich mich bei ihm bedanken. Bei der Umsetzung des Projekts haben auch die Diplomanten und studentischen Mitarbeiter Nicki Hinsche, Benno Wehrlich, Andreas Pohl und Jörg Haeberle einen großen Beitrag geleistet. Besonders Jörg Haeberle beeindruckte mich durch seinen Fleiß, seine Ausdauer und Hilfsbereitschaft. An dieser Stelle möchte ich auch Arnold Krille aus unserer Fachgruppe danken. Er weckte mein Interesse für die Programmiersprache Python und eine schnelle Antwort zu Problemen bei der Programmierung bedeutete für mich einen großen Zeitgewinn.

Für die kooperative Unterstützung seitens des HZDR danke ich zum einen den Mitarbeitern der Strahlungsquelle ELBE, insbesondere Michael Freitag und Dr. Hartmut Büttig, die uns besonders in der Anfangszeit beim Aufbau des MePS-Systems unterstützt und uns mit fehlenden Materialien ausgeholfen haben. Zum anderen gilt mein Dank der Abteilung Kernphysik, insbesondere Wolfgang Anwand, Maik Butterling, Andreas Hartmann, Dr. Gerald Staats und Dr. Andreas Wagner.

Bedanken möchte ich mich auch bei den Mitarbeitern und ehemaligen Mitarbeitern des FRM II der Technischen Universität München, insbesondere bei Dr. Peter Sperr, Dr. Werner Egger, PD Dr. Christoph Hugenschmidt und Dr. Gottfried Kögel. Ihre Erfahrungen beim Betrieb der Positronenquelle am FRM II haben dazu beigetragen, dass wir viele Fehler vermeiden konnten. Besonders Dr. Gottfried Kögel möchte ich für seine Mails danken, in denen er uns bei Problemen Hinweise zur Lösung gegeben

hat.

Weiterhin gilt mein aufrichtiger Dank den Mitarbeitern des Fraunhofer-Institutes IKTS Abteilung Werkstoff- und Nanoanalytik, insbesondere Prof. Dr. Ehrenfried Zschech und Dr. Kong Boon. Die Herstellung und Bereitstellung der selbststrukturierenden low-k-Schichten ermöglichten es mir, PAS-Untersuchungen daran durchzuführen. Auch den Mitarbeitern des Fraunhofer-Institutes ENAS Dr. Ramona Ecke und Dr. Nicole Ahner möchte ich für die Bereitstellung von low-k-Schichten danken. Besonders bei Dr. Nicole Ahner bedanke ich mich für die Hinweise, Anregungen und Diskussionen.

Ein großer Dank geht an alle Autoren der wissenschaftlichen Arbeiten, die ich im Literaturverzeichnis angegeben habe. Diese Arbeiten bilden die Grundlage dieser Dissertation.

Abschließend möchte ich mich bei meiner Familie und bei meiner Lebensgefährtin Anja Freier bedanken. Ohne ihre Unterstützung und ihr Verständnis wäre diese Arbeit nicht möglich gewesen.

Vielen Dank!

Publikationsliste

- [1] M. Jungmann, R. Krause-Rehberg, A. Müller, A. Krille, G. Brauer: Construction and timing system of the EPOS beam system; *Applied Surface Science* Volume 255, Issue 1, Pages 42-45 (2008)
- [2] M. Jungmann, J. Haeberle, R. Krause-Rehberg, W. Anwand, M. Butterling, A. Wagner, J. M. Johnson, T. E. Cowan: First Experiments with MePS; *Journal of Physics: Conference Series* 443 (2013)
- [3] Arnold Krille, Reinhard Krause-Rehberg, Marco Jungmann, František Bečvář, Gerhard Brauer: Digital positron lifetime spectroscopy at EPOS; *Applied Surface Science* Volume 255, Issue 1, Pages 93-95 (2008)
- [4] R. Krause-Rehberg, G. Brauer, M. Jungmann, A. Krille, A. Rogov, K. Noack: Progress of the intense positron beam project EPOS; *Applied Surface Science* Volume 255, Issue 1, Pages 22-24 (2008)
- [5] Reinhard Krause-Rehberg, Wolfgang Anwand, Gerhard Brauer, Maik Butterling, Tom Cowan, Andreas Hartmann, Marco Jungmann, Arnold Krille, Ronald Schwengner, Andreas Wagner: Progress of the EPOS project: Gamma-induced Positron Spectroscopy (GiPS); *Phys. Status Solidi C* 6, No. 11, 2451 - 2455 (2009)
- [6] O. Moutanabbir, R. Scholz, U. Gösele, A. Guittoum, M. Jungmann, M. Butterling, R. Krause-Rehberg, W. Anwand, W. Egger, and P. Sperr: Experimental elucidation of vacancy complexes associated with hydrogen ion-induced splitting of bulk GaN; *Phys. Rev. B* 81 (2010)
- [7] Maik Butterling, Wolfgang Anwand, Gerhard Brauer, Thomas E. Cowan, Andreas Hartmann, Marco Jungmann, Krasimir Kosev, Reinhard Krause-Rehberg, Arnold Krille, Ronald Schwengner, Andreas Wagner: Positron annihilation spectroscopy using high-energy photons; *physica status solidi (a)*, Volume 207, Issue 2, pages 334-337 (2010)
- [8] K. Kosev, M. Butterling, W. Anwand, T. Cowan, A. Hartmann, K. Heidel, M. Jungmann, R. Krause-Rehberg, R. Massarczyk, K.D. Schilling, R. Schwengner, A. Wagner: Evaluation of a microchannel-plate PMT as a potential timing detector-suitable for positron lifetime measurements; *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A* 624 641-645 (2010)
- [9] R. Krause-Rehberg, M. Jungmann, A. Krille, B. Werlich, A. Pohl, W. Anwand, G. Brauer, M. Butterling, H. Büttig, K. M. Kosev, J. Teichert, A. Wagner, T. E. Cowan: Use of superconducting linacs for positron generation: the EPOS system at the Forschungszentrum Dresden-Rossendorf (FZD); *Journal of Physics: Conference Series* 262 (2011)

-
- [10] M. Butterling, M. Jungmann, V. Bondarenko, S. Sachert, G. Brauer, W. Anwand, R. Krause-Rehberg: Monte-Carlo simulations for timing-system of EPOS at ELBE in Research Centre Dresden-Rossendorf; *J. Phys.: Conf. Ser.* 265 (2011)
- [11] Maik Butterling, Wolfgang Anwand, Thomas E. Cowan, Andreas Hartmann, Marco Jungmann, Reinhard Krause-Rehberg, Arnold Krille, Andreas Wagner: Gamma-induced Positron Spectroscopy (GiPS) at a superconducting electron linear accelerator; *Applied Surface Science* Volume 269, Issue 22, pages 2623-2629 (2011)
- [12] M. Werner, E. Altstadt, M. Jungmann, G. Brauer, K. Noack, A. Rogov, R. Krause-Rehberg: Thermal analysis of EPOS components; *Journal of Physics: Conference Series* 265 (2011)
- [13] Kong-Boon Yeap, Malgorzata Kopycinska-Mueller, Lei Chen, Yu Chen, Marco Jungmann, Reinhard Krause-Rehberg, Sukesh Mahajan, Joost Vlassak, Martin Gall, Ehrenfried Zschech: The effect of the pore topology on the elastic modulus of organosilicate glasses; *Journal of Materials Research* Volume 28 Issue 09 pages 1262-1268 (2013)