

Dissertation

Neutronen-Kleinwinkelstreuung an mikro- und nanostrukturierten Materialien

ausgeführt zum Zwecke der Erlangung des akademischen Grades
eines Doktors der technischen Wissenschaften
unter der Leitung von

o.Univ.Prof. Dipl.Ing. Dr. Helmut Rauch
E141
Atominstitut der Österreichischen Universitäten

eingereicht an der Technischen Universität Wien
Fakultät für Physik

von

Mag. Martin Trinker
Matr. Nr.: 8903718
Gumpendorfer Straße 92/13
1060 Wien

Wien, im Mai 2006

Kurzfassung

In dieser Arbeit werden neutronenphysikalische Untersuchungen an mikro- und nanostrukturierten Materialien vorgestellt. Der erste Abschnitt behandelt die zum Verständnis der experimentellen Ergebnisse notwendige Streutheorie von Neutronen an Strukturen in Festkörpern. Die Methode der Neutronen-Kleinwinkelstreuung (SANS) wird auf eine hochdosisbestrahlte Probe des Verbundwerkstoffes SiC/SiC_f angewendet. Derartige Materialien spielen eine wichtige Rolle in Konzepten für künftige Fusionsreaktoren. Die Strukturveränderungen durch die Bestrahlung im Spallationstarget der Neutronenquelle SINQ, Schweiz, werden untersucht. Zur Überprüfung der in der Ultra-Kleinwinkelstreuung von Neutronen (USANS) verwendeten Anlagen und Modelle eignen sich besonders künstlich hergestellte, mikrostrukturierte Proben aus Silizium. Durch die bekannten Strukturparameter und den modellhaften Charakter dieser Proben können die Leistungsfähigkeit der experimentellen Einrichtungen und der Modelle zur Interpretation der Streudaten getestet werden. Die Entwicklung und Herstellung einer Reihe solcher Silizium-Gitter am Zentrum für Mikro- und Nanostrukturen der Technischen Universität Wien (ZMNS) werden beschrieben. Die anschließenden USANS Messungen am Instrument S18 des Instituts Laue-Langevin, Grenoble, das vom Atominstitut der Österreichischen Universitäten betrieben wird, und das Instrument selbst werden dargestellt. Es folgt eine Gegenüberstellung der Ergebnisse dieser Messungen mit denen der neuentwickelten Spin-Echo Kleinwinkelstreuung von Neutronen (SESANS) an der Technischen Universität Delft. Die Komplementarität der beiden Verfahren wird anhand der Streudaten der Silizium-Gitter demonstriert. Ein Verfahren zur direkten Rekonstruktion eindimensionaler Streulängendichteverteilungen aus Streudaten wird auf die USANS Daten der Silizium-Mikrostrukturen angewendet. Die Ergebnisse werden mit elektronenmikroskopischen Aufnahmen verglichen und die Anwendbarkeit des Verfahrens auf USANS Messdaten zur Rekonstruktion eindimensionaler Streulängendichteprofile gezeigt. Im letzten Teil dieser Arbeit wird eine völlig neue Methode zur Charakterisierung magnetischer Strukturen von Festkörpern im μm -Bereich vorgestellt: Die Funktionsweise und der experimentelle Aufbau für die Ultra-Kleinwinkelstreuung polarisierter Neutronen (PUSANS) werden beschrieben und erste Messungen präsentiert.

Diese Arbeit wurde unterstützt durch das EURATOM-ÖAW Fusionsforschungsprojekt „ADV 1.1.1 - Advanced Materials: SiC/SiC_f ceramic composites - Thermodynamical properties and material characterization“ und den Fonds zur Förderung der wissenschaftlichen Forschung (FWF), Projekt FWF-SFB15 (No. F1514).

Abstract

In this work studies of micro- and nanostructured materials by means of neutron scattering techniques are presented. The first part contains the theory of neutron scattering by structures in condensed matter necessary for the understanding of the experimental results. The method of small angle neutron scattering (SANS) is applied to a sample of highly irradiated SiC/SiC_f composite. These materials play an important role in concepts for future fusion reactors. Radiation induced structural changes after high-dose irradiation in the spallation target of the SINQ neutron source, Switzerland, are analyzed. For testing instruments and methods used in ultra-small angle neutron scattering (USANS) artificial microstructured samples fabricated from silicon are particularly suitable. Because of the known structure parameters and the model-like character of such samples the performance of the instruments involved and the models used for interpretation of the scattering data can be tested. The development and fabrication of a series of such silicon gratings at the Center for Micro- and Nanostructures (ZMNS) of the Vienna University of Technology are described. The following USANS measurements at the instrument S18 of the Institute Laue-Langevin, Grenoble, which is run by the Atomic Institute of the Austrian Universities, and the instrument itself are presented. Subsequently the results are compared to those of the newly developed spin-echo small angle neutron scattering technique (SESANS) at the Delft University of Technology. The complementarity of both techniques is demonstrated by means of the scattering data obtained from the silicon gratings. A method for the direct reconstruction of one-dimensional scattering length density distributions is applied to the USANS scattering data of the silicon microstructures. The results are compared to those obtained from scanning electron microscopy and the applicability of the method to USANS scattering data for the reconstruction of one-dimensional scattering length density profiles is shown. In the last part of this work a completely new method for the characterization of magnetic structures in solids in the μm -range is presented: The principle and experimental setup for ultra-small angle scattering of polarized neutrons (PUSANS) are described and first measurements are presented.

This work was supported by the EURATOM-ÖAW fusion program "*ADV 1.1.1 - Advanced Materials: SiC/SiC_f ceramic composites - Thermodynamical properties and material characterization*" and the Austrian Science Fund (FWF), project FWF-SFB 15 (No. F1514).

Danksagung

Ich danke meinem Doktorvater o.Univ.Prof. Dr. Helmut Rauch für die Themenstellung und die Betreuung meiner Dissertation.

Weiters danke ich Univ.Prof. Dr. Gerald Badurek, der durch seine Vorschläge und seine Beteiligung die Experimente mit polarisierten Neutronen ermöglichte.

Mein besonderer Dank gilt den Herren Dr. Erwin Jericha und Dr. Mario Villa, die mir für zahllose Diskussionen und Fragen zur Verfügung standen und sehr wesentlich zum Gelingen der Experimente und dieser Arbeit beigetragen haben.

Bedanken möchte ich mich auch bei meinen Kollegen am Institut Laue-Langevin, Dipl.Ing. Rudi Loidl und Dipl.Ing. Stefan Filipp, die mit großem Einsatz die Messungen am Instrument S18 begleitet haben.

Mein Dank gilt weiters Dr. Werner Schrenk, Univ.Prof. Dr. Gottfried Strasser und Univ.Prof. Dr. Karl Unterrainer am Zentrum für Mikro- und Nanostrukturen.

Gedankt sei auch Dr. Joachim Kohlbrecher am Paul Scherrer Institut für die unbürokratische Unterstützung der Experimente.

Mein Dank geht auch an alle Mitarbeiter des Atominstututs, die in irgendeiner Weise zu den Experimenten und dieser Arbeit beigetragen haben.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Zur Theorie der Kleinwinkelstreuung	2
2.1	Streuamplitude und Wirkungsquerschnitt	3
2.2	Born'sche Näherung	4
2.3	Fermi-Potential und Streulänge	6
2.4	Streuung an ausgedehnten Systemen	7
2.5	Zwei-Phasen Systeme	9
2.6	Streuung an einfachen geometrischen Objekten	10
2.7	Brechungsindex	16
2.8	Poröse Medien	19
3	Kleinwinkelmessungen an SiC/SiC_f - Verbundwerkstoffen	21
3.1	SiC/SiC _f - Keramiken im TAURO Konzept	21
3.2	Aufbau des SiC/SiC _f - Verbundwerkstoffes	24
3.3	Hochdosisbestrahlung einer SiC/SiC _f - Probe	27
3.4	SANS Messungen	29
3.5	Ergebnisse	40
4	Entwicklung und Herstellung mikrostrukturierter Silizium-Gitter	41
4.1	Reactive Ion Etching	41
4.1.1	Funktionsprinzip	41
4.1.2	Prozessentwicklung	45
4.2	Ergebnisse	57
5	Ultra-Kleinwinkelmessungen an Silizium-Gittern	80
5.1	Die Bonse-Hart Kamera	80
5.2	Ultra-Kleinwinkelmessungen	87
5.3	Korrelationsfunktionen und Spin-Echo Kleinwinkelstreuung	97
5.3.1	Korrelationsfunktionen	97
5.3.2	Spin-Echo Kleinwinkelstreuung	101
5.4	Direkte Rekonstruktionsverfahren	105
5.4.1	Rekonstruktionsverfahren	105
5.4.2	Rekonstruktion der Gitterprofile	109

Inhaltsverzeichnis

6	Ultra-Kleinwinkelstreuung mit polarisierten Neutronen (PUSANS)	116
6.1	Magnetische Prismenrefraktion von Neutronen	116
6.2	Aufbau eines PUSANS-Experiments	117
6.3	Messungen	119
7	Zusammenfassung	126

1 Einleitung

Die Kleinwinkelstreuung von Neutronen ist eine Methode zur Untersuchung von Strukturen in Festkörpern im Größenbereich 1 nm bis etwa 30 μm . Neutronen sind für die Analyse der Strukturparameter besonders geeignet, da sie als ungeladene Teilchen tief in Materie eindringen und sich so in besonderer Weise zum Studium verschiedenster Phänomene in Festkörpern eignen. Im Unterschied zur häufig verwendeten Synchrotron- und Röntgenstrahlung unterscheidet die Methode verschiedene Isotope eines Elements. Das magnetische Moment des Neutrons ermöglicht darüber hinaus die Analyse magnetischer Strukturen. Die Wellenlängen der verwendeten Neutronen bewegen sich im \AA -Bereich, mit der Größe der untersuchten Strukturen ergeben sich kleine bis ultra-kleine Streuwinkel (einige Grad bis Bogensekunden), was dieser Streumethode den Namen gab. In der Kleinwinkelstreuung wird meist nicht der Streuwinkel als solcher verwendet, sondern der instrumentunabhängige Impulsübertrag oder Streuvektor, der durch $q = (4\pi/\lambda) \sin(\theta/2) \approx k \cdot \theta$ definiert ist. Die Methode findet Anwendung in verschiedenen wissenschaftlichen und technologischen Sparten, darunter Festkörperphysik, Molekularbiologie und Biophysik, sowie Metallurgie.

Zur Erzeugung von Neutronen in der für Strukturuntersuchungen notwendigen Intensität dienen Forschungsreaktoren und Spallationsquellen. Die in dieser Arbeit präsentierten Kleinwinkelmessungen (SANS) wurden am Paul Scherrer Institut (PSI), Schweiz, durchgeführt. Als Neutronenquelle dient in dieser Einrichtung die weltweit erste kontinuierliche Spallationsquelle SINQ. Das Atominstitut der Österreichischen Universitäten betreibt mit dem Instrument S18 am Institut Laue Langevin (ILL), Grenoble, eine Anlage, die sich wahlweise als Neutroneninterferometer oder als Doppelkristalldiffraktometer zur Auflösung ultra-kleiner Streuwinkel (USANS) betreiben lässt. Seit seiner Inbetriebnahme in den frühen Siebziger Jahren des 20. Jahrhunderts stellt der 58 MW Hochflussreaktor des ILL die international beste Neutronenquelle für Experimente der Grundlagenforschung und zur Strukturanalyse dar. Die im zweiten Teil dieser Arbeit behandelten Messungen an Silizium Modellproben und die erstmalige vollständige experimentelle Realisierung der Ultra-Kleinwinkelstreuung mit polarisierten Neutronen (PUSANS) erfolgten an dieser Einrichtung.

2 Zur Theorie der Kleinwinkelstreuung

Neutronen können nach deBroglie als Welle mit der Wellenlänge

$$\lambda = \frac{h}{p} = \frac{h}{mv} \quad (2.1)$$

betrachtet werden. h stellt das Plancksche Wirkungsquantum dar. Gleichung (2.1) vernachlässigt relativistische Effekte. Es sollen ausschließlich Experimente mit thermischen und kalten Neutronen behandelt werden, für die $v/c < 10^{-5}$ gilt. Die kinetische Energie ist dann gegeben durch:

$$E = \frac{mv^2}{2} = \frac{\hbar^2 k^2}{2m} = \frac{h^2}{2m\lambda^2} = k_B T \quad (2.2)$$

Für praktische Zwecke lassen sich folgende Beziehungen der am häufigsten verwendeten Größen angeben [Rauch00b] mit den Einheiten E [meV], k [\AA^{-1}], λ [\AA], v [m/s], T [K]:

$$E [\text{meV}] = 2.0723 \cdot k^2 = \frac{81.81}{\lambda^2} = 5.2267 \times 10^{-6} \cdot v^2 = 0.086173 \cdot T \quad (2.3)$$

$$v [\text{m/s}] = \frac{3956}{\lambda} \quad (2.4)$$

Für thermische Neutronen ergibt sich somit bei $T = 293\text{K}$:

$$E = 25 \text{ meV}, \quad \lambda = 1.8 \text{ \AA}, \quad v = 2200 \frac{\text{m}}{\text{s}} \quad (2.5)$$

In der folgenden quantenmechanischen Behandlung der Streuung von Neutronen an Strukturen in Festkörpern wird von elastischer Streuung ausgegangen und der Spin des Neutrons vernachlässigt.

2.1 Streuamplitude und Wirkungsquerschnitt

Die Streuung eines Teilchens an einem reellen skalaren Potential $V(\vec{r})$ wird beschrieben durch die Schrödingergleichung:

$$\frac{\hbar^2}{2m} \nabla^2 \Psi + E\Psi = V(\vec{r})\Psi \quad (2.6)$$

Das entspricht der Gleichung für ein freies Teilchen mit einem Quellterm. Die Lösung dieser Gleichung für positive Energien ist gegeben durch die Integralgleichung

$$\Psi(\vec{r}) = \Psi_0(\vec{r}) + \int d^3 r' G(\vec{r} - \vec{r}') \Psi(\vec{r}') V(\vec{r}') \quad (2.7)$$

wobei $\Psi_0(\vec{r})$ eine Lösung der homogenen Differentialgleichung mit gleicher Energie E darstellt:

$$\nabla^2 \Psi_0(\vec{r}) + \frac{2m}{\hbar^2} E \Psi_0(\vec{r}) = 0 \quad (2.8)$$

Eine Lösung dieser Gleichung ist

$$\Psi_0(\vec{r}) = e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}} \quad (2.9)$$

mit:

$$|\vec{k}| = \frac{\sqrt{2mE}}{\hbar} = \frac{2\pi}{\lambda} \quad (2.10)$$

Die Green'sche Funktion für ein freies Teilchen $G_0(\vec{r} - \vec{r}')$ ist definiert als

$$G_0(\vec{r}) = \frac{-m}{2\pi\hbar^2} \frac{e^{ikr}}{r} \quad (2.11)$$

und erfüllt die inhomogene Gleichung:

$$\nabla^2 G_0(\vec{r}) + \frac{2m}{\hbar^2} E G_0(\vec{r}) = \delta^3(\vec{r}) \quad (2.12)$$

$G_0(\vec{r})$ entspricht einer Kugelwelle, die sich von einer punktförmigen Quelle im Ursprung aus ausbreitet, die Lösung $\Psi_0(\vec{r}) = e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}}$ entspricht einer einfallenden ebenen Welle. Werden die gestreuten Teilchen in großer Entfernung vom Streuzentrum detektiert, so gilt

$$k|\vec{r} - \vec{r}'| \approx kr - k\hat{r}' \cdot \hat{r} \equiv kr - \vec{k}' \cdot \vec{r} \quad (2.13)$$

wobei $\hat{r} = \vec{r}/r$ und $\vec{k}' = k\hat{r}$. Mit dieser Näherung (der Fraunhofer-Näherung) erhalten wir für die Form der asymptotischen Lösung von Gleichung (2.7):

$$\Psi(\vec{r}) \stackrel{r \rightarrow \infty}{\approx} e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}} + f(\theta, \phi) \frac{e^{ikr}}{r} \quad (2.14)$$

2 Zur Theorie der Kleinwinkelstreuung

Die Streuamplitude

$$f(\theta, \phi) = \frac{-m}{2\pi\hbar^2} \int d^3r' V(\vec{r}') e^{-i\vec{k}' \cdot \vec{r}'} \Psi(\vec{r}') \quad (2.15)$$

hat die Dimension einer Länge und ist im Fall eines Zentralpotentials $V(r')$ nur von θ abhängig.

Der Fluss der Teilchen durch ein Flächenelement $R^2 d\Omega$ in großer Entfernung R zum Streuzentrum in Richtung (θ, ϕ) ist gegeben durch

$$d\Phi = j(R, \theta, \phi) R^2 d\Omega \quad (2.16)$$

wobei $j(R, \theta, \phi)$ die Wahrscheinlichkeitsstromdichte für die Lösung Ψ darstellt:

$$\vec{j}(\vec{r}) = \frac{\hbar}{2mi} \{\Psi^* \nabla \Psi - \nabla \Psi^* \Psi\} \quad (2.17)$$

Verwendet man für die Berechnung von (2.16) nur den gestreuten Wellenanteil, so erhält man für den Fluss gestreuter Teilchen:

$$d\Phi_s = \frac{\hbar k}{mR^2} |f(\theta, \phi)|^2 R^2 d\Omega \quad (2.18)$$

Daraus ergibt sich der differentielle Wirkungsquerschnitt zu:

$$\frac{d\sigma_s}{d\Omega} = \left(\frac{\hbar k}{m}\right)^{-1} \frac{d\Phi_s}{d\Omega} = |f(\theta, \phi)|^2 \quad (2.19)$$

2.2 Born'sche Näherung

Die Streuamplitude, wie sie durch Gleichung (2.15) definiert ist, stellt zwar der Form nach ein Matrixelement von V dar, allerdings mit Eigenfunktionen $\Psi(\vec{r}')$ und $e^{i\vec{k}' \cdot \vec{r}'} = \langle \vec{k}' | \vec{r}' \rangle$. Diese Funktionen sind Lösungen unterschiedlicher Schrödingergleichungen (inhomogen und homogen) mit derselben Energie E . Man kann nun einen Übergangsoperator T definieren:

$$\langle \vec{k}' | T | \vec{k} \rangle = \langle k' | V | \Psi(k) \rangle \quad (2.20)$$

$|\vec{k}\rangle$ und $|\vec{k}'\rangle$ sind dabei ein- und auslaufende freie Zustände mit Energie E , $\Psi(r) = \langle \vec{r} | \Psi(k) \rangle$. Durch Einsetzen des Integralausdrucks für $\Psi(r)$ Gleichung (2.7) ergibt sich für die Matrixelemente von T :

$$\begin{aligned} \langle \vec{k}' | T | \vec{k} \rangle &= \int d^3r e^{i(\vec{k}-\vec{k}') \cdot \vec{r}} T(\vec{r}) \\ &= \int d^3r e^{i(\vec{k}-\vec{k}') \cdot \vec{r}} V(\vec{r}) + \int d^3r d^3r' e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}} V(\vec{r}) G_0(\vec{r}-\vec{r}') T(\vec{r}') e^{-i\vec{k}' \cdot \vec{r}'} \end{aligned} \quad (2.21)$$

2 Zur Theorie der Kleinwinkelstreuung

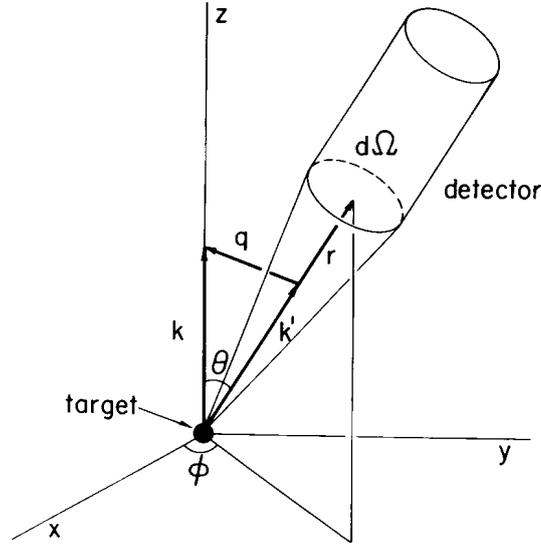


Abbildung 2.1: Schema der Streugeometrie [Sears89]

Aus dieser Integralgleichung kann man die Beziehung zwischen Operatoren T , V und G_0 ableiten:

$$T = V + VG_0T \quad (2.22)$$

G_0 ist hier zu verstehen als der Operator

$$G_0 = \lim_{\epsilon \rightarrow 0^+} [E - H_0 + i\epsilon]^{-1} \quad (2.23)$$

mit H_0 dem Hamiltonoperator für ein freies Teilchen; die Matrixelemente von G_0 sind gegeben durch:

$$\langle \vec{r} | G_0 | \vec{r}' \rangle = G_0(\vec{r} - \vec{r}') \quad (2.24)$$

Die Lösung für T aus Gleichung (2.22) kann angeschrieben werden als:

$$T = (1 - VG_0)^{-1} V \quad (2.25)$$

Der Ausdruck auf der rechten Seite von (2.25) lässt sich nach Potenzen von VG_0 entwickeln und man erhält die *Born'sche Reihe*:

$$T = \left(\sum_{j=0}^{\infty} (VG_0)^j \right) V \quad (2.26)$$

In der *Born'schen Näherung* wird nur der führende Term dieser Reihenentwicklung berücksichtigt ($j = 0$). Diese Näherung bedeutet also $T \approx V$. Das entspricht einer Ersetzung von $\Psi(\vec{r})$ in Gleichung (2.15) durch die ungestörte Wellenfunktion für ein freies Teilchen $\Psi_0(\vec{r}) = e^{i\vec{k}\vec{r}}$. Damit ist die Streuamplitude in der Born'schen Näherung gegeben durch die Fouriertransformierte des streuenden Potentials

$$f(\theta, \phi) \approx \frac{-m}{2\pi\hbar^2} \int d^3r' V(\vec{r}') e^{-i\vec{q}\cdot\vec{r}'} \quad (2.27)$$

2 Zur Theorie der Kleinwinkelstreuung

mit:

$$\vec{q} = \vec{k} - \vec{k}' \quad (2.28)$$

Die Beziehung der Größen \vec{k} , \vec{k}' , \vec{q} , θ und ϕ sind in Abbildung 2.1 dargestellt.

2.3 Fermi-Potential und Streulänge

Die Born'sche Näherung Gleichung (2.27) besitzt nur dann Gültigkeit, wenn das streuende Potential $V(\vec{r})$ schwach ist verglichen mit der Energie der einfallenden Teilchen, i.e. das Problem einer Behandlung in Störungstheorie erster Ordnung zugänglich ist. Für thermische Neutronen im Einflussbereich der starken Wechselwirkung mit einem Atomkern ist diese Voraussetzung vorderhand so nicht gegeben. Die Wechselwirkungsenergie übersteigt hier die kinetische Energie der einfallenden Neutronen bei weitem. Allerdings handelt es sich bei der starken Kernkraft um eine sehr kurzreichweitige Wechselwirkung ($\sim \text{fm}$). Das von Kernen effektiv beanspruchte Volumen in Festkörpern ist verschwindend gering im Vergleich zum Gesamtvolumen des Körpers. Dadurch wird die Behandlung der Streuung von Neutronen durch die Kerne in Festkörpern wieder in erster Ordnung Störungstheorie möglich.

Für thermische Neutronen ist die Wellenlänge ($\sim \text{\AA}$) um Größenordnungen höher als die effektive Reichweite der starken Wechselwirkung. Tatsächlich bewirkt die nukleare Streuung für langsame Neutronen nur eine räumliche Verschiebung b in der Wellenfunktion von der Größe der effektiven Reichweite. In der Born'schen Näherung sind nun Potential $V(r)$ und Streuamplitude $f(\theta)$ über eine Fouriertransformation verknüpft. Wie erstmals von Fermi vorgeschlagen, kann $V(r)$ als Kontaktpotential angesetzt werden [Fermi36], [Byrne94]:

$$V(\vec{r}) = B\delta^3(\vec{r}) \quad (2.29)$$

Die Konstante B ergibt sich aus dem Zusammenhang mit der Streuamplitude:

$$f(\theta) = -b = \frac{-mB}{2\pi\hbar^2} \quad (2.30)$$

Das Potential in der Form

$$V(\vec{r}) = \frac{2\pi\hbar^2}{m} b \delta^3(\vec{r}) \quad (2.31)$$

heißt Fermi-Pseudopotential, die Größe b wird als nukleare Streulänge bezeichnet. Eine positive Streulänge entspricht einem abstoßenden Potential, eine negative einem anziehenden.

In der bisherigen Behandlung wurde der eventuell vorhandene Kernspin vernachlässigt. Der Spin des Neutrons koppelt mit dem Kernspin I zu $I + \frac{1}{2}$ oder $I - \frac{1}{2}$ mit den

2 Zur Theorie der Kleinwinkelstreuung

Wahrscheinlichkeiten:

$$\begin{aligned}g_+ &= \frac{I+1}{2I+1} \\g_- &= \frac{I}{2I+1}\end{aligned}\quad (2.32)$$

Diesen beiden Möglichkeiten entsprechen auch zwei unterschiedliche Streulängen b_+ und b_- .

In einem Festkörper wechselwirken thermische und kalte Neutronen gleichzeitig mit vielen Kernen. Dadurch wird eine mittlere Verschiebung der Wellenfunktion bewirkt. Diese Größe wird als kohärente Streulänge b_c bezeichnet:

$$b_c = g_+ b_+ + g_- b_- \quad (2.33)$$

Die Varianz der Streulänge bestimmt die inkohärente Streulänge b_i :

$$b_i^2 = g_+ g_- (b_+ - b_-)^2 \quad (2.34)$$

Damit erhält man die entsprechenden Streuquerschnitte

$$\begin{aligned}\sigma_c &= 4\pi b_c^2 \\ \sigma_i &= 4\pi b_i^2\end{aligned}\quad (2.35)$$

und den totalen Streuquerschnitt:

$$\sigma_{tot} = \sigma_c + \sigma_i \quad (2.36)$$

Die kohärente Streulänge ist mit verschiedenen experimentellen Methoden messbar. Sie ist meist über einen weiten Energiebereich konstant und charakteristisch für das jeweilige Nuklid. Für viele Elemente und häufig auch deren Isotope steht sie als tabellierte Größe zur Verfügung [Rauch00a].

2.4 Streuung an ausgedehnten Systemen

In Abschnitt 2.2 wurde der Zusammenhang zwischen Streuamplitude und streuendem Potential für einen punktförmigen Streuer hergeleitet. Für die Beschreibung der Streuung von Neutronen an ausgedehnten Strukturen in einem Festkörper kann nun das resultierende mittlere Potential geschrieben werden als:

$$V_F = \left\langle \frac{2\pi\hbar^2}{m} \sum_j b_j \delta(\vec{r} - \vec{r}_j) \right\rangle \quad (2.37)$$

2 Zur Theorie der Kleinwinkelstreuung

Die von den Streuzentren an den Positionen \vec{r}_j auslaufenden Kugelwellen interferieren wieder zu einer gemeinsamen auslaufenden Wellenfront. Mit der kohärenten Streulänge

$$b_c = \langle b_j \rangle \quad (2.38)$$

und der mittleren Teilchendichte

$$N = \langle N(\vec{r}) \rangle = \left\langle \sum_j \delta(\vec{r} - \vec{r}_j) \right\rangle \quad (2.39)$$

erhält man für das mittlere Fermi-Pseudopotential, das neutronenoptische Potential:

$$V_F = \frac{2\pi\hbar^2}{m} N b_c \quad (2.40)$$

Bei diesem Potential handelt es sich um ein makroskopisches mittleres Potential. Falls sich das Potential von einem makroskopischen Mittelungsbereich zum nächsten ändert, i.e. der streuende Körper eine Strukturierung in Dichte und/oder Zusammensetzung aufweist, so ergibt sich ein ortsabhängiges effektives Potential:

$$V_F(\vec{r}) = \frac{2\pi\hbar^2}{m} (N b_c)(\vec{r}) \equiv \frac{2\pi\hbar^2}{m} \rho(\vec{r}) \quad (2.41)$$

$\rho(\vec{r})$ wird als kohärente gebundene Streulängendichte bezeichnet. Mit diesen gemittelten Größen kann wiederum eine Einteilchen-Schrödingergleichung angeschrieben werden, die die Wechselwirkung des Neutrons mit dem makroskopischen System gebundener Atome beschreibt:

$$\left(-\frac{\hbar^2}{2m} \nabla^2 + V_F(\vec{r}) \right) \Psi(\vec{r}) = E \Psi(\vec{r}) \quad (2.42)$$

Die Streuamplitude und der differentielle Wirkungsquerschnitt für ein makroskopisches Objekt lauten also mit den effektiven gemittelten Größen:

$$f(\vec{q}) = \frac{-m}{2\pi\hbar^2} \int d^3r V_F(\vec{r}) e^{-i\vec{q}\cdot\vec{r}} = \int d^3r \rho(\vec{r}) e^{-i\vec{q}\cdot\vec{r}} \quad (2.43)$$

$$\frac{d\sigma}{d\Omega}(\vec{q}) = \frac{m^2}{4\pi^2\hbar^4} \left| \int d^3r V_F(\vec{r}) e^{-i\vec{q}\cdot\vec{r}} \right|^2 = \left| \int d^3r \rho(\vec{r}) e^{-i\vec{q}\cdot\vec{r}} \right|^2 \quad (2.44)$$

Die Streulängendichte kann noch aufgespalten werden in

$$\rho(\vec{r}) = \langle \rho \rangle + D(\vec{r}) \quad (2.45)$$

$D(\vec{r})$ wird Streulängendichtekontrast genannt. Mit dieser Zerlegung wird aus Gleichung (2.44) deutlich, dass nicht die Streulängendichte als solche, sondern ihre räumliche Variation das Streugeschehen bestimmt.

Die Streuamplitude und die Streulängendichte sind in der Born'schen Näherung also über eine Fouriertransformation verknüpft. (2.43) und (2.44) stellen die zentralen Gleichungen für die Interpretation von Kleinwinkelstreuexperimenten dar.

2.5 Zwei-Phasen Systeme

Einen häufig auftretenden Spezialfall stellen Systeme dar, die sich aus zwei Phasen mit jeweils konstanter Streulängendichte zusammensetzen: Einer Matrix sind Strukturen (Ausscheidungen, Poren etc.) mit abweichender, aber ebenfalls konstanter Streulängendichte eingelagert. Seien die Streulängendichten von Matrix und Streuern ρ_M und ρ_S . Dann lässt sich der Wirkungsquerschnitt (2.44) schreiben als

$$\begin{aligned} \frac{d\sigma}{d\Omega}(\vec{q}) &= \left| \int d^3r \rho(\vec{r}) e^{-i\vec{q}\cdot\vec{r}} \right|^2 \\ &= \left| \int_{V_S} d^3r \rho_S e^{-i\vec{q}\cdot\vec{r}} + \int_{V-V_S} d^3r \rho_M e^{-i\vec{q}\cdot\vec{r}} \right|^2 \\ &= \left| \int_{V_S} d^3r (\rho_S - \rho_M) e^{-i\vec{q}\cdot\vec{r}} + \int_V d^3r \rho_M e^{-i\vec{q}\cdot\vec{r}} \right|^2 \end{aligned} \quad (2.46)$$

Das zweite Integral erstreckt sich über das Gesamtvolumen der Probe und liefert keinen Beitrag im relevanten q -Bereich. Seien Form und Anordnung der Streuer beschrieben durch die Funktion $s(\vec{r})$, so dass

$$\begin{aligned} s(\vec{r}) &= 1 \quad \vec{r} \text{ in } V_S \\ s(\vec{r}) &= 0 \quad \text{sonst} \end{aligned} \quad (2.47)$$

dann kann mit

$$\Delta\rho \equiv \rho_S - \rho_M \quad (2.48)$$

Gleichung (2.46) umgeschrieben werden in:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega}(\vec{q}) = (\Delta\rho)^2 \left| \int d^3r s(\vec{r}) e^{-i\vec{q}\cdot\vec{r}} \right|^2 \quad (2.49)$$

Die Größe

$$|F(\vec{q})|^2 = \left| \int d^3r s(\vec{r}) e^{-i\vec{q}\cdot\vec{r}} \right|^2 \quad (2.50)$$

wird auch als Formfaktor der Streuer bezeichnet. Die Form eines Streuers mit konstanter Streulängendichte und seine Streuamplitude stellen also ein Fourierpaar dar. Im folgenden werden die wichtigsten Eigenschaften der Fouriertransformation zusammengefasst.

Seien

$$F(q) \equiv \int f(x) e^{-iqx} dx = \mathfrak{F}(f(x))$$

2 Zur Theorie der Kleinwinkelstreuung

und

$$G(q) \equiv \int g(x)e^{-iqx} dx = \mathfrak{F}(g(x)).$$

Dann gelten folgende Relationen:

Linearität:

$$\mathfrak{F}(af(x) + bg(x)) = aF(q) + bG(q) \quad (2.51)$$

Skalierungstheorem:

$$\mathfrak{F}(f(ax)) = \frac{1}{|a|} F\left(\frac{q}{a}\right) \quad (2.52)$$

Verschiebungstheorem:

$$\mathfrak{F}(f(x-a)) = e^{-iqa} F(q) \quad (2.53)$$

Faltungstheorem:

$$\begin{aligned} \mathfrak{F}(f(x) \otimes g(x)) &= F(q) \cdot G(q) \\ \mathfrak{F}(f(x) \cdot g(x)) &= F(q) \otimes G(q) \end{aligned} \quad (2.54)$$

Komplex Konjugierte:

$$\mathfrak{F}(f^*(x)) = F^*(-q) \quad (2.55)$$

Ableitungstheorem:

$$\mathfrak{F}(f'(x)) = iqF(q) \quad (2.56)$$

Modulationstheorem:

$$\mathfrak{F}(f(x) \cos(ax)) = \frac{1}{2} F(q-a) + \frac{1}{2} F(q+a) \quad (2.57)$$

In Tabelle 2.1 sind einige Fourierpaare von Funktionen für den eindimensionalen Fall angeführt.

2.6 Streuung an einfachen geometrischen Objekten

Der Zusammenhang von Streuamplitude und Form des Streuers über eine Fouriertransformation macht es in der Fraunhofernäherung möglich, für einfache Geometrien die Streuamplitude analytisch zu berechnen.

2 Zur Theorie der Kleinwinkelstreuung

$s(x)$	$F(q)$
1	$\delta(q)$
$\exp(-ax^2)$	$\exp(-q^2/(4a))$
$\cos(ax)$	$\frac{1}{2} [\delta(q+a) + \delta(q-a)]$
$\sin(ax)$	$\frac{1}{2} [\delta(q+a) - \delta(q-a)]$
$\Pi(x, a) = \begin{cases} 1 & x \leq a/2 \\ 0 & x > a/2 \end{cases}$	$a \sin(aq/2)/(aq/2)$
$\Lambda(x, a) = \begin{cases} 1 - x /a & x \leq a \\ 0 & x > a \end{cases}$	$a [\sin(aq/2)/(aq/2)]^2$

Tabelle 2.1: Einige häufig vorkommende Fourierpaare von Funktionen

Homogener quaderförmiger Streuer:

Wir betrachten einen Quader mit konstanter Streulängendichte ρ . Dieser lässt sich beschreiben als

$$s(\vec{r}) = s(x, y, z) = \Pi(x, a)\Pi(y, b)\Pi(z, c) \quad (2.58)$$

mit der Funktion Π wie sie in Tabelle 2.1 angegeben ist. Mit der Definition $\delta(q, a) = \sin(aq/2)/(aq/2)$ und dem Volumen des Streuers $V = abc$ kann die Streuamplitude des Objektes direkt angegeben werden:

$$f(\vec{q}) = \rho V \delta(q_x, a) \delta(q_y, b) \delta(q_z, c) \quad (2.59)$$

Aus

$$\begin{aligned} \lim_{a \rightarrow \infty} \delta(q, a) &= \delta(q) \\ \lim_{a \rightarrow 0} \delta(q, a) &= 1 \end{aligned} \quad (2.60)$$

ist das allgemeine metrische Verhalten über Fouriertransformation verknüpfter Funktionen ersichtlich: Typische Abstände im Ortsraum und im reziproken Raum haben ein zueinander inverses Verhalten. So streut etwa eine große Struktur zu kleinen Winkeln und umgekehrt. Grob kann gesagt werden, dass um Information über einen Streuer der Größe L zu erhalten, die Streuintensität mindestens bis zu Streuwinkeln entsprechend $q \leq \frac{2\pi}{L}$ gemessen werden muss.

Homogener kugelförmiger Streuer:

Für einen kugelförmigen Streuer mit konstanter Streulängendichte ρ lässt sich mit

2 Zur Theorie der Kleinwinkelstreuung

$\Pi(r, R)$ wie in Tabelle 2.1 definiert die Streuamplitude folgendermaßen anschreiben:

$$\begin{aligned}
 s(\vec{r}) &= s(r) = \Pi(r, R) \\
 f(\vec{q}) &= \rho \int \Pi(r, R) e^{-i\vec{q}\cdot\vec{r}} d^3 r \\
 &= \rho \int_0^\pi \int_0^{2\pi} \int_0^R e^{-iqr \cos \theta} r^2 \sin \theta d\theta d\phi dr \\
 &= 2\pi \rho \int_0^\pi \int_0^R e^{-iqr \cos \theta} r^2 \sin \theta d\theta dr
 \end{aligned} \tag{2.61}$$

Mit der Substitution $qr \cos \theta = u$ und $\sin \theta d\theta = -\frac{1}{qr} du$ erhält man für die Integration über θ

$$\begin{aligned}
 \int_0^\pi e^{-iqr \cos \theta} \sin \theta d\theta &= \int_{-qr}^{qr} e^{-iu} \frac{1}{qr} du \\
 &= \frac{-i}{qr} e^{-iu} \Big|_{-qr}^{qr} = \frac{-i}{qr} (e^{-iqr} - e^{iqr}) \\
 &= \frac{2}{qr} \sin qr
 \end{aligned} \tag{2.62}$$

und schließlich:

$$\begin{aligned}
 f(q) &= \rho F(q) \\
 &= \rho \frac{4\pi}{q} \int_0^R r \sin qr dr \\
 &= \rho \frac{4\pi}{q} \left(\frac{-r \cos qr}{q} \Big|_0^R + \frac{1}{q} \int_0^R \cos qr dr \right) \\
 &= \rho \frac{4\pi R^3}{3} \cdot 3 \frac{\sin qR - qR \cos qR}{(qR)^3}
 \end{aligned} \tag{2.63}$$

Homogener zylinderförmiger Streuer:

Durch Übergang auf Zylinderkoordinaten lässt sich ähnlich wie für den kugelförmigen Streuer die Streuamplitude für einen Zylinder mit Radius R und Länge L berechnen:

$$\begin{aligned}
 f(q) &= \rho F(q) \\
 &= 2\rho R^2 \pi L \frac{\sin((qL/2) \cos(\alpha))}{(qL/2) \cos \alpha} \frac{J_1(qR \sin \alpha)}{qR \sin \alpha}
 \end{aligned} \tag{2.64}$$

J_1 ist die Besselfunktion erster Ordnung und α bezeichnet den Winkel zwischen dem Streuvektor q und der Achse des Zylinders.

2 Zur Theorie der Kleinwinkelstreuung

Näherungen für $qR \gg 2\pi$ und $qR \ll 1$:

In der Praxis tritt häufig der Fall zufällig in der Probe orientierter Streuer auf. Für Streuer mit glatter Oberfläche kann über eine Reihenentwicklung ein asymptotisches Verhalten des orientierungsgemittelten Streuquerschnitts hergeleitet werden. Für $qR \gg 2\pi$ ergeben sich einfache Potenzgesetze abhängig von der Streugeometrie, [Porod51]:

- Kugel:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega}(q) \propto q^{-4} \quad (2.65)$$

- Zylinder:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega}(q) \propto q^{-3} \quad (2.66)$$

- Plättchen:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega}(q) \propto q^{-2} \quad (2.67)$$

Ähnlich lässt sich für den Fall $qR \ll 1$ zeigen, dass der Verlauf des Streuquerschnitts in diesem Bereich ganz allgemein durch ein Exponentialgesetz beschrieben wird, [Guinier55]:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega}(q) \propto e^{-\frac{q^2 R_g^2}{3}} \quad (2.68)$$

Der sogenannte *Guinierradius* R_g entspricht dem Trägheitsradius des Streuers :

$$R_g^2 = \frac{\int \rho(\vec{r}) r^2 d^3 r}{\int \rho(\vec{r}) d^3 r} \quad (2.69)$$

Er hängt also von der Form des Streuers ab, etwa:

- Kugel:

$$R_g = \sqrt{\frac{3}{5}} R \quad (2.70)$$

- Zylinder:

$$R_g = \frac{1}{\sqrt{2}} R \quad (2.71)$$

2 Zur Theorie der Kleinwinkelstreuung

- Plättchen:

$$R_g = \frac{1}{\sqrt{12}} D \quad (2.72)$$

Periodische Anordnung von Streuern:

Eine unendlich ausgedehnte periodische Anordnung von beliebigen, identen Streuern mit Periode a lässt sich schreiben als

$$\rho(x) = \rho \cdot s_\infty(x) \otimes s_{\text{einzel}}(x) \quad (2.73)$$

mit $s_{\text{einzel}}(x)$ der Formfunktion des einzelnen Streuers und

$$s_\infty(x) = \sum_{n=-\infty}^{\infty} \delta(x - na). \quad (2.74)$$

Der Formfaktor dieser Struktur

$$|F(q)|^2 = |F_\infty(q) \cdot F_{\text{einzel}}(q)|^2 \quad (2.75)$$

mit (siehe z.B. [Feigin87])

$$F_\infty(q) = \sum_{n=-\infty}^{\infty} e^{iqna} = \frac{2\pi}{a} \sum_{n=-\infty}^{\infty} \delta\left(q - \frac{2\pi n}{a}\right) \quad (2.76)$$

ist also wiederum eine periodische Funktion in q mit Periode $2\pi/a$. Im Zusammenhang mit periodisch angeordneten Streuern wird häufig der Formfaktor des Einzelstreuers als *Formfaktor* im engeren Sinn bezeichnet und der Formfaktor der periodischen Anordnung als *Strukturfaktor*, [Born99].

Der endliche Fall einer periodischen Anordnung von $N + 1$ Streuern mit Ausdehnung $L = Na$ ergibt sich aus der unendlichen Anordnung, wenn s_∞ durch die Funktion

$$s_L(x) = s_\infty(x) \Pi(x, L) \quad (2.77)$$

ersetzt wird. Für den Strukturfaktor erhält man dann

$$F_L(q) = \frac{2\pi}{a} \sum_{n=-\infty}^{\infty} \delta\left(q - \frac{2\pi n}{a}\right) \otimes [Na \delta(q, Na)] \quad (2.78)$$

d.h. die δ -Funktionen an den Stellen $x = na$ werden ersetzt durch Funktionen der Form $\delta(q, Na) = \sin(Naq/2)/(Naq/2)$ mit endlicher Breite. Die Halbwertsbreite der Funktion $\delta(q, Na)$ beträgt $2\pi/(Na)$, nimmt also mit steigender Anzahl beteiligter Streuer ab, vgl. Abbildungen 2.2 und 2.3.

2 Zur Theorie der Kleinwinkelstreuung

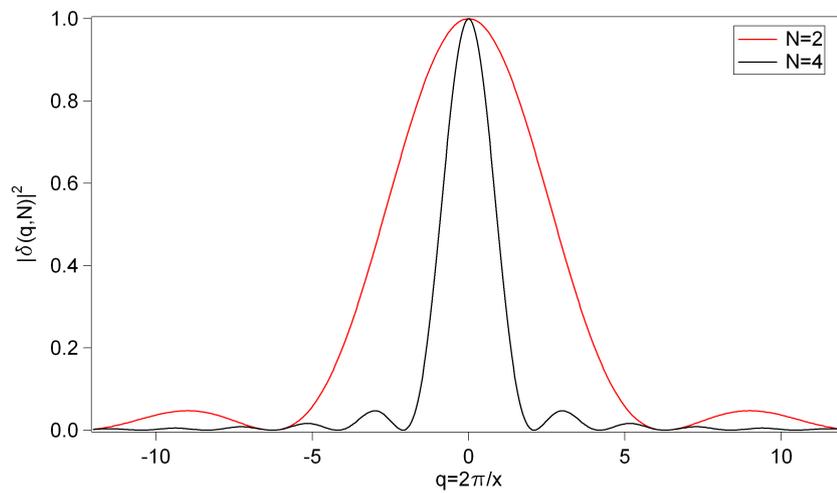


Abbildung 2.2: Die Funktion $|\delta(q, Na)|^2$ für $N = 2$ und $N = 4$. $a = 1$

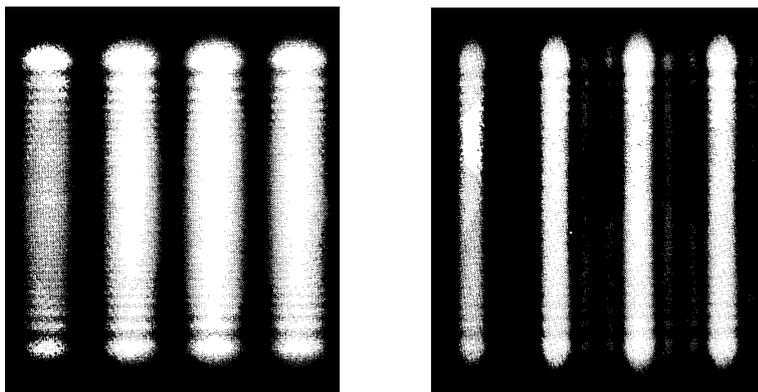


Abbildung 2.3: Beugung von Licht an Strichgittern. Anzahl der Schlitze $N=2$ (links) und $N=4$ (rechts), [Guenther90].

2.7 Brechungsindex

Beim Durchtritt durch die Grenzfläche von Vakuum zu einem Medium mit dem neutronenoptischen Potential V_F kann das Neutron beschrieben werden durch

$$\begin{aligned}\psi(\vec{r}) &= Ae^{i\vec{K}\cdot\vec{r}} && \text{im Medium} \\ \psi(\vec{r}) &= ae^{i\vec{k}\cdot\vec{r}} && \text{außerhalb,}\end{aligned}\tag{2.79}$$

die Beträge der Wellenvektoren sind festgelegt durch die kinetische Energie und das Potential im Medium:

$$E = \frac{(\hbar K)^2}{2m_n} + V_F = \frac{(\hbar k)^2}{2m_n}\tag{2.80}$$

Der Brechungsindex eines Mediums ist definiert als:

$$n = \frac{K}{k}\tag{2.81}$$

Aus Gleichung (2.80) erhält man

$$n^2 = 1 - \xi = 1 - \frac{V_F}{E}\tag{2.82}$$

und mit Gleichung (2.40) schließlich:

$$\xi = \frac{4\pi}{k^2}Nb_c = \frac{\lambda^2}{\pi}Nb_c\tag{2.83}$$

Ein anderer Ausdruck für die Größe ξ ist

$$\xi = \left(\frac{\lambda}{\lambda_c}\right)\tag{2.84}$$

mit λ_c der *Grenzwellenlänge*

$$\lambda_c = \sqrt{\frac{\pi}{Nb_c}}.\tag{2.85}$$

Für positive reelle Streulängen b_c gibt λ_c an, ab welcher Wellenlänge Neutronen selbst bei senkrechtem Einfall auf die Materialoberfläche in diese nicht mehr eindringen können und totalreflektiert werden. Typische Werte von λ_c liegen bei 1000 Å. Neutronen mit Wellenlängen über diesem Wert werden häufig als ultrakalte Neutronen bezeichnet. Für thermische Neutronen liegt die Wellenlänge im Bereich einiger Å, so dass in diesem Fall für viele Materialien gilt:

$$n \approx 1 - \lambda^2 \frac{Nb_c}{2\pi}\tag{2.86}$$

2 Zur Theorie der Kleinwinkelstreuung

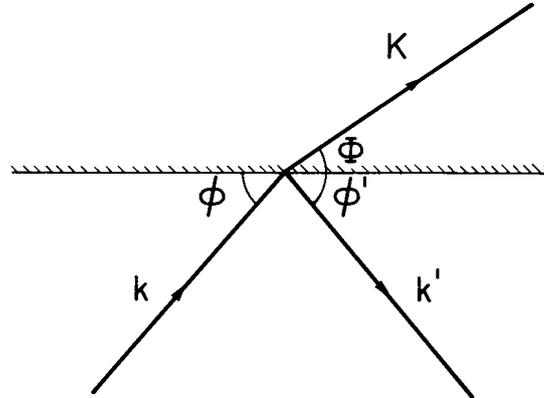


Abbildung 2.4: Brechung an einer Grenzfläche

Setzt sich das Medium nicht nur aus einer Atomart zusammen, errechnet sich die kohärente gebundene Streulängendichte Nb_c des Systems aus den Anzahldichten N_i und den kohärenten gebundenen Streulängen b_{ci} der einzelnen Atomarten:

$$Nb_c = \sum_i N_i b_{ci} \quad (2.87)$$

Analog zum Übertritt eines Neutrons von Vakuum in ein Medium lässt sich auch ein relativer Brechungsindex für den Durchgang durch eine Grenzfläche zwischen zwei Medien A und B definieren:

$$n = \frac{K_A}{K_B} = \frac{n_A}{n_B} \quad (2.88)$$

Damit erhält man

$$n^2 = \frac{1 - \xi_A}{1 - \xi_B} \equiv 1 - \xi \quad (2.89)$$

wobei in erster Näherung geschrieben werden kann:

$$\begin{aligned} \xi &\approx \xi_A - \xi_B \\ &= \frac{1}{E} (V_{FA} - V_{FB}) \\ &= \frac{\lambda^2}{\pi} (N_A b_{cA} - N_B b_{cB}) \end{aligned} \quad (2.90)$$

Für die Berücksichtigung der Reflexion bei Übertritt durch eine ebene Grenzfläche in das Medium wählen wir das Koordinatensystem so, dass die Grenzfläche mit der Ebene $z = 0$ zusammenfällt. $z < 0$ entspreche dem Vakuum. Weiters liege \vec{k} in der Ebene $y = 0$, siehe Abbildung 2.4. Wir suchen nach einer Lösung der Schrödingergleichung, in der an der Grenzfläche der einfallende Strahl teilweise reflektiert wird, aus Gleichung

2 Zur Theorie der Kleinwinkelstreuung

(2.79) wird also:

$$\begin{aligned}\psi(\vec{r}) &= Ae^{i\vec{K}\cdot\vec{r}} & z > 0 \\ \psi(\vec{r}) &= ae^{i\vec{k}\cdot\vec{r}} + a'e^{i\vec{k}'\cdot\vec{r}} & z < 0\end{aligned}\quad (2.91)$$

Mit der speziellen Wahl des Koordinatensystems gilt:

$$\vec{k} = (k \cos \phi, 0, k \sin \phi) \quad (2.92)$$

Aus der Forderung, dass $\psi(\vec{r})$ und $\nabla\psi(\vec{r})$ bei $z = 0$ stetig sein sollen, folgt für die Wellenvektoren \vec{k}' , \vec{K} und die Amplituden a' , A

$$\begin{aligned}\vec{k}' &= (k \cos \phi, 0, -k \sin \phi) \\ \vec{K} &= (k \cos \phi, 0, n_z k \sin \phi)\end{aligned}\quad (2.93)$$

Gleichungen (2.92) und (2.93) enthalten bereits implizit das *Reflexionsgesetz*:

$$\phi' = \phi \quad (2.94)$$

Weiters erhält man

$$\begin{aligned}a' &= \frac{1 - n_z}{1 + n_z} a \\ A &= \frac{2}{1 + n_z} a\end{aligned}\quad (2.95)$$

mit:

$$n_z \equiv \frac{K_z}{k_z} = \sqrt{1 - \frac{\xi}{\sin^2 \phi}} \quad (2.96)$$

Damit sind durch ϕ, k, a und b_c alle anderen Größen festgelegt. In den meisten Fällen ist der Wellenvektor \vec{K} der gebrochenen Wellenfunktion in guter Näherung reell, und es gilt:

$$K_z = n_z k \sin \phi = K \sin \Phi \quad (2.97)$$

Der Brechungswinkel Φ hängt mit dem Einfallswinkel ϕ folgendermaßen zusammen:

$$n_z \sin \phi = n \sin \Phi \quad (2.98)$$

In der Form

$$\cos \phi = n \cos \Phi. \quad (2.99)$$

ist dieser Zusammenhang das bekannte *Snellius'sche Brechungsgesetz*.

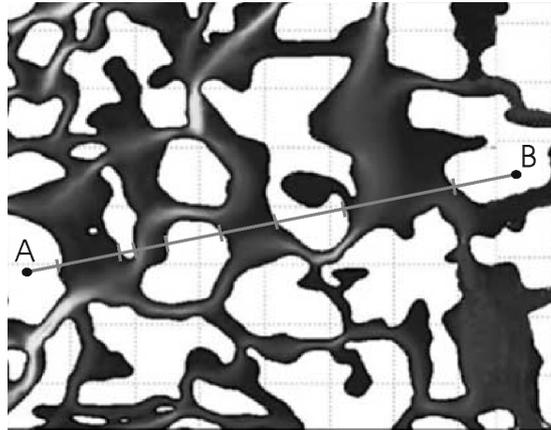


Abbildung 2.5: Poröses Medium

2.8 Poröse Medien

Von porösen Medien im Sinn der Kleinwinkelstreuung wird meist dann gesprochen, wenn keine bestimmte Porengeometrie und keine einfache Verteilung der Porengröße vorliegt. Ein derartiges Medium lässt sich als Zwei-Phasen System mit zufälliger Verteilung der Porendurchmesser beschreiben. Die beiden Phasen sind gegeben durch die Poren und die sie umgebende Matrix.

Eine mögliche Behandlung derartiger Systeme liefert das Debye-Anderson-Brumberger Modell [Debye57]. Die Streulängendichten der beiden Phasen ρ_1, ρ_2 werden als konstant angenommen. Die relativen Volumsanteile der beiden Phasen an der Probe seien Φ_1 und Φ_2 mit $\Phi_1 + \Phi_2 = 1$. Die effektiven Streulängendichtekontraste können dann dargestellt werden als

$$\eta_1 = \rho_1 - \bar{\rho} = \Phi_2 \Delta\rho \quad (2.100)$$

$$\eta_2 = \rho_2 - \bar{\rho} = -\Phi_1 \Delta\rho \quad (2.101)$$

mit:

$$\bar{\rho} = \Phi_1 \rho_1 + \Phi_2 \rho_2 \quad (2.102)$$

$$\Delta\rho = \rho_1 - \rho_2 \quad (2.103)$$

Für zwei beliebig gewählte Punkte A, B im Medium mit Abstand \vec{R} lässt sich die Wahrscheinlichkeit $P_{11}(\vec{R})$ angeben, dass wenn Punkt A in Phase 1 liegt, auch Punkt B in Phase 1 liegt, entsprechend existieren Wahrscheinlichkeiten $P_{12}(\vec{R}), P_{21}(\vec{R}), P_{22}(\vec{R})$:

$$P_{11}(\vec{R}) + P_{12}(\vec{R}) = 1 \quad (2.104)$$

$$P_{22}(\vec{R}) + P_{21}(\vec{R}) = 1 \quad (2.105)$$

2 Zur Theorie der Kleinwinkelstreuung

Die absoluten Wahrscheinlichkeiten, zwei beliebige Punkte in derselben Phase vorzufinden sind dann:

$$\tilde{P}_{11}(\vec{R}) = \Phi_1 P_{11}(\vec{R}) \quad (2.106)$$

$$\tilde{P}_{22}(\vec{R}) = \Phi_2 P_{22}(\vec{R}) \quad (2.107)$$

Aus Symmetriegründen folgt:

$$\tilde{P}_{12}(\vec{R}) = \Phi_1 P_{12}(\vec{R}) = \tilde{P}_{21}(\vec{R}) = \Phi_2 P_{21}(\vec{R}) \quad (2.108)$$

Sei $\gamma_0(\vec{R})$ definiert durch

$$P_{11}(\vec{R}) = \Phi_1 + \Phi_2 \gamma_0(\vec{R}) \quad (2.109)$$

dann können die restlichen Größen $P_{ij}(\vec{R})$ angeschrieben werden als:

$$P_{12}(\vec{R}) = 1 - P_{11}(\vec{R}) = 1 - \Phi_1 - \Phi_2 \gamma_0(\vec{R}) = \Phi_2 - \Phi_2 \gamma_0(\vec{R}) \quad (2.110)$$

$$P_{21}(\vec{R}) = \frac{\Phi_1}{\Phi_2} P_{12}(\vec{R}) = \Phi_1 - \Phi_1 \gamma_0(\vec{R}) \quad (2.111)$$

$$P_{22}(\vec{R}) = 1 - P_{21}(\vec{R}) = 1 - \Phi_1 + \Phi_1 \gamma_0(\vec{R}) = \Phi_2 + \Phi_1 \gamma_0(\vec{R}) \quad (2.112)$$

Die gemittelte Korrelationsfunktion

$$\gamma(\vec{R}) = \langle \rho(\vec{R}) \otimes \rho(\vec{R}) \rangle \quad (2.113)$$

lässt sich schreiben:

$$\gamma(\vec{R}) = \eta_1^2 \tilde{P}_{11}(\vec{R}) + 2\eta_1 \eta_2 \tilde{P}_{12}(\vec{R}) + \eta_2^2 \tilde{P}_{22}(\vec{R}) \quad (2.114)$$

Nach Einsetzen der entsprechenden Größen erhält man für die Korrelationsfunktion in porösen Medien:

$$\gamma(\vec{R}) = (\Delta\rho)^2 \Phi_1 \Phi_2 \gamma_0(\vec{R}) \quad (2.115)$$

Für den auf das Einheitsvolumen der Probe bezogenen makroskopischen differentiellen Wirkungsquerschnitt ergibt sich damit

$$\frac{d\Sigma}{d\Omega}(\vec{q}) = (\Delta\rho)^2 \Phi_1 \Phi_2 \int \gamma_0(\vec{R}) e^{i\vec{q}\cdot\vec{R}} d^3R \quad (2.116)$$

bzw. in als isotrop anzunehmenden Medien

$$\frac{d\Sigma}{d\Omega}(q) = (\Delta\rho)^2 \Phi_1 \Phi_2 \int_0^\infty 4\pi \gamma_0(R) \frac{\sin qR}{qR} dR \quad (2.117)$$

Debye, Anderson und Brumberger nehmen für die Funktion $\gamma_0(R)$ einen exponentiell abfallenden Verlauf an,

$$\gamma_0(R) = e^{-\frac{R}{l}} \quad (2.118)$$

wobei l den typischen Durchmesser der Poren bezeichnet.

Nach Lösen des Integrals (2.8) ergibt sich für den makroskopischen Wirkungsquerschnitt im DAB-Modell für poröse Medien:

$$\frac{d\Sigma}{d\Omega}(q) = 8\pi l^3 (\Delta\rho)^2 \Phi_1 \Phi_2 \left(\frac{1}{1 + q^2 l^2} \right)^2 \quad (2.119)$$

3 Kleinwinkelmessungen an SiC/SiC_f - Verbundwerkstoffen

Konzepte für Kernfusionsanlagen stellen höchste und zum Teil neuartige Anforderungen an die verwendeten Werkstoffe. Die Weiterentwicklung entsprechender Materialien spielt deshalb eine zentrale Rolle in der Kernfusionsforschung. Besondere Herausforderungen sind etwa die thermische und mechanische Stabilität sowie Beständigkeit gegen Strahlenschäden. EURATOM unterstützt in Fusionsforschungsprogrammen die Weiterentwicklung und Charakterisierung neuer Materialien. Das Atominstitut der Österreichischen Universitäten beteiligt sich am Programm „ADV 1.1.1 - *Advanced Materials: SiC/SiC_f ceramic composites - Thermodynamical properties and material characterization*“. Im Rahmen dieses Projektes wurde die Strukturveränderung einer SiC/SiC_f - Probe durch Hochdosisbestrahlung untersucht. Die Bestrahlung erfolgte im Spallationstarget der Schweizer Neutronenquelle SINQ am Paul Scherrer Institut, die anschließenden Experimente zur Strukturbestimmung fanden an der SANS-I Anlage der gleichen Einrichtung statt.

3.1 SiC/SiC_f - Keramiken im TAURO Konzept

Das in der Europäischen Union entwickelte TAURO Konzept sieht ein selbstgekühltes Lithium-Blei Blanket vor [[Perez Ramirez96](#)]. Faserverstärkte SiC/SiC_f - Keramiken kommen in diesem Konzept als Strukturmaterial zum Einsatz. Das Breeder-Blanket erfüllt mehrere Aufgaben. Es umgibt den Torus des Fusionsreaktors, neben der direkten Wärmeübertragung aus dem im Torus befindlichen Plasma ist es hochenergetischen Neutronen ausgesetzt. Im Blanket werden diese Neutronen abgebremst und ihre Energie auf das Lithium-Blei Gemisch übertragen. Weiters wird durch den Neutronenbeschuss aus Lithium Tritium erbrütet. Das flüssige Lithium-Blei Gemisch strömt kontinuierlich durch die aus SiC/SiC_f - Elementen aufgebaute Hohlstruktur des Blankets, Abbildung 3.2. Auf diese Weise erfolgt der Abtransport des erbrüteten Tritiums

3 Kleinwinkelmessungen an SiC/SiC_f - Verbundwerkstoffen

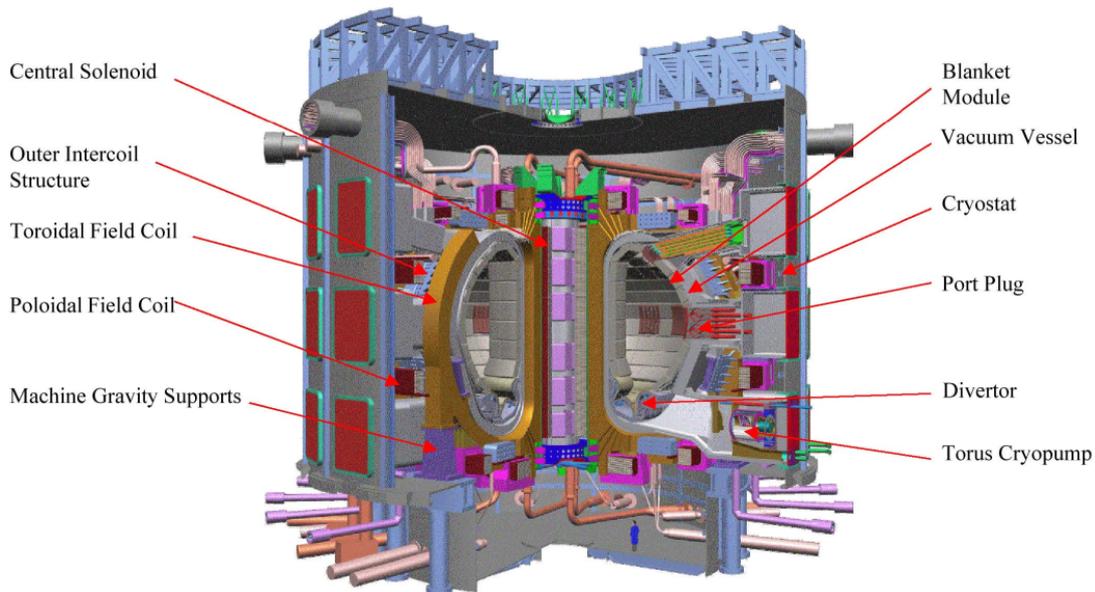
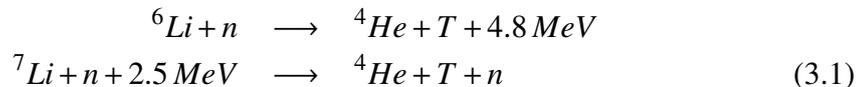


Abbildung 3.1: Tokamak Fusionsreaktor

und der gewonnenen thermischen Energie nach außen.



Nach der Extraktion aus dem flüssigen Pb-17Li steht das Tritium als Brennstoff für die Fusionsreaktion zur Verfügung. Durch das Abbremsen der hochenergetischen Neutronen wirkt das Blanket darüberhinaus auch als effektive Abschirmung des Reaktors nach außen. Das TAURO Konzept verspricht einen attraktiven Wirkungsgrad der Energieerzeugung, da das Kühlmittel auf hohe Temperaturen aufgeheizt werden kann. Der Eintritt des flüssigen Pb-17Li erfolgt an der Rückseite des Moduls. Nach Aufteilen in fünf Teilströme gelangt das Kühlmittel in die fünf Teilmodule. Dort strömt es zuerst mit hoher Geschwindigkeit durch dünne Kanäle direkt hinter der ersten Wand (first wall, FW) und kühlt diese. In weiterer Folge gelangt es in Kanäle mit deutlich größerem Durchmesser, die Durchflussgeschwindigkeit sinkt entsprechend. Im aktuellen Design [Giancarli02] sind etwa 960°C am Ausgang des Blanketmoduls vorgesehen. Daraus ergibt sich zusammen mit den anderen Parametern ein thermischer Wirkungsgrad von ungefähr 55%.

Faserverstärktes SiC/SiC_f bietet sich als Material für die Herstellung dieser Blanketstruktur besonders an, da es neben hoher mechanischer Festigkeit auch über die entsprechende Temperaturbeständigkeit verfügt. Weitere notwendige Eigenschaften für den Einsatz im Breeder Blanket sind niedrige Aktivierung durch den Neutronenbeschuss und hohe chemische Stabilität [Aiello00]. Die bisherige Entwicklung von faserverstärkten Keramikwerkstoffen erfolgte hauptsächlich für Hochtemperaturanwendun-

3 Kleinwinkelmessungen an SiC/SiC_f - Verbundwerkstoffen

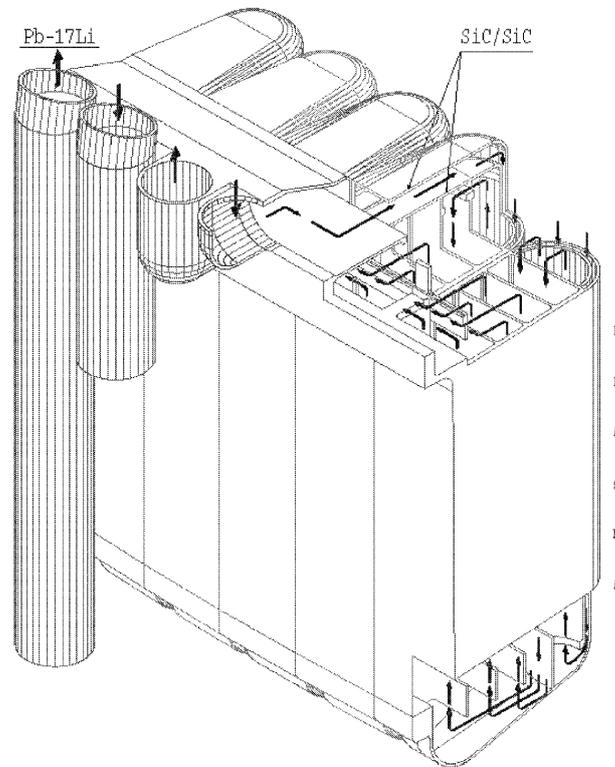


Abbildung 3.2: Pb-17Li gekühltes SiC/SiC_f TAURO Blanketmodul

Modulhöhe	2 m
Modultiefe	0.3 m
Dicke der ersten Wand	3-10 mm
Durchmesser des ersten Pb-17Li Kanals	8.5 mm
Wärmefluss Oberfläche erste Wand	0.5 MW/m ²
Neutronen-Energiefluss durch erste Wand	2.5 MW/m ²
Maximale Strömungsgeschwindigkeit des Pb-17Li	2.25 m/s
Pb-17Li Eintritts-/Austrittstemperatur	800°C 957°C
ΔT über Durchmesser erste Wand	115°C
Maximale Temperatur SiC/SiC _f	995°C

Tabelle 3.1: Aktuelle Design Details für ein typisches TAURO Blanket Modul, [Giancarli02]

gen in der Luftfahrt und in konventionellen Kraftwerken. Entsprechende Designkriterien und Testmethoden für ihre Anwendung in künftigen Fusionstechnologien müssen deshalb etabliert werden.

3.2 Aufbau des SiC/SiC_f - Verbundwerkstoffes

Für den Aufbau komplexer Blanket Strukturen eignen sich traditionelle 2D SiC/SiC_f Komposite nur sehr bedingt, da es unter hohen thermischen und mechanischen Belastungen zu Delaminationserscheinungen zwischen den einzelnen Schichten kommt [Raffray01]. Neuentwickelte Komposite mit dreidimensionaler Faserstruktur zeigen deutlich höhere Widerstandsfähigkeit. Das hier untersuchte Cerasep[®] N3-1, entwickelt von SNECMA (F), zählt zu diesen neuen 3D Materialien. Es wird dabei der Fasertyp Nicalon[®] des japanischen Herstellers Nippon Carbon verwendet. Dieser Fasertyp besteht zu etwa 55% aus Siliziumkarbidkristallen und zu 40% aus einer intergranulären Phase SiO_xC_y abhängig vom Sauerstoffanteil. Freier Kohlenstoff macht etwa 5% der Faser aus. Die Haupteigenschaften von Cerasep[®] N3-1 sind in Tabelle 3.3 angeführt. In einem ersten Herstellungsschritt werden die Siliziumkarbid-Fasern mit einem Durchmesser von etwa 14 μm zu Bündeln zusammengefasst. Durch Weben nach dem sogenannten GUIPEX[®] - Verfahren entsteht daraus ein dreidimensionales Geflecht, das in die Form des geplanten Bauteils gebracht wird, Abbildung 3.3. In das vorgeformte Gewebe wird durch ein aufwändiges Infiltrations-Verfahren (Chemical Vapor Infiltration, CVI) eine SiC-Matrix eingebracht. CVI stellt derzeit den führenden Prozess für die Herstellung von SiC/SiC_f - Materialien dar. Hauptvorteil ist die praktisch stochiometrische Zusammensetzung der erzeugten kristallinen SiC-Matrix.

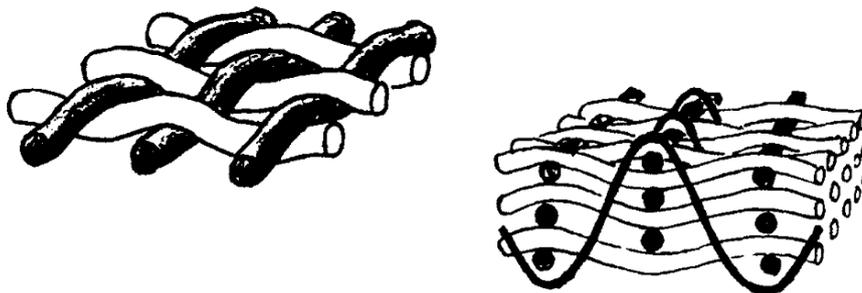
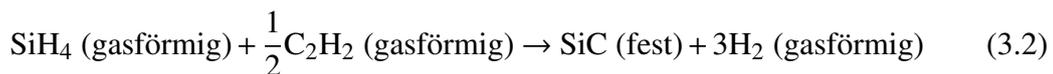


Abbildung 3.3: Schematische Anordnung der Fasern in Cerasep[®] N3-1: Einlagige Gewebesichten (links) werden im 3D GUIPEX[®] Verfahren zu einer dreidimensionalen Struktur zusammengefasst (rechts)

3 Kleinwinkelmessungen an SiC/SiC_f - Verbundwerkstoffen

	Si	C	O	C/Si
at%	37.4	49.0	13.6	1.2
wt%	56.6	31.7	11.7	

Tabelle 3.2: Zusammensetzung der Nicalon[®]-Fasern in Cerasep[®] N3-1 [Bastürk06]

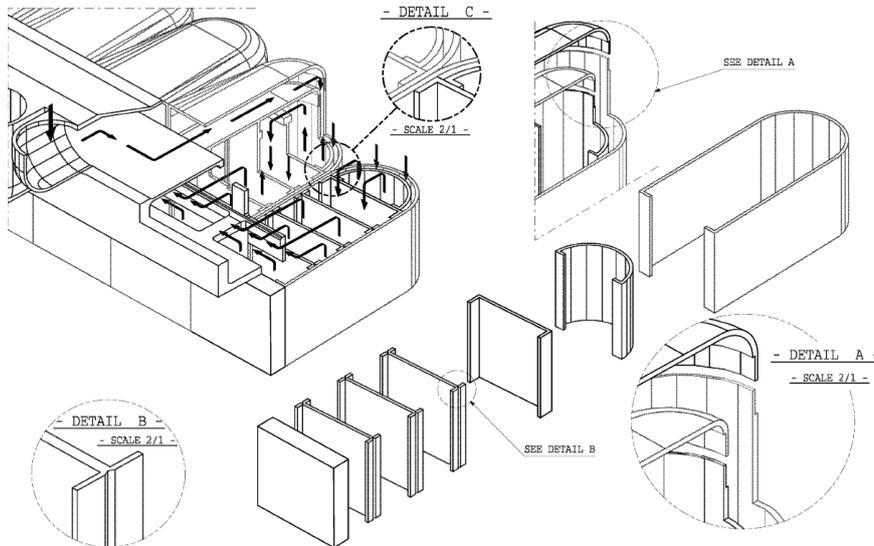


Abbildung 3.4: Aufbau des Blanketmoduls. SiC/SiC_f Einzelteile werden durch das BraSiC[®] Verfahren zusammengefügt

Das Verfahren arbeitet bei moderaten Temperaturen und kann an unterschiedliche Gewebestrukturen angepasst werden. Nachteile sind die geringen Depositionsraten und eine nicht gänzlich zu vermeidende Porosität. Über die Reaktion Gleichung 3.2 wird SiC in atomaren Schichten am Fasergeflecht angelagert. Die Reaktionsgase können nur ungehindert in die Zwischenräume der Fasern und Faserbündel eindringen, solange die Oberfläche der Probe noch nicht vollständig verschlossen ist. Mit zunehmender Dicke des Materials steigt daher die Porosität in den zentralen Bereichen. Das führt zu Einschränkungen in der herstellbaren Dicke des Bauteils. Derzeit können nur Teile bis etwa 6 mm Stärke erzeugt werden ohne die Porosität des Materials stark zu erhöhen. Auch der Größe der Bauteile sind nach dem heutigen Stand der Technik noch enge Grenzen gesetzt. Die Herstellung einer komplexen Struktur wie des Blanket Moduls muss deshalb aus zahlreichen Einzelteilen erfolgen, Abbildung 3.4. Zur Verbindung dieser Einzelteile ist derzeit ein spezielles Lötverfahren (BraSiC[®]) in Entwicklung.

Für den Einsatz im TAURO-Blanket spielt die Wärmeleitfähigkeit des Materials eine zentrale Rolle. In 3D SiC/SiC_f Keramiken wie Cerasep[®] N3-1 ist diese nicht isotrop,

3 Kleinwinkelmessungen an SiC/SiC_f - Verbundwerkstoffen

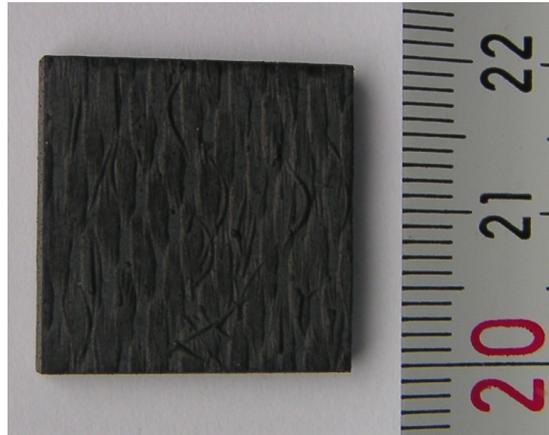


Abbildung 3.5: Cerasep[®] N3-1

SiC/SiC _f Eigenschaften und Parameter	Anforderungen des TAURO Konzepts	Aktueller Stand (SNECMA)
Dichte	≈3000 kg/m ³	≈2500 kg/m ³
Porosität	≈5%	≈10%
Thermischer Ausdehnungskoeffizient	≈4x10 ⁻⁶ /°C	4x10 ⁻⁶ /°C
Wärmeleitfähigkeit (1000°C) in Faserebene	≈20 W/m K (EOL) ^a	≈15 W/m K (BOL) ^b
über Dicke	≈20 W/m K (EOL) ^a	≈7.5 W/m K (BOL) ^b
max. zulässige Werkstofftemperatur	≈1000°C	≈1000°C

^aEOL: end of life

^bBOL: beginning of life

Tabelle 3.3: Charakteristische Werte für Cerasep[®] N3-1 [Riccardi04]

sondern in der Ebene der Hauptfaserlagen deutlich höher als über den Durchmesser des Werkstückes. Die im aktuellen TAURO-Design geforderten Werte Tabelle 3.3 werden noch nicht erreicht. Vor allem in Richtung des Wanddurchmessers liegen die Werte aktueller Verbundwerkstoffe um den Faktor 2-3 unter den Anforderungen für die Verwendung als FW Material. Die Weiterentwicklung dieser Materialien konzentriert sich deshalb wesentlich auf die Verbesserung der Wärmeleitfähigkeit. Ansatzpunkte sind die Verwendung möglichst stochiometrischer Fasertypen, Modifikation des Infiltrationsprozesses hin zu höheren Dichten der Matrix mit Reduktion der Porosität, die Entwicklung von Gewebegeometrien mit höherem Faseranteil in Richtung des Durchmessers und die Verwendung von Beschichtungen der Fasern zur Optimierung der Faser-Matrix Grenzflächen.

3 Kleinwinkelmessungen an SiC/SiC_f - Verbundwerkstoffen

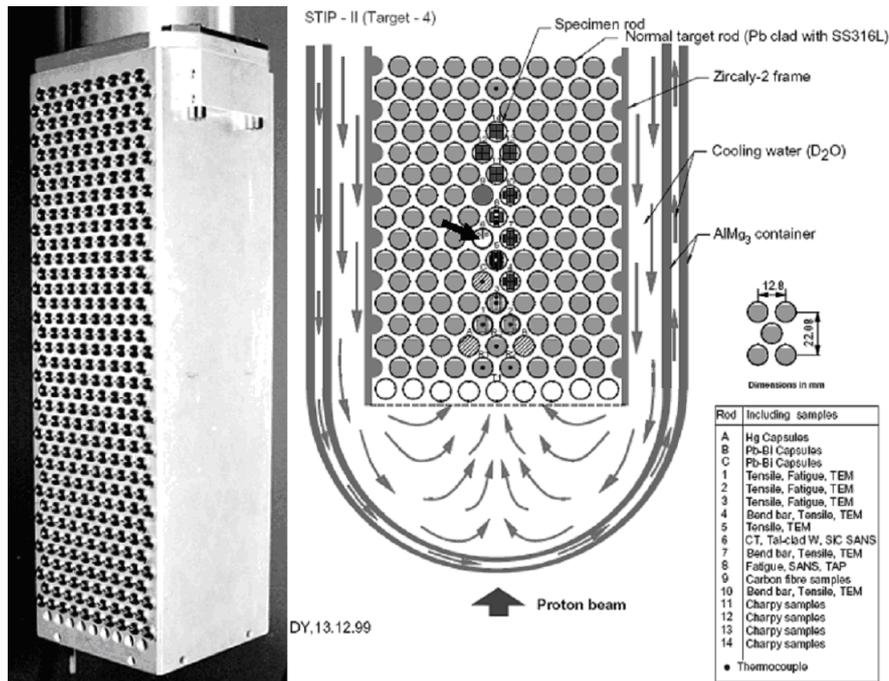


Abbildung 3.6: Aufnahme des SINQ Target 4 (links) und Schema der Anordnung der Probenbehälter (rechts)

3.3 Hochdosisbestrahlung einer SiC/SiC_f - Probe

Für die Verwendung von faserverstärkten Siliziumkarbiden in Fusionsanlagen hat die Beständigkeit des Werkstoffes gegen strahlungsinduzierte Veränderungen der Materialeigenschaften natürlich besondere Bedeutung. Neutronenbeschuss verursacht die Versetzung von Si- und C-Atomen mit der Bildung verschiedener Strukturdefekte als Folge. Abhängig von der Bestrahlungstemperatur und der Dosis treten etwa Amorphisierung, die Bildung und das Anschwellen von Fehlstellen auf. Derartige Veränderungen haben Auswirkungen auf die mechanischen und thermischen Eigenschaften von SiC und SiC/SiC_f - Kompositen. Insbesondere hängt die Wärmeleitfähigkeit stark von der Anzahl der Störungen im Material ab. Um strahlungsinduzierte Strukturveränderungen und Defekte im Mikro- und Nanobereich untersuchen zu können, wurde eine Probe aus Cerasep[®] N3-1, Abmessungen 10x10x2 mm³, in das Spallationstarget der Neutronenquelle SINQ am Paul Scherrer Institut (PSI), Schweiz, eingebaut, Abbildungen 3.6 und 3.7.

Das Target war in den Jahren 2000 und 2001 für insgesamt 16 Monate in Verwendung. Die Probe wurde dabei mit Fluenzen von $7.4 \times 10^{25} \text{ m}^{-2}$ (Neutronen) und $1.8 \times 10^{25} \text{ m}^{-2}$ (Protonen) bestrahlt. Die kumulative Protonenladung betrug 10.04 Ah. Die Probenem-

3 Kleinwinkelmessungen an SiC/SiC_f - Verbundwerkstoffen

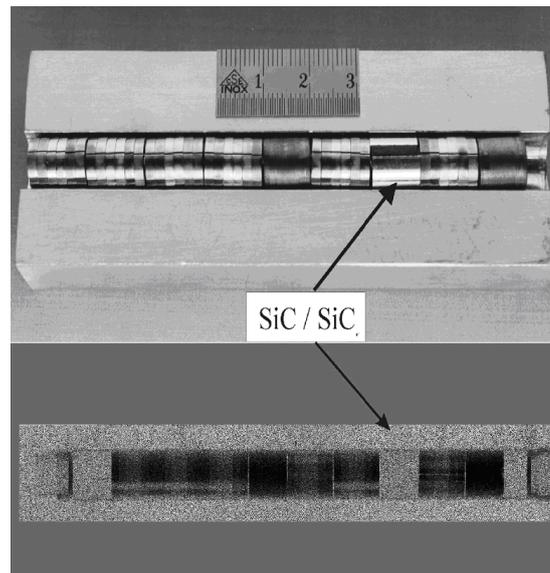


Abbildung 3.7: Foto des Probenbehälters 6 (oben) und neutronenradiographische Aufnahme (unten)

peratur während der Bestrahlung konnte nicht bestimmt werden. Für Probenbehälter 6, der die Probe enthielt, ergibt die Schätzung max. 350°C [Dai05]. Die Berechnung der H- und He-Produktionsraten in der Probe und der dpa-Werte sind Gegenstand eines weiteren Projektes am Atominstitut der Österreichischen Universitäten. Trotz der Einstufung von SiC/SiC_f als Material mit niedriger Aktivierung musste die Probe nach Bestrahlung etwa drei Jahre abklingen, bevor Experimente zur Strukturbestimmung möglich waren. Nach diesen drei Jahren lag die Aktivität noch bei 1.91×10^8 Bq ($\sim 53 \mu\text{Sv/h}$). Mit Gamma-Spektroskopie wurde ^{22}Na als Hauptquelle der Aktivität identifiziert [Bastürk06]. ^{22}Na ist als Spallationsprodukt eine der Hauptverunreinigungen des Targets. Die Halbwertszeit beträgt 2.602 a.

3 Kleinwinkelmessungen an SiC/SiC_f - Verbundwerkstoffen

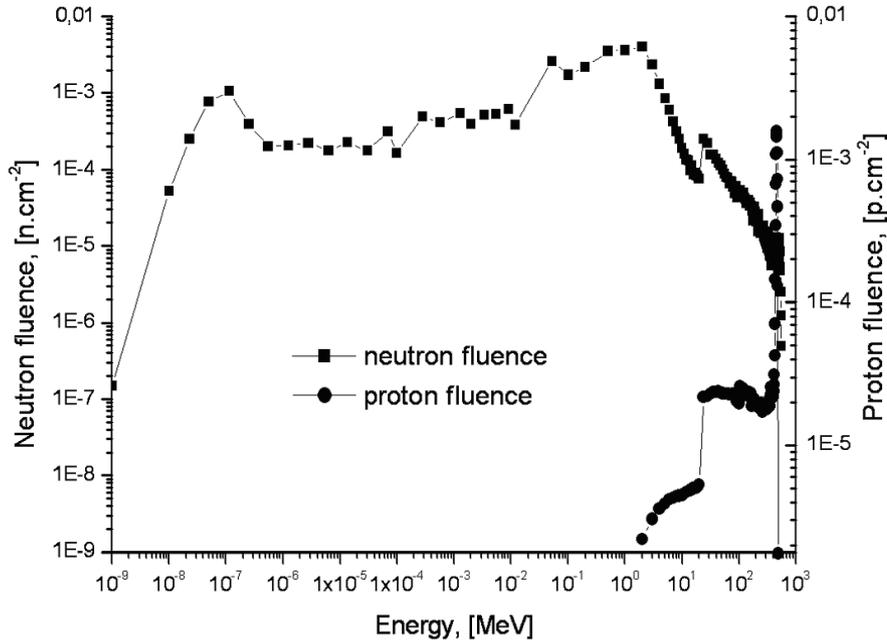


Abbildung 3.8: Berechnete Fluenzen für das SINQ Target 4, [Bastürk06]

3.4 SANS Messungen

Das SANS-I Instrument am Paul Scherrer Institut ist eine typische pinhole-Kamera, wie sie in Abbildung 3.9 schematisch dargestellt ist. Die im Leiter herangeführten Neutronen werden durch einen mechanischen Geschwindigkeitsselektor monochromatisiert, die Wellenlänge kann in einem Bereich von 4.5 Å bis etwa 40 Å gewählt werden mit $\Delta\lambda/\lambda \approx 10\%$. Die Kollimationslänge, i.e. der Abstand zwischen den beiden Blenden am Ausgang des Neutronenleiters und vor der Probenposition ist variabel von 1 m - 18 m. Das Streubild der Probe wird mit einem positionsempfindlichen Flächendetektor aufgezeichnet. Dieser 2D ³He-Detektor mit einer Größe von 96 x 96 cm² besteht aus 128 x 128 Einzelementen zu je 7.5 x 7.5 cm². Er kann im evakuierten Detektortank auf Abstände zwischen 1.4 m und 20 m von der Probe verfahren werden. Um die maximale Zählrate der zentralen Detektorelemente nicht zu überschreiten, können Absorber (beam-stops) mit Größen zwischen 40x40 mm² und 100x100 mm² vor dem Detektor positioniert werden.

Durch die Kombination verschiedener Wellenlängen und Detektor - Probenabstände kann die Anlage an die Anforderungen des jeweiligen Experiments angepasst werden. Der Zusammenhang zwischen Wellenlänge λ , Impulsübertrag Q und Streuwinkel θ ist gegeben durch:

$$Q = \frac{4\pi}{\lambda} \sin\left(\frac{\theta}{2}\right) \quad (3.3)$$

3 Kleinwinkelmessungen an SiC/SiC_f - Verbundwerkstoffen

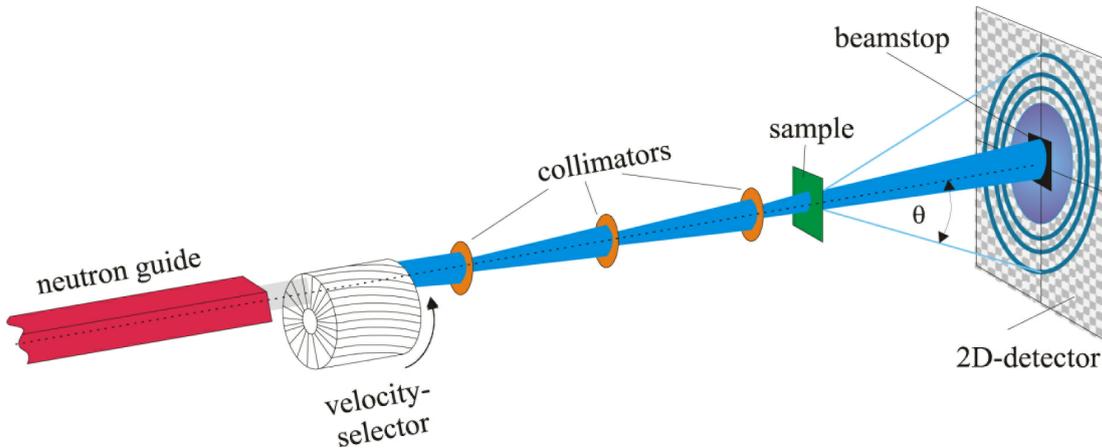


Abbildung 3.9: Schema einer typischen SANS-Anlage

Der messbare Q-Bereich an der SANS-I Anlage beträgt $6 \times 10^{-4} \text{ \AA}^{-1}$ bis $5.4 \times 10^{-1} \text{ \AA}^{-1}$ mit zentral positioniertem Detektor. Zusätzlich kann dieser um 50 cm normal zum Strahl aus der Mittelposition verfahren werden. Das vergrößert den maximal zugänglichen Q-Wert auf 1.05 \AA^{-1} . Um die in dieser Stellung des Detektors bereits relevanten Parallaxeneffekte zu verringern, besteht die Möglichkeit den Detektor um seine Hochachse zu drehen. Insgesamt können mit diesem Instrument also Strukturen in der Größe 400 nm bis unter 1 nm untersucht werden.

Die deutliche Aktivierung der Probe durch die Bestrahlung im Target brachte einen erhöhten Aufwand zur Abschirmung mit sich: Der speziell angefertigte Probenhalter, Abbildung 3.12, wurde im Labor bestückt. Der Transport zum Instrument erfolgte in einem massiven Bleibehälter, Abbildung 3.13. Nach Montage des Probenhalters auf den Probenstisch der SANS-I und Kontrollmessung durch die Strahlenschutzabteilung des PSI wurde eine Abschirmung aus Pb-Ziegeln errichtet, um die Strahlenbelastung an benachbarten Experimenten und den Arbeitsplätzen der Anlagensteuerung zu verringern.

Die Messungen an der hochdosisbestrahlten SiC/SiC_f - Probe und einer unbestrahlten Referenzprobe erfolgten in vier Instrumentkonfigurationen, Tabelle 3.4. Bereits die Rohdaten, Abbildungen 3.15 und 3.16, zeigen deutliche Unterschiede zwischen dem bestrahlten und dem unbestrahlten Material. Beide Proben weisen darüberhinaus ein stark anisotropes Streubild auf. Diese Anisotropie wurde für SiC/SiC_f - Keramiken auch schon in einer früheren Untersuchung festgestellt: [Hainbuchner00], [Hainbuchner01]. In diesen ersten Messungen an einer faserverstärkten Siliziumkarbidprobe im Jahr 2000 zeigten sich starke Unterschiede in der Empfindlichkeit der einzelnen Detektorelemente bzw. auch zahlreiche defekte Elemente, Abbildung 3.11. Eine Erneuerung des Detektors erfolgte kurze Zeit später. Das Streubild beider Proben ist symmetrisch sowohl um Hoch- als auch Querachse. Das entspricht der Orientierung

3 Kleinwinkelmessungen an SiC/SiC_f - Verbundwerkstoffen

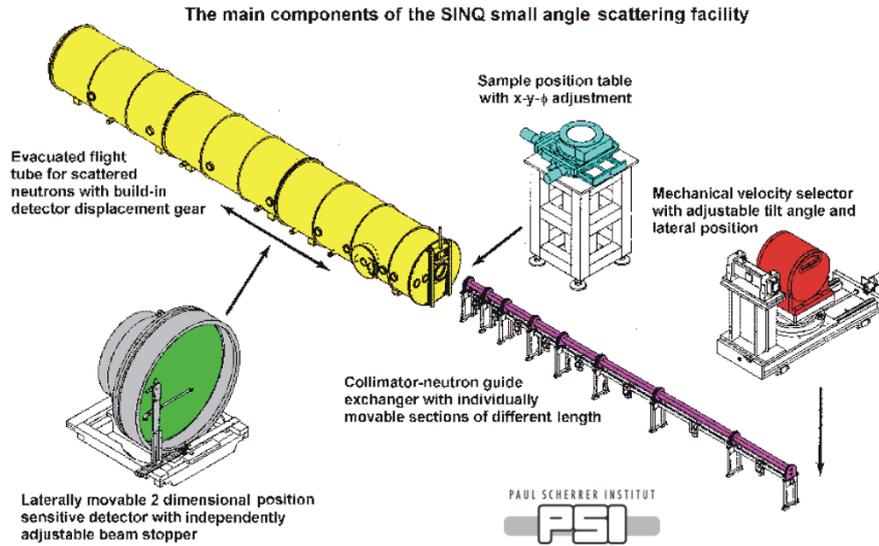


Abbildung 3.10: Hauptkomponenten der SANS-I Anlage des Paul Scherrer Instituts, Schweiz

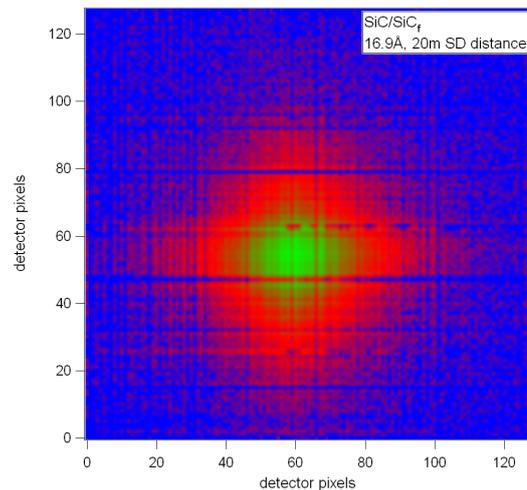


Abbildung 3.11: Messung an einer SiC/SiC_f - Probe in Jahr 2000 vor Austausch des 2D-Detektors, [Hainbuchner01].

3 Kleinwinkelmessungen an SiC/SiC_f - Verbundwerkstoffen

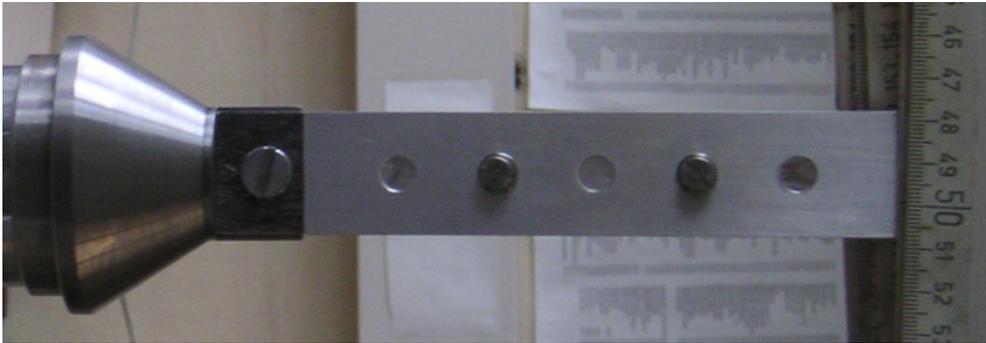


Abbildung 3.12: Probenhalter zur Aufnahme der bestrahlten Probe und einer unbestrahlten Referenzprobe. Dritte leere Probenaufnahme zur Messung der Instrumentenkurve. Gut erkennbar sind die kreisrunden Al-Fenster der Probenkammern.



Abbildung 3.13: Transport der bestrahlten Probe zum Instrument SANS-I in massiver Pb-Abschirmung

3 Kleinwinkelmessungen an SiC/SiC_f - Verbundwerkstoffen

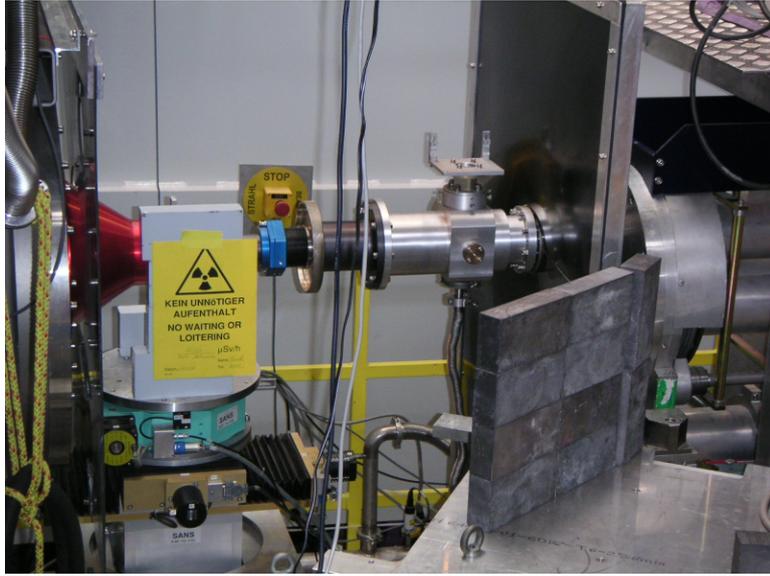


Abbildung 3.14: Abschirmung der Probe nach Montage auf dem Probenstisch

Abstand Probe-Detektor [m]	Wellenlänge [Å]
2	4.7
6	4.7
20	4.7
20	18.0

Tabelle 3.4: Verwendete Instrumentkonfigurationen

des SiC-Fasergeflechts im Werkstoff, Abbildung 3.5.

Die weitere Bearbeitung der Rohdaten erfolgte mit der Datenreduktionssoftware BerSANS. Sie beinhaltet standardisierte Prozeduren zur Auswertung von Kleinwinkelstreudaten und ist europaweit an verschiedenen Anlagen im Einsatz [Keiderling00]. Die Schritte der Datenbearbeitung umfassen im wesentlichen die Korrektur von Schwankungen in der Intensität des einfallenden Neutronenstrahls durch ein Monitorzählsignal, Division durch die gemessene Transmission der Probe, sowie Kalibrierung der Daten mit einer Leermessung des Probenhalters und einer Messung an einer H₂O - Standardprobe. Gemäß Gleichung 3.4 werden aus den Streuintensitäten $I(Q)$ die makroskopischen differentiellen Wirkungsquerschnitte $d\Sigma/d\Omega(Q)$ berechnet.

$$I(Q) = I_0 \epsilon DT \frac{d\Sigma}{d\Omega}(Q) \Delta\Omega \quad (3.4)$$

Dabei bezeichnet ϵ die Detektoreffizienz, I_0 die auf die Probenfläche einfallende In-

3 Kleinwinkelmessungen an SiC/SiC_f - Verbundwerkstoffen

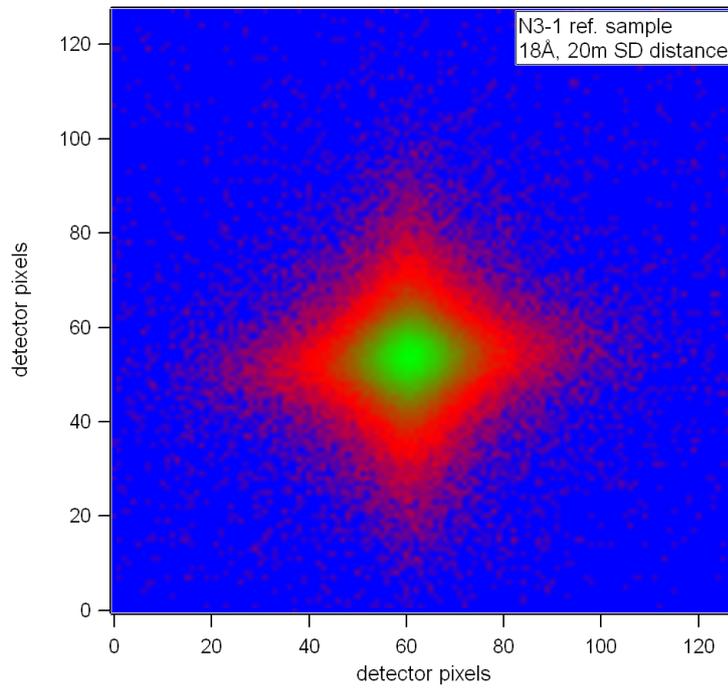


Abbildung 3.15: Streubild der unbestrahlten Referenzprobe bei 20 m und 18 Å

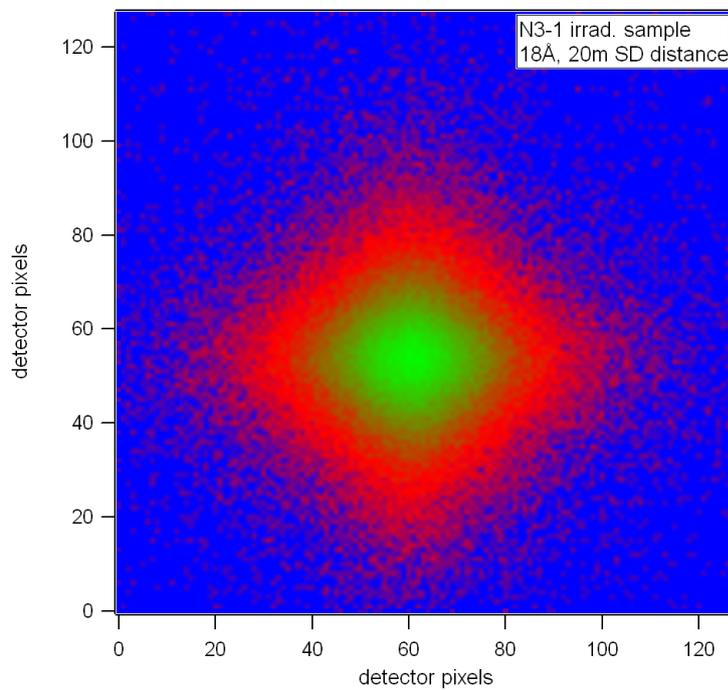


Abbildung 3.16: Streubild der hochdosisbestrahlten Probe bei 20 m und 18 Å

3 Kleinwinkelmessungen an SiC/SiC_f - Verbundwerkstoffen

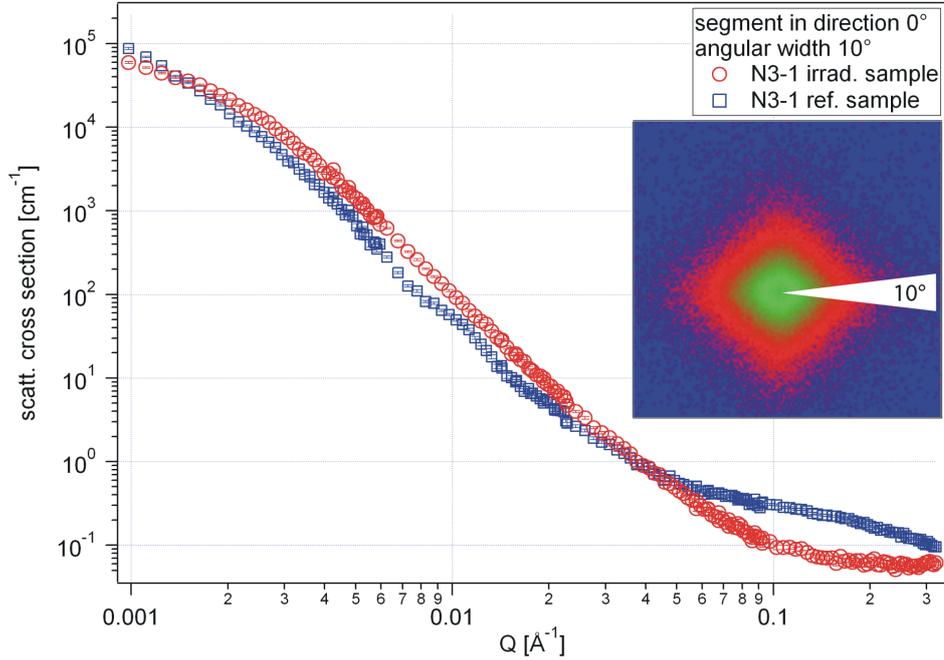


Abbildung 3.17: Streuquerschnitte gemittelt über ein Winkelsegment von 10°

intensität, D die Dicke der Probe, T die gemessene Transmission und $\Delta\Omega$ das Raumwinkelement [Wignall87]. Zur Berücksichtigung der Anisotropie wurde folgender Weg gewählt: Durch Mittelung der Streudaten über Winkelsegmente von 10° wurden 18 Datensätze $d\Sigma/d\Omega(Q)$ für jede Instrumentkonfiguration berechnet. Durch Kombination der Teildatensätze der einzelnen Konfigurationen erhält man für jedes Winkelsegment den Streuquerschnitt über den gesamten gemessenen Q -Bereich, Abbildung 3.17. Um Effekte durch Mehrfachstreuung zu verringern, wurden nur Streubeiträge für $Q > 1 \times 10^{-3} \text{ \AA}^{-1}$ berücksichtigt. Praktisch in allen Bereichen zeigen sich deutliche Unterschiede zwischen den Streuquerschnitten der bestrahlten und der unbestrahlten Probe.

Wie in [Hainbuchner01] gezeigt, kann die SiC/SiC_f - Keramik als poröses Medium im Sinne eines Zwei-Phasen Systems mit zufällig verteilten Porendurchmessern behandelt werden. Für derartige Systeme eignet sich die Beschreibung durch das in Abschnitt 2.8 erläuterte Debye-Anderson-Brumberger (DAB) Modell [Debye57]:

$$\frac{d\Sigma}{d\Omega}(Q) = 8\pi l^3 \Phi(1 - \Phi)(\Delta\rho)^2 \frac{1}{(1 + Q^2 l^2)^2} \quad (3.5)$$

Φ bezeichnet den Volumsanteil der Poren am Probenvolumen, $\Delta\rho$ die Differenz in der Streulängendichte zwischen SiC/SiC_f und Poren und l eine Korrelationslänge der porösen Struktur. Sie kann mit dem typischen Durchmesser der Poren gleichgesetzt werden. Aus den Angaben des Herstellers zur Zusammensetzung der Keramik ergibt

3 Kleinwinkelmessungen an SiC/SiC_f - Verbundwerkstoffen

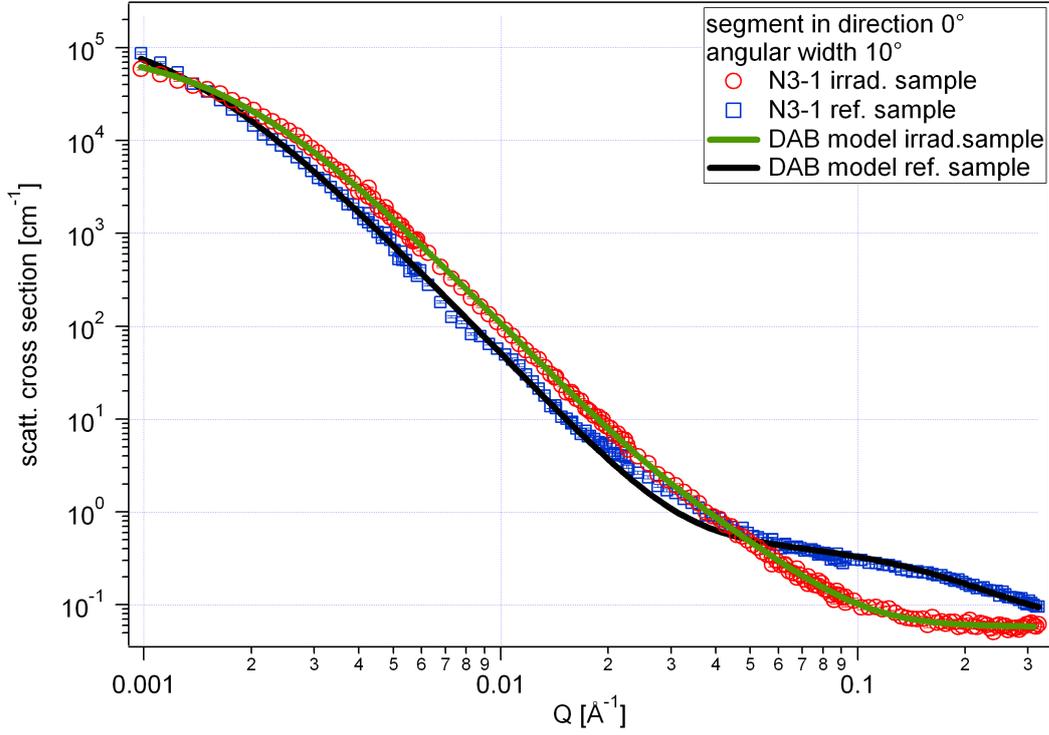


Abbildung 3.18: Streuquerschnitte mit angepassten DAB-Modellkurven

sich $\Delta\rho=4.784 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$. Für große Q geht das DAB-Modell wieder in ein einfaches Potenzgesetz (Porod) über:

$$Q \gg l^{-1} : \frac{d\Sigma}{d\Omega}(Q) \propto Q^{-4} \quad (3.6)$$

Damit ist aus der doppelt-logarithmischen Darstellung Abbildung 3.17 ersichtlich, dass der Streuquerschnitt nicht mit einem einzelnen charakteristischen Durchmesser l über den gesamten Q -Bereich durch Gleichung (3.5) beschrieben werden kann. Vor allem im Fall der unbestrahlten Probe gibt es zusätzliche Beiträge im Streubild ab etwa $Q=2 \times 10^{-2} \text{ \AA}^{-1}$. Eine Erweiterung des einfachen DAB Modells auf zwei Porentypen mit sehr unterschiedlichen charakteristischen Durchmessern trägt dem Rechnung. Es wird folgende Fitfunktion für jedes Winkelsegment an die Daten angepasst:

$$\frac{d\Sigma}{d\Omega}(Q) = \frac{C_1}{(1+Q^2 l_1^2)^2} + \frac{C_2}{(1+Q^2 l_2^2)^2} + \text{Hintergrund} \quad (3.7)$$

Wie in Abbildung 3.18 zu sehen, kann mit diesem Modell der Verlauf der Streukurven sehr gut beschrieben werden. Man erhält für jede Orientierung die typischen Durchmesser der beiden Porentypen, Abbildungen 3.19 und 3.20. Die Volumsanteile

3 Kleinwinkelmessungen an SiC/SiC_f - Verbundwerkstoffen

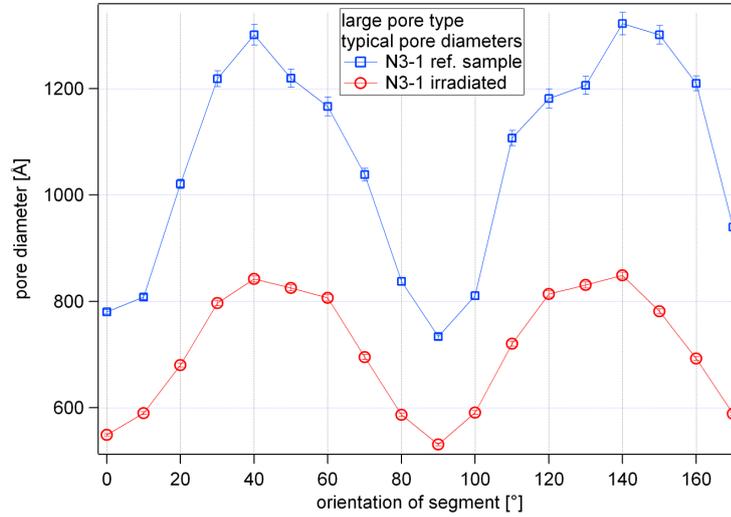


Abbildung 3.19: Winkelabhängiger Durchmesser für Porentyp 1

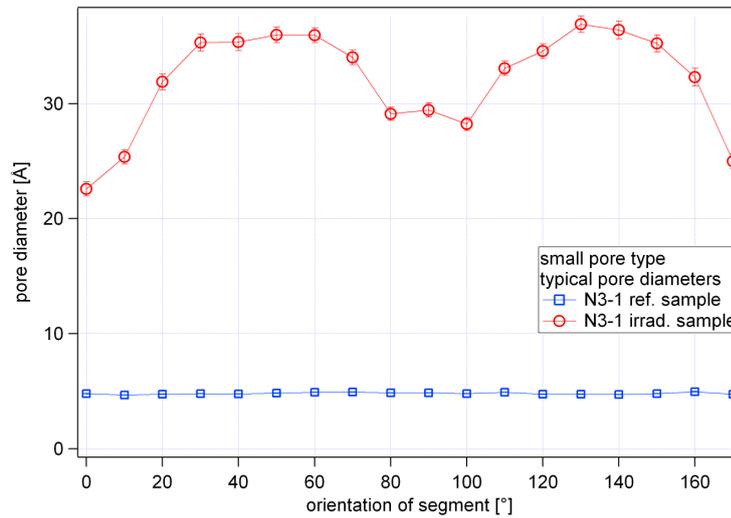


Abbildung 3.20: Winkelabhängiger Durchmesser für Porentyp 2

3 Kleinwinkelmessungen an SiC/SiC_f - Verbundwerkstoffen

	N3-1 bestrahlt	N3-1 Vergleichsprobe
Porentyp 1		
mittlerer Durchmesser \bar{l}_1 [Å]	709	1045
Volumsanteil Φ_1	(0.48±0.06)%	(0.27±0.06)%
Porentyp 2		
mittlerer Durchmesser \bar{l}_2 [Å]	32.0	4.8
Volumsanteil Φ_2	(0.11±0.04)%	(6.74±1.24)%

Tabelle 3.5: Berechnete Volumsanteile und typische Durchmesser der Poren

der Poren berechnen sich gemäß:

$$\Phi_i = \frac{1}{2} - \sqrt{\frac{1}{4} - \frac{\bar{C}_i}{8\pi\bar{l}_i^3(\Delta\rho)^2}} \quad (3.8)$$

\bar{l}_i und \bar{C}_i sind die über alle Winkel gemittelten Größen. Tabelle 3.5 fasst die Werte für die mittleren Durchmesser und die Volumsanteile zusammen. Zur Kontrolle wurden aus dem Modell Gleichung (3.7) und den winkelabhängigen Durchmessern zweidimensionale Streubilder berechnet, Abbildungen 3.21 und 3.22. Es besteht gute qualitative Übereinstimmung mit den experimentellen Daten.

3 Kleinwinkelmessungen an SiC/SiC_f - Verbundwerkstoffen

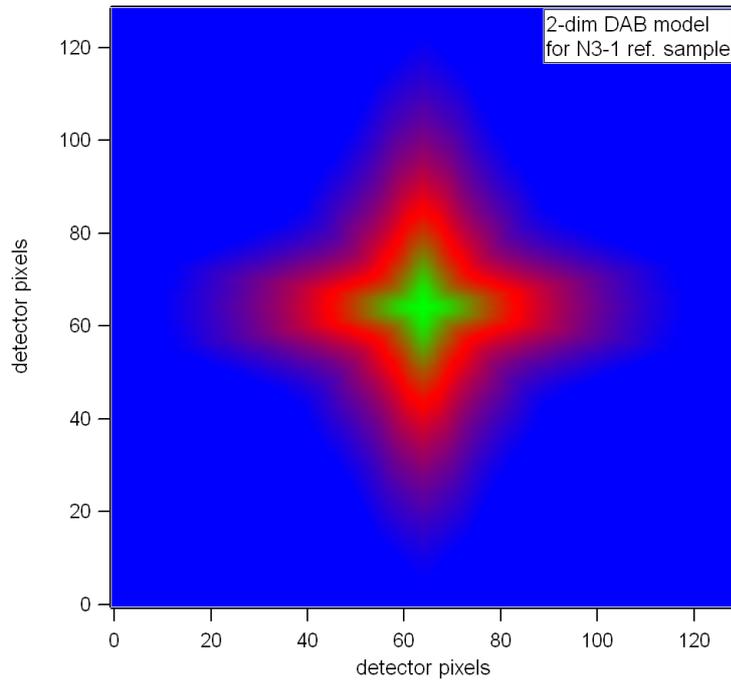


Abbildung 3.21: Zweidimensionale DAB-Modellrechnung für unbestrahltes N3-1

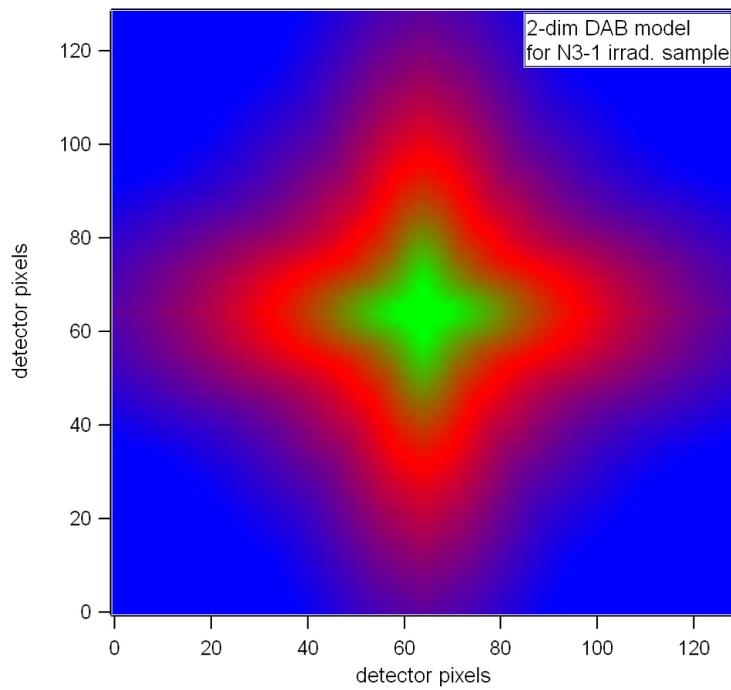


Abbildung 3.22: Zweidimensionale DAB-Modellrechnung für hochdosisbestrahltes N3-1

3.5 Ergebnisse

Die SANS-Messungen an Cerasep[®] N3-1 SiC/SiC_f zeigen ausgeprägte Veränderungen des Materials durch Bestrahlung im Target der SINQ - Spallationsquelle. Es kommt zu Strukturänderungen sowohl im Größenbereich 0.1 μm als auch 1 nm.

Für den größeren der beiden Defekttypen besteht für beide Proben eine starke Winkelabhängigkeit des Durchmessers. Die Größenordnung der Poren von 0.1 μm und die Orientierung an der SiC-Gewebestruktur legen nahe, dass es sich dabei um Hohlräume in den Bündeln der SiC-Fasern handelt. Diese Orientierung äußert sich in den Streubildern in einer Symmetrie um die Hoch- und Querachse entsprechend der Lage der SiC-Fasern im Werkstoff. Der Volumsanteil dieses Porentyps nimmt durch die Bestrahlung leicht zu, sein mittlerer Durchmesser sinkt etwas. Der zweite Porentyp von der Größenordnung 1 nm erscheint im Fall der unbestrahlten Probe winkelunabhängig, eine mögliche Erklärung für diesen Defekttyp sind Fehlstellen in der durch das CVI-Verfahren eingebrachten Matrix. Der hohe Anteil dieser Poren im Nanometer-Bereich wird durch Bestrahlung stark reduziert, der typische Durchmesser wächst dabei an. Es zeigt sich außerdem nach Bestrahlung auch hier eine Orientierung am Fasergeflecht.

Eine Verbesserung der Beständigkeit gegen Strahlenschäden verspricht die Verwendung von neuentwickelten Fasertypen wie Hi-Nicalon[®] S type und Tyranno[®] SA [Riccardi04]. Diese Fasern weisen einen gegenüber Nicalon[®] stark reduzierten Sauerstoffgehalt auf. Erste Studien zur Strahlenbeständigkeit zeigen positive Eigenschaften für eine Verwendung in SiC/SiC_f - Verbundwerkstoffen zum Einsatz in Fusionskonzepten.

4 Entwicklung und Herstellung mikrostrukturierter Silizium-Gitter

Die Ultra-Kleinwinkelstreuung von Neutronen etabliert sich zunehmend als Verfahren zur Strukturcharakterisierung von Materialien im μm -Bereich. Zur Überprüfung der Leistungsfähigkeit der verwendeten Anlagen und der Methoden zur Datenauswertung eignen sich besonders Strukturen mit einfacher, möglichst gut bekannter Geometrie. Da derartige Modellproben aus für Neutronenstreuexperimente geeigneten Materialien mit den notwendigen Abmessungen von kommerziellen Anbietern nicht zur Verfügung stehen, wurde beschlossen, entsprechende Silizium-Phasengitter zu entwickeln und herzustellen. Die dafür notwendige Prozessentwicklung und die Herstellung selbst wurden vom Autor am Zentrum für Mikro- und Nanostrukturen (ZMNS) der Technischen Universität Wien durchgeführt.

4.1 Reactive Ion Etching

Reaktives Ionenätzen (Reactive Ion Etching, RIE) stellt eine vielseitige Trockenätztechnik zur Herstellung mikroelektronischer und -optischer Bauteile dar. Das Verfahren wird unter anderem zur anisotropen Strukturierung von Halbleitern wie Si und GaAs eingesetzt und gewinnt zunehmend Bedeutung in der Produktion mikroelektro-mechanischer und mikro-optisch elektro-mechanischer Systeme (MEMS und MOEMS). Hauptvorteile dieses Verfahrens sind die hohen erreichbaren Aspektverhältnisse der Strukturen bei gleichzeitig guter Kontrolle über das Ätzprofil und die hohen erreichbaren Ätzraten.

4.1.1 Funktionsprinzip

Eine RIE-Anlage besteht im wesentlichen aus einer Vakuumkammer mit computergesteuerter Turbomolekularpumpe als Hauptpumpe und einer vorgeschalteten Drehschieberpumpe, Elektroden, wobei eine Elektrode auch als Probenhalter fungiert, den

4 Entwicklung und Herstellung mikrostrukturierter Silizium-Gitter



Abbildung 4.1: Die am Zentrum für Mikro- und Nanostrukturen der Technischen Universität Wien installierte RIE/ICP-Anlage Oxford Plasmalab 100

Zu- und Ableitungen für die Ätzgase mit entsprechenden Mass-Flow-Controllern und Steuerungselementen, sowie RF-Generatoren mit zugehöriger Elektronik. Das Beschießen der Anlage mit anschließendem Abpumpen auf einen Basisdruck von typischerweise 5×10^{-5} mbar wird durch eine Vorkammer (loadlock) mit automatischem Probentransfer in die Hauptkammer stark beschleunigt, da während des Ladevorgangs in der Hauptkammer ein entsprechend niedriger Druck beibehalten werden kann und diese nicht nach außen geöffnet werden muss. Die am ZMNS installierten Anlage Oxford Plasmalab 100 verfügt über eine separate aufgesetzte ICP-Quelle (Inductively Coupled Plasma), Abbildungen 4.1, 4.2. Dadurch können im Unterschied zu einfachen Parallelplatten-Reaktoren Prozessparameter wie Plasmadichte und Ionenenergie unabhängig voneinander gesteuert werden. Die erreichbaren Plasmadichten in Anlagen mit separater ICP-Quelle liegen außerdem deutlich höher. Aus den Ätzgasen wird unter niedrigem Druck durch ein eingestrahktes Radiofrequenzsignal Plasma erzeugt. Die auf diese Weise produzierten Atome, Radikale und Ionen stehen am Anfang weiterer Reaktionen, die Plasmaphase ist folglich eine überaus komplexe Mischung chemischer Spezies. Letztendlich treten all diese Bestandteile mit der Probenoberfläche in Wechselwirkungen. Abhängig von Proben temperatur und chemischer Affinität kommt es zu Adsorption der chemischen Komponenten an der Probe. Diese können nun mit der Probenoberfläche reagieren oder aber ohne eine beziehungsweise vor einer Reaktion in die Plasmaphase zurückkehren. Falls die Reaktionsprodukte von angelagerten Komponenten und Probenmaterial flüchtig sind, werden sie durch den kontinuierlichen Pumpvorgang aus der Kammer entfernt oder sie nehmen wiederum an den Reaktionsketten in der Plasmaphase teil. Nichtflüchtige Reaktionsprodukte tragen zur Bildung eines Films auf der Probenoberfläche bei. Die Zusammensetzung der verwendeten Ätzgase richtet sich nach der Stabilität und Flüchtigkeit der Ätzprodukte.

Im allgemeinen liegt am Probenträger eine negative Bias-Spannung an relativ zum

4 Entwicklung und Herstellung mikrostrukturierter Silizium-Gitter

Plasma, da die Substrate kapazitiv an die RF-Quelle gekoppelt sind und sich negativ aufladen. Beschuss der Probe durch positive Ionen spielt deshalb eine wesentliche Rolle. Dieser Beschuss erfolgt hauptsächlich gerichtet und normal zur Probenoberfläche. Durch die auftretende Bias-Spannung wird erreicht, dass die Ionen ohne Kollisionen aus dem Plasma auf die Probe gelangen, mit also nur sehr schmaler Winkelverteilung auftreffen. Die Anisotropie des Ätzprozesses entsteht nun dadurch, dass die Seitenwände der geätzten Strukturen durch nichtflüchtige Reaktionsprodukte vor dem chemischen Ätzangriff geschützt werden. Diese Schutzschicht wird andererseits am Boden der Strukturen durch den gerichteten Ionenbeschuss zerstört, weshalb der Ätzprozess in die Tiefe fortschreitet. Die zu ätzende Struktur wird durch eine auf dem Substrat befindliche Ätzmaske vorgegeben. Neben Fotolack (resist) kommen hier vor allem SiO_2 für das Ätzen von Silizium und metallische Schichten zum Einsatz. Das verwendete Material muss aber in dem gewählten Prozess auf jeden Fall deutlich schwächer von den ätzenden Komponenten angegriffen werden als das zu ätzende Substrat. Fotolack als Ätzmaske stellt aufgrund der geringen Widerstandsfähigkeit des Materials besonders hohe Anforderungen an die Prozessführung.

In einfachen Parallelplatten-Reaktoren hängt die Bias-Spannung und damit die Ionenenergie im wesentlichen von der zugeführten RF-Leistung ab, die der Aufrechterhaltung des Plasmas dient. Dadurch lassen sich Ionenfluss und Ionenenergie nicht unabhängig voneinander steuern, da für die Erhaltung eines dichten Plasmas eine entsprechend hohe RF-Leistung notwendig ist, was aber wiederum zu hohen Bias-Spannungen führt. Zum Erreichen hoher Anisotropie des Ätzprozesses muss weiters der Prozessdruck niedrig gehalten werden. Das ist aber nur mit hohen RF-Leistungen möglich, ohne dass die das Plasma erzeugenden Entladungen zum Erliegen kommen. Die Grenze ist dann erreicht, wenn durch Erniedrigung des Prozessdrucks die mittlere freie Weglänge für Elektronen im Plasma die Größenordnung des Plattenabstandes erreicht. Ein Aufrechterhalten des Plasmas wird dann zunehmend schwierig [Cardinaud00].

Eine Weiterentwicklung stellen Anlagen mit separater ICP-Plasmakammer dar. Hier ist es möglich, hohe Plasmadichten bei gleichzeitig niedrigem Druck und niedriger Bias-Spannung zu erreichen. Die ICP-Kammer wird über eine zusätzliche RF-Antenne von einem weiteren RF-Generator mit Leistung versorgt. Mit der in Abbildung 4.3 ersichtlichen Antennenkonfiguration wird ein azimuthales Feld in der ICP-Kammer erreicht, es liegt also keine Bias-Spannung zwischen Plasma und Wand der Kammer an. Dadurch können hohe Plasmadichten bei niedrigem Prozessdruck realisiert werden. Die Bias-Spannung an der Probe regelt man wie im Fall der einfachen RIE-Anlagen über die nun nicht mehr für die Plasmaproduktion verwendete RF-Leistung an der Probenelektrode. In solchen RIE/ICP-Anlagen werden wesentlich höhere Ätzraten bei niedrigerer Bias-Spannung erzielt, da die Dichte des Plasmas um mehrere Größenordnungen über der in einfachen RIE-Anlagen liegen kann.

4 Entwicklung und Herstellung mikrostrukturierter Silizium-Gitter

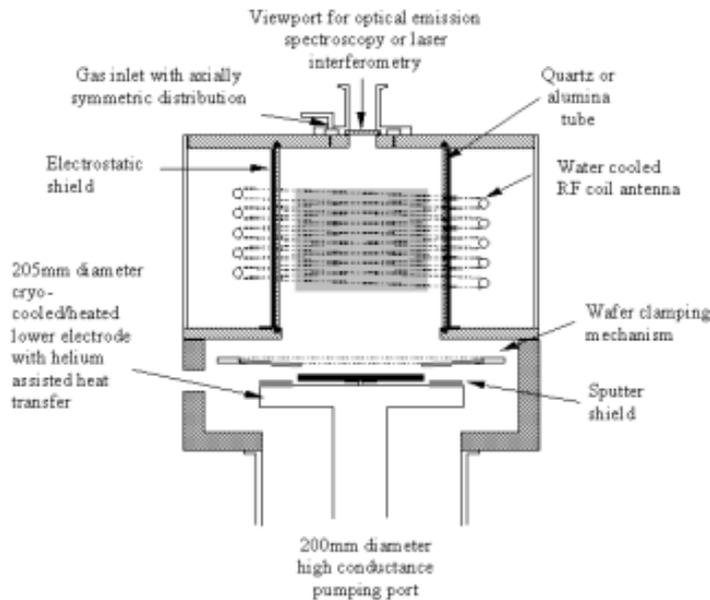


Abbildung 4.2: Schema einer RIE-Ätzkammer mit aufgesetzter ICP-Quelle, [Walker01]

RF Leistung [W]	6	8	10	20	30	40	50	60	70
DC Bias [V]	16	22	30	75	117	148	175	210	235

Tabelle 4.1: Bias-Spannung am Probenträger in Abhängigkeit von der RF-Leistung für die Anlage Oxford Plasmalab 100. Ermittelt bei: ICP 100 W, Prozessdruck 10 mTorr, SF₆ 15 sccm/min, O₂ 5 sccm/min, Temperatur des Si-Testwafers -120°C

Frequenz RF-Generatoren	13,56 MHz
ICP Leistung max.	300 W
RIE Leistung max.	100 W
Probentemperatur	-150°C bis +400°C
Flow Controller für Ätzgase max.	50 sccm/min
max. Durchmesser Wafer	150 mm

Tabelle 4.2: Ausgewählte Technische Daten der verwendeten Anlage Oxford Plasmalab 100

4 Entwicklung und Herstellung mikrostrukturierter Silizium-Gitter

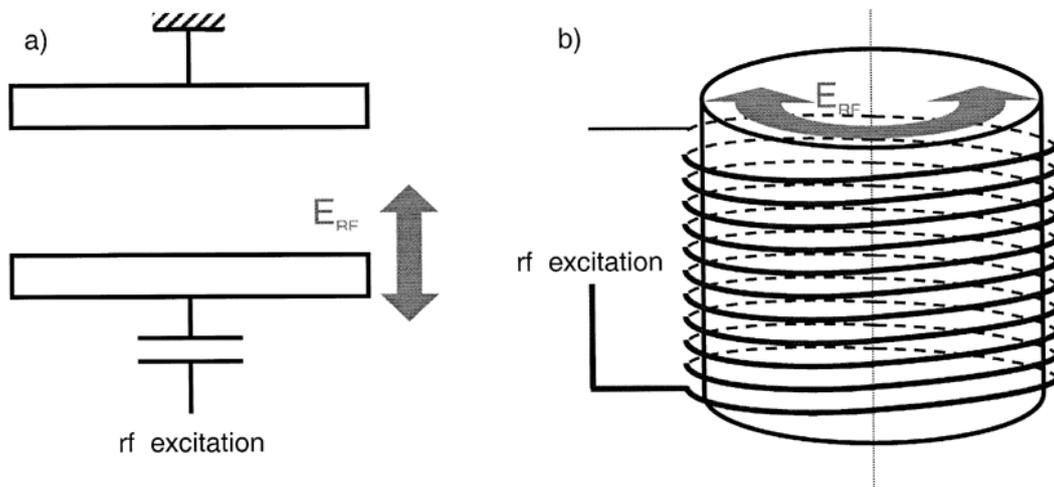


Abbildung 4.3: Feldkonfiguration im einfachen Parallelplatten-Reaktor (a) und in einer ICP-Quelle (b), [Cardinaud00]

Ein weiterer wichtiger Parameter ist durch die Temperatur der Probe gegeben: Kühlung der Probe reduziert einerseits die Reaktionsraten der ätzenden Komponenten, andererseits beeinflusst die Temperatur die Adsorption und damit die Bildung einer Schutzschicht. Der hier verwendete Prozess mit gezielter Kühlung der Probe wird häufig auch als „Cryo Prozess“ bezeichnet [Walker01]. Durch das temperaturabhängige Zusammenspiel von Reaktionsraten und Niederschlag eines Schutzfilms (sidewall protection) auf der Substratoberfläche ist eine der Einflussmöglichkeiten auf das Ätzprofil gegeben. Zeitgemäße Anlagen wie die am ZMNS installierte Oxford Plasmalab 100 verfügen neben einem Stickstoff-gekühlten Probenträger zusätzlich über ein He-Spülsystem, mit dem guter thermischer Kontakt zwischen der Rückseite des Substrats und dem Probenträger sichergestellt wird.

4.1.2 Prozessentwicklung

Durch die geplante Verwendung der geätzten Strukturen als Modellproben für Neutronen-Streuexperimente bot sich Fotolack als Material für die Ätzmaske an. Fotolack kann nach dem Ätzprozess praktisch wieder vollständig von der Probe entfernt werden, was für die anderen möglichen Maskenmaterialien (SiO_2 , metallische Schichten) nur bedingt der Fall ist. Ein Einfluss einer auf der Probe verbliebenen Beschichtung auf die Streuexperimente sollte aber auf jeden Fall vermieden werden. An den zu entwickelnden Ätzprozess waren folgende Anforderungen zu stellen:

1. Hohe Selektivität zwischen Substrat und Maskenmaterial

4 Entwicklung und Herstellung mikrostrukturierter Silizium-Gitter

2. Gute Kontrolle über das geätzte Profil
3. Uniformität des Profils und der Ätzrate über die gesamte Probe

Der erste Punkt ergibt sich aus dem hohen angestrebten Aspektverhältnis: Die Tiefe der geätzten Gräben sollte bis zum fünfzehnfachen der Breite der verbleibenden Stege betragen. Die entsprechend lange Ätzdauer bedingt einen gewissen Abtrag der Fotolackmaske. Deren mögliche Dicke ist aber durch die tiefen Temperaturen begrenzt, da Schichten über $2\ \mu\text{m}$ zu Rissbildung und Ablösung von der Probe neigen. Der beabsichtigte Einsatz der Strukturen als Modellproben in Streuexperimenten führt zu den Forderungen in Punkt zwei und drei. Die Geometrie der geätzten Gräben sollte möglichst ideal rechteckig und uniform über das gesamte geätzte Areal sein.

Als Ausgangsmaterial dienen handelsübliche polierte Silizium-Wafer mit einem Durchmesser von 150 mm und einer Dicke von $650\ \mu\text{m}$. Durch Ritzen und Brechen wurden sie in die endgültige quadratische Form $35\ \text{x}35\ \text{mm}^2$ gebracht. Die Übertragung der zu ätzenden Strukturen von einer Fotomaske auf die Fotolackschicht erfolgte mittels optischer Lithografie. Eine Fotomaske besteht typischerweise aus Quarzglas. Darauf befindet sich eine dünne strukturierte Chromschicht, Abbildung 4.4. Bei der hier verwendeten Kontaktlithografie werden Probe und Maske unter mikroskopischer Kontrolle in direkten Kontakt gebracht und belichtet. Nach dem Entwickeln weist die Lackschicht die Strukturierung der Fotomaske auf. Die Auslegung des Probenträgersystems der verwendeten Ätzanlage auf das Prozessieren ganzer Wafer machte es zusätzlich notwendig, die Proben mit Fotolack auf einen Träger-Wafer aufzukleben. Der Lithografieprozess und die Vorbereitung der Probe für das Ionenätzen umfassten also folgende Schritte:

1. Vorbehandlung: Reinigung der Oberfläche
2. Lackbeschichtung durch Aufschleudern
3. Softbake: Temperbehandlung zur Entfernung des Lösungsmittels aus der Lackschicht, Temperatur 90°C - 120°C
4. Ausrichtung der Probe zur Maske
5. Belichtung
6. Entwicklung
7. Aufkleben der Probe mit Fotolack auf Träger-Wafer
8. Softbake

4 Entwicklung und Herstellung mikrostrukturierter Silizium-Gitter

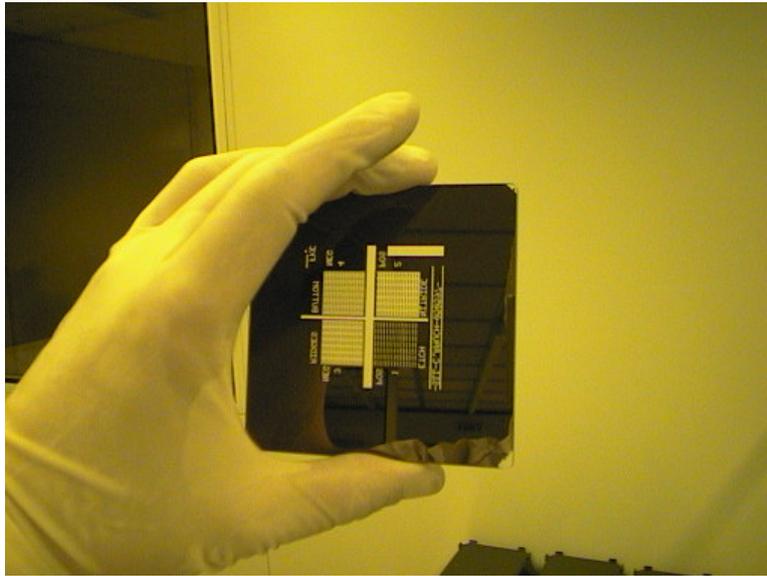


Abbildung 4.4: Quarzglasmaske für Kontaktlithografie

Der konkrete Ätzprozess verwendet SF_6 und O_2 als Ätzgase. Silizium wird in der Form von gasförmigen SiF_4 entfernt. Die Seitenwandpassivierung (sidewall protection) geschieht durch die Bildung einer Oxid/Fluoridschicht aus SiO_xF_y mit einer Dicke von 10–20 nm. Diese Schicht verhindert einen Ätzangriff auf die vertikalen Si-Flächen durch die Fluor-Radikale. Die tiefe Temperatur reduziert weiters die Ätzrate des Maskenmaterials. Dieses wird durch die freien Fluor-Radikale angegriffen, der rein chemische Vorgang ist temperaturabhängig. Bei kryogenen Temperaturen sinken die Reaktionsraten dramatisch. Als unterer praktikabler Grenze für die Proben temperatur ist von etwa -130°C auszugehen, da es darunter verstärkt zu Kondensation von SF_6 auf der Probe kommt. Deutlich kristallographisch orientiertes Ätzen ist dann die Folge, Abbildung 4.6.

Als Ausgangspunkt für die ersten Ätzversuche wurde ein modifiziertes Standardrezept des Anlagenherstellers verwendet. Es sollte als erstes das Verhältnis von SF_6 zu O_2 optimiert werden. Dazu bedient man sich der sogenannten „black silicon method (BSM)“, [Jansen01]: Bei fest gewählter Proben temperatur und fixem Prozessdruck wird der Sauerstoffanteil am Ätzgas variiert bis sich auf einem blanken Si-Wafer eine Schwärzung zeigt. Diese tritt dann auf, wenn bereits kleinste Verunreinigungen an der Oberfläche als effektive Masken ausreichen, um durch den Ätzprozess feine Säulenstrukturen zu schaffen. Der Ätzvortrieb ist mit dieser Gaszusammensetzung bei der vorgegebenen Temperatur also praktisch perfekt vertikal. Abbildung 4.7 demonstriert den Effekt an einer deutlich größeren Säulenstruktur. Die RIE-Leistung muss bei diesem Vorgehen niedrig gewählt werden, da Ionen mit hoher Energie die Verunreinigungen an der Oberfläche abtragen würden. Abbildung 4.8 zeigt den Zusammen-

4 Entwicklung und Herstellung mikrostrukturierter Silizium-Gitter

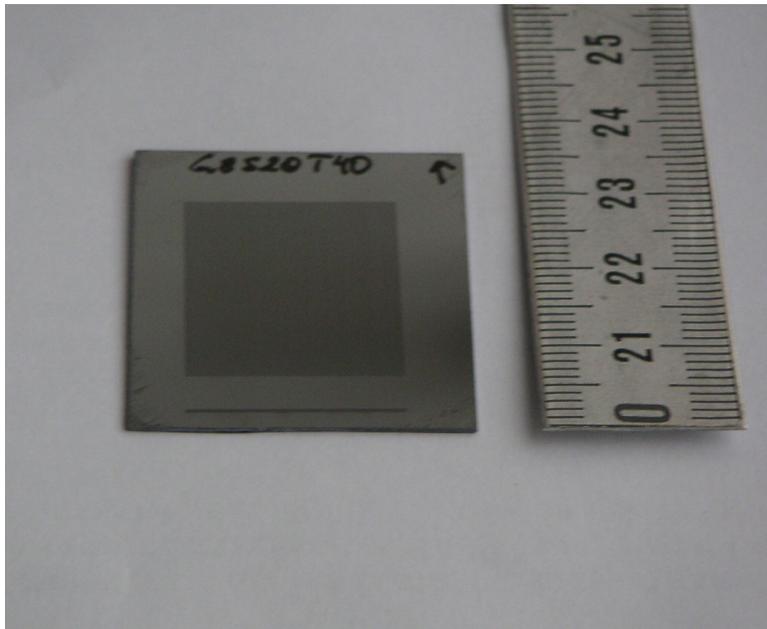


Abbildung 4.5: Fertig geätzte Probe. Das strukturierte Areal von $22 \times 22 \text{ mm}^2$ ist klar zu erkennen.

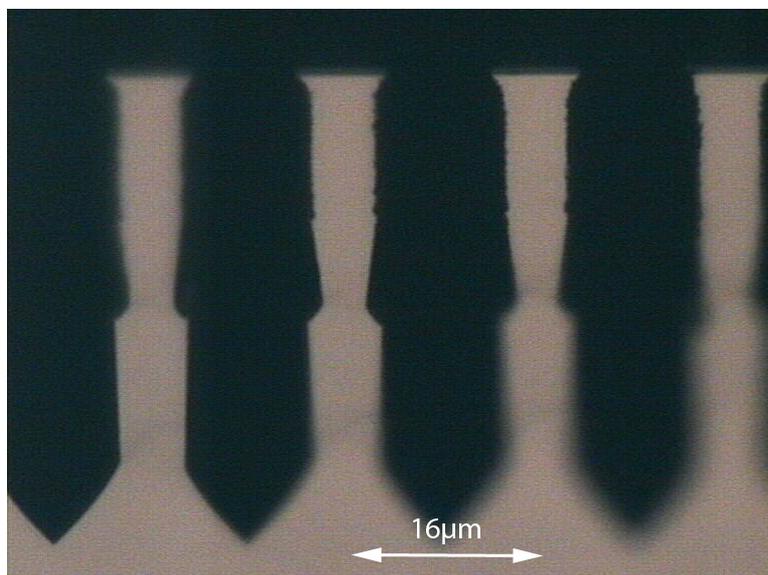


Abbildung 4.6: Stark kristallographisch orientiertes Ätzen durch Kondensation von SF_6

4 Entwicklung und Herstellung mikrostrukturierter Silizium-Gitter

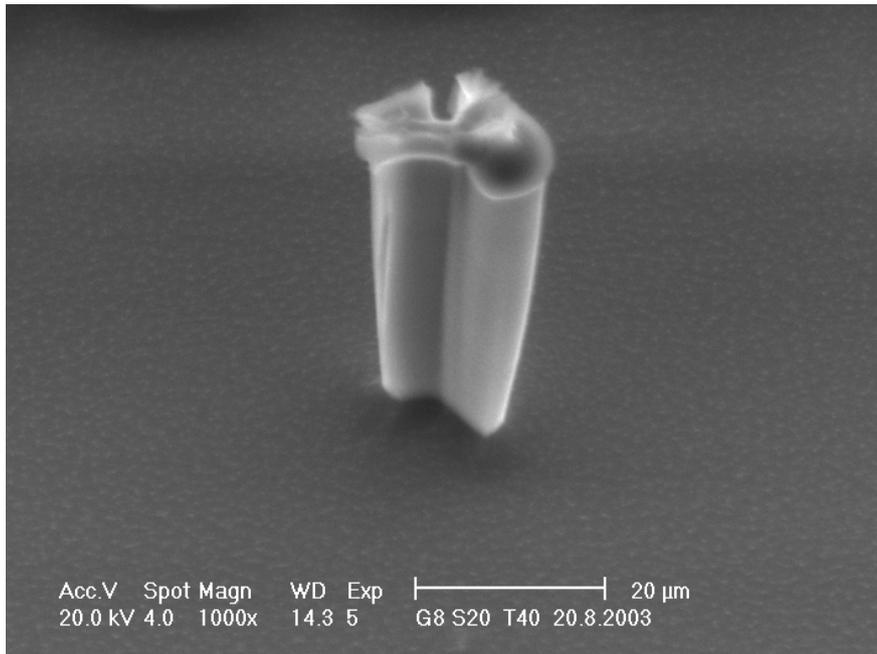


Abbildung 4.7: Wirkung einer Verunreinigung an der Probenoberfläche als effektive Maske

hang zwischen Probertemperatur und Anteil von O_2 am Ätzgas für das Auftreten des „Schwarzen Siliziums“, ermittelt in einer Anlage des Typs METlab. Da der Schwärzungseffekt im tatsächlichen Einsatz des Prozesses natürlich unerwünscht ist, wird entweder durch geringfügige Erhöhung der RIE-Leistung oder durch leichte Reduktion des Sauerstoffanteils „micromasking“, i.e. die Wirkung kleiner Verunreinigungen an der Oberfläche als Maske, vermieden.

Typische Prozessdrücke liegen um 10 mTorr. Bei diesen Drücken besitzen die Ionen in der Kammer eine ausreichend große mittlere freie Weglänge, um praktisch vertikal auf die Probe aufzutreffen. Der Prozess reagiert sehr sensibel auf kleinste Variationen im Sauerstoffanteil am Ätzgas. Bereits der in geringsten Mengen aus dem Quarzglas der ICP-Kuppel austretende Sauerstoff kann Auswirkungen auf das Ätzprofil haben. Besonders nach Wartung der Anlage oder dem Austausch von Bauteilen der Kammer muss in der Regel ein davor gut funktionierender Prozess neu angepasst werden, um mit zum Teil deutlich anderen Parameterwerten wieder zum gleichen Ergebnis zu führen. Auch kann im allgemeinen ein Prozess nicht ohne Änderungen auf eine andere Anlage des gleichen Typs übertragen werden.

Die weitere Prozessoptimierung erfolgte wegen der einfacheren Handhabung mit Testproben aus Wafer-Stücken $10 \times 10 \text{ mm}^2$. Lithografie und Probenvorbereitung erfolgten wie beschrieben, Teststruktur war ein symmetrisches Strichgitter, Periode $16 \mu\text{m}$. Die

4 Entwicklung und Herstellung mikrostrukturierter Silizium-Gitter

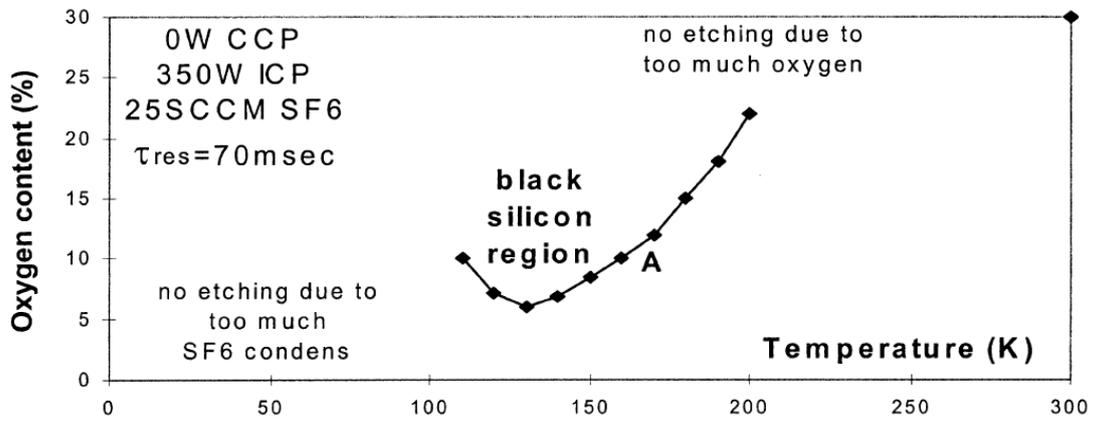


Abbildung 4.8: Die sogenannte black silicon region als Funktion von Proben-temperatur und Sauerstoffanteil im Ätzgas [Jansen01], RIE/ICP Typ METlab

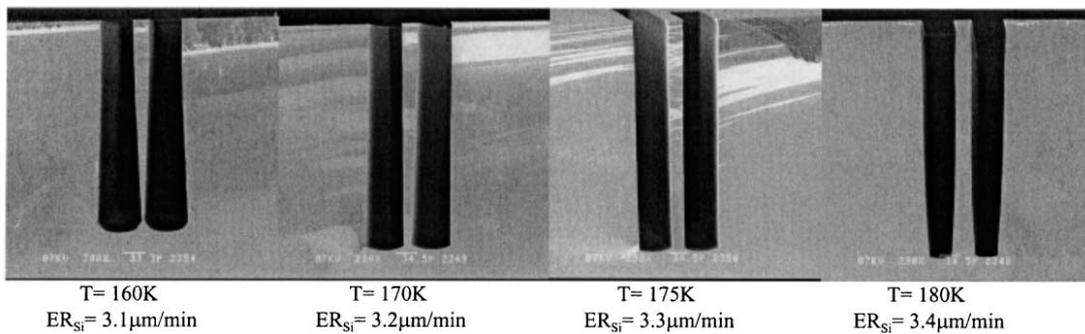


Abbildung 4.9: Einfluss der Proben-temperatur auf das Ätzprofil. Ermittelt für eine Anlage vom Typ Plasmalab 100 ähnlich der hier verwendeten [Jansen01]

4 Entwicklung und Herstellung mikrostrukturierter Silizium-Gitter

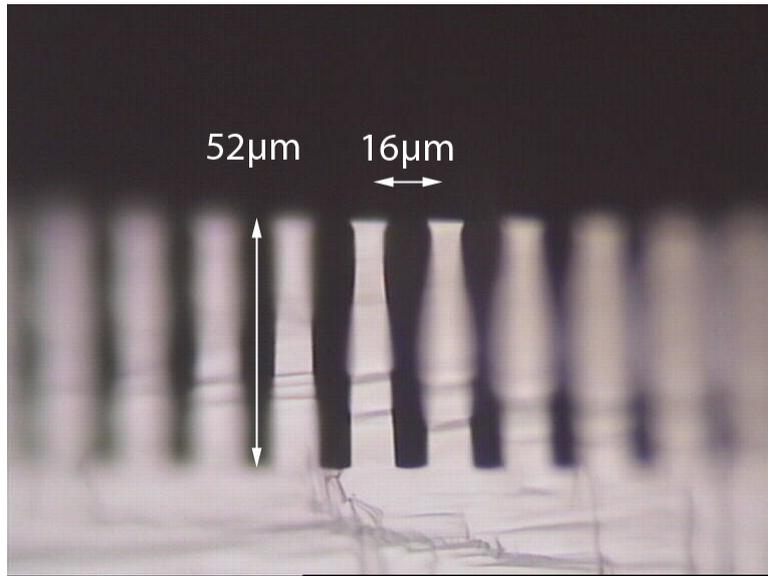


Abbildung 4.10: Unterätzen der Maske (undercut) durch zu hohen Prozessdruck

RF-Leistung im RIE-Teil der Anlage sollte niedrig gehalten werden, da die Ionenenergie die Selektivität des Prozesses stark mitbestimmt. Hohe RIE-Leistung bewirkt eine Schädigung der Fotolackmaske. Die Leistung in der ICP-Quelle wiederum war möglichst hoch zu wählen, um eine ausreichende Dichte an ätzaktiven Bestandteilen und somit eine gute Ätzrate zu gewährleisten. Allerdings konnte nicht bei allen Kombinationen von RIE- und ICP-Leistung ein stabiles Plasma aufrechterhalten werden. Insbesondere zum Zünden des Plasmas brauchte es eine etwas erhöhte RIE-Leistung. Der Prozessdruck wurde nun über Kontrolle des Ätzprofils unter dem Lichtmikroskop nach Spalten der Probe optimiert. Zu hoher Druck führte zu Unterätzen der Maske, Abbildung 4.10. Durch systematisches Variieren der genannten Parameter wurde letztendlich ein zufriedenstellendes Ergebnis erreicht, Abbildung 4.11.

Zur Dokumentation des Ätzergebnisses in den Strichgittern Abbildung 4.5 dienten speziell präparierte Proben mit ca. $10 \times 10 \text{ mm}^2$, auf denen die Hälfte des belichteten Fotolackareals durch einen zweiten Belichtungsdurchgang wieder entfernt wurde. Der Rand des blanken Areals schneidet die Strichgitterstruktur unter 90° . Diese Dokumentationsproben wurden in unmittelbarer Nachbarschaft der eigentlichen Proben auf den Trägerwafer aufgeklebt und mit diesen prozessiert. So wurde ein Einblick durch SEM (Scanning Electron Microscopy) in die geätzten Gräben möglich und die tatsächliche Profilform konnte beurteilt werden. Alle Aufnahmen in Abschnitt 4.2 stammen von derartigen Dokumentationsproben.

Während des Ätzvorgangs wurde der Ätzfortschritt durch Laserinterferometrie verfolgt: Die von Grabenboden und Stegobenseite reflektierten Anteile eines senkrecht

4 Entwicklung und Herstellung mikrostrukturierter Silizium-Gitter

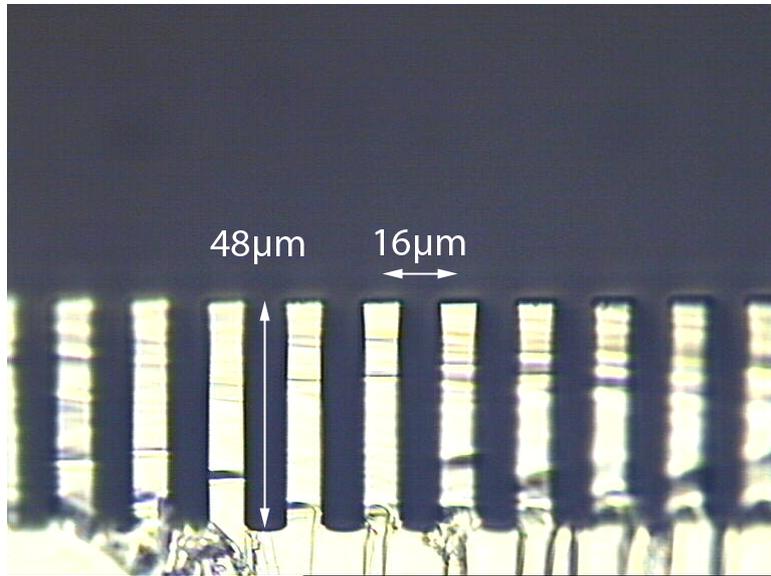


Abbildung 4.11: Profil nach Optimierung des Ätzprozesses

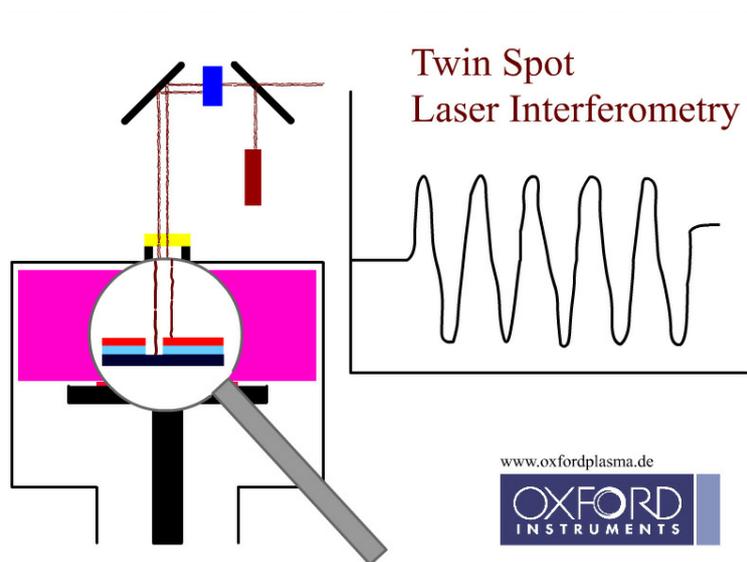


Abbildung 4.12: Laserinterferometrie zur Kontrolle des Ätzvortriebs

4 Entwicklung und Herstellung mikrostrukturierter Silizium-Gitter

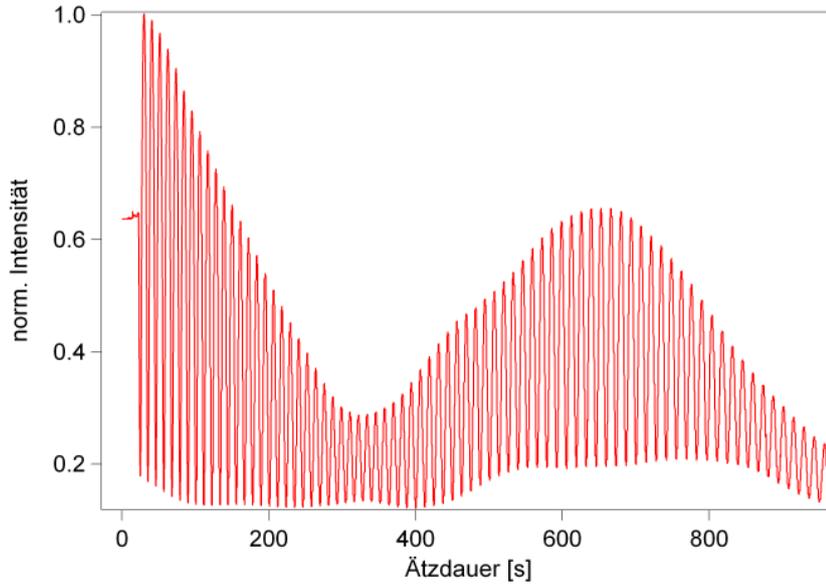


Abbildung 4.13: Interferometriesignal der Probe G8S8T80 während des Ätzvorgangs (Ausschnitt)

auf die Probe einfallenden Laserstrahls werden zur Überlagerung gebracht, Abbildung 4.12. Eine Periode der Oszillation in der resultierenden Intensität entspricht dann einem Ätzfortschritt von:

$$\Delta z_{Si} = \frac{\lambda_{Laser}}{2} = 337nm$$

Die in Abbildung 4.13 deutlich sichtbare zusätzliche Modulation der Intensität mit großer Periode ist verursacht durch die Erosion der Ätzmaske, i.e. den Abtrag von Fotolack an der Stegobenseite. Ein Teil des dort auftreffenden Laserstrahls wird an der Lackoberfläche, der andere an der darunterliegenden Si-Oberfläche reflektiert. Abhängig von der Lackdicke kommt es also zu konstruktiver oder destruktiver Interferenz in diesem Teilstrahl. Eine Periode der Modulation entspricht einem Lackabtrag von:

$$\Delta z_{PR} = \frac{\lambda_{Laser}}{2} \frac{1}{n_{PR}} \approx 225nm$$

$n_{PR} \approx 1,5$ ist der Brechungsindex des Fotolacks. Die Ätzrate für Si sinkt im Verlauf des Prozesses, da der Nachschub an ätzenden Komponenten in die zunehmend tiefer werdenden Schächte geringer wird. Aus der Erosion der Ätzmaske ergibt sich eine der Schwierigkeiten, mit Fotolack als Maskenmaterial Strukturen mit sehr hohem Aspektverhältnis zu ätzen. Die Dicke der Maske kann nur begrenzt erhöht werden, da starke Schichten von Fotolack unter kryogenen Bedingungen zu Rissbildung und Abplatzen neigen. Die Grenze ist hier in der Praxis, wie bereits erwähnt, strukturabhängig mit maximal $2\mu m$ gegeben. Nach dem Ätzvorgang kann die Fotolackmaske durch Auskochen der Proben in Azeton wieder vollständig entfernt werden. In Tabelle 4.4 sind die

4 Entwicklung und Herstellung mikrostrukturierter Silizium-Gitter

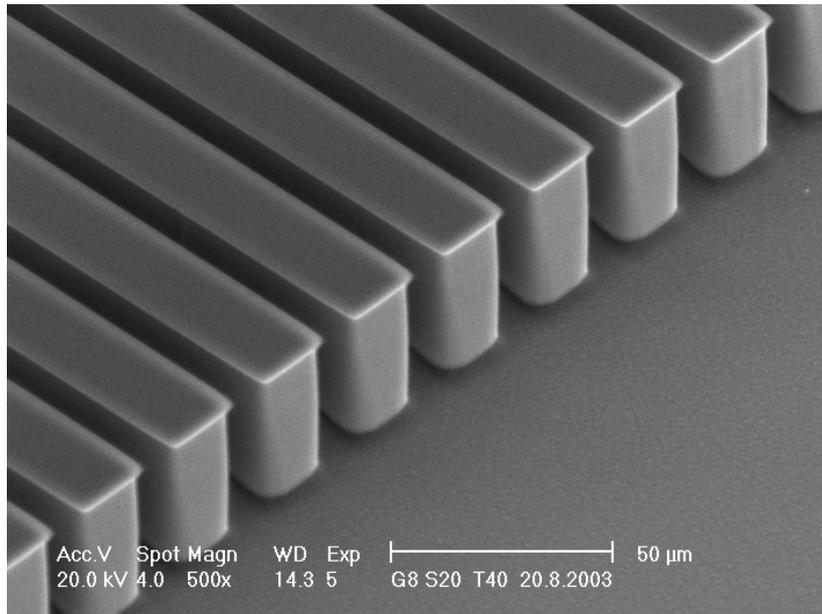


Abbildung 4.14: Typisches Ätzergebnis mit Prozess Tabelle 4.3. Gitter mit Periode $28 \mu\text{m}$, Grabenbreite $8 \mu\text{m}$, Tiefe $40 \mu\text{m}$

mittleren Ätzraten und Selektivitäten für ein symmetrisches Gitter, Periode $16 \mu\text{m}$, im hier entwickelten Prozess angeführt. Die einzelnen Parameterwerte der Probenpräparation und des Prozesses selbst finden sich in Tabelle 4.3.

Der Prozess liefert ausgezeichnete Ergebnisse für lineare Phasengitterstrukturen. Das höchste erreichte Aspektverhältnis liegt bei 15, typische Beispiele sind in den Abbildungen 4.14 - 4.16 dargestellt. Für die vollständige Auflistung der hergestellten Strukturen siehe Tabelle 4.5.

4 Entwicklung und Herstellung mikrostrukturierter Silizium-Gitter

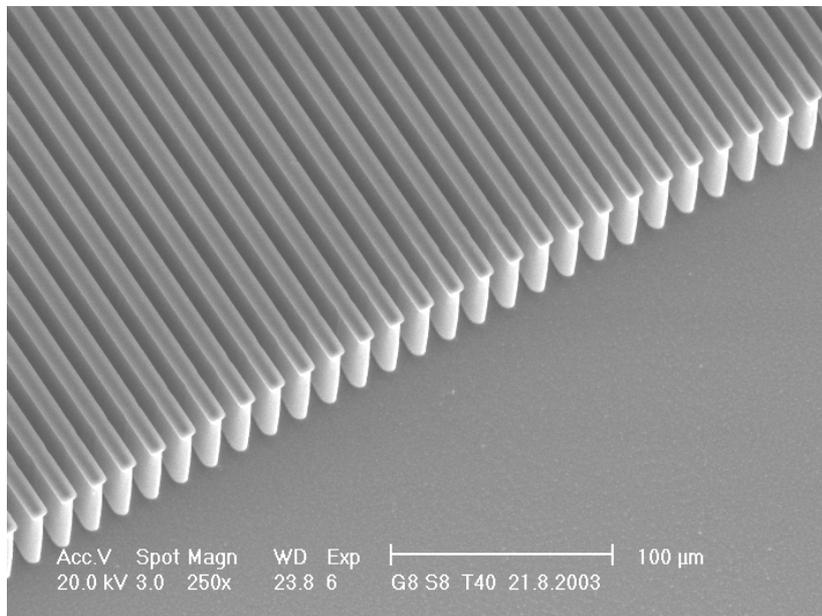


Abbildung 4.15: Typisches Ätzergebnis mit Prozess Tabelle 4.3. Gitter mit Periode $16\mu\text{m}$, Grabenbreite $8\mu\text{m}$, Tiefe $40\mu\text{m}$

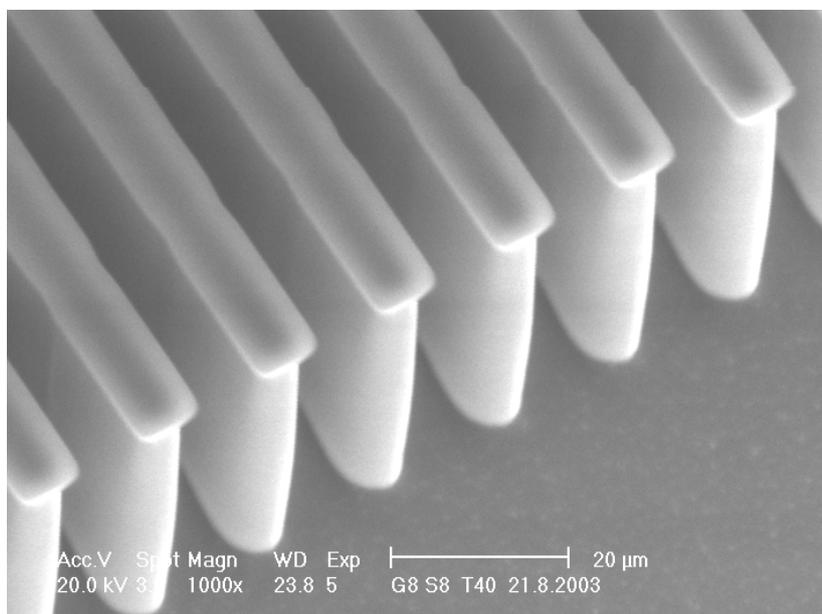


Abbildung 4.16: Detail des Gitters mit Periode $16\mu\text{m}$ aus Abb. 4.15

4 Entwicklung und Herstellung mikrostrukturierter Silizium-Gitter

Fotolack AZ5214 als Positivlack:	
Spinner	4000 rpm 35 s → 1,4 μm
Softbake	120°C 60 s
Belichtung	15 s auf Karl Suess MJB3 200 W
Entwickeln	30 s in MIF726
Aufkleben auf Träger-Wafer	mit AZ5214
Softbake	120°C 6 min
Ätzparameter Oxford Plasmalab 100:	
Leistung	ICP 240 W, RIE 8 W
Probentemperatur	-108°C
Prozessdruck	14 mTorr
SF ₆	50 sccm/min
O ₂	4 sccm/min

Tabelle 4.3: Rezept RIE/ICP-Ätzen Si-Phasengitter

Grabentiefe [μm]	Ätzrate Si [μm/min]	Selektivität
40	1,40	73
60	1,31	68
80	1,28	66

Tabelle 4.4: Tiefenabhängige Ätzraten und Selektivitäten für ein symmetrisches Strichgitter, Grabenbreite = Stegbreite = 8 μm, strukturiertes Areal 22x22 mm²

4.2 Ergebnisse

Bei insgesamt ausgezeichnetem Ergebnis zeigen einige der hergestellten Strukturen gewisse Abweichungen von der angestrebten Ätzgeometrie. Das Verhältnis Grabenbreite zu Stegbreite weicht in mehreren Fällen von den Nominalwerten ab, der Grund kann in der vorzeitigen Erosion der Kanten der Ätzmaske vermutet werden. Bei einigen Proben kam es darüberhinaus zu deutlichen Abweichungen im Ätzprofil von der angestrebten Idealform. Eine Erklärung für diese Variationen ist eventuell die geringe Betriebsdauer der neu installierten Ätzanlage vor Beginn der Arbeiten. Ein weiterer Grund liegt möglicherweise in der Art der Probenfixierung am Trägerwafer: Durch Aufkleben mit Fotolack kann es zu ungleichmäßiger Wärmeleitung zwischen Probe und He-gekühltem Trägerwafer kommen. Der verwendete Ätzprozess reagiert überaus empfindlich auf eine Änderung der Probentemperatur, was die in einigen Fällen deutlich unterschiedlichen Ätzprofile für gleichartige Strukturen erklären kann. Die Ergebnisse wurden mit SEM dokumentiert.

4 Entwicklung und Herstellung mikrostrukturierter Silizium-Gitter

Gitterstrukturen

Bezeichnung	Periode [μm]	Graben [μm]	Steg [μm]	Tiefe [μm]	SEM Aufnahme
G8S4T40	12	8	4	40	Abb. 4.17, S 59
G8S4T60	12	8	4	60	Abb. 4.19, S 60
G8S8T40	16	8	8	40	Abb. 4.21, S 61
G8S8T60	16	8	8	60	Abb. 4.23, S 62
G8S8T80	16	8	8	80	—
G8S12T40	20	8	12	40	Abb. 4.25, S 63
G8S12T60	20	8	12	60	Abb. 4.27, S 64
G8S12T80	20	8	12	80	Abb. 4.29, S 65
G8S20T40	28	8	20	40	Abb. 4.31, S 66
G8S20T60	28	8	20	60	Abb. 4.33, S 67
G8S20T80	28	8	20	80	Abb. 4.35, S 68

Periodische Sequenzen mit Abstand $100\ \mu\text{m}$

Bezeichnung	Anzahl Gräben	Graben [μm]	Steg [μm]	Tiefe [μm]	SEM Aufnahme
GSGD100T40	2	8	7	40	Abb. 4.37, S 69
GSGD100T60	2	8	7	60	—
GSGD100T80	2	8	7	80	Abb. 4.39, S 70
GSGSGD100T40	3	8	7	40	Abb. 4.41, S 71
GSGSGD100T80	3	8	7	60	Abb. 4.43, S 72
GSGSGD100T80	3	8	7	80	Abb. 4.45, S 73

Periodische Sequenzen mit Abstand (100 - 200 - 300) μm

Bezeichnung	Anzahl Gräben	Graben [μm]	Steg [μm]	Tiefe [μm]	SEM Aufnahme
GSGD123T40	2	8	7	40	Abb. 4.47, S 74
GSGD123T60	2	8	7	60	Abb. 4.49, S 75
GSGD123T80	2	8	7	80	Abb. 4.51, S 76

Einzelgräben mit Abstand $100\ \mu\text{m}$

Bezeichnung	Graben [μm]	Tiefe [μm]	SEM Aufnahme
G8D100T40	8	40	Abb. 4.53, S 77
G8D100T60	8	60	Abb. 4.55, S 78
G8D100T80	8	80	Abb. 4.57, S 79

Tabelle 4.5: Verzeichnis der hergestellten Strukturen, Nominalparameter

4 Entwicklung und Herstellung mikrostrukturierter Silizium-Gitter

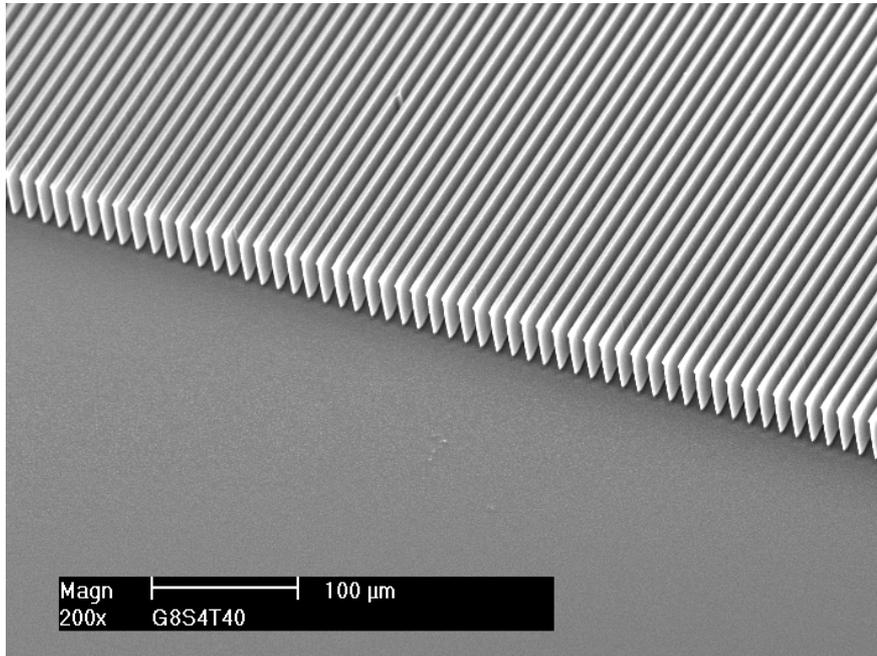


Abbildung 4.17: Probe G8S4T40: Periodisches Gitter. Periode $12\ \mu\text{m}$, Gräben $8\ \mu\text{m}$, Stege $4\ \mu\text{m}$, Tiefe $40\ \mu\text{m}$, Vergrößerung 200x

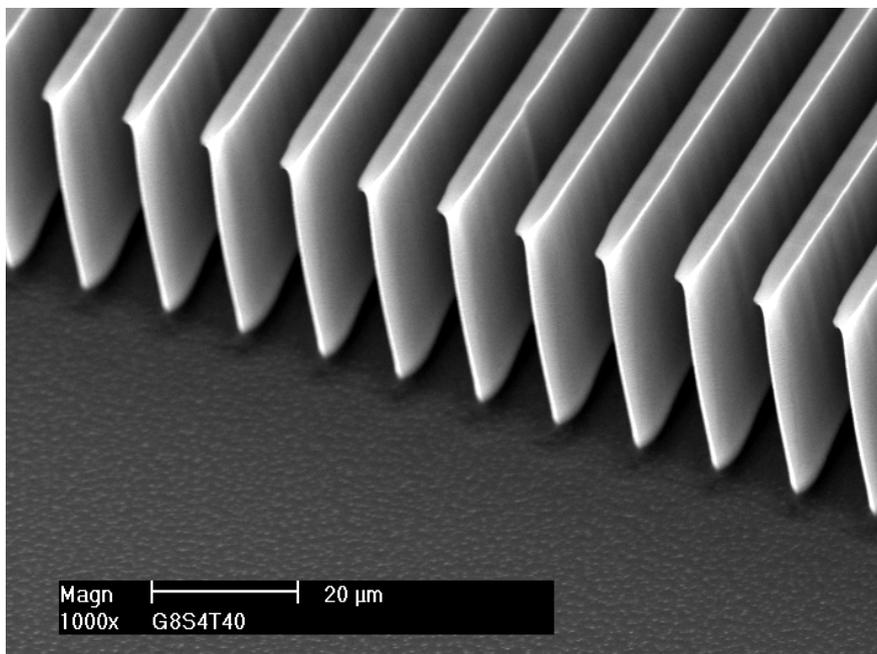


Abbildung 4.18: Probe G8S4T40, Detail. Vergrößerung 1000x

4 Entwicklung und Herstellung mikrostrukturierter Silizium-Gitter

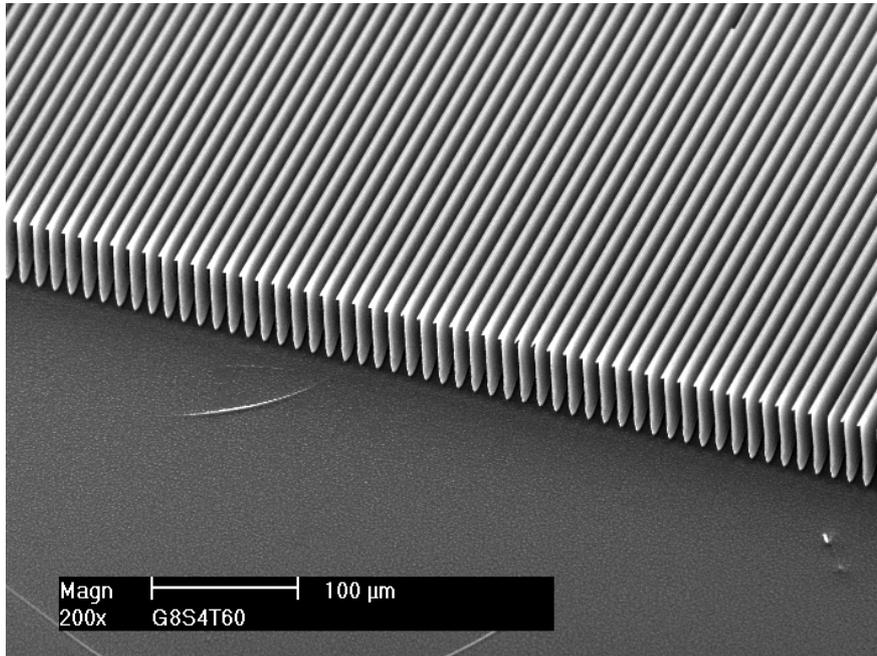


Abbildung 4.19: Probe G8S4T60: Periodisches Gitter. Periode $12\ \mu\text{m}$, Gräben $8\ \mu\text{m}$, Stege $4\ \mu\text{m}$, Tiefe $60\ \mu\text{m}$, Vergrößerung 200x

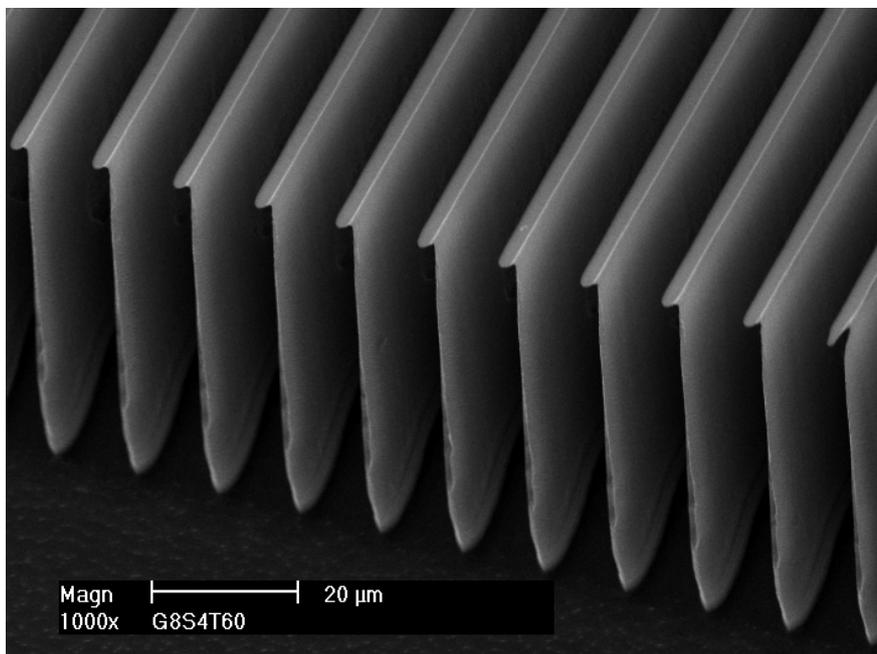


Abbildung 4.20: Probe G8S4T60, Detail. Vergrößerung 1000x

4 Entwicklung und Herstellung mikrostrukturierter Silizium-Gitter

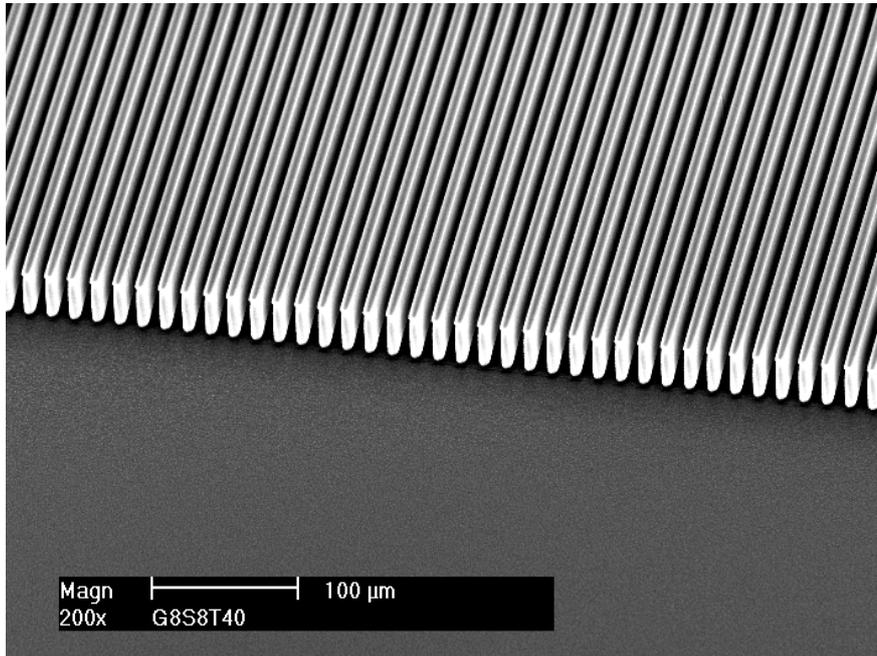


Abbildung 4.21: Probe G8S8T40: Periodisches Gitter. Periode $16\ \mu\text{m}$, Gräben $8\ \mu\text{m}$, Stege $8\ \mu\text{m}$, Tiefe $40\ \mu\text{m}$, Vergrößerung 200x

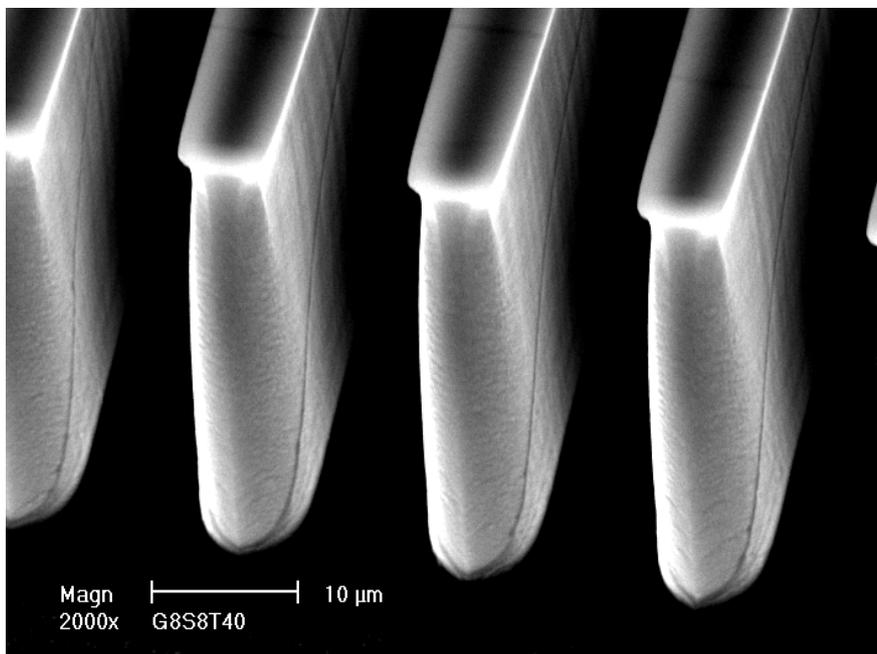


Abbildung 4.22: Probe G8S8T40, Detail. Vergrößerung 2000x

4 Entwicklung und Herstellung mikrostrukturierter Silizium-Gitter

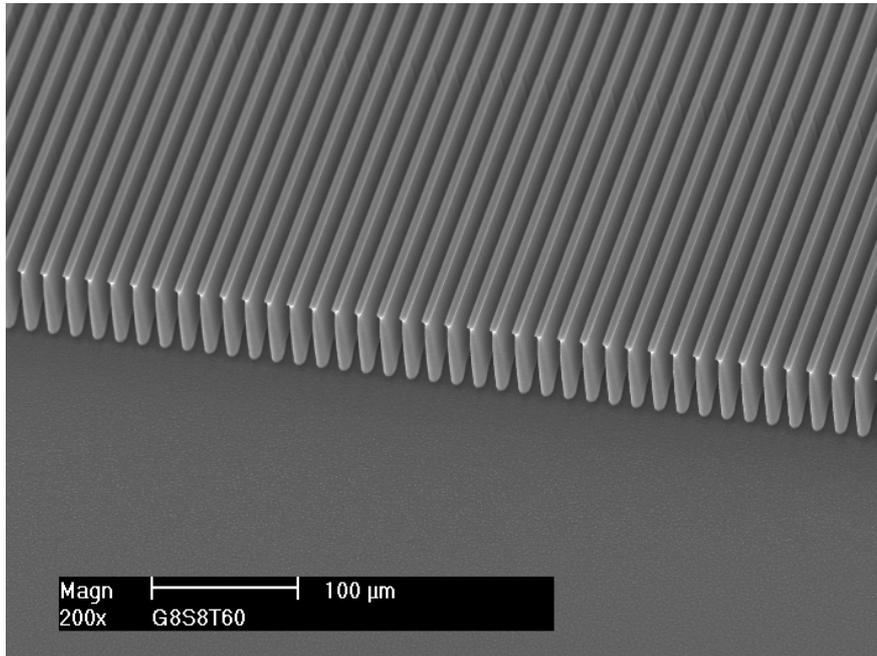


Abbildung 4.23: Probe G8S8T60: Periodisches Gitter. Periode $16\ \mu\text{m}$, Gräben $8\ \mu\text{m}$, Stege $8\ \mu\text{m}$, Tiefe $60\ \mu\text{m}$, Vergrößerung 200x

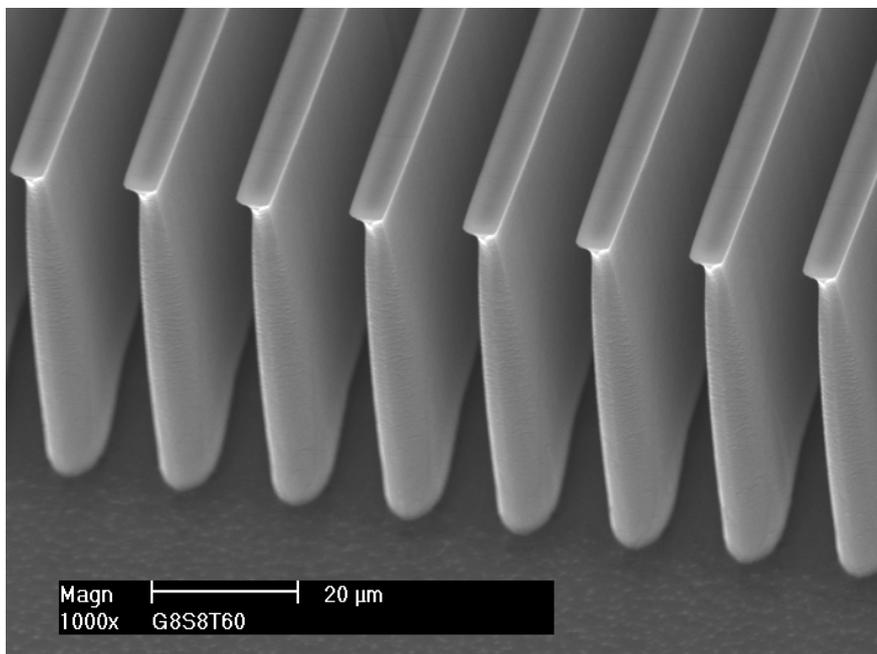


Abbildung 4.24: Probe G8S8T60, Detail. Vergrößerung 1000x

4 Entwicklung und Herstellung mikrostrukturierter Silizium-Gitter

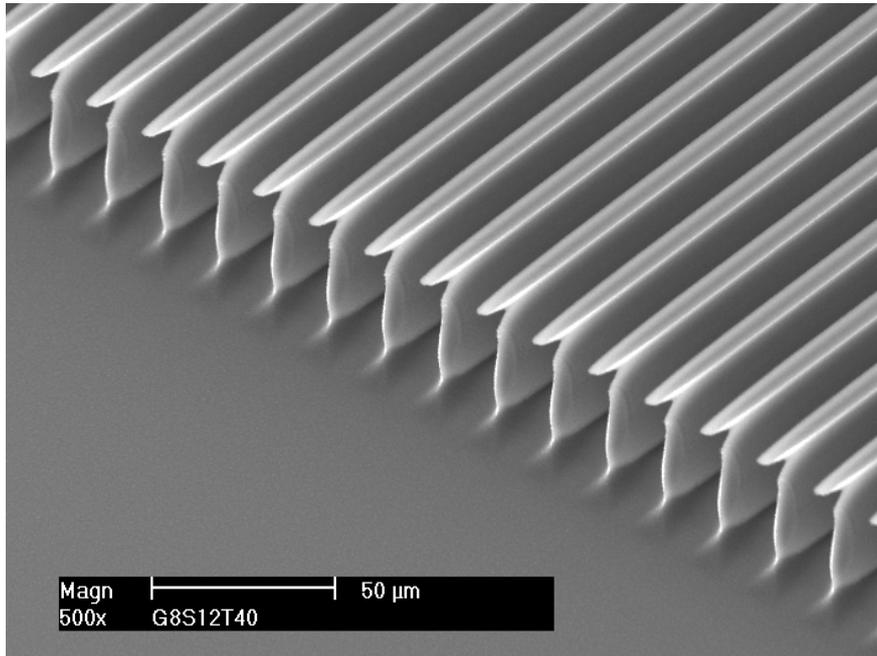


Abbildung 4.25: Probe G8S12T40: Periodisches Gitter. Periode 20 μm, Gräben 8 μm, Stege 12 μm, Tiefe 40 μm, Vergrößerung 500x

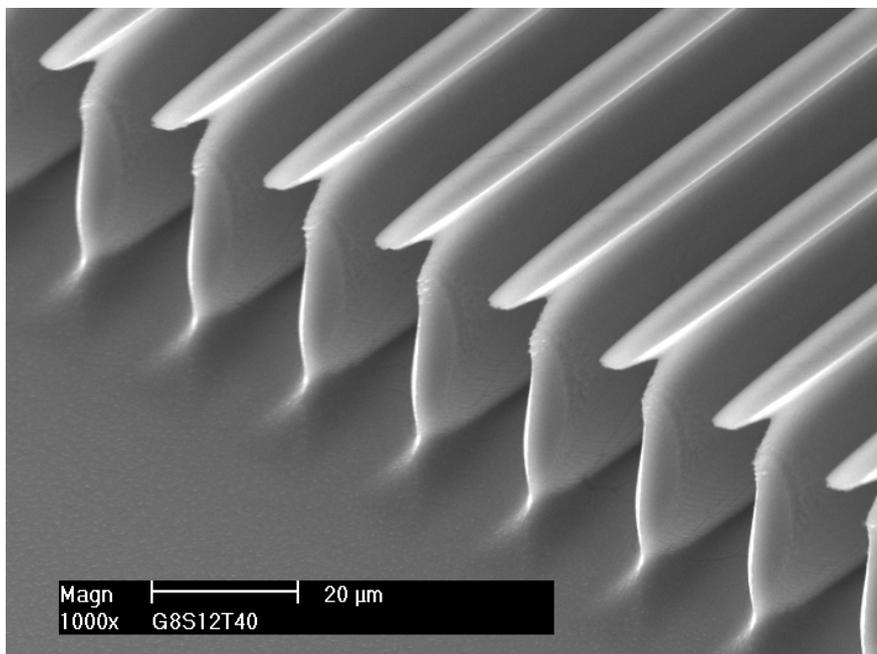


Abbildung 4.26: Probe G8S12T40, Detail. Vergrößerung 1000x

4 Entwicklung und Herstellung mikrostrukturierter Silizium-Gitter

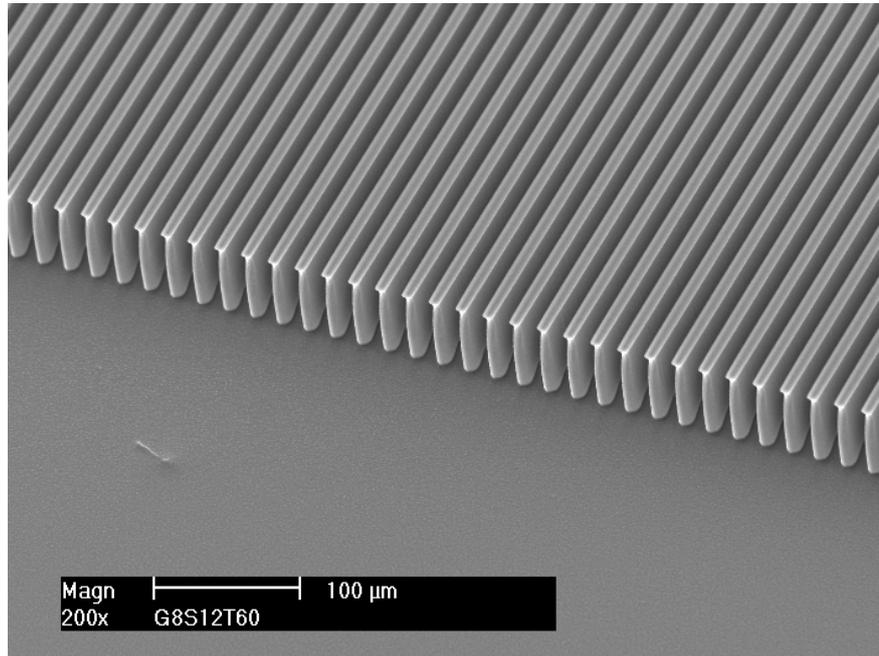


Abbildung 4.27: Probe G8S12T60: Periodisches Gitter. Periode $20\ \mu\text{m}$, Gräben $8\ \mu\text{m}$,
Stege $12\ \mu\text{m}$, Tiefe $60\ \mu\text{m}$, Vergrößerung 200x

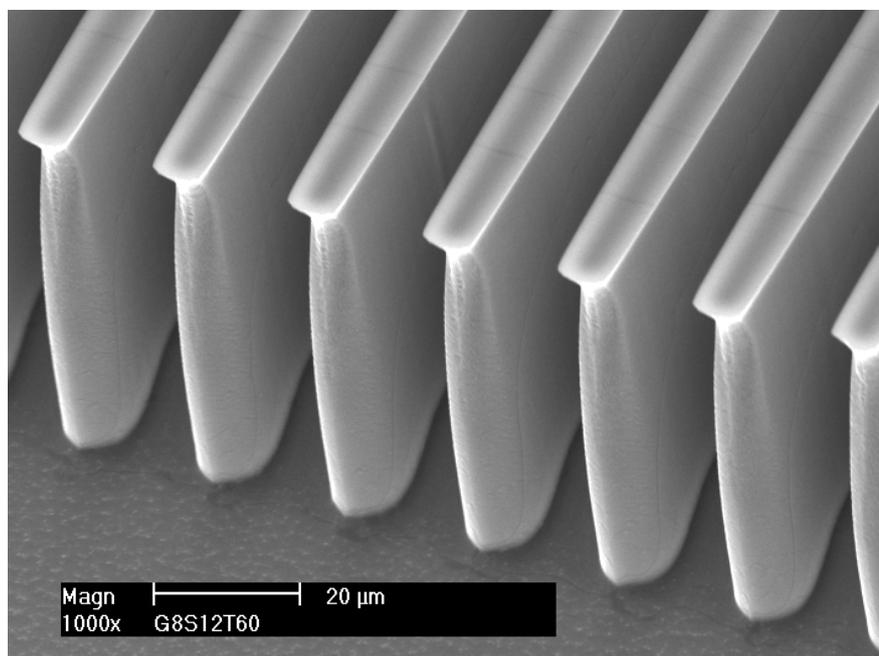


Abbildung 4.28: Probe G8S12T60, Detail. Vergrößerung 1000x

4 Entwicklung und Herstellung mikrostrukturierter Silizium-Gitter

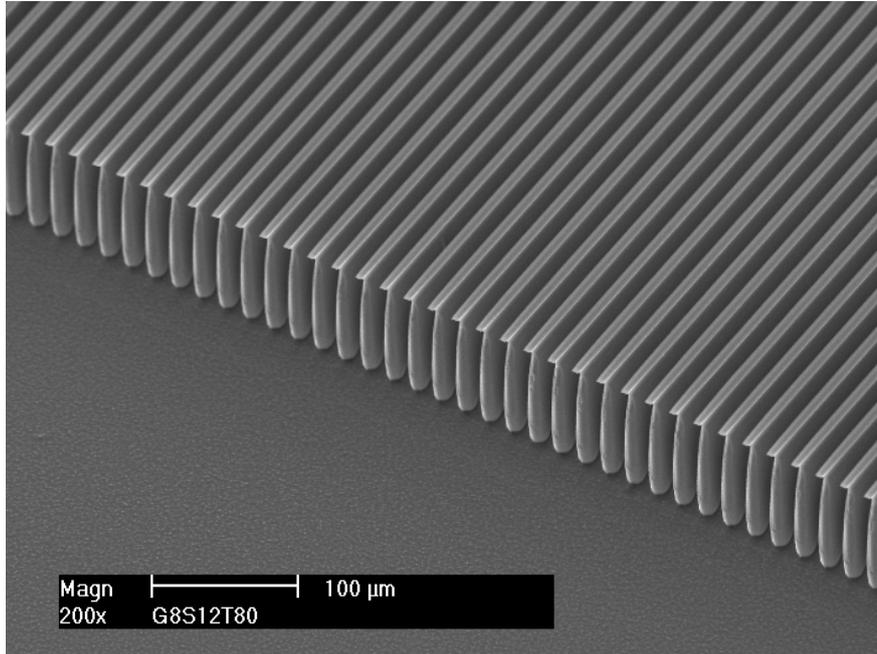


Abbildung 4.29: Probe G8S12T80: Periodisches Gitter. Periode $20\ \mu\text{m}$, Gräben $8\ \mu\text{m}$, Stege $12\ \mu\text{m}$, Tiefe $80\ \mu\text{m}$, Vergrößerung 200x

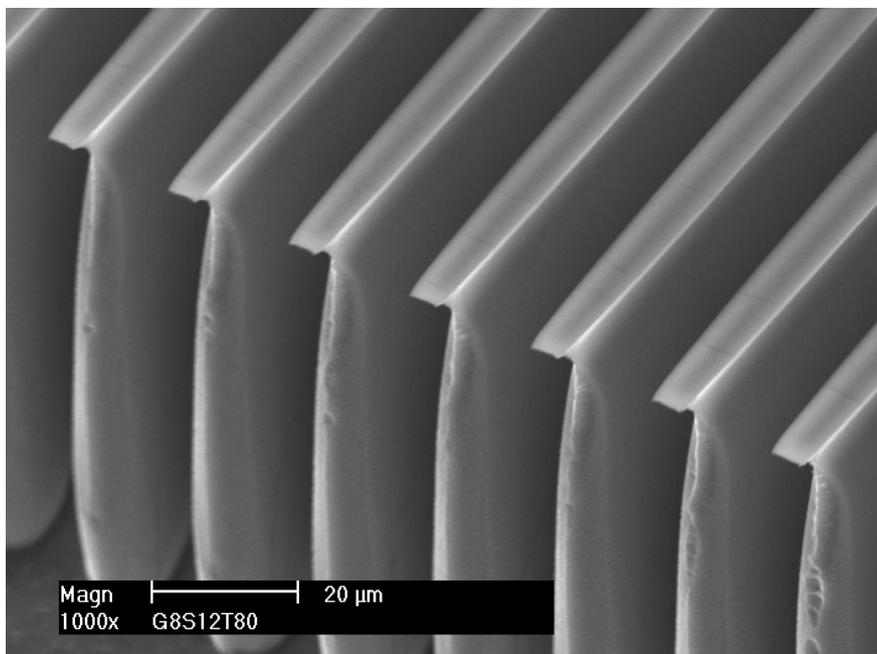


Abbildung 4.30: Probe G8S12T80, Detail. Vergrößerung 1000x

4 Entwicklung und Herstellung mikrostrukturierter Silizium-Gitter

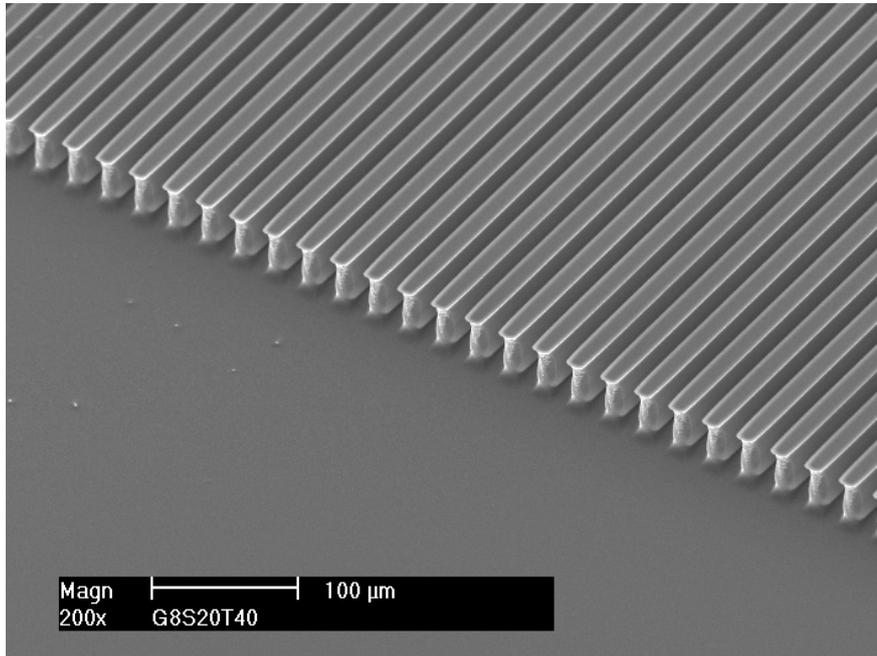


Abbildung 4.31: Probe G8S20T40: Periodisches Gitter. Periode $28\ \mu\text{m}$, Gräben $8\ \mu\text{m}$, Stege $20\ \mu\text{m}$, Tiefe $40\ \mu\text{m}$, Vergrößerung 200x

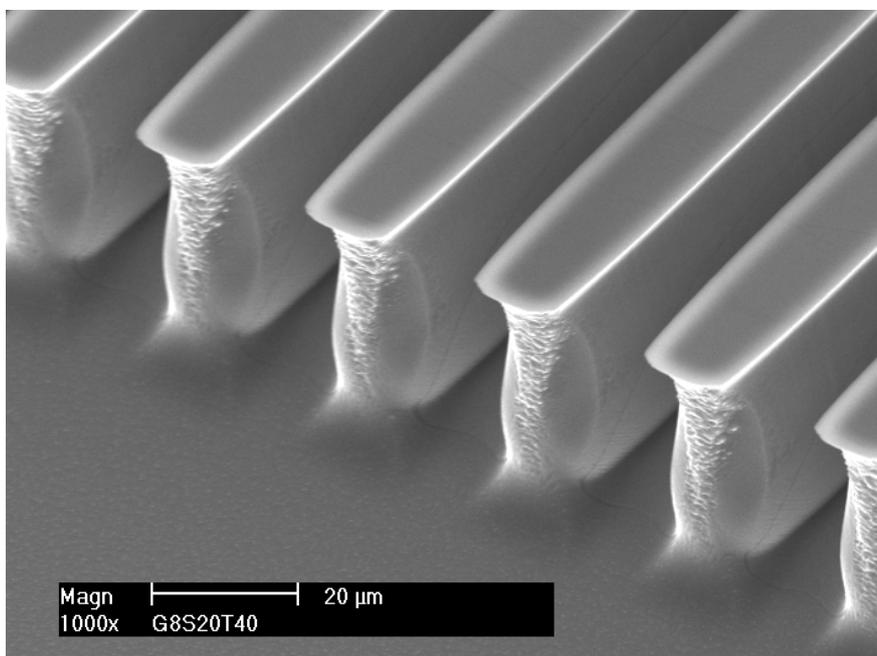


Abbildung 4.32: Probe G8S20T40, Detail. Vergrößerung 1000x

4 Entwicklung und Herstellung mikrostrukturierter Silizium-Gitter

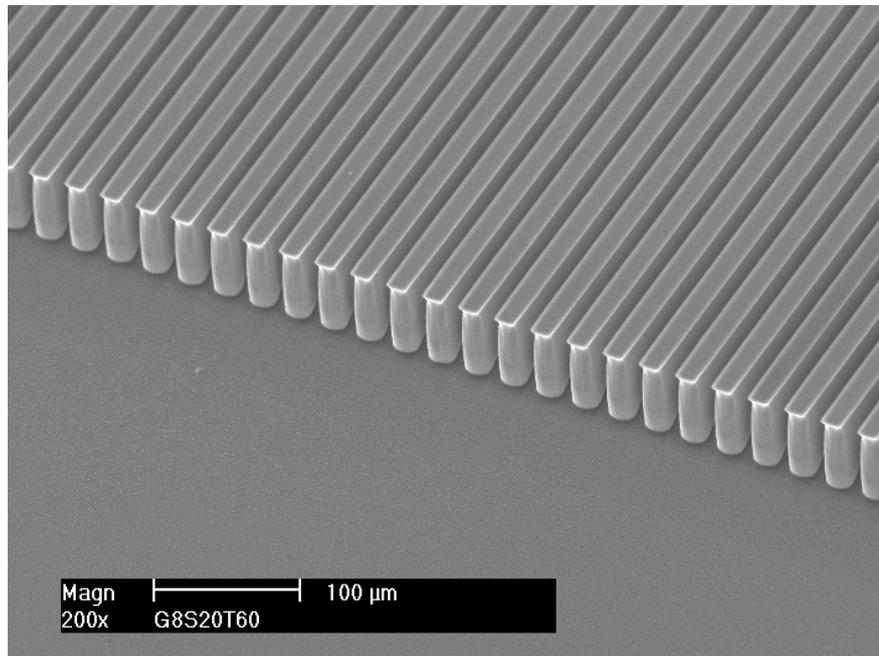


Abbildung 4.33: Probe G8S20T60: Periodisches Gitter. Periode $28\ \mu\text{m}$, Gräben $8\ \mu\text{m}$, Stege $20\ \mu\text{m}$, Tiefe $60\ \mu\text{m}$, Vergrößerung 200x

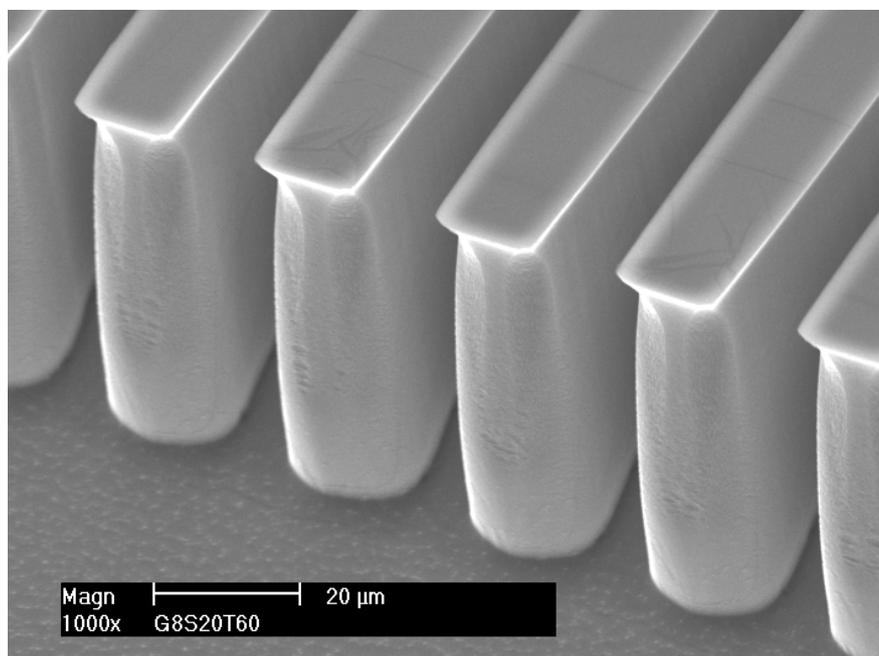


Abbildung 4.34: Probe G8S20T60, Detail. Vergrößerung 1000x

4 Entwicklung und Herstellung mikrostrukturierter Silizium-Gitter

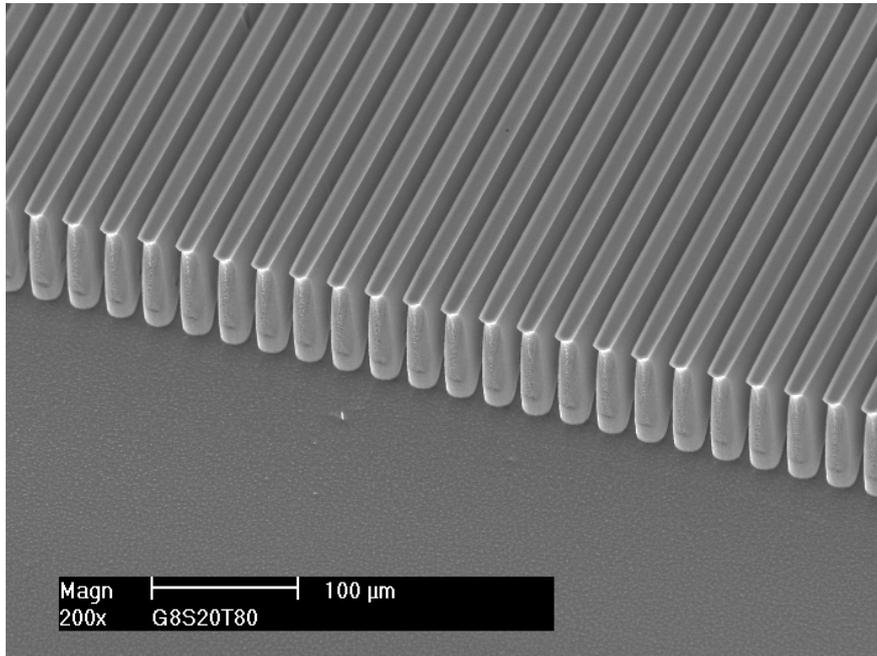


Abbildung 4.35: Probe G8S20T80: Periodisches Gitter. Periode $28\ \mu\text{m}$, Gräben $8\ \mu\text{m}$, Stege $20\ \mu\text{m}$, Tiefe $80\ \mu\text{m}$, Vergrößerung 200x

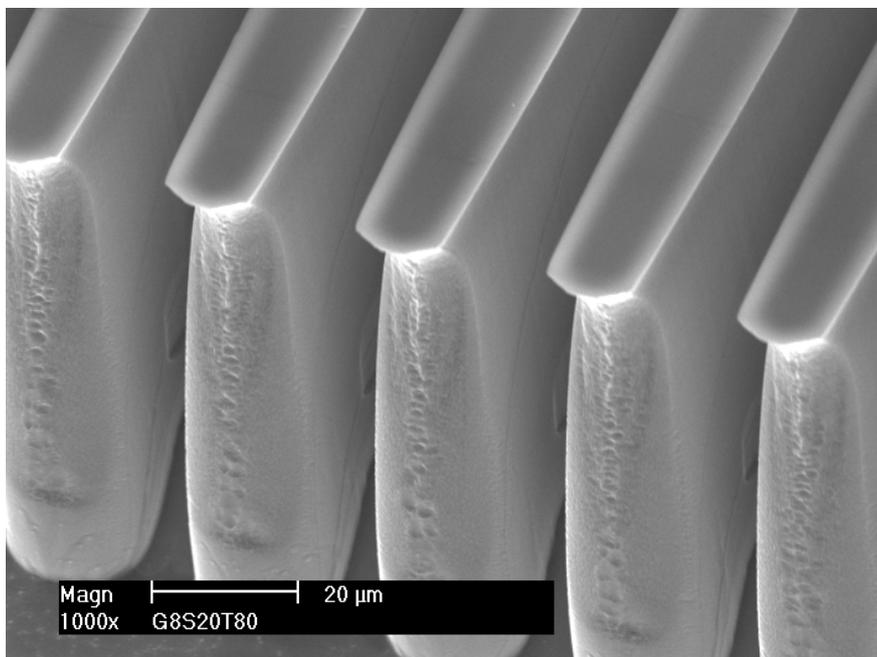


Abbildung 4.36: Probe G8S20T80, Detail. Vergrößerung 1000x

4 Entwicklung und Herstellung mikrostrukturierter Silizium-Gitter

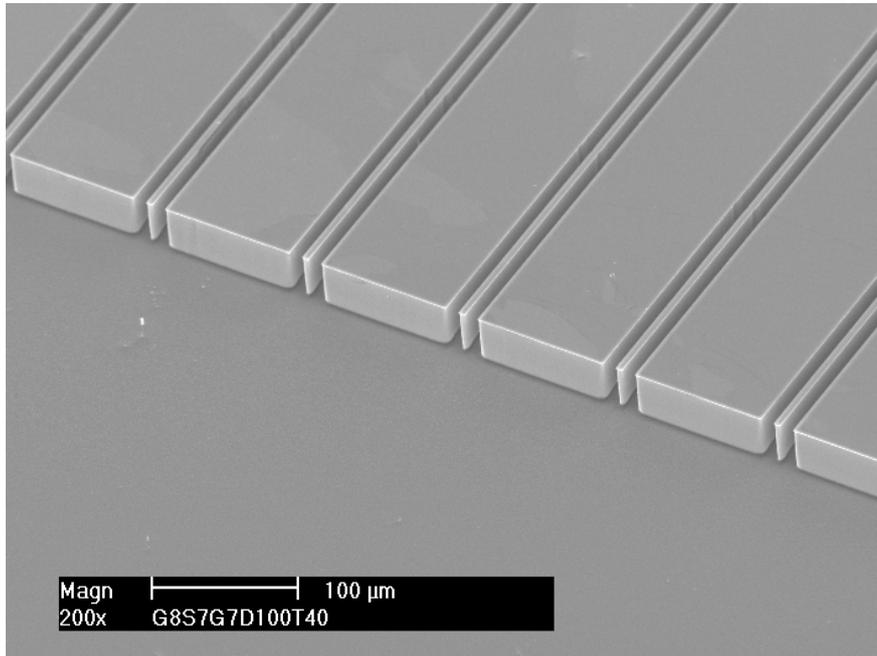


Abbildung 4.37: Probe GSGD100T40: Periodische Sequenzen. Gräben $8\mu\text{m}$, Stege $7\mu\text{m}$, Abstand $100\mu\text{m}$, Tiefe $40\mu\text{m}$, Vergrößerung 200x

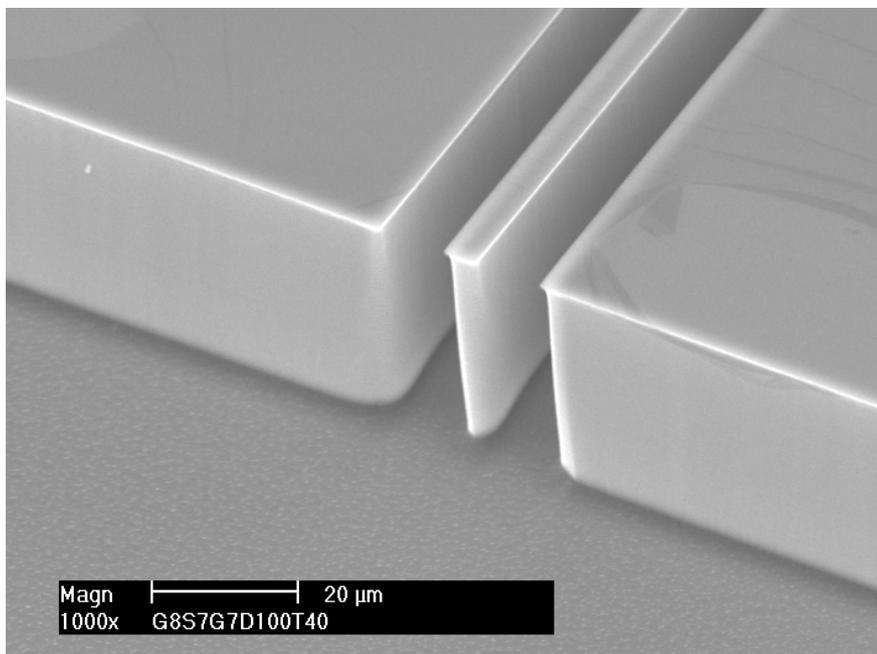


Abbildung 4.38: Probe GSGD100T40, Detail. Vergrößerung 1000x

4 Entwicklung und Herstellung mikrostrukturierter Silizium-Gitter

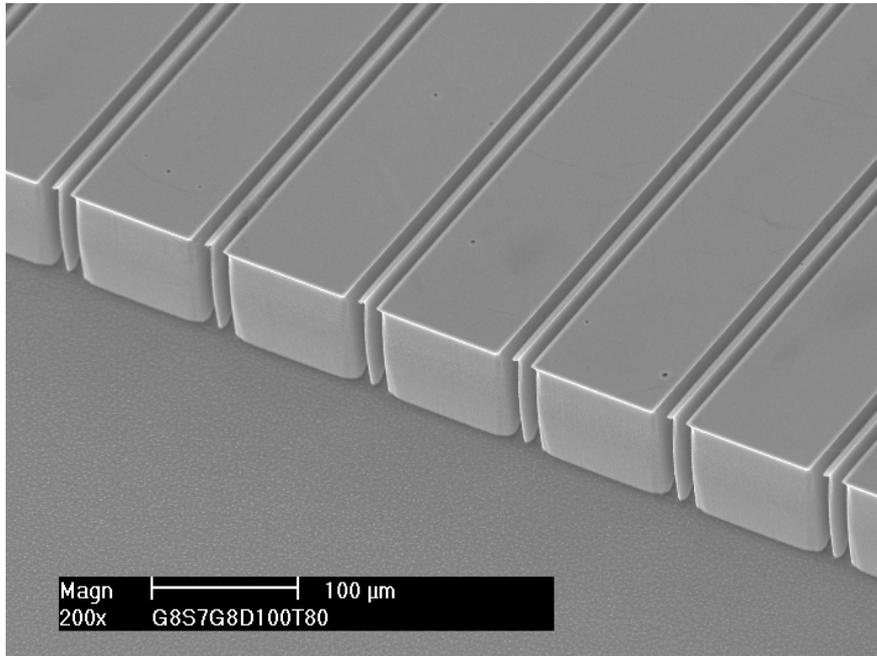


Abbildung 4.39: Probe GSGD100T80: Periodische Sequenzen. Gräben $8\mu\text{m}$, Stege $7\mu\text{m}$, Abstand $100\mu\text{m}$, Tiefe $80\mu\text{m}$, Vergrößerung 200x

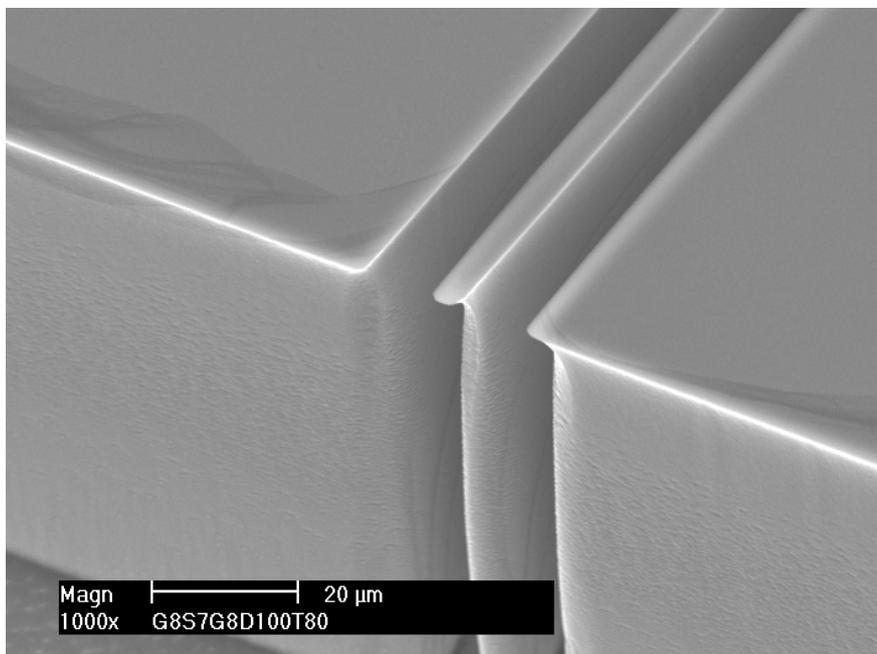


Abbildung 4.40: Probe GSGD100T80, Detail. Vergrößerung 1000x

4 Entwicklung und Herstellung mikrostrukturierter Silizium-Gitter

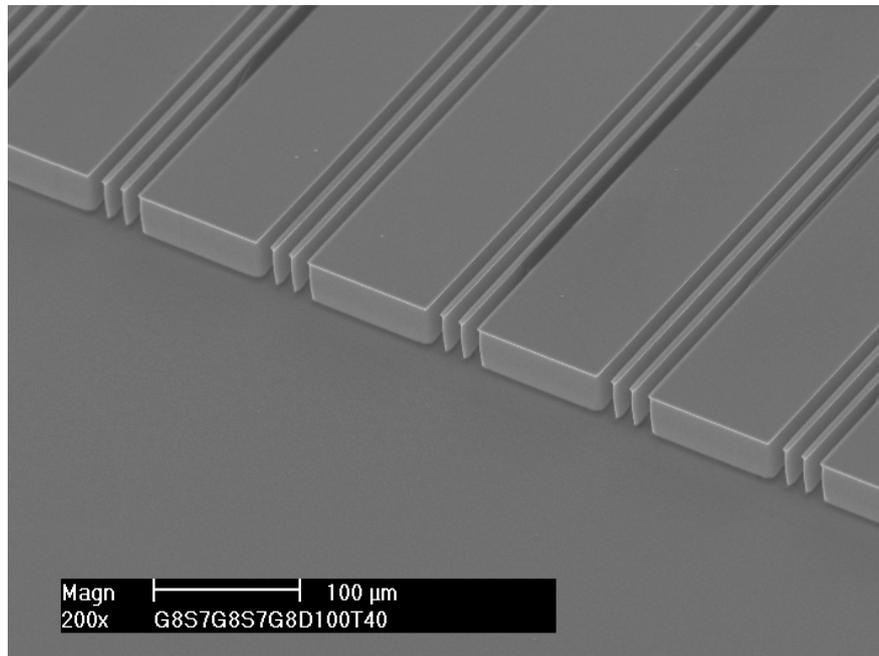


Abbildung 4.41: Probe GSGSGD100T40: Periodische Sequenzen. Gräben $8\mu\text{m}$, Stege $7\mu\text{m}$, Abstand $100\mu\text{m}$, Tiefe $40\mu\text{m}$, Vergrößerung 200x

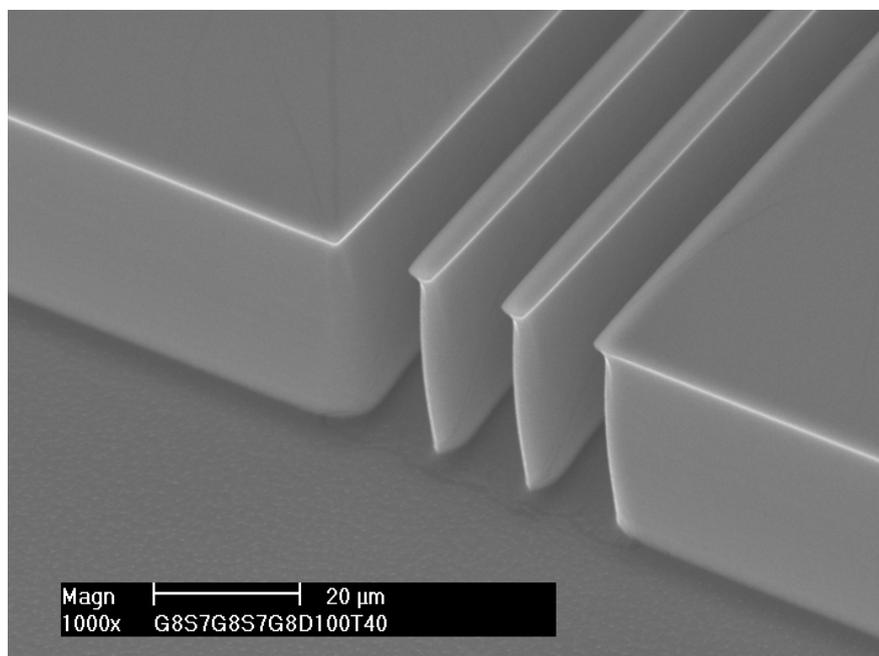


Abbildung 4.42: Probe GSGSGD100T40, Detail. Vergrößerung 1000x

4 Entwicklung und Herstellung mikrostrukturierter Silizium-Gitter

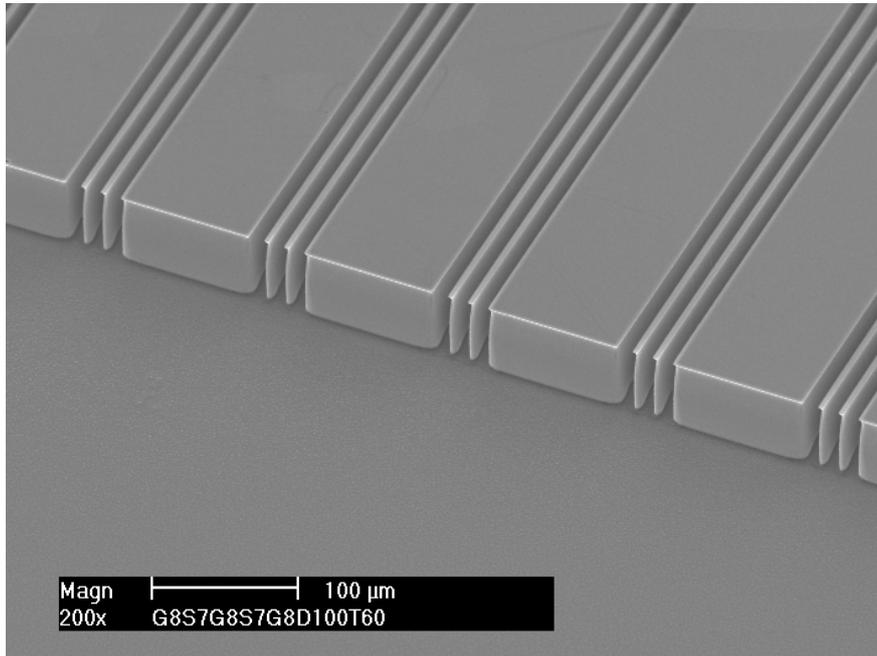


Abbildung 4.43: Probe GSGSGD100T60: Periodische Sequenzen. Gräben $8\mu\text{m}$, Stege $7\mu\text{m}$, Abstand $100\mu\text{m}$, Tiefe $60\mu\text{m}$, Vergrößerung 200x

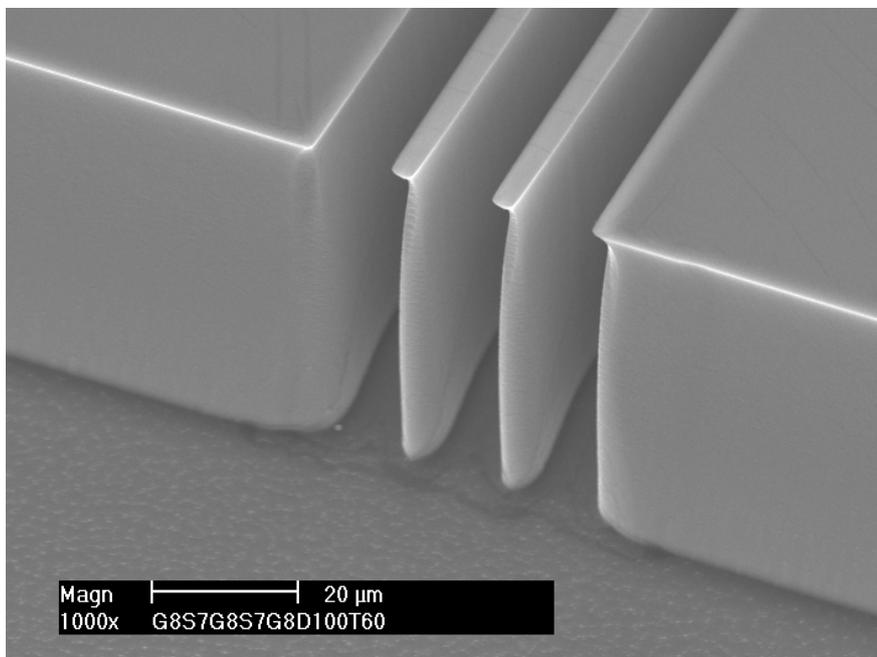


Abbildung 4.44: Probe GSGSGD100T60, Detail. Vergrößerung 1000x

4 Entwicklung und Herstellung mikrostrukturierter Silizium-Gitter

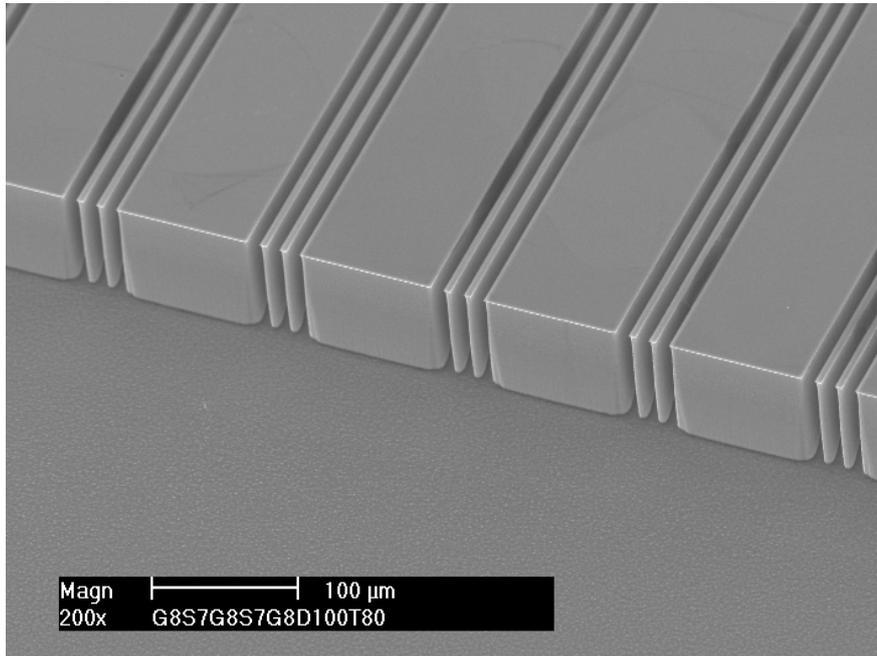


Abbildung 4.45: Probe GSGSGD100T80: Periodische Sequenzen. Gräben $8\mu\text{m}$, Stege $7\mu\text{m}$, Abstand $100\mu\text{m}$, Tiefe $80\mu\text{m}$, Vergrößerung 200x

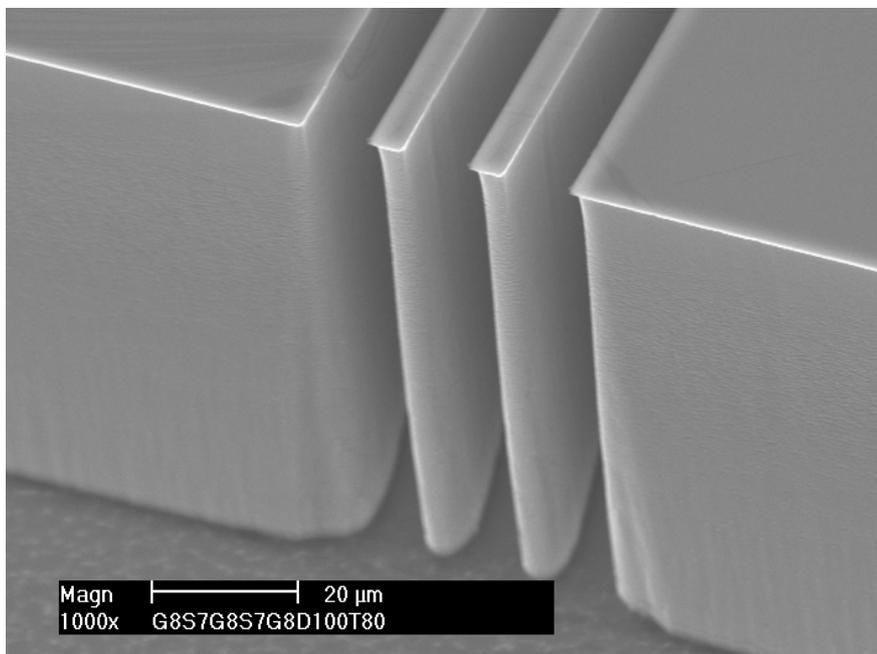


Abbildung 4.46: Probe GSGSGD100T80, Detail. Vergrößerung 1000x

4 Entwicklung und Herstellung mikrostrukturierter Silizium-Gitter

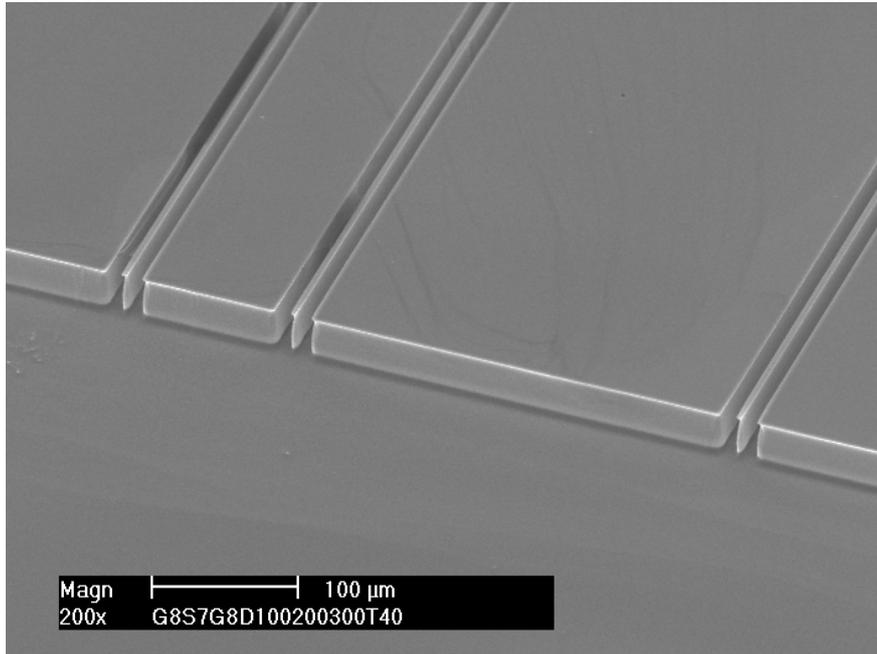


Abbildung 4.47: Probe GSGD123T40: Periodische Sequenzen mit Abständen (100 - 200 - 300) μm , Gräben 8 μm , Stege 7 μm , Tiefe 40 μm , Vergrößerung 200x

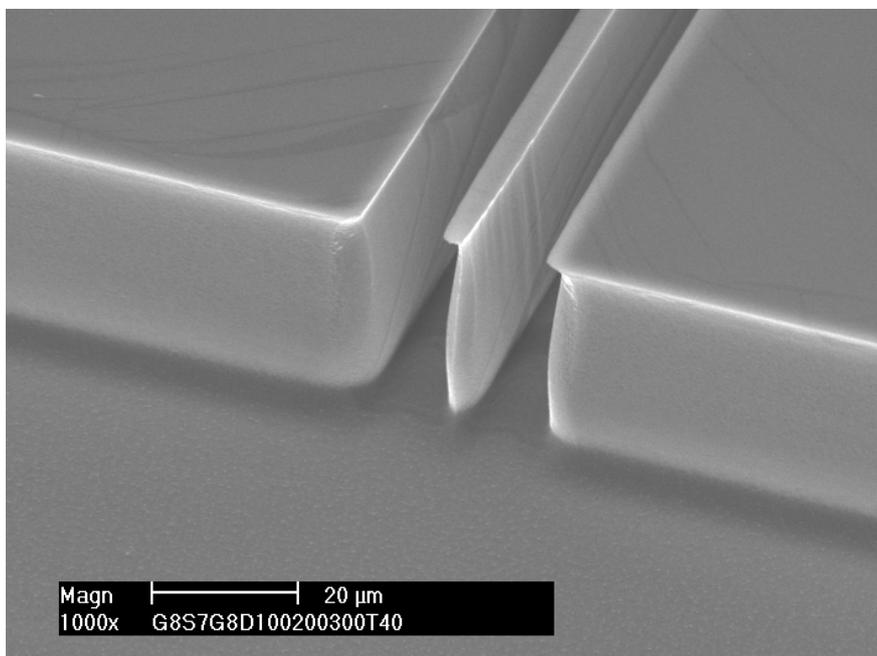


Abbildung 4.48: Probe GSGD123T40, Detail. Vergrößerung 1000x

4 Entwicklung und Herstellung mikrostrukturierter Silizium-Gitter

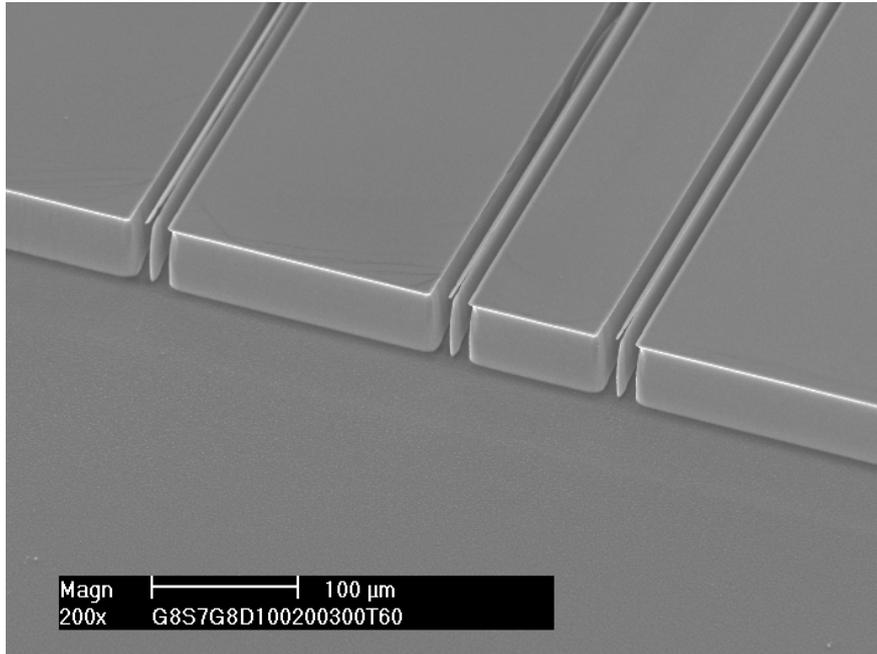


Abbildung 4.49: Probe GSGD123T60: Periodische Sequenzen mit Abständen (100 - 200 - 300) μm , Gräben 8 μm , Stege 7 μm , Tiefe 60 μm , Vergrößerung 200x

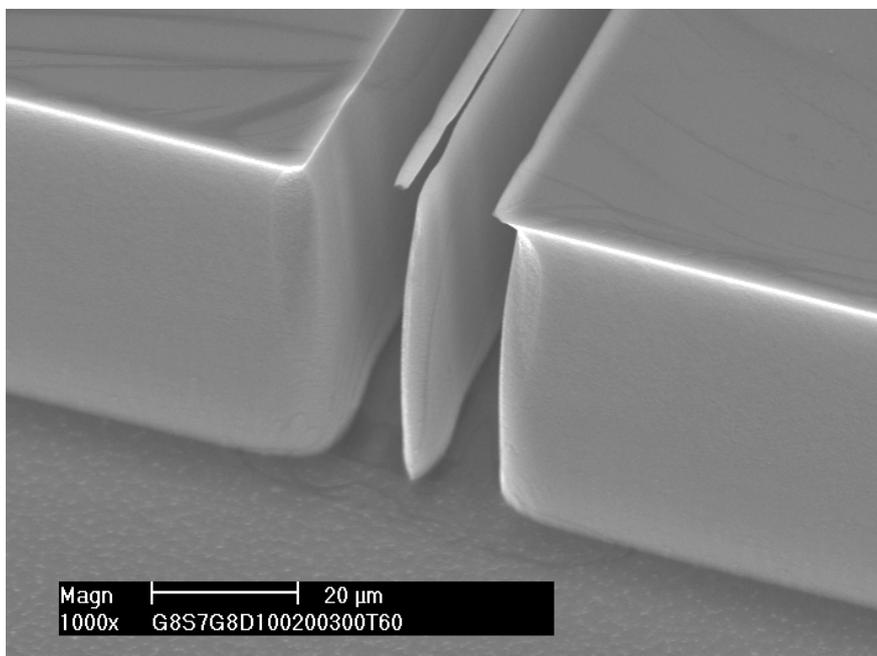


Abbildung 4.50: Probe GSGD123T60, Detail. Vergrößerung 1000x

4 Entwicklung und Herstellung mikrostrukturierter Silizium-Gitter

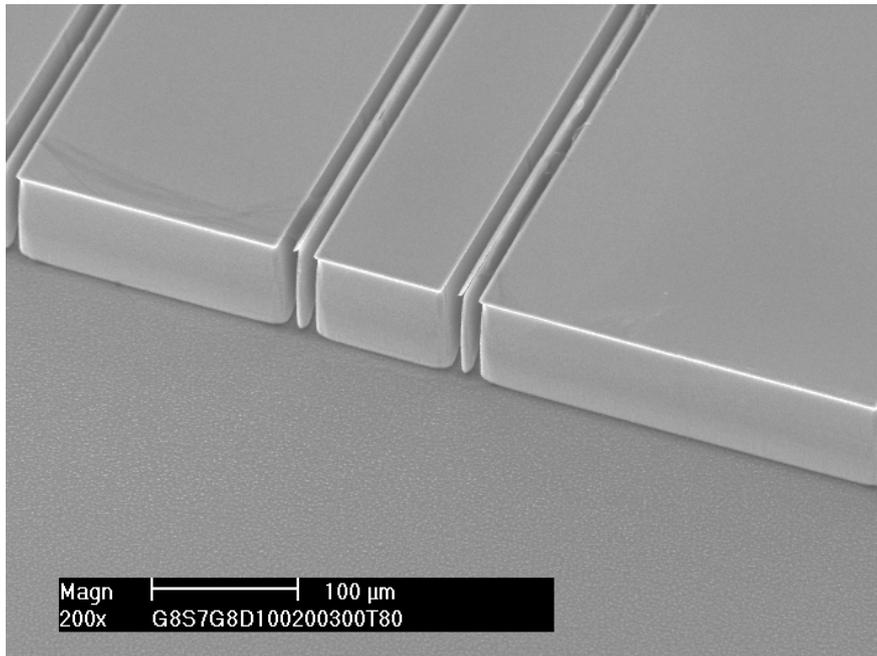


Abbildung 4.51: Probe GSGD123T80: Periodische Sequenzen mit Abständen (100 - 200 - 300) μm , Gräben 8 μm , Stege 7 μm , Tiefe 80 μm , Vergrößerung 200x

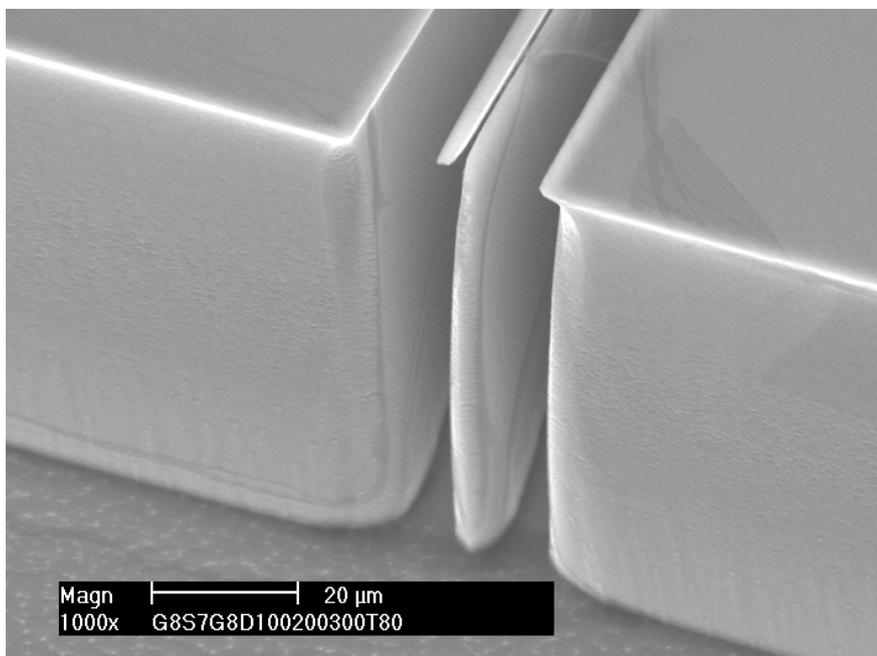


Abbildung 4.52: Probe GSGD123T80, Detail. Vergrößerung 1000x

4 Entwicklung und Herstellung mikrostrukturierter Silizium-Gitter

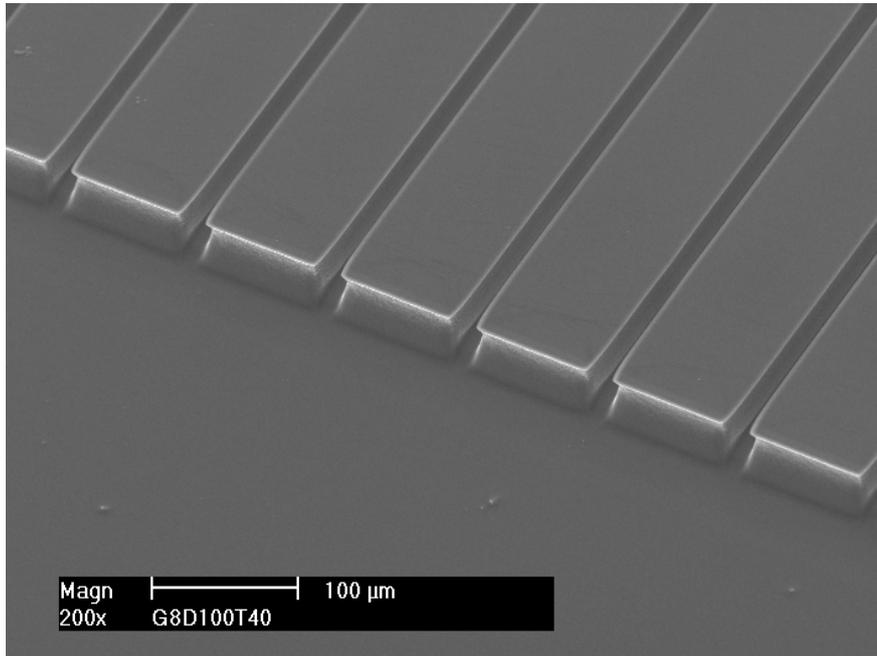


Abbildung 4.53: Probe G8D100T40: Gräben mit Abstand $100\ \mu\text{m}$. Breite $8\ \mu\text{m}$, Tiefe $40\ \mu\text{m}$, Vergrößerung 200x

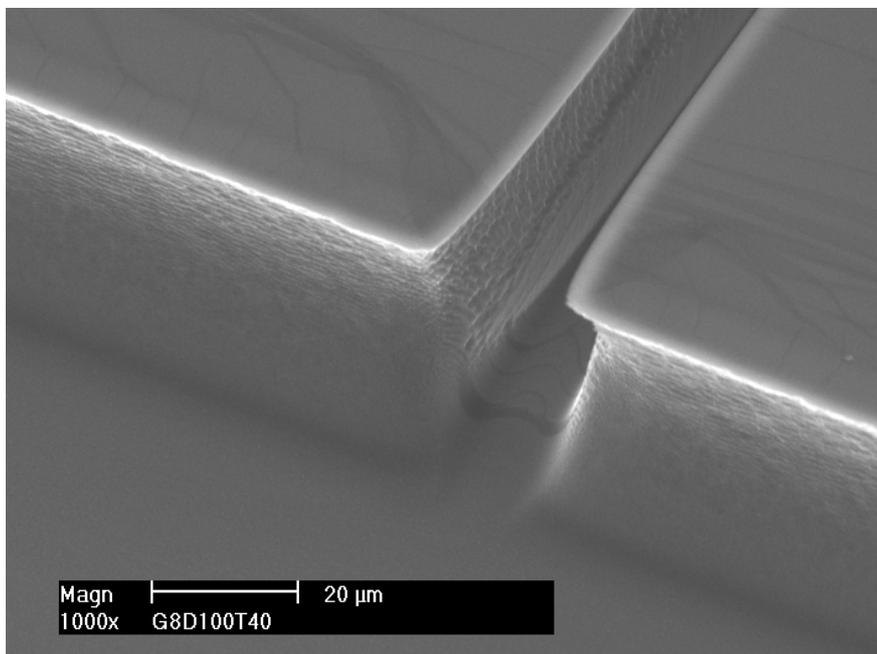


Abbildung 4.54: Probe G8D100T40, Detail. Vergrößerung 1000x

4 Entwicklung und Herstellung mikrostrukturierter Silizium-Gitter

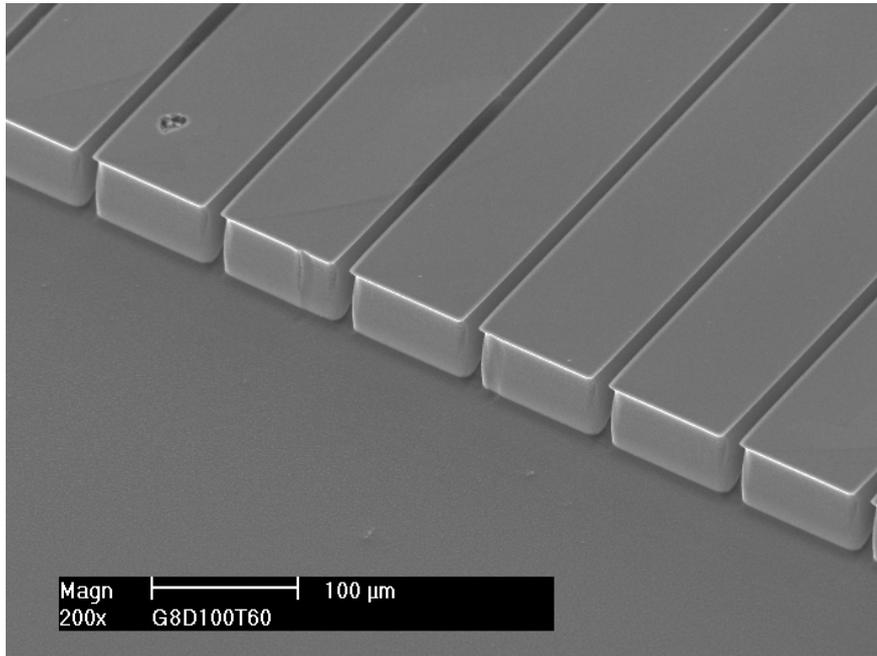


Abbildung 4.55: Probe G8D100T60: Gräben mit Abstand $100\ \mu\text{m}$. Breite $8\ \mu\text{m}$, Tiefe $60\ \mu\text{m}$, Vergrößerung 200x

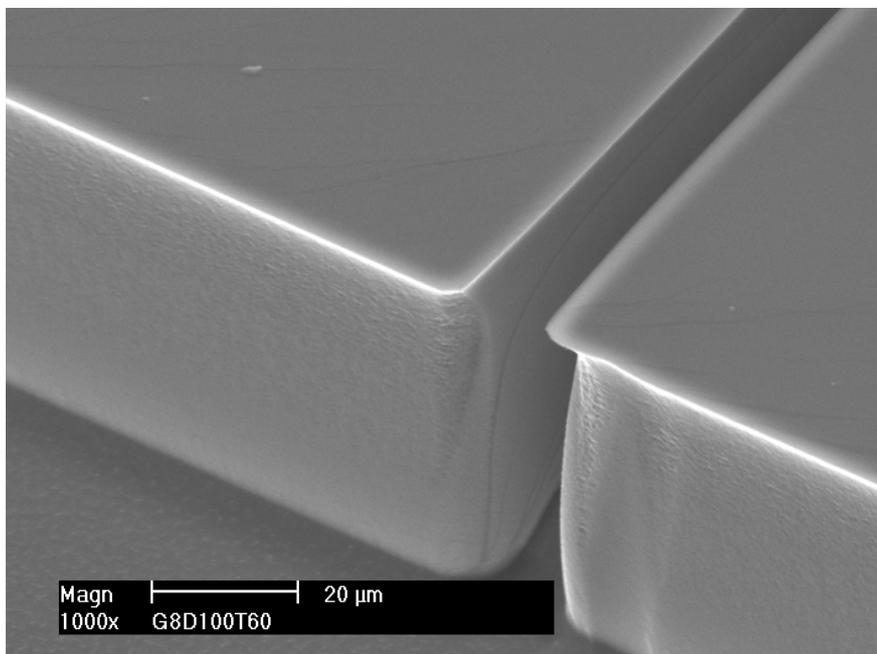


Abbildung 4.56: Probe G8D100T60, Detail. Vergrößerung 1000x

4 Entwicklung und Herstellung mikrostrukturierter Silizium-Gitter

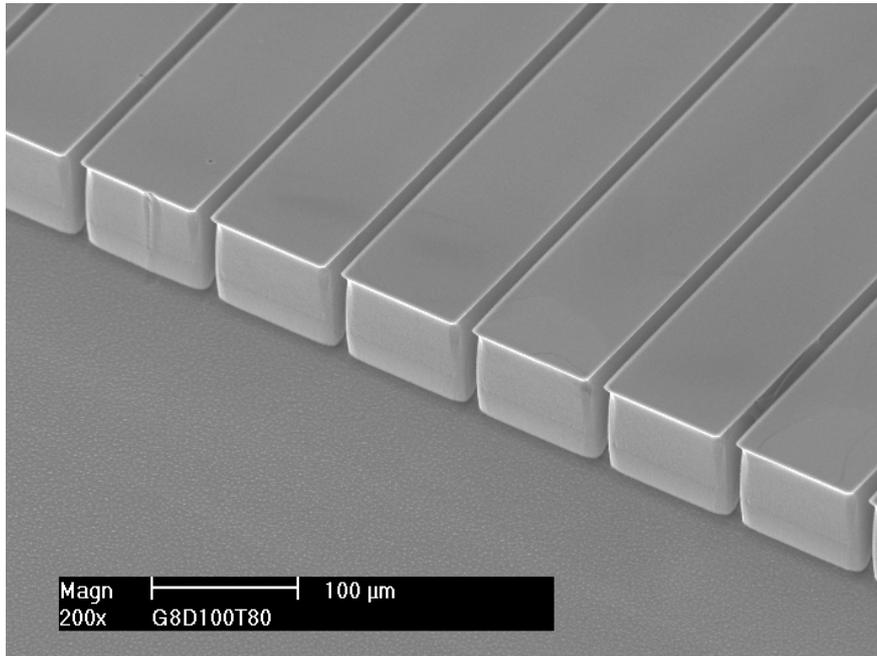


Abbildung 4.57: Probe G8D100T80: Gräben mit Abstand $100\ \mu\text{m}$. Breite $8\ \mu\text{m}$, Tiefe $80\ \mu\text{m}$, Vergrößerung 200x

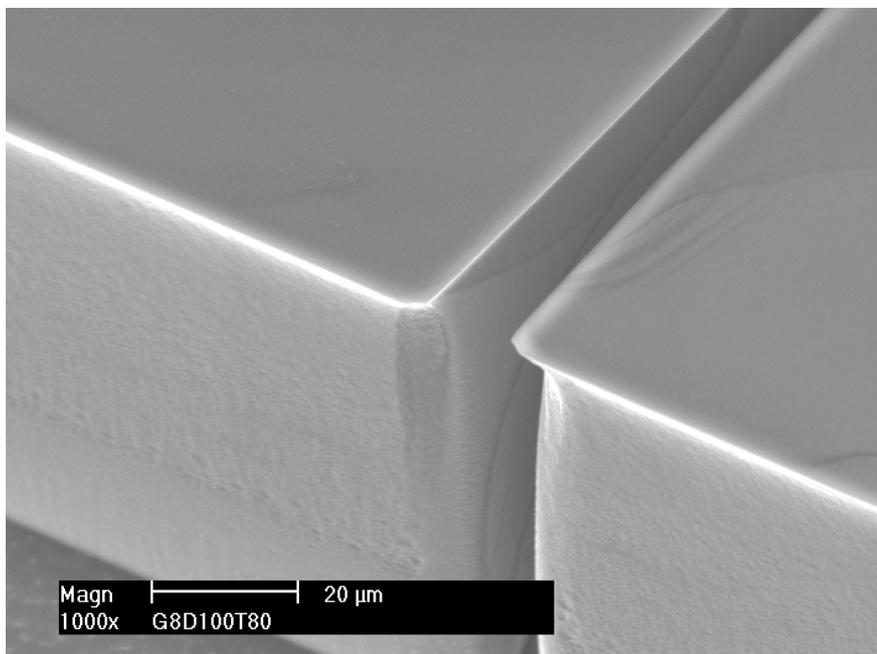


Abbildung 4.58: Probe G8D100T80, Detail. Vergrößerung 1000x

5 Ultra-Kleinwinkelmessungen an Silizium-Gittern

Die hier präsentierten Messungen an Silizium-Phasengittern wurden am Ultra-Kleinwinkelstreulinstrument S18 des Instituts Laue-Langevin (ILL) in Grenoble durchgeführt. Der schematische Aufbau eines solchen Doppelkristall-Diffraktometers (DKD) ist in Abbildung 5.1 zu sehen. Eine derartige ultrahochauflösende Anordnung von Silizium-Perfektkristallen wurde erstmals von Bonse und Hart für Röntgenstrahlen realisiert, [Bonse65], weshalb auch die Bezeichnung Bonse-Hart Kamera gebräuchlich ist. Die Methode wurde für thermischen Neutronen übernommen, [Schwahn85]. Sie erlebte in den letzten Jahren einen Aufschwung durch wesentliche Verbesserungen im Design der Kristalle, die vor allem auf Arbeiten von Agamalian zurückgehen, [Agamalian97, Agamalian98b, Agamalian98a]. Nach verschiedenen Weiterentwicklungen der Methoden und Komponenten stellt Ultra-Kleinwinkelstreuung mit Neutronen (USANS) heute eine leistungsfähige Technik zur zerstörungsfreien Untersuchung von Strukturen im Mikrometerbereich dar. Eine aktuelle Übersicht bietet etwa [Schaefer04]. Das vom Atominstytut der Österreichischen Universitäten betriebene Instrument S18 wird neben der Konfiguration als Neutroneninterferometer auch als Bonse-Hart Kamera eingesetzt. Dieses Instrument weist bei kurzen Messzeiten das weltweit beste Signal-zu-Untergrund Verhältnis auf und stellt die international leistungsfähigste derartige Anlage dar.

5.1 Die Bonse-Hart Kamera

Eine Bonse-Hart Kamera besteht im wesentlichen aus zwei Silizium-Perfektkristallen. Der erste befindet sich im Neutronenstrahl eines Strahlrohres oder Neutronenleiters und führt die Strahlpräparation über Braggreflexion durch. Die Neutronen vor Monochromatisierung weisen durch die Moderation im Reaktor eine Maxwell-Boltzmann Verteilung auf. Für den Neutronenleiter H25 des ILL, an dem das Instrument S18 installiert ist, befindet sich das Maximum der Verteilung bei etwa 1.8 \AA , siehe Abbildung 5.2. Der monochromatisierte Strahl trifft nun auf die Probe, wo er gestreut wird und auf den zweiten Perfektkristall trifft. Durch Drehen dieses zweiten Kristalls, des Ana-

5 Ultra-Kleinwinkelmessungen an Silizium-Gittern

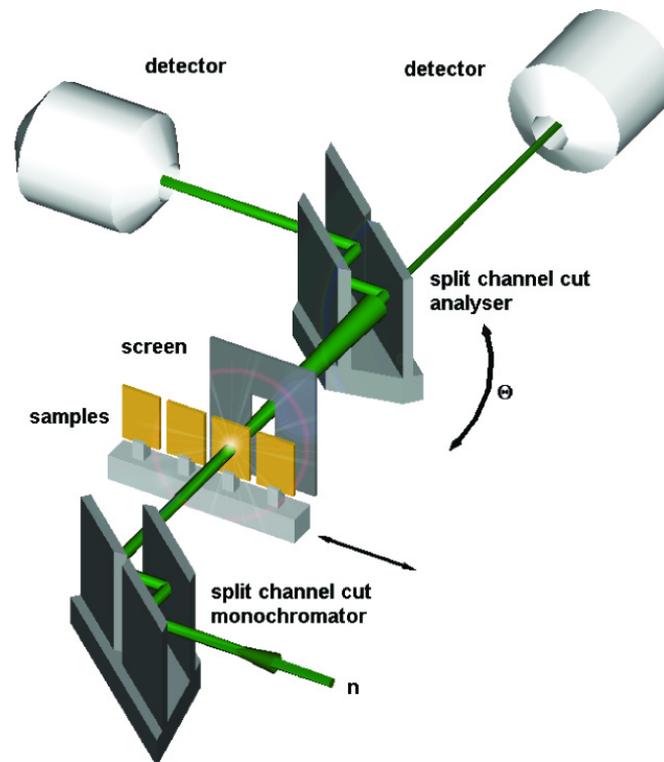


Abbildung 5.1: Schema eines Doppelkristall-Diffraktometers (Bonse-Hart Kamera)

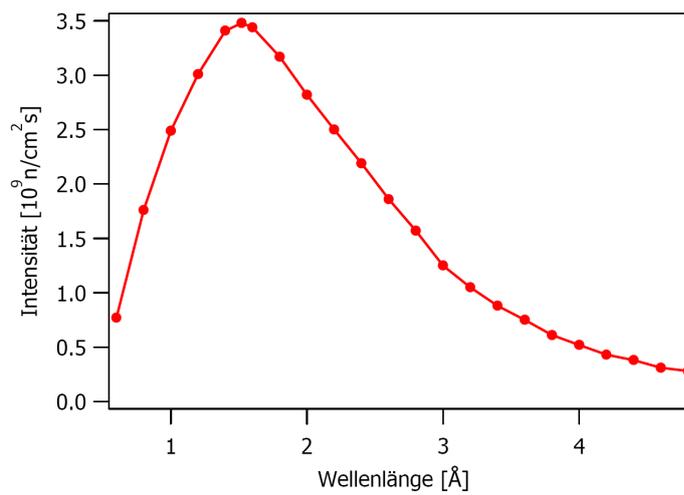


Abbildung 5.2: Spektrum im Neutronenleiter H25 des ILL

5 Ultra-Kleinwinkelmessungen an Silizium-Gittern

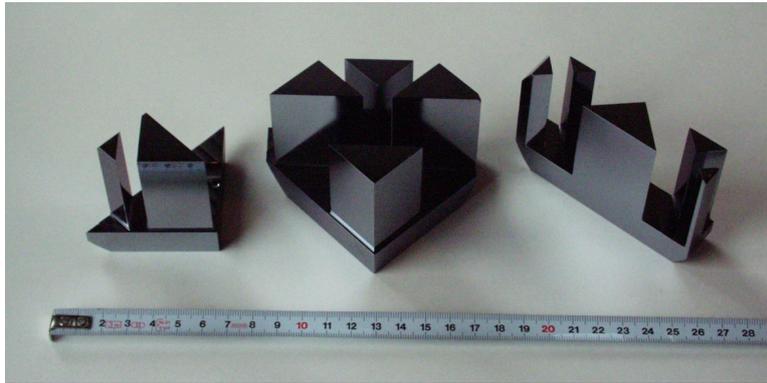


Abbildung 5.3: Silizium-Perfektkristalle für den Einsatz im Doppelkristall-Diffraktometer

lysatoren, kann im feststehenden Detektor ein winkelabhängiges Streumuster der Probe aufgezeichnet werden. Die relativen Positionen der einzelnen Komponenten sind aus Abbildung 5.1 ersichtlich. Die vom Monochromator reflektierte Wellenlänge hängt von der verwendeten Netzebene und dem Anstellwinkel zum einfallenden Strahl ab. Die reflektierten Neutronen genügen der Bragg-Bedingung

$$\lambda = 2d_{hkl} \sin \theta. \quad (5.1)$$

Nach elastischer Streuung an der Probe erfolgt die Analyse des Streumusters wiederum durch Bragg-Reflexion. Der Analysatorkristall reflektiert nur diejenigen Neutronen in Richtung Detektor, für die sein Verdrehwinkel relativ zum Monochromator gerade den Streuwinkel kompensiert.

Um die Reflektivität eines Perfektkristalls zu berechnen, muss die Schrödingergleichung für Neutronen im Inneren des Kristalls gelöst werden. Das leistet die *Dynamische Beugungstheorie*, [Rauch76, Rauch78, Zachariassen67]. Die Reflektivität mit endlicher Breite des Reflexes ergibt sich für einen dicken Kristall zur Darwinkurve Abbildung 5.5

$$R(y) = \begin{cases} 1 & |y| \leq 1 \\ 1 - \sqrt{1 - \frac{1}{y^2}} & |y| > 1 \end{cases} \quad (5.2)$$

wobei y einen verallgemeinerten Winkel darstellt

$$y = \frac{(b-1) \frac{V(\vec{0})}{E} + \alpha b}{2 \sqrt{|b|} \left| \frac{V(\vec{G})}{E} \right|} \quad (5.3)$$

5 Ultra-Kleinwinkelmessungen an Silizium-Gittern

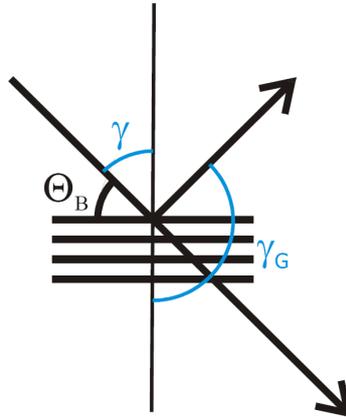


Abbildung 5.4: Geometrische Beziehungen für die Braggreflexion am Perfektkristall

mit:

$$\alpha = 2(\theta_B - \theta) \sin(2\theta_B) \quad , \quad b = \frac{\cos \gamma}{\cos \gamma_G}$$

$$\frac{V(\vec{0})}{E} = \frac{4\pi N b_c}{k^2}$$

$$\frac{V(\vec{G})}{E} = \frac{4\pi b_c |F|}{k^2 a^3} \quad (5.4)$$

γ und γ_G bezeichnen die Winkel zwischen einfallender bzw. reflektierter Welle und der Flächennormalen, siehe Abbildung 5.4. F ist der geometrische Strukturfaktor und a die Gitterkonstante des Kristallgitters. Für das Diamantgitter von Silizium gilt

$$\begin{aligned} F=8 & \quad \text{für } h, k, l \text{ gerade und Summe durch 4 teilbar} \\ F=4(1 \pm i) & \quad \text{für } h, k, l \text{ ungerade} \\ F=0 & \quad \text{sonst.} \end{aligned}$$

Totalreflexion tritt im Bereich des Darwinplateaus $-1 \leq y \leq 1$ auf. Die Breite des Plateaus entspricht einem Winkelbereich

$$\Delta\theta = \frac{N b_c \lambda^2 |F|}{4\pi \sin(2\theta_B)} \sqrt{\frac{\cos \gamma_G}{\cos \gamma}} e^{-M} \quad (5.5)$$

beziehungsweise einer Breite im Impulsübertrag Q

$$\Delta Q = k \Delta\theta = \frac{N b_c \lambda |F|}{2 \sin(2\theta_B)} \sqrt{\frac{\cos \gamma_G}{\cos \gamma}} e^{-M}. \quad (5.6)$$

In diesen Gleichungen wurde noch der Debye-Waller Faktor e^{-M} berücksichtigt. Die in der Ultrakleinwinkelstreuung auftretenden Streuwinkel sind von der Größenordnung

5 Ultra-Kleinwinkelmessungen an Silizium-Gittern

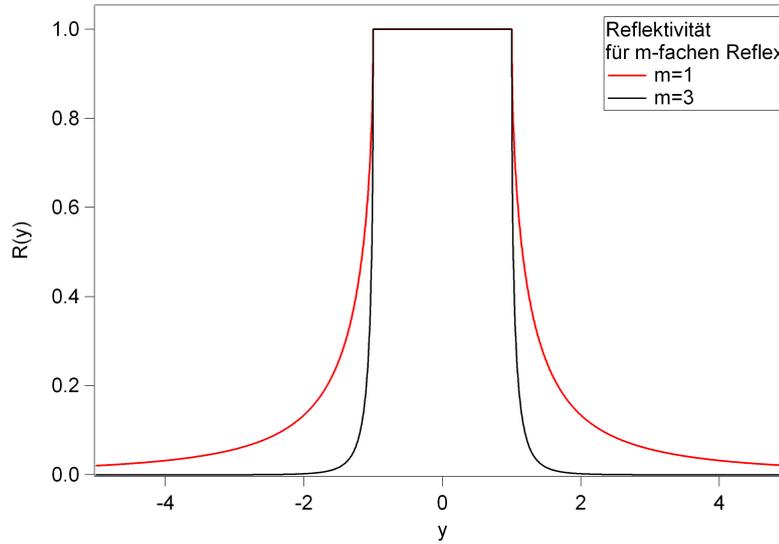


Abbildung 5.5: Theoretische Reflektivitäten für Einfach- und Dreifachreflex

Netzebene	$d_{hkl} = \frac{a}{\sqrt{h^2+k^2+l^2}}$	$ F $	θ_B	$\Delta\theta$	ΔQ	λ
331	1.246 Å	$4\sqrt{2}$	45°	2.896 μrad	$1.033 \times 10^{-5} \text{ Å}^{-1}$	1.762 Å
220	1.920 Å	8	30°	5.615 μrad	$1.855 \times 10^{-5} \text{ Å}^{-1}$	1.920 Å

Tabelle 5.1: Plateaubreiten für zwei in der Ultra-Kleinwinkelstreuung gebräuchliche Reflexe und Braggwinkel

μrad bis mrad (Bogensekunden bis Bogenminuten). In guter Näherung ist also der Impulsübertrag

$$\Delta Q = \frac{2\pi}{\lambda} 2 \sin \frac{\Delta\theta}{2} \approx k\Delta\theta \quad (5.7)$$

und der Streuvektor liegt in der Ebene normal zum einfallenden Strahl, siehe Abbildung 2.1. Für Bragg-Reflexion gilt $\cos \gamma = -\cos \gamma_G$ und damit $b = -1$. Unter Vernachlässigung des Debye-Waller Faktors, der typischerweise nahe bei 1 liegt, können mit den Werten aus Tabelle 5.2 die Breiten der Reflexe für verschiedene Netzebenen und Braggwinkel berechnet werden, Tabelle 5.1. Die Anlage am Atominstut in Wien wird mit 331-Reflex unter 45°, das Instrument S18 am ILL im USANS-Modus meist mit 220-Reflex unter 30° betrieben.

Aus Abbildung 5.5 ist für den Fall $m = 1$ ersichtlich, dass die Reflektivität für Werte $|y| > 1$ nicht zu vernachlässigende Ausläufer besitzt. Dieser Nachteil eines Einfachre-

5 Ultra-Kleinwinkelmessungen an Silizium-Gittern

Gitterkonstante a	$5.431022 \times 10^{-10} \text{ m}$
gebundene kohärente Streulänge b_c	$4.1478 \times 10^{-15} \text{ m}$
Teilchendichte N	$4.99479 \times 10^{28} \text{ m}^{-3}$

Tabelle 5.2: Kristallparameter für Silizium

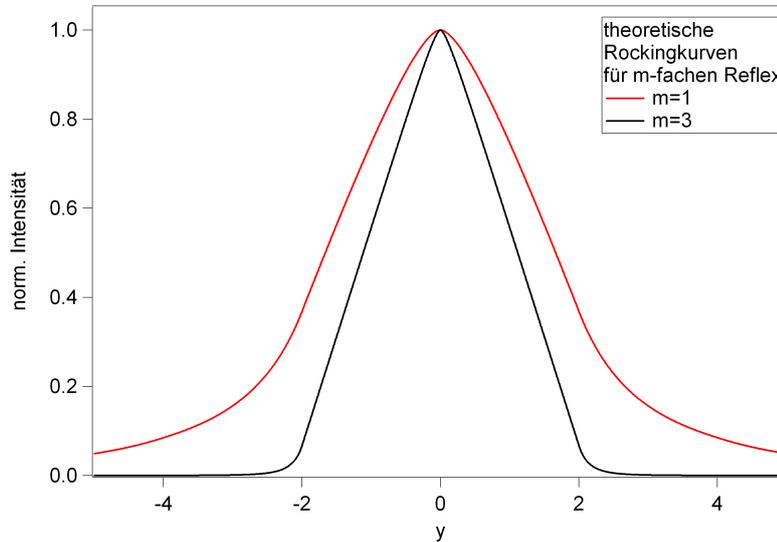


Abbildung 5.6: Theoretische Instrumentkurven für Einfach- und Dreifachreflex, jeweils in Monochromator und Analysator

5 Ultra-Kleinwinkelmessungen an Silizium-Gittern

flexes kann durch die Verwendung von Nutenkristallen mit Mehrfachreflexen deutlich gemildert werden. Die Reflektivität $R_m(y)$ für einen m -fachen Reflex des Neutronenstrahls an ein- und demselben Perfektkristall lautet schlicht [Bonse65]:

$$R_m(y) = (R(y))^m \quad (5.8)$$

Der Effekt einer mehrfachen Reflexion des Strahls am Perfektkristall besteht also in einer starken Reduktion der Flanken des Reflexionsprofils. Für den Fall der sowohl am Atominstutit als auch am S18 verwendeten Nutenkristalle mit $m = 3$ ist der Effekt in Abbildung 5.5 demonstriert.

Die Form der Instrumenten- oder Rockingkurve einer Bonse-Hart Kamera ergibt sich aus der Faltung der Reflektivitäten von Monochromator- und Analysatorkristall:

$$I_0(\Delta) \propto \int (R(y))^m (R(\Delta - y))^n dy \quad (5.9)$$

In Abbildung 5.6 ist deutlich der Vorteil des Dreifachreflexes gegenüber dem Einfachreflex für die Instrumentenkurve zu sehen. Die breiten Ausläufer für den Fall des Einfachreflexes erschweren die Interpretation der Messdaten erheblich und verringern die Auflösung des Instruments gegenüber der aus der Plateaubreite errechneten.

In der Bonse-Hart Kamera wird die Intensität durch schrittweises Verdrehen des Analysatorkristalls um die vertikale Achse nur eindimensional aufgezeichnet. Die Akzeptanz eines Nutenkristalls in vertikaler Richtung liegt aber um etwa drei Größenordnungen über der in horizontaler Richtung, es entspricht das gemessene Signal daher einer Schlitzhöhenverschmierten Intensität $I_H(q_y)$, für die geschrieben werden kann:

$$I_H(q_y) = \int_{-\infty}^{\infty} I(q_y, q_z) dq_z \quad (5.10)$$

Das Streusignal einer Probe wird also nur in einer Dimension aufgelöst. Die Konvention für das Koordinatensystem ist derart, dass der Strahl entlang der x -Achse einfällt, das Signal über q_z integriert in Abhängigkeit von q_y aufgezeichnet wird.

Zusätzlich zur Schlitzhöhenverschmierung muss gegebenenfalls auch die endliche Breite der Rockingkurve des Instruments berücksichtigt werden. Die Auswirkung auf das gemessenen Signal besteht in der Faltung der schlitzhöhenverschmierten Streuintensität $I_H(q)$ mit der Leerkurve $I_0(q)$ des Instruments, entspricht also einer Schlitzbreitenverschmierung.

$$I_B(q) = \int_{-\infty}^{\infty} I_0(h) I_H(q - h) dh \quad (5.11)$$

In vielen Experimenten kann die Auswirkung der Auflösungsfunktion allerdings vernachlässigt werden. Das gilt vor allem für Messungen an Proben, deren Streusignal als glatte Kurve über mehrere Größenordnungen im Impulsübertrag reicht, da die Faltung mit der im Vergleich sehr schmalen Leerkurve des Instruments hier keine relevante Veränderung des Signals bewirkt.

Monochromator	
Typ	Si-Nutenkristall für Dreifachreflex
Reflexionsebene	[220]
nutzbarer Wellenlängenbereich	$1.6 \text{ \AA} < \lambda < 2.9 \text{ \AA}$
mögliche Braggwinkel	$25^\circ < \theta_B < 50^\circ$
Strahlquerschnitt	$2 \times 4 \text{ cm}^2$
Analysator	
Typ	Si-Nutenkristall für Dreifachreflex
Reflexionsebene	[220]
max. Intensität	$8000 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$
Winkelauflösung Goniometer	$0.01''$ ($0.04''$ mit Absolutencoder)
Auflösung in Q	$2 \times 10^{-5} \text{ \AA}^{-1}$
Signal zu Untergrund	10^5

Tabelle 5.3: Daten des Instruments S18 in USANS-Konfiguration

5.2 Ultra-Kleinwinkelmessungen

Periodische Gitter eignen sich in besonderer Weise, um die Beugung von thermischen und kalten Neutronen an Strukturen nachzuweisen, deren Größe um Faktoren 10^4 bis 10^5 über der Wellenlänge der verwendeten Neutronen liegt. Für Einfach- und Doppelspalt wurde dies experimentell von Shull beziehungsweise Zeilinger gezeigt, [Shull69, Zeilinger88], für die Reflexion von thermischen Neutronen an geritzten Gittern von Kurz und Rauch, [Kurz69], für die Beugung von kalten Neutronen an Phasengittern von Eder, [Eder89]. Mit der USANS-Technik konnten an Si-Gittern bereits mehr als 50 Beugungsordnungen thermischer Neutronen gemessen werden [Jericha03]. Periodische Gitter mit gut bekannter Geometrie eignen sich darüberhinaus hervorragend als Testproben für die verwendeten Anlagen und theoretischen Modelle.

Nach Justierung der Anlage wurde mit allen eingebrachten Blenden und Abschirmungen eine Leerkurve aufgenommen, Abbildungen 5.8, 5.9. Für die nachfolgende Orientierung der Probe konnte die Analysator nun in die Stellung für die Vorwärtsrichtung $q = 0$ gebracht werden. Die Montage der Proben auf den Probenhalter erfolgte derart, dass die Gräben der Strichgitter vertikal verliefen. Die Messung ist nicht empfindlich bezüglich einer kleinen Fehlorientierung α_f durch Rotation um den Strahl, da für die effektive Periode gilt:

$$d_{eff} = \frac{d}{\cos \alpha_f} \quad (5.12)$$

5 Ultra-Kleinwinkelmessungen an Silizium-Gittern

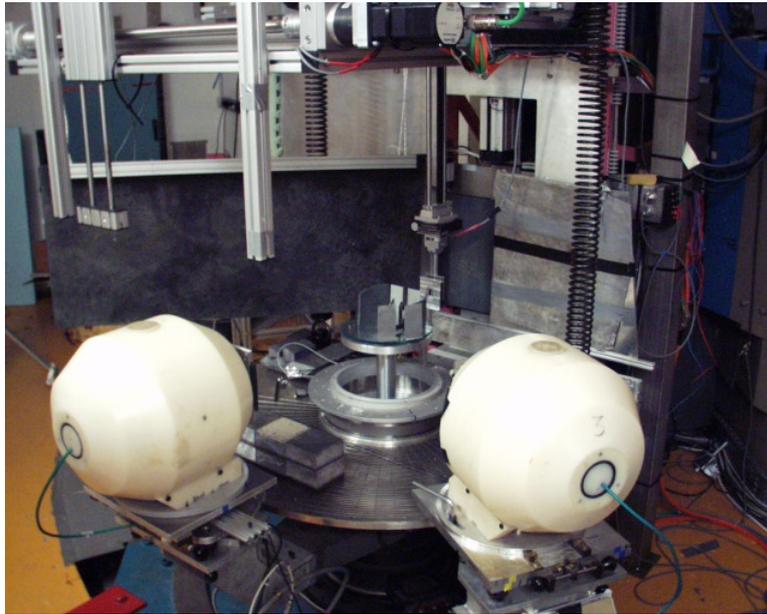


Abbildung 5.7: S18 mit Analysator-Nutenkristall auf Goniometer, Probenhalter am Roboterarm

Zur exakten Orientierung der Proben normal zum einfallenden Strahl wurde in Vorwärtsrichtung $q = 0$ die Streuintensität bei Durchdrehen der jeweiligen Probe um die vertikale Achse gemessen. Aus der Bestimmung des Symmetriezentrums in den Messkurven Abbildung 5.10 ergibt sich die Normalposition der Probe. In einem Fall (Probe G8S12T60) war nur ein Teil der strukturierten Fläche nutzbar. Das defekte Areal wurde mit einer Cd-Blende abgedeckt. Eine separate Leerkurve dokumentiert die Intensitätsverhältnisse mit dem derart modifizierten Probenhalter.

Der mikrostrukturierte Teil der Si-Proben kann als Zwei-Phasen System, Abschnitt 2.5, betrachtet werden. Die Streulängendichte der Strukturen variiert nur normal zu den Gräben, hängt also nur von einer Ortsvariablen ξ ab. Daraus folgt, dass auch die Streuamplitude und damit die gestreute Intensität nur von einer Variablen im reziproken Raum abhängen. Die Bonse-Hart Kamera misst die schlitzhöhenverschmierte Streuintensität in Abhängigkeit von der Komponente q_y des Streuvektors \vec{Q} in der horizontalen Ebenen normal zum Strahl. Bei beliebiger Orientierung der Probe stellen $\rho(\xi)$ und die Streuamplitude $f(q_y)$ im allgemeinen kein Fourierpaar dar. Bei der hier verwendeten vertikalen Orientierung der Proben mit $\rho(\vec{r}) = \rho(\xi) = \rho(y)$ stimmen die Koordinatensysteme jedoch überein und es gilt $\mathfrak{F}(\rho(y)) = f(q_y)$, siehe Abschnitt 2.1. Weiters kommt der Effekt der Schlitzhöhenverschmierung in dieser Orientierung der Proben nicht zum Tragen, da das Streumuster nicht von q_z abhängt. In den folgenden Abschnitten kann deshalb wieder auf eine eindimensionale Beschreibung übergegangen werden.

5 Ultra-Kleinwinkelmessungen an Silizium-Gittern

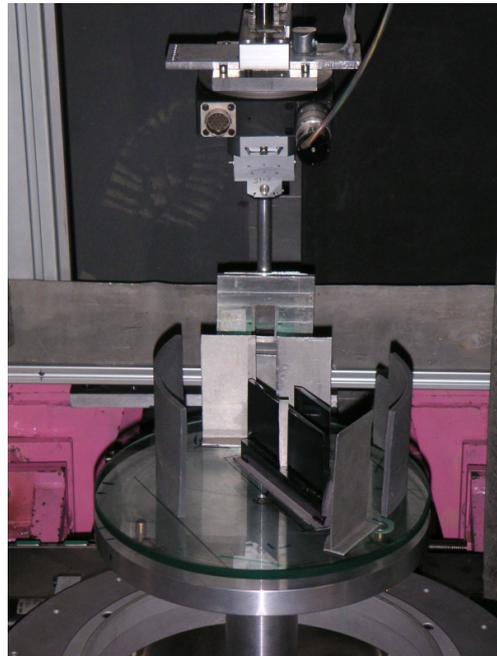


Abbildung 5.8: Analysatorkristall mit Blenden, Probenhalter am Roboterarm mit montiertem Gitter (dunkel), Blickrichtung parallel zum Strahl Richtung Monochromator

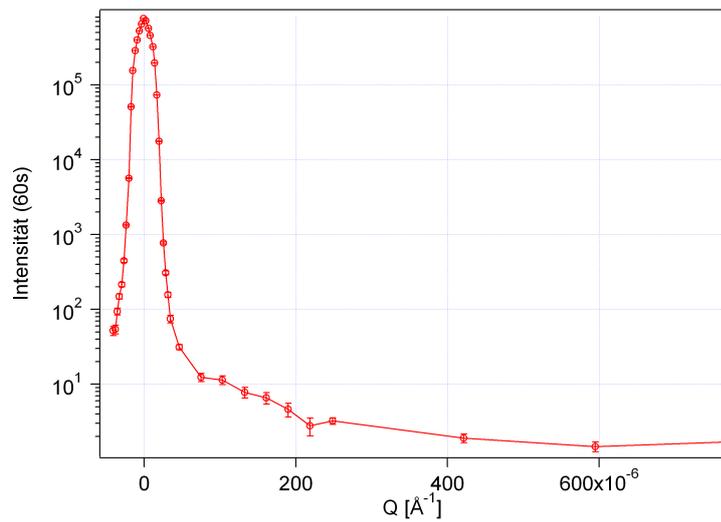


Abbildung 5.9: Leerkurve des S18 mit Probenhalter und Blenden für die Vermessung der Phasengitter

5 Ultra-Kleinwinkelmessungen an Silizium-Gittern

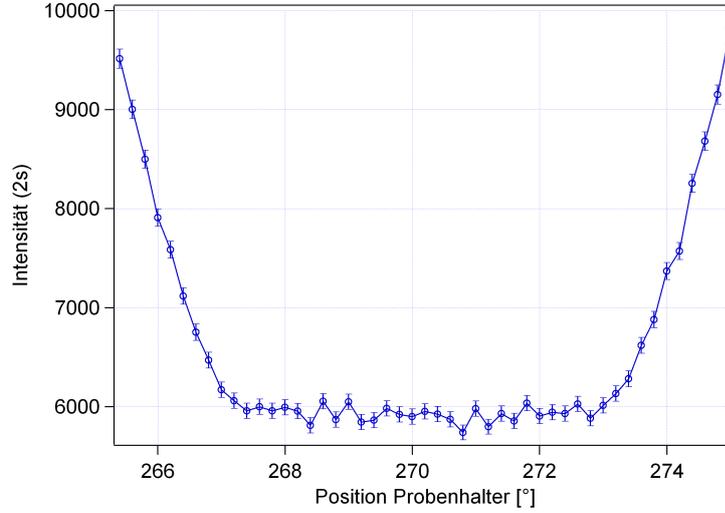


Abbildung 5.10: Intensitätsverlauf in Vorwärtsrichtung bei Verdrehen der Probe um die vertikale Achse

Wie in Abschnitt 2.5 gezeigt, ist für eine periodische Anordnung von Streuern auch ein in q periodisches Streumuster zu erwarten. Die USANS-Messungen an den mikrostrukturierten Strichgittern Abbildung 5.11 - 5.14 bestätigen das in eindrucksvoller Weise. Nach Gleichung (2.75) kann die Streufunktion separiert werden in einen Strukturfaktor $S(q)$, der die Periodizität des Strichgitters beschreibt, und einen Formfaktor $P(q)$ der einzelnen Einheit,

$$|F(q)|^2 = S(q)P(q). \quad (5.13)$$

Für ein Gitter mit N Einheiten und Periode a erhält man nach Gleichung (2.78)

$$S(q) \propto \left| \sum_{n=-\infty}^{\infty} \delta\left(q - \frac{2\pi n}{a}\right) \otimes [N\delta(q, Na)] \right|^2 = \left| \sum_{n=-\infty}^{\infty} N\delta\left(\frac{2\pi n}{a}, Na\right) \right|^2 \quad (5.14)$$

mit:

$$\delta(q, Na) = \frac{\sin\left(\frac{qNa}{2}\right)}{\frac{qNa}{2}} \quad (5.15)$$

Die Intensität der Beugungsordnungen an den Stellen $\frac{2\pi n}{a}$ ist also proportional dem Wert des Formfaktors des Einzelstreuers an diesen Stellen. Mit anderen Worten, die Position der Beugungsordnungen ist festgelegt durch die räumliche Periode a des Gitters, ihre Intensität jedoch ist bestimmt durch die Form der einzelnen Einheiten, die das Gitter aufbauen.

Die Faltung des Streusignals mit der Auflösungsfunktion des Instruments ist hier nur insofern von Bedeutung, als dass die Breite der Auflösungsfunktion eine Grenze für

5 Ultra-Kleinwinkelmessungen an Silizium-Gittern

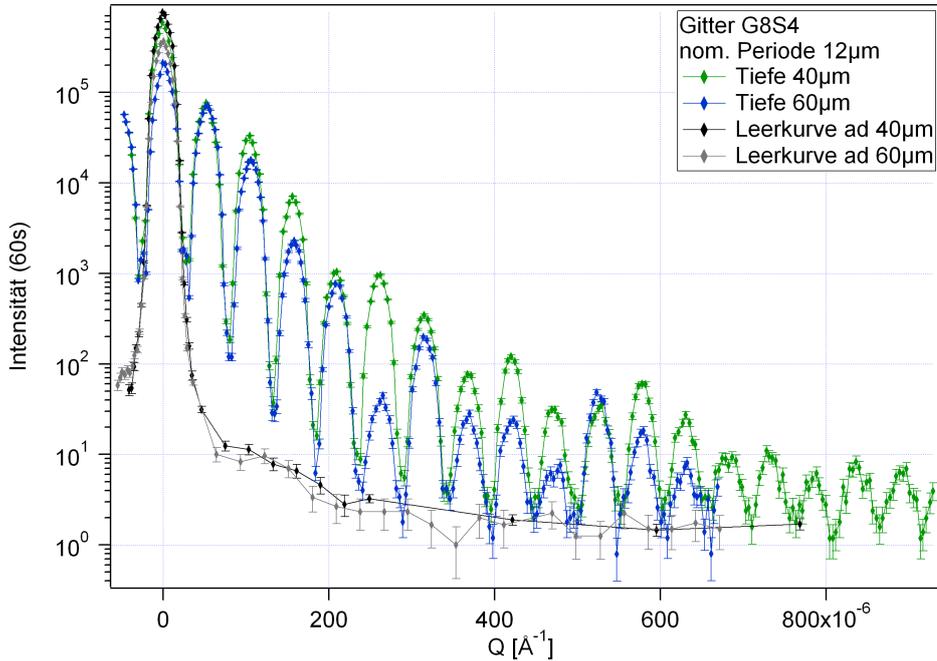


Abbildung 5.11: Streuintensitäten Gitter G8S4, Periode $12\mu\text{m}$, Tiefen $40\mu\text{m}$ und $60\mu\text{m}$

die Separation der Ordnungen in q festlegt, unter der die Ordnungen im gemessenen Streusignal nicht mehr getrennt erscheinen. Ein Beispiel für eine Messung an der Auflösungsgrenze des S18 stellt Abbildung 5.14 dar. Die Gitter mit nomineller Periode $28\mu\text{m}$ erzeugen Beugungsordnungen mit Abstand $\Delta q \approx 2.26 \times 10^{-5} \text{ \AA}^{-1}$, was nahe an der Halbwertsbreite der Leerkurve des Instruments von etwa $1.9 \times 10^{-5} \text{ \AA}^{-1}$ liegt.

Für die ebenfalls gemessenen Einzelgräben von $8\mu\text{m}$ Breite und einem Abstand von $100\mu\text{m}$ wirkt sich die endliche Breite der Auflösung in einer echten Verschmierung des Streusignals aus, Abbildung 5.15. Der Abstand der Einzelstrukturen ist hier zu gross, um noch als periodische Anordnung wirksam zu werden. Das gemessene Streusignal entspricht damit dem schlitzverschmierten Formfaktor des Einzelgrabens. Die Auswirkung der Schlitzverschmierung besteht hier vor allem in einer starken Anhebung der lokalen Minima. Verfahren zur numerischen Schlitzbreitenentschmierung von Kleinwinkelmessdaten funktionieren zuverlässig für Daten mit geringem statistischem Fehler und hinreichend glattem Verlauf des Streusignals. Da jedoch mit den Messdaten der periodischen Gitter Fälle vorliegen, in denen die Faltung des Messsignals mit der Leerkurve direkt berücksichtigt und numerische Entschmierung umgangen werden kann, sollen derartige Verfahren hier nicht näher behandelt werden.

Für die Auswertung der Streukurven der Gitter eignet sich eine periodische Fitfunktion

5 Ultra-Kleinwinkelmessungen an Silizium-Gittern

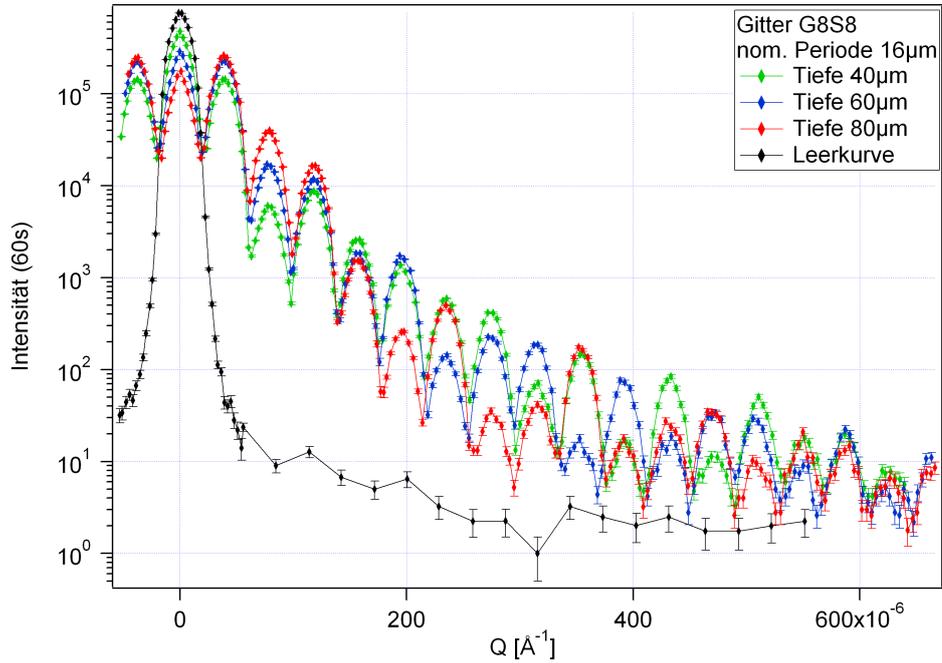


Abbildung 5.12: Streuintensitäten Gitter G8S8, Periode $16 \mu\text{m}$, Tiefen $40 \mu\text{m}$, $60 \mu\text{m}$ und $80 \mu\text{m}$

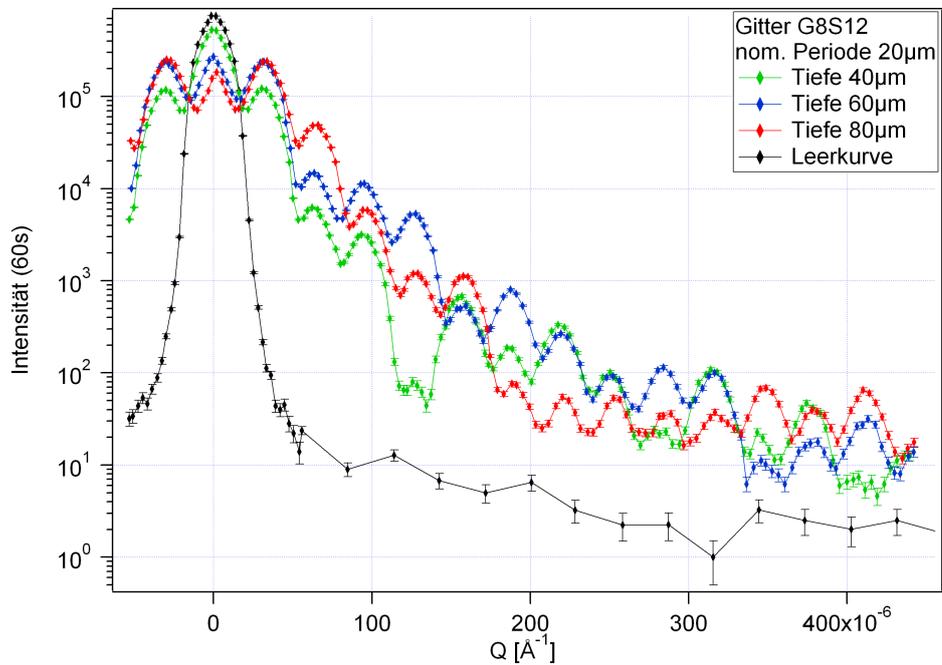


Abbildung 5.13: Streuintensitäten Gitter G8S12, Periode $20 \mu\text{m}$, Tiefen $40 \mu\text{m}$, $60 \mu\text{m}$ und $80 \mu\text{m}$

5 Ultra-Kleinwinkelmessungen an Silizium-Gittern

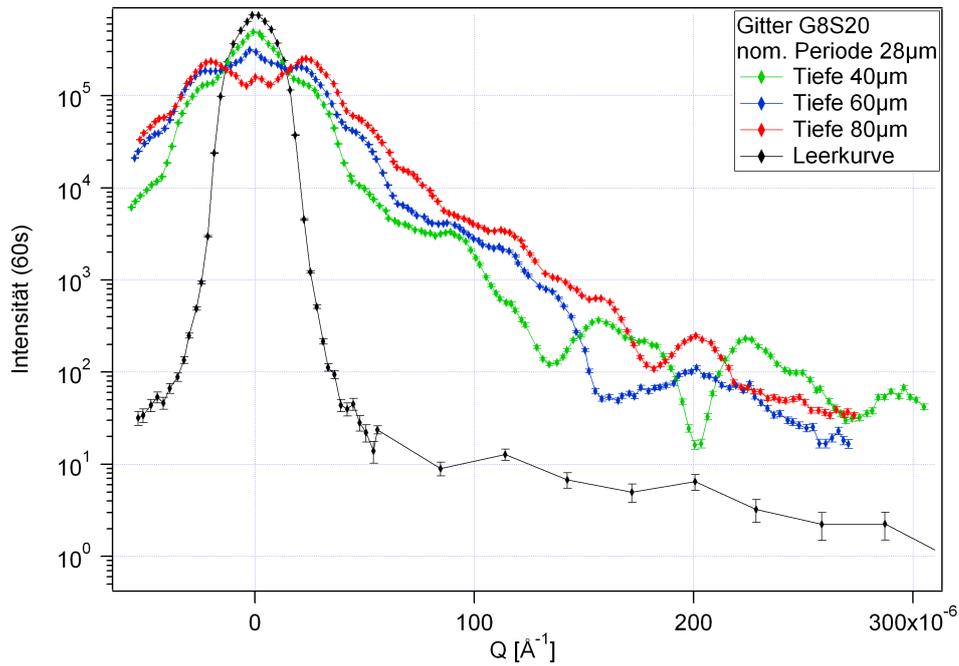


Abbildung 5.14: Streuintensitäten Gitter G8S20, Periode 28 μm , Tiefen 40 μm , 60 μm und 80 μm

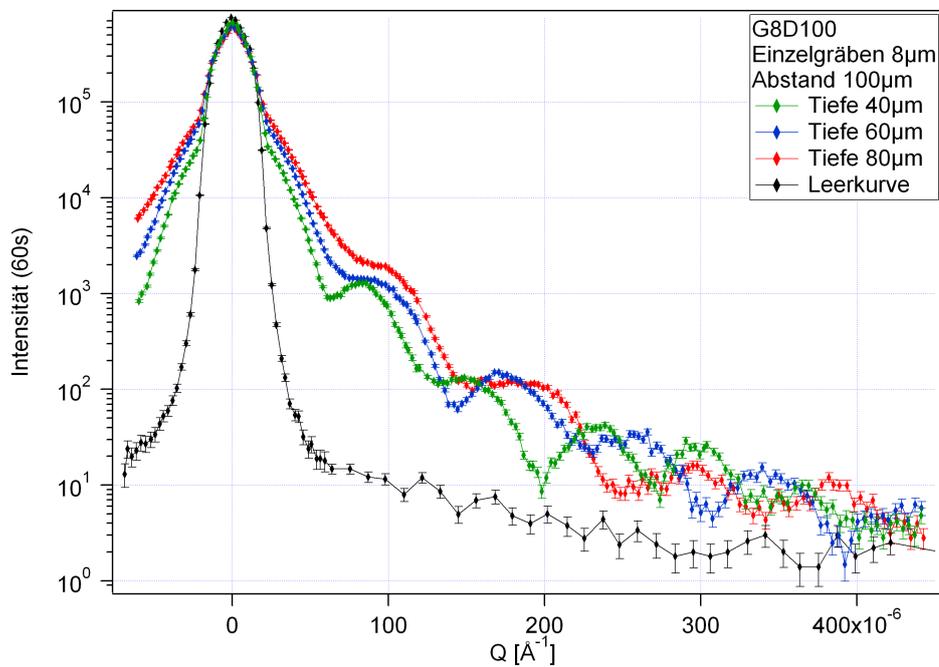


Abbildung 5.15: Streuintensitäten Einzelgräben, Abstand 100 μm , Tiefen 40 μm , 60 μm und 80 μm

5 Ultra-Kleinwinkelmessungen an Silizium-Gittern

zusammengesetzt aus Gauss- und Dreiecksfunktionen.

$$H(q) = \sum_i C_i \left(\alpha \Lambda(q - q_i, w_d) + (1 - \alpha) e^{-\left(\frac{q - q_i}{w_g}\right)^2} \right) + \text{const.} \quad (5.16)$$

mit:

C_i	Intensität der i-ten Ordnung
q_i	Position der i-ten Ordnung
$\Lambda(q, w_d)$	Dreiecksfunktion mit Breite w_d
$\alpha, (1 - \alpha)$	relative Anteile von Dreiecks- und Gaussfunktion
const.	konstanter Hintergrund

Für jeden Gittertyp ist in den Abbildungen 5.16 - 5.19 ein Beispiel mit angepasster Fitfunktion gezeigt. Auch im Fall der Gitter mit Periode $28 \mu\text{m}$ lässt sich die Funktion (5.16) noch einwandfrei anpassen, obwohl die Ordnungen hier kaum noch getrennt erscheinen. Tabelle 5.4 stellt die experimentell bestimmten Perioden den Nominalwerten aus der Herstellung der Gitter gegenüber. Hervorzuheben ist hier die überaus exakte Bestimmung der Gitterperioden aus den experimentellen Daten. Eine genaue Bestimmung dieser Größe gelingt auch für Gitter mit kaum noch vorhandener Trennung der Beugungsordnungen. Die Genauigkeit beruht auf dem großen messbaren q -Bereich und der guten Statistik an der Anlage S18. Die starke Variation der Intensität der Beugungsordnungen mit q und die Unterdrückung einzelner Ordnungen lassen auf eine hohe Uniformität des Grabenprofils über das gesamte Probenareal schließen. Bei stark uneinheitlichem Profil der Gräben über die Probe könnten unterdrückte Ordnungen wie etwa im Streumuster der Probe G8S12T40, Abbildung 5.13, nicht auftreten, da eine vorhandene Variation des Profils auch in diesen Beugungsordnungen Streubeiträge liefern würde.

5 Ultra-Kleinwinkelmessungen an Silizium-Gittern

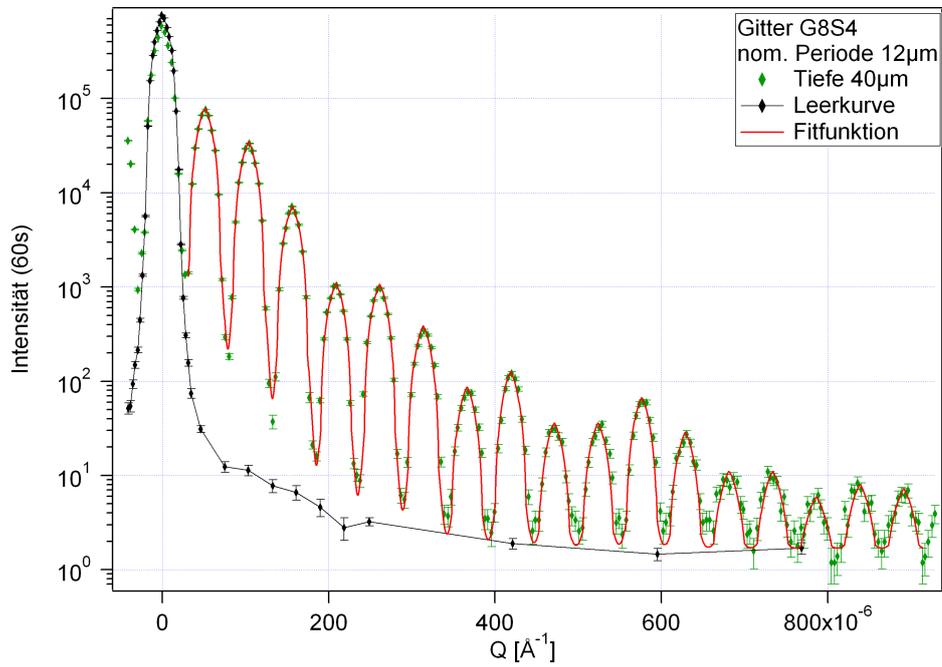


Abbildung 5.16: G8S4T40 mit Fitfunktion

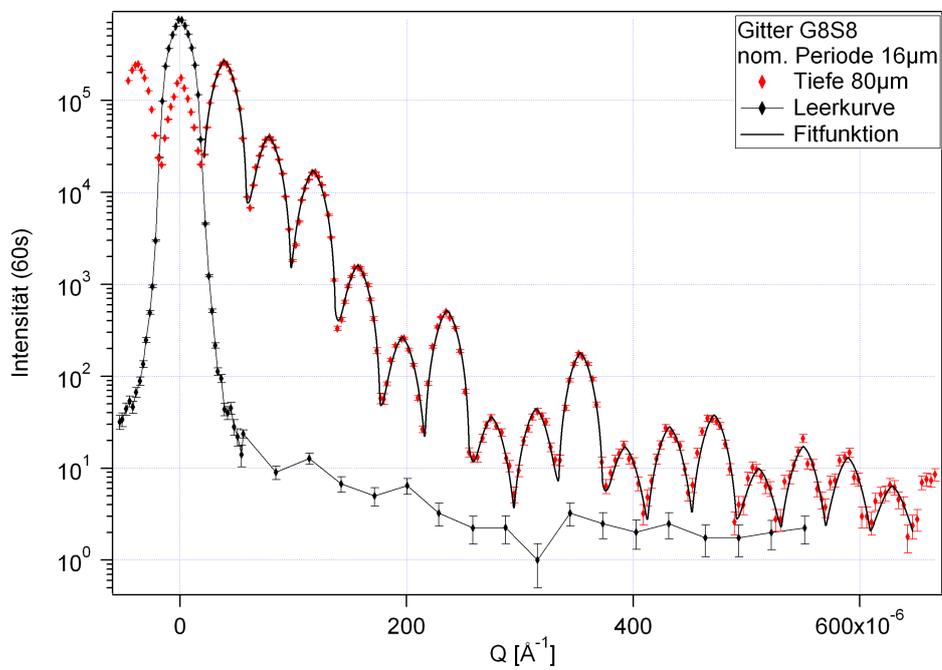


Abbildung 5.17: G8S8T80 mit Fitfunktion

5 Ultra-Kleinwinkelmessungen an Silizium-Gittern

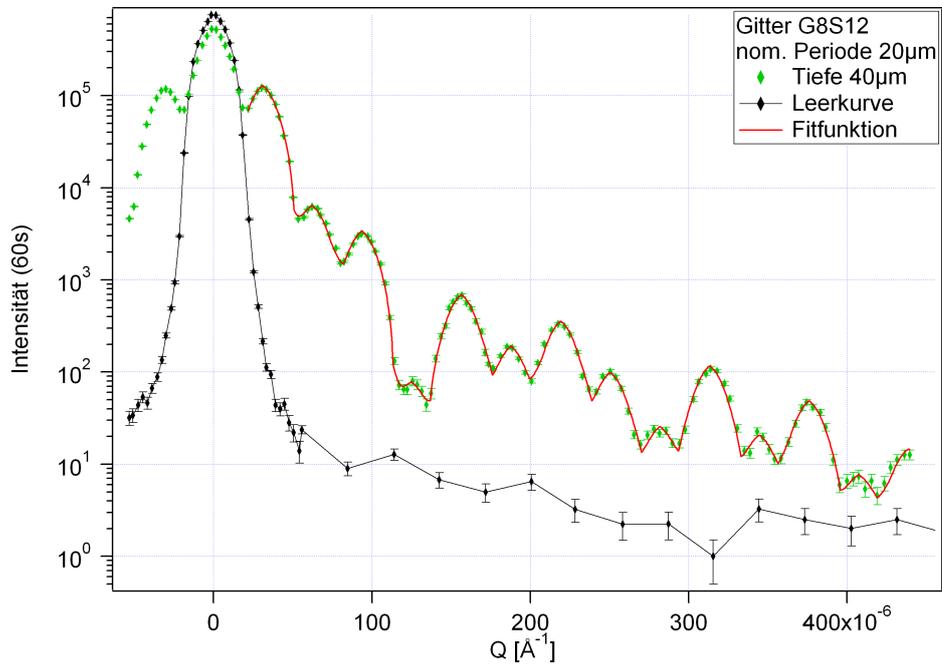


Abbildung 5.18: G8S12T40 mit Fitfunktion

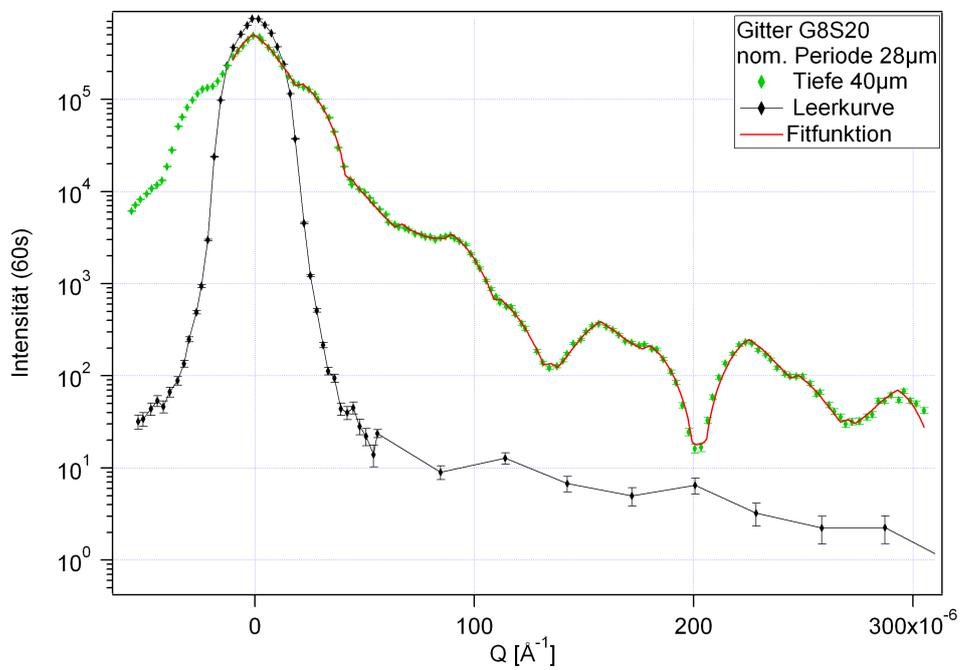


Abbildung 5.19: G8S20T40 mit Fitfunktion

Gitterstrukturen

Bezeichnung	Tiefe [μm]	gemessene Ordnungen	Δq [10^{-5} \AA^{-1}]	Periode [μm] nominell	Periode [μm] experimentell
G8S4T40	40	17	5.2489 ± 0.0007	12	11.970 ± 0.002
G8S4T60	60	12	5.2411 ± 0.0009	12	11.988 ± 0.002
G8S8T40	40	16	3.9263 ± 0.0006	16	16.003 ± 0.002
G8S8T60	60	16	3.9239 ± 0.0006	16	16.012 ± 0.002
G8S8T80	80	16	3.9324 ± 0.0007	16	15.978 ± 0.003
G8S12T40	40	13	3.1372 ± 0.0011	20	20.027 ± 0.007
G8S12T60	60	13	3.1644 ± 0.0009	20	19.856 ± 0.005
G8S12T80	80	13	3.1623 ± 0.0012	20	19.869 ± 0.007
G8S20T40	40	13	2.2593 ± 0.0009	28	27.810 ± 0.011
G8S20T60	60	12	2.2714 ± 0.0014	28	27.662 ± 0.017
G8S20T80	80	12	2.2626 ± 0.0012	28	27.770 ± 0.015

Tabelle 5.4: Experimentell bestimmte Perioden und Nominalwerte der Si-Gitter

5.3 Korrelationsfunktionen und Spin-Echo Kleinwinkelstreuung

5.3.1 Korrelationsfunktionen

Die gestreute Intensität $I(q)$ kann (bis auf Konstanten) als Fouriertransformierte der Patterson- oder Autokorrelationsfunktion $\gamma(x)$ aufgefasst werden:

$$\begin{aligned}
 \gamma(x) &= \mathfrak{F}^{-1}(I(q)) = \mathfrak{F}^{-1}(|f(q)|^2) \\
 &= \mathfrak{F}^{-1}(f(q)f^*(q)) = \rho(x) \otimes \rho(-x) \\
 &= \int \rho(u)\rho(u+x)du
 \end{aligned} \tag{5.17}$$

Die Autokorrelationsfunktion $\gamma(x)$ ist die Faltung der Streulängendichteverteilung der Probe mit sich selbst gespiegelt am Ursprung. Streuintensität und Korrelationsfunktion bilden ein Fourierpaar genau wie Streuamplitude und Streulängendichteverteilung. Für den Fall der diskreten Beugungsordnungen der Si-Gitter mit Periode a kann die Fouriertransformation ersetzt werden durch eine Fourierreihe. Unter Ausnutzung der Symmetrie des Problems $\gamma(-x) = \gamma(x)$ lässt sich schreiben:

$$\gamma(x) = \frac{1}{2}C_0 + \sum_{n=1}^{\infty} C_n \cos\left(\frac{2\pi nx}{a}\right) \tag{5.18}$$

5 Ultra-Kleinwinkelmessungen an Silizium-Gittern

Für eine endliche Anzahl von M gemessenen Ordnungen reduziert sich die experimentell zugängliche Größe $\gamma_{exp}(x)$ auf die Summe:

$$\gamma_{exp}(x) = \sum_{n=1}^M C_n \cos\left(\frac{2\pi nx}{a}\right) \quad (5.19)$$

Die Konstanten C_i sind dabei gerade die Intensitäten der Beugungsordnungen, wie sie unter Verwendung der Fitfunktion (5.16) aus den Streudaten extrahiert wurden. Die mit Gleichung (5.19) berechnete Korrelationsfunktion bleibt um die Konstante C_0 unbestimmt, da die Streuung in Vorwärtsrichtung nicht separat aus den Messungen zu bestimmen ist. Normierte Korrelationsfunktionen lassen sich jedoch mit Gleichung (5.19) aus den Daten berechnen, Abbildungen 5.20 bis 5.23.

Aus dem Vergleich mit der Modellfunktion für einen ideal rechteckigen Graben wird klar, dass es für alle Gitter deutliche Abweichungen des Profils von dieser Form gibt. Auch unterscheiden sich die Profile für verschiedene Ätztiefen ein- und desselben Gittertyps. Aus der Entwicklung des Ätzprozesses ist bekannt, dass es durch die hohe Empfindlichkeit des Verfahrens bei gleichen Prozessparametern zu teilweise deutlichen Variationen im Winkel der Grabenwand kommen kann. Weiters tritt in manchen Fällen ein mehr oder weniger ausgeprägtes Unterätzen des Maskenmaterials mit entsprechender Deformation des Steges auf. Ein variierendes Verhältnis von Steg- zu Grabenbreite für verschiedene Exemplare eines Gittertyps kann als Folge unterschiedlicher Maskenerosion vor allem im Bereich der Stegkanten interpretiert werden.

5 Ultra-Kleinwinkelmessungen an Silizium-Gittern

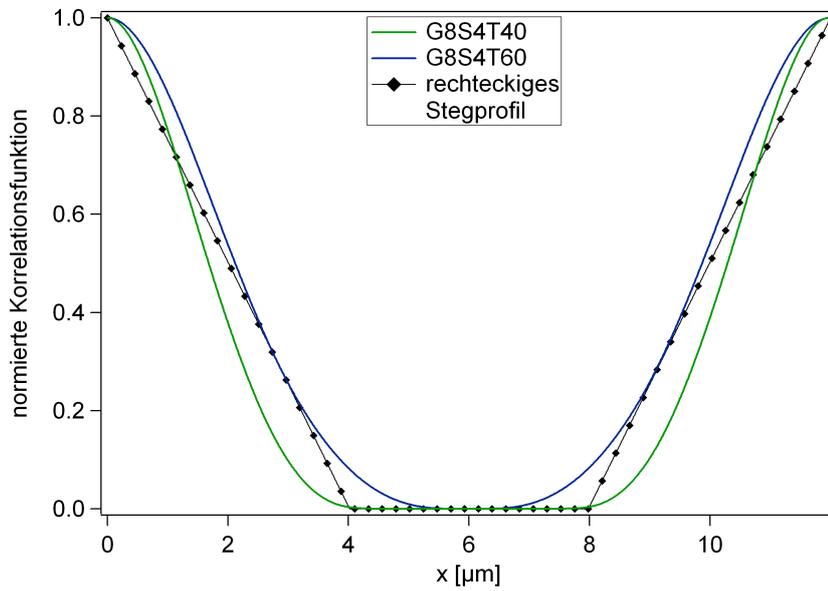


Abbildung 5.20: Korrelationsfunktionen für die Gitter mit Periode $12 \mu\text{m}$, Tiefe $40 \mu\text{m}$ und $60 \mu\text{m}$; Modell für rechteckiges Stegprofil $4 \mu\text{m}$

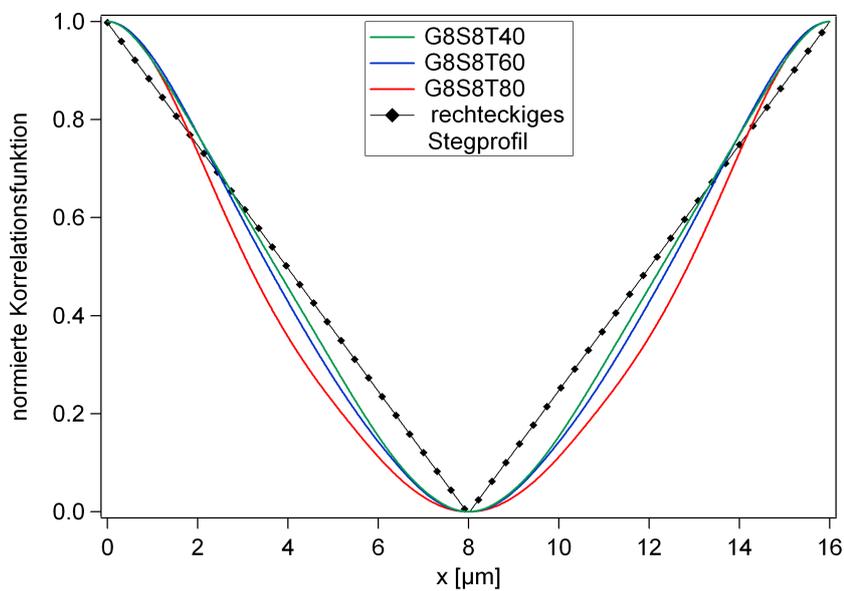


Abbildung 5.21: Korrelationsfunktionen für die Gitter mit Periode $16 \mu\text{m}$, Tiefe $40 \mu\text{m}$, $60 \mu\text{m}$ und $80 \mu\text{m}$; Modell für rechteckiges Stegprofil $8 \mu\text{m}$

5 Ultra-Kleinwinkelmessungen an Silizium-Gittern

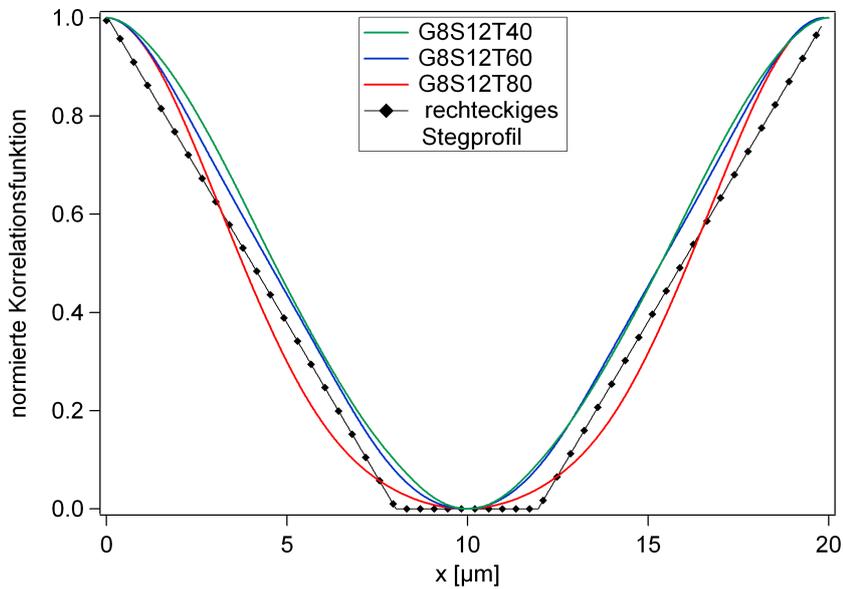


Abbildung 5.22: Korrelationsfunktionen für die Gitter mit Periode $20 \mu\text{m}$, Tiefe $40 \mu\text{m}$, $60 \mu\text{m}$ und $80 \mu\text{m}$; Modell für rechteckiges Stegprofil $12 \mu\text{m}$

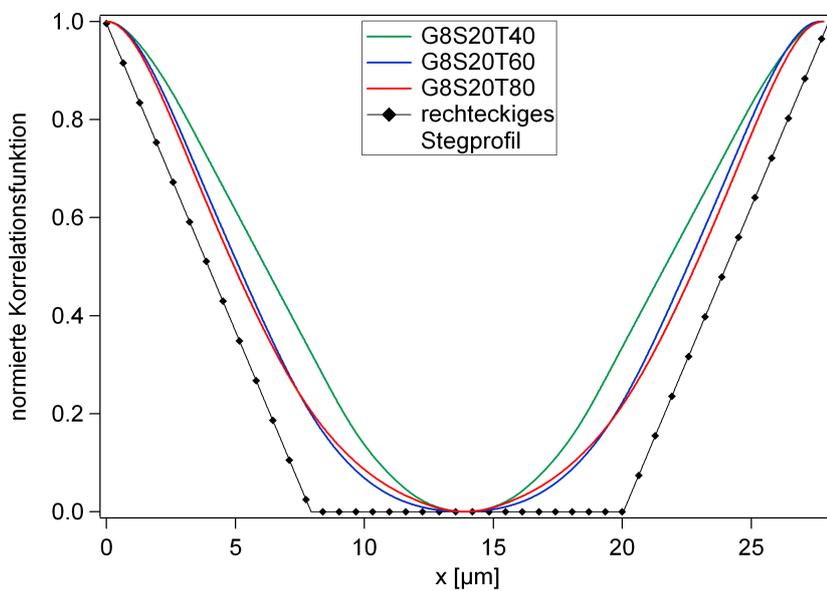


Abbildung 5.23: Korrelationsfunktionen für die Gitter mit Periode $28 \mu\text{m}$, Tiefe $40 \mu\text{m}$, $60 \mu\text{m}$ und $80 \mu\text{m}$; Modell für rechteckiges Stegprofil $20 \mu\text{m}$

5.3.2 Spin-Echo Kleinwinkelstreuung

Die in den letzten Jahren entwickelte neue Technik der Spin-Echo Kleinwinkelstreuung (SESANS) misst ein Signal, das in direktem Zusammenhang mit der Korrelationsfunktion der Streulängendichteverteilung in der Probe steht, [Rekveltdt96]. Die Methode beruht auf der Lamor-Präzession polarisierter Neutronen beim Durchgang durch Magnetfelder mit geneigten Stirnflächen, Abbildung 5.24. Die Trajektorie des an der Probe gestreuten Neutrons wird im wesentlichen durch den Präzessionswinkel kodiert. Gemessen wird der Polarisationsgrad der Neutronen in Abhängigkeit von der Spin-Echo Länge z . Der Polarisationsgrad wiederum steht in engem Zusammenhang mit der SESANS-Korrelationsfunktion $G(z)$:

$$\frac{P(z)}{P_0} = 1 - \sigma t + \sigma t G(z) \quad (5.20)$$

$$z = \frac{c \lambda^2 B L \cot \theta_0}{2\pi} \quad (5.21)$$

σ ist der normierte totale Wirkungsquerschnitt und t die Dicke der Probe. Die Spin-Echo Länge hängt ab von der Konstante $c = 4.6368 \times 10^{14} T^{-1} m^{-2}$, der Wellenlänge der Neutronen λ , dem Magnetfeld B , der Länge L der Präzessionsregion und dem Neigungswinkel der Stirnflächen der Magnetfelder θ_0 . Je nach konkreter Ausführung des experimentellen Aufbaus kann durch Änderung einer oder mehrerer dieser Größen die Spin-Echo Länge während einer Messung variiert und so ein Polarisationsprofil aufgezeichnet werden. Die Spin-Echo Länge ist hier mit der Ortsvariable in der Probe normal zur Einfallsrichtung gleichzusetzen (z -Achse in Abbildung 5.24). Die Funktion $G(z)$ ist die Projektion der Autokorrelationsfunktion der Probe entlang der Einfallsrichtung, [Rekveltdt03].

$$G(z) = \int_{-\infty}^{\infty} \gamma(\sqrt{x^2 + z^2}) dx \quad (5.22)$$

Im Unterschied zu konventioneller Kleinwinkelstreuung und der USANS-Technik enthält die gemessene Größe Information im Ortsraum, kann also in gewissem Sinn als komplementäres Verfahren angesehen werden. Die mit SESANS zugänglichen Strukturgrößen reichen von etwa 10 nm bis 15 μm .

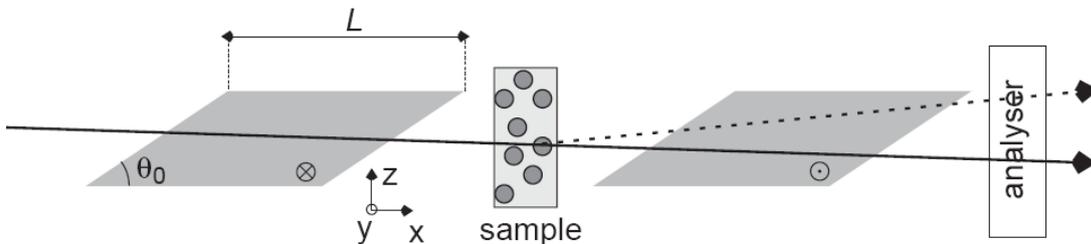


Abbildung 5.24: Schema eines SESANS Experiments

5 Ultra-Kleinwinkelmessungen an Silizium-Gittern

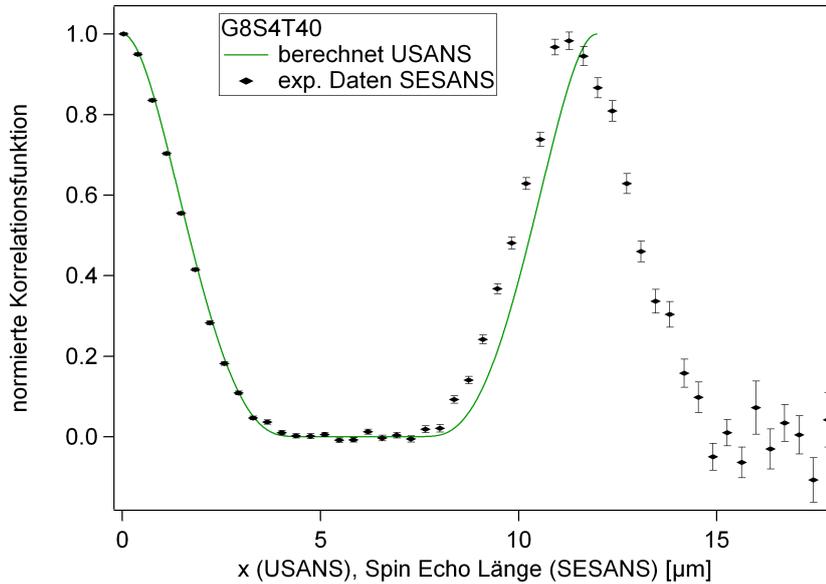


Abbildung 5.25: SESANS Daten und aus USANS Messungen berechnete Korrelationsfunktion, Gitter mit Periode $12\ \mu\text{m}$, Tiefe $40\ \mu\text{m}$

Im Rahmen einer Kooperation mit der Technischen Universität Delft wurden zwei der Silizium-Gitter mit der SESANS-Technik vermessen. Auch hier ist der Modellcharakter dieser Proben von besonderem Interesse, etwa zur Eichung der Spin Echo Länge. Ähnlich wie für die USANS-Technik kann für die Strichgitter die Interpretation der Messdaten durch spezielle Orientierung der Proben vereinfacht werden: Mit der Probe normal zum einfallenden Strahl und den Gräben normal zur sensitiven Richtung z entspricht die gemessene Größe gerade der Autokorrelationsfunktion der Streulängendichteverteilung, wie sie im vorigen Abschnitt aus den Intensitäten der Beugungsordnungen im USANS-Signal berechnet wurde. In den Abbildungen 5.25 und 5.26 sind die Ergebnisse von SESANS und USANS für die Gitter mit $12\ \mu\text{m}$ Periode gegenübergestellt. Die Resultate der beiden komplementären Methoden stimmen in schlagender Weise überein, einzig in der Skalierung der Ortskoordinate bestehen Abweichungen. Die Erklärung dafür ist eine gewisse Unsicherheit in der Bestimmung der Spin-Echo Länge. So ist etwa der effektive Neigungswinkel der Stirnflächen der Magnetfelder nur bis auf ungefähr 5% genau bekannt. In Summe wird den Messungen an den Si-Gittern zufolge die Spin-Echo Länge um 4-5% unterschätzt. Im aktuellen Neuaufbau der SESANS Anlage an der TU Delft dienen diese beiden Gitter deshalb zur exakten Eichung der Spin-Echo Längenskala.

An die Messdaten des $40\ \mu\text{m}$ tiefen Gitters wurden zwei einfache Modelle für die Stufenform der Gitter angepasst, [Bouwman05]. Wie in den Abbildungen 5.27 und 5.28 zu sehen ist, kann der Verlauf der Messkurve durch ein trapezförmiges Profil des Ste-

5 Ultra-Kleinwinkelmessungen an Silizium-Gittern

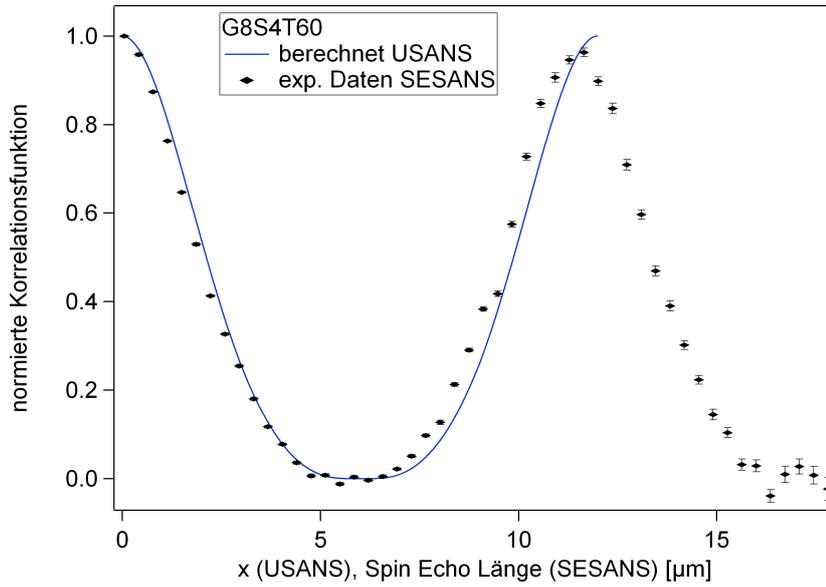


Abbildung 5.26: SESANS Daten und aus USANS Messungen berechnete Korrelationsfunktion, Gitter mit Periode $12\ \mu\text{m}$, Tiefe $60\ \mu\text{m}$

ges wesentlich besser erklärt werden als durch ein Rechteckprofil. Die deutliche Abweichung vom Idealprofil wurde auch schon in Abschnitt 5.3.1 anhand der USANS Ergebnisse festgestellt.

5 Ultra-Kleinwinkelmessungen an Silizium-Gittern

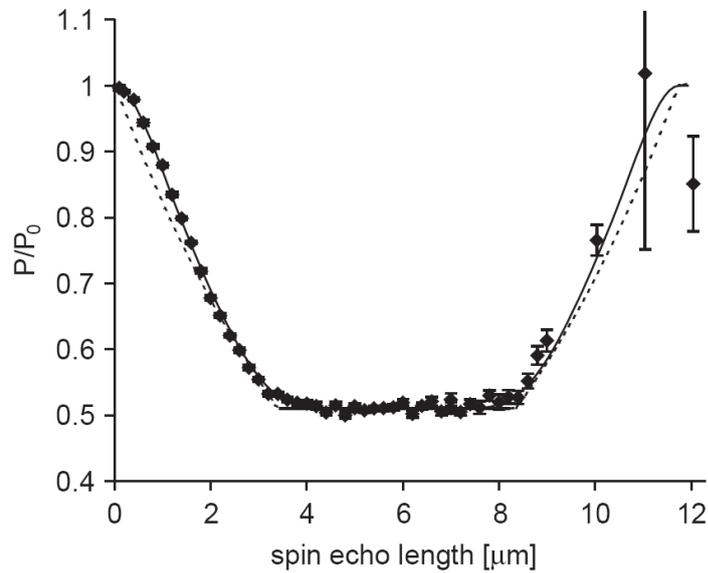


Abbildung 5.27: Gitter G8S4T40: SESANS Daten und angepasste Modellfunktionen für trapezförmiges (durchgezogen) und rechteckiges Stegprofil (strichliert) [Bouwman05]

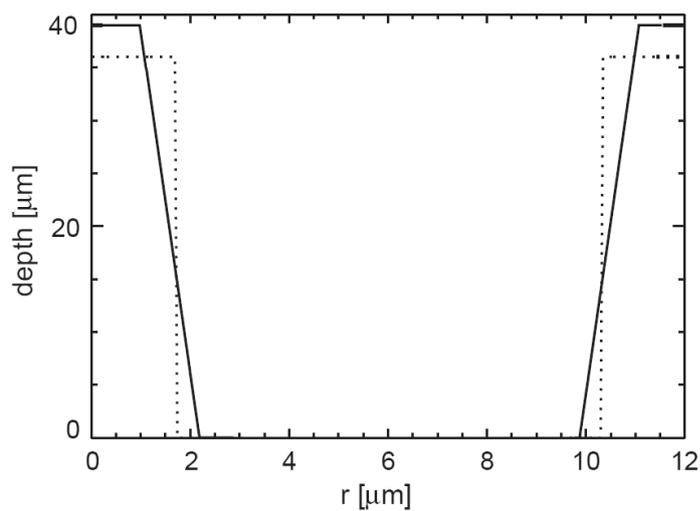


Abbildung 5.28: Stegprofile aus Fitfunktionen in Abbildung 5.27

5.4 Direkte Rekonstruktionsverfahren

Zur Illustration der Empfindlichkeit der USANS Technik wurden zwei Modellstreu-
kurve berechnet. Das erste angenommenen Stegprofil entspricht der trapezförmigen
Struktur aus der Modellanpassung an die Korrelationsfunktion im vorigen Abschnitt.
Das zweite Modell weist einen gaussförmigen Abfall des Stegs auf bei sonst sehr ähn-
licher Geometrie, Abbildung 5.30. Starke Unterschiede zeigen sich wie zu erwarten
vor allem in den höheren Ordnungen. Eine Verfeinerung der Modellannahmen kann
zwar zu einer verbesserten Anpassung an die Streukurven führen, dieser Zugang weist
allerdings einen gewissen Grad an Beliebigkeit auf. Der Weg über Modelle erforder-
t ganz allgemein detaillierte ad hoc Annahmen über die konkrete Streugeometrie.
Es gibt daher zahlreiche Ansätze die Dichteverteilung mit nur wenigen Annahmen
aus den Streudaten zu rekonstruieren. Derartige Verfahren werden als *direkte Metho-
den* bezeichnet. Es existieren etwa Zugänge über die Autokorrelationsfunktion, z.B.
[Pape78, Glatter81], oder über die Streuintensität beziehungsweise den Absolutbetrag
der Streuamplitude. Zwei Verfahren aus der letztgenannten Klasse sollen hier auf die
Streudaten der Si-Gitter angewendet werden.

5.4.1 Rekonstruktionsverfahren

Für den eindimensionalen Fall gilt für die gesuchte Streulängendichteverteilung $\rho(x)$
bis auf Konstanten:

$$\rho(x) = \mathfrak{F}^{-1} [A(q)] = \mathfrak{F}^{-1} [\text{sign}(A(q))|A(q)|] \quad (5.23)$$

Die experimentell zugängliche Streuamplitude $A(q)$ ist nur bis auf ihr Vorzeichen be-
stimmbar, gemessen werden Intensitäten $I(q)$:

$$|A(q)| = \sqrt{I(q)}. \quad (5.24)$$

Das Problem einer direkten Rekonstruktion der Dichteverteilung aus der gemessenen
Intensität besteht also in der Bestimmung von $\text{sign}(A(q))$. Für den speziellen eindi-
mensionalen Fall, dass $\rho(x)$ als reell und symmetrisch angenommen werden kann und
darüber hinaus gilt

$$\rho(x) \equiv 0 \quad \forall x > R < \infty \quad (5.25)$$

der Streuer also eine endliche Größe R besitzt, kann gezeigt werden, dass eine ein-
deutige Lösung für das Vorzeichenproblem existiert (bis auf einen Faktor ± 1 für $\rho(x)$),
[Hosemann62]. Der Beweis liefert allerdings noch kein konkretes Verfahren zur Kon-
struktion der Vorzeichen.

5 Ultra-Kleinwinkelmessungen an Silizium-Gittern

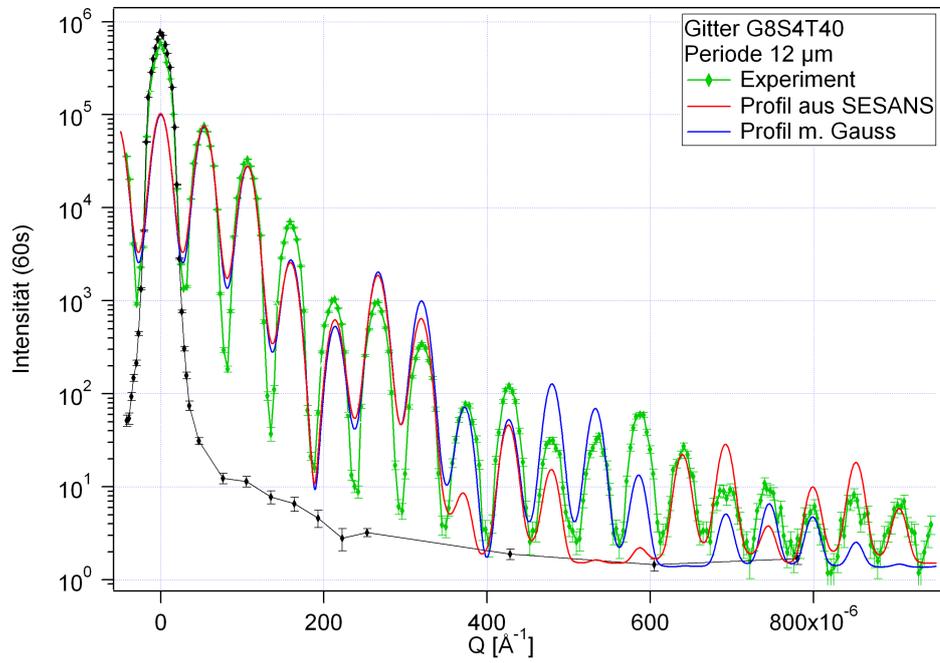


Abbildung 5.29: Gemessene Streukurve und berechnete Modellkurven

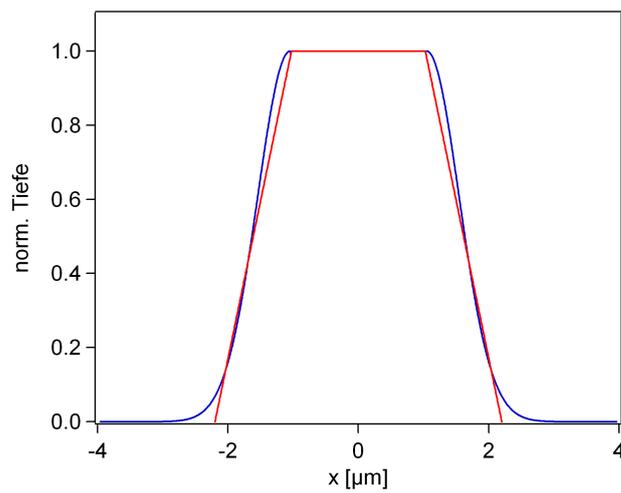


Abbildung 5.30: Stegprofile für die Berechnung der Modellstreuken in [Abbildung 5.29](#)

5 Ultra-Kleinwinkelmessungen an Silizium-Gittern

Eine iterative Methode, den Vorzeichensatz für gegebenes $I(q)$ zu finden, ist das sogenannte „box-function refinement“. Es existieren Varianten dieses Verfahrens, die entweder im Ortsraum oder aber im reziproken Raum ausgeführt werden, [[Svergun84](#), [Makowski81](#)]. Die Variante im Ortsraum funktioniert wie folgt: Für gegebenes $I(q)$ wird der Betrag der Streuamplitude $|A(q)|$ berechnet. Als nullte Approximation der gesuchten Lösung $\rho(x)$ für gegebenes R wird eine Funktion $\rho_0(x)$ gewählt mit:

$$\rho_0(x) \equiv 0 \quad \forall x > R < \infty \quad (5.26)$$

Hier bietet sich für praktische Zwecke die Rechteckfunktion an. Nun wird die Fouriertransformierte $A_0(q)$ der Funktion $\rho_0(x)$ berechnet. Im nächsten Schritt werden die Vorzeichen der Funktion $A_0(q)$ den experimentell bestimmten Werten $|A(q)|$ zugewiesen,

$$\tilde{A}_0(q) = \text{sign}[A_0(q)]|A(q)|. \quad (5.27)$$

Aus dieser Amplitude kann nun die nächste Funktion $\rho_1(x)$ berechnet werden. $\rho_1(x)$ entspricht zwar der gemessenen Intensität $I(q)$ beziehungsweise $|A(q)|$, im allgemeinen wird aber Gleichung (5.25) von $\rho_1(x)$ nicht erfüllt werden, wohl aber von $\tilde{\rho}_1(x)$,

$$\tilde{\rho}_1(x) = \rho_1(q)\Pi(R-x) \quad (5.28)$$

mit $\Pi(R-x)$ der Rechteckfunktion. Iterativ werden die Größen $\rho_k(x)$, $\tilde{\rho}_{k+1}(x)$, $A_{k+1}(q)$ und $\tilde{A}_{k+1}(q)$ berechnet,

$$\begin{aligned} \rho_k(x) &= \mathfrak{F}^{-1}[\tilde{A}_k(q)] \\ \tilde{\rho}_{k+1}(x) &= \rho_k(x)\Pi(R-x) \\ A_{k+1}(q) &= \mathfrak{F}(\tilde{\rho}_{k+1}(x)) \\ \tilde{A}_{k+1}(q) &= \text{sign}[A_{k+1}(q)]|A(q)| \end{aligned} \quad (5.29)$$

bis keine Veränderung in den Vorzeichen mehr auftritt. Als Maß für die Güte der gefundenen Lösung kann ein R-Faktor der Abweichung in der Streuintensität der letzten abgeschnittenen Lösung $\tilde{\rho}_k(x)$ von den experimentellen Werten definiert werden:

$$R_I = \frac{\int_0^{q_{\max}} [I(q) - A_k(q)^2]^2 dq}{\int_0^{q_{\max}} I^2(q) dq} \quad (5.30)$$

Auch antisymmetrische Dichteverteilungen können so behandelt werden. Unter idealen Bedingungen konvergiert das Verfahren zur wahren Lösung [[Svergun84](#)], die nach [[Hosemann62](#)] existiert, unabhängig von der Wahl von $\rho_0(x)$.

Das Verfahren kann in Bezug auf den Abschneideparameter R optimiert werden. Für eine Reihe von Werten von R wird das Iterationsverfahren ausgeführt und die Größe R_I für die jeweilige Lösung berechnet. Bei Unterschreiten eines bestimmten Wertes von R steigt R_I stark an, Abbildung 5.35. Dieser Wert von R kann als der wahre Wert

5 Ultra-Kleinwinkelmessungen an Silizium-Gittern

betrachtet werden, i.e. als der Wert, der mit der Annahme einer reellen symmetrischen Dichteverteilung endlicher Ausdehnung und den experimentellen Streuintensitäten am besten vereinbar ist.

Für die Streudaten der Gitter reduzieren sich die Fourierintegrale wiederum auf endliche Summen, die endliche Anzahl von M gemessenen Beugungsordnungen entspricht q_{max} in obiger Darstellung der Methode. Mit den Streuamplituden der Beugungsordnungen an den Stellen q_n

$$|A_n| = \sqrt{I(q_n)} \quad (5.31)$$

kann die k -te Iteration der gesuchten Dichteverteilung $\rho(x)$ mit der Periode a des Gitters geschrieben werden als

$$\rho_k(x) = \frac{1}{2}\tilde{A}_{k,0} + \sum_{n=1}^M \tilde{A}_{k,n}(q) \cos\left(\frac{2\pi nx}{a}\right). \quad (5.32)$$

Die Funktionen $A_k(q)$, $\tilde{A}_k(q)$ in der Darstellung des Verfahrens für kontinuierliche Streudaten sind durch die entsprechenden diskreten Sätze $\{A_{k,n}\}$, $\{\tilde{A}_{k,n}\}$ von Amplituden zu ersetzen. Das Fehlen einer als Vorwärtsstreuung interpretierbaren nullten Ordnung $I(0)$ beziehungsweise \tilde{A}_0 in den Messdaten kann in der Praxis etwa folgendermaßen ausgeglichen werden: Für die Dichte $\rho_k(x)$ aus Gleichung (5.32) mit $\tilde{A}_{k0} = 0$ wird der Mittelwert für den Bereich $(R, a/2)$ berechnet und die Funktion um diesen Wert in y verschoben. Der R-Faktor nimmt folgende Form an:

$$R_I = \frac{\sum_{n=1}^M [I(q_n) - A_{k,n}^2]^2}{\sum_{n=1}^M I^2(q_n)} \quad (5.33)$$

Eine weitere Variante des „box-function refinement“ wird direkt auf die Streuamplituden im reziproken Raum angewendet, [Makowski81, Crowther69]. Ausgangspunkt ist auch hier die Wahl eines ersten Vorzeichensatzes für die experimentell bestimmten $|A_n|$. Es bieten sich wieder die Vorzeichen der Rechteckfunktion beziehungsweise ihrer Fouriertransformierten an:

$$\text{sign}(\tilde{A}_{0,n}) = \text{sign}\left(\frac{\sin(2\pi nR/a)}{2\pi nR/a}\right) \quad (5.34)$$

Das Abschneiden der k -ten Iteration der Dichteverteilung, Gleichung (5.29), entspricht im reziproken Raum der Faltung der Streuamplituden mit der Fouriertransformierten der Rechteckfunktion. Für die diskreten Amplituden der Gitter nimmt die Faltung die Form an:

$$\tilde{\mathbf{A}}_k = \mathbf{H} \cdot \mathbf{A}_k \quad (5.35)$$

mit

$$H_{lk} = \frac{2R}{a} \cdot \frac{\sin(2\pi R(l-k)/a)}{2\pi R(l-k)/a} \quad (5.36)$$

und \mathbf{A}_k , $\tilde{\mathbf{A}}_k$ den Vektoren der entsprechenden Amplituden. Analog zur obigen Methode werden im nächsten Schritt die Vorzeichen der Vektorkomponenten von $\tilde{\mathbf{A}}_k$ den experimentellen Werten $|A_n|$ zugewiesen

$$A_{k+1,n} = \text{sign}(\tilde{A}_{k,n}) |A_n| \quad (5.37)$$

und Schritt (5.35) wird wiederholt. Das Fehlen eines experimentellen Wertes für die nullte Ordnung kann durch die ersatzweise Berechnung einer Hilfsgröße umgangen werden: Für jeden Wert des Abschneideparameters R berechnet man die Dichteverteilung der nullten Approximation \tilde{A}_0 , verschiebt sie um den Mittelwert im Bereich $(R, a/2)$ und bestimmt den Fourierkoeffizienten $\tilde{A}_{0,0}$. Dieser Wert kann für die weitere Berechnung verwendet werden. Eine Optimierung bezüglich des Wertes von R lässt sich wie für den Fall der Iteration im Ortsraum durchführen.

5.4.2 Rekonstruktion der Gitterprofile

Beide Verfahren wurden in *IGOR Pro* programmiert und auf die Streudaten der periodischen Strukturen angewendet. Die Verfahren liefern im wesentlichen die gleichen ausgezeichneten Ergebnisse, Abbildungen 5.31 und 5.33. Für den vorliegenden speziellen Fall eindimensionaler symmetrischer Dichteverteilungen kann der Ansatz der direkten Rekonstruktion als der Modellrechnung überlegen angesehen werden. Es sind für die Berechnung der räumlichen Struktur keinerlei a priori Informationen notwendig, allein die Größe der Einzelstruktur wird als begrenzt angenommen. Eine obere Grenze für diesen Wert ist für periodische Strukturen die aus dem Beugungsmuster abgeleitete Periodizität. Durch Minimierung der Abweichung R_I finden die Rekonstruktionsverfahren ohne weitere Bedingungen Lösungen, die in sehr guter Übereinstimmung mit den SEM-Aufnahmen der entsprechenden Mikrostrukturen stehen, Abbildungen 5.32 und 5.34.

In den Rekonstruktionen wird die hohe Empfindlichkeit des Streugeschehens gegen Verkippung der Gitter relativ zum Strahl deutlich. Für Messungen, in denen das betreffende Gitter offenbar nicht ausreichend genau normal zum einfallenden Strahl justiert wurde, zeigen die Rekonstruktionen mehr oder weniger stark ausgeprägte Zusatzstrukturen vor allem in Steg- beziehungsweise Grabenmitte. Das Auftreten solcher Effekte in den Rekonstruktionen ist konsistent mit leicht unterschiedlichen Höhen der ersten Ordnungen $n = \pm 1$ in den Streukurven, Abbildungen 5.36 - 5.38. Allein für die Gitter mit Periode $12 \mu\text{m}$ kann hier keine Aussage gemacht werden, da in den betreffenden Messungen die ersten Ordnungen $n = -1$ nicht erfasst wurden. Die Unsicherheit in der Orientierung der Proben normal zum Strahl ist aus den Messungen zur Intensität in Vorwärtsrichtung bei Verdrehen der Probe mit unter 0.5° abzuschätzen, Abbildung 5.10. Die Empfindlichkeit des Streugeschehens gegen eine derartige Fehlorientierung

5 Ultra-Kleinwinkelmessungen an Silizium-Gittern

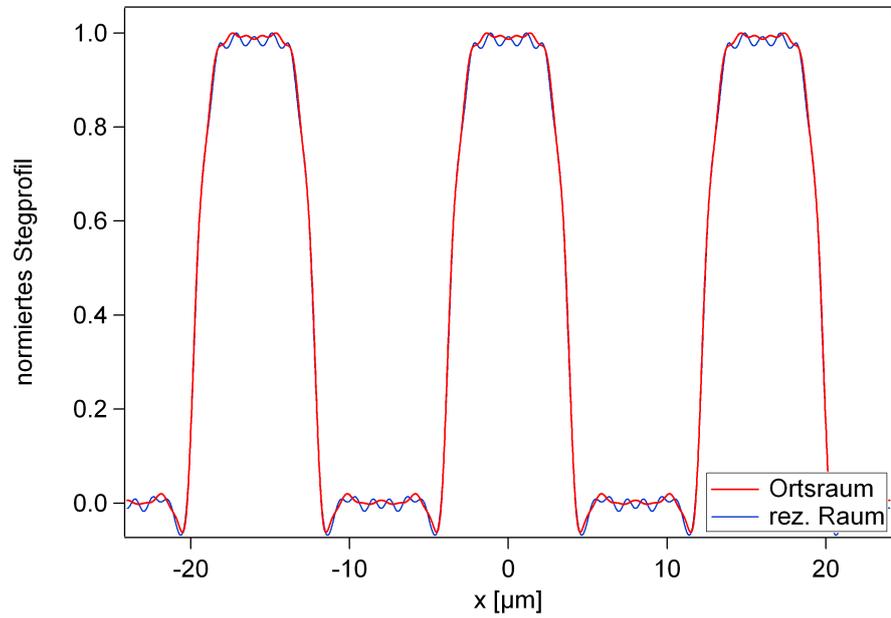


Abbildung 5.31: Rekonstruktionen des Gitters G8S8T40 aus 16 Beugungsordnungen, Periode 16 μm . Sehr ähnliches Ergebnis für beide Verfahren.

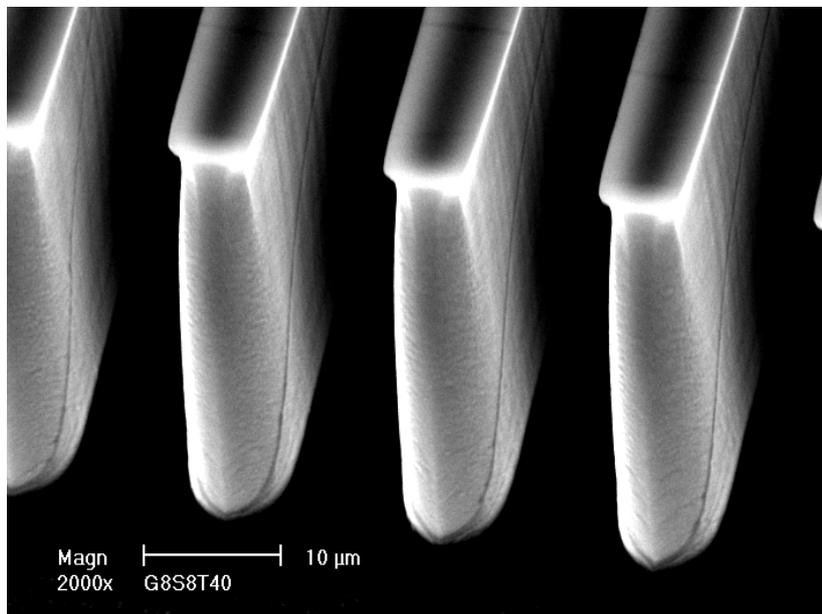


Abbildung 5.32: SEM Aufnahme des Gitters G8S8T40

5 Ultra-Kleinwinkelmessungen an Silizium-Gittern

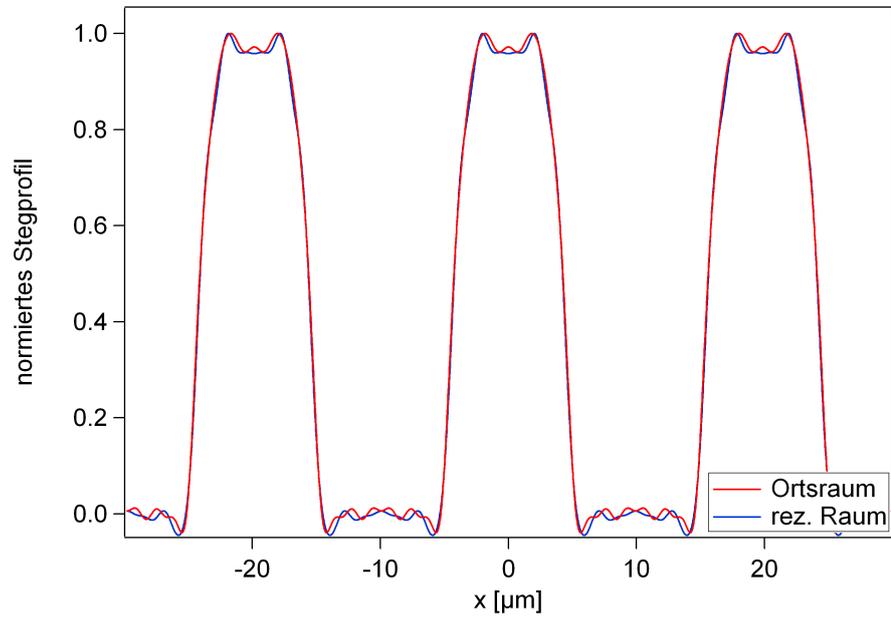


Abbildung 5.33: Rekonstruktionen des Gitters G8S12T60 aus 13 Beugungsordnungen, Periode 20 μm

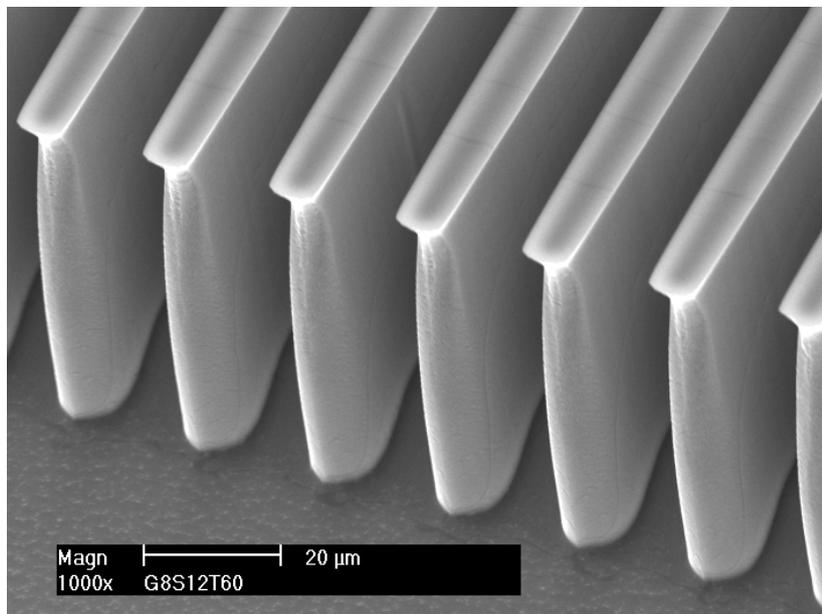


Abbildung 5.34: SEM Aufnahme des Gitters G8S12T60

5 Ultra-Kleinwinkelmessungen an Silizium-Gittern

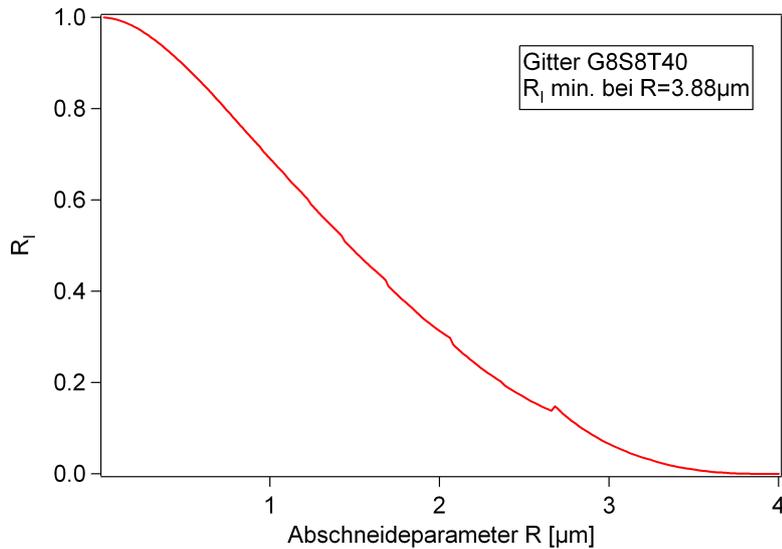


Abbildung 5.35: Verlauf des R-Faktors in Abhängigkeit vom Abschneideparameter R für die Rekonstruktion des Gitters G8S8T40 im Ortsraum. Minimum bei $R=3.88 \mu\text{m}$.

beruht wesentlich auf dem hohen Aspektverhältnis der untersuchten Strukturen. Das Verhältnis Strukturhöhe zu -breite liegt zwischen fünf und fünfzehn. Die stärksten Asymmetrien in den ersten Ordnungen der Streubilder sind für die tiefsten Strukturen zu beobachten. Die dem gemessenen Q -Bereich entsprechende räumliche Auflösung liegt zwischen $0.7 \mu\text{m}$ (Gitter G8S4T40) und $2.4 \mu\text{m}$ (G8S20T60). In den Rekonstruktionen der Gitterstrukturen mit $28 \mu\text{m}$ Periode macht sich die begrenzte Auflösung deutlich bemerkbar, Abbildung 5.42. Alle anderen Strukturen sind mit der jeweiligen räumlichen Auflösung gut darstellbar.

Zusammenfassend kann gesagt werden, dass die getesteten direkten Rekonstruktionsverfahren für USANS Streudaten periodischer Mikrostrukturen gute Ergebnisse liefern. Für tiefstrukturierte Proben muss jedoch die Probenorientierung relativ zum Strahl sehr sorgfältig erfolgen. Bereits kleine Winkelabweichungen bezüglich der Orientierung normal zum Strahl führen zu Asymmetrieeffekten in den Streukurven, die einer direkten Interpretation der Daten für Rekonstruktionen entgegenstehen.

5 Ultra-Kleinwinkelmessungen an Silizium-Gittern

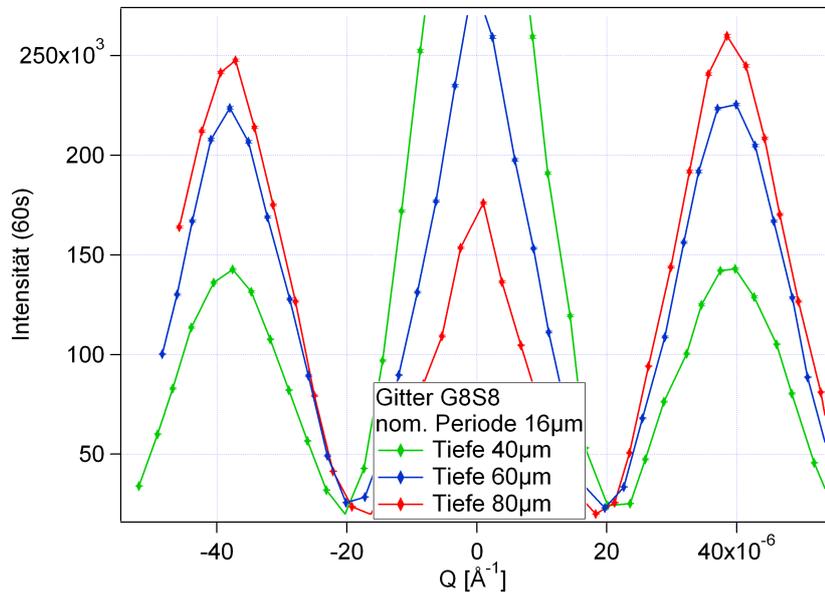


Abbildung 5.36: Asymmetrie in der Streukurve des Gitters G8S8T80 in den ersten Ordnungen $n = \pm 1$, leichte Asymmetrie auch für G8S8T60

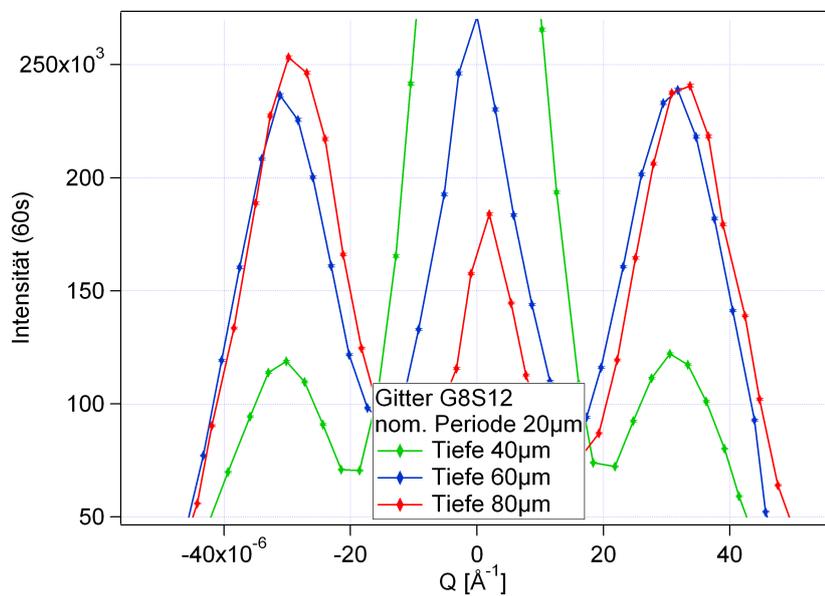


Abbildung 5.37: Asymmetrien in den Streukurven der Gitter G8S12 in den ersten Ordnungen $n = \pm 1$

5 Ultra-Kleinwinkelmessungen an Silizium-Gittern

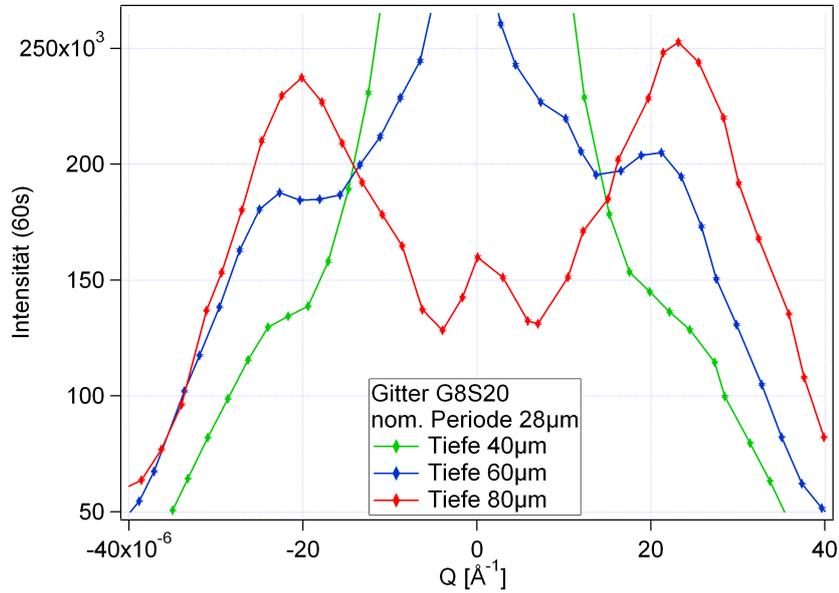


Abbildung 5.38: Asymmetrien in den Streukurven der Gitter G8S20 in den ersten Ordnungen $n = \pm 1$

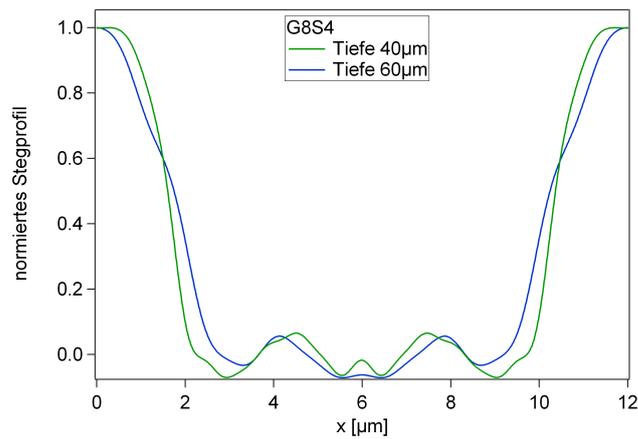


Abbildung 5.39: Rekonstruktionen der Gitter mit Periode 12 µm

5 Ultra-Kleinwinkelmessungen an Silizium-Gittern

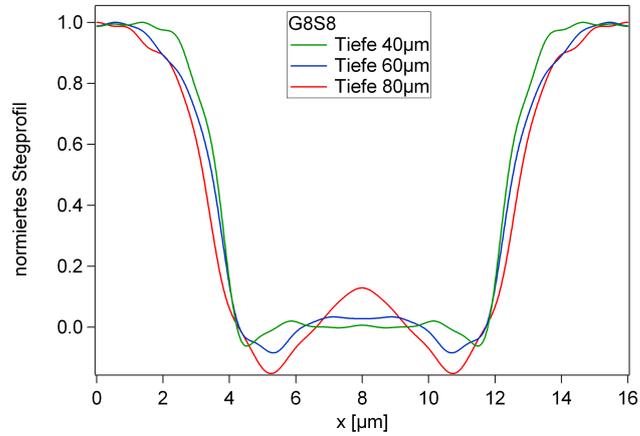


Abbildung 5.40: Rekonstruktionen der Gitter mit Periode 16 μm

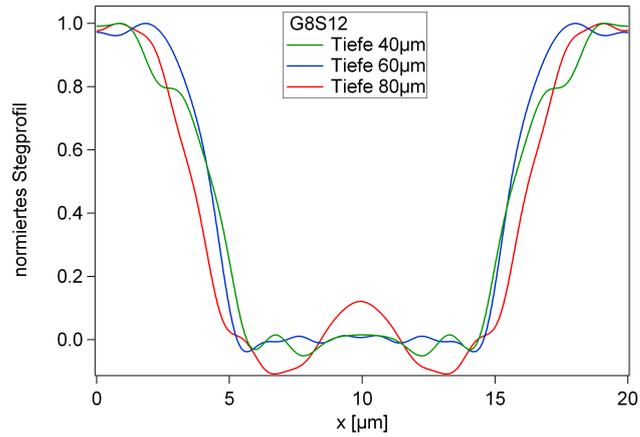


Abbildung 5.41: Rekonstruktionen der Gitter mit Periode 20 μm

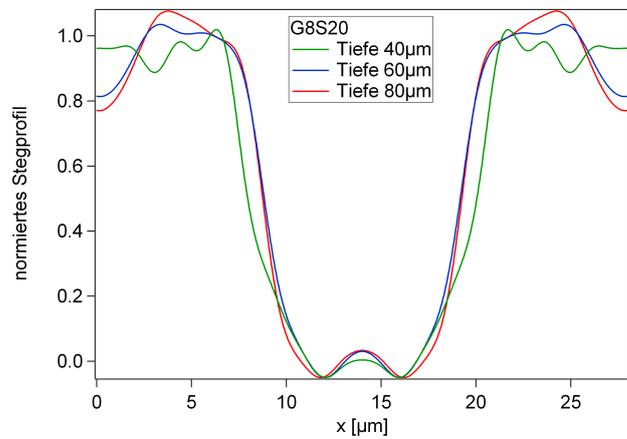


Abbildung 5.42: Rekonstruktionen der Gitter mit Periode 28 μm

6 Ultra-Kleinwinkelstreuung mit polarisierten Neutronen (PUSANS)

Die USANS Technik kann mit einigen Modifikationen im Aufbau der Anlage für die Analyse magnetischer Domanenstrukturen adaptiert werden. Die neue Methode der Ultra-Kleinwinkelstreuung mit polarisierten Neutronen (PUSANS) nutzt die verlustfreie Polarisierung von Neutronen durch Doppelbrechung in magnetischen Prismen. Mit dem Verfahren wird es möglich, magnetische Strukturen im μm -Bereich zu analysieren. Ein erster bereits publizierter Versuch erreichte nur unbefriedigende Ergebnisse in der Statistik der Messdaten [Wagh04]. Die hier präsentierten Messungen stellen die erste vollständige experimentelle Realisierung des Verfahrens dar.

6.1 Magnetische Prismenrefraktion von Neutronen

Bei Eintritt der Neutronen in ein Magnetfeld kommt es durch die unterschiedlichen Zeemann-Energien für die beiden möglichen Spinzustände zu einer spinabhängigen Impulsänderung:

$$\frac{\Delta k}{k_0} \approx \pm \frac{m\mu B}{\hbar^2 k_0^2} \quad (6.1)$$

Das Magnetfeld wirkt auf die Neutronen daher als doppelbrechendes Medium mit dem spinabhängigen Brechungsindex:

$$n_{\uparrow\downarrow} = \frac{k_{\uparrow\downarrow}}{k_0} \approx 1 \pm \frac{m\mu B}{\hbar^2 k_0^2} \quad (6.2)$$

Bei Durchgang durch ein prismenförmiges Magnetfeld kommt es zu einer Aufspaltung des Neutronenstrahls in zwei praktisch vollständig polarisierte Teilstrahlen. Die Ausbreitungsrichtung der beiden Strahlen unterscheidet sich um den Winkel δ , Abbildung 6.1:

$$\delta = \frac{2\mu B}{E_0} \frac{\sin \phi}{\cos \phi + \cos(2\varepsilon)} \quad (6.3)$$

Diese Methode der Polarisierung fand bereits Verwendung in verschiedenen neutro-

6 Ultra-Kleinwinkelstreuung mit polarisierten Neutronen (PUSANS)

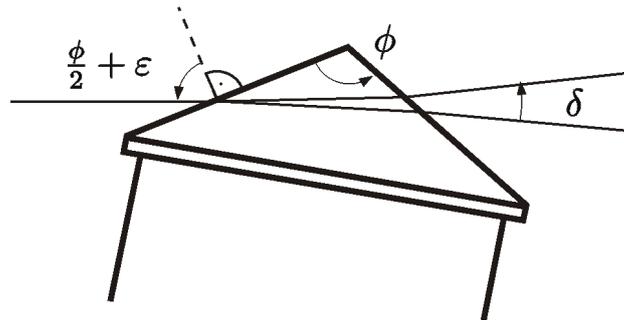


Abbildung 6.1: Aufspaltung des Neutronenstrahls bei Durchgang durch ein magnetisches Prisma

nenoptischen Experimenten, [Badurek79, Badurek00]. Für den Einsatz in der Ultra-Kleinwinkelstreuung kann die Aufspaltung durch die Verwendung eines zweiten Prismas entsprechend vergrößert werden. Die erzielbaren Aufspaltungen liegen im Bereich mehrerer Bogensekunden und reichen damit aus, um die Streukurven der beiden Polarisationsrichtungen in der USANS-Messung teilweise getrennt darzustellen.

6.2 Aufbau eines PUSANS-Experiments

Um ein USANS-Instrument für die Messung magnetischer Strukturen zu modifizieren, genügt es im wesentlichen, Magnetprismen in den Strahlengang zwischen Monochromator und Probe einzubringen. Neben der hier verwendeten verlustfreien Polarisierung besteht auch die Möglichkeit, durch Positionierung der Prismen zwischen einem Vor-monochromator und dem Monochromator nur eine der beiden Polarisationsrichtungen zu nutzen [Littrell04]. Zusätzlich wird ein weiterer Magnet zur magnetischen Sättigung der Probe benötigt, Abbildung 6.3. Die Justierung der Magnetprismen relativ zum Strahl muss sehr sorgfältig erfolgen, um den Strahl durch einen möglichst homogenen Teil des Magnetfeldes zu führen. Inhomogenitäten in den Randbereichen der Prismen führen zu starken Verbreiterungen in der Leerkurve des Instruments mit entsprechend verringerter Auflösung. Die Aufspaltung kann durch Variation des Asymmetriewinkels ϵ optimiert werden. Hier muss ein Kompromiss zwischen noch akzeptablem Strahlquerschnitt und möglichst großer Aufspaltung gefunden werden.

Die diesem Experiment erreichte Aufspaltung von $8.2 \times 10^{-5} \text{ \AA}^{-1}$ (5.2") liegt bei ungefähr der vierfachen Halbwertsbreite der Leerkurve für den Reflex (220), Abbildung 6.4. Verwendet werden zwei Permanentmagnete mit prismenförmigen Polschuhen. Der Apexwinkel ϕ beträgt 116° , die Feldstärke im zentralen Bereich 0.88 Tesla. Durch

6 Ultra-Kleinwinkelstreuung mit polarisierten Neutronen (PUSANS)

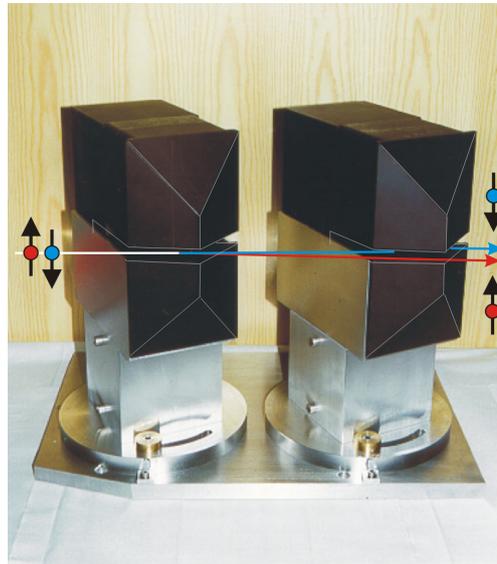


Abbildung 6.2: Magnetprismen mit schematischer Darstellung der Polarisation und Aufspaltung des Strahls, Feldstärke im Luftspalt $B \approx 0.88 \text{ T}$

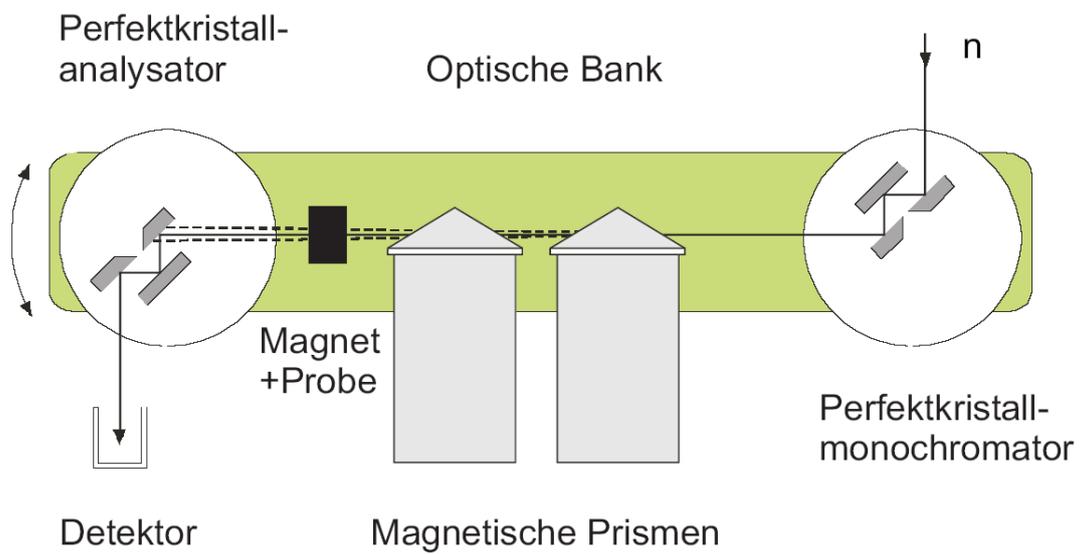


Abbildung 6.3: Schema eines PUSANS Experiments mit Magnetprismen und Magnet zur Sättigung der Probe, vgl. konventioneller USANS Aufbau Abbildung 5.1

6 Ultra-Kleinwinkelstreuung mit polarisierten Neutronen (PUSANS)

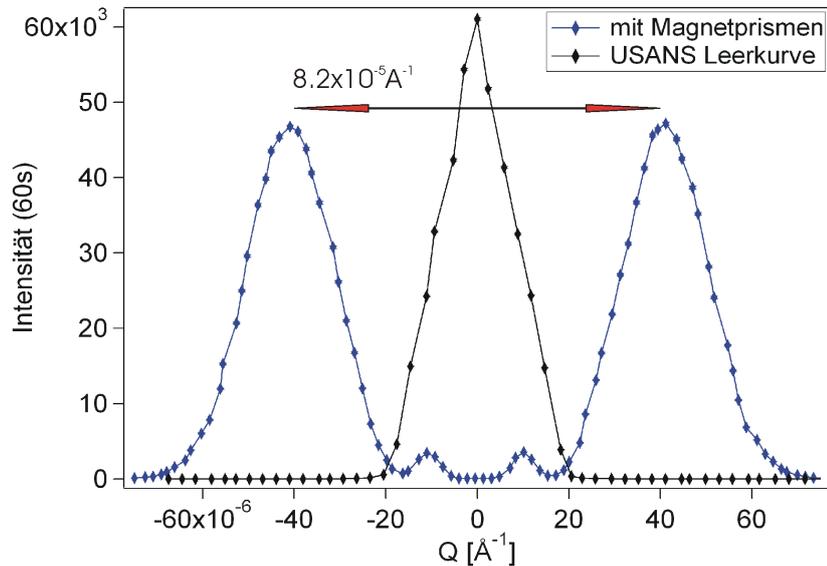


Abbildung 6.4: Aufspaltung der Leerkuve nach Justieren der Magnetprismen. Zum Vergleich eine Leerkurve des konventionellen USANS Aufbaus (skaliert mit Faktor 0.1)

die Aufspaltung in zwei separierte Streukurven, die starke notwendige Einschränkung des Strahls in horizontaler Richtung und die Höhe des Luftspalts der Magnetprismen von 1 cm reduziert sich die maximale Intensität in der Leerkurve um etwa eine Größenordnung im Vergleich zu einer konventionellen USANS Messung. Durch das hohe Signal-zu-Untergrund Verhältnis der Anlage S18 können jedoch immer noch Experimente mit sehr guter Statistik durchgeführt werden.

6.3 Messungen

Wie in Abbildung 6.5 deutlich zu sehen ist, existiert bei Verwendung eines (220)-Reflexes zur Monochromatisierung auch ein Anteil von Neutronen mit halber Wellenlänge im Strahl. Diese zweite Ordnung stammt von der Reflexionsebene (440). Ihr Anteil im Strahl nach Monochromatisierung liefert in der PUSANS Leerkurve zwei zusätzliche Maxima mit halber Separation und Halbwertsbreite. Die möglichst saubere Darstellung der schmalen Nebenmaxima kann in der Justierung der Magnetprismen zum Auffinden eines homogenen Feldbereichs verwendet werden.

Werden Neutronen an magnetischen Proben gestreut, tritt eine Überlagerung von nuklearer und magnetischer Streuung auf. Analog zur nuklearen Streulänge kann für die

6 Ultra-Kleinwinkelstreuung mit polarisierten Neutronen (PUSANS)

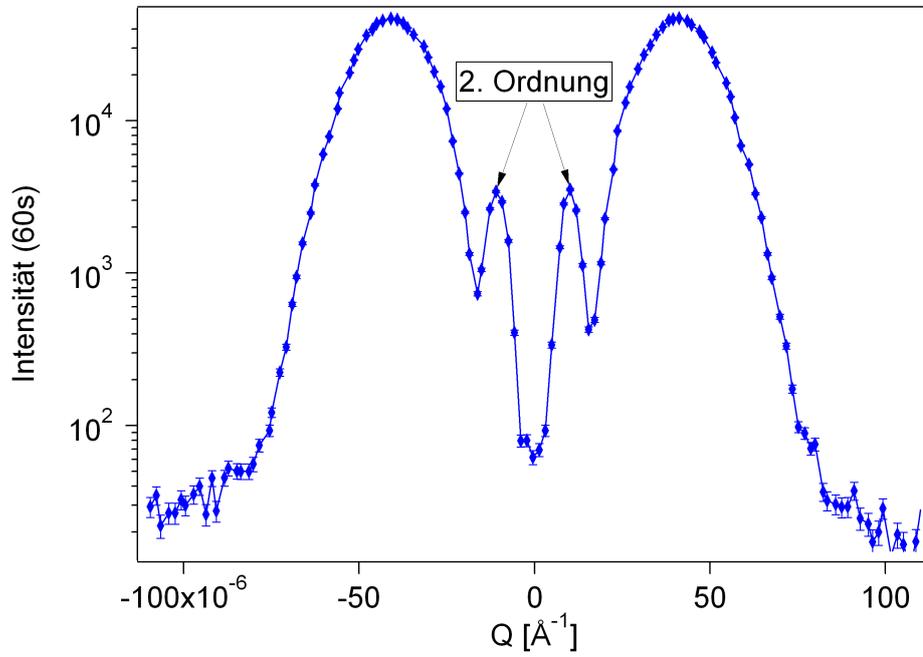


Abbildung 6.5: Beiträge der Wellenlänge 0.96 Å in der Leerkurve des PUSANS Experiments

Streulänge	Fe	Co	Ni
b_N [fm]	9.54	2.50	10.3
b_M [fm]	5.98	4.64	1.62

Tabelle 6.1: Einige magnetische und nukleare Streulängen, [Sears89]

6 Ultra-Kleinwinkelstreuung mit polarisierten Neutronen (PUSANS)

Wechselwirkung des magnetischen Moments des Neutrons mit den Hüllenelektronen magnetischer Atome eine magnetische Streulänge definiert werden. Neutronen werden entsprechend an magnetischen Strukturen im μm -Bereich zu Winkeln gestreut, die mit der PUSANS Technik aufgelöst werden können. Es kommt dabei zur Überlagerung der Streubeiträge aus nuklearer und magnetischer Streuung, so dass gilt:

$$I(Q) \propto \frac{d\sigma}{d\Omega} \propto (b_N + b_M \cos \alpha)^2 \quad (6.4)$$

α bezeichnet den Winkel zwischen der Polarisationsrichtung der Neutronen und der Magnetisierung der streuenden Struktur. Im Fall zufällig verteilter Magnetisierungsrichtungen in der Probe verschwindet der Interferenzterm. Nukleare und magnetische Streuintensitäten addieren sich, das Streubild in der PUSANS Messung ist in diesem Fall symmetrisch um $Q = 0$. Werden durch Anlegen eines äußeren Magnetfeldes an die Probe die magnetischen Strukturen ausgerichtet, kommt es zu spinabhängiger Interferenz zwischen der nuklearen und der magnetischen Streuamplitude:

$$I_{\uparrow\downarrow}(Q) \propto (b_N \pm b_M)^2 \quad (6.5)$$

Die Streuintensitäten für die beiden Polarisationsrichtungen unterscheiden sich abhängig von der Größe der magnetischen und nuklearen Streulänge. In unseren Messungen wurden die unmagnetisierten Proben durch Verwendung einer μ -Metallröhre gegen die Streufelder der Prismenmagneten abgeschirmt. Zur Magnetisierung konnte diese Abschirmung gegen einen Permanentmagneten getauscht werden. Die Interferenz von nuklearer und magnetischer Streuung konnte so sehr deutlich nachgewiesen werden, Abbildung 6.6.

Der Unterschied in den Streuintensitäten der beiden Polarisationsrichtungen ist umso höher, je ähnlicher die Werte der nuklearen und magnetischen Streulänge sind. Für die Messungen an Co-haltigen amorphen Drähten tritt die Asymmetrie entsprechend deutlich auf. Im Streubild eines metallischen Bandmaterials, Abbildung 6.7, dominieren offensichtlich magnetische Domänen das Streugeschehen in der unmagnetisierten Probe: Nach Anlegen eines äußeren Magnetfeldes an die Probe sinkt die Streuintensität für beide Polarisationsrichtungen stark ab. Offenbar wurden die magnetischen Domänen im μm -Bereich durch das Magnetfeld zu wesentlich größeren magnetischen Bereichen ausgerichtet, die kein Streusignal im Ultra-Kleinwinkelbereich liefern. Der Beitrag der nuklearen Streuung ist sehr gering, die Streuintensität der magnetisierten Probe liegt nur knapp über der Leerkurve des Instruments.

Für Nickel unterscheiden sich magnetische und nukleare Streulänge um fast eine Größenordnung. Entsprechend schwach fällt der Unterschied zwischen den Streuintensitäten für die beiden Spinrichtungen aus. Da hier durch die wesentlich größere Streulänge nukleare Streuung dominiert, kommt es zu einem nur geringen Unterschied zwischen den Streuintensitäten der magnetisierten und unmagnetisierten Probe, Abbildung 6.8.

6 Ultra-Kleinwinkelstreuung mit polarisierten Neutronen (PUSANS)

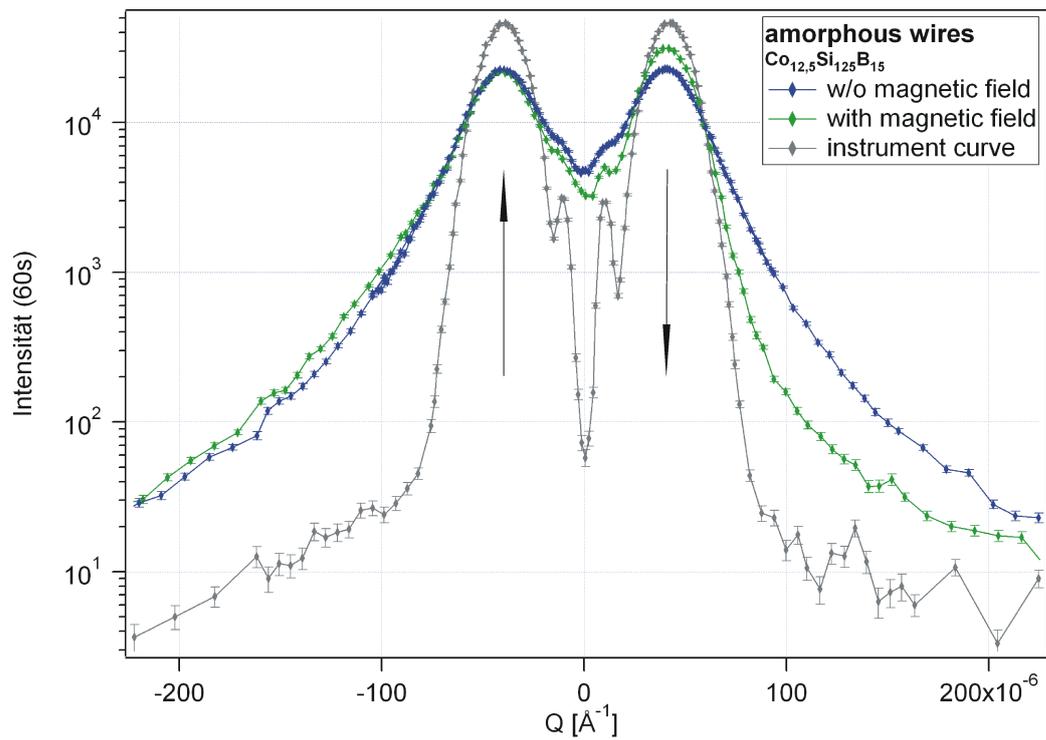


Abbildung 6.6: PUSANS Streukurven amorpher CoSiB Drähte. Symmetrisches Streubild ohne Magnetisierung der Probe. Deutlich unterschiedliche Streuintensitäten für die beiden Polarisationsrichtungen an der magnetisierten Probe.

6 Ultra-Kleinwinkelstreuung mit polarisierten Neutronen (PUSANS)

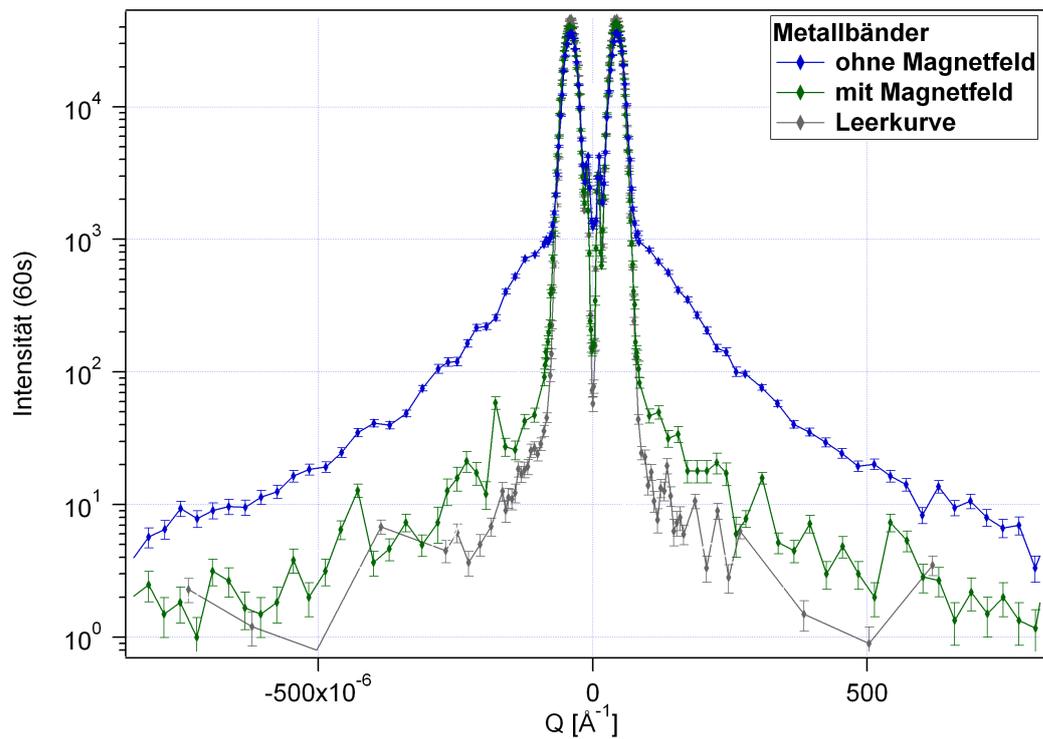


Abbildung 6.7: Metallisches Bandmaterial. Magnetische Streuung dominiert. Nukleare Streuung ist kaum vorhanden, zu erkennen an der niedrigen Streuintensität der magnetisierten Probe

6 Ultra-Kleinwinkelstreuung mit polarisierten Neutronen (PUSANS)

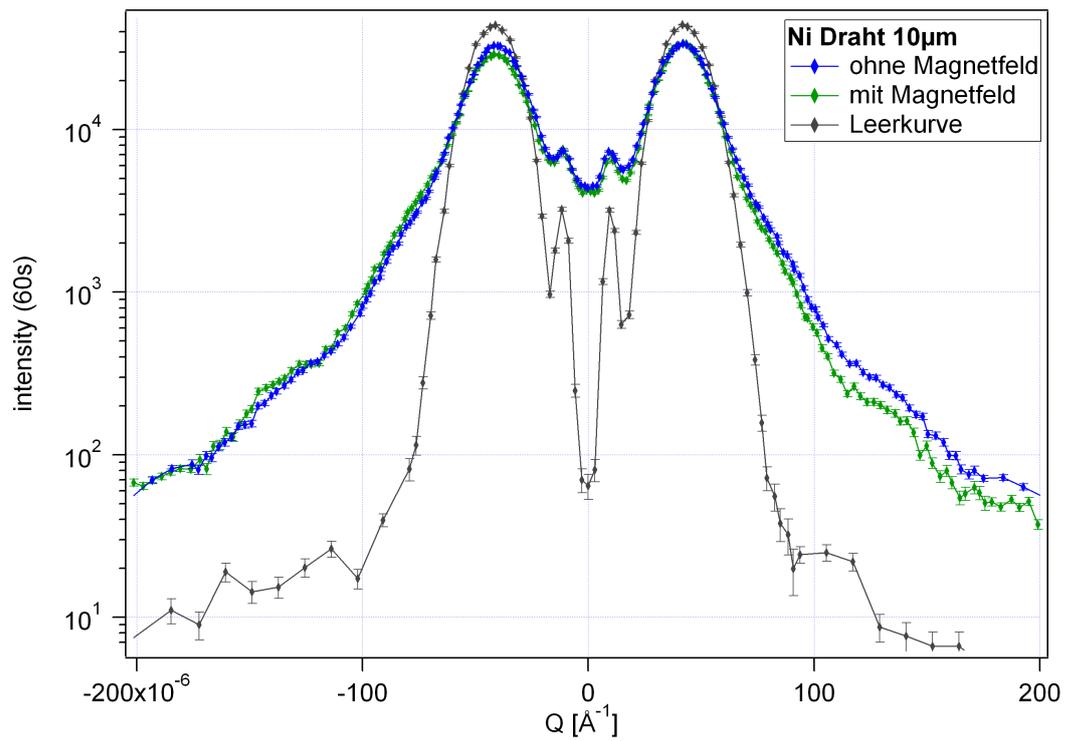


Abbildung 6.8: Nickeldrähte, Durchmesser $10\mu\text{m}$. Geringer Unterschied in den Streuintensitäten der beiden Spinrichtungen, entsprechend den stark unterschiedlichen Streulängen b_N, b_M

6 Ultra-Kleinwinkelstreuung mit polarisierten Neutronen (PUSANS)

Als Modellprobe wurde ein $10\ \mu\text{m}$ dicker Ni-Draht über zwei parallele Schrauben gewickelt. Im Strahl befinden sich insgesamt etwa 8 m Draht. Einen derart über zwei Schrauben geführten Draht verwendete übrigens Fraunhofer 1819 als Gitter für Beugungsexperimente mit Licht, [Guenther90] S 379. In den Streukurven ist schwach der Formfaktor eines Zylinders mit etwa $10\ \mu\text{m}$ Durchmesser zu erkennen.

Mit der Erweiterung der USANS Technik auf die Analyse magnetischer Strukturen steht eine potentiell sehr effiziente Methode zur Charakterisierung magnetischer Materialien zur Verfügung. Besonders hervorzuheben ist, dass das Streubild für beide Spinrichtungen der Neutronen ohne zusätzliche Komponenten in einer einzigen Messung bestimmt wird, wodurch systematische Fehler weitgehend reduziert werden. Die Methode steht erst am Anfang ihrer Entwicklung. Die hier präsentierten ersten Messungen zeigen das Potential des Verfahrens zur Charakterisierung magnetischer Strukturen.

7 Zusammenfassung

In dieser Arbeit wurden Strukturuntersuchungen an verschiedenen Materialien mit Methoden der Neutronen-Kleinwinkelstreuung präsentiert. Den Anfang der vorliegenden Arbeit bilden die zum Verständnis der Experimente notwendige Streutheorie von Neutronen an Strukturen in Festkörpern und entsprechende Streumodelle für Zwei-Phasen Systeme und poröse Medien.

Der für den Einsatz in künftigen Fusionskonzepten vorgesehene faserverstärkte keramische Verbundwerkstoff SiC/SiC_f wurde auf seine Beständigkeit gegen Hochdosisbestrahlung im Spallationstarget des Neutronenquelle SINQ am Paul Scherrer Institut, Schweiz, untersucht. Nach der sechzehnmonatigen Bestrahlung und einer etwa dreijährigen Abklingzeit der stark aktivierten Probe wurden Neutronen-Kleinwinkelmessungen (SANS) an der Anlage SANS-I derselben Einrichtung durchgeführt. Es konnten starke Strukturveränderungen im Größenbereich 1 nm und $0.1 \mu\text{m}$ nachgewiesen werden. Die Ergebnisse sollten Anlass zu weiteren Untersuchungen an diesen Werkstoffen geben, insbesondere zu Studien der mechanischen Eigenschaften der bestrahlten Probe. Weiterentwicklungen in den Herstellungsprozessen und der Zusammensetzung dieser Verbundwerkstoffe bringen möglicherweise eine Verbesserung der Strahlungsbeständigkeit mit sich, weitere Hochdosisbestrahlungen entsprechender Proben sollten folgen.

Für Ultra-Kleinwinkelstreuexperimente (USANS) wurden zur Überprüfung der Leistungsfähigkeit der verwendeten Anlagen und theoretischen Modelle spezielle Silizium-Phasengitter entwickelt. Dazu wurde ein Prozess für reaktives Ionenätzen (RIE) mit zusätzlicher Plasmaquelle (ICP) optimiert. Die Entwicklungsarbeit und die Herstellung selbst wurden vom Autor am Zentrum für Mikro- und Nanostrukturen (ZMNS) der Technischen Universität Wien durchgeführt. Die verwendeten Reinraumtechniken und Prozesse wurden beschrieben und die Ergebnisse mittels Scanning Electron Microscopy (SEM) dokumentiert. Es konnten modellhafte Proben mit gut bekannter Geometrie geschaffen werden, an denen umfangreiche Messungen am USANS Instrument S18 des Atominstinuts der Österreichischen Universitäten am Institut Laue-Langevin in Grenoble durchgeführt wurden. Im Rahmen einer Kooperation mit der Technischen Universität Delft wurden mehrere dieser Proben auch mit der neuentwickelten Technik der Spin-Echo Kleinwinkelstreuung von Neutronen (SESANS) untersucht. Die Ergebnisse von SESANS- und USANS-Experiment stimmen in schlagender

7 Zusammenfassung

Weise überein. Es konnte damit die Komplementarität der beiden Methoden nachgewiesen werden.

Ein Verfahren zur direkten Rekonstruktion eindimensionaler Streulängendichteverteilungen wurde an USANS Messdaten der Siliziumgitter getestet. Entsprechende Programmcodes wurden erstellt. Es konnte gezeigt werden, dass die Methode auf USANS Daten anwendbar und für diese spezielle Art von Struktur dem Weg der Modellbildung überlegen ist. Die rekonstruierten Profilformen stimmen gut mit den entsprechenden elektronenmikroskopischen Aufnahmen überein.

Eine neue Methode zur Untersuchung magnetischer Strukturen in Festkörpern wurde zum ersten Mal experimentell vollständig umgesetzt. Die Ultra-Kleinwinkelstreuung polarisierter Neutronen (PUSANS) konnte am Instrument S18 durch Erweiterung des konventionellen USANS Aufbaus realisiert werden. Durch die Nutzung magnetischer Prismen zur verlustfreien Polarisierung und winkelmäßigen Separation von Neutronen wurde die Möglichkeit geschaffen, die Streuung an magnetischen Strukturen getrennt nach Spinrichtung zu untersuchen. Die Methode liefert Aufschluss über magnetische Strukturen im μm -Bereich. Das Potential der Methode wurde an mehreren Proben mit sehr unterschiedlichem Streuverhalten demonstriert und eine qualitative Interpretation dieser ersten Messungen gegeben.

Literaturverzeichnis

- [Agamalian97] M. Agamalian, G. Wignall, R. Triolo, *Optimization of a Bonse-Hart Ultra-Small-Angle Neutron Scattering Facility by Elimination of the Rocking-Curve Wings*, Journal of Applied Crystallography **30** (1997) 345–352.
- [Agamalian98a] M. Agamalian, G. Wignall, R. Triolo, *Recent developments in ultra-small-angle neutron scattering techniques*, Neutron News **9** (1998) 24.
- [Agamalian98b] M. Agamalian, D. Christen, A. Drews, C. Glinka, H. Matsuoka, G. Wignall, *Surface-Induced Parasitic Scattering in Bonse-Hart Double-Crystal Diffractometers*, Journal of Applied Crystallography **31** (1998) 255–240.
- [Aiello00] G. Aiello, H. Golfier, J.-F. Maire, Y. Poitevin, J.-F. Salavy, *Modeling of SiC/SiC_f composite structures for nuclear components*, Fusion Engineering and Design **51–52** (2000) 73–79.
- [Badurek79] G. Badurek, H. Rauch, A. Wilfing, U. Bonse, W. Graeff, *A Perfect-Crystal Neutron Polarizer as an Application of Magnetic Prism Refraction*, Journal of Applied Crystallography **12** (1979) 186–191.
- [Badurek00] G. Badurek, R. Buchelt, G. Kroupa, M. Baron, M. Villa, *Permanent magnetic field-prism polarizer for perfect crystal neutron interferometers*, Physica B **283** (2000) 389–392.
- [Bastürk06] M. Bastürk, Y. Dai, H. Rauch, M. Trinker, *Radiation-induced structural changes in highly irradiated N3-1 SiC/SiC_f composite*, submitted to: Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A .
- [Bonse65] U. Bonse, M. Hart, *Tailless X-ray single-crystal reflection curves*

Literaturverzeichnis

- obtained by multiple reflection*, Applied Physics Letters **7** (1965) 238–240.
- [Born99] M. Born, E. Wolf, *Principles of Optics*, Cambridge University Press, 1999.
- [Bouwman05] W. Bouwman, T. Kruglov, J. Plomp, M. Rekveldt, *Spin-echo methods for SANS and neutron reflectometry*, Physica B **357** (2005) 66–72.
- [Byrne94] J. Byrne, *Neutrons, Nuclei and Matter*, Institute of Physics Publishing, Bristol and Philadelphia, 1994.
- [Cardinaud00] C. Cardinaud, M.-C. Peignon, P.-Y. Tessier, *Plasma etching: principles, mechanisms, application to micro- and nano-technologies*, Applied Surface Science **164** (2000) 72–83.
- [Crowther69] R. Crowther, *The Use of Non-Crystallographic Symmetry for Phase Determination*, Acta Crystallographica B **25** (1969) 2571–2580.
- [Dai05] Y. Dai, X. Jia, R. Thermer, D. Hamaguchi, K. Geissmann, E. Lehmann, H. Linder, M. James, F. Gröschel, W. Wagner, G. Bauer, *The second SINQ target irradiation program, STIP-II*, Journal of Nuclear Materials **343** (2005) 33–44.
- [Debye57] P. Debye, H. Anderson, H. Brumberger, *Scattering by an Inhomogeneous Solid. II. The Correlation Function and Its Application*, Journal of Applied Physics **28** (1957) 679–683.
- [Eder89] K. Eder, M. Gruber, A. Zeilinger, R. Gähler, W. Mampe, W. Drexel, *The new very-cold-neutron optics facility at ILL*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A **284** (1989) 171–175.
- [Feigin87] L. A. Feigin, D. Svergun, *Structure Analysis by Small-Angle X-Ray and Neutron Scattering*, Plenum Press, New York and London, 1987.
- [Fermi36] E. Fermi, *Sul moto dei neutroni nelle sostanze idrogenate*, Ricerca Scientifica **7** (1936) 13–52, Englische Übersetzung in: E. Fermi, Collected papers, Vol. I, Italy 1921–1938, Univ. of Chicago Press, Chicago, 1962, 980.

Literaturverzeichnis

- [Giancarli02] L. Giancarli, H. Golfier, S. Nishio, R. Raffray, C. Wong, R. Yamada, *Progress in blanket design using SiC/SiC_f composites*, Fusion Engineering and Design **61–62** (2002) 307–318.
- [Glatter81] O. Glatter, *Convolution Square Root of Band-Limited Symmetrical Functions and its Application to Small-Angle Scattering Data*, Journal of Applied Crystallography **14** (1981) 101–108.
- [Guenther90] R. Guenther, *Modern Optics*, John Wiley & Sons, New York, 1990.
- [Guinier55] A. Guinier, G. Fournet, C. Walker, K. Yudowitch, *Small-Angle Scattering of X-rays*, John Wiley & Sons, New York, 1955.
- [Hainbuchner00] M. Hainbuchner, *Dissertation: Ultra-Kleinwinkelstreuung von Neutronen an strukturierten Materialien*, Technische Universität Wien, 2000.
- [Hainbuchner01] M. Hainbuchner, M. Villa, M. Baron, J. Kohlbrecher, H. Rauch, *Results of small and ultra small angle neutron scattering investigations on SiC/SiC_f ceramic composite materials*, Conference Proceedings of the 4th IEA Workshop, Frascati, Italy (2001) p. 237.
- [Hosemann62] R. Hosemann, S. Bagchi, *Direct Analysis of Diffraction by Matter*, North Holland Publishing Company, Amsterdam, 1962.
- [Jansen01] H. Jansen, M. de Boer, H. Wensink, B. Kloeck, M. Elwenspoek, *The black silicon method. VIII. A study of the performance of etching silicon using SF₆/O₂-based chemistry with cryogenical wafer cooling and a high density ICP source*, Microelectronics Journal **32** (2001) 769–777.
- [Jericha03] E. Jericha, M. Baron, M. Hainbuchner, R. Loidl, M. Villa, H. Rauch, *Ultra-small-angle neutron scattering studies of artificial lattices*, Journal of Applied Crystallography **36** (2003) 778–782.
- [Keiderling00] U. Keiderling, *BerSANS Data Reduction Manual*, HMI Berlin, 2000.
- [Kurz69] H. Kurz, H. Rauch, *Beugung thermischer Neutronen an einem Strichgitter*, Zeitschrift für Physik **220** (1969) 419–426.

Literaturverzeichnis

- [Littrell04] K. Littrell, W. Lee, *A method for polarization control and analysis on Bonse–Hart double-crystal USANS instruments*, *Physica B* **345** (2004) 246–249.
- [Makowski81] L. Makowski, *The Use of Continuous Diffraction Data as a Phase Constraint. I. One-Dimensional Theory*, *Journal of Applied Crystallography* **14** (1981) 160–168.
- [Pape78] E. Pape, W. Kreutz, *A Deconvolution Method for Evaluating Small-Angle X-ray Scattering from Lamellar Structures*, *Journal of Applied Crystallography* **11** (1978) 421–429.
- [Perez Ramirez96] A. Perez Ramirez, A. Caso, L. Giancarli, N. Le Bars, G. Chaumat, J. Salavy, J. Szczepanski, *TAURO: A ceramic composite structural material self-cooled Pb-17Li breeder blanket concept*, *Journal of Nuclear Materials* **233–237** (1996) 1257–1261.
- [Porod51] G. Porod, *Die Röntgenkleinwinkelstreuung von dichtgepackten kolloiden Systemen*, *Kolloid Zeitschrift* **124** (1951) 83–114.
- [Raffray01] A. Raffray, R. Jones, G. Aiello, M. Billone, L. Giancarli, H. Gollfier, A. Hasegawa, Y. Katoh, A. Kohyama, S. Nishio, B. Riccardi, M. Tillak, *Design and material issues for high performance SiC/SiC_f-based fusion power cores*, *Fusion Engineering and Design* **55** (2001) 55–95.
- [Rauch76] H. Rauch, D. Petraschek, *Grundlagen für ein Neutronen-Interferometer, Teil 1, Dynamische Beugung, 3. Auflage*, AIAU 74405b, 1976.
- [Rauch78] H. Rauch, D. Petraschek, *in: Neutron Diffraction. Ed. H. Dachs, Kapitel 9*, Springer Verlag, Berlin, 1978.
- [Rauch00a] H. Rauch, W. Waschkowski, *Neutron Scattering Lengths*, in: Landolt-Boernstein, Vol. I/16A, Springer Verlag, Berlin, 2000.
- [Rauch00b] H. Rauch, S. Werner, *Neutron Interferometry*, Clarendon Press, Oxford, 2000.
- [Rekveltdt96] M. Rekveltdt, *Novel SANS instrument using Neutron Spin Echo*, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* **114** (1996) 366–370.

Literaturverzeichnis

- [Rekveldt03] M. Rekveldt, W. Bouwman, W. Kraan, O. Uca, S. Grigoriev, K. Habicht, T. Keller, *Elastic Neutron Scattering Measurements Using Larmor Precession of Polarized Neutrons*, in: Neutron Spin Echo, Lecture Notes in Physics 601 87-99, Ed. by F. Mezei, C. Pappas and T. Gutberlet, Springer Verlag Berlin Heidelberg, 2003.
- [Riccardi04] B. Riccardi, L. Giancarli, A. Hasegawa, Y. Katoh, A. Kohyama, R. Jones, L. Sneed, *Issues and advances in SiC/SiC_f composites development for fusion reactors*, Journal of Nuclear Materials **329–333** (2004) 56–65.
- [Schaefer04] D. Schaefer, M. Agamalian, *Ultra-small-angle neutron scattering: a new tool for materials research*, Current Opinion in Solid State and Materials Science **8** (2004) 39–37.
- [Schwahn85] D. Schwahn, A. Miksovsky, H. Rauch, E. Seidl, G. Zugarek, *Test of channel-cut perfect crystals for neutron small angle scattering experiments*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A **239** (1985) 229–234.
- [Sears89] V. F. Sears, *Neutron Optics*, Oxford University Press, 1989.
- [Shull69] C. Shull, *Single-Slit Diffraction of Neutrons*, Physical Review **179** (1969) 752–754.
- [Svergun84] D. Svergun, L. Feigin, *The Solution of the One-Dimensional Sign Problem for Fourier Transforms*, Acta Crystallographica A **40** (1984) 137–142.
- [Wagh04] A. Wagh, V. Rakhecha, M. Strobl, W. Treimer, *A polarised SUS-ANS facility to study magnetic systems*, Pramana Journal of Physics **63** (2004) 369–373.
- [Walker01] M. J. Walker, *Comparison of Bosch and cryogenic processes for patterning high aspect ratio features in silicon*, Proceedings SPIE The International Society for Optical Engineering **4407** (2001) 88–98.
- [Wignall87] G. Wignall, F. Bates, *Absolute Calibration of Small-Angle Neutron Scattering Data*, Journal of Applied Crystallography **20** (1987) 28–40.

Literaturverzeichnis

- [Zachariasen67] W. Zachariasen, *Theory of X-ray diffraction in crystals*, Dover Publishing Inc., 1967.
- [Zeilinger88] A. Zeilinger, R. Gähler, C. Shull, W. Treimer, W. Mampe, *Single- and double-slit diffraction of neutrons*, *Reviews of Modern Physics* **60** (1988) 1067–1073.

Lebenslauf

Geburtsdatum 20. Juli 1970
Geburtsort Radstadt
Staatsangehörigkeit Österreich

Schulbildung

1980 – 1981 Hauptschule Stadl/Mur
1981 – 1989 Gymnasium Tamsweg
Juni 1989 Matura

Hochschulbildung

1989 – 1990 Universität Wien: Studium der Philosophie
1990 – 1999 Universität Wien: Studium der Physik und der Mathematik
1994 – 1995 Rijksuniversiteit Groningen, Niederlande: Erasmus Auslandsstipendium für Physik
Juli 1999 Mag.rer.nat.
seit 2003 Technische Universität Wien: Doktoratsstudium der Technischen Wissenschaften

Zivildienst

1997 – 1998 Universitätsklinik für Radiodiagnostik, AKH Wien

Berufslaufbahn

1999 – 2001 Medtronic Österreich GmbH, Abteilung Vascular, Gebietsleiter Ostösterreich
2001 – 2003 Consulting im medizinisch-technischen Bereich, längere private Auslandsreisen
seit 2003 Atominstitut der Österreichischen Universitäten, Technische Universität Wien: Projektassistent im Bereich Neutronenoptik
11/2005 – 12/2005 Visiting Scientist am Weizmann Institute of Science, Israel