

Oliver Kormann

---

**Hochfrequenz-Untersuchungen  
an paramagnetischen und diamagnetischen  
Myonenspezies in Silizium**

---



Cuvillier Verlag Göttingen

# **Hochfrequenz-Untersuchungen an paramagnetischen und diamagnetischen Myonenspezies in Silizium**

Von der Fakultät Mathematik und Physik der Universität Stuttgart  
zur Erlangung der Würde eines Doktors der Naturwissenschaften (Dr. rer. nat.)  
genehmigte Abhandlung

vorgelegt von

**Dipl.-Phys. Oliver Kormann**

aus Stuttgart

Hauptberichter: Prof. Dr. Hans-Eckhardt Schaefer

Mitberichter: Prof. Dr. Dieter Schweitzer

Tag der mündlichen Prüfung: 17. Mai 2004

Institut für Theoretische und Angewandte Physik  
der Universität Stuttgart

Max-Planck-Institut für Metallforschung Stuttgart

### **Bibliografische Information Der Deutschen Bibliothek**

Die Deutsche Bibliothek verzeichnet diese Publikation in der Deutschen Nationalbibliografie; detaillierte bibliografische Daten sind im Internet über <http://dnb.ddb.de> abrufbar.

1. Aufl. - Göttingen : Cuvillier, 2004  
Zugl.: Stuttgart, Univ., Diss., 2004  
ISBN 3-86537-112-4

© CUVILLIER VERLAG, Göttingen 2004  
Nonnenstieg 8, 37075 Göttingen  
Telefon: 0551-54724-0  
Telefax: 0551-54724-21  
[www.cuvillier.de](http://www.cuvillier.de)

Alle Rechte vorbehalten. Ohne ausdrückliche Genehmigung des Verlages ist es nicht gestattet, das Buch oder Teile daraus auf fotomechanischem Weg (Fotokopie, Mikrokopie) zu vervielfältigen.

1. Auflage, 2004  
Gedruckt auf säurefreiem Papier

ISBN 3-86537-112-4

---

## Kurzzusammenfassung

Mit dem Aufbau eines Hochfrequenz-Myonenspin-Resonanz (HF $\mu$ SR)-Spektrometers mit hoher Zeitauflösung am quasikontinuierlichen Myonenstrahl des Paul Scherrer Institutes [PSI 1994] war das Hauptziel dieser Arbeit. Das neue Spektrometer ist die Weiterentwicklung einer von Schmidl [Schmidl 1997] aufgebauten  $\mu$ SR-Apparatur, bei der die zur Erzeugung und Verarbeitung von Histogrammen benötigte Auswertelogik erstmals mit Hilfe von Software durchgeführt wurde [Major 2000] und nicht wie bisher über aufwändige elektronische Schaltungen. Neben dem Aufbau des kompletten Hochfrequenzteiles der Apparatur lag einer der Schwerpunkte in der Entwicklung einer, in ihrer Magnetfeldhomogenität stark verbesserten, in die Probenhalterung integrierten HF-Spule, die gleichzeitig Tieftemperaturbeständigkeit, eine hohe Überschlagsfestigkeit und konstruktionsmäßige Stabilität bei einfachem Probenwechsel aufwies. Die Ansteuerung und Überwachung der gesamten Hochfrequenz-Anlage wurde in das Messprogramm "Gustav" integriert.

Ein Auswerteprogramm, das auf die bewährte Minuit-Routine des CERN [MINUIT] zurückgreift, wurde entwickelt. Bei der Anpassung der Messdaten wurde die auch bei geringen Kanalinhalt exakte Poissonverteilung [Baker 1984] statt der traditionell verwendeten Gaußverteilung benutzt. Damit kann der zeitunabhängige Untergrund in den Histogrammen genauer bestimmt werden. Das führt zu einer verbesserten Empfindlichkeit und damit kürzeren Messzeit.

Erstmals konnte eine systematische HF $\mu$ SR-Untersuchung der drei Myonenspezies  $\mu^d$ ,  $\text{Mu}_T$  und  $\text{Mu}_{BC}$  an unterschiedlich dotierten und nach unterschiedlichen Ziehverfahren (FZ: Float-Zone-, CZ: Czochralski-Verfahren) gezogenen Siliziumkristallen durchgeführt werden. Dazu stand eine Probenserie der Firma Wacker Siltronic AG bestehend aus den drei FZ-Proben Si(i)-FZ, Si(B)-FZ, Si(P)-FZ und den drei CZ-Proben Si(i)-CZ, Si(B)-CZ, Si(P)-CZ zur Verfügung. Das Ziehverfahren der Siliziumkristalle wirkt sich hauptsächlich auf den in der Probe enthaltenen Sauerstoffgehalt aus, womit nicht nur die Abhängigkeit der Bildung und Dynamik der Myonenspezies  $\mu^d$ ,  $\text{Mu}_T$  und  $\text{Mu}_{BC}$  von der Dotierung (intrinsisch, p- und n-leitend), sondern auch im Zusammenhang mit dem Sauerstoffgehalt in der Probe untersucht werden konnten.

Die in Transversalfeld-Myonenspin-Rotations (TF $\mu$ SR)-Messungen auftretende "missing fraction" in den dotierten Proben Si(B)-FZ und Si(P)-FZ konnte mit HF $\mu$ SR-Experimenten größtenteils auf  $\text{Mu}_T$  und  $\mu^d$  zurückgeführt werden. Daraus ergaben sich neue Erkenntnisse über die Dynamik der Myonenspezies  $\text{Mu}_T$  und  $\mu^d$  und die Prozesse bei der Bildung diamagnetischer  $\text{Mu}_T$ -Dotieratomkomplexe ( $\mu^d$ ). Vor diesem Hintergrund konnte die bereits bestehende Theorie [Kreitzman 1995, Scheuermann 1997, Hitti 1999] entscheidend erweitert werden.

Der Sauerstoff wirkt unterhalb von 50 K in allen CZ-Proben als Haftstelle für  $\text{Mu}_T$  und unterdrückt in den dotierten Proben Si(B)-CZ und Si(P)-CZ die Prozesse zur verzögerten Bildung diamagnetischer  $\text{Mu}_T$ -Dotieratomkomplexe. Dabei behält  $\text{Mu}_T$  seinen paramagnetischen Charakter, verliert aber durch Spinaustauschprozesse die Spinphasenkohärenz. Eine weitere Folge ist in allen CZ-Proben eine leichte Anhebung der instantanen Bildungswahrscheinlichkeit von  $\mu^d$ . Oberhalb von 50 K hat der Sauerstoff hingegen nahezu keinen Einfluss auf das Verhalten und die Dynamik der Myonenspezies  $\text{Mu}_T$  und  $\mu^d$ , da  $\text{Mu}_T$  genügend Energie besitzt den Haftstellen zu entkommen.

---

# Inhaltsverzeichnis

<b>1. Einleitung</b>	<b>5</b>
<b>2. Grundlagen der Myonenspektroskopie</b>	<b>11</b>
2.1. Myonen .....	11
2.2. Produktion und Zerfall positiver Myonen .....	12
2.3. Prinzip der Myonenspektroskopie .....	14
2.4. $\mu$ SR Methoden .....	17
2.4.1. Transversalfeld-Myonenspin-Rotation .....	19
2.4.2. Longitudinalfeld-Myonenspin-Relaxation .....	22
2.4.3. Hochfrequenz-Myonenspin-Resonanz .....	24
<b>3. Myonen in Silizium</b>	<b>31</b>
3.1. Wasserstoff und Myonen in Halbleitern .....	31
3.2. Paramagnetische Myonenspezies .....	33
3.2.1. Normales Myonium ( $\text{Mu}_T$ ) .....	36
3.2.2. Anomales Myonium ( $\text{Mu}_{BC}$ ) .....	38
3.3. Diamagnetische Myonenspezies .....	39
3.4. Stabilität und Dynamik von Myonenspezies .....	41
3.5. Temperaturabhängigkeit .....	43
<b>4. Hochfrequenz-Myon-Spin-Resonanz an Myonium</b>	<b>45</b>
4.1. Resonanzfrequenzen .....	45
4.2. Resonanzen von $\text{Mu}_T$ .....	46
4.3. Resonanzen von $\text{Mu}_{BC}$ .....	50
4.4. Leistungsabhängigkeit .....	54
4.5. Zeitdifferentielle HF $\mu$ SR an Myonium .....	57
4.6. Einfluss der Dynamik in der HF $\mu$ SR .....	60

<b>5. Experimentelles</b>	<b>65</b>
5.1. Der Versuchsablauf .....	66
5.2. Signalverarbeitung und Messelektronik .....	67
5.3. Die Hochfrequenzsteuerung .....	69
5.4. Der Hochfrequenzversuchsaufbau .....	71
5.4.1. Probenkopf .....	74
5.4.2. Hochfrequenzspule .....	76
5.4.3. Auskoppelspule .....	79
5.5. Auswertung .....	80
<b>6. Experimentelle Ergebnisse und Diskussion</b>	<b>85</b>
6.1. Probencharakterisierung .....	85
6.2. Einfluss der Dotierung .....	86
6.2.1. Messungen an Si(i)-FZ .....	88
6.2.2. Messungen an Si(B)-FZ .....	91
6.2.3. Messungen an Si(P)-FZ .....	94
6.3. Diskussion des Einflusses der Dotierung .....	97
6.4. Einfluss des Sauerstoffes .....	103
6.4.1. Messungen an Si(i)-CZ .....	104
6.4.2. Messungen an Si(B)-CZ .....	109
6.4.3. Messungen an Si(P)-CZ .....	114
6.5. Diskussion des Einflusses des Sauerstoffes .....	119
6.6. Die wichtigsten Ergebnisse im Überblick .....	125
6.6.1. Die intrinsischen Proben .....	125
6.6.2. Die bor-dotierten Proben .....	127
6.6.3. Die phosphor-dotierten Proben .....	128
<b>7. Zusammenfassung</b>	<b>129</b>
<b>8. Literatur</b>	<b>135</b>



# 1. Einleitung

Wasserstoff spielt bei der technischen Anwendung von Halbleitern, der Herstellung von elektronischen Bauelementen, eine wichtige Rolle. Er ist bei deren Produktion in vielen Prozessschritten anwesend, speziell beim vielfachen Ätzen mit wässrigen Lösungen und Säuren. Daher besteht ein essentielles Interesse daran zu wissen, welche Auswirkungen der Wasserstoff im Halbleiter auf dessen Eigenschaften wie zum Beispiel die Leitfähigkeit und deren Temperaturverhalten hat.

Es ist seit einiger Zeit bekannt, dass Wasserstoff, trotz seiner geringen Löslichkeit, im Halbleiter Störstellen passivieren [Pankove 1991, Pearton 1992] oder in bestimmten Temperaturbereichen die Sauerstoffdiffusion durch eine "katalytische Wirkung" stark beschleunigen kann [Murray 1991, Myers 1992]. Dabei sind jedoch die zu Grunde liegenden Prozesse oft noch nicht ganz verstanden, nicht zuletzt auch wegen der Schwierigkeiten, Wasserstoff in sehr geringer Konzentration mit herkömmlichen Methoden wie der Elektronenspinresonanz (ESR) oder der Infrarotabsorption (IR) zu untersuchen. Das Empfindlichkeitsproblem der klassischen Methoden kann aber durch Messungen an protonenbestrahlten Proben mit einer deutlich erhöhten Protonenkonzentration umgangen werden [Bech Nielsen 1997]. Dazu ist jedoch eine hohe Strahlendosis notwendig, welche eine große Strahlenschädigung der Probe mit sich bringt. Durch die damit verbundene hohe Anreicherung mit Wasserstoff kann es aber zu Agglomerationen von Wasserstoff in der Probe kommen. Die durch die Protonenbestrahlung erzeugten Agglomerationen und Strahlenschäden müssen bei der Betrachtung der Ergebnisse berücksichtigt werden. Dabei ist eine Unterscheidung zwischen Strahlenschädigung und intrinsischen Probeneigenschaften oft nicht mehr möglich.

Ein Ausweg ergibt sich, wenn man positive Myonen ( $\mu^+$ ) anstelle von Wasserstoff, bzw. Protonen einsetzt. Mit der damit verbundenen Myonenspektroskopie [Patterson 1988, Schenk 1985] befasst sich diese Arbeit. Aufgrund ihrer Eigenschaften, die im Folgenden dargestellt werden, können positive Myonen als hochempfindliche Sonden für lokale Magnetfelder in kondensierter Materie, im vorliegenden Fall Halbleitern, eingesetzt werden. Die positiven Myonen können dabei gleichzeitig als Ersatz für Protonen angesehen werden, da beide Teilchen hinsichtlich aller relevanten Wechselwirkungen mit kondensierter Materie sehr große Ähnlichkeiten aufweisen. Dadurch, dass die Detektion einzelner Myonen und deren Zerfallsprodukte (Positronen) möglich ist, ist die Strahlenschädigung der Probe bei der Verwendung von Myonen viel geringer als im Fall von Protonen und fast immer vernachlässigbar.

Das Myon gehört zur Familie der Leptonen [Lohrmann 1990] und besitzt einen Spin ( $1/2$ ), und damit verbunden ein magnetisches Moment. Zudem ist eine nahezu 100% spinpolarisierte Erzeugung eines Myonenstrahles möglich. Die Myonen zerfallen mit einer mittleren Lebensdauer von  $\tau = 2,197 \mu\text{s}$ , wobei die



---

Wahrscheinlichkeitsverteilung für die Emissionsrichtung des Zerfallspositrons mit der momentanen Spinorientierung des Myons zum Zerfallszeitpunkt korreliert ist. Unter Nutzung dieser Eigenschaften haben sich verschiedene Meßmethoden, Myonenspin-Rotation, -Relaxation und -Resonanz entwickelt, welche alle unter dem Begriff  $\mu$ SR zusammengefaßt werden. Aus genannten  $\mu$ SR-Experimenten sind Informationen extrahierbar, welche denen entsprechen, die mit der ESR oder der NMR (Kernspinresonanz, Nuclear Magnetic Resonance) gewonnen werden können. Zum Beispiel Informationen über lokale Magnetfelder, räumliche Magnetfeldverteilungen und zeitliche Fluktuationen magnetischer Wechselwirkungen. Daraus können dann weitere Informationen über die untersuchten Substanzen und das Verhalten von  $\mu^+$  in diesen gewonnen werden.

Der Vorteil der  $\mu$ SR-Techniken ist deren hohe Empfindlichkeit, welche durch den Nachweis einzelner Myonen und deren Zerfallspositronen mit kernphysikalischen Methoden entsteht. Ein auswertbares Signal wird in zeitdifferentiellen  $\mu$ SR-Experimenten aus  $10^6$  bis  $10^8$  nacheinander implantierten Myonen in Form von Zeithistogrammen erhalten. Dabei wird die Zeit zwischen der Myonenimplantation und der Registrierung des Zerfallspositrons gemessen. Weiterhin wird die Emissionsrichtung des Zerfallspositrons mit verschiedenen Detektoren bestimmt. Aus dieser ergibt sich die Orientierung des Myonenspins zum Zeitpunkt des Zerfalls.

Das Myon ist keine passive Sonde, da es wie das Proton einfach positiv geladen ist. Durch die positive Ladung wird das Elektronensystem allerdings in der Umgebung des Myons stark gestört. Im Zusammenhang mit dieser Arbeit ist dies aber eine erwünschte Störung, denn sie entspricht ziemlich genau der Störung, die Protonen, d. h. Wasserstoffkerne, im Halbleiter erzeugen. Das Myon kann im Halbleiter, genau wie ein Proton, ein Elektron einfangen und ein wasserstoffähnliches System mit der Bezeichnung Myonium bilden. Da die Masse des Myons ( $m_\mu \approx 1/9 m_p \approx 207 m_e$ ) groß gegenüber der des Elektrons ( $m_e$ ) ist ( $m_p$  ist die Protonenmasse), ergibt sich für das Myonen-Elektronensystem praktisch die gleiche reduzierte Masse wie für das Protonen-Elektronensystem. Damit besitzt Myonium die gleichen elektronischen Eigenschaften wie Wasserstoff. Je nachdem, wie das Myon bzw. Myonium im Halbleiter eingebaut wird, ergeben sich verschiedene Myonenspezies. Die paramagnetischen Spezies besitzen einen ungepaarten Elektronenspin, wohingegen diamagnetische Spezies nur gepaarte Elektronenspins aufweisen.

Stellvertretend für die klassischen Element-Halbleiter beschränkt sich diese Arbeit auf Silizium. In Silizium existieren zwei paramagnetische Hauptmyonenspezies,  $\text{Mu}_T$  und  $\text{Mu}_{BC}$ .  $\text{Mu}_T$  befindet sich im Si-Kristall auf einem Tetraederplatz und besitzt eine große isotrope Hyperfeinwechselwirkung, während sich  $\text{Mu}_{BC}$  in der Mitte einer Si-Si-Bindung (Bond Center) befindet und eine deutlich kleinere und stark anisotrope Hyperfeinwechselwirkung zeigt [Patterson 1988, Schenk 1985]. Hinter der diamagnetischen Myonenspezies  $\mu^d$  können ganz verschiedene Konfigurationen stecken, da diese durch die gepaarten Elektronen-

spins praktisch identische Signale liefern. So kann zum Beispiel eine Bindung von Myonium an eine Störstelle mit Absättigung des ungepaarten Elektrons zu einem diamagnetischen Myonium-Störstellen-Komplex führen. Auch eine Änderung des Ladungszustandes von Myonium ( $\text{Mu}_T^-$ ,  $\text{Mu}_{\text{BC}}^+$ , etc.), unter Umständen verbunden mit einem Platzwechsel, führt zu einer diamagnetischen Myonenspezies. Es wurden noch zwei weitere paramagnetische Spezies in Silizium gefunden ( $\text{Mu}_V$ ,  $\text{Mu}_{\text{OX}}$ ) [Schefzik 2000a, Schefzik 2000b], welche aber nur unter ganz spezifisch gewählten Bedingungen in Erscheinung treten und in dieser Arbeit nur am Rande betrachtet werden.

Trotz einer Vielzahl von  $\mu\text{SR}$ -Untersuchungen, die dem Studium verschiedener Einflüsse wie z. B. Temperatur, Dotierung, Beleuchtung und Strahlenschädigung auf das statische und dynamische Verhalten (z. B. Umwandlungsreaktionen, Locheinfang, etc.) der verschiedenen Myonenspezies in Silizium gewidmet waren [Major 1992, Iwanowski 1993, Kreitzman 1995, Scheuermann 1997], ist noch vieles unverstanden oder nicht abschließend geklärt. Ein Grund ist ein Defizit in der am häufigsten eingesetzten  $\mu\text{SR}$ -Technik, der Transversalfeld-Myonen-Spin-Rotation ( $\text{TF}\mu\text{SR}$ ). Bei der  $\text{TF}\mu\text{SR}$  wird ein Magnetfeld transversal zur wohldefinierten Orientierung der Myonenspins zum Zeitpunkt der Implantation angelegt. Die Myonenspins präzedieren dann unter dem Einfluss des angelegten Magnetfeldes und innerer Magnetfelder, erzeugt z. B. durch die Hyperfeinwechselwirkung. Das gesamte Präzessionssignal im Histogramm entsteht durch die Summation über die Beiträge von verschiedenen nacheinander implantierten Myonen. Eine Voraussetzung für die Detektion eines Signales ist jedoch, dass die Spinphasenkohärenz nicht zu stark gestört ist. D. h. die Myonenspinorientierung für verschiedene nacheinander implantierte Myonen muss sich im gleichen Zeitraum (ab der Implantation gemessen) um etwa den gleichen Winkel drehen. Mögliche Gründe für einen Verlust der Spinphasenkohärenz sind räumliche Verteilungen der inneren lokalen Magnetfelder, zeitliche Fluktuationen lokaler Magnetfelder, oder stochastische Umwandlungen zwischen Spezies mit unterschiedlichen Hyperfeinwechselwirkungen. Der Verlust der Spinphasenkohärenz kann dazu führen, dass ein beträchtlicher Anteil der implantierten Myonen nicht zum Signal beiträgt, was zu einer sogenannten "missing fraction" führt.

In eigenleitendem (intrinsischem) Silizium  $\text{Si}(i)$ -FZ (FZ = hergestellt nach dem Zonenschmelzverfahren, Float Zone) tragen bei Temperaturen unter 100 K nahezu 100% der implantierten Myonen zum  $\text{TF}\mu\text{SR}$ -Signal bei, wobei die Anteile von  $\text{Mu}_T$  und  $\text{Mu}_{\text{BC}}$  jeweils bei etwa 50% liegen und der Anteil von  $\mu^d$  2% bis 5% beträgt. In mit Phosphor (P) oder Bor (B) dotierten Siliziumkristallen  $\text{Si}(P)$ -FZ,  $\text{Si}(B)$ -FZ (P/B-Konzentration  $\approx 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ ) bei einer Temperatur unter 30 K sind hingegen nur  $\text{Mu}_{\text{BC}}$  und  $\mu^d$  mit annähernd gleich großen Anteilen wie in  $\text{Si}(i)$ -FZ beobachtbar, wohingegen  $\text{Mu}_T$  in keiner der beiden dotierten Proben mit der  $\text{TF}\mu\text{SR}$  nachgewiesen wird. Daher tragen hier fast 50% der implantierten Myonen nicht zum Signal bei. Es stellt sich die Frage, was mit

---

dem nicht beobachteten  $\text{Mu}_T$  in den dotierten Proben passiert. Eine plausible Antwort wurde durch [Kreitzman 1990, Major 1992, Scheuermann 1997] mit Hilfe der Hochfrequenz-Myonen-Spin-Resonanz ( $\text{HF}\mu\text{SR}$ ) durch Messungen an der diamagnetischen Spezies  $\mu^d$  gefunden.

Bei der  $\text{HF}\mu\text{SR}$  wird neben einem statischen Magnetfeld, longitudinal zur Myonenspinrichtung zum Zeitpunkt der Implantation, ein hochfrequentes Wechselfeld senkrecht dazu angelegt. Bei geeigneter Frequenz des Hochfrequenzfeldes werden Übergänge zwischen den unterschiedlichen Zuständen der Myoniumspezies angeregt, sodass auf diese Weise genau eine spezielle Spezies (für die die Übergangsbedingung erfüllt ist) selektiv untersucht werden kann. Dabei können  $\text{HF}\mu\text{SR}$ -Experimente so durchgeführt werden, dass man auf eine Spinphasenkohärenz nicht angewiesen ist.

Die  $\text{HF}\mu\text{SR}$  Messungen an  $\text{Si(P)}$ -FZ und  $\text{Si(B)}$ -FZ ergaben bei tiefen Temperaturen ( $< 30$  K) einen großen  $\mu^d$ -Anteil von ungefähr 20% bei  $\text{Si(P)}$ -FZ und etwa 40% bei  $\text{Si(B)}$ -FZ, obwohl in den  $\text{TF}\mu\text{SR}$ -Messungen nur ein wesentlich geringerer Anteil von etwa 5% beobachtet wurde [Scheuermann 1997]. Die Dotierungsabhängigkeit des mit der  $\text{HF}\mu\text{SR}$  gefundenen  $\mu^d$ -Signals wurde zuvor bei Dotieratomkonzentrationen von  $10^{12}\text{cm}^{-3}$  bis  $10^{16}\text{cm}^{-3}$  untersucht [Kreitzman 1995]. Mit wachsender Dotieratom-Konzentration wuchs das bei  $\text{HF}\mu\text{SR}$ -Messungen beobachtete  $\mu^d$ -Signal auf etwa 40%  $\mu^d$ -Anteil an, der in  $\text{TF}\mu\text{SR}$ -Messungen sichtbare  $\mu^d$ -Anteil blieb aber bei unter 5%. Daraus ergab sich die Deutung, dass  $\text{Mu}_T$  in den  $\text{TF}\mu\text{SR}$ -Experimenten nicht beobachtet werden kann, weil es relativ schnell und im Wesentlichen irreversibel von den Dotieratomen eingefangen wird und mit diesen einen diamagnetischen Myonium-Dotieratom-Komplex ( $\text{Mu}_T\text{-P}$ ,  $\text{Mu}_T\text{-B}$ ) bildet. Der in  $\text{TF}\mu\text{SR}$ -Messungen erkennbare  $\mu^d$ -Anteil ist damit sehr klein, da der Einfang von  $\text{Mu}_T$  an den Dotieratomen stochastisch erfolgt und die Spinphasenkohärenz des präzedierenden  $\mu^d$ -Spinensembles weitgehend zerstört wird.

Ein weiteres Beispiel für die Leistungsfähigkeit der  $\text{HF}\mu\text{SR}$  ist die Beobachtung des Einflusses von Sauerstoff auf die Bildung der verschiedenen Myonenspezies.  $\text{Si}$ -Proben, die nach dem Czochralski-Verfahren (CZ) hergestellt werden, besitzen typischerweise einen um den Faktor  $10^2$  bis  $10^3$  höheren Gehalt an interstitiellem Sauerstoff als FZ Proben. Untersuchungen ergaben, dass die Anwesenheit von Wasserstoff in bestimmten Temperaturbereichen die Sauerstoffdiffusion durch eine "katalytische Wirkung" stark beschleunigen kann [Murray 1991, Myers 1992]. Demnach sollte sich ein Einfluss von Sauerstoff auf die Bildung der verschiedenen Myonenspezies nachweisen lassen. Doch in der  $\text{TF}\mu\text{SR}$  wird kein Unterschied zwischen  $\text{Si(P)}$ -FZ und  $\text{Si(P)}$ -CZ festgestellt. In beiden Proben werden mit der  $\text{TF}\mu\text{SR}$  ein ca. gleich großes  $\text{Mu}_{\text{BC}}$ -Signal, wenig  $\mu^d$  und eine große missing fraction festgestellt. Im Gegensatz dazu wurde mit Hilfe der  $\text{HF}\mu\text{SR}$  in  $\text{Si(P)}$ -CZ bei tiefen Temperaturen ( $< 50$  K) nur ein geringer Anteil an  $\mu^d$  gefunden ( $< 5\%$ ), in  $\text{Si(P)}$ -FZ aber ein  $\mu^d$ -Anteil von etwa 30% [Scheuermann 1997]. Oberhalb von 50 K liefern beide Proben praktisch

gleiche Ergebnisse. Die HF $\mu$ SR unterscheidet damit im Gegensatz zur TF $\mu$ SR nicht nur Dotierungseinflüsse, sondern auch noch CZ- und FZ-Proben, die sich nur im Sauerstoffgehalt unterscheiden. Die im Tieftemperaturbereich in den HF $\mu$ SR-Messungen beobachteten Unterschiede zwischen den FZ- und CZ-Proben lassen vermuten, dass  $\text{Mu}_T$  in Si(P)-CZ bei Temperaturen unter 50 K an Sauerstoffstörstellen eingefangen wird. Dies führt nach dieser Deutung zu einer Unterdrückung der Bildung des diamagnetischen Komplexes  $\text{Mu}_T\text{-P}$ , der in Si(P)-FZ gebildet wird. Oberhalb von 50 K ist die Sauerstoffhaftstelle offenbar nicht stark genug, um ein thermisch aktiviertes Entweichen von  $\text{Mu}_T$  und eine damit verbundene Bildung des Myonium-Dotieratom-Komplexes zu verhindern.

In beiden genannten und einer Vielzahl von weiteren Beispielen wurde aus technischen Gründen mit der HF $\mu$ SR nur die diamagnetische Spezies  $\mu^d$  untersucht. Trotzdem waren, wenn man TF $\mu$ SR-Daten und HF $\mu$ SR-Daten an  $\mu^d$  zusammennahm, fundierte Vermutungen über Umwandlungsprozesse bzw. Einfangreaktionen der verschiedenen Myonenspezies in Silizium möglich. Allerdings gab es in den genannten Beispielen keine Evidenz, dass  $\text{Mu}_T$  in dotierten Si-Proben nach der Implantation tatsächlich gebildet wird und anschließend durch einen einmaligen Einfangprozess in diamagnetisches  $\mu^d$  "umgewandelt" wird. Um weitere Informationen zum Test der Vermutungen über die Umwandlungsreaktionen der Myonenspezies zu erhalten, wäre es wünschenswert, neben  $\mu^d$  auch  $\text{Mu}_T$  und  $\text{Mu}_{BC}$  an unterschiedlich dotierten Si-Proben (eigenleitend (intrinsisch), phosphor-, bor-dotiert) systematisch mit der HF $\mu$ SR unter Berücksichtigung des Sauerstoffgehaltes (FZ, CZ) bei verschiedenen Temperaturen zu untersuchen. Daraus ergab sich ein Ziel dieser Arbeit. Die Vermessung von Si(i)-FZ/CZ, Si(B)-FZ/CZ und Si(P)-FZ/CZ, wobei nicht nur die  $\mu^d$ -, sondern parallel auch die  $\text{Mu}_T$  und  $\text{Mu}_{BC}$ -Signale mit der HF $\mu$ SR studiert werden sollten. Ein besonderes Augenmerk lag dabei auf dem Vergleich von FZ- und CZ-Proben. Da CZ-Proben selbst mit der TF $\mu$ SR bisher kaum studiert wurden, sollten zudem auch systematische TF $\mu$ SR-Messungen an den CZ-Proben durchgeführt werden um insgesamt ein vollständiges Bild bezüglich der drei Myonenspezies  $\text{Mu}_T$ ,  $\text{Mu}_{BC}$  und  $\mu^d$  mit TF $\mu$ SR und HF $\mu$ SR bei verschiedenen Dotierungen und unterschiedlichem Sauerstoffgehalt zu erhalten.

Die HF $\mu$ SR hat zwar eine lange Geschichte, wurde aber in der Vergangenheit als zu schwierig für Routineuntersuchungen angesehen. Bereits 1957, kurz nach der Voraussage der Paritätsverletzung des Myons durch Lee und Yang [Lee 1956], wurde die HF $\mu$ SR erstmals von Coffin [Coffin 1958] an der diamagnetischen Spezies zur Bestimmung des gyromagnetischen Verhältnisses des Myons angewandt. Danach geriet diese Methode in Vergessenheit und wurde erst wieder im Jahre 1981 von Kitaoka [Kitaoka 1982] wiederentdeckt, wobei erste Untersuchungen an Wasser, Aluminium und Graphit durchgeführt wurden. 1990 wurden von Kreitzman dann erste HF $\mu$ SR-Untersuchungen an der diamagnetischen Spezies in unterschiedlich dotiertem Silizium durchgeführt [Kreitzman 1990]. Diese Untersuchungen wurden ab 1992 durch die Studien des

---

Einflusses von Dotierung und photogenerierten Ladungsträgern (Lichteinstrahlung) auf die diamagnetische Spezies von Major und Mitarbeitern [Major 1992, Iwanowski 1993, Scheuermann 1997] ergänzt. Zeitgleich wurden 1992 von Major erstmals Messungen an den beiden paramagnetischen Spezies  $\mu_T$  und  $\mu_{BC}$  in Halbleitern durchgeführt. Die Messungen an den paramagnetischen Myonenspezies wiederum wurden 1995 von Kreitzman verfeinert [Kreitzman 1995], blieben jedoch auf wenige Messungen begrenzt, sodass sich die HF $\mu$ SR hauptsächlich auf das Studium von  $\mu^d$  beschränkte.

Schwerpunkt der Arbeit war es ein HF $\mu$ SR-Spektrometer aufzubauen, das erstens an dem quasikontinuierlichen Myonenstrahl (kontinuierlich statistischer Teilchenstrahl) des Paul Scherrer Instituts (PSI, Schweiz) [PSI 1994] betrieben werden konnte und zweitens für den Routinebetrieb geeignet war. Hierzu konnte auf Erfahrungen am Max-Planck-Institut für Metallforschung mit einer HF $\mu$ SR-Apparatur für den gepulsten Strahl des Rutherford Appleton Laboratory (RAL, Großbritannien) [RAL 1992] zurückgegriffen werden. Vorgabe war es, eine bestehende software-gestützte Messelektronik zu nutzen, die von der Stuttgarter Myonengruppe aufgebaut worden war [Schmidl 1997] und für Messungen mit verschiedenen  $\mu$ SR-Techniken, nicht aber der HF $\mu$ SR eingesetzt wurde, auf eben diese HF $\mu$ SR-Anwendungen zu erweitern. Aufgrund des neuartigen Datenerfassungssystems ist eine unkomplizierte Datenerfassung, eine software-technische Selektion und eine einfache Steuerung des Spektrometers wie z. B. Magnetfeld- und Temperatureinstellung möglich. Dieses System mußte zur Steuerung und Überwachung der eingestrahlten Hochfrequenz-Wechselfelder ausgebaut werden. Die eingestrahlte Hochfrequenz sollte dann direkt über den PC eingestellt werden (Frequenz, Amplitude), während eine Überwachungseinheit den routinemäßigen Betrieb ermöglichen sollte. Die auf einem PC basierende Meßelektronik bietet damit die notwendige Flexibilität um HF $\mu$ SR-Experimente auch am quasikontinuierlichen Strahl des PSI zu realisieren. Damit sollten insbesondere zeitdifferentielle HF $\mu$ SR-Messungen der drei Myonenspezies  $\mu^d$ ,  $\mu_T$  und  $\mu_{BC}$  ermöglicht werden, die an einem gepulsten Strahl aufgrund der Pulsstruktur nur beschränkt durchführbar sind.

Neben dem Ausbau der Datenerfassungsanlage ist auch die Konstruktion eines geeigneten Probenkopfes, der vielen unterschiedlichen Faktoren wie z. B. Überschlagsfestigkeit, Tieftemperaturbeständigkeit, mechanische Stabilität, etc. genügen muss, notwendig. Dabei sollen über eine Weiterentwicklung der Hochfrequenzspule im Probenkopf höhere HF-Feldstärken mit einer deutlich verbesserten Homogenität erreicht werden. Die bessere Homogenität ist deshalb unerlässlich, da das Signal ansonsten durch eine Überlagerung unterschiedlicher Präzessionsfrequenzen von unterschiedlichen Orten innerhalb der Probe mit einer zusätzlichen Dämpfung abgeschwächt wird. Die höhere Feldstärke dagegen soll die Absättigung der Übergänge gewährleisten, wodurch in erster Linie eine gute Reproduzierbarkeit der Messungen erreicht, nebenbei aber auch eine verbesserte zeitdifferentielle Auswertung ermöglicht wird.

## 2. Grundlagen der Myonenspektroskopie

### 2.1. Myonen

Das negative Myon ist ein Elementarteilchen und gehört wie das Elektron ( $e^-$ ) zur Teilchenfamilie der Leptonen [Lohrmann 1990]. Es besitzt die gleiche Ladung wie das Elektron, jedoch eine um ca. 207 mal größere Masse und wird daher auch als "schweres Elektron" bezeichnet. Neben dem negativen Myon ( $\mu^-$ ) gibt es wie beim Elektron auch dessen Antiteilchen, das positive Myon ( $\mu^+$ ), vergleichbar dem Positron ( $e^+$ ), dem Antiteilchen des Elektrons. Im Rahmen dieser Arbeit ist es möglich, sich von nun an im Falle der Myonen, wenn nicht explizit anders erwähnt, ausschließlich auf positive Myonen zu beschränken. Eine Übersicht über die Eigenschaften des positiven Myons ist in der Tabelle 2.1 gegeben.

Eigenschaften des positiven Myons $\mu^+$	
Ruhemasse	$m_\mu = 105,66 \text{ MeV}/c^2 \approx (1/9) m_p \approx 207 m_e$
Ladung	$q = +e$
Spin	$S_\mu = (1/2)\hbar$
Magnetisches Moment	$\mu_\mu = 4,4905 \cdot 10^{-26} \text{ J/T} \approx (1/207) \mu_B$
Gyromagnetisches Verhältnis	$\gamma_\mu = 8,516 \cdot 10^8 \text{ rad/Ts} \approx 2\pi \cdot 135,5 \text{ MHz/T}$
Mittlere Lebensdauer	$\tau_\mu = 2,197 \cdot 10^{-6} \text{ s}$

Tab. 2.1: Eigenschaften des positiven Myons  $\mu^+$ .  $m_p$  ist die Masse des Protons,  $m_e$  die des Elektrons.  $\mu_B$  ist das Bohrsche Magneton,  $c$  die Lichtgeschwindigkeit im Vakuum und  $e$  die Elementarladung.  $h$  stellt die Plancksche Konstante dar und  $\hbar = h/(2\pi)$ .

## 2.2. Produktion und Zerfall positiver Myonen

Myonen kommen in der Natur in der kosmischen Hintergrundstrahlung vor und wurden erstmals 1933 von Kunze in der Höhenstrahlung als positive Teilchen nachgewiesen [Kunze 1933]. Sie können aber auch künstlich in Beschleunigern erzeugt werden. Weltweit gibt es nur wenige Forschungseinrichtungen, die intensive Myonenstrahlen zur Verfügung stellen (Mesonenfabriken), wie sie für  $\mu$ SR-Untersuchungen notwendig sind. Eine dieser Großforschungsanlagen, die sich durch einen quasikontinuierlichen Myonenstrahl hoher Intensität auszeichnet, ist das Paul Scherrer Institut in Villigen (Schweiz), an dem alle Messungen dieser Arbeit durchgeführt wurden.

Bei der Produktion spinpolarisierter Myonen werden hochenergetische Protonen mit einer Energie von mehr als 590 MeV auf ein Kohlenstoff- oder Berylliumtarget geschossen. Dabei entstehen bei Stößen zwischen den beschleunigten Protonen (p) und Protonen, bzw. Neutronen (n) des Targetmaterials unter anderem positiv geladene  $\pi$ -Mesonen, kurz positive Pionen ( $\pi^+$ ) genannt.



Die spinlosen Pionen zerfallen aufgrund der schwachen Wechselwirkung unter Nichterhaltung der Parität [Wu 1957] mit einer mittleren Lebensdauer  $\tau_\pi = 26$  ns in Myonen ( $\mu$ ) und Myonenneutrinos ( $\nu_\mu$ )



Die Helizität ( $H$ ) der Myonenneutrinos von  $H = -1$  und die Impuls- sowie Drehimpulserhaltung führen zu einer vollständigen, longitudinalen, antiparallelen Polarisation der Myonen bzgl. ihrer Bewegungsrichtung im Ruhesystem der Pionen.

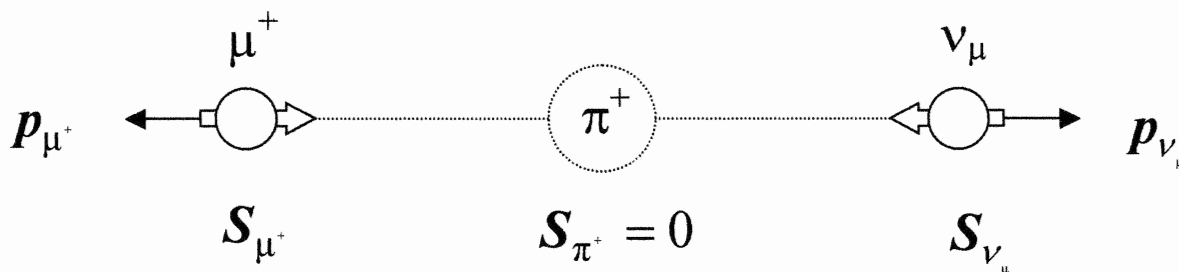


Abb. 2.1: Zerfall der Pionen, dargestellt in deren Ruhesystem, unter Nichterhaltung der Parität.  $\mathbf{S}$  = Spin der Teilchen (dicke Pfeile). Der Impuls  $\mathbf{p}$  (dünne Pfeile) definiert die Bewegungsrichtung.

Die Myonen wiederum zerfallen in einem  $\beta$ -Zerfall nach ihrer mittleren Lebensdauer von  $\tau_\mu = 2.197 \mu\text{s}$  in Positronen ( $e^+$ ), Elektron-Neutrinos ( $\nu_e$ ) und Myon-Antineutrinos ( $\bar{\nu}_\mu$ )



Dabei ist die Positronenemissionsrichtung mit der Orientierung des Myonenspins zum Zeitpunkt des Zerfalls derart korreliert, dass sich eine deutlich erhöhte Emissionswahrscheinlichkeit in Spinrichtung des Myonenspins ergibt [Garwin 1957]. Diese wird nach [Segrè 1977] mit der Wahrscheinlichkeitsdichtefunktion  $W$  beschrieben als

$$dW(\varepsilon, \vartheta) = \frac{3-2\varepsilon}{2\pi\tau_\mu} [1 + \alpha(\varepsilon) \cos \vartheta] \varepsilon^2 d\varepsilon d\Omega. \quad (2.4)$$

$W$  ist rotationssymmetrisch um die Achse des Myonenspins, abhängig vom Winkel zu diesem ( $\vartheta$ ) und der Energie der Positronen, wobei  $\varepsilon = E/E_{\max}$ , die normierte Energie mit  $E_{\max} = 52.8 \text{ MeV}$ , der maximalen Energie der Zerfallspositronen, darstellt. Die Abweichung vom isotropen Zerfall wird durch den Asymmetriefaktor

$$\alpha(\varepsilon) = \frac{2\varepsilon - 1}{3 - 2\varepsilon} \quad (2.5)$$

gegeben. Eine Mittelung über das gesamte Energiespektrum der Zerfallspositronen liefert den mittleren Asymmetriekoeffizienten  $\alpha = 1/3$ .

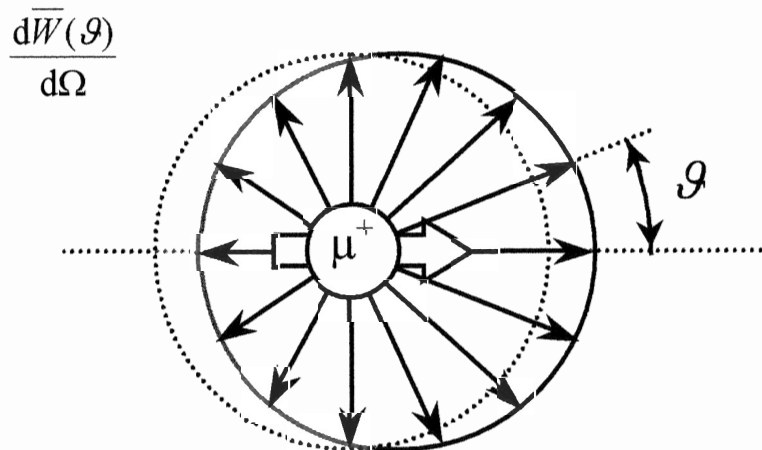


Abb. 2.2: Schematische Darstellung der anisotropen Positronenemissionswahrscheinlichkeit, gemittelt über alle vorkommenden Energien ( $\varepsilon$ ), rotationssymmetrisch um die Richtung des Myonenspins. Der gestrichelte Kreis entspricht einem isotropen Zerfall.