

WISSENSCHAFTLICH-TECHNISCHE BERICHTE

**FZR-390**

Oktober 2003

ISSN 1437-322X

Archiv-Ex.:



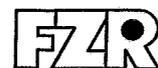
*Christoph Klein*

# Hochauflösende Rutherford- Streuspektrometrie mit schweren Ionen

Herausgeber:  
Forschungszentrum Rossendorf e.V.  
Postfach 51 01 19  
D-01314 Dresden  
Telefon +49 351 26 00  
Telefax +49 351 2 69 04 61  
<http://www.fz-rossendorf.de/>

Als Manuskript gedruckt  
Alle Rechte beim Herausgeber

FORSCHUNGSZENTRUM ROSSENDORF



WISSENSCHAFTLICH-TECHNISCHE BERICHTE

**FZR-390**

Oktober 2003

*Christoph Klein*

**Hochauflösende Rutherford-  
Streuspektrometrie mit schweren Ionen**

Dissertation

# Hochauflösende Rutherford-Streuspektrometrie mit schweren Ionen

von der  
Fakultät für Mathematik und Naturwissenschaften  
der Technischen Universität Dresden  
genehmigte

## Dissertation

zur Erlangung des akademischen Grades

Doctor rerum naturalium  
(Dr. rer. nat.)

vorgelegt von  
Dipl.-Phys. Christoph Klein  
geboren am 3. 8. 1970 in Duisburg

eingereicht am 16. 12. 2002

verteidigt am 3. 6. 2003

Gutachter: Prof. Dr. W. Möller (Dresden)

Prof. Dr. H. D. Carstanjen (Stuttgart)

Prof. Dr. D. Boerma (Madrid)

# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2</b>	<b>Theoretische Grundlagen</b>	<b>4</b>
2.1	Prinzip der Spektrometrie mittels Rutherford-Ionenstreuung (RBS) . . . . .	4
2.1.1	Kinematischer Faktor . . . . .	5
2.1.2	Energieverlust . . . . .	6
2.1.3	RBS-Wirkungsquerschnitte . . . . .	8
2.2	Tiefenauflösung der HRBS . . . . .	9
2.2.1	Begrenzende Effekte in großen Tiefen . . . . .	11
2.2.2	Energieauflösung in Oberflächennähe . . . . .	15
2.2.3	Energieauflösung als Funktion der Tiefe . . . . .	18
2.3	Ladungszustandsverteilungen . . . . .	19
2.3.1	Ladungszustandsverteilung im Gleichgewicht . . . . .	20
2.3.2	Ladungszustandsverteilung nach einem Einzelstoß . . . . .	21
<b>3</b>	<b>Aufbau der Messapparatur</b>	<b>25</b>
3.1	Streukammer . . . . .	25
3.1.1	Vakuumbedingungen . . . . .	26
3.1.2	Verdampfer . . . . .	27
3.1.3	RHEED . . . . .	28
3.1.4	Goniometer . . . . .	29
3.2	Ionenoptische Eigenschaften des Browne-Buechner-Magneten . . . . .	29
3.2.1	Prinzip des Browne-Buechner-Magneten . . . . .	29
3.2.2	Fokalebene . . . . .	32
3.2.3	Vergrößerung und Dispersion . . . . .	35
3.2.4	Aberration . . . . .	37
3.2.5	Kinematische Korrekturen . . . . .	41
3.2.6	Ladungszustandsabhängige Energieverschiebung . . . . .	42
3.3	Strahlführung . . . . .	44
3.4	Positionsempfindlicher Detektor . . . . .	46
3.4.1	Arbeitsweise des verwendeten Detektors . . . . .	46
3.4.2	Ortsauflösung . . . . .	49
3.4.3	Messdatenerfassung . . . . .	51

3.4.4	Korrektur der Messdaten . . . . .	54
<b>4</b>	<b>Hochauflösende RBS an Mehrfachsichten</b>	<b>58</b>
4.1	Untersuchte Proben . . . . .	59
4.1.1	HRTEM-Charakterisierung der Proben . . . . .	59
4.1.2	Charakterisierung mittels Röntgenreflektometrie . . . . .	60
4.2	Tiefenauflösung . . . . .	60
4.3	Einfluss des Ladungszustandes . . . . .	62
4.4	Schädigung durch den Analysestrahl . . . . .	65
4.5	Stragglings . . . . .	67
4.5.1	Messungen mit Kohlenstoff-Ionen . . . . .	67
4.5.2	Messungen mit Lithium-Ionen . . . . .	74
4.6	Auswertung der Spektren . . . . .	77
4.7	Energieverluste . . . . .	81
<b>5</b>	<b>Ladungszustandsverteilungen von schweren Ionen nach einer Streuung an Oberflächenatomen</b>	<b>84</b>
5.1	Herstellung und Charakterisierung der Targets . . . . .	84
5.1.1	Die $\sqrt{3} \times \sqrt{3}R30^\circ$ -Au/Si(111)-Oberfläche . . . . .	84
5.1.2	Herstellung der Schichten . . . . .	86
5.1.3	Charakterisierung der Proben . . . . .	86
5.2	Einfluss der Oberfläche auf den Ladungszustand der gestreuten Ionen . . . . .	88
5.2.1	Modell zur Beschreibung der Daten . . . . .	89
5.2.2	Diskussion . . . . .	98
5.2.3	Zusammenfassung . . . . .	100
5.3	Ladungszustandsverteilungen von schweren Ionen - Abhängigkeit von Energie und Primärlion . . . . .	101
5.3.1	Li-Ionen . . . . .	103
5.3.2	C-Ionen . . . . .	104
5.3.3	F-Ionen . . . . .	106
5.3.4	Cl-Ionen . . . . .	107
5.3.5	Zusammenfassung . . . . .	108
<b>6</b>	<b>Zusammenfassung</b>	<b>109</b>
<b>A</b>	<b>Kinematische Fehler und Strahlfleckfehler</b>	<b>112</b>
<b>B</b>	<b>Stragglings-Formeln</b>	<b>114</b>
<b>C</b>	<b>Auswirkung der axialen Defokussierung auf den Raumwinkel</b>	<b>116</b>
<b>D</b>	<b>Verwendete custom-files</b>	<b>118</b>
<b>E</b>	<b>Shake-off-Wahrscheinlichkeiten</b>	<b>119</b>
<b>F</b>	<b>Mittlerer Ladungszustand - Fehlerbetrachtung</b>	<b>120</b>

# Abbildungsverzeichnis

2.1	Prinzip der Rutherford Streuspektrometrie (RBS) . . . . .	5
2.2	Massenauflösung verschiedener Primärionen . . . . .	6
2.3	Spezifischer Energieverlust von He-Ionen in Silizium . . . . .	7
2.4	Korrekturfaktoren für Rutherford-Wirkungsquerschnitte . . . . .	10
2.5	Vergleich von Vavilov-Verteilung und Gaußverteilung . . . . .	12
2.6	Chu-Straggling . . . . .	13
2.7	Yang-Straggling . . . . .	14
2.8	Vergleich von nuklearer und elektronischer Energieverlustverteilung . . . . .	16
2.9	Ableitung des kinematischen Faktors nach dem Streuwinkel . . . . .	17
2.10	Ladungszustandsanteile von 36 MeV C-Ionen . . . . .	21
2.11	Shake-off-Wahrscheinlichkeiten . . . . .	23
3.1	Gesamtansicht des Rossendorfer Browne-Buechner-Spektrometers . . . . .	26
3.2	Restgasspektrum der Streukammer . . . . .	27
3.3	Verdampfungsfleck des EFM3 . . . . .	28
3.4	Funktionsweise des Browne-Buechner-Spektrometers . . . . .	30
3.5	Detektor-Höhen-Scan . . . . .	32
3.6	Lage der Fokalebene . . . . .	33
3.7	Feldverlauf an den Polschuhkanten . . . . .	34
3.8	Dispersion und Vergrößerung des Browne-Buechner-Magneten . . . . .	36
3.9	Schematische Darstellung von Dispersion und Vergrößerung . . . . .	37
3.10	Dispersion des Browne-Buechner-Magneten . . . . .	38
3.11	Aberration des Browne-Buechner-Spektrometers . . . . .	38
3.12	Strahlprofile in der Umgebung der Fokalebene . . . . .	39
3.13	Aberration als Funktion des Spektrometeröffnungswinkels . . . . .	40
3.14	Auswirkung der Kinematik auf die Abbildung in der Fokalebene . . . . .	41
3.15	Ladungszustandsabhängige Energieverschiebung . . . . .	43
3.16	Schema der Beamline . . . . .	44
3.17	Schema eines ortsauflösenden Detektors mit resistiver Frontelektrode . . . . .	47
3.18	Rauschen des ortsauflösenden Detektors . . . . .	48
3.19	Gemessene Ortsauflösung des Detektors . . . . .	50
3.20	Detektorlinearität . . . . .	51
3.21	Nichtlinearität des ortsauflösenden Detektors . . . . .	52
3.22	Ortsauflösung des ortsauflösenden Detektors für verschiedene Ionen . . . . .	53
3.23	Schema der Messdatenerfassung . . . . .	54

3.24	Prinzip der HRBS . . . . .	55
3.25	Teilchenidentifizierung beim Browne-Buechner-Magneten . . . . .	56
3.26	Beispiel für ein aus mehreren Einzelspektren zusammengesetztes HRBS-Spektrum. Oben: nach der Korrektur. Unten: Vor der Korrektur. Es handelt sich um ein Spektrum der in Kapitel 4 beschriebenen Probe PS297. Die dort gezeigten Spek- tren sind um einen Faktor 8 komprimiert und haben deshalb eine achtmal so große Zählrate wie die hier gezeigten Spektren. . . . .	57
4.1	HRTEM-Aufnahmen der Proben PS163 und PS297 . . . . .	60
4.2	Tiefenauflösung in Mo für verschiedene schwere Ionen . . . . .	61
4.3	HRBS-Spektrum der Probe PS163 für verschiedene Ladungszustände . . . . .	63
4.4	Ladungszustandsanteile von 2 MeV C-Ionen . . . . .	64
4.5	Spektrum der Probe PS163 bei verschiedenen Primärionenfluenzen . . . . .	65
4.6	Vergleich von Wirkungsquerschnitt und Schädigung durch den Primärionenstrahl . . . . .	66
4.7	HRBS-Spektren der Proben PS380 und PS297 . . . . .	68
4.8	Berechnete Energieauflösung für die Proben PS297 und PS380 . . . . .	70
4.9	Spektrum der Probe MOSI3 . . . . .	74
4.10	Spektrum der Probe MOSI6 . . . . .	75
4.11	Spektrum der Probe MOSI4 . . . . .	77
4.12	Vergleich von HRBS-Spektren der Probe PS297 mit WinDF-Simulation . . . . .	78
4.13	Tiefenprofil der Mo-Verteilung von PS297 . . . . .	79
4.14	HRBS-Spektrum und Profil der Probe PS163 . . . . .	80
4.15	Vergleich von verschiedenen neuen Messungen der Energieverlustkurve von O- Ionen in C-Folien . . . . .	82
5.1	Schematische Darstellung der Adsorption von Au auf Si(111) . . . . .	85
5.2	RHEED-Aufnahmen von der $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Au/Si(111)-Oberfläche und der $7 \times 7$ -Si(111)- Oberfläche . . . . .	87
5.3	RBS-Spektren von Gold-bedecktem und unbedecktem Si(111)-Substrat . . . . .	87
5.4	Rückstreuenergie und Ladungszustandsverhältnis $F_2/F_3$ von 3 MeV $\text{Li}^{2+}$ -Ionen . . . . .	89
5.5	Rückstreuenergie und Ladungszustandsverhältnis $F_2/F_3$ von 1.2 MeV $\text{He}^+$ -Ionen . . . . .	90
5.6	Schema des Oberflächen-Energieverlustes . . . . .	91
5.7	Energieverlust von 3 MeV Li-Ionen im Abstand $z$ von einer Au-Ebene . . . . .	92
5.8	Energieverlust von 3 MeV $\text{Li}^{3+}$ -Ionen nach Streuung an einer Monolage aus Au- Atomen . . . . .	95
5.9	Spezifischer Energieverlust von 3 MeV $\text{Li}^{2+}$ im Abstand $z$ von einer Monolage Si . . . . .	96
5.10	Li-HRBS-Spektren von dicken Au-Schichten . . . . .	102
5.11	Mittlere Ladungszustände von Li-, C-, und F-Ionen . . . . .	103
5.12	C-HRBS-Spektren von dicken Au-Schichten . . . . .	104
5.13	Shake-off-Wahrscheinlichkeit für C . . . . .	105
5.14	F-HRBS-Spektren einer dicken Au-Schicht . . . . .	106
5.15	Shake-off-Wahrscheinlichkeit für F . . . . .	107
5.16	Ladungszustandsverteilung von Cl-Ionen nach Streuung an Ta und Sb-Atomen. . . . .	107
A.1	Herleitung der kinematischen Fehler aufgrund von endlicher Detektoröffnung und endlicher Strahlfleckbreite . . . . .	112

---

B.1 Ladungsaustausch-Stragging nach Yang . . . . .	115
C.1 Schema der Wirkung der axialen Defokussierung . . . . .	116

# Tabellenverzeichnis

3.1	Technische Parameter des Browne-Buechner-Spektrometers . . . . .	31
4.1	Bezeichnung und Zusammensetzung der untersuchten Mehrfachsichten . . . . .	59
4.2	Effektives Stragglings von 2 MeV C in verschiedenen Targets . . . . .	71
4.3	Ergebnisse des Fits an die HRBS-Spektren der Proben PS297 und PS380 . . . . .	72
4.4	Ergebnisse des Fits an die HRBS-Spektren der Proben MOSI3, MOSI4 und MOSI6 . . . . .	76
4.5	Effektives Stragglings von 3 bzw. 5 MeV Li in Mo und Si . . . . .	76
4.6	Vergleich der mit XRD und HRBS erhaltenen Schichtdicken der Proben PS163, PS297 und PS380 . . . . .	81
5.1	Ladungsabhängiger Bremsquerschnitt für 3 MeV Li-Ionen . . . . .	93
5.2	Ladungsabhängiger Bremsquerschnitt für 1.2 MeV Li-Ionen . . . . .	93
5.3	Zusammenfassung der Ionen und Energien, bei denen Ladungszustandsverteilungen nach einem Einzelstoß und im Gleichgewicht gemessen wurden . . . . .	102
B.1	Übersicht über verschiedene Stragglings-Formeln . . . . .	114

# Verzeichnis wichtiger Symbole

## Konstanten

$e$	Elementarladung
$m$	Elektronenmasse
$\epsilon_0$	elektrische Feldkonstante
$a_0$	bohrscher Radius
$v_0$	bohrsche Geschwindigkeit

## Ion und Target

$v$	Geschwindigkeit eines Ions
$p$	Impuls eines Ions
$E$	kinetische Energie eines Ions im Laborsystem
$E_{c.m.}$	kinetische Energie eines Ions im Schwerpunktsystem
$m_1$	Masse des Primärions
$m_2$	Masse des Targetatoms
$N$	Dichte des Targets (in $\text{at}/\text{cm}^3$ )
$n$	Bedeckung einer Atomlage (in $\text{at}/\text{cm}^2$ )
$Z_1$	Kernladung des Primärions
$Z_2$	Kernladung des Targetatoms
$q$	Ionenladung
$F_q$	Ladungszustandsanteil des Ions der Ladung $q$
$d_q$	Breite der Ladungszustandsverteilung
$\bar{q}$	mittlerer Ladungszustand

## Spektrometer

Wird eine der folgenden Größen mit dem Index 0 versehen, so bezieht sie sich auf die  $90^\circ$ -Trajektorie

$B$	Magnetfeld
$R$	Magnetfeldradius des Browne-Buechner-Magneten
$L_1$	Distanz vom Target zu den Polschuhen am Eingang des Spektrometers
$L_2$	Distanz vom Ausgang des Spektrometers zum Detektor
$L$	Länge des vom Ion zurückgelegten Weges von der Streuung bis zum Detektor
$\Delta\theta_{Det}$	durch die Detektorbreite aufgespannter Winkel
$\Delta\theta_{Bl}$	durch die Eingangsblende des Spektrometers aufgespannter Winkel
$\Delta\theta_{i,n}$	Akzeptanzwinkel des Spektrometers in ( $i$ ) bzw. senkrecht ( $n$ ) zur Streuebene
$b$	Ausdehnung des Primärstrahls in der Streuebene
$\Delta h$	Ausdehnung des Primärstrahls senkrecht zur Streuebene
$d_i$	effektive Breite der Spektrometereintrittsblende in der Streuebene

$\gamma$	Verkipfungswinkel der Polschuhe
$\mathfrak{R}$	Auflösungsvermögen
$M(E)$	Vergößerung
$D(E)$	Dispersion
$s$	Position entlang der Fokalebene
$d_b$	Gesamtaberration
$d_b^{(i)}$	Aberration i-ter Ordnung
$\Psi$	kinematischer Winkel
$\Delta\Omega$	Raumwinkel

### Detektor

$d_{Det}$	Detektorbreite
$\delta x$	Ortsauflösung des Detektors
$N_E$	Rauschen im Energiezweig
$N_x$	Rauschen im Ortszweig
$l$	Detektorlänge
$R_d$	Widerstand der resistiven Frontelektrode
$Y$	Ausbeute

### Energieverlust und RBS

$\Delta E$	Energieverlust eines Ions
$dE/dx$	spezifischer Energieverlust, auch: $S(E)$
$S(E)$	spezifischer Energieverlust, auch: $dE/dx$
$S_q(E)$	spezifischer Energieverlust für ein Ion der Ladung $q$
$\epsilon$	Bremsquerschnitt
$dE/dt _{eff}$	effektiver Energieverlust (meistens in keV/nm), auch $[S(E)]$
$[S(E)]$	effektiver Energieverlust, auch $dE/dt _{eff}$
$[\epsilon]$	effektiver Bremsquerschnitt
$dE/dx _{Ob}$	spezifischer Oberflächenenergieverlust
$dE/dx _{Al}$	spezifischer Energieverlust an einer einzelnen Atomlage
$dE/dx _{Vol}$	spezifischer Energieverlust im Volumen, auch $dE/dx$ oder $S(E)$
$\theta$	Streuwinkel im Laborsystem
$\theta_{c.m.}$	Streuwinkel im Schwerpunktsystem
$\alpha_1$	Eintrittswinkel des Ions, gemessen zur Oberfläche
$\alpha_2$	Austrittswinkel des Ions, gemessen zur Oberfläche
$d\sigma/d\Omega$	differentieller Wirkungsquerschnitt für Rutherford-Streuung im Laborsystem
$d\sigma/d\Omega_{c.m.}$	differentieller Wirkungsquerschnitt für Rutherford-Streuung im Schwerpunktsystem
$\nu$	Massenverhältnis $m_1/m_2$
$K$	kinematischer Faktor
$t$	Streutiefe

## Hochauflösende RBS

$\delta E$	Energieauflösung (volle Halbwertsbreite)
$\delta E_i$	kinematischer Fehler in der Streuebene
$\delta E_n$	kinematischer Fehler senkrecht zur Streuebene
$\delta E_f$	Energieverbreiterung durch den Strahlfleck
$\delta E_B$	Energiebreite des Primärstrahls
$\delta E_{Det,x}$	Beitrag des ortsauflösenden Detektors zur Energieauflösung des Spektrometers
$\delta E_{Det,E}$	Energieauflösung des ortsauflösenden Detektors
$\delta t$	Tiefenauflösung (volle Halbwertsbreite)
$\delta m$	Massenauflösung
$E_{Det}(t)$	mit dem Detektionssystem gemessene kinetische Energie des gestreuten Ions
$E_0$	kinetische Energie des Ions vor dem Eintritt in die Probe
$E_1$	kinetische Energie des Ions unmittelbar vor dem Stoß
$E_2$	kinetische Energie des Ions unmittelbar nach dem Stoß

## Stragglings

$\omega$	Stragglings-Parameter
$\Omega$	Stragglings
$\Omega_B$	bohrsches Stragglings durch elektronische Stöße
$\Omega_{B,n}$	bohrsches Stragglings durch nukleare Stöße
$\Omega_C$	Ladungsaustausch-Stragglings

## Stöße

$p$	Stoßparameter
$V(r)$	Potential des Targetatoms
$a_{scr}$	Lindhard-Abschirmradius
$\phi(r)$	Abschirmfunktion des Targetatoms
$\phi_{DHFS}(r)$	Dirac-Hartree-Fock-Slater-Abschirmfunktion des Targetatoms
$\bar{T}(p)$	mittlerer Energieverlust eines Ions bei einem Stoß mit Stoßparameter $p$
$\sigma_{ij}$	Wirkungsquerschnitt für Ladungswechsel von $q = i$ nach $q = j$
$\sigma_c$	Wirkungsquerschnitt für Elektronen-Einfang in einem Einelektronen-System
$\sigma_l$	Wirkungsquerschnitt für Elektronen-Verlust in einem Einelektronen-System
$T_{max}$	maximaler Energieübertrag bei einem Stoß eines Ions mit einem Elektron oder Kern
$P_c(p)$	Wahrscheinlichkeit für den Einfang eines Elektrons bei einem Stoß mit Stoßparameter $p$
$P_l(p)$	Wahrscheinlichkeit für den Verlust eines Elektrons bei einem Stoß mit Stoßparameter $p$
$v_{coll}$	Kollisionsgeschwindigkeit
$v_s$	shake-off-Geschwindigkeit
$\omega_e$	klassische Umlauffrequenz eines Elektrons im Atom
$\tau_e$	klassische Umlaufzeit eines Elektrons im Atom
$\tau_{coll}$	Kollisionszeit

# Kapitel 1

## Einleitung

Fortschritte in Materialwissenschaft und Technologie werden in zunehmendem Maße durch den Einsatz sehr dünner Schichten geprägt. Für das Verständnis der physikalischen Eigenschaften solcher Schichten einschließlich ihrer Grenzflächen bzw. Oberflächen ist die Kenntnis über den genauen Konzentrationsverlauf der darin enthaltenen Elemente wesentlich. Schichten, die nur noch aus wenigen Monolagen bestehen, sind eine große Herausforderung an die Tiefenauflösung der eingesetzten Analystechniken und treiben darüber hinaus die weitere Entwicklung der Methoden voran.

Für die Charakterisierung dünner Schichten stehen eine Reihe gut verstandener Methoden zur Verfügung, welche z. B. Einsichten in deren Struktur, Morphologie, Schichtdicke oder Zusammensetzung ermöglichen. Üblicherweise bedarf es mehrerer komplementärer Untersuchungen, um ein materialwissenschaftliches Problem zu lösen. Eine zentrale Fragestellung besteht in der zuverlässigen Quantifizierung von Konzentrationstiefenprofilen. Für diesen Zweck sind die verschiedenen Verfahren der Ionenstrahlanalytik hervorragend geeignet. Insbesondere die Rutherford-Rückstreuungsspektrometrie (RBS) wird seit langem in vielen Labors zur quantitativen Bestimmung von Tiefenprofilen eingesetzt. Sie liefert ohne die Notwendigkeit von Primärstandards auf schnelle, zerstörungsfreie und zuverlässige Weise elementspezifische Konzentrationsprofile von schweren Elementen in leichten Matrizen.

Allerdings ist die Energieauflösung der dabei üblicherweise eingesetzten Detektionssysteme – und damit auch die Tiefenauflösung – aus prinzipiellen Gründen beschränkt. Si-Detektoren liefern für He-Ionen mit Energien im MeV-Bereich z.B. eine Energieauflösung von typischerweise 12-14 keV. Dies entspricht einer Tiefenauflösung von einigen Nanometern. Abhilfe kann hier nur durch den Einsatz von Spektrometern mit großem Auflösungsvermögen geschaffen werden. Seit einigen Jahren finden diese zunehmend Verbreitung. Die Energiedispersion von Spektrometern erlaubt es, die gestreuten Ionen entsprechend ihrer Energie in einer Fokalfäche aufzureihen. Auf diese Weise wird das Problem der Energiemessung umgewandelt in ein Problem der Detektion des Auftreffortes. Da die Bestimmung der Position eines MeV-Ions mit sehr großer Präzision möglich ist, kann die Energieauflösung gegenüber Halbleiterdetektoren um eine Größenordnung verbessert werden. Erste Experimente dieser Art wurden in den siebziger und zu Beginn der achtziger Jahre durchgeführt [Hir76, Feu76, Sme82]. Dabei wurden mit leichten Ionen Tiefenaufösungen von 1-2 nm erreicht. Seit Beginn der Neunziger Jahre haben verschiedene Gruppen weltweit magnetische und elektrostatische Spektrometer gebaut oder bestehende Spektrometer aus der Kernphysik für die Zwecke der Materialanalytik genutzt [Dol92, End92, Boe90, Lan98, Kim92].

Die Tiefenauflösung an der Oberfläche konnte mittlerweile in einigen Labors bis zur Monolagenauflösung verbessert werden [Car98, Dol98b, Kim96].

Die Interpretation der Spektren wird allerdings dadurch erschwert, dass die gestreuten Ionen in Abhängigkeit ihres Ladungszustandes durch die elektrostatischen oder magnetischen Felder getrennt werden. Ionen in verschiedenen Ladungszuständen können daher nur bei verschiedenen Feldeinstellungen detektiert werden. Da bei sehr geringer Analysiertiefe die übliche, auf dem statistischen Gleichgewicht basierende und vom Ladungszustand unabhängige Energie-Tiefe-Beziehung nicht gilt, gestaltet sich die Berechnung der Tiefenverteilung der Elemente schwieriger als bei der Standard-RBS.

Im Allgemeinen ist der Ladungszustand des einlaufenden Ions wohldefiniert, während der Ladungszustand des gestreuten Ions durch die Wechselwirkung mit dem Target verändert werden kann. Diese Wechselwirkung lässt sich in drei Phasen einteilen: (i) Das Primärión kann auf dem Weg bis zur Streuung mit dem Material Elektronen durch Ionisation oder Elektroneneinfang austauschen, (ii) die resultierende Ladungszustandsverteilung kann beim Rückstoß an einem der Targetatome verändert werden und schließlich kann das gestreute Ion (iii) beim Verlassen des Targets analog zu Phase (i) ein weiteres Mal Elektronen verlieren oder einfangen. Ab einer bestimmten Tiefe bildet sich eine Gleichgewichtsverteilung aus, welche stationär ist, solange man den Energieverlust des Ions vernachlässigen kann.

Für Ladungszustandsverteilungen im Gleichgewicht existieren zahlreiche experimentelle Daten in Form von Tabellen gemessener Ladungszustände [Shi85, Shi92, Wit73] oder von semiempirischen Ausdrücken für die Mittelwerte und die Breiten von Ladungszustandsverteilungen [Sch01, Nor63, Nik68, Shi92]. Abgesehen von geringen Abhängigkeiten dieser Parameter vom Material, in dem sich das Ion bewegt, liefern diese brauchbare Abschätzung für die Häufigkeit einzelner Ladungszustände.

Im Gegensatz dazu gibt es deutlich weniger experimentelle Daten zu Ladungszustandsverteilungen nach einem Einzelstoß von schnellen Ionen mit einem Targetatom. Da theoretische Beschreibungen des Einzelstoßes auf Grund der großen Zahl von involvierten Elektronen und des Vielteilchencharakters dieses Prozesses in den allermeisten Fällen sehr aufwendig sind, bietet sich ein experimenteller Zugang zur Bestimmung von Einzelstoß-Ladungszustandsverteilungen an. Die meisten Arbeiten zum Thema Ion-Atom-Stöße beschäftigen sich allerdings mit anderen Fragestellungen als dem Ladungszustand des gestreuten Ions. Ausnahmen bilden vor allem einige wenige Veröffentlichungen aus dem Bereich der Ionenstrahlanalytik [Boe97, Jam97, Jam98, Kim92]. Während in [Jam97, Jam98] für Ar-Ionen nach einer Streuung an den obersten Lagen einer Au-Schicht ein gegenüber dem Gleichgewichtswert deutlich erhöhter mittlerer Ladungszustand gefunden wird, findet [Boe97] für C-Ionen nach einer Streuung an einer Monolage aus Au eine große Ähnlichkeit zur Gleichgewichtsverteilung bereits unmittelbar nach dem Rückstoß. Eine Motivation für diese Arbeit war es daher, die Bedingungen festzulegen, unter denen die Ladungszustandsverteilungen eher dem einen oder dem anderen Fall entsprechen.

Neben den Fragen zum Ladungszustand gibt es wegen der Verwendung schwerer Ionen auch noch einige Fragezeichen hinter dem spezifischen Energieverlust, welcher für schwere Ionen weniger gut bekannt ist als z. B. für He-Ionen. Das Gleiche gilt in noch größerem Maße für das Stragglng. Bisher sind nur wenige Untersuchungen zur hochauflösenden RBS mit schweren Ionen durchgeführt worden [Nag01, Jam98]. Ein zweites Ziel bestand daher darin, die für die Nutzung des Spektrometers für Routineuntersuchungen optimalen Bedingungen hinsichtlich der Art und Energie insbesondere der schweren Primäriónen festzulegen.

Der Gegenstand der Arbeit besteht einerseits im Aufbau, der Inbetriebnahme und der Charakterisierung eines Browne-Buechner-Spektrometers. Um die Streuung an Monolagen durchführen zu können, war der Aufbau einer UHV-Streukammer mit der Möglichkeit zur in-situ-Präparation ultradünner Schichten nötig. Zum anderen wurden Ladungszustandsverteilungen von schweren Ionen mit Energien im MeV-Bereich nach einer Streuung an Au-Monolagen gemessen und mit den Ladungszustandsverteilungen im Gleichgewicht verglichen. Die dafür eingesetzten Ionen Li, C und F umfassen einen weiten Bereich der zweiten Periode des Periodensystems. Zum anderen wurden HRBS-Spektren von Mehrfachschichten mit schweren Ionen gemessen. Diese Untersuchungen erlauben eine Bestimmung von Stragging-Parametern sowie durch Vergleich mit Ergebnissen aus TEM- und XRD-Messungen auch eine Bestimmung von spezifischen Energieverlusten für ausgewählte Ionen.

Die Arbeit ist wie folgt aufgebaut: In Kapitel 2 wird eine Einführung in die theoretischen Grundlagen der RBS gegeben. Dabei werden die wesentlichen Größen kinematischer Faktor, Energieverlust und Rutherford-Wirkungsquerschnitt im Hinblick auf die Verwendung schwerer Primärionen diskutiert. Daran schließt sich eine Darstellung der Tiefenauflösung der RBS an. In diesem Zusammenhang wird auf die verschiedenen Stragging-Theorien eingegangen. Der abschließende Teil dieses Kapitels gibt schließlich einen Überblick über den Wissensstand zu Ladungszustandsverteilungen von Ionen nach einem Ion-Atom-Stoß.

Die Beschreibung dieses Browne-Buechner-Spektrometers erfolgt in Kapitel 3. Dazu werden die ionenoptischen Eigenschaften des Magneten ausführlich behandelt. Die Darstellung umfasst sowohl eine Übersicht über die Literatur als auch Simulationen insbesondere zu Effekten höherer Ordnung im Zusammenhang mit der Lage der Fokalebene sowie der Aberration. Der Beschreibung des verwendeten Detektors und der Messdatenerfassung ist ein eigener Abschnitt gewidmet. Daneben enthält Kapitel 3 eine kurze Beschreibung der Streukammer und der Strahlführung.

Zahlreiche Beispielspektren für die hochauflösende RBS mit schweren Ionen folgen in Kapitel 4. An Hand von Messungen an Mehrfachschichten mit Li und C als Primärionen wird die Leistungsfähigkeit der HRBS demonstriert. Gleichzeitig lassen sich Aussagen über das Stragging und den Energieverlust schwerer Ionen in den untersuchten Materialien treffen. Darüber hinaus wird auf die Frage eingegangen, inwieweit die RBS mit schweren Ionen als zerstörungsfrei anzusehen ist. Alle in diesem Kapitel gezeigten Beispiele zeichnen sich dadurch aus, dass die Ladungszustandsverteilung nahe an der Gleichgewichtsverteilung ist.

Kapitel 5 befasst sich schließlich mit Ladungszustandsverteilungen nach einer Streuung mit Oberflächenatomen. Dazu wurden die Ladungszustandsverteilungen von Li-, C- und F-Ionen nach einer Streuung an einzelnen Atomen gemessen. Um sicherzustellen, dass nur ein einzelner Stoß zur Streuung beiträgt, wurden Sub-Monolagen von Gold auf einem Silizium-Substrat in-situ präpariert. Anschließend wurden schwere Ionen mit Energien im MeV-Bereich an diesen Targets gestreut und mit dem Browne-Buechner-Spektrometer auf ihren Ladungszustand hin untersucht. Die auf diese Weise erhaltenen Einzelstoßverteilungen werden mit Gleichgewichtsverteilungen verglichen. Da bei dem verwendeten festen Streuwinkel von  $35.5^\circ$  ein Einfluss der Oberfläche auf den Ladungszustand des gestreuten Ions nicht auszuschließen ist, wurden zusätzlich für He- und Li-Ionen Ladungszustandsverteilungen bei verschiedenen Austrittswinkeln gemessen.

Kapitel 6 fasst die wesentlichen Ergebnisse dieser Arbeit zusammen.

## Kapitel 2

# Theoretische Grundlagen

### 2.1 Prinzip der Spektrometrie mittels Rutherford-Ionenstreuung (RBS)

Das Prinzip eines RBS-Experiments ist in Abb. 2.1 dargestellt und basiert auf den folgenden physikalischen Prozessen: Ein Ionenstrahl von leichten, schnellen Primärionen der Masse  $m_1$ , typischerweise 1-2 MeV He-Ionen, trifft auf die zu analysierende Probe. Dort wird ein Bruchteil der Ionen an den schweren Targetatomen der Masse  $m_2$  elastisch gestreut. Die Wahrscheinlichkeit für diesen Vorgang wird durch den Wirkungsquerschnitt des Streuprozesses bestimmt. Ein Teil der gestreuten Ionen gelangt in einen Detektor, der ihre Energie registriert. Geschieht der Streuvorgang an der Targetoberfläche, so ist die Energie der gestreuten Ionen proportional der Energie der einfallenden Ionen  $E$ . Der Proportionalitätsfaktor  $K$  wird als kinematischer Faktor bezeichnet und hängt allein vom Streuwinkel und dem Massenverhältnis zwischen Ion und Targetatom ab. Auf diese Weise erhält man eine Information über die Masse der Probenatome. Geschieht die Streuung in einer bestimmten Tiefe  $t$ , so verlieren die Ionen auf dem Weg zu dem entsprechenden Targetatom und zurück einen zusätzlichen Energiebetrag  $\Delta E$ , der sich aus dem spezifischen Energieverlust der Ionen im Targetmaterial ergibt. Dieser zusätzliche Energieverlust lässt sich für eine gegebene Tiefe  $t$  schreiben als

$$\Delta E = \left. \frac{dE}{dt} \right|_{eff} t. \quad (2.1)$$

Dabei ist

$$\left. \frac{dE}{dt} \right|_{eff} = \lim_{\Delta t \rightarrow 0} \left| \frac{E_{Det}(t) - E_{Det}(t + \Delta t)}{\Delta t} \right|. \quad (2.2)$$

Der Ausdruck  $\left. \frac{dE}{dt} \right|_{eff}$  wird als effektiver Energieverlust bezeichnet und ist praktisch der Umrechnungsfaktor des Energieverlustes der Ionen in deren Streutiefe. Für die Quantifizierung der Probenzusammensetzung ist demnach eine möglichst genaue Kenntnis des kinematischen Faktors, des Streuquerschnitts und des Energieverlustes notwendig. Diese drei Größen werden im Folgenden näher erläutert.

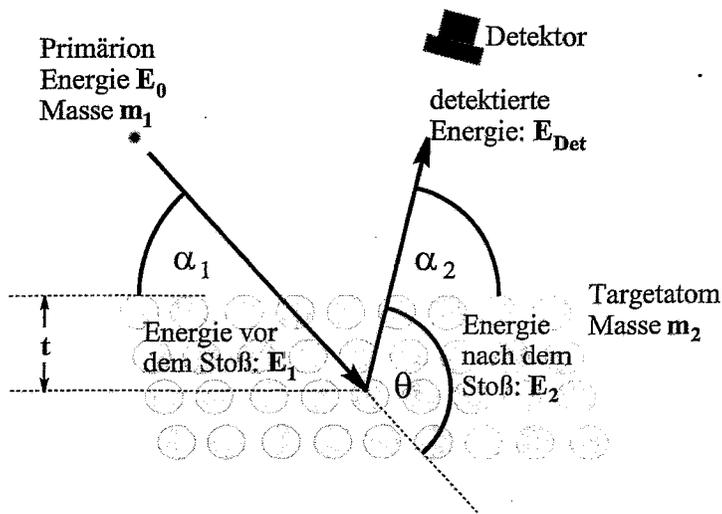


Abbildung 2.1: Das Grundprinzip der Rutherford Streuspektrometrie (RBS).

### 2.1.1 Kinematischer Faktor

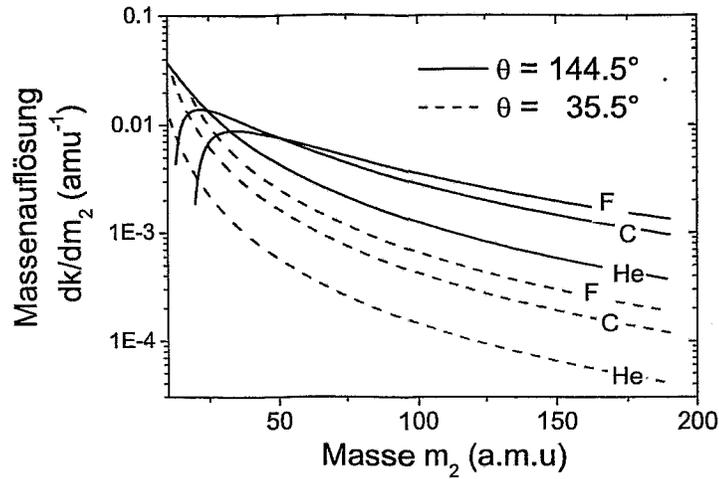
Der kinematische Faktor ist definiert als das Verhältnis der Energien des Primärions nach und vor dem Stoß. Bei der Streuung eines schnellen Ions mit einem Probenatom handelt es sich in sehr guter Näherung um einen binären und elastischen Streuprozess. Unter diesen Voraussetzungen lässt sich der kinematische Faktor aus der Energie- und Impulserhaltung berechnen:

$$K = \frac{E_2}{E_1} = \frac{\{\nu \cos(\theta) + [1 - \nu^2 \sin^2(\theta)]^{1/2}\}^2}{(1 + \nu)^2} \quad (2.3)$$

Dabei ist  $\nu = m_1/m_2$  und alle übrigen Größen sind durch Abbildung 2.1 definiert. Da der Streuwinkel und das Primärion vorgegeben sind, hängt dieser Ausdruck nur von der Masse der Probenatome ab. Damit ergeben sich unterschiedliche Energien für eine Streuung an unterschiedlich schweren Probenatomen. Eine Streuung an Oberflächenatomen, deren Massen sich um  $\delta m$  unterscheiden, führt zu einer Energiedifferenz  $\delta E$  der gestreuten Primärionen von

$$\delta E = E_0 \frac{dK}{dm_2} \delta m. \quad (2.4)$$

Der Ausdruck  $\frac{dK}{dm_2}$  ist in Abbildung 2.2 für verschiedene Primärionen und für die am Rossendorfer Browne-Buchner-Spektrometer möglichen Streuwinkel von  $144.4^\circ$  sowie  $33.5^\circ$  dargestellt (siehe Kapitel 3). Um eine optimale Massenauflösung zu erhalten, müssen ein Streuwinkel nahe  $180^\circ$  und ein möglichst schweres Primärion gewählt werden. Bei einer Energieauflösung von  $10^{-3}$  ist dann eine Massenauflösung von unter 1 a.m.u. möglich. Bei einem Streuwinkel von  $35.5^\circ$  ist die Massenauflösung um etwa einen Faktor 10 schlechter als bei einem Streuwinkel von  $144.5^\circ$ . Auch hier ergibt sich eine höhere Massenauflösung für schwere Primärionen.



**Abbildung 2.2:** Massenauflösung verschiedener Primärionen für die am Rossendorfer Browne-Buechner-Spektrometer möglichen Streuwinkel von  $\theta = 35.5^\circ$  (gestrichelte Linie) und  $\theta = 144.5^\circ$  (durchgezogene Linie).

### 2.1.2 Energieverlust

Durchläuft ein Ion einen Festkörper oder ein Gas, so wird es durch Stöße mit den Elektronen und Kernen des Targetmaterials abgebremst. Diese Abbremsung von Ionen in Materie wird durch den spezifischen Energieverlust  $S(E)$  (englisch: Stopping-Power) beschrieben. Dieser ist definiert als der mittlere Energieverlust  $\langle \Delta E \rangle$  eines Ensembles von Ionen nach Durchlaufen einer Schicht der infinitesimalen Dicke  $\Delta x$ :

$$S(E) = -\frac{dE}{dx} = \lim_{\Delta x \rightarrow 0} \frac{\langle \Delta E \rangle}{\Delta x}. \quad (2.5)$$

Oftmals wird statt des spezifischen Energieverlustes der Bremsquerschnitt verwendet. Dieser ist definiert durch

$$\epsilon = \frac{1}{N} S(E). \quad (2.6)$$

$N$  bezeichnet hier die atomare Dichte des durchlaufenen Materials.

Der Energieverlust eines in der Tiefe  $t$  gestreuten Primärions setzt sich aus den folgenden Beiträgen zusammen (vergleiche Abbildung 2.1): Nach Durchlaufen des Weges von der Oberfläche des Targets bis zur Tiefe  $t$  beträgt die mittlere Energie des Ions

$$E_1 = E_0 - \frac{1}{\sin \alpha_1} \int_0^t \frac{dE}{dx}. \quad (2.7)$$

Unmittelbar nach dem Stoß ist die Energie des Ions durch

$$E_2 = K \left( E_0 - \frac{1}{\sin \alpha_1} \int_0^t \frac{dE}{dx} \right) \quad (2.8)$$

gegeben. Nach dem Verlassen des Targets ergibt sich schließlich für die im Detektor registrierte Energie  $E_{Det}$

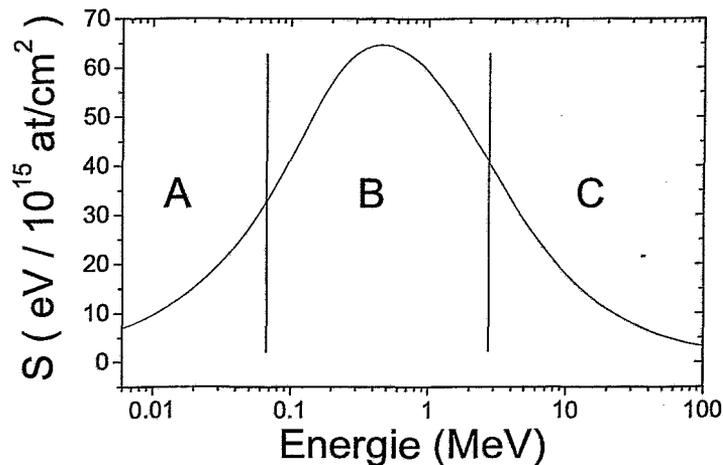
$$E_{Det}(t) = K \left( E_0 - \frac{1}{\sin \alpha_1} \int_0^t \frac{dE}{dx} \Big|_{ein} dx \right) - \frac{1}{\sin \alpha_2} \int_t^0 \frac{dE}{dx} \Big|_{aus} dx. \quad (2.9)$$

Zusammen mit Gleichung (2.2) ergibt sich dann für nicht zu große Tiefen

$$[S] \equiv \frac{dE}{dt} \Big|_{eff} \approx \frac{K}{\sin \alpha_1} \frac{dE}{dx} \Big|_{ein} - \frac{1}{\sin \alpha_2} \frac{dE}{dx} \Big|_{aus}. \quad (2.10)$$

Die eckigen Klammern werden verwendet um den von der Streugeometrie abhängigen effektiven Energieverlust vom spezifischen Energieverlust zu unterscheiden. Multipliziert man die rechte Seite in Gleichung (2.10) mit  $1/N$  so erhält man einen analogen Ausdruck für den effektiven Bremsquerschnitt  $[\epsilon]$ .

Abbildung 2.3 zeigt den spezifischen Energieverlust von He-Ionen in Silizium als Funktion der Energie. Der Verlauf der Kurve lässt sich grob in drei Bereiche einteilen. Je nach Energie der Io-



**Abbildung 2.3:** Spezifischer Energieverlust von He-Ionen in Silizium. Für die Bedeutung der Bereiche A, B und C siehe den Text.

nen tragen verschiedene Mechanismen zum Energieverlust bei. Bei hohen Energien (C) geschieht der Energieverlust fast ausschließlich über die Anregung und Ionisierung von Targetelektronen. Dieser Bereich wird auch als Bethe-Bloch-Bereich bezeichnet. Der spezifische Energieverlust lässt sich hier durch die Blochformel beschreiben, in welcher das Anregungsspektrum der Targetelektronen durch die Oszillatorfrequenzen- und Stärken der Targetatome eingeht [Blo33]. Die Ionen bewegen sich dann so schnell, dass sie nur wenige gebundene Elektronen mitführen können und daher in guter Näherung als punktförmig betrachtet werden können.

Zu kleineren Energien (B) hin wird die Zahl der mitgeführten Elektronen sukzessive größer, was sich auf zweierlei Weise auf den Energieverlust auswirkt. Zum einen wird der Energieverlust durch die abschirmende Wirkung der Elektronen reduziert und zum anderen führen Anregungen des Projektils und Ladungsaustausch-Prozesse zu einer Erhöhung des Energieverlustes. Die theoretische Beschreibung dieses Bereiches ist nach wie vor Gegenstand zahlreicher Veröffentlichungen [Gra98, GSc99, Aze00, Sig01, Pau01, Pau00, ASc00, Sig00, Sig96b, Sig00b, Sig01, Arn94,

Sol84, Sol86, Gui82, Arn96, Arn92]. Frühere Arbeiten basieren auf Effektivladungsmodellen, in welchen den Ionen eine effektive Ladung zugeschrieben wird. Dabei nimmt die effektive Ladung abnehmender Geschwindigkeit ab und beschreibt so den Verlauf des Energieverlustes [Bra82] im Bereich des Maximums. Neben dem Problem des Ladungszustandes wird der Energieverlust in diesem Energiebereich auch durch die sogenannten Schaleneffekte und durch Polarisation von Target und Projektil (Barkas- oder  $Z_1^3$ -Effekt) beeinflusst [Lin64, And83].

Bei kleinen Energien ( $A$ ) ist das Ion schließlich von einer Elektronenwolke umgeben und der Energieverlust kann mit Hilfe eines Thomas-Fermi-Modells bestimmt werden [Lin63]. Dieser Bereich ist für die Tiefenprofilierung mittels der Ionenstrahlanalytik von untergeordnetem Interesse.

In der Praxis ist eine zuverlässige Berechnung von Energieverlustkurven kaum möglich. Als Ausgangspunkt für die Auswertung von Spektren dienen daher in der Ionenstrahlanalytik semiempirische Fits an gemessene Energieverlustkurven. Die am weitesten verbreitete Sammlung solcher Fits stammt von Andersen und Ziegler [And77]. Die Sammlung von Ziegler und Biersack geht auf eine Arbeit aus dem Jahr 1985 zurück und wird regelmäßig im Rahmen der frei verfügbaren SRIM-Software auf den neuesten Stand gebracht [Zie85]. Eine relativ neue Datensammlung ist die ebenfalls frei verfügbare Software MSTAR von Paul und Schinner [Pau01]. Besonders im Bereich des Maximums des Energieverlustes können sich zwischen den einzelnen Datensammlungen Unterschiede von 10-20% ergeben. Für die in Kapitel 4 gezeigten Spektren wurden ausschließlich die spezifischen Energieverluste von Ziegler und Biersack in der Version von 1995 verwendet, die sich für die dort verwendeten Ionen von der aktuellen SRIM-Version nicht unterscheidet.

### 2.1.3 RBS-Wirkungsquerschnitte

Der differentielle Wirkungsquerschnitt für Rutherford-Streuung lautet im Schwerpunktsystem

$$\frac{d\sigma}{d\Omega_{c.m.}} = \left(\frac{e^2}{4\pi\epsilon_0}\right)^2 \left(\frac{Z_1 Z_2}{4E_{c.m.}}\right)^2 \frac{1}{\sin^4(\theta_{c.m.}/2)}. \quad (2.11)$$

Im Laborsystem ergibt sich

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \left(\frac{e^2}{4\pi\epsilon_0}\right)^2 \left(\frac{Z_1 Z_2}{4E}\right)^2 \frac{4}{\sin^4\theta} \frac{\{[1 - (\nu \sin\theta)^2]^{1/2} + \cos\theta\}^2}{[1 - (\nu \sin\theta)^2]^{1/2}}. \quad (2.12)$$

Dabei sind  $\theta$  und  $E$  der Streuwinkel und die Energie im Laborsystem,  $e$  die Elementarladung und  $\epsilon_0$  die elektrische Feldkonstante. Die entsprechenden Größen mit Index  $c.m.$  beziehen sich auf das Schwerpunktsystem. Der Formel liegt die Annahme einer reinen Coulomb-Streuung zweier nackter Kerne zugrunde. Bei hohen Energien kommen sich die beiden Stoßpartner so nahe, dass Abweichungen von der Rutherford-Streuformel zu erwarten sind. Die Grenzenergie liegt um so niedriger je leichter die beiden Stoßpartner sind. Für die Streuung von He-Ionen an Si-Tragets sind z.B. nach [Boz90] ab etwa 1.6 MeV Abweichungen  $> 4\%$  zu erwarten, für Streuung an Gold liegt dieser Wert bei 9 MeV. Bei niedrigen Energien oder kleinen Streuwinkeln dringt das Ion aufgrund der Abschirmwirkung der Targetelektronen nicht bis in die K-Schale vor oder erreicht diese mit einer erhöhten Geschwindigkeit, wodurch nach Gleichung (2.11) der Wirkungsquerschnitt reduziert wird. Dieser Effekt ist besonders bei schweren Targetatomen und

bei kleinen Streuwinkeln von Belang. Für den Fall klassischer Teilchentrajektorien lässt sich der Wirkungsquerschnitt nach [And80] über das Integral

$$\theta_{c.m.} = \pi - 2p \int_{r_0}^{\infty} \frac{dr}{r^2 h(r)} \quad (2.13)$$

$$h(r) = \left(1 - p^2/r^2 - V(r)/E_{c.m.}\right)^{1/2} \quad (2.14)$$

sowie die Beziehung

$$\frac{d\sigma}{d\Omega_{c.m.}} = -\frac{p}{\sin\theta_{c.m.}} \frac{dp}{d\theta_{c.m.}} \quad (2.15)$$

bestimmen. Dabei ist  $p$  der Stossparameter und  $V(r)$  das interatomare Potential der beteiligten Atome. Dieses lässt sich nach [Lin68] annähern durch

$$V(r) = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \frac{Z_1 Z_2}{r} \phi(r/a_{scr}). \quad (2.16)$$

Dabei ist  $\phi(r/a_{scr})$  die Abschirmfunktion der beteiligten Atome (z. B. die Thomas-Fermi- oder die Lenz-Jensen-Abschirmfunktion) als Funktion des Abschirmradius

$$a_{scr} = 0.8853 a_0 (Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})^{-1/2}. \quad (2.17)$$

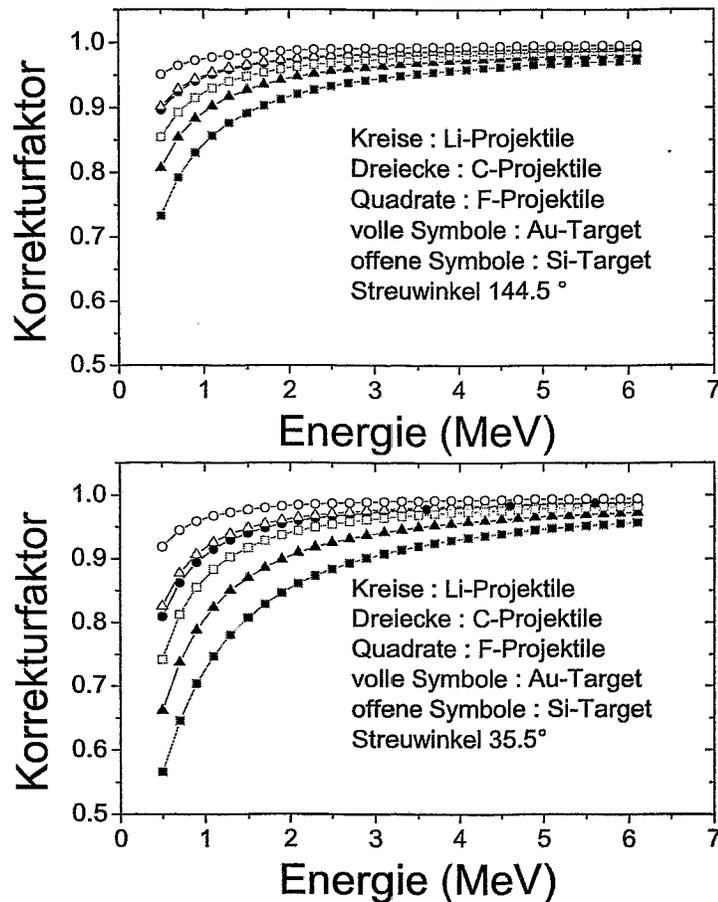
$a_0$  bezeichnet den Bohr-Radius. Nach [And80] ergibt sich für  $Z_1 \ll Z_2$  eine verbesserte Beschreibung durch die Verwendung von Potentialen, welche auf relativistischen Dirac-Hartree-Fock-Slater-Elektronendichten basieren. Für die Abschirmfunktion ist dann  $\phi(r a_a/a)$  einzusetzen mit  $\phi = \phi_{DHFS}$  und  $a/a_a = Z_2^{1/3}/(Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})^{1/2}$ . Die Gültigkeit der auf diese Weise berechneten Wirkungsquerschnitte wurde in [And80] für H, He und Li im Energiebereich von 0.3-2 MeV mit einer Genauigkeit von wenigen Prozent verifiziert.

Abb.2.4 zeigt die Korrekturfaktoren für den Wirkungsquerschnitt bezogen auf den Wirkungsquerschnitt nach Gleichung (2.11) für den Fall der Streuung von Li, C und F an Au und Si bei Laborstreuwinkeln von 35.5° und 144.5°. Je höher die Kernladungszahl des Projektils um so weiter ist der Korrekturfaktor von 1 entfernt. Für kleine Energien ergibt sich eine starke Abhängigkeit des Korrekturfaktors von der Energie. Bei einem Streuwinkel von 35.5° ist der Korrekturfaktor weiter von 1 entfernt als bei einem Streuwinkel von 144.5°. Die Änderung des Korrekturfaktors mit der Energie ist aber klein gegenüber der Änderung des Wirkungsquerschnitts gemäß Gleichung (2.11). Da in der HRBS nur kleine Ausschnitte eines Spektrums interessieren, ist der Korrekturfaktor für Energien oberhalb etwa 1 MeV – auch für relativ schwere Primärionen – zu vernachlässigen.

## 2.2 Tiefenaufösung der HRBS

Wenn ein Ensemble von Ionen an einem Target gestreut wird, so ergibt sich für den Energieverlust der in einer gegebenen Tiefe  $t$  an einer bestimmten Sorte von Targetatomen gestreuten Ionen im allgemeinen eine Verteilung  $F(\Delta E, t)$ . Über den effektiven Energieverlust lässt sich der in geeigneter Weise definierten Breite  $\delta\Delta E \equiv \delta E$  dieser Verteilung ein Tiefenintervall  $\delta t$  zuordnen:

$$\delta E = \left. \frac{dE}{dt} \right|_{eff} \delta t. \quad (2.18)$$



**Abbildung 2.4:** Korrekturfaktoren für Rutherford- Wirkungsquerschnitte nach (2.14) und (2.15) bei Streuung von Li-, C- und F-Ionen an Au- und Si-Atomen bei Labor-Streuwinkeln von  $35.5^\circ$  und  $144.5^\circ$ . Als Abschirmfunktion wurde die DHFS-Abschirmfunktion aus [Sal87] verwendet.

Dieses gibt an, wie weit zwei Targetschichten auseinanderliegen müssen, damit man sie im RBS-Spektrum gerade noch unterscheiden kann. Man bezeichnet daher die Größen  $\delta E$  bzw.  $\delta t$  auch als Energie- bzw. Tiefenauflösung.

Zu der Energieauflösung eines magnetischen Spektrometers tragen eine Vielzahl von Faktoren bei, welche teils physikalischen und teils apparativen Ursprungs sind. Unter der Voraussetzung der statistischen Unabhängigkeit der verschiedenen Beiträge ergibt sich die Energieverlustverteilung  $f(\Delta E, t)$  aus einer Faltung der Energieverlustverteilungen jedes einzelnen Beitrages. Nimmt man weiterhin an, dass alle Verteilungen gaußförmig sind, so lassen sie sich durch die Angabe der Halbwertsbreiten  $\delta E_{FWHM,i}$  beschreiben. Unter diesen Bedingungen ist die Gesamtverteilung wieder eine Gaußverteilung mit der Halbwertsbreite

$$\delta E_{FWHM}^2 = \sum_i \delta E_{FWHM,i}^2 \quad (2.19)$$

Im Falle der Streuung an der Probenoberfläche wird die Energieauflösung in erster Linie

durch apparative Effekte wie die Divergenz des Primärstrahls, die endliche Blendenöffnung des Spektrometers und die endliche Auflösung des Detektors bestimmt. Bei einer Streuung einige Nanometer unter der Probenoberfläche beginnt sich der Einfluss des elektronischen Straggling und des Winkelstraggling bemerkbar zu machen. Ab einer Tiefe von typischerweise 10-20 nm werden diese beiden Beiträge schließlich dominierend. Das hat zur Konsequenz, dass aus prinzipiellen Gründen in solchen Tiefen eine Tiefenauföfung unter 1 nm nicht mehr erreicht wird. Auf Grund der großen Bedeutung des Straggling und der Vielfachstreuung für die Tiefenauföfung werden diese im folgenden Abschnitt gesondert dargestellt.

### 2.2.1 Begrenzende Effekte in großen Tiefen

#### Vielfachstreuung

Der Fall der Vielfachstreuung (englisch: multiple scattering, auch: Winkelstraggling) wurde in [Sig74] behandelt. Die entsprechenden Verteilungen sind dort als Funktion dimensionsloser Winkel- und Dickenparameter  $\tilde{\alpha}$  und  $\tau$  tabelliert. Dabei gilt

$$\tilde{\alpha} = \left( \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \right)^{-1} \frac{E a_{scr}}{2Z_1 Z_2} \alpha \quad (2.20)$$

$$\tau = \pi a_{scr}^2 N x . \quad (2.21)$$

Hierbei ist  $\alpha$  der Winkel zwischen der Bahn eines bestimmten Ions und der mittleren Bahn;  $x$  bezeichnet die Dicke der durchlaufenen Materieschicht. Die Winkelaufweitung wird umso bedeutender je kleiner die Energie  $E$  der Ionen und je größer die Kernladungszahlen  $Z_1$  und  $Z_2$  von Ion und Targetatom sind. Für  $\tau = 1$  ergeben sich nahezu gaußförmige Verteilungen<sup>1</sup>. Typische Werte für  $a_{scr}$  liegen im Bereich von 0.2-0.3  $a_0$ . Damit ergibt sich für die Dicke  $x$  für den Fall  $\tau = 1$  ein Wert von  $1 - 3 \times 10^{17}$  at/cm<sup>2</sup>. Bei flachen Ein- bzw. Ausfallwinkel entspricht diese Dicke einer Tiefe von 3-10 nm.

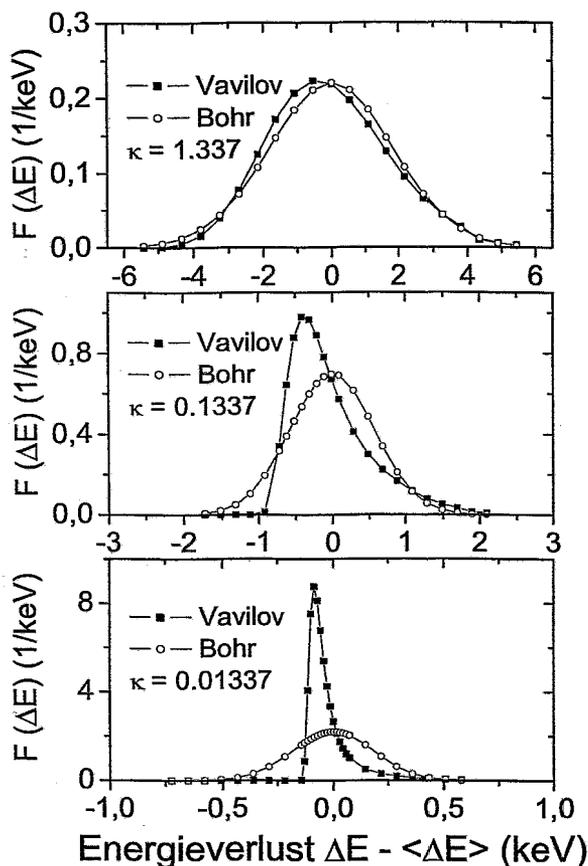
#### Elektronisches Straggling

Bei der Abbremsung von Ionen in Materie unterliegt die Zahl der für die Abbremsung verantwortlichen Stöße statistischen Fluktuationen, welche eine Aufweitung der Energieverteilung des Ionenstrahls bewirken. Der mittlere quadratische Energieverlust dieser Verteilung wird dabei als Energieverlustbreite bzw. als Straggling bezeichnet. Nach [Boh48] lässt sich dieses schreiben als

$$\langle (\Delta E - \langle \Delta E \rangle)^2 \rangle = \Omega^2 = \int T^2 d\sigma . \quad (2.22)$$

Dabei ist  $\frac{d\sigma}{dT}$  der differentielle Wirkungsquerschnitt für eine Streuung mit einem Targetelektron bzw. mit einem Targetatom bei einem gleichzeitigen Energieverlust zwischen  $T$  und  $T + dT$ . Für schnelle leichte Ionen in schweren Targets liefern elektronische Stöße praktisch den alleinigen Beitrag sowohl zur Abbremsung als auch zum Straggling. Die Energieverteilung ist in kleinen Targettiefen zu großen Energieverlusten hin gewichtet und nähert sich in größeren Tiefen einer

<sup>1</sup>In den Ausläufern der Verteilung wird die Gaußform auch in größeren Tiefen nicht erreicht. Für den Teil der Verteilung, der innerhalb der vollen Halbwertsbreite liegt, ist die Übereinstimmung mit der Gaußform jedoch sehr gut.



**Abbildung 2.5:** Energieverlustverteilung von 5 MeV Li-Ionen in Si nach Durchlaufen einer Dicke von  $0.001 \times 10^{18}$  at/cm<sup>2</sup> (unten),  $0.01 \times 10^{18}$  at/cm<sup>2</sup> (Mitte) und  $0.1 \times 10^{18}$  at/cm<sup>2</sup> (oben). Verglichen werden jeweils die Vavilov-Verteilung mit einer Gaußverteilung der durch (2.23) gegebenen Breite. Der Parameter  $\kappa = \xi/T_{max}$  ist in Gleichung (2.24) und (2.25) definiert.

Gaußverteilung an. Nach Bohr [Boh15] ist das Energieverlustspektrum für schnelle Ionen mit Energien im Bethe-Bloch-Bereich in nicht zu kleinen Tiefen durch eine Gaußverteilung mit der Standardabweichung

$$\Omega_B^2 = \left( \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \right)^2 4\pi Z_1^2 Z_2 N x \quad (2.23)$$

gegeben. Dabei ist  $N$  die atomare Dichte des Materials und  $x$  die Dicke der durchlaufenen Schicht. Der Übergang von kleinen zu großen Tiefen erfolgt, wenn die Energieverlustbreite größer wird als der Energieverlust in einem einzelnen Stoß mit einem Elektron [Sig84]. Der Übergangsbereich mit unsymmetrischen Energieverlustspektren wird von der Landau-Vavilov-Theorie erfasst [Vav57]. Vavilov definiert den Parameter  $\kappa = \xi/T_{max} = \Omega_B^2/T_{max}^2$  mit

$$\xi = \left( \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \right)^2 \frac{2\pi Z_1^2 Z_2}{mv^2} N x \quad (2.24)$$

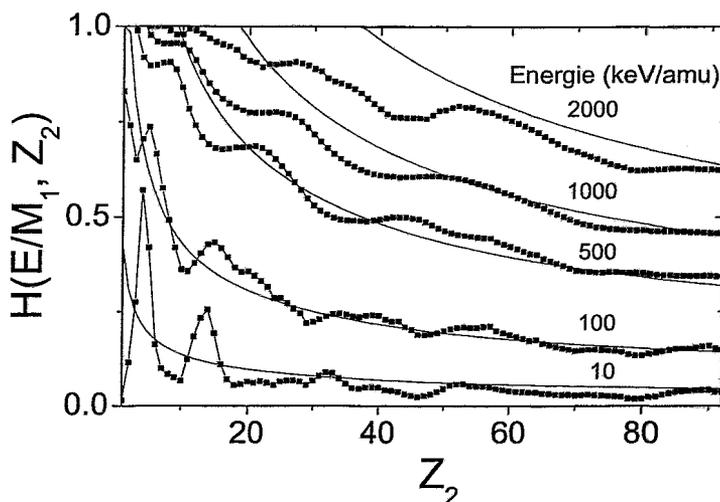
$$T_{max} = 2mv^2. \quad (2.25)$$

Dabei bezeichnet  $T_{max}$  die maximale Energie, die auf ein Elektron übertragen werden kann und  $m$  die Elektronenmasse. Der Parameter  $\kappa$  ist ein Maß für den Beitrag von Stößen mit dem Energieübertrag  $T_{max}$  zum Energieverlustspektrum. Abbildung 2.5 zeigt solche Energieverlustspektren für 5 MeV Li-Ionen in Si-Targets für verschiedene Tiefen. Bereits für  $\kappa \simeq 1$  ist

die Asymmetrie der Energieverlustspektren nicht mehr sehr ausgeprägt. Damit ergibt sich als Definition für ein „dickes Target“ die Bedingung<sup>2</sup>  $\kappa \geq 1$ . Daraus erhält man

$$Nt[\text{at}/\text{cm}^2] > 1.8 \times 10^{19} \frac{1}{Z_1^2 Z_2} \left( \frac{E/\text{MeV}}{m_1/\text{amu}} \right)^2. \quad (2.26)$$

Für Li-Ionen der Energie 3 MeV erhält man z. B. in Si eine Dicke von  $2.6 \times 10^{16}$  at/cm<sup>2</sup> und in Au von  $4.7 \times 10^{15}$  at/cm<sup>2</sup>. In einem RBS-Experiment mit flachem Ein- und Ausschuss ist eine solche Dicke durchlaufenen Materials schon in geringen Tiefen erreicht.



**Abbildung 2.6:** Korrekturfaktoren  $H = \Omega_{Chu}^2/\Omega_B^2$  nach [Chu76] (Quadrate) sowie nach [Lin53] (dünne Linie) bei verschiedenen Projektilenergien.

Die Bohr-Formel für das Stragglung (2.23) und die Landau-Vavilov-Theorie gilt nur für freie Elektronen und damit für hohe Projektilgeschwindigkeiten oder sehr leichte Targetatome. Für kleinere Energien existieren Korrekturfaktoren von Lindhard und Scharff ([Lin53]), Bonderup und Hvelplund ([Bon71]) sowie von Chu ([Chu76]). Dabei werden die Targetelektronen im Rahmen von jeweils verfeinerten Elektronengas-Modellen berücksichtigt. Diese Korrekturfaktoren sind definiert als  $H(E/m_1, Z_2) = \Omega^2/\Omega_B^2$  und sind in Abbildung 2.6 für das Lindhard-Scharff- sowie das Chu-Modell dargestellt. Besenbacher findet gute Übereinstimmung für das Chu-Modell im Falle von H und He in verschiedenen Materialien [Bes80].

Für schwerere Projektile gesellt sich zum Chu-Stragglung ein weiterer auf Ladungsaustausch zurückzuführender Beitrag. Eine allgemeine statistische Theorie zur Berücksichtigung von Ladungsaustauscheffekten ist von Sigmund entwickelt worden [Sig91, Sig92, Sig94, Sig96, Sig98]. Diese Theorie berücksichtigt als Mechanismen für den Energieverlust sowohl stoßinduzierte (mit oder ohne Ladungsaustausch) als auch spontane Prozesse und erlaubt die Bestimmung der Energieverlustspektren für alle Ladungszustände bei genauer Kenntnis von allen möglichen Anregungen und deren Wirkungsquerschnitten.

<sup>2</sup>Diese Grenze ist naturgemäß nicht sehr scharf. In [Sig84] lautet die Bedingung für ein dickes Target  $\Omega_B^2/T_m^2 > 10$ . Eine ähnliche Ungleichung gibt auch Besenbacher an [Bes80].

Momente der Energieverlustverteilung lassen sich mit Hilfe der ladungsabhängigen Stopping-Power sowie der totalen Wirkungsquerschnitte für Ladungswechselprozesse angeben [Sig92, Nae94]. Unter der Annahme, dass ein Ladungswechsel keinen Energieverlust erzeugt und nur zwei Ladungszustände vorhanden sind, lässt sich ein einfacher Ausdruck für das Ladungsaustausch-Stragglings angeben [Efk75, Sig92, Nae94]:

$$\Omega_C^2 = 2(S_1 - S_2)^2 \frac{\sigma_{12}\sigma_{21}}{(\sigma_{12} + \sigma_{21})^3} Nx. \quad (2.27)$$

Dabei sind  $S_1$  und  $S_2$  die Stopping-Power für den ersten und den zweiten Ladungszustand und  $\sigma_{ij}$  der Wirkungsquerschnitt für den Ladungswechsel von  $q = i$  nach  $q = j$ . Eine Erweiterung für drei Elektronen wird in [Sig92] angegeben. Für eine Berechnung des Stragglings mit Hilfe von Gleichung (2.27) sind die Wirkungsquerschnitte im Allgemeinen nicht gut genug bekannt [Gla97, Nae95]. Voraussetzung für quantitative Vergleiche ist zudem, dass die einzelnen Stöße als unabhängig voneinander anzusehen sind, was für Festkörper nur bedingt der Fall ist. Ebenso ist die Vernachlässigung des Energieverlustes bei Ladungswechsel und die Bedingung eines verdünnten Targets nicht notwendigerweise erfüllt. In vielen Fällen, insbesondere für schwere Io-

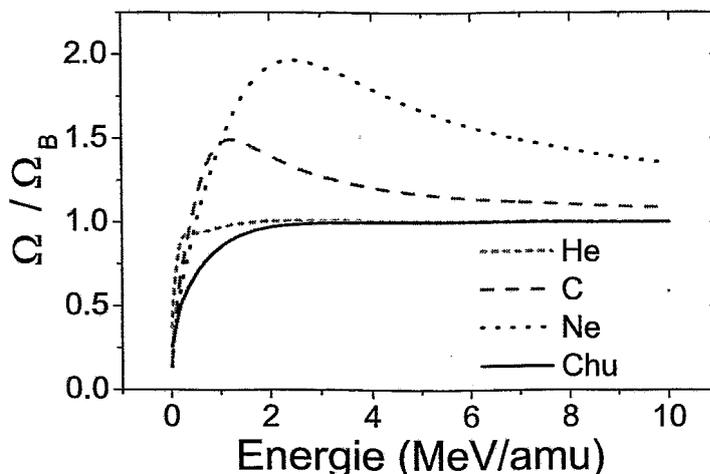


Abbildung 2.7: Stragglings nach Yang für He-, C- und Ne-Ionen in Si, zum Vergleich sind auch die Chu-Werte aufgetragen.

nen in Festkörpertargets, ist daher die empirische Fitformel von Yang der beste Ausgangspunkt [Yan91]. Diese basiert auf etwa 450 Datenpunkten für He und 100 für schwere Ionen in verschiedenen Festkörpertargets. Da der zusätzliche Beitrag mit Ladungsaustausch in Verbindung steht, nimmt das Stragglings mit zunehmender Energie wieder ab. Für Si ist dieser Zusammenhang für verschiedene Ionen in Abbildung 2.7 dargestellt. Der größte Teil der Daten, auf denen der Yang-Fit basiert, bezieht sich auf Kohlenstoff- und Aluminium-Targets. Für schwerere Festkörpertargets sind die experimentellen Daten im wesentlichen auf H- und He-Projektile in Au-Folien beschränkt. Der Streuung der Messdaten ist erheblich, es ergeben sich Abweichungen bis zu 50%. Insbesondere für schwere Projektile ist die Verlässlichkeit des Yang-Fits daher gering, und die Daten müssen durch zusätzliche Messungen ergänzt werden.

### Nukleares Stragglings

Im Gegensatz zum elektronischen Stragglings tragen zum nuklearen Stragglings auch Stöße mit sehr großen Energieüberträgen bei. Die Wirkungsquerschnitte sind dabei allerdings viel kleiner als im Falle von Stößen mit Elektronen. Da der Energieübertrag nach (2.22) quadratisch zum Stragglings beiträgt, ergibt sich für die Standardabweichung der resultierenden Verteilung trotzdem die gleiche Größenordnung wie im Falle des elektronischen Stragglings. Nach Bohr gilt für Stöße mit freien Targetatomen

$$\Omega_{B,n}^2 = \left(\frac{e^2}{4\pi\epsilon_0}\right)^2 4\pi Z_1^2 Z_2^2 \left(\frac{m_1}{m_1 + m_2}\right)^2 Nx. \quad (2.28)$$

Dieser Wert liegt besonders für schwere Ionen in schweren Targets oft über dem Wert für elektronisches Stragglings. Die Form der Verteilung ist jedoch auch für große Tiefen deutlich verschieden von einer Gaußform. In diesem Fall ist die Landau-Vavilov-Theorie der geeignete Ausgangspunkt zur Ermittlung der Energieverlustspektren. Für Stöße mit Atomen gilt

$$\xi = \left(\frac{e^2}{4\pi\epsilon_0}\right)^2 \frac{4\pi Z_1^2 Z_2^2}{m_2 v^2} Nt \quad (2.29)$$

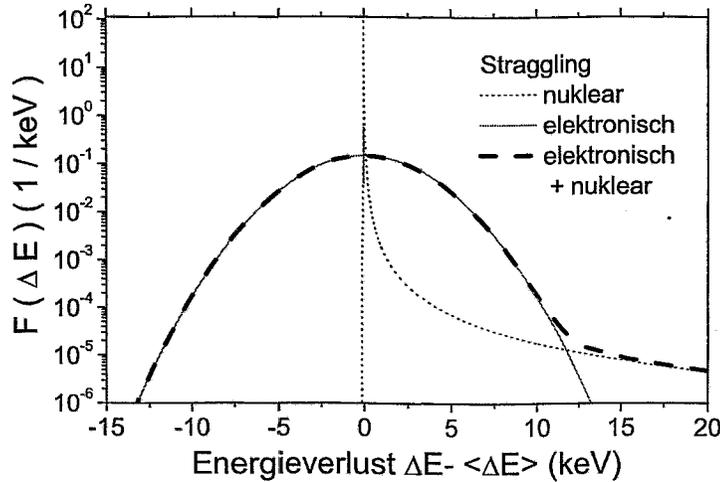
$$T_{max} = 2 \frac{m_1^2 m_2}{(m_1 + m_2)^2} v^2. \quad (2.30)$$

Es ergeben sich damit Werte von  $\kappa \ll 0.01$ , so dass die entsprechende Energieverlustverteilung eher der Energieverlustverteilung nach einem Einzelstoß gleicht. Die Abschirmwirkung der Targetelektronen wird in der Landau-Vavilov-Theorie nicht berücksichtigt. Dies stellt jedoch keine wesentliche Einschränkung dar, da nach [Wil77, Bie88] für Ionen im MeV-Bereich der Wert für die Standardabweichung auch unter Berücksichtigung der Abschirmung praktisch mit (2.28) identisch ist. Dies rührt daher, dass in (2.22) bei Berücksichtigung der elektronischen Abschirmung der Wirkungsquerschnitt  $d\sigma$  gerade für kleine Energieüberträge  $T$  reduziert wird. Bezieht man die elektronische Abschirmung in die Berechnung ein, so wird die Energieverlustverteilung demnach schärfer. Dies ist für die nachfolgenden Argumente jedoch nicht von Belang.

Abbildung 2.8 zeigt die Energieverlustverteilung  $F(\Delta E)$  für 5 MeV C-Ionen in Au in einer Tiefe von  $10^{16}$  at/cm<sup>2</sup>. Die elektronische Energieverlustverteilung wird in diesem Beispiel in ausreichend guter Näherung durch eine Gaußkurve mit der in (2.23) definierten Breite beschrieben. Ebenfalls dargestellt ist die aus nuklearen Stößen resultierende Verteilung nach der Landau-Vavilov-Theorie und die Faltung dieser beiden Verteilungen. Obwohl für die Standardabweichung in diesem Fall  $\Omega_B/\Omega_{B,n} = 0.26$  gilt, demnach also bei quadratischer Addition des nuklearen und elektronischen Stragglings-Beitrages eine Verbreiterung gegenüber dem rein elektronischen Stragglings von 11% zu erwarten wäre, ist das gefaltete Spektrum mit dem rein elektronischen praktisch identisch. Das gleiche Bild ergibt sich auch für leichtere Targets, für die das nukleare Stragglings sogar größer wird als das elektronische. Als Konsequenz kann das nukleare Stragglings auch für schwere Ionen in leichten Targets vernachlässigt werden. Dieses gilt praktisch für alle in der vorliegenden Arbeit benutzten Projektil-Target-Kombinationen.

#### 2.2.2 Energieauflösung in Oberflächennähe

In der Nähe der Oberfläche tragen die folgenden apparativen Effekte zur Energieauflösung bei:



**Abbildung 2.8:** Energieverlustverteilungen  $F(\Delta E)$  für 5 MeV C-Ionen in Au. Für die Landau-Verteilung wurde der in [Tab79] angegebene Fit benutzt.

- **Kinematische Fehler:** Die Divergenz des Primärstrahls und die endlichen Akzeptanzwinkel des Detektionssystems führen zu einer Verteilung der Einfallswinkel und damit zu einer Verteilung von Streuwinkeln, welche wiederum über die Winkelabhängigkeit des kinematischen Faktors einen Beitrag  $\delta E$  zur Energieauflösung liefert. Dabei ist zwischen Öffnungswinkeln in der Streuebene und senkrecht dazu zu unterscheiden. Für die Änderung  $\Delta\theta$  des Streuwinkels  $\theta$  bei einer Verschiebung des Strahls in der Streuebene um den Winkel  $\Delta\theta_i$  gilt

$$\Delta\theta = \Delta\theta_i. \quad (2.31)$$

Dagegen gilt bei einer Verschiebung des Strahls senkrecht zur Streuebene um den Winkel  $\Delta\theta_n$

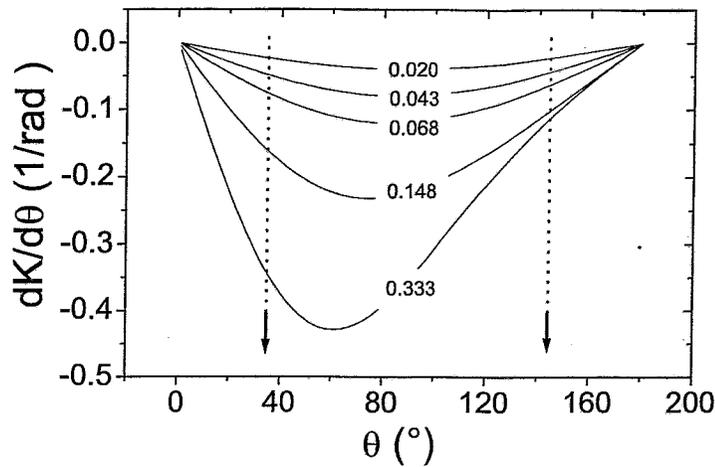
$$\Delta\theta = \frac{1}{2} \cot \theta \Delta\theta_n^2 + \mathcal{O}(\Delta\theta_n^4). \quad (2.32)$$

Da der Öffnungswinkel senkrecht zur Streuebene nur in zweiter Ordnung eingeht, spielt er in den meisten Fällen eine untergeordnete Rolle. Für den Beitrag zur Energieauflösung gilt schließlich

$$\delta E_{i,n} = E_0 \frac{dK}{d\theta} \Delta\theta(\Delta\theta_{i,n}) \quad (2.33)$$

Abbildung 2.9 zeigt die Größe  $\frac{dK}{d\theta}$  für verschiedene Projektil-Target-Kombinationen. Der Einfluß des kinematischen Fehlers ist für leichte Targetatome nicht zu vernachlässigen. Die Wahl schwererer Primärionen wirkt sich ebenfalls negativ auf die kinematischen Fehler aus. Der Akzeptanzwinkel  $\Delta\theta$  hängt nicht nur von der Blendenöffnung, sondern auch von der Strahlfleckgröße ab und ist gegeben durch (siehe Anhang A)

$$\Delta\theta_i = 2\rho \arctan\left(\frac{b \frac{\sin \alpha_2}{\sin \alpha_1} + d_i}{2L}\right) \approx \rho \frac{b \frac{\sin \alpha_2}{\sin \alpha_1} + d_i}{L}. \quad (2.34)$$



**Abbildung 2.9:** Ableitung des kinematischen Faktors nach dem Streuwinkel als Funktion des Streuwinkels  $\theta$ . Die Parameter an die Kurven bezeichnen das Massenverhältnis  $\nu = m_1/m_2$ . Die Werte entsprechen einer Streuung von He an Au, Nb, Co, Al und C. Die Pfeile markieren die beiden möglichen Spektromerpositionen des Rossendorfer Browne-Buechner-Spektrometers bei den Streuwinkeln  $35.5^\circ$  und  $144.5^\circ$ .

Dabei sind  $b$ ,  $d_i$  und  $L$  die Strahlbreite, der Akzeptanzwinkel in der Streuebene und der Abstand des Targets zur Eintrittsblende. Für rechteckigen Strahlfleck und rechteckige Blendenöffnung beträgt der Faktor  $\rho = 0.69$  [Die79].

Für den in der vorliegenden Arbeit verwendeten 10 mm breiten Detektor ergibt sich bei vernachlässigter Strahlfleckbreite ein Öffnungswinkel des Spektrometers in der Streuebene von 4.34 mrad. Daraus folgt ein Beitrag zur relativen Energieauflösung von  $0.00434 \times 0.35 = 1.5 \times 10^{-3}$  für sehr leichte Targetatome mit bei einem Massenverhältnis  $\nu = m_1/m_2 = 0.333$  bzw. von  $0.00434 \times 0.077 = 3 \times 10^{-4}$  für schwere Targetatome mit  $\nu = 0.068$ .

- **Strahlfleckgröße:** Die Tatsache, daß die Strahlfleckgröße endlich ist, wirkt sich auf drei Arten auf die Energieauflösung aus: (i) eine endliche Ausdehnung des Strahlflecks hat eine effektive Vergrößerung des Akzeptanzwinkles zur Folge, (ii) die Ausdehnung des Strahlflecks in Dispersionsrichtung (im Falle des Rossendorfer Spektrometers ist dies die Richtung senkrecht zur Streuebene) wird direkt in die Fokalebene abgebildet und (iii) die Ausdehnung des Strahlflecks in der Streuebene bewirkt eine Verschmierung des Objektabstandes und damit eine Verschmierung des Bildabstandes. Punkt (i) wirkt effektiv wie ein kinematischer Fehler und ist bereits im vorhergehenden Abschnitt behandelt worden. Punkt (ii) lässt sich mit Gleichung (3.5) und (3.4) quantifizieren:

$$\delta E_{f1} = E_0 \frac{\Delta h M_0}{D_0} . \quad (2.35)$$

Dabei bezeichnet  $\Delta h$  die Ausdehnung des Strahlflecks senkrecht zur Streuebene und  $M_0$  bzw.  $D_0$  die Vergrößerung bzw. die Dispersion des Spektrometers. Bei einer Strahlfleckausdehnung von  $\Delta h = 0.5$  mm bedeutet dies einen Beitrag zur Energieauflösung von  $\delta E_{f1}/E_0 = 9 \times 10^{-4}$  (für die Definition und die Größe von Dispersion und Vergrößerung

beim Browne-Buechner-Spektrometer sei auf Abschnitt 3.2.3 verwiesen). Punkt (iii) ist gegeben durch (zur Herleitung siehe Anhang A)

$$\delta E_{f2} = E_0 \frac{b c \cos(\alpha_2)}{\sin(\alpha_1) \cos(63^\circ) D_0} \Delta \theta_n. \quad (2.36)$$

Die Konstante  $c = 0.2$  ergibt sich aus der Symmetrie der Verteilung und  $D_0$  bezeichnet die Dispersion (siehe Abschnitt 3.2). Selbst bei Vorwärtsstreuung und bei kleinen Einfallswinkeln ist dieser Beitrag zur Energieverschmierung gering. Bei einem Einfallswinkel von  $\alpha_1 = 5^\circ$  und einem Streuwinkel von  $\theta = 35.5^\circ$  sowie mit  $b=1$  mm und  $\Delta \theta_n = 0.079$  mrad<sup>3</sup> ergibt sich eine relative Energieunschärfe von  $2 \times 10^{-4}$ .

- **Detektorauflösung:** Die Detektorauflösung liefert unabhängig von der Energie und der Art der Primärionen einen konstanten Beitrag von  $\delta E_{Det,x} = 2$  keV. Diese Größe wird in Abschnitt 3.4 ausführlich diskutiert.
- **Strahlführung:** Wie in Abschnitt 3.3 zu sehen sein wird, ist die Energieauflösung des Primärstrahls die am schwierigsten zu erfassende Größe, da sie von der Stabilität der Terminalspannung und der strahlführenden Komponenten sowie den Einstellungen der Spalte im Strahlengang und der Art der Ionen abhängt. Es wird für die vorliegende Arbeit ein Wert von  $\delta E_B/E_0 = 1 \times 10^{-3}$  angenommen.

Alle diese Beiträge sind im Allgemeinen als Funktion der Tiefe in guter Näherung konstant.

### 2.2.3 Energieauflösung als Funktion der Tiefe

Sobald die Primärionen in die Probe eindringen und in einer Tiefe  $t$  gestreut werden, ergeben sich zusätzliche Beiträge zur Energieauflösung. Diese werden im folgenden aufgeführt.

- **Statistische Prozesse innerhalb des Targets:** Zu diesen zählen das elektronische Stragging und die Vielfachstreuung. Diese Prozesse wurden in Abschnitt 2.2.1 behandelt. Sie begrenzen die Auflösung in großen Tiefen und sind aus prinzipiellen Gründen nicht vermeidbar.
- **Weglängeneffekte:** In endlichen Tiefen führen Strahldivergenzen und Blendenöffnungen sowie Vielfachstreuung nicht nur zu einer Verteilung von Streuwinkeln, sondern auch zu einer Verteilung der von den Ionen im Target zurückgelegten Weglängen, welche über die Stopping-Power wiederum als Energieunschärfe in Erscheinung treten.
- **Nichtstatistische Verbreiterung:** Wenn die Stopping Power eine fallende Funktion der Energie ist, wird die Energieverteilung des Ionenstrahls aufgeweitet, da Ionen mit einer Energie oberhalb der mittleren Energie einen größeren Energieverlust erleiden als die Ionen mit einer Energie unterhalb der mittleren Energie. Dieser Fall tritt bei Energien oberhalb des Stopping-Power-Maximums auf.

Zur Berechnung dieser verschiedenen Beiträge bietet sich das Programm DEPTH an [Szi95]. In DEPTH werden alle oben aufgelisteten Beiträge mit Ausnahme der für das Browne-Buechner-Spektrometer spezifischen Beiträge aus Gleichung (2.36) und Gleichung (3.4) berücksichtigt.

<sup>3</sup>entsprechend der vollen Blendenöffnung beim Rossendorfer Browne-Buechner-Spektrometer

Alle Verteilungen mit Ausnahme der Winkelverteilung der Vielfachstreuung werden als gaußförmig angenommen und quadratisch addiert. Der Beitrag der Vielfachstreuung wird dann mit der resultierenden Gaußkurve gefaltet. Wie in Abschnitt 2.2 dargelegt, ist die Abweichung von der Gaußform nicht sehr ausgeprägt, so dass es gerechtfertigt ist, zum Vergleich mit gemessenen Spektren von einer Gaußform der Gesamtverteilung auszugehen. Beispiele für die so erhaltenen Spektren werden in Kapitel 4 gezeigt. Während die ursprüngliche Version DEPTH lediglich die Eingabe einer einzelnen Schicht mit verschiedenen Komponenten erlaubt, ermöglicht die neuere Variante MDPETH auch die Eingabe einer Schichtabfolge. Die Straggling-Werte sind für schwere Ionen mit  $Z_1 > 3$  in der älteren Version fehlerhaft. Für die vorliegende Arbeit wurde ausschließlich MDEPTH verwendet.

## 2.3 Ladungszustandsverteilungen

Bei Stößen von Ionen mit Atomen kann sich der Ladungszustand des Ions mit einer bestimmten Wahrscheinlichkeit durch den Einfang oder Verlust eines oder mehrerer Elektronen verändern. Misst man den Ladungszustand eines Ensembles von Ionen nach einem Stoß, so erhält man daher eine Verteilung von Ladungszuständen.

Im Allgemeinen kann ein solcher Stoß durch die Angabe der Kernladungen und Massen des Projektils ( $Z_1, m_1$ ) beziehungsweise des Targets ( $Z_2, m_2$ ) sowie durch die Ladung des Projektils  $q$ , dessen Geschwindigkeit  $v$  und den Stoßparameter  $p$  charakterisiert werden. Alternativ zum Stoßparameter kann auch der Streuwinkel  $\theta$  angegeben werden.

Handelt es sich um Stöße von schnellen Ionen mit Atomen, so ist der relative Impuls der beiden Stoßpartner groß gegenüber den mittleren Impulsen der an Ion oder Atom gebundenen Elektronen. Aus diesem Grund ist die de-Broglie-Wellenlänge des mit dem relativen Impuls assoziierten Wellenpaketes klein gegenüber den Bohrradien der beteiligten Elektronen. Darüber hinaus wird nur ein kleiner Teil der kinetischen Energie vor dem Stoß für elektronische Übergänge verbraucht, so dass die relative Geschwindigkeit der Stoßpartner dadurch nicht verändert wird. Aus diesem Grund kann die Trajektorie der Stoßpartner zueinander in sehr guter Näherung klassisch berechnet werden. Abgesehen von sehr kleinen Stoßparametern bewegen sich die Stoßpartner dann mit konstanter Geschwindigkeit  $\mathbf{v}$  auf einer geraden Linie mit Stoßparameter  $p$ . Die Wahrscheinlichkeit für den Verlust bzw. Einfang eines Projektilelektrons bei einem solchen Stoß,  $P_l(p)$  bzw.  $P_c(p)$ , hingegen muss quantenmechanisch berechnet werden. Dafür existieren eine ganze Reihe von Verfahren (siehe z.B. die Übersichtsartikel [McG97, Dew94, Jak89, Wil86]). Ein großer Teil davon basiert auf der Störungstheorie. Bei kleinen Stoßparametern, kleinen Geschwindigkeiten und großen Kernladungszahlen der beteiligten Stoßpartner stößt diese an ihre Grenzen. In diesem Fall kann, insbesondere bei Störungstheorie erster Ordnung, die Unitarität der Ergebnisse verloren gehen, d.h. es können Wahrscheinlichkeiten  $P_{l,c} > 1$  auftreten.

Verfahren, welche nicht auf die Störungstheorie zurückgreifen, sind z. B. coupled-channel-Verfahren [Gra96] und die „sudden approximation“ [Voi99, Voi00]. Im ersten Fall wird die komplette Streu-Wellenfunktion in einer geeignet gewählten Basis entwickelt. Aus der Hamiltonfunktion erhält man dann gekoppelte Differentialgleichungen, welche numerisch gelöst werden. Der Aufwand nimmt bei diesem Verfahren mit der Zahl der Elektronen drastisch zu. Die „sudden approximation“ kann angewendet werden, falls die Umlaufzeiten der beteiligten Elektronen größer sind als die Stoßzeit. In diesem Fall kann man die Elektronen als „eingefroren“ betrachten und erhält dadurch einfachere Ausdrücke für die Übergangswahrscheinlichkeiten. Beide Verfahren

sind unitär.

Wenn das Projektil mehrere Elektronen mitführt, wird in den meisten Fällen die „active electron“-Näherung verwendet. Dabei wird angenommen, dass nur ein Elektron bei dem Stoß angeregt wird, während alle anderen im Grundzustand verharren. Sind die Übergangswahrscheinlichkeiten für die einzelnen Elektronen bekannt, so lässt sich die Wahrscheinlichkeit für den Übergang mehrerer Elektronen im einfachsten Fall als Multinomialverteilung schreiben [McG97]. Dabei werden dann allerdings sämtliche Korrelationseffekte nicht berücksichtigt. Der Wirkungsquerschnitt für den Einfang oder Verlust von Elektronen lautet in der Stoßparameternäherung:

$$\sigma_{l,c} = 2\pi \int_0^{\infty} p P_{l,c}(p) dp. \quad (2.37)$$

Wegen des Terms  $p P_{l,c}(p)$  werden kleine Stoßparameter weniger stark gewichtet als große.

Die Ladungszustandsverteilung der gestreuten Ionen spielt für die hochauflösende Rutherford-Streuspektrometrie eine bedeutende Rolle. Dabei ist zu unterscheiden zwischen den Verteilungen, die sich beim Durchgang der Ionen durch den Festkörper ergeben und denen, welche sich nach einem Einzelstoß mit großem Streuwinkel ergeben. Im ersten Fall ist die Verteilung die Folge einer großen Zahl von Stößen mit großem Stoßparameter, während im zweiten Fall ein einzelner Stoß mit Stoßparameter nahe Null vorliegt. Beide Fälle sind für die RBS von Belang und werden im Folgenden beschrieben.

### 2.3.1 Ladungszustandsverteilung im Gleichgewicht

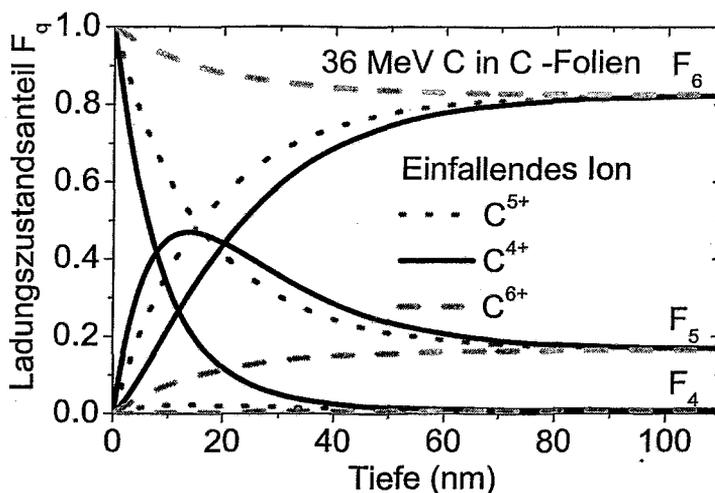
Bewegen sich schnelle Ionen durch Festkörper oder Gase, so ergibt sich der Anteil  $F_i$  des Ladungszustands  $i$  aus der folgenden Ratengleichung (siehe z. B. [Bet72]) :

$$\frac{\partial F_i}{\partial x} = \sum_{j \neq i} \sigma_{ji} F_j - F_i \sum_{j \neq i} \sigma_{ij} \quad (2.38)$$

Dabei bezeichnet  $\sigma_{ji}$  den Wirkungsquerschnitt für einen Ladungswechsel  $i \rightarrow j$  und  $x$  bezeichnet die Dicke der durchlaufenen Materieschicht in  $\text{at}/\text{cm}^2$ . In [Sig92] wird darauf hingewiesen, dass im allgemeinen Fall statt des Ladungszustands der Projektilzustand betrachtet werden muss. Gleichung (2.38) wird in Abbildung 2.10 am Beispiel von 36 MeV C-Ionen in Kohlenstoff-Targets veranschaulicht. Unabhängig vom Ladungszustand des eingeschossenen Ions entwickelt sich die Ladungszustandsverteilung mit zunehmender Tiefe zu einer stationären Gleichgewichtsverteilung. In diesem Zustand fängt das Ion im Mittel gleich viele Elektronen ein wie es verliert. Die entsprechende Verteilung ist charakterisiert durch die Bedingung  $\frac{\partial F_i}{\partial x} = 0$ . Bei Kenntnis aller Wirkungsquerschnitte lässt sich die Gleichgewichtsverteilung berechnen. Der Bereich zwischen der Tiefe Null und der Gleichgewichtstiefe wird als Nichtgleichgewichtsbereich bezeichnet.

Die Messung von Gleichgewichtsverteilungen erfolgt entweder über Rückstremethoden an ausreichend dicken Schichten [Kid79, Har82, Lur76, Ara89, Fuk88, Eck76, Kid77, Ros86] oder über Transmissionsmessungen an ausreichend dicken Folien [Shi82, Shi83, Shi85, Shi85b, Shi88, Shi92, Wit73, Bal90, Her94, Ber72].

Ladungszustandsverteilungen im Nichtgleichgewicht sind in Gasen [Bet72, Kii02, Sch98, Dmi93] und Folien [Dol98, Cue80, Bet88, Cow84, Cow85, Sof80, Sof89, Woo84, Gai77, Har90] gemessen worden. Eine Zusammenfassung von Gleichgewichtstiefen gibt [Zai84].



**Abbildung 2.10:** Ladungszustandsanteile  $F_4$ ,  $F_5$  und  $F_6$  für 36 MeV C-Ionen in Kohlenstoff-Folien als Funktion der Foliendicke bei unterschiedlichen Ladungszuständen der Inzidenzteilechen. Die Kurven wurden mit den in [Sof80] ermittelten Wirkungsquerschnitten nach Gleichung 2.38 berechnet.

Eine Bibliographie zu Wirkungsquerschnitten von Ion-Atom-Stößen findet sich in [McD94]. Ein Programm zur Berechnung der Wirkungsquerschnitte von Ionen mit sehr hohen Energien ( $> 10$  MeV/amu) wird in [Roz96] beschrieben. Übersichten zur Theorie von Ion-Atom-Stößen mit Ladungstransfer geben [McG97, Dew94, Jak89, Wil86], Elektronen-Einfang von hochgeladenen Ionen behandelt [Jan85]. Messungen zum ladungszustandsabhängigen Energieverlust sind in [Sch98, Jua99, Fre95, Fre96, Oga91, Oga91b, Oga92, Oga92b, Oga93, Oga96] dargestellt. Im Zusammenhang mit der Hochauflösung werden Ladungszustandsverteilungen in [Kim92, Jam97, Jam98, Boe97] diskutiert.

### 2.3.2 Ladungszustandsverteilung nach einem Einzelstoß

Eine einfache und allgemeine theoretische Beschreibung eines beliebigen Stoßprozesses ist nahezu unmöglich. Die Ursache hierfür liegt in der Vielzahl der möglichen Stoßpartner und Stoßgeschwindigkeiten. Darüber hinaus kann die Zahl der involvierten Elektronen sehr groß sein. Neben der schieren Größe eines solchen Systems macht sich dann die Korrelation der Elektronen zunehmend bemerkbar. Schließlich kann es zum Verlust oder Einfang von zwei, drei oder noch mehr Elektronen kommen.

Der Ladungszustand der Stoßpartner wird in zwei verschiedenen Phasen beeinflusst: Während des Stoßes selbst und, falls sich die Stoßpartner nach dem Stoß in einem angeregten Zustand befinden, durch Autoionisation nach dem Stoß. Auger-Kaskaden können nach jedem Ion-Atom-Stoß auftreten, sofern dabei Löcher in den inneren Schalen erzeugt werden. Da die Dauer des Stoßes für MeV-Ionen etwa  $10^{-16} - 10^{-17}$  s beträgt und Auger-Übergänge typischerweise auf einer Zeitskala von  $10^{-15}$  s ablaufen [Kra79], können beide Prozesse getrennt betrachtet werden. Berechnungen von Auger-Kaskaden finden sich z. B. in [Oma91a, Oma91b, Els97].

Eine grobe Einteilung der möglichen Stoßprozesse kann man treffen, wenn man die relative Geschwindigkeit der beteiligten Stoßpartner  $v_{coll}$  mit den Elektronengeschwindigkeiten  $v_{el}$

der an die Stoßpartner gebundenen Elektronen miteinander vergleicht. Als Faustformel gilt, dass (in atomaren Einheiten) die am stärksten gebundenen Elektronen der K-Schale eines Ions oder Atoms der Kernladung  $Z$  eine Geschwindigkeit von  $v_{el} \simeq Z$  haben, während für die am schwächsten gebundenen Valenzelektronen die Geschwindigkeit praktisch in allen Atomen und in Ionen niedriger Ladung  $\simeq 1$  ist. Damit ergeben sich drei verschiedene Geschwindigkeitsbereiche, auf welche in den folgenden Abschnitten näher eingegangen wird. Es werden in den folgenden Abschnitten durchgängig atomare Einheiten verwendet.

### Quasi-adiabatische Stöße

Der erste Bereich umfasst die Stöße, für welche  $v_{coll} \leq 1$  ist. In diesem Fall bewegen sich die Elektronen im Kern schneller als die beiden Stoßpartner relativ zueinander. Dies hat zur Folge, dass die Elektronen auf den Stoßprozess reagieren können. Der Stoßvorgang verläuft unter diesen Bedingungen quasi-adiabatisch, die Elektronenwolken des Ions und des Atoms beginnen sich mit zunehmender Annäherung zu überlappen und neu auszurichten. Auf diese Weise bildet sich ein Quasimolekül aus den beiden Stoßpartnern, welches im idealisierten Grenzfall sehr großer Annäherung in ein Quasiatom der Kernladungszahl  $Z_Q = Z_1 + Z_2$  übergeht. Ein solcher Stoßprozess lässt sich theoretisch erfassen, indem man die elektronischen Zustände des Systems Ion-Atom mit Hilfe von adiabatischen Molekülorbitalen beschreibt. Mit dieser Basis lässt sich dann über die Schrödinger-Gleichung das dynamische Verhalten des Streuprozesses beschreiben. Der Austausch von Elektronen kann erfolgen, wenn sich die Bindungsenergien zweier Molekülorbitale bei einem bestimmten Abstand der Stoßpartner schneiden.

Ein Austausch von Elektronen zwischen Ion und Atom oder der Verlust eines Elektrons von Ion oder Atom ins Kontinuum kann im Prinzip in allen Schalen vorkommen. Die Erzeugung von Löchern in der K-Schale von symmetrischen, d.h. homonuklearen oder leicht asymmetrischen Stoßsystemen ist dabei der experimentell und theoretisch am eingehendsten untersuchte und am besten verstandene Fall.

Üblicherweise liegt das Interesse bei Untersuchungen von quasimolekularen Stößen nicht in der Ermittlung des Ladungszustands des gestreuten Ions, sondern in der Bestimmung der in einer bestimmten Schale erzeugten Löcher. Dazu wird zum Beispiel die Emission von Auger-Elektronen oder Röntgen-Quanten pro Ion gemessen.

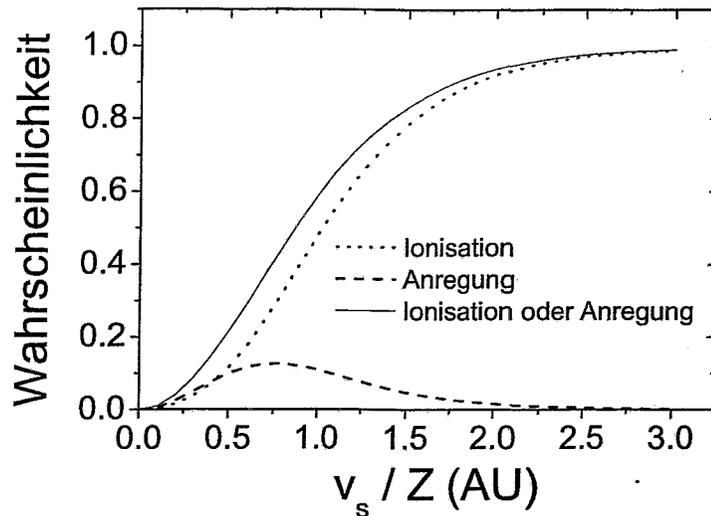
Streng genommen ist es nicht notwendig, für alle Elektronen  $v_{el} \leq v_{coll}$  zu fordern. Es ist ausreichend, wenn diese Bedingung für die Elektronen der betreffenden Schale erfüllt ist, da der Einfluss von höher liegenden Schalen (mit ihren langsamen Elektronen) auf die tiefer liegenden Schalen (mit ihren schnellen Elektronen) gering ist. Eine Übersicht zu quasiadiabatischen Stößen gibt [Wil86].

### Stöße im mittleren Geschwindigkeitsbereich

Eine sinnvolle Definition für den mittleren Geschwindigkeitsbereich stellt nach den einleitenden Betrachtungen die Bedingung  $1 \leq v_{coll} \leq Z$  dar. Dabei ist  $Z = \max(Z_1, Z_2)$ . In diesem Geschwindigkeitsbereich verläuft der Stoßprozess für die inneren Elektronen adiabatisch, während die äußeren Elektronen zu langsam sind, um auf den Stoß zu reagieren. In diesem Fall ist eine exakte Beschreibung äußerst kompliziert, speziell wenn viele Elektronen involviert sind.

Der Ladungszustand nach einem Einzelstoß wird hier von verschiedenen Faktoren beeinflusst: Zum einen können die Ionen Elektronen durch „shake-off“ verlieren. Darunter ist das Abschütteln

von Elektronen durch ein plötzliches Rütteln am Atom zu verstehen<sup>4</sup>. Im Inertialsystem des Ions vor dem Stoß mit einem Atom wird dieses durch den Stoß von Null auf eine bestimmte vom Streuwinkel abhängige Geschwindigkeit  $v_s$  beschleunigt, im Falle von Rückstreuung ( $\theta=180^\circ$ ) zum Beispiel auf  $v_s = 2v_{coll}$ . Dieser Beschleunigungsvorgang läuft in einer Zeitspanne von  $a_0/v_{coll}$  ab. Ist diese Zeitspanne viel kürzer als die klassische Umlaufzeit eines Elektrons, so kann man den Stoß für das Elektron als plötzlich erachten. Die Elektronen kommen in diesem Fall mit dem Ion nicht mit und werden „abgeschüttelt“. Die Wahrscheinlichkeit, ein Elektron durch shake-



**Abbildung 2.11:** Wahrscheinlichkeit für Ionisation (shake-off) oder Anregung (shake-up) des Elektrons eines wasserstoffähnlichen Ions oder Atoms der Kernladung  $Z$  bei einer plötzlichen Beschleunigung auf die Geschwindigkeit  $v_s$ .

off zu verlieren, lässt sich berechnen, wenn man annehmen kann, dass die Stoßdauer  $\tau_{coll}$  sehr viel kleiner als die Umlaufzeit  $\tau_e$  des Elektrons im Projektil ist. Unter dieser Bedingung gibt Migdal einen Ausdruck für die Wahrscheinlichkeit an, dass das Elektron bei einer plötzlichen Beschleunigung des Projektils auf eine Geschwindigkeit  $v_s$  angeregt oder ionisiert wird [Mig69, Mig39]. Dieser Fall ist in Abbildung 2.11 dargestellt. Für  $v_s$  gilt:

$$v_s = \sqrt{K + 1 - 2\sqrt{K} \cos \theta} . \quad (2.39)$$

Dieser Ausdruck hängt neben dem kinematischen Faktor  $K$  nur vom Laborstreuwinkel  $\theta$  ab. Ein solcher Stoß lässt sich experimentell nicht realisieren, das Ergebnis ist aber als Beispiel für die Wirkung des shake-off geeignet. Man erkennt, dass bereits bei einer Beschleunigung auf  $v = 2$  die Wahrscheinlichkeit, dass ein H-Atom im Grundzustand bleibt, praktisch null ist. Da das Wasserstoff-Elektron eine Geschwindigkeit von 1 hat ergibt sich als grobe Faustformel, dass Elektronen mit Geschwindigkeiten  $v_{el} \leq v$  leicht abgeschüttelt werden, während die stärker gebundenen Elektronen während eines Stoßes an den Kern gebunden bleiben.

<sup>4</sup>Dieser Begriff wird auch für das Abschütteln eines Elektrons bei der Erzeugung innerer Vakanzen benutzt. Die Verwendung des Begriffes im hier beschriebenen Sinne folgt [Boe97].

Zum anderen können die Ionen Elektronen durch direkte Wechselwirkung mit den Targetatomen austauschen. Dabei kann es zum Verlust oder zum Einfang von Elektronen kommen. Beim Elektronenverlust spielen die Targetelektronen eine zweifache Rolle. Sie schirmen das Kernpotential einerseits ab und reduzieren damit die Wirkungsquerschnitte für Elektronen-Verlust. Dieser Teil wird als screening-Beitrag (auch: elastischer oder kohärenter oder Elektron-Kern-Beitrag) bezeichnet. Andererseits können die Elektronen von Projektil und Target direkt miteinander wechselwirken und auf diese Weise den Wirkungsquerschnitt für Elektronen-Verlust erhöhen. Diesen Beitrag bezeichnet man als antiscreening-Beitrag (auch: inelastischer oder inkohärenter oder Elektron-Elektron-Beitrag).

Der Einfang von Elektronen ist ein komplizierterer Prozess als der Verlust von Elektronen, da er ein Drei-Körper-Problem darstellt. Klassisch gesehen ist ein Transfer von Masse auf ein schnelles Projektil in einem einzelnen Stoß nicht möglich, so daß der einfachste erlaubte Prozess ein Zwei-Stoß-Prozess ist. Analog dazu dominiert bei der quantenmechanischen Berechnung von Einfangquerschnitten die zweite Ordnung der Störungstheorie über die erste. Anschaulich gesprochen werden Elektronen bevorzugt dann eingefangen, wenn sie die gleiche Geschwindigkeit wie das Projektil haben, so dass sie quasi auf das Projektil „aufspringen“ können.

Ein möglicher Ansatz für Berechnungen in diesem Geschwindigkeitsbereich sind coupled-channel-Verfahren [Gra97]. Ein möglicher Weg, aufwändige quantenmechanische Vielteilchenrechnungen zu vermeiden, ist die Verwendung statistischer Methoden. Ein solches Verfahren, welches unter der Bezeichnung „statistical energy deposition“ (SED) bekannt ist, geht auf [Rus63] zurück. Dabei wird angenommen, dass die gesamte Energie, welche in einem Stoß auf ein Atom oder Ion übertragen wird, gleichmäßig auf alle Elektronen verteilt wird. Wenn ein bestimmtes Elektron auf diese Weise eine Energie erhält, die größer als die Ionisierungsenergie ist, kommt es zur Ionisation. Die Wahrscheinlichkeit  $P_K^k$ , dass von  $K$  Elektronen  $k$  ionisiert werden lässt sich dann analytisch berechnen.

### Stöße im hohen Geschwindigkeitsbereich

Bei Projektilgeschwindigkeiten  $v_{coll} \gg Z_1, Z_2$  können die Elektronen als quasifrei angesehen werden. In diesem Fall können Übergangswahrscheinlichkeiten durch Störungsrechnung beschrieben werden [Gar73]. Es existiert eine Vielzahl von Messungen, bei denen typischerweise leichte Primärionen, insbesondere Protonen und  $\alpha$ -Teilchen auf schwere Targets geschossen werden. Ähnlich wie im Falle quasiadiabatischer Stöße liegt dabei das Hauptaugenmerk auf der Erzeugung von Löchern in inneren Schalen. Für die HRBS lassen sich daraus kaum Erkenntnisse gewinnen, da hier der Ladungszustand des Primärions die interessierende Größe ist. Bei sehr hohen Geschwindigkeiten müssen zusätzlich relativistische Effekte berücksichtigt werden.

## Kapitel 3

# Aufbau der Messapparatur

Alle in der vorliegenden Arbeit beschriebenen Experimente wurden am Rossendorfer Browne-Buechner-Spektrometer durchgeführt. Eine schematische Gesamtübersicht bietet Abbildung 3.1. Der Aufbau setzt sich aus den folgenden Hauptkomponenten zusammen:

- UHV-Streukammer mit der dazugehörigen Ausrüstung zur Herstellung und Charakterisierung von sehr dünnen Schichten
- Browne-Buechner-Magnet
- Ortsauflösender Detektor
- Strahlführung vom Rossendorfer 3MV-Tandetron

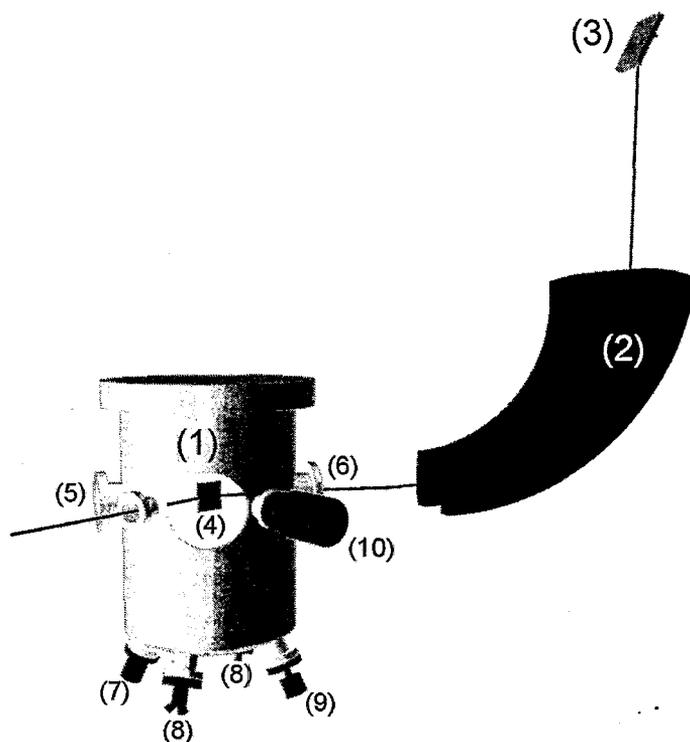
Auf diese Komponenten wird in den folgenden Abschnitten näher eingegangen.

### 3.1 Streukammer

Die Streukammer wurde bei FMB Feinwerk- und Messtechnik GmbH in Dresden gefertigt und hat einen Durchmesser von 460 mm bei einer Höhe von etwa 800 mm. In der Streuebene befinden sich Flansche für die Strahlführung vom 3 MV-Tandetron, das Browne-Buechner-Spektrometer, die Schleusenkammer und das RHEED-System. Das Spektrometer kann in zwei Positionen angeordnet werden. Die möglichen Streuwinkel betragen  $35.5^\circ$  bzw.  $144.5^\circ$ . Zusätzlich befinden sich in dieser Ebene Sichtfenster und zwei Flansche, welche die Streukammer über weitere Strahlrohre mit dem Rossendorfer 500 kV-Implanter und der Rossendorfer Doppel-Implantationskammer verbinden [Tyr01].

Das 5-Achsen Goniometer zur Targetausrichtung (Arun Microelectronics) ist am Deckel montiert. Die Verdampfer (EFM 3 von Omicron), das Restgasanalysegerät (Transpector H200M von Leybold Inficon) und ein Si-PIPS-Detektor sind am Boden der Kammer angeflanscht und auf das Target ausgerichtet. Der Si-PIPS-Detektor ist unter einem Streuwinkel von  $100.7^\circ$  montiert.

Die Kammer wird von einer Ionengetterpumpe (NP-500 von Thermionics) mit einer Saugleistung von 400 l/s gepumpt. Zusätzlich ist eine Kühlfalle mit Ti-Sublimationspumpe (USP 035 von Balzers) unterhalb der Streuebene installiert. Das Schleusensystem besteht aus einem CF100 6-fach Kreuzstück und wird von einer Turbopumpe (TMU 261 von Pfeiffer) mit Membranvorpumpe (MZ 2D von Pfeiffer) mit einer Saugleistung von 200 l/s gepumpt.

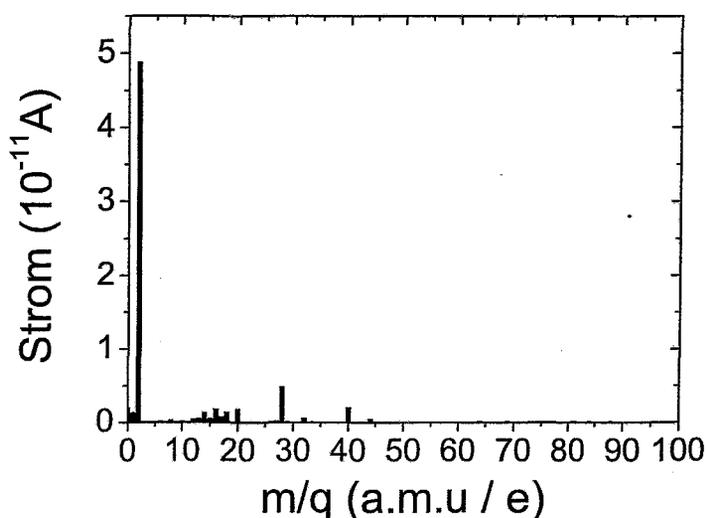


**Abbildung 3.1:** Schematische Gesamtansicht des Rossendorfer Browne-Buechner-Spektrometers. Dargestellt sind: (1) Streukammer, (2) Polschuhe des Browne-Buechner-Magneten, (3) Ortsauflösender Detektor, (4) Target, (5) Flansch für Streuwinkel 144,5°, (6) Flansch für Streuwinkel 35,5°, (7) Restgasanalyse, (8) Verdampfer. Der Ionenstrahl vom Rossendorfer 3 MV-Tandetron tritt vorne links in die Kammer ein und wird am Target unter einem Streuwinkel von 35,5° (in dieser Darstellung) gestreut. Die gestreuten Ionen werden im Browne-Buechner-Magneten um 90° abgelenkt und mit dem ortsauflösenden Detektor registriert.

Die Druckmessung erfolgt über eine Kombi-Messröhre (PKR 250 von Balzers), ein Ionisationsvakuummeter (Ionivac IE414 von Leybold) sowie die Stromanzeige der Ionengetterpumpe.

### 3.1.1 Vakuumbedingungen

Zum Erreichen des UHV-Druckbereiches wird ein Ausheizzelt mit einem 2,5 kW-Heizlüfter eingesetzt. Üblicherweise wird die Kammer über drei Tage bei einer Temperatur von 100-125°C ausgeheizt. Die relativ niedrige Temperatur ist notwendig, da der Kammerdeckel mit einem Viton-Ring gedichtet wird. Der auf diese Weise erreichte Basisdruck liegt bei etwa  $4 \times 10^{-10}$  mbar. Ein typisches Restgasspektrum zeigt Abbildung 3.2. Der dominierende Anteil des Restgases ist Wasserstoff. Die Peaks bei den Massen 28 und 32 deuten auf  $N_2$  und  $O_2$ . Reste von auch nach dem Ausheizen noch vorhandenem Wasser zeigen sich bei den Massen 16-18. Die Peaks bei 40 und 44 sowie zwischen 12 und 15 deuten auf Kohlenwasserstoffe hin. Die Peaks bei den Massen 40 und 20 sind wahrscheinlich auf Ar zurückzuführen, welches zum Regenerieren der Ionenget-



**Abbildung 3.2:** Restgasspektrum der Streukammer bei einem Basisdruck von  $4 \times 10^{-10}$  mbar. Die Hauptkomponenten bei den Massen 2 bzw. 28 gehen auf Wasserstoff bzw. Stickstoff zurück. Die Komponenten bei den Massen 16, 17 und 18 werden durch Wasser verursacht. Die Komponenten bei den Massen zwischen 12 und 15 weisen auf Kohlenwasserstoffe hin. Die Peaks bei den Massen 20 und 40 sind vermutlich auf Ar zurückzuführen.

terpumpe verwendet wurde.

Durch das Schleusen der Proben verschlechtern sich die Vakuumbedingungen im Laufe der Zeit. Insbesondere die Tatsache, dass die Probe zusammen mit den Heizern ausgeschleust wird, macht sich dabei negativ bemerkbar. In erster Linie wirkt sich dies auf den Wasser-Partialdruck aus. Nach einigen Schleuszyklen steigt der Druck auf Werte um  $7-8 \times 10^{-10}$  mbar an, so dass wieder ausgeheizt werden muss.

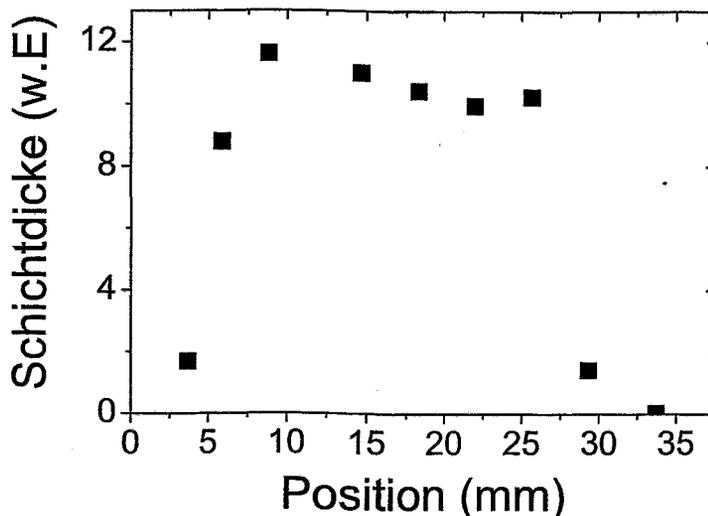
Zwischen der Kammer und den ISO-gedichteten Röhren der Strahlführung befindet sich ein Zwischenstück aus drei CF40-4-fach-Kreuzstücken, das von einer 50 l/s-Turbopumpe gepumpt wird. Unmittelbar vor der Kammer befindet sich eine kreisförmige Blende mit einem Durchmesser von 4 mm. Zwischen der Streukammer und der Spektrometerkammer, deren Basisdruck bei  $4 \times 10^{-8}$  mbar liegt, befindet sich eine Blende mit einer Öffnung von etwa  $4 \times 20$  mm<sup>2</sup>. Während der Messung können so in der Kammer Drücke von  $1 - 1.2 \times 10^{-9}$  mbar aufrechterhalten werden. Die Erhöhung des Druckes ist dabei im wesentlichen auf eine Erhöhung des Wasser-Partialdruckes zurückzuführen.

### 3.1.2 Verdampfer

Als Quelle zur Erzeugung des Au- bzw. Ta-Dampfes wurde der Elektronenstrahlverdampfer EFM 3 von Omicron eingesetzt. Dieser erlaubt das Verdampfen nahezu aller Elemente des Periodensystems aus Drähten oder Tiegeln bei Temperaturen bis zu 3000 K (Drähte) bzw. 2000 K (Tiegel). Dazu werden Elektronen aus einer 1 mm W-Drahtkathode auf das auf Hochspannung liegende Verdampfermaterial beschleunigt. Die Hochspannung beträgt typischerweise 800-1000 V. Die maximale Leistung bei einem Emissionsstrom von 300 mA liegt bei 300 W. Als Netzgerät wurde das Modell NG EFM von Omicron verwendet. Der Abstand des Verdamp-

fermaterials zur Probe beträgt etwa 330 mm und ist damit um einen Faktor 3 größer als es der Herstellerempfehlung entspricht. Dies wirkt sich in erster Linie auf die Verdampfungsraten aus, welche etwa um einen Faktor 9 niedriger sind als im Handbuch angegeben. Da für die vorliegende Arbeit nur kleine Verdampfungsraten notwendig waren, stellt dies keine wesentliche Einschränkung dar.

Ein Teil des verdampften Materials wird durch die Elektronen ionisiert und anschließend von einem Ionenkollektor abgesaugt. Der dadurch erzeugte Strom ist bei festem Emissionsstrom und fester Hochspannung ein Maß für die Menge verdampften Materials. Dieser Flussmonitor lässt sich leicht mit Standard-RBS eichen und erlaubt eine gut reproduzierbare Abscheidung gleicher Mengen. Für die Austrittshülse wurde eine Durchmesser von 6 mm gewählt. Das Verdampfermaterial ist von einer wassergekühlten Kupferummantelung umgeben, welche das Ansteigen des Restgasdruckes unterdrückt. Typische Restgasdrücke während des Betriebs des Verdampfers lagen im Bereich von  $1\text{-}5 \times 10^{-9}$  mbar.



**Abbildung 3.3:** Verdampfungsfleck nach Verdampfung von etwa einer Monolage Ta. Die Schichtdicke wurde mit RBS (3 MeV Li) an mehreren Positionen quer durch die bedampfte Kreisfläche bestimmt.

Gold wurde aus einem Mo-Tiegel mit einem Volumen von  $75 \text{ mm}^3$  verdampft. Typische Einstellungen waren dabei: 900 V Hochspannung, 25-30 mA Emissionsstrom und  $9 \mu\text{A}$  Fluss. Tantal wurde aus einem Draht des Durchmessers 1 mm bei maximaler Leistung verdampft. Die Verdampfungsraten lagen bei etwa 0.1 Monolage pro Minute. Abbildung 3.3 zeigt eine RBS-Analyse eines auf diese Weise erhaltenen Verdampfungsflecks am Beispiel von Ta. Der Durchmesser des Verdampfungsfleckes beträgt 22 mm und erlaubt damit eine homogene Schichtabscheidung bei typischen Probengrößen von  $8 \times 15 \text{ mm}^2$ .

### 3.1.3 RHEED

Das Ziel der RHEED-Messungen war die Charakterisierung des Ausgangszustandes des Si(111)-Substrates, die Beurteilung der Reinigung der Oberfläche sowie die Kontrolle des Wachstums

dünnen Au-Filme im Sub-Monolagenbereich. Für diese Messungen stand die Elektronenquelle EK-35-R von Staib Instruments und ein Videosystem zusammen mit der Software eescan-RHEED zur Verfügung. Alle Messungen wurden bei einer Elektronenenergie von 30 keV durchgeführt. Beispiele für RHEED-Aufnahmen von Si(111)-Oberflächen werden in Kapitel 5 gezeigt.

### 3.1.4 Goniometer

Bei dem eingesetzten Goniometer handelt es sich um ein 5-Achsen-Goniometer der Firma AML. Alle Achsen werden durch UHV-Schrittmotoren betrieben. Die nominelle Genauigkeit der Winkeleinstellung der drei Rotationsachsen beträgt  $0.01^\circ$ . Die Genauigkeit der zwei Translationsachsen (in der Ebene der Targetoberfläche) beträgt 0.02 mm. Aufgrund zahlreicher Probleme mit der Lebensdauer der eingebauten Kugellager wurde eine der Achsen umgebaut und wird nun über eine differentiell gepumpte Drehplattform im Deckel der Kammer bewegt, so dass die nominelle Genauigkeit dieser Achse nun bei  $0.05^\circ$  liegt.

Die UHV-Kompatibilität der Schrittmotoren ist nur bedingt gegeben, da die Motoren bei typischen Bewegungen bis zu  $150^\circ\text{C}$  heiß werden. Eine Bewegung der umgebauten Achse hat dagegen keine Auswirkung auf den Druck.

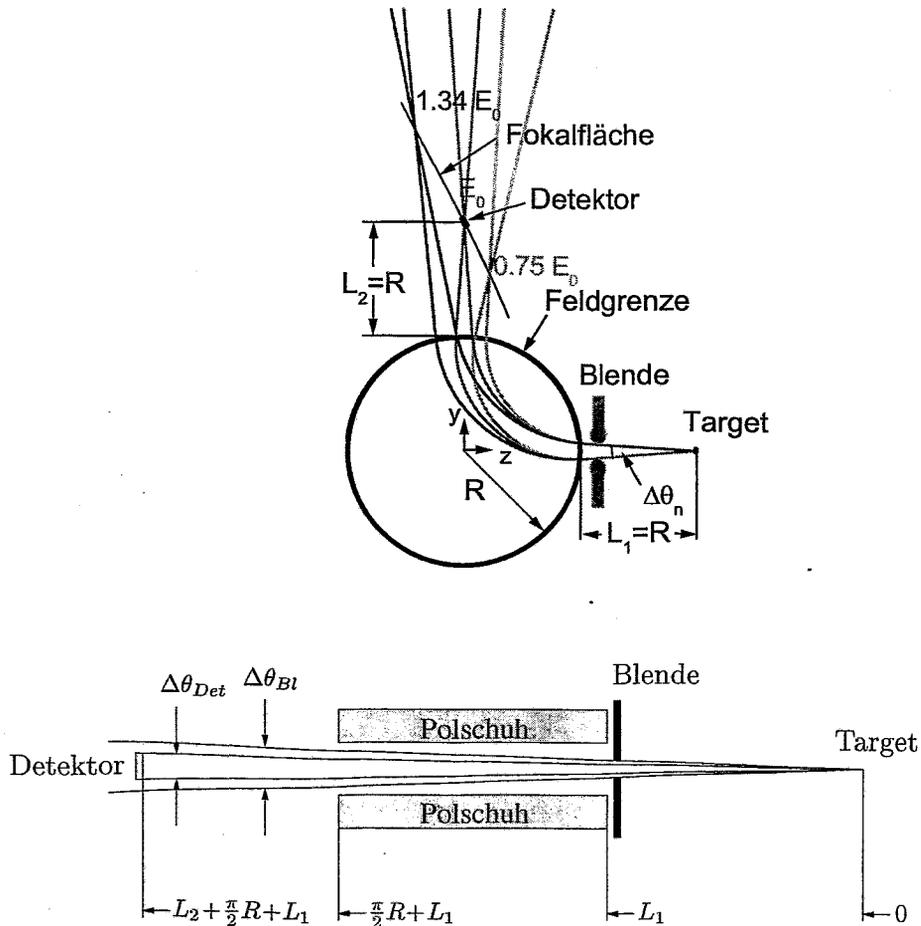
## 3.2 Ionenoptische Eigenschaften des Browne-Buechner-Magneten

Die Verwendung von magnetischen und elektrostatischen Spektrometern zur präzisen Messung der Energie von schnellen Ionen hat eine lange Geschichte [Eng79]. Die treibende Kraft dabei war die Kernphysik, welche eine Reihe verschiedener Bauarten hervorgebracht hat, deren Ionenoptik gut verstanden ist. Erst Mitte der 70er Jahre finden solche Spektrometer auch in der Ionenstrahlanalytik Verbreitung, sowohl mit eigens für diesen Zweck gebauten Spektrometern [Sme82, Feu76, Hag79, Arn93, Arn93, Boe90, Lan98, Lan00, Kim94] als auch mit bereits bestehenden Geräten [End92, Dol92].

Das in der vorliegenden Arbeit verwendete Browne-Buechner-Spektrometer geht auf C. P. Browne und W. W. Buechner zurück, die diesen Typ in den 50er Jahren für die Analyse von Kernreaktionsprodukten in einem weiten Energiebereich nach einer Idee von K. T. Bainbridge entwickelt und gebaut haben [Bro56]. Eine theoretische Beschreibung der ionenoptischen Eigenschaften dieses Magneten wurde von C. M. Braams geliefert [Bra56]. In Ergänzung zu diesen Publikationen wurden in der vorliegenden Arbeit umfangreiche Simulationen mit Hilfe der SIMION-Software [Dah95] durchgeführt. Die nachfolgenden Abschnitte behandeln die relevanten Spektrometer-Eigenschaften wie Dispersion, Vergrößerung, Aberration sowie Lage und Neigung der Fokalebene.

### 3.2.1 Prinzip des Browne-Buechner-Magneten

Abbildung 3.4 zeigt die prinzipielle Anordnung von Browne-Buechner-Magnet, Detektor und Target. Das einzige ionenoptische Element dieses Spektrometers ist ein homogener Dipolmagnet, dessen Feldgrenze durch einen Kreis mit Radius  $R$  gebildet wird. Wenn sich das Target in einem Abstand  $R$  von der Feldkante befindet, ergibt sich für den  $90^\circ$ -Strahl ein radialer Fokus im Abstand  $R$  von der Feldkante am Spektrometer-Ausgang. Für den Impuls  $p_0$  des um



**Abbildung 3.4:** Schema des Browne-Buechner-Spektrometers in radialer Richtung (oben) und axialer Richtung (unten).

$90^\circ$  abgelenkten Teilchens gilt

$$p_0/q = BR. \quad (3.1)$$

Dabei bezeichnet  $q$  die Ionenladung und  $B$  das eingestellte Magnetfeld. Die Foki für Ionen mit anderen Impulsen liegen auf einer hyperbolischen Fläche, welche in der Nähe des  $90^\circ$ -Strahls sehr gut durch eine um  $63.4^\circ$  gegen die Flugrichtung der Ionen geneigte Ebene beschrieben werden kann. Im Folgenden werden die Begriffe Fokalfläche und Fokalebene als Synonyme verwendet. Durch die runde Form des Magnetfeldes wird erreicht, dass die Trajektorien der Teilchen über einen weiten Impulsbereich senkrecht zu den Feldgrenzen verlaufen. Diese Anordnung führt zu einem Minimum an axialer Defokussierung bei einer gleichzeitigen großen Bandbreite der Fokalebene. Im Grenzfall verschwindend kleiner Randfelder ist die axiale Defokussierung exakt

Null. Bei einem realen Magneten existieren an den Polschuhgrenzen zusätzliche Feldkomponenten, die durch den Abfall des Feldes an dieser Stelle bedingt sind. Die radiale Komponente, die axial defokussierend wirkt, ist allerdings sehr klein und kann für die meisten Fragestellungen vernachlässigt werden (für eine genauere Abschätzung der Defokussierung beim Rossendorfer Browne-Buechner-Magnet siehe Anhang C).

Die wichtigsten Parameter des Rossendorfer Browne-Buechner-Magneten sind in Tabelle 3.1 zusammengefasst. Die Streuebene steht senkrecht zur Mittelebene des Magneten. Vor dem

Krümmungsradius $R$	650 mm
Ablenkwinkel	90°
Polschuhabstand	50 mm
Maximalenergie (für einfach geladene Ionen)	16 MeV/ $m_1$ [amu]
Polprofil	angenäherte Rogowski-Form
Feld-Homogenität am Eingang (senkrecht zur Teilchentrajektorie)	$2.5 \times 10^{-4}$ auf $\pm 25$ mm
Feld-Homogenität am Ausgang (senkrecht zur Teilchentrajektorie)	$2.5 \times 10^{-4}$ auf $\pm 100$ mm
Lage der Mittelebene zur Streuebene	vertikal
Dispersion in der Fokalebene	$\sim 1450$ mm
Energiefenster $\Delta E/E_0$	$\sim 3\%$ (bei Detektorlänge 50 mm)
Mögliche Streuwinkel	35.5° und 144.5°
Akzeptanzwinkel $\Delta\theta_i$ (in der Streuebene)	gegenwärtig: 4.34 mrad (vorgegeben durch Detektorbreite)
Akzeptanzwinkel $\Delta\theta_n$ (senkrecht zur Streuebene)	maximal 79.37 mrad
Raumwinkel	$0.93 \Delta\theta_n \Delta\theta_i$ (siehe Anhang C)

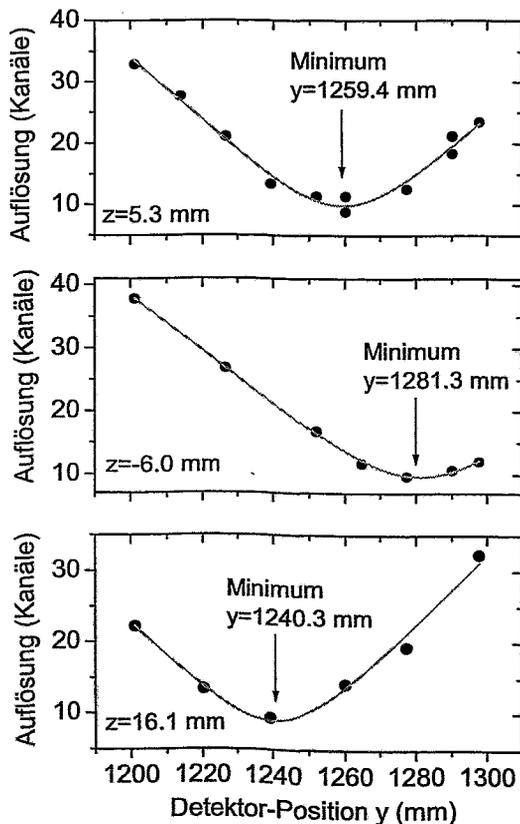
Tabelle 3.1: Technische Parameter des Browne-Buechner-Spektrometers.

Magneten befindet sich senkrecht zur Streuebene eine variable Schlitzblende als Kinematikblende mit einer maximalen Öffnung von  $\Delta\theta_n = 4.52^\circ$ . Der zur Streuebene parallele Akzeptanzwinkel  $\Delta\theta_i$  ist gegenwärtig durch eine feste Schlitzblende auf  $\Delta\theta_{Bl} = 0.56^\circ$  begrenzt. In der Praxis wird  $\Delta\theta_i$  durch die Breite des Detektors in axialer Richtung vorgegeben und beträgt  $\Delta\theta_i = \Delta\theta_{Det} = 0.249^\circ$ . Der maximal mögliche Akzeptanzwinkel wird durch die Abmessung der Vakuumkammer des Spektrometers vorgegeben und beträgt  $\Delta\theta_i = \Delta\theta_{max} = 1^\circ$ .

Das maximale Magnetfeld beträgt 0.89 T und erlaubt somit die Detektion von geladenen Teilchen mit einem Impuls-Ladungs-Verhältnis von 0.58 T $\times$ mm oder einem Masse-Energie-Produkt von 16 MeV $\times$ amu. Damit können alle positiven Ladungszustände von Ionen der Masse  $m_1$  bis zu einer Energie von 16 MeV $\times q^2/(m_1/a.m.u.)$  registriert werden. Im Falle der vom Rossendorfer 3 MV-Tandetron gelieferten Ionen ist diese Bedingung für  $q = 1$  meistens und für  $q = 2$  immer erfüllt.

### 3.2.2 Fokalebene

Der genaue Abstand der Fokalebene vom Feldrand wurde experimentell ermittelt. Dazu wurden 3 MeV  $\text{Li}^{2+}$ -Ionen unter einem Streuwinkel von  $144.5^\circ$  an einem dicken Gold-Target gestreut und mit dem ortsauflösenden Detektor registriert. Als Maß für den Abstand des Detektors von der Fokalebene eignet sich die Schärfe der Hochenergiekante des auf diese Weise erhaltenen RBS-Spektrums. Die Kinematikblende war dabei auf den Maximalwert von  $\Delta\theta_n = 4.52^\circ$  eingestellt. Der Detektor wurde senkrecht zur Flugrichtung der Ionen auf einer Schiebedurchführung mit einem Hub von  $\pm 50$  mm montiert. Der Lage der Hochenergiekante entlang der Detektorlängsachse bestimmt den seitlichen Auftreffort der Ionen entlang der  $z$ -Achse, während die Detektorposition bei minimaler Verschmierung der Kante die  $y$ -Position der Fokalebene markiert. Dabei sind  $z$  und  $y$  wie in Abbildung 3.4 definiert.

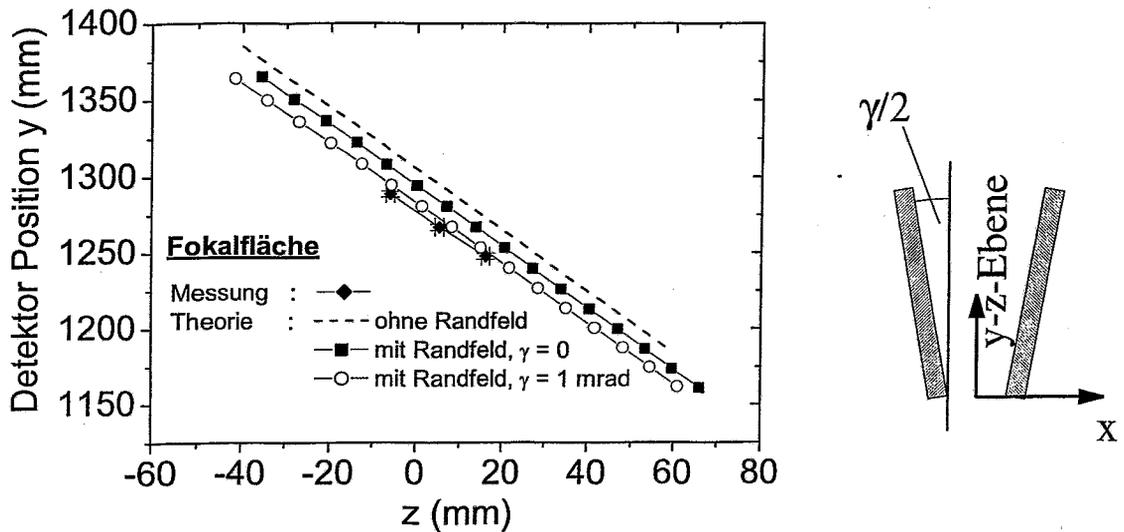


**Abbildung 3.5:** Bestimmung der Lage der Fokalebene. Die Diagramme zeigen die Schärfe der Hochenergiekante des RBS-Spektrums einer dicken Gold-Schicht (Details siehe Text) bei verschiedenen Detektorpositionen. Die Diagramme wurden bei verschiedenen Magnetfeldeinstellungen aufgenommen. Für den Höhen-Scan wurde der Detektor entlang der Flugrichtung der Ionen verschoben (Detektor-Position  $y$ ). Die Pfeile markieren die Lage der Fokalebene in  $y$ -Richtung. Die  $z$ -Richtung ist durch die Magnetfeldeinstellung vorgegeben.

Abbildung 3.5 zeigt die Kantenschärfe als Funktion der Detektorposition für drei verschiedene Magnetfeldeinstellungen und dementsprechend auch für drei verschiedene Auftrefforte der Ionen im ortsauflösenden Detektor. Diese Kurven wurden mit einer Funktion der Form

$$\delta k = \sqrt{\delta k_{\min}^2 + c_1(y - y_{\min})^2} \quad (3.2)$$

gefitet. Dabei ist  $\delta k(y)$  die Auflösung bei der Detektor-Position  $y$  in Kanälen,  $\delta k_{\min}$  die optimale Auflösung im Minimum,  $y_{\min}$  die gesuchte optimale Detektor-Position und  $c_1$  eine Fitkonstante.



**Abbildung 3.6:** Gemessene und berechnete Fokalebene. Zur Definition von  $\gamma$  siehe die Skizze und den Text. Die Fokalebene ohne Randfeld ist der analytischen Formel nach [Bra56] entnommen, die Fokalebenen mit Randfeld sind mit Hilfe der SIMION-Software bestimmt worden, das Randfeld wurde entsprechend den von DANFYSIK durchgeführten Messungen angenommen.

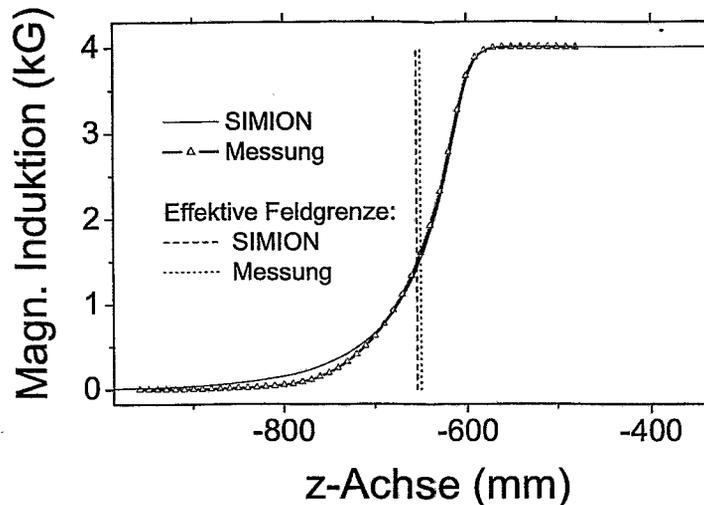
Daraus ergeben sich drei Punkte der Fokalebene, die deren Position und Neigung festlegen. Diese drei Punkte werden in Abbildung 3.6 zusammen mit den theoretischen Vorhersagen dargestellt. Zunächst fällt auf, dass die gemessene Fokalebene deutlich unterhalb der theoretisch bestimmten Fokalebene liegt [Bra56, Bro56]. Prinzipiell kann sich so eine Verschiebung ergeben, wenn der Targetpunkt entweder in  $y$ -Richtung oder in  $z$ -Richtung verschoben ist. Eine Verschiebung um  $\Delta$  entlang der  $y$ -Achse am Targetpunkt wirkt sich als Verschiebung um  $-\Delta$  entlang der  $z$ -Achse am Fokalebene aus, was die Fokalebene nach unten verlagert. Eine Verschiebung um  $\Delta$  entlang der  $z$ -Achse lässt sich gemäß

$$L_1 = R^2/L_2 \quad (3.3)$$

(siehe [Bro56] und Abbildung 3.4) bestimmen. Die gefundene Abweichung ist allerdings viel größer als die Justiergenauigkeit von  $\pm 0.5$  mm. Um die Ursache für diese Diskrepanz genauer zu untersuchen, wurden mittels der SIMION-Software Simulationen durchgeführt, welche die Einbeziehung von Randfeldeffekten und Inhomogenitäten im Magnetfeld erlauben. SIMION ermöglicht die Eingabe von Potentialflächen in Form von Pixelfeldern, welche die gewünschte Polschuhform beschreiben [Dah95]. Daraus werden Feldverteilungen in allen drei Raumrichtungen errechnet. Die Eingabe von Stromverteilungen ist allerdings nicht möglich, da SIMION nur mit skalaren Potentialen arbeitet. Schließlich lassen sich die ionenoptischen Eigenschaften eines bestimmten Elementes über die Simulation von Ionentrajektorien bestimmen.

Abbildung 3.7 zeigt den mit SIMION berechneten Feldverlauf der Hauptkomponente des Magnetfeldes senkrecht zu den Polschuhflächen im Bereich der Polschuhkanten, welche beim Rossendorfer Browne-Buechner-Magneten eine angenäherte Rogowski-Form haben. Ebenfalls dargestellt ist der vom Hersteller DANFYSIK vor Auslieferung des Magneten gemessene Feld-

verlauf. Besonders im Bereich außerhalb der effektiven Feldkanten findet sich eine Abweichung zwischen Messung und Simulation, wobei letztere einen etwas langsameren Abfall ergibt. Die wahrscheinliche Ursache hierfür ist die Nichtberücksichtigung der durch die Spulen verursachten Felder. Aus diesem Grund wurde in den Simulationen die Hauptkomponente des Magnetfel-



**Abbildung 3.7:** Mit SIMION berechneter und gemessener Feldverlauf am Ein- bzw. Ausgang des Browne-Buechner-Magneten. Die Abweichungen sind auf die Nichtberücksichtigung der Spulenfelder zurückzuführen.

des durch die gemessene Verteilung ersetzt, während die übrigen Komponenten von SIMION übernommen wurden. Um die ausreichende Genauigkeit der simulierten Ionen-Trajektorien zu überprüfen, wurden diese in umgekehrter Richtung bei negativer Ladung durchlaufen.

Eine leichte Verkippung der Polschuhkanten wurde in die Simulation einbezogen. Dabei sind die Polschuhe jeweils nicht exakt parallel zur  $y$ - $z$ -Ebene sondern zu dieser um einen Winkel  $\gamma/2$  verkippert, wie in der Skizze in Abbildung 3.6 angedeutet. Diese Möglichkeit wurde berücksichtigt, da die Polschuhe beim Rossendorfer Browne-Buechner Magneten eine solche Verkippung im Bereich von  $\gamma = 10^{-3}$  aufweisen. Dazu wurde der Polschuhabstand an vier Punkten mit Mikrometerschrauben gemessen. Der Polschuhabstand ist am Spektrometerausgang größer als am Spektrometereingang. Da die Planheit der Polschuhoberflächen im Mikrometerbereich liegt, kann davon ausgegangen werden, dass es sich dabei um eine systematische Abweichung handelt.

Solange  $\gamma \ll 1$  kann das Magnetfeld zwischen den Polschuhen als proportional zum Polschuhabstand angenommen werden. Alle Effekte, die mit der Existenz des Randfeldes in Verbindung gebracht werden, wurden durch eine Simulation ohne Randfeld gegengeprüft. Diese Rechnungen ergaben ausnahmslos die gleichen Resultate wie in [Bra56] und [Bro56].

Abbildung 3.6 zeigt die Auswirkung des Randfeldes mit und ohne Verkippung der Polschuhe auf die Lage der Fokalebene. Die Rechnung ergibt eine Verlagerung der Fokalebene nach unten, wenn lediglich das Randfeld berücksichtigt wird. Die Ursache hierfür liegt in einer geringen Differenz zwischen den effektiven Feldgrenzen begründet, wenn diese auf der einen Seite entlang der Teilchenbahn und auf der anderen Seite entlang des Kreisradius des Magnetfeldes berechnet werden. Diese Berechnung erfolgt nach der Vorschrift  $\int_{-\infty}^{\infty} B ds$ , wobei  $ds$  einmal entlang des

Teilchenweges und einmal entlang des Kreisradius (also hier z. B. entlang der y- oder der z-Achse) genommen wird. Das Ergebnis lautet  $R=649.2$  mm für den Teilchenweg und  $R=651.3$  mm für den Weg entlang des Kreisradius. Gemäß Gleichung (3.3) ergibt sich damit eine Differenz von 8.4 mm, wenn die Ionen im gleichen Abstand von der Feldkante starten. Dazu kommt noch ein Beitrag von 1.5 mm, der daher rührt, dass das Minimum der Strahltaile bei vollständig geöffneter Kinematikblende um diesen Betrag unterhalb der Fokalebene liegt (die Simulationen wurden mit einem Ionenbündel durchgeführt, welches den entsprechenden Öffnungswinkel hat; für weitere Details siehe 3.2.4).

Wird zusätzlich die beschriebene Verkippung in Betracht gezogen, ergibt sich eine weitere Verschiebung der Fokalebene nach unten, wie in Abbildung 3.6 zu sehen ist. Auch hier lässt sich ein effektiver Radius bestimmen, der in diesem Fall  $R=646.1$  mm beträgt. Über die Beziehung (3.1) lässt sich mit  $E_0 = p_0^2/2m$  die Energie  $E_0$  eines  $90^\circ$ -Teilchens der Masse  $m_1$  ermitteln.

Nimmt man  $\gamma < 0$  an, so erhält man eine nach oben verschobene Fokalebene. Die Genauigkeit, mit der  $\gamma$  mittels einer Mikrometerschraube bestimmt werden kann, liegt im Bereich von 0.3 mrad. Unter diesen Umständen ist die Übereinstimmung von gemessener und berechneter Fokalebene zufriedenstellend. Die Auswirkung der Polschuhverkippung und des Randfeldes auf die Aberration wird in Kapitel 3.2.4 beschrieben.

### 3.2.3 Vergrößerung und Dispersion

Zur Bestimmung der Spektrometerauflösung sind die Größen Dispersion  $D$  und Vergrößerung  $M$  von wesentlicher Bedeutung. Die Definitionen von  $D$  und  $M$  lauten

$$\frac{\Delta s}{D(E)} = \frac{\Delta E}{E} \quad (3.4)$$

$$M(E) = \frac{\Delta s}{\Delta h} \quad (3.5)$$

Dabei ist  $\Delta s$  ein Wegstück entlang der Fokalebene und  $\Delta h$  eine Verschiebung des Targetpunktes in y-Richtung. Bei einer gegebenen Strahlfleckgröße  $\Delta h$  auf dem Target ergibt sich ein Auflösungsvermögen des Spektrometers von

$$\mathfrak{R} = \frac{E}{\Delta E} = \frac{D(E)}{M(E)\Delta h} \quad (3.6)$$

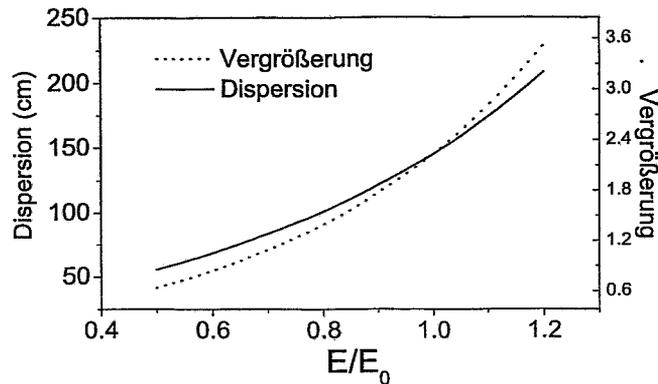
Diese Definitionen sind in Abbildung 3.9 veranschaulicht. Beim Browne-Buechner-Magneten betragen  $D(E)$  und  $M(E)$  [Bro56] :

$$D(E) = 2R \chi(E) \quad (3.7)$$

$$M(E) = \left(1 + \frac{E}{E_0}\right) \chi(E) \quad (3.8)$$

$$\chi(E) = \sqrt{9 \frac{E}{E_0} + 10 \left(\frac{E}{E_0}\right)^2 + \left(\frac{E}{E_0}\right)^3} \left(3 - \frac{E}{E_0}\right)^{-2} \quad (3.9)$$

Dabei ist  $E_0$  die Energie des  $90^\circ$ -Ions. Für  $E = E_0$  ist das Auflösungsvermögen durch  $\mathfrak{R} = R/\Delta h$  gegeben. Da der Ausdruck  $1 + \frac{E}{E_0}$  über den nutzbaren Bereich der Fokalebene nur schwach



**Abbildung 3.8:** Dispersion und Vergrößerung des Rossendorfer Browne-Buechner-Magneten. Zur Definition von Dispersion und Vergrößerung siehe Abbildung 3.9 sowie die Gleichungen (3.4) und (3.5).

variiert, ist  $\mathfrak{R}$  praktisch konstant und beträgt bei einer typischen Strahlfleckgröße von 0.5 mm:  $\mathfrak{R} = 1300$ . In der Nähe von  $E = E_0$  kann man  $\chi(E)$  um  $E_0$  entwickeln und erhält

$$\chi(E) = \sqrt{5/4} \left( 1 + 1.8 \left( \frac{E - E_0}{E_0} \right) + 1.555 \left( \frac{E - E_0}{E_0} \right)^2 + \dots \right). \quad (3.10)$$

In der Nähe der 90°-Ablenkung hängt die Dispersion demnach in guter Näherung linear von der Energie ab. Für die Konvertierung von Ort und Energie ergibt sich damit

$$s(E) = s_0 + \frac{D_0}{E_0} + \frac{2 D_0}{5 E_0^2} (E - E_0)^2 + \dots \quad (3.11)$$

bzw.

$$E(s) = E_0 + \frac{E_0}{D_0} (s - s_0) - \frac{2 E_0}{5 D_0^2} (s - s_0)^2 + \dots \quad (3.12)$$

Dabei wird  $s$  entlang der Fokalebene gemessen und alle Größen mit Index 0 beziehen sich auf die 90°-Trajektorie. Ferner gilt  $D_0 = \sqrt{5}R$ .

In [Bur60] wurde die Dispersion als Funktion von  $L_1$  berechnet. Für die 90°-Ionen ergibt sich daraus mit  $L_1 \approx R$ :

$$D(E = E_0) = R\sqrt{5} - 2.01 (L_1 - R) + \dots \quad (3.13)$$

Dies bedeutet, dass eine Verschiebung des Targetpunktes in  $z$ -Richtung keine wesentliche Änderung der Dispersion mit sich bringt. In Abbildung 3.8 sind die Dispersion und die Vergrößerung nach Gleichung (3.7) und (3.8) graphisch dargestellt. Aufgrund der Ergebnisse aus Abschnitt 3.2.2 wurde die Dispersion unter Berücksichtigung des Randfeldes und unter Berücksichtigung einer Verkippung der Polschuhe durch eine SIMION-Simulation ermittelt (siehe auch Abschnitt 3.2.2). Das Ergebnis zeigt Abbildung 3.10. Alle drei Kurven beziehen sich auf den Startwert  $L_1 = R$  mit  $R=649.1$  mm. Die für den Fall  $\gamma = 0$  (keine Verkippung) berechnete Dispersion ist nahezu identisch mit der theoretisch vorhergesagten für einen Magneten mit scharfen Feldkanten. Sie ist lediglich um wenige Millimeter zu kleineren Werten verschoben. Für  $E = E_0$  ergibt sich  $D = 1444.3$  mm, während aus Gleichung (3.7)  $D = 1451.4$  mm folgt. Für  $\gamma = 1$  mrad erhält man  $D = 1409.7$  mm während aus (3.7) und (3.13) mit  $R=646.1$  mm (siehe Abschnitt 3.2.2)  $D = 1432.6$  mm folgt.

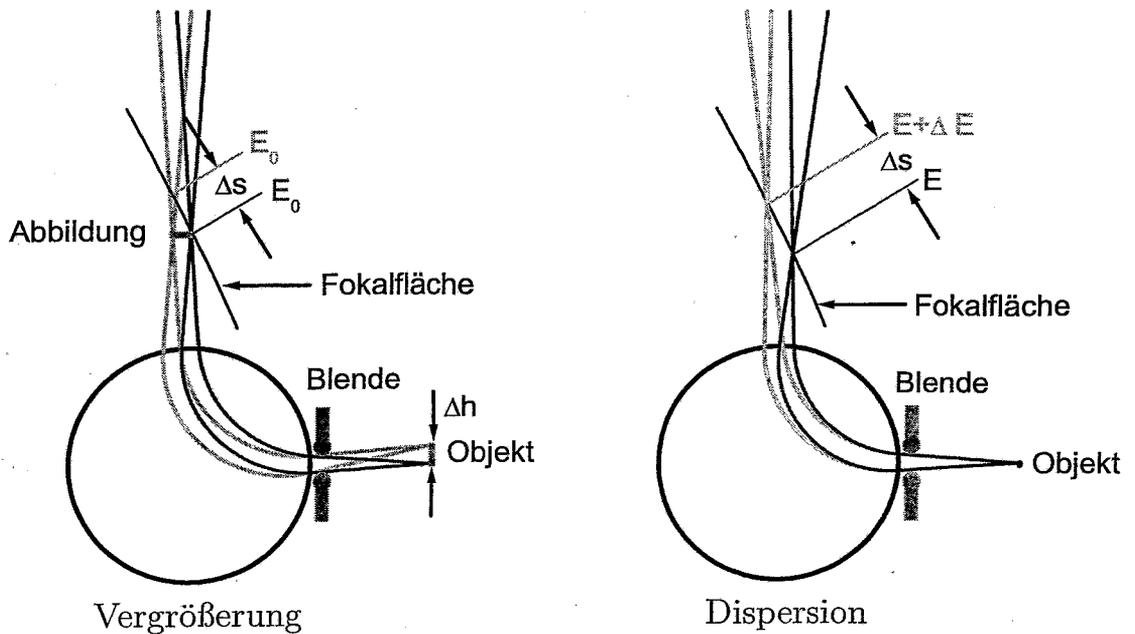


Abbildung 3.9: Schematische Darstellung von Dispersion und Vergrößerung beim Browne-Buechner-Magneten.

### 3.2.4 Aberration

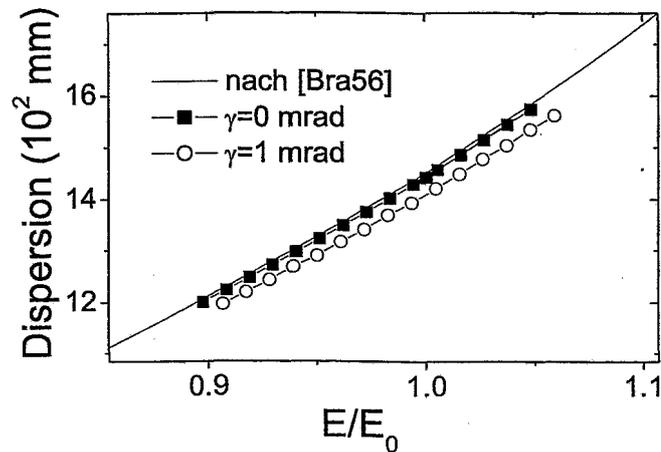
Entscheidend für den Einsatz eines hochauflösenden Spektrometers ist ein gutes Verständnis der Abbildungsfehler, da diese eine untere Grenze für die erreichbare Energieauflösung darstellen. Als Aberration wird im Folgenden die Basisbreite  $d_b$  der Abbildung einer punktförmigen monoenergetischen Quelle bezeichnet. Die Basisbreite ist einer Definition über Halbwertsbreiten vorzuziehen, da die Intensitätsverteilung des Abbildungsflecks im Allgemeinen keine Gaußverteilung darstellt (siehe unten). Entwickelt man die Aberration  $d_b$  nach Potenzen des Öffnungswinkels  $\Delta\theta_n$ , so erhält man gemäß

$$d_b = d_b^{(1)} \Delta\theta_n + d_b^{(2)} \Delta\theta_n^2 + d_b^{(3)} \Delta\theta_n^3 + \dots \quad (3.14)$$

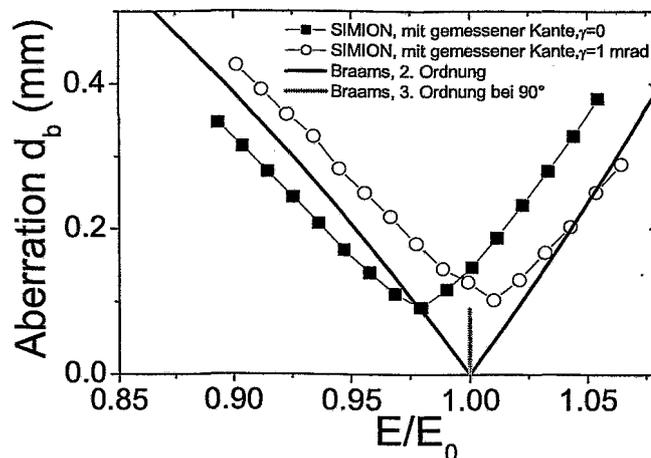
mit  $d_b^{(1)}$  die Aberration erster Ordnung, mit  $d_b^{(2)}$  die Aberration zweiter Ordnung usw. Der Fall  $d_b^{(1)} = 0$  legt die Fokalebene fest. Dort ist die Aberration also immer höchstens proportional zu  $\Delta\theta_n^2$ . Im Falle des Browne-Buechner-Magneten ist für  $90^\circ$ -Ablenkung sogar  $d_b^{(2)} = 0$ , so dass für  $E = E_0$  gilt:  $d_b \propto \Delta\theta_n^3$ . In [Bra56] wurden  $d_b^{(2)}$  und für den Fall  $E = E_0$  auch  $d_b^{(3)}$  berechnet.<sup>1</sup>

Bei dem maximalen Öffnungswinkel des Rossendorfer Browne-Buechner-Spektrometers von  $4.52^\circ$  ergibt sich das in Abbildung 3.11 dargestellte Verhalten. Die Aberration steigt zu beiden Seiten der Fokalebene in etwa gleich stark an und bleibt in einem Energiefenster von 10% Breite unter einem Wert von 0.25 mm. Als Minimalwert ergibt sich in der Mitte der Fokalebene  $d_b^{(3)} = 0.09$  mm. Dies ist zu vergleichen mit der typischen Strahlfleckbreite von 0.5 mm, welche

<sup>1</sup>Die Berechnung von  $d_b^{(3)}$  in [Bra56] setzt voraus, dass alle niedrigeren Ordnungen verschwinden, was nur für  $E = E_0$  der Fall ist.



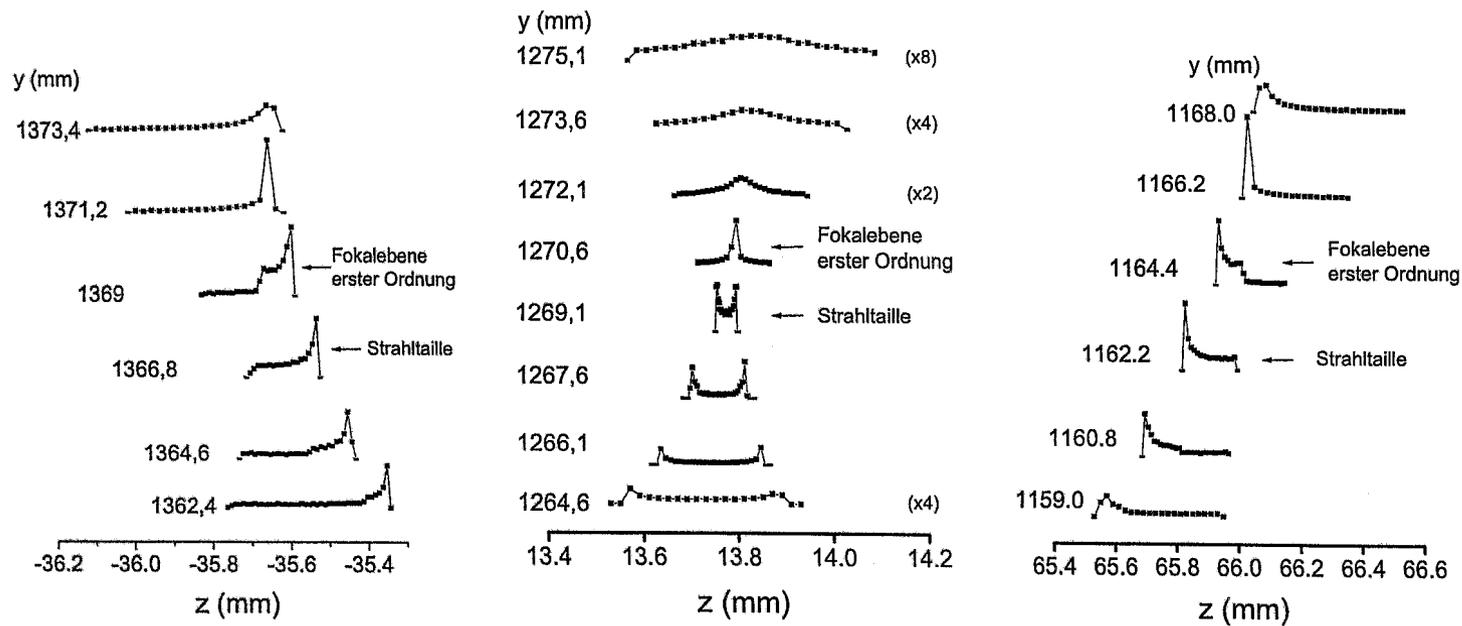
**Abbildung 3.10:** Dispersion, berechnet nach [Bra56] und mittels SIMION. Zur Definition von  $\gamma$  siehe Abbildung 3.6.



**Abbildung 3.11:** Aberration des Browne-Buechner-Spektrometers. In [Bra56] (Braams) wird die Aberration dritter Ordnung nur für die  $90^\circ$ -Trajektorie berechnet. Die SIMION-Simulationen enthalten alle Ordnungen.

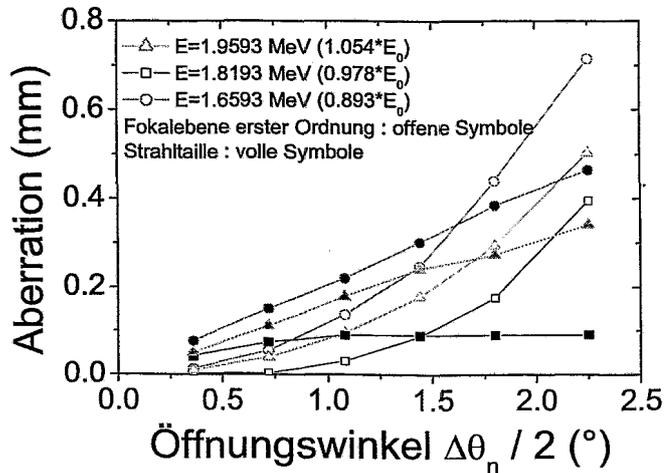
wegen der Vergrößerung von  $M = 2.3$  in der Fokalebene einen Abbildungsfleck von etwa 1.1 mm Größe erzeugt. Es ist daher nicht unbedingt sinnvoll, einen Detektor mit einer Ortsauflösung von deutlich unter 0.25 mm einzusetzen. Auf der anderen Seite zeigt sich, dass eine Nutzung der extremen Ränder der Fokalebene nicht ratsam ist, da die Energieauflösung des Spektrometers dort wegen der Aberration deutlich geringer als in der Mitte ist.

Auch im Falle der Aberration wurde die Auswirkung des Randfeldes und einer Verkippung der Polschuhe mit  $\gamma = 1$  mrad (zur Definition von  $\gamma$  siehe Abschnitt 3.2.2 und Abbildung 3.6) mittels einer SIMION-Simulation untersucht. Die entsprechenden Aberrationen sind ebenfalls in Abbildung 3.11 dargestellt. Es wurden dazu einige hundert Ionen gleicher Energie simuliert, die am Ort  $z = 2R$  mit  $R=649.1$  mm starten und sich in der Mittelebene des Magneten bewegen. Der



**Abbildung 3.12:** Strahlprofile für drei verschiedene Energien  $E/E_0 = 1.05, 0.96, 0.89$  (von links nach rechts) in der Umgebung der Fokalebene. Zur Definition von y und z siehe Abbildung 3.4.

Winkelbereich der Ionen wurde so gewählt, dass er der maximalen Öffnung der Kinematikblende entspricht. Die Aberration lässt sich dann aus der Breite der räumlichen Ionenverteilung im Minimum der Strahlteile in der Fokalebene bestimmen. In diesem Fall ergibt sich direkt die Gesamtaberration.



**Abbildung 3.13:** Aberration als Funktion des Spektrometeröffnungswinkels  $\Delta\theta_n$  für drei verschiedene Punkte auf der Fokalebene. Die Fokalebene erster Ordnung ist durch die Bedingung  $d_b^{(2)} = 0$  definiert (zur Definition von Strahlteile und Fokalebene erster Ordnung siehe auch Abbildung 3.12).

Es stellt sich heraus, dass der prinzipielle Verlauf der Aberration nicht wesentlich anders als bei Vernachlässigung der Randfelder bzw. der Polschuhverkipfung ist. Die Kurven sind lediglich zu anderen Energien verschoben. Auch der Minimalwert ist in sehr guter Übereinstimmung mit den Vorhersagen aus [Bra56]. Die Verschiebung bewirkt allerdings, dass der Minimalwert nicht mehr für den Fall  $E = E_0$  erreicht wird, sondern bei etwas niedrigerer Energie, wenn man die Randfelder mitberücksichtigt, und bei einer höheren Energie, wenn zusätzlich die Polschuhverkipfung berücksichtigt wird. Nach wie vor ist der Beitrag der Aberration zur Verschmierung des Strahlflecks jedoch geringer als der Beitrag der endlichen Strahlleckgröße am Targetort.

Die Intensitätsverteilung im Abbildungsfleck ist im Allgemeinen keine Gaußverteilung. Abbildung 3.12 veranschaulicht dies für drei verschiedene Energien bei gleichem Magnetfeld oder mit anderen Worten für drei Punkte auf der Fokalebene. Dabei wurde die Polschuhverkipfung nicht berücksichtigt ( $\gamma = 0$ ). In allen drei Punkten ergibt sich das Minimum der Strahlteile etwa 1.5 mm unterhalb der Fokalebene erster Ordnung, d. h. der durch  $d_b^{(2)} = 0$  definierten Fokalebene. Dabei ist die Intensitätsverteilung jeweils an einem bzw. an beiden Rändern des Strahlflecks maximal. In der Fokalebene selbst hat die Verteilung bei  $E = E_0$  eine eher gaußförmige Gestalt mit einer zwar geringeren Halbwertsbreite, aber einer größeren Basisbreite.

Bei der in Abschnitt 3.2.2 beschriebenen Bestimmung der Fokalebene können solche subtilen Unterschiede natürlich nicht beobachtet werden, da in einem realen Experiment, wie oben dargelegt, die Aberration nicht der dominierende Beitrag zur Verschmierung des Strahlflecks ist. Zudem tragen noch andere Faktoren wie kinematische Fehler und die Energiestabilität des Beschleunigers zur Kantenschärfe in einem RBS-Spektrum bei (siehe dazu Abschnitt 2.2.2). Es zeigt sich aber, dass die Genauigkeit, mit der die Lage der Fokalebene bestimmt werden sollte, im

Bereich von etwa 2 mm liegt. Für Teilchen mit  $E > E_0$  bzw. mit  $E < E_0$  ergibt sich ein ähnliches Bild. Es ist offensichtlich, dass die Strahltaile für kleinere Öffnungswinkel des Spektrometers in Richtung der Fokalebene erster Ordnung wandern muss. In Abbildung 3.13 ist die Abhängigkeit der Aberration gegen diesen Öffnungswinkel aufgetragen. Dabei wurde die Basisbreite des Strahlflecks einmal in der Fokalebene erster Ordnung und einmal am Ort der minimalen Strahltaile bestimmt. Es wird deutlich, dass die Aberration für kleine Öffnungswinkel im ersten Fall kleiner ist als im zweiten, während es für große Öffnungswinkel gerade umgekehrt ist.

### 3.2.5 Kinematische Korrekturen

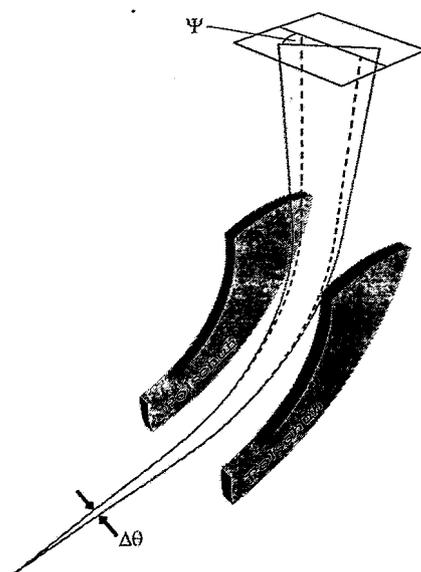
Im Allgemeinen hängt die Energie  $E$  der gestreuten Ionen vom Streuwinkel  $\theta$  ab. Da der Akzeptanzwinkel des Spektrometers endlich ist, ergibt sich auch eine endliche Breite im Spektrum der detektierten Ionen (siehe dazu Abschnitt 2.2.2). Es gibt verschiedene Möglichkeiten, diese sogenannten kinematischen Fehler zu korrigieren.

Für eine horizontal Anordnung des Browne-Buechner-Spektrometers, in welcher die Streuebene und die Mittelebene des Magneten zusammenfallen, lässt sich die Korrektur mit Hilfe der fokussierenden Eigenschaften des Dipolmagneten selbst bewerkstelligen [Eng58]. Die kinematischen Fehler bewirken in diesem Fall eine Verschiebung des Fokuspunktes, welche durch eine einfache Verschiebung des Detektors kompensiert wird. Diese Variante ist beim Rossendorfer Spektrometer aus Platzgründen jedoch nicht möglich.

Abbildung 3.14 veranschaulicht die Wirkung der Kinematik im Fall einer vertikalen Anordnung wie sie für die vorliegende Arbeit realisiert worden ist. Für monoenergetische Ionen, welche mit dem Öffnungswinkel  $\Delta\theta_i = \Delta\theta$  auf das Spektrometer treffen, ergibt sich der durch die gestrichelten Trajektorien dargestellte Verlauf. In Dispersionsrichtung und damit in der ortsauflösenden Richtung des Detektors treffen beide Randstrahlen am gleichen Ort auf. Für Ionen mit entsprechend der Kinematik verschiedenen Energien für um  $\Delta\theta$  verschiedene Streuwinkel ergeben sich entsprechend den daraus resultierenden unterschiedlichen Krümmungsradien der Trajektorien auch unterschiedliche Auftrefforte entlang der Dispersionsrichtung. Dieser Fall entspricht in der Abbildung 3.14 der durchgehend gezeichneten Trajektorie. Es gilt

$$\tan \Psi = \frac{D(E) \frac{dK}{d\theta} \Delta\theta}{d_{Det}} \quad (3.15)$$

mit der Detektorbreite  $d_{Det}$  und dem kinematischen Faktor  $K$ . Unter diesen Bedingungen und falls  $\Psi$  nicht zu groß ist, lässt sich nun die kinematische Korrektur durch eine entsprechende Drehung des Detektors erreichen.



**Abbildung 3.14:** Auswirkung der Kinematik auf die Abbildung in der Fokalebene bei vertikaler Anordnung des Magneten. Die gestrichelt gezeichnete Trajektorie gilt für den Fall  $dK/d\theta = 0$ . Für die durchgezogene gezeichnete Trajektorie gilt  $dK/d\theta \neq 0$ .

Alternativ dazu kann ein zweidimensional ortsauflösender Detektor als Fokalebeneendetektor eingesetzt werden. Der Streuwinkel kann dann für jedes detektierte Ion aus der zur Dispersionsrichtung senkrechten Ortskomponente bestimmt und entsprechend korrigiert werden.

Im gegenwärtigen Aufbau des Browne-Buechner-Spektrometers ist die axiale Ortsauflösung durch die Breite des Detektors gegeben. Eine aktive Korrektur der kinematischen Fehler wird nicht vorgenommen. Für die Detektion schwerer Targetatome ist dies tolerabel, da der Beitrag des kinematischen Fehlers zur Energieauflösung hier typischerweise  $< 5 \times 10^{-4}$  beträgt. Die kinematischen Fehler müssen bei der Berechnung der Energieauflösung des Spektrometers berücksichtigt werden (siehe dazu Abschnitt 2.2.2).

### 3.2.6 Ladungszustandsabhängige Energieverschiebung

Sollen die Energien von zwei verschiedenen Ladungszuständen direkt verglichen werden, so ist es notwendig, nichtlineare Effekte in der Magnetfeldeinstellung genau zu kennen, da Teilchen gleicher Energie und gleicher Masse, aber in verschiedenen Ladungszuständen, bei verschiedenen Magnetfeldeinstellungen registriert werden. Die idealerweise einzustellenden Magnetfelder für Teilchen der Ladung  $q$  skalieren gemäß Gleichung (3.1) mit  $1/q$ . Es hat sich in sämtlichen bisher durchgeführten Messungen gezeigt, dass diese Skalierung beim Rossendorfer Browne-Buechner-Magneten nicht in idealer Weise gegeben ist. Es ergeben sich vielmehr Abweichungen  $\Delta E_q$  im keV-Bereich, welche in systematischer Weise vom Ladungszustand  $q$  abhängen. Diese Abhängigkeit ist nicht linear. Der beobachtete Effekt ist auch nicht abhängig von der Richtung, aus welcher das gewünschte Magnetfeld angefahren wird.

Bezeichnet man mit  $B_g$  das gemessene Feld und trägt man die beobachtete Energieverschiebung, bezogen auf die Energie  $E_1$  des kleinsten registrierten Ladungszustandes, gegen  $1/B_g$  auf, so erhält man in guter Näherung eine Gerade. Die Steigung  $\lambda$  dieser Geraden, aufgetragen gegen  $E_1$ , ist in Abbildung 3.15 für verschiedene Energien und Teilchen dargestellt und kann durch eine universelle Gerade angepasst werden. Für diese Gerade ergibt sich  $\lambda = (2.42 \times E/\text{MeV} - 0.87)\text{mT MeV}$ .

Ein solches Verhalten lässt sich im Prinzip durch einen Offset in der Magnetfeldmessung erklären. Bezeichnet man mit  $E_w$  bzw.  $E_g$  die tatsächliche bzw. die eingestellte Energie und mit  $B_w$  und  $B_g$  die entsprechenden Magnetfelder, so erhält unter der Annahme, dass  $B_g = B_w + \Delta B$  aus Gleichung (3.1) unter Vernachlässigung von Ausdrücken der Ordnung  $\Delta B^2$  den Ausdruck

$$E_w = E_g - 2 \frac{\Delta B}{B_g} E_g. \quad (3.16)$$

Der Vergleich mit der Geraden aus Abbildung 3.15 lässt demnach auf einen Offset von  $\Delta B = -1.2$  mT schließen. Die Ursache dieses Offsets konnte allerdings nicht geklärt werden. Da die Einstellung des Magnetfeldes über eine Hallsonde geschieht, fällt die Stromversorgung als Ursache aus. Bei der zur Messung des eingestellten Magnetfeldes benutzten Hallsonde handelt es sich um das Modell FM 2002 von Projekt Elektronik. Die Genauigkeit der Linearität dieses Modells ist mit 0.01% vom Messwert und 0.005% vom Messbereich (2000 mT) angegeben. Der letztere konstante Beitrag zur Nichtlinearität spielt dabei keine Rolle, da er bei verschiedenen Magnetfeldern gleichermaßen auftritt und daher an der  $1/q$ -Skalierung nichts ändert. Der erste Beitrag liefert eine Energieverschiebung von typischerweise  $1 \times 10^{-4} \times (1/q_2 - 1/q_1) \times 2 \times E_0$ , wenn man die Ladungszustände  $q_1$  und  $q_2$  vergleicht. Dies gibt maximal einen Beitrag von  $1 \times 10^{-4}$  und ist daher nicht ausreichend, um die gemessenen Unterschiede zu erklären.

Um eine Fehlerhaftigkeit der Hallsonde auszuschließen, wurde diese zusätzlich mit einer temperaturkompensierten Hallsonde des Typs DTM-151 Digital von der Firma Group-3 (Neuseeland) verglichen.

Dazu wurden beide Hallsonden auf einem Aluminiumstab parallel zueinander fixiert und in dem homogenen Teil des Feldes eines Schaltmagneten bei verschiedenen Feldeinstellungen abgelesen. Ein eventueller Offset lässt sich bei diesem einfachen Verfahren mit einer Genauigkeit von 0.05 mT ausschließen.

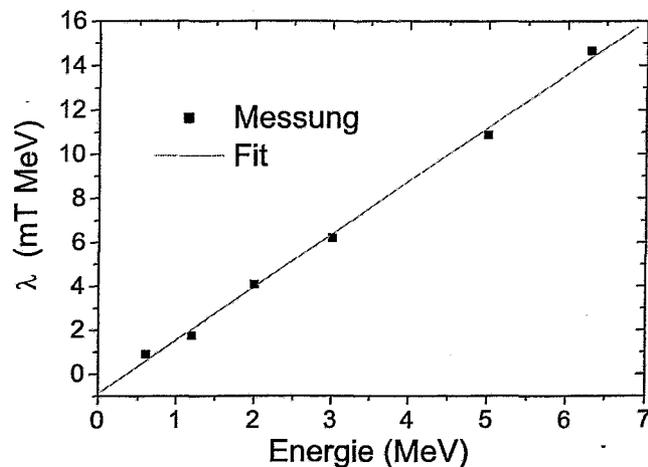


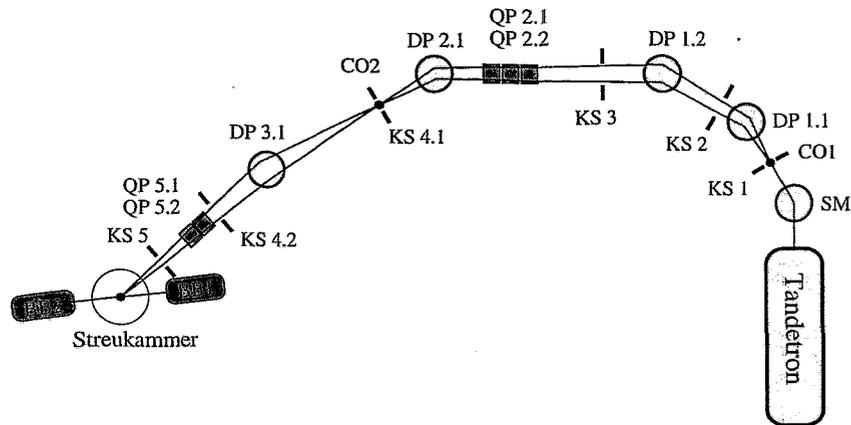
Abbildung 3.15: Steigung  $\lambda$  der  $\Delta E_q(1/B_g)$ -Kurve für die folgenden Ionen und Energien: 0.6 MeV He, 1.2 MeV He, 2 MeV C, 3 MeV Li, 5 MeV Li, 6.3 MeV F.

Die Messung des Magnetfeldes geschieht unmittelbar auf der Polschuhfläche, die Messstelle befindet sich etwa 70 mm von der Polschuhkante entfernt und liegt damit deutlich im homogenen Teil des Magnetfeldes. Dies wurde ebenfalls mit einer Messung überprüft.

Bei Messungen des Randfeldes, welche vor Auslieferung des Magneten durchgeführt wurden, zeigte sich am Ausgang des Spektrometers eine geringfügige Verschiebung der effektiven Magnetfeldkanten nach aussen im Bereich von etwa 0.2-0.4 mm beim Übergang von 0.89 T auf 0.25 T. Auch dies reicht nicht aus, um die gemessene Energieverschiebung zu erklären. Darüber hinaus ist davon auszugehen, dass sich das Magnetfeld im gesamten Bereich des Magneten inklusive der Randfelder bei einer Änderung des Magnetstromes um den gleichen Faktor ändert. Dann sind die Bahnen von Teilchen mit identischen Verhältnis  $p/q$  bei einem mit  $1/q$  skalierten Magnetfeld exakt gleich.

Streufelder können im Prinzip ebenfalls eine ladungsabhängige Verschiebung der gemessenen Energie bewirken, da sie konstant sind und nicht mit dem angelegten Magnetfeld skalieren. Solche Streufelder können von Pumpen oder Druckmesssonden herrühren. Im Falle des Rossendorfer Browne-Buechner-Spektrometer sind alle möglichen Störquellen zu weit von den Teilchenbahnen entfernt, um irgendeinen Effekt auf diese ausüben zu können.

Bis zum gegenwärtigen Zeitpunkt ist es nicht gelungen eine überzeugende Begründung für den angenommenen Offset zu finden. Die oben gefundene Gerade ist daher vorläufig als empirische Korrektur zu betrachten. Trotzdem ist es äußerst unwahrscheinlich, dass der beobachtete Effekt seinen Ursprung im Streuprozess der Ionen selbst hat, da die gemessene Energiever-



**Abbildung 3.16:** Schema der Beamline vom Rossendorfer Tandatron zur Browne-Buechner-Streukammer. Es sind : DP 1.1, DP 1.2 und DP 2.1 30°-Magnete, DP 3.1 ein 11°-Magnet, QP2 ein Quadrupoltriplett, QP5 ein Quadrupoldublett, SM der Schaltmagnet des Tandetrans und BB1 und BB2 die möglichen Messpositionen des Browne-Buechner-Magneten. Die Spalte KS dienen der Begrenzung des Strahles in radialer und axialer Richtung.

schiebung auch bei einer Änderung des Austrittswinkels der gestreuten Ionen konstant bleibt. Abgesehen davon ist ein vergleichbarer Effekt, auch bei vergleichbaren Energien, in der Literatur nicht bekannt.

Um einen Einfluss des Streuprozesses auszuschließen muss das Spektrometer im direkten Strahl getestet werden. Eine solche Messung kann unzweideutig einen Einfluss des Streuprozesses ausschließen. Da beim Rossendorfer Browne-Buechner-Spektrometer der Umbau auf die 0°-Richtung einen großen Aufwand darstellt, wurde bisher darauf verzichtet. Bis zu einer solchen Messung ist eine Korrektur gemäß Gleichung (3.16) durchzuführen. Die Genauigkeit dieser Korrektur liegt im Bereich  $\sim 1$  keV.

### 3.3 Strahlführung

Die Strahlführung vom Rossendorfer Tandatron zum Browne-Buechner-Spektrometer wurde von der Abteilung Beschleunigertechnik des Instituts für Ionenstrahlphysik und Materialforschung realisiert und ist schematisch in Abbildung 3.16 dargestellt. Die Details der Strahlführung werden in [Tyr01] beschrieben. Hier sollen nur die für die Auflösung des Browne-Buechner-Spektrometers relevanten Größen behandelt werden. Das Maschinen-Crossover bei CO1 wird über die 30°-Dipole DP 1.1, DP 1.2 und DP 2.1 und das Quadrupol-Triplett QPT nach CO2 hin übertragen. An dieser Stelle befindet sich ein Kreuzspalt, welcher durch den 11°-Magneten DP3.1 sowie das Quadrupol-Dublett QP5.1 und QP5.2 in die Streukammer abgebildet wird. Bei einer Punkt-zu-Punkt-Abbildung von CO2 in die Streukammer ergibt sich je nach Polung des Quadrupol-Dubletts ein Abbildungsverhältnis von 0.3 in axialer und von 0.8 in radialer Richtung oder umgekehrt. Da beim Browne-Buechner-Spektrometer die Strahlfleckbreite in axialer Richtung möglichst klein sein sollte (siehe 2.2.2), wurde bei allen hier gezeigten Messungen die erste Variante gewählt. Die Divergenz des Ionenstrahls lässt sich durch den Spalt KS 5 eingrenzen,

die Spalte KS 4.1 und KS 4.2 legen die horizontale Lage des Strahles fest und garantieren den korrekten Einschuss in das Quadrupol-Dublett QP5.

Die Energieschärfe des Ionenstrahles wird durch Stragglings im Stripper-Gas sowie durch die Stabilität der Terminalspannung des Tandetrans und der Felder der strahlführenden Komponenten begrenzt. Messungen zur Spannungsstabilität der Terminalspannung wurden von F. Hermann durchgeführt und ergeben einen Wert von  $2 \times 10^{-4}$  [Her01]. Dabei wurde über mehrere Stunden der für die Stabilisierung der Hochspannung gemessene Regelwert aufgezeichnet. Die Schwankung dieses Wertes kann allerdings kleiner sein als es der tatsächlichen Stabilität der Terminalspannung entspricht [Bue01].

Eine direktere Messung der Energiestabilität wurde von D. Grambole und F. Hermann mit Hilfe der Kernreaktion  $^{27}\text{Al}(p,\gamma)^{28}\text{Si}$  für Protonen der Energie 992 keV durchgeführt [Gra99]. Über einen Messzeitraum von eineinhalb bzw. zwei Stunden ergaben sich Werte von  $9.6 \times 10^{-4}$  bzw.  $7.3 \times 10^{-4}$ . Der Strippergasdruck war dabei vergleichsweise hoch, wurde jedoch nicht genau gemessen. Daher ist der Einfluss des Stragglings im Strippergas schwer abzuschätzen. Als Beispiel erhält man für Protonen der Energie 500 keV bei einem Gasdruck von  $10^{-2}$  mbar (nach [Fri01]) im Stripperrohr (Länge 80 cm) einen Stragglingsbeitrag von 0.2 keV. Das entspricht einem Beitrag zur Energieunschärfe von  $4 \times 10^{-4}$ . (Yang-Stragglings gemäß [Yan91]). Da der Fehler bei der Abschätzung des Gasdruckes leicht eine Größenordnung betragen kann, ist nicht zu entscheiden, ob die Energieunschärfe in [Gra99] auf Stragglings oder Schwankungen der Terminalspannung oder auf beides zurückzuführen ist.

Für schwere Teilchen reicht oft das Restgas zur Umladung der Ionen aus. Da das Stragglings im Strippergas mit der Kernladungszahl der Ionen wächst, ist es hier noch schwieriger, einen verlässlichen Wert für die Energieunschärfe zu erhalten. In [Har96, Har97] wurden die Energieverteilungen von H-, He-, C- und F-Ionen am Heidelberger 3MV Tandem-Beschleuniger mit Hilfe eines elektrostatischen Spektrometers gemessen. Bei Strippergasdrücken von  $< 5 \times 10^{-4}$  ergab sich dabei für  $\text{H}^-/\text{H}^+$  bzw.  $\text{He}^-/\text{He}^+$  im Energiebereich bis 6 MeV eine durch das Ripple der Terminalspannung begrenzte Energieschärfe von  $\approx 10^{-4}$  ohne einen messbaren Einfluss des Strippergases. Für  $\text{C}^-/\text{C}^{++}$  und  $\text{F}^-/\text{F}^{++}$  bei einer Energie von 6.4 MeV ergaben sich Werte, die abhängig vom Strippergasdruck zwischen  $3 \times 10^{-4}$  und  $10^{-3}$  liegen, deutlich über den durch Stragglings zu erwartenden Werten.

Eine andere Möglichkeit, die Energieschärfe des Tandetrans einzugrenzen, besteht in der Energieseparation mit Hilfe eines Analysiermagneten am Ausgang des Beschleunigers. Dazu muss ein Spalt am Beschleunigerausgang mit einem energiedispersiven ionenoptischen System auf einen zweiten Spalt abgebildet werden, dessen Größe dann über die Dispersion des Systems die Energieschärfe festlegt. Im vorliegenden Fall bilden die drei  $30^\circ$ -Magneten und das Quadrupoltripllett zwischen den Kreuzspalten KS1 und KS4.1 eine geeignete Anordnung. Bei Punkt-zu-Punkt-Abbildung von KS1 nach KS4.1 ergibt sich eine Energiedispersion in radialer Richtung von 1850 mm und ein Abbildungsverhältnis von 1.1 in beiden Richtungen. Damit lässt sich bei Spaltgrößen von jeweils 1 mm eine Energieschärfe von  $6 \times 10^{-4}$  erreichen. Die Rechnungen wurden mit Sysfit durchgeführt [Fri86] und die in [Tyr01] beschriebene Verkipfung der Dipolmagneten DP 1.1 und DP 1.2 wurde vernachlässigt.

Die Dipole DP 1.1, DP 1.2 und DP 2.1 werden mit DANFYSIK-Geräten betrieben, welche eine Stabilität des Mittelwertes von  $10^{-5}$  und damit eine stabile Strahlage garantieren. Dem Strommittelwert sind außerdem höherfrequente Schwankungen überlagert, welche im Bereich

von  $3 \times 10^{-4}$  liegen<sup>2</sup>. Diese Schwankungen können die Energieschärfe zusätzlich verschlechtern. Kleinere Spalteinstellungen sind meistens nicht möglich, da die Transmission des Gesamtsystems dann stark herabgesetzt ist. Im praktischen Strahlbetrieb wird der Spalt KS1 ohnehin meistens sehr viel größer eingestellt, um die Transmission zu erhöhen. Für Berechnungen der Spektrometerauflösung wird daher für die Energieschärfe einen Wert von  $1 \times 10^{-3}$  angesetzt.

### 3.4 Positionsempfindlicher Detektor

Positionsempfindliche Detektoren werden seit langem in der Kern- und Atomphysik zur Detektion energiereicher Teilchen eingesetzt [Lae79, Leo87]. Zur Detektion einzelner Ereignisse wurden bereits sehr früh Photoplatten verwendet, die dem Teilchenfluss ausgesetzt und anschließend entwickelt wurden. Zu Beginn der 60er Jahre wurde der Bedarf an rein elektronischen Detektoren zunehmend größer und stimulierte so die Entwicklung von Detektoren auf Halbleiterbasis. Der einfachste und zugleich älteste Typ eines eindimensional ortsauflösenden Halbleiterdetektors wurde bereits 1962 vorgestellt und basiert auf dem Prinzip der resistiven Trennung der durch das Teilchen erzeugten Ladungen. Dieser Detektortyp erlaubt die gleichzeitige Bestimmung von Energie und Auftreffort der Teilchen und wird seit vielen Jahren auch kommerziell vertrieben. Die in der vorliegenden Arbeit vorgestellten Messungen wurden ausschließlich mit einem solchen Detektor durchgeführt. In der hochauflösenden Ionenstrahlanalytik finden neben diesem Detektortyp auch die ebenfalls auf Halbleiterbasis basierenden Streifendetektoren sowie Ionisationskammern und Multichannelplates Verwendung. In den folgenden Abschnitten wird die Arbeitsweise des verwendeten Detektors kurz beschrieben und auf das Zusammenwirken von Spektrometer und Detektor eingegangen.

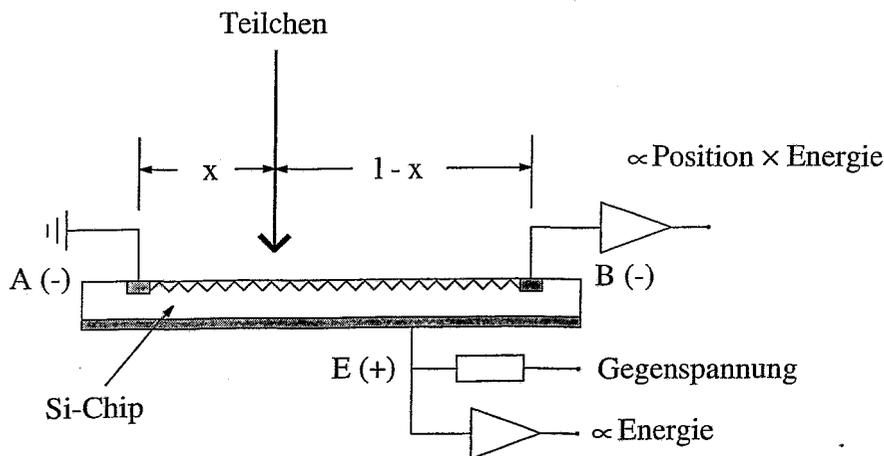
#### 3.4.1 Arbeitsweise des verwendeten Detektors

In der vorliegenden Arbeit wurden ein eindimensional ortsauflösenden Detektor PF-1RT-50  $\times$  10-300-EB von CANBERRA verwendet. Den schematischen Aufbau diese Typs zeigt Abbildung 3.17. Er besteht im wesentlichen aus einem n-leitenden Si-Chip mit einer dünnen als p-leitend ausgeführten Widerstandsschicht als Eingangselektrode. An der Rückseite und an den beiden Enden der Widerstandsschicht befinden sich Kontakte. Wird dieser p-n-Übergang in Sperrrichtung betrieben, so erhält man am rückseitigen Kontakt wie üblich das Signal der durch das eintreffende Teilchen erzeugten negativen Ladungsträger. Die positiven Ladungsträger fließen zu den Kontakten der Widerstandsschicht. Dabei wirkt diese wie ein Spannungsteiler, so dass das Signal an den Kontakten der Widerstandsschicht dem Abstand des Eintrefforts zu dem gegenüberliegenden Kontakt proportional ist. Dividiert man das Signal durch das Energiesignal, so erhält man direkt den Eintreffort  $x$  als Bruchteil der Detektorlänge  $l$ . Bei der Wahl eines Detektors für die hochauflösende Ionenstrahlanalytik spielen die folgenden Faktoren eine Rolle:

- benötigte Ortsauflösung
- benötigtes Energiefenster
- benötigte Energieauflösung

---

<sup>2</sup>Dieser Wert ist abhängig von der Spannung, die wiederum vom eingestelltem Strom abhängt.



**Abbildung 3.17:** Schematische Darstellung eines ortsauflösenden Detektors mit resistiver Frontelektrode. Die detektierten Teilchen treffen in einem Abstand  $x$  von der geerdeten Elektrode der Frontseite auf den Detektor. An der gegenüberliegenden Elektrode wird ein Signal abgegriffen, welches proportional zu  $x-l$  ist. Dabei ist  $l$  die Gesamtlänge des Detektors. An der rückseitigen Elektrode wird ein Signal abgegriffen, welches proportional zur Gesamtenergie des detektierten Teilchens ist.

- Gesamtfläche des Detektors
- Schädigung des Detektors durch die detektierten Teilchen
- Kosten des Detektors und der für den Betrieb des Detektors notwendigen Elektronik

Die Ortsauflösung  $\delta x(E)$  ist über die Dispersion des Spektrometers (siehe Abschnitt 3.2.3) mit dem Beitrag des Detektors zur Energieauflösung des Spektrometers verknüpft:

$$\delta E_{Det,x} = \delta x(E) \frac{E}{D(E)}. \quad (3.17)$$

Wie bereits in Abschnitt 3.2.4 beschrieben, ist es nicht sinnvoll einen Detektor einzusetzen, dessen Ortsauflösung viel kleiner ist als die Aberration einerseits und die Größe des Abbildungsflecks in der Fokalebene andererseits. Von diesen Bedingungen ist die zweite mit etwa 1.1 mm bei einer Strahlflecksgröße von 0.5 mm die weniger restriktive, so dass man hier mit einer Auflösung von 0.5 mm auf der sicheren Seite ist. Dabei ist noch zu bedenken, dass die Ortsauflösung von der Energie abhängen kann. Mit der Dispersion des Rossendorfer Browne-Buechner-Spektrometers von etwa 1450 mm ergibt sich dann zum Beispiel für 5.5 MeV He eine Energieunschärfe von 2 keV. Für kleinere Strahlflecksgrößen kann es ratsam sein, zu noch besseren Ortsauflösungen überzugehen, allerdings kommt man ab etwa 0.3 mm in den Bereich der Aberration (siehe Abschnitt 3.2.4). Die untere Grenze einer noch sinnvollen Ortsauflösung liegt demnach bei etwa 0.1 mm.

Da das Browne-Buechner-Spektrometer in radialer Richtung fokussierend und zugleich energiedispersiv und in axialer Richtung defokussierend ist, bestimmt die Detektorlänge in radialer Richtung die Größe des Energiefensters, während die Detektorbreite in axialer Richtung den

Raumwinkel eingrenzt. Da die Mittelebene des Magneten senkrecht zur Streuebene steht, ist die kinematische Verschmierung ebenfalls durch die Detektorbreite gegeben<sup>3</sup>. Eine Detektorbreite von 10 mm entspricht dabei einem Öffnungswinkel von  $0.25^\circ$ . Die Breite des Energienfensters ist direkt durch das Verhältnis von Detektorlänge zur Dispersion gegeben und entspricht bei einer Detektorlänge von 50 mm beim Rossendorfer Browne-Buechner-Spektrometer 3.6 %.

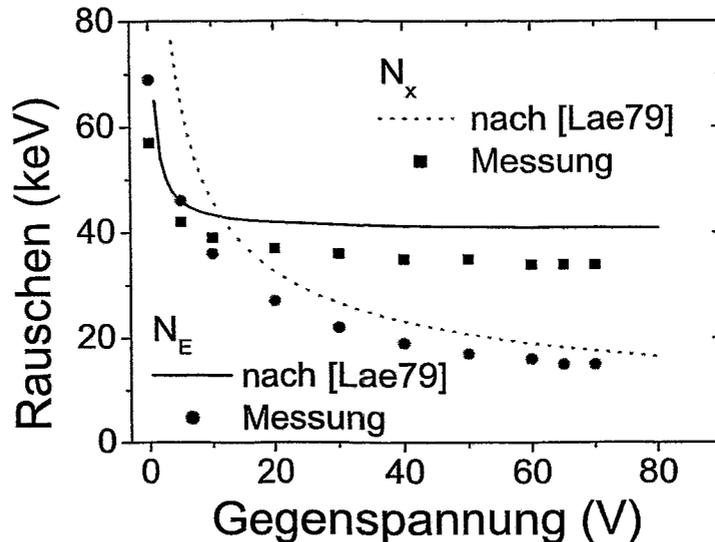


Abbildung 3.18: Rauschen  $N_x$  im Ortszweig und  $N_E$  im Energiezweig des ortsauflösenden Detektors.

Eine gute Energieauflösung des Detektors ist in erster Linie für die Unterscheidung verschiedenartiger Teilchen von Bedeutung. Es können prinzipiell nur Teilchen mit unterschiedlichem  $q^2/m$ -Verhältnis getrennt werden (siehe Abschnitt 3.4.3). Im Falle von RBS unter Rückwärtsstreuungswinkeln spielt die Energieauflösung ausschließlich bei der Trennung der verschiedenen Ladungszustände eine Rolle. Das ist auch bei einer Energieauflösung von einigen hundert keV noch möglich.

Die Schädigung des Detektors ist vor allem bei Halbleiterdetektoren von Bedeutung. Als Faustformel gilt, dass die Lebensdauer eines gewöhnlichen Si-Detektors bei etwa  $10^{10}$  Teilchen/cm<sup>2</sup> liegt [Bis86]. Beim Browne-Buechner-Spektrometer werden neben den interessierenden Teilchen eines bestimmten Ladungszustandes immer auch Teilchen mit anderen Ladungszuständen und, falls vorhanden, Teilchen aus anderen als den interessierenden Reaktionskanälen registriert. Aus diesem Grund ist die Zahl der zur Schädigung beitragenden Teilchen immer größer als die Zahl der zum eigentlichen Spektrum beitragenden Teilchen. Dies kann besonders im Falle von ERD-Experimenten zu einem ungünstigen Verhältnis von erwünschten zu unerwünschten Detektorereignissen führen.

<sup>3</sup>Dies gilt natürlich nur, wenn der Öffnungswinkel des Detektors in axialer Richtung kleiner ist als der Öffnungswinkel der Eintrittsblende des Spektrometers in axialer Richtung, was in der vorliegenden Arbeit der Fall ist.

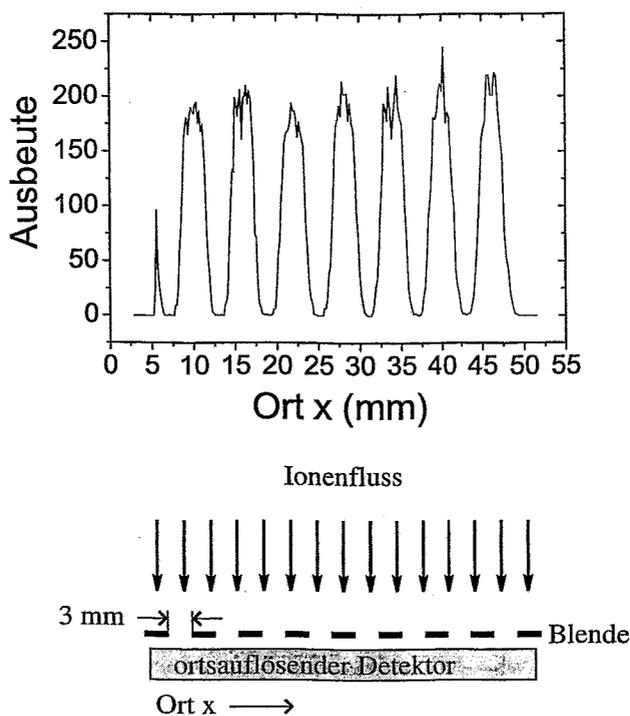
### 3.4.2 Ortsauflösung

Bedingt durch die große aktive Fläche ist das elektronische Rauschen eines ortsauffösenden Si-Detektors sehr viel größer als das eines einfachen Si-Detektors. Die Begrenzung von Energie- und Ortsauflösung ist daher im Allgemeinen durch das den Signalen überlagerte Rauschen gegeben. Da der Ort durch Division der Signale auf dem Ortskanal und dem Energiekanal gewonnen wird, gehen im Prinzip die Rauschanteile beider Zweige in die Ortsauflösung mit ein. Man erhält nach [Lae79]

$$\frac{\delta x}{l} = \frac{\sqrt{N_x^2 + \left(\frac{N_E}{l}\right)^2}}{E} \quad (3.18)$$

Dabei sind  $N_E$  und  $N_x$  das Rauschen auf dem Energie- bzw. Ortszweig. Da das Rauschen auf dem Energiezweig viel kleiner ist als auf dem Ortszweig, kann der zweite Term unter der Wurzel im Allgemeinen vernachlässigt werden. Abbildung 3.18 zeigt das Rauschverhalten auf beiden Zweigen als Funktion der Detektorspannung. Durch das Anlegen der Spannung und der damit verbundenen Reduzierung der Detektorkapazität wird das Rauschen im Energiezweig deutlich stärker reduziert als im Ortszweig. Bei etwa 60 V erstreckt sich die Verarmungszone über die gesamte Dicke des Detektors. Der Rauschbeitrag des Ortszweiges ist dann im wesentlichen durch den Widerstand  $R_d$  der Widerstandsschicht bestimmt. Es gilt in guter Näherung  $\delta x \propto \sqrt{R_d} \propto \sqrt{T}$ . Dabei ist  $T$  die Temperatur des Detektors. Als Faustformel gilt, dass die Ortsauflösung etwa 1 % der Detektorlänge beträgt.

Zur experimentellen Bestimmung der Ortsauflösung wurde vor den Detektor im Abstand von 1.7 mm von der Oberfläche eine Blende mit 8 jeweils 3 mm breiten und 3 mm voneinander entfernten Schlitzten montiert. Anschließend wurde der Detektor einem Fluss von Li-Ionen ausgesetzt, welcher durch Streuung von Li-Ionen der Energie 2.96 MeV an einem Gold-Target unter einem Streuwinkel von 35.5° erzeugt wurde. Der Detektor war bei diesem Experiment senkrecht zur Flugrichtung der Ionen ausgerichtet. Das Spektrum setzt sich dann aus 8 kastenförmigen Strukturen zusammen, deren Kantenbreite genau der Ortsauflösung entspricht. Das Ergebnis ist in Abbildung 3.19 dargestellt. Der erste Kasten ist nicht vollständig zu sehen, da die untere Schwelle des ADC's im Ortszweig größer ist als die Signale, welche kleinen Orten  $x$  entsprechen. Aus der Lage und Breite der Kanten lassen sich nun die Linearität des Detektors und die Ortsauflösung als Funktion des Ortes bestimmen. Abbildung 3.20 zeigt die Messungen für zwei verschiedene Formungszeiten  $\tau = 0.5 \mu\text{s}$  und  $\tau = 1.5 \mu\text{s}$ . Besonders im Falle der kleineren Formungszeit erkennt man in der Zuordnung von wahrem Ort (gegeben durch die Lage der Schlitzte) zu gemessenem Ort ( $\propto$  Kanalnummer) einen deutlichen nichtlinearen Anteil. Dieser ist bei der größeren Formungszeit reduziert, aber immer noch vorhanden. Dies deutet auf ein ballistisches Defizit als Ursache für die Nichtlinearität hin [Lae79]. Um den Einfluss von Inhomogenitäten in der Widerstandsschicht auf die Linearität abzuschätzen, muss das Experiment bei gedrehtem Detektor wiederholt werden. Dabei zeigt sich, dass sich die Krümmung der Linearitätskurve dreht, so dass man also von einer kombinierten Ursache für das nichtlineare Verhalten ausgehen kann. Dies ist indirekt in Abbildung 3.21 (oben) veranschaulicht, welche ein mit 1.5 MeV Protonen gemessenes Au-Spektrum zeigt. Da die Breite des Au-Spektrums kleiner als die Breite des Energiefensters war, wurde das Spektrum bei zwei verschiedenen Magnetfeldeinstellungen gemessen. Die rechte und linke Abbildung wurde bei zueinander gedrehtem Detektor gemessen. Die Kontakte der resistiven Frontelektrode waren bei beiden Einstellungen auf die gleiche Weise angebracht, d.h. das Signal wurde am (durch das Spektrometer vorgegebenen) Hochenergie-Ende

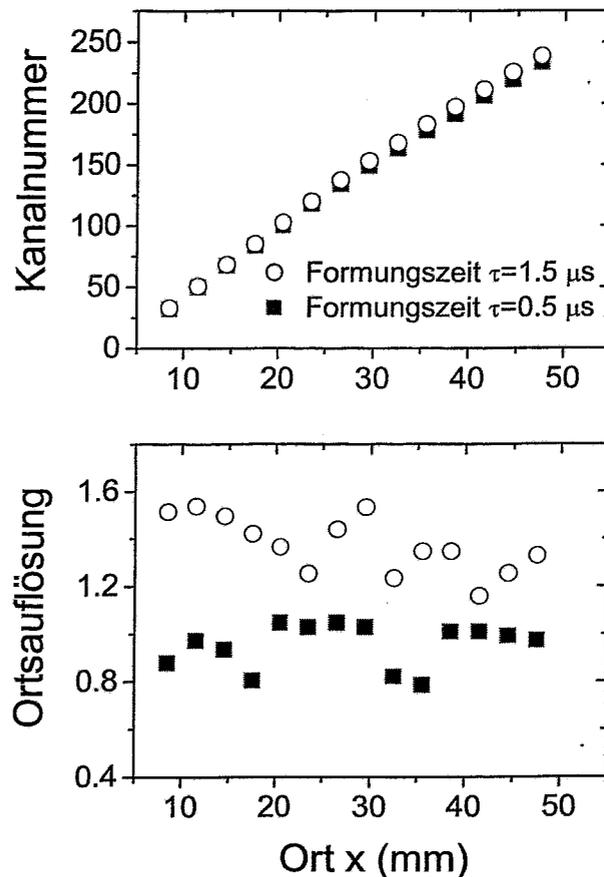


**Abbildung 3.19:** Prinzip der Messung der Ortsauflösung des Detektors (unten) und Ergebnis der Messung (oben). Detektiert wurden Li-Ionen der Energie 2.96 MeV. Die Formungszeit des Hauptverstärkers lag bei  $0.5\mu\text{s}$ .

abgenommen, während das Niederenergie-Ende auf Masse lag (siehe dazu auch Abbildung 3.17). Die Abbildung zeigt für beide Detektorstellungen eine deutliche Verzerrung des Spektrums. Diese Verzerrung lässt sich auf die Nichtlinearität zurückführen, welche eine nichtkonstante Kanalbreite zur Folge hat. Dass es sich hierbei nicht um eine von einer verschiedenen Effizienz handelt, zeigt Abbildung 3.21 (unten). Hier wurde das Spektrum einer Monolage Gold bei verschiedenen Magnetfedeinstellungen gemessen. Die Fläche unter den einzelnen Peaks beträgt  $2011 \pm 83$  und zeigt keine erkennbar ansteigende bzw. abfallende Tendenz zu einer Seite des Detektors.

Da  $N_x \propto \sqrt{\tau}$  ist, wirkt sich eine lange Formungszeit gemäß Gleichung (3.18) nachteilig auf die Ortsauflösung aus. Es ist daher ratsam, mit einer Formungszeit von  $0.5\mu\text{s}$  zu arbeiten und die Nichtlinearität nachträglich zu korrigieren.

Üblicherweise werden kommerziell erhältliche Si-Detektoren nur mit  $\alpha$ -Teilchen getestet, so dass über das Verhalten solcher Detektoren für schwere Ionen wenig bekannt ist. Daher wurden die Daten von verschiedenen Messungen mit schweren Ionen bei verschiedenen Energien zusammengetragen. Die Ortsauflösung wurde dabei lediglich an dem Punkt des Detektors ermittelt, an welchem die Eintrittsblende des Detektors die für die Ionen sichtbare Fläche abschattet. Im Prinzip ist dies an beiden Enden des Detektors der Fall, bei kleinen Orten wird das Spektrum jedoch wie bereits erwähnt elektronisch begrenzt (siehe Abb. 3.19). Für 3 MeV Li (siehe oben) und 5.5 MeV He (hier nicht gezeigt) wurden diese Messungen auch durch Messungen mit Schlitzblenden bestätigt. Abb. 3.22 zeigt das Ergebnis dieser Auswertung für He, Li, C und F.

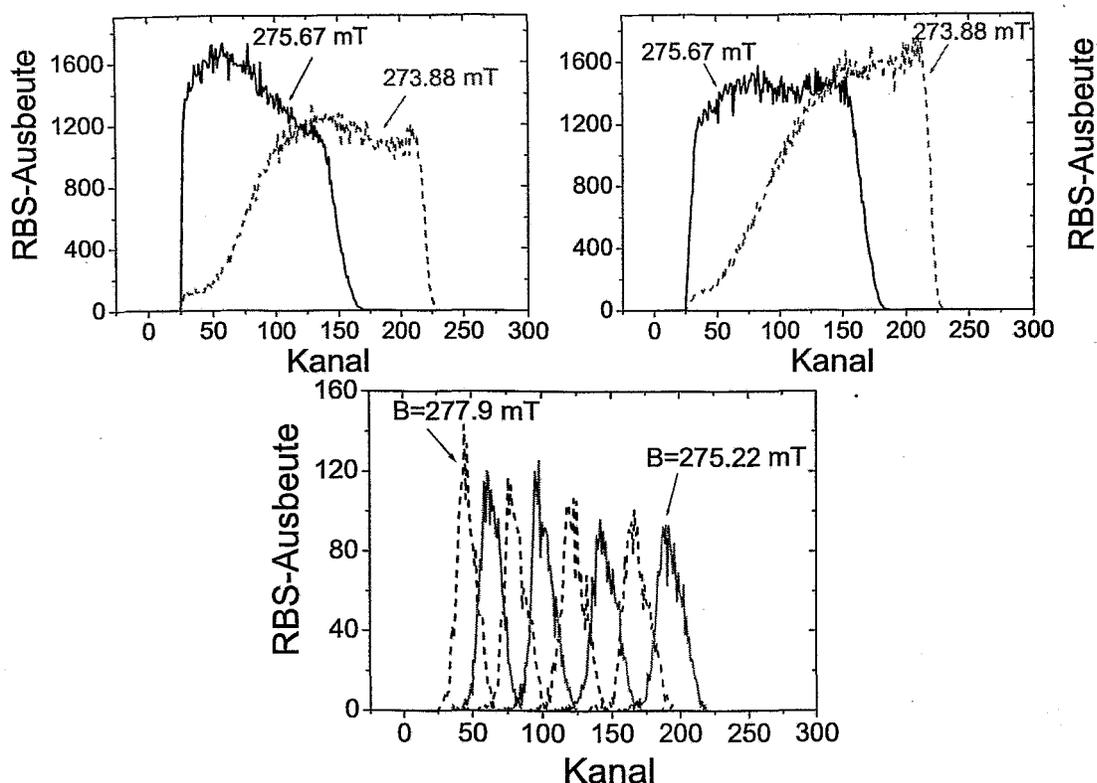


**Abbildung 3.20:** Vergleich der Detektorlinearität (oben) und der Ortsauflösung (unten) bei Formungszeiten des Hauptverstärkers von  $1.5 \mu\text{s}$  bzw.  $0.5 \mu\text{s}$ . Detektiert wurden Li-Ionen bei einer Energie von  $2.96 \text{ MeV}$ .

Die Punkte für verschiedene Ionen liegen auf einer universellen Kurve; die Abhängigkeit von der Teilchenart ist sehr schwach. Die Daten wurden mit der Funktion  $\delta x(E) = \delta x_0/E \times 5.5 \text{ MeV}$  gefittet. Die Größe  $x_0$  ist dabei die Ortsauflösung bei einer Energie von  $5.5 \text{ MeV}$ , und man erhält  $x_0 = 0.56 \text{ mm}$ . Dies ist zu vergleichen mit der Herstellerangabe von  $0.43 \text{ mm}$  für  $5.5 \text{ MeV He}$ . Aus diesem universellen Verhalten ergibt sich als Beitrag des Detektors zur Energieauflösung des Spektrometers ein konstanter Wert von etwa  $2 \text{ keV}$ .

### 3.4.3 Messdatenerfassung

Der Messaufbau mit einem ortsauflösenden Detektor, einem Monitor-detektor sowie einem Flügelradmonitor erfordert die gleichzeitige Verarbeitung mehrerer Spektren sowie eine online-Berechnung von neuen Parametern aus den AD-konvertierten Signalgrößen. Zu diesem Zweck wurde das Multiparameter-System MPA/PC von Fast installiert, welches auf das Betriebssystem Windows aufbaut und eine benutzerdefinierte Prozessierung der ADC-Daten erlaubt. Der prinzipielle

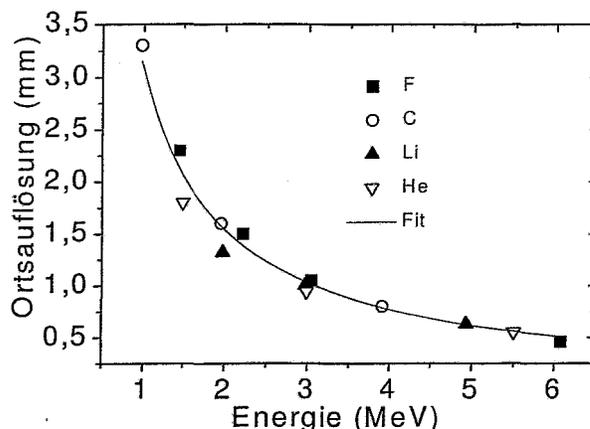


**Abbildung 3.21:** Nichtlinearität des verwendeten Detektors am Beispiel von vier Spektren einer dicken Au-Schicht (oben), bzw. von 8 Spektren einer Sub-Monolagen-Au-Schicht. Das linke und rechte obere Spektrum wurden bei um  $180^\circ$  gedrehtem Detektor unter sonst identischen Bedingungen gemessen. Die Position des Spektrum wurde jeweils durch Verstellung des Magnetfeldes variiert.

Aufbau der Messdatenerfassung ist in Abbildung 3.23 dargestellt. Für die Wilkinson-ADC's mit einer maximalen Konversion von 16k war bei allen hier gezeigten Experimenten die Konversion auf 1k festgelegt, und als Totzeit war die Konversionszeit eingestellt<sup>4</sup>. Das System wurde im Koinzidenz-Modus betrieben, in dem bei jedem Signal eines einzelnen ADC für die Dauer der Koinzidenzzeit ein Zeitfenster geöffnet wird. Alle ADC-Signale, welche in diesem Zeitfenster liegen, werden einander zugeordnet und zu einem Ereignis zusammengefasst, unabhängig davon ob alle ADC's angesprochen haben oder nur einzelne. Die Koinzidenzzeit wurde bei den in der vorliegenden Arbeit gezeigten Spektren auf  $0.6 \mu\text{s}$  eingestellt. Die Division der Signale von ADC1 (Ortszweig) und ADC2 (Energiezweig) geschieht über eine Dynamic Link Library (DLL), welche die Operation  $\text{ADC1}/\text{ADC2} \times f_n$  durchführt. Dabei ist  $f_n$  ein Faktor, welcher über die MPAWIN-Software vom Benutzer eingegeben werden kann.

In der gegenwärtigen Konfiguration ist mit dem Messaufbau keine eindeutige Trennung von verschiedenen Teilchen möglich. In statischen magnetischen Feldern lassen sich Teilchen mit

<sup>4</sup>Die ADC bieten zwei Totzeitmodi an: a) nur Konversionszeit und b) Konversionszeit und Dauer des Eingangspulses. Die zweite Möglichkeit führt im Zusammenhang mit stark rauschenden Detektoren zu Problemen, da dort auch Pulse, die nicht gezählt werden und nicht im Spektrum erscheinen, zur Totzeit beitragen



**Abbildung 3.22:** Ortsauflösung des verwendeten Si-Detektors für verschiedene schwere Ionen als Funktion der Energie. Die durchgezogene Linie stellt eine Fit der Form  $\delta x(E) = \delta x_0/E \times 5.5\text{MeV}$  dar. Es ergibt sich  $x_0 = 0.56$  mm.

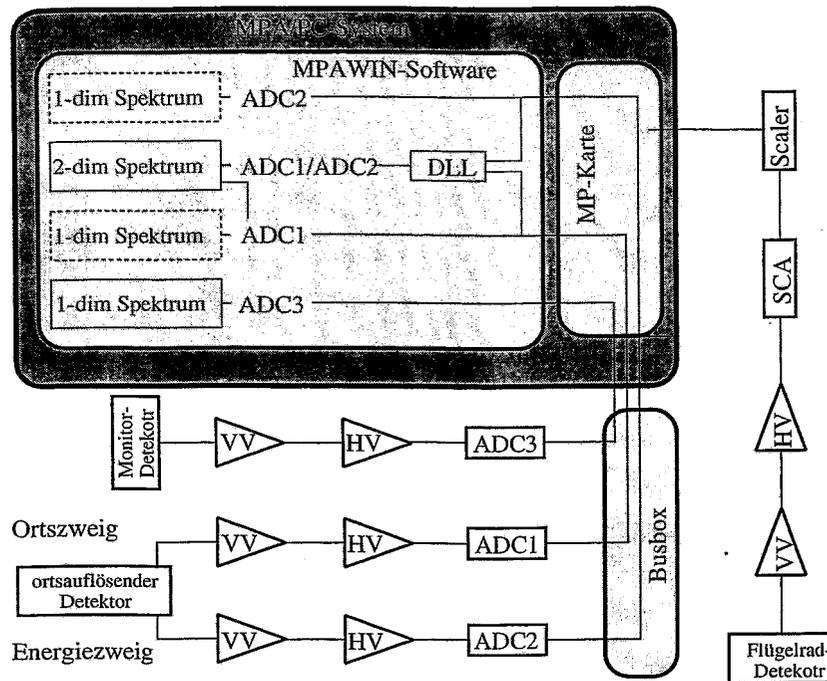
gleichem Verhältnis von Impuls zu Ladung  $p/q$  generell nicht trennen, da sie sich auf identischen Trajektorien bewegen. Misst man zusätzlich die Energie der Teilchen, so hat man immer noch zwei Gleichungen mit den drei Unbekannten Masse, Ladung und Energie.

Als Beispiel für ein hochauflösendes Spektrum ist in Abbildung 3.24 ein normales (oben) und ein hochauflösendes (rechts) Spektrum einer 80 nm dicken Au-Schicht auf einem Si-Substrat dargestellt. Alle Spektren wurden mit 4 MeV C-Ionen bei einem Streuwinkel von  $35.5^\circ$  gemessen. Das RBS-Spektrum (oben) wurde simuliert. Ein gewöhnliches, nicht-hochauflösendes Spektrum erstreckt sich in der Regel über den gesamten interessierenden Energiebereich und integriert über alle Ladungszustände. Trifft eine solche Verteilung von Ionen auf ein Magnetspektrometer, so werden aus diesem Spektrum alle die Teile herausgeschnitten für die das Verhältnis  $p/q$  gerade der Magnetfeldeinstellung entspricht. Dies ist bei Energien von

$$E \propto B^2 q^2 / m \quad (3.19)$$

der Fall, so dass sich im zweidimensionalen Orts-Energie-Spektrum für jeden Ladungszustand ein Ast ergibt. Dessen Intensität setzt sich aus dem Ladungsanteil auf der einen Seite und dem Streuquerschnitt auf der anderen Seite zusammen. Ein solcher Ast kann auch ganz verschwinden, wenn entweder keine Ionen des entsprechenden Ladungszustandes bei der gegebenen Energie vorhanden sind oder bei der gegebenen Energie überhaupt keine Ionen vom Target gestreut werden. Verschiedene Ladungszustände einer Ionensorte treten bei Energien auf, die sich wie die Quadrate der Ladungszustände verhalten. Im vorliegenden Beispiel verhalten sich die Energien der zu  $q = 4$ ,  $q = 3$  und  $q = 2$  gehörenden Äste wie 16 zu 9 zu 4. Der Ast für  $q = 1$  ist ebenfalls noch zu erkennen. Die leichte Krümmung im Ast für  $q = 4$  ist durch die nichtlineare Detektorresponse bedingt (siehe Abbildung 3.20). Rückstoßteilchen treten hier mit so geringerer Intensität auf, dass die entsprechenden Äste praktisch nicht zu erkennen sind.

Treten verschiedene Ionen mit gleichem Verhältnis  $q^2/m$  als Streuprodukte auf, so sind diese nicht zu trennen, da sie auf identischen Ästen liegen. Es ist also in jedem Falle vor einer Messung



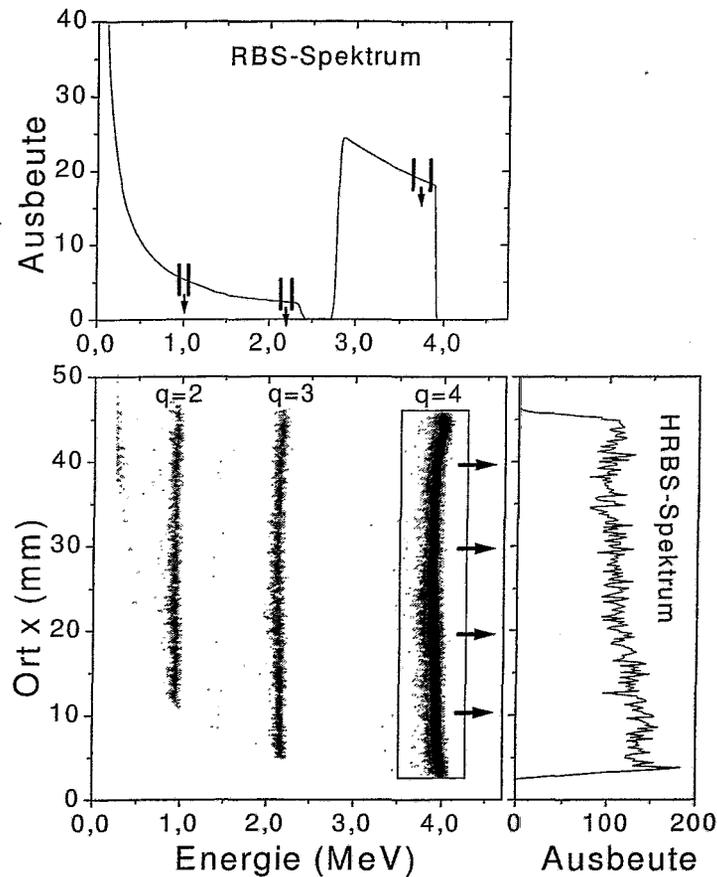
**Abbildung 3.23:** Schema der Messdatenerfassung. Folgende Komponenten wurden eingesetzt: Vorverstärker: Modell 2003BT von Canberra für den ortsauflösenden Detektor und den Monitordetektor; Hauptverstärker: Zweifach-Hauptverstärker, Modell 855 von Ortec für den ortsauflösenden Detektor und Einfach-Hauptverstärker, Modell 2022 von Canberra für den Monitordetektor; ADC: Modell 7074 von Fast; Scaler: Dual-Counter, Modell 2072A von Canberra; SCA: Modell 2037A von Canberra.

zu prüfen, ob es solche Interferenzen geben kann. Die Trennung von Ionen mit geringen Massenunterschieden ist möglich solange die Energieauflösung des ortsauflösenden Detektors ausreicht, um die zu diesen Massen gehörenden Äste zu unterscheiden, d. h. es muss  $\delta E_{Det,E}/E \ll \delta m/m$  gelten.

Als Beispiel für die Identifizierung verschiedener Teilchen zeigt Abb. 3.25 die Lage der Äste für  $^{12}\text{C}$ ,  $^{27}\text{Al}$  und  $^{28}\text{Si}$ . Es ergibt sich, wie gemäß Gleichung (3.19) zu erwarten, eine Schar von Parabeln mit  $q^2/m$  als Parameter. Die Äste für Si und Al liegen eng beieinander und sind wegen der schlechten Energieauflösung nicht sauber zu trennen. Die Lage der Äste beliebiger Teilchen im zweidimensionalen Orts-Energie-Spektrum lässt sich nun für jedes Magnetfeld aus Abb. 3.25 ermitteln.

#### 3.4.4 Korrektur der Messdaten

Abb. 3.20 verdeutlicht, dass der Detektorresponse nicht exakt linear ist. Diese Nichtlinearität wirkt sich auf zwei Arten auf die Spektren aus: zum einen wird die Energieachse verzerrt und zum anderen ist mit der veränderten Energiebreite eines Kanals auch die Zählrate abhängig vom Auftreffort im Detektor. Im Prinzip lässt sich die erste Korrektur mit einer Kalibrationskurve wie in Abb. 3.20 durchführen, die Zahl der Messpunkte reicht allerdings für die zweite

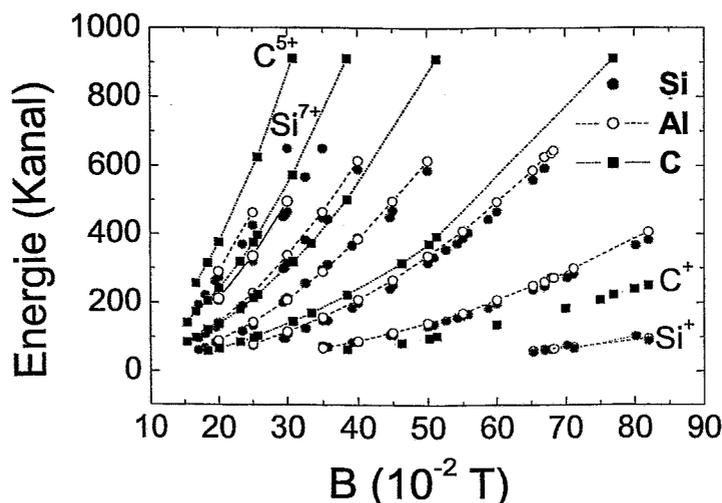


**Abbildung 3.24:** Prinzip der HRBS: Die obere Abbildung zeigt das RBS-Spektrum einer 80 nm dicken Au-Schicht, gemessen mit 4 MeV C-Ionen. Durch das Spektrometer werden bei der Magnetfeldstärke  $B$  aus diesem Spektrum jene Ionen herausgeschnitten, welche die Bedingung (3.19) erfüllen. Das hochaufgelöste Spektrum ergibt sich aus einer Projektion der auf diese Weise entstandenen Äste im Energie-Positions-Diagramm des ortsauflösenden Detektors auf die Positionssache desselben Detektors projiziert.

Korrektur, die auf eine Differentiation der Kurve hinausläuft, nicht aus. Da die Mindestbreite der Schlitze durch die Ortsauflösung begrenzt ist, lässt sich die Zahl der Messpunkte auch nicht beliebig erhöhen. Es ist daher einfacher, ein weißes Spektrum zu messen und zur Normierung der Spektren zu verwenden. Als nahezu weißes Spektrum bietet sich ein Ausschnitt aus dem Spektrum einer massiven Probe an. Allerdings weisen solche Spektren immer eine leichte Steigung zu niedrigeren Energien hin auf, die nachträglich korrigiert werden muss. Außerdem müssen alle Ladungszustände berücksichtigt werden. Die Ausbeute pro Kanal lässt sich schreiben als

$$\frac{dY}{dk} = \frac{dY}{dE} \frac{dE}{ds} \frac{ds}{dk} \Delta\Omega. \quad (3.20)$$

Dabei ist  $\frac{dY}{dE}$  die Ausbeute  $dY$  pro Energieintervall  $dE$ ,  $\frac{dE}{ds}$  die Größe eines Energieintervalls  $dE$  pro Wegstück  $ds$  in der Fokalebene und  $\frac{ds}{dk}$  die Größe eines Wegstücks  $ds$  in der Fokalebene pro Kanal  $dk$ . Die Größe  $\Delta\Omega$  beschreibt die Variation des Raumwinkels für verschiedene Positionen



**Abbildung 3.25:** Teilchenidentifizierung beim Browne-Buechner-Magneten. Auf der Ordinate ist die Energie der Teilchen in Kanälen aufgetragen, da die Energie-zu-Kanal-Umwandlung für jedes Teilchen getrennt bestimmt werden muss. Für die hier gezeigten Teilchen und Energien ist die Kanalnummer in ausreichend guter Näherung proportional zur Energie. Teilchen mit identischem  $q^2/m$ -Verhältnis liegen auf identischen Ästen.

auf der Fokalebene. Es ist zweckmäßig, alle Größen als Funktion von  $\frac{E-E_0}{E_0}$  aufzufassen. Dann ist

$$\frac{d(Y/Y_0)}{d(E/E_0)} = 1 - \frac{d(Y/Y_0)}{d(E/E_0)} \Big|_{E=E_0} \left( \frac{E-E_0}{E_0} \right) \quad (3.21)$$

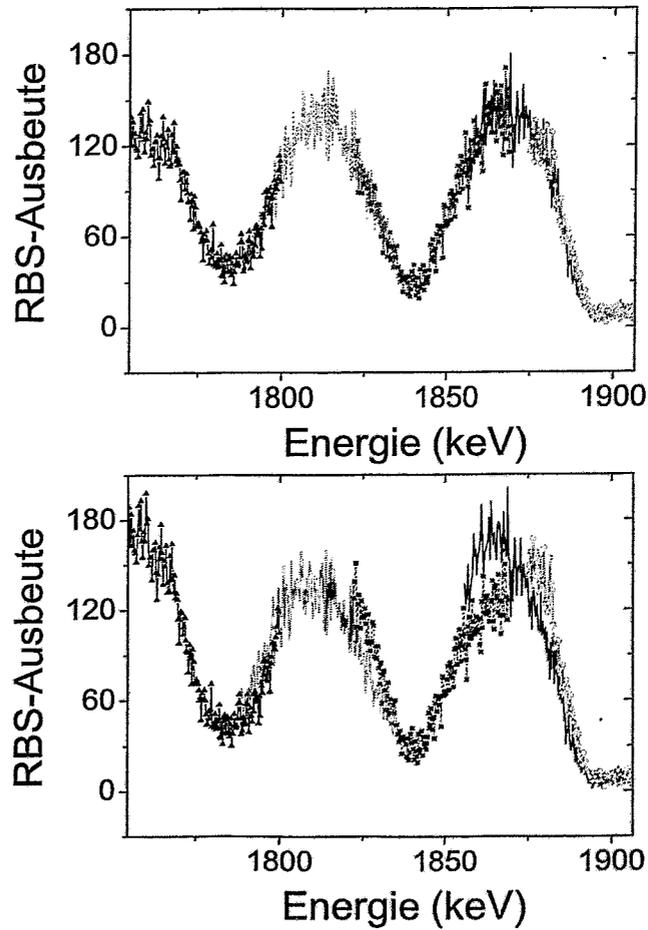
sowie

$$\frac{dE}{ds} = \frac{E_0}{D_0} \left( 1 - \frac{4}{5} \frac{E-E_0}{E_0} + \dots \right) \quad (3.22)$$

und

$$\Delta\Omega = \Delta\Omega_0 \left( 1 - \sin(63^\circ) \frac{D_0}{L_0} \frac{E-E_0}{E_0} \right). \quad (3.23)$$

Dabei ist  $63^\circ$  der Winkel zwischen der Fokalebene und der Teilchentrajektorie,  $D_0$  die Dispersion und  $L_0$  die gesamte Weglänge der Teilchen von der Quelle bis zur Fokalebene. Der Index 0 deutet an, dass sich diese Größen auf die  $90^\circ$ -Bahn beziehen. Am einfachsten ist es, wenn außerdem alle Größen für  $E = E_0$  auf 1 normiert werden. Misst man nun ein Spektrum und dividiert durch (3.21), (3.22) und (3.23), so ergibt sich die gewünschte Korrektur für die Ausbeute pro Kanal. Die Energiebreite eines Kanals ist dann durch  $\Delta E/\Delta k$  gegeben, wobei  $\Delta E$  die Gesamtbreite des Fensters ist, die sich aus der Detektorlänge und der Dispersion ergibt und  $\Delta k$  die Gesamtbreite des Spektrums in Kanälen. Ein Beispiel für eine auf diese Weise durchgeführte Korrektur zeigt Abbildung 3.26.



**Abbildung 3.26:** Beispiel für ein aus mehreren Einzelspektren zusammengesetztes HRBS-Spektrum. Oben: nach der Korrektur. Unten: Vor der Korrektur. Es handelt sich um ein Spektrum der in Kapitel 4 beschriebenen Probe PS297. Die dort gezeigten Spektren sind um einen Faktor 8 komprimiert und haben deshalb eine achtmal so große Zählrate wie die hier gezeigten Spektren.

## Kapitel 4

# Hochauflösende RBS an Mehrfachschichten

Das Arbeitspferd der Rutherford Streuspektrometrie ist seit jeher He bei einer Energie von typischerweise 1-2 MeV und einem Streuwinkel nahe  $180^\circ$ . Die Energieauflösung der dabei üblicherweise eingesetzten Halbleiterdetektoren liegt für He-Ionen etwa bei 12-15 keV und erlaubt damit bestenfalls eine Tiefenauflösung von einigen Nanometern. Um die Tiefenauflösung zu verbessern ist es notwendig, die Energieauflösung des Detektionssystems zu verbessern und gegebenenfalls Primärionen mit höherem Energieverlust einzusetzen. Während eine Verbesserung der Energieauflösung durch den Einsatz von Spektrometern bewerkstelligt werden kann, lassen sich höhere Energieverluste nur durch die Verwendung von Primärionen mit höherer Kernladungszahl erreichen. Als positiver Nebeneffekt wächst auch der Wirkungsquerschnitt für Rutherford-Streuung mit  $Z_1^2$ . Im Folgenden wird für Ionen mit einer Kernladungszahl  $Z_1 > 2$  die Bezeichnung „schwere Ionen“ benutzt.

Die Verwendung von schweren Primärionen wirft allerdings auch Fragen auf. Sowohl der spezifische Energieverlust als auch das Stragglings von schweren Ionen sind weniger gut bekannt als z.B. von Protonen oder He-Ionen. Darüber hinaus verteilt sich die Gesamtheit der gestreuten Ionen gerade im Maximum des Energieverlustes auf mehrere Ladungszustände. Da diese im Spektrometer getrennt werden, ist es nicht möglich, die Spektren aller Ladungszustände gleichzeitig zu messen. Zudem stellt sich die Frage, wie sich die Ladungszustandsabhängigkeit des Energieverlustes in den Spektren bemerkbar macht. Schließlich ist der Einfluss einer Schädigung der Probe durch den Analysestrahl zu untersuchen, da dieser den positiven Effekt erhöhter Wirkungsquerschnitte zumindest teilweise zunichte machen kann.

In diesem Kapitel werden Messungen an Mehrfachschichtsystemen vorgestellt, welche die mit der HRBS am Rossendorfer Browne-Buechner-Spektrometer erreichbare Tiefenauflösung im Tiefenbereich bis etwa 20 nm illustrieren. Gleichzeitig erlaubt die Auswertung dieser Spektren die Bestimmung des Stragglings und des Energieverlustes von C- und Li-Ionen bei den verwendeten Energien. An einem Beispiel wird der Einfluss des registrierten Ladungszustands auf die Normierung der Spektren diskutiert. Die Schädigung durch C-Ionen wird an einem weiteren Beispiel demonstriert und für verschieden schwere Primärionen verglichen. Schließlich werden die erhaltenen Resultate für zwei der Proben mit den Ergebnissen aus HRTEM-Aufnahmen und Röntgen-Reflektometrie-Messungen verglichen. Die Vor- und Nachteile der HRBS werden in diesem Zusammenhang diskutiert.

## 4.1 Untersuchte Proben

Eine Übersicht über alle hier untersuchten Proben gibt Tabelle 4.1. Die mit PS bezeichneten Proben wurden im Fraunhofer Institut für Werkstoff- und Strahltechnik in Dresden mittels Magnetron-Sputtern hergestellt [Bra00]. Die mit MOSI bezeichneten Proben wurden im Centre Spatial de Liège hergestellt [Str02]. Solche Mehrschichtsysteme werden z. B. als Röntgen-

Probe	Zusammensetzung	$d_l$ (nm)	$d_s$ (nm)	Primärion
PS163	Si-Substrat/50(Mo/Si)	4.1	2.74	2 MeV C
PS297	Si-Substrat/30(Mo/B <sub>4</sub> C)	2.33	1.9	2 MeV C
PS380	Si-Substrat/20(W/B <sub>4</sub> C)	2.13	1.96	2 MeV C
MOSI4	Glas-Substrat/5(Mo/Si)	2.5	5.6	3 MeV Li <sup>2+</sup>
MOSI6	Glas-Substrat/5(Mo/Si)	7.4	14.8	5 MeV Li <sup>3+</sup>
MOSI3	Glas-Substrat/5(Mo/Si)	4.4	11.4	5 MeV Li <sup>3+</sup>

**Tabelle 4.1:** Bezeichnung und Zusammensetzung der untersuchten Mehrschichten. Es wechseln jeweils Schichten aus Elementen geringer Atommasse mit Schichten aus Elementen großer Atommasse ab. Die Größen  $d_l$  bzw.  $d_s$  bezeichnen die Dicke der „leichten“ (Index l) bzw. der „schweren“ (Index s) Schicht. Die Schichtdicken der mit PS bezeichneten Proben wurde mittels Cu-K<sub>α</sub> Röntgen-Reflektometrie bestimmt [Bra01b]. Die Schichtdicken der mit MOSI bezeichneten Proben folgen aus den in Abschnitt 4.5 beschriebenen HRBS-Messungen. Die letzte Spalte gibt an, mit welchen Ionen und bei welcher Energie die Proben gemessen wurden.

spiegel in der Röntgenlithografie eingesetzt. Eine zuverlässige Bestimmung der Schichtdicken und eine genaue Kenntnis der Zusammensetzung der Grenzschichten ist von großer Bedeutung für die Beurteilung der Qualität dieser Schichten [Bra01].

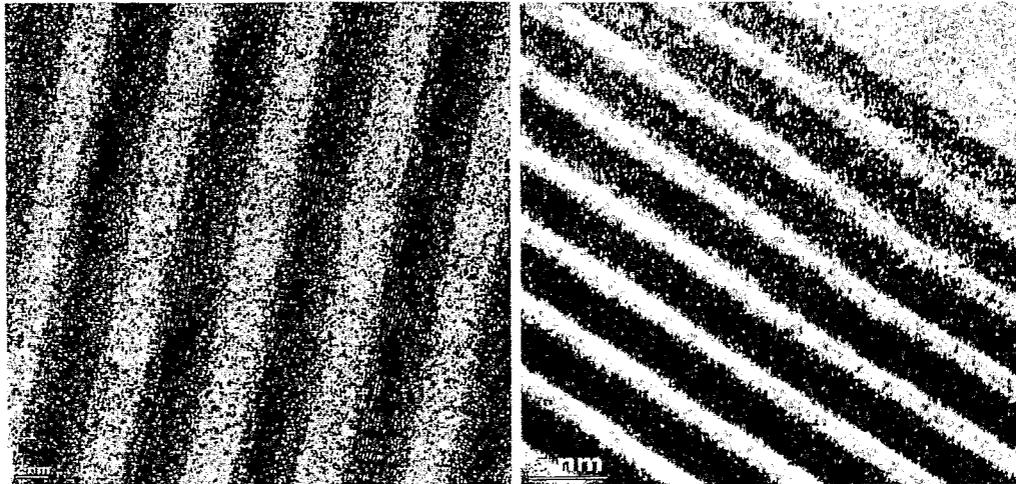
### 4.1.1 HRTEM-Charakterisierung der Proben

Die Proben PS163 und PS297 wurden mit Hilfe der Hochauflösenden Transmissions-Elektronenmikroskopie (HRTEM) charakterisiert. Für die direkte Abbildung der Schichtabfolge in der Probe ist die HRTEM die geeignete Methode. Im Gegensatz zur RBS erlaubt sie eine Bestimmung von Dicken ohne Annahmen bezüglich der Dichten der untersuchten Materialien. Die Kalibrierung des Dickenmaßstabes lässt sich dabei mit einer Genauigkeit von typischerweise 1 Å durchführen. Der Nachteil dieser Methode besteht zum einen in dem hohen Aufwand, welcher zur Präparation der Proben notwendig ist und zum anderen in der Größe der analysierbaren Bereiche, welche bei hoher Auflösung im Allgemeinen im Bereich von  $\sim 100$  nm liegt. Die Aufnahmen wurden mit einem Mikroskop der Marke Philips CM300 bei einer Beschleunigungsspannung von 300 kV durchgeführt. Die Vergrößerung betrug 550000 [Mue01].

Abbildung 4.1 zeigt HRTEM-Aufnahmen der Proben in der Nähe der Oberfläche. Die linke Aufnahme zeigt PS163. Die Kristallebenen der Mo-Polykristalle sind deutlich zu erkennen. Eine Fourier-Transformation dieser Bereiche liefert einen Netzebenenabstand von 0.223 nm, der faktisch mit dem Abstand der {110}-Ebenen des Mo ( $d=0.2225$  nm) identisch ist. Im gesamten Bereich des Bildausschnittes ist eine Durchmischung der Mo- und der Si-Schichten im Bereich der Grenzfläche zu erkennen, die lateral allerdings nicht homogen ist und sich daher schwer quantifizieren lässt. Für die Periodendicke in diesem Bildausschnitt ergibt sich ein Wert von

( $6.4 \pm 0.1$ ) nm, die Dicke der Einzelschichten ist nicht genau zu bestimmen, da die Grenzen der Einzelschichten nicht scharf definiert sind.

Die rechte Aufnahme zeigt PS297. Aufgrund des Elementkontrastes lassen sich die Mo- und  $B_4C$ -Schichten klar unterscheiden. Im Unterschied zur Probe PS163 ist eine Durchmischung im Bereich der Grenzflächen nicht nachweisbar. Für die Periodendicke ergibt sich in diesem Ausschnitt ein Wert von ( $4.3 \pm 0.1$ ) nm.



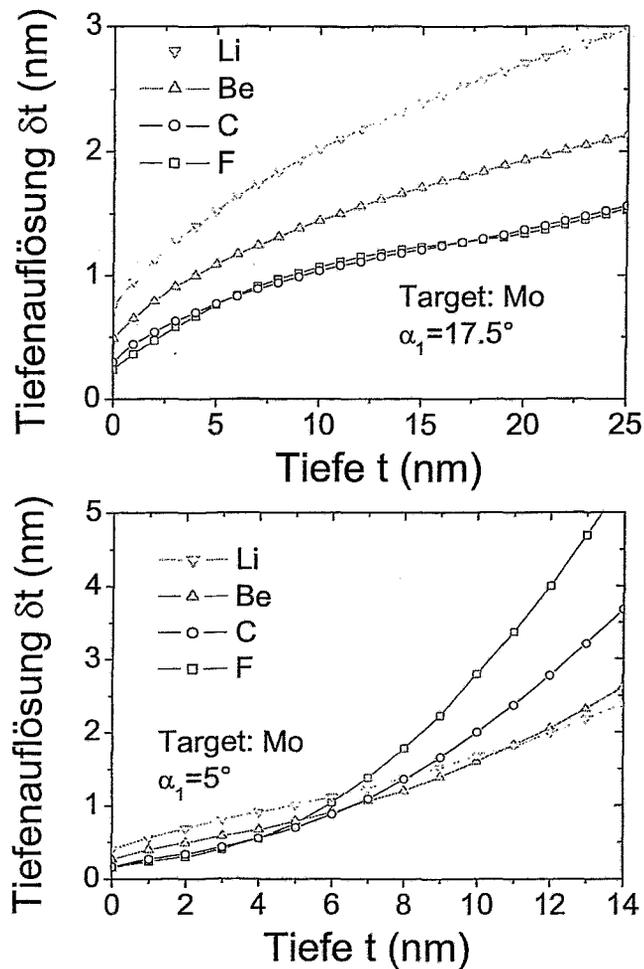
**Abbildung 4.1:** HRTEM-Aufnahmen von Querschnitten der Proben PS163(links) und PS297(rechts). Beide Aufnahmen zeigen einen Ausschnitt nahe der Oberfläche, im unteren Bild ist rechts oben der Kleber zu sehen. Die dunkleren Bereiche sind die Mo-Schichten, die helleren zeigen Si-Schichten(links) bzw.  $B_4C$ -Schichten(rechts).

#### 4.1.2 Charakterisierung mittels Röntgenreflektometrie

Die Röntgenreflektometrie bietet vor allem bei der Bestimmung der Periodendicke die höchste Genauigkeit, während die Bestimmung der Dicke der Einzelschichten ein genaues Modell der Schichtabfolge erfordert. Mit Hilfe der Cu-K $\alpha$ -Reflektometrie ergeben sich für die Proben PS163, PS297 und PS380 die in Tabelle 4.1 angegebene Werte für die Einzelschichtdicken [Bra01b]. Im Fall von PS163 wurde dabei angenommen, dass die Grenzfläche Mo-auf-Si eine Dicke von 1.2 nm und die Grenzfläche Si-auf-Mo eine Dicke von 0.7 nm aufweist. Die Grenzflächenrauigkeit liegt im Bereich von 0.8 nm. Für PS297 und PS380 ergeben sich nahezu scharfe Grenzflächen mit einer Übergangsschichtdicke zwischen 0.5 nm und 0.7 nm.

## 4.2 Tiefenauflösung

Während die Tiefenauflösung an der Oberfläche durch apparative Effekte und kinematische Fehler begrenzt ist, dominieren in Tiefen ab etwa 1-2 nm das Stragling und die Vielfachstreuung (siehe auch Abschnitt 2.2). Dabei gilt: Je schwerer das Primärion und je kleiner dessen Energie desto größer der Einfluss der Vielfachstreuung. Da die Vielfachstreuung ein klassischer Vorgang



**Abbildung 4.2:** Tiefenauflösung in Mo für verschiedene schwere Ionen bei einem Streuwinkel von  $35.5^\circ$  und einer Energie von 3 MeV. Die Einfallswinkel betragen  $\alpha_1 = 17.5^\circ$  (oben) bzw.  $\alpha_1 = 5^\circ$  (unten). Die Berechnung erfolgte mit MDEPTH.

ist, welcher im wesentlichen auf dem gut verstandenen Zweierstoß von Primärlion und Targetatom basiert, lässt sie sich mit großer Genauigkeit berechnen.

Anders verhält es sich mit dem Straggling, welches für die hier betrachteten Energien und Ionen auf quantenmechanischem Weg unter Berücksichtigung von Ladungsaustausch berechnet werden muss und eine genaue Kenntnis aller elektronischen Anregungen erfordert. Die Energie- und  $Z_1$ -Abhängigkeit des Straggling ist weniger ausgeprägt als die der Vielfachstreuung. Wie noch zu sehen sein wird, erhält man mit dem Yang-Straggling eine brauchbare Abschätzung für das Straggling schwerer Ionen im hier betrachteten Energiebereich von einigen 100 keV/amu.

Abbildung 4.2 zeigt die Tiefenauflösung von Li-, Be-, C- und F-Ionen in Mo bei einer Energie von 3 MeV und einem Streuwinkel von  $35.5^\circ$ . Es werden Einfallswinkel von  $\alpha_1 = 17.5^\circ$  bzw.  $\alpha_1 = 5^\circ$  miteinander verglichen. Die Berechnung wurde mit MDEPTH (siehe Abschnitt 2.2.3)

durchgeführt. Für die Detektorauflösung wurde ein Wert von 5 keV eingesetzt. Dieser Wert beinhaltet neben der Detektorauflösung auch die durch die endliche Strahlfleckbreite verursachten Fehler, welche in MDEPTH nicht berücksichtigt werden.

Im Falle der nahezu symmetrischen Streugeometrie (oberes Bild) liefert der durch das Straggling bedingte Anstieg der Tiefenauflösung mit  $\sqrt{t}$  den Hauptbeitrag zur Auflösung. Für C- und F-Ionen ergeben sich fast identische Kurven, da sowohl Straggling als auch Energieverlust in etwa gleich stark mit  $Z_1$  zunehmen. Im Falle von Li- und Be-Ionen ergibt sich eine Verschlechterung der Auflösung sowohl an der Oberfläche als auch in der Tiefe für kleinere  $Z_1$ . Sowohl bei C als auch bei F ist in Tiefen um etwa 17 nm ein leichtes Abknicken der Kurven nach oben zu beobachten. Hier macht sich bereits die Vielfachstreuung bemerkbar.

Bei einem Einfallswinkel von  $\alpha_1 = 5^\circ$  (unteres Bild) ist die Vielfachstreuung schon in viel kleineren Tiefen dominierend. Für alle betrachteten Primärionen ist das Abknicken von einem  $\sqrt{t}$ -Verhalten in leicht unterschiedlichen Tiefen zu beobachten. Für alle Primärionen ergibt sich in Oberflächennähe eine bessere Auflösung als bei der symmetrischen Streugeometrie. Dies ist bedingt durch den höheren effektiven Energieverlust. Ab einer bestimmten Tiefe verschlechtert sich dann jedoch die Auflösung zunehmend, so dass die symmetrische Streugeometrie die bessere Auflösung liefert. Für Li tritt dieser Fall ab einer Tiefe von  $\sim 13$  nm ein, für C bereits ab einer Tiefe von  $\sim 7$  nm. In großen Tiefen wird die Auflösung schnell so schlecht, dass man in den Auflösungsereich der konventionellen He-RBS gelangt. Dieser Effekt ist umso deutlicher je schwerer das Primärion ist. Das gleiche Resultat erhält man bei kleinen Austrittswinkeln. Ein qualitativ gleiches Verhalten ergibt sich auch in anderen Targets.

Eine Verbesserung der Tiefenauflösung durch kleinere Ein- oder Austrittswinkel ist also nur dann zu erreichen, wenn die untersuchte Schicht sich in nicht allzu großer Tiefe befindet. Ist man an einer guten Auflösung in einem weiten Tiefenintervall interessiert, ist der Einsatz schwerer Ionen bei möglichst symmetrischer Streugeometrie ratsam.

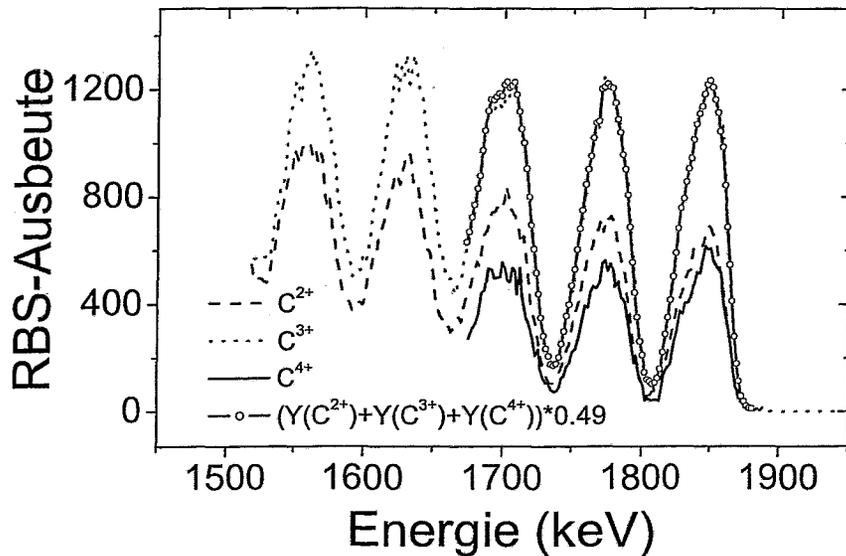
### 4.3 Einfluss des Ladungszustandes

Bei den hier betrachteten Proben werden die Ionen mit der höchsten Rückstreuenergie nicht an der Oberfläche gestreut, da die oberste Schicht aus leichteren Atomen als die darunter liegende besteht und somit aufgrund des geringeren kinematischen Faktors erst bei niedrigeren Energien in Erscheinung tritt. Dies hat den Vorteil, dass sich die Ladungszustandsverteilung des Primärions auf dem Weg aus der Probe heraus dem Gleichgewichtszustand nähert. In wie weit die Ladungszustandsabhängigkeit des Energieverlustes einen Einfluss auf das Spektrum verschiedener registrierter Ladungszustände hat, hängt davon ab, in welcher Tiefe der Gleichgewichtszustand erreicht wird.

Darüber hinaus stellt der Ladungszustandsanteil des registrierten Ions ein Normierungsproblem dar. Eine Messung aller Ladungszustände würde die Messzeit erheblich verlängern. Die Variation des Ladungszustandsanteils ist am geringsten, wenn sich dieser im Maximum der Ladungszustandsverteilung befindet. Aus dieser Bedingung ergibt sich für jeden Ladungszustand eine optimale Energie für eine HRBS-Messung. Für  $C^{4+}$  liegt diese Energie bei etwa 4.8 MeV, für  $C^{3+}$  bei etwa 2 MeV. Der spezifische Energieverlust von C ist in den meisten Materialien für diese beiden Energien nicht sehr verschieden, da das Maximum der Energieverlustkurve sehr breit ist. Die Variation des Ladungszustandsanteils ist für  $C^{4+}$  deutlich geringer als für  $C^{3+}$  und erstreckt sich über ein größeres Energieintervall. Allerdings ist auch der Wirkungsquerschnitt

bei einer Energie von 4.8 MeV um etwa den Faktor 6 geringer als bei einer Energie von 2 MeV. Die in Abschnitt 4.5.1 gezeigten Spektren mit Kohlenstoff als Primärion wurden daher sämtlich bei 2 MeV gemessen.

Abbildung 4.3 zeigt die Spektren der Probe PS163 für die drei am stärksten bevölkerten Ladungszustände. Während die Anteile der Ladungszustände  $C^{2+}$  und  $C^{4+}$  mit abnehmender Energie zu- bzw. abnehmen, bleibt der Ladungszustandsanteil der  $C^{3+}$ -Ionen nahezu konstant. Die Form des Spektrums ist für alle Ladungszustände identisch. Insbesondere lässt sich keine Abhängigkeit des Energieverlustes vom registrierten Ladungszustand erkennen.



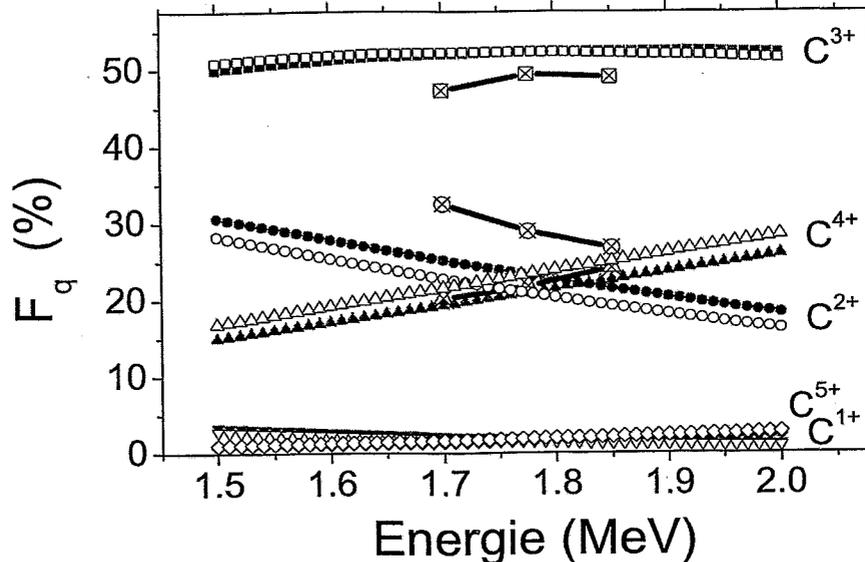
**Abbildung 4.3:** HRBS-Spektrum der Probe PS163 für drei verschiedene registrierte Ladungszustände bei einem Streuwinkel von  $35.5^\circ$  und einem Einfallswinkel von  $17.5^\circ$ . Als Primärion wurde  $C^{2+}$  verwendet, detektiert wurden  $C^{2+}$ ,  $C^{3+}$  und  $C^{4+}$ . Die offenen Kreise zeigen das aus den drei Messungen gemittelte Spektrum.

Zur Normierung der Spektren ergibt sich das folgende Bild: Der mittlere Ladungszustand hängt nicht sehr stark von dem Material ab, durch den sich das Ion bewegt. Es existieren eine ganze Reihe von Datensammlungen zu gemessenen Ladungszustandsverteilungen [Shi85, Shi92, Wit73] sowie auf diesen basierende Ausdrücke für den mittleren Ladungszustand  $\bar{q} = \sum q F_q$  für Graphit-Folien [Nik68, Shi92] bzw. für beliebige Targets [Sch01, Nor63]. Diese können zur Abschätzung der Variation des Ladungszustandes mit der Energie und damit mit der Tiefe herangezogen werden. Für eine Berechnung des Ladungszustandsanteils ist neben der Kenntnis des mittleren Ladungszustandes auch die Kenntnis der Breite und Form der Verteilung als Funktion der Energie notwendig. Diese Breite wird üblicherweise durch die Standardabweichung

$$d_q = \left( \sum (q - \bar{q})^2 F_q \right)^{1/2} \quad (4.1)$$

charakterisiert. Im Bereich mittlerer Ladungszustände, d.h. dort wo  $\bar{q}/Z_1$  nicht zu weit von 0.5 entfernt ist, lässt sich die Ladungszustandsverteilung im Gleichgewicht durch eine Gaußkurve

beschreiben. Zwar können sich für Ionen mit abgeschlossenen Schalen auch nichtsymmetrische Ladungszustandsverteilungen ergeben [Moa67, Shi92]. Dieser Effekt ist allerdings erst ab der L-Schale, d.h. für Ionen mit  $Z_1 > 10$  und  $Z_1 - \bar{q} \approx 10$  ausgeprägt.



**Abbildung 4.4:** Gemessene und mit Gleichung (4.2) berechnete Ladungszustandsanteile für 2 MeV C-Ionen. Werte für  $\bar{q}$  und  $d_p$  sind [Sch01] entnommen. Quadrate: Ladungszustand C3+, Kreise: Ladungszustand C2+, Dreieck (Spitze oben): Ladungszustand C4+, Dreieck (Spitze unten) Ladungszustand C1+, Raute: Ladungszustand C5+. Volle Symbole: ohne Schalenkorrektur, offene Symbole: mit Schalenkorrektur, gekreuzte Symbole: Messung (siehe Abbildung 4.3).

Für Ionen mit  $Z_1 < 10$  erhält man die Ladungszustandsverteilung in sehr guter Näherung durch eine Ausdruck der Form

$$F_q = C \exp(-(q - \bar{q})^2 / 2d_q^2). \quad (4.2)$$

Dabei ist  $C$  eine Normierungskonstante. Ausdrücke für die Breite der Verteilung finden sich z.B. in [Shi92] (für C-Folien) und [Nik68] sowie [Sch01] (für beliebige Targets). In [Sch01] sind  $\bar{q}$  und  $d_q$  explizit targetabhängig. Für  $\bar{q}$  wird dort überdies eine Schalenkorrektur vorgeschlagen, welche allerdings nur für C-Targets gut zu extrahieren ist.

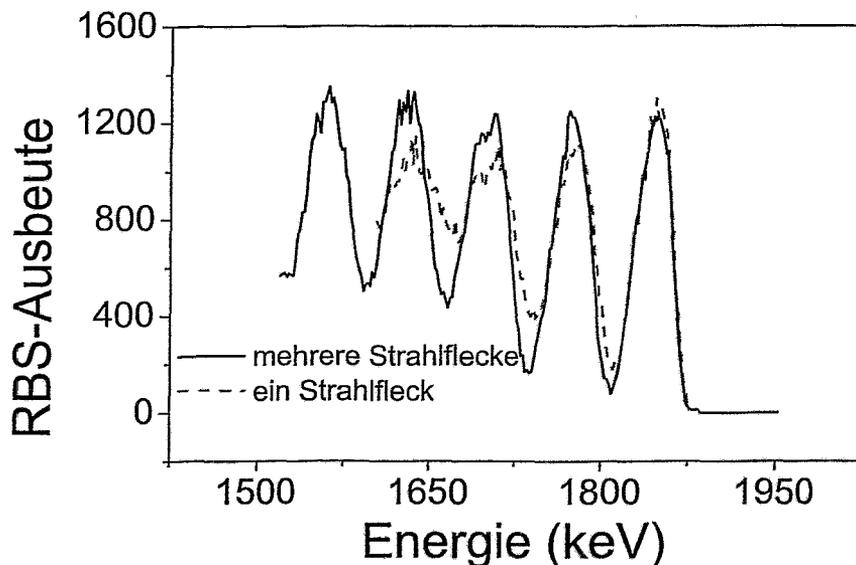
Abbildung 4.4 veranschaulicht den Verlauf der Ladungszustandsanteile für C-Ionen im Bereich von 1.5 MeV bis 2 MeV in Si. Werte für  $\bar{q}$  und  $d_q$  sind [Sch01] entnommen, erstere einmal mit und einmal ohne Schalenkorrektur. Ebenfalls dargestellt sind die Anteile für die in Abbildung 4.3 gezeigte Messung. Dabei wurden die Ladungszustände  $q = 1$  und  $q = 5$  vernachlässigt, was zu einem Fehler von etwa 10% in den Absolutwerten führt, den Verlauf als Funktion der Energie aber nicht beeinflusst. Folgendes lässt sich feststellen: (i) Die relativen Verläufe der drei Datensätze als Funktion der Energie sind sehr ähnlich, (ii) der Fehler bei der Berechnung der Absolutwerte für die Ladungszustandsanteile liegt in der Größenordnung von 10% und (iii) die Variation des Ladungszustandes  $C^{3+}$  mit der Energie liegt für alle drei Datensätze unter 3%.

Als wahrscheinlichste Ursachen für die Diskrepanz in den Absolutwerten der Ladungszustandsanteile sind die Annahme einer Gaußverteilung und die Empfindlichkeit dieser Werte auf einen kleinen Fehler in  $d_q$  zu vermuten. Der Fehler in der Normierung der Spektren ist zu vergleichen mit den Fehler aus der Bestimmung des Primärionenstroms und des Raumwinkels, welche oft in der gleichen Größenordnung liegen (siehe z.B. Anhang C).

Falls Messungen der Ladungszustandsverteilung vorliegen, sind diese einer Berechnung nach Gleichung 4.2 vorzuziehen. Dies ist z. B. bei den Messungen mit Li-Ionen der Fall, welche in Abschnitt 4.5.2 vorgestellt werden.

#### 4.4 Schädigung durch den Analysestrahl

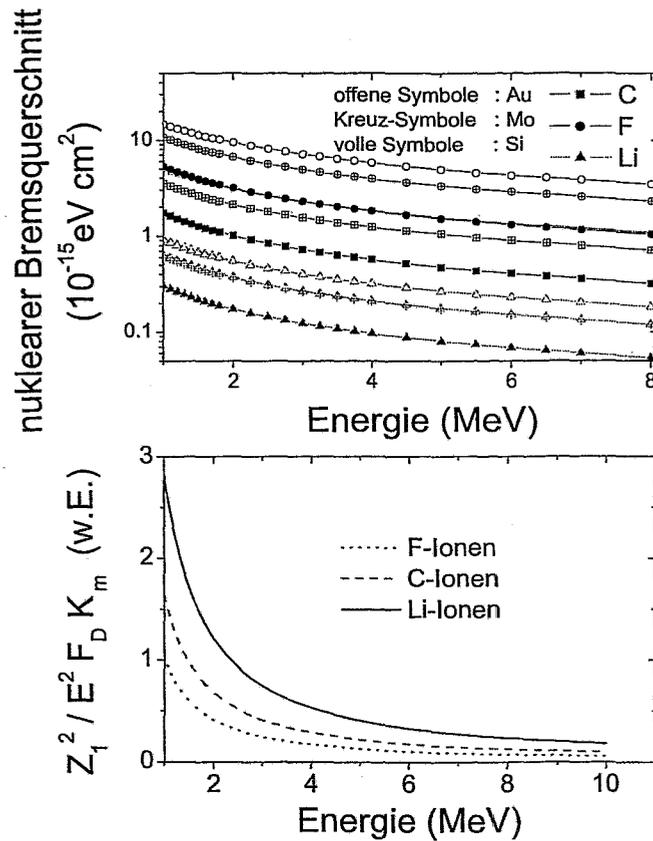
Im Falle der He-RBS kann die Schädigung der Probe durch die Primärionen vernachlässigt werden, da einerseits das Material durch den Analysestrahl nur wenig modifiziert wird und andererseits die Auflösung in den allermeisten Fällen ohnehin nicht ausreicht, um einen sichtbaren Effekt im Spektrum zu beobachten. Wenn man allerdings zu Ionen mit höherer Kernladung übergeht und zudem eine Auflösung im Nanometerbereich und darunter erreicht, kann sich das Spektrum während der Messung abhängig von der Primärionenfluenz verändern.



**Abbildung 4.5:** Spektrum der Probe PS163 bei verschiedenen Primärionenfluenzen, gemessen mit 2 MeV C-Ionen. Der Einfallswinkel lag bei  $\alpha_1 = 17.5^\circ$ , der Streuwinkel war  $\theta \approx 35.5^\circ$ . Die Spektren setzen sich aus mehreren Einzelspektren zusammen (siehe Text).

Die maximale Primärionenfluenz, die die Zusammensetzung der Probe nicht merklich beeinflusst, erfordert eine genaue Betrachtung des Ionenmischens in der zu messenden Probe. Dies lässt sich am einfachsten auf experimentelle Weise bewerkstelligen. Als Beispiel zeigt Abbildung 4.5 zwei bei verschiedenen Fluenzen gemessene Spektren der Probe PS163. Beide Spektren wurden unmittelbar nacheinander gemessen. Die durchgezogene Linie zeigt ein Spektrum, welches sich aus elf Einzelspektren einer relativen Energiebreite von etwa 2.4% zusammensetzt, wobei

jedes Einzelspektrum einer Fluenz von etwa  $4.3 \times 10^{14}$  at/cm<sup>2</sup> ausgesetzt wurde. Nach jedem zweiten Einzelspektrum wurde der Strahlfleck gewechselt. Im Unterschied dazu wurden die acht Einzelspektren des zweiten Spektrums alle auf dem gleichen Strahlfleck gemessen und zwar beginnend mit den hohen Energien, so dass der hochenergetische Teil des Spektrums bei einer Fluenz von  $4.3 \times 10^{14}$  at/cm<sup>2</sup> und der niederenergetische Teil einer Fluenz von  $3.4 \times 10^{15}$  at/cm<sup>2</sup> ausgesetzt wurde. Durch die hohe Fluenz wird die Probe in einem Maß geschädigt, welches keine zuverlässige Aussage über die ursprüngliche Zusammensetzung der Probe mehr erlaubt. Als Grenzfluenz unterhalb der sich keine im Spektren sichtbare Durchmischung der Schichten ergibt wurde in diesem Fall  $1 \times 10^{15}$  at/cm<sup>2</sup> ermittelt, so dass man mit der für das erste Spektrum gewählten Fluenz auf der sicheren Seite liegt.



**Abbildung 4.6:** Oben: Nuklearer Energieverlust von C, Li, und F in Au, Si und Mo. Unten: Verhältnis von Wirkungsquerschnitt und Schädigung durch den Primärionenstrahl für Li-, C- und F-Ionen. Die Einheiten auf der Ordinate sind willkürlich.

Eine einfache, analytische Beschreibung des Ionenmischens ist nur in seltenen Fällen möglich. Für eine grobe Abschätzung lässt sich das durch die Stoßkaskade induzierte Mischen einer dünnen Markerschicht in einer homogenen Matrix heranziehen [Sig81]:

$$k = \frac{\sigma^2}{\Phi} = \frac{\Gamma}{6} K_m \frac{F_D \langle r^2 \rangle}{N E_d} \quad (4.3)$$

Dabei ist  $\sigma$  die Verschmierung einer ursprünglich scharfen Markerschicht nach Beschuss mit Ionen der Masse  $m_1$ ,  $\Phi$  die Ionenfluenz,  $\Gamma = 0.608$ ,  $K_m = (4m_1m_2/(m_1 + m_2)^2)^{1/2}$ ,  $N$  die atomare Dichte des Targets,  $F_D$  die Schädigungsenergie pro zurückgelegtem Weg (welche sich z.B. durch den nuklearen Energieverlust abschätzen lässt),  $E_d$  die Verlagerungs-Energie und  $\langle r^2 \rangle$  die mittlere quadratische Reichweite der verlagerten Atome. Mit  $E_d \approx 15$  eV und  $\langle r^2 \rangle \approx 1$  nm<sup>2</sup> erhält man z.B. für 2 MeV C in Si  $k = 6 \times 10^{-4}$  nm<sup>4</sup>. Will man also die Verschmierung der Markerschicht unter 0.2 nm halten, so darf die Fluenz den Wert  $\Phi = 1.1 \times 10^{15}$  at/cm<sup>2</sup> nicht überschreiten.<sup>1</sup> Die gute Übereinstimmung mit dem experimentell ermittelten Wert sollte nicht überbewertet werden, da Gleichung (4.3) lediglich den ballistischen Effekt der Stoßkaskade berücksichtigt und der Wert für die noch erlaubte Verschmierung der Schichten ein wenig willkürlich gewählt wurde.

Abbildung 4.6 oben zeigt den nuklearen Energieverlust verschiedener schwerer Ionen. Bei gleicher Energie und in identischen Targets steigt  $k$  nach Gleichung(4.3) für zunehmend schwere Ionen stärker als der Wirkungsquerschnitt für Rutherford-Streuung, für den  $\frac{d\sigma}{d\Omega} \propto Z_1^2/E^2$  gilt. Für Mo-Targets ist in Abbildung 4.6 unten das Verhältnis  $Z_1^2/E^2 F_D K_m$  für Li-, C- und F-Ionen dargestellt. Dieses Verhältnis ist ein Maß für die Zählrate, die man für die verschiedenen Primärionen bei gleicher Schädigung erreichen kann. Dabei ergeben sich für Li-Ionen günstigere Bedingungen als für C- oder F-Ionen. So kann man bei Verwendung von Li-Ionen eine etwa doppelt so große Fluenz tolerieren wie bei der Verwendung von C-Ionen.

Es soll schließlich an dieser Stelle nicht unerwähnt bleiben, dass natürlich die für ein Spektrum benötigte Fluenz weiter reduziert werden kann, wenn man den Raumwinkel erhöht oder den Strahlfleck vergrößert. Während letzteres sich auf die Auflösung in der Nähe der Oberfläche negativ auswirkt, ist ersteres z. B. durch den Einsatz eines größeren Fokalebenendetektors einfach zu bewerkstelligen.

## 4.5 Stragging

In diesem Abschnitt wird demonstriert, auf welche Weise aus HRBS-Spektren von Mehrschichten Stragging-Werte extrahiert werden können. Da die genaue Kenntnis des Stragglings von großer Bedeutung für die Nutzung der hochauflösenden RBS ist, werden in diesem Abschnitt die Erkenntnisse aus Messungen verschiedener Mehrschichten mit C- und Li-Ionen zusammengefasst.

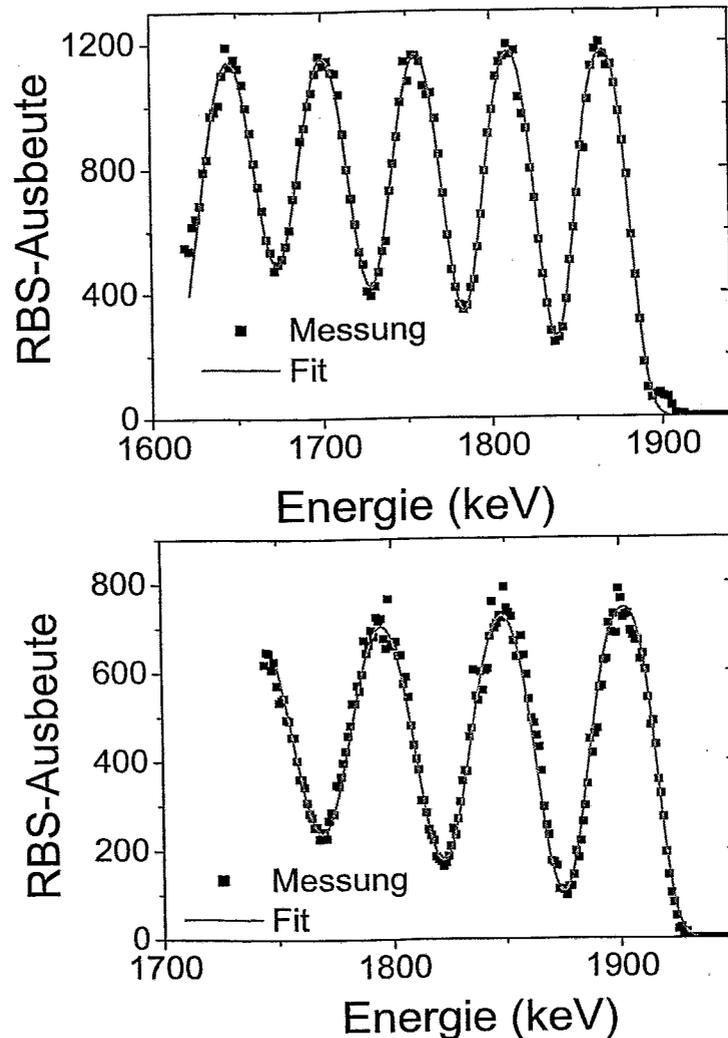
Die Grenzschichten dieser Proben müssen nicht notwendigerweise atomar glatt sein, um eine Aussage über das Stragging zu erhalten. Solange man davon ausgehen kann, dass die Übergangsschichten nicht zu groß sind und ansonsten für alle Schichten die gleiche Dicke aufweisen, lassen sich aus der Verbreiterung der Kantenschärfe Rückschlüsse auf das Stragging ziehen. Alle im Folgenden gezeigten Spektren wurden bei einem Streuwinkel von 35.5° gemessen. Der Einfallswinkel betrug, falls nicht anders erwähnt, 17.5°.

### 4.5.1 Messungen mit Kohlenstoff-Ionen

Die Messungen mit C-Ionen wurden bei einer Primärenergie von 2 MeV durchgeführt. Der Ladungszustand C<sup>3+</sup> ist bei dieser Energie mit einem Anteil von etwa 50% der am stärksten

<sup>1</sup>Beachte:  $\sigma = 0.2/2.355$  nm zur Konvertierung der  $\sigma$ -Breite in die volle Halbwertsbreite

bevölkerte. Die Änderung dieses Anteils ist im Bereich des Maximums der Ladungszustandsverteilung minimal und er kann daher, abgesehen von Nichtgleichgewichtseffekten in den obersten Atomlagen, als konstant angenommen werden (siehe Abschnitt 4.3). Das Spektrum der Probe



**Abbildung 4.7:** Spektren der Proben PS380(unten) und PS297(oben), gemessen mit 2 MeV C-Ionen bei einem Streuwinkel von  $35.5^\circ$  und einem Einfallswinkel von  $17.5^\circ$ . Die durchgezogene Linie zeigt einen Fit nach Gleichung (4.4).

PS297 zeigt deutlich die ersten fünf Mo-Schichten. Mit zunehmender Tiefe wird die Auflösung schlechter. Dieser Zusammenhang spiegelt sich in dem Anstieg der Minima zwischen den Peaks wider. Die Schärfe der Kanten ist bestimmt durch Straggling auf der einen Seite und die Isotopenverteilung von Mo sowie die apparative Auflösung auf der anderen Seite. Die Isotopenverteilung liefert einen Beitrag von 7.5 keV. Die apparative Auflösung wurde aus Messungen an

Au-Monolagen bei der gleichen Streugeometrie bestimmt und beträgt 5 keV. Im wesentlichen das gleiche Bild ergibt sich für Probe PS380. Die kinematische Verschmierung aufgrund der Isotopenverteilung von W beträgt hier 1 keV. Abbildung 4.7 zeigt das auf diese Weise erhaltene Spektrum der Proben PS297 und PS380. Die Spektren bestehen aus 9 bzw. 6 Einzelspektren. Nach jedem zweiten Messpunkt wurde der Strahlfleck gewechselt. Jeder einzelne Messpunkt wurde mit einer Fluenz von etwa  $0.58 \mu\text{C}$  bzw.  $0.28 \mu\text{C}$  Teilchen belastet. Dies entspricht etwa  $1.6 \times 10^{14} \text{ at/cm}^2$  bzw.  $3.4 \times 10^{14} \text{ at/cm}^2$ . Bei dieser Fluenz ist keine im Spektrum sichtbare Veränderung der Proben zu beobachten.

Sofern die Grenzflächen zwischen den einzelnen Schichten die gleiche Beschaffenheit aufweisen und andere Effekte als das Stragglings vernachlässigt werden können oder zumindest konstant bleiben, lassen sich aus der zunehmenden Verbreiterung der Kanten der Mo- bzw. W-Schichten Rückschlüsse auf das Stragglings ziehen.

Um konkrete Werte zu erhalten, wurde vereinfachend angenommen, dass die entsprechende Auflösungsfunktion gaußförmig ist. In diesem Fall ergeben sich Kantenformen in der Form einer gaußschen Fehlerkurve. Eine mögliche Asymmetrie der Auflösungsfunktion ist schwer abzuschätzen, da für diese Ladungsaustauscheffekte (siehe z.B. [Gla00]) und die Asymmetrie des Energieverlustspektrums in geringen Tiefen verantwortlich sein können. Nach Gleichung (2.26) sollte die Asymmetrie des Energieverlustspektrums nach wenigen Monolagen nicht mehr zu beobachten sein. Diese Gleichung gilt jedoch nur für den Fall, dass Ladungsaustauscheffekte nicht berücksichtigt werden müssen. In [Nae94] wird gezeigt, dass die durch Ladungsaustausch induzierte Asymmetrie für schnelle Ionen im Bethe-Bloch-Bereich gegenüber der stoßinduzierten Asymmetrie zu vernachlässigen ist. Da die hier betrachteten Energien nicht zu weit vom Bethe-Bloch-Bereich entfernt sind, ist die Annahme einer gaußförmigen Auflösungsfunktion gerechtfertigt.

Das Spektrum wurde mit einer Funktion der Form

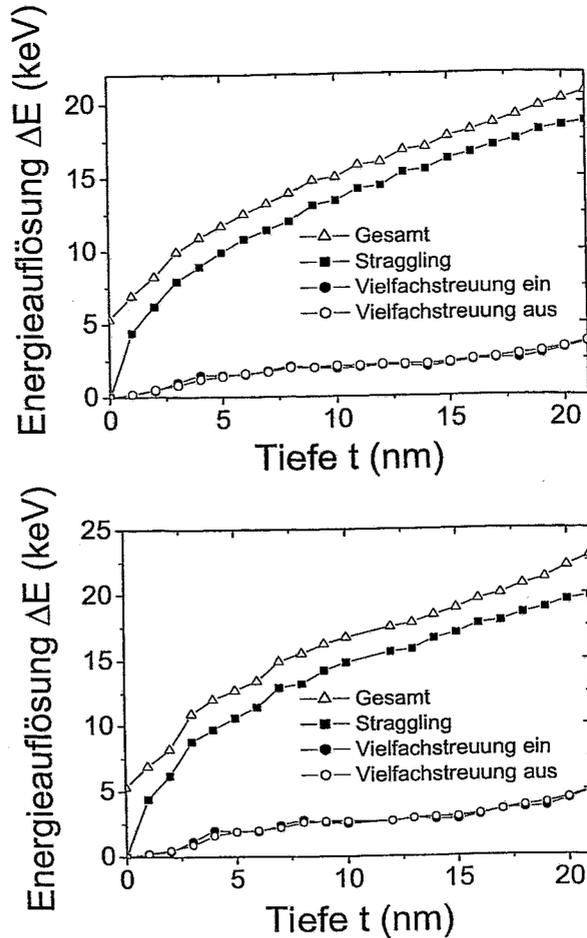
$$\zeta(E) = \sum_{i=1}^5 \zeta_i(E) \quad (4.4)$$

gefitet mit

$$\zeta_i(E) = \frac{A_i}{E_{i2} - E_{i1}} \left[ \mathcal{G}\left(2\sqrt{\ln 2} \frac{E - E_{i2}}{w_{i2}}\right) - \mathcal{G}\left(2\sqrt{\ln 2} \frac{E - E_{i1}}{w_{i1}}\right) \right]. \quad (4.5)$$

Dabei sind  $w_{ij}$  die Breite der Vorderkante ( $j=1$ ) bzw. der Rückkante ( $j=2$ ) des  $i$ -ten Peaks,  $E_{ij}$  dessen Lage und  $\mathcal{G}$  die Gaußsche Fehlerfunktion. Im Falle  $E_{i2} - E_{i1} \gg w_{ij}$  und  $w_{i1} = w_{i2}$  beschreibt Gleichung (4.5) eine Kastenfunktion mit um den Betrag  $w_{ij}$  verbreiterten Kanten. Der Ausdruck ergibt sich aus der Faltung einer scharfen Kastenfunktion mit einer Gaußfunktion der vollen Halbwertsbreite  $w_{ij}$ . Das Integral unter der Kurve beträgt  $A_i$ , unabhängig von der Wahl der Größen  $E_{ij}$  und  $w_{ij}$ . Für den Fall  $E_{i2} - E_{i1} \ll w_{ij}$  geht (4.5) in eine Gaußkurve der vollen Halbwertsbreite  $w_{i1}$  über. Im allgemeinen Fall mit  $w_{i1} \neq w_{i2}$  beschreibt (4.5) eine unsymmetrische Funktion und entspricht damit praktisch der Faltung einer Kastenfunktion mit einer Gaußkurve, deren volle Halbwertsbreite zwischen  $E_{i1}$  und  $E_{i2}$  von  $w_{i1}$  auf  $w_{i2}$  anwächst.

Voraussetzung für eine Abschätzung des Stragglings anhand der gemessenen Mehrschichtpektren ist es, dass das Stragglings den dominanten Beitrag zur Verschlechterung der Energieauflösung über den gemessenen Tiefenbereich darstellt. Zu diesem Zweck wurde mit Hilfe der MDEPTH-Software die Energieauflösung als Funktion der Tiefe berechnet. Das Ergebnis



**Abbildung 4.8:** Berechnete Energieauflösung in der Tiefe  $t$  für die Proben PS297 (oben) und PS380 (unten). Die Auflösung an der Oberfläche beträgt 5 keV. Für das Straggling wurde Yang-Straggling angenommen.

ist in Abbildung 4.8 dargestellt. Für beide Proben dominiert in der Tat der  $\sqrt{t}$ -Anstieg des Straggling die Verschlechterung der Energieauflösung, während der Beitrag der Vielfachstreuung im gesamten Bereich unter dem der apparativen Auflösung von 5 keV bleibt.

In der Nähe der Oberfläche beträgt der Beitrag des Straggling zur Energieauflösung näherungsweise

$$\delta E_{eff} \approx \left( \frac{K}{\sin \alpha_1} \delta E \Big|_{ein} - \frac{1}{\sin \alpha_2} \delta E \Big|_{aus} \right) \approx \delta E \left( \frac{K}{\sin \alpha_1} - \frac{1}{\sin \alpha_2} \right). \quad (4.6)$$

Hier ist für  $\delta E$  einer der Ausdrücke aus Anhang B einzusetzen. Ein Einfluss der nichtstatistischen Verbreiterung (welche in diesem Fall, da 2 MeV C-Ionen für die meisten Targets rechts des Maximums der Energieverlustkurve liegen, eine Verschmälerung bedeutet, siehe Abschnitt 2.2.3) und die Energieabhängigkeit des Straggling sind nicht berücksichtigt. Diese Effekte nehmen mit zunehmender Tiefe zu und betragen in einer Tiefe von 20 nm bei der hier vorliegenden

Streugeometrie etwa 10-15%.

Eine Übersicht über die Stragglings-Werte für 2 MeV C in verschiedenen Targets gibt Tabelle 4.2. Während für sehr hohe Energien (d.h. für  $v \gg Z_1^{2/3}$ ), wo Bohr-, Chu- und Yang-Stragglings ineinander übergehen, die Stragglings-Werte sehr genau bekannt sind [Gla00], ist besonders für schwere Ionen und im Energiebereich um das Maximum der Energieverlustkurve Vorsicht geboten. Das Yang-Stragglings beruht auf einem semiempirischen Fit an gemessene Stragglings-Werte. Der Anteil schwerer Ionen an diesen Messungen ist dabei gering und besteht in Messungen weniger schwerer Ionen in C- und Al-Folien. Es ist daher keineswegs selbstverständlich, dass der Yang-Fit für andere Projektil-Target-Kombinationen verlässliche Werte liefert.

Target	W	Mo	Si	B <sub>4</sub> C
Bohr	6.94	5.23	2.68	2.81
Chu	3.11	2.88	1.88	2.49
Yang	4.35	4.11	3.09	4.75

**Tabelle 4.2:** Effektives Stragglings von 2 MeV C in verschiedenen Targets nach Bohr, Chu und Yang. Für Chu- und Bohr-Stragglings wurde für  $Z_1$  eine effektive Ladung nach [Zie85] angenommen. Aufgelistet ist der Wert  $\omega$  gemäß  $\Delta E_{eff} = \omega \times \sqrt{t}$  mit  $[t]=\text{nm}$  und  $[\Delta E]=\text{keV}$  bei einem Streuwinkel von  $35.5^\circ$  und einem Einfallswinkel von  $\alpha_1 = 17.5^\circ$ . Alle Werte beziehen sich auf Halbwertsbreiten. Die atomaren Dichten  $N$  der Materialien in  $10^{22}\text{at}/\text{cm}^2$  betragen  $N_W=6.32$ ,  $N_{Mo}=6.4$ ,  $N_{Si} = 5.0$  und  $N_{B_4C}=13.73$ .

Es ist davon auszugehen, dass der in Tabelle 4.2 aufgelistete Wert für Chu-Stragglings eine untere Grenze für das Stragglings liefert, da dieser nur solche Effekte berücksichtigt, welche das Stragglings reduzieren.

Beim Bohr-Stragglings werden auf der einen Seite alle Elektronen als frei angenommen, wodurch das Stragglings überschätzt wird und auf der anderen Seite wird Ladungsaustausch nicht berücksichtigt, wodurch das Stragglings unterschätzt wird. Insgesamt liegt, vor allem beim Yang-Stragglings, das Stragglings für verschiedene Targets nicht sehr weit auseinander. Es ist daher gerechtfertigt, das Mehrschichtsystem für diesen Zweck durch eine homogene Schicht der gleichen mittleren Zusammensetzung zu ersetzen. Für PS297 ergibt dies  $\text{Mo}_{0.3}\text{B}_{0.56}\text{C}_{0.14}$  mit der atomaren Dichte  $N = 10.24 \times 10^{22} \text{at}/\text{cm}^2$  und für PS380  $\text{Mo}_{0.3}\text{B}_{0.56}\text{C}_{0.14}$  mit der atomaren Dichte  $N = 10.08 \times 10^{22} \text{at}/\text{cm}^2$ . Das Stragglings dieses Materials ergibt sich aus der Bragg-Regel [Chu78]. Für die Kantenschärfe in (4.5) gilt

$$w_{ij} = \sqrt{w_0^2 + w_{t_s}^2 + \omega^2 t_{ij}}, \quad i = 1..5, \quad j = 1..2. \quad (4.7)$$

Dabei bezeichnet  $t_{ij}$  die aus der XRD ermittelte Tiefe in nm und  $w_{t_s}$  die Verbreiterung der Kante aufgrund der Isotopenverteilung. Der Ausdruck  $w_0$  fasst die übrigen Auflösungsbeiträge zusammen. Passt man nun (4.5) an das HRBS-Spektrum an, so erhält man mit  $\omega^2 t$  direkt das Stragglings für diese Probe in der Tiefe  $t$ .

Es ist wichtig, dass die Höhe der Peaks möglichst genau bekannt ist, da diese mit der Kantenschärfe korreliert ist. Die Spektrum-Höhe wird von zwei Faktoren beeinflusst: (i) Der Wirkungsquerschnitt nimmt mit abnehmender Energie zu und (ii) der Ladungszustandsanteil kann mit abnehmender Energie fallen oder steigen. Punkt (i) ist mit Gleichung (2.11) und (2.15) aus Abschnitt 2.1.3 sehr genau zu bestimmen. Der  $1/E^2$ -Abfall ist dabei gegenüber der Reduktion

infolge elektronischer Abschirmung, welche etwa 0.4% ausmacht, der deutlich dominierende Beitrag. Für den relativen Anstieg des Spektrums bezogen auf die Höhe des ersten Peaks bei der Energie  $E = E_{P1}$  ergibt sich

$$A_i/A_1 = 1 + c_1 \frac{E_{P1} - E_{Pi}}{E_{P1}} \quad (4.8)$$

mit  $c_1=1.098$  bzw.  $1.142$  und  $E_1=1867$  keV bzw.  $1902$  keV für PS297 bzw. PS380.  $E_{Pi}$  bezeichnet hier die Lage des  $i$ -ten Peaks.

Wie in Abschnitt 4.3 bereits diskutiert wurde, liegt die Variation des Ladungszustandsanteils für  $C^{3+}$  im hier interessanten Energiebereich von etwa 1900 bis 1600 keV unter 2% und wird vernachlässigt. Die Breite der Peaks  $\Delta E_M$  und deren Abstand  $\Delta E_{B_4C}$  wurde für alle Peaks als

Ion	2 MeV C	2 MeV C
Probe	PS297	PS380
$A_1/\Delta E_M$	$604 \pm 2$	$384 \pm 2$
$w_0$	$13.5 \pm 1$ keV	$11.4 \pm 1$ keV
$w_{Is}$	7.5 keV	1 keV
$[S]_M$	16.9 keV/nm	17.3 keV/nm
$[S]_{B_4C}$	12.0 keV/nm	12.0 keV/nm
$\Delta E_M$	$33.9 \pm 0.1$ keV	$30.2 \pm 0.1$ keV
$\Delta E_{B_4C}$	$21.2 \pm 0.1$ keV	$22.7 \pm 0.3$ keV
$\omega$	$5.3 \pm 0.5$ keV/nm <sup>1/2</sup>	$6.1 \pm 0.5$ keV/nm <sup>1/2</sup>
$E_{11}$	1882.5 keV	1916 keV

**Tabelle 4.3:** Ergebnisse des Fits der Funktion (4.4) mit (4.7) an die Spektren aus Abbildung 4.7.  $\Delta E_M$  bezeichnet die Dicke der Mo-Schicht (PS297) bzw. der W-Schicht (PS380).

identisch angenommen, da die Variation des spezifischen Energieverlustes in dem betrachteten Energieintervall lediglich 3% beträgt und die HRTEM-Aufnahmen sowie die XRD-Aufnahmen eine hohe Gleichmäßigkeit der Schichten vermuten lassen. Die entsprechenden Fits sind in Abb. 4.7 dargestellt und reproduzieren die Daten sehr gut. Die zugehörigen Fitparameter sind in Tabelle 4.3 zusammengefasst.

Für den Straggling-Parameter  $\omega$  ergibt sich ein Wert von  $(5.3 \pm 0.5)$  keV nm<sup>-1/2</sup> (PS297) bzw.  $(6.1 \pm 0.5)$  keV nm<sup>-1/2</sup> (PS380). Der angegebene Fehler resultiert aus:

1. Der Ungenauigkeit in der Bestimmung der relativen Peak-Höhe, welche auf die Ungewissheit in der Bestimmung der Normierung des Spektrums zurückzuführen ist
2. Der Vernachlässigung der nichtstatistischen Verbreiterung
3. Der Mittelung der Probenzusammensetzung
4. Der Ungenauigkeit in der Bestimmung der Einzelschichtdicken
5. Der Vernachlässigung der Energieabhängigkeit des Straggling.

Um den Einfluss dieser Einzelbeiträge abzuschätzen, wurde zu Punkt 1 die Steigung des Spektrums in (4.8) um 2% nach oben und unten variiert. Dies ergibt einen Fehler von etwa  $0.05 \text{ keV nm}^{-1/2}$ . Zu Punkt 4 wurde die Einzelschichtdicke um etwa 10% variiert ohne die Gesamtschichtdicke zu verändern. Dies hat keine Auswirkung auf  $\omega$ . Punkt 3 lässt sich abschätzen, indem man die Energieauflösung als Funktion der Tiefe mit MDEPTH für eine gemittelte und eine Mehrfachsicht vergleicht. Dies führt zu einem Fehler der Größenordnung  $0.1 \text{ keV nm}^{-1/2}$ . Die Punkte 2 und 5 lassen sich abschätzen indem man die Energieauflösung aus Abbildung 4.8 mit einer Funktion der Form  $\sqrt{\omega^2 t + c^2}$  fittet und mit den Werten, die nach Gleichung 4.6 zu erwarten sind, vergleicht. Dieser Fehler ist mit etwa  $0.5 \text{ keV nm}^{-1/2}$  der dominierende.

Die Übereinstimmung mit den zu erwartenden Werten von  $4.6 \text{ keV nm}^{-1/2}$  (PS297) bzw.  $4.7 \text{ keV nm}^{-1/2}$  (PS380) im Falle des Yang-Stragglings ist für PS297 mit einer Abweichung von etwa 13 % erstaunlich gut. Für PS380 liegt der gemessene Wert gut 30% über dem Yang-Wert. Insgesamt liegen die gemessenen Werte etwas höher als erwartet und damit etwas näher an den Bohr-Werten als an den Yang-Werten. Eine Abweichung in der Größenordnung von 30-50% ist nicht überraschend, da die Streuung von Literaturwerten in der gleichen Größenordnung liegt. Wie vermutet ergibt das Chu-Stragglings ohne weitere Korrekturen einen zu niedrigen Wert.

Mit dem effektiven Energieverlust von  $16.9 \text{ keV/nm}$  in Mo und  $12.0 \text{ keV/nm}$  in  $\text{B}_4\text{C}$  ergibt sich aus  $\Delta E_{\text{Mo}}$  und  $\Delta E_{\text{B}_4\text{C}}$  eine mittlere Schichtdicke von  $1.8 \text{ nm}$  für  $\text{B}_4\text{C}$  und  $2.0 \text{ nm}$  für Mo. Dies ist deutlich verschieden von den Ergebnissen der XRD. Die HRBS-Schichtdicke der Doppelschicht liegt 10% unter den XRD-Werten, welche für die Dicke der Mo/ $\text{B}_4\text{C}$ -Doppelschicht praktisch exakte Werte liefert. Aus den HRTEM Aufnahmen ergibt sich mit  $4.2 \pm 0.1 \text{ nm}$  ein identischer Wert.

Eine Ungenauigkeit im spezifischen Energieverlust in dieser Größenordnung ist durchaus nicht ungewöhnlich. Die Abweichungen des spezifischen Energieverlustes von  $2 \text{ MeV C}$  in den hier untersuchten Materialien  $\text{B}_4\text{C}$ , Mo, Si und W wird ausführlich in 4.7 diskutiert. Für die Dichte der Schichten wurden Volumen-Werte eingesetzt. Bei Sputter-Abscheidung können sich um 1-2% geringere Werte ergeben [Pro02], was in der Analyse zu kleineren als den tatsächlichen Schichtdicken führt. Dieser Effekt ist im Vergleich zu den Abweichungen klein und wird daher im Folgenden vernachlässigt.

Bei der Frage, welche der beiden Schichten die größere Dicke aufweist, ergeben sich Unterschiede. Die XRD ergibt  $d_{\text{B}_4\text{C}} > d_{\text{Mo}}$ , während es sich bei der hochauflösenden RBS gerade umgekehrt verhält. Die HRTEM-Aufnahme zeigt ebenfalls eine deutlich dickere Mo-Schicht. Da Einzelschichten nahezu die gleiche Dicke aufweisen, ist die Bestimmung der Einzelschichtdicken in der XRD schwierig. Beim Vertauschen der Einzelschichtdicken ergeben sich dort ähnliche Messkurven. Es ist daher, insbesondere wegen der Eindeutigkeit der HRTEM-Aufnahmen, davon auszugehen, dass  $d_{\text{B}_4\text{C}} < d_{\text{Mo}}$  gilt.

Für PS380 erhält man mit einem effektiven Energieverlust von  $17.3 \text{ keV/nm}$  in W eine Schichtdicke von  $d_W = 1.8 \text{ nm}$  und  $d_{\text{B}_4\text{C}} = 2.0 \text{ nm}$ . Auch hier liegt die Gesamtschichtdicke 7% unter den XRD-Werten. In diesem Fall gilt sowohl für XRD als auch für die HRBS  $d_{\text{B}_4\text{C}} > d_W$ .

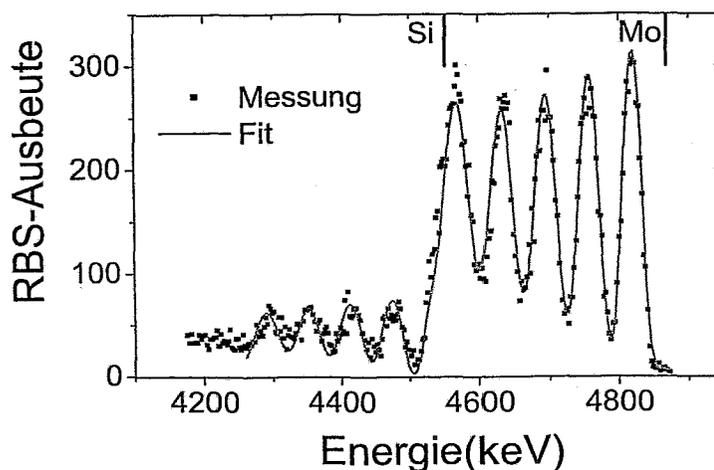
Aus der Kantenschärfe des ersten Mo-Peaks lässt sich unmittelbar die Schärfe der Grenzfläche zwischen Mo- und  $\text{B}_4\text{C}$ -Schicht abschätzen. Zieht man von der gemessenen Kantenschärfe von  $15.4 \text{ keV}$  die apparativen Beiträge ( $5 \text{ keV}$ ), den Beitrag der Isotopenverteilung des Mo ( $7.5 \text{ keV}$ ) sowie das Stragglings in der obersten  $\text{B}_4\text{C}$ -Schicht ab, so bleiben  $9.8 \text{ keV}$  übrig, die nur auf die Schärfe der Grenzfläche selbst zurückzuführen sind. Bei einem effektiven Energieverlust von  $16.9 \text{ keV}$  ergibt sich eine Dicke von  $6 \text{ \AA}$ . Dieses Resultat ist in guter Übereinstimmung

mit den Ergebnissen der XRD, welche eine rms-Rauigkeit von 3-4 Å zeigen, was einer vollen Halbwertsbreite von 7-9 Å entspricht. Für PS380 ergibt sich mit 4Å ein noch kleinerer Wert. Die XRD liefert hier die gleiche Größenordnung wie im Falle der Probe PS380. Hier ist die Grenze des Auflösungsvermögens der HRBS erreicht und der Wert sollte eher als obere Schranke angesehen werden.

Die Probe PS163 wird im Abschnitt 4.6 behandelt, da bei dieser Probe die Dicke der Übergangsschicht von der Depositionsreihenfolge abhängt und daher Gleichung 4.4 nicht benutzt werden sollte.

#### 4.5.2 Messungen mit Lithium-Ionen

Das Stragglings von Li-Ionen wurde anhand von Messungen an Mo/Si-Mehrfachschichten ermittelt. Die verwendeten Proben zeigt Tabelle 4.1. Die in diesem Abschnitt behandelten Proben wurden ausschließlich mit hochauflösender RBS charakterisiert. Die Korrektur des Ladungszustandes erfolgte mit Hilfe der Daten aus [Jia99]. Für 5 MeV  $\text{Li}^{3+}$ -Ionen beträgt diese Korrektur



**Abbildung 4.9:** Spektrum der Probe MOSI3, gemessen mit 5 MeV Li-Ionen bei einem Streuwinkel von  $35.5^\circ$  und einem Einfallswinkel von  $17.5^\circ$ . Die Lage der Si- bzw. Mo-Kante ist am oberen rand der Grafik angedeutet.

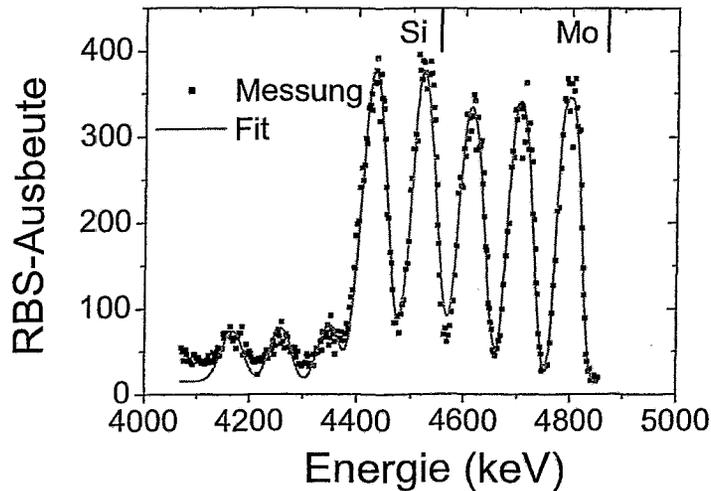
etwa 5-6% für einen Energiebereich von 4200 keV bis 4900 keV, für 3 MeV  $\text{Li}^{2+}$ -Ionen zwischen 2900 und 2500 keV sind es etwa 10%. Die Abbildungen 4.9 bis 4.11 zeigen die entsprechend korrigierten Spektren. Bei den gegebenen Messbedingungen konnten für die drei Proben alle fünf Mo-Schichten aufgelöst werden. In allen drei Fällen ergibt sich ein Überlapp des Spektrums der letzten ein bis zwei Mo-Schichten mit dem Spektrum der Si-Schichten. Alle Spektren zeigen den typischen Anstieg der Minima zwischen den einzelnen Peaks, welcher durch die Verschlechterung der Auflösung aufgrund des Stragglings bedingt ist. Zur Auswertung der Spektren wurden diese mit einer Funktion der Form (4.4) gefittet, wobei in diesem Fall wegen der zusätzlichen Si-Peaks die Summe bis zehn läuft. Die Breite der Schichten  $\Delta E_{Mo}$  und  $\Delta E_{Si}$  wurden als konstant angenommen. Dabei wurde  $\Delta E_{Mo}$  aus der Breite des ersten, am besten aufgelösten Peaks bestimmt.  $\Delta E_{Si}$  wurde gefittet. Der effektive Energieverlust variiert um weniger als 1% im betrachteten

Energiebereich und wurde daher ebenfalls als konstant angesetzt.

Die Energie eines Ions  $E_{Si}$ , welches in einer gegebenen Tiefe an einem Si-Atom gestreut wird, lässt sich nach dem Verlassen der Probe in guter Näherung in Abhängigkeit der Energie  $E_{Mo}$  eines in der gleichen Tiefe an einem Mo-Atom gestreuten Ions schreiben:

$$E_{Si} = m E_{Mo} + b. \quad (4.9)$$

Dabei sind  $m$  und  $b$  zwei Konstanten, welche von der Energie des Primärions abhängen und für die mittlere Probenzusammensetzung bestimmt wurden.



**Abbildung 4.10:** Spektrum der Probe MOSI6, gemessen mit 5 MeV Li-Ionen bei einem Streuwinkel von  $35.5^\circ$  und einem Einfallswinkel von  $17.5^\circ$ . Die Lage der Si- und Mo-Kante ist am oberen rand der Grafik angedeutet.

Das Verhältnis der Flächen unter den Si- bzw. Mo-Peaks ist dann festgelegt und beträgt

$$A_{Si,i}/A_{Mo,i} = \frac{\Delta E_{Si} [S]_{Mo} N_{Si} d\sigma/d\Omega_{Si}}{\Delta E_{Mo} [S]_{Si} N_{Mo} d\sigma/d\Omega_{Mo}}. \quad (4.10)$$

Dabei bezeichnet  $[S]$  den effektiven Energieverlust,  $N$  die atomare Dichte und  $d\sigma/d\Omega$  den Wirkungsquerschnitt für Rutherford-Streuung der Primärionen an Mo bzw. Si. Für die Breite  $w_{ij}$  der Kanten gilt

$$w_{Si,ij}^2 = w_0^2 + a^2 t_{ij}^2 \quad (4.11)$$

$$w_{Mo,ij}^2 = w_0^2 + w_{Is}^2 + w^2 t_{ij}^2. \quad (4.12)$$

Dabei berücksichtigt  $w_0$  die Breite der Grenzschicht und die Auflösung des Spektrometers. Die Isotopenverteilung von Mo wird durch  $w_{Is}$  beschrieben und liefert einen Beitrag von  $2.22 \times 10^{-3}$ . Die Tiefen  $t_{ij}$  ergeben sich aus den Dicken  $d_{Mo} = \Delta E_{Mo}/[S]_{Mo}$  und  $d_{Si} = \Delta E_{Si}/[S]_{Si}$  der Einzelschichten. Die relative Höhe der Peaks wurde auf den Anstieg des Wirkungsquerschnitts korrigiert. Ein konstanter Untergrund  $c$  im Bereich von wenigen Prozent der Mo-Peakhöhe wurde ebenfalls angenommen. Als freie Parameter wurden nur die Höhe  $A_{Mo,1}$  des ersten Peaks,

Ion	5 MeV Li	3 MeV Li	5 MeV Li
Probe	MOSI3	MOSI4	MOSI6
$A_{Mo,1}/\Delta E_{Mo}$	$166 \pm 2$	$258 \pm 4$	$166 \pm 1$
$w_0$	9 keV	7 keV	9 keV
$w_{Is}$	11.1 keV	4.4 keV	11.1 keV
$m$	0.9798	0.9721	0.9798
$b$	-217.4 keV	-107.8 keV	-217.4 keV
$[S]_{Mo}$	6.82 keV/nm	7.64 keV/nm	6.82 keV/nm
$[S]_{Si}$	2.84 keV/nm	3.29 keV/nm	2.84 keV/nm
$\Delta E_{Mo}$	30.2 keV	$18.8 \pm 0.3$ keV	50.5 keV
$\Delta E_{Si}$	$32.4 \pm 0.1$ keV	$18.5 \pm 0.3$ keV	$41.4 \pm 0.1$ keV
$\omega$	$3.8 \pm 0.4$ keV/nm <sup>1/2</sup>	$4.0 \pm 0.4$ keV/nm <sup>1/2</sup>	$3.7 \pm 0.4$ keV/nm <sup>1/2</sup>
$\Delta E_{11}$	4834 keV	2894 keV	4822 keV
$\sigma_{Mo}/\sigma_{Si}$	8.97	9.01	8.97
$N_{Mo}/N_{Si}$	1.28	1.28	1.28
$c$	7	15	15

Tabelle 4.4: Parameter für die Fitkurven in den Abbildungen 4.9 bis 4.11.

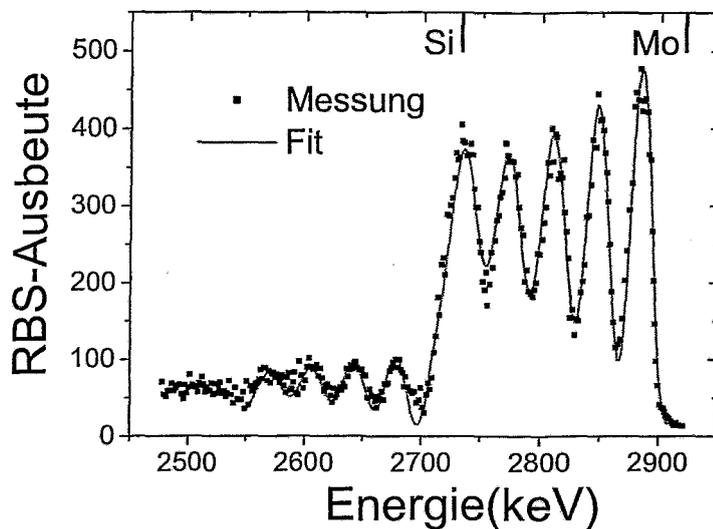
die Breite  $\Delta E_{Si}$  der Si-Schichten und der Straggling-Parameter  $\omega$  zugelassen. Die Werte aller Parameter zeigt Tabelle 4.4. Im Unterschied zu den im letzten Abschnitt vorgestellten Messungen waren für die hier verwendeten Proben keine unabhängigen Messwerte für die Schichtdicken

Target	Mo	Si	
Bohr	4.31	2.2	5 MeV
Chu	3.21	1.94	
Yang	4.49	2.52	
Bohr	4.04	2.06	3 MeV
Chu	2.78	1.67	
Yang	3.98	2.54	

Tabelle 4.5: Effektives Straggling von 3 bzw. 5 MeV Li in Mo und Si nach Bohr, Chu und Yang. Für Chu- und Bohr-Straggling wurde für  $Z_1$  eine effektive Ladung nach [Zie85] angenommen. Aufgelistet ist der Wert  $\omega$  gemäß  $\Delta E_{eff} = \omega \times \sqrt{t}$  mit  $[t]=\text{nm}$  und  $[\Delta E]=\text{keV}$  bei einem Streuwinkel von  $35.5^\circ$  und einem Einfallswinkel von  $\alpha_1 = 17.5^\circ$ . Alle Werte beziehen sich auf volle Halbwertsbreiten.

bekannt. Neben den dort diskutierten Ursachen für den Fehler in  $\omega$  ist hier die Ungenauigkeit in der Bestimmung des Energieverlustes zu berücksichtigen. Es gilt  $\Delta\omega/\omega = 1/2 \Delta[S]/[S]$  und da  $\Delta[S]/[S]$  im Bereich von 10% liegt (siehe z. B. [Zha01] für Li in C-Folien) ist der Fehler  $\Delta\omega/\omega$  hier im Bereich von 5%.

Die so erhaltenen Fits sind ebenfalls in den Abbildungen 4.9 bis 4.11 enthalten. Die Überein-



**Abbildung 4.11:** Spektrum der Probe MOSI4, gemessen mit 3 MeV Li-Ionen bei einem Streuwinkel von  $35.5^\circ$  und einem Einfallswinkel von  $17.5^\circ$ . Die Lage der Si- und Mo-Kante ist am oberen rand der Grafik angedeutet.

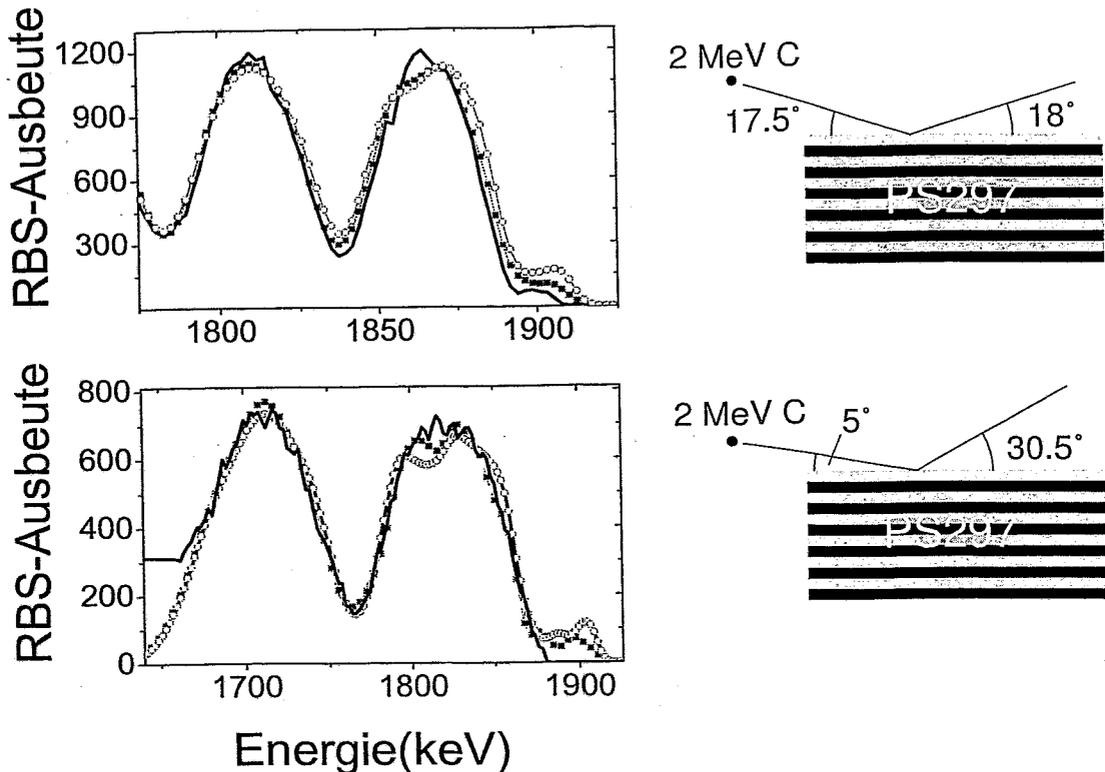
stimmung von Fits und gemessenen Daten ist sehr gut. Insbesondere der Bereich des Überlapps von Mo- und Si-Spektren wird gut beschrieben und der Verlauf der Maxima und Minima wird ausgezeichnet reproduziert. Die in Tabelle 4.1 angegebenen Werte für die Dicken der Einzelschichten resultieren aus diesem Fit. Als mittlere Zusammensetzung der Vielfachschichten ergibt sich damit  $\text{MoSi}_2$  für die Proben MOSI4 und MOSI3 und  $\text{Mo}_2\text{Si}_3$  für MOSI6. Da die Probenzusammensetzungen sehr ähnlich sind, sollte das Stragglings nach der Bragg-Regel für die drei Proben nicht sehr unterschiedlich sein. Tabelle 4.5 gibt die Bohr-, Chu- und Yang-Werte für das Stragglings in Mo und Si an. Für 5 MeV Li in MOSI3 bzw. MOSI6 folgen daraus Werte von 3.3 bzw. 3.4  $\text{keV}/\text{nm}^{1/2}$ , für 3 MeV Li in MOSI4 erhält man 3.0  $\text{keV}/\text{nm}^{1/2}$ . Wie in den Messungen beobachtet, ist das Stragglings für alle drei Proben nahezu identisch. Der gemessene Wert ist allerdings größer als der Yang-Wert. Neueren Messungen zufolge wird der effektive Energieverlust in SRIM überschätzt [Zha01], was in einen großen Wert für  $\omega$  resultiert. Wie beim C-Ion zeigt sich auch hier, dass die gemessenen Stragglings Werte etwas größer sind als nach dem Yang-Fit.

## 4.6 Auswertung der Spektren

Die bis hierher beschriebenen Ergebnisse wurden aufgrund von Fits mit analytischen Funktionen erhalten. Dies funktioniert gut im Falle regelmäßiger Mehrfachschichten. Im Falle von Proben, welche nicht die Möglichkeit bieten, aus der Abfolge gleicher, sehr homogener Mehrfachschichten direkt einen Rückschluss auf das Stragglings zu ziehen, ist das nicht die Methode der Wahl. In diesem Abschnitt wird daher die Analysesoftware WinDF für die Beschreibung der Spektren der Proben PS297 und PS163 verwendet. Das Resultat wird mit den in Abschnitt 4.5 erhaltenen Ergebnissen für PS297 verglichen.

Die WinDF-Software ermöglicht die Extraktion von Tiefenprofilen aus den gemessenen Spek-

tren. Dabei stützt sie sich auf den Simulated-Annealing-Algorithmus, welcher die Bestimmung des globalen Minimums einer beliebigen Funktion erlaubt [Bar97]. Sie erfordert die Angabe der experimentellen Parameter sowie eine Eingrenzung der in einer gegebenen Tiefe im Material vor-

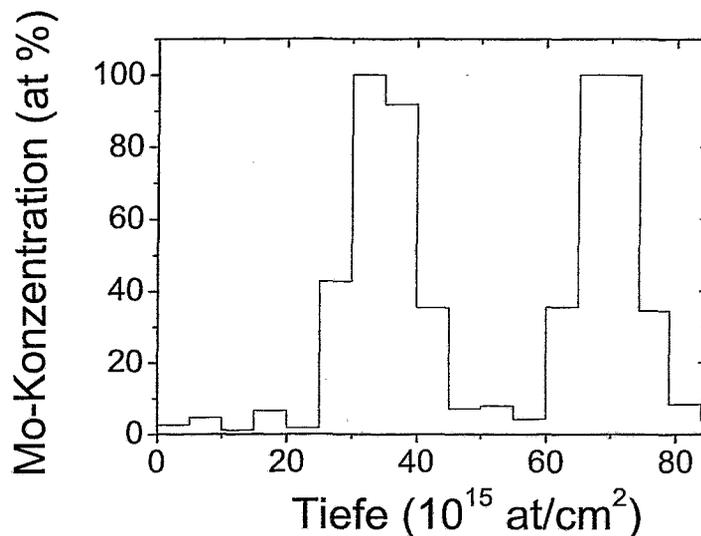


**Abbildung 4.12:** Vergleich von gemessenen HRBS-Spektren der Probe PS297 (siehe auch Abbildung 4.7) mit zwei verschiedenen WiNDF-Simulation. Durchgezogene Linie: Spektren der Probe PS297 bei zwei verschiedenen Einfallswinkeln von  $\alpha_1=5^\circ$  (unten) und  $\alpha_1=17.5^\circ$  (oben). Die Abbildung zeigt den Teil des Spektrums, welcher zu den oberen beiden Mo-Schichten gehört. Volle Quadrate: WiNDF-Fit unter Annahme von Yang-Straggling. Offene Kreise: WiNDF-Fit unter Annahme erhöhten Stragglings (siehe Text).

kommenden Elemente. Darüber hinaus kann das „cooling-Schema“, welches angibt, mit welcher Genauigkeit und in welchem Tempo die Minimierung erfolgt, über eine Eingabedatei beeinflusst werden (Option „custom-cooling“). Die hier benutzte Datei ist Anhang D zu entnehmen. Die Parameter sind angelehnt an [Jey00]. Die Energieauflösung als Funktion des Energieverlustes wurde mit Hilfe der MDEPTH-Software ermittelt. Dabei wurde Yang-Straggling angenommen. Als minimale bzw. maximale Dicke für die Schichten, aus denen WiNDF das Profil zusammensetzt, wurden  $1 \times 10^{15}$  at/cm<sup>2</sup> bzw.  $5 \times 10^{15}$  at/cm<sup>2</sup> vorgegeben. Dieser Schichtdickenbereich liegt in der Größenordnung der typischen Tiefenauflösung in der Nähe der Oberfläche.

Abbildung 4.12 zeigt zwei Spektren der Probe PS297 bei zwei verschiedenen Streuwinkeln von  $\alpha_1=5^\circ$  und  $\alpha_1=17.5^\circ$ . Im Falle des flachen Einfallswinkels erhält man eine etwas bessere

Auflösung an der ersten Grenzschicht als bei nahezu symmetrischer Streugeometrie. Zusätzlich dargestellt sind Fits, welche mit Hilfe von WINDF bestimmt wurden. Beide Spektren wurden simultan gefittet, d.h. für die ersten beiden Mo-Schichten wurde ein identisches Tiefenprofil angenommen. Für die Tiefenauflösung wurden für beide Streugeometrien je eine MDEPTH-Datei vorgegeben. Um den Einfluss des Stragglings zu untersuchen wurden zwei Fits mit unterschiedlichen Stragglings-Werten bei sonst identischen Bedingungen durchgeführt. Im ersten Fall wurde dabei Yang-Stragglings angenommen, entsprechend einem Stragglings-Parameter  $\omega = 4.6 \text{ keV nm}^{-1/2}$ . Im zweiten Fall wurde willkürlich ein größerer Wert von  $\omega = 6.1 \text{ keV nm}^{-1/2}$  angesetzt. Da  $\omega$  auch von der Geometrie abhängt, sind die Werte für das bei flachem Einfall gemessene Spektrum entsprechend mit einem konstanten Faktor zu skalieren (siehe Gleichung 4.6). Die übrigen Beiträge zur Energieauflösung in der Tiefe wurden von MDEPTH unverändert übernommen und quadratisch addiert<sup>2</sup>.

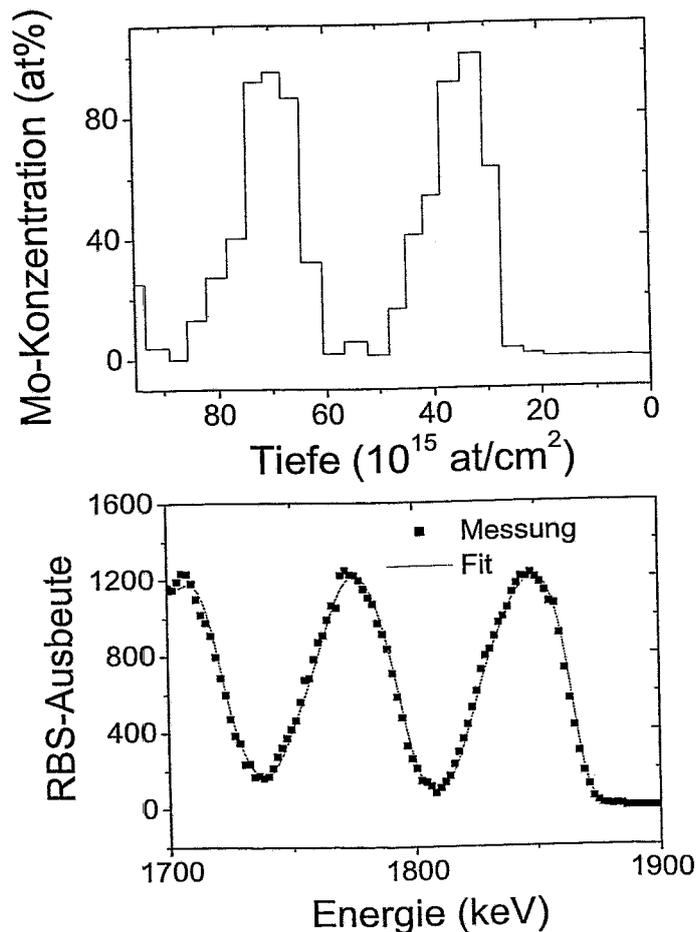


**Abbildung 4.13:** Tiefenprofil der Mo-Verteilung, welcher die Simulation des Spektrums in Abbildung 4.12 (dort: volle Quadrate) entspricht.

Insgesamt beschreibt der unter der Annahme erhöhten Stragglings erhaltene Fit beide Spektren gleichzeitig weniger zufriedenstellend. Die Übereinstimmung bei Annahme des Yang-Stragglings ist insbesondere im Falle des kleineren Einfallswinkels besser und bestätigt damit die Aussage aus Abschnitt 4.5, wonach das experimentell ermittelte Stragglings in der Probe PS297 nahe bei den Yang-Werten liegt. Abbildung 4.13 zeigt das dazugehörige Tiefenprofil. Auch hier findet man in Übereinstimmung mit den Ergebnissen des vorigen Abschnittes eine Übergangsschicht von etwa 0.5 nm.

Die TEM-Aufnahme der Probe PS163 zeigt im Gegensatz zu der TEM-Aufnahme der Probe PS297 eine deutlich sichtbare Übergangsschicht zwischen der Mo und der Si-Schicht. Die Dicke

<sup>2</sup>Dieses Verfahren ist nur unwesentlich ungenauer als das in MDEPTH angewandte Verfahren zur Faltung des nicht ganz gaußförmigen Beitrags der Vielfachstreuung mit den übrigen als gaußförmig angenommenen Beiträgen. Unterschiede liegen im Bereich unter 5%



**Abbildung 4.14:** Spektrum und Profil der Probe PS163, gemessen mit 2 MeV C-Ionen bei einem Streuwinkel von 35,5° und einem Einfallswinkel von 17,5°. Das Profil wurde aus einem WiNDF-Fit erhalten. Die Abscheidung Mo-auf-Si liefert deutlich breitere Grenzschichten als die umgekehrte Abscheidereihenfolge (siehe auch Abbildung 4.1).

dieser Übergangsschicht hängt von der Reihenfolge der Abscheidung ab und ist größer, wenn Mo auf Si abgeschieden wird. Im ersten Fall kommt es zu einer intensiveren Durchmischung der Schichten kommt. Abbildung 4.1 links zeigt das sehr deutlich (die Abscheidung erfolgte dabei von links). Das HRBS-Spektrum der gleichen Probe ist in Abbildung 4.14 zu sehen. Auch hier erfolgte keine Korrektur für den Ladungszustandsanteil. Ab der Rückkante der dritten Mo-Schicht kommt es aufgrund der schlechten Massentrennung zu einer Überlagerung der Signale von den Mo- und Si-Schichten. Es ist deutlich zu erkennen, dass die Rückkante der ersten Mo-Schicht weniger scharf als deren Vorderkante und auch weniger scharf als die Vorderkante der folgenden Mo-Schicht ist. Da dieser Effekt von der Verschlechterung der Energieauflösung mit zunehmender Tiefe überlagert wird, wurde in Analogie zu der oben beschriebenen Vorgehensweise ein WiNDF-Fit durchgeführt, dessen Ergebnis ebenfalls in Abbildung 4.14 dargestellt ist. Für die

Probe	$d_l$ (nm)	$d_s$ (nm)	$d_l$ (nm)	$d_s$ (nm)	$1-d_{P,HRBS}/d_{P,XRD}$
	HRBS		XRD		
PS163	3.7	2.4	4.1	2.74	11%
PS297	1.8	2.0	2.33	1.9	10%
PS380	2.0	1.8	2.13	1.96	7%

**Tabelle 4.6:** Vergleich der mit XRD und HRBS erhaltenen Schichtdicken der Proben PS163, PS297 und PS380. Die Größen  $d_l$  bzw.  $d_s$  bezeichnen die Dicke der leichten (Index l) bzw. der schweren (Index s) Schicht. Die Periodendicke  $d_P$  ist definiert als  $d_P = d_l + d_s$ .

Energieauflösung als Funktion der Tiefe sind dabei in diesem Fall zwei MDEPTH-Dateien nötig, da die Streuung an Si aufgrund der unterschiedlichen Kinematik ein anderes Ergebnis liefert als die Streuung an Mo. Aufgrund der vielversprechenden Ergebnisse des Abschnitts 4.5.1 wurde hier *vorausgesetzt*, dass Yang-Stragglings vorliegt.

Das resultierende Tiefenprofil zeigt eine im Vergleich zur Vorderkante deutlich breitere Rückkante sowohl der ersten als auch der zweiten Mo-Schicht. Die Übergangsschicht an der Grenzfläche Si-auf-Mo beträgt in etwa 0.5-0.7 nm, während der Übergangsbereich an der Grenzfläche Mo-auf-Si zwischen 1.2 und 1.5 nm beträgt. Dieses Ergebnis ist in ausgezeichneter Übereinstimmung mit den Beobachtungen an der HRTEM-Aufnahme.

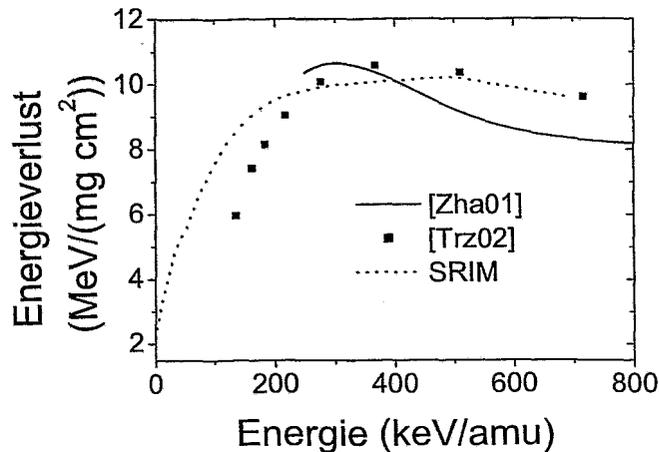
Die Bestimmung der Einzelschichtdicken wird in diesem Fall naturgemäß dadurch erschwert, dass die Grenzen nicht scharf definiert sind und die Dichte in der Übergangsschicht nicht genau bekannt ist. Eine einfache, mit der Stöchiometrie gewichtete Interpolation zwischen den atomaren Dichten von Si und Mo führt zu einem Fehler im Bereich von etwa 20% bei der Bestimmung der Dicken der Übergangsbereiche. Dabei ist die tatsächliche Dicke kleiner als die berechnete. Für die Gesamtdicke erhält man dann 6.1 nm und für die Einzelschichtdicken der Mo- bzw. Si-Schicht 2.4 nm bzw. 3.7 nm. Die Gesamtschichtdicke liegt ähnlich wie bei PS297 unter der mit XRD bestimmten, in diesem Fall um 11%. Gleiches gilt für die Einzelschichtdicken.

## 4.7 Energieverluste

Tabelle 4.6 gibt einen Überblick über die mit XRD und HRBS gemessenen Schichtdicken der Proben PS297, PS380 und PS163. Die letzte Spalte gibt die Abweichung jeweils der Periodendicke  $d_P = d_l + d_s$  an. Da die Periodendicke mit XRD praktisch exakt bestimmt werden kann, lassen sich die Abweichungen im wesentlichen auf den spezifischen Energieverlust zurückführen. Die Tatsache, dass die SRIM-Energieverluste von C-Ionen bei einer Energie von 2 MeV systematisch nach unten korrigiert werden müssen, verdient eine gesonderte Betrachtung.

Experimentelle Daten zum Energieverlust von C bei dieser Energie sind nicht für jedes Material vorhanden. Eine Übersicht und eine sehr umfangreiche Bibliographie gibt zum Beispiel Paul [Pau01] an. In den Fällen, in welchen für ein Material verschiedene Messungen existieren, streuen die Daten oftmals erheblich. Für C in Si gibt es z.B. eine Reihe von Daten, welche durch die semiempirischen Fitformeln, welche den Stopping-Power-Sammlungen MSTAR auf der einen und SRIM2000 auf der anderen Seite zugrunde liegen, sehr unterschiedlich angepasst werden. Für Mo gibt es in [Pau01] gar keine Daten. In der Nähe des Maximums ist der spezifische Energieverlust in vielen Fällen ungenau bekannt. Für C liegt das Maximum in den hier betrachteten

Targets bei oder oberhalb von 2 MeV.



**Abbildung 4.15:** Vergleich von verschiedenen neuen Messungen der Energieverlustkurve mit der SRIM-Vergleichskurve für O-Ionen in C-Folien.

Alle hier verwendeten spezifischen Energieverluste sind der SRIM-Software entnommen (siehe Abschnitt 2.1.2). Diese ist die umfassendste Sammlung von spezifischen Energieverlusten, welche zur Zeit existiert. Seit kurzem haben die Aktivitäten sowohl auf dem Gebiet der theoretischen Berechnung ([Bau02, Ari02, Gla02, Sig02, Gra02]) als auch auf dem Gebiet der Messung von Energieverlusten ([Whi02, Whi02b, Trz01, Trz02, Zha01]) zugenommen. Dabei liegt das Augenmerk insbesondere auf der Bestimmung des spezifischen Energieverlustes von schweren Ionen in beliebigen Materialien und in einem weiten Energiebereich inklusive des Bereichs um das Maximum. Die zitierten Experimente arbeiten mit Flugzeit-Methoden und speziell für jede Teilchenart kalibrierten Si-Detektoren. [Trz02] berichtet über systematische Abweichungen des Energieverlustes schwerer Ionen von den SRIM-Energieverlusten unterhalb des Maximums. Diese Ergebnisse beziehen sich auf O- und Ar-Ionen in C-, Ni- und Au-Targets. Die Abweichungen werden auf die Nichtberücksichtigung des Pulshöhen-Defizits in älteren Messungen zurückgeführt. Diese Nichtberücksichtigung führt zu einer Abweichung der Energieverluste nach oben. Da SRIM auf diesen älteren Messungen basiert, würde es demnach ebenfalls nach oben abweichende Werte liefern. Eine in Größenordnung und Richtung ähnliche Abweichung findet [Whi02] für Si-Ionen in amorphem Si. Auf der anderen Seite findet [Zha01] für den Energieverlust zahlreicher schwerer Ionen mit wenigen Ausnahmen gute Übereinstimmung mit den SRIM-Werten. Die betrachteten Energien liegen dabei größtenteils oberhalb des Maximums.

Als Beispiel ist in Abbildung 4.15 der Energieverlust von O-Ionen in C-Folien aufgetragen, der sowohl von [Zha01] als auch von [Trz02] angegeben wird. Im Bereich um das Maximum und oberhalb des Maximums liefern SRIM und [Trz02] nahezu identische Werte, während [Zha01] um etwa 15% darunter liegt. Unterhalb des Maximums liegt [Trz02] etwa 15% unterhalb von SRIM, während [Zha01] hier keine Werte liefert. Dies verdeutlicht, wie groß die Abweichungen bei verschiedenen Messungen von Energieverlusten von schweren Ionen sein können.

Da die von [Trz02] gefundenen Abweichungen unterhalb des Maximums auf systematische Ursachen zurückgeführt werden, ist es durchaus möglich, dass alle für die Auswertung der Messda-

ten in den vorhergehenden Abschnitten verwendeten Energieverluste ebenfalls systematisch nach unten korrigiert werden müssen. Dies ist konsistent mit dem in der vorliegenden Arbeit beobachteten Trend. Es ist daher ratsam, bei der Verwendung von 2 MeV C als Primärion, die erhaltenen Schichtdicken um 7-11% nach oben zu korrigieren. Eine abschließende Beurteilung der am besten zu verwendenden Energieverluste bedarf allerdings noch weiterer Messungen.

## Kapitel 5

# Ladungszustandsverteilungen von schweren Ionen nach einer Streuung an Oberflächenatomen

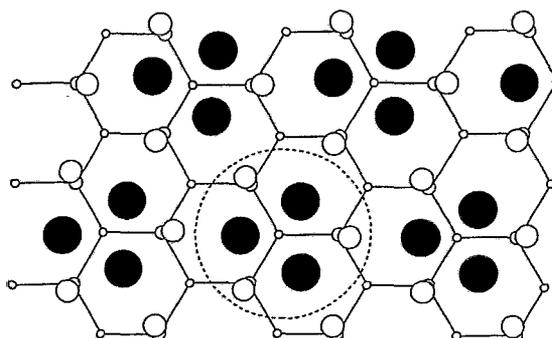
Im vorhergehenden Kapitel wurde demonstriert, unter welchen Bedingungen hochauflösende RBS-Spektren von Schichten in Tiefen unterhalb von etwa 2-4 nm ausgewertet werden können. Die Ladungszustandsverteilung der gestreuten Ionen nähert sich in diesen Tiefen dem Ladungszustandsgleichgewicht. Für diesen Fall gibt es zahlreiche experimentelle Daten, mit welchen die Spektren zufriedenstellend normiert werden können. Im Gegensatz dazu existieren deutlich weniger Untersuchungen zu Ladungszustandsverteilungen nach einem Einzelstoß von schnellen Ionen mit einem Targetatom. Theoretische Beschreibungen des Einzelstoßes sind auf Grund der großen Zahl von involvierten Elektronen, des Vielteilchencharakters dieses Prozesses und des sehr kleinen Stoßparameters in den meisten Fällen sehr aufwendig. Dieser Sachverhalt legt einen experimentellen Zugang zur Bestimmung von Einzelstoß-Ladungszustandsverteilungen nahe.

In diesem Kapitel werden Messungen von Ladungszustandsverteilungen verschiedener schwerer Ionen nach einer Streuung an einzelnen Sub-Monolagenschichten vorgestellt. Zum Vergleich der erhaltenen Verteilungen mit Gleichgewichtsverteilungen werden HRBS-Spektren von dicken Schichten herangezogen. Der Einfluss der Oberfläche auf den Ladungszustand der gestreuten Ionen wird durch Variation des Austrittswinkels bestimmt.

### 5.1 Herstellung und Charakterisierung der Targets

#### 5.1.1 Die $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ R30°-Au/Si(111)-Oberfläche

Zur Untersuchung von Ladungszustandsverteilungen nach einem Einzelstoß-Prozess wurden Sub-Monolagen von Gold-Atomen auf einem Si(111)-Substrat in-situ präpariert. Die geringe Bedeckung der Probe stellt sicher, dass nur ein einzelner nahezu zentraler Stoß zur Rückstreuung beiträgt. Über das Materialsystem Au/Si(111) existiert eine Vielzahl von Veröffentlichungen (siehe z. B. den Übersichtsartikel [Pla97]). Die oberste Lage der nicht rekonstruierten Si(111)-Oberfläche besteht aus  $7.8 \times 10^{14}$  Si-Atomen/cm<sup>2</sup> mit jeweils einer freien Bindung pro Atom. Bei Temperaturen unterhalb von etwa 850°C relaxiert diese Oberfläche in eine Struktur mit



**Abbildung 5.1:** Schematische Darstellung der Adsorption von Au auf Si(111) mit  $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Symmetrie nach dem CHCT-Modell (siehe Text). Au-Atome sind als schwarze Punkte, Si-Atome als weiße Kreise dargestellt. Die Größe der Kreise symbolisiert den Abstand zur Oberfläche. Der gestrichelte Kreis umfasst einen sechsatomigen Au-Si-Cluster.

$7 \times 7$ -Symmetrie. Diese Struktur stellt sich daher z. B. ein, wenn man die Probe zum Entfernen des natürlichen Oxids kurzzeitig auf Temperaturen von  $1250^\circ\text{C}$  hochheizt und anschließend wieder abkühlen lässt. Wird auf die relaxierte Si(111)-Oberfläche Au aufgedampft, so ändert sich die Symmetrie der Oberfläche in charakteristischer Weise. Bei Temperaturen unter  $800^\circ\text{C}$  ergibt sich das folgende Bild: Unterhalb einer Bedeckung von etwa 0.8 ML zeigt die Oberfläche eine  $5 \times 2$ -Symmetrie. Bei sehr kleinen Bedeckungen tritt diese Rekonstruktion gemeinsam mit der  $7 \times 7$ -Symmetrie der reinen Si-Oberfläche auf. Oberhalb von etwa 0.8 ML bildet sich die  $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Symmetrie aus und bleibt auch bei Bedeckungen über einer Monolage noch sichtbar. Bei Temperaturen über  $800^\circ\text{C}$  dominiert die  $1 \times 1$ -Symmetrie. Die Darstellung des Phasendiagramms ist etwas verkürzt, enthält aber die wesentlichen Merkmale. Es ist noch umstritten, ob die  $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Au/Si(111)-Oberfläche besser durch das CHCT-Modell (conjugate honeycomb-chained-trimers) oder durch das HCT-Modell (honeycomb-chained-trimers) beschrieben wird. Die Unterschiede der diskutierten Modelle liegen allerdings vorwiegend in der Frage der elektronischen Bindung von Si- und Au-Atomen. Die überwiegende Mehrheit der Veröffentlichungen favorisiert das CHCT-Modell [Ove96]. Die Frage nach dem genauen Modell der Oberflächenbindungen stellt für die vorliegende Arbeit kein Problem dar. Es kommt hier im wesentlichen auf die Lage der Au-Atome *oberhalb* der Si-Atome an, die von beiden diskutierten Modellen unterstützt wird. Abbildung 5.1 zeigt das CHCT-Modell der Au-Si(111)-Oberfläche. Da die Au-Au-Bindungen die stärkeren gegenüber den Au-Si- bzw. den Si-Si-Bindungen sind, bilden die Au-Atome Trimere, die von jeweils drei Si-Atomen umgeben sind, mit denen sie sechsatomige Cluster bilden. Der Abstand senkrecht zur Oberfläche zwischen den Au-Trimern und den Si-Atomen beträgt dabei theoretischen Berechnungen zufolge etwa  $0.4\text{-}0.5 \text{ \AA}$  [Mur01, Din92]. Die Länge der Au-Au-Bonds liegt im Bereich von  $2.7\text{-}2.8 \text{ \AA}$ . Die Oberfläche besteht demnach aus Au-Atomen, mit einer gleich stark belegten Lage aus Si-Atomen etwa  $0.5 \text{ \AA}$  darunter.

### 5.1.2 Herstellung der Schichten

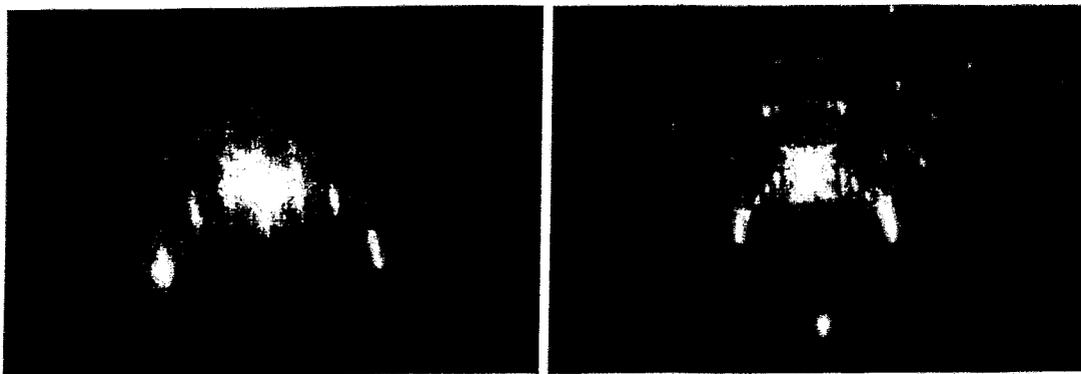
Die Reinigung und Bedampfung der Proben erfolgte in-situ in der Streukammer des Browne-Buechner-Spektrometers bei einem Basisdruck von  $4 \times 10^{-4}$  mbar. Die Si-Substrate wurden einige Stunden vor der Herstellung in die Kammer eingeschleust und etwa eine Stunde lang bei 700-800 °C mit direktem Stromdurchfluss ausgeheizt. Die Abmessung der Proben betrug etwa  $8 \times 15$  mm<sup>2</sup>. Zum Heizen wurden die Enden der Probe auf zwei im Abstand von 7 mm angebrachte Tantal-Unterlagen aufgelegt und mit Hilfe einer Mo-Feder festgeklemmt. Zwischen das Si-Substrat und die Mo-Feder wurde ein Si-Stück der Abmessung  $8 \times 1$  mm geklemmt, welches einen gleichmäßigen Stromfluss über die gesamte Breite der Probe sicherstellte. Die eigentliche Präparation der Proben erfolgte kurz vor der Messung durch mehrmaliges kurzzeitiges Hochheizen des Substrats auf Temperaturen von 1250°C. Die Temperatur der Probe wurde mit einem optischen Pyrometer bestimmt. Korrekturen auf Grund des Emissionsvermögens von Si erfolgten mit den Daten aus [All57]. Der Druck in der Kammer blieb während der Bedampfung unter  $4-5 \times 10^{-9}$  mbar. Die Rekonstruktion der Oberfläche wurde mittels RHEED bei einer Elektronenenergie von 30 keV kontrolliert. Nach der Reinigung der Probe wurde diese etwa 7-8 Minuten lang bei einer Aufdampfrate von etwa 0.1 ML/min mit Gold bedampft. Dabei war die Probe auf einer erhöhten Temperatur von  $\sim 500$ °C. Auch hier wurde darauf geachtet, dass der Druck in der Kammer  $4-5 \times 10^{-9}$  mbar nicht übersteigt. Anschließend wurde die Probe bei 700°C nochmals geheizt. Die Kontrolle der Oberflächen-Rekonstruktion erfolgte dann wiederum mit RHEED.

Zusätzlich dazu wurden Proben mit Sub-Monolagen-Bedeckungen von Sb bzw. an Ta verwendet. Die Ta-Schicht wurden auf eine Si-Probe mit einer 200 nm dicken SiO<sub>2</sub>-Schicht in-situ mit einer Bedeckung von etwa  $0.05 \times 10^{15}$  at/cm<sup>2</sup> abgeschieden. Die Sb-Proben wurden ex-situ auf sauberen rekonstruierten Si-Substraten hergestellt. Die Dicke der Sb-Schicht entspricht genau einer Monolage. Die Proben wurden, anders als die Au-Proben, nicht mit RHEED charakterisiert und nicht geheizt. Daher ist nicht auszuschließen, dass hier ein merklicher Einfluss von Nachbaratomen aufgrund von Inselbildung oder Oxidation oder Anlagerung von Atomen des Restgases zu erwarten ist. Für die Schlussfolgerungen, die aus den Ergebnissen dieser Messung gezogen werden, ist dies allerdings von untergeordneter Bedeutung (siehe Abschnitt 5.3.4). Die Proben wurden ausschließlich für die Messungen mit Cl-Ionen eingesetzt.

### 5.1.3 Charakterisierung der Proben

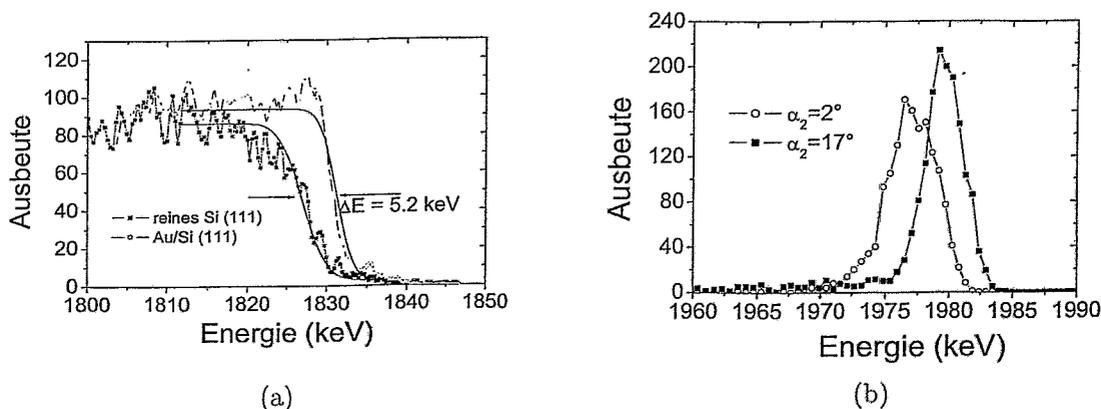
Typische RHEED-Aufnahmen der reinen Si-Oberfläche und der Au/Si-Oberfläche zeigt Abbildung 5.2. Die Aufnahmen belegen deutlich die  $7 \times 7$ -Rekonstruktion der Oberfläche und die Änderung der Rekonstruktion in eine  $\sqrt{3} \times \sqrt{3}R30^\circ$ -Rekonstruktion bei Au-Adsorption. RHEED-Bilder sind allerdings für eine quantitative Beurteilung der Oberflächenqualität nicht geeignet. Geringe Verunreinigungen der Oberfläche können mit dieser Methode nicht direkt nachgewiesen werden. Bei einem Restgasdruck von  $1 \times 10^{-9}$  mbar während der Messung dauert es allerdings einige Stunden, bevor sich eine komplette Monolage von Molekülen aus dem Restgas auf der Oberfläche anlagert [Hen94]. Um sicher zu gehen, dass die Oberfläche ausreichend sauber bleibt, wurde die Probe darüber hinaus während der Messung in regelmäßigen Abständen geheizt.

Eine zusätzliche Beurteilung der Probenqualität wurde mit HRBS durchgeführt. Abbildung 5.3(a) zeigt das HRBS-Spektrum der reinen Si-Oberfläche einerseits und der mit einer Monolage von Gold-Atomen bedeckten Oberfläche andererseits. Als Primärionen dienten dabei 2 MeV Li<sup>+</sup>-Ionen. Der Austrittswinkel betrug 2° bei einem Streuwinkel von 35.5°. Detektiert wurde Li<sup>2+</sup>.



**Abbildung 5.2:** RHEED-Aufnahmen von der  $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Au/Si(111)-Oberfläche (links) und von der  $7 \times 7$ -Si(111)-Oberfläche (rechts).

Es ist deutlich zu erkennen, dass die Si-Kante nach dem Aufdampfen der Au-Schicht zu kleineren Energien verschoben ist. Diese Verschiebung beträgt etwa 5.2 keV und entspricht damit recht genau dem Energieverlust in einer Monolage Au. Der effektive Energieverlust in Au beträgt für 2 MeV Li-Ionen in der gegebenen Streugeometrie  $6.35 \times 10^{-15} \text{ keV cm}^2$  und damit insgesamt 4.85 keV für eine Monolage. Abbildung 5.3(b) zeigt den Au-Peak bei Austrittswinkeln von  $\alpha_2 = 2^\circ$  und  $\alpha_2 = 17^\circ$ . Während die Breite des Peaks bei kleinem Austrittswinkel nur



**Abbildung 5.3:** (a) RBS-Spektren von Gold-bedecktem (volle Quadrate) und unbedecktem (offene Kreise) Si(111)-Substrat. Es sind  $\alpha_1 = 33.5^\circ$  und  $\alpha_2 = 2^\circ$ . (b) RBS Spektren von Goldatomen auf Si(111) für Austrittswinkel von  $\alpha_2 = 2^\circ$  (gestrichelt) und  $\alpha_2 = 17^\circ$  (durchgezogen).

geringfügig größer ist als bei nahezu symmetrischer Streugeometrie, ist der Peak im ersten Fall um 2.4 keV zu kleineren Energien verschoben. Die Breiten der Peaks betragen 3.6 keV bzw. 4.4 keV. Dies deutet auf einen zusätzlichen Beitrag zur Energieauflösung auf Grund von Stragling in der Größenordnung von 2-3 keV hin. Wie in Abschnitt 5.2.1 noch zu sehen sein wird, erleiden auch die an der ersten Atomlage gestreuten Ionen durch die Wechselwirkung mit den Oberflächenelektronen einen Energieverlust, der bei symmetrischer Streugeometrie minimal ist. Dieses Minimum kann man für 2 MeV Li-Ionen auf etwa 0.5 keV abschätzen (siehe Abschnitt

5.2.1). Damit entspricht die Verschiebung des Au-Peaks gegenüber dem reinen kinematischen Energieverlust 2.9 keV, was etwa der Hälfte der Verschiebung der Si-Kante entspricht. Dies ist konsistent mit der Vorstellung, dass der Energieverlust der an der obersten Atomlage gestreuten Ionen durch den Energieverlust in der Hälfte dieser obersten Lage beschrieben werden kann. Die an den unterhalb der Au-Atome liegenden Si-Atome gestreuten Ionen durchlaufen hingegen die gesamte Au-Schicht und erleiden den doppelten Energieverlust. Ähnlich verhält es sich mit dem Stragglings. Die dünnen Linien in Abbildung 5.3 zeigen eine Anpassung an die gemessenen Daten mit einer gaußschen Fehlerfunktion. Die Breite der vorderen Kante ist 3.8 keV und die des hinteren 5.6 keV. Die mit Au bedeckte Si-Kante ist deutlich breiter als der entsprechende Au-Peak. Die Verbreiterung entspricht einem Stragglings von etwa 4 keV. Auch dies lässt sich mit der Annahme erklären, dass die an der Si-Kante gestreuten Ionen, ganz grob, mit der doppelten Zahl an Au-Atomen wechselwirken. Das RBS-Spektrum lässt sich demnach zwanglos erklären, wenn man annimmt, dass die Adsorption der Au-Atome auf der Si-Oberfläche nach dem CHCT-Modell erfolgt.

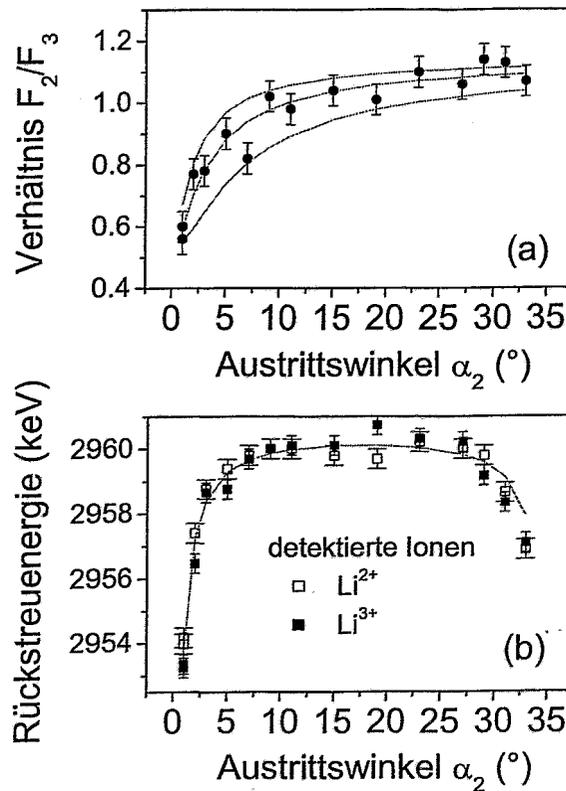
## 5.2 Einfluss der Oberfläche auf den Ladungszustand der gestreuten Ionen

Um den Einfluss der Oberfläche auf die gestreuten Teilchen zu untersuchen, wurden Li- bzw. He-Ionen an einer Monolage von Au-Atomen gestreut und abhängig von ihrem Ladungszustand detektiert. Diese Messung wurde bei einem festen Streuwinkel von  $35.5^\circ$  durchgeführt. Um den Einfluss der Oberfläche auf den Ladungszustand beurteilen zu können, wurde der Austrittswinkel der Ionen variiert.

Da im Bereich geringer Bedeckungen eine Modifizierung der Zusammensetzung der Oberfläche durch den Ionenbeschuss nicht zu vernachlässigen ist, wurde die Dosis so gering wie möglich gehalten und nach jedem Messpunkt für jeweils beide auftretenden Ladungszustände der Strahlflecke gewechselt. In Abbildung 5.4 unten ist die auf diese Weise erhaltenen Rückstreuenergie von 3 MeV  $\text{Li}^{2+}$ -Ionen gegen den Austrittswinkel der Ionen aufgetragen. Der obere Teil der Abbildung zeigt das Verhältnis  $F_2/F_3$ . Dabei bezeichnet  $F_q$  den Ladungszustandsanteil des Ions der Ladung  $q+$ . Der Energieverlust ist sowohl bei kleinen Eintrittswinkeln als auch bei kleinen Austrittswinkeln deutlich größer als bei symmetrischer Streugeometrie. Im Rahmen der Messgenauigkeit lässt sich keine signifikante Abhängigkeit vom registrierten Ladungszustand erkennen. Dies deutet darauf hin, dass die Wirkungsquerschnitt für einen Ladungswechsel so groß sind, dass die Ionen nach der Streuung viele Ladungswechselprozesse durchlaufen. Die Abhängigkeit des spezifischen Energieverlustes vom Ladungszustand macht sich dann nicht mehr in der Energie des gestreuten Ions bemerkbar.

Das Verhältnis der Ladungszustandsanteile  $2+$  und  $3+$  ist für kleine Austrittswinkel deutlich verschieden von dem für kleine Eintrittswinkel. Diese Beobachtung belegt, dass der entscheidende Parameter für den Ladungszustand nicht der gesamte zurückgelegte Weg der Ionen ist, sondern dass der Ladungszustand, welcher sich nach dem nahezu zentralen Stoß mit einem Au-Atom der Oberfläche einstellt, die dominierende Rolle spielt.

Abbildung 5.5 zeigt die entsprechenden Ergebnisse für 1.2 MeV He. Hier wurden die Messungen mit zwei verschiedenen eingeschossenen Ladungszuständen durchgeführt, sowohl mit  $\text{He}^+$  als auch mit  $\text{He}^{++}$ . Die dargestellten Energieverluste beziehen sich auf  $\text{He}^+$  als detektiertem



**Abbildung 5.4:** Rückstreueenergie und Ladungszustandsverhältnis  $F_2/F_3$  von 3 MeV  $Li^{2+}$ -Ionen nach Streuung an einer Monolage Au auf Si(111) bei einem Streuwinkel von  $35.5^\circ$ . Die durchgezogenen Linien zeigen Fits gemäß den Gleichungen (5.13) und (5.17).

Ion. Im Rahmen der Messgenauigkeit lässt sich weder eine Abhängigkeit der Ladungszustandsverteilung noch des Energieverlustes vom Ladungszustand des eingeschossenen Ions erkennen. Die in Abbildung 5.5 und 5.4 gezeigten Daten werden im Folgenden mit Hilfe eines einfachen Modells beschrieben.

### 5.2.1 Modell zur Beschreibung der Daten

Prinzipiell kann der Weg des gestreuten Ions in drei Phasen aufgeteilt werden: (i) den Weg entlang der Oberfläche bis zum Au-Atom, (ii) den Rückstoß am Au-Atom und (iii) den Weg entlang der Oberfläche weg vom Au-Atom. In allen drei Phasen kann der Ladungszustand des Ions durch den Einfang oder Verlust eines Elektrons verändert werden. Während dies in den Phasen (i) und (iii) in einer Reihe von Stößen mit großem Stoßparameter zur Oberfläche geschieht, erfolgt der Rückstoß (ii) praktisch bei einem Stoßparameter von Null. Dieser Rückstoß wird im folgenden auch als Einzelstoß bezeichnet.

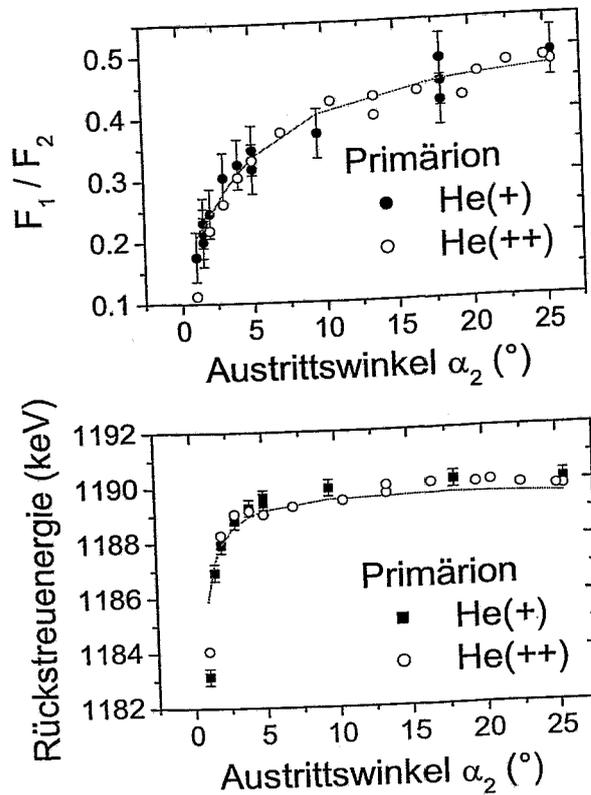


Abbildung 5.5: Rückstreueenergie und Ladungszustandsverhältnis  $F_2/F_3$  von 1.2 MeV  $\text{He}^+$ -Ionen nach Streuung an einer Monolage Au auf Si(111) bei einem Streuwinkel von  $35.5^\circ$ . Detektiert wurde  $\text{He}^+$ . Die durchgezogenen Linien zeigen Fits gemäß den Gleichungen (5.13) und (5.17).

### Energieverlust an Oberflächen

Die spezifische Energieverlust, den ein Ion im Festkörper erleidet, fällt an der Oberfläche des Festkörpers naturgemäß nicht abrupt, sondern graduell innerhalb eines bestimmten Abstandes von der Oberfläche auf Null ab. Die Größenordnung dieses Abstandes entspricht der effektiven Reichweite jener Wechselwirkungen, welche die Abbremsung bewirken. Im Energiebereich der Bethe-Bloch-Formel geschieht die Abbremsung schneller Ionen in Materie hauptsächlich über inelastische Stöße der Ionen mit Targetelektronen. In diesem Fall kann die Reichweite der Wechselwirkung über den von Bohr definierten adiabatischen Radius  $a_{ad}$  abgeschätzt werden [Boh48]. Dieser ist definiert durch

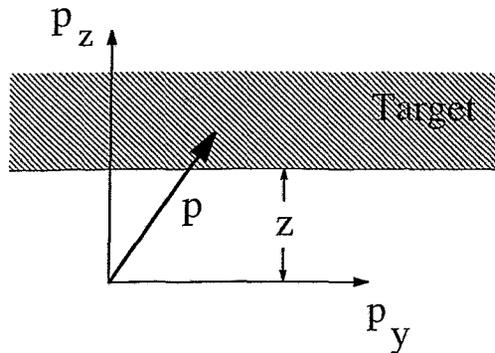
$$a_{ad} = v/\omega_e. \quad (5.1)$$

Dabei ist  $v$  die Geschwindigkeit des Ions und  $\omega_e$  die klassische Oszillationsfrequenz eines Elektrons im Targetatom. Gleichung (5.1) besagt, dass die Wechselwirkung zwischen dem Ion und einem Targetatom eine umso größere Reichweite hat je schneller sich das Ion bewegt und je schwächer das Targetelektron gebunden ist [Sig97b]. Nimmt man z. B. eine typische Geschwindigkeit von  $v = 4$  a.u. und ein schwach gebundenes Elektron mit  $\omega_e = 1/2$  a.u. an, so beträgt

die Reichweite  $a_{ad} = 2 \text{ a.u.} \sim 1 \text{ \AA}$ . Betrachtet man ein Ion, welches sich im Abstand  $z$  von der Oberfläche bewegt, so kann man die Abbremsung diese Ions als

$$-\frac{dE}{dx} \Big|_{Ob} = N \int_z^\infty dp_z \int_{-\infty}^\infty dp_y \bar{T}(\mathbf{p}) \quad (5.2)$$

schreiben [Sig97b]. Dabei ist  $\bar{T}(\mathbf{p})$  der mittlere Energieübertrag auf die Elektronen eines Targetatoms bei einem Stoßparameter  $\mathbf{p} = (p_y, p_z)$  und  $N$  ist die atomare Dichte des Targets. Die



**Abbildung 5.6:** Definition der Geometrie für Gleichung (5.2). Die Bewegung des Ions erfolgt parallel zur Targetoberfläche und senkrecht zur Papierebene. Der Halbraum  $p_z > z$  ist homogen mit Materie ausgefüllt.

Geometrie ist in Abbildung 5.6 veranschaulicht. Falls der mittlere Energieübertrag nur vom Betrag des Stoßparameters  $|\mathbf{p}| = p$  abhängt ergibt sich

$$-\frac{dE}{dx} \Big|_{Ob} = 2N \int_z^\infty dp_z \int_{p_z}^\infty dp \frac{\bar{T}(p) p}{\sqrt{p^2 - p_z^2}} \quad (5.3)$$

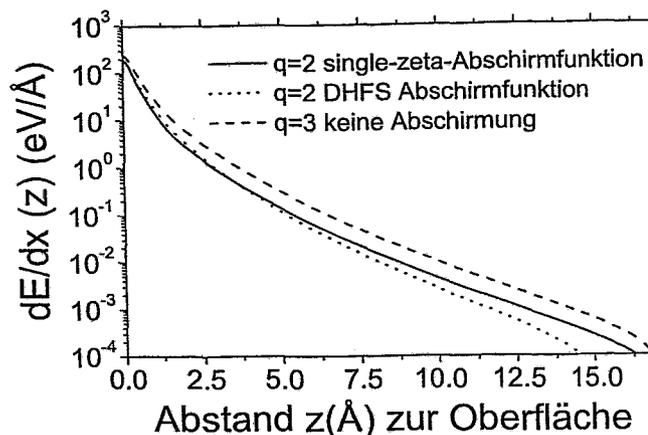
Gleichung (5.2) gilt für amorphe homogene Targets. Im Falle einer einzelnen Atomlage ist die obere Integrationsgrenze durch  $z + \delta z$  zu ersetzen, wobei  $\delta z$  die Dicke der Atomlage bezeichnet. Dann folgt

$$-\frac{dE}{dx} \Big|_{Al} = 2n \int_z^\infty dp \frac{\bar{T}(p) p}{\sqrt{p^2 - p_z^2}} \quad (5.4)$$

wobei  $n = \delta z N$  die Flächenbelegung der Atomlage bezeichnet. Zum Vergleich mit den gemessenen Energieverlusten von Li- und He-Ionen an Goldatomen wurden die Integrale in Gleichung (5.4) ausgeführt. Die verwendeten Werte für den mittleren Energieübertrag wurden dem Computer-Code CASP entnommen [Gra98, GSc99, Aze00]. Dieser berechnet für jede Schale des Targets den mittleren Energieverlust als Funktion des Stoßparameters. Die Beschreibung des Targets erfolgt dabei über die elektronische Dichteverteilung der einzelnen Schalen einerseits und die Eingabe von Übergangsenergien mit den entsprechenden Oszillatorstärken andererseits.

Im einfachsten Fall lassen sich die Übergangsenergien durch die Bindungsenergien der einzelnen Schalen abschätzen. Die Oszillatorstärken werden dann so gewählt, dass sie mit dem mittleren Anregungspotential  $I_{Bethe}$  aus der Bethe-Bloch-Formel konsistent sind. Dieses Verfahren liefert zwar keine sehr genaue Stoßparameterabhängigkeit. Wird jedoch über alle Stoßparameter integriert, so liegt die Übereinstimmung im Bereich von 10-15% [Gra98]. Für Gold wurde in der vorliegenden Arbeit ein Wert von  $I_{Bethe} = 735$  eV angenommen [Bak51].

Die Beschreibung des Projektils erfolgt über die Angabe des Projektilpotentials. Dabei werden verschiedene Abschirmfunktionen angeboten [Aze00]. Auf diese Weise lassen sich auch Projektilen beschreiben, welche Elektronen mit sich führen. Energieverlust aufgrund einer Projektilanregung wird nicht berücksichtigt, das gleiche gilt für Energieverlust aufgrund von Ladungsaustausch. Für leichte Projektilen in schweren Targets stellt dies allerdings keine besondere Einschränkung dar, da der Beitrag von Projektilanregungen zum Energieverlust in diesem Fall aufgrund der im Vergleich zum Target viel kleineren Zahl an Elektronen nicht ins Gewicht fällt [Sig97].



**Abbildung 5.7:** Energieverlust von 3 MeV Li-Ionen im Abstand  $z$  von einer Au-Ebene der Bedeckung  $0.78 \times 10^{15}$  at/cm<sup>2</sup>. Für  $q=2$  wurden als Abschirmfunktion die single-zeta-Funktion bzw. die DHFS-Funktion verwendet (siehe Text).

Abbildung 5.7 zeigt den Energieverlust nach (5.4) für 3 MeV Li-Ionen in verschiedenen festen Ladungszuständen  $q$ , welche sich im Abstand  $z$  von einer Au-Atomlage der Bedeckung  $0.78 \times 10^{15}$  at/cm<sup>2</sup> bewegen. Im Falle des Ladungszustandes  $q = 2$  wird das mitgeführte Elektron einmal durch eine single-zeta-Abschirmfunktion und einmal mit Hilfe der analytischen Dirac-Hartree-Fock-Slater-Abschirmfunktion nach [Sal87] beschrieben. Die Wahl der Abschirmfunktion wirkt sich wie zu erwarten kaum auf den Verlauf des spezifischen Energieverlustes aus. Der auf diese Weise erhaltene spezifische Energieverlust sollte mit dem entsprechenden SRIM-Wert konsistent sein. Der SRIM-Wert entspricht dem über die Ladungszustandsverteilung gemittelten Energieverlust im Volumen. Der spezifische Energieverlust im Volumen folgt aus dem stoßparameterabhängigen Energieübertrag durch Integration über alle Stoßparameter gemäß

$$\left. \frac{dE}{dx} \right|_{Vol} = 2\pi N \int_0^\infty \bar{T}(p) p dp. \quad (5.5)$$

Für 3 MeV Li ergibt sich für den ladungsabhängigen spezifischen Energieverlust  $S_2=2.13 \times 10^{-13} \text{ eV cm}^2=1.26 \text{ keV/nm}$  bzw.  $S_2 = 2.22 \times 10^{-13} \text{ eV cm}^2=1.31 \text{ keV/nm}$  für  $q=2$  mit single-zeta- bzw. DHFS-Abschirmfunktion und  $S_3 = 3.25 \times 10^{-13} \text{ eV cm}^2=1.92 \text{ keV/nm}$  für  $q=3$ . SRIM liefert für den über die Ladungszustände gemittelten spezifischen Energieverlust  $S = F_2 S_2 + F_3 S_3$  einen Wert von  $S = 2.17 \times 10^{-13} \text{ eV cm}^2=1.29 \text{ keV/nm}$ . Um die Konsistenz mit den SRIM-Daten zu erzwingen, ist es sinnvoll, die Bremsquerschnitte  $S_2$  und  $S_3$  unter Beibehaltung des Verhältnisses  $S_2/S_3$  entsprechend so zu skalieren, dass sich für  $S$  der SRIM-Wert ergibt. Alle verwendeten Werte sind in Tabelle 5.1 für 3 MeV Li-Ionen zusammengefasst.

$q(e)$	$S_q$ ( $10^{-13} \text{ eV cm}^2$ )		$S_q$ (skaliert) ( $10^{-13} \text{ eV cm}^2$ )	
	Au	Si	Au	Si
2	2.20	0.64	1.66	0.73
3	3.25	1.02	2.45	1.16

**Tabelle 5.1:** Ladungsabhängiger Bremsquerschnitt für 3 MeV Li-Ionen des Ladungszustands  $q$ . Der zur Skalierung verwendete mittlere Ladungszustand ist  $\bar{q} = 2.406$  [Sch01], der Bremsquerschnitt nach SRIM beträgt  $2.17 \times 10^{-13} \text{ eV cm}^2$  in Au und  $1.01 \times 10^{-13} \text{ eV cm}^2$  in Si.

$q(e)$	$S_q$ ( $10^{-13} \text{ eV cm}^2$ )		$S_q$ (skaliert) ( $10^{-13} \text{ eV cm}^2$ )	
	Au	Si	Au	Si
1	1.07	0.57	0.83	0.64
2	1.8	0.32	1.40	0.36

**Tabelle 5.2:** Ladungsabhängiger Bremsquerschnitt für 1.2 MeV Li-Ionen des Ladungszustands  $q$ . Der zur Skalierung verwendete mittlere Ladungszustand ist  $\bar{q} = 1.706$  [Sch01], der Bremsquerschnitt nach SRIM beträgt  $1.23 \times 10^{-13} \text{ eV cm}^2$  in Au und  $0.50 \times 10^{-13} \text{ eV cm}^2$  in Si.

Der Energieverlust skaliert nicht mit dem Quadrat des Ladungszustandes. Das Verhältnis der Energieverluste der Ladungszustände  $q = 2$  und  $q = 3$  liegt vielmehr bei etwa  $2/3$ . Ein ähnliches Verhalten findet Sigmund in [Sig97] für Ionen mit Geschwindigkeiten im Bethe-Bloch-Bereich. Dabei ist der Verlauf des Energieverlustes als Funktion des Ladungszustandes umso flacher je kleiner das Verhältnis  $Z_1/Z_2$  ist.

Der Energieverlust des Ions lässt sich bei Kenntnis des Oberflächenenergieverlustes gemäß Gleichung (5.2) und bei Kenntnis der Iontrajektorie und des momentanen Ladungszustands bestimmen. Bezeichnet man die Trajektorie mit  $z(t)$ , wobei  $t$  der Kurvenparameter ist und geht man zunächst von einem festen Ladungszustand aus, dann lässt sich der Energieverlust schreiben als

$$\Delta E = \int \frac{dE}{dx}(z(u)) dx, \quad dx = \sqrt{\left(\frac{dz}{du}\right)^2 + \left(\frac{dy}{du}\right)^2} du. \quad (5.6)$$

Dabei sind  $z$  und  $y$  die Komponenten senkrecht und parallel zur Oberfläche (siehe Abbildung 5.6) und  $u$  ein Kurvenparameter. Es wird angenommen, dass die Trajektorie in einer Ebene verläuft. Da die Streuung bei einem Streuwinkel von  $35.5^\circ$  erfolgt, ist anzunehmen, dass der Punkt der größten Annäherung nahe Null ist. Bei kleinen Ein- bzw. Austrittswinkeln ist der

Einfluss benachbarter Atome auf die Bahn des Ions nicht zu vernachlässigen. Solange die Ionen nicht entlang einer niedrig indizierten Achse einfallen, lässt sich das Potential  $U$  der Au-Monolage als planares Potential schreiben [Fel82]:

$$U(z) = 2\pi Z_1 Z_2 a_{scr} N d_{Al} \left( \sqrt{(z/a_{scr})^2 + C^2} - z/a \right). \quad (5.7)$$

Dabei ist  $a_{scr}$  der Lindhard-Abschirmradius,  $C^2 = 3$  und  $N d_{Al}$  die Flächendichte der Monolage. Dieses Potential bewirkt eine Kraft, die senkrecht zur Oberfläche wirkt und das Ion von dieser wegbewegt. Durch die Bildladung des Ions hervorgerufene Kräfte, welche in der gleichen Richtung wirken, sind für schnelle Ionen nicht zu hoher Ladung zu vernachlässigen [Sig97]. Die Geschwindigkeit  $v$  kann in eine Komponente  $v_{\perp}$  senkrecht und eine Komponente  $v_{\parallel}$  parallel zur Ebene zerlegt werden. Das Potential (5.7) wirkt sich nur auf die Komponente  $v_{\perp}$  aus. Die Wechselwirkung mit diesem Potential hat zur Folge, dass prinzipiell nicht beliebig kleine Aus- bzw. Eintrittswinkel möglich sind. Eine Abschätzung für den Grenzwinkel liefert der kritische Winkel für planares Channeling. Dieser ist durch [Fel82]

$$\Psi_{crit} = \sqrt{\frac{2\pi Z_1 Z_2 a_{scr} N d_{Al}}{E}} \quad (5.8)$$

gegeben. Für die Energie  $E$  ist hier vor dem Stoß die Energie des Primärions einzusetzen und nach dem Stoß die um den kinematischen Faktor reduzierte Energie. Der Unterschied im kritischen Winkel ist im vorliegenden Fall zu vernachlässigen, da der kinematische Faktor nahe 1 liegt. Gemessene kritische Winkel liegen typischerweise um einen Faktor 2 bis 4 unter den durch (5.8) gegebenen Werten [Fel82]. Für 3 MeV Li-Ionen bzw. 1.2 MeV He-Ionen bei Streuung an einer Monolage aus Au ergeben sich aus Gleichung (5.8) Winkel von  $0.42^\circ$  bzw.  $0.55^\circ$ . Auch oberhalb dieser Winkel ist eine Auswirkung der Atomlage auf die Trajektorie des Ions möglich. Sie lässt sich abschätzen, indem man den Winkel  $\alpha_i$  der Trajektorie zur Ebene unmittelbar nach dem Stoß mit dem Winkel  $\alpha_{\infty}$  der Trajektorie im Unendlichen vergleicht. Bezeichnet man die Geschwindigkeitskomponente des Ions in  $z$ -Richtung unmittelbar nach dem Stoß bzw. nach Verlassen des Wechselwirkungsbereiches mit  $v_i$  bzw.  $v_{\infty}$  dann folgt aus der Energieerhaltung

$$v_{\infty} = \sqrt{v_i^2 + 2U(0)/m_1}. \quad (5.9)$$

Es gilt dann

$$\tan \alpha_{\infty} = \sqrt{(v \sin \alpha_i)^2 + 2U(0)/m_1} / v \cos \alpha_i. \quad (5.10)$$

Bei einem Winkel  $\alpha_i = 1^\circ$  ergibt sich z.B. ein Wert von  $\alpha_{\infty} = 1.14^\circ$  für 3 MeV Li-Ionen bzw.  $\alpha_{\infty} = 1.23^\circ$  für 1.2 MeV He-Ionen. Aus diesem Grund sind besonders bei kleinen Austrittswinkeln Abweichungen von einer einfachen geraden Trajektorie zu erwarten. Dies wirkt sich geringfügig auf den Energieverlust aus.

Die Trajektorien werden als hyperbelförmig angenommen, der Punkt der größten Annäherung lässt sich mit Gleichung (5.7) nicht berechnen, da dieses Potential nicht stark genug ist um eine Streuung um  $35.5^\circ$  zu bewirken. Daher wird stattdessen auf Gleichung (2.14) mit der Bedingung  $h(r) = 0$  zurückgegriffen. Abbildung 5.8 zeigt den auf diese Weise erhaltenen Energieverlust von 3 MeV  $\text{Li}^{3+}$ -Ionen nach Streuung an einer Monolage aus Au-Atomen. Dabei wurde der kinematische Energieverlust durch den Streuprozess selbst nicht berücksichtigt und es wurde

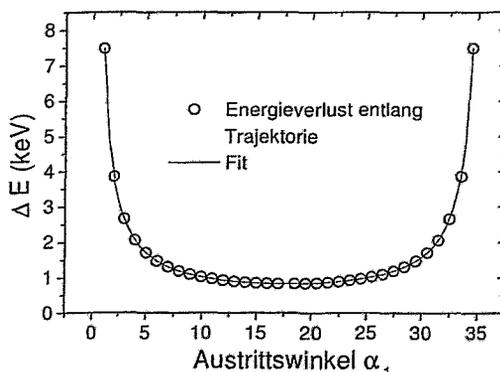
ein Streuwinkel von  $35.5^\circ$  angenommen. Die dünne Linie zeigt einen Fit an diese Kurve gemäß der Gleichung

$$\Delta E = d \left. \frac{dE}{dx} \right|_{eff} (1/\sin \alpha_1 + 1/\sin \alpha_2), \quad (5.11)$$

mit  $d \left. \frac{dE}{dx} \right|_{eff} = 0.1268 \text{ keV}$ . Dieser Gleichung liegt die Annahme zugrunde, dass man den Energieverlust durch eine Schicht der Dicke  $d$  mit einem effektiven Energieverlust  $\left. \frac{dE}{dx} \right|_{eff}$  beschreiben kann. Nimmt man für diesen effektiven Energieverlust den Energieverlust im Volumen an, so erhält man für die Dicke  $Nd = 0.39 \times 10^{15} \text{ at/cm}^2$ , was genau der halben Bedeckung entspricht. Dieses Resultat lässt sich auf einfache Weise deuten. Da der Punkt der größten Annäherung für MeV-Ionen praktisch Null und der Oberflächenenergieverlust für sehr kleine Abstände nicht sehr stark variiert (siehe Abbildung 5.7), kann die Trajektorie der Ionen in sehr guter Näherung durch zwei gerade Teilstücke beschrieben werden. In diesem Fall folgt aus Gleichung (5.6) und (5.4) sowie (5.5) gerade

$$\Delta E = d \left. \frac{dE}{dx} \right|_{vol}, \quad (5.12)$$

mit  $d = 1/2 \times \delta z$ . Mit anderen Worten ist die Abbremsung von Ionen, welche an einer einzelnen



**Abbildung 5.8:** Energieverlust von 3 MeV  $\text{Li}^{3+}$ -Ionen nach Streuung an einer Monolage aus Au-Atomen bei einem Streuwinkel von  $35.5^\circ$ . Der kinematische Energieverlust durch die Streuung selbst ist dabei nicht berücksichtigt.

Atomlage gestreuten Ionen werden, äquivalent zu der Abbremsung bei Transmission durch eine halbe Atomlage der gleichen Atomsorte, wobei für den Energieverlust dieser halben Monolage der Energieverlust im Volumen einzusetzen ist. Diese Überlegung gilt nur, solange spezifische Oberflächeneffekte wie Oberflächenplasmonen als Ursache für den Energieverlust zu vernachlässigen sind.

Der Einfluss des Si-Substrates auf den Energieverlust der gestreuten Ionen ist sehr viel geringer, da auf der einen Seite der spezifische Energieverlust selber geringer ist und auf der anderen Seite die Si-Atome unterhalb der Goldatome liegen. Da allerdings nach (5.1) die Reichweite besonders für niedrige Anregungen der Targetatome groß ist, müssen auch diese für den Energieverlust berücksichtigt werden. Abbildung 5.9 zeigt den spezifischen Energieverlust von 3 MeV

Li-Ionen im Abstand  $z$  zu einer einzelnen Si(111)-Ebene. Bereits im Abstand von etwa  $0.5 \text{ \AA}$  ist der Energieverlust gegenüber  $z=0 \text{ \AA}$  auf etwa 30 % abgefallen. Da der Abfall hier sehr steil ist, hängt der erlittene Energieverlust stark von der genauen Lage der Si-Atome relativ zu den Au-Atomen ab, die praktisch den Umkehrpunkt der Trajektorie der Li-Ionen darstellen. Da dieser nur mit einer Genauigkeit von  $\sim 0.1 - 0.2 \text{ \AA}$  bekannt ist [Mur01], wird hier der Einfachheit halber angenommen, dass die Gold- und Silizium-Atome auf gleicher Höhe liegen. Die weiteren Si-Atomlagen sind etwa  $3 \text{ \AA}$  tiefer im Volumen und können daher mit einem Blick auf Abbildung 5.9 vernachlässigt werden. Die spezifischen Energieverluste von  $\text{Li}^{2+}$  und  $\text{Li}^{3+}$  in Si sind ebenfalls in Tabelle 5.1 aufgelistet.

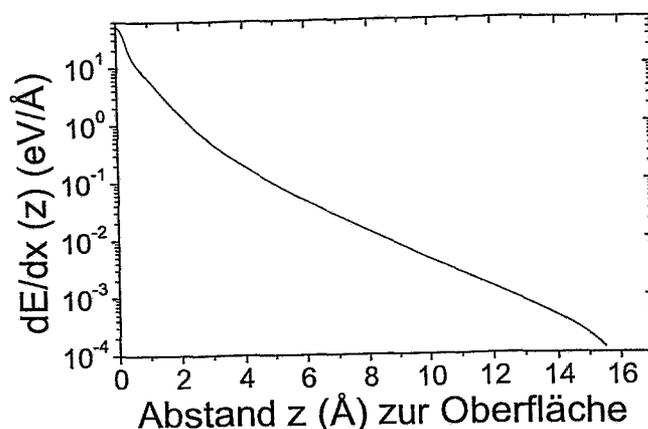


Abbildung 5.9: Spezifischer Energieverlust von 3 MeV  $\text{Li}^{2+}$  im Abstand  $z$  an einer Monolage Si der Bedeckung  $0.78 \times 10^{15} \text{ at/cm}^2$ .

### Ladungszustand

Der einfache Zusammenhang zwischen Volumen- und Oberflächen-Energieverlusten lässt sich nicht auf den Austausch von Elektronen verallgemeinern. Der Wirkungsquerschnitt für Elektronen-Einfang bzw. Elektronen-Verlust lässt sich zwar analog zu Gleichung (5.3) definieren mit der Ersetzung  $T(p) \rightarrow P(p)$ , wobei  $P(p)$  die stoßparameterabhängige Wahrscheinlichkeit für Elektronen-Einfang bzw. Elektronen-Verlust angibt (siehe auch Abschnitt 2.3). Da diese Wirkungsquerschnitte jedoch über eine Differentialgleichung eingehen (siehe Abschnitt 2.3.1), kann man in diesem Fall nicht auf die gleiche einfache Weise den Effekt der obersten Atomlage beschreiben. Die im folgenden betrachteten Wirkungsquerschnitte für Elektronen-Einfang bzw. -Verlust sind daher als Oberflächen-Wirkungsquerschnitte zu verstehen. Dabei wird nicht näher darauf eingegangen, wie sich diese zu den Volumen-Wirkungsquerschnitten verhalten. Da die Elektronendichte an der Grenzfläche zum Vakuum sehr steil abfällt, ist zumindest die gleiche Größenordnung der Oberflächen- und Volumenwirkungsquerschnitte zu erwarten.

Für die Beschreibung des Energieverlustes und der Ladungszustände werden folgende Annahmen gemacht:

- Der Energieverlust wird durch den Ausdruck 5.12 beschrieben, wobei die oberste Atomlage aus einer Monolage Au und Si jeweils der Bedeckung  $d = 0.78 \times 10^{15} \text{ at/cm}^2$  besteht.

- Der Ladungszustand des gestreuten Ions hängt nicht vom Ladungszustand des Ions direkt vor der Streuung ab.
- Auf dem Weg entlang der Oberfläche sind die Wirkungsquerschnitte für Elektroneneinfang und Elektronen-Verlust vor und nach dem Stoß gleich, eine explizite Stoßparameterabhängigkeit wird nicht berücksichtigt.
- Es wird angenommen, dass die Wirkungsquerschnitte für Ladungswechsel nicht vom Anregungszustand des Ions abhängen, sondern lediglich von seinem Ladungszustand und ausreichend groß ist, um eine große Zahl von Ladungswechselprozessen zu bewirken.

In dem Fall, dass nur zwei Ladungszustände  $q_1$  und  $q_2$  in Betracht gezogen werden müssen, ergibt sich für den gesamten Energieverlust entlang des einlaufenden und des auslaufenden Pfades

$$\Delta E = E_0 - \frac{1}{\sin \alpha_1} \left( \frac{dE}{dx} \Big|_1 x_{e1} + \frac{dE}{dx} \Big|_2 x_{e2} \right) + \frac{1}{\sin \alpha_2} \left( \frac{dE}{dx} \Big|_1 x_{a1} + \frac{dE}{dx} \Big|_2 x_{a2} \right). \quad (5.13)$$

Dabei ist  $\frac{dE}{dx} \Big|_i$  der spezifische Energieverlust im Ladungszustand  $q_i$  und  $x_{ei}$  bzw.  $x_{ai}$  die Länge der Trajektorie, auf welcher sich das Projektil vor bzw. nach dem Stoß im Ladungszustand  $q_i$  befindet. Es gilt

$$\begin{aligned} x_{ei} &= \int_0^x F_{ei}(x') dx' \\ x_{ai} &= \int_0^x F_{ai}(x') dx', \end{aligned} \quad (5.14)$$

wobei  $F_{ei}$  und  $F_{ai}$  die Ladungszustandsanteile des Ladungszustands  $q_i$  vor bzw. nach dem Stoß bezeichnen. Letztere entwickeln sich jeweils entsprechend den Ratengleichungen aus Abschnitt 2.3.1 mit Wirkungsquerschnitten  $\sigma_{21}$  und  $\sigma_{12}$ . Kennt man das Verhältnis  $f = \bar{F}_1/\bar{F}_2$  der Ladungszustandsanteile im Gleichgewicht  $\bar{F}_i$ , so gilt  $\sigma \equiv \sigma_{21} = f \sigma_{12}$ . Bezeichnet man mit  $g = F_{1,E}/F_{2,E}$  das Verhältnis der Ladungszustandsanteile nach dem Einzelstoß  $F_{i,E}$ , so erhält man schließlich

$$\begin{aligned} x_{e1} &= \frac{Bf + 1 - \mathcal{E}}{B(1+f)} x \\ x_{a1} &= \frac{Bf + (1 - \mathcal{E})\mathcal{D}}{B(1+f)} x \\ x_{e2} &= x - x_{e1} \\ x_{a2} &= x - x_{a1}, \end{aligned} \quad (5.15)$$

mit den Abkürzungen

$$\begin{aligned} B &= \sigma x(1+f) \\ \mathcal{E} &= \exp(-B) \\ \mathcal{D} &= (g-f)/(1+g). \end{aligned} \quad (5.16)$$

Für den Ladungszustand ergibt sich

$$\begin{aligned} \frac{F_1}{F_2} &= \frac{\mathcal{E}'(g-f) + f(1+g)}{-\mathcal{E}'(g-f) + 1+g}, \\ \mathcal{E}' &= \exp(-B/\sin \alpha_2). \end{aligned} \quad (5.17)$$

Abbildung 5.4 zeigt einen simultanen Fit der Gleichungen (5.13) und (5.17) an den gemessenen Energieverlust und Ladungszustand. Als variable Parameter wurden dabei  $g$ ,  $\sigma$  und – wegen der Ungenauigkeit in der Bestimmung der Energie (siehe Abschnitt 3.2.6) – auch  $E_0$  zugelassen. Für  $f = 0.55$  wurde der Wert für den kleinsten Austrittswinkel angenommen. Für die Bedeckung wurde der gemessene Wert  $0.8 \times 10^{15} \text{at/cm}^2$  eingesetzt.

### 5.2.2 Diskussion

**3 MeV Li-Ionen:** Für das Verhältnis der Ladungszustände nach dem Einzelstoß  $g = F_{1,E}/F_{2,E}$  ergibt sich aus dem Fit mit  $g = 1.15$  ein gegenüber den bei kleinen Einfallswinkeln gemessenen Werten etwas erhöhter Wert. Dies entspricht der Korrektur, die aufgrund der nicht ganz zu vermeidenden Wechselwirkung des Ions mit der Oberfläche auf dem ausgehenden Weg zu machen ist. Für den Wirkungsquerschnitt für Elektronen-Verlust ergibt sich ein Wert von 68 Mb. Dieser ist allerdings mit einem großen Fehler behaftet. Ursache hierfür ist zum einen an der Streuung der Datenpunkte und zum anderen die Tatsache, dass der Energieverlust von einer Änderung des Wirkungsquerschnittes nicht sehr stark beeinflusst wird. Die mittlere Kurve in Abbildung 5.4(a) zeigt den gefitteten Verlauf des Ladungszustandsverhältnisses, während die obere und die untere Kurve einem Wirkungsquerschnitt von 40 bzw. 140 Mb bei sonst identischen Parametern entsprechen. Die Kurve für die Energieverluste wird davon praktisch nicht beeinflusst. Eine direkte Auswirkung auf den Wirkungsquerschnitt ergibt sich bei einer Änderung des festgehaltenen Parameters  $f$ , dagegen hat die Wahl des ladungsabhängigen Energieverlustes nahezu keinen Einfluss auf  $\sigma$ . Ebenso wirkt sich die Wahl von  $f$  nur geringfügig auf das Fitergebnis für  $g$  aus.

Der Energieverlust wird von dem verwendeten Modell gut wiedergegeben (vergleiche Abbildung 5.7(b)). Dies ist in Anbetracht der vielen vereinfachten Annahmen ein wenig überraschend. Bei der Beurteilung dieses Ergebnisses ist zu beachten, dass der Fehler in der Bestimmung der Au-Bedeckung bei etwa 5% liegt. Dies wirkt sich unmittelbar auf den Energieverlust aus. Insgesamt zeigt der Fit, dass sich Energieverlust und Ladungszustandsverteilung konsistent beschreiben lassen.

**1.2 MeV He-Ionen:** Im Falle von He-Ionen ergibt sich ein ähnliches Bild. Das Verhältnis der Ladungsanteile beträgt hier  $g = 0.53$ ; der Wirkungsquerschnitt für Elektronen-Verlust ergibt sich zu  $\sigma = 143 \text{ Mb}$ . Der Fehler ist von der gleichen Größenordnung wie beim Li. Entscheidend ist hier, dass sich unabhängig vom Ladungszustand des eingeschossenen Primärions ein identischer Verlauf der Anteile der Ladungszustände ergibt. Lediglich bei kleinen Austrittswinkeln liegen die für  $\text{He}^{++}$  gemessenen Werte unter denen für  $\text{He}^+$  gemessenen. Dies deutet darauf hin, dass im ersten Fall Elektronen in höhere Zustände des  $\text{He}^{++}$  eingefangen werden. Beim Verlassen der Oberfläche können diese leichter abgestreift werden als die Elektronen in niedrigeren Schalen.

Die Ähnlichkeit der Ladungszustandsverteilungen bei symmetrischer Streugeometrie und bei kleinen Eintrittswinkeln belegt, dass der Einfang von Elektronen eine ebenso große Rolle spielt wie der Verlust von Elektronen. Die Wahrscheinlichkeit, durch einem Stoß bei dem vorliegenden Streuwinkel ein Elektron mit  $\text{He}^{++}$  einzufangen, beträgt  $P_{c,exp} = 0.35$ , die Wahrscheinlichkeit für den Verlust des Elektrons bei  $\text{He}^+$  beträgt  $P_{l,exp} = 0.65$ . Da  $P_{c,exp}$  und  $P_{l,exp}$  die gleiche Größenordnung haben, ist davon auszugehen, dass auch Kombinationen von Verlust und Einfang vorkommen. Dies verdeutlicht, dass das Ergebnis des Einzelstoßprozesses bereits das Resultat eines mehrstufigen Prozesses ist.

Der Energieverlust wird im Falle von He für kleine Winkel nicht so gut reproduziert wie

für Li. Möglicherweise ist hier die Annahme einer geraden Trajektorie nicht mehr gerechtfertigt. Trotzdem ist die Übereinstimmung für alle bis auf den kleinsten Austrittswinkel zufriedenstellend.

**Vergleich mit Literaturdaten:** Für die Größe des Wirkungsquerschnitts für Elektronen-Verlust  $\sigma_l$  ist eine Berechnung sehr kompliziert, da mit zunehmender Kernladung des Target-Atoms die Anwendung von Störungsrechnungen erster Ordnung fraglich wird (siehe auch Abschnitt 2.3). Das Targetatom stellt dann für das Projektilion, insbesondere bei kleinen Stoßparametern, keine kleine Störung mehr dar. Als Folge davon müssen theoretische Ansätze verwendet werden, die über die Störungsrechnung hinausgehen. Dazu zählen z. B. coupled-channel-Methoden oder die sogenannte „sudden approximation“. In [Gra96, Voi99, Voi00] werden diese Methoden auf den Fall von  $\text{He}^+$ -Ionen bei Energien von 1-4 MeV in He-, Ne-, Ar-, Kr- und Xe-Gasen angewendet und mit experimentellen Ergebnissen aus [San95] verglichen. Der Wirkungsquerschnitt zeigt danach eine schwache Abhängigkeit von der Energie. Bei der niedrigsten verwendeten Energie von 1 MeV liegen die gemessenen Wirkungsquerschnitte bei Werten von etwa 20 Mb (He), 75 Mb (Ne), 125 Mb (Ar), 140 Mb (Kr) und 170 Mb (Xe). Mit zunehmender Kernladung  $Z_2$  zeigt sich ein Sättigungseffekt. Da diese Arbeiten sich auf Wirkungsquerschnitte in Gasen beziehen, sind deren Ergebnisse nur mit Einschränkungen zum Vergleich mit den hier gezeigten Daten geeignet. Zumindest in der Größenordnung sollten allerdings die beiden Fälle übereinstimmen. Für Au als Target ist am ehesten ein Wert in der gleichen Größenordnung wie bei Xe zu erwarten. Der gemessene Wirkungsquerschnitt von 143 Mb liegt davon nicht weit entfernt. Mehr als eine grobe Übereinstimmung ist auch angesichts der vereinfachten Annahmen in (5.17) nicht zu erwarten.

Die Wahrscheinlichkeit für den Verlust eines Elektrons bei einem Einzelstoß wird durch drei Prozesse bestimmt: Die Ionisation durch eine Elektron-Elektron-Wechselwirkung (antiscreening-Beitrag), die Ionisation durch eine Wechselwirkung mit dem Targetkern (screening-Beitrag) und das Abschütteln der äußeren Elektronen aufgrund der plötzlichen Richtungsänderung beim Stoß (shake-off). Mit zunehmendem  $Z_2$  gewinnen die ersten beiden Beiträge an Bedeutung. Da die Wahrscheinlichkeit für die Ionisation oder Anregung des Projektil-Elektrons nicht größer als eins sein kann, konkurrieren alle drei Prozesse miteinander. Dies macht eine exakte Berechnung der Ionisationswahrscheinlichkeit sehr kompliziert. In [Voi00] wird die Stoßparameterabhängigkeit der Ionisierungswahrscheinlichkeit  $P_{l,ion}$  für 1.5 MeV  $\text{He}^+$  in Kr berechnet. Für einen Stoßparameter von Null ergibt sich dort ein Wert von  $P_{l,ion}=0.95$ . Diese Berechnung beinhaltet näherungsweise sowohl den screening- als auch den antiscreening-Beitrag. Für die relative Bewegung von Target und Projektil zueinander wird eine gerade Linie angenommen. Daher sind shake-off-Effekte in dieser Rechnung nicht enthalten. Für den Stoß von 1.2 MeV  $\text{He}^+$  mit Au sollte sich aufgrund der viel höheren Kernladungszahl des Targets eher ein größerer Wert ergeben.

Die Wahrscheinlichkeit für einen Shake-off-Prozess beträgt nach Abbildung 2.11  $P_{l,so} = 0.53$ . Dabei wird in diesem Fall die Anwesenheit der Elektron-Elektronen- und der Elektron-Targetkern-Wechselwirkung komplett (bis auf die Richtungsänderung) ignoriert. Die Größen  $P_{l,ion}$  und  $P_{l,so}$  verhalten sich also in gewisser Weise komplementär zueinander, lassen sich aber nicht ohne weiteres zu einer Gesamtwahrscheinlichkeit zusammenziehen, da sich beide Prozesse gegenseitig beeinflussen. Trotzdem zeigt sich deutlich, dass die theoretischen Vorhersagen eher auf eine vollständige Ionisation hinweisen als auf eine teilweise, wie es aufgrund des hier gemessenen Wertes von  $P_{l,exp} = 0.65$  zu erwarten wäre. Ein niedrigerer Ladungszustand lässt sich nur mit dem Einfang eines Elektrons während des Stoßes erklären. Dieser Sachverhalt unterstützt

die Vorstellung, dass bereits der Einzelstoß in einem mehrstufigen Prozess abläuft, bei welchem der Verlust und der Einfang von Elektronen bei einem einzigen Stoß gleichzeitig vorkommen können.

Die Einfang-Wahrscheinlichkeit  $P_c$  bei einem kleinen Stoßparameter ist noch schwieriger abzuschätzen, da diese üblicherweise mit der Störungstheorie berechnet werden. Dies führt bei sehr kleinen Stoßparametern zu ungenauen oder falschen Ergebnissen, mitunter zu Wahrscheinlichkeiten  $P_c > 1$  [Jak89]. Die Annahme, dass  $P_c$  gegenüber  $P_l$  nicht zu vernachlässigen ist, scheint allerdings plausibel. So wird z. B. in [Kho97] die Stoßparameterabhängigkeit der Einfangwahrscheinlichkeit von 250 keV Protonen bei Stößen mit Ni berechnet. Bei kleinen Stoßparametern ergeben sich dabei Werte im Bereich von  $P_c \approx 0.5$ . Diese Größenordnung sollte – sehr grob – auch für 1.2 MeV He<sup>++</sup> in Au gelten. Auch hier zeigt sich, dass die Größenordnung der hier gemessenen Einfang-Wahrscheinlichkeit nicht unplausibel ist.

Im Falle des 3 MeV Li-Ions ergeben sich mit  $P_{l,exp} = 0.46$  und  $\sigma = 68$  Mb niedrigere Werte als für 1.2 MeV He. Dieser Umstand lässt sich mit der höheren Bindungsenergie des Elektrons im Li-Ion plausibel machen. Im Falle von Li-Ionen sind keine Literaturdaten für die Wahrscheinlichkeiten für Einfang oder Verlust eines Elektrons bekannt. Die Wahrscheinlichkeit für shake-off beträgt hier  $P_{so} = 0.36$ . Da die Geschwindigkeiten beider hier eingesetzten Ionen nicht sehr weit auseinander liegen ( $4.2v_0$  für Li und  $3.5v_0$  für He), sollte sich im Großen und Ganzen für 3 MeV Li-Ionen das gleiche Bild ergeben wie bei 1.2 MeV He.

### 5.2.3 Zusammenfassung

Die Ergebnisse dieses Abschnitts haben deutlich gemacht, dass sich bei einem einzelnen Stoß von schnellen Ionen mit Atomen bei dem hier betrachteten Streuwinkel von  $35.5^\circ$  bereits ein Zustand einstellt, welcher das Resultat konkurrierender Elektronen-Verlust- und Einfang-Prozesse darstellt. Weder die Wahrscheinlichkeit für den Verlust eines Elektrons noch die Wahrscheinlichkeit für den Einfang eines Elektrons sind vernachlässigbar klein. Dies führt dazu, dass der Ladungszustand des eingeschossenen Ions keinen Einfluss auf die Ladungszustandsverteilung der gestreuten Ionen hat. Unter diesen Voraussetzungen kann man davon ausgehen, dass während des Stoßes mehrere Einfang- und Verlust-Prozesse auftreten können und die Ladungszustandsverteilung der gestreuten Ionen infolgedessen bereits eine Art stationäre Verteilung darstellt. Diese wird im Folgenden als Einzelstoß-Verteilung bezeichnet. Der Energieverlust der gestreuten Ionen zeigt wegen der großen Wirkungsquerschnitte für den Einfang oder Verlust von Elektronen keine Abhängigkeit vom detektierten Ladungszustand.

### 5.3 Ladungszustandsverteilungen von schweren Ionen - Abhängigkeit von Energie und Primärion

Für die Interpretation von HRBS-Spektren sind in erster Linie die Unterschiede zwischen der Einzelstoßverteilung und der Gleichgewichtsverteilung von Interesse. Während die Einzelstoßverteilung bei der Analyse oberflächennaher Schichten eine Rolle spielt, gewinnt die Gleichgewichtsverteilung für die Streuung in großen Tiefen an Bedeutung. Zu Ladungszustandsverteilungen im Gleichgewicht existieren zahlreiche Literaturdaten. Dagegen sind nur wenige Untersuchungen zu Einzelstoß-Verteilungen bekannt. Diese werden im Folgenden kurz vorgestellt.

In [Jam97, Jam98] werden Ladungszustandsverteilungen von He-, Ne- und Ar-Ionen nach Streuung an dicken Au-Schichten präsentiert. Diese Messungen wurden bei einer Energie von 1.2 MeV unter einem Streuwinkel von  $38^\circ$  durchgeführt. Die Tiefenauflösung an der Oberfläche lag bei diesen Experimenten im Monolagenbereich und darunter. Es ergeben sich gegenüber dem Gleichgewichtsfall deutlich erhöhte Ladungszustände. Im Fall von Ar-Ionen wird die gleiche Messung mit Au-Dampf als Target bestätigt. Die Ergebnisse werden damit erklärt, dass die Einzelstoß-Verteilung generell gegenüber der Gleichgewichtsverteilung zu höheren Ladungszuständen verschoben ist. In [Blo99] wird für 1 MeV Ar-Ionen nach einer Streuung an verschiedenen Edelgasen bei Streuwinkeln von  $5^\circ$  ein ähnliches Verhalten gefunden.

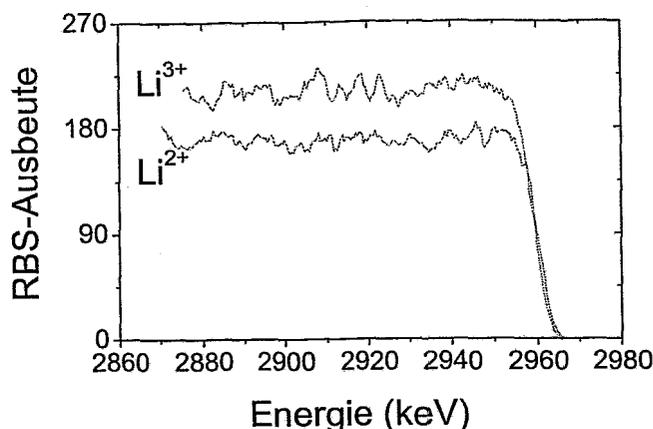
In [Boe97] wird die Streuung von 3 MeV C an Sub-Monolagen von Au und Ag bei Streuwinkeln von  $40^\circ$  und  $60^\circ$  mit der Gleichgewichts-Ladungszustandsverteilung verglichen. Letztere wird durch HRBS-Messungen an dicken Au- bzw. Ag-Schichten erhalten. Es ergibt sich ein sehr geringer Unterschied zwischen der Einzelstoß- und der Gleichgewichts-Verteilung, wobei wiederum die Einzelstoßverteilung die - in diesem Fall geringfügig - höheren Ladungszustände liefert. Praktisch kein messbarer Unterschied wird hingegen zwischen den Ladungszustandsverteilungen nach Streuung an Au einerseits und Ag andererseits gefunden. Darüber hinaus wird auch keine Abhängigkeit vom Streuwinkel beobachtet. Diese Beobachtungen werden damit erklärt, dass das Ladungszustandsgleichgewicht bereits in einem einzigen Stoß erreicht wird.

Neben diesen Arbeiten an Festkörpertargets gibt es eine Reihe von Untersuchungen von Ladungszustandsverteilungen verschiedener Ionen im Bereich  $6 \leq Z_1 \leq 10$  nach Streuung an Gasen mit  $7 \leq Z_2 \leq 18$  bei Geschwindigkeiten im Bereich  $1 \leq v \leq 2$  und Streuwinkeln von  $\theta \leq 5^\circ$  [Mer84]. Auch hier wird das Erreichen des Gleichgewichtes nach einem einzigen Stoß beobachtet.

In [Kim92] werden Experimente zur Streuung von 0.5 MeV He-Ionen an einer SnTe-Oberfläche bei einem Streuwinkel von  $35.5^\circ$  vorgestellt. Der Vergleich mit Messungen an SnTe-Folien weist auch hier auf eine sehr große Ähnlichkeit von Einzelstoß- und Gleichgewichtsverteilung hin.

Da die aus der Literatur bekannten Ladungszustandsverteilungen hinsichtlich des Unterschiedes zwischen der Einzelstoß- und der Gleichgewichtsverteilung ein uneinheitliches Bild ergeben, auf der anderen Seite aber auch für sehr unterschiedlichen Primärionen gemessen wurden, wurden für die vorliegende Arbeit Einzelstoßverteilungen von Li, C, und F-Ionen bei Energien von einigen hundert keV/amu nach einer Streuung an Au-Atomen gemessen und mit den entsprechenden Gleichgewichtsverteilungen verglichen. Diese decken einen großen Bereich der zweiten Periode des Periodensystems ab und sind mögliche Kandidaten für die HRBS mit schweren Ionen.

Die Einzelstoßverteilungen wurden durch Streuung an den in Abschnitt 5.1.2 beschriebenen Proben erhalten. Um den Einfluss der Oberfläche auf den Ladungszustand zu minimieren (sie-



**Abbildung 5.10:** RBS-Spektren von dicken Au-Schichten, gemessen mit 3 MeV  $\text{Li}^{2+}$ -Ionen, für detektierte Ionen  $\text{Li}^{2+}$  bzw.  $\text{Li}^{3+}$ .

he Abschnitt 5.2.2) wurde ein Einfallswinkel von  $\alpha_1 = 17.5^\circ$  gewählt. Für die Bestimmung der Gleichgewichtsverteilungen wurden HRBS-Spektren von 40 nm dicken Goldschichten für alle relevanten Ladungszustände gemessen. Die Schichten wurden ex-situ mittels Elektronenstrahlverdampfung hergestellt. Die verwendeten Energien und Ionen sind in Tabelle 5.3 zusammengefasst. Wegen des begrenzten Masse-Energie-Produkts des Browne-Buechner-Spektrometers konnten bei einigen Ionen, für welche der Ladungszustandsanteil  $F_1$  nicht zu vernachlässigen war, nicht direkt gemessen werden. In diesen Fällen wurde der Anteil mit Hilfe des RBS-Detektors in der Streukammer abgeschätzt.

Zusätzlich zu den Messungen an Au-Schichten werden Einzelstoßverteilungen von Cl-Ionen nach einer Streuung an Sb bzw. an Ta gezeigt. Die Herstellung der dazu verwendeten Schichten wird in Abschnitt 5.1.2 beschrieben.

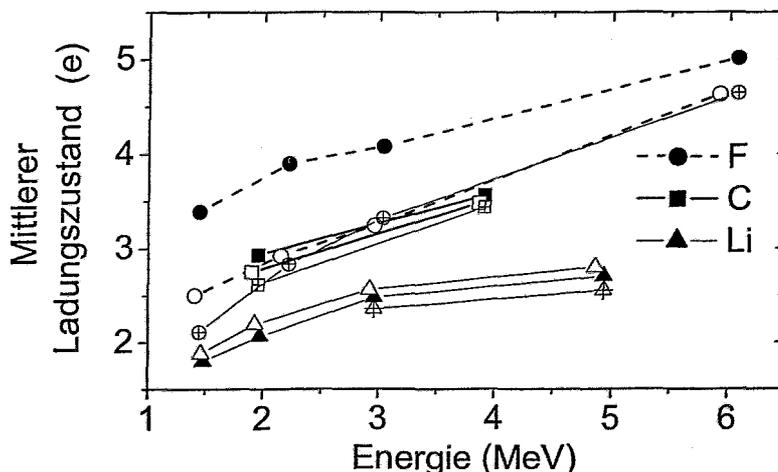
Die Diskussion der Daten erfolgt weitgehend auf qualitativer Basis. Theoretischen Berechnungen unter Berücksichtigung aller Wechselwirkungen sind auf Grund der großen Zahl von Elektronen allein im Au-Atom und des Vielteilchencharakters des Stoßprozesses schwierig. Lediglich für den shake-off bietet sich die Möglichkeit einer Abschätzung. Die Berechnung erfolgt dabei analog zu dem in [Boe97] beschriebenen Verfahren. Einzelheiten dazu sind in Anhang E zusammengefasst.

Ion	Energie (MeV) $q$ (e)
Li	1.5+; 2+; 3++; 5+++;
C	2++; 4+++;
F	1.5+; 2.3+; 3.15+; 6.3+++;

**Tabelle 5.3:** Zusammenfassung der Ionen und Energien, bei denen Ladungszustandsverteilungen nach einem Einzelstoß und im Gleichgewicht gemessen wurden.

## 5.3.1 Li-Ionen

Abbildung 5.10 zeigt die HRBS-Spektren von 3 MeV Li. Der Ladungszustand des Primärions war dabei  $\text{Li}^{2+}$ , die Spektren wurden für  $\text{Li}^{2+}$  und  $\text{Li}^{3+}$  gemessen. Beiden Spektren zeigen den typischen Verlauf des RBS-Spektrums einer dicken Schicht. Der Vergleich der Spektren lässt keine Abhängigkeit der Form des Spektrums vom Ladungszustand des registrierten Ions erkennen. Der effektive Energieverlust beträgt für Li in dieser Geometrie 8.4 keV/nm. Eine grobe Abschätzung der Gleichgewichtslänge  $l_G$  lässt sich mit dem in Abschnitt 5.2.2 erhaltenen Wirkungsquerschnitt für Elektronen-Verlust an einer Gold-Oberfläche von  $\sigma=68$  Mb durchführen. Wegen  $l_G \sim 1/\sigma$  erhält man  $l_G = 1.4 \times 10^{16}$  at/cm<sup>2</sup>. Dies entspricht bei der vorliegenden Geometrie einer Tiefe von etwa 0.4 nm. Für das Ladungszustandsverhältnis  $F_2/F_3$  im Gleichgewicht ergibt sich hier ein Wert von etwa 0.79. Dies ist zu vergleichen mit dem Wert  $g = 1.15$  für den Einzelstoß aus Abschnitt 5.2.2. Die entsprechenden Ladungszustandsanteile lauten  $F_2=0.535$  und  $F_3=0.465$



**Abbildung 5.11:** Mittlere Ladungszustände von Li-, C-, und F-Ionen als Funktion der Energie. Volle Symbole: Einzelstoß-Verteilung, offene Symbole: Gleichgewichtsverteilungen, gekreuzte Symbole: shake-off-Verteilungen. Der Fehler bei der Bestimmung des mittleren Ladungszustands beträgt etwa 0.03 e (siehe Anhang F).

für den Einzelstoß bzw.  $F_2=0.441$  und  $F_3=0.559$  für den Gleichgewichtsfall. Die Unterschiede sind zwar klein, aber deutlich über der Fehlergrenze (siehe Anhang F). Es ist erstaunlich, dass der Ladungszustand nach einem Einzelstoß *niedriger* ist als im Gleichgewicht. Aufgrund der sehr viel größeren Wechselwirkung von Ion und Targetatom bei einem kleinen Stoßparameter ist eher der umgekehrte Fall zu erwarten. Eine eindeutige Erklärung hierfür kann mit den zur Verfügung stehenden Daten nicht gegeben werden. Als mögliche Ursache für dieses Verhalten bietet sich die folgende Überlegung an. Ein Stoß kann generell auch zu einer Anregung des Ions führen. Wenn dieses Ion nur einen einzigen Stoß erleidet, kann dieses angeregte Ion wieder in den Grundzustand übergehen. Folgen dagegen eine große Zahl weiterer Stöße, so kann das Ion in einem nachfolgenden Stoß leichter ionisiert werden, da es sich in einem angeregten Zustand befindet. Da die mittlere Stoßdauer kleiner ist als die Lebensdauer des angeregten Zustands, kann eine Ionisation in zwei Stufen erfolgen. Dieser Effekt ist analog zum sogenannten Dichte-

Effekt, welcher für den Unterschied des mittleren Ladungszustands in Gasen und Festkörpern verantwortlich ist [Sch01].

Abbildung 5.11 zeigt den mittleren Ladungszustand  $\bar{q}$  von Li-Ionen als Funktion der Energie der gestreuten Ionen für den Einzelstoß und im Gleichgewicht. Es wurden jeweils gleiche Primärenergien verwendet. Wegen des zusätzlichen Energieverlustes bis zum Erreichen des Gleichgewichts liegt die Energie, für die der mittlere Ladungszustand im Gleichgewicht bestimmt wurde, jeweils etwas niedriger. Es gibt eine große Ähnlichkeit im Verlauf beider Kurven als Funktion der Energie. Im gesamten hier betrachteten Energiebereich ergibt sich eine Differenz von etwa 0.1 Elementarladung. Der mittlere Ladungszustand im Gleichgewicht liegt dabei durchweg höher als der mittlere Ladungszustand nach einem Einzelstoß.

Neben der Gleichgewichts- und der Einzelstoß-Verteilung zeigt Abbildung 5.11 die mittleren Ladungszustände, welche sich allein durch shake-off ergeben. Für Li-Ionen folgt diese dem Verlauf der Gleichgewichts- und der Einzelstoß-Verteilung, führt aber insgesamt zu kleineren Ladungszuständen. Es ist nach den im vorhergehenden Abschnitt gefundenen Ergebnissen auch nicht zu erwarten, dass die Betrachtung von shake-off alleine ausreicht, um die erhaltenen Ladungszustandsverteilungen zu verstehen.

Insbesondere wegen der geringen Gleichgewichtstiefe ist Li für HRBS-Untersuchungen gut geeignet. Mit diesem Wissen ist es nicht verwunderlich, dass die in Kapitel 4 gezeigten Spektren von Mehrfachsichten ohne die Annahmen einer vom Ladungszustand abhängigen Tiefenskala oder einer ausgeprägten Abhängigkeit der Ladungszustandsanteile an der Oberfläche sehr gut beschrieben werden können.

### 5.3.2 C-Ionen

Abbildung 5.12 zeigt RBS-Spektren einer dicken Au-Schicht mit  $C^{2+}$  als Primärion für vier verschiedene detektierte Ladungszustände.

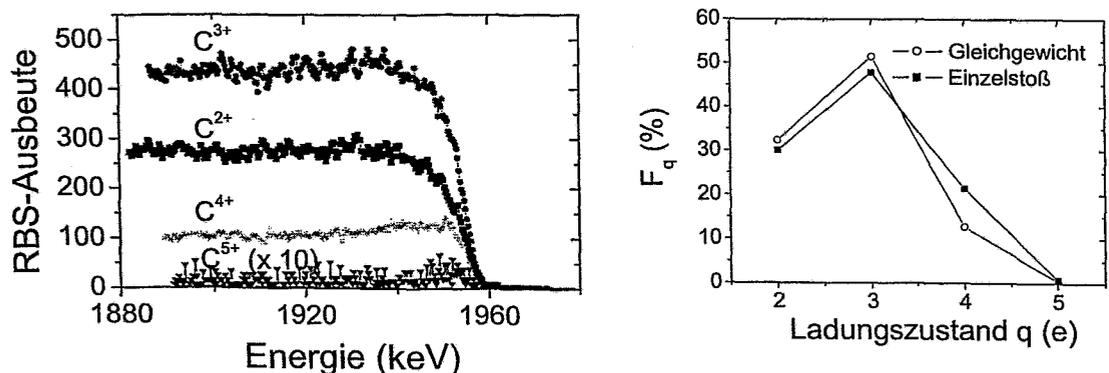
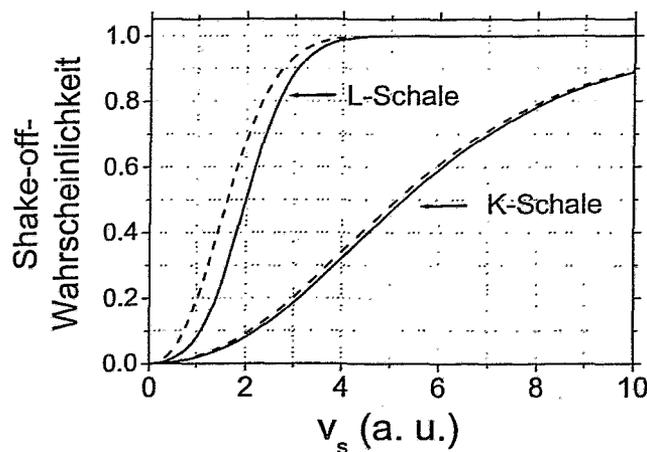


Abbildung 5.12: Links: Spektren einer dicken Au-Schicht, gemessen mit 2 MeV  $C^{2+}$  als Primärion. Die detektierten Ladungszustände sind  $C^{2+}$ ,  $C^{3+}$ ,  $C^{4+}$  und  $C^{5+}$ . rechts: Vergleich der Ladungszustandsverteilungen nach einem Einzelstoß und im Gleichgewicht.

Im Gegensatz zu den Li-Spektren ist die Form der Spektren für die verschiedenen Ladungszustände hier nicht identisch. Für den Ladungszustand  $C^{4+}$  ergibt sich eine deutlich schärfere

Vorderkante als für die Ladungszustände  $C^{3+}$  und  $C^{2+}$ . Der Ladungszustand  $C^{5+}$  ist nur ganz schwach an der Oberfläche zu erkennen. Die Ladungszustandsverteilungen im Gleichgewicht und nach einem Einzelstoß sind sehr ähnlich. Die Unterschiede in den Ladungszuständen  $C^{3+}$  und  $C^{2+}$  sind im Rahmen des Fehlers von etwa 3% nicht signifikant. Beim Ladungszustand  $C^{4+}$  ergibt sich eine deutliche Abweichung. Diese Abweichung ist die Ursache für die größere Schärfe der Vorderkante in Abbildung 5.12.

Im Gegensatz zum Li-Ion einer Energie von 3 MeV, das höchstens ein gebundenes Elektronen mitführt, sind an C-Ionen bei einer Energie von 2 bzw. 4 MeV je nach Ladungszustand zwischen 2 und 5 Elektronen gebunden. Qualitativ ist zu erwarten, dass die Elektronen der innersten Schale, deren Bindungsenergie für neutrale Atome in guter Näherung  $(Z_1 - 0.3)^2/2$  beträgt, bei vergleichbaren Projektilgeschwindigkeiten weniger einfach ionisiert werden können je höher ihre Bindungsenergie ist. Dies gilt auch für den shake-off-Effekt. Abbildung 5.13 zeigt die Wahrscheinlichkeiten für den Verlust eines Elektrons der K- bzw. L-Schale durch shake-off als Funktion der Geschwindigkeit  $v_s$  (zur Definition von  $v_s$  siehe Abschnitt 2.3). Die hier betrachteten Energien



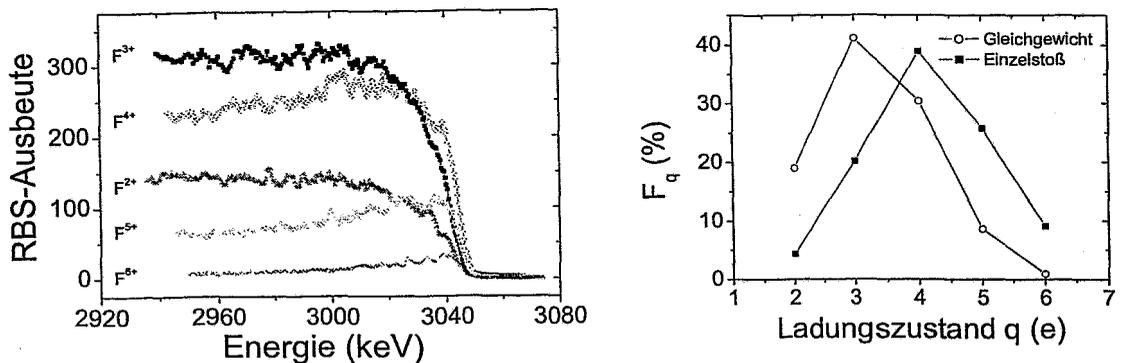
**Abbildung 5.13:** Wahrscheinlichkeit für die Anregung eines Elektrons der K- bzw. L-Schale des Ions  $C^{2+}$  im Grundzustand aufgrund einer plötzlichen Beschleunigung auf die Geschwindigkeit  $v_s$ . Durchgezogene Linie: Ionisation, gestrichelte Linie: Anregung in M-Schale oder höher.

2 und 4 MeV entsprechen Geschwindigkeiten  $v_s$  von 1.57 a.u. und 2.22 a.u. Die Wahrscheinlichkeit für eine Ionisation eines K-Elektrons durch shake-off liegt in beiden Fällen unter 10%. Für die L-Schale liegt dieser Wert deutlich höher. Neben der Ionisation ist auch eine Anregung des Projektils wahrscheinlich. Dazu ist in Abbildung 5.13 zusätzlich die Wahrscheinlichkeit für eine Ionisation *oder* Anregung in die M-Schale oder höher dargestellt. Der mittlere Ladungszustand, welcher aus einem reinen shake-off-Vorgang resultiert, ist zum Vergleich ebenfalls in Abbildung 5.11 abgebildet. Gegenüber den gemessenen mittleren Ladungszuständen ergibt sich wie im Falle der Li-Ionen ein niedrigerer Ladungszustand.

Für C-Ionen gilt in Hinblick auf die HRBS das Gleiche wie für Li-Ionen. Wegen der sehr ähnlichen Ladungszustandsverteilungen nach einem Einzelstoß einerseits und im Gleichgewicht andererseits eignen sich C-Ionen gut als Primärion für die HRBS.

## 5.3.3 F-Ionen

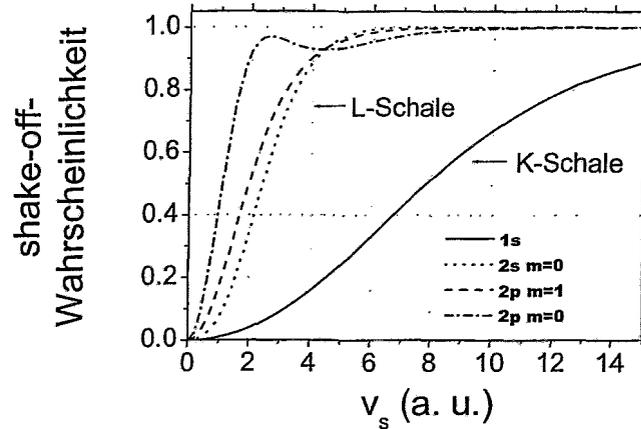
Abbildung 5.14 zeigt die F-Spektren einer dicken Au-Schicht, zusammen mit der entsprechenden Gleichgewichts-Ladungszustandsverteilung und der Ladungszustandsverteilung von F nach einem Einzelstoß bei der gleichen Energie. Die Form der Spektren für verschiedene Ladungszustände ist hier noch deutlicher verschieden als im Fall des C-Ions. Das Spektrum des Ions  $F^{5+}$  ist an der Oberfläche deutlich gegenüber dem Volumen erhöht. Im Gegensatz dazu steigt die Zählrate für das  $F^{5+}$ -Ion mit zunehmender Streutiefe deutlich an.



**Abbildung 5.14:** Links: Spektren einer dicken Au-Schicht, gemessen mit 3.15 MeV  $F^{2+}$  als Primärion. Die detektierten Ladungszustände sind  $F^{2+}$ ,  $F^{3+}$ ,  $F^{4+}$ ,  $F^{5+}$  und  $F^{6+}$ . Rechts: Vergleich der Ladungszustandsverteilungen nach einem Einzelstoß und im Gleichgewicht.

Insgesamt erscheint die Kante mit zunehmendem Ladungszustand schärfer. Die an Gold-Monolagen gemessenen Einzelstoß-Spektren ergeben eine Ladungszustandsverteilung, welche um etwa eine Einheit zu höheren Ladungszuständen hin verschoben ist. Qualitativ ist dies in Übereinstimmung mit den Spektren der dicken Au-Probe. Bei den hier beobachteten Ladungszuständen sind zwischen drei und sechs Elektronen an das F-Ion gebunden. Unter diesen Bedingungen können Auger-Kaskaden zu einer Erhöhung des Ladungszustandes beitragen. In [ELS97] werden Ladungszustandsverteilungen berechnet, welche sich nach der Erzeugung einer einzelnen Vakanz in der K-Schale durch eine Auger-Kaskade ergeben. Für Ne erhält man z.B.  $F_2 = 0.774$  und  $F_3 = 0.208$ . Dagegen führt eine Vakanz in der  $L_1$ -Schale zu Ladungszustandsanteilen von  $F_1 = 0.919$  und  $F_2 = 0.08$ . Dies führt zu einer möglichen Erklärung für die Differenz in den Ladungszuständen, vorausgesetzt, dass bei einem Einzelstoß mehr Vakanz im Primärion erzeugt werden als im Mittel bei Transmission. Im letzteren Fall spielt neben dem Ergebnis eines Stoßes bei mittlerem oder großem Streuparameter auch die Frequenz der Stöße eine Rolle. Dies macht eine quantitative Abschätzung sehr schwierig.

Abbildung 5.15 zeigt die Wahrscheinlichkeit für die Ionisierung eines Elektrons der K- und der L-Schale eines  $F^+$ -Ions mittels shake-off. Für die K-Schale ergibt sich eine noch kleinere Ionisierungswahrscheinlichkeit als beim C-Ion. In der L-Schale hängt die Ionisierungswahrscheinlichkeit vom Bahndrehimpuls des Elektrons ab. Im wesentlichen ergibt sich ein ähnliches Bild wie beim C-Ion, die äußeren Elektronen werden leichter abgeschüttelt als die inneren. Die daraus resultierenden mittleren Ladungszustände zeigt Abbildung 5.11. Im gesamten betrachteten Energiebereich sind die mittleren Ladungszustände nach shake-off kleiner als die gemessenen.

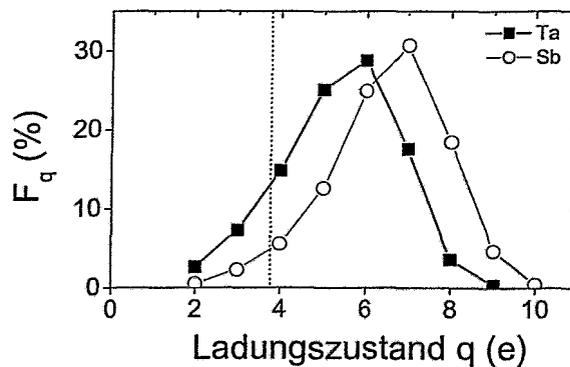


**Abbildung 5.15:** Wahrscheinlichkeit für die Anregung eines Elektrons der K- bzw. L-Schale des Ions  $F^+$  im Grundzustand aufgrund einer plötzlichen Beschleunigung auf die Geschwindigkeit  $v_s$ .

Im Hinblick auf die hochauflösende RBS ist F weniger gut geeignet als C- und Li-Ionen. Dies gilt insbesondere, da mit F-Ionen zum einen keine deutlich bessere Tiefenaufösungen zu erwarten ist (siehe Abbildung 4.2), zum anderen die Schädigung aber zunimmt (siehe Abbildung 4.6).

### 5.3.4 Cl-Ionen

Abbildung 5.16 zeigt die Ladungszustandsverteilung von Cl-Ionen der Energie 1.22 MeV nach einem Stoß an Ta und Sb-Atomen. Für diesen Fall wurden keine Gleichgewichtsverteilungen gemessen. Aus diesem Grund wird an dieser Stelle auf Literaturdaten zurückgegriffen. Der mittlere



**Abbildung 5.16:** Ladungszustandsverteilung von Cl-Ionen bei einer Energie von 1.22 MeV und einem Streuwinkel von  $35.5^\circ$  nach Streuung an Ta und Sb-Atomen.

Ladungszustand von 1.22 MeV Cl-Ionen liegt nach [Wit73, Shi92] bei 3.76 und damit deutlich unter den gemessenen Werten von 5.38 für Streuung an Ta und 6.51 für Sb. Hinsichtlich der Zahl an leicht gebundenen Elektronen sind F und Cl vergleichbar. Beide haben fünf p-Elektronen

und zwei s-Elektronen in der äußeren Schale. Die Geschwindigkeiten der im vorhergehenden Abschnitt betrachteten F-Ionen sind ebenfalls mit denen der hier betrachteten Cl-Ionen vergleichbar. Trotzdem ergibt sich ein deutlicher Unterschied, wenn man die Ladungsverteilung im Gleichgewicht mit der nach einem Einzelstoß vergleicht. Diese Beobachtung deutet auf Auger-Kaskaden als Ursache für die zusätzliche Ionisierung hin. Darüber hinaus fällt auf, dass die Form der Verteilung stark asymmetrisch ist. Nach [EIS97] ergibt sich z. B. bei Erzeugung einer  $L_1$ -Vakanz in Si bzw. Ar ein mittlerer Ladungszustand von 3.6 bzw. 3.24. Für eine K-Schalen-Vakanz erhält man sogar mittlere Ladungszustände von 4.51 bzw. 4.36. Bei einem Stoß werden in der Regel mehrere Vakanzen erzeugt, so dass der Ladungszustand entsprechend höher ausfallen kann. Für Cl wird in [EIS97] keine Verteilung berechnet, es ist aber anzunehmen, dass diese im gleichen Bereich liegt. Auch wenn dieser Vergleich kein direkter Beweis für den Einfluss von Auger-Kaskaden ist, so deutet er doch sehr stark in diese Richtung. Die Messungen sind qualitativ in guter Übereinstimmung mit den Messungen aus [Blo99] und [Jam98].

Da Cl-Ionen die Lebensdauer von Halbleiterdetektoren stark verkürzen, eignen sie sich nicht für Routinemessungen am Browne-Buechner.

### 5.3.5 Zusammenfassung

Für die untersuchten Ladungszustandsverteilungen von Li-, C-, F- und Cl-Ionen ergeben sich die folgenden Trends: (i) Mit zunehmender Kernladung der Ionen ergeben sich, relativ zur Gleichgewichtsverteilung, zunehmend größere mittlere Ladungszustände. Diese sind für Li-Ionen kleiner, für C-Ionen geringfügig größer, und für F- und Cl-Ionen deutlich größer als im Gleichgewicht. Eine mögliche Ursache hierfür ist in der zunehmenden Ionisierung durch Auger-Kaskaden zu suchen. (ii) Die Differenz zwischen dem mittleren Ladungszustand im Gleichgewicht und nach einem Einzelstoß hängt nicht sehr stark von der Energie ab. Lediglich im Fall des F-Ions zeigt sich bei der Energie 6.3 MeV ein Annähern der mittleren Ladungszustände. (iii) Die berechneten mittleren Ladungszustände, welche sich nach einem shake-off der Elektronen einstellen, zeigen zwar eine ähnliche Abhängigkeit von der Energie wie die gemessenen, führen aber durchweg zu niedrigeren Werten.

## Kapitel 6

# Zusammenfassung

In der vorliegenden Arbeit wird erstmals das Browne-Buechner-Spektrometer für die hochauflösende Ionenstrahlanalyse im Ionenstrahlzentrum Rossendorf vollständig vorgestellt. Ein Schwerpunkt der Arbeit lag im apparativen Aufbau und der Inbetriebnahme des Spektrometers und der zugehörigen Streukammer einschließlich der Einrichtungen zur Probenbehandlung und -charakterisierung. Die Leistungsfähigkeit des Spektrometers wurde dann sowohl durch Messung von RBS-Spektren mit hoher Tiefenauflösung als auch durch grundlegende Untersuchungen zur Ion-Festkörper-Wechselwirkung eindrucksvoll demonstriert. Im Rahmen der Arbeit wurden für den gewählten Messaufbau die experimentellen Bedingungen herausgearbeitet, welche den routinemäßigen Einsatz des Spektrometers für hochauflösende RBS-Analysen von Dünnschichtsystemen ermöglichen. Für C- und Li-Ionen als Inzidentteilchen wurde dabei insbesondere das Stragging, das bei der Auswertung der Spektren eine wichtige Rolle spielt, in einem weiten Bereich von Materialien genauer bestimmt. Mit Hilfe des Spektrometers konnte auch die Wechselwirkung des Ions mit dem Festkörper bzw. einzelnen Atomen an seiner Oberfläche studiert werden. Erstmals wurde der mittlere Ladungszustand nach dem Einzelstoß an einem Goldatom für verschiedene schwere Ionen in einem weiten Energiebereich ermittelt. Die Ergebnisse weisen darauf hin, dass der mittlere Ladungszustand nach dem Einzelstoß in Abhängigkeit von der Kernladung des Primärions unterschiedlich stark vom Gleichgewichts-Ladungszustand abweicht.

Die hochauflösende Rutherford Rückstreu-Spektrometrie hat ein großes Potential bei der Charakterisierung von dünnen Schichten mit Dicken im Nanometer-Bereich bis hin zu Dicken im Monolagen-Bereich. Der Bedarf der Materialforschung an quantitativen, schnellen und zuverlässigen Tiefenprofilen solcher Proben wächst ständig. Der wesentliche Unterschied zur weit verbreiteten Standard-RBS besteht dabei im Einsatz von Spektrometern in Verbindung mit ortsauflösenden Detektoren. Diese Konfiguration bietet zum einen die Möglichkeit einer verbesserten Energieauflösung bei der Detektion der gestreuten Ionen. Zum anderen ist die Verwendung schwerer Primärionen, deren größeres Bremsvermögen eine bessere Tiefenauflösung erlaubt, damit erst ohne nennenswerte Einschränkungen der Energieauflösung möglich. Die Verwendung von Spektrometern bringt es allerdings mit sich, dass Ionen mit verschiedenen Ladungszuständen getrennt gemessen werden müssen. Darüber hinaus hängt der spezifische Energieverlust vom Ladungszustand der Ionen ab. Da dieser direkt in die Konvertierung der Energie der gestreuten Ionen in die Streutiefe eingeht, ist eine genaue Kenntnis der Ladungszustandsverteilungen der gestreuten Ionen notwendig. Insbesondere waren bisher nur wenige Untersuchungen zu Ladungszustandsverteilungen unmittelbar nach dem Rückstoß bekannt.

Der erste Teil der Arbeit befasst sich mit dem Aufbau des Browne-Buechner-Magneten als hochauflösendem Ionenspektrometer. Dazu wurden in Kapitel 3 umfangreiche Simulationen der ionenoptischen Eigenschaften dieses Spektrometers vorgestellt. Besondere Beachtung wurde dabei den Effekten höherer Ordnung gewidmet. Die experimentell bestimmte Lage der Fokalebene, welche von der in erster Ordnung zu erwartenden Lage abweicht, konnte mit dem Einfluss der Randfelder und einer sehr kleinen Verkippung der Polschuhe zufriedenstellend erklärt werden. Darüber hinaus wurde die Auswirkung dieser Effekte auf die Aberration bestimmt. Schließlich wurde das Verhalten des verwendeten ortsauflösenden Detektors für schwere Ionen untersucht und notwendige Korrekturen für die gemessenen Spektren ermittelt.

Im zweiten Teil der Arbeit wurde die Tiefenauflösung und die Entwicklung der Ladungszustandsverteilung in Tiefen von etwa 2 nm bis zu etwa 20 nm untersucht. Dieser Bereich stellt einen Übergangsbereich dar. In größeren Tiefen ist die Überlegenheit der HRBS gegenüber der RBS nicht sehr ausgeprägt, da statistischen Prozesse innerhalb des Targets wie Straggling und Vielfachstreuung die Tiefenauflösung unvermeidlich begrenzen. In geringeren Tiefen hingegen sind Abweichungen von der Gleichgewichts-Ladungszustandsverteilung zu erwarten. Kapitel 4 zeigt eine Reihe von Spektren von Mehrfachschichten, welche eine Beurteilung der Tiefenauflösung als Funktion der Tiefe ermöglichen. Dazu werden Fits vorgestellt, aus denen das Straggling von 2 MeV C-Ionen und 5 bzw. 3 MeV Li-Ionen in verschiedenen Materialien extrahiert wird. Für C-Ionen wird der Einfluss der Schädigung während der Messung untersucht. Die Schädigung verschiedener schwerer Ionen wird auf der Basis theoretischer Überlegungen miteinander verglichen. Es zeigt sich, dass eine Verwendung von Ionen, welche schwerer als C sind, auf Grund der erhöhten Schädigung ohne gleichzeitige Verbesserung der Tiefenauflösung mit den am Rossendorfer Tandetron zur Verfügung stehenden Energien nicht sinnvoll ist. Prinzipiell ist bei gleicher Schädigung mit leichten Ionen eine bessere Zählrate zu erreichen als mit schweren. Bei kleinen Ein- oder Austrittswinkeln macht sich für schwerere Ionen die Vielfachstreuung schon ab wenigen Nanometern Streutiefe nachteilig bemerkbar. In dieser Streugeometrie sind leichte Ionen gegenüber schweren im Vorteil. Das Straggling von C- und Li-Ionen lässt sich am besten mit Hilfe der semiempirischen Yang-Theorie abschätzen. Die aus den Messungen gewonnenen Werte liegen etwas höher als die theoretischen. Für die Bestimmung der Tiefenskala wurden SRIM-Energieverluste verwendet. Hier zeigt sich für C-Ionen bei einer Energie von 2 MeV aus dem Vergleich mit XRD- und TEM-Untersuchungen der gleichen Proben eine systematische Abweichung von den mit hochauflösender RBS erhaltenen Tiefen bzw. Schichtdicken. Dies ist qualitativ in Übereinstimmung mit kürzlich von anderen Gruppen durchgeführten Messungen des spezifischen Energieverlustes schwerer Ionen. Die Abweichungen liegen bei etwa 10% und wurden für die Materialien  $B_4C$ , Si, Mo und W gefunden. Für zukünftige Messungen ist eine ähnliche Korrektur wahrscheinlich.

Der letzten Teil der Arbeit beschäftigt sich mit Ladungszustandsverteilungen von schweren Ionen nach einer Streuung mit Oberflächenatomen. Dazu werden in Kapitel 5 Ladungszustandsverteilung von Li, C und F nach einer Streuung an einer Sub-Monolage aus Au-Atomen gezeigt und mit den Ladungszustandsverteilungen im Gleichgewicht verglichen. Der Einfluss der Oberfläche wird an Hand der Streuung von He- und Li-Ionen bei verschiedenen Austrittswinkeln untersucht. Diese Messungen zeigen, dass die Elektronen der Oberfläche einen starken Einfluss auf den Ladungszustand und den Energieverlust der gestreuten Ionen haben. Der Energieverlust lässt sich mit Hilfe der Oberflächen-Stopping-Power zufriedenstellend beschreiben. Der Ladungszustand nach einem Einzelstoß hängt für He bei einer Energie von 1.2 MeV nicht vom Ladungs-

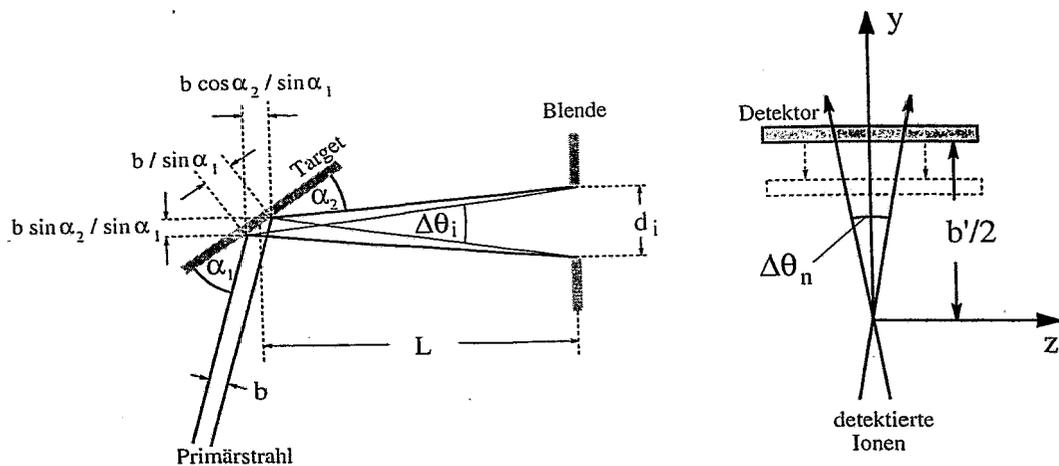
zustand des Primärions ab. Daraus folgt, dass der Ladungszustand nach einem Einzelstoß bereits zu einer gleichgewichtsähnlichen Verteilung führt. Der Vergleich von Einzelstoßverteilungen mit den Gleichgewichtsverteilungen zeigt einen geringfügigen Unterschied im Falle von Li- und C-Ionen. Für F- und Cl-Ionen ergibt sich ein deutlicher Unterschied. Während für Li-Ionen die Gleichgewichtsverteilung zu höheren Ladungszuständen führt, ist es bei C, F und Cl genau umgekehrt. Als Ursache für die mit zunehmender Kernladungszahl der Primärionen zunehmend größeren Unterschiede sind Auger-Kaskaden zu vermuten.

Die in der vorliegenden Arbeit präsentierten Untersuchungen zeigen, dass sich die HRBS mit schweren Ionen sehr gut zur Tiefenprofilierung von ultradünnen Schichtsystemen eignet. Die Messungen belegen, dass der Einfluss des Ladungszustandes wegen der großen Ähnlichkeit von Einzelstoß- und Gleichgewichtsladungsverteilungen zumindest in Tiefen unterhalb etwa 2 nm praktisch nicht messbar ist. Dies gilt zunächst nur für C- und Li-Ionen bei den hier verwendeten niedrigen Energien von einigen MeV. Es ist allerdings nicht zu erwarten, dass es bei anderen Ionen mit Kernladungen, die zwischen denen von Li und C liegen, eine deutlichere Abhängigkeit zu finden ist. Die Verwendung von F-Ionen scheint dagegen wegen des größeren Unterschiedes von Einzelstoß- und Gleichgewichtsladungsverteilung weniger angebracht, zumal in den meisten Fällen nur unmittelbar an der Oberfläche, also da, wo die meisten offenen Fragen hinsichtlich des Ladungszustandes zu erwarten sind, eine Verbesserung der Tiefenauflösung zu erwarten ist. Noch schwerere Ionen wie z. B. das ebenfalls untersuchte Cl, bringen neben einer wahrscheinlich deutlich grösseren Schädigung vor allem mehr offene Fragen über den Ladungszustand als Antworten auf die Fragen der Materialzusammensetzung. Als Primärionen für die HRBS sind daher in erster Linie, zumindest bei dem hier eingestzten Streuwinkel von  $35.5^\circ$  Li und C oder auch die hier nicht untersuchten Be und B geeignet.

Allgemeine theoretische Berechnungen zum Ladungszustand eines Ions nach einem Stoß mit einem Atom einer für die Fragestellungen der RBS typischen Masse sind im Moment nicht in Reichweite. Daher stellen die hier gezeigten Ladungszustandsverteilungen nach einem Einzelstoß einen wichtigen Beitrag zur Beurteilung der Anwendbarkeit der RBS mit schweren Ionen dar.

## Anhang A

# Kinematische Fehler und Strahlfleckfehler



**Abbildung A.1:** Zur Herleitung der kinematischen Fehler aufgrund von endlicher Detektoröffnung und endlicher Strahlfleckbreite sowie des Fokalebeneffehlers aufgrund der endlichen Strahlfleckbreite (zur Definition von  $y$  und  $z$  siehe auch Abbildung 3.4).

Abbildung A.1 zeigt eine typische Anordnung eines RBS-Experiments in Vorwärts-Streuerichtung. Die Divergenz des Primärstrahls ist nicht dargestellt. Beim Rossendorfer Browne-Buechner-Spektrometer beträgt  $b \approx 1$  mm und  $L = 507$  mm.  $d_i = 2.2$  mm ist effektiv durch die Breite des Detektors gegeben (siehe Abbildung 3.4). Senkrecht zur Detektionsrichtung beträgt die Strahlfleckbreite  $b \sin(\alpha_2) / \sin(\alpha_1)$ . Als effektiven Öffnungswinkel erhält man

$$\Delta \theta_i = 2 \arctan \left( \frac{b \frac{\sin \alpha_2}{\sin \alpha_1} + d_i}{2L} \right). \quad (\text{A.1})$$

Die zugehörige Verteilung ist keine Gaußverteilung, sondern eine Kastenverteilung. Für die Standardabweichung ergibt sich dann  $\sigma = \Delta \theta_i / 2\sqrt{3}$  und damit für die einer Gaußverteilung entspre-

chenden Halbwertsbreite  $\Delta\theta_{FWHM} = 2.35 \Delta\theta_i / 2\sqrt{3} = g \Delta\theta_i$ . Zusammen mit Gleichung (A.1) folgt daraus Gleichung (2.34).

Die Strahlfleckgröße parallel zur Detektionsrichtung und damit die Ausdehnung des Objektes beträgt (siehe Abbildung A.1 oben)  $b' = b \cos(\alpha_2) / \sin(\alpha_1)$ . Die daraus resultierende Verschmierung des Bildpunktes ist in Abbildung A.1 oben veranschaulicht. Es kommt zu einem Fokus vor oder hinter der Fokalebene und damit zu einer Verteilung  $\varphi(z)$  der Intensität des Bildes. In Abbildung A.1 sind die unterschiedlichen Foki durch eine Verschiebung des Detektors relativ zum festen Strahlenbündel der detektierten Ionen in der Fokalebene angedeutet. Der Übersichtlichkeit halber ist der Detektor senkrecht zu den Ionentrajektorien gezeichnet. Für die Verteilung  $\varphi(z)$  ergibt sich mit  $z_0 = \frac{b' \Delta\theta_n}{4}$

$$\varphi(z) = \begin{cases} 2 \int_{2z/\Delta\theta_n}^{b'/2} \frac{1}{y\Delta\theta_n} dy & , \quad 0 < y < z_0 \\ 2 \int_{-2z/\Delta\theta_n}^{b'/2} \frac{1}{y\Delta\theta_n} dy & , \quad -z_0 < y < 0 \end{cases} \quad (\text{A.2})$$

Nach Ausführung der Integration und Normierung erhält man

$$\bar{\varphi}(z) = \begin{cases} \frac{1}{2z_0} \ln\left(\frac{z_0}{z}\right) & , \quad 0 < y < z_0 \\ \frac{1}{2z_0} \ln\left(-\frac{z_0}{z}\right) & , \quad -z_0 < y < 0 \end{cases} \quad (\text{A.3})$$

Die Standardabweichung dieser Verteilung beträgt  $z_0/3$ . Da die Verteilung bei  $z = 0$  divergiert lässt sich keine Halbwertsbreite definieren. Die einer Gaußverteilung entsprechende Halbwertsbreite beträgt  $2.355 y_0 / 3 \simeq 0.2 b' \Delta\theta_n$ . Trägt man nun noch dem Winkel zwischen Fokalebene und der Teilchentrajektorie Rechnung so ergibt sich schließlich Gleichung (2.36).

## Anhang B

### Stragglings-Formeln

Im Folgenden werden die Begriffe Bohr-Stragglings, Chu-Stragglings und Yang-Stragglings zusammengestellt. Dabei wird die Dicke des durchlaufenen Materials mit  $x$  bezeichnet und in nm gemessen.

Bezeichnung	Formel (FWHM)	Gültigkeit
Bohr	$\delta E_{Bohr} = 0.038 \sqrt{Z_1^2 Z_2 N x}$	schnelle, nackte Ionen in leichten Targets (Streuung an freien Elektronen)
Chu	$\delta E_{Chu}^2 = H(Z_2, E/m_1) \delta E_{Bohr}^2$ (siehe Abb. 2.6)	Protonen und He-Ionen bei allen Energien in allen Targets (Streuung an gebundenen Elektronen)
Yang	$\delta E_{cheex}^2 = Y(E/Z_1^{3/2} Z_2^{1/2} m_1) \delta E_{Bohr}^2$ (siehe Abb. 2.7 und Abb. B.1) $\delta E_{Yang}^2 = f^2 \delta E_{Chu}^2 + \delta E_{cheex}^2$	berücksichtigt zusätzlich den Einfluß von Ladungsaustausch bei allen Projektilen und Targets (hier: Festkörpertargets) und allen Energien (Fit an experimentelle Daten)

**Tabelle B.1:** Übersicht über verschiedene Stragglings-Formeln. Die Einheiten lauten  $[x] = nm$ ,  $[N] = 10^{22} at/cm^3$ ,  $[m_1] = u$ . Es gilt  $f = Z^*/Z_1$  mit der effektiven Ladung  $Z^*$ .

Die zur Bohr-Theorie gehörige Verteilung ist in großen Tiefen gaußförmig und wird in kleinen Tiefen durch die Landau-Vavilov-Verteilung gegeben [Boh48, Lan44, Vav57].

Die Chu-Theorie ist eine verfeinerte Variante der Theorien von Bonderup und Hvelplund [Bon71] und Lindhard und Scharff [Lin53] und geht für große Energien in die Bohr-Theorie über. Die Verteilung ist für große Tiefen gaußförmig.<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Blunck und Leisegang erweitern die Landau-Theorie auf den Fall gebundener Elektronen und berechnen Energieverlustverteilungen für kleine Tiefen [Blu50].

Für Ionen, welche Elektronen mit sich führen, wird das Stragglings einerseits aufgrund der abschirmenden Wirkung dieser Elektronen reduziert und andererseits aufgrund von Ladungsaustauschprozessen erhöht. Ersteres lässt sich durch die Einführung einer effektiven Ladung  $Z^* = f \times Z_1$  berücksichtigen (in der Bohr-Formel ist dann die Ersetzung  $Z_1 \rightarrow Z^*$  durchzuführen), letzteres ist in der Yang-Formel in empirischer Form berücksichtigt.

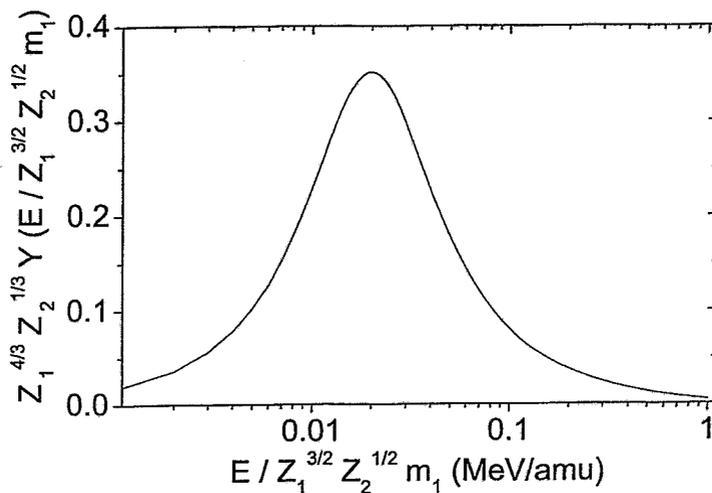


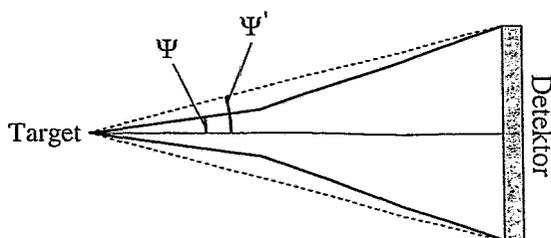
Abbildung B.1: Ladungsaustausch-Stragglings nach [Yan91].

## Anhang C

# Auswirkung der axialen Defokussierung auf den Raumwinkel

Nur im Idealfall eines verschwindenden Randfeldes ist der Effekt der axialen Ablenkung der Ionen exakt Null. Je größer das Randfeld wird, umso deutlicher ist dagegen ein Fokussierungs- oder Defokussierungseffekt zu spüren. Da der Polschuhabstand beim Rossendorfer Browne-Buechner-Magneten  $\sim 8\%$  des Krümmungsradius beträgt, ist eine merkliche Auswirkung nicht auszuschließen. Aus diesem Grund wurde die axiale Fokussierung mit Hilfe von SIMION simuliert. Dabei wurden die in Abbildung 3.7 gezeigten berechneten Felder benutzt. Da der Abfall der Feldkomponente  $B_x$  in diesem Fall langsamer ist als bei den gemessenen Feldern, wird der entsprechende Effekt eher überschätzt. Auf eine Vermessung der transversalen Komponenten wurde trotzdem verzichtet, da diese einen unnötig großen Aufwand darstellt und keine wesentlich neuen Erkenntnisse bringt.

Bezeichnet man den halben Öffnungswinkel des Spektrometers in der Streuebene mit  $\psi = \Delta\theta_i/2$  und senkrecht dazu mit  $\varphi = \Delta\theta_n/2$ , so ergibt sich aufgrund der Komponente des B-Feldes senkrecht zur Ionentrajektorie, eine Auslenkung des Ions in axialer Richtung. Diese Auslenkung bewirkt eine effektive Verschiebung des Winkels  $\psi$  auf einen Wert  $\psi' > \psi$  wie in Abbildung C.1 angedeutet. Die Abhängigkeit  $\psi'(\psi, \varphi)$  wurde durch eine SIMION-Simulation ermittelt und mit



**Abbildung C.1:** Schematische Darstellung der Wirkung der axialen Defokussierung. Die Teilchentrajektorie wird am Spektrometerein- und Ausgang durch die Wirkung der transversalen Randfelder axial ausgelenkt. Dadurch verändert sich der Öffnungswinkel  $\psi$  des Teilchens auf  $\psi'$

einer Funktion der Form

$$\psi' = a_1\varphi + a_2\psi + a_3\varphi\psi + a_4, \quad 0 < \psi < 3.5 \text{ mrad}, -35 \text{ mrad} < \varphi < 35 \text{ mrad} \quad (\text{C.1})$$

gefittet. Die Beschränkung auf  $\psi > 0$  beruht auf der Mittelebenensymmetrie. Die Simulation wurde nur für Teilchen der Sollbahn für  $90^\circ$ -Ablenkung, welche in der Mittelebene des Spektrometermagneten und in der Streuebene starten, durchgeführt. Für Teilchen mit nicht zu großen Abweichungen in Energie und Startposition ergibt sich aber keine wesentliche Änderung.

Die Fitparameter lauten  $a_1 = 0.00003$ ,  $a_2 = 1.0752$ ,  $a_3 = 2.3665$  und  $a_4 = 2.44 \times 10^{-6}$ . Der Raumwinkel ist definiert als

$$\Delta\Omega = 2 \int_{\varphi_{min}}^{\varphi_{max}} \int_0^{\psi_{max}(\psi'_{max})} d\psi d\varphi \quad (\text{C.2})$$

Es gilt  $-\varphi_{min} = \varphi_{max} = d_n/2L$ , wobei  $L$  der Blendenabstand ist und  $d_n$  die Blendenöffnung senkrecht zur Streuebene. Weiterhin gilt  $\psi'_{max} = d_{Det}/2L_{ges}$  mit der  $d_{Det}$  der Detektorbreite und  $L_{ges}$  der Gesamtlänge der Trajektorie.  $\psi_{max}(\psi'_{max})$  folgt durch Umkehrung aus Gleichung (C.1).

Führt man nun das Integral (C.2) aus und entwickelt das Ergebnis um  $\psi_0 = 0$  nach  $\psi_0$ , so ergibt sich

$$\Delta\Omega = 4\psi_{max}\varphi_{max}/a_2 - 4a_4\varphi_{max} + \mathcal{O}(\varphi_{max}^3) \approx 3.72\psi_{max}\varphi_{max}, \quad (\text{C.3})$$

da der zweite Term auf der linken Seite zu vernachlässigen ist. Dies ist zu vergleichen mit dem Ergebnis, welches sich bei kompletter Vernachlässigung der axialen Fokussierung ergibt:

$$\Delta\Omega = 4\psi_{max}\varphi_{max} \quad (\text{C.4})$$

Der Unterschied zwischen den Gleichungen (C.3) und (C.4) beträgt 7% und ist damit für die meisten Anwendungen der Ionenstrahlanalytik in Anbetracht der Genauigkeit, mit welcher andere relevante Größen wie Fluenz, Wirkungsquerschnitte und spezifischer Energieverlust bekannt sind, tolerabel.

## Anhang D

### Verwendete custom-files

Die in Kapitel 4 gezeigten WinDF-Fits wurden mit Hilfe des folgenden ndt.tcn-files erhalten [Bar97]:

1	1	flagoldb (0 for pure sim ann, 1 if jumps to grid search)
2	0 .01	flag4par: conv,chconv (0: fixed, 1: changes in grid search)
3	0 3.	off,choff
4	0 0.	pileup,chpileup
5	1 .05	cha_sol,chsolcha
6	0 .50	flagms, chms
7	0.500	pacctrns (fraction of initially accepted transitions-to calculate t0)
8	0.25 0.55	convcool offcool (define cooling rate)
9	750 200	safactor,saoffset (define length of Markov chain)
10	50000	lmarmax (maximum length of LMarkov)
11	0.005 0.001	error1,error2 (to stop first and second fit procedures)
12	0.001	tminimo (to exit from sim ann)
13	0.10	accmax maximum percentage of transitions accepted in one Markov chain
14	0.6	factnlay (weigth for chisquare < 2.)
15	10.	xadmin (minimum internal layer thickness)
16	10000.	maxthick (initial total thickness of sample)
17	50	nlini (initial number of layers)
18	3	compression (1-128 2-256 3-512)
19	1	convolution with FWHM (0 if not, 1 if yes)
20	1	1 if isotopes
21	0	figsmoo (0 if use raw data, 1 if smoothed-normal)
22	0	1 if post-processing normalises the output, 0 if not

WinDF kann Schichten mit einer kleineren Dicke als der in Zeile 15 definierten erzeugen, sofern im str-file keine kleinere maximale Schichtdicke eingegeben wird. Für Einzelheiten sei auf das WinDF-Handbuch, Version NDF v.7.6 verwiesen.

## Anhang E

# Shake-off-Wahrscheinlichkeiten

Die Wahrscheinlichkeit  $P_{0 \rightarrow k}$  für eine Anregung oder Ionisation eines Elektrons bei einer plötzlichen Beschleunigung eines Ions der Kernladung  $Z$  und der Ladung  $q_i$  auf die Geschwindigkeit  $v$  ist gegeben durch [Lan92, Mig39, Mig69]:

$$P_{0 \rightarrow k} = | \langle k | \exp \left( -i v \sum_{a=1}^{Z-q_i} \mathbf{r}_a \right) | 0 \rangle |^2. \quad (\text{E.1})$$

Dabei ist  $|k\rangle$  der angeregte Zustand und  $|0\rangle$  der Grundzustand des Atoms. Die Wahrscheinlichkeit für eine Anregung *oder* Ionisation beträgt

$$P = 1 - P_{0 \rightarrow 0}. \quad (\text{E.2})$$

Für wasserstoffähnliche Atome können die Anregungswahrscheinlichkeiten analytisch berechnet werden. Dabei spielen praktisch nur Anregungen bis zur M-Schale eine Rolle. Dieser Fall ist in Abbildung 2.11 dargestellt. In [Boe97] wird Gleichung (E.1) auch auf Atome mit mehreren Elektronen angewendet. Wenn Korrelationseffekte vernachlässigt werden, kann der Zustand  $|k\rangle$  des Atoms als Produkt von Ein-Elektron-Wellenfunktionen geschrieben werden. Nach [McG77, McG97] berechnet sich die Wahrscheinlichkeit für die Anregung eines bestimmten Elektrons dann aus den entsprechenden Ein-Elektron-Wellenfunktionen. Auf diese Weise erhält man Wahrscheinlichkeiten  $P_K, P_L, P_M, \dots$  für die Anregung eines Elektrons der K, L, M, ...-Schale. Die Wahrscheinlichkeit  $P(k, l, m, \dots)$  für die gleichzeitige Anregung von  $k, l, m, \dots$  Elektronen aus der mit  $N_K, N_L, N_M, \dots$  Elektronen belegten K-, L-, M-, ...-Schale ist dann durch eine multinomiale Verteilung gegeben:

$$P(k, l, m, \dots) = \binom{N_K}{k} P_K^k (1 - P_K)^{N_K - k} \times \binom{N_L}{l} P_L^l (1 - P_L)^{N_L - l} \times \binom{N_M}{m} P_M^m (1 - P_M)^{N_M - m} \times \dots \quad (\text{E.3})$$

Für die vorliegende Arbeit wurden zur Berechnung der Wellenfunktionen die Hartree-Fock-Slater aus [Her63] verwendet.

## Anhang F

# Mittlerer Ladungszustand - Fehlerbetrachtung

Der statistische Fehler bei der Bestimmung des mittleren Ladungszustandes  $\bar{q}$  ist bedingt durch den Fehler in der Messung jedes einzelnen Ladungszustandes. Der mittlere Ladungszustand ist definiert durch

$$\bar{q} = \frac{\sum_i q_i n_i}{\sum_i n_i}. \quad (\text{F.1})$$

Dabei erstreckt sich die Summe über alle relevanten Ladungszustände  $q_i$  mit Zählraten  $n_i$ . Die Zählraten gehorchen der Poisson-Statistik und sind bei nicht zu kleinen  $n_i$  durch eine Gaußverteilung mit einem Mittelwert  $\bar{n}_i$  und einer  $\sigma$ -Breite von  $\delta n_i = \sqrt{\bar{n}_i}$  gegeben. In guter Näherung kann man  $n_i = \bar{n}_i$  annehmen. Da die Ermittlung der Zählraten für jeden Ladungszustand statistisch unabhängig erfolgt, ist die Verteilung der Messwerte von  $\bar{q}$  ebenfalls durch eine Gaußverteilung mit der Breite

$$(\delta\bar{q})^2 = \sum_i \left( \frac{d\bar{q}}{dn_i} \delta n_i \right)^2 \quad (\text{F.2})$$

gegeben. Mit Gleichung (F.1) ergibt sich schließlich

$$(\delta\bar{q})^2 = \frac{1}{N^2} \sum_i (q_i - \bar{q})^2 n_i. \quad (\text{F.3})$$

Dabei ist  $N = \sum_i n_i$ . Für ein System, in welchem nur zwei Ladungszustände eine Rolle spielen beträgt der Fehler höchstens  $\delta\bar{q} = 1/(2\sqrt{N})$ . Für die Messung aus Abbildung 5.4 ist  $N \sim 1500$  und daher  $\delta\bar{q} \sim 0.01$ . Die Messungen für die verschiedenen Ladungszustände sind auf die Fluenz normiert. Diese lässt sich mit einer Genauigkeit von  $\delta Q/Q = 1\%$  reproduzieren. In (F.3) ist dann  $n_i$  durch  $n_i(1 + (\delta Q/Q)^2)$  zu ersetzen. Dieser Fehler ist für  $N=1500$  zu vernachlässigen.

Der systematische Fehler ist hauptsächlich durch Variationen von Messpunkt zu Messpunkt bedingt und lässt sich am besten durch wiederholte Messungen abschätzen. In Abbildung 5.4 beträgt der Fehler z. B. in  $\Gamma = F_2/F_3$  etwa  $\delta\Gamma=0.1$ . Daraus resultiert ein Fehler in  $\bar{q}$  von  $\delta\bar{q} = \frac{1}{(\Gamma+1)^2} \delta\Gamma \sim 0.02 - 0.04$ .

# Literaturverzeichnis

- [All57] F. G. Allen, J. Appl. Phys. 28 (1957) 1510
- [And77] H. H. Andersen und J. F. Ziegler, *The Stopping and Ranges of Ions in Matter*, Pergamon Press, New York, 1977
- [And80] H. H. Andersen, F. Besenbacher, P. Loftager und W. Möller, Phys. Rev. A21 (1980) 1891
- [And83] H. H. Andersen, Phys. Scr. 28 (1983) 268
- [Ara89] D.-E. Arafah, J. D. Meyer, H. Sharabati und A. Mahmoud, Phys. Rev. A39 (1989) 3836
- [Ari02] N. R. Arista, Nucl. Instr. and Meth. B195 (2002) 91
- [Arn92] A. Arnau, M. Penalba, P. M. Echenique und F. Flores, Nucl. Instr. and Meth. B69 (1992) 102
- [Arn93] W. M. Arnoldbik, W. Wolfswinkel, D. K. Inia, V. C. G. Verleun, S. Lobner, J. A. Reinders, F. Labohm und D. O. Boerma Nucl. Instr. and Meth. B118 (1996) 566
- [Arn94] A. Arnau, Nucl. Instr. and Meth. B93 (1994) 195
- [Arn96] A. Arnau, Nucl. Instr. and Meth. B115 (1996) 2
- [ASc00] A. Schinner und P. Sigmund, Nucl. Instr. and Meth. B164-165 (2000) 220
- [Aze00] G. M. de Azevedo, P. L. Grande und G. Schiwietz, Nucl. Instr. and Meth. B164-165 (2000) 203
- [Bak51] C. J. Bakker und E. Segrè, Phys. Rev. 81 (1951) 489
- [Bal90] G. C. Ball, T. K. Alexander, H. R. Andrews, W. G. Davies und J. S. Forster, Nucl. Instr. and Meth. B48 (1990) 125
- [Bau02] A. Baurichter, P. Sigmund und A. H. Sørensen, Nucl. Instr. and Meth. B195 (2002) 224
- [Bar97] N. P. Barradas, C. Jeynes und R. P. Webb, Appl. Phys. Lett. 71 (1997) 291
- [Ber72] K. H. Berkner, I. Bornstein, R. V. Pyle und W. Stearns, Phys. Rev. A6 (1972) 278

- [Bes80] F. Besenbacher, J. U. Andersen und E. Bonderup, Nucl. Instr. and Meth. 168 (1980) 1
- [Bet72] H. D. Betz, Rev. Mod. Phys. 44 (1972) 465
- [Bet88] H.-D. Betz, R. Höppler, R. Schramm und W. Oswald, Nucl Instr. and Meth. B33 (1988) 185
- [Bie88] J. P. Biersack, Nucl. Instr. and Meth. B35 (1988) 205
- [Bis86] L. Bischoff, J. v. Borany, H. Morgenstern, B. Schmidt und D. Schubert, *Strahlenschäden in Si-Halbleiterdetektoren*, Akademie der Wissenschaften der DDR, ZfK-579, 1986
- [Blo33] F. Bloch, Ann. Phys. (Leipzig) 16 (1933) 285
- [Blo99] G. Blohm, *Ionenstreuung mit Monolagen-Tiefenaufklärung*, Diplomarbeit, Max-Planck-Institut für Metallforschung, Stuttgart 1999
- [Blu50] O. Blunck und S. Leisegang, Z. Physik 128 (1950) 500
- [Boe90] D. O. Boerma, F. Labohm und J. A. Reinders, Nucl. Instr. and Meth. B50 (1990) 291
- [Boe97] D. O. Boerma, W. M. Arnoldbik, N. M. Kabachnik und V. A. Khodyrev, Nucl. Instr. and Meth. B122 (1997) 181
- [Boh15] N. Bohr, Phil. Mag. 30 (1915) 581
- [Boh48] N. Bohr, Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk. 18, No. 8 (1948)
- [Bon71] E. Bonderup und P. Hvelplund, Phys. Rev. A4 (1971) 562
- [Boz90] M. Bozoian, K. M. Hubbard, und M. Nastasi, Nucl. Instr. and Meth. B51 (1990) 311  
M. Bozoian, Nucl. Instr. and Meth. B58 (1991) 127  
M. Bozoian, Nucl. Instr. and Meth. B82 (1993) 602
- [Bra56] C. M. Braams, PhD Thesis, Physisch Laboratorium der Rijksuniversiteit, Utrecht, Niederlande (1956)
- [Bra82] W. Brandt und M. Kitagawa, Ohys. Rev. B25 (1982) 5631
- [Bra00] St. Braun, private Mitteilung, 2000
- [Bra01] St. Braun, R. Dietsch, M. Haidl, Th. Holz, H. Mai, S. Müllender und R. Scholz, Microelectr. Eng. 57-58 (2001) 9
- [Bra01b] St. Braun, private Mitteilung, 2001
- [Bro56] C. P. Browne und W. W. Buechner, Rev. Sci. Instrum. 27 (1956) 899
- [Bue01] W. Bürger, private Mitteilung, 2001
- [Bur60] R. L. Burman und A. I. Yavin, Nucl. Instr. and Meth. 7 (1960) 101

- [Car98] H. D. Carstanjen, Nucl. Instr. and Meth. B136-138 (1998) 1183
- [Cue80] N. Cue, N. V. de Castro Faria, M. J. Gaillard, J. C. Poizat und R. Remillieux, Nucl. Instr. and Meth. 170 (1980) 67
- [Chu76] W. K. Chu, Phys Rev. 13 (1976) 2057
- [Chu78] W. K. Chu, J. W. Mayer und M. A. Nicolet, *Backscattering Spectrometry*, Academic Press, Orlando, 1978
- [Cow84] N. E. B. Cowern, P. M. Read, C. J. Sofield, L. B. Bridwell und M. W. Lukas, Phys. Rev. A30 (1984) 1682
- [Cow85] N. E. B. Cowern, P. M. Read und C. J. Sofield, Nucl. Instr. and Meth. B12 (1985) 43
- [Dah95] D. A. Dahl, SIMION 3D Version 6.0, 43rd ASMS Conference on Mass Spectrometry and Allied Topics, May 21-26 1995, Atlanta, Georgia, S. 717.
- [Dew94] D. P. Dewangan und J. Eichler, Phys. Rep. 247 (1994) 59
- [Die79] D. Dieumegard und D. Dubreuil, Nucl. Instr. and Meth. 166 (1979) 431
- [Din92] Y. G. Ding, C. T. Chan und K. M. Ho, Surf. Sci. Lett. 275 (1992) 691
- [Dmi93] I. S. Dmitriev und V. S. Nikolaev, Technical Physics 38 (1993) 26
- [Dol92] G. Dollinger, T. Faestermann und P. Maier-Komor, Nucl. Instr. and Meth. B 64 (1992) 422
- [Dol98] G. Dollinger, M. Boulouednine, A. Bergmaier und T. Faestermann, Nucl. Instr. and Meth. B136 (1998) 574
- [Dol98b] G. Dollinger, C. M. Frey, A. Bergmaier und T. Faestermann, Nucl. Instr. and Meth. B136-138 (1998) 603
- [Eck76] W. Eckstein und F. E. P. Matschke, Phys. Rev. B14 (1976) 3231
- [Eck99] W. Eckstein und M. Mayer, Nucl. Instr. and Meth. B153 (1999) 337
- [Efk75] B. Efken, D. Hahn, D. Hilscher und G. Wüstefeld, Nucl. Instr. and Meth. 129 (1975) 219
- [EIS97] A. El-Shemi, Y. Lofty und G. Zschornack, J. Phys. B30 (1997) 237
- [End92] Th. Enders, M. Rilli und H. D. Carstanjen, Nucl. Instr. and Meth. B64 (1992) 817
- [Eng58] H. A. Enge, Rev. Sci. Instrum. 29 (1958) 885
- [Eng79] H. A. Enge, Nucl. Instr. and Meth. 162 (1979) 161
- [Fel82] L. C. Feldman, J. W. Mayer und S. T. Picraux, *Materials Analysis by Ion Channeling*, Academic Press, New York, 1982

- [Feu76] A. Feuerstein, H. Grahmann, S. Kalbitzer, H. Oetzmann, in: O. Meyer, G. Linker, F. Käppeler (Herausgeber), *Proc. 2nd. Int. Conf. on Ion Beam Surface Analysis*, Plenum, New York, 1976, S. 471
- [Fre95] C. M. Frey, G. Dollinger, A. Bergmaier, T. Faestermann, P. Maier-Komor, *Nucl. Instr. and Meth. B99* (1995) 205
- [Fre96] C. M. Frey, G. Dollinger, A. Bergmaier, T. Faestermann, P. Maier-Komor, *Nucl. Instr. and Meth. B107* (1996) 31
- [Fri86] M. Friedrich, *Brohr und Sysfit*, Akademie der Wissenschaften der DDR, ZfK-577, 1986
- [Fri01] M. Friedrich, private Mitteilung, 2001
- [Fuk88] F. Fukuzawa, Y. Kanamori und Y. Haruyama, *Nucl. Instr. and Meth. B33* (1988) 224
- [Gai77] M. J. Gaillard, J. C. Poizat, A. Ratkowski, J. Remillieux und M. Auzas, *Phys. Rev. A16* (1977) 2323
- [Gar73] J. D. Garcia, R. J. Fortner und T. M. Kavanagh, *Rev. Mod. Phys.* 45 (1973) 111
- [Gla97] L. Glazov und P. Sigmund, *Nucl. Instr. and Meth. B125* (1997) 110
- [Gla00] L. Glazov und P. Sigmund, *Nucl. Instr. and Meth. B170* (2000) 39
- [Gla02] L. G. Glazov, *Nucl. Instr. and Meth. B195* (2002) 118
- [Gra96] P. L. Grande, G. Schiwietz, G. M. Sigaud und E. C. Montenegro, *Phys. Rev. A54* (1996) 2983
- [Gra97] P. L. Grande und G. Schiwietz, *Nucl. Instr. and Meth. B132* (1997) 264
- [Gra99] D. Grambole und F. Hermann, private Mitteilung, 1999
- [Gra98] P. L. Grande und G. Schiwietz, *Phys. Rev. A58* (1998) 3796
- [Gra02] P. L. Grande und G. Schiwietz, *Nucl. Instr. and Meth. B195* (2002) 55
- [GSc99] G. Schiwietz und P. L. Grande, *Nucl. Instr. and Meth. B153* (1999) 1
- [Gui82] F. Guinea, F. Flores und P. M. Echenique, *Phys. Rev. B25* (1982) 6109
- [Hag79] M. Hage-Ali, P. Siffert, *Nucl. Instr. and Meth.* 166 (1979) 411
- [Hai84] R. Haight, L. C. Feldman, T. M. Buck und W. M. Gibson, *Phys. Rev. B30* (1984) 734
- [Har82] Y. Haruyama, Y. Kanamori, T. Kido und F. Fukuzawa, *J. Phys. B15* (1982) 779
- [Har90] Y. Haruyama, H. Ogawa, I. Katayama, T. Noro, H. Ikegami, F. Fukuzawa, K. Yoshida, M. Tosaki, A. Aoki und I. Sugai, *Nucl. Instr. and Meth. B48* (1990) 130
- [Har96] B. Hartmann, S. Kalbitzer, Ch. Klatt, *Nucl. Instr. and Meth. B113* (1996) 50

- [Har97] B. Hartmann, S. Kalbitzer, Ch. Klatt, Nucl. Instr. and Meth. B124 (1997) 490
- [Hen94] M. Henzler und W. Göpel, *Oberflächenphysik des Festkörpers*, Teubner Studienbücher Physik, Stuttgart, 1994
- [Her63] H. Herman und S. Skillman, *Atomic Structure Calculations*, Prentice-Hall, Englewoods Cliffs, NJ, 1963
- [Her94] R. Herrmann, C. L. Cocke, J. Ullrich, S. Hagemann, M. Stoeckli und H. Schmidt-Boecking, Phys. Rev. A50 (1994) 1435
- [Her01] F. Herrmann, private Mitteilung, 2001
- [Hir76] J. K. Hirvonen und G. K. Hubler, in: O. Meyer, G. Linker und F. Käppeler (Herausgeber), *Proc. 2nd. Int. Conf. on Ion Beam Surface Analysis*, Plenum, New York 1976, S. 457
- [Jak89] D. H. Jakubaša-Amundsen, Int. J. Mod. Phys. A4 (1989) 769
- [Jam97] S. Jamecsny und H. D. Carstanjen, Nucl. Instr. and Meth. B125 (1997) 128
- [Jam98] S. Jamecsny, *Hochauflösende Ionenstreuung: Untersuchungen zur Auflösungsgrenze, zur Ladungszustandsverteilung und Analyse der anisotropen Oxidation von Aluminium-Einkristall-Oberflächen*, Dissertation, Max-Planck-Institut für Metallforschung, Stuttgart 1998
- [Jan85] R. K. Janev und H. Winter, Phys. Rep. 117 (1985) 265
- [Jey00] C. Jeynes, N. P. Barradas, H. Rafla-Yuan H, B. P. Hichwa und R. Close, Surf. Interface Anal. 30 (2000) 237
- [Jia99] W. Jiang, R. Grötzschel, W. Pilz und W. Möller, Phys. Rev. B59 (1999) 226
- [Joh85] W. L. Johnson, Y. T. Cheng, M. Van Rossum, M. A. Nicolet, Nucl. Instr. and Meth. B7/8 (1985) 657
- [Jua99] J. I. Juaristi, A. Arnau, P. M. Echenique, C. Auth, H. Winter, Nucl. Instr. and Meth. B175 (1999) 87
- [Kho97] V. A. Khodyrev und D. O. Boerma, Rad. Eff. Def. in Sol. 142 (1997) 173
- [Kid77] Y. Kido, M. Asari, A. Nakata und F. Fukuzawa, Nucl. Instr. and Meth. 143 (1977) 601
- [Kid79] Y. Kido, Y. Kanamori und F. Fukuzawa, Nucl. Instr. and Meth. 164 (1979) 565
- [Kim92] K. Kimura, H. Ohtsuka und M. Mannami, Phys. Rev. Lett. 68 (1992) 3797
- [Kim94] K. Kimura, K. Ohshima und M. Mannami, Appl. Phys. Lett. 64 (1994) 2232
- [Kim96] K. Kimura und M.-h. Mannami, Nucl. Instr. and Meth. B 113 (1996) 270

- [Kii02] M. Kiisk, B. Erlandsson, M. Faarinen, R. Hellborg, K. Hakansson, P. Persson, G. Skog und K. Stenstrom, Nucl. Instr. and Meth. A481 (2002) 1
- [Kra79] M. O. Krause, J. Phys. Chem. Ref. Data 8 (1979) 307
- [Lae79] E. Laegsgaard, Nucl. Instr. and Meth. 162 (1979) 93
- [Lan44] L. D. Landau, J. Phys. USSR 8 (1944) 201
- [Lan92] L. D. Landau und J. M. Lifschitz, *Quantenmechanik*, Harri Deutsch, Frankfurt/M, 1992
- [Lan98] W. A. Lanford, B. Anderberg, H. Enge, B. Hjorvarsson, Nucl. Instr. and Meth. B136-138 (1998) 1177
- [Lan00] W. A. Lanford, S. Bedell, S. Amadon, A. Haberl, W. Skala, B. Hjorvarsson, Nucl. Instr. and Meth. B161-163 (2000) 202
- [Leo87] W. R. Leo, *Techniques for Nuclear and Particle Physics Experiments*, Springer-Verlag, Heidelberg, 1987
- [Lin53] J. Lindhard und M. Scharff, Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk. 27, No. 15 (1953)
- [Lin63] J. Lindhard, M. Scharff und H. E. Schippt, K. Dan. Vidensk. Selsk. Mat. Fys. Medd 33, No. 14 (1963)
- [Lin64] J. Lindhard und A. Winther, Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk. 34 (1964) 1
- [Lin68] J. Lindhard, V. Nielsen und M. Scharff, K. Dan. Vidensk. Selsk. Mat. Fys. Medd 36, No. 10 (1968)
- [Lur76] A. Lurio und J. F. Ziegler, in: *Beam-foil spectroscopy*, Vol. 2, Plenum Press, New York, 1976, S. 665
- [McD94] E. W. McDaniel und E. J. Mansky, Adv. in At. Mol. and Opt. Phys. 33 (1994) 390
- [McG77] J. H. McGuire und L. Weaver, Phys. Rev. A16 (1977) 41
- [McG97] J. H. McGuire, *Electron Correlation Dynamics in Atomic Collisions*, Cambridge Monographs on Atomic, Molecular and Chemical Physics, Cambridge University Press, Cambridge, 1997
- [Mer84] M. Meron und B. Rosner, Phys. Rev. A30 (1984) 132, und Zitate darin
- [Moa67] C. D. Moak, H. O. Lutz, L. B. Bridwell, L. C. Northcliffe und S. Datz, Phys. Rev. Lett. 18 (1967) 41
- [Mig39] A. B. Migdal, Zh. Eksp. Teor. Fiz. 9 (1939) 1163
- [Mig69] A. B. Migdal, V. P. Krajnov, *Approximation methods in quantum mechanics*, Benjamin, New York, 1969

- [Mur01] M. Murayama, T. Nakayama und A. Natori, Surf. Sci. 493 (2001) 626
- [Mue01] A. Mücklich, private Mitteilung, 2001
- [Nae94] A. Nährmann und P. Sigmund, Phys. Rev. A49 (1994) 4709.
- [Nae95] A. Nährmann, Phys. Rev. A51 (1995) 548
- [Nag01] R. Nagel, C. Alof, A. G. Balogh, W. M. Arnoldbik und D. O. Boerma, Nucl. Instr. and Meth. B183 (2001) 140
- [Nik68] V. S. Nikolaev und I. S. Dmitriev, Phys. Lett. 28A (1968) 277
- [Nor63] L. C. Northcliffe, Ann. Rev. Sci. 13 (1963) 67
- [Oen83] O. S. Oen, Surf. Sci. 131 (1983) L407
- [Oga91] H. Ogawa, I. Katayama, H. Ikegami, Y. Harayuma, A. Aoki, M. Tosaki, F. Fukuzawa, K. Yoshida und I. Sugai, Phys. Lett. A160 (1991) 77
- [Oga91b] H. Ogawa, I. Katayama, H. Ikegami, Y. Harayuma, A. Aoki, M. Tosaki, F. Fukuzawa, K. Yoshida, I. Sugai und T. Kaneko, Phys. Rev. B43 (1991) 11370
- [Oga92] H. Ogawa, I. Katayama, I. Sugai, Y. Harayuma, M. Tosaki, A. Aoki, K. Yoshida und H. Ikegami, Phys. Lett. A167 (1992) 487
- [Oga92b] H. Ogawa, I. Katayama, I. Sugai, Y. Harayuma, A. Aoki, M. Tosaki, F. Fukuzawa, K. Yoshida und H. Ikegami, Nucl. Instr. and Meth. B69 (1992) 108
- [Oga93] H. Ogawa, I. Katayama, I. Sugai, Y. Harayuma, M. Saito, K. Yoshida, M. Tosaki und H. Ikegami, Nucl. Instr. and Meth. B82 (1993) 80
- [Oga96] H. Ogawa, I. Katayama, I. Sugai, Y. Harayuma, M. Saito, K. Yoshida und M. Tosaki, Nucl. Instr. and Meth. B115 (1996) 66
- [Oma91a] G. Omar und Y. Hahn, Phys. Rev. A43 (1991) 4695
- [Oma91b] G. Omar und Y. Hahn, Phys. Rev. A44 (1991) 483
- [Ove96] H. Over und S. Y. Tong, in: W. N. Unertl (Herausgeber), *Handbook of Surface Science*, Vol.1, Elsevier, Amsterdam, 1996, S. 492
- [Pau00] H. Paul, A. Schinner, P. Sigmund, Nucl. Instr. and Meth. B164 (2000) 212
- [Pau01] H. Paul und A. Schinner, Nucl. Instr. and Meth. B179 (2001) 299
- [Pla97] R. Plass und L. D. Marks, Surf. Sci. 380 (1997) 497
- [Pro02] F. Prokert, private Mitteilung, 2001
- [Ros86] G. G. Ross und B. Terreault, Nucl. Instr. and Meth. B15 (1986) 146
- [Roz96] J. P. Rozet, C. Stephan und D. Vernhet, Nucl. Instr. and Meth. B107 (1996) 67

- [Rus63] A. Russek, Phys. Rev. A132 (1963) 246
- [Sal87] F. Salvat, J. D. Martinez, R. Mayol, und J. Parellada, Phys. Rev. A36 (1987) 467
- [San95] M. M. Sant'Anna, W. S. Melo, A. C. F. Santos, G. M. Sigaud und E. C. Montenegro, Nucl. Instr. and Meth. B99 (1995) 46
- [Sch94] G. Schiwietz und P. L. Grande, Rad. Eff. Def. in Sol. 130 (1994) 137
- [Sch98] O. Schmelmer, G. Dollinger, C. M. Frey, A. Bergmaier und S. Karsch, Nucl. Instr. and Meth. B146 (1998) 95
- [Sch01] G. Schiwietz und P. L. Grande, Nucl. Instr. and Meth. B175-177 (2001) 125
- [Shi82] K. Shima, T. Ishihara und T. Mikumo, Nucl. Instr. and Meth. 200 (1982) 605
- [Shi83] K. Shima, T. Ishihara, T. Momoi, T. Miyoshi, K. Numata und T. Mikumo, Phys. Lett. A98 (1983) 106
- [Shi85] K. Shima, T. Mikumo und H. Tawara, At. Data Nucl. Data Tables 34 (1985) 358
- [Shi85b] K. Shima, Nucl. Instr. and Meth. B10/11 (1985) 45
- [Shi88] K. Shima, E. Nakagawa, T. Kakita, M. Yamanouchi, Y. Awara, T. Kambara, T. Mizogawa und Y. Kanai, Nucl. Instr. and Meth. B33 (1988) 212
- [Shi92] K. Shima, N. Kuno, M. Yamanouchi und H. Tawara, At. Data Nucl. Data Tables 51 (1992) 173
- [Sig74] P. Sigmund und K. B. Winterbon, Nucl. Instr. and Meth. 119 (1974) 541
- [Sig81] P. Sigmund und A. Gras-Marti, Nucl. Instr. and Meth. 182/183 (1981) 25
- [Sig84] P. Sigmund und K. B. Winterbon, Nucl. Instr. and Meth. B12 (1984) 1
- [Sig91] P. Sigmund in *Interaction of Charged Particles with Solids and Surfaces*, herausgegeben von A. Gras-Marti et al., Plenum Press, New York, 1991, S.73
- [Sig92] P. Sigmund, Nucl. Instr. and Meth. B69 (1992) 113
- [Sig94] P. Sigmund, Phys. Rev. A50 (1994) 3197
- [Sig96] P. Sigmund, Nucl. Instr. and Meth. B115 (1996) 111
- [Sig96b] P. Sigmund, Phys. Rev. A54 (1996) 3113
- [Sig97] P. Sigmund, Phys. Rev. A 56 (1997) 3781
- [Sig97b] P. Sigmund, Nucl. Instr. and Meth. B125 (1997) 77
- [Sig98] P. Sigmund und L. Glazov, Nucl. Instr. and Meth. B136-138 (1998) 47
- [Sig00] P. Sigmund und A. Schinner, Eur. Phys. J. D12 (2000) 425

- [Sig00b] P. Sigmund, *Eur. Phys. J. D12* (2000) 111
- [Sig01] P. Sigmund und A. Schinner, *Phys. Scr. T92* (2001) 222
- [Sig01b] P. Sigmund und A. Schinner, *Nucl. Instr. and Meth. B174* (2001) 535
- [Sig02] P. Sigmund und A. Schinner, *Nucl. Instr. and Meth. B195* (2002) 64
- [Sme82] R. G. Smeenk, R. M. Tromp, H. H. Kersten, A. J. H. Boerboom und F. W. Saris, *Nucl. Instr. and Meth.* 195 (1982) 581
- [Sof80] C. J. Sofield, N. E. B. Cowern, J. Draper, L. Bridwell, J. M. Freeman, C. J. Woods und M. Spencer-Harper, *Nucl. Instr. and Meth.* 170 (1980) 257
- [Sof89] C. J. Sofield, L. B. Bridwell, C. D. Moak, P. D. Miller, D. C. Gregory, C. M. Jones, G. D. Alton, P. L. Pepmiller und J. M. Hall, *Phys. Rev. A40* (1989) 59
- [Sol84] F. Sols und F. Flores, *Phys. Rev. B30* (1984) 4878
- [Sol86] F. Sols und F. Flores, *Nucl. Instr. and Meth. B13* (1986) 171
- [Str02] D. Strivay, private Mitteilung, 2002
- [Szi95] E. Szilágyi, F. Pászti und G. Amsel, *Nucl. Instr. and Meth. B100* (1995) 103
- [Tab79] T. Tabata und R. Ito, *Nucl. Instr. and Meth.* 158 (1979) 521
- [Trz01] W. H. Trzaska, T. Alanko, V. Lyapin und J. Räisänen, *Nucl. Instr. and Meth. B183* (2001) 203
- [Trz02] W. H. Trzaska, V. Lyapin, T. Alanko, M. Mutterer, J. Räisänen, G. Tjurin und M. Wojdyr, *Nucl. Instr. Meth. B195* (2002) 147
- [Tyr01] H. Tyrroff und W. Neumann, *Wissenschaftlich-Technische Berichte, FZR-308, Forschungszentrum Rossendorf, Januar 2001*
- [Vav57] P. V. Vavilov, *Sov. Phys. JETP* 5 (1957) 749
- [Voi99] A. B. Voitkiv, G. M. Sigaud und E. C. Montenegro, *Phys. Rev. A59* (1999) 2794
- [Voi00] A. B. Voitkiv, N. Grün und W. Scheid, *J. Phys. B33* (2000) 3431
- [Whi02] H. J. Whitlow, H. Timmers, R. G. Elliman, T. D. M. Weijers, Y. Zhang, J. Uribastera und D. J. O'Connor, *Nucl. Instr. and Meth. B190* (2002) 84
- [Whi02b] H. J. Whitlow, H. Timmers, R. G. Elliman, T. D. M. Weijers, Y. Zhang und D. J. O'Connor, *Nucl. Instr. and Meth. B195* (2002) 133
- [Wil77] W. D. Wilson, L. G. Haggmark und J. P. Biersack, *Phys. Rev. B15* (1977) 2458
- [Wil86] U. Wille und R. Hippler, *Phys. Rep.* 132 (1986) 129
- [Win77] K. B. Winterbon, *Nucl. Instr. and Meth.* 144 (1977) 311

- [Wit73] A. B. Wittkower und H. D. Betz, *At. Data* 5 (1973) 113
- [Woo84] C. J. Woods, C. J. Sofield, N. E. B. Cowern, M. Murrell und J. Draper, *J. Phys.* B17 (1984) 867
- [Yan91] Q. Yang, D. J. O'Connor und Z. Wang, *Nucl. Instr. and Meth.* B61 (1991) 149
- [Yan93] Q. Yang und R.J. McDonald, *Nucl. Instr. Meth.* B83 (1993) 303
- [Yan94] Q. Yang, *Phys. Rev.* A49 (1994) 1089
- [Zai84] V. Z. Zaikov, E. A. Kralkina, N. F. Vorobjev, I. S. Dmitriev, V. S. Nikolaev und Y. A. Teplova, *Nucl. Instr. and Meth.* B5 (1984) 10
- [Zie85] J. F. Ziegler, J. P. Biersack und U. Littmark, *The Stopping and Ranges of Ions in Matter*, Pergamon Press, New York, 1985
- [Zha01] Y. Zhang, G. Possnert und H. J. Whitlow, *Nucl. Instr. and Meth.* B 183 (2001) 34

## Danksagung

Den folgenden Personen möchte ich für ihre Unterstützung danken:

Herrn Prof. Wolfhard Möller für die Möglichkeit, die Arbeit im Institut für Ionenstrahlphysik und Materialforschung durchführen zu können,

Herrn Dr. Rainer Grötzschel für die tatkräftige Unterstützung der Arbeit und die stete Bereitschaft zu Diskussionen,

Herrn Dr. Olaf Kruse für die Einarbeitung in das Gebiet der Ionenstrahlanalytik, die Begleitung der Arbeit in deren Anfangsphase und die kollegiale Zusammenarbeit,

Herrn Dr. Max Mäder für die unermüdliche Unterstützung der Arbeit in der Endphase sowie für die Durchsicht der Arbeit und die zahlreichen wertvollen Verbesserungsvorschläge,

Herrn Stefan Braun für die Bereitstellung der Multischichten und der entsprechenden XRD-Daten,

Herrn Dr. Arndt Mücklich für die Durchführung der TEM-Messungen,

Herrn Dr. Horst Thyroff für anregende Diskussionen zum Thema Ionenoptik,

Herrn Dr. Manfred Friedrich und Herrn Dr. Wieland Bürger und allen Mitarbeitern der Abteilung Beschleunigertechnik für den Aufbau der Strahlführung und die zuverlässige Lieferung unzähliger Ionen sowie die gute Zusammenarbeit während der Experimente,

den Herren Fritz Nötzold und Gert Grunert für die Konstruktion und Herstellung zahlreicher Komponenten, ohne die das Browne-Buechner-Spektrometer nicht funktionieren würde sowie für die Hilfe beim Aufbau der Streukammer und des Spektrometers,

Herrn Dietmar Maul und Herrn Konrad Thiemig sowie Herrn Edgar Mende und den Mitarbeitern der Abteilung Technik für die Anfertigung zahlreicher Komponenten für das Spektrometer und die Streukammer,

Frau Lianne Kumpf für die Konzipierung und Herstellung der Pumpensteuerung und die wertvolle Hilfen und Tipps in allen Fragen der Elektronik,

Frau Ingrid Beatus für die Reinigung zahlreicher Proben,

Herrn Dr. Bernd Schmidt für die Hilfe bei Problemen mit dem ortsauflösenden Detektor, allen Kollegen der Abteilung Ionenstrahlanalytik für die angenehme Arbeitsatmosphäre und die zahlreichen Tipps und Diskussionen im Zusammenhang mit dem Aufbau des Experiments.

## Versicherung

Hiermit versichere ich, dass ich die vorliegende Arbeit ohne unzulässige Hilfe Dritter und ohne Benutzung anderer als der angegebenen Hilfsmittel angefertigt habe; die aus fremden Quellen direkt oder indirekt übernommenen Gedanken sind als solche kenntlich gemacht. Die Arbeit wurde bisher weder im Inland noch in Ausland in gleicher oder ähnlicher Form einer anderen Prüfungsbehörde vorgelegt.

Christoph Klein,  
Forschungszentrum Rossendorf,  
Dezember 2002