

Energieeintrag langsamer hochgeladener Ionen in Festkörperoberflächen

Daniel Kost

August 2007

Wissenschaftlich - Technische Berichte
FZD-479 2007 · ISSN 1437-322X

WISSENSCHAFTLICH-TECHNISCHE BERICHTE



Forschungszentrum
Dresden Rossendorf

Wissenschaftlich-Technische Berichte
FZD-479
August 2007

Daniel Kost

Energieeintrag langsamer hochgeladener Ionen in Festkörperoberflächen

Bibliothek D 120



100102505



Forschungszentrum
Dresden Rossendorf

Energieeintrag langsamer hochgeladener Ionen in Festkörperoberflächen

Dissertation
zur Erlangung des akademischen Grades
Doctor rerum naturalium
(Dr. rer. nat.)

vorgelegt von

Daniel Kost

geboren am 6. August 1977
in Freital

Fakultät Mathematik und Naturwissenschaften
an der Technischen Universität Dresden
2006

1. Gutachter: Prof. Dr. W. Möller

2. Gutachter: Priv. Doz. Dr. G. Zschornack

3. Gutachter: Prof. Dr. Bernd Huber

eingereicht am: 15. Dezember 2006

verteidigt am: 26. April 2007

Kurzfassung

Motiviert durch die in der Literatur bisher unvollständige Beschreibung der Relaxation hochgeladener Ionen vor Festkörperoberflächen, besonders in Bezug auf den Eintrag potenzieller Energie in Oberflächen und der Aufstellung einer vollständigen Energiebilanz, werden in dieser Arbeit komplementäre Studien präsentiert, die sowohl die Ermittlung des Anteils der deponierten potenziellen Energie als auch die Ermittlung der emittierten potenziellen Energie ermöglichen. Zum Einen wird zur Bestimmung des eingetragenen Anteils der potenziellen Energie eine kalorimetrische Messanordnung verwendet, zum Anderen gelingt die Bestimmung der emittierten potenziellen Energie mittels doppeldifferenzieller Elektronenspektroskopie. Für vertiefende Studien werden Materialien unterschiedlicher elektronischer Strukturen (Cu, n-Si, p-Si und SiO₂) verwendet.

Im Falle der Kalorimetrie wird festgestellt, dass die eingetragene potenzielle Energie linear mit der inneren potenziellen Energie der Ionen wächst. Dabei bleibt das Verhältnis zwischen der eingetragenen potenziellen Energie und der inneren potenziellen Energie nahezu konstant bei etwa $(80 \pm 10) \%$. Der Vergleich von Cu, n-Si und p-Si zeigt im Rahmen der Messfehler keine signifikanten Unterschiede in diesem Verhältnis. Es liegen jedoch deutlich unter jenem von SiO₂.

Die Elektronenspektroskopie liefert ein dazu komplementäres Ergebnis. Für Cu und Si konnte ebenfalls eine lineare Abhängigkeit zwischen emittierter Energie und innerer potenzieller Energie festgestellt werden. Das Verhältnis wurde hierfür bis zum Ladungszustand bis Ar⁷⁺ zu etwa $(10 \pm 5) \%$ unabhängig vom Ladungszustand bestimmt. Im Gegensatz dazu liefert SiO₂ eine nahezu verschwindende Elektronenausbeute. Für Ar⁸⁺ und Ar⁹⁺ steigt die Elektronenausbeute wegen der Beiträge der LMM-Augerelektronen für alle untersuchten Materialien leicht an. Der Anteil der emittierten Energie eines Ar⁹⁺-Ions wird für Cu und Si zu etwa 20 % und für SiO₂ zu etwa 10 % angegeben. Diese Ergebnisse sind in guter Übereinstimmung mit den Kalorimetrieexperimenten und erfüllen die Energiebilanz.

Zusätzlich werden die experimentellen Ergebnisse mit einer Computersimulation modelliert, welche auf dem erweiterten dynamischen klassischen Barrierenmodell basiert. Aus diesen Rechnungen kann zudem jener Anteil der deponierten potenziellen Energie erhalten werden, welcher durch Bildladungsbeschleunigung vor der Oberfläche in kinetische Energie umgewandelt wurde.

Abstract

Motivated by the incomplete scientific description of the relaxation of highly charged ions in front of solid surfaces and their energy balance, this thesis describes an advanced complementary study of determining deposited fractions and re-emitted fractions of the potential energy of highly charged ions. On one side, a calorimetric measurement setup is used to determine the retained potential energy and on the other side, energy resolved electron spectroscopy is used for measuring the re-emitted energy due to secondary electron emission. In order to study the mechanism of energy retention in detail, materials with different electronic structures are investigated: Cu, n-Si, p-Si and SiO₂. In the case of calorimetry, a linear relationship between the deposited potential energy and the inner potential energy of the ions was determined. The total potential energy which stays in the solid remains almost constant at about $(80 \pm 10) \%$. Comparing the results of the Cu, n-Si and p-Si targets, no significant difference could be shown. Therefore we conclude that the difference in energy deposition between copper, n-doped Si and p-doped Si is below 10 %, which is significantly lower than using SiO₂ targets. For this purpose, electron spectroscopy provides a complementary result. For Cu and Si surfaces, an almost linear increase of the re-emitted energy with increasing potential energy of the ion up to Ar⁷⁺ was also observed. The ratio of the re-emitted energy is about $(10 \pm 5) \%$ of the total potential energy of the incoming ion, almost independent of the ion charge state. In contrast, an almost vanishing electron emission was observed for SiO₂ and for charge states below $q=7$. For Ar⁸⁺ and Ar⁹⁺, the electron emission increased due to the contribution of the projectile LMM Auger electrons and the re-emitted energy amounts up to 20 % for Cu and Si and around 10 % for SiO₂. These results are in good agreement with the calorimetric values. In addition, the experimental results are compared with computer simulations based on the extended dynamical over-the-barrier model. From these calculations, the ratio of deposited potential energy that is transformed into kinetic energy before deposition due to the image charge acceleration can be maintained.

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich allen danken, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben.

Als erstes bedanke ich mich bei Herrn Prof. Dr. W. Möller für die Möglichkeit zur Anfertigung dieser Arbeit, für die übernommene Betreuung und die oft kurzfristigen Termine zur Besprechung und Diskussion von Ergebnissen. Er hat mir viele Anregungen gegeben, die zum Verständnis beitrugen und mir gleichzeitig großen Freiraum bei der Bearbeitung des Themas gelassen.

Als nächstes, aber bei Weitem am meisten möchte ich meiner Frau und meiner Familie, meinen Geschwistern und Eltern dafür danken, dass sie mich in jeder Weise so hervorragend unterstützt haben. Durch den Zusammenhalt dieser Gemeinschaft erfuhr ich zu jeder Zeit meines Lebens stets das nötige Maß an Geduld, Drängen, Verständnis, Kritik, Zuversicht, Aufmunterung und absolute Unterstützung. Ohne diesen starken Rückhalt wäre das Gelingen dieser Arbeit wohl fraglich gewesen.

Herrn Dr. Zschornack danke ich für sein stetiges Interesse am Aufbau und dem Verlauf des Experiments und den darauf folgenden Ergebnissen.

Ein weiterer Dank gilt Herrn Dr. H. Tyrroff für die angenehme Zusammenarbeit auch über sein Rentenalter hinaus, im Besonderen denke ich dabei an die Planung der Zwei-Quellenanlage.

Ein großer Dank geht an die Konstruktionsabteilung des FZR, Herrn Schlenk, Herrn Wußmann, Frau Welke, Herrn Münch sowie an die Kollegen der Zentralwerkstatt des FZR für die maßgebliche und gute Zusammenarbeit bei der Planung, Konstruktion und Aufbau der Zwei-Quellenanlage. Weiterhin bedanke ich mich bei allen Mitgliedern der Arbeitsgruppe Atomphysik der TU-Dresden für die stetige bereitwillige Unterstützung.

Weiterhin danke ich den Mitarbeitern der Beschleunigerabteilung des FZR, die ebenfalls den Aufbau der Anlage mit Rat und Tat unterstützten.

Gesondert bedanken möchte ich mich bei Herrn Dr. W. Bürger, dessen Wissen und Erfahrung den Aufbau der Anlage beschleunigten.

Ein weiterer großer Dank geht an die Abteilung FWIA für das Interesse an der Arbeit und die unkomplizierte Integration in die Abteilung. Ganz herzlich bedanke ich mich bei Herrn Dr. R. Grötzschel. Seine verständnisvolle Art nicht nur in technischen und physikalischen Fragestellungen war mir immer wieder Ansporn.

Herrn Dr. St. Facsko danke ich für sein engagiertes Mitwirken während der Planung und des Aufbaus der Zwei-Quellenanlage sowie für die Unterstützung bei den ersten Experimenten zur Elektronenspektroskopie.

Herrn Dr. N. Stolterfoht und Herrn Dr. R. Hellhammer vom HMI in Berlin möchte ich ganz herzlich für die freundliche Betreuung, die anregenden Diskussionen und den überragenden persönlichen Einsatz während der Durchführung der Elektronenspektroskopieexperimente an der Apparatur des HMI Berlin danken.

Weiterhin sei an dieser Stelle Herrn Falk Röder gedankt. Durch seine Unterstützung im Rahmen einer HiWi-Stelle gelang es die Plasmapotenzialmessung an der ECR-Quelle zu entwickeln. Weiterhin konnten durch seine Mitarbeit maßgebliche Schritte zur Entwicklung des numerischen Simulationsprogrammes *Ya-DCOM* durchgeführt werden.

Allen Freunden und nochmals meiner Familie danke ich für das Interesse an meiner Arbeit sowie für das entgegengebrachte Verständnis für meine häufigen Absagen in den letzten Monaten. Gesondert bedanke ich mich bei meinem Kommilitonen Mike Schmidt, mit dem es während des gesamten Studiums ein hervorragendes Miteinander gewesen ist. Hierdurch war so manche schwierige Zeit durch gegenseitige Unterstützung leichter zu bewältigen.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	19
2	Grundlagen	23
2.1	Wechselwirkung hochgeladener Ionen mit Festkörperoberflächen	23
2.1.1	Überblick experimenteller Studien	23
2.1.2	Überblick theoretischer Modelle	28
2.2	Simulationen zur Neutralisationsdynamik hochgeladener Ionen	33
2.2.1	DCOM/EDCOM-Simulation nach Ducree	33
2.2.2	Erweiterung zur numerischen Simulation Ya-DCOM	37
3	Experimentelles	49
3.1	Ionenerzeugung	49
3.1.1	Plasmaphysikalische Grundlagen der ECR-Quelle	49
3.1.2	Besonderheiten der Supernanogan	52
3.1.3	Charakterisierung von ECR-Plasmen	53
3.1.4	Die Langmuirsonde an der Supernanogan	56
3.1.5	Resultate der Plasmapotenzialbestimmung	60
3.2	Ionentransport	64
3.2.1	Das Strahltransportsystem	64
3.2.2	Die Experimentierkammer der Zwei-Quellenanlage	70
3.3	Messung von Ionenstrom und Ionenenergie	72
3.3.1	Anordnung Probe - Abschirmung	72
3.3.2	Resultate der Gegenfeldmessung	73
3.3.3	Vergleich der Gegenfeldmessung mit Langmuirsondenmessung	74
3.4	Ermittlung der deponierten potenziellen Energie – kalorimetrische Messungen	76

3.4.1	Messprinzip	76
3.4.2	Das Kalorimeter	77
3.4.3	Probenkalibrierung	86
3.4.4	FEM-Simulation zum Wärmetransport an der Probe	87
3.4.5	Probenpräparation	91
3.5	Ermittlung der emittierten potenziellen Energie – Elektronenspektroskopie	93
4	Resultate und Diskussion	99
4.1	Emittierte Energie durch Elektronen	100
4.1.1	Analyse der Rohdaten	100
4.1.2	Darstellung der Einzelergebnisse	102
4.1.3	Vergleich und Wertung der Ergebnisse	110
4.1.4	Emittierte Energie mittels Gegenfeldanalyse	110
4.2	Deponierte Energie der Ionen	113
4.2.1	Analyse der Rohdaten	113
4.2.2	Darstellung der Einzelergebnisse	113
4.3	Bilanz der potenziellen Energie	119
4.4	Vergleich: Experimente - numerische Simulation	121
5	Zusammenfassung und Ausblick	123
Anhang A		127
A.1	Atomare Einheiten	127
A.2	Elektrifizierung der Zwei-Quellenanlage	128
A.3	Strahlkanalparameter	138
A.4	Herleitung der Abhängigkeit der inneren potenziellen Energie vom Ladungszustand	140

Abbildungsverzeichnis

2.1	Floureszenzausbeute in Abhängigkeit der Ordnungszahl	26
2.2	Darstellung des totalen Potentials	29
2.3	Schematische Darstellung der Wechselwirkungsprozesse hochgeladener Ionen . . .	30
2.4	Resonante Ladungsaustauschprozesse	35
2.5	Energieverlust pro Wegstrecke in Abhängigkeit der kinetischen Energie	38
2.6	Vergleich der Ergebnisse der Energieniveauberechnungen	41
2.7	Absorptionskurve für Elektronen	43
2.8	Bildladungsbeschleunigung vor der Oberfläche in Abhängigkeit vom Ladungszustand	44
2.9	Verteilung der potenziellen Energie über dem Ladungszustand der Ionen nach <i>Ya-DCOM</i> Simulation	45
2.10	Verteilung der potenziellen Energie über der kinetischen Energie nach <i>Ya-DCOM</i> Simulation	46
3.1	Strom-Spannungs-Charakteristik zur Bestimmung des Plasmapotentials	54
3.2	Zeichnung des Umbaus der Ofenerweiterung der ECR-Quelle	59
3.3	Axialkomponente des Magnetfeldes der <i>Supernanogan</i>	60
3.4	Abhängigkeit des Plasmapotentials von der Biasspannung bei $P = 80\text{ W}$ und $p = 3,5 \cdot 10^{-6}\text{ mbar}$	61
3.5	Abhängigkeit des Plasmapotentials von der eingespeisten Mikrowellenleistung bei $U_{\text{Bias}} = -110\text{ V}$ und $p = 3,5 \cdot 10^{-6}\text{ mbar}$	62
3.6	Abhängigkeit des Plasmapotentials vom Quellendruck bei $U_{\text{Bias}} = -110\text{ V}$ und $P = 80\text{ W}$	62
3.7	Zeichnung der Zwei-Quellenanlage	65
3.8	Potentialverteilung an der Strahlführung	67

3.9	Zeichnung des Abbremslinsensystems	67
3.10	Verlauf der Ionentrajektorien im Strahlkanal und beim Durchgang durch das Bremslinsensystem, simuliert mit dem Computerprogramm <i>Simion</i>	68
3.11	Restgasspektrum nach Konditionierung der Experimentierkammer	70
3.12	Experimentelle Anordnung zur Messung des Ionenstroms	72
3.13	Darstellung des gegenspannungsabhängigen Probenstroms	74
3.14	Abhängigkeit des Plasmapotenzials vom Quelledruck	75
3.15	Schematische Darstellung des kalorimetrischen Messprinzips	78
3.16	Darstellung der Realisierung des unendlich großen Wärmebads	81
3.17	Verdrahtung und Signalführung des Kalorimetrieexperiments	82
3.18	Darstellung der Experimentierkammer	83
3.19	Zeitlicher Verlauf der Schildtemperatur bei eingeschalteter Stabilisierung	85
3.20	Temperatur-Zeit-Kurve und elektrische Heizleistungs-Zeit-Kurve während der Probenkalibrierung	86
3.21	Ermittelter linearer Zusammenhang aus Temperaturerhöhung und eingetragener elektrischer Heizleistung	87
3.22	Darstellung der konkreten Geometrie und des überlagerten Netzes aus Finiten Elementen zur Lösung des Wärmetransportproblems an der Probe mittels <i>FEMLab</i>	88
3.23	Vergleich des Proben temperaturverlaufs für verschiedene Heizleistungen und verschiedene Orte des Wärmeeintrags	89
3.24	Proben temperatur in Abhängigkeit der Heizleistung aus FEM-Simulation	90
3.25	Das ECR-Labor am HMI Berlin	94
3.26	Die experimentelle Anordnung zur Bestimmung der emittierten Elektronen	94
4.1	Typische Sekundärelektronenspektren für verschiedene Beobachtungswinkel ($\Theta=60^\circ$, 40° , 20° , 60°) für den Beschuss von Cu mit Ar^{9+}	100
4.2	Energiedispersive Sekundärelektronenspektren und die daraus ermittelte, durch Sekundärelektronen von der Probe emittierte Energie für den Beschuss von Cu mit Ar^{q+}	101
4.3	Sekundärelektronenausbeute und totale emittierte Energie für Kupfer und Silizium über dem Ionenladungszustand	103
4.4	Vergleich der energiedispersiven Sekundärelektronenausbeute pro einfallendes Ar^{9+} -Ion auf SiO_2 verschiedener Oxiddicken und verschiedenen Basismaterials	105
4.5	Einfachdifferenzielle Sekundärelektronenausbeute von SiO_2 bei dem Beschuss mit Ionen Ar^{q+}	106

4.6	Vergleich der Resultate der Elektronenspektroskopie an Kupfer, Silizium und Siliziumdioxid	107
4.7	Vergleich der Elektronenausbeute und der absoluten emittierten Energie durch Sekundärelektronen für den Beschuss einer Kupfer- bzw. Siliziumdioxidoberfläche mit Ar^{9+} -Ionen verschiedener kinetischer Energie	109
4.8	Gegenspannungsabhängiger Proben- und Schirmstrom während des Anlegens einer variablen Gegenspannung an die Probe	111
4.9	Vergleich der Ergebnisse aus Elektronenspektroskopie und Gegenfeldanalyse zur Ermittlung der emittierten Energie pro einfallendes Ion für verschiedene Ladungszustände Ar^{q+} bei dem Beschuss einer Kupferoberfläche	111
4.10	Probentemperatur über der Zeit für den Beschuss einer Kupferprobe mit Ar^{7+} -Ionen verschiedener kinetischer Energie	114
4.11	Deponierte Energie eines Argonions in eine Kupferoberfläche für verschiedene Ladungszustände und verschiedene kinetische Energien	115
4.12	Deponierte potenzielle Energie pro Ion für verschiedene Ladungszustände bei dem Beschuss einer Cu-, p-Si- bzw. n-Si-Probe mit Ar^{q+} -Ionen	116
4.13	Eingetragene innere potenzielle Energie eines Ar^{q+} -Ions für eine Siliziumdioxidprobe verglichen mit den metallähnlichen Proben: Kupfer, p-dotiertes Silizium und n-dotiertes Silizium	117
4.14	Energiebilanz der inneren potenziellen Energie für verschiedene Materialien	120
4.15	Vergleich der experimentell ermittelten Werte für den Anteil der emittierten und deponierten Energie mit denen der numerischen Simulation <i>Ya-DCOM</i> für den Beschuss von Kupfer mit verschiedenen Ladungszuständen Ar^{q+}	121
A.1	Übersicht der elektrischen Potenziale an der Zwei-Quellenanlage	128
A.2	Potenzialverteilung der Steuerschränke und Stromlaufplan	129
A.3	Potenzialverteilung an der ECR-Quelle mit Anschlusschema der Bias-Spannung und der Langmuirsonde	130
A.4	Elektrische Verbindungen zwischen Bremslinsensystem und Spannungsversorgungen	131
A.5	Verbindungen zwischen Erdpotenzialsteuerschrank und Erd-Command & Control-Einheit	132
A.6	Verbindungen zwischen Hochspannungsrack und Hochspannungs-Command & Control-Einheit	133
A.7	Ansteuerung der Faraday-Becher des ECR-Zweigs	134

A.8	Ansteuerung der Schlitzsysteme der Zwei-Quellenanlage	135
A.9	Ansteuerung des Strahlprofilmonitors der ECR-Quelle	136
A.10	Ansteuerung des Mikrowellengenerators der ECR-Quelle	137
A.11	Vergleich der mittels Cowan-Code berechnete potenzielle Energie mit der experimentell bestimmten deponierten bzw. emittierten potenziellen Energie	142

Abkürzungsverzeichnis

a.u.	<u>a</u> tom <u>i</u> c <u>u</u> nits; atomare Einheiten
AES	<u>A</u> uger <u>E</u> lektronenspektroskopie
AFM	<u>A</u> tom <u>i</u> c <u>F</u> orce <u>M</u> icroscope; Rasterkraftmikroskop
AI	<u>A</u> uger <u>I</u> onisation
COB	<u>C</u> lassical <u>O</u> ver- <u>B</u> arrier
D-Sub	weit verbreitete Bauform eines <u>D</u> -förmigen <u>S</u> ub-Miniaturstecksystems für Datenverbindungen
DCOM	<u>D</u> ynamisches <u>C</u> OB- <u>M</u> odell
DFC	Strahl <u>d</u> iagnostik: <u>F</u> araday- <u>C</u> up; Faraday-Becher
DS	Strahl <u>d</u> iagnostik: <u>S</u> chlitzsystem
EBIT	<u>E</u> lectron <u>B</u> eam <u>I</u> on <u>T</u> rap
EBL	<u>E</u> lektrostatische <u>B</u> remsl <u>i</u> nse
ECR	<u>E</u> lectron <u>C</u> yclotron <u>R</u> esonanz
EDCOM	<u>E</u> rweitertes <u>D</u> ynamisches <u>C</u> OB- <u>M</u> odell
EEL	<u>E</u> lektrostatische <u>E</u> inzell <u>i</u> nse
FEM	<u>F</u> inite <u>E</u> lemente <u>M</u> ethode
HCI	<u>H</u> ighly <u>C</u> harged <u>I</u> on
HMI	<u>H</u> ahn <u>M</u> eitner <u>I</u> nstitut
KE	<u>K</u> inetische <u>E</u> mission
LEED	<u>L</u> ow <u>E</u> nergy <u>E</u> lectron <u>D</u> iffraction; Niederenergieelektronendiffraktometer
PE	<u>P</u> otenzialemission
PECVD	<u>P</u> lasma <u>E</u> nhanced <u>C</u> hemical <u>V</u> apor <u>D</u> eposition
PO	<u>P</u> eel <u>O</u> ff; Abstreifen von Elektronen hoher Quantenzahlen
RC	<u>R</u> esonant <u>C</u> apture; Resonanter Einfang
RL	<u>R</u> esonant <u>L</u> oss; Resonanter Verlust
SCOM	<u>S</u> chrittweises <u>C</u> OB- <u>M</u> odell
SF	<u>S</u> ide <u>F</u> eeding; direktes Füllen innerer Schalen
SI	frz.: <u>S</u> ystème <u>i</u> nternational d' <u>'</u> unités; internationales Einheitensystem
SRIM	The <u>S</u> topping and <u>R</u> ange of <u>I</u> ons in <u>M</u> atter

STM Scanning Tunnling Microscope; Rasterelektronenmikroskop
TRIM The Transport of Ions in Matter
UHV Ultra Hochvakuum
VA Vakuumabschnitt
Ya-DCOM .. Yet another DCOM

Symbolverzeichnis

Symbole im Kapitel 2

in atomaren Einheiten (a.u.)

ΔE_{kin}	Energiegewinn durch Bildladungsbeschleunigung
ε_n	Bindungsenergie des Energieniveaus mit der Hauptquantenzahl n
ε_n	Bindungsenergie des n -ten Energieniveaus
λ_{Al}	energieabhängige charakteristische Schwächungslänge der Elektronen
$\langle r \rangle_n$	mittlerer Schalenradius der n -ten Elektronenschale
μ	atomare Masse in g
ω_X	Floureszenzausbeute
ρ	Dichte in kgm^{-3}
\vec{R}	Ort des Ions
\vec{r}	Ortsvektor
a	Gitterkonstante
A_n	Maximalbesetzungszahl des n -ten Energieniveaus
a_n	Besetzungszahl des n -ten Energieniveaus
E_{Auger}	über Augerelektronen transferierte Energie
E_{Bild}	Energiezuwachs durch Bildladungsbeschleunigung
E_{dep}	deponierte Energie
E_{emit}	emittierte Energie
E_{kin}	kinetische Energie der Ionen
E_{pot}	innere potenzielle Energie der Ionen
n	Hauptquantenzahl
$N_{e^-}^0$	Anzahl der erzeugten Sekundärelektronen
$N_{e^-}^{\text{dep,ober}}$	Anzahl der oberhalb der Oberfläche erzeugten und deponierten Elektronen
$N_{e^-}^{\text{dep,unt}}$	Anzahl der unterhalb der Oberfläche erzeugten und deponierten Elektronen
$N_{e^-}^{\text{dep}}$	Anzahl der deponierten Sekundärelektronen

$N_{e^-}^{\text{emit,ober}}$	Anzahl der oberhalb der Oberfläche erzeugten und emittierten Elektronen
$N_{e^-}^{\text{emit,unt}}$	Anzahl der unterhalb der Oberfläche erzeugten und emittierten Elektronen
$N_{e^-}^{\text{emit}}$	Anzahl der emittierten Sekundärelektronen
N_n^{ol}	Überlappfaktor der Orbitalvolumens des n-ten Energieniveaus mit der Elektronenverteilung des Festkörpers
N_n^{vac}	Anzahl der unbesetzten Elektronenzustände in der n-ten Hauptschale
n_{RC}	Energieniveaus für den Resonanten Einfang
q	elektrische Ladung des Ions
R_{krit}	kritischer Abstand des Ions von der Oberfläche
S	Abschirmmatrix
V_0	Energie der Bandunterkante des Leitungsbandes
V_b	Minima der Barriere des totalen elektrostatischen Potentials
V_e^{Bild}	induziertes elektrostatisches Bildpotential des Elektrons
V_{Ion}	elektrostatisches Potential des Ions
$V_{\text{Ion}}^{\text{Bild}}$	induziertes elektrostatisches Bildpotential des Ions
ν_n	klassische Umlauffrequenz der Elektronen im n-ten Energieniveau
V_{tot}	totales elektrostatisches Potential
W_A	Austrittsarbeit der Elektronen im Material
Z	Kernladungszahl
$z_{\text{Bildebene}}$	Abstand der Spiegelebene von der Oberfläche
q_{eff}	effektive Kernladungszahl
q	Ladungszustand des Ions
$v_{\text{Ion}\perp}$	Normalkomponente der Geschwindigkeit des Ions

Symbole im Kapitel 3 und 4

in internationalen Einheiten (SI)

\dot{Q}_{Boltz}	in die Probe eingetragener Wärmefluss verursacht durch Boltzmannstrahlung
\dot{Q}_{P}	in die Probe eingetragener Wärmefluss
λ_{D}	Debeysche Abschirmlänge
$\langle r \rangle_n$	mittlerer Schalenradius der n-ten Elektronenschale
Φ	elektrostatisches Potential
τ_{W}	Oberflächenbedeckungszeit
A_{Target}	Probenoberfläche
C_{P}	Wärmekapazität der Probe
$E_{\text{dep}}^{\text{Ion}}$	deponierte Energie pro Ion
$E_{\text{kin,dep}}^{\text{Ion}}$	deponierte kinetische Energie pro Ion

E_{pass}	kinetische Energie der Elektronen, welche den Energiefilter passieren
$E_{\text{pot,dep}}^{\text{Ion}}$	deponierte potenzielle Energie pro Ion
I_{Blende}	gemessener Ionenstrom auf der Blende des Faraday-Bechers
I_{Cup}	gemessener Ionenstrom im Faraday-Becher
$I_{e^-}; I_{\text{Schild}}$...	am Schild gemessener Sekundärelektronenstrom
$I_{\text{elektr}}; I_{\text{Ion}}; I_{\text{Probe}}$	an der Probe gemessener elektrischer Ionenstrom
I_{tot}	totaler elektrischer Ionenstrom – Summe aus gemessenem Probenstrom und Sekundärelektronenstrom
k_{B}	Boltzmannkonstante
n_e	Elektronendichte
P	Leistung der eingespeisten Mikrowellenstrahlung
p	Quellendruck
P_{dep}	deponierte Leistung (z.B. Heizleistung des ohmschen Heizers)
q_{ext}	extern zugeführter Wärmestrom (z.B. Heizleistung des ohmschen Heizers)
r_c	Zyklotronradius
R_{W}	Wärmewiderstand zwischen Probe und Wärmebad
T_0	Temperatur des Wärmebads
$T_{\text{I,e}}$	Ionen-/Elektronentemperatur
T_{P}	Probentemperatur
$T_{\text{Rezipient}}$	Temperatur des die Probe umgebenden Rezipienten
T_{Target}	Probentemperatur
U_{Bias}	Biasspannung
U_{Gegen}	Gegenspannung bei Gegenfeldanalyse
$U_{\text{Quelle}}; U_{\text{Beschl}}$	Extraktions-, Beschleunigungsspannung an der Ionenquelle bezüglich des Erdpotenzials
U_{Rest}	Restbeschleunigungsspannung – Summe aus Beschleunigungsspannung und Bremsspannung
$U_{\text{Strahlf}}; U_{\text{Brems}}$	elektrisches Potenzial der Strahlführung bezüglich des Erdpotenzials
V_{P}	Plasmapotenzial

1 Einleitung

Bereits seit etwa 100 Jahren existieren wissenschaftliche Bestrebungen zur Erforschung physikalischer Prozesse während des Einschusses schneller neutraler oder ionisierter Atome in Festkörperoberflächen. Das langanhaltende und kontinuierlich hohe Interesse begründet sich wohl auf den vielfältigen und weitreichenden technischen Anwendungsmöglichkeiten in Industrie und Technik. In den meisten Anwendungsgebieten wird dabei die kinetische Energie der Projektile genutzt. Mit der Verbreitung kostengünstiger und effizient arbeitender Apparaturen zur Erzeugung hochgeladener Ionen (HCI) rückte Mitte der 80er Jahre des vorigen Jahrhunderts ein neuer Aspekt in den Mittelpunkt der Grundlagenforschung: die Wechselwirkung hochgeladener Ionen mit Festkörperoberflächen. Diese neuartigen Szenarien zeichneten sich dadurch aus, dass zu der kinetischen Energie der Projektile nun auch die innere potenzielle Energie der Ionen (die Summe der zur Ionisierung aufbrachten Energie) hinzukam. Diese innere potenzielle Energie ($E_{\text{pot.}}$) kann für mittlere und hohe Ladungszustände 1 keV sehr leicht übertreffen, bis zu einigen 100 keV erreichen und somit im Falle langsamer Ionen die kinetische Energie um Größenordnungen überschreiten. Während Mitte der neunziger Jahre bei der Untersuchung der Wechselwirkung hochgeladener Ionen zu meist die Emission von Sekundärteilchen und dabei deren totale Ausbeute im Vordergrund stand, berichteten Schenkel et al. [1] erstmalig von Experimenten zur Deposition innerer potenzieller Energie im Probenmaterial. Schenkel et al. stellten fest, dass etwa 10 % der inneren potenziellen Energie durch Sekundärteilchen von der Probenoberfläche emittiert wurden und etwa 35 % der inneren potenziellen Energie (60 keV) der benutzten Au^{69+} Ionen in einer Tiefe von mehr als 50 nm durch elektronische Anregung des Probenmaterials deponiert wurden.

Von Kentsch et al. [2] wurde 2001 eine kalorimetrische Messapparatur vorgestellt, die es ermöglichen sollte die gesamte Menge der im Festkörper deponierten inneren potenziellen Energie anzugeben. Hierbei wurden für den Beschuss einer Kupferoberfläche mit Argonionen Werte zwischen 30 % und 40 % für die deponierte innere potenzielle Energie angegeben. Mit der Abschätzung von etwa 10 % für die emittierte potenzielle Energie, ergibt sich beim Aufstellen einer Energiebilanz die Frage nach den verbleibenden 50 % der inneren potenziellen Energie der Ionen.

Die zentrale Aufgabe der vorliegenden Arbeit ist es, die Frage nach dem Verbleib des bislang fehlenden Anteils der potenziellen Energie zu beantworten und eine entsprechend vollständige Energiebilanz aufzustellen. Dazu werden verschiedene Materialklassen (Metall, Halbleiter und

Isolatoren) zum Einen elektronenspektroskopisch vermessen und daraus die Menge der durch Sekundärelektronen emittierten Energie ermittelt. Zum Zweiten werden selbige Proben mit einem verbesserten kalorimetrischen Aufbau untersucht. Die Arbeit ist wie folgt gegliedert:

Das zweite Kapitel verschafft zunächst einen Überblick über die Mechanismen der Wechselwirkung hochgeladener Ionen mit Festkörperoberflächen. Hierbei wird einerseits chronologisch auf experimentelle Fortschritte der letzten fünfzig Jahre eingegangen. Zum Anderen wird ein theoretisches Modell zur Beschreibung der Wechselwirkungsmechanismen erläutert. Dieses Modell wird im letzten Teil dieses Kapitel im Rahmen einer numerischen Simulation für eine Aussage zur Bilanz der potenziellen Energie erweitert.

Im dritten Kapitel werden die experimentellen Anordnungen beschrieben. Dies beinhaltet sowohl die Elektronenspektroskopie als auch die Kalorimetrie. Besondere Beachtung wird hierbei auf die akkurate Bestimmung des Ionenstroms und der kinetischen Energie der Ionen gelegt. Besonders der letzte Punkt stellte eine große Herausforderung dar, da bei langsamen Ionen, wie sie in dieser Arbeit verwendet werden, das Plasmapotenzial einer ECR-Quelle nicht mehr zu vernachlässigen ist. Deshalb wurde eine Langmuirsondenmessung an der ECR-Quelle aufgebaut, welche mit Gegenfeldmessungen an der Probe verglichen wurde. Weiterhin ist in diesem Kapitel die Präparation und die Kalibration der kalorimetrischen Probe beschrieben.

Im vierten Kapitel werden die Ergebnisse der Elektronenspektroskopie und der kalorimetrischen Messungen präsentiert. Es werden dabei Elektronenspektren von Kupfer, p- und n-dotiertem Silizium und Siliziumdioxid miteinander verglichen und die sich daraus ergebenden Werte für die durch Sekundärelektronen emittierte Energie abgeleitet. Als Besonderheit wird im Falle von Siliziumdioxid eine zusätzliche Verschiebung der Augerlinien nachgewiesen, welche direkt mit der Oxidschichtdicke im Zusammenhang steht. Die durch zwei verschiedene Experimente (aus einer Gegenfeldanalyse an der Kalorimetrieprobe und aus der Elektronenspektroskopie) ermittelten Werte für die emittierte potenzielle Energie werden miteinander verglichen. Im Anschluss folgt dann die Gegenüberstellung der kalorimetrischen Messergebnisse selbiger Proben. In einem abschließenden Abschnitt dieses Kapitels wird erstmalig die vollständige Energiebilanz für die Relaxation von Ionen mittlerer Kernladungszahlen vor Oberflächen aufgestellt. Die Bilanz bezieht die Energie ein, welche einerseits über Sekundärelektronen emittiert wird und andererseits während der Relaxation in den Festkörper eingetragen wird. Diese experimentell ermittelten Energiebeiträge werden mit jenen Energiebeiträgen verglichen, welche aus der im Kapitel 2 entwickelten numerischen Simulation gewonnen wurden. Hierbei kann gezeigt werden, dass der Energietransfer zu mindestens 90 % über Sekundärelektronenemission geschieht, wobei ein Großteil der Elektronen den Festkörper aus geometrischen oder energetischen Gründen nicht mehr verlassen kann und somit deren kinetische

Energie im Festkörper in Form eines kalorimetrisch zu messenden Wärmeeintrags deponiert wird. Weiterhin kann man mit der Simulation zwischen Energieeinträgen unterscheiden, welche über Sekundärelektronen vornehmlich im elektronischen System beziehungsweise durch Bildladungsbeschleunigung vornehmlich im nuklearen System des Festkörpers deponiert werden.

Soweit nicht anders angegeben, werden im 2. Kapitel zur Vereinfachung der die Wechselwirkung beschreibenden Gleichungen atomare Einheiten (a.u.) verwendet. In den weiteren Kapitel findet das Internationale Einheitensystem (SI) Verwendung.

2 Grundlagen

2.1 Wechselwirkung hochgeladener Ionen mit Festkörperoberflächen

2.1.1 Überblick experimenteller Studien

Entscheidende Fortschritte im Verständnis der Wechselwirkung hochgeladener Ionen mit Festkörperoberflächen wurden zu Beginn, Anfang der siebten Dekade des vorigen Jahrhunderts, zumeist durch Analysen der Sekundärteilchenemission gewonnen. Darauffolgend starteten ebenfalls Bestrebungen zur Detektion und Analyse der Veränderungen an Festkörperoberflächen (Nanostrukturierung, Energieeintrag und Phasenumwandlung) erzeugt durch den Beschuss mit hochgeladenen Ionen. Die Meilensteine experimenteller Fortschritte und theoretischer Erkenntnisse sollen in diesem Kapitel dargestellt werden.

2.1.1.1 Elektronenemission beim Beschuss von Festkörperoberflächen

Die ersten experimentellen Hinweise zur sogenannten Potenzialemission von Elektronen (PE) beim Beschuss von atomar sauberen Metalloberflächen mit langsamen einfach, zweifach oder mehrfach geladenen Ionen fand Hagstrum in seinen Arbeiten [3], [4], [5]. Diese Studien zeigten ein starkes Ansteigen der Elektronenausbeute mit steigendem Ladungszustand der Projektile, respektive mit steigender potenzieller Energie. Dabei wurde im Fall von mehrfachgeladenen Ionen keine untere Grenzgeschwindigkeit für das Einsetzen der Elektronenemission festgestellt. Es konnte weiterhin gezeigt werden, dass die Elektronenemission bereits beginnt, bevor das Ion die Festkörpergrenze erreicht. Eine Quantifizierung der PE gestaltete sich äußerst schwierig, da diese in den meisten Fällen mit einer kinetisch induzierten Emission (KE) von Elektronen einherging und sich diese nicht ohne Weiteres separieren ließen. Hagstrum erkannte in seinen Arbeiten dennoch grundlegende Mechanismen zur Beschreibung dieser Prozesse, auf denen das heutige theoretische Verständnis basiert (siehe Kapitel 2.1.2). Mit der Weiterentwicklung der Ionenquellen (ECR-Quellen Mitte 1980, EBIT-Quellen Ende 1980-1990) [6] und der damit verbundenen

Vergrößerung der Parameterräume für Strahlintensität, kinetische Energie, Ladungszustand und Elementauswahl wurde ein intensiveres und systematischeres Studium dieses Prozesses möglich. In damit durchführbaren Experimenten konnte die bisher von Arifov et al. [7] gefundene Annahme eines linearen Zusammenhangs zwischen PE und potenzieller Energie der Ionen für höhere Ladungszustände nicht mehr gehalten werden. Die Untersuchung der Wechselwirkung von Ar^{12+} mit polykristallinem (Delaunay et al. [8], [9]) und monokristallinem Wolfram (de Zwart et al. [10]) zeigte ein deutliches Abweichen des linearen Zusammenhangs für experimentell neu zugängliche Ladungszustände $q \geq 8$. Weiterhin wurden in Arbeiten von de Zwart [10, 11] mit Ar^{9+} -Ionen und von Zehner [12] mit N^{6+} -Ionen sowie O^{7+} -Ionen auf sauberen Goldoberflächen charakteristische Peaks in der Sekundärelektronenenergieverteilung gemessen, die auf LMM, LMN und KLL Innerschalenübergänge des Projektilions schließen lassen. Dabei wurde ebenfalls festgestellt, dass die Innerschalenübergänge zu einem späteren Zeitpunkt erfolgen, nachdem bereits niederenergetische Elektronen den Festkörper verlassen haben. Typischer Weise werden etwa 90 % der schnellen Augerelektronen emittiert, nachdem das Ion in die Oberfläche eindringt. Dies zeigen auch Arbeiten von Meyer et al. [13, 14], Das und Morgenstern [15] sowie Stolterfoht et al. [16]. Die so gewonnenen Erkenntnisse führten zu dem Bild der Generierung eines *hohlen Atoms*¹, welches anschließend kaskadenartig zerfällt und in den Grundzustand relaxiert (siehe Kapitel 2.1.2.1). Dabei werden Augerelektronen und Röntgenstrahlen ausgesendet.

Das Auffüllen der Innenschalenvakanzen verbunden mit der Emission von hochenergetischen Augerelektronen geschieht in der letzten Phase der Relaxationkaskade des *hohlen Atoms*. Dies festigten hochaufgelöste Augerelektronenspektren [17], bei deren Auswertung unter Zuhilfenahme von Hartree-Fock Atomstrukturrechnungen die Schalenkonfiguration des *hohlen Atoms* aufgrund der Linienverschiebung ermittelt werden konnte [18, 19]. Eine dabei stark diskutierte und nicht vollends beantwortete Frage war, ob das Füllen der Innenschalenvakanzen bereits kurz vor dem Eindringen in die Oberfläche startet oder erst unterhalb der Oberfläche vonstatten geht [20]. Bei den frühen Arbeiten [3, 4, 5, 7], die bei vergleichsweise hohen kinetischen Energien durchgeführt wurden, kann mit hoher Wahrscheinlichkeit die letztere Variante angenommen werden. Daraufhin gelang es Thomaschewski et al. [21] mittels KLL Augerelektronenspektroskopie von langsamen N^{6+} -Ionen, unter streifendem Einschuss auf ein Goldtarget und damit sehr kleinen Senkrechtgeschwindigkeiten, einen enormen Zuwachs der Füllrate der L-Schale nachzuweisen. Diese Beschleunigung der Füllrate (side-feeding) setzte bereits in einem Gebiet höherer Elektronendichte im Bereich der Jelliumkante [22] des Festkörpers ein, d.h. vor der ersten Atomlage, so dass unter diesen Bedingungen die KLL Spektren nahezu unabhängig von der Eindringtiefe der Ionen sind. Ein etwas anderes Bild zeigte sich bei dem Beschuss von LiF. Hier folgerten Limburg et al. [23] bei dem Vergleich hochaufgelöster KLL-Augerspektren von N^{6+} auf LiF, p-dotiertem Si und Al

¹„Hohle Atome“ sind mehrfach angeregte kurzlebige Zustände neutraler Atome, die einen Großteil ihrer Elektronen in Orbitalen hoher Hauptquantenzahlen n tragen, während Orbitale niedriger Quantenzahlen n schwach besetzt bis leer sind.

bedeutend langsamere Füllraten der L-Schale im Falle von LiF. Die KLL-Augerspektren von p-dotiertem Silizium und Aluminium unterschieden sich jedoch kaum. Die Ursache für die langsameren Füllraten wurden der unzureichenden Elektronenmobilität in LiF zugeschrieben. Das Füllen der L-Schale startet in diesem Fall erst unterhalb der Oberfläche. Bei weiteren Vergleichen von KLL-Augerspektren von O^{7+} auf reinem LiF und auf mit wenigen Monolagen LiF abgedecktem Gold fügten Khemliche et al. [24] hinzu, dass nicht nur die große Bandlücke von LiF (welche sich erst im Festkörper bemerkbar macht) zur Dämpfung des Elektronentransfers beiträgt, sondern vielmehr die hohe Austrittsarbeit von LiF.

2.1.1.2 Röntgenemission beim Beschuss von Festkörperoberflächen

Ein zweiter Mechanismus für das Füllen der Innerschalenvakanzen ist neben dem Augerprozess die strahlende Abregung des Projektils unter Aussendung von charakteristischer Röntgenstrahlung. Hochaufgelöste Röntgenspektren, gemessen während der Annäherung hochgeladener Ionen an Festkörperoberflächen, geben zum Einen Aufschluss über die Anzahl von Spektatorelektronen, die während des Innerschalenübergangs äußere Schalen besetzt halten und zum Anderen kann die Zeitskala für einen solchen Innerschalenübergang abgeschätzt werden. Briand et al. [25] zeigten mit diesen Experimenten erste direkte Hinweise für die Erzeugung von *hohlen Atomen* vor der Oberfläche. Dennoch konnte auch in diesem Fall der Ort der Emission (kurz vor der Oberfläche oder bereits in der Oberfläche) nicht eindeutig bestimmt werden. So stammen nach neueren Experimenten [26], [27] Beiträge der in [25] detektierten Röntgenereignisse eindeutig von sogenannten „*hohlen Atomen der zweiten Generation*“, also von unterhalb der Oberfläche.

Die Fluoreszenzausbeute ² ω_X kann nach Wenzel [28], Sevier [29] und Zschornack [30] für Elemente mittlerer Kernladungszahl ($5 \leq Z \leq 18$) als Folge der elektrischen Dipolstrahlung wie folgt approximiert werden:

$$\frac{\omega_X}{1 - \omega_X} \approx 10^{-6} \cdot Z^4. \quad (2.1)$$

In Abbildung 2.1 ist sowohl die Fluoreszenzausbeute für die K- und L-Schalen als auch die Augerelektronenausbeute für die K- und L-Schalen in Abhängigkeit von der Ordnungszahl Z angegeben. Dieses Diagramm verdeutlicht, dass die strahlende Abregung von Projektilen geringer und mittlerer Kernladungszahlen, wie sie in dieser Arbeit verwendet werden, unterdrückt ist. Deshalb soll diesem Mechanismus der Relaxation hochgeladener Ionen an dieser Stelle nicht mehr Aufmerksamkeit gewidmet werden. Weitere Ausführungen finden sich bei Schulz et al. [32], Mirakhmedov et al. [33], Briand et al. [34, 35], Hanafy [36] und Beiersdorfer et al. [37].

²Die Fluoreszenzausbeute beschreibt die Wahrscheinlichkeit für die Emission eines Röntgenquants bei strahlendem Einfang eines Elektrons in ein unbesetztes Niveau einer inneren Schale.

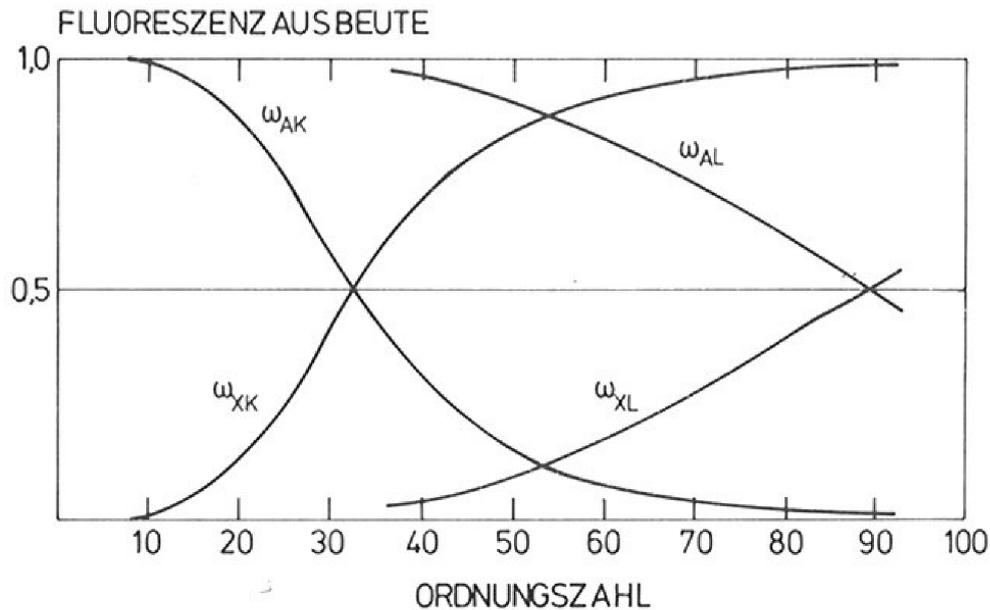


Abbildung 2.1: Wahrscheinlichkeit zur Emission von Augerelektronen ω_A und Röntgenstrahlen ω_X (Floureszenzausbeute) bei Ionisierung der K- und L-Schalen in Abhängigkeit von der Ordnungszahl Z [31]

2.1.1.3 Atom- und Ionenemission beim Beschuss von Festkörperoberflächen

Ein vielversprechender Effekt bei der Wechselwirkung hochgeladener Ionen mit Festkörperoberflächen, besonders hinsichtlich der Anwendung von hochgeladenen Ionen in Industrie und Technik, ist das Entfernen von Atomen bzw. Ionen von der Oberfläche des beschossenen Festkörpers und der damit verbundenen Modifizierung und gezielten Nanostrukturierung der Festkörperoberflächen. Erste experimentelle Hinweise auf den Mechanismus des Potenzialzerstäubens fanden Radzhabov et al. [38] schon 1976. Hierbei konnte eine starke Abhängigkeit der Sekundärionenausbeute vom Projektilladungszustand beim Beschuss von Silizium mit Ar^{q+} ($q \leq 5$) festgestellt werden. Wiederum einhergehend mit fortschreitender Quellenentwicklung stellten 1986 de Zwart et al. [39] beim Beschuss von Silizium mit Ar^{q+} ($q \leq 9$) fest, dass zwar die Sekundärionenausbeute enorm mit dem Ladungszustand ansteigt, die um 2 Größenordnungen größere totale Zerstäubungsausbeute (Sekundärionen und neutrale Sekundärteilchen) jedoch nahezu unabhängig vom Ladungszustand ist. Der Ladungszustand des Projektils wirkt sich somit im Falle von Silizium auf eine Verschiebung des Verhältnisses von geladenen und neutralen Sekundärteilchen aus. Schenkel et al. [40] hingegen beobachteten mittels Flugzeitspektroskopie während der Wechselwirkung von hochgeladenen Thoriumionen Th^{q+} ($q \geq 30$) mit Siliziumdioxid etwa 30 zerstäubte Sekundärionen (negative und positive) pro einfallendes Th^{70+} -Ion. Dieser Wert für die geladene Komponente der Sekundärteilchen übertrifft sogar die gesamte Zerstäubungsausbeute einfach geladener Projektile um das 10fache bei vergleichbaren kinetischen Energien von etwa 500keV. Weitere Experimente

[1] unter vergleichbaren Bedingungen auf GaAs-, UO-, Graphitoberflächen oder -dünnschichtsystemen bestätigten einen deutlich effektiveren Zerstäubungsmechanismus für hochgeladene Ionen, als es von kinetischen Zerstäubungsmodellen erwartet wird. Ein anderer experimenteller Zugang gelang Neidhart et al. [41] durch die Benutzung eines Quarzkristalloszillators, der mit dünnen Schichten aus Alkalihaliden (LiF, NaCl) [41] oder Isolatoren (SiO_2) [42] bedeckt war. Es konnte hierbei selbst für mittlere Ladungszustände von Xenon- und Argonionen die Ladungsabhängigkeit des Massenverlustes am Quarz pro Projektilion bestätigt werden.

Zur Erklärung der ladungszustandsabhängigen Zerstäubung von Oberflächenatomen wird eine Kombination aus drei Effekten benutzt: das „coulomb explosion“-Modell nach Bitsenski et al. [43], das „electronic sputtering“-Modell (defektvermitteltes Zerstäuben) nach Neidhart et al. [41] und Sporn et al. [42] sowie das Modell der „Ultraschnellen elektronischen Anregung“ nach Schenkel et al. [1, 44]. Das zweite Modell erklärt den Mechanismus durch die Erzeugung von elektronischen Defekten aufgrund des Elektronentransfers zum einfallenden hochgeladenen Ion. Wegen der starken Elektronen-Phononen-Kopplung in Isolatoren können diese elektronischen Defekte, sogenannte „self-trapped excitons“, sehr stark lokalisiert sein. Sie erzeugen somit stark lokalisierte topologische oder strukturelle Veränderungen der Oberflächen (Hügel, Krater), welche lediglich eine Ausdehnung von einigen Nanometern besitzen. Mittels AFM- oder STM-Apparaturen gelingt es nachträglich die mehr (HOPG) oder weniger (SiO_2) stabilen Nanostrukturen nachzuweisen und aufzulösen. Auch hier konnte unter anderem von Hayderer et al. [45] oder Ratliff et al. [46] eine Korrelation zwischen Projektilladungszustand und Defektgröße nachgewiesen werden. Das Gebiet der Nanostrukturierung von Oberflächen durch hochgeladene Ionen ist Gegenstand aktueller Forschung [47]. Für die in dieser Arbeit durchgeführten Experimente rückt dieser Mechanismus der Relaxation hochgeladener Ionen in den Hintergrund, da der Energieinhalt der zerstäubten Ionen oder Atome gering ist gegenüber dem Energieinhalt der Sekundärelektronen.

2.1.1.4 Bildladungsbeschleunigung

Ein mit besonderem Interesse aufgenommener Effekt bei der Annäherung hochgeladener Ionen an eine Metalloberfläche ist die Bildladungsbeschleunigung. Obwohl die Bildladungsbeschleunigung bereits im COB-Modell von Burgdörfer, Lenner und Meyer [48] (siehe auch Abschnitt 2.1.2.1) beschrieben wurde, so war der experimentelle Nachweis [49, 50] dieses zusätzlichen Energiezuwachses der Ionen vor der Oberfläche durch die großen Anforderungen an die Experimentatoren nicht nur ein weiterer Test für die COB-Theorie. Durch die Bestätigung des Effekts musste die Konsequenz abgeleitet werden, dass es für das Experiment einen nicht zugänglichen Bereich im Parameterraum der kinetischen Energie gibt. Der Energiegewinn der Projektile ist direkt mit dem Abstand des Einsetzens der Erzeugung *hohler Atome* verknüpft, d.h. er ist hauptsächlich vom Ladungszustand der Ionen und von der Austrittsarbeit des Probenmaterials abhängig (siehe Kapitel 2.1.2). Die von Burgdörfer et al. [51] angegebene analytische Abschätzung bewertet diesen Effekt

etwas zu gering, wie der Vergleich mit experimentellen Daten [52, 49, 50, 53] zeigt. Eine bessere Übereinstimmung bringen die auf dem COB-Modell (Kapitel 2.1.2.1) basierenden numerischen Simulationen SCOM/DCOM von Burgdörfer bzw. EDCOM von Ducree, Thumm und André (siehe Kapitel 2.1.2.2).

2.1.2 Überblick theoretischer Modelle

Um die Annäherung mehrfach geladener Ionen an Metalloberflächen zu beschreiben, wurden aufgrund der gefundenen experimentellen Zusammenhänge theoretische Modelle entwickelt. Das Grundkonzept zur Beschreibung der Annäherung mehrfachgeladener Ionen an Festkörperoberflächen wurde von Burgdörfer et al. [48] mit dem *classical over-barrier* (COB) Modell aufgestellt (siehe nächster Abschnitt). Andere Modelle wie das *Kaskadenmodell* [54], das *dynamical COB* Modell bzw. das *extended dynamical* Modell von Ducree und Thumm et al. [55, 56, 57] beziehungsweise das *close coupling* Modell von Bahrim und Thumm [58, 59] sind Weiterentwicklungen dieses Konzepts. Die wichtigsten Punkte des COB Modells sollen im Anschluss kurz skizziert werden. Im übernächsten Abschnitt sollen die Erweiterungen des DCOM bzw. EDCOM dargelegt werden, welche sich in der numerischen Simulation zur Bestimmung der deponierten und emittierten potenziellen Energie in Kapitel 2.2.2 wiederfinden. Die in den folgenden Abschnitten dieses Kapitels beschriebenen physikalischen Größen und Gleichungen sind – falls nicht auf andere Weise spezifiziert – in atomaren Einheiten (a.u.) dargestellt. Eine Umrechnungstabelle von atomaren Einheiten (a.u.) in das Internationale Einheitensystem (SI) ist im Anhang A.1 angegeben.

2.1.2.1 Das COB-Modell

Nähert sich ein q -fach geladenes Ion an eine Metalloberfläche, so ist die erste Wirkung, die es erfährt, die Wechselwirkung mit seiner eigenen Bildladung und die damit verbundene Beschleunigung zum Festkörper hin. Durch das elektrische Feld der sich annähernden Ladungsverteilung erfolgt in der Metalloberfläche eine Umordnung der freien Elektronen. Ist die Geschwindigkeit des Ions viel kleiner als die Geschwindigkeit der Elektronen im Valenzband, so können die Elektronen der Bewegung des Ions instantan folgen und die Kollektivbewegung der Elektronen als klassische Bildladung beschrieben werden [60]. Für das klassische Bildladungspotenzial am Ort $\vec{r} = x\vec{e}_\rho + z\vec{e}_z$ einer Ladung q an der Position $\vec{R} = 0\vec{e}_\rho + R\vec{e}_z$ vor der Oberfläche folgt nach dem Konzept der Bildladungsmethode³:

$$V^{\text{Bild}}(x, z, R) = \frac{q}{\sqrt{(z+R)^2 + x^2}}. \quad (2.2)$$

³Jede Ladung q im Abstand R vor einer Metalloberfläche ist so zu behandeln, als ob es eine ebenso große Ladung $-q$ im Abstand $-R$ hinter der Oberfläche gibt.

Ein aktives Elektron, welches unter bestimmten Bedingungen den Festkörper verlassen kann, bewegt sich somit in einem totalen Potenzial V_{tot} , welches sich aus Superposition des Projektilpotenzials V_{Ion} , des Bildpotenzials des Projektils $V_{\text{Ion}}^{\text{Bild}}$ und des Bildpotenzials des aktiven Elektrons $V_{\text{e}}^{\text{Bild}}$ ergibt:

$$V_{\text{tot}} = V_{\text{Ion}} + V_{\text{Ion}}^{\text{Bild}} + V_{\text{e}}^{\text{Bild}} \quad (2.3)$$

$$= \frac{-q}{\sqrt{x^2 + (z-R)^2}} + \frac{q}{\sqrt{x^2 + (z+R)^2}} - \frac{1}{4 \cdot z}. \quad (2.4)$$

In Abbildung 2.2 ist das totale Potenzial in der x-z-Ebene dargestellt. Der ebenfalls markierte Sattelpunkt stellt die Potenzialbarriere dar. Mit abnehmendem Abstand wird die Barriere geringer. Im Rahmen des COB Modells geht man davon aus, dass die Potenzialbarriere unterhalb der Aus-

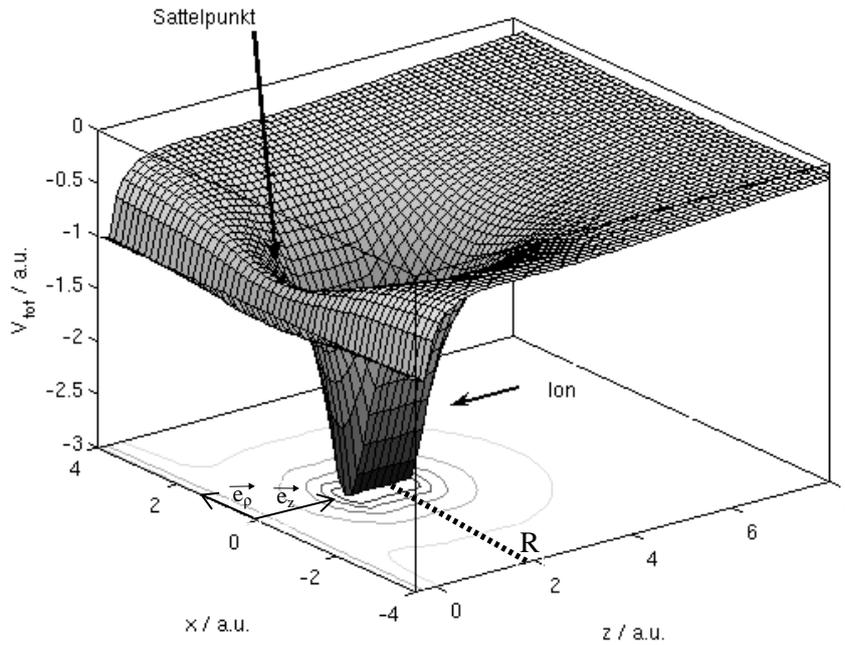


Abbildung 2.2: Totales Potenzial, generiert durch ein den Festkörper verlassendes aktives Elektron und durch ein vor der Oberfläche positioniertes Ion; Es setzt sich aus dem Potenzial des Ions, dem Potenzial der Spiegelladung des Ions und dem Potenzial der Spiegelladung des aktiven Elektrons zusammen.

trittsarbeit des Metalls gedrückt wird. Dadurch wird ein klassisch erlaubter resonanter Transfer (RC) von Elektronen zwischen dem Leitungsband des Festkörpers und der Energieniveaus mit hohen Hauptquantenzahlen des Ions ermöglicht. Aufgrund des Elektronentransfers in höhere Schalen sinkt die effektive Ladung des Ions, wodurch die Potenzialbarriere wieder angehoben wird, bis der Abstand des Ions den kritischen Abstand abermals erreicht und erneut Elektronen reso-

nant eingefangen werden. Ein *hohles Atom* entsteht. Auf der anderen Seite sorgen auch Verlustprozesse von Elektronen zur Autoionisation des Ions. Neben dem Augerprozess (AI), der durch das Herunterkaskadieren sowie die Emission von Elektronen für eine sukzessive Relaxation des angeregten *hohlen Atoms* sorgt, führt auch der sogenannte resonante Verlust (RL) zum erneuten Ansteigen der effektiven Ionenladung. Der resonante Verlust wird durch eine Störung des elektrostatischen Kernpotenzials des Ions angetrieben. Diese Störung wird durch die Wechselwirkung des Kernpotenzials mit der induzierten Bildladung hervorgerufen und führt zu einem Anheben der Energieniveaus im Ion. So kommt es dazu, dass besetzte Niveaus energetisch oberhalb der Fermienergie der Festkörperelektronen liegen und Elektronen somit resonant in unbesetzte Zustände des Festkörpers zurücktransferiert werden können. Diese in Abbildung 2.3 dargestellten und im COB-Modell berücksichtigten Prozesse beschreiben die Generierung von *hohlen Atomen* bereits mehrere atomare Einheiten vor dem Auftreffen auf die Oberfläche. Damit verknüpft ist eine sich

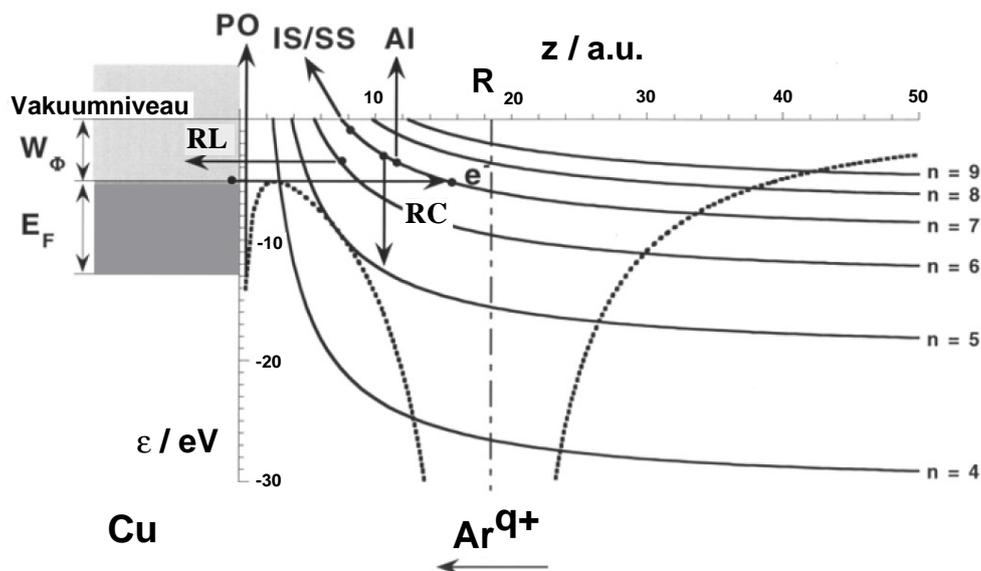


Abbildung 2.3: Schematische Darstellung der Teilprozesse bei der Annäherung eines hochgeladenen Ions an eine Festkörperoberfläche. (RC) Resonanter Einfang, (RL) resonanter Verlust, (AI) Augerionisation und (IS/SS) Energienivauverschiebung durch Bildladungwechselwirkung und Abschirmeffekte (aus[61])

stets ändernde effektive Ionenladung und ein totales Potenzial, welche stark vom Abstand des Ions zur Oberfläche abhängen. Als analytische Lösung für den kritischen Abstand, bei dem der Elektronentransfer einsetzt, findet man bei Burgdörfer et al. [48]:

$$R_{\text{krit.}} = \frac{1}{2W_A/eV} \sqrt{8q+2}, \quad (2.5)$$

wobei W_A die Austrittsarbeit der Elektronen im Material ist; angegeben in eV. Die Hauptquantenzahlen der resonanten Energieniveaus n_{RC} ergeben sich aus:

$$n_{RC} = n \in \mathbb{N}, \forall n \text{ mit } V_b(R) \leq \epsilon_n(R) \leq -W_A. \quad (2.6)$$

Dies betrifft alle Elektronenniveaus n , deren Bindungsenergie $\epsilon_n(R)$ zwischen der Potenzialbarriere $V_b(R)$ und der Austrittsarbeit $-W_A$ liegt.

Die zeitliche Entwicklung der senkrechten Geschwindigkeitskomponente $v_{\text{Ion}\perp}$ folgt aus der Newtonschen Bewegungsgleichung im Kraftfeld des Bildladungspotenzials und des Thomas-Fermi-Oberflächenpotenzials:

$$\frac{d}{dt} v_{\text{Ion}\perp} = \frac{F_{\text{Bild}} - F_{\text{TF}}}{m_{\text{Ion}}}. \quad (2.7)$$

Die Lösung führt zu einer beschleunigten Bewegung (Bildladungsbeschleunigung) des Ions aufgrund des elektrischen Felds der induzierten Bildladung des Ions. Für eine untere analytische Abschätzung findet man bei Burgdörfer et al. [51] :

$$\Delta E_{\text{kin}} = \frac{W_A q^2}{3\sqrt{2}}. \quad (2.8)$$

Dies bringt die schon angesprochene Konsequenz mit sich, dass es eine untere Schranke für die Annäherungsgeschwindigkeit der Ionen gibt. Aus Gleichung (2.8) folgt:

$$v_{\perp \text{min}} > 0,32 \sqrt{\frac{W_A q^2}{m_{\text{Ion}}}}. \quad (2.9)$$

Mit diesen recht einfachen Vorstellungen der Neutralisationsdynamik *hohler Atome* vor Metalloberflächen, nämlich dass jedes Mal wenn die Potenzialbarriere unterhalb der Fermienergie fällt, ein Elektron transferiert wird, findet man sehr gute Übereinstimmung mit experimentellen Daten hinsichtlich der Bildladungsbeschleunigung.

2.1.2.2 Das Dynamische COB- / das Erweiterte Dynamische COB Modell

Eine Weiterentwicklung des oben beschriebenen Modells ist das DCOM (Dynamical Classical over-barrier Model). Der größte Unterschied hierbei besteht darin, dass man das Konzept des diskreten Elektronentransfers aufgibt und zu einem kontinuierlichen Elektronenstrom übergeht. Für eine quantitative Angabe des Elektronenstroms zum Ion über den Potentialsattel (siehe Abbildung 2.2) sei an dieser Stelle auf Kapitel 2.2.1 Seite 33 verwiesen.

Für den resonanten Elektronenverluststrom folgt mit einer analogen geometrischen Betrachtungsweise:

Ein Elektron gilt als resonant „verloren“, wenn es über die Potenzialbarriere zurück in den Fest-

körper treten kann. Dies ist jedoch nur dann erlaubt, wenn es im Festkörper unbesetzte Zustände gibt. Die Energieniveaus, welche sich mit zunehmender Bildladungswechselwirkung zu geringeren Bindungsenergien verschieben, müssen der Bedingung $\varepsilon_n(R) > -W_A$ genügen, um den resonanten Transfer in den Festkörper zu ermöglichen. Somit lassen sich aus der noch zu erläuternden Raten-gleichung (2.10) die zeitabhängigen Besetzungszahlen a_n der Energieniveaus des Ions berechnen. Diese wiederum bestimmen aufgrund der daraus folgenden Abschirmung des Kernpotenzials die effektive Ladung und damit die Lage der Energieniveaus des Ions. Diese dynamische Verbesserung des Modells brachte nicht nur eine genauere Übereinstimmung mit Experimenten zur Bestimmung der Bildladungsbeschleunigung, sondern es wurden auch sehr gute Übereinstimmungen mit experimentell ermittelten Sekundärelektronenausbeuten und Gleichgewichtsladungszuständen in Oberflächenstreuexperimenten gewonnen. Besonders eindrucksvoll gelang dies Ducree et al. [62] durch eine erneute Erweiterung des Modells zum EDCOM (extended dynamical COM).

Bei der Modellierung Ducrees experimenteller Daten zum Ladungsaustausch und zur Elektronenausbeute bei streifendem Einschuss von hochgeladenen Ionen auf Oberflächen waren die Ergebnisse des DCOM nicht mehr befriedigend. Rechnungen von Ducree et al. [55, 56] und Thumm et al. [57] mit dem EDCOM zeigten abermals faszinierende Übereinstimmung mit der hochauflösenden Elektronenspektroskopie. Hierbei wurden nicht nur die Hauptschalen, sondern auch die Unterschalenstruktur des Ions in die numerische Simulation integriert und zwei neue Basisprozesse eingeführt, der „Side-Feeding Prozess“ sowie der „Peel-off Prozess“. Diese Prozesse gewinnen an Bedeutung, wenn die Abstände des Ions zur Oberfläche sehr klein sind oder das Ion gar in die Oberfläche eindringt.

Weitere Modelle zur Beschreibung der Neutralisationsdynamik hochgeladener Ionen, wie das Close-Coupling-Modell von Bahrim, Sidky und Thumm [58, 63, 59, 64], womit ein quantenmechanisch exakter Zugang beschrieben wird, oder das Kaskadenmodell von Stolterfoht et al. [54], welches sich der Relaxation von Ne-Ionen unterhalb einer Aluminiumoberfläche widmet, zeigen lediglich Abweichungen in spezieller Fragestellung und sind hier nur erwähnt.

2.2 Simulationen zur Neutralisationsdynamik hochgeladener Ionen

Das im vorigen Kapitel skizzierte Modell zur Beschreibung der Relaxationsdynamik findet in diesem Kapitel in einer numerischen Computersimulation Anwendung. Begonnen wird mit einer kurzen Einführung und Erläuterung der nach Burgdörfer et al. [48] und Ducree et.al [55, 56, 62, 57] übernommenen DCOM/EDCOM-Modellierungsvorschriften um in einem zweiten Teil eine erneute Erweiterung des Modells zum Ya-DCOM (Yet another DCOM) durchzuführen. Diese Simulation rechnet mit senkrechtem Ioneneinfall, so dass das Ion die Oberfläche nicht nur streift, sondern in den Festkörper eindringt. Das Hauptaugenmerk liegt dann auf einer quantitativen Aussage der Energiebilanz bezüglich der Verteilung der potenziellen Energie in den Festkörper (Deposition) bzw. außerhalb des Festkörpers (Emission).

2.2.1 DCOM/EDCOM-Simulation nach Ducree

Burgdörfer gelang es mit dem SCOM erstmalig unter Anwendung des COB-Modells auf die Ionen-Oberflächenwechselwirkung zuverlässige Daten über den Zuwachs an kinetischer Energie der Ionen vor Oberflächen zu gewinnen. Mit der Maßgabe auch Informationen über die zeitliche Entwicklung des Ions zu erhalten, entstand das DCOM. Dieses Modell kommt von einem diskreten Elektronenaustausch ab und nimmt stattdessen einen klassisch erlaubten, kontinuierlichen Elektronenstrom zwischen Festkörperoberfläche und Ion an. Grundlage für alle Berechnungen ist das totale Potenzial Gleichung (2.4) mit dem enthaltenen Sattelpunkt, über den ein klassisch erlaubter Elektronentransfer möglich ist.

2.2.1.1 Die Ratengleichung

Maßgeblich für die Dynamik der Neutralisation ist die zeitliche Entwicklung der Besetzung der Energieniveaus a_n des Ions. Diese wird im EDCOM-Modell durch folgende Ratengleichung beschrieben:

$$\frac{d}{dt}a_n = \Theta(A_n - a_n)I_n^{\text{RC}} - a_n I_n^{\text{RL}} + w_n^{\text{fin}} \sum_{n' > n} \Gamma_{n',n} w_{n'}^{\text{ini}} - 2w_n^{\text{ini}} \sum_{n' < n} \Gamma_{n,n'} w_{n'}^{\text{fin}} + \Theta(A_n - a_n)I_n^{\text{SF}} - a_n I_n^{\text{PO}}. \quad (2.10)$$

A_n beschreibt die maximale Besetzungszahl. Als Koeffizienten treten Raten des Resonanten Einfangs (RC), des Resonanten Verlusts (RL), des Verlusts und des Zuwachses auf Grund von Augerprozessen ($\Gamma_{n,n'}$), Elektronenverlust durch Peel-off Prozesse (PO) und Elektronenzuwachs in inneren Schalen durch Side-feeding Prozesse (SF) auf. Diese sollen im Folgenden erläutert werden. w_n^{fin} korrigiert die Augerelektronenrate entsprechend der Anzahl der Elektronen in der finalen Schale und w_n^{ini} berücksichtigt die Ununterscheidbarkeit der Elektronen in der initialen Schale [55].

2.2.1.2 Der Resonante Einfang

Die Energieniveaus ε_n werden stark vereinfacht durch das semiklassische Bohrsche Atommodell wiedergegeben. Der Resonante Einfang, das heißt eine von Null verschiedene RC -Rate, ergibt sich dann, wenn ein resonantes Energieniveau im Ion existiert. Ein Energieniveau $\varepsilon_n(R)$ ist resonant, wenn dessen Eigenwert zwischen Oberkante des Leitungsbandes $-W$ und dem Maxima aus Leitungsbandunterkante V_0 und Potenzialbarriere V_b liegt:

$$-W \geq \varepsilon_n(R) \geq \max(V_0, V_b). \quad (2.11)$$

Der Elektronenstrom zum Ion aus dem sich öffnenden Potenzialkanal über der Potenzialbarriere, der durch den geometrischen Querschnitt σ dargestellt werden kann, ergibt sich aus:

$$I_n^{RC}(R) = \sigma(R) j_n(R). \quad (2.12)$$

Für die Stromdichte $j_n(R)$ in das n -te Energieniveau wird bei Ducree et al. [65, 56] folgende Modellierung vorgeschlagen:

$$j_n(R) = \frac{1}{4} \int_{\max[V_b(R), \varepsilon_{n-0.5}]}^{\min[-W_A, \varepsilon_{n+0.5}]} v_{e^-}(E) \cdot \rho(E) dE \quad (2.13)$$

$$= \frac{1}{4} \int_{\max[V_b(R), \varepsilon_{n-0.5}]}^{\min[-W_A, \varepsilon_{n+0.5}]} \sqrt{2|E + V_b(R)|} \cdot D(E) dE. \quad (2.14)$$

$D(E)$ ist die spektrale Zustandsdichte der Festkörperelektronen. $\varepsilon_{n\pm 0.5}$ definiert eine Unschärfe des Energieniveaus, in welches gefüllt wird.

2.2.1.3 Der Resonante Verlust

Ähnlich wird der Resonante Verlust behandelt. Mit abnehmendem Abstand des Ions von der Oberfläche wird der Einfluss der induzierten Bildladung auf das Potenzial des Atomkerns immer größer. In der einfachen Näherung des Bohrschen Atommodells wird diese Störung als hinreichend klein betrachtet und es ist gerechtfertigt, innerhalb der Störungsrechnung erster Ordnung das Bildladungspotenzial am Ort des Ions zu den Energieniveaus zu addieren. Dies führt zum Anheben der Energieniveaus mit kleiner werdendem Abstand. Werden in Folge der Annäherung die zuvor gefüllten Energieniveaus oberhalb der besetzten Festkörperveneaus gehoben:

$$\varepsilon_n(R) \geq -W, \quad (2.15)$$

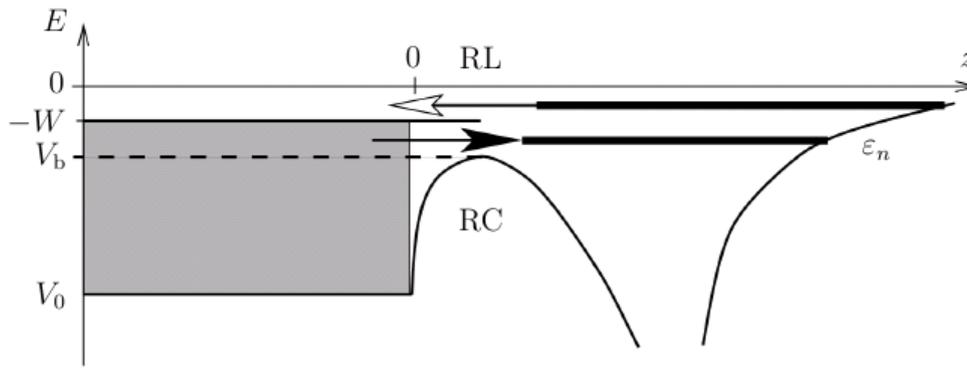


Abbildung 2.4: Resonanter Ladungsaustausch. Stehen besetzte Leitungsbandzustände leeren atomaren Niveaus gegenüber, so können Bandlelektronen unter der Bedingung $-W \geq \epsilon_n \geq V_b$ über die Potenzialbarriere hinweg zum HCl übergehen (RC). Der umgekehrte Prozess, welcher $\epsilon_n \geq \max(-W, V_b)$ erfordert, reionisiert das HCl (RL); (aus [65]).

so erfolgt ebenfalls ein klassisch erlaubter Elektronentransfer vom Ion zum Festkörper. Die Rate ist nach Burgdörfer et al. [48] zum Einen durch die klassische Umlauffrequenz der Elektronen im jeweiligen Energieniveau gewichtet:

$$v_n = \frac{q_n^2(R)}{2\pi n^3}, \quad (2.16)$$

sowie zum Anderen durch die Wahrscheinlichkeit des Übertritts in den Festkörper bestimmt. Diese kann wiederum geometrisch abgeschätzt werden:

$$P(\epsilon_n, R) \cong \frac{R_{\text{krit.}}(\epsilon_n) - R}{R_{\text{krit.}}(\epsilon_n)}. \quad (2.17)$$

Die Größe $P(\epsilon_n, R)$ gibt das Verhältnis der Fläche einer Kugel des mittleren Orbitalradius $\langle r \rangle_n$ und des Sattelquerschnitts σ wieder [65]. Für den Verluststrom aus dem n-ten Energieniveau folgt demnach:

$$I_n^{RL}(R) = \Theta(W + E_n(R)) P(E_n, R) v_n. \quad (2.18)$$

In Abbildung 2.4 sind die eben beschriebenen Prozesse schematisch dargestellt. Die Pfeile deuten den Resonanten Einfang bzw. den Resonanten Verlust an. Der grau gezeichnete Bereich symbolisiert das Gebiet der Leitungsbandelektronen.

2.2.1.4 Der Augerprozess

Neben den resonanten Prozessen der Neutralisation und Reionisation ist der Augerprozess ein für die Relaxation des *hohlen Atoms* verantwortlicher Prozess. Er führt ebenfalls zur Reionisation, jedoch unter gleichzeitigem Auffüllen einer Innerschalenvakanz mit einem Elektron aus einer

höheren Schale. Da Mehrschalenprozesse stark unterdrückt sind, werden nur Zweischaalenprozesse betrachtet. Dies bedeutet, dass die bei dem Abregungsprozess ($n_{\text{ini}} \implies n_{\text{fin}}$) freiwerdende Energie zur Ionisation der Schale n_{ini} führt. Die Raten der Augerprozesse, mit denen sich das *hohle Atom* abregt, können durch Rechnungen mit dem COWAN-Code [66, 67, 68] abgeschätzt werden, aber auch simplere Skalierungsregeln [69, 70] bringen hier beachtlich übereinstimmende Resultate. Die schnellsten Raten werden nach Burgdörfer et al. [51] und Ducree et al. [65] durch die analytische Funktion

$$\Gamma_{n_{\text{ini}}, n_{\text{fin}}}^{\text{AI}} = \frac{5,06 \cdot 10^{-3} \frac{1}{\text{a.u.}}}{(n_{\text{ini}} - n_{\text{fin}})^{3,46}} \quad (2.19)$$

abgeschätzt. Zu erkennen ist, dass mit wachsender Differenz $\Delta n = n_{\text{ini}} - n_{\text{fin}}$ die Raten schnell abnehmen und somit Prozesse mit $\Delta n = 1$ dominieren.

2.2.1.5 Side-feeding und Peel-off Prozesse

Bereits etwa zehn atomare Einheiten bevor das *hohle Atom* in den Festkörper eintritt, kommt es zum Überlappen der Einelektronen-Ortswellenfunktion mit den Ortswellenfunktionen der Festkörperelektronen. Dies bringt eine Streuung der stark delokalisierten Rydbergelektronen hoher Quantenzahlen an den Festkörperelektronen mit sich. Dieser so genannte Peel-off Prozess (PO) führt zum Abstreifen jener Elektronen, die in Schalen großer Quantenzahlen und sehr schwacher Bindungsenergie sitzen. Die semiklassische Beschreibung der Peel-off Rate geht auf Ducree et al. [65, 56] zurück und lautet:

$$I_n^{\text{PO}}(R) = a_n \frac{N_n^{\text{ol}}(R)}{T_n} \frac{2\pi \langle r \rangle_n}{L_n(R)} \Theta(\langle r \rangle_n - \lambda_{\text{Abschirm}}(R)), \quad (2.20)$$

wobei der Basisstrom durch das Reziproke der Umlaufzeit T_n definiert ist und durch den Überlappfaktor

$$N_n^{\text{ol}}(R) = \left\{ \begin{array}{ll} \frac{V_n^{\text{ol}}(R)}{V_n} & \text{für } R > z_{\text{Bildebene}} - \langle r \rangle_n \\ 1 & \text{sonst} \end{array} \right\} \quad (2.21)$$

gewichtet wird. Der Quotient $\frac{2\pi \langle r \rangle_n}{L_n(R)}$ korrigiert die Basisrate weiterhin um einen Faktor, der einer Reaktionszeit für das Abstreifen eines Elektrons entspricht [62]. Die Sprungfunktion verhindert ein Abstreifen von Elektronen aus Schalen mit einem mittleren Orbitalradius kleiner als der Abschirmlänge $\lambda_{\text{Abschirm}}(R)$:

$$\lambda_{\text{Abschirm}}(R) = \lambda_{\text{Abschirm}}^0 \left(\frac{\max(R, 0)}{z_{\text{Bildebene}}} + 1 \right). \quad (2.22)$$

Ein dem Peel-off Prozess konkurrierender Prozess, der ebenfalls durch den Überlapp der Einelektronenzustände des HCI mit den Festkörperelektronen initiiert wird, ist der Side-feeding Prozess (SF). Dabei wird davon ausgegangen, dass Vakanzen innerer Schalen über augerähnliche Prozes-

se direkt gefüllt werden können, wenn der Überlapp dieser inneren lokalisierten Schalen mit den Festkörperelektronen groß genug ist. Ducree et al. [62] beschreiben die Rate dafür wie folgt:

$$I_n^{\text{SF}}(R) = I_0^{\text{SF}} q N_n^{\text{vac}} N_n^{\text{ol}}(R) \left(\frac{n_{\text{loc}} + 1 - n_L}{n_{\text{loc}} + 1 - n} \right)^{3.46}. \quad (2.23)$$

Sie setzt sich zusammen aus dem Überlappfaktor $N_n^{\text{ol}}(R)$ des Orbitalvolumens mit der Elektronenverteilung des Festkörpers. N_n^{vac} steht für die Anzahl der Leerstellen in der n-ten Schale und I_0^{SF} für eine Basisrate multipliziert mit dem Betrag der Ladungswolke $-q$, welche die effektive Ionenladung im Festkörper abschirmt.

2.2.2 Erweiterung zur numerischen Simulation Ya-DCOM

Die oben bereitgestellten Methoden finden zumeist Anwendung in Rechnungen für den Einschuss von hochgeladenen Ionen unter sehr kleinen Winkeln auf Festkörperoberflächen. Sie liefern Vorhersagen für den Ladungsaustausch und den Endladungszustand reflektierter Ionen sowie die absolute Sekundärelektronenausbeute [62, 53, 50]. Nun sollen diese Methoden im folgenden Abschnitt auch für den senkrechten Einfall übernommen und mit neu einzuführenden Verfahren zum Ya-DCOM erweitert werden, um eine energetische Aussage über die Neutralisationsdynamik zu erhalten. Die Annahmen dieser Erweiterung beruhen auf der Idee, dass der Hauptteil der Neutralisations- und Relaxationsdynamik über Elektronen abläuft. Weiterhin wird angenommen, dass Elektronen, die vor der Oberfläche emittiert werden, sich zu 50% in den vorderen Halbraum (von der Probe weg) und zu 50% zur Probe hin bewegen. Damit werden 50% der Energie emittiert und 50% deponiert. Für Elektronen, die unterhalb der Oberfläche emittiert werden, gilt zunächst die gleiche geometrische Betrachtung. Hinzu kommt aber, dass die Elektronen, die in den vorderen Halbraum emittiert werden, den Weg bis zur Oberfläche zurücklegen müssen. Auf diesem Weg wird eine inelastische Streuung der Elektronen im Festkörper angenommen. Je nach Emissionstiefe, Elektronenenergie und Probenmaterial ist eine Schwächung des emittierten Anteils zu Gunsten des deponierten Anteils zu berechnen. Die neu modellierten Programmteile betreffen demnach den Energieverlust der Ionen im Festkörper und die elastische Streuung der Elektronen, die unterhalb der Oberfläche emittiert werden.

2.2.2.1 Ionentrajektorie und der Energieverlust der Ionen

Die Trajektorie der Ionen wird durch die Newtonsche Bewegungsgleichung beschrieben:

$$\frac{d}{dt} \vec{v}_{\text{Ion}\perp} m_{\text{Ion}} = \vec{F}_{\text{Bild}}(\vec{R}) - \vec{F}_{\text{TF}}(\vec{R}) \Theta(|\vec{R}|, 0) - \vec{F}_{\text{Stopping}}(\vec{R}) \Theta(0, |\vec{R}|). \quad (2.24)$$

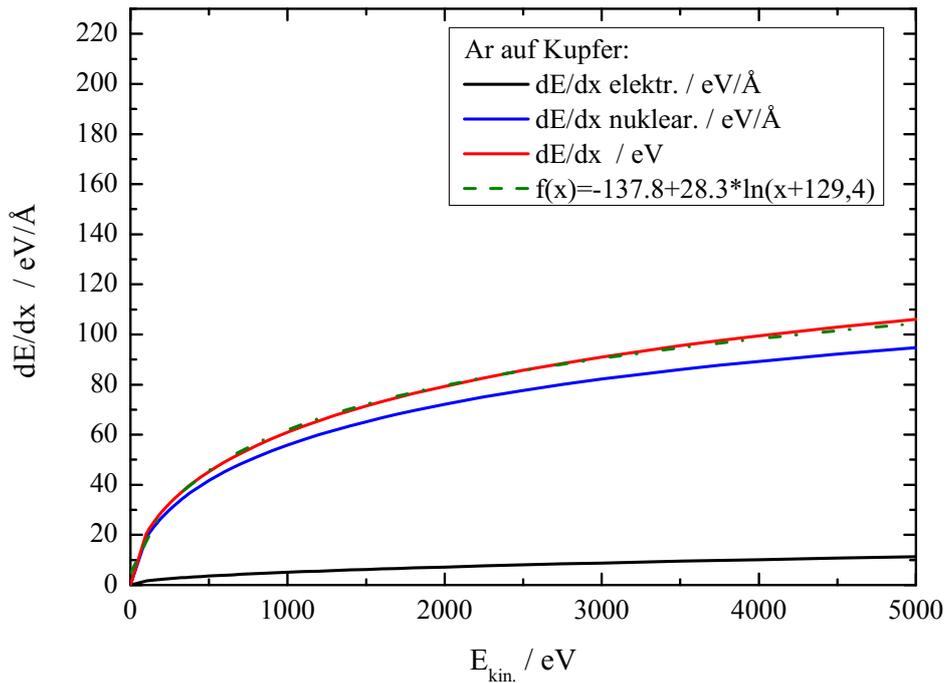


Abbildung 2.5: Energieverlust pro Wegstecke $\frac{dE}{dx}$ in Abhängigkeit der kinetischen Energie E_{kin} . Die Beiträge der elektronischen und der nuklearen Wechselwirkung sind separat dargestellt (SRIM2003 [71]).

Diese Gleichung wird entsprechend der Ratengleichung iterativ in vorgegebenen Zeitschritten Δt gelöst:

$$\vec{v}_{i+1} = \vec{v}_i + \frac{\vec{F}(\vec{R})\Delta t}{m_{\text{nuc,Ion}}} \quad (2.25)$$

$$\vec{R}_{i+1} = \vec{R}_i + \vec{v}_i\Delta t. \quad (2.26)$$

Vor dem Erreichen des kritischen Abstands R_{krit} wirkt nur die Bildladungskraft

$$\vec{F}_{\text{Bild}}(\vec{R}) = - \left(\frac{q(R)}{2(R - z_{\text{im}})} \right) \vec{e}_z, \quad (2.27)$$

so dass wegen $q(R) = \text{konst.}$ Gleichung (2.26) bis $R(t_{\text{krit.}}) = R_{\text{krit.}}$ analytisch integriert werden kann.

Wird der Abstand des Ions zur Oberfläche geringer als die mittleren Radien der Einelektronenorbitale, so überlappen diese mit den Elektronenwolken der Atome der ersten Gitterlage. Die dadurch existierende Pauli-Abstoßung zwischen zwei einzelnen Atomen kann näherungsweise im Thomas-Fermi-Modell durch das Potenzial

$$V_{\text{TFM}}(R) = \frac{q_{\text{nuc,Ion}} \cdot q_{\text{nuc,Probe}}}{R} \Phi \left(\frac{R}{a} \right) \quad (2.28)$$

beschrieben werden [65, 48, 72]. Für den Energieverlust $\frac{dE}{dx}$ des Ions innerhalb des Festkörpers wird die Thomas-Fermi-Abstoßung durch eine analytisch angepasste Funktion aus den TRIM-Tabellen nach Ziegler et.al [73, 74, 71] ersetzt. Die Kraft $F_{\text{Stopping}}(\vec{R})$ kann dann wie folgt beschrieben werden:

$$F_{\text{Stopping}}(\vec{R}) = \frac{dE}{dx}(E). \quad (2.29)$$

Dieses Potenzial ist streng genommen nur für hochenergetische Stöße zwischen Grundzustandskonfigurationen anwendbar [75]. Es existiert jedoch derzeit keine Potenzialrechnung für Stöße langsamer *hohler Atome* mit Oberflächen, so dass die Näherungen der TFM-Formel und der TRIM-Tabelle gegenwärtig die einzig sinnvollen Näherungen darstellen. In Abbildung 2.5 ist der Energieverlust pro Wegstrecke dargestellt (entnommen aus SRIM2003 [71]).

Dabei sind die Anteile des nuklearen und des elektronischen Energieverlustes separat dargestellt. Es ist bekannt, dass für einfachgeladene, sich im Grundzustand befindende Projektile, der nukleare Beitrag für geringe kinetische Energie dominiert. Es wird bei diesen Rechnungen angenommen, dass dies auch für angeregte *hohle Atome* gilt bzw. die Korrekturen zunächst zu vernachlässigen sind.

2.2.2.2 Tests der Bohrschen Energieniveaus

Da die Bestimmung der Energieeigenwerte hochgeladener Ionen vor einer leitenden Oberfläche eine sehr große Herausforderung darstellt, die bisher nur für große Abstände bzw. geringe Ladungszustände quantenmechanisch akzeptabel gelöst werden konnte [76, 63], soll in diesem Abschnitt die auf recht einfache Art berechneten Einelektronenenergieniveaus mit Atomstrukturechnungen verglichen werden.

Die Einelektronenenergieniveaus des Ions errechnen sich nach dem Bohrschen Atommodell bzw. nach dem Lösen der Einteilchenschrödingergleichung im Zentralkraftpotenzial des Kerns in atomaren Einheiten mit der Formel:

$$\varepsilon_n = \frac{1}{2} \frac{Z^2}{n^2}. \quad (2.30)$$

n bezeichnet die Hauptquantenzahl und Z die Kernladungszahl des Ions. Befindet sich mehr als ein Elektron im Feld des Kerns, so wird das Kernpotenzial durch die jeweils anderen Elektronen abgeschirmt. Dies führt zur Reduzierung der Kernladung. Mit den von John C. Slater [77, 78, 79] formulierten Regeln für die Abschirmung der Kernladung lässt sich eine effektive Kernladung errechnen:

$$q_{\text{eff.}} = \mathbf{S} \cdot \vec{a}_n. \quad (2.31)$$

S ist die Abschirmmatrix und a_n der Besetzungszahlenvektor der Energieniveaus. Mit Berücksichtigung der Slater-Regeln ergibt dies ausgeschrieben:

$$q_{\text{eff.}} = \begin{pmatrix} 0,3 & 0 & \cdots & \cdots & 0 \\ 0,85 & 0,35 & 0 & \cdots & \vdots \\ 1 & \ddots & \ddots & \ddots & \vdots \\ \vdots & \ddots & \ddots & \ddots & 0 \\ 1 & \cdots & 1 & 0,85 & 0,35 \end{pmatrix} \bullet \begin{pmatrix} a_1 \\ a_2 \\ \vdots \\ \vdots \\ a_n \end{pmatrix}. \quad (2.32)$$

Die Eigenwerte der Energieniveaus lauten:

$$\varepsilon_n = \frac{1}{2} \frac{q_{\text{eff.}}^2}{n^2}. \quad (2.33)$$

Um die Resultate dieser Energieeigenwerte mit Atomstrukturrechnungen zu vergleichen, wurden die Energieniveaus für verschiedene Elektronenkonfigurationen nochmals mit dem *Flexible Atomic Code* [80] berechnet. Neben der Korrektur der Einteilchenbasiswellenfunktionen durch eine selbstkonsistente Bestimmung der elektronischen Abschirmung des Kernpotenzials, werden auch relativistische Effekte vollständig behandelt. Abbildung 2.6 zeigt den Vergleich der beiden Methoden.

Dargestellt sind die Eigenwerte der Energieniveaus mit den Hauptquantenzahlen $n = 2$ bis 13 eines Ar^{9+} -Ions. Die K-Schale ist voll besetzt. Die L-Schale besitzt eine Vakanz. Unterschiede in den Werten für die Eigenwerte sind zwar zu erkennen, jedoch sind die Abweichungen akzeptabel, berücksichtigt man den enormen Gewinn an Rechenzeit bei Benutzung des einfacheren Bohrschen Atommodells. Die Einflüsse der in der Metalloberfläche erzeugten Bildladung werden mit Störungsrechnung 1. Ordnung berücksichtigt. Die 1. Näherung der Störung, das Bildladungspotenzial (Gleichung (2.2)) am Ort des Ions, wird auch in dieser Rechnung zu den Eielektronenenergieniveaus addiert:

$$\varepsilon_n = \frac{1}{2} \frac{q_{\text{eff.}}^2}{n^2} + V^{\text{Bild}}(0, R, R), \quad (2.34)$$

wobei sich hier das Ion im Abstand R vor der Oberfläche befindet. Der größer werdende Einfluss der Störung mit kleiner werdendem Abstand führt dazu, dass die Energieniveaus bei Annäherung an die Metalloberfläche zu geringeren Bindungsenergien verschoben werden.

2.2.2.3 Energieverlust der Elektronen

Der Hauptaspekt der Erweiterung betrifft die Behandlung der bei der Relaxation des Ions emittierten Elektronen. Die Anzahl der bei der Relaxation des Ions emittierten und im Festkörper verbleibenden Elektronen bestimmt die Menge der deponierten potenziellen Energie. Durch Summation der kinetischen Energie jener Elektronen wird die deponierte potenzielle Energie quantifiziert. Zur

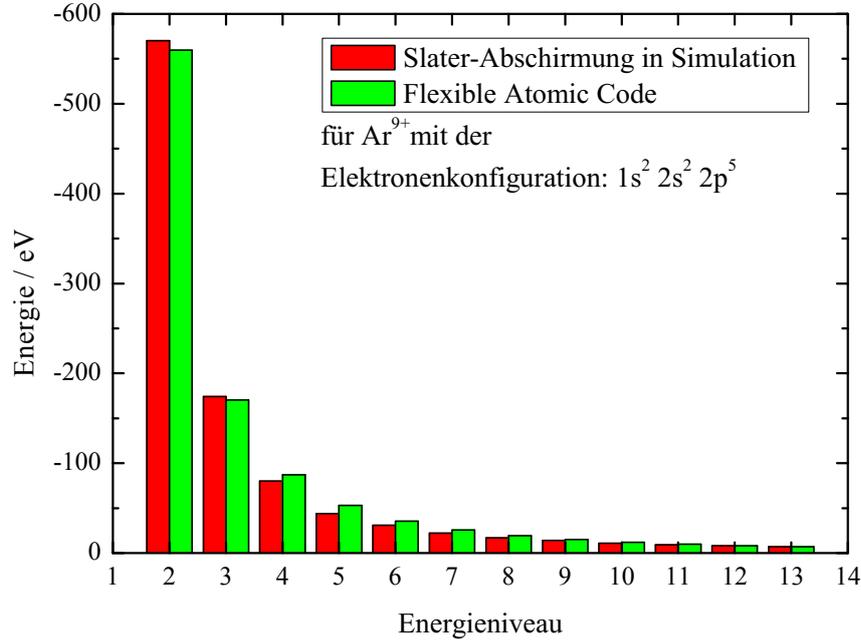


Abbildung 2.6: Dargestellt sind die Energieeigenwerte der Niveaus mit Hauptquantenzahlen $n = 2 - 13$ eines Ar^{9+} -Ions der Elektronenkonfiguration $1s^2 2s^2 2p^5$. Berechnet wurde einmal nach der Bohrschen Eigenwertformel mit Slaterabschirmung (rot) und zum Anderen mit dem quantenmechanisch exakteren *Flexible Atomic Code* (grün).

numerischen Umsetzung werden die emittierten Elektronen in Energiekanäle einsortiert. Die deponierte Energie ergibt sich aus:

$$E_{\text{dep}} = \sum_i (N_{e^-}^{\text{dep}}(E_i) \cdot E_i). \quad (2.35)$$

Der Summationsindex i läuft über alle Energiekanäle. $N_{e^-}^{\text{dep}}(E_i)$ gibt die Anzahl der Elektronen mit der Energie E_i an. Je nach Position des Ions (oberhalb oder unterhalb der Oberfläche) können die Zählraten der einzelnen Kanäle wie folgt aufgeteilt werden.

- Befindet sich das Ion oberhalb der Oberfläche, so wird von einer isotropen Elektronenemission ausgegangen [81, 82], damit werden 50 % der Elektronen in den dem Festkörper abgewandten Halbraum und 50 % auf die Festkörperoberfläche emittiert. Es wird angenommen, dass letztere Elektronen ihre gesamte kinetische Energie im Festkörper deponieren. Für

die Intensitäten der oberhalb deponierten bzw. emittierten Elektronen gilt:

$$N_{e^-}^{\text{dep,ober}} = 0.5N_{e^-}^0; \quad N_{e^-}^{\text{rem,ober}} = 0.5N_{e^-}^0. \quad (2.36)$$

- Von den Zählraten der Elektronen, die unterhalb der Oberfläche emittiert werden, werden zunächst ebenfalls 50 % im Festkörper verbleiben, zudem kommt noch ein Beitrag der Elektronen, die durch Streuung auf dem Weg zur Oberfläche den Festkörper nicht verlassen können. Für die Intensitäten folgt hier:

$$N_{e^-}^{\text{dep,unt}} = 0.5 \cdot N_{e^-}^0 + 0.5 \cdot N_{e^-}^0 (1 - K); \quad N_{e^-}^{\text{rem,unt}} = 0.5 \cdot N_{e^-}^0 K(E_i), \quad (2.37)$$

mit Berücksichtigung einer energieabhängigen Elektronenschwächung $K(E_i)$.

Die Modellierung der Wechselwirkung von Elektronen mit Festkörpern, insbesondere der Streuung und des Energieverlusts, umfasst bereits eine Vielzahl von Publikationen, ist aber auch Gegenstand aktueller Forschung. Frühe Arbeiten von Bethe [83] oder Peterson und Green [84] legten den Grundstein, jedoch meist für hochenergetische Elektronen im Bereich von mehreren keV. Mit Entwicklung der Augerelektronenspektroskopie und der Röntgen-Photoelektronenspektroskopie zur akkuraten quantitativen Analyse von Oberflächen wächst die Anzahl der Modellierungen für den hier interessanten Energiebereich von wenigen 10 eV bis 2000 eV [85, 86]. Neben einigen numerischen Simulationen, die zumeist auf Monte-Carlo-Methoden basieren [87], gibt es auch semiempirische Ansätze. Die inelastische mittlere freie Weglänge der Elektronen im Festkörper dient dabei als charakteristischer Parameter für die elastische und inelastische Elektronenstreuung [88]. Der hier verwendete analytische Ansatz stammt von Cumpson und Seah [89]. Sie zeigen, dass die Einführung einer charakteristischen Schwächungslänge an Stelle der inelastischen mittleren freien Weglänge einen Großteil der Fehler kompensiert, die durch die Modellierung der elastisch gestreuten Elektronen verursacht werden, ohne dabei die Komplexität des Modells zu erhöhen. Die Resultate dieses Modells liegen sehr dicht an denen genauer Monte-Carlo Simulationen [89]. Hervorragende experimentelle Übereinstimmungen wurden unter anderem in Analysen von Dünnschichtsystemen erhalten [89, 90]. Die in [89] angegebene analytische Formel:

$$I_B = I_B e^{\frac{-d}{\lambda_{AL}^A(E_B)}}, \quad (2.38)$$

beschreibt die Schwächung der Intensität charakteristischer Elektronen einer Komponente B, die durch eine Schicht der Komponente A mit der Dicke d abgedeckt ist. Für die energieabhängige

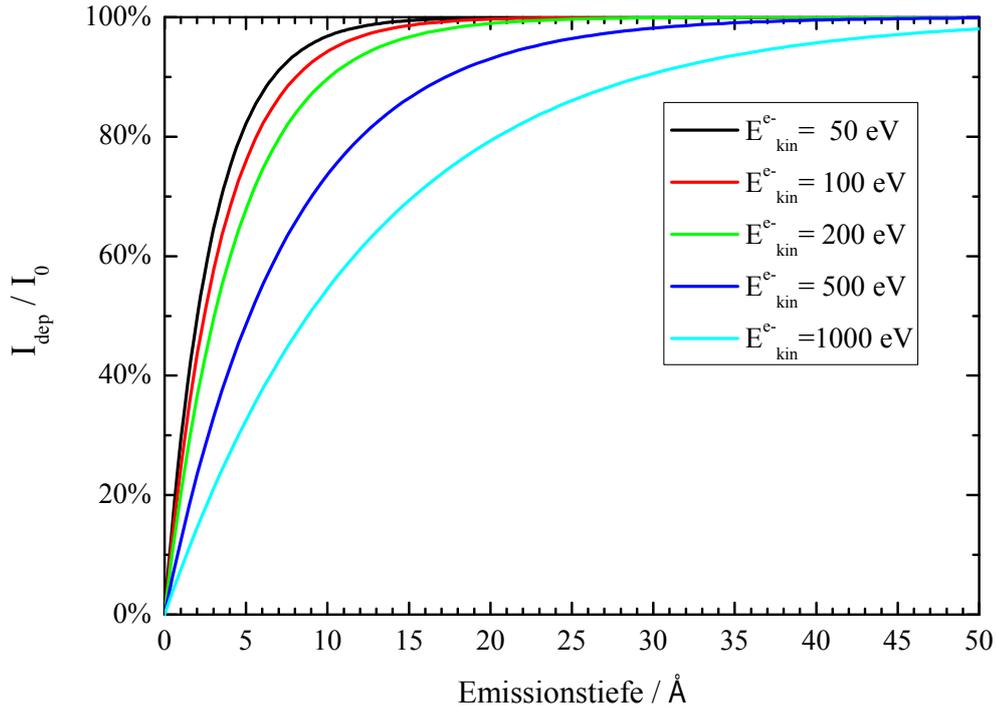


Abbildung 2.7: Absorptionskurve von Elektronen der Intensität I_0 in Abhängigkeit der Tiefe des Emissionsortes und der Elektronenenergie E_{kin}^{e-} in einer Kupferprobe nach Cumpson et al. [89]

charakteristische Schwächungslänge $\lambda_{\text{AL}}^A(E_B)$ wird definiert:

$$\lambda_{\text{AL}}^A = 0.316(a/\text{nm})^{\frac{3}{2}} \left(\frac{E_B/\text{eV}}{Z^{0.45}(\ln(\frac{E_B/\text{eV}}{27.21}) + 3)} + 4 \right) \text{nm}. \quad (2.39)$$

Man benötigt hierfür die Kernladungszahl Z der Komponente A und deren Gitterkonstante a in nm, die mit

$$a = 10^8 \left(\frac{\mu}{\rho N_{\text{av}}} \right)^{\frac{1}{3}} \quad \text{mit } \mu \dots \text{atomare Masse in g} \quad (2.40)$$

und $\rho \dots$ Dichte in kgm^{-3}

abgeschätzt werden kann. Dieser Ansatz lässt sich ebenfalls auf die Schwächung der Elektronen übertragen, die in einer Tiefe z unterhalb der Festkörperoberfläche von einem relaxierenden Ion emittiert werden. Die schwächende Komponente A entspricht dem Probenmaterial und die Quelle der charakteristischen Elektronenstrahlung dem relaxierenden Ion. Mit einer charakteristischen Schwächungslänge von $\lambda = 0.44$ nm in Kupfer für Elektronen der Energie von 200 eV ergibt sich die in Abbildung 2.7 dargestellte Absorptionskurve in Abhängigkeit der Emissionstiefe für die LMM-Augerelektronen des Argonions. Mit diesen Annahmen wird versucht, die Neutralisationsdynamik von energetischen Gesichtspunkten zu beleuchten. Einige Ergebnisse der in dieser Arbeit entwickelten numerischen Simulation werden im nächsten Abschnitt präsentiert.

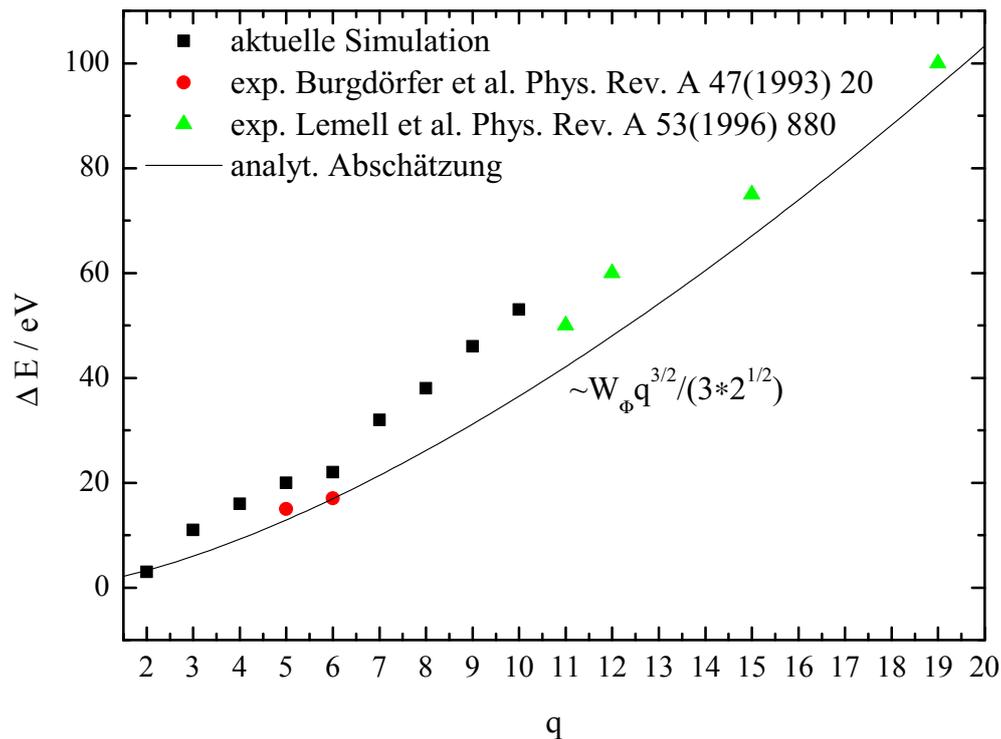


Abbildung 2.8: Gezeigt ist die Zunahme der kinetischen Energie ΔE von Projektilen verschiedener Ladungszustände q vor der Probenoberfläche. Ebenfalls eingezeichnet sind in der Literatur angegebene experimentelle Ergebnisse und eine untere analytische Abschätzung nach Burgdörfer (Gleichung (2.8)).

2.2.2.4 Darstellung der numerischen Ergebnisse

Das Hauptinteresse der Auswertung der numerischen Simulation liegt bei der Quantifizierung der eingetragenen und der durch Sekundärelektronen emittierten potenziellen Energie von Argonionen, die mit einer Kupferprobe in Wechselwirkung treten. Die kinetische Energie der Ionen bleibt dabei unberücksichtigt. Betrachtet wird die Bildladungsbeschleunigung, die über Elektronentransferprozesse freiwerdende Energie und die dabei in der Probe deponierte Energie.

Die Bildladungsbeschleunigung ist mit einem Zuwachs an kinetischer Energie verbunden. Dies bedeutet, dass die auf diesem Weg in die Probe eingetragene Energie zwar kalorimetrisch erfasst wird (Energieverlust des Ions), aber nicht notwendiger Weise direkt in das elektronische System des Festkörpers eingetragen wird. Die Energieumwandlung findet hauptsächlich über nukleare Wechselwirkung statt. In Abbildung 2.8 ist der numerisch errechnete Energiegewinn über dem Ladungszustand dargestellt. Als Referenz für diese Werte dienen experimentell ermittelte Werte, angegeben von Lemell et al. [53] und Burgdörfer et al. [51]. Die Übereinstimmung mit den experimentellen Daten ist gemessen an der Einfachheit der Simulation akzeptabel. Bezogen auf die totale innere potenzielle Energie der Ionen beträgt dieser Anteil etwa 5%. Der restliche Teil der

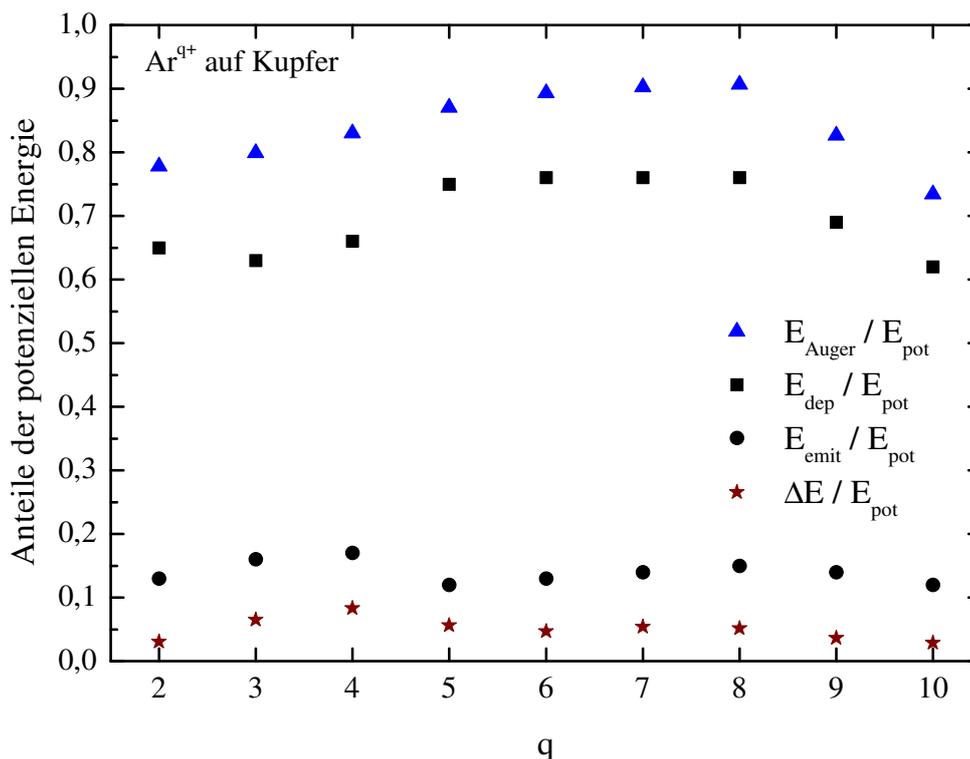


Abbildung 2.9: Dargestellt ist der über Elektronen vermittelte Energietransfer E_{Auger} , die deponierte bzw. emittierte potenzielle Energie (E_{dep} bzw. E_{emit}) und der Energiezuwachs durch Bildladungsbeschleunigung ΔE , jeweils bezogen auf die innere potenzielle Energie E_{pot} eines Argonions mit der Einschussenergie von 700 eV über dem Ladungszustand.

inneren potenziellen Energie wird in diesem Modell direkt über Elektronentransfer freigesetzt und in den Festkörper eingekoppelt. Im Kalorimetrieexperiment tragen beide Anteile zur Erhöhung der Proben temperatur bei.

Der über Elektronen freiwerdende Teil der potenziellen Energie des Ions ist in Abbildung 2.9 gezeigt. Weiterhin ist in der Darstellung zwischen den Anteilen der deponierten und der emittierten potenziellen Energie unterschieden. Auch die Bildladungsenergie ist dargestellt. In dieser Darstellung ist zu erkennen, dass sich die Anteile der deponierten Energie und der emittierten Energie zwar zu der gesamten über Elektronen freiwerdenden Energie ergänzen, diese Summe jedoch nicht die gesamte potenzielle Energie ergibt. Durch Hinzunahme des Anteils der Bildladungsbeschleunigung erreicht die Summation nahezu 100%. Zusammengefasst bedeutet dies, betrachtet man den gesamten Energietransfer der potenziellen Energie eines hochgeladenen Ions zum Festkörper durch Elektronen vermittelt, so verbleiben laut numerischer Simulation etwa 75% der potenziellen Energie im elektronischen System der Probe, 15% werden durch Sekundärelektronen emittiert und etwa 6% entfallen auf die Beschleunigung des Projektils auf Grund der Bildladungswechsel-

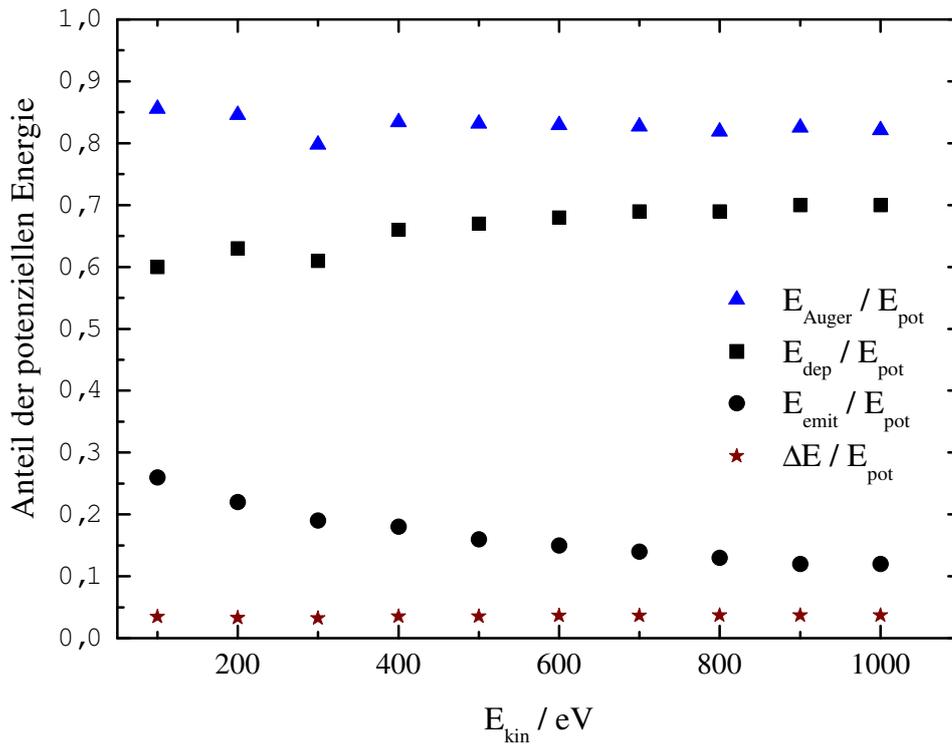


Abbildung 2.10: Dargestellt ist der durch Elektronen ausgelöste Energietransfer E_{Auger} , die deponierte bzw. emittierte potenzielle Energie (E_{dep} bzw. E_{emit}) und der Energiezuwachs durch Bildladungsbeschleunigung ΔE jeweils bezogen auf die innere potenzielle Energie E_{pot} eines Argonions mit dem Anfangsladungszustand $q=9$ über der kinetischen Energie des Ions.

wirkung. Die verbleibenden 4% der potenziellen Energie könnten dadurch erfasst werden, wenn man berücksichtigt, dass zur Berechnung der potenziellen Energie des Ions die Ionisationsenergie bezüglich der Vakuumenergie berechnet wurde. Bei der Neutralisation vor der Festkörperoberfläche starten die Elektronen auf Energieniveaus, die der Energieverteilung der Elektronen im Leitungsband des Festkörpers genügen, also mit einer Energie kleiner der Vakuumenergie. Die so begründete Differenz in der Energiebilanz wird in dieser Darstellung der Ergebnisse nicht mit berücksichtigt. Mit den Annahmen, dass bei der Neutralisation eines q -fach geladenen Ions q Elektronen vom Festkörper zum Ion transferiert werden und die mittlere Bindungsenergie dieser Elektronen im Festkörper etwa 5 eV beträgt, so erhält man für ein neunfach geladenes Argonion eine Energiedifferenz von 45 eV. Dies entspricht etwa 4,5 % der potenziellen Energie. Für ein zweifach geladenes Argonion erhält man 10 eV bzw. rund 20 % der potenziellen Energie. Dies ist eine untere Abschätzung. Durch zusätzlichen Elektronentransfer auf Grund von Autoionisationsprozessen vergrößert sich dieser Beitrag.

Interessant für die kalorimetrischen Messungen ist weiterhin eine Prognose über die Abhängigkeit dieser Mechanismen von der Projektilgeschwindigkeit. Dies wird im Anschluss dargestellt.

Der Einfluss der kinetischen Energie im Bereich von 100 eV bis 1000 eV wurde mit der Simulation ebenfalls untersucht. Abbildung 2.10 zeigt diese Abhängigkeit von der Projektilenergie. Für den Energiegewinn durch die Bildladungswechselwirkung als auch für den Energietransfer über Elektronen ist keine Abhängigkeit von der kinetischen Energie zu erkennen. Lediglich die Aufteilung der Elektronenenergie in deponierte und emittierte Energie verschiebt sich leicht zu Gunsten der emittierten Energie für niedrige kinetische Energien. Dies deutet darauf hin, dass sich die Relaxationskaskade für höhere kinetische Energien in den Festkörper hinein verschiebt. Der Einfluss der kinetischen Energie verschwindet nahezu für kinetische Energien zwischen 400 eV und 1000 eV. Dies rechtfertigt die lineare Extrapolation der eingetragenen Energie zur kinetischen Energie Null, um den Anteil der eingetragenen potenziellen Energie zu separieren. Lediglich für kinetische Energien sehr viel kleiner als 400 eV ist mit einer Vergrößerung des Fehlers bei der Extrapolation zu rechnen.

3 Experimentelles

3.1 Ionenerzeugung

Die in dieser Arbeit zur Erzeugung und Bereitstellung der Ionen benutzte Einrichtung arbeitet mit einer ECR-Ionenquelle, die von der Firma *Pantechnik* unter dem Modellnamen *Supernanogan* entwickelt wurde [91, 92]. Die ECR-Ionenquelle ist eine Plasmaionenquelle, in der die Heizung des Plasmas unter Nutzung der Elektronen-Zyklotron-Resonanz und durch Einspeisung von Mikrowellenstrahlung (im hiesigen Fall einer Frequenz von 14,5 GHz) erfolgt.

Dieses Kapitel führt mit plasmaphysikalischen Ansätzen in die Physik der ECR-Quelle ein, mit dem Schwerpunkt auf der Veranschaulichung des Plasmapotenzials, dessen Beitrag an der Beschleunigung sehr langsamer Ionen nicht mehr zu vernachlässigen ist. Hierfür nötige Kenngrößen und ihre Zusammenhänge werden erläutert.

In diesem Zusammenhang wird das allgemeine Funktionsprinzip von ECR-Quellen kurz erläutert. Ausführliche Beschreibungen finden sich in [6], [93] und [94].

3.1.1 Plasmaphysikalische Grundlagen der ECR-Quelle

Der Plasmazustand ist der vierte Aggregatzustand der Materie. Er ist ein Gemisch aus Ionen, Elektronen und Neutralteilchen. Die Eigenschaften des Plasmas werden vor allem durch die geladenen Teilchen des Plasmas bestimmt und unterscheiden sich drastisch von denen eines neutralen Gases. Der besonders effektive Energietransfer bei Kollisionen von Teilchen gleicher Masse sorgt für ein rasches Einstellen zweier stochastischer Energieverteilungen, den Maxwellverteilungen [95]:

$$f(v_{I,e}) = \left(\frac{m_{I,e}}{2\pi k_B T_{I,e}} \right)^{\frac{3}{2}} \cdot e^{-\frac{m_{I,e} v_{I,e}^2}{2k_B T_{I,e}}} . \quad (3.1)$$

Dies gilt zum Einen für die leichte Plasmakomponente (Elektronen m_e und v_e), zum Anderen für die schwerere Plasmakomponente (Ionen und neutrale Atome m_I , v_I). Es lässt sich damit eine kom-

ponentenspezifische mittlere Energie definieren, welche in Einheiten von k_B geschrieben werden kann:

$$\bar{E}_{I,e} = \frac{3}{2} T_{I,e} k_B, \quad (3.2)$$

und im Weiteren als Iontemperatur T_I oder Elektronentemperatur T_e bezeichnet wird. Dabei gilt:

$$k_B T = 1 \text{ eV} \implies T = 11600 \text{ K}. \quad (3.3)$$

Bringt man ein geladenes Teilchen in das Plasma, so wird dessen Ladung durch Umordnung aller Ladungsträger (vornehmlich der Elektronen) im Plasma nach einer bestimmten Zeit und charakteristischen Länge der Debye-Länge (Gleichung (3.5)) abgeschirmt. Das Lösen der Poisson-Gleichung unter Berücksichtigung einer kleinen Störung (der Probeladung) in einer nahezu homogenen Elektronenverteilung $n_e(\vec{r}, t)$ führt zu folgendem elektrostatischem Potenzial:

$$\Phi(r) = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{q}{r} e^{-\frac{r}{\lambda_D}}; \quad (3.4)$$

mit der charakteristischen Abschirmlänge:

$$\lambda_D = \sqrt{\frac{\epsilon_0 k_B T_e}{e^2 n_e}}. \quad (3.5)$$

ϵ_0 ist die Dielektrizitätskonstante, e die Elementarladung und n_e die mittlere Elektronendichte. Der erste Faktor des Potentials in Gleichung (3.4) beschreibt die Lösung der ungestörten Poisson-Gleichung mit der charakteristischen $\frac{1}{r}$ Abhängigkeit des Potentials. Die zusätzliche exponentielle Abhängigkeit in r beschreibt die Abschirmung der Probeladung im Feld aller anderen Ladungen. Bewirkt eine äußere Kraft (z.B. vermittelt durch eine elektromagnetische Welle) eine Ladungstrennung im Plasma, so folgt durch den Abschirmmechanismus ein internes elektrisches Feld, welches dieser Ladungstrennung entgegen wirkt. Die Teilchen beginnen mit einer charakteristischen Frequenz, der Plasmafrequenz zu schwingen:

$$\omega_{P,e} = \sqrt{\frac{e^2 n_e}{\epsilon_0 m_e}}. \quad (3.6)$$

Dabei bedeutet m_e die Masse der jeweiligen Teilchen, hier der Elektronen. Das Plasma in ECR-Quellen wird generiert, indem ein Arbeitsgas in einer evakuierten Plasmakammer durch Elektronenstossionisation sukzessive ionisiert wird. Der Einschluss des so erzeugten Plasmas geschieht magnetisch. Die im Gas vorhandenen Elektronen werden durch Mikrowelleneinstrahlung mit hoher Leistung ($P_{HF} \leq 2 \text{ kW}$) „resonant geheizt“. Die Resonanzbedingungen lassen sich aus den nachfolgenden Gleichungen ableiten. Elektrisch geladene Teilchen werden in Magnetfelder auf Kreisbahnen gezwungen.

Teilchenart	Teilchenart- energie E_{\perp} /eV	Zyklotronradius r_c / mm	
		$B = 0,24$ T	$B = 0,6$ T
H ⁺	10	1,9	0,71
Ar ⁺	10	12	4,5
Ar ⁸⁺	10	1,5	0,56
Pb ⁺	10	27	10
Pb ⁵⁴⁺	10	0,51	0,19
e ⁻	10	0,044	0,017
e ⁻	1000	0,44	0,17
e ⁻	10 ⁴	1,4	0,53
e ⁻	10 ⁶	20	7,4

Tabelle 3.1: Zyklotronradien einiger Teilchen mit verschiedenen Rotationsenergien und verschiedenen Resonanzfeldstärken [96]

Der Radius dieser Kreisbahn, der Zyklotronradius, ist durch

$$r_c = \frac{mv_{\perp}}{q|\vec{B}|} \quad (3.7)$$

gegeben. In Tabelle 3.1 sind typische Zyklotronradien für verschiedene Teilchen, Energien und Magnetfeldstärken angegeben. Aus dem Zyklotronradius und der Rotationsenergie folgt die Winkelgeschwindigkeit bzw. die Zyklotronfrequenz:

$$2\pi\nu_{\text{HF}} = |\vec{w}_c| = \frac{q|\vec{B}|}{m}. \quad (3.8)$$

Gleichung (3.8) beschreibt die Resonanzbedingung für magnetisch eingeschlossene Elektronen bei Einspeisung von Mikrowellenstrahlung der Frequenz ν_{HF} . B symbolisiert die magnetische Induktion, q , m die Ladung und die Masse des Elektrons und w_c die sich daraus ergebende Winkelgeschwindigkeit des Elektrons. Aus der Theorie der Ausbreitung elektromagnetischer Wellen in Plasmen folgt [97, 95, 98, 99], dass nur sich sehr schnell ändernde Felder mit $\omega_{\text{HF}} > \omega_{\text{P,e}}$ in das Plasma eindringen und somit die Elektronen resonant heizen können. Da die Frequenz der Mikrowellenstrahlung, mit der ECR-Plasmen geheizt werden, in der Regel vorgegeben ist, lässt sich diese Bedingung umformulieren und aus Gleichung (3.6) eine obere Schranke für die Elektronendichte, die sogenannte cutoff-Dichte, definieren. Mit $\omega_{\text{P,e}} = \omega_{\text{HF}}$, der Erregerfrequenz, folgt:

$$n_{\text{cutoff}} = \frac{\omega_{\text{HF}}^2 \epsilon_0 m_e}{e^2}. \quad (3.9)$$

Diese Dichte stellt somit eine obere Grenze der Elektronendichte dar, bis zu welcher der resonante Energietransfer zu den Elektronen des Plasmas theoretisch ermöglicht wird.

Das so erzeugte Plasma enthält Ionen verschiedener Ladungszustände. Der mittlere maximale Ladungszustand folgt aus einem Gleichgewicht aus Ionisations- und Rekombinationsprozessen, welche in [6, 93, 100, 94, 101, 102] ausführlich beschrieben sind.

3.1.2 Besonderheiten der Supernanogan

Das für den Einschluss des Plasmas nötige Magnetfeld wird bei dieser Ionenquelle durch Permanentmagneten erzeugt. Spezielle Parameter der *Supernanogan* sind in Tabelle 3.2 zusammengefasst. Die *Supernanogan* produziert einerseits niedriggeladene Ionen mit großer Intensität (mehr als 2mA H⁺) aber auch höhergeladene Ionen mit geringeren Intensitäten (mehr als 350 μ A Ar⁸⁺ und 15 μ A Xe²⁵⁺) bei einer Mikrowellenleistung von etwa 400 W.

Um die Elektronendichte in der Plasmakammer so weit wie möglich zu erhöhen (siehe Gleichung (3.9)), ist die Plasmakammer aus Aluminium gefertigt. Die natürliche Oxidschicht des Kammermaterials stellt durch die erhöhte Sekundärelektronenausbeute einen zusätzlichen Elektronendonaor dar. Weiterhin steht zur Optimierung der Ionenproduktion ein motorgetriebener, abstimmbarer Mikrowellentuner und ein dreielementiges Extraktionssystem zur Verfügung. Dieses extrahiert die Ionen elektrostatisch aus dem Quellenvolumen und leitet sie mit einer kinetischen Energie bis zu $25\text{keV} \times q$ in die Strahlführung ein.

Leistungsparameter der *Supernanogan*

Frequenz	14,5 GHZ
HF Leistung	200 W bis 600 W
Extraktionsspannung	10 kV bis 35 kV
Gewicht	200 kg

garantierte Strahlintensität für die *Supernanogan*

Ionensorte \ q	8+	17+	24+	25+
Ar	250 μ A			
Xe		30 μ A		
Ta			3 μ A	
Pb				2 μ A

Tabelle 3.2: Ausgewählte Parameter der ECR-Quelle *Supernanogan* der Firma *Pan-technik*

3.1.3 Charakterisierung von ECR-Plasmen

Wie im vorangegangenen Abschnitt beschrieben, wird in Plasmaionenquellen, speziell in ECR-Ionenquellen, der Plasmaeinschluss durch eine magnetische Spiegelkonfiguration realisiert. Weiterhin wird das Plasma durch resonantes Einspeisen von Mikrowellenstrahlung stark geheizt. Diese beiden die Theorie verkomplizierenden Punkte beeinflussen hauptsächlich die Elektronen des Plasmas [103]. Als Konsequenz ergibt sich bei magnetisch eingeschlossenen Plasmen, dass die Energieverteilung der Elektronen nicht im thermischen Gleichgewicht vorliegt, man hingegen aber zwei dominierende Elektronentemperaturverteilungen (eine senkrecht zu Magnetfeldlinien und eine parallel zu Magnetfeldlinien) definieren kann [6].

Die Elektronenverteilung in ECR-Quellen wird weiterhin überwiegend durch den Elektronenverlustkegel [104] beeinflusst. Durch die größere Beweglichkeit¹ gehen dem Plasma durch Diffusionsprozesse (besonders in Randbereichen des Plasmas) wesentlich mehr Elektronen als Ionen verloren. Durch die Verarmung an Elektronen bildet sich am Plasmarand eine positive Raumladungsschicht aus. Das damit verbundene elektrische Feld zwischen Kammerwand und Plasmarand wirkt dem Elektronenverlust entgegen. Das elektrische Feld impliziert ebenfalls eine Potentialdifferenz zwischen Plasma und Kammerwand.

Diese Potentialdifferenz stellt sich so ein, dass der Elektronenverluststrom und Ionenverluststrom betragsmäßig gleich groß sind und somit die Plasmaneutralität gewährleistet ist. Da das Innere des Plasmas wiederum feldfrei ist, entspricht diese Potentialdifferenz dem Potenzial des Plasmas, dem sogenannten Plasmapotenzial.

Sollen Ionen auf wenige $10\text{eV} \times q$ abgebremst werden, so gilt zu beachten, dass das interne Potenzial des Plasmas respektive das Plasmapotenzial neben den Quellen- und Strahlkanalpotenzialen maßgeblich zur Gesamtenergie der Ionen beiträgt. Um diesen Einfluss zu quantifizieren, sollte zum Einen die kinetische Energie der Ionen explizit ermittelt werden. Da eine Bestimmung der kinetischen Energie der Ionen mittels Gegenfeldmethode auch immer mit einer Veränderung der Ionenoptik und damit der Ionentrajektorien verbunden ist, besteht zum Anderen die Möglichkeit die Plasmameter, im Speziellen das Plasmapotenzial, mit geeigneter Diagnostik direkt zu ermitteln.

Man unterscheidet dabei zwischen zwei Diagnosemethoden: globalen und lokalen.

Globale Methoden umfassen die Röntgenspektroskopie sowie die Spektroskopie im Bereich des sichtbaren Lichts. Für die lokale Plasmadiagnostik werden verschiedene Typen von Langmuirsonden eingesetzt [105]. Die Theorie letzterer Diagnosemethode soll im Folgenden genauer betrachtet werden.

Hierfür wird an eine Elektrode, die in das Plasma taucht, eine elektrische Spannung gegenüber der Plasmakammerwand angelegt und diese Spannung von positiven nach negativen Werten durch-

¹Aufgrund der mehr als ein 1000fach geringeren Masse bewegen sich Elektronen mehr als 1000fach schneller als die Ionen.

gefahren. Dabei wird der Strom in Abhängigkeit der Sondenspannung gemessen. Diese Strom-Spannungs-Charakteristik (siehe Abbildung 3.1) erlaubt Rückschlüsse auf Kenndaten des Plasmas wie z.B. Elektronenenergieverteilung, Elektronendichte, Ionendichte und das Plasmapotenzial.

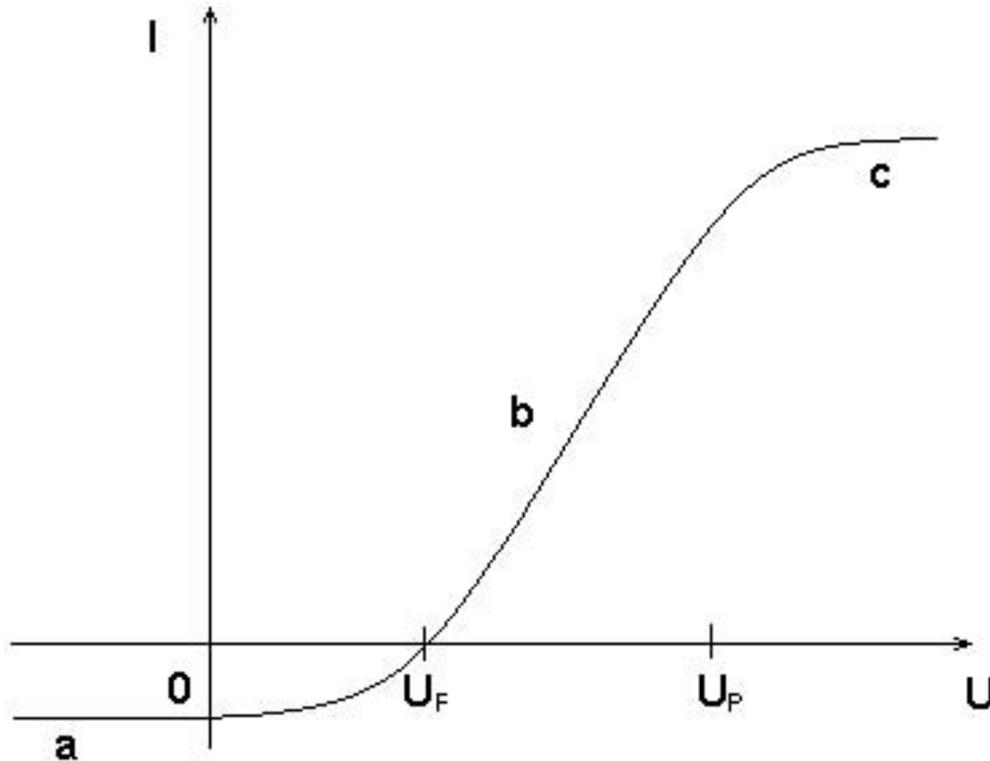


Abbildung 3.1: Strom-Spannungs-Charakteristik zur Bestimmung des Plasmapotenzials

Die Kennlinie lässt sich in drei Abschnitte einteilen. In Abschnitt **c** liegt eine positive Spannung am Sondendraht an. Durch diese Spannung werden alle Elektronen aus der Raumladungszone abgesaugt, welche sich um die Sonde herum ausbildet. Der Sondenstrom entspricht dem Elektronensättigungsstrom. Er ist über einen weiten Bereich der Sondenspannung konstant. Bei Verringerung der Sondenspannung erkennt man ab einer kritischen Spannung ein Abnehmen des Sondenstroms. Das Sondenpotenzial entspricht jetzt dem Plasmapotenzial, wodurch mit abnehmender Sondenspannung zunehmend Elektronen der Raumladungszone mit zu geringer Energie gehindert werden, die Sonde zu erreichen. Ein weiteres Verringern der Spannung führt zu einer Strom-Spannungs-Charakteristik, die in idealen Plasmen der Energieverteilung der Elektronen entspricht (Abschnitt **b**). Dabei durchläuft man einen Spannungswert (das Floatingpotential), bei dem der Nettostrom $I_{\text{net.}} = I_e + I_i$ gleich Null ist. Wird die Spannung so gering, dass der größte Teil der Elektronen die Sonde nicht mehr erreichen kann, sättigt der Strom abermals. Dieser Strom gibt den Ionensättigungsstrom des Plasmas an (Abschnitt **a**) [105].

In nichtmagnetisierten Plasmen können nach [106] durch folgende Zusammenhänge charakteristische Plasmamparameter aus der Strom-Spannungskennlinie und den Sättigungsströmen abgeleitet

werden. Der Elektronensättigungsstrom (Abschnitt **c**) kann durch:

$$I_{\text{Sät}}^- = \frac{1}{4} n_e e A \bar{v}_e \quad (3.10)$$

beschrieben werden, wobei \bar{v}_e die mittlere Elektronengeschwindigkeit:

$$\bar{v}_e = \left(\frac{8kT_e}{\pi m_e} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (3.11)$$

angibt. A ist die Sondenfläche und n_e wiederum die Elektronendichte. Im Abschnitt **b**, $U < U_{\text{Pl.}}$, in dem die Elektronen von der Sonde weggedrückt werden, ergibt sich der Elektronenstrom in Abwesenheit eines Magnetfeldes und bei Annahme einer Maxwellverteilung der Elektronenenergie zu:

$$I^- = I_{\text{Sät}}^- \cdot e^{\frac{e(U - U_{\text{Pl.}})}{k_B T_e}}. \quad (3.12)$$

Durch Logarithmieren von Gleichung (3.12) erhält man folgenden linearen Zusammenhang:

$$\ln(I^-) = \ln(I_{\text{Sät}}^-) + \frac{e(U - U_{\text{Pl.}})}{k_B T_e}. \quad (3.13)$$

Aus dem Anstieg lässt sich die Elektronentemperatur ermitteln.

Bemerkt sei an dieser Stelle, dass die Verwendung von Langmuirsonden im Fall von ECR-Plasmen nicht uneingeschränkt möglich ist. Folgende Hauptgründe sollen kurz erläutert werden:

- Das Plasma wird durch elektromagnetische Strahlung geheizt [107]. Wie schon oben angedeutet, führt dies abhängig von der Intensität zu einer Elektronenenergieverteilung, die einer Maxwellverteilung nicht mehr genügt [108].
- Der Plasmaeinschluss ist durch ein starkes und inhomogenes Magnetfeld realisiert. Übertrifft der Zyklotronradius die Debyelänge nicht um ein Vielfaches

$$r_c \gg \lambda_D, \quad (3.14)$$

können die Sättigungsströme durch Driftströme verfälscht werden.

Erläuterung:

Für den Zyklotronradius folgt nach Gleichung (3.7) und der wahrscheinlichsten Geschwindigkeit der Elektronen nach Maxwell:

$$\bar{v} = \sqrt{\frac{2k_B T}{m_e}}, \quad (3.15)$$

zunächst:

$$r_c = \frac{m_e}{qB} \sqrt{\frac{2kT_e}{m_e}}. \quad (3.16)$$

Für die Bedingung in Gleichung (3.14) ergibt sich mit der Debyelänge nach Gleichung (3.5) und Einsetzen der cutoff-Dichte im Plasma (Gleichung (3.9)) folgende obere Abschätzung:

$$\frac{r_c}{\lambda_D} \Big|_{\text{cutoff}} \gg \frac{m_e}{qB} \omega_{\text{HF}} \sqrt{2}. \quad (3.17)$$

In gewissen Spannungsbereichen der Sondenkennlinie ist deshalb bei Nichterfüllen der Abschätzung durch Gleichung (3.17) mit einer Abweichung von der idealen Sondencharakteristik zu rechnen. Durch einen ausgeklügelten Sodenauaufbau können diese Einflüsse teilweise kompensiert bzw. reduziert werden. Der $E \times B$ -Drift zum Beispiel hat keinen Einfluss auf die Sondencharakteristik, wenn die Sonde so positioniert wird, dass Feldlinien nur senkrecht auf die Sonde treffen. Somit kann der Anstieg der Kennlinie (Abschnitt **b**) zur Auswertung der Elektronenenergieverteilung jener Elektronenkomponente benutzt werden, welche sich parallel zu den Feldlinien bewegt.

Diese Punkte betreffen vor allem die Genauigkeit der Ermittlung der Elektronenenergieverteilung und der Sättigungsströme; die Bestimmung des Plasmapotenzials bleibt durch die deutliche definierte Abnahme des Elektronensättigungsstroms von diesen Effekten nahezu unbeeinflusst.

Es ist somit gezeigt, dass die Langmuirsondendiagnostik eine direkte Möglichkeit zur Bestimmung der ECR-Plasmaparameter (im Speziellen des Plasmapotenzials und damit der exakten Beschleunigungsspannung der extrahierten Ionen) bietet. Da quantitative Aussagen über das Plasmapotenzial und somit über die exakte kinetische Energie der Ionen für die Experimente dieser Arbeit unabdingbar sind, wird neben der Gegenfeldmethode ebenfalls die Methode der Bestimmung des Plasmapotenzials mittels Langmuirsonde benutzt, wodurch beide Möglichkeiten zur Bestimmung der kinetischen Energie der Ionen miteinander verglichen werden können.

3.1.4 Die Langmuirsonde an der Supernanogan

In diesem Abschnitt sollen Überlegungen zur Dimensionierung und zur Realisierung der Sonde an der *Supernanogan* der ECR-Quelle der Zwei-Quellenanlage beschrieben werden. Im einfachsten Fall, der für die Plasmapotenzialmessung ausreichend ist, besteht eine Langmuirsonde aus einem geometrisch genau definiertem elektrisch leitenden Sondendraht, welcher in das Plasma gebracht wird. Um die Sondenlänge zu definieren, wird der gesamte Draht durch ein Keramikröhrchen isoliert. Eine noch zu definierende Länge des Sondendrahtes reicht dann als Spitze aus dem Keramikröhrchen in das Plasma. Die Zuleitung zum Sondendraht muss hochvakuumgerecht aus der Plasmakammer geführt werden. Da der Sondendraht zudem in das Plasma eintaucht, muss an seine thermische Beständigkeit eine hohe Anforderung gestellt werden. Hierfür wurde Wolfram

ausgewählt, welches eine Schmelztemperatur von 3410 °C besitzt. Ein weiterer Grund für die Wahl von Wolfram ist die relativ hohe Austrittsarbeit der Elektronen ($W_A = 4,54\text{eV}$) im Vergleich zu anderen Metallen, wodurch die Emission von Sekundärelektronen, die den zu messenden Strom verfälscht, gering gehalten wird.

3.1.4.1 Die Sondendimensionierung

Bei der Dimensionierung der Sonde sind folgende Fakten maßgebend:

1. *Der Sondenradius soll klein gegenüber der mittleren freien Weglänge der Teilchen sein, so dass von stoßfreien Plasmen ausgegangen werden kann. (klassische Sondentheorie nach Langmuir [105])*
2. *Die Sondenlänge soll groß gegenüber dem Sondenradius sein, damit die Geometrie der zylindrischen Sonde eindeutig definiert ist.*
3. *Die Sondenlänge soll groß gegenüber der Debyelänge sein, womit die Ausrichtung der Sonde im Plasma eindeutig definiert ist, da eine Dimension deutlich die charakteristische Abschirmlänge übertrifft.*

Die mittlere freie Weglänge in Plasmen berechnet sich nach [109] aus:

$$\lambda_{e,I} = \frac{16\pi(\epsilon_0 T_e)^2}{e^4 n_e \ln \Lambda}, \quad (3.18)$$

mit Λ als dem Coulomblogarithmus:

$$\Lambda = 12\pi \frac{(\epsilon_0 k_B T_e)^2}{n_e^{\frac{1}{2}} e^3}. \quad (3.19)$$

Mit realistischen Abschätzungen aus röntgenspektroskopischen Messungen [110, 111, 112] für die Elektronentemperatur und Elektronendichte des Plasmas in der ECR-Quelle ergeben sich folgende Werte für:

die mittlere Elektronentemperatur:

$$T_e = 2,5 \text{ keV} \quad (3.20)$$

und die Elektronendichte:

$$n_e = 10^{18} \text{ m}^{-3}. \quad (3.21)$$

Es folgt für die mittlere freie Weglänge:

$$\lambda_{e,I} = 4,5 \cdot 10^4 \text{ m}. \quad (3.22)$$

Für die Debyelänge folgt nach Gleichung (3.5):

$$\lambda_D = 0,4 \text{ mm.} \quad (3.23)$$

Die Dimensionen der Sonde werden wie folgt festgelegt:

Sondenlänge: $L_S = 10 \text{ mm}$,

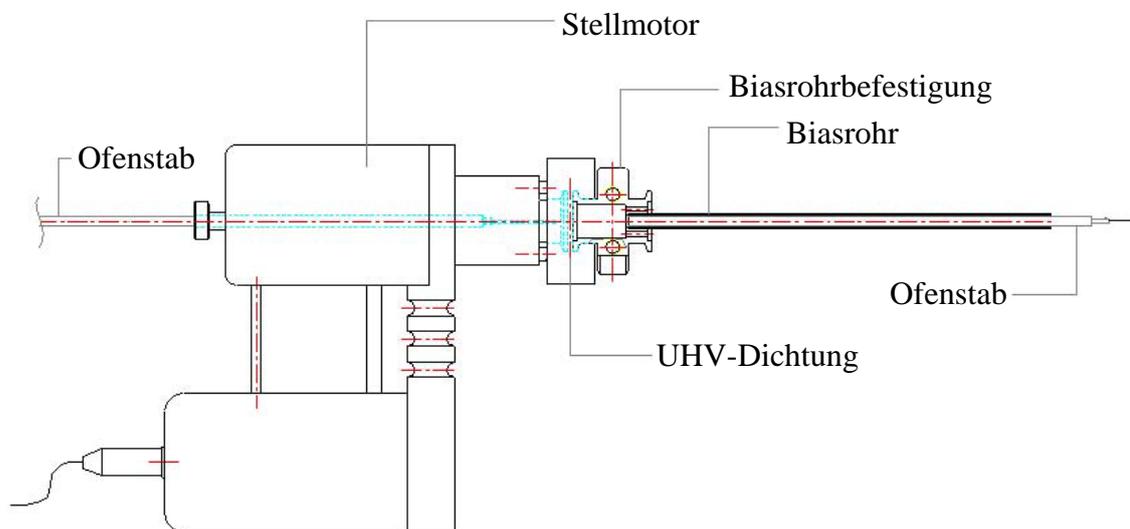
Sondenradius: $R_S = 0,4 \text{ mm}$.

3.1.4.2 Realisierung der Langmuirsonde

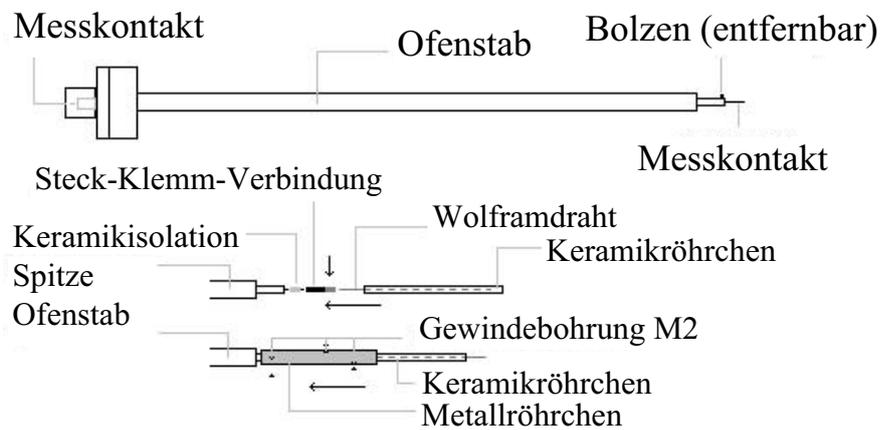
Die *Supernanogan* bietet nur axiale Zugänge zur Plasmakammer. Demnach ist das Einführen der Sonde auch in dieser Richtung beschränkt. Die Sonde muss beweglich sein, um sie aus bzw. in das Plasma zu fahren. Weiterhin muss eine vakuumverträgliche elektrische Kontaktierung hergestellt werden.

Um dies zu ermöglichen, wurde die zur *Supernanogan* gehörende Ofen- und Zerstäubungserweiterung, welche der Erzeugung von nicht gasförmigen Arbeitsmedien dient, wie folgt modifiziert. In Bild 3.2(a) sind zunächst die Originalteile dargestellt.

Es ist vorgesehen, dass der Sputtermotor potenzialgetrennt an das Bias-Rohr angeflanscht wird. In den Sputtermotor wird der Ofenstab vakuumtauglich eingespannt und kann durch Bewegen des Stellmotors in die Plasmakammer gefahren werden. Der Ofenstab verfügt ebenfalls über eine elektrische Vakuumdurchführung, die dazu dient, die Heizung an der Spitze des Stabes zu betreiben. An Stelle der Heizung an der Stabspitze werden nun die Einzelteile der Langmuirsonde montiert (siehe Zeichnung 3.2(b)). Detaillierte Ausführungen finden sich im Arbeitsbericht [115]. Der Bolzen an der Ofenstabspitze wurde entfernt und der Messkontakt gegenüber dem Ofenstab mittels eines Keramikröhrchens isoliert und fixiert. An die Messspitze wurde eine Buchse gekrimpt, in welche der Sondendraht eingesteckt wird. Über Sondendraht und Steckverbindung wird ein weiteres Keramikröhrchen geschoben, welches die Sonde mit dem Ofenstab verbindet. Der Sondendraht wird so zugeschnitten, dass die Sondenlänge, der Teil des Drahtes, der aus dem Keramikröhrchen herausragt, der geforderten Länge entspricht. Der Ofenstab wird in den Stellmotor eingespannt, so dass er maximal 28 mm aus dem Bias-Rohr herausragt. Damit wird erreicht, dass die Sondenspitze komplett aus dem Plasma gezogen werden kann und im Bias-Rohr vor Zerstäubung geschützt ist, beziehungsweise zur Messung in das Plasma gefahren werden kann. In Abbildung 3.3 sind mittels blauen Markierungen die Extrempositionen der Sonde und durch die rote Markierung das Ende des Bias-Rohrs gezeigt. Zusätzlich ist in dieses Diagramm die Axialkomponente der magnetischen Induktion eingezeichnet. Es ist zu erkennen, dass an der Sondenposition das Magnetfeld nicht ver-



(a) Übersichtszeichnung der Ofenerweiterung der ECR-Quelle. Der Ofenstab kann mittels Stellmotor durch das Bias-Rohr in das Vakuum geschoben werden [113, 114].



(b) Einzelteile der Langmuirsonde und Montage an die Ofenstabspitze

Abbildung 3.2: Zeichnung des Umbaus der Ofenerweiterung der ECR-Quelle

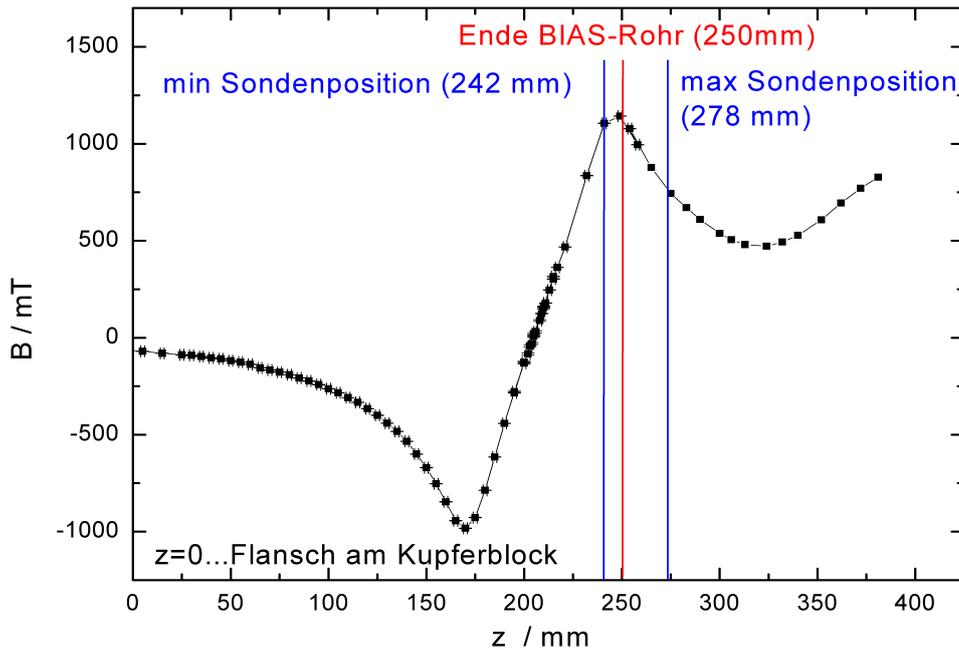


Abbildung 3.3: Axialkomponente der magnetischen Induktion entlang der Symmetrieachse ECR-Quelle. Die blauen Linien markieren die Endlagen der Langmuirsonde. Die rote Linie gibt das Ende des Bias-Rohrs an.

schwindet. Das Prüfen der Abschätzung nach Gleichung (3.17) auf Seite 56 für diese Werte der magnetischen Induktion ergibt ein Verhältnis von:

$$\frac{r_L}{\lambda_D} = 0,7. \quad (3.24)$$

Die sich daraus ergebende Konsequenz ist, dass eine Bestimmung der Elektronenenergieverteilung und der Elektronendichte erheblich aufwendiger gestaltet werden müsste. Eine Lösung hierfür bieten Doppelsonden. Dennoch bleibt die Bestimmung des Plasmapotenzials mittels Einzelsonden von dieser Störung unberührt, denn die Einflüsse der magnetischen Induktion führen vornehmlich zu einer Verfälschung der Sättigungsstrommessung und damit zu einer Verschiebung der I-U-Kennlinie entlang der Stromachse. Die Bestimmung des Plasmapotenzials bleibt weitestgehend unbeeinflusst. Experimentelle Ergebnisse und eine Messvorschrift zur Bestimmung des Plasmapotenzials finden sich im nächsten Kapitel.

3.1.5 Resultate der Plasmapotenzialbestimmung

Ist die ECR-Quelle in Betrieb genommen, so kann über ein auf Labview basierendem Steuerprogramm die Langmuirsonde in das Plasma gefahren werden. Nun kann ebenfalls per PC-Messprogramm die Strom-Spannungs-Charakteristik aufgenommen werden. Es empfiehlt sich die Spannung nur sehr langsam zu variieren und gegebenenfalls mehrere I-U-Kennlinien zu mitteln. Entspre-

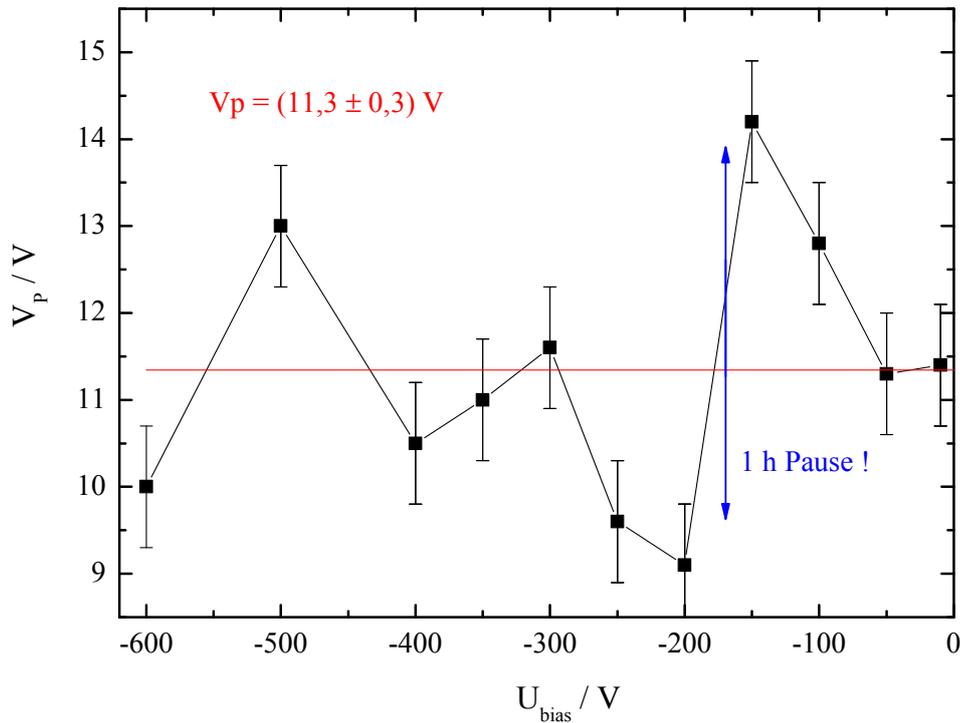


Abbildung 3.4: Abhängigkeit des Plasmapotenzials von der Biasspannung bei $P = 80 \text{ W}$ und $p = 3,5 \cdot 10^{-6} \text{ mbar}$

chend der in Kapitel 3.1.3 beschriebenen Sondencharakteristik ist die I-U-Kennlinie auszuwerten. Zur Charakterisierung der ECR-Quelle wurde das Plasmapotenzial für verschiedene Quellenparameter wie Quelldruck, Mikrowellenleistung, Biasspannung und Tunerstellung bestimmt und somit deren Einfluss auf die Restenergie der Ionen ermittelt. Bei diesen Experimenten wurde Argon als Arbeitsgas verwendet. Wenn die Plasmastabilität es zuließ, wurde stets nur ein Parameter variiert. In Abbildung 3.4 ist das gemessene Plasmapotenzial über der Biasspannung dargestellt. Die Mikrowellenleistung betrug hierbei 80 W , wobei der Quelldruck bei $3,5 \cdot 10^{-6} \text{ mbar}$ gehalten wurde. Das Plasmapotenzial ergibt sich unter diesen Bedingungen zu etwa $11 \text{ V} \pm 2 \text{ V}$. In Abbildung 3.5 wurde die eingespeiste Mikrowellenleistung variiert. Hier wurde zusätzlich die Tunerstellung angepasst, um die Quelle in einem stabilen Betriebsregime zu betreiben. Es zeigte sich, dass mit steigender Mikrowellenleistung das Plasmapotenzial ansteigt. Ein streng monoton wachsender Zusammenhang kann jedoch nicht bestätigt werden. Unabhängig von der Änderung der Tunereinstellung ergibt sich ein stufenartiges Anwachsen des Plasmapotenzials mit der eingespeisten Mikrowellenleistung. Als letzter zu variierender Parameter bleibt der Quelldruck. Dieser Zusammenhang ist in Abbildung 3.6 dargestellt. Der Quelldruck wurde in dieser Untersuchung über einen Bereich von $1 \cdot 10^{-6} \text{ mbar}$ bis $5 \cdot 10^{-5} \text{ mbar}$ variiert. Alle anderen Parameter verblieben konstant bei $P = 80 \text{ W}$ und $U_{\text{Bias}} = -110 \text{ V}$. Auch in diesem Fall ist ein deutliches

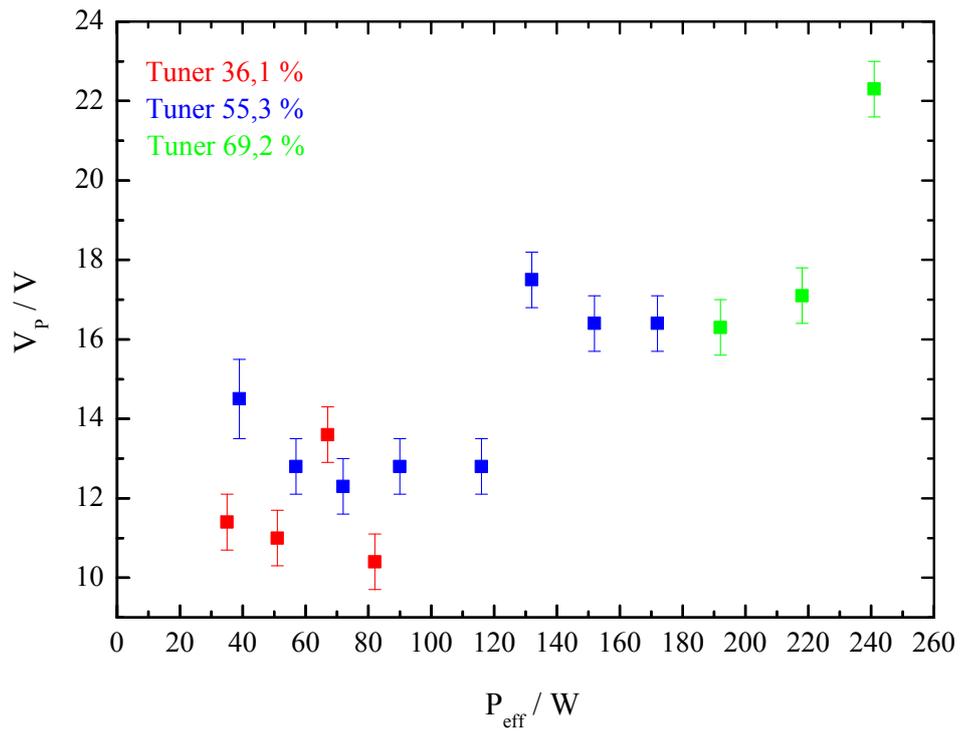


Abbildung 3.5: Abhängigkeit des Plasmapotenzials von der eingespeisten Mikrowellenleistung bei $U_{\text{Bias}} = -110 \text{ V}$ und $p = 3,5 \cdot 10^{-6} \text{ mbar}$

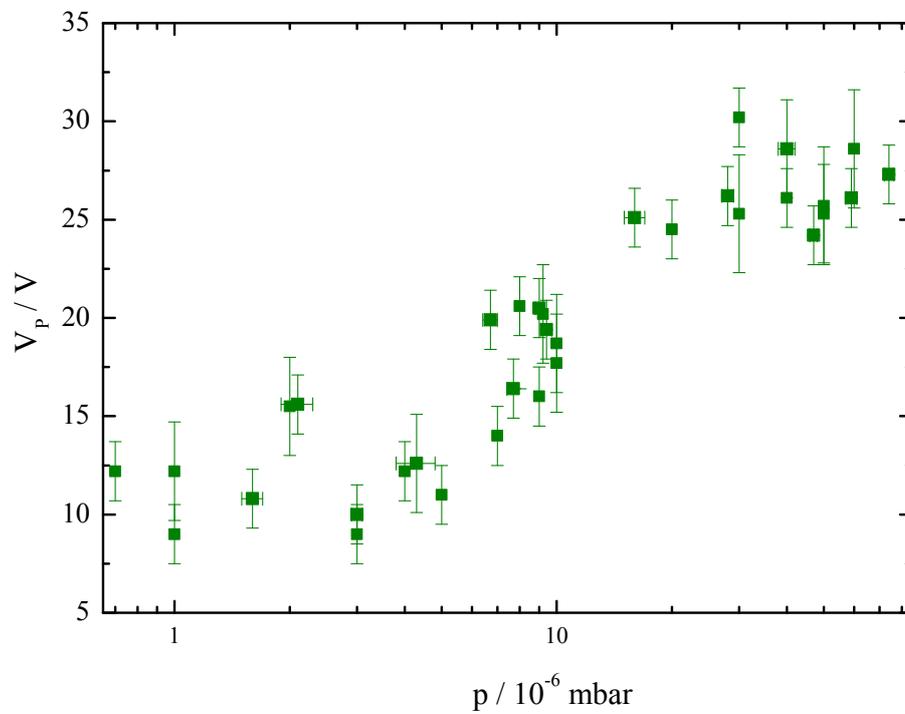


Abbildung 3.6: Abhängigkeit des Plasmapotenzials vom Quellendruck bei $U_{\text{Bias}} = -110 \text{ V}$ und $P = 80 \text{ W}$

Ansteigen des Plasmapotenzials mit dem Quelldruck zu erkennen. Dabei erkennt man sowohl im niedrigen Druckbereich als auch im hohen Druckbereich eine Sättigung des Plasmapotenzials. Es zeigte sich, dass das Plasmapotenzial nur vom Quelldruck und der Mikrowellenleistung maßgeblich beeinflusst wurde. Anhand dieser Experimente konnte ein Parameterbereich gefunden werden, in dem das Plasmapotenzial und damit die kinetische Energie der Ionen nur gering von den Parametern Druck und Mikrowellenleistung abhängt. Das so bestimmte Plasmapotenzial für einen Quelldruck $p = 3 \cdot 10^{-6}$ mbar und einer Mikrowellenleistung von $P = 100$ W wurde zu $U_{\text{Pl.}} = 12 \pm 2$ V gemessen.

3.2 Ionentransport

Ein bedeutender Teil dieser Arbeit beinhaltet den Aufbau einer Ionenstrahlanlage, welche neue Möglichkeiten für Experimente mit hochgeladenen Ionen eröffnet. Die Anlage erzeugt sowohl mittlere als auch höchste Ladungszustände über einen großen Bereich der Elemente des Periodensystems. Des Weiteren kann die kinetische Energie dieser Projektile stufenlos zwischen wenigen eV und mehreren 100 keV variiert werden. Besonders die Möglichkeit der Erzeugung langsamer Ionen höchster Ladungszustände eröffnet neue experimentelle Bedingungen. Zum Einen gelingt dies dadurch, dass die potenzielle Energie die kinetische Energie der Ionen übertrifft und deshalb ein Großteil dieser enormen Energie in oberflächennahe Bereiche deponiert wird. Zum Anderen werden diese Bedingungen auch durch die stufenlose Variation der kinetischen Energie geschaffen, die die Potenzialenergieeffekte gezielt verstärken kann und damit neuartige experimentelle Zugänge zur Physik der Ionenfestkörperwechselwirkung ermöglicht. Um die Ladungszustands- und auch Intensitätsflexibilität nicht zu beschränken, ist die Anlage mit zwei Quellen ausgestattet. Die bereits beschriebene ECR-Quelle *Supernanogan* findet Einsatz für die Produktion mittlerer Ladungszustände mit hohen langzeitstabilen Strömen im μA Bereich. Für höchste Ladungszustände ist eine EBIT-Quelle *Dresden EBIT* eingesetzt.

Weiterhin gehört zur Rossendorfer Zwei-Quellenanlage ein Strahlführungssystem, welches es ermöglicht, die von beiden Quellen erzeugten Ionen in eine gemeinsame Targetkammer zu führen. Durch ein integriertes Bremslinsensystem kann die kinetische Energie der Ionen bis auf weniger als ein 1000tel der Anfangsenergie verringert werden. Die Ionen werden zum Einen mit einer kinetischen Energie von bis zu 25 keV mal Ladungszustand aus der ECR-Quelle und zum Anderen mit einer kinetischen Energie von bis zu 8 keV mal Ladungszustand aus der EBIT-Quelle extrahiert. Nach dem Transport zur Experimentierkammer können die Ionen in zwei Stufen (1. Stufe bis 5 keV mal Ladungszustand, 2. Stufe bis 10 eV mal Ladungszustand) abgebremst werden.

3.2.1 Das Strahltransportsystem

Die extrahierten Ionen beider Quellen werden in dem Strahltransportsystem (siehe Abbildung 3.7) mittels elektrostatischer Linsen geeignet fokussiert und mittels magnetischem Dipol nach Massen und Ladungsverhältnis separiert. Das Strahltransportsystem ist entsprechend der Funktionsabschnitte (ECR-Quelle, ECR-Ladungstrennung, EBIT-Quelle, EBIT-Ladungstrennung und Experiment) ebenfalls in Vakuumabschnitte eingeteilt. Die EBIT Abschnitte (EBIT-VA1 und EBIT-VA2) sind analog zu den ECR Abschnitten (ECR-VA1 und ECR-VA2) aufgebaut. Im Folgenden wird deshalb der Aufbau der ECR Abschnitte genauer beschrieben. Abweichungen des EBIT-Zweigs von diesen werden im Anschluss dargestellt.

Das allgemeine Prinzip der Ionenerzeugung sieht vor, dass der Ort der Ionenerzeugung (die Plasmakammer der ECR bzw. die Driftröhren der EBIT) mit Hochspannung beaufschlagt ist. Die Po-

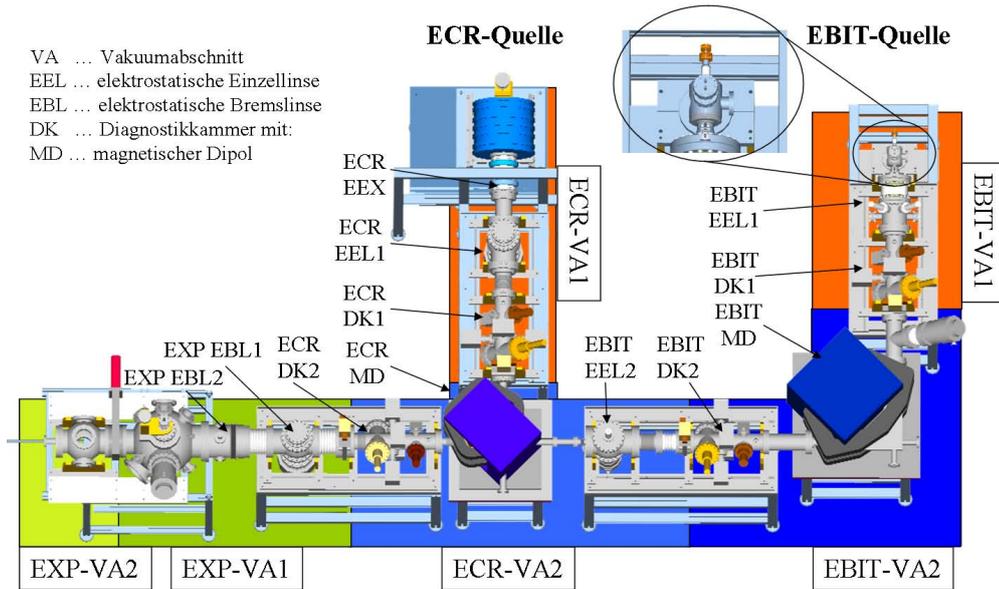


Abbildung 3.7: Darstellung und Gliederung der Zwei-Quellenanlage in Funktionsabschnitten und Benennung wichtiger ionenoptischer Komponenten

tenzialdifferenz zwischen Quellenvolumen und Strahlkanal sorgt für die Beschleunigung der Ionen auf eine Transportenergie von:

$$E_{\text{kin.}} = q \cdot U_{\text{Quelle}} \quad (3.25)$$

Dabei ist q die Ladung des Ions und U_{Quelle} die am Quellenvolumen anliegende Hochspannung. Aus dem für die Beschleunigerphysik wichtigen Liouvilleschen Theorem über die Konstanz des Phasenraumvolumens lässt sich folgern, dass das Produkt aus Emittanz und kinetischer Energie eine Erhaltungsgröße ist. Dabei ist klar, dass Ionenstrahlen mit hoher Transportenergie zu bevorzugen sind, da sie eine geringere Emittanz aufweisen. Das sich an die Quelle anschließende Extraktionslinsensystem, ein Linsenensemble aus drei Linsenelementen sorgt für einen möglichst monotonen Feldverlauf und übernimmt die Formung des Ionenstrahls zu einem Parallelstrahl. Die ersten beiden Linsenelemente sind mit variabler Spannung betrieben, das dritte ist an das Strahlrohrpotenzial kontaktiert. Diese Konfiguration der Linsenelemente, auch „dicke Linse“ genannt [116], ermöglicht es, durch Variation beider Spannungen sowohl den Brennpunkt zu verschieben als auch die Strahlfleckgröße einzustellen. Im hier vorliegenden Fall wird der Ionenstrahl zu einem Parallelstrahl geformt und weiter in die Einzellinse (ECR-EEL1) eingeschossen. Durch die Einzellinsenspannung am mittleren Linsenelement wird der Parallelstrahl auf dem Brennpunkt der Linse abgebildet. Der Brennpunkt kann durch diese Linsenspannung so verschoben werden, dass er genau am 1. Schlitzsystem (ECR-DS1) mit dahinter befindlichem Faraday-Becher (ECR-DFC1) liegt. Von hier an wird mit Brennpunktabbildungen gearbeitet. Brennpunktabbildungen werden dort verwendet, wo die Ionenstrahltransmission gegenüber der Strahlhomogenität im Vordergrund steht. Der am Faraday-Becher (ECR-DFC1) detektierte gesamte Ionenstrom wird nun in den Dipolma-

gneten ECR-MD eingeschossen. Der Dipolmagnet sorgt für die Massen- und Ladungsseparation, während der Ionenstrahl um 90° abgelenkt wird. Durch Anstrahlen der Polkanten um 27° ² des Dipols erreicht man zusätzlich zu der fokalen Abbildung in der Ablenkebene eine zweite fokale Abbildung mit gleicher Brennweite in der dazu senkrechten Ebene. Ablenkmagneten dieser Art werden als bifokal oder stigmatisch bezeichnet. Um die stigmatische Abbildung korrigieren zu können³, ist am Eingang des magnetischen Dipols ein elektrostatischer Quadrupol eingebaut, der im Bedarfsfall den Brennpunkt beider Fokalebenen auf einen gemeinsamen Ort bringt. Der Ablenkmagnet ist so in der Strahlführung positioniert, dass der Objektbrennpunkt im Schlitzsystem ECR-DS1 und der Bildbrennpunkt im Schlitzsystem ECR-DFC2 liegt. Somit ist eine Brennpunktabbildung gewährleistet. Am Faraday-Becher 2 (ECR-DFC2) können durch Variation des Ablenkmagnetstroms Ladungs- und Intensitätsverteilungen gemessen werden.

Obige Ausführungen gelten eingeschränkt analog für den EBIT-Zweig. Die Position der Einzellinse EBIT-EEL1 ist abweichend. Sie wurde in die EBIT-Extraktion integriert. Da dieser Zweig der Zwei-Quellenanlage im Rahmen dieser Arbeit keine Anwendung findet, soll auf eine detaillierte Beschreibung dieser Entwicklungen verzichtet werden.

Das Ionenbremssystem

Um die Ionen von ihrer Transportenergie auf die gewünschte kinetische Endenergie $E_{\text{kin.,end}}$ abzubremsen, wird ein Gegenfeld benötigt, welches durch ein Potenzial der Größe:

$$U_{\text{Brems.}} = U_{\text{Beschl.}} - \frac{E_{\text{kin.,end.}}}{q} = U_{\text{Beschl.}} - U_{\text{Rest}} \quad (3.26)$$

definiert ist. Das Potenzial $U_{\text{Beschl.}}$ beinhaltet hierbei die Summe aus Quellenpotenzial und Plasmapotenzial. Die kinetische Endenergie $E_{\text{kin.,end.}}$ entspricht einer effektiven Beschleunigungsspannung der Ionen, im Folgenden als Restbeschleunigungsspannung $U_{\text{Rest}} = \frac{E_{\text{kin.,end.}}}{q}$ bezeichnet. Das Erzeugen des Gegenfeldes durch Hochlegen des Targetaufbaus ist im Allgemeinen unerwünscht, da dies erhebliche Schwierigkeiten im experimentellen Aufbau der Messapparatur mit sich bringt. Eine wesentlich komfortablere, wenn auch aufwändigere Variante ist es, das gesamte Strahltransportsystem auf ein negatives Potenzial der Größe $U_{\text{Brems.}}$ zu legen. Das Quellpotenzial ist dabei auf das Strahlkanalpotenzial aufgesetzt (siehe Bild 3.8), so dass die Transportenergie im Strahlkanal weiterhin durch das Quellenpotenzial bestimmt wird, die Endenergie der Ionen beim Verlassen der Strahlführung aber aus der Differenz zwischen dem Strahlkanalpotenzial und dem Quellenpotenzial. Somit sind die Parameter der ionenoptischen Elemente im Strahlkanal unabhängig von der Restenergie der Ionen. Lediglich die Parameter der Abbremsoptik müssen an eine Änderung der

²Dies gilt für kleine Verhältnisse von Magnetpollücke und Ablenkradius. Bei Abweichung davon sind Korrekturen des Winkels nötig.

³Durch nachträgliche Vergrößerung der Pollücken beträgt das Verhältnis von Pollücke zu Ablenkradius $\frac{d}{r} = 0.2$, wodurch obiger Winkel nicht mehr ideal ist.

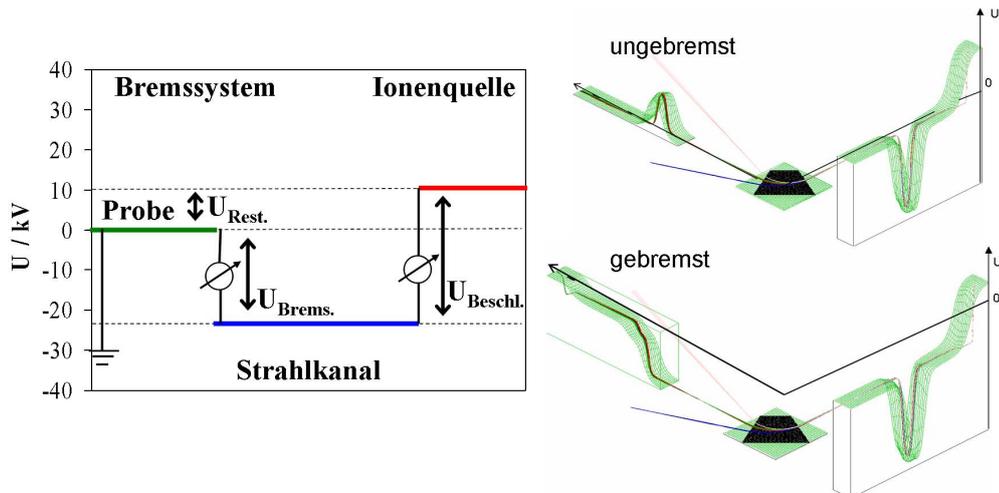


Abbildung 3.8: Schematische Darstellung der Potenzialverteilung in den Bereichen der Ionenbeschleunigung, des Ionenports und der Abbremsung der Ionen am Beispiel des ECR-Zweigs

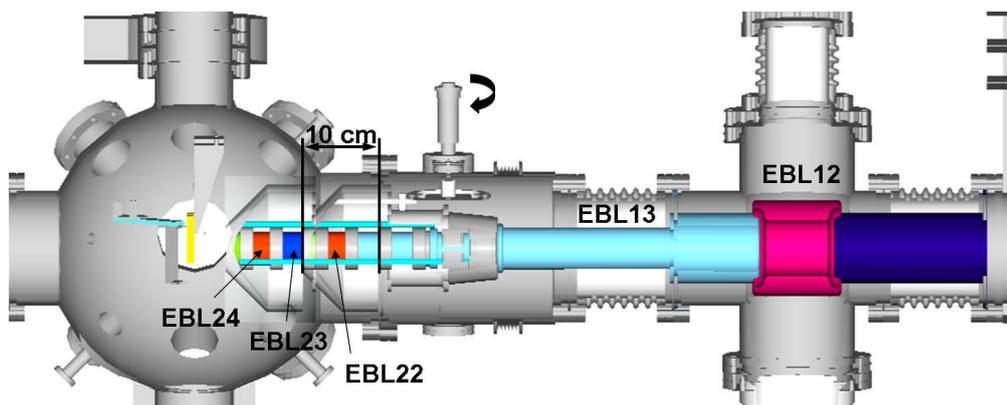
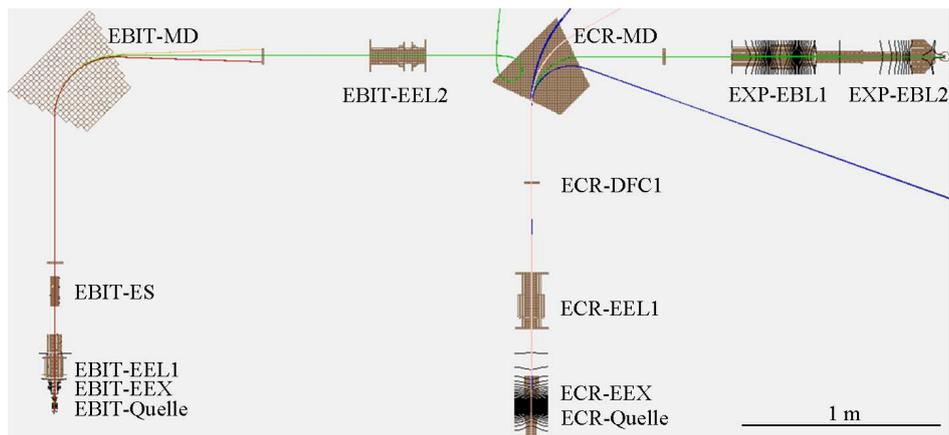


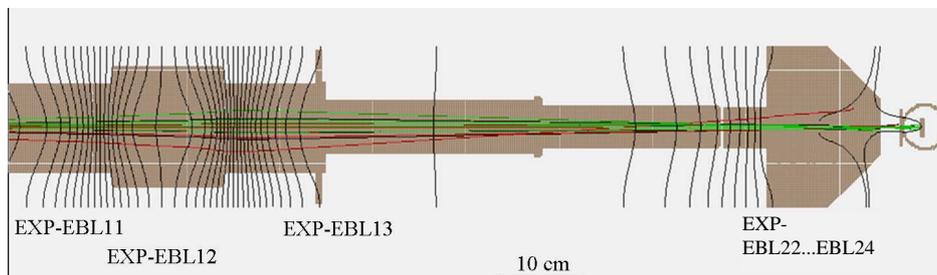
Abbildung 3.9: Zeichnung des zweistufigen Abbremslinsensystems an der Zwei-Quellenanlage, Erläuterungen siehe Text

Endenergie angepasst werden. Dies ermöglicht eine schnelle und komfortable Veränderung der Endenergie der Ionen. Die Bremsoptik an der Zwei-Quellenanlage ist zweistufig ausgelegt (siehe Abbildung 3.9). Die 1. Stufe der Ionenbremse wird benutzt, um den Strahl auf eine kinetische Energie von $5 \text{ keV} \times q$ abzubremse. Der Brennpunkt der ersten Stufe kann dabei entweder auf das Target in der Experimentierkammer oder in den Objektbrennpunkt der zweiten Stufe geschoben werden. In der zweiten Stufe wird dann die Abbremsung auf die gewünschte Endenergie der Ionen vorgenommen.

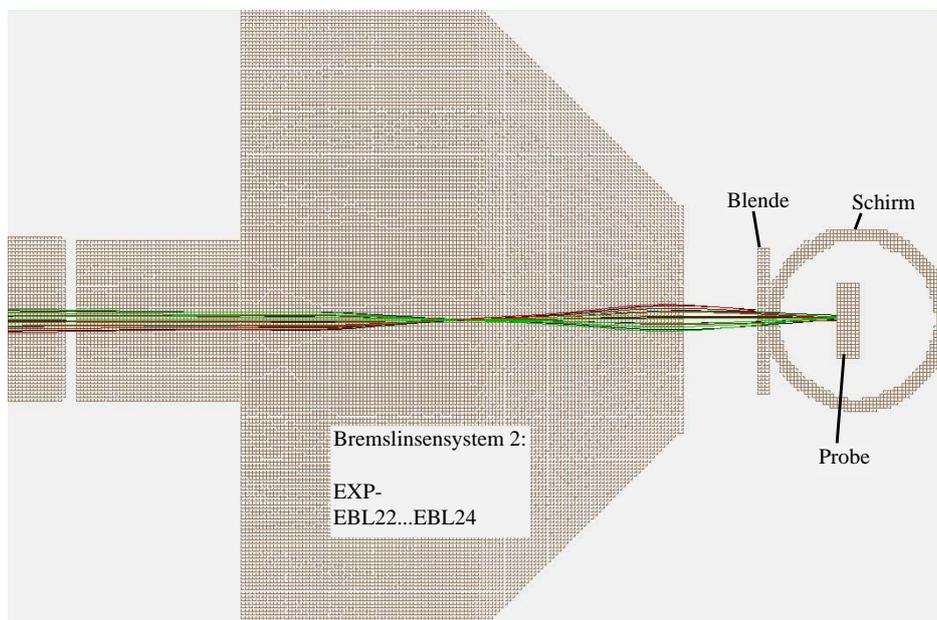
Die 1. Bremsstufe besteht aus drei Linsenelementen. Das 1. Linsenelement (EBL11) ist an das Beamlinepotenzial angeschlossen. Das 3. Linsenelement (EBL13) bestimmt die Restenergie der Ionen nach Verlassen der Bremsstufe ein. Die an das 3. Linsenelement angelegte Spannung



(a) Darstellung des Computermodells der Zwei-Quellenanlage zur Berechnung der Ionen-
trajektorien und Optimierung der Strahlkanalparameter des EBIT-Zweigs, ECR-Zweigs
und des Bremslinsensystems



(b) Berechnete Ionen-
trajektorien beim Durchgang durch das Bremslinsensystem, Rest-
beschleunigungsspannung 100V. Der Abstand der Äquipotenziallinien (schwarz) beträgt
500V.



(c) Vergrößerte Darstellung der Ionen-
trajektorien beim Durchgang durch das zweite
Bremslinsensystem

Abbildung 3.10: Verlauf der Ionen-
trajektorien im Strahlkanal und beim Durchgang
durch das Bremslinsensystem, simuliert mit dem Computerprogramm *Simion*

beträgt demnach -5 kV ⁴. Das 2. Linsenelement der Bremsstufe eins (EBL12) dient zur Fokussierung des Strahls und kann vereinfacht als Einzellinsenelement dieser 1. Bremsstufe verstanden werden.

Die 2. Bremsstufe fand schon in der alten Rossendorfer ECR-Quellen-Strahlführung Einsatz [117, 118] und ist auf eine Einschussenergie von $5 \text{ keV} \times q$ optimiert. Mit ihr konnte ebenfalls eine kinetische Restenergie von einigen $10 \text{ eV} \times q$ erreicht werden. Sie wurde dahingehend verbessert, dass das Linsenensemble in diesem Fall beweglich konstruiert wurde und somit in bzw. aus der Targetkammer gefahren werden kann (siehe Abbildung 3.9). Der Fahrweg beträgt 10 cm . Die 2. Bremsstufe besteht aus vier Linsenelementen, wobei das 1. Element (EBL21) auf demselben Potenzial wie das letzte Element der 1. Bremsstufe (EBL13) liegt. Alle weiteren Linsen dienen dazu, den Ionenstrahl beim Übergang von einer kinetischen Energie von $5 \text{ keV} \times q$ zu einer Endenergie von wenigen $10 \text{ eV} \times q$ möglichst achsennah und fokussiert zu überführen. Der Fokus des Ionenstrahls nach der Abbremsung liegt etwa 35 mm hinter dem letzten Bremslinsenelement. Dies lässt nicht viel Bewegungsfreiheit für den Targetaufbau. Deshalb ist es von erheblicher Bedeutung und großem Vorteil, dass die Möglichkeit besteht, das 2. Bremslinsensystem 10 cm aus der Experimentierkammer herauszuziehen, ohne die Kammer belüften zu müssen. Somit sind Experimente möglich, die nur die 1. Bremsstufe und mehr Freiraum für Analytik am Target benötigen. Mit dem Rechenprogramm SIMION wurde die gesamte Ionenoptik der Strahlführung inklusive Abbremsystem modelliert. Dies ist in Abbildung 3.10 gezeigt. Neben den ionenoptischen Elementen und den Äquipotenziallinien sind auch die errechneten Ionenflugbahnen dargestellt. Hiermit gelingt es optimale Parameter für die jeweiligen ionenoptischen Komponenten zu finden.

Zur Definition der Startbedingungen der Ionen wurde die Linsenspannung für die erste Einzellinse beider Zweige aus dem Experiment übernommen. Der unbekannte Startpunkt und die Divergenz des Ionenstrahls in der Simulation wurde so angepasst, dass der Ionenstrahl im Modell-Faraday-Becher (EC-DFC1) fokussiert ist. Mit diesen Anfangsbedingungen für die Ionen lassen sich alle anderen Strahlkanalparameter finden und durch die Simulation optimieren. In Tabelle A.1 im Anhang A.3 sind experimentelle und simulierte Parameter für die Linsenspannungen der Bremslinse und für verschiedene kinetische Endenergien der Ionen verglichen. Sie zeigt neben einer guten qualitativen Übereinstimmung der Abhängigkeit der Linsenspannungen von der Restenergie in gewissen Bereichen auch eine sehr gute quantitative Übereinstimmung der Werte aus Experiment und Simulation.

⁴Damit die Einschussenergie 5 keV beträgt, berechnet sich der exakte Wert für die 3. Linsenspannung aus $U_{\text{Beschl.}} - |U_{\text{Brems.}}| = 5 \text{ kV}$. Im Rahmen der tolerierbaren Abweichungen ist die Spannung meist konstant -5 kV .

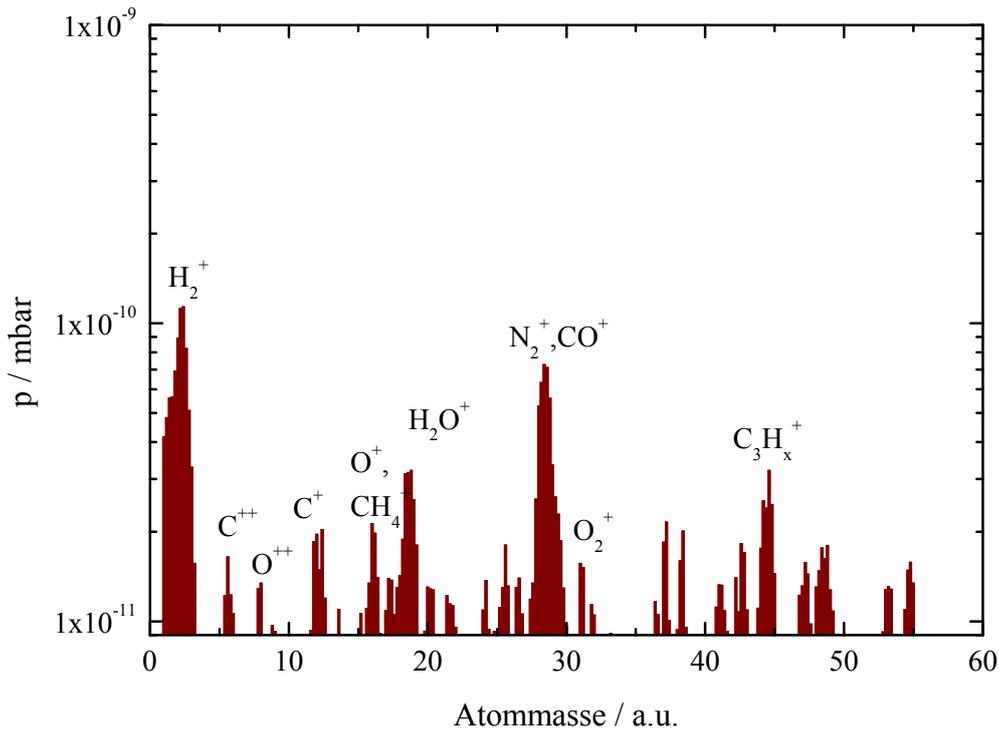


Abbildung 3.11: Restgasspektrum nach Konditionierung der Experimentierkammer

3.2.2 Die Experimentierkammer der Zwei-Quellenanlage

Beim Studium der Wechselwirkung langsamer hochgeladener Ionen mit Festkörpern ist die Festkörperoberfläche aufgrund der geringen kinetischen Energie, der damit verbundenen geringen Eindringtiefe der Ionen und der Wechselwirkungsmechanismen vor dem Eindringen in den Festkörper ein wichtiger und genau zu fixierender Bestandteil des Experiments. Abschätzungen für die Wiederbedeckungszeit einer Oberfläche aus dem Restgas nach Gleichung (3.27) aus [81]:

$$\tau_w = \frac{10^{-6} \text{ s}}{p / \text{mbar}} \quad (3.27)$$

ergeben eine Aufwuchszeit pro Monolage von 10 Sekunden bei einem Kammerdruck von 10^{-7} mbar. Bei einem Druck von 10^{-10} mbar beträgt diese Zeit bereits mehrere Stunden. Um reproduzierbare Experimente mit definierten Oberflächen durchführen zu können, ist es deshalb unabdingbar, die Experimentierkammer so auszustatten, dass Basisdrücke der Kammer kleiner $5 \cdot 10^{-10}$ mbar erreicht werden können. Die Kammer ist mit einem zweistufigen Pumpsystem, einer Drehschieberpumpe zum Bereitstellen des Vorvakuums und drei Turbomolekularpumpen mit einer Gesamtsaugleistung $S = 1700 \frac{\text{mbar l}}{\text{s}}$ zum Erreichen des Ultrahochvakuums ausgestattet. In der Experimentierkammer befindet sich ein Massenspektrometer, womit das Restgas der Kammer charakterisiert sowie Verunreinigungen oder undichte Stellen aufgezeigt werden können. Ein sol-

ches Restgasspektrum ist in Abbildung 3.11 gezeigt. Dominiert wird das Restgasspektrum von Wasserstoff, der aufgrund seiner geringen Atommasse, großen Beweglichkeit und der daraus folgenden großen mittleren freien Weglänge schlechter von mechanischen Pumpen gepumpt werden kann und zudem als kleinstes Atom des Periodensystems am leichtesten durch die Kammerwände diffundieren kann. Um den Basisdruck in der Kammer weiter zu verringern, ist ein Pumpensystem erforderlich, welches die leichten Komponenten des Restgases effektiver pumpt. Dies kann eine kryogene Pumpe sein, aber auch ein zweistufiges Turbomolekularpumpensystem ist zu empfehlen. Weiterhin ist in der Kammer eine Zerstäubungskanone zum Reinigen der Probenoberflächen montiert. Die Kanone arbeitet mit Argongas. Die extrahierbaren Ströme bei einer kinetischen Energie von 3 keV betragen 10-20 μA . Zur Charakterisierung der gesäuberten Oberfläche steht ebenfalls in der Experimentierkammer eine Niederenergieelektronenoptik zur Verfügung, die wahlweise als Augerelektronenspektrometer (AES) oder als Niederenergieelektronendiffraktometer (LEED) eingesetzt werden kann. Alle in die Kammer integrierten experimentellen Anordnungen, einschließlich des im nächsten Abschnitts beschriebenen kalorimetrischen Messaufbaus, erfüllen UHV-Bedingungen. Nach konditionierendem Ausheizen der Kammer beträgt der Basisdruck in der Kammer $2 \cdot 10^{-10}$ mbar.

3.3 Messung von Ionenstrom und Ionenenergie

3.3.1 Anordnung Probe - Abschirmung

Ein generell zu verbessernder Punkt am kalorimetrischen Messsystem [2] war die zuverlässige Messung des Ionenstroms an der Probe, unabhängig vom Probenmaterial und der Sekundärelektronenausbeute. Wie in Kapitel 2.1.1 anhand von vielen Experimenten verdeutlicht, geht der Beschuss von Festkörperoberflächen mit einer vom Ladungszustand abhängigen Sekundärelektronenausbeute einher. Dieser Elektronenstrom verhindert die exakte direkte Messung des Ionenstroms an der Probe. Eine Unterdrückung der Sekundärelektronen durch elektrostatische Potenziale ist in diesem Fall nicht möglich, da die mit sehr geringer kinetischer Energie ($\approx 20\text{eV}/q$) eingeschossenen Ionen maßgeblich beeinflusst würden. Ein Ausweg bietet ein den Probenbereich umgebendes, elektrisch isoliert aufgehängenes Rohr, an dem die emittierten Elektronen gemessen werden können. Um zu verhindern, dass einfallende Ionen diese Schirmung treffen und die Elektronenstrommessung verfälschen, ist zwischen Schirm und Bremslinse eine Blende kleinerer Öffnung montiert. In Abbildung 3.12 ist die Anordnung und das Messprinzip schematisch dargestellt. Durch Summation

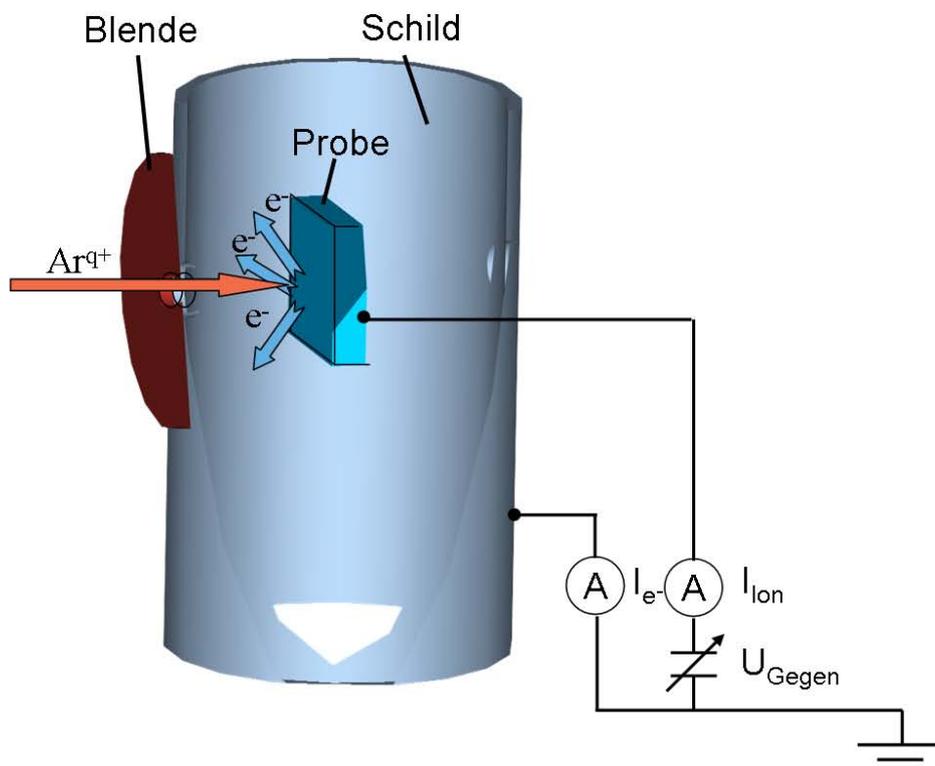


Abbildung 3.12: Schematische Darstellung der Anordnung zur Messung des Ionenstroms an der Probe und der Bestimmung der Restenergie der Ionen mittels Gegenfeldmessung

von gemessenem Ionenstrom I_{Ion} und emittiertem negativem Sekundärelektronenstrom I_{e^-} kann der tatsächliche Ionenstrom I_{tot} wie folgt bestimmt werden:

$$I_{\text{tot}} = I_{\text{Ion}} + I_{e^-}. \quad (3.28)$$

Die Genauigkeit der Strommessungen ist dabei besser als $\Delta I = \pm 5$ nA. Für den Fehler des Ionenstroms zur Probe ergeben sich damit als obere Abschätzung etwa 10 nA bei einem totalen Ionenstrom von $1 \mu\text{A}$. Durch Anlegen einer variablen Spannung an die Probe kann zwischen Probe und Schild zusätzlich ein elektrisches Gegenfeld erzeugt werden, welches die Ionen abbremst. Ein somit zur Verfügung stehender Gegenfeldanalysator kann die kinetische Energie der auf die Probe treffenden Ionen bestimmen. Dabei wird die tatsächliche kinetische Energie der Ionen bestimmt und eventuelle Aufladungen der Probe (zum Beispiel beim Beschuss von nicht ideal leitenden Materialien) mit berücksichtigt.

3.3.2 Resultate der Gegenfeldmessung

Abbildung 3.13 zeigt exemplarisch ein Gegenfeldspektrum, aufgenommen an einer Kupferprobe bei konstanten Quellenparametern $P = (80 \pm 20) \text{ W}$ und $p = (3 \pm 1) \cdot 10^{-6} \text{ mbar}$, einer eingestellten Restbeschleunigungsspannung $U_{\text{Quelle}} - U_{\text{Strahlrohr}} = 50 \text{ V}$ und einem totalen Ionenstrom von $I_{\text{tot}} = 1 \mu\text{A}$. Im Diagramm ist der Strom-Spannungsverlauf für den Probenstrom (schwarze Kurve) und den Schildstrom (rote Kurve) eingezeichnet. Der gemessene Probenstrom beträgt für die Gegenspannung 0 V , entsprechend der Sekundärelektronenemission zunächst etwa $1,2 \mu\text{A}$. Mit größerer Gegenspannung nimmt die Sekundärelektronenemission bis auf $I_{e^-} = 0 \mu\text{A}$ ab. Eine weitere Erhöhung der Gegenspannung führt dazu, dass Ionen die Probe aus energetischen Gründen nicht mehr erreichen können. Dies führt zur Abnahme des Probenstroms und andererseits zur Zunahme des Schildstroms, da die Ionen durch das Gegenfeld in den Sekundärelektronenschirm gedrückt werden. Die Ionen im Schild erzeugen ebenfalls Sekundärelektronen, die zur Probe beschleunigt werden. Dies führt bei größeren Gegenspannungen als der Restbeschleunigungsspannung U_{Rest} zu einem negativen Probenstrom und einem positiven Schildstrom.

Das kleine Fenster in Abbildung 3.13 zeigt die Ableitung des Probenstroms nach der Gegenspannung. Es ergibt sich somit eine Restenergie von $63 \text{ eV} \times q$. Die Breite der Energieverteilung ergibt sich in diesem Fall etwa zu $14 \text{ eV} \times q$. Dieser Wert stellt jedoch eine obere Grenze für die Energiebreite dar, da in ihr auch die Winkeldivergenz beinhaltet ist. Bei sehr kleinen Restenergien bis hin zur Restenergie Null wird der Beitrag der Winkeldivergenz im Vergleich zum Beitrag der tatsächlichen Energiebreite der Ionen immer größer, da die transversale Komponente der Geschwindigkeit und damit die Transversalenergie der Ionen konstant bleibt. Aus der ermittelten Restenergie von $63 \text{ eV}/q$ lässt sich bei einer eingestellten Restbeschleunigungsspannung von 50 V auf eine zusätzliche Beschleunigungsspannung von 13 V schließen. Beide Methoden sowohl Langmuirsondenmes-

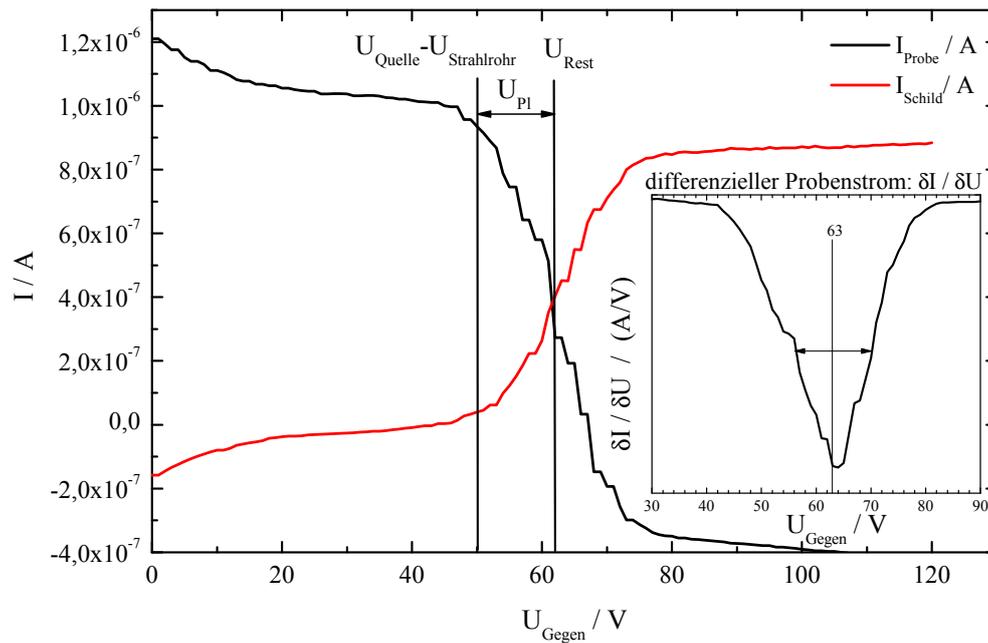


Abbildung 3.13: Darstellung des gegenspannungsabhängigen Probe- und Schirmstroms für Ar^{7+} -Ionen während des Anlegens einer variablen Gegenspannung an die Probe

sung als auch Gegenfeldmessung stellen alternative Methoden zur Ermittlung des Plasmapotenzials respektive der kinetischen Energie der Ionen dar. Wie gut beide Methoden korrelieren, soll im Folgenden gezeigt werden.

3.3.3 Vergleich der Gegenfeldmessung mit Langmuirsondenmessung

Analog zu den Experimenten zur Bestimmung des Plasmapotenzials mittels Langmuirsondendiagnostik wurde für die Variation des Quellendrucks, wie in Abbildung 3.13 gezeigt, das zusätzliche Beschleunigungspotenzial ermittelt. Ein Vergleich der Resultate beider Methoden findet sich in Abbildung 3.14. Dargestellt ist hierbei die zusätzliche Beschleunigungsspannung bzw. das Plasmapotenzial für verschiedene Quellendrücke. Aufgrund der sehr guten Übereinstimmung ist die relativ einfache aber schnell durchzuführende Gegenfeldmethode eine akzeptable Methode zur Bestimmung der Restenergie der Ionen. In allen Kalorimetrieexperimenten wurde für jede Ionen-Proben-Kombination und jede eingestellte kinetische Energie ein Gegenfeldspektrum aufgenommen, um die Restenergie der Ionen exakt ermitteln zu können. Es lässt sich zusammenfassend festhalten, dass in guter Übereinstimmung aus Langmuirsondenmessung und Gegenfeldmessung ein Plasmapotenzial von $U_{\text{Pl}} = (12 \pm 2) \text{ V}$ ermittelt wurde, welches bei konstanten Quellenparametern $P = (80 \pm 20) \text{ W}$ und $p = (3 \pm 1) \cdot 10^{-6} \text{ mbar}$ stabil bleibt. Zusätzlich konnten aus den Gegenfeldmessungen Erkenntnisse über die Sekundärelektronenemission und die Qualität des Ionenstrahls hinsichtlich Energiebreite und Winkeldivergenz gewonnen werden.

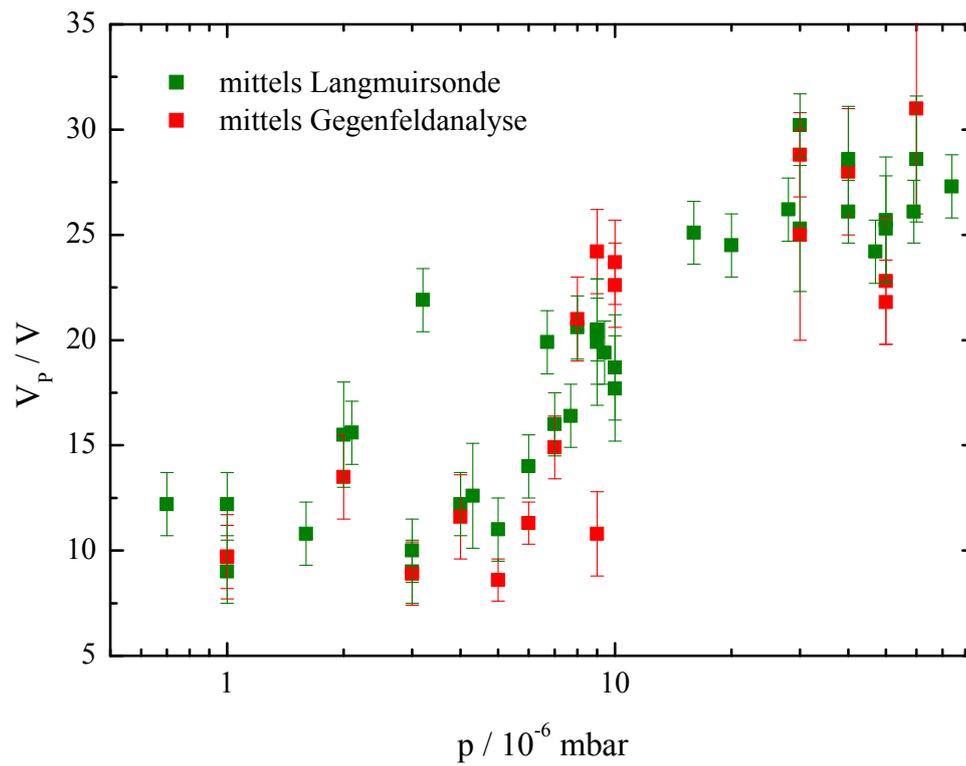


Abbildung 3.14: Abhängigkeit des Plasmapotenzials vom Quelldruck bei $U_{\text{Bias}} = -110 \text{ V}$ und $P = 80 \text{ W}$

3.4 Ermittlung der deponierten potenziellen Energie – kalorimetrische Messungen

3.4.1 Messprinzip

Ziel der Kalorimetrieexperimente ist es, die Menge der in der Probe deponierten potenziellen Energie der Ionen zu quantifizieren. Die Grundidee dabei ist, den gesamten Energieeintrag (Summe aus kinetischer und potenzieller Energie) pro Ion bei verschiedenen kinetischen Energien der Projektile in einem Bereich von 100 eV - 1000 eV zu ermitteln. Dabei wird vorausgesetzt, dass in diesem Bereich sowohl der Anteil der deponierten kinetischen Energie als auch der Anteil der deponierten potenziellen Energie unabhängig von der Projektilgeschwindigkeit ist. Dann ist es möglich durch Extrapolation der gewonnenen gesamten Energieeinträge zur kinetischen Energie Null beide Anteile der Energie zu separieren:

$$E_{\text{dep}}^{\text{Ion}} = E_{\text{kin,dep}}^{\text{Ion}} + E_{\text{pot,dep}}^{\text{Ion}} \quad (3.29)$$

Durch einen Vergleich mit theoretischen Rechnungen [66, 67, 68, 80] für die Summe der Ionisationsenergie (potenzielle Energie) der Ionen gelingt es, den Anteil der deponierten potenziellen Energie zu ermitteln.

Die folgende Herleitung verdeutlicht die Messstrategie.

Die gesamte deponierte Energie pro Ion $E_{\text{dep}}^{\text{Ion}}$ wurde in Gleichung (3.29) in Anteile der kinetischen und der potenziellen Energie separiert. Sie wird experimentell aus einer Gesamtheit von N Ionen ermittelt. Für die gesamte deponierte Energie folgt:

$$E_{\text{dep}} = E_{\text{dep}}^{\text{Ion}} \cdot N = \left(E_{\text{kin,dep}}^{\text{Ion}} + E_{\text{pot,dep}}^{\text{Ion}} \right) \cdot N. \quad (3.30)$$

Für einen konstanten Teilchenstrom auf die Probe folgt für den gesamten Energieeintrag E_{dep} pro Zeit:

$$\frac{E_{\text{dep}}}{t} = \left(E_{\text{kin,dep}}^{\text{Ion}} + E_{\text{pot,dep}}^{\text{Ion}} \right) \cdot \frac{N}{t}. \quad (3.31)$$

Mit Umformungen und Ersetzen der deponierten kinetischen Energie pro Ion durch:

$$E_{\text{kin,dep}}^{\text{Ion}} = U_{\text{Rest}} \cdot q \quad (3.32)$$

und unter der Voraussetzung, dass die gesamte kinetische Energie der Ionen im Festkörper deponiert wird, folgt:

$$\begin{aligned} \frac{E_{\text{dep}}}{t} &= \frac{U_{\text{Rest}} \cdot q \cdot N}{t} + \frac{E_{\text{pot,dep}}}{t} \\ P_{\text{dep}} &= U_{\text{Rest}} \cdot I_{\text{Ion}} + \frac{E_{\text{pot,dep}}}{t}. \end{aligned} \quad (3.33)$$

Hierbei ist U_{Rest} die Restbeschleunigungsspannung der Ionen, q die elektrische Ladung und I_{Ion} der elektrische Ionenstrom auf die Probe. Mit der Annahme, dass die deponierte Leistung P_{dep} vollständig in Wärme umgewandelt wird, kann diese in einer geeigneten kalorimetrischen Messapparatur durch eine Temperaturänderung quantifiziert werden. Die Experimentiervorschrift sieht somit vor, die Probentemperaturerhöhung in Abhängigkeit des Ladungszustandes und der Restbeschleunigungsspannung zu ermitteln. Aus der ermittelten Temperaturdifferenz kann mittels Kalibrierung der Messapparatur und des Ionenstroms auf die eingetragene Energie pro Ion geschlossen werden.

3.4.2 Das Kalorimeter

In diesem Abschnitt findet sich eine detaillierte Beschreibung des experimentellen Aufbaus des Kalorimeters zur Bestimmung des Energieeintrags hochgeladener Ionen in Festkörperoberflächen. Der Abschnitt gliedert sich in zwei Teile. Zunächst soll die Wirkungsweise des Kalorimeters und die Dimensionierung des Messsystems erläutert werden. Im Anschluss folgt die Beschreibung der Realisierung des im Vergleich zu [2] verbesserten Targetaufbaus unter der Berücksichtigung der nötigen Weiterentwicklung des Messsystems wie die Beachtung der UHV-Umgebung der Implementierung eines unverzichtbaren UHV-tauglichen Probentransfers, der verbesserten Ionenstrommessung und der Abschirmung der Boltzmanstrahlung.

Die im Experiment genutzte kalorimetrische Messmethode ist an die Methode der thermischen Relaxation zur Bestimmung der Wärmekapazität von Proben angelehnt [119, 120, 121, 122, 123]. Das Prinzip dieser Messmethode beruht auf der Messung der zeitabhängigen Änderung der Probentemperatur einer an ein Wärmebad unendlich großer Wärmekapazität⁵ thermisch gekoppelten Probe. Die thermische Kopplung zwischen Wärmebad und Probe wird durch den Wärmeleitwiderstand R_W charakterisiert. Dies ist schematisch in Abbildung (3.15) dargestellt. An der Probe ist ein Temperatursensor und ein Ohmscher Heizer montiert. Wird keine Heizleistung in die Probe eingetragen, so ist unter Idealbedingungen⁶ die Probentemperatur T gleich der Wärmebadtemperatur T_0 . Unter Zuführung einer zeitlich konstanten Heizleistung P , die einem Wärmestrom \dot{Q}_P zur Probe entspricht, stellt sich eine neue Gleichgewichtstemperatur $T_0 + \Delta T$ an der Probe ein. Die das System beschreibende Differenzialgleichung lautet:

$$C_P \frac{dT_P}{dt} + \frac{(T_P - T_0)}{R_W} = \dot{Q}_P. \quad (3.34)$$

⁵Die Bedingung der unendlich großen Wärmekapazität ist dann gegeben, wenn die von der Probe abfließende Wärmemenge die Temperatur des Wärmebads nicht beeinflusst.

⁶z.B. unter Vernachlässigung eines externen Wärmeeintrags, z.B. Boltzmannstrahlung

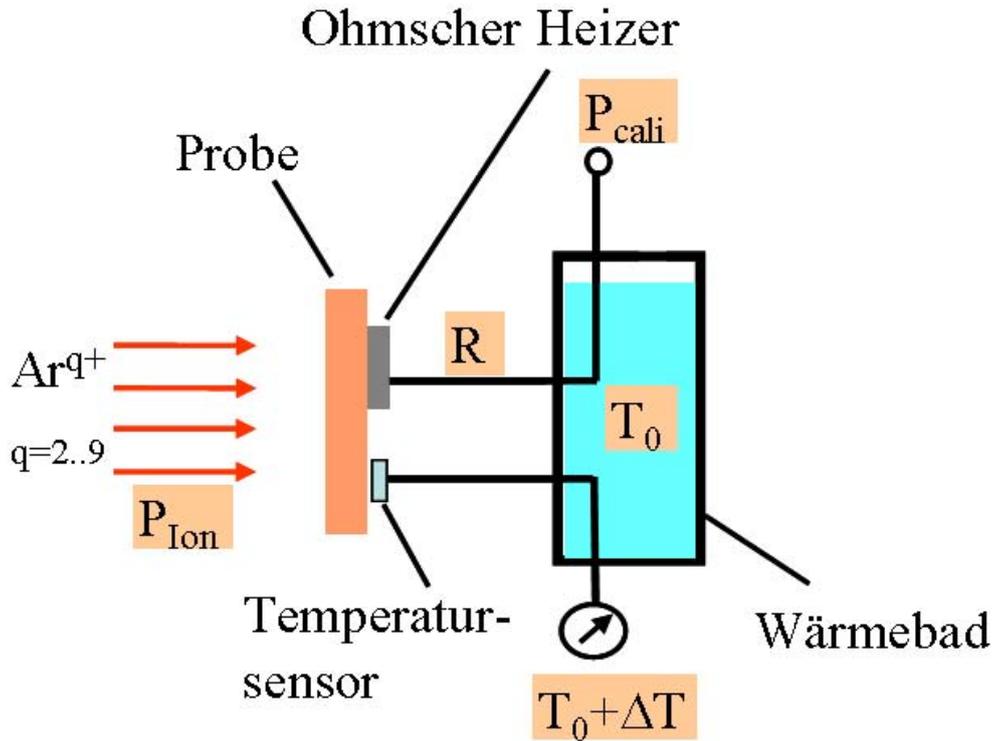


Abbildung 3.15: Schematische Darstellung des kalorimetrischen Messprinzips

Nach Vereinfachung folgt mit $\tau = C_P \cdot R_W$:

$$\frac{dT_P}{dt} + \frac{1}{\tau} T_P = \frac{\dot{Q}_P}{C_P} + \frac{1}{\tau} T_0. \quad (3.35)$$

Hierbei ist C_P die Wärmekapazität der Probe, T_0 die Temperatur des Wärmebades, R_W der Wärmewiderstand zwischen Probe und Wärmebad, T_P die Probentemperatur, \dot{Q}_P der Wärmestrom bzw. die eingetragene Leistung in die Probe und τ ergibt sich aus dem Produkt von Wärmewiderstand R_W und Wärmekapazität C_P . Die Lösung der linearen Differenzialgleichung 1. Ordnung setzt sich aus der homogenen $T_P^h(t)$ und der speziellen Lösung $T_P^{sp}(t)$ zusammen, wobei letztere mit folgendem Ansatz:

$$\begin{aligned} T_P(t)^{sp} &= \left(\frac{\dot{Q}_P}{C} + \frac{1}{\tau} T_0 \right) \cdot \tau \\ &= \dot{Q}_P \cdot R_W + T_0 \end{aligned} \quad (3.36)$$

gewonnen wird. Dieser Ansatz gilt für zeitunabhängige Koeffizienten und Quellterme. Es ergibt

sich:

$$\begin{aligned} T_P(t) &= T_P^h(t) + T_P^{sp}(t) \\ &= C \cdot e^{-\frac{t}{\tau}} + \dot{Q}_P \cdot R_W + T_0. \end{aligned} \quad (3.37)$$

Mit der Anfangsbedingung $T_P(t = 0) = T_0$ folgt:

$$C = -\dot{Q} \cdot R_W. \quad (3.38)$$

Damit folgt das Zeitverhalten der Proben­temperatur zu:

$$T_P(t) = T_0 + \dot{Q}_P \cdot R_W \cdot \left(1 - e^{-\frac{t-t_0}{\tau}}\right), \quad (3.39)$$

wobei τ die charakteristische Zeitkonstante ist. Bei Variation der in die Probe eingetragenen Wärmeleistung \dot{Q} unter konstant gehaltener Temperatur $T(t_0)$ des Wärmebads nähert sich die neue Gleichgewichtstemperatur $T(t)$ nach fünf Zeitkonstanten τ bis auf 99% der Temperatur $T_P(t \rightarrow \infty) = T_0 + \Delta T$ an.

Der Eintrag der Wärmeleistung geschieht zum Einen durch Heizen mit dem Ionenstrahl und zum Anderen durch das Heizen mit dem Ohmschen Heizer. Durch diese zweite Heizmethode gelingt es, eine gemessene Temperaturerhöhung beim Ionenbeschuss zu kalibrieren und in eine absolute äquivalente elektrische Heizleistung umzurechnen.

Um den definierten Wärmeübergang zwischen Probe und Wärmebad herzustellen, werden die Zuleitungen für den an der Proberückseite befestigten Heizer bzw. Temperatursensor benutzt. Für die Dimensionierung dieser Zuleitungen ist es wichtig, das für den Arbeitsbereich erforderliche Ansprechvermögen des Kalorimeters abzuschätzen.

Das Ansprechvermögen S berechnet sich aus dem Quotient des Wärmestroms und der über dem Wärmewiderstand abfallenden Temperaturdifferenz und stellt bei einem temperaturunabhängigem Wärmewiderstand genau dessen Kehrwert dar:

$$S = \frac{1}{\Delta T} \int_{T_0}^{T_0 + \Delta T} \frac{1}{R_W(T)} dT = \frac{\dot{Q}}{\Delta T}. \quad (3.40)$$

Da die Auflösung der Auswertungs­elektronik des Targettemperatur­fühlers auf 1 mK begrenzt ist, soll eine minimale Temperaturerhöhung von 5 mK für den kleinsten einzutragenden Wärmestrom erreicht werden:

$$\Delta T = \frac{\dot{Q}_P}{S} \geq 5 \text{ mK}. \quad (3.41)$$

Für das Ansprechvermögen S folgt damit:

$$S \leq \frac{\dot{Q}_P}{5 \text{ mK}}. \quad (3.42)$$

Der durch Ionenheizen minimal eingetragene Wärmestrom kann mit

$$\dot{Q} = P \quad (3.43)$$

$$= (E_{\text{kin,Ion}} + E_{\text{pot,Ion}}) \cdot \dot{N}_{\text{Ion}}$$

$$> E_{\text{kin,Ion}} \cdot \dot{N}_{\text{Ion}}$$

$$> q \cdot U_{\text{Rest}} \cdot \dot{N}_{\text{Ion}}$$

$$> U_{\text{Rest}} \cdot I_{\text{Ion}} \quad (3.44)$$

abgeschätzt werden. $E_{\text{kin,Ion}}$, $E_{\text{pot,Ion}}$ quantifizieren die kinetische bzw. die potenzielle Energie eines Ions, \dot{N}_{Ion} die Anzahl der einfallenden Ionen pro Zeit. q beschreibt die Ladung des Ions, U_{Rest} und I_{Ion} die Restbeschleunigungsspannung der Ionen und den tatsächlichen Ionenstrom, die sich im Experiment minimal zu $U_{\text{Rest}} > 20 \text{ V}$ und $I_{\text{Ion}} = 1 \mu\text{A}$ ergeben. Für das Ansprechvermögen folgt aus diesen Werten:

$$\begin{aligned} S &\leq \frac{U_{\text{Rest}} \cdot I_{\text{Ion}}}{5 \text{ mK}} = \frac{20 \text{ V} \cdot 1 \cdot 10^{-6} \text{ A}}{5 \cdot 10^{-3} \text{ K}} \\ &= 4 \cdot 10^{-4} \frac{\text{W}}{\text{K}} \end{aligned} \quad (3.45)$$

und mit der gerechtfertigten Annahme eines temperaturunabhängigen Wärmewiderstands [124] folgt für selbigen:

$$\begin{aligned} R &= \frac{1}{S} \\ R &\geq 250 \frac{\text{K}}{\text{W}}. \end{aligned} \quad (3.46)$$

Mit Gleichung (3.47) kann der Wärmewiderstand der vier elektrischen Zuleitungen des Probeheizers und des Probentempersensors berechnet werden und somit das Verhältnis aus Länge l und Querschnitt A definiert werden:

$$R_{\text{Zuleitungen}} = \frac{1}{4} \cdot \frac{l}{\lambda A}. \quad (3.47)$$

Der Vorfaktor $\frac{1}{4}$ berücksichtigt die Anzahl der Zuleitungen und λ steht für den Wärmeleitkoeffizienten. Mit Kupfer als Zuleitungsmaterial ($\lambda_{\text{Cu}} = 401 \frac{\text{W}}{\text{mK}}$) und einem Leiterquerschnitt von $A = 0.025 \text{ mm}^2$ ergibt sich für die Länge einer Zuleitung $l = 10 \text{ mm}$. Diese Abschätzung beinhaltet keinen zusätzlich auftretenden Wärmeübergangswiderstand an Kontaktstellen verschiedener Materialien. Weiterhin ist anzumerken, dass dies eine untere Abschätzung für die durch Ionenheizung

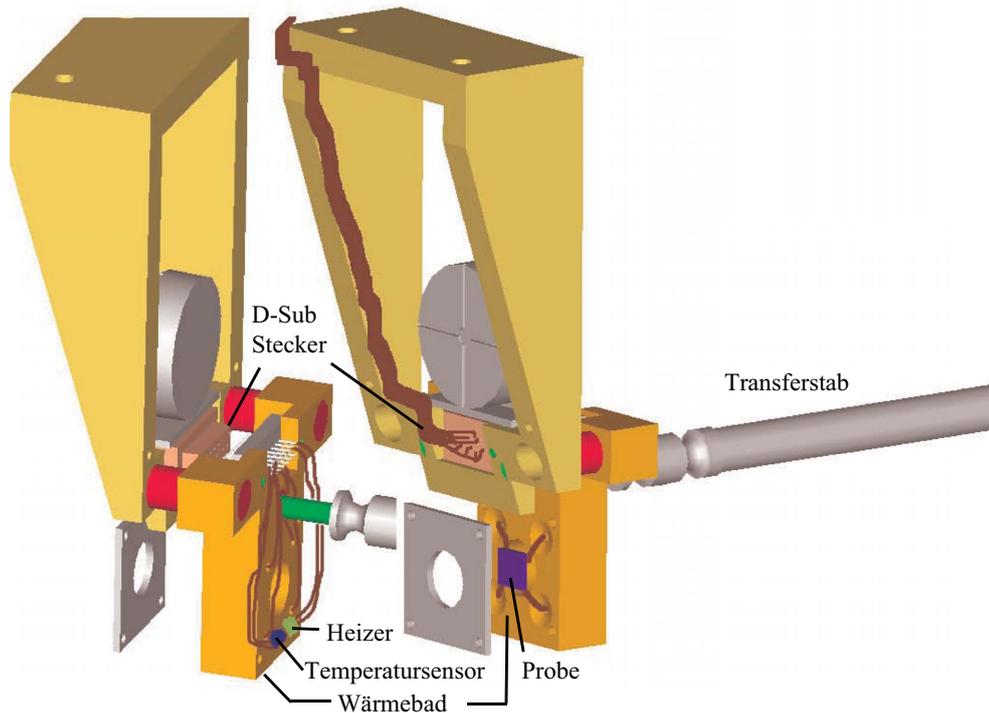


Abbildung 3.16: Darstellung der Realisierung des unendlich großen Wärmebads

einzutragende Leistung ist, da der Anteil der potenziellen Energie der Ionen nicht berücksichtigt wurde.

Die Realisierung des kalorimetrischen Probenhalters ist in Abbildung 3.16 dargestellt. Als Wärmebad dient ein Aluminiumblock. Um die unendlich große Wärmekapazität des Wärmebads zu realisieren, wird die Temperatur des Aluminiumblocks durch eine PID-Regelschleife zwischen einem Ohmschen Heizer und Temperatursensor, welche beide am Aluminiumblock befestigt sind, auf einer konstanten Temperatur gehalten. Die Temperaturschwankung dieser Regelung beträgt ± 1 mK. In Abbildung 3.16 ist der als Wärmebad dienende Aluminiumblock orange dargestellt. Der Block besitzt eine zentrale Bohrung von 2 cm Durchmesser, an dessen Position die Probe montiert wird. Radial von dieser Bohrung befinden sich vier symmetrisch angeordnete Löcher, durch welche die vier Zuleitungen der Probe gezogen werden und die Probe somit positioniert wird. Im Anschluss stellt eine Abdeckplatte, die mit vier Schrauben fixiert wird, den Wärmekontakt zum Aluminiumblock sicher.

In Abbildung 3.17 ist die Elektrifizierung und die Datenerfassung des Experiments dargestellt. Da die komplexe Montage der zu untersuchenden Probe immer ausserhalb des Vakuums durchgeführt wird und die Probe erst danach in die Experimentierkammer gebracht werden kann, bestand die dringende Notwendigkeit, den Probenhalter im Rahmen dieser Arbeit so umzukonstruieren, dass ein Probenwechsel ermöglicht wird, ohne dabei das UHV-Vakuum der Experimentierkammer aufzuheben. Die dabei favorisierte Lösung ist, das gesamte Wärmebad aus bzw. in das Vakuum zu

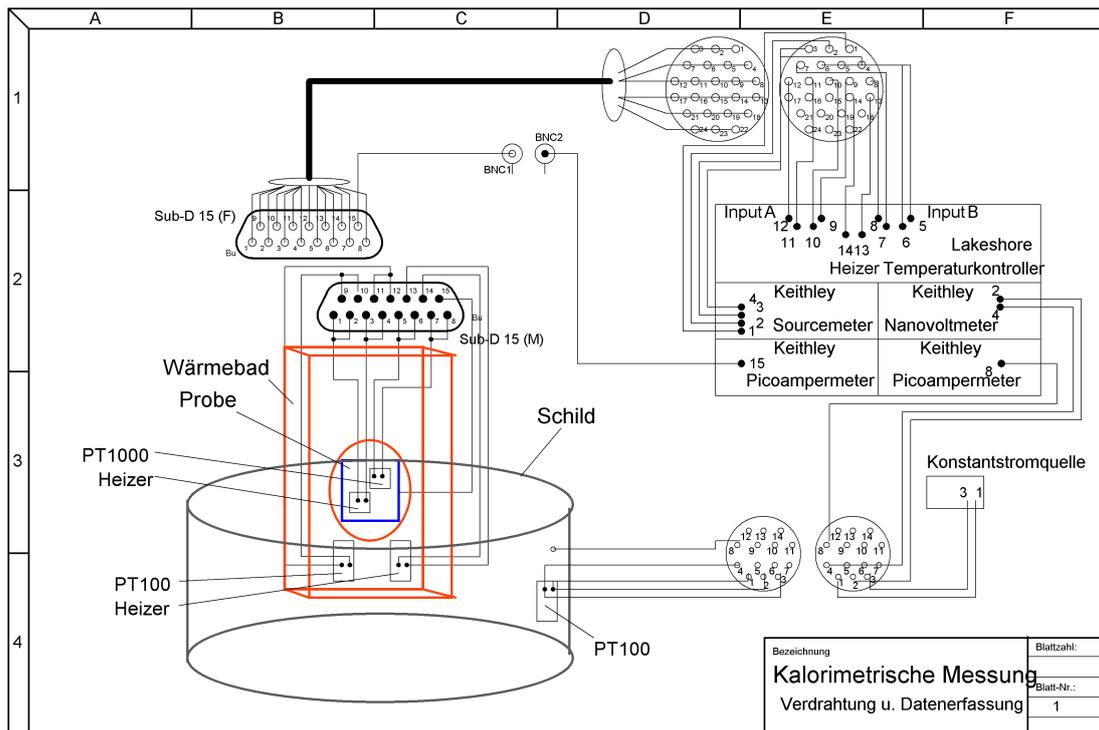


Abbildung 3.17: Darstellung der zur Steuerung des Experiments und zur Datenerfassung nötigen Verdrahtung des kalorimetrischen Probenhalters

transferieren. Aus Abbildung 3.17 ist ersichtlich, dass dabei 15 elektrische Verbindungen unterbrochen bzw. wiederhergestellt werden müssen. Dazu dient eine UHV-taugliche, nach dem D-Sub Standard ausgeführte 15-polige Steckverbindung, die neben der elektrischen Kontaktierung auch die mechanische Fixierung des Wärmebads ermöglicht. Zur Positionsfindung der beiden Steckverbinder dient eine Führung durch zwei Bolzen, welche in zwei in der Aufnahme vorgesehene Löcher einfahren. Die Bolzen bestehen, im Gegensatz zu dem aus Aluminium gefertigtem Wärmebad sowie der Wärmebadaufnahme, aus Invar, einem durch besonders geringe Wärmeausdehnung gekennzeichnetem Material. Aufgrund der unterschiedlichen Ausdehnungskoeffizienten des Bolzenmaterials und des „Lochmaterials“ wird bei externem Kühlen der Wärmebadaufnahme ein besonders intensiver Wärmekontakt hergestellt. Der gesamte Targethalter ist in Abbildung 3.18 dargestellt.

Der in Kapitel 3.3.1 auf Seite 72 zur Messung des Sekundärelektronenstroms erwähnte Schirm ist in Abbildung 3.18 halbdurchsichtig und gelb dargestellt. Zum Proben transfer und zur Probenpräparation kann er vertikal um 250 mm verschoben werden.

Diese Schirmung der Probe dient nicht nur zur Bestimmung des korrekten Ionenstroms, sondern sie reduziert zugleich störende, durch die Boltzmannstrahlung verursachte Einflüsse.

Die Ermittlung des Energieeintrags beruht auf einer Differenzmessung, so dass der Absolutwert der Boltzmannstrahlungsleistung keinen Einfluss auf die Messergebnisse hat, denn durch Dif-

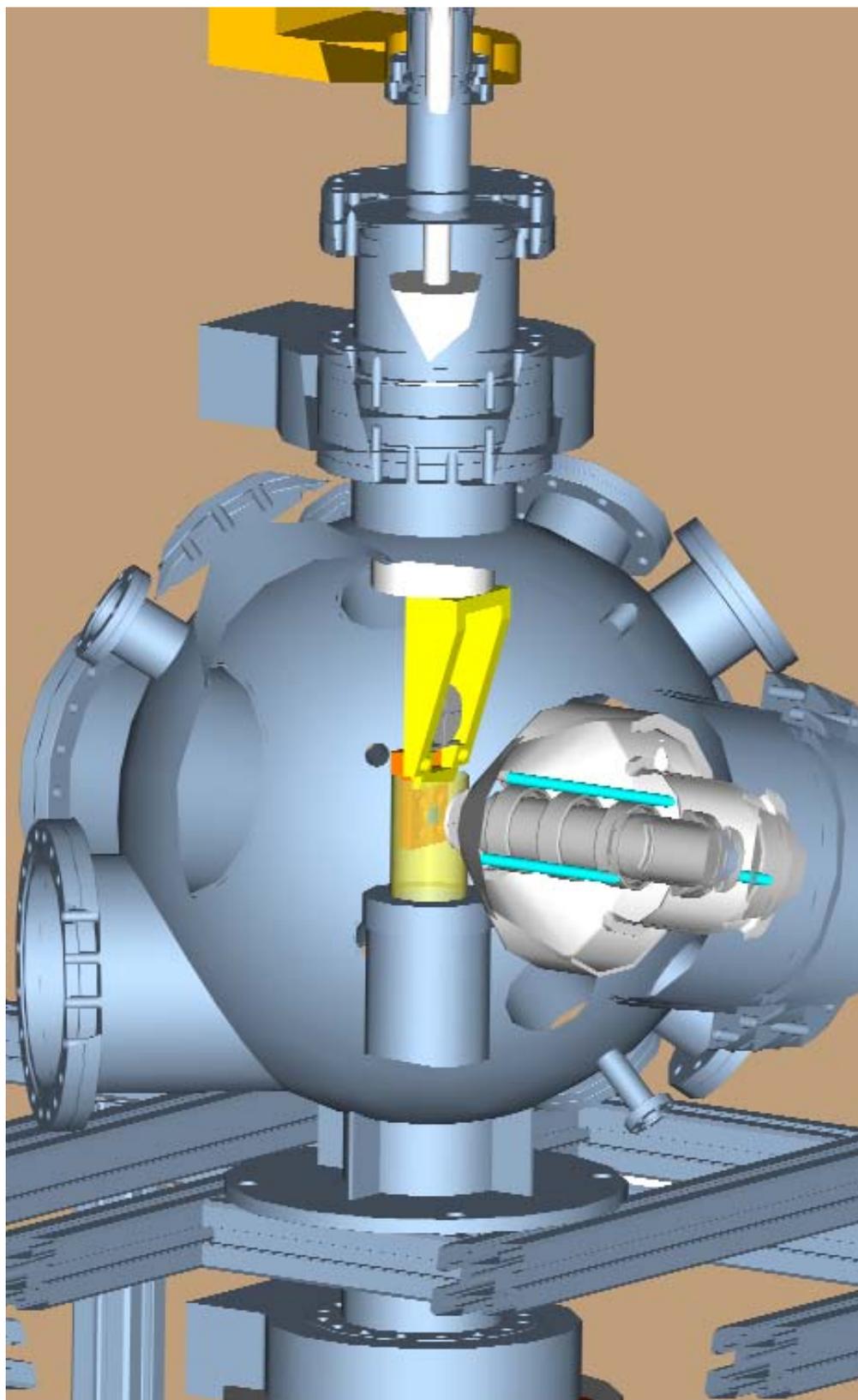


Abbildung 3.18: Darstellung des die Probe umgebenden Schields (halbdurchsichtig gelb) zur Messung des Sekundärelektronenstroms und zur Abschirmung von Schwankungen der Boltzmannstrahlung aufgrund von Raumtemperaturschwankungen

ferenzbildung beider Gleichgewichtszustände wird dieser Beitrag annulliert. Eine Änderung des Wärmeflusses innerhalb der Messperiode kann die Messung jedoch erheblich beeinflussen, wie im Folgenden gezeigt wird. Die allgemeine Gleichung für den durch Boltzmannstrahlung verursachten Wärmefluss zwischen zwei Körpern der Temperatur T_1 und T_2 mit der sich gegenüberstehenden effektiven Fläche A lautet:

$$\dot{Q}_{\text{Boltz.}} = \sigma A (\varepsilon_1 T_1^4 - \varepsilon_2 T_2^4). \quad (3.48)$$

Die Konstanten σ und ε bezeichnen die Stefan-Boltzmann-Konstante σ und die ε materialcharakteristische Konstante für die Emissivität. Angepasst auf die geometrischen Verhältnisse in der Experimentierkammer lautet die Strahlungsbilanz:

$$\dot{Q}_{\text{Boltz.}} = \sigma 2A_{\text{Target}} \left(\varepsilon_{\text{Rezipient}} \frac{T_{\text{Rezipient}}^4}{3} - \varepsilon_{\text{Target}} T_{\text{Target}}^4 \right), \quad (3.49)$$

wie in meiner Diplomarbeit [100] gezeigt werden konnte. Die Änderung dieser Strahlungsbilanz, herbeigeführt durch Variation der Temperaturen von Kammer oder Probe, berechnet sich wie folgt:

$$d\dot{Q}_{\text{Boltz.}} = 2A_{\text{Target}} \cdot \sigma \cdot \left(\frac{4}{3} \varepsilon_{\text{Rezipient}} T_{\text{Rezipient}}^3 dT_{\text{Rezipient}} - 4\varepsilon_{\text{Target}} T_{\text{Target}}^3 dT_{\text{Target}} \right). \quad (3.50)$$

Die Einflüsse von Schwankungen der Probertemperatur können im Folgenden unberücksichtigt bleiben. Die Probe ist zum Einen an das Wärmebad gekoppelt, so dass zufällige Schwankungen sehr klein sind. Zum Anderen sind nicht zufällige, durch Heizen herbeigeführte Schwankungen in der Kalibrierung der Probe mittels elektrischem Referenzheizer berücksichtigt. Man erkennt jedoch die Wichtigkeit, die Probe bei der gleichen Basistemperatur zu kalibrieren, bei der auch der Ionenbeschuss stattfindet. Dies gilt besonders, wenn bei hohen Basistemperaturen (Zimmertemperatur) gearbeitet werden soll, da die Probertemperatur mit der dritten Potenz eingeht. Somit bleibt die Rezipiententemperatur als kritische Größe.

Mit Einsetzen der Werte für die Emissivität des Rezipienten $\varepsilon_{\text{Stahl}} = 0.2$ der Stefan-Boltzmann-Konstante $\sigma = 5.6703 \cdot 10^{-8} \frac{\text{W}}{\text{m}^2\text{K}^4}$ folgt zunächst:

$$\begin{aligned} d\dot{Q}_{\text{Boltz.}} &= 9.2 \cdot 10^{-12} \frac{\text{W}}{\text{K}^4} \left(\frac{T_{\text{Rezipient}}^3}{3} \cdot dT_{\text{Rezipient}} \right) \\ &< q \cdot I \cdot dU + U \cdot dI \\ &= dP_{\text{Ion}}, \end{aligned} \quad (3.51)$$

wobei dP_{Ion} die Schwankung des Leistungseintrags durch Ionenbeschuss beschreibt. U , I stehen für die Restbeschleunigungsspannung und Ionenstrom, dU , dI für die dazugehörigen Schwankungen. Mit obigen Annahmen für $U = 100 \text{ V}$, $dU = 2 \text{ V}$, $I = 1 \cdot 10^{-6} \text{ A}$ und $dI = 5 \cdot 10^{-8} \text{ A}$ ergibt

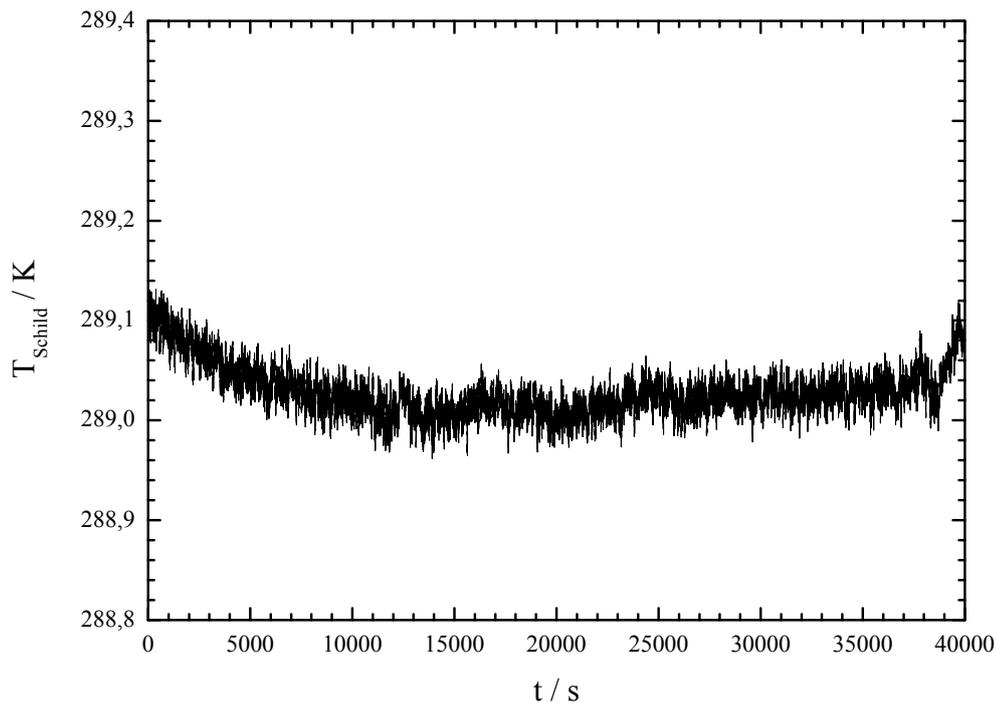


Abbildung 3.19: Zeitlicher Verlauf der Schildtemperatur bei eingeschalteter Stabilisierung

sich für die Schwankungen des Leistungseintrags durch Ionenheizen:

$$dP = 7 \cdot 10^{-6} \text{ W.} \quad (3.52)$$

Für die maximale Temperaturschwankung des Rezipienten bei Raumtemperatur ergibt sich:

$$\begin{aligned} dT_{\text{Rezipient}} &= \frac{4 \cdot 3}{9.2} \cdot 10^6 \text{ K}^4 \frac{1}{(293 \text{ K})^3} \\ dT_{\text{Rezipient}} &= 90 \text{ mK.} \end{aligned} \quad (3.53)$$

Die Rezipiententemperaturschwankungen, verursacht durch Raumtemperaturschwankungen, übersteigen diese abgeschätzte Grenze um ein Vielfaches [100]. Es ist deshalb unabdingbar das Kalorimeter mit einem Wärmeschild zu umgeben, welches diese Temperaturschwankungen kompensiert. Diesen Zweck erfüllt ebenfalls der Sekundärelektronenschirm, denn er ist über drei Peltierelemente an einem temperaturstabilisierten Kupferflansch befestigt. So kann der Schirm bis auf eine Temperatur von -10°C heruntergekühlt werden, was nach obiger Formel eine Schwankung von 125 mK zulässt. Die Stabilisierung des Kupferflansches gelingt durch aktive Kühlung mittels Flüssigkeitsbad einer Temperaturstabilität von ± 10 mK. In Abbildung 3.19 ist über mehrere Stunden die Langzeitstabilität der Schildtemperatur dargestellt. Die Peltierelemente werden im Regime der Spannungsreglung betrieben, so dass zwischen beiden Seiten des Peltierelements stets die gleiche

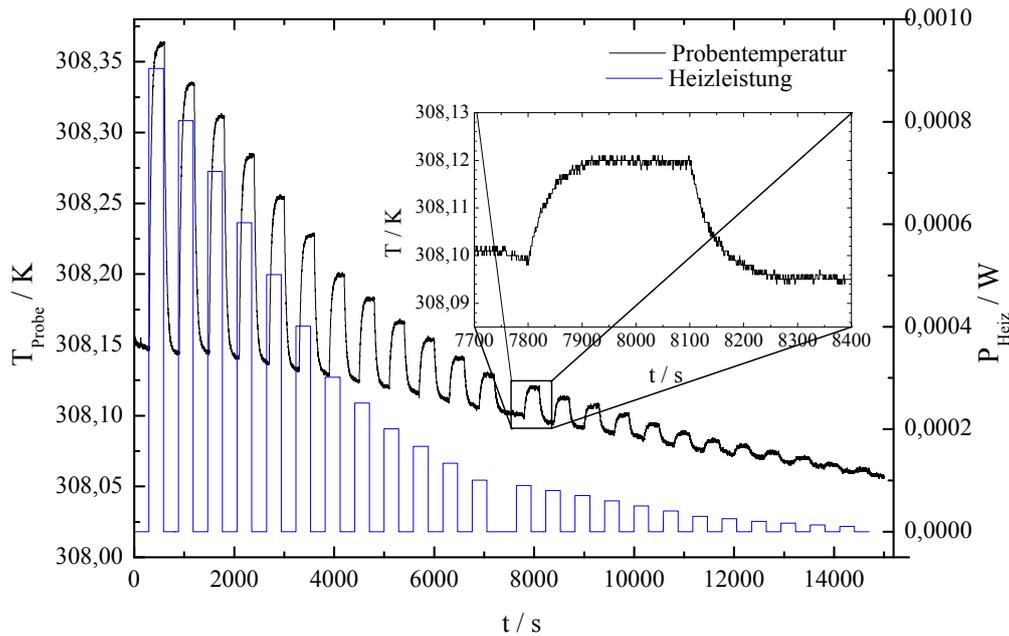


Abbildung 3.20: Temperatur-Zeit-Kurve und elektrische Heizleistungs-Zeit-Kurve während der Probenkalibrierung

Temperaturdifferenz aufrecht erhalten wird, unabhängig von der zu transportierenden Wärmeleistung.

3.4.3 Probenkalibrierung

Um die Temperaturerhöhung des Targets beim Ionenbeschuss in eine absolute deponierte Energie umrechnen zu können, wird die Probe kalibriert. Die Kalibrierung beruht dabei auf der Annahme, dass die Temperaturerhöhung durch Leistungseintrag mit dem Ionenstrahl äquivalent zur Temperaturerhöhung durch Leistungseintrag mit dem resistiven Heizer ist. Nach der Darstellung typischer Ergebnisse einer Kalibrierung, im hiesigen Fall der Siliziumprobe, soll im Anschluss in Kapitel 3.4.4 der Gültigkeitsbereich der Methode mittels numerischer Finite Elemente Methode (FEM) Simulation abgeschätzt werden. In Abbildung 3.20 ist der zeitliche Verlauf der Proben-Temperatur und der Verlauf der Heizleistung exemplarisch für die Kalibrierung einer Siliziumprobe dargestellt. Der zeitliche Verlauf der Probe gibt den in Gleichung (3.39) auf Seite 79 beschriebenen mathematischen Zusammenhang wieder. Die Kalibrierungsmessung ist von einer minimalen Temperaturdrift überlagert, die für die Einzelmessung vernachlässigbar ist. Zudem wurde bei der Bestimmung der Temperaturdifferenz der Mittelwert aus ansteigender und fallender Flanke errechnet. Der Fehler ist durch den Digitalisierungsfehler bestimmt. Für die Temperaturdifferenz ergibt sich ein Fehler von $\Delta T = 2 \text{ mK}$.

In Abbildung 3.21 ist die gemessene Temperaturdifferenz über der elektrischen Heizleistung dar-

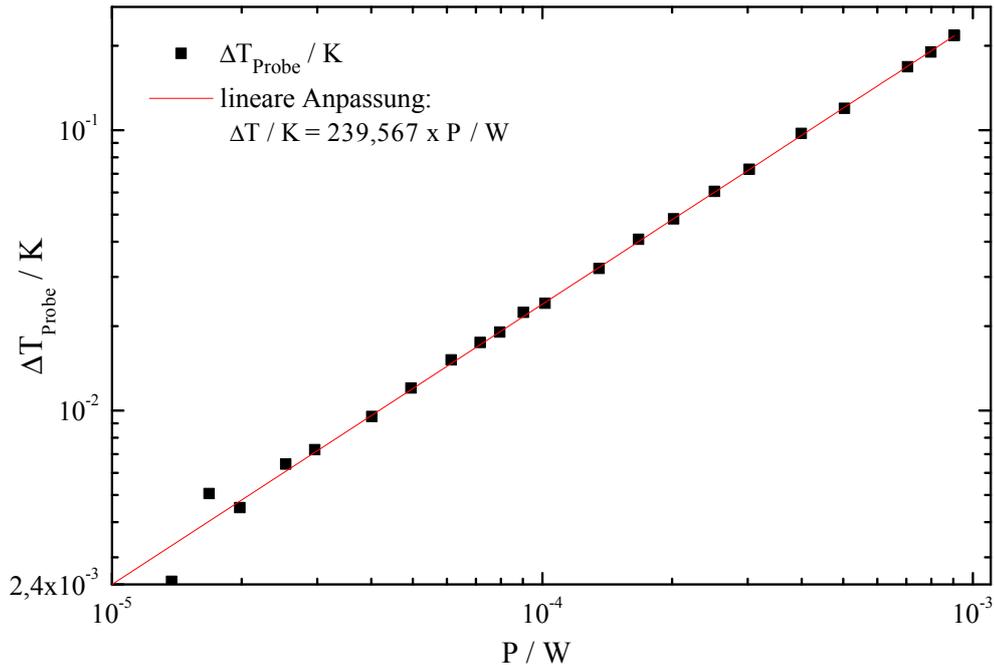


Abbildung 3.21: Ermittelter linearer Zusammenhang aus Temperaturerhöhung und eingetragener elektrischer Heizleistung

gestellt. Deutlich zu erkennen ist der lineare Zusammenhang beider Größen über einen Bereich von mehreren Größenordnungen in der elektrischen Heizleistung. Der ermittelte Fehler für den Anstieg des linearen Zusammenhangs beträgt lediglich $1 \frac{\text{mK}}{\text{mW}}$. Die Umkehrfunktion dient als Kalibrierfunktion und wird bei der Auswertung der Ionenheizexperimente zur Umrechnung der Temperaturerhöhung in die eingetragene Leistung benutzt.

3.4.4 FEM-Simulation zum Wärmetransport an der Probe

Dieser Abschnitt befasst sich mit der Festsetzung der Grenzen der experimentellen Parameter für den Leistungseintrag in die Probe. Anhand einer numerischen Rechnung soll gezeigt werden, ab welchem Wärmefluss in die Probe die Äquivalenz zwischen Ohmschem Heizen und Ionenheizen nicht mehr gewährleistet ist. Ein wesentlicher Unterschied zwischen dem eigentlichen Experiment und der Kalibrierung ist der Ort des Leistungseintrags. Während im Falle des Ionenheizens die Energie nahezu homogen in der Oberfläche der Probe deponiert wird, findet der Leistungseintrag des Referenzheizers lokalisiert im Heizer selbst statt. Die den Sachverhalt beschreibende Wärmetransportgleichung lautet:

$$-\nabla \cdot (k \nabla T(\vec{r})) = Q(\vec{r}). \quad (3.54)$$

k bezeichnet die als isotrop und temperaturunabhängig angenommene Wärmeleitfähigkeit, $T(\vec{r})$ ist die Temperatur am Ort \vec{r} und Q die eingetragene oder abgeführte Wärmemenge am Ort \vec{r} . Sie setzt

sich aus Anteilen der Konvektion, der Strahlung und externer Quellen zusammen. Die Geometrie ist dem Probenhalter entsprechend nachgebildet (vgl. Kapitel 3.4.2, Seite 81, Abbildung 3.16 und Abbildung 3.22(a) in diesem Kapitel). Die Randbedingungen für die einzelnen Oberflächen werden entsprechend der Gleichung gewählt:

$$\vec{n} \bullet (k \nabla T(\vec{r})) = q_{\text{ext}} + h(T_0 - T(\vec{r})) + \sigma \varepsilon (T_{\text{Rezipient}}^4 - T(\vec{r})^4). \quad (3.55)$$

Der externe Wärmefluss wird mit q_{ext} angegeben, k ist der Wärmetransportkoeffizient und T_0 die Temperatur des Wärmebads, σ , ε und $T_{\text{Rezipient}}$ bezeichnen die Konstanten der Boltzmannstrahlung (siehe Kapitel 3.4.2 Seite 84). Die Transportgleichung (3.54) ist mathematisch der Gruppe der elliptischen partiellen Differenzialgleichungen zuzuordnen. Eine analytische Lösung ist nur bedingt möglich, deshalb wird die numerische Methode der Finiten Elemente (FEM) benutzt. Das Programmpaket *FEMLab* der Firma *Comsol* ist dafür ein geeignetes Hilfsmittel. Es ermöglicht über ein CAD-Interface die Definition der Geometrie und die anschließende Definition der Randbedingungen. In Abbildung 3.22(a) ist die über vier dünne Drähte an die Hitzesenke montierte Probe dargestellt. Die Dimensionierung geht mit dem realistischen Aufbau einher (vgl. Kapitel 3.4.2 auf Seite 77).

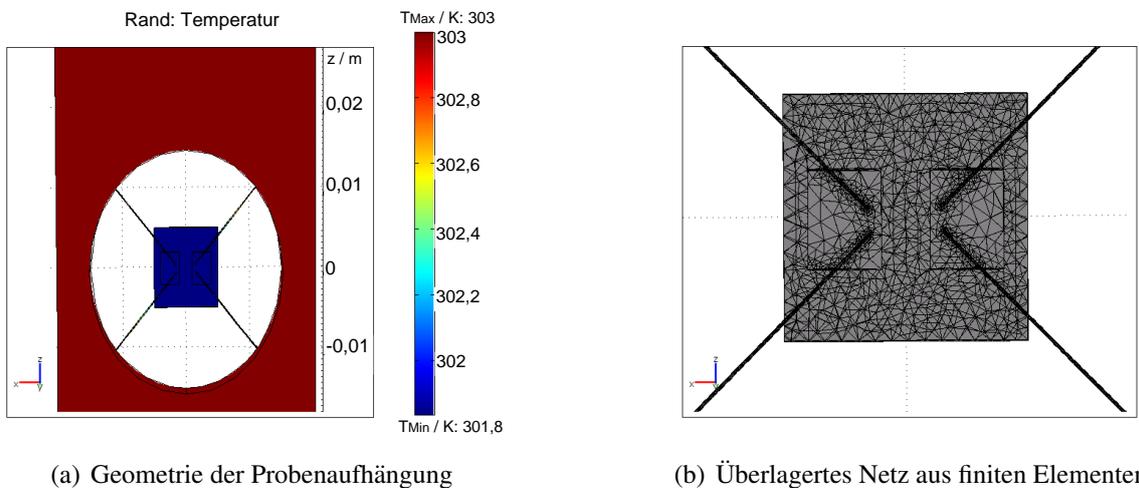


Abbildung 3.22: Darstellung der konkreten Geometrie und des überlagerten Netzes aus Finiten Elementen zur Lösung des Wärmetransportproblems an der Probe mittels *FEMLab*

Abbildung 3.22(b) zeigt etwas vergrößert die mit einem Netz aus kleinen Elementen belegte Probe. In den Abbildungen 3.23(a) bis 3.23(g) sind die Temperaturverteilungen der Probe dargestellt. Die linke Spalte zeigt die Verteilungen für den Wärmeeintrag im Ohmschen Heizer, die rechte Spalte für das Ionenheizen. In verschiedenen Zeilen sind unterschiedliche Heizleistungen (0 W, 500 μ W, 1 mW, 5 mW) aufgetragen.

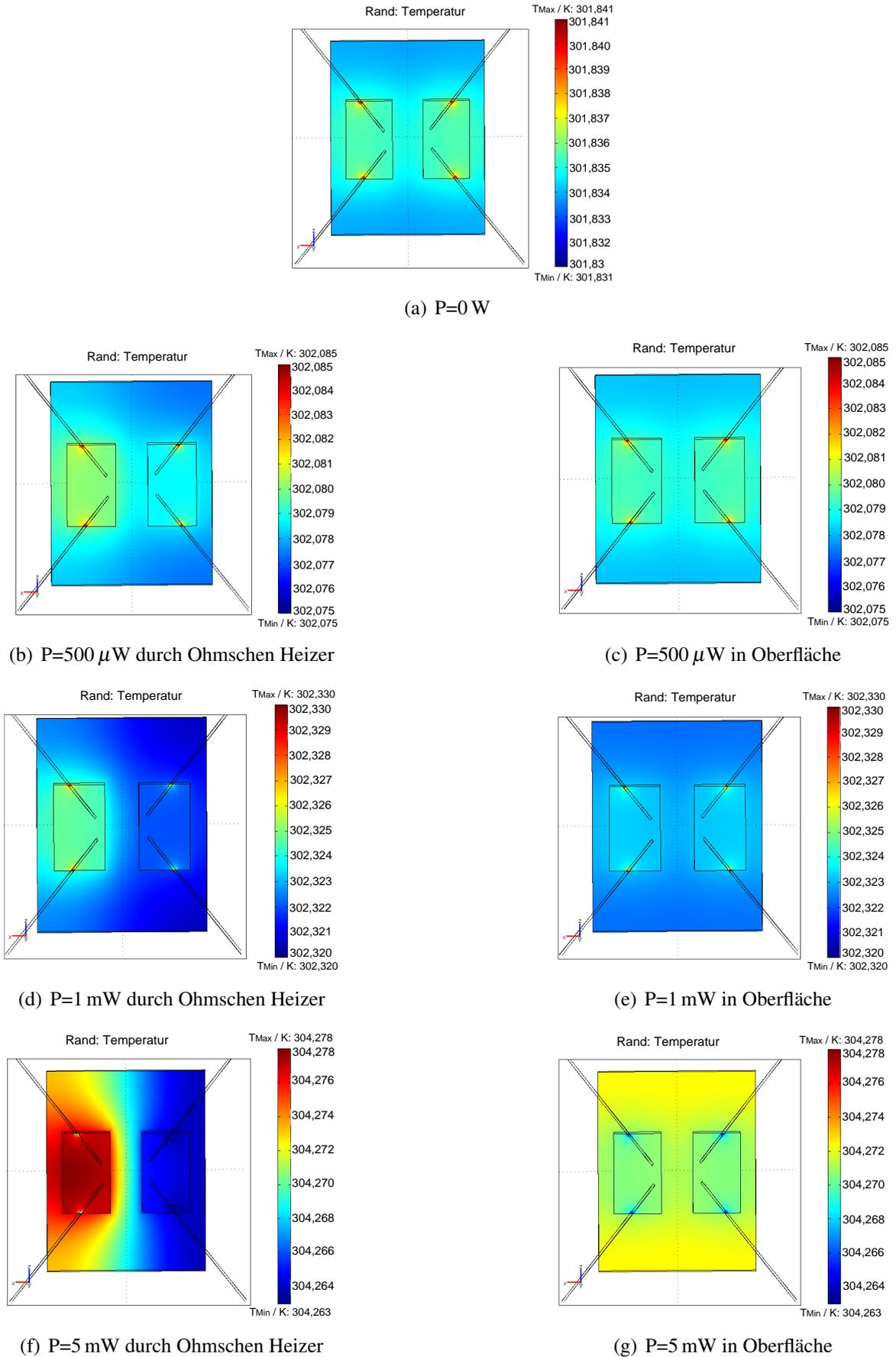


Abbildung 3.23: Vergleich des Probestemperaturverlaufs für verschiedene Heizleistungen und verschiedene Orte des Wärmeeintrags

Zunächst ist zu bemerken, dass die mittlere Proben­temperatur linear mit der eingetragenen Leistung steigt. Dies zeigt Abbildung 3.24. Der Anstieg der modellierten Werte entspricht hierbei den experimentell gefundenen Werten für die Kalibrierung. Man erkennt für geringe Leistungseinträge bis etwa 1 mW einen sehr kleinen Gradient (kleiner 1 mK) in der Proben­temperatur. Weiterhin ist es für diese Leistungen nicht entscheidend, an welchem Ort diese Wärmemenge eingetragen wird. Für Leistungen größer 1 mW beginnt die Temperatur des Heizers von der des Sensors stärker abzuweichen. Man erkennt recht deutliche Unterschiede der mittleren Proben­temperatur in Abhängigkeit der Orte des Leistungseintrags. Im Experiment wird durch Auswertung des temperaturabhängigen elektrischen Widerstands des Sensors auf die Proben­temperatur geschlossen. Da diese ab einer Leistung von 1 mW mehr als 1 mK von der mittleren Proben­temperatur abweicht und auch verschiedene Temperaturen für die Ortsabhängigkeit am Sensor ermittelt werden, ist die Äquivalenz der elektrischen Heizung und der Ionenheizung nach Aussage der Simulation nicht mehr gewährleistet. Die Kalibrierung ist dann nicht mehr sinnvoll. Damit wird der Bereich für den maximalen Wärmefluss über die Probe auf 1 mW begrenzt. Die ermittelte Grenze für den Wärmeeintrag ist dadurch begründet, dass jede Verbindung von Materialien mit einem Wärmeübergangswiderstand verbunden ist. Auch der Wärmewiderstand der Probe selbst muss mit berücksichtigt werden. Für geringe Leistungen stellt dieser summierte Wärmewiderstand kein Problem dar, da in diesem Fall der Temperaturgradient unterhalb der Messgenauigkeit liegt.

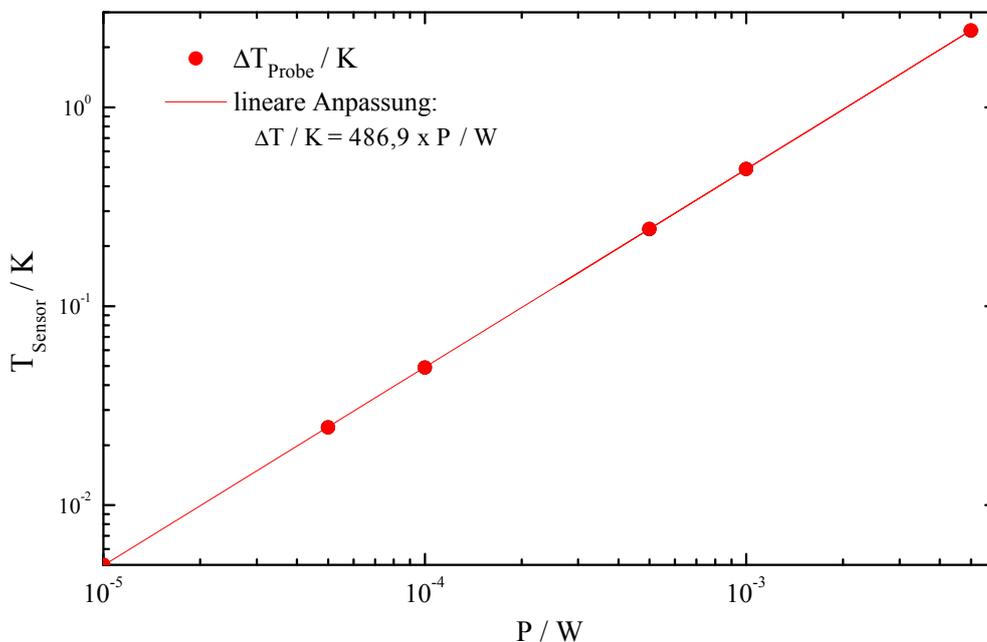


Abbildung 3.24: Mittels der Finiten Elemente Methode berechnete mittlere Proben­temperatur des kalorimetrischen Probenhalters in Abhängigkeit von der eingetragenen Heizleistung

3.4.5 Probenpräparation

Die zuvor beschriebene Messung der Änderung der Differenz zwischen Probentemperatur und Wärmebad beim elektrischen Referenzheizen oder beim Beschuss mit Ionen erforderte die Ausstattung der Probe mit einem Temperaturfühler sowie einem resistiven Heizer.

Als Temperaturfühler kamen Platinwiderstände (PT1000) mit einem Ohmschen Widerstand von 1000 Ohm bei 0 °C zum Einsatz.

Als resistive Probenheizer bewährten sich Dehnmessstreifen der Firma VISHAY INTERTECHNOLOGY, INC., im Speziellen vom Typ FSM-A6176S-100-S6EC. Diese Dehnmessstreifen eignen sich besonders wegen ihres temperaturunabhängigen Ohmschen Widerstandes und der daraus folgenden temperaturunabhängigen Leistungsaufnahme.

Sowohl Temperaturfühler als auch Heizer mussten geeignet auf der Rückseite des Probenmaterials befestigt werden. Dabei war auf einen möglichst guten Wärmekontakt zwischen Probenrückseite und Heizer bzw. Temperaturfühler zu achten. Dies konnte durch eine Klebverbindung mit dem Klebstoff QA-600 ADHESIVE KIT erreicht werden. Dieser Kleber eignet sich besonders wegen seiner großen Temperaturbeständigkeit und der geringen Viskosität, welche zu einer geringen Dicke der Klebstoffschicht beiträgt. Dies verringerte zum Einen den Wärmeübergangswiderstand zwischen Probenrückseite und Heiz- bzw. Temperaturmeselement und zum Zweiten verbesserte sich die Ultrahochvakuumtauglichkeit. Die Klebprozedur mit dem QA-600 bedingte zusätzlich, dass die Klebeverbindung bei etwa 180 °C ausgeheizt wurde. Diese Temperatur liegt weit über der Experimentiertemperatur, wodurch eine Verschlechterung des Ultrahochvakuums aufgrund des Klebers nicht beobachtet werden konnte. Im Anschluss an die Bestückung der Probe mit Heizer, Temperaturfühler und Zuleitungen wurde die Probe auf den Kalorimetrieprobenhalter aufgelegt. Die vier Zuleitungen der Probe wurden durch die Bohrungen geschoben und die Probe mit der Abdeckplatte fixiert. Um eine möglichst reine Probenoberfläche in das Vakuum zu transferieren, wurde die Probenoberfläche im Falle von Silizium kurz vor dem Transfer chemisch von der Oxidschicht gereinigt:



Nach dem Transfer in das Ultrahochvakuum der Targetkammer ($p \approx 2 \times 10^{-10}$ mbar) wurde die Probenoberfläche unter Benutzung einer Argon - Gasentladungsenquelle durch Zerstäubung zusätzlich gesäubert. Die Zerstäubungsparameter sind in Tabelle 3.3 dargestellt.

Ionenenergie	3 keV
Ionenstrom	3 μA
Partialdruck Ar	$1 \cdot 10^{-4}$ mbar

Tabelle 3.3: Standardparameter der Ionenkanone zur Säuberung der Probenoberfläche durch Zerstäubung

Weiterhin konnte während des Experiments von einer dynamischen Säuberung der Probenoberfläche durch den Experimentierstrahl ausgegangen werden. Bei einer Stromstärke von $1\mu\text{A}$ und einer kinetischen Ionenenergie von 100 eV bis 1000 eV befinden sich die Parameter nur leicht unterhalb des Maximums für die Zerstäubungsausbeute.

3.5 Ermittlung der emittierten potenziellen Energie – Elektronenspektroskopie

Motivation der Elektronenspektroskopie ist es, die experimentellen Daten des Energieeintrags von langsamen hochgeladenen Ionen mit einer komplementären Messmethode zu festigen. Wie in den Kapiteln 2.1.1 und 2.1.2 beschrieben, stehen neben dem Energieeintrag weitere Relaxationskanäle hochgeladener Ionen mit der Emission von Sekundärteilchen (Photonen, Elektronen, Ionen, Atome) im Zusammenhang. Vom energetischen Aspekt am bedeutendsten für Projektile geringer Kernladungszahlen ist dabei die Emission von Sekundärelektronen (siehe Kapitel 2.1.1.1 bis Kapitel 2.1.1.3).

Experimentelle Anordnung

Die Experimente zur Bestimmung der durch Sekundärelektronen emittierten potenziellen Energie wurden im Ionenstrahllabor des Hahn-Meitner-Instituts (HMI) in Berlin durchgeführt. Das Ionenstrahllabor verfügt unter anderem über ein ECR-Quellenlabor, welches in Abbildung 3.25 dargestellt ist. Die ECR-Quelle ist über eine Ionenstrahlführung [125], [126, 17], [81] an eine UHV-Experimentierkammer gekoppelt [127], [82] welche ebenfalls eine Ionenbremsoptik zur Erzeugung von Ionen variabler kinetischer Energie enthält. Detailliertere Ausführungen finden sich in den angegebenen Referenzen. Eine Darstellung der benutzten Experimentierkammer findet sich in Abbildung 3.26. In der Experimentierkammer befindet sich der wichtigste Teil der Messapparatur zur Bestimmung der über Sekundärelektronen emittierten potenziellen Energie eines einfallenden Ions, das Elektronenspektrometer. Der Aufbau und die Funktionsweise des Elektronenspektrometers wurde in früheren Arbeiten [126, 17], [82], [128], [127] mehrfach beschrieben. Deshalb soll dies nur grob skizziert werden. Von großem Interesse bei dieser Apparatur ist neben der Bestimmung der Augerelektronenausbeute bei der Wechselwirkung hochgeladener Ionen mit Festkörperoberflächen auch die totale Elektronenausbeute γ . Der wohl größte Anteil der totalen Elektronenausbeute (etwa 90 %) wird im Niederenergiebereich (einige eV) emittiert.

Der Vorteil dieser Apparatur liegt darin, dass das Spektrometer bis zu kleinsten Energien zuverlässig arbeitet. Dies ist notwendig, will man sowohl die totale Elektronenausbeute ermitteln als auch energieaufgelöste Elektronenspektren aufnehmen. Das Spektrometer besteht aus einem 45° -Parallelplattenanalysator, Eingangs- und Ausgangsblenden sowie einem Channeltron zur Erfassung der Elektronenergebnisse im jeweiligen Energiefenster. Die Energieauflösung des Spektrometers wird zusätzlich verbessert, indem die Elektronen vor dem Eintritt in die Analysatorplatten abgebremst werden können. Die untere Platte liegt zu diesem Zweck auf dem Potenzial V . Die Energie der Elektronen beträgt deshalb $E_{\text{pass}} = E + V$ mit $V \leq 0$. Durch Anlegen einer Spannung U an die obere Platte werden die den Analysator passierenden und zu analysierenden Elektronen

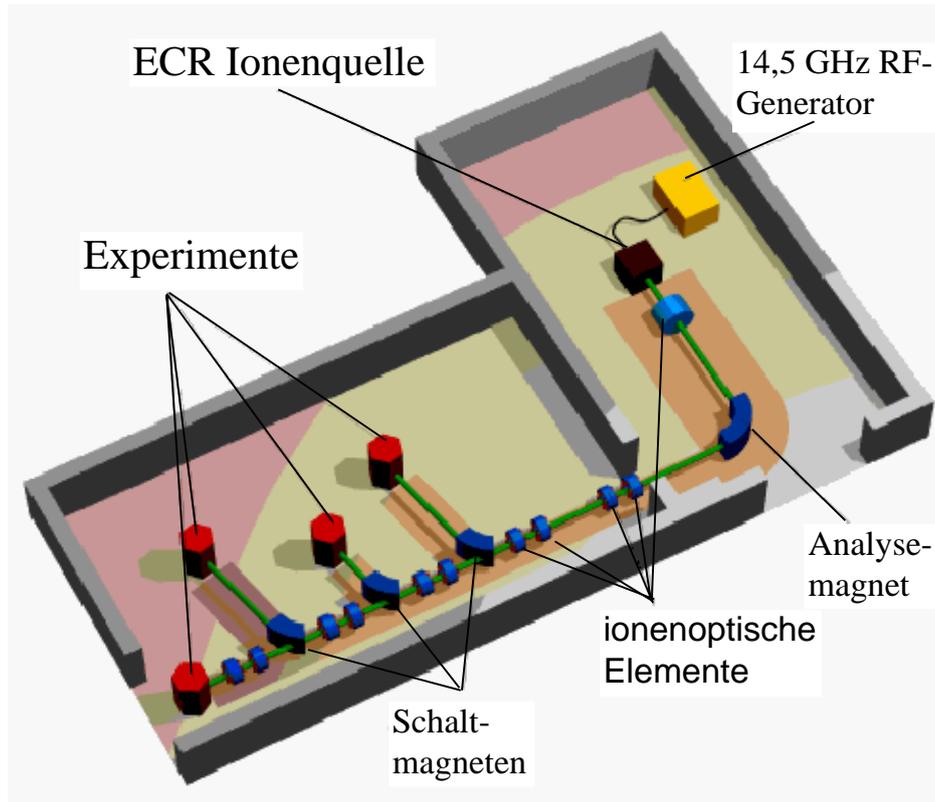


Abbildung 3.25: Das ECR-Labor am HMI Berlin [82]

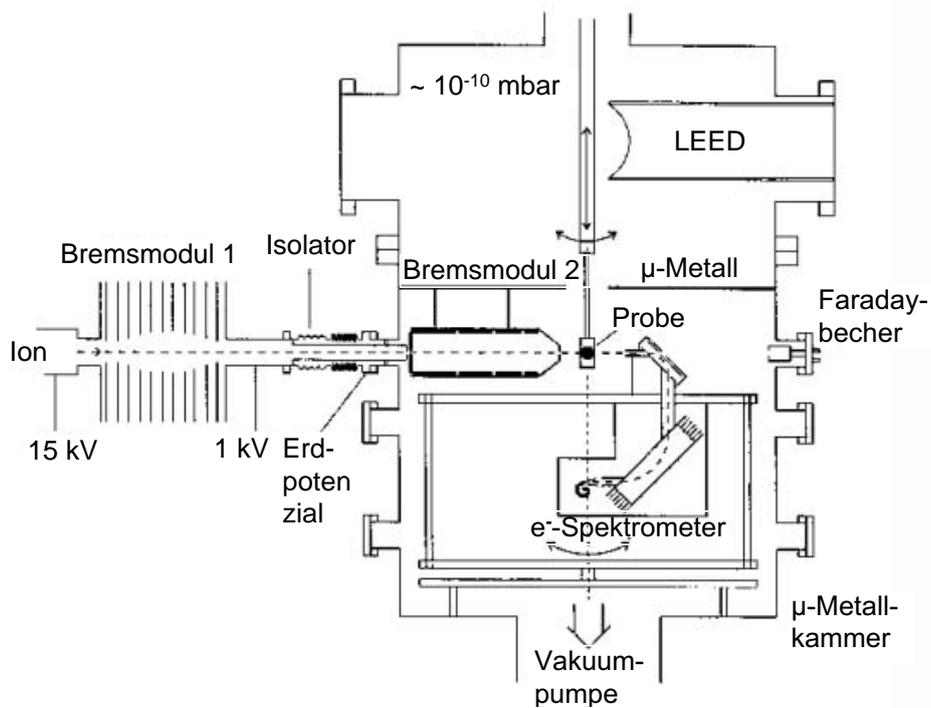


Abbildung 3.26: Die experimentelle Anordnung zur Bestimmung der emittierten Elektronen [82]

auf eine Parabelbahn gelenkt. Nur die Elektronen mit der Energie:

$$E_{\text{pass}} = -\frac{U - V}{k}, \quad k : \text{Spektrometerkonstante} \quad (3.57)$$

passieren den Analysator auf der Sollbahn. Die Spektrometerkonstante k beschreibt das Verhältnis aus dem Abstand der Ablenkplatten d zu dem Abstand der Blenden L :

$$k = \frac{2d}{L}. \quad (3.58)$$

Bei der Aufnahme eines Energiespektrums werden U und V so variiert, dass die Elektronen unabhängig von ihrer Eintrittsenergie in das Spektrometer den Analysator mit der festen Energie E_{pass} durchfliegen, um danach durch anschließende Nachbeschleunigung auf dem Channeltrondetektor nachgewiesen zu werden. Um aus der Messung auf absolute Werte schließen zu können, müssen die Spektren nach vorheriger Eichung verschiedener Parameter normiert werden. Solche Parameter sind der beobachtbare Raumwinkel, die beobachtbare Probenfläche und die Spektrometereffizienz. Die Eichung dieser Parameter beruht auf Erfahrung und einer Vielzahl von Experimenten innerhalb der Arbeitsgruppe am HMI. Mehr zur Theorie des Spektrometers findet man in [126]. Die Absolutnormierung wird nach [82] durch Gleichung (3.59) erreicht:

$$\frac{d^2 N}{dE d\Omega} = \frac{Z}{\Delta E \cdot \Delta\Omega \cdot \eta \cdot \frac{Q}{q} \cdot c_Q \cdot c_S \cdot f_{\text{geo}}}. \quad (3.59)$$

Die Größe auf der linken Seite gibt die Wahrscheinlichkeit pro einfallendes Ion an, mit der ein Elektron mit einer Energie E in den Raumwinkel Ω emittiert wird. Auf der rechten Seite der Gleichung steht c_S für den Faraday-Becher-Faktor, f_{geo} für den Geometriefaktor, c_Q für den Umrechnungsfaktor von Ladungen in Teilchenzahl ($c_Q = 6,24 \cdot 10^{12} \mu\text{C}^{-1}$), Q für die im Faraday-Becher pro Messpunkt aufgesammelte Ladung und q für die Ladung des Projektils. Der Faraday-Becher-Faktor c_S gibt das Verhältnis zwischen Ionenstrom und dem gemessenen Strom an der Probe an. Er wird experimentell durch den Vergleich des Ionenstroms im Faraday-Becher und dem Ionenstrom auf der Probe bestimmt:

$$c_S = \frac{I_{\text{Cup}} + 0.3 I_{\text{Blende}}}{I_{\text{Target}}}. \quad (3.60)$$

I_{Blende} gibt den Ionenstrom auf der Blende des Faraday-Bechers an, der klein gegen I_{Cup} sein soll. Dabei wird von einer mittleren Sekundärelektronenausbeute $\gamma = 2$ auf der Becherblende ausgegangen. Die Normierung der aufgenommenen Spektren geschah weitestgehend automatisch mit Hilfe des Computerprogrammes BEN. Aus den normierten doppeldifferenziellen Elektronenspektren kann durch Integration sowohl die totale Elektronenausbeute Y_{e^-} als auch die Menge der durch

die Elektronenemission emittierten Energie $E_{e^-}^{\text{em.}}$ berechnet werden:

$$Y_{e^-} = \int \int d\Omega dE \frac{dN_e}{d\Omega dE} \quad (3.61)$$

$$E_{e^-}^{\text{em.}} = \int \int d\Omega dE E \cdot \frac{dN_{e^-}}{d\Omega dE}. \quad (3.62)$$

Da ein senkrechter Ionenbeschuss der Proben analog zur Kalorimetrie aus geometrischen Gründen nicht möglich ist, wurden alle spektroskopischen Experimente unter einem Einfallswinkel von 60° zur Oberfläche durchgeführt. Die Abweichungen der Ausbeuten verglichen mit dem senkrechten Einfall sind gering und können akzeptiert werden. Als Projektile wurden Ar-Ionen der Ladungszustände zwei bis neun verwendet. Dabei wurde die Abhängigkeit der Ausbeuten von der Projektilenergie im Bereich von 100 eV bis 3000 eV exemplarisch für den Ladungszustand Ar^{9+} untersucht. Alle anderen Ladungszustände des Projektils wurden bei einer konstanten Einfallenergie von 720 eV gemessen (siehe Tabelle 3.4). Die Integration der Winkelabhängigkeit der detektierten Elektronenausbeute erfordert eine analytische Anpassung der Messdaten bezüglich verschiedener Detektionswinkel. Folgende Betrachtung liegt der analytischen Näherung zu Grunde.

Die doppeldifferenzielle Elektronenausbeute lässt sich in zwei Anteile zerlegen:

$$\frac{d^2N}{d\Omega dE} = Y_1 + Y_2 e^{-\lambda z}. \quad (3.63)$$

Erster Teil beschreibt die isotrope Emission von Elektronen oberhalb der Festkörperoberfläche. Der zweite Anteil berücksichtigt zusätzlich eine exponentielle Schwächung der Elektronenemission in Abhängigkeit der im Festkörper zurückgelegten Wegstrecke z . Die Wegstrecke z lässt sich durch die Emissionstiefe d und dem Beobachtungswinkel θ ersetzen. Es folgt:

$$\frac{d^2N}{d\Omega dE} = Y_1 + Y_2 e^{-\lambda d \cdot \sin \theta}. \quad (3.64)$$

Für kleine Eindringtiefen d folgt:

$$\frac{d^2N}{d\Omega dE} \approx Y_1 + Y_2 (1 - \lambda \cdot \sin \theta). \quad (3.65)$$

Dies lässt sich zusammenfassen zu:

$$\frac{d^2N}{d\Omega dE}(\theta) \approx a + b \cdot \sin \theta. \quad (3.66)$$

Der in Gleichung (3.66) beschriebene mathematische Zusammenhang wird für die analytische Anpassung der doppeldifferenziellen Elektronenspektren und anschließender Integration über Raumwinkel und Energie benutzt, wobei a und b die Parameter der analytischen Anpassung darstellen. Nach der Raumwinkelintegration ergibt sich somit die energiedispersive einfachdifferenzielle

Elektronenausbeute:

$$\begin{aligned}\frac{dN}{dE} &= \int_{\Omega} (a + b \sin \theta) \sin \theta d\theta d\phi \\ &= 2\pi a + \frac{b}{2}\pi^2.\end{aligned}\quad (3.67)$$

In den Experimenten wurden jeweils folgende drei Beobachtungswinkel benutzt: ($\theta=20^\circ$, 40° , 60°). In der folgenden Tabelle findet sich eine Zusammenstellung der durchgeführten Experimente in Abhängigkeit des Probenmaterials, des Ladungszustandes bzw. der kinetischen Energie.

Element	Ladungszustand	kinetische Energie	Probenmaterial
Ar	2-9	720 eV	Cu
Ar	2-9	720 eV	n - Si
Ar	2-9	720 eV	p - Si
Ar	2-9	720 eV	Si + 40 nm SiO ₂
Ar	9	(0,5 - 5) keV	Cu
Ar	9	(0,5 - 5) keV	Si + 40 nm SiO ₂
Ar	9	720 eV	n - Si + 20 nm SiO ₂
Ar	9	720 eV	p - Si + 20 nm SiO ₂

Tabelle 3.4: Übersicht der durchgeführten Experimente zur Bestimmung der Elektronenausbeute und der darüber emittierten Energie für verschiedene Probenmaterialien, unterschiedliche Ladungszustände und unterschiedliche kinetische Energie der Argonionen

4 Resultate und Diskussion

Überblick

In einem ersten Teil werden erstmalig absolute Werte für die emittierte potenzielle Energie für die Wechselwirkung von Argonionen ($1 \leq q \leq 11$, $100 \text{ eV} \leq E_{\text{kin}} \leq 1000 \text{ eV}$) mit verschiedenen Festkörperoberflächen durch Evaluierung von doppeldifferenziellen Elektronenspektren angegeben. Ein Vergleich der Ergebnisse der Elektronenspektroskopie und der Ergebnisse der Gegenfeldmessung am Kalorimeter wird zeigen, dass beide Methoden eine gute Übereinstimmung aufweisen, worin die Konformität beider Apparaturen bestätigt wird.

In einem zweiten Teil sollen absolute Werte für die Menge der deponierten potenziellen Energie unter gleichen Wechselwirkungsbedingungen präsentiert werden.

Das Interesse liegt bei beiden Untersuchungen auf der Unterscheidung verschiedener Materialklassen wie Metalle, Halbleiter und Isolatoren.

Zur besseren Veranschaulichung der Ergebnisse sowie zur Überprüfung, inwiefern die beiden Methoden alle Relaxationskanäle erfassen, werden die absoluten Werte mit theoretischen Angaben für die gesamte potenzielle Energie der Ionen verglichen. Damit wird erstmalig erfolgreich eine Energiebilanz für die Relaxation von hochgeladenen Ionen vor Festkörperoberflächen aufgestellt. Zum Abschluss werden die experimentellen Daten beider Messmethoden mit Daten der numerischen Simulation Ya-DCOM bezüglich der Energiebilanz verglichen.

4.1 Emittierte Energie durch Elektronen

4.1.1 Analyse der Rohdaten

In Abbildung 4.1 sind doppeldifferenzielle Elektronenausbeuten für verschiedene Beobachtungswinkel ($\Theta = 60^\circ, 40^\circ, 20^\circ$) dargestellt. Entsprechend Kapitel 3.5 auf Seite 96, Gleichung (3.66) wird

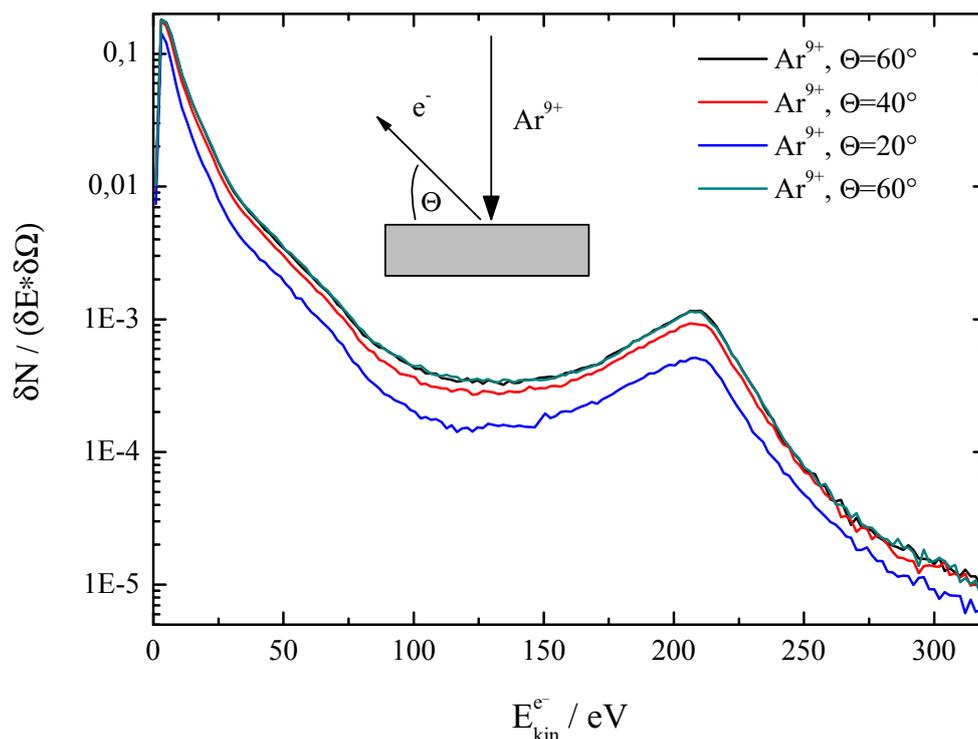
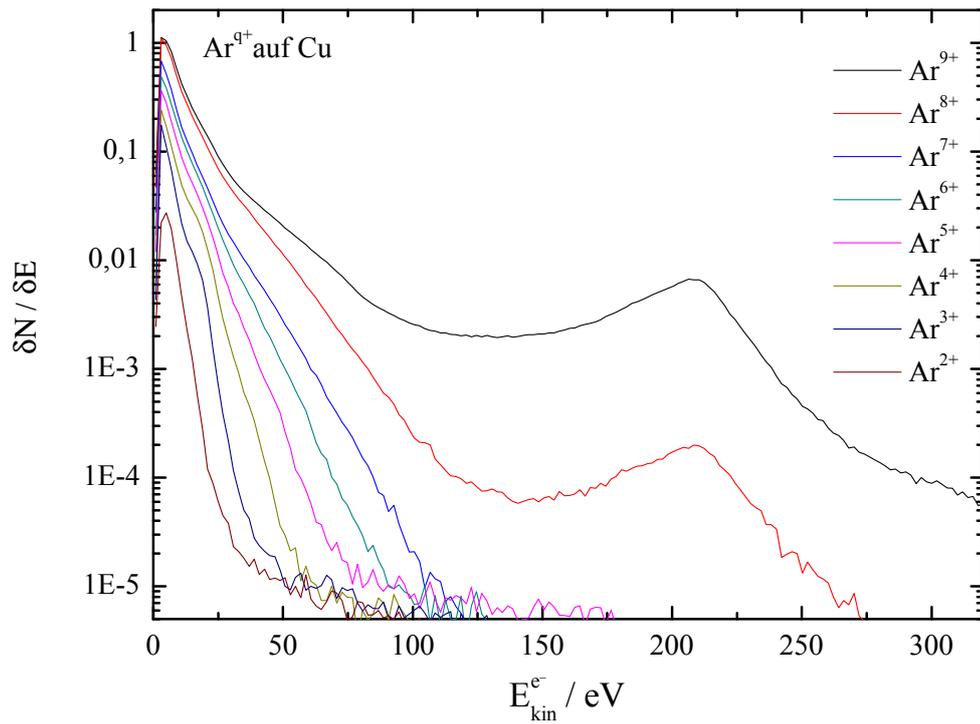


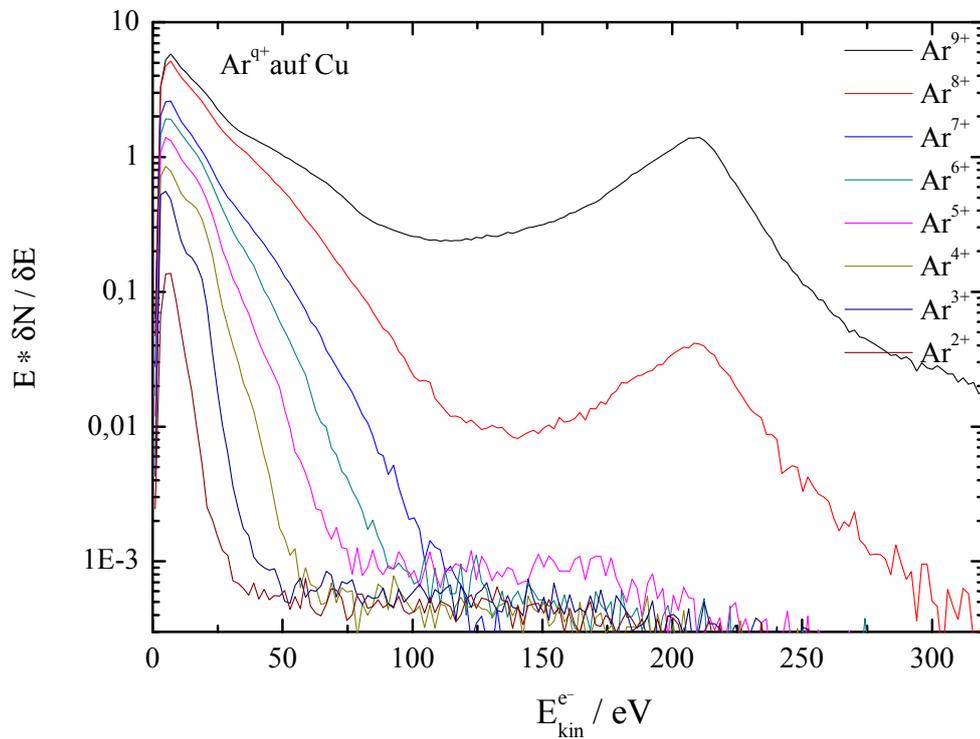
Abbildung 4.1: Typische Sekundärelektronenspektren für verschiedene Beobachtungswinkel ($\Theta = 60^\circ, 40^\circ, 20^\circ, 60^\circ$) für den Beschuss von Cu mit Ar^{9+}

die Winkelverteilung der emittierten Elektronen ermittelt und nach Gleichung (3.67) die Integration der Raumwinkelabhängigkeit durchgeführt. Die Resultate, d.h. die einfachdifferenziellen Elektronenausbeuten sowie die emittierte Energie über der Elektronenenergie, sind in den Abbildungen 4.2(a) und 4.2(b) für verschiedene Ladungszustände über der Elektronenenergie dargestellt.

In beiden Darstellungen ist für die Ladungszustände $q = 8$ und $q = 9$ eine ausgeprägte Erhöhung bei 200 eV zu erkennen. Diese Resonanz ist der LMM-Augerlinie des Projektils zuzuordnen. Ar^{9+} besitzt eine Vakanz in der L-Schale, die sich hauptsächlich über den LMM-Augerkanal abregt. Im Falle von Ar^{8+} existiert ebenfalls eine metastabile Elektronenkonfiguration [129], die eine Vakanz in der L-Schale aufweist. Da dieser Anteil verglichen mit der gefüllten L-Schalenkonfiguration bei Ar^{8+} sehr klein ist, ist auch die LMM-Resonanz im Fall von Ar^{8+} deutlich kleiner. Es ist in Abbildung 4.2(a) weiterhin gezeigt, dass der Anteil der niederenergetischen Sekundärelektronen bis zu einer Energie von etwa 50 eV den größten Beitrag zur Elektronenausbeute liefert. Das Dia-



(a) Sekundärelektronenausbeuten für Kupfer über der kinetischen Energie der Elektronen



(b) Durch Sekundärelektronen emittierte Energie von einer Kupferoberfläche über der kinetischen Energie der Elektronen

Abbildung 4.2: Energiedispersive Sekundärelektronenspektren und die daraus ermittelte, durch Sekundärelektronen von der Probe emittierte Energie für den Beschuss von Cu mit Ar^{q+}

gramm in Abbildung 4.2(b) stellt die mit der Energie multiplizierte Elektronenausbeute respektive die emittierte Energie dar. Hierbei wird deutlich, dass zumindest für Ladungszustände größer als $q = 8$ die niederenergetischen und hochenergetischen Anteile der Sekundärelektronen hinsichtlich der emittierten Energie etwa gleich groß sind. Weiterhin sind die Spektren dadurch ausgezeichnet, dass sie im Niederenergiebereich einen starken Abfall der Elektronenausbeute aufweisen. Dieser Abfall bei etwa 4 eV kennzeichnet die untere Energiegrenze des Spektrometers [126]. Um den Niederenergieanteil der Sekundärelektronen jedoch nicht unterzubewerten, wird die Ausbeute für eine Energie kleiner 5 eV vor der Energieintegration mit einem Polynom dritten Grades abgeschätzt.

4.1.2 Darstellung der Einzelergebnisse

Da man mit der spektroskopischen Messapparatur in der Lage ist sowohl Elektronenenergie als auch Elektronenausbeute absolut zu ermitteln, ist die Bestimmung des emittierten Anteils der potenziellen Energie eine wichtige komplementäre Messung zu den Experimenten zum Energieeintrag. Aus diesem Grund wurden Vertreter der drei Materialklassen (Metall, Halbleiter und Isolator) ebenfalls elektronenspektroskopisch vermessen. Als Vertreter für die Klasse der Metalle dient Kupfer.

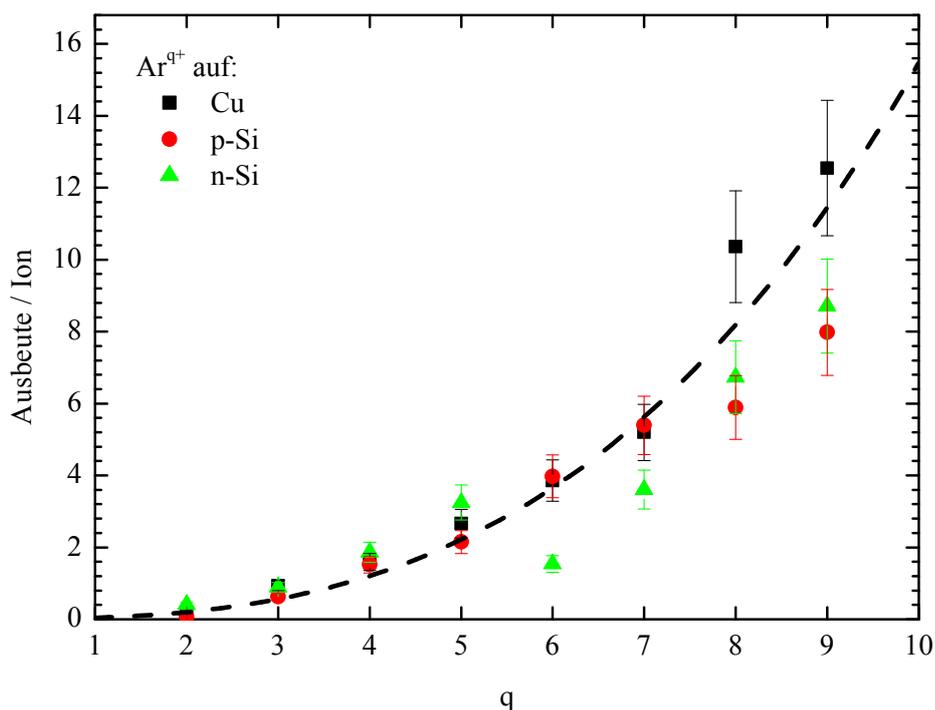
4.1.2.1 Elektronenspektroskopie an Kupfer

Die Integration der einfachdifferenziellen Elektronenausbeute bzw. des Produkts aus einfachdifferenzieller Elektronenausbeute und Elektronenenergie im Intervall der Energie der emittierten Elektronen liefert zum Einen (aus Abbildung 4.2(a)) die totale Elektronenausbeute und zum Anderen (aus Abbildung 4.2(b)) die totale Energie in Abhängigkeit des Ladungszustandes. Diese Zusammenhänge sind in den Abbildungen 4.3(a) und 4.3(b) (schwarze Quadrate) dargestellt. Der Zusammenhang beider Größen mit der inneren potenziellen Energie ist durch die gestrichelte Linie gezeigt. Diese Linie approximiert qualitativ die innere potenzielle Energie in Abhängigkeit vom Ladungszustand $E(q) \sim \frac{2q^3 + 3q^2 + q}{6}$. Die semiklassische Herleitung dieser Abhängigkeit ist im Anhang A.4 gezeigt.

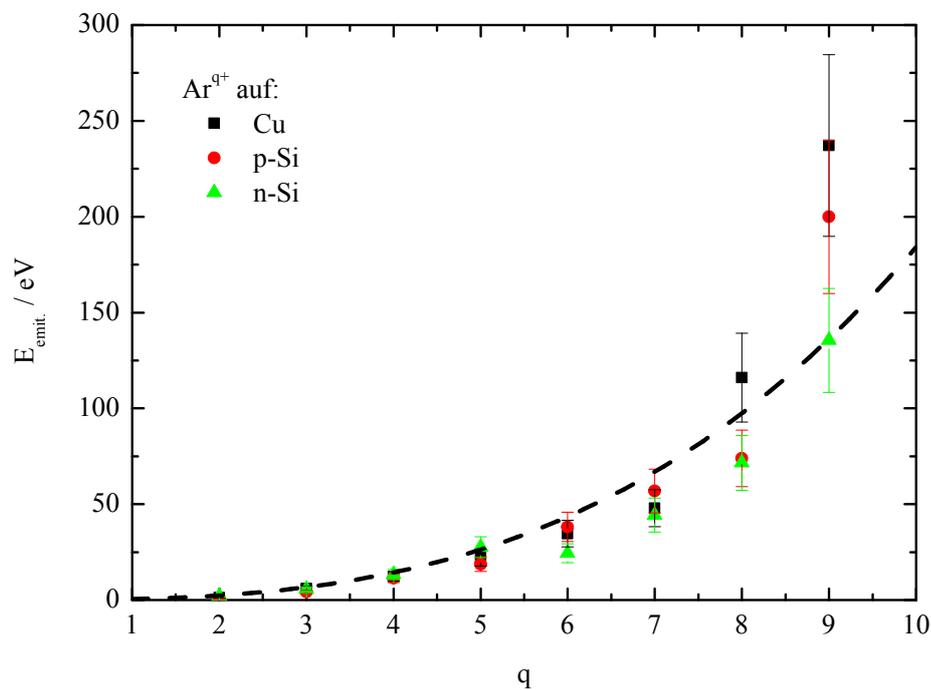
Für die quantitative Anpassung der eingezeichneten Funktionen an die experimentellen Daten wurde ein Anpassungsfaktor k definiert:

$$f(q) = k \cdot \frac{1}{2} m_e \alpha^2 c^2 \frac{1}{n^2} \cdot \frac{2q^3 + 3q^2 + q}{6}. \quad (4.1)$$

Ermittelt man diesen Faktor für die mit dem Cowan-Code [66] berechnete potenzielle Energie der Ladungszustände Ar^{1+} bis Ar^{8+} , so ergibt sich $k = 1,08$, wie ebenfalls im Anhang A.4 demonstriert. Im Fall der Elektronenausbeute dient dieser Faktor lediglich zur Anpassung der dargestellten Funktion an die experimentellen Daten. Im Falle der emittierten Energie gibt dieser Faktor den



(a) Sekundärelektronenausbeute über dem Ladungszustand der Projektionen für den Beschuss von Kupfer- bzw. Siliziumproben



(b) Absolute emittierte Energie über dem Ladungszustand des Projektions für den Beschuss von Kupfer- bzw. Siliziumproben

Abbildung 4.3: Sekundärelektronenausbeute (a) und totale emittierte Energie (b) verglichen für Kupfer- und Siliziumproben in Abhängigkeit vom Ladungszustand für den Beschuss mit Ar^{q+}

emittierten Teil der inneren potenziellen Energie wieder. Er beträgt für die eingezeichnete Funktion in Abbildung 4.3(b) $k = 0, 11$. Die Abweichung für die Ladungszustände $q \geq 8$ von der approximierten Funktion sind durch den Sprung in der Ionisationsenergie bei beginnender Ionisation einer neuen Schale (L-Schale) begründet. Die benutzte analytische Anpassung ist nur zweckmäßig innerhalb einer Schale mit gleicher Hauptquantenzahl (siehe ebenfalls Anhang A.4).

Weiterhin kann festgestellt werden, dass die Ergebnisse der totalen Elektronenausbeute mit diesbezüglichen Angaben in der Literatur gut übereinstimmen. McDonald et al. [130] fanden bei dem Beschuss von Kupferoberflächen für den hier verwendeten Bereich von Ladungszuständen gleich große Elektronenausbeuten. Weiterhin folgerten die Autoren, dass ein Großteil der emittierten Elektronen dem Niederenergiebereich bis 50 V zuzuordnen ist. Die Summe der über Sekundärelektronen emittierten Energie wurde nach meinem Kenntnisstand hier erstmalig evaluiert, so dass keine in der Literatur verzeichneten Angaben zum Vergleich der Ergebnisse zur Verfügung stehen.

4.1.2.2 Elektronenspektroskopie an Silizium

Ein ähnliches Ergebnis liefert die Elektronenspektroskopie an einer Siliziumprobe. In den Abbildungen 4.3(a) und 4.3(b) sind ebenfalls die totale Elektronenausbeute und auch die durch Sekundärelektronen emittierte Energie als Dreiecke dargestellt. Hierbei sind die Daten jeweils für p-dotierte ($N_p = 4,5 \cdot 10^{15} \frac{1}{\text{cm}^3}$, roter Kreis bzw. n-dotierte $N_n = 1,5 \cdot 10^{15} \frac{1}{\text{cm}^3}$, grünes Dreieck) Siliziumproben gezeigt. Es kann im Rahmen der Genauigkeit kein Unterschied für die Ergebnisse der verschiedenen dotierten Proben festgestellt werden. Auch der Vergleich mit den Daten der Kupferprobe zeigt keinen deutlichen Unterschied. Silizium verhält sich, wie auch andere Arbeiten zur Elektronenemission auf Halbleiter zeigen [131], bei Raumtemperatur wie ein Metall. Das Ion taucht neutralisiert in den Festkörper ein [18, 23]. Es stehen genügend Ladungsträger zur Verfügung und auch die Mobilität dieser ist hinreichend groß, um den Verlust an Elektronen durch das eindringende hochgeladene Ion zu kompensieren. Dies spiegeln auch die Experimente von Ducree et al. [132, 133] wider. Ferner zeigt weiterhin der Vergleich der beiden unterschiedlichen Dotierungen, dass nicht das Vorhandensein von Elektronen im Leitungsband zu den metallähnlichen Eigenschaften führt, sondern vielmehr die Möglichkeit vorhanden sein muss, Elektronen dem Valenzband nachzuliefern. Diese Aufgabe kann auch von der Löcherleitung übernommen werden.

4.1.2.3 Spektroskopie an Siliziumdioxid

Ein anderes Bild ergibt sich bei der Elektronenspektroskopie an Siliziumdioxid. Siliziumdioxid als Vertreter der Materialklasse der Isolatoren bringt die experimentelle Schwierigkeit der elektrostatischen Aufladung mit sich. Um unkontrollierbare Aufladungen zu verhindern, wurden die Proben speziell präpariert. Dazu wurde eine dünne Siliziumoxidschicht auf einem n-dotierten Si-

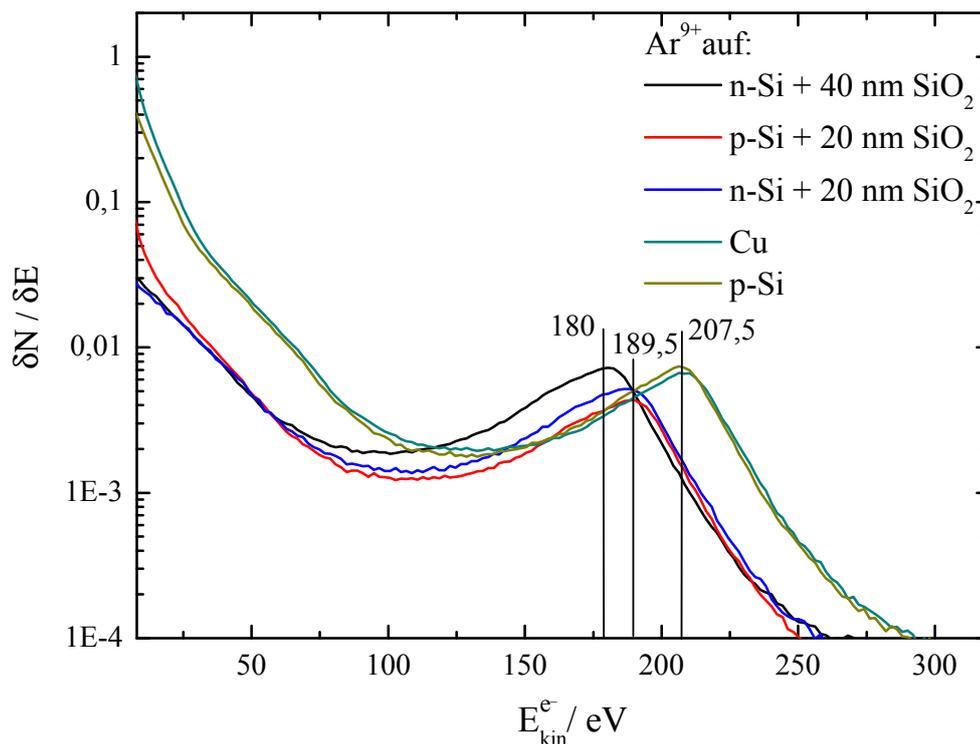


Abbildung 4.4: Vergleich der energiedispersiven Sekundärelektronenausbeute pro einfallendes Ar^{9+} -Ion auf SiO_2 verschiedener Oxiddicken und verschiedenen Basismaterials

litziumsubstrat mittels PECVD-Verfahren deponiert. Dieses Oxid besitzt eine höhere Störstellenanzahl und stellt deshalb einen weniger perfekten Isolator als thermisch gewachsenes Oxid dar. Aufgrund der geringen Dicke der Oxidschicht kommt es zu einer quasi statischen Aufladung der Probe von einigen 10 V. Dabei stellt sich ein Gleichgewicht zwischen der Aufladung der Oberfläche durch Ionenbeschuss und der Kompensation dieser Ladungen durch Fowler-Nordheim-Tunneln [134, 135, 136] ein. Es sei an dieser Stelle lediglich erwähnt, dass die verbleibende Potentialdifferenz mit der Oxidschichtdicke korreliert, wie in Abbildung 4.4 zu erkennen ist.

Hierbei erkennt man die Verschiebung der LMM-Augerelektronenlinie zu niedrigeren Energien mit zunehmender Oxiddicke verglichen mit der Argon LMM-Augerelektronenemission auf Kupfer und Silizium. Durch die positive Aufladung der Siliziumdioxidoberfläche beim Ionenbeschuss erfahren die Sekundärelektronen einen Energieverlust, der sich in der Verschiebung der Argon LMM-Augerresonanz widerspiegelt.

Doch nicht die gesamte Verschiebung kann mit der Potentialdifferenz und des Fowler-Nordheim-Tunnelprozesses erklärt werden. Es kann gezeigt werden, dass das Anwachsen der Potentialdifferenz zwar in linearem Zusammenhang mit der Oxiddicke steht, aber die Extrapolation zu einer Oxiddicke null die Verschiebung nicht annulliert. Eine mögliche Erklärung dafür ist, dass im Oxid nicht genügend bewegliche Ladungsträger vorhanden sind um das eingedrungene hochgeladene Ion abzuschirmen. Die deshalb im Vergleich zu Metallen und Halbleitern geringer ausgeprägte Ab-

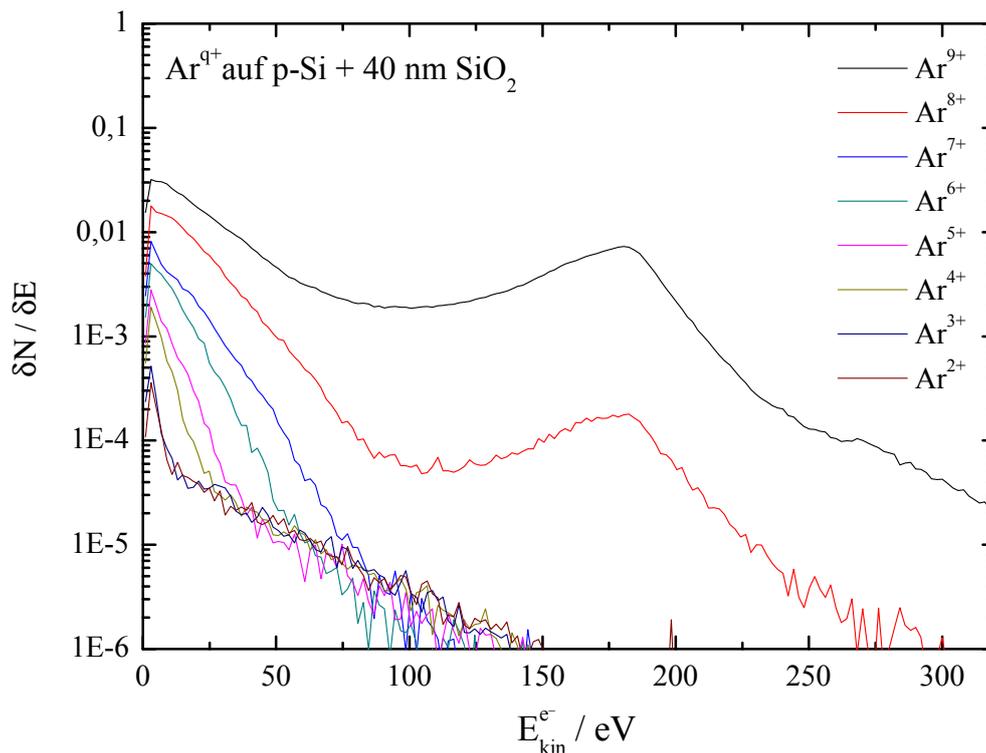
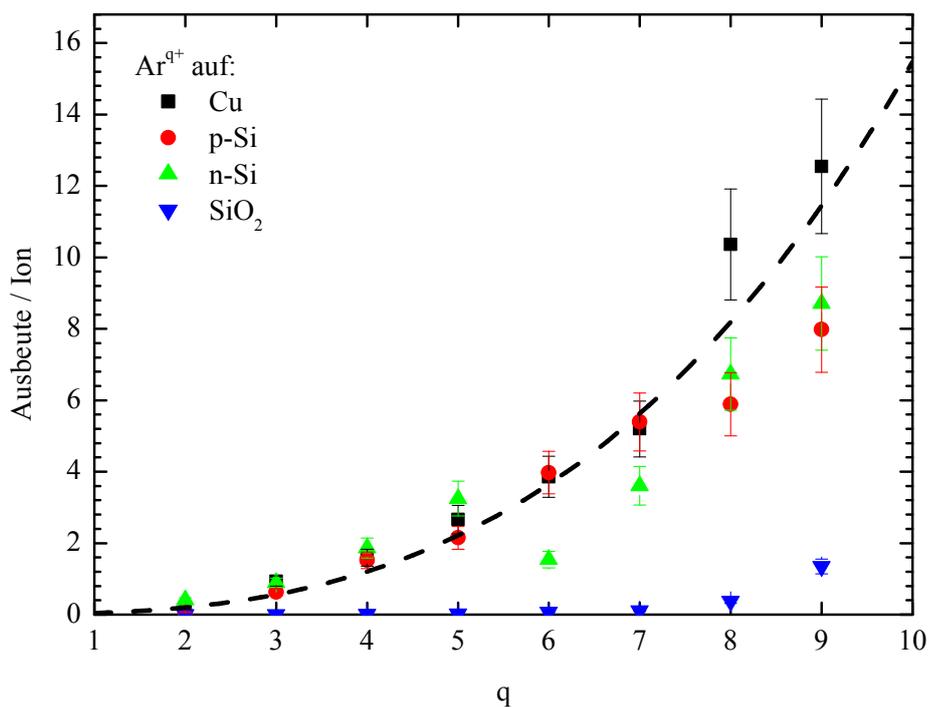


Abbildung 4.5: Einfachdifferenzielle Sekundärelektronenausbeute von SiO_2 bei dem Beschuss mit Ionen Ar^{q+}

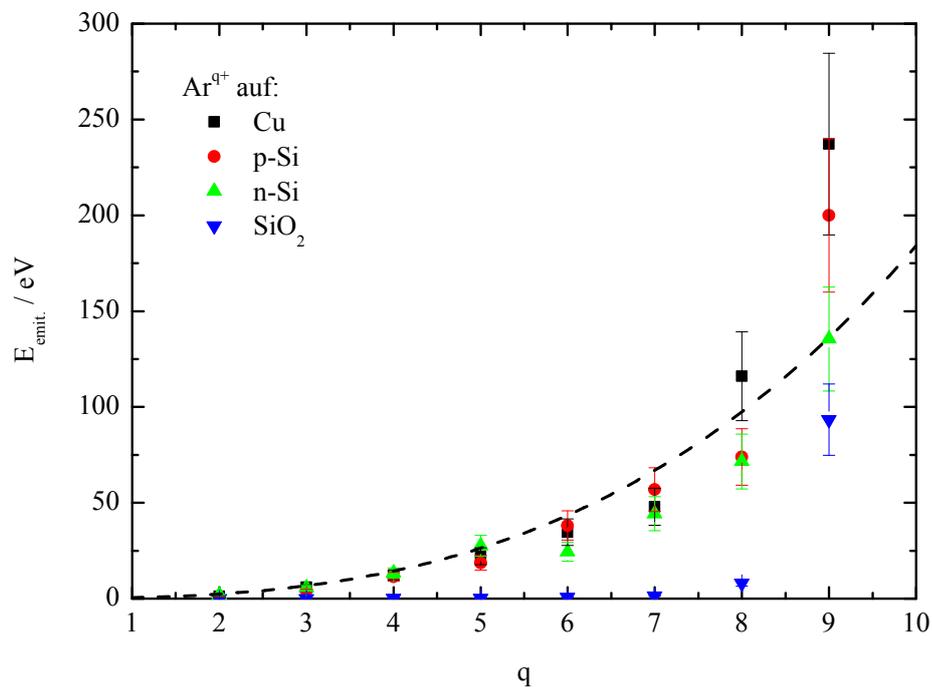
schirmwolke sorgt gegebenenfalls für eine zusätzliche Verschiebung der Augerlinie. Eine weitere Erklärung bietet die Möglichkeit, dass das hochgeladene Ion bedingt durch die höhere Austrittsarbeit im Oxid nicht neutralisiert in den Festkörper eintaucht und die Relaxationskaskade tiefer in den Festkörper verlagert wird. Eine ähnliche Deutung ist bei Khemlich et al. [24] zu finden, als reines LiF und mit wenigen Monolagen LiF abgedecktes Gold miteinander verglichen wurde (siehe Kapitel 2.1.1.1, Seite 25). Diesen Prozess im Detail zu ergründen, ist Gegenstand aktueller Untersuchungen in unserer Arbeitsgruppe und kann noch nicht detailliert ausgeführt werden.

Vergleicht man weiterhin die Sekundärelektronenspektren von Siliziumdioxid in Abbildung 4.5 mit denen von Kupfer in Abbildung 4.2(a), so erkennt man neben der Verschiebung der LMM-Linie bei allen Ladungszuständen eine wesentlich geringere Elektronenausbeute im Niederenergiebereich. Dies belegt ebenfalls die Verschiebung der Elektronenspektren zu niedrigeren Energien und das damit verbundene spätere Einsetzen der Elektronenemission.

Zum Vergleich mit den vorher dargestellten Ergebnissen sind in Abbildung 4.6(a) und Abbildung 4.6(b) die totale Elektronenausbeute für Siliziumoxid und die über Elektronen emittierte Energie als blaue Dreiecke dargestellt. Die totale Sekundärelektronenausbeute und die damit verbundene Emission potenzieller Energie ergibt für niedrige Ladungszustände bis $q=7$ nahezu null. Erst mit Einsetzen der höher energetischen Beiträge der LMM-Augerelektronen steigt die totale Elektronenausbeute und die Menge der emittierten Energie an.



(a) Vergleich der Sekundärelektronenausbeute auf Si + 40nmSiO₂, p-Si, n-Si und Cu für verschiedene Ladungszustände

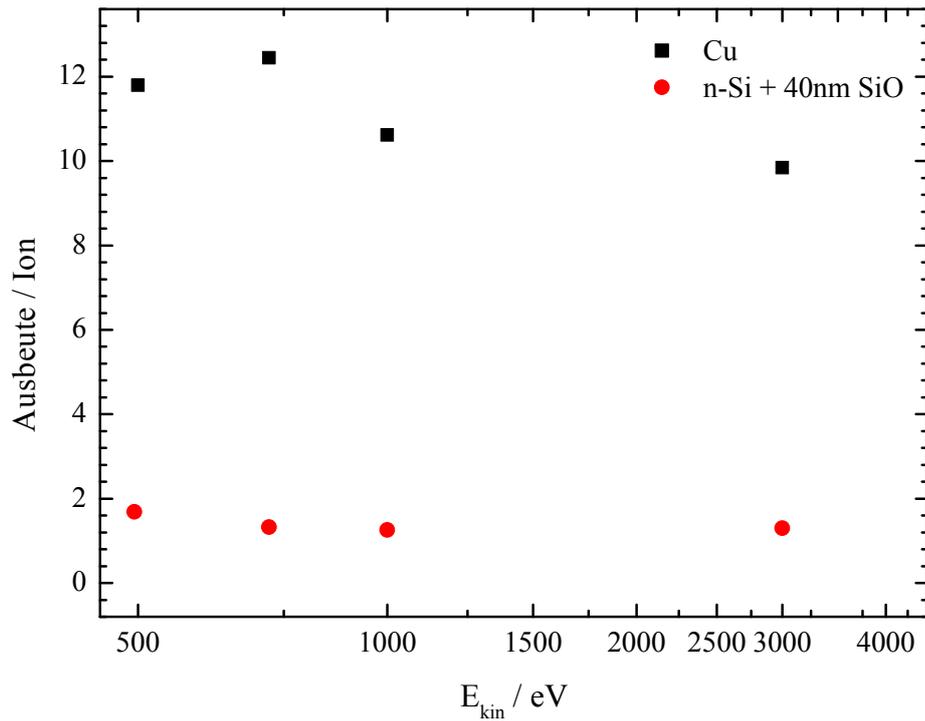


(b) Vergleich der beim Beschuss einer Si + 40nmSiO₂-, p-Si-, n-Si- bzw. Cu- Probe mit Ar^{q+} -Ionen emittierten Energie in Abhängigkeit vom Ladungszustand

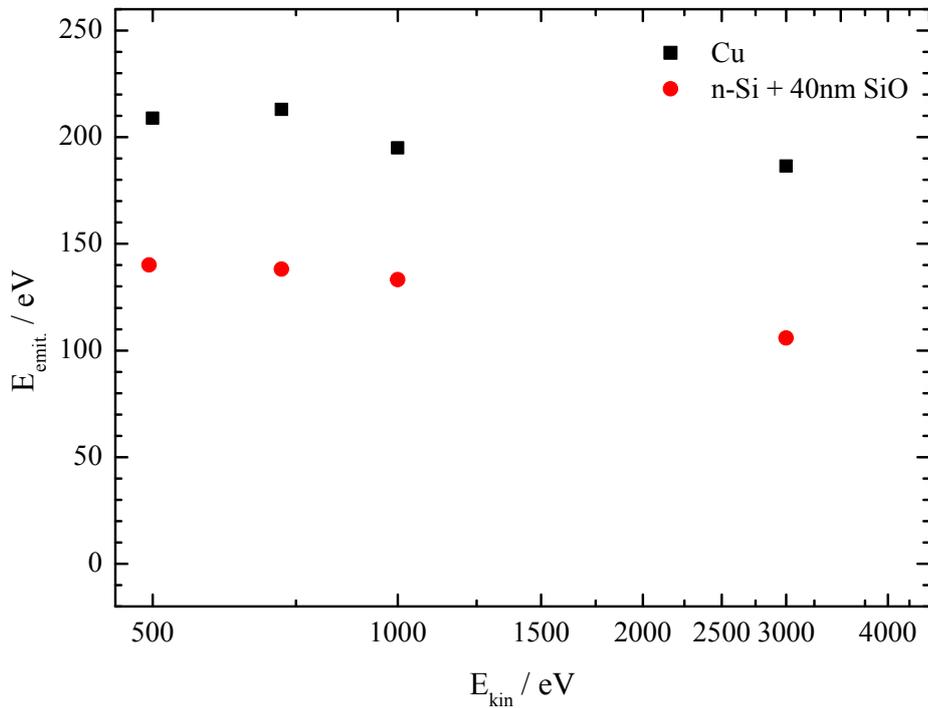
Abbildung 4.6: Vergleich der energiedispersiven Sekundärelektronenspektren und der daraus ermittelten, durch Sekundärelektronen von der Probe emittierten Energie für den Beschuss von Siliziumdioxid, p- und n-Silizium und Kupfer mit Ar^{q+}

4.1.2.4 Energieabhängigkeit der emittierten Energie der Ionen

Die Beantwortung der Frage nach dem Einfluss der Projektilenergie auf die Elektronenspektren war eine der zentralen Fragen der Experimente am HMI. Beruht doch die Auswertung der kalorimetrischen Experimente auf einer linearen Extrapolation zur kinetischen Energie null. So ist es von großer Notwendigkeit für die Auswertung der Kalorimetrieexperimente zu zeigen, dass die Elektronenemission in dem benutzten Bereich der Projektilenergie unabhängig bzw. wenigstens linear mit der Projektilenergie im Zusammenhang steht. Die kinetische Energie der Ar^{9+} -Ionen wurde von 500 eV bis 5000 eV variiert. In den Abbildungen 4.7(a) und 4.7(b) sind sowohl die Elektronenausbeute als auch die durch Elektronen emittierte Energie für Kupfer und Siliziumdioxid dargestellt. Neben den deutlichen quantitativen Unterschieden zwischen der Kupferprobe und der Siliziumdioxidprobe konnte eine nahezu konstante Elektronenausbeute bzw. ein konstanter Wert der emittierten Energie für unterschiedliche Projektilenergien nachgewiesen werden. Es ist zu erkennen, dass bei beiden Proben sowohl die Werte der Elektronenausbeute als auch die emittierte Energie geringfügig mit abnehmender kinetischer Energie ansteigen. Für höhere kinetische Energien ($E_{\text{kin}} > 1000 \text{ eV}$), welche dann jedoch ausserhalb der experimentellen Parameter der Kalorimetrie liegen, sinken die Werte leicht. Dies geht einher mit experimentellen Daten von Aumayr et al. [50] und Kurz et al. [49]. Für kinetische Energien im Bereich von 100 eV steigt die Sekundärelektronenausbeute wieder leicht an. Dieses Verhalten in Abhängigkeit der Projektilenergie kann durch zwei Fakten begründet werden. Für sehr geringe kinetische Energien setzt zum Einen die Dynamik der Relaxation des hohlen Atoms deutlich vor der Oberfläche ein und auf Grund der längeren Aufenthaltszeit vor der Oberfläche schreitet die Relaxation weiter voran als bei hoher kinetischer Energie. Zum Anderen ist die Eindringtiefe für hochenergetische Projektile (mehrere Nanometer) deutlich größer als für Projektile im Bereich von 100 eV (Subnanometer). Da ein Großteil der Elektronen eine kinetische Energie kleiner 1000 eV besitzen, kann die Mehrheit der emittierten Elektronen, welche von hochenergetischen Projektilen stammen, den Festkörper nicht verlassen.



(a) Elektronenausbeute auf einer Kupfer- und einer Siliziumdioxidprobe für Ar^{9+} über der kinetischen Energie des Ions



(b) Emittierte Energie einer Kupfer- und einer Siliziumdioxidprobe für Ar^{9+} über der kinetischen Energie des Ions

Abbildung 4.7: Vergleich der Elektronenausbeute und der absoluten emittierten Energie durch Sekundärelektronen für den Beschuss einer Kupfer- bzw. Siliziumdioxidoberfläche mit Ar^{9+} -Ionen verschiedener kinetischer Energie

4.1.3 Vergleich und Wertung der Ergebnisse

Mit Hilfe der Elektronenspektroskopie wurde zum Einen gezeigt, dass die Elektronenausbeute und die somit emittierte Energie nahezu unabhängig von der Projektilenergie in einem Bereich von 100 eV bis 1000 eV ist. Damit kann bestätigt werden, dass für die Auswertung der kalorimetrischen Experimente eine lineare Extrapolation in diesem Bereich der Projektilenergie gerechtfertigt ist. Zum Anderen sind erstmalig die Werte für die durch Sekundärelektronen emittierte Energie für verschiedene Materialklassen bei konstanter kinetischer Energie ($E_{\text{kin}} = 720 \text{ eV}$) in Abhängigkeit vom Ladungszustand ($q=2-9$) der Projektile dargestellt (Abbildung 4.6(b)). Bei allen Proben konnte gezeigt werden, dass die absoluten Werte für die emittierte Energie bei niedrigen Projektilladungszuständen sehr klein sind und mit steigendem Ladungszustand (mit steigender potenzieller Energie) anwachsen. Die gemessenen Werte im Falle der Kupferprobe und der beiden Siliziumproben unterscheiden sich dabei kaum. Im Falle der Siliziumdioxidprobe wird ein bedeutend geringerer Anteil der potenziellen Energie durch Sekundärelektronen emittiert. Dies ist vor allem durch die Aufladung der Probe und der damit verbundenen Verschiebung der Elektronenspektren begründet. Bemerkenswert ist abschließend die Tatsache, dass in allen Experimenten keine Probenaugerprozesse angeregt werden konnten. In früheren Arbeiten von Köhrbrück [81] und Spieler [82] konnten diese Prozesse detektiert werden. Allerdings wurden diese Experimente mit Projektilenergien von einigen 10 keV durchgeführt. Ein Unterdrücken der Probenaugerlinie durch Verschmutzung der Oberfläche ist auszuschließen, da auch die Augerelektronenlinie [81] von Kohlenstoff bei 260 eV nicht zu erkennen ist. Spieler [82] definierte eine Schwellenergie von 2 keV für Ar^{9+} und Ar^{14+} Ionen auf Silizium. Diese Fakten lassen die Schlussfolgerung zu, dass die Anregung von Probenaugerprozessen hauptsächlich durch die kinetische Energie der Projektile initiiert wird. Die potenzielle Energie hingegen, so die Vermutung, wird zumeist schrittweise in kleineren Energieportionen in Form von Bewegungsenergie der Elektronen in den Festkörper eingetragen und vermag keine Innerschalenvakanzen anzuregen.

4.1.4 Emittierte Energie mittels Gegenfeldanalyse

Aus der in Kapitel 3.3.2, Seite 73 beschriebenen Gegenfeldanalyse zur Bestimmung der Restenergie der Ionen wurden ebenfalls Erkenntnisse über die Sekundärelektronenemission gewonnen. In Abbildung 4.8 ist selbige Gegenfeldanalyse nochmals dargestellt. Die Strom-Spannungscharakteristik, die emittierte Elektronen bis zu einer Gegenspannung von 50 V repräsentiert, ist hierin blau gekennzeichnet. Die blaue Fläche selbst repräsentiert die durch Sekundärelektronen emittierte Leistung bei einem Ionenstrom von $1 \mu\text{A}$. In Abbildung 4.9 ist dieser Sachverhalt auf den Ionenstrom normiert und für verschiedene Ladungszustände dargestellt. Zusätzlich sind in diesem Diagramm die Ergebnisse der Gegenfeldmessungen mit denen der Elektronenspektroskopie für Kupfer verglichen. Die quantitative Übereinstimmung der dargestellten Ergebnisse ist auf

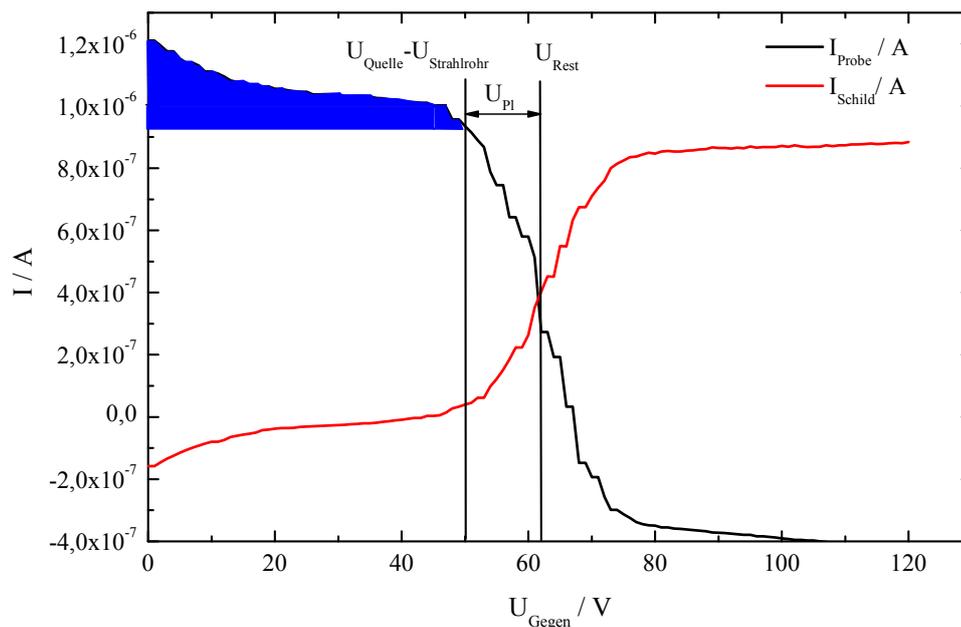


Abbildung 4.8: Gegenspannungsabhängiger Proben- und Schirmstrom während des Anlegens einer variablen Gegenspannung an die Probe; Die blaue Fläche entspricht der durch Sekundärelektronen emittierten Leistung.

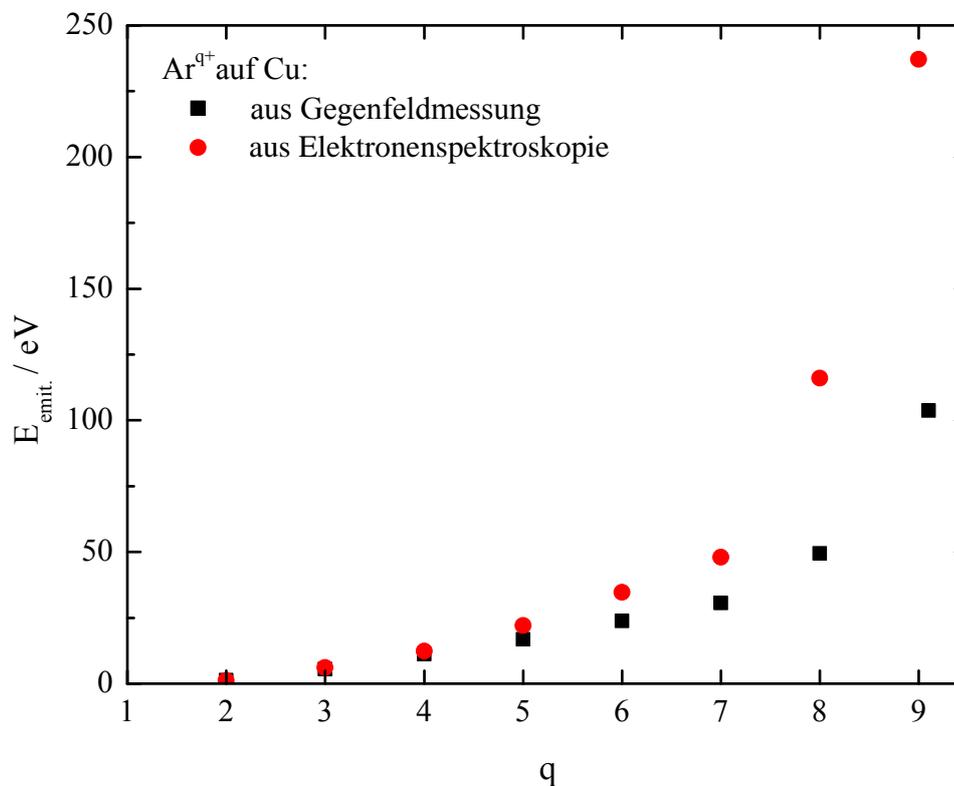


Abbildung 4.9: Vergleich der Ergebnisse aus Elektronenspektroskopie und Gegenfeldanalyse zur Ermittlung der emittierten Energie pro einfallendes Ion für verschiedene Ladungszustände Ar^{q+} bei dem Beschuss einer Kupferoberfläche

Grund der Einfachheit der Gegenfeldmessung als sehr gut einzuschätzen. Lediglich für Ladungszustände $q \geq 6$ wird der Wert für die emittierte Energie im Falle der Gegenfeldmethode zu gering abgeschätzt. Diese Differenz steigt mit zunehmendem Ladungszustand weiter an. Der Grund dafür ist, dass die Gegenspannungsanalyse nur bis zu einer Spannung von 50 V misst, d. h. Elektronen bis zu einer maximalen Elektronenenergie von 50 eV Elektronen berücksichtigt. Die Elektronenenergien für die höheren Ladungszustände überschreiten diese Grenze jedoch. Die Gegenfeldanalyse bietet die Möglichkeit, Strahlqualität und kinetische Energie direkt auf der Kalorimetrieprobe zu bestimmen, unabhängig vom Probenmaterial sowie eventuellen Aufladungen. Die gute Übereinstimmung dieser beiden Methoden ist zum Einen eine bestandene Überprüfung für die Genauigkeit der kalorimetrischen Apparatur und zeigt damit zum Anderen die Konformität der kalorimetrischen Experimente und der Elektronenspektroskopie.

4.2 Deponierte Energie der Ionen

Die Experimente des Energieeintrags hochgeladener Ionen in Festkörperoberflächen unter Benutzung des in Kapitel 3.4.2 beschriebenen Aufbaus erfordern zur Ermittlung repräsentativer, absoluter Messergebnisse eine Reihe von Vorexperimenten. Dies beinhaltet die Kalibrierung der Proben-temperaturerhöhung bezüglich einer bekannten elektrischen Referenzheizleistung (siehe Kapitel 3.4.3), womit im Anschluss die Angabe absoluter Werte für die deponierte potenzielle Energie ermöglicht wird. Weitere Vorexperimente dienen zur Ermittlung der Restenergie der Ionen unter Berücksichtigung des Plasmapotenzials (siehe Kapitel 3.1.5 bzw. Kapitel 3.3.2). Diese Experimente bilden die Grundlage für die im Folgenden präsentierten Ergebnisse.

4.2.1 Analyse der Rohdaten

Die Experimentiervorschrift (Kapitel 3.4.1) sieht vor, die Proben-temperaturerhöhung in Abhängigkeit des Ladungszustandes und der Restbeschleunigungsspannung der benutzten Ionenspecies zu ermitteln. Der zeitliche Verlauf der Proben-temperatur ist exemplarisch für Ar^{7+} und einen totalen Ionenstrom $I_{\text{tot}} = 1 \mu\text{A}$ in Abbildung 4.10 dargestellt. Die verschiedenen Farben der Graphen codieren unterschiedliche Restbeschleunigungsspannungen, respektive die kinetische Energie der Ionen. Zu erkennen ist ebenfalls eine geringe Temperaturdrift von etwa 20 mK in 6000 s, welche die Messergebnisse aber nicht beeinflusst.

Mit der aus diesem Diagramm zu ermittelnden Temperaturdifferenz in Abhängigkeit der Variation der kinetischen Energie folgt mit der Kalibrierkurve sowie dem Teilchenstrom die eingetragene Gesamtenergie pro Ion $E_{\text{dep}}^{\text{Ion}}$. Eine komplette Messreihe verschiedener Ladungszustände ist in Abbildung 4.11 exemplarisch für die Kupferprobe dargestellt. Durch die lineare Extrapolation der Kurven zur kinetischen Energie null wird der Anteil der deponierten potenziellen Energie ermittelt.

4.2.2 Darstellung der Einzelergebnisse

4.2.2.1 Kalorimetrische Messungen an Kupfer

In Abbildung 4.12 zeigen die schwarzen Quadrate die pro Ion in die Kupferoberfläche eingetragene potenzielle Energie für verschiedene Ladungszustände. Vor der Diskussion der Ergebnisse sei an dieser Stelle nochmals ganz deutlich hervorgehoben, dass die gewonnenen Werte für die deponierte Energie eines hochgeladenen Ions nicht der Energiedeposition eines Ions mit einer kinetischen Energie nahe null entsprechen. Vielmehr dient die Extrapolation der Separation des kinetischen und potenziellen Energiebeitrags. Diese Extrapolation ist möglich, da sich im betrachteten Intervall der kinetischen Energie die Dynamik der Neutralisation nur unwesentlich

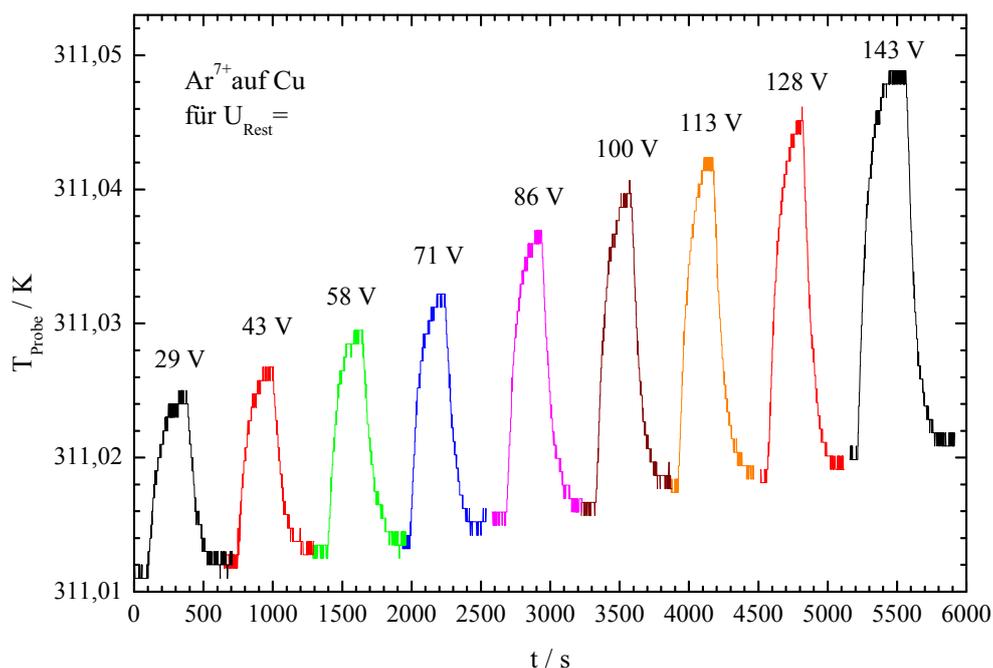


Abbildung 4.10: Proben temperatur über der Zeit für den Beschuss einer Kupferprobe mit Ar^{7+} -Ionen verschiedener kinetischer Energie

mit der kinetischen Energie ändert. Somit entsprechen die dargestellten Werte der deponierten potenziellen Energie eines hochgeladenen Ions, welches sich mit einer kinetischen Energie im Bereich von $100\text{eV} \cdot q < E_{\text{kin}} < 1000\text{eV} \cdot q$ an die Oberfläche annähert. Aus dem Diagramm in Abbildung 4.12 ist erkennbar, dass der deponierte Teil der potenziellen Energie bis zu Ladungszuständen $q \leq 8$ entsprechend Gleichung (4.1) auf Seite 102 mit dem Ladungszustand bzw. linear mit der Summe der Ionisationsenergie anwächst. Der Anpassungsfaktor beträgt hierbei $k = 0,84$. Für höhere Ladungszustände erklärt wiederum der Sprung der Ionisationsenergie auf Grund der beginnenden Ionisation der L-Schale, dass die analytischen Funktion die experimentellen Daten unterbewertet. Die im Diagramm angegebenen Fehler setzen sich hauptsächlich aus drei Anteilen zusammen. Zum Einen ist da die Unsicherheit in der Bestimmung der Restenergie, welche mit $\Delta E_{\text{kin}} = \Delta U_{\text{Pl}} \cdot q = 2\text{eV} \cdot q$ abgeschätzt wird. Der zweite Anteil ergibt sich aus dem Fehler der linearen Regression der eingetragenen Energie über der kinetischen Energie. Zum Dritten muss der Fehler in der Bestimmung des Ionenstroms mit berücksichtigt werden. Als Fehler können hier etwa 10nA abgeschätzt werden. Der so abgeschätzte Gesamtfehler von etwa 15% ist für einfach und zweifach geladene Projektile aufgrund des geringen absoluten Messwertes am größten und sinkt für höhere Ladungszustände auf 10% . Weitere Beiträge, wie zum Beispiel Fehler in der Ermittlung des Zusammenhangs der eingetragenen elektrischen Heizleistung sowie der Proben temperatur liegen unterhalb von 2% und können vernachlässigt werden. Die Fehlerangaben stellen eine obere Abschätzung dar. Die Reproduzierbarkeit der Einzelmessungen ist weitaus besser, wie anhand von

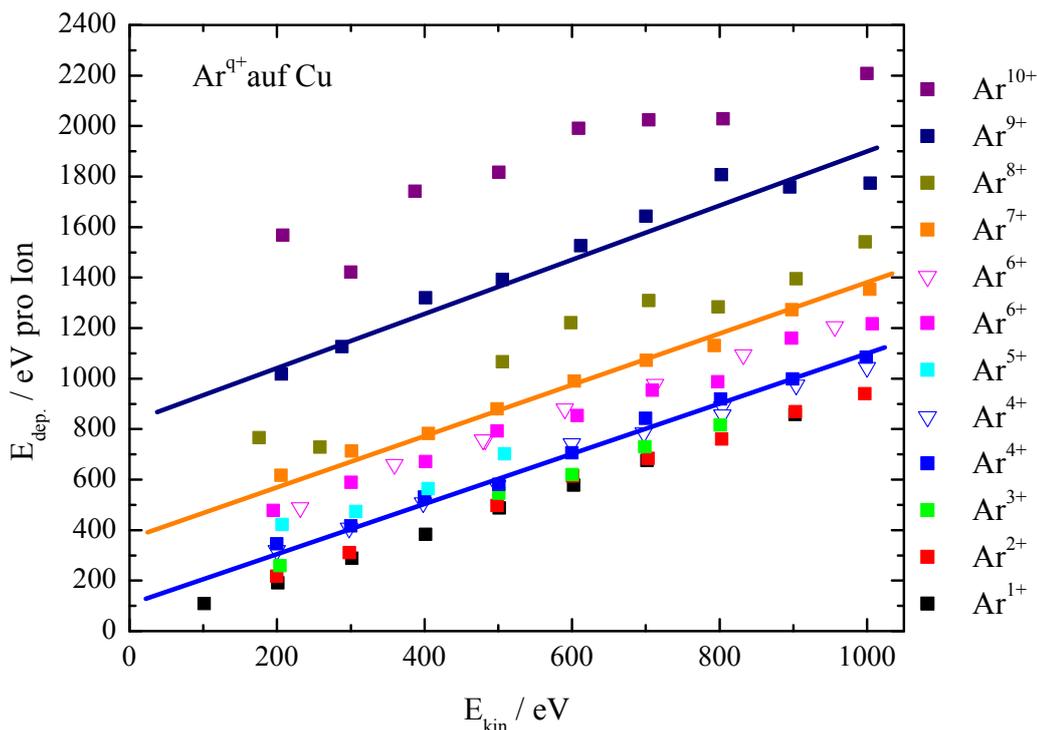


Abbildung 4.11: Deponierte Energie eines Argonions in eine Kupferoberfläche für verschiedene Ladungszustände und verschiedene kinetische Energien; Der Schnittpunkt mit der Energieachse bei $E_{\text{kin.}} = 0$ eV ergibt den Anteil der eingetragenen inneren potenziellen Energie wieder.

einzelnen Messpunkten in den Diagrammen zu erkennen ist.

4.2.2.2 Kalorimetrische Messungen an Silizium

Im Falle von Silizium wurden die gleichen Siliziumproben mit unterschiedlichen Dotierungen untersucht (p-dotierte $N_p = 4,5 \cdot 10^{15} \frac{1}{\text{cm}^3}$ bzw. n-dotiert $N_n = 1,5 \cdot 10^{15} \frac{1}{\text{cm}^3}$). Die Resultate sind als rote Kreise bzw. grüne Dreiecke in Abbildung 4.12 gezeigt. Es zeigt sich, dass bei der Deposition potenzieller Energie langsamer hochgeladener Ionen kein messbarer Unterschied im Vergleich der beiden verschieden dotierten Siliziumproben existiert. Verglichen mit dem Energieeintrag in die metallische Kupferprobe liegen auch diese Abweichungen innerhalb der Fehlergrenzen. Man kann schlussfolgern, dass sich die Neutralisationsdynamik hochgeladener Ionen vor Halbleiteroberflächen mit den hier verwendeten Dotierungen im Falle der Kalorimetrie nicht wesentlich von der Neutralisationsdynamik vor Metalloberflächen unterscheidet (vgl. dazu Kapitel 4.1.2.2, Seite 104). Eine Interpretation hierfür ist, dass die Bedeutung der Bandlücke von Materialien für die Emission der Elektronen und für die Generierung des *hohlen Atoms* eher gering ist. Im Bild des COB-Modells ist anzunehmen, dass die Potenzialbarriere sogar unterhalb der Valenzbandoberkante gedrückt werden kann und somit ein resonantes Füllen der äußeren Energieniveaus des Ions

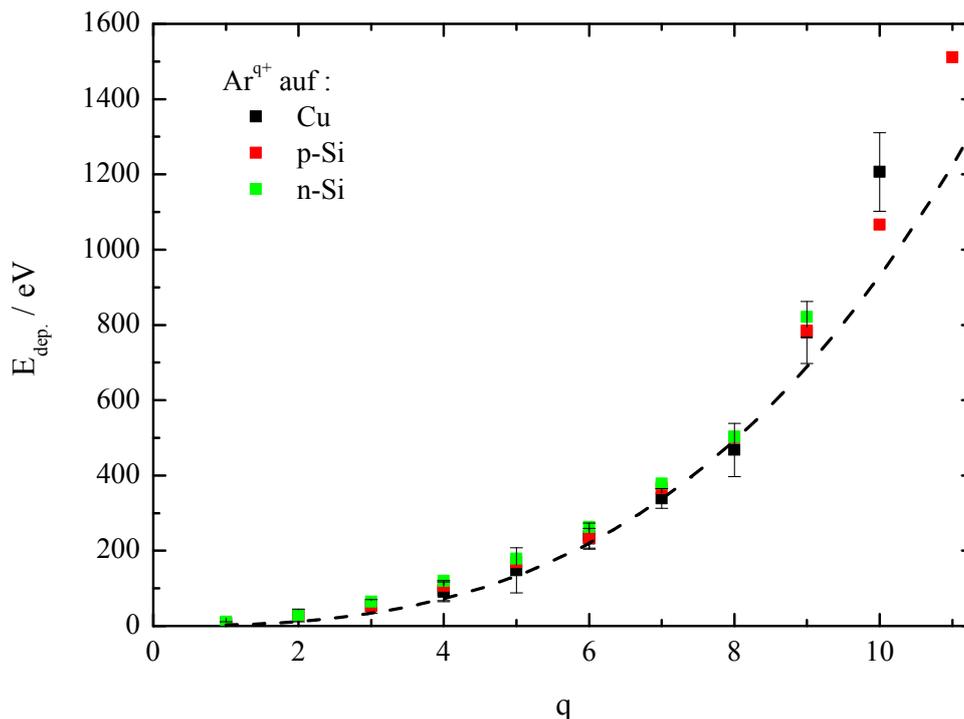


Abbildung 4.12: Deponierte potenzielle Energie pro Ion für verschiedene Ladungszustände bei dem Beschuss einer Cu-, p-Si- bzw. n-Si-Probe mit Ar^{q+} -Ionen

direkt aus dem Valenzband möglich ist. Ein zusätzliches Absenken der Barriere um etwa 1 eV aufgrund einer Bandlücke verändert den Neutralisationsmechanismus kaum. Entscheidend ist hierbei lediglich, dass der lokale Elektronenverlust durch Festkörperelektronen ausgeglichen werden kann (siehe Seite 104 und Seite 25). Ob die beweglichen Ladungsträger durch Elektronen oder durch Löcher repräsentiert werden, ist dabei nicht von Bedeutung. Effekte, die sich ausbilden, wenn die lokalen Elektronenverluste nicht kompensiert werden, können zum Beispiel an Isolatoroberflächen wie Siliziumdioxid, untersucht werden.

4.2.2.3 Kalorimetrische Messungen an Siliziumdioxid

Für die Messungen an einer Siliziumdioxidoberfläche wurde genau wie im Fall der Elektronenspektroskopie eine Probe präpariert, die aus n-leitendem Siliziumbasismaterial und einer 40 nm dicken deponierten Siliziumdioxidschicht besteht. Dies führt, wie schon in Kapitel 4.1 erläutert, zu einer quasi statischen Aufladung der Probe, mit einem zusätzlichen Potenzial von etwa 20 V an der Probenoberfläche. Es konnte gezeigt werden, dass diese Potentialdifferenz mit der Oxiddicke korreliert. Weiterhin ist bekannt, dass die Zerstäubungsausbeute für hochgeladene Ionen auf Siliziumdioxid immens mit dem Ladungszustand ansteigt [41, 42]. Somit ist die Dicke der Oxidschicht und damit auch die Potentialdifferenz von der Ionenfluenz abhängig. Dies erfordert besondere Präzision bei der Ermittlung der Restenergie der Ionen mittels Gegenfeldanalyse. Zum Anderen kann

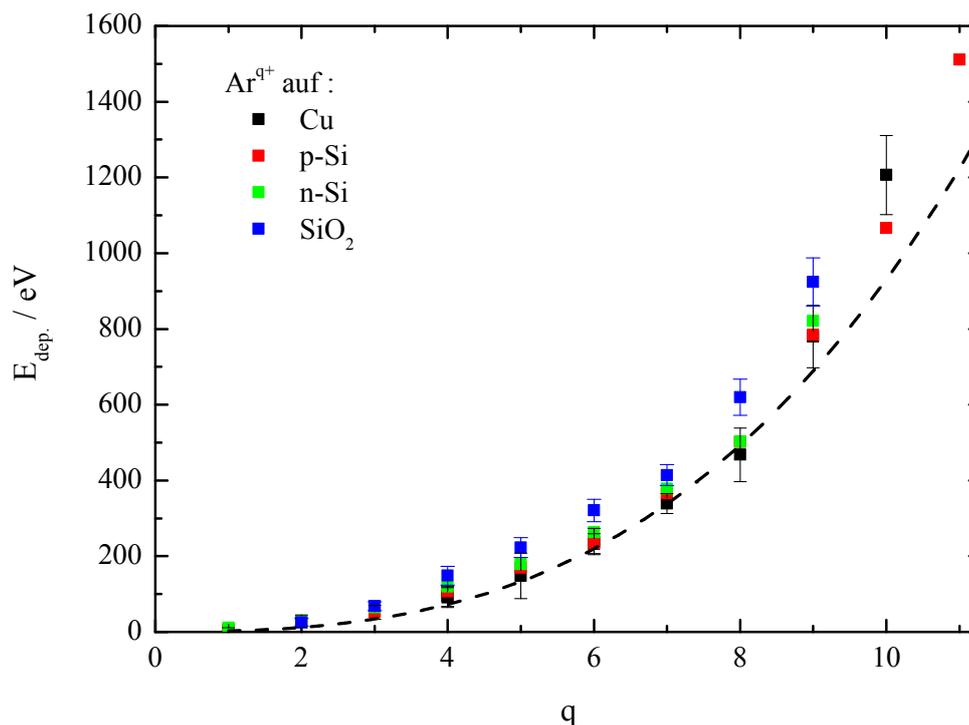


Abbildung 4.13: Eingezeichnete innere potenzielle Energie eines Ar^{q+} -Ions für eine Siliziumdioxidprobe verglichen mit den metallähnlichen Proben: Kupfer, p-dotiertes Silizium und n-dotiertes Silizium

nicht garantiert werden, dass auf Grund der verschiedenen Ladungszustände und der verschiedenen kinetischen Energien der Ionen, der Strahlfleck des Ionenstrahls für alle Parameter gleich groß ist und an der gleichen Stelle das Target trifft. Man muss vielmehr davon ausgehen, dass die Oxidschicht nach einer gewissen Fluenz nicht mehr als homogen angesehen werden kann. Dennoch soll in Abbildung 4.13 die Messreihe für den Beschuss von 40 nm Siliziumdioxid auf n-dotiertem Silizium neben den anderen Materialien dargestellt werden. Die Darstellung der deponierten Energie über dem Ladungszustand zeigt auch im Fall von Siliziumdioxid ein lineares Ansteigen der eingetragenen Energie mit der inneren potenziellen Energie (siehe Gleichung (4.1) und Anhang A.4 Seite 140). Die eingezeichneten Messpunkte liegen für die hohen Ladungszustände deutlich über den Messpunkten für die Kupfer- und Siliziumproben. Im Experiment wurde mit hohen Ladungszuständen beginnend zu niedrigen Ladungszuständen gemessen. Ein durch die Ionenfluenz bedingtes Abtragen der 40 nm dicken Oxidschicht erklärt das Annähern des Energieeintrags für die niedrigen Ladungszustände an die eingezeichnete Funktion und damit an die Werte des Energieeintrags für Halbleiter- und Metallproben. Ein deutlicheres Bild vermittelt der direkte Vergleich der verschiedenen Oberflächen im nächsten Abschnitt. Die Fehlerbalken sind exemplarisch für die Messungen an der Kupferprobe sowie an Siliziumdioxid eingezeichnet. Unterschiede zwischen der vermessenen Metalloberfläche und der Halbleiteroberfläche können nur innerhalb der Fehler-

grenzen gefunden werden. Dies ist konsistent mit den Experimenten zur Elektronenspektroskopie auf Metall- und Halbleiteroberflächen im Rahmen dieser Arbeit und auch mit Experimenten von Arnau et al.[131].

4.3 Bilanz der potenziellen Energie

Von großer Bedeutung für diese Arbeit ist das Aufstellen einer Energiebilanz hinsichtlich der Aufteilung der potenziellen Energie in unterschiedliche Relaxationskanäle. In vorangegangenen Arbeiten von Schenkel et al. [1] wurde der Teile der emittierten Energie zwar ebenfalls auf etwa 10 % abgeschätzt. Der Teil der deponierten potenziellen Energie konnte aufgrund der Messmethode nur für eine Tiefe größer 50 nm ermittelt werden. Wie bereits erwähnt, wurde von Schenkel et al. [1] für den deponierten Anteil der potenziellen Energie etwa (35 - 40) % und auch von Kentsch et al. [2] etwa 40 % angegeben. Wobei besonders im letzteren Fall ungeklärt blieb, wie die restlichen 50 % der potenziellen Energie dissipieren. Im Folgenden werden zur Erstellung der Energiebilanz die gewonnenen Resultate der emittierten bzw. der deponierten potenziellen Energie aus der Elektronenspektroskopie bzw. der Kalorimetrie mit berechneten Werten für die potenzielle Energie verglichen (von [137] nach Cowan [66] berechnet). Dies ist in Abbildung 4.14 gezeigt.

In dieser Abbildung ist zum Einen die deponierte potenzielle Energie mit der totalen potenziellen Energie in das Verhältnis gesetzt. Es ist zu erkennen, dass das Verhältnis der eingetragenen potenziellen Energie gleichfalls nahezu unabhängig vom Ladungszustand ist. Der Anteil beträgt hier etwa 80%. Mit steigendem Ladungszustand nimmt das Verhältnis der eingetragenen Energie zunächst leicht zu. Um dann für Ladungszustände größer als 8 wieder etwas zu sinken. Dabei sei bemerkt, dass die relative Unsicherheit der Messpunkte für geringe Ladungszustände aufgrund der geringen Messgröße wesentlich größer ist. Der Abfall für höhere Ladungszustände hingegen kann durch das Einsetzen der Emission der LMM-Augerelektronen gedeutet werden. Diese besitzen eine große Menge an kinetischer Energie und können somit auch aus tieferen Atomlagen die Probe verlassen. Diese Interpretation wird bestärkt, indem man zum Zweiten die Ergebnisse der komplementären Elektronenspektroskopie betrachtet. Hierbei zeigt sich ebenfalls ein nahezu konstantes Verhältnis aus emittierter Energie und potenzieller Energie der Ionen. Das Verhältnis beträgt unabhängig vom Ladungszustand etwa 10 % (vgl. Abschätzung von Schenkel [1]). Mit zunehmendem Beitrag hochenergetischer Sekundärelektronen für Ladungszustände bis $q \geq 8$ steigt dieses Verhältnis leicht an. Dies kann komplementär zur Kalorimetrie durch die LMM-Augerelektronenbeiträge gedeutet werden. Es ist festzustellen, dass sich die Ergebnisse der Elektronenspektroskopie und die Ergebnisse der Kalorimetrie zur totalen potenziellen Energie, in dieser Darstellung zu 1, ergänzen und somit die Energiebilanz erfüllen. Dies bestätigen zum Einen die dominierenden Relaxationskanäle (Elektronenemission und Elektronendeposition) und legt zum Anderen deren Wichtung (Emission und Deposition von Energie) dar. In beiden Methoden sind keine Unterschiede im Verhältnis der deponierten und der emittierten Energie zur totalen potenziellen Energie für Metalle und Halbleiter erkennbar. Im Falle des Isolators zeigt sich jedoch eine Verschiebung des Verhältnisses zu Gunsten der deponierten Energie, wobei dieser Unterschied durch die Aufladung der Probe maßgeblich beeinflusst ist. Im Vergleich mit den Ergebnissen der deponierten potenziellen Energie von Kentsch et al. [2, 124] liegen die Verhältnisse der eingetragenen Energie weit über 30 %. Diese Berichtigung

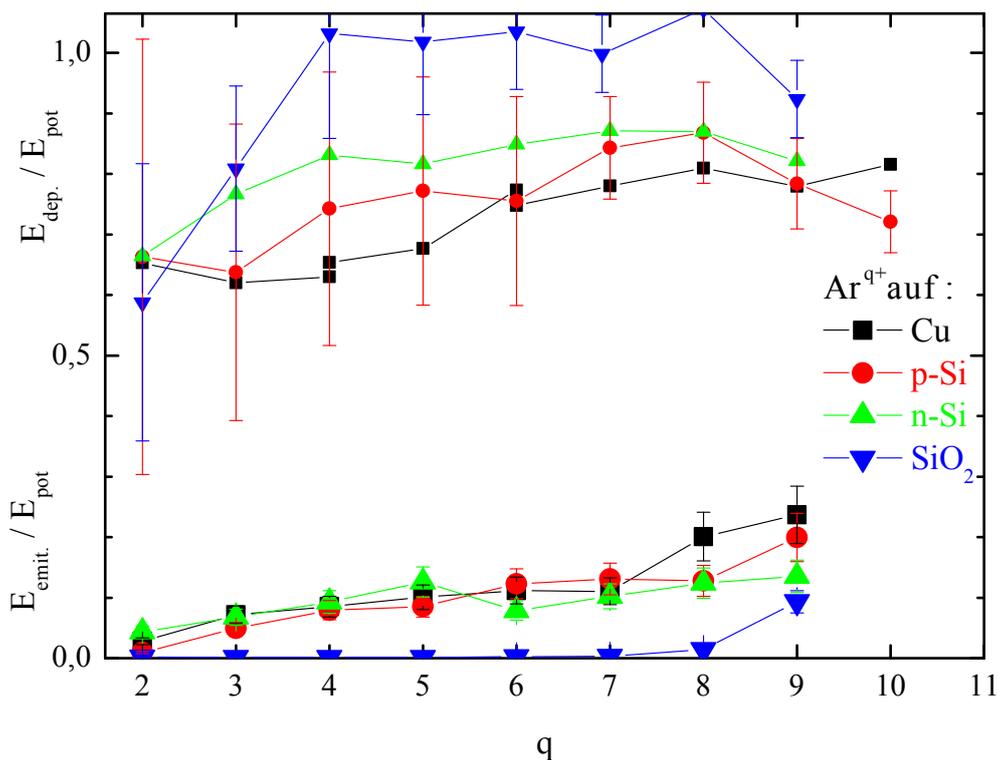


Abbildung 4.14: Anteile der deponierten inneren potenziellen Energie bzw. der emittierten inneren potenziellen Energie bezogen auf die Summe der Ionisationsenergie für Ar-Ionen verschiedener Ladungszustände q und verschiedener Proben

gelingt durch den neuen kalorimetrischen Aufbau und ist wohl vor allem mit der damit verknüpften korrekten Auswertung des tatsächlichen elektrischen Ionenstroms ($I_{\text{Ion}} = I_{\text{elektr.}} + I_{\text{Sekel.}}$) und der exakten Ermittlung der Restenergie der Ionen zu begründen. Die Nichtberücksichtigung der hohen Sekundärelektronenausbeuten auf Kupfer führten bei Kentsch et al. wohl zu einer Überschätzung des tatsächlichen Ionenstroms und damit zu einer Unterbewertung des Energieeintrags pro Ion. Der Anteil der deponierten potenziellen Energie beträgt ferner sogar deutlich über 50%. Man kann daraus die Erkenntnis gewinnen, dass die Relaxation des hohlen Atoms nicht vor dem Eintreten in die Oberfläche abgeschlossen ist. Eine vollständige Relaxation vor der Oberfläche, die sich hauptsächlich über Augerelektronen vollzieht, sollte als Resultat 50% Energiedeposition und 50% Energieemission liefern, was man durch geometrische Betrachtungen leicht veranschaulichen kann. Eine Verlagerung der Relaxationkaskade in die Oberfläche verschiebt das Verhältnis zu Gunsten der deponierten Energie, wenn man von der Annahme ausgeht, dass nicht alle Elektronen die unterhalb der Oberfläche emittiert werden den Festkörper verlassen können. Dies sind ebenfalls die Annahmen der *Ya-DCOM* Simulation. Im nächsten Abschnitt wird gezeigt, wie die in die numerische Rechnung übernommenen Annahmen mit den experimentellen Ergebnissen der Kalorimetrie und der Elektronenspektroskopie übereinstimmen.

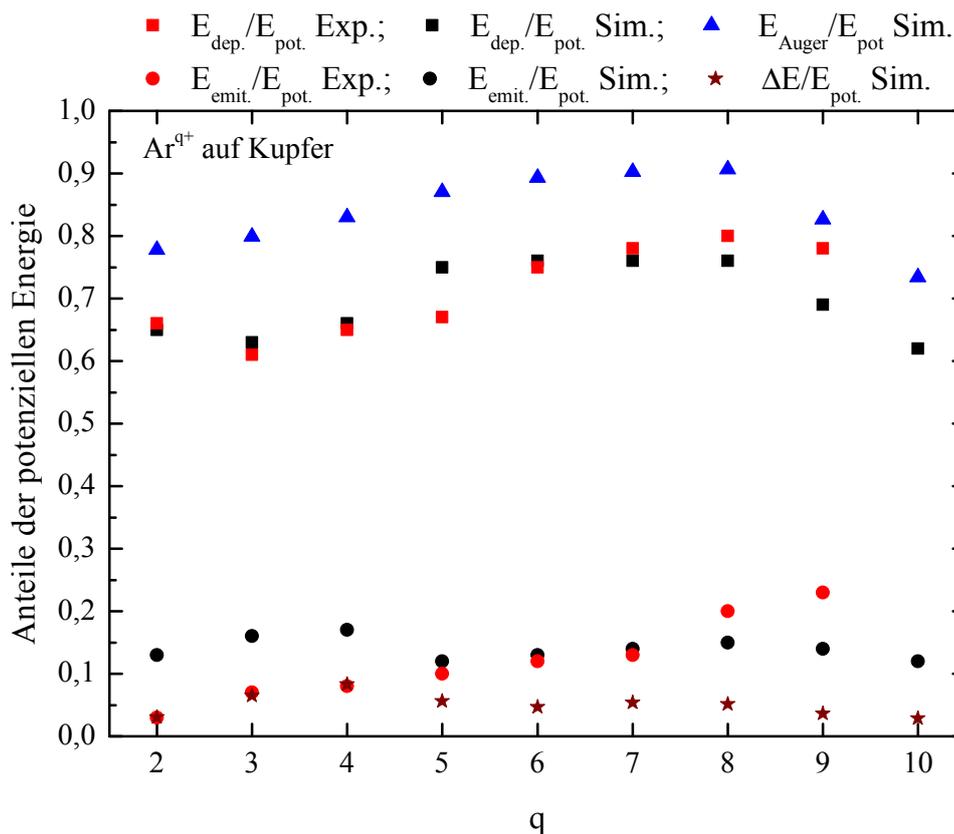


Abbildung 4.15: Vergleich der experimentell ermittelten Werte für den Anteil der emittierten und deponierten Energie mit denen der numerischen Simulation *Ya-DCOM* für den Beschuss von Kupfer mit verschiedenen Ladungszuständen Ar^{q+}

4.4 Vergleich: Experimente - numerische Simulation

Zum direkten Vergleich von experimentellen Ergebnissen und Ergebnissen der numerischen Rechnung sind in Abbildung 4.15 die Werte der emittierten und deponierten Anteile der potenziellen Energie für den Beschuss von Kupfer dargestellt. Die *EDCOM*-Simulation, die für die Berechnung von Sekundärelektronenausbeuten und finalem Ladungszustand bei streifendem Einschuss langsamer hochgeladener Ionen auf Oberflächen entwickelt wurde, konnte ohne Änderung der Transferaten übernommen werden. Die Simulation liefert durch Hinzufügen von Programmteilen, welche den senkrechten Einfall der Ionen und die Streuung der Elektronen im Festkörper berücksichtigen, eine sehr gute quantitative Übereinstimmung. Dies gilt sowohl für die durch Elektronenspektroskopie bestimmte emittierte Energie als auch für die durch Kalorimetrie ermittelte deponierte Energie. Auffällig ist, dass die Summe der beiden Energieanteile in der Simulation nicht exakt 100 % ergeben. Ein Teil dieser Differenz kann durch die bisher unberücksichtigte Bildladungsbeschleunigung erklärt werden. Im Falle der Kalorimetrie trägt dieser Beitrag ebenfalls zur Erwärmung der Probe bei. Dieser Beitrag disipiert nicht direkt in das elektronische System des Festkörpers, sondern wird

über nukleonische Wechselwirkung eingetragen. Im Falle der Simulation wurde dieser Beitrag mitberechnet und beträgt in etwa 6 %. Der fehlende Anteil kann zum Einen dadurch erklärt werden, dass man in der Energiebilanz auch die Startniveaus bzw die Bindungsenergie der Elektronen berücksichtigen muss, welche das einfallende Ion neutralisieren. Im Falle der Neutralisation starten diese Elektronen unterhalb des Fermi-niveaus des Festkörpers. Die Ionisationsenergie berücksichtigt jedoch das Entfernen der Elektronen auf Vakuumniveau. Um diesen Anteil abzuschätzen, müssen die am Prozess beteiligten Elektronen ($N_{e^-} = Y_{e^-} + q$) mit der Austrittsarbeit des Materials multipliziert werden, wobei Y die Elektronenausbeute ist und q der Ladungszustand des Ions. Im Falle von Ar^{9+} und Kupfer ergibt dies etwa:

$$\Delta E \approx (5 + 9) \cdot 4,5 \text{ eV} = 63 \text{ eV}, \quad (4.2)$$

$$\frac{\Delta E}{E_{\text{pot.}}} \approx 6\%. \quad (4.3)$$

Andererseits kann der fehlende Anteil auch als ein numerischer Artefakt gedeutet werden. Da durch die Wechselwirkung des Projektils mit der eigenen Spiegelladung die Atomenergieniveauverschiebung berücksichtigt werden muss. Diese Verschiebung der Einelektronenniveaus wird in der Ya-DCOM-Simulation mit Störungsrechnung 1. Ordnung behandelt. Für sehr kleine Abstände zur Bildladung bzw. hohe Ladungszustände müssten gegebenenfalls höhere Ordnungen in die Störungsrechnung einbezogen werden um den Fehler in der Berechnung der Energieniveauverschiebung und damit in der Aufstellung der Energiebilanz zu verringern.

5 Zusammenfassung und Ausblick

In der vorliegenden Arbeit wurde neben einer Anlage zur Erzeugung langsamer hochgeladener Ionen variabler kinetischer Energie eine verbesserte UHV-Apparatur zur Untersuchung des Energieeintrags langsamer hochgeladener Ionen in Festkörperoberflächen vorgestellt.

Die Dynamik der Relaxation mehrfach geladener Ionen vor Festkörperoberflächen zeichnet sich zum Einen maßgeblich durch den Transfer von Festkörperelektronen zum ankommenden Ion und deren Emission aus. Zum Anderen wird die im Ion als Summe der aufgebrachten Ionisationsenergie gespeicherte Energie während der Relaxation freigesetzt. Nach Ergebnissen von Schenkel et al. [1] beträgt der Anteil der im Ion gespeicherten Energie (innere potenzielle Energie), welcher in einer Tiefe von mehr als 50 nm deponiert wird etwa 35 %. Potenzielle Energie, die auch in geringeren Tiefen eingetragen wird, wurde zusätzlich von Kentsch et al. [2] erfasst und zu etwa 40 % der zur Verfügung stehenden potenziellen Energie ermittelt. Der Anteil der emittierten Energie bei diesen Experimenten wurde lediglich zu 10 % abgeschätzt.

Der Anteil der in der Probe deponierten potenziellen Energie wurde in dieser Arbeit zu etwa $80\% \pm 10\%$ gemessen. Ebenfalls wurde die Menge der dabei emittierten potenziellen Energie zu etwa $10\% \pm 5\%$ ermittelt. Die bestehende Diskrepanz in der Energiebilanz der Relaxation innerer potenzieller Energie wurde somit in dieser Arbeit beseitigt. Folgende Schwerpunkte wurden dabei bearbeitet.

Es wurden neuartige experimentelle Bedingungen zum Studium der Wechselwirkung hochgeladener Ionen mit Festkörperoberflächen geschaffen. Die Arbeit beschreibt den Aufbau und die Inbetriebnahme einer neuen und leistungsfähigeren Anlage (die Zwei-Quellenanlage) zur Erzeugung hochgeladener Ionen. Die Leistungssteigerung zeigt sich darin, dass die Anlage es ermöglicht mittlere bis höchste Ladungszustände (Ar^{17+} , Xe^{48+}) mit einer kinetischen Energie von $E_{\text{kin}} = 10\text{V} \cdot q \dots 24\text{kV} \cdot q$ zu produzieren. Zudem sind mit dieser neuen Anlage kalorimetrische Messungen mit höheren Ionenströmen ($I \geq 1\ \mu\text{A}$), höheren Ladungszuständen für Argon von $q = 1 \dots 11$ und geringerer kinetischer Energie $E_{\text{kin}} \geq 100\text{eV}$ möglich. Damit ist der Ionenstrom im Vergleich zu vorherigen Messungen mehr als zwei mal so groß. Dadurch konnten Ionen mit

maximal dreifach ionisierter L-Schale für kalorimetrische Experimente benutzt werden an Stelle von Ionen mit nur einer Vakanz in der L-Schale, wodurch die zur Verfügung stehende potenzielle Energie verdoppelt werden konnte.

Es wurden maßgebliche Verbesserungen an der kalorimetrischen Apparatur von Kentsch et al. [2] durchgeführt. Dies betrifft zum Ersten die Kompatibilität des Probenhalters mit UHV-Bedingungen, worin ein Experimentieren bei einem Basisdruck von $p = 2 \cdot 10^{-10}$ mbar ermöglicht wird. Weiterhin ist der Probenhalter so gestaltet, dass ein Wechsel der Probe ermöglicht wird, ohne das Ultrahochvakuum der Experimentierkammer zu brechen.

Als Zweites wurde der Bestimmung experimenteller Parameter besondere Beachtung zugemessen, da Parameter, wie die Änderung des Energieeintrags durch Boltzmannstrahlung in die Probertemperatur, der exakte Ionenstrom und die kinetische Energie der Ionen bedeutenden Einfluss auf die absolute Genauigkeit der Messergebnisse haben. Hierfür wurde unter anderem eine Langmuirsondenmessung zur Ermittlung des Plasmapotenzials der benutzten ECR-Quelle aufgebaut und die kinetische Energie der Ionen explizit mittels Gegenfeldmessung bestimmt. Weiterhin gelingt es durch den neuartigen Aufbau des Kalorimetrieprobenhalters den Ionenstrom unabhängig von der Sekundärelektronenemission absolut zu bestimmen.

Diese Arbeit untermauert die kalorimetrischen Resultate durch geeignete komplementäre Experimente und liefert experimentell eine Energiebilanz zur Relaxation von hochgeladenen Argonionen. Zur Prüfung der kalorimetrischen Resultate und zum Erstellen der Energiebilanz wurde in zusätzlichen Experimenten aus Elektronenspektren die durch Sekundärelektronen emittierte Energie ermittelt. Anhand dieser Resultate gelingt es erstmalig, für die Relaxation eines mehrfachgeladenen Argonions mit Ladungszuständen zwischen $q = 1..11$ und kinetischer Energie zwischen $E_{\text{kin}} = 100\text{eV} \dots 1000\text{eV}$ eine schlüssige Energiebilanz experimentell nachzuweisen.

Diese Arbeit untersuchte zudem experimentell die Abhängigkeit des Relaxationsmechanismus verschiedener Materialien. Hierzu wurden mit oben beschriebenen experimentellen Methoden Vertreter verschiedener Materialklassen hinsichtlich der Existenz frei beweglicher Elektronen untersucht (elektrische Leiter: Kupfer, Halbleiter: p- und n-dotiertes Silizium und Isolator: Siliziumdioxid).

Hierbei konnte im Rahmen der Messgenauigkeiten sowohl durch die Elektronenspektroskopie als auch durch die Kalorimetrie kein Unterschied zwischen Kupfer, p-dotiertem Silizium und n-dotiertem Silizium festgestellt werden. Besonderen Neuheitsgehalt hat die Untersuchung von Siliziumdioxid, da der Beschuss mit hochgeladenen Ionen und die Spektroskopie der Sekundärelektro-

nen dieser Probe erstmalig durchgeführt wurden. Die verwendete Siliziumdioxidprobe, bestehend aus Siliziumbasismaterial und einer mittels REPCVD deponierten Oxidschicht, zeigte eine mit der Oxidschichtdicke korrelierende quasistatische Aufladung der Oberfläche. Dies zeigte sich in der Verschiebung von charakteristischen Augerlinien. Im Vergleich mit obigen Materialien zeigte sich ein Anwachsen des deponierten Anteils respektive eine Abnahme des emittierten Anteils der potenziellen Energie. Hierbei gelang erstmalig das Studium der Wechselwirkung langsamer hochgeladener Ionen mit einem Vertreter der elektrischen Isolatoren.

Diese Arbeit trägt zum theoretischen Verständnis der Energietransfermechanismen bei, wie sie während der Relaxation hochgeladener Ionen an Festkörperoberflächen auftreten.

Hierfür wurde eine numerische Simulation (EDCOM) und mit ihr bestehende theoretische Annahmen zur Beschreibung der Mechanismen oberhalb einer Festkörperoberfläche durch Modellieren des Energieverlustes der Elektronen und der Ionen im Festkörper dahingehend erweitert, dass die Beschreibung auch auf Regionen unterhalb der Oberfläche ausgedehnt wurde. Mit der erweiterten numerischen Simulation gelang es zum Einen die experimentell gefundene Energiebilanz am Beispiel für Kupfer zu bestätigen. Weiterhin ließ sich der Zuwachs der kinetischen Energie der Ionen vor der Oberfläche ermitteln und damit entscheiden, wie groß der Anteil der potenziellen Energie ist, welcher durch nukleare Wechselwirkung in den Festkörper eingetragen wird und wie groß selbiger Anteil ist, der über Elektronentransfer im elektronischen System des Festkörpers deponiert wird. Die Ausweitung der numerischen Rechnungen auf Regionen unterhalb der Oberfläche reproduzierten zudem erstmalig den aus Experimenten bekannten qualitativen Zusammenhang zwischen totaler Elektronenausbeute und kinetischer Energie der einfallenden hochgeladenen Ionen.

Ausblick

Für weiterführende Studien des Eintrags potenzieller Energie hochgeladener Ionen in Festkörperoberflächen ist zum Einen interessant, ob sich Unterschiede in der Relaxationsdynamik ergeben für die Verwendung von schwereren Projektilionen und damit verbundenem höherem Ladungszustand respektive höherer kinetischer Energie. Zudem sollte eine kalorimetrische Untersuchung von ionischen Leitern Lithiumfluorid (LiF) angestrebt werden. Das elektronische System von LiF ist dem eines Isolator sehr ähnlich, jedoch können Aufladungen der Oberfläche durch Einsetzen der Ionenleitung verhindert werden. Die Aufteilung der potenziellen Energie in eingetragene und emittierte Energie wird demnach nur von der Neutralisationsdynamik vor der Oberfläche beeinflusst und nicht von der Aufladung der Probe, wie im Falle der Siliziumdioxidprobe.

Vom jetzigen Verständnis her sollten sich bei kalorimetrischen Messungen an LiF dennoch Unterschiede zu den Messungen an Metallen und Halbleitern ergeben, da bereits elektronenspektro-

skopische Untersuchungen Unterschiede zwischen LiF und mit LiF-beschichtetem Gold hinsichtlich der Elektronenausbeute aufweisen. Würde dies bestätigt, so könnten folgende weitere Studien begonnen werden: Durch das Aufbringen dünner Metallschichten im Monolagenbereich auf ein LiF-Substrat sollte untersucht werden, welchen Einfluss die Oberflächenzusammensetzung auf die Neutralisationsdynamik und damit den Energieeintrag hat. Durch Variation der Schichtdicke kann ermittelt werden, bis zu welcher Tiefe gegebenenfalls ein Einfluss der Materialzusammensetzung besteht.

Sollte sich herausstellen, dass die Dicke keinen Einfluss hat, so würde deutlich, dass der Eintrag der potenziellen Energie maßgeblich abhängig ist von der Beschaffenheit der Oberfläche und damit von der Dynamik der Neutralisation der Ionen vor dem Eindringen in den Festkörper und weniger von der elektronischen Struktur des Basismaterials.

Weiterhin würde hiermit die Aussage von Khemliche et al. [24] bestätigt werden, dass nicht die Bandlücke des Materials Einfluss auf die Relaxation der Ionen hat, sondern die Dynamik vielmehr durch die Austrittsarbeit der Elektronen aus dem Material bestimmt wird.

Anhang A

A.1 Atomare Einheiten

- **Länge:**

$$l / \text{a.u.} = \frac{\hbar^2}{me^2} = 5,292 \cdot 10^{-11} \text{ m} \quad (\text{A.1})$$

- **Masse:**

$$m / \text{a.u.} = m_e = 9,11 \cdot 10^{-31} \text{ kg} \quad (\text{A.2})$$

- **Zeit:**

$$t / \text{a.u.} = \frac{\hbar^3}{me^4} = 2,419 \cdot 10^{-17} \text{ s} \quad (\text{A.3})$$

- **Geschwindigkeit:**

$$|\tilde{v}| / \text{a.u.} = \frac{e^2}{\hbar} = 2,188 \cdot 10^6 \text{ ms}^{-1} \quad (\text{A.4})$$

- **Energie:**

$$E / \text{a.u.} = \frac{me^4}{\hbar^2} = 27,21 \text{ eV} \quad (\text{A.5})$$

- **Kraft:**

$$|\vec{F}| / \text{a.u.} = \frac{m^2 e^6}{\hbar^4} = 8,239 \cdot 10^{-8} \text{ N} \quad (\text{A.6})$$

- **elektrische Ladung:**

$$Q / \text{a.u.} = e = 1,602 \cdot 10^{-19} \text{ C} \quad (\text{A.7})$$

- **elektrisches Potenzial:**

$$\Phi / \text{a.u.} = \frac{me^3}{\hbar^2} = 27,21 \text{ V} \quad (\text{A.8})$$

- **elektrisches Feld:**

$$|\vec{E}| / \text{a.u.} = \frac{m^2 e^5}{\hbar^4} = 5,142 \cdot 10^{-11} \text{ Vm}^{-1} \quad (\text{A.9})$$

A.2 Elektrifizierung der Zwei-Quellenanlage

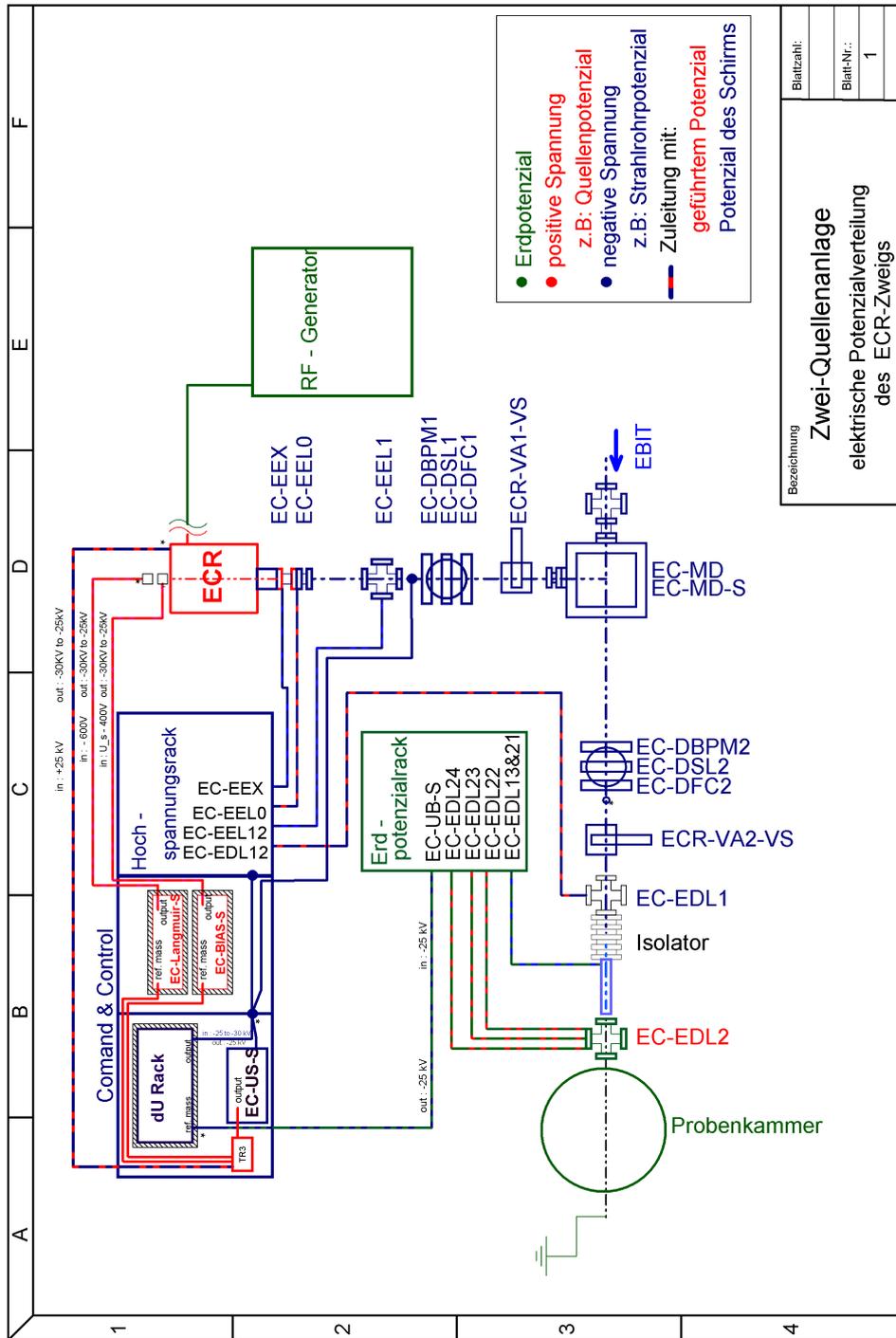


Abbildung A.1: Übersicht der elektrischen Potenziale an der Zwei-Quellenanlage

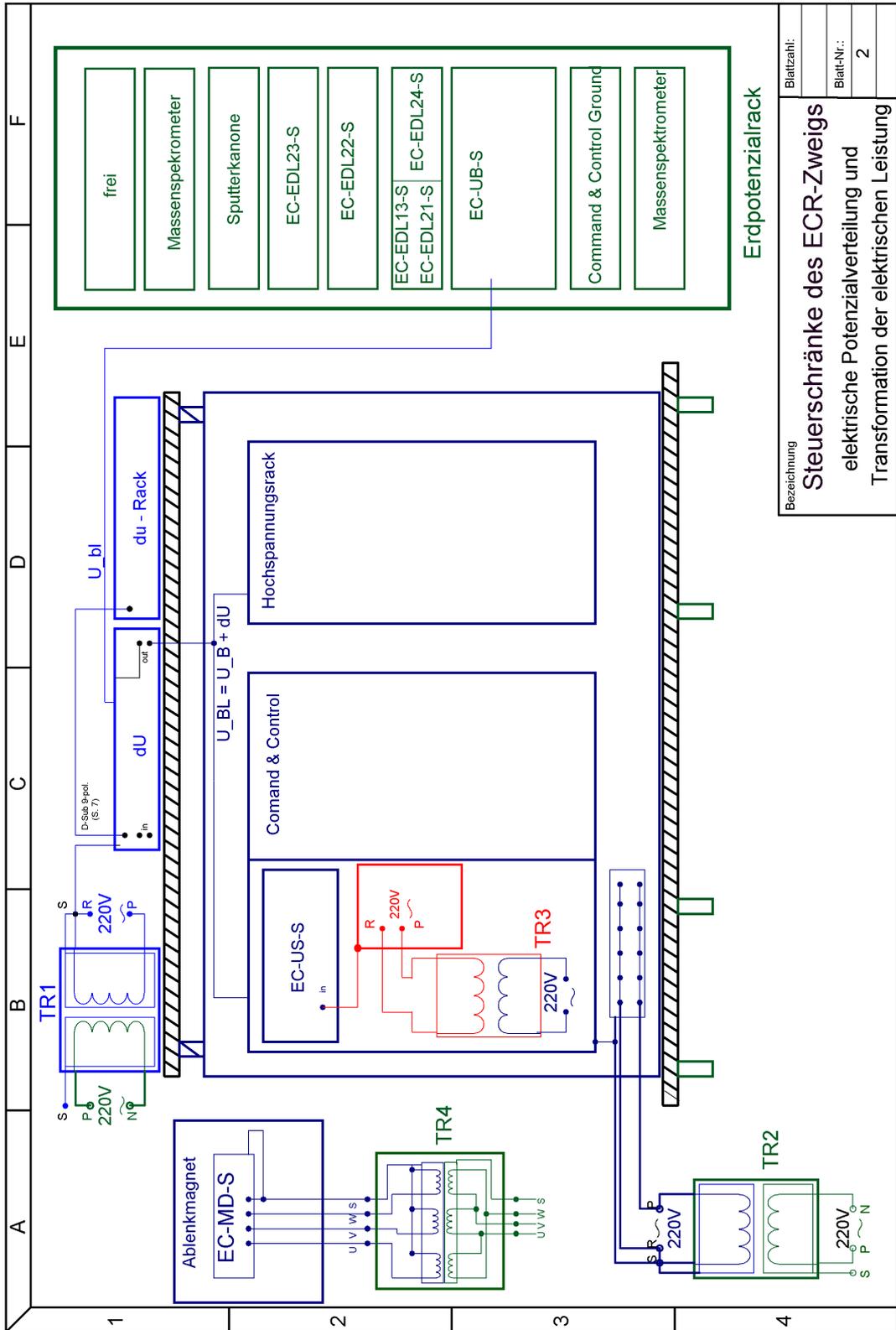


Abbildung A.2: Potenzialverteilung der Steuerschranke und Stromlaufplan

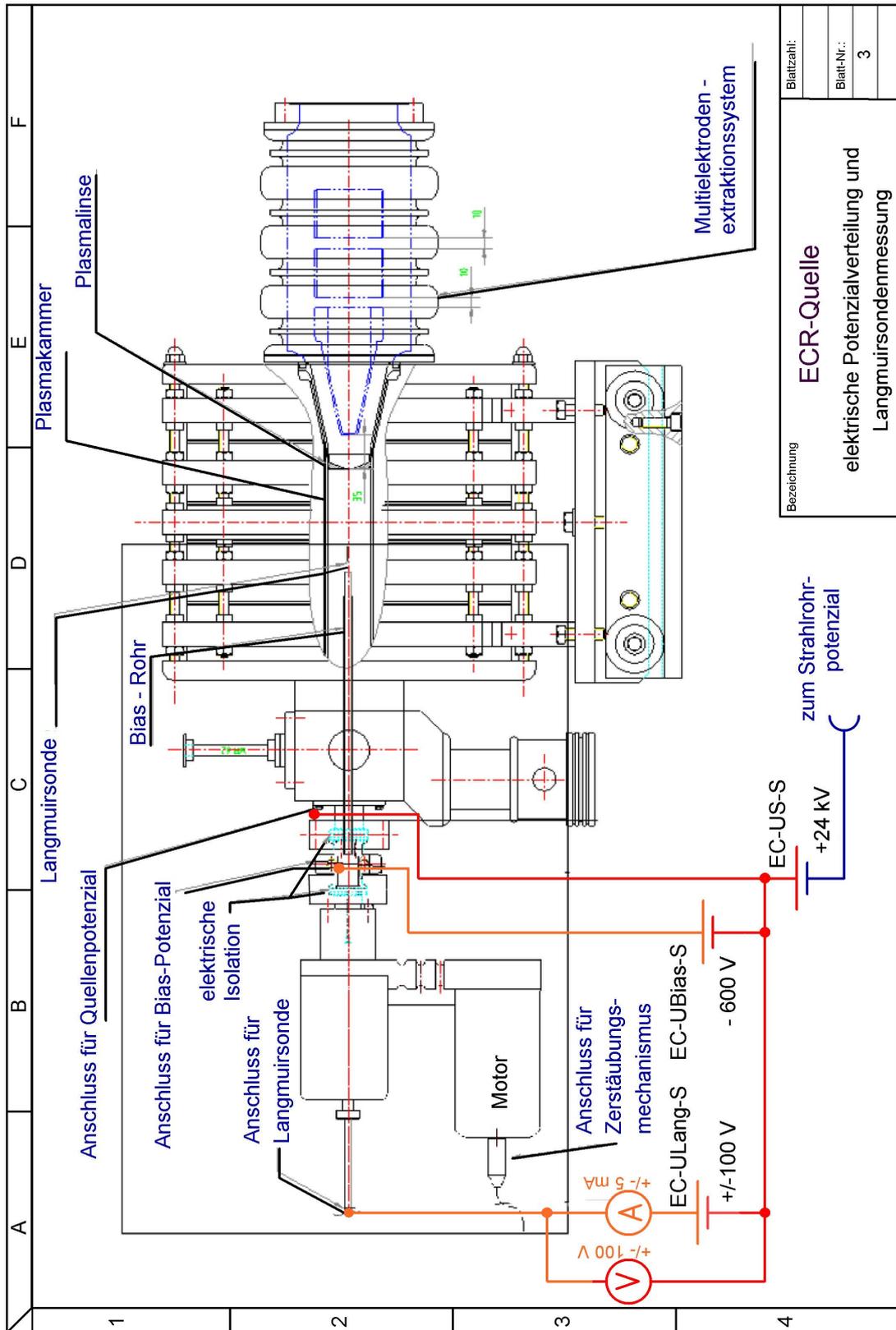


Abbildung A.3: Potenzialverteilung an der ECR-Quelle mit Anschlussschema der Bias-Spannung und der Langmuirsonde

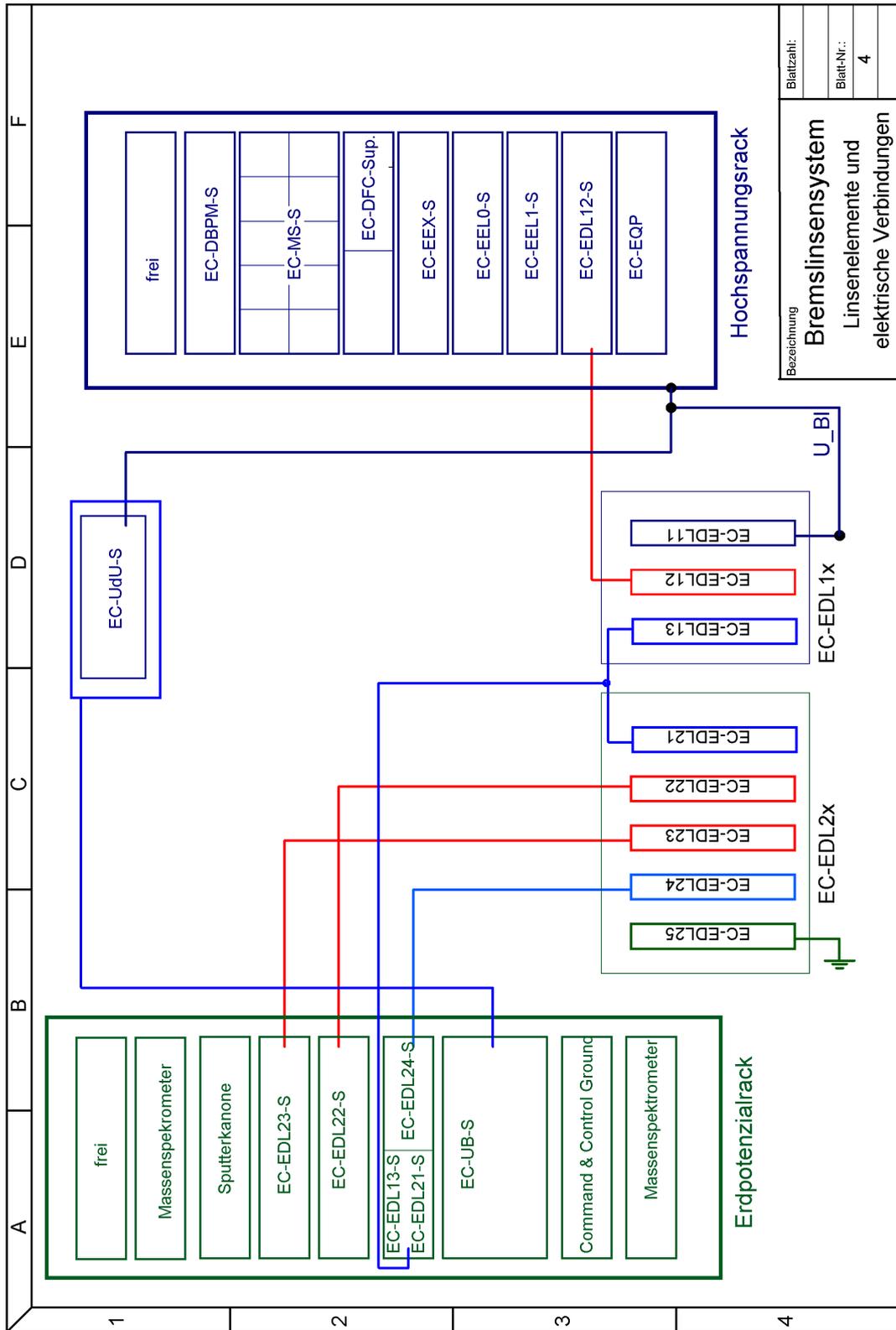


Abbildung A.4: Elektrische Verbindungen zwischen Bremslinsensystem und Spannungsversorgungen

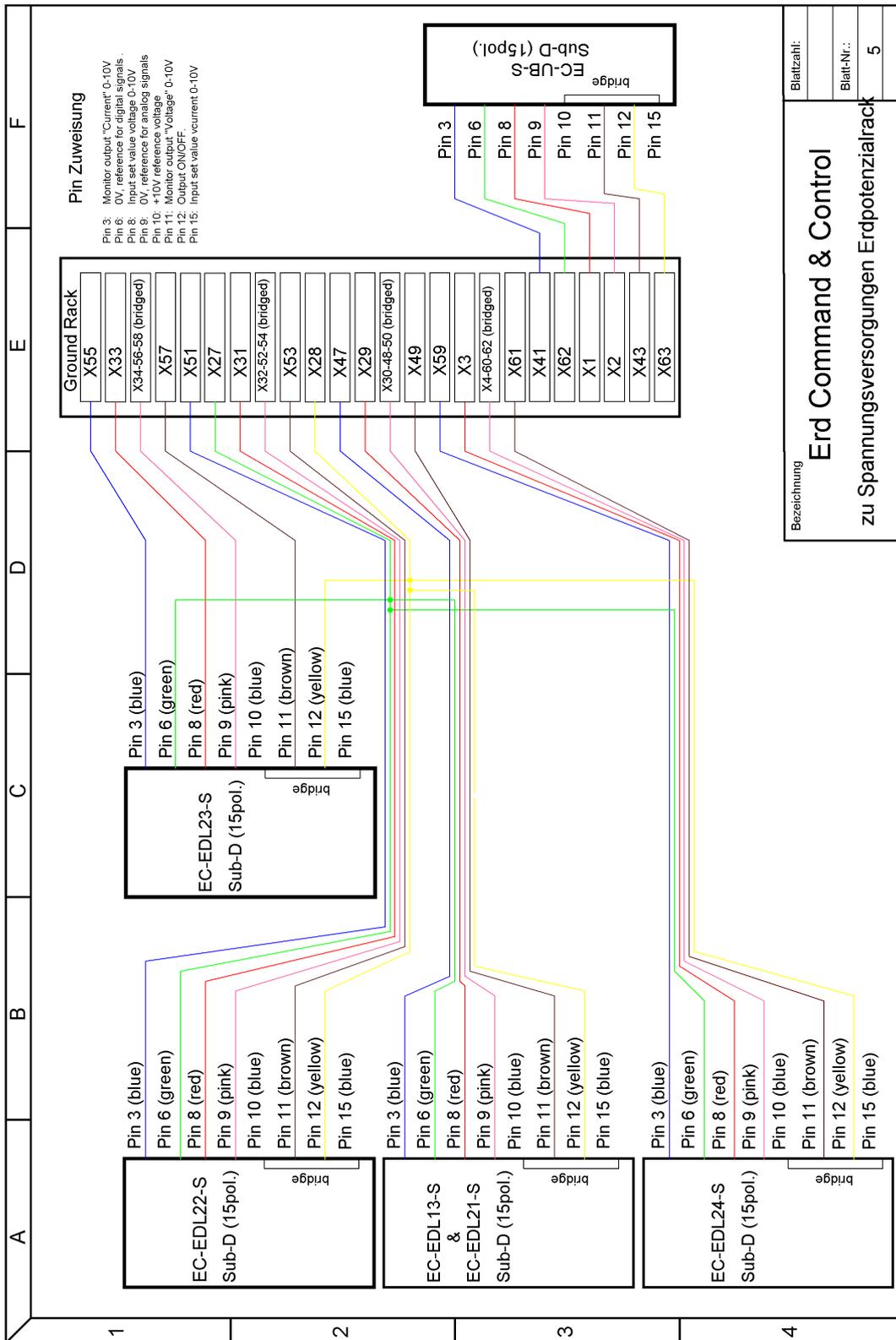


Abbildung A.5: Verbindungen zwischen Erdpotenzialsteuerschrank und Erd-Command & Control-Einheit

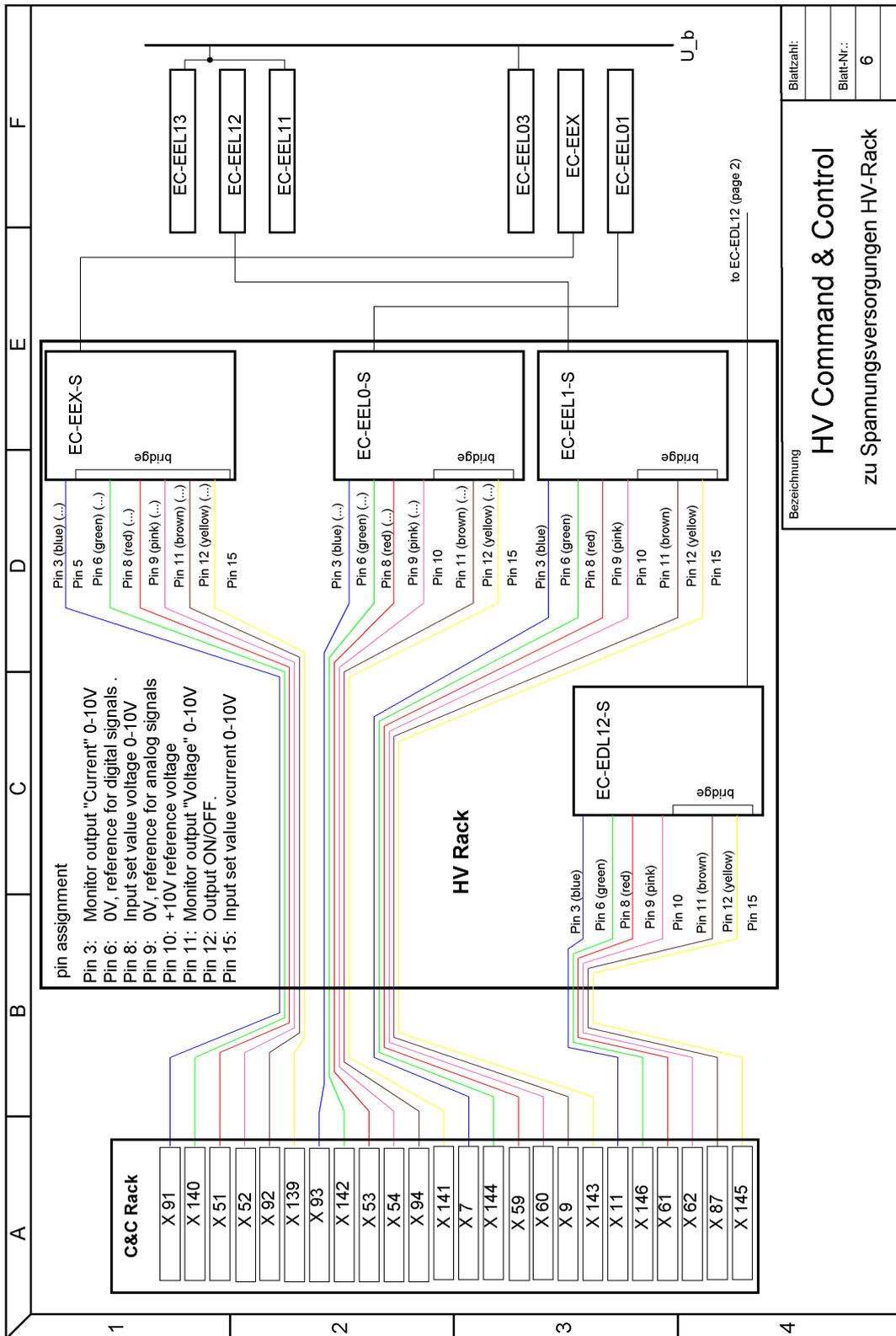


Abbildung A.6: Verbindungen zwischen Hochspannungsrack und Hochspannungs-Command & Control-Einheit

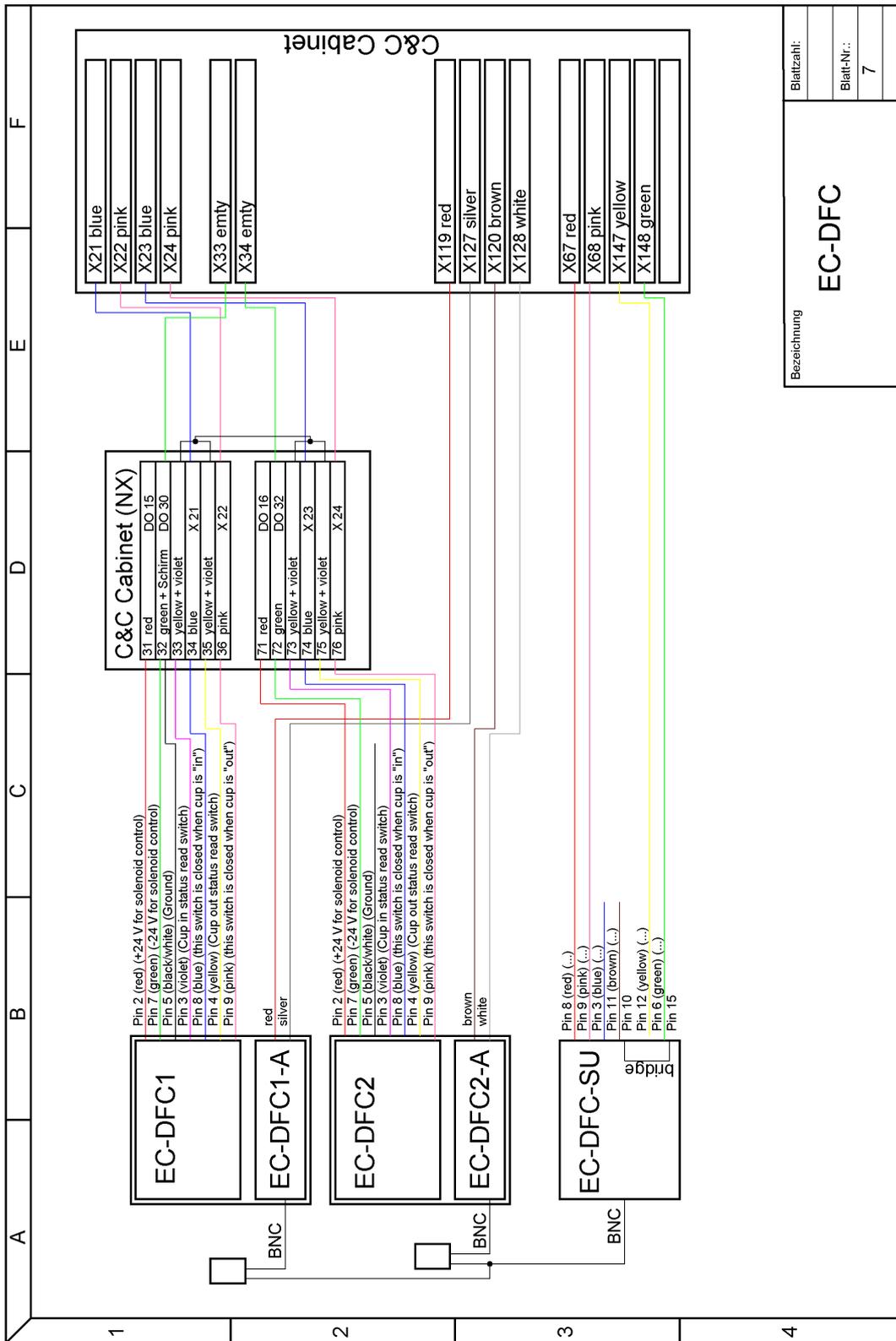


Abbildung A.7: Ansteuerung der Faraday-Becher des ECR-Zweigs

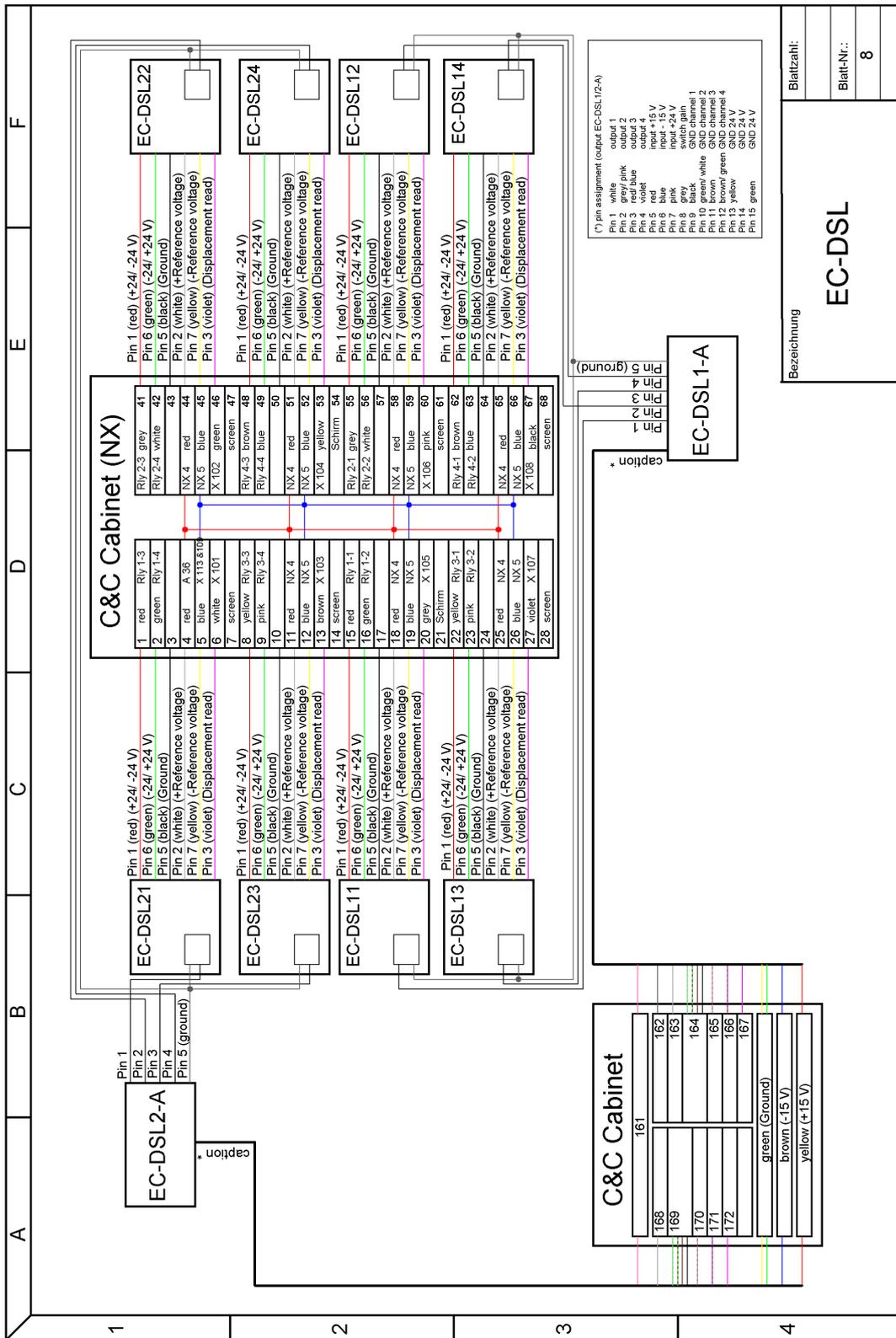


Abbildung A.8: Ansteuerung der Schlitzsysteme der Zwei-Quellenanlage

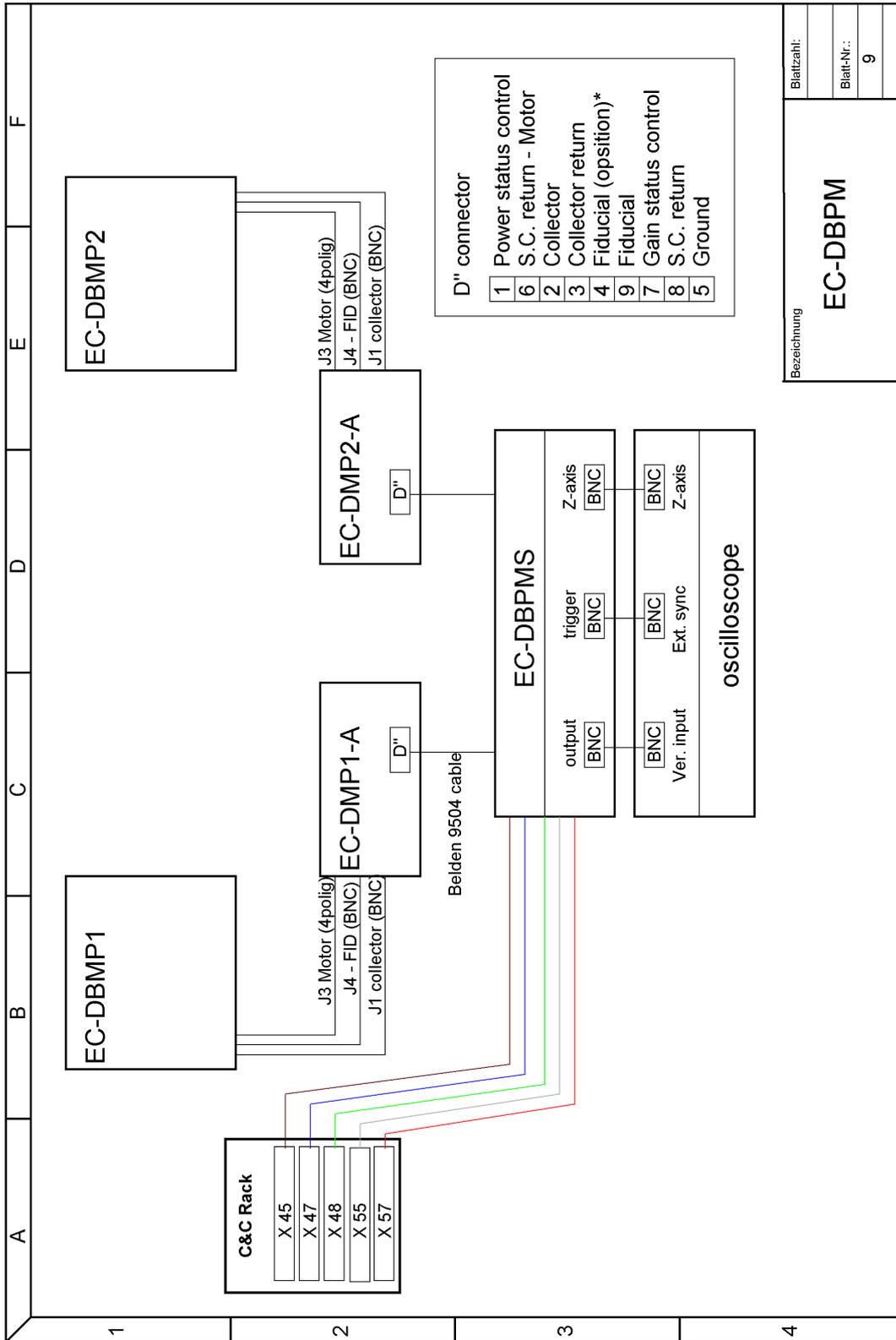


Abbildung A.9: Ansteuerung des Strahlprofilmonitors der ECR-Quelle

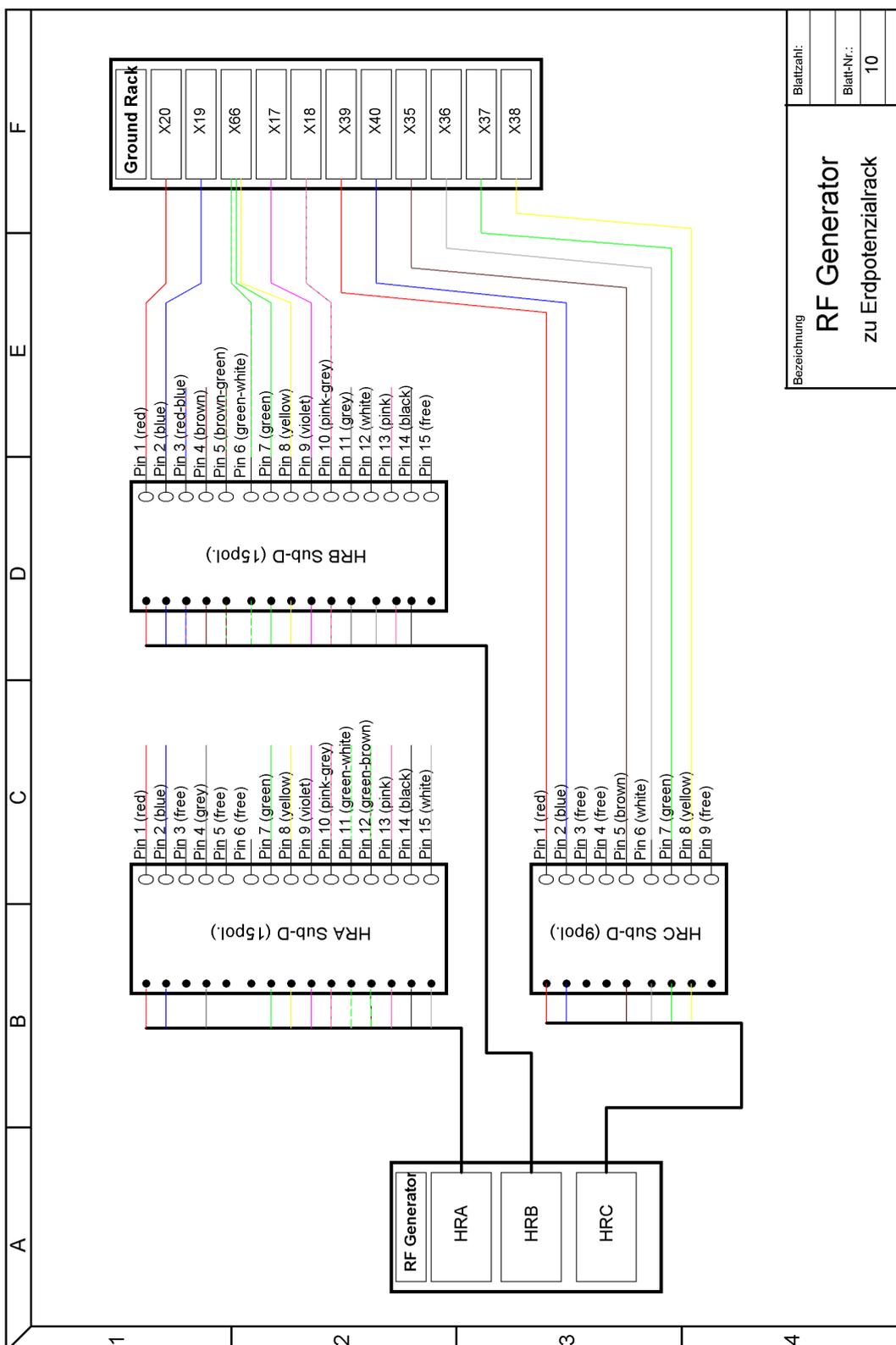


Abbildung A.10: Ansteuerung des Mikrowellengenerators der ECR-Quelle

A.3 Strahlkanalparameter

	U_{Rest} kV	U_{Quelle} kV	$U_{\text{Strahlrohr}}$ kV	$U_{\text{ECR-EEL1}}$ kV	$U_{\text{ECR-EBL12}}$ kV	$U_{\text{ECR-EBL21}}$ kV	$U_{\text{ECR-EBL22}}$ kV	$U_{\text{ECR-UBL23}}$ kV	$U_{\text{ECR-BL24}}$ kV
Simulation	24,0	24,0	0	-35,5	13,5	0	0	0	0
Experiment	24,0	24,0	0	≈ -35	12,5	0	-1,5	-0,3	0
Simulation	20,0	24,0	-4,0	-35,5	13,5	-5,0	0	0	0
Experiment	20,0	24,0	-4,0	≈ -35	9,0	-5,0	-2,0	-1,2	-0,03
Simulation	10,0	24,0	-14,0	-35,5	15,4	-5,0	-10,0	-2,0	-0,050
Experiment	10,0	24,0	-14,0	≈ -35	13,1	-5,0	-10,0	0,8	0
Simulation	8,0	24,0	-16,0	-35,5	16,4	-5,0	-12,0	-2,0	-0,050
Experiment	8,0	24,0	-16,0	≈ -35	14,8	-5,0	-12,7	-3,5	0
Simulation	5,0	24,0	-19,0	-35,5	16,4	-5,0	-12,0	-2,0	-0,050
Experiment	5,0	24,0	-19,0	≈ -35	15,0	-5,0	-12,0	-4,0	0
Simulation	2,0	24,0	-22,0	-35,5	16,4	-5,0	-10,0	-3,0	-0,05
Experiment	2,0	24,0	-22,0	≈ -35	14,3	-5,0	-7,0	-4,2	-007
Simulation	1,0	24,0	-23,0	-35,5	9,6	-5,0	-9,5	-2,4	-0,05
Experiment	1,0	24,0	-23,0	≈ -35	7,7	-5,0	-9,0	-3,54	0
Simulation	0,5	24,0	-23,5	-35,5	8,9	-5,0	-3,6	-1,8	-0,05
Experiment	0,42	24,0	-23,58	≈ -35	9,5	-5,0	-5,9	-0,8	-0,1
Simulation	0,2	24,0	-23,8	-35,5	8,8	-5,0	-2,0	-1,3	-0,070
Experiment	0,18	24,0	-23,82	≈ -35	9,2	-5,0	-1,8	-1,7	-0,05
Simulation	0,1	24,0	-23,9	-35,5	8,7	-5,0	-2,2	-1,4	-0,130
Experiment	0,13	24,0	-23,87	≈ -35	9	-5,0	-4,1	-1,2	-0,039
Simulation	0,08	24,0	-23,92	-35,5	8,7	-5,0	-2,07	-1,4	-0,17
Experiment	0,08	24,0	-23,92	≈ -35	10,1	-5	-3,8	-1,8	-0,02

U_{Rest} kV	U_{Quelle} kV	$U_{\text{Strahlrohr}}$ kV	$U_{\text{ECR-EEL1}}$ kV	$U_{\text{ECR-EBL12}}$ kV	$U_{\text{ECR-EBL21}}$ kV	$U_{\text{ECR-EBL22}}$ kV	$U_{\text{ECR-UBL23}}$ kV	$U_{\text{ECR-BL24}}$ kV	
Simulation	0,05	24,0	-23,95	-35,5	8,5	-5,0	-1,98	-1,26	-0,21
Experiment	0,05	24,0	-23,95	≈ -35	10,2	-5,0	-2,3	-1,2	0
Simulation	0,02	24,0	-23,98	-35,5	8,5	-5,0	-2,0	-1,1	-0,53
Experiment	0,02	24,0	-23,98	≈ -35	10,2	-5,0	-1,8	-1,2	0
Simulation	0,01	24,0	-23,98	-35,5	8,5	-5,0	-2,0	-1,1	-0,63
Experiment	0,01	24,0	-23,99	≈ -35	11,0	-5,0	-1,8	-0,9	-0,015

Tabelle A.1: Vergleich der mit *Simion* simulierten und experimentell bestimmten elektrostatischen Strahlkanalparameter der Zwei-Quellenanlage für verschiedene Restbeschleunigungsspannungen.

A.4 Herleitung der Abhängigkeit der inneren potenziellen Energie vom Ladungszustand

Dieser Anhang dient der Darstellung einer semiklassischen Herleitung der Abhängigkeit der inneren potenziellen Energie (Summe der Ionisationsenergien) vom Ladungszustand des Ions. Hierbei wird davon ausgegangen, dass zur Ionisation eines q -fach geladenen Ions $X^{(q-1)+}$ zum Ladungszustand X^{q+} das am wenigsten gebundene Elektron im elektrischen Potenzial $\Phi(q_{\text{eff}}, \langle r \rangle_n)$ der effektiven Kernladung $q_{\text{eff}} = q$ vom Ort $\langle r \rangle_n$, dem mittleren Schalenradius der Schale n , ins Unendliche ($\Phi(q_{\text{eff}}, r \rightarrow \infty) = 0$) entfernt wird. Das elektrische Potenzial kann wie folgt angegeben werden:

$$\Phi(q, \langle r \rangle_n) = -\frac{1}{4\pi\epsilon_0} \cdot \frac{qe^2}{\langle r \rangle_n}. \quad (\text{A.10})$$

Aus dem Bohrschen Atommodell [139, 140, 141, 142] ergibt sich die Bindungsenergie, respektive die Ionisationsenergie des Elektrons aus:

$$\begin{aligned} E_{\text{ges}} = -I(q, \langle r \rangle_n) &= E_{\text{kin}} + \Phi \\ &= \frac{1}{2}m_e v^2 - \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \cdot \frac{qe^2}{\langle r \rangle_n}. \end{aligned} \quad (\text{A.11})$$

Mit der klassischen Bedingung für stabile Elektronenorbitale [140]:

$$\begin{aligned} |\vec{F}_{\text{Zentr}}| &= |\vec{F}_{\text{Coul}}| \\ m \frac{v^2}{r} &= \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \frac{1}{r^2}, \end{aligned} \quad (\text{A.12})$$

folgt für die Ionisationsenergie:

$$\begin{aligned} -I(q, \langle r \rangle_n) &= \frac{1}{2} \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \frac{1}{\langle r \rangle_n} - \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \cdot \frac{qe^2}{\langle r \rangle_n} \\ &= -\frac{1}{2} \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \frac{1}{\langle r \rangle_n}. \end{aligned} \quad (\text{A.13})$$

Mit den Annahmen der semiklassischen Bohrschen Atomtheorie findet man folgenden Zusammenhang für den mittleren Orbitalradius in Abhängigkeit der effektiven Kernladung und der Hauptquantenzahl n [141, 140]:

$$\langle r \rangle_n = \frac{4\pi\epsilon_0 \hbar^2}{m q e^2} \cdot n^2. \quad (\text{A.14})$$

Somit folgt für die Ionisationsenergie der Elektronen der Hauptquantenzahl n :

$$I(q, n) = \frac{1}{2} \frac{1}{(4\pi\epsilon_0 \hbar)^2} \frac{m_e q^2 e^4}{n^2}. \quad (\text{A.15})$$

Mit der Feinstrukturkonstante α :

$$\alpha = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\hbar c} \approx \frac{1}{137} \quad (\text{A.16})$$

folgt:

$$I(q, n) = \frac{1}{2} m_e \alpha^2 c^2 \frac{q^2}{n^2} \quad (\text{A.17})$$

Da neben dem elektrischen Potenzial der mittlere Orbitalradius $\langle r \rangle_n$ indirekt proportional zu q wächst, folgt innerhalb einer Schale eine quadratische Zunahme der Ionisationsenergie mit dem Ladungszustand [143]. Die innere potenzielle Energie eines Ions mit dem Ladungszustand q_f , bei dem nur die äußerste Schale ionisiert wurde, lässt sich durch die Summe der Ionisationsenergien $I(q_i)$ mit $q_i < q_f$ ausdrücken:

$$\begin{aligned} E_{\text{pot}}(q_f) &= \sum_{q_i=1}^{q_f} I(q_i) \\ &= \frac{1}{2} m_e \alpha^2 c^2 \frac{1}{n^2} \sum_{q_i=1}^{q_f} q_i^2 \end{aligned} \quad (\text{A.18})$$

$$= \frac{1}{2} m_e \alpha^2 c^2 \frac{1}{n^2} \cdot \frac{2q^3 + 3q^2 + q}{6}. \quad (\text{A.19})$$

Zur Anpassung dieser semiklassischen Abschätzung der potenziellen Energie an jene Werte mit dem Cowan-Code [66, 67, 68, 144] ermittelt und jene Werte für die deponierte und emittierte potenzielle Energie wurde in Gleichung (A.19) ein Anpassungsfaktor k eingeführt. Es folgt aus Gleichung (A.19) folgende Anpassungsfunktion:

$$f(q) = k \cdot \frac{1}{2} m_e \alpha^2 c^2 \frac{1}{n^2} \cdot \frac{2q^3 + 3q^2 + q}{6}. \quad (\text{A.20})$$

Zum Vergleich sind in Abbildung A.11 die jeweiligen Werte für die innere potenzielle Energie, die deponierte potenzielle Energie und die emittierte potenzielle Energie mit den zugehörigen angepassten Funktionen in Abhängigkeit vom Ladungszustand der Argonionen dargestellt. Für die jeweiligen Datensätze wurden folgende Anpassungsparameter ermittelt:

	k
E_{pot}	1,08
E_{dep}	0.85
E_{emit}	0.11

Der Anpassungsparameter der inneren potenziellen Energie liegt sehr nahe bei eins, wodurch die gute Näherung der Abschätzung belegt wird. Weiterhin ist festzustellen, dass durch die Kurve im mittleren Bereich der Darstellung, bei Ladungszuständen $q = 3$ bis $q = 6$ die potenzielle Energie, respektive die Bindungsenergien der ionisierten Elektronen etwas unterbewertet ist. Dies lässt

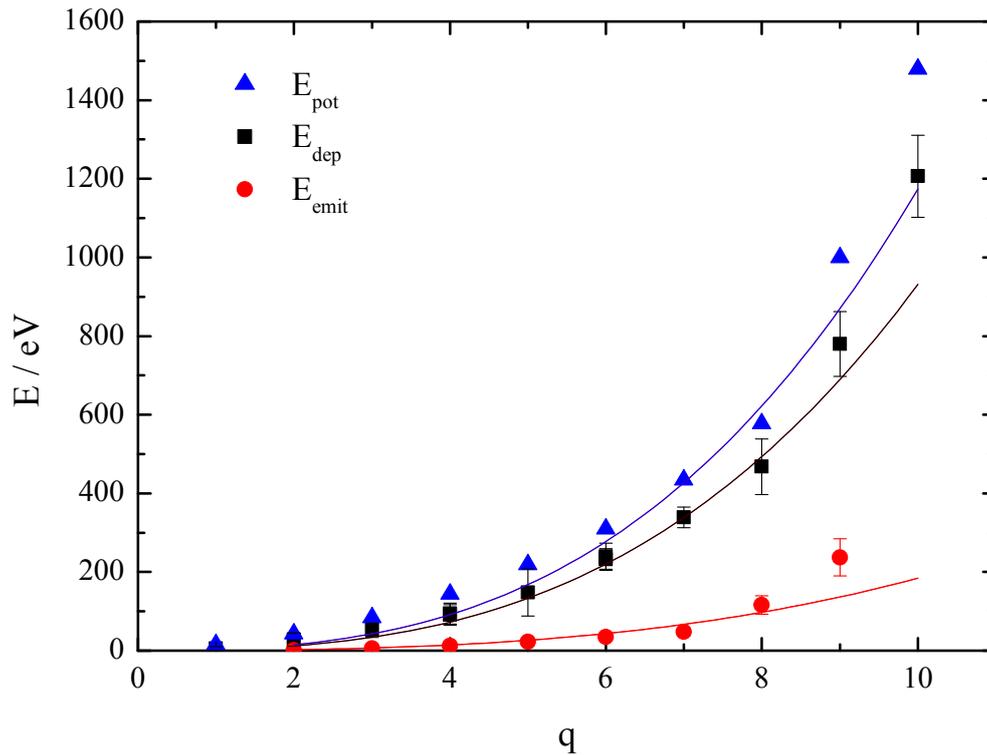


Abbildung A.11: Vergleich der mittels Cowan-Code berechnete potenzielle Energie E_{pot} (blaue Dreiecke), mittels Kalorimetrie gemessene deponierte potenzielle Energie E_{dep} (schwarze Vierecke) und mittels Elektronenspektroskopie bestimmte emittierte potenzielle Energie E_{emit} (rote Kreise) über dem Ladungszustand des Argonions

sich maßgeblich darauf zurückführen, dass in der Näherungsformel (A.19) von einer vollständigen elektrostatischen Abschirmung des Atomkerns durch die Hüllenelektronen ausgegangen wird ($q_{\text{eff}} = q$). Dies ist besonders für jene Elektronen, die sich in der zu ionisierenden Schale (M-Schale) aufhalten, nicht korrekt (siehe Kapitel 2.2.2.2 Seite 39 bzw. [77, 78, 79]). Eine unvollständige Abschirmung des Kernpotenzials korrigiert die Ionisationsenergie und damit die potenzielle Energie zu größeren Werten. Weitere jedoch kleinere unberücksichtigte Korrekturen sind die sogenannten atomaren Feinstrukturbeiträge, wie die Spin-Bahn-Kopplungswechselwirkung, der Darwin-Effekt und relativistische Effekte.

Diese Effekte bleiben bei der oben beschriebenen weitestgehend auf dem Bohrschen Atommodell beruhenden Abschätzung unberücksichtigt. Ebenfalls wird für Ladungszustände größer als acht die Energie zu niedrig abgeschätzt, da das hierbei als letztes zu entfernende Elektron einer Schale mit kleinerer Hauptquantenzahl angehört. Dieser Schale ist ebenfalls ein anderer mittlerer Schalenradius zugeordnet.

Solange die Ionisation innerhalb einer Schale stattfindet, gelingt es im Rahmen der getroffenen semiklassischen Vereinfachungen mit obiger Abschätzung (A.19) sehr gut, den Zusammenhang der inneren potenziellen Energie eines Ions und dessen Ladungszustand zu beschreiben.

Literaturverzeichnis

- [1] T. Schenkel, A. V. Hamza, A. V. Barnes, D. H. Schneider, Interaction of slow, very highly charged ions with surfaces, *Progress in Surface Science* 61 (1999) 23.
- [2] U. Kentsch, H. Tyrroff, G. Zschornack, W. Möller, Retention of the potential energy of multiply charged argon ions incident on copper, *Phys. Rev. Lett.* 87 (2001) 105504.
- [3] H. D. Hagstrum, Electron ejection from Ta by He^+ , He^{++} , and He_2^+ , *Phys. Rev.* 91 (1953) 543.
- [4] H. D. Hagstrum, Auger ejection of electrons from tungsten by noble gas ions, *Phys. Rev.* 96 (1954) 325.
- [5] H. D. Hagstrum, Theory of Auger Ejection of Electrons from Metals by Ions, *Phys. Rev.* 96 (1954) 336.
- [6] R. Geller, *Electron Cyclotron Resonanz Ion Sources and ECR Plasmas*, Institute of Physics Publishing Bristol and Philadelphia, 1996.
- [7] U. A. Arifov, L. M. Kishinevskii, E. S. Mukhamadiev and E. S. Parilis, Identification of multiply charged ions by electron emission, *Sov. Phys. Tech. Phys.* 18 (1973) 118.
- [8] M. Delaunay, M. Fehringer, R. Geller, *Proc. XIV Int. Conf. on Physics of Electronic and Atomic Collisions Conf.* (1985) 477.
- [9] M. Delaunay, M. Fehringer, R. Geller, D. Hitz, P. Varga, H. Winter, Electron emission from a metal surface bombarded by slow highly charged ions, *Phys. Rev. B* 35 (1987) 4232.
- [10] S. T. de Zwart, *Doktorarbeit*, University of Groningen (1987).
- [11] S. T. de Zwart, A. G. Drentje, R. Boers, A. L. and Morgenstern, Electron emission induced by multiply charged Ar ions impinging on a tungsten surface, *Surf. Sci.* 217 (1989) 298.
- [12] D. M. Zehner, S. H. Overbury, C. C. Havener, Electron emission from the interaction of multiply charged ions with a Au(110) surface, *Surf. Sci.* 178 (1986) 359.

- [13] F. W. Meyer, S. H. Overbury, C. C. Havener, P. A. Z. van Emmichoven, D. M. Zehner, Evidence for above-surface and subsurface neutralization during interactions of highly charged ions with a metal target, *Phys. Rev. Lett.* 67 (1991) 723.
- [14] F. W. Meyer, S. H. Overbury, C. C. Havener, P. A. Z. van Emmichoven, J. Burgdörfer, D. M. Zehner, Electron emission during interactions of multicharged N and Ar ions with Au(110) and Cu(001) surfaces, *Phys. Rev. A* 44 (1991) 7214.
- [15] J. Das, R. Morgenstern, Above-surface and below-surface electron emission from multiply charged ions interacting with metal surfaces, *J. Phys: Condens. Matter* 5 (1993) A255.
- [16] N. Stolterfoht, D. Niemann, M. Grether, A. Spieler, A. Arnau, C. Lemell, F. Aumayr, H. Winter, Structure and dynamics of hollow Ne atoms formed near a C and Al surface, *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B* 124 (1997) 303.
- [17] N. Stolterfoht, High Resolution Auger Spectroscopy in Energetic Ion Atom Collisions, *Physics Report* 146 (1987) 315.
- [18] J. Limburg, J. Das, S. Schippers, R. Hoekstra, R. Morgenstern, Coster-Kronig Transitions in Hollow Atoms Created during Highly Charged Ion-Surface Interactions, *Phys. Rev. Lett.* 73 (1994) 786.
- [19] S. Schippers, J. Limburg, J. Das, R. Hoekstra, R. Morgenstern, Atomic structure calculations of KLL Auger spectra from highly charged ion–solid-surface collisions, *Phys. Rev. A* 50 (1994) 540.
- [20] J. Mrogenda, Bestimmung des Emissionsortes von Auger-Elektronen aus hyperthermalen hochgeladenen Ionen an Festkörperoberflächen, Doktorarbeit, Westfälische Wilhelms-Universität Münster (2001).
- [21] J. Thomaschewski, J. Bleck-Neuhaus, M. Grether, A. Spieler, N. Stolterfoht, Hollow nitrogen atoms probing the jellium edge in front of a Au(111) surface, *Physical Review A* 57 (1998) 3665.
- [22] C. Kittel, Einführung in die Festkörperphysik, R. Oldenbourg Verlag München Wien, 1999.
- [23] J. Limburg, S. Schippers, I. Hughes, R. Hoekstra, R. Morgenstern, S. Hustedt, N. Hatke, W. Heiland, Velocity dependence of KLL Auger emission from hollow atoms formed during collisions of hydrogenic N^{6+} ions on surfaces, *Phys. Rev. A* 51 (1995) 3873.
- [24] H. Khemliche, T. Schlathölter, R. Hoekstra, R. Morgenstern, Hollow Atom Dynamics on LiF Covered Au(111): Role of the Surface Electronic Structure, *Phys. Rev. Lett.* 81 (1998) 1219.

- [25] J. P. Briand, L. de Billy, P. Charles, S. Essabaa, P. Briand, R. Geller, J. P. Desclaux, S. Bli-man, C. Ristori, Production of hollow atoms by the excitation of highly charged ions in interaction with a metallic surface, *Phys. Rev. Lett.* 65 (1990) 159.
- [26] J.-P. Briand, S. Thuriez, G. Giardino, G. Borsoni, M. Froment, M. Eddrief, C. Sébenne, Observation of hollow atoms or ions above insulators and metal surfaces, *Phys. Rev. Lett.* 77 (1996) 1452.
- [27] F. Aumayr, H. Winter, J. Limburg, R. Hoekstra, R. Morgenstern, Comment on observation of hollow atoms or ions above insulator and metal surfaces, *Phys. Rev. Lett.* 79 (1997) 2590.
- [28] G. Wenzel, Über strahlungslose Quantensprünge, *Z. Phys.* 43 (1927) 524.
- [29] Kenneth D. Sevier, *Low Energy Electron Spectrometry*, John Wiley & Sons, Inc., 1972.
- [30] G. Zschornack, *Vorlesung experimentelle Atomphysik*, Technische Universität Dresden (2001).
- [31] M. Grasserbauer, H. J. Dudek, M. F. Ebel, *Angewandte Oberflächenanalyse*, Springer-Verlag, 1986.
- [32] M. Schulz, C. L. Cocke, S. Hagmann, M. Stöckli, H. Schmidt-Böcking, X-ray emission from slow highly charged Ar ions interacting with a Ge surface, *Phys. Rev. A* 44 (1991) 1653.
- [33] M. N. Mirakhmedov, Auger and x-ray spectra formed at highly charged ion neutralization near the metal surface, *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B* 98 (1995) 429.
- [34] J. P. Briand, B. d'Etat-Ban, D. Schneider, M. Briere, V. Decaux, J. McDonald, S. Bardin, Time for the empty L shell of a hollow atom to be filled, *Phys. Rev. A* 53 (1996) 2194.
- [35] J. P. Briand, D. Schneider, S. Bardin, H. Khemliche, J. Jin, Z. Xie, M. Prior, X-ray studies of the interaction of N, O, and Ne hydrogenlike ions below surfaces, *Phys. Rev. A* 55 (1997) 3947.
- [36] H. Hanafy, E. Lindroth, Z. D. Pesic, Measurements of the Relaxation of Hollow Atoms in Solids, *Annual Report* (2000) 43.
- [37] P. Beiersdorfer, R. Olson, G. Brown, H. Chen, C. Harris, P. Neill, L. Schweikhard, X-ray emission following low-energy charge exchange collisions of highly charged ions, *Phys. Rev. Lett.* 85 (2000) 5090.
- [38] S. Radzhabov and R. Rakhimov, Secondary emission of alkali-halide crystals under the action of bombardment by multiply charged $\text{Ar}^+ - \text{Ar}^{5+}$ and $\text{Kr}^+ - \text{Kr}^{5+}$ ions, *Izv. Akad. Nauk SSSR, Ser. Fiz* 40 (1976) 2543.

- [39] S. T. de Zwart, Fried T., D. O. Boerma, Sputtering of silicon by multiply charged ions, *Surface Science Letters* 177 (1986) L939.
- [40] T. Schenkel, D. Schneider, Investigations of the interactions of highest charge state ions with surfaces, *Physica Scripta* 53 (1996) 228.
- [41] T. Neidhart, F. Pichler, F. Aumayr, H. Winter, M. Schmid, P. Varga, Potential sputtering of lithium fluoride by slow multicharged ions, *Phys. Rev. Lett.* 74 (1995) 5280.
- [42] M. Sporn, G. Libiseller, T. Neidhart, M. Schmid, F. Aumayr, H. Winter, P. Varga, M. Grether, D. Niemann, N. Stolterfoht, Potential sputtering of clean SiO₂ by slow highly charged ions, *Phys. Rev. Lett.* 79 (1997) 945.
- [43] I. S. Bitenskii, E. Murakhmetov, M. N. and Parilis, Sputtering of nonmetals by intermediate-energy multiply charged ions through a coulomb explosion, *Sov. Phys. Tech.* 24 (1979) 618.
- [44] T. Schenkel, M. Newman, T. Niedermayr, G. Machicoane, J. McDonald, A. Barnes, A. Hamza, J. Banks, B. Doyle, K. Wu, Electronic sputtering of solids by slow, highly charged ions:, *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B* 161-163 (2000) 65.
- [45] G. Hayderer, M. Schmid, P. Varga, H. Winter, F. Aumayr, L. Wirtz, C. Lemell, J. Burgdörfer, L. Hägg, C. O. Reinhold, Threshold for potential sputtering of LiF, *Phys. Rev. Lett.* 83 (1999) 3948.
- [46] L. P. Ratliff, R. Minniti, A. Bard, E. W. Bell, J. D. Gillaspay, D. Parks, Exposure of self-assembled monolayers to highly charged ions and metastable atoms, *Appl. Phys. Lett* 75 (1999) 590.
- [47] L. Laska, J. Krase, M. P. Stökli, C. W. Fehrenbach, Multiply charged ion-induced secondary electron emission from metals relevant for laser ion sources beam diagnostics, *Review of Scientific Instruments* 73 (2001) 776.
- [48] J. Burgdörfer, P. Lerner, F. Meyer, Above-surface neutralization of highly charged ions: The classical over-barrier model, *Physical Review A* 44 (1991) 5674.
- [49] H. Kurz, F. Aumayr, H. Winter, D. Schneider, M. Briere, J. W. McDonald, Electron emission and image-charge acceleration for the impact of very highly charged ions on clean gold, *Phys. Rev. A* 49 (1994) 4693.
- [50] F. Aumayr, H. Kurz, D. Schneider, M. Briere, J. McDonald, C. Cunningham, H. Winter, Emission of electrons from a clean gold surface induced by slow, very highly charged ions at the image charge acceleration limit, *Phys. Rev. Lett.* 71 (1993) 1943.

- [51] J. Burgdörfer, F. Meyer, Image acceleration of multiply charged ions by metallic surfaces, *Physical Review A* 47 (1993) 20.
- [52] H. Winter, Image charge acceleration of multi-charged argon ions in grazing collisions with an aluminium surface, *Europhys. Lett.* 18 (1992) 207.
- [53] C. Lemell, H. P. Winter, F. Aumayr, Image acceleration of highly charged ions by metal surfaces, *Phys. Rev. A* 53 (1996) 880.
- [54] N. Stolterfoht, A. Arnau, M. Grether, R. Köhrbrück, A. Spieler, R. Page, A. Saal, J. Thomaschewski, J. Bleck-Neuhaus, Multiple-cascade model for the filling of hollow Ne atoms moving below an Al surface, *Physical Review A* 52 (1995) 445.
- [55] J. Ducree, U. Casali, F. and Thumm, Extended classical over-barrier model for collisions of highly charged ions with conducting and insulating surfaces, *Physical Review A* 57 (1998) 338.
- [56] J. Ducree, U. Andrä, H. J. and Thumm, Improved Dynamic Simulation of Highly Charged Ion-Surface Collisions, *Physica Scripta*. T80 (1999) 220.
- [57] U. Thumm, J. Ducree, P. Kürpick, Charge transfer and electron emission in ion-surface interaction, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 157 (1999) 11.
- [58] B. Bahrim, U. Thumm, Charge-transfer dynamics in slow atom-surface collisions: a new close-coupling approach including continuum discretization, *Surface Science* 451 (1999) 1.
- [59] U. Bahrim, B. and Thumm, Electron transfer and orbital hybridization in slow collisions between excited hydrogen atoms and aluminum surfaces, *Surface Science* 521 (2002) 84.
- [60] John David Jackson, *Klassische Elektrodynamik*, Walter de Gruyter, 2002.
- [61] H. Winter, F. Aumayr, Hollow atoms, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* 32 (1999) R39.
- [62] J. Ducree, , H. J. Andrä, U. Thumm, Neutralization of hyperthermal multiply charged ions at surfaces: Comparison between the extended dynamical overbarrier model and experiment, *Physical Review A* 60 (1999) 3029.
- [63] B. Bahrim, Electron dynamics and level broadening in slow atomic interaction with metal surfaces and thin metallic films, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 164-165 (2000) 614.
- [64] Emil Y Sidky and C D Lin, Quantum mechanical calculation of ejected electron spectra for ion atom collisions, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* 31 (1998) 2949.

- [65] J. J. Ducree, Dynamik hyperthermischer hochgeladener Ionen an Oberflächen, Doktorarbeit, Westfälische Wilhelms-Universität Münster (1999).
- [66] R. D. Cowan, The Theory of Atomic Structure and Spectra, University of California Press, Berkley, 1981.
- [67] R. D. Cowan, Programm RCG MOD11 Calculation of Atomic Energy Levels and Spectra, Los Alamos National Laboratory (1993).
- [68] R. D. Cowan, Programs RCN Mod36 / RCN2 Mod36 Computation of Atomic Radial Wavefunctions, Los Alamos National Laboratory (1993).
- [69] L. D. Landau, J. M. Lifschitz, Lehrbuch der Theoretischen Physik (Band 3) Quantenmechanik, Akademie Verlag, 1988.
- [70] L. D. Landau, J. M. Lifschitz, Lehrbuch der Theoretischen Physik (Band 4) Quantenelektrodynamik, Akademie Verlag, 1991.
- [71] J. F. Ziegler, www.srim.org.
- [72] Y. Yamamura, Simulation of low-energy HCl-solid interaction, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 98 (1995) 400.
- [73] J. P. Biersack and J. F. Ziegler, Ion Implantation Techniques, Springer-Verlag, 1982, Kap. The Calculation of Ion Ranges in Solids with Analytic Solutions, 157.
- [74] Ziegler J. F., Biersack J. P., Littmark U., The Stopping and Range of Ions in Matter, Pergamon Press, 1985.
- [75] W. Eckstein, Computer Simulation of Ion-Solid Interactions, Springer-Verlag.
- [76] S. A. Deutscher, Y. Xiazhou, J. Burgdörfer, Accurate calculation of atomic resonances near surfaces, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 100 (1995) 336.
- [77] Douglas H., H. L. Z. Sampson, K. M. Ajaya, A Dirac-Fock-Slater approach to atomic structure for highly charged ions, Physical Review A .
- [78] F. Salvat, J. D. Martinez, J. Mayol, R. and Parellada, Analytical Dirac-Hartree-Fock-Slater screening function for atoms ($Z=1-92$), Physical Review A 36 (1987) 467.
- [79] W. F. Coleman, Slater Rules, lecture dep. of chemistry, wellesley college (2004).
- [80] M. F. Gu, FAC 1.0.9 Manual.
- [81] R. Köhrbrück, Elektronenemission bei der Wechselwirkung langsamer, hochgeladener Ionen mit Festkörperoberflächen, Doktorarbeit, Technische Universität Berlin (1992).

- [82] A. Spieler, Spektroskopie von Auger-Elektronen bei der Wechselwirkung langsamer hochgeladener Ionen mit Oberflächen, Doktorarbeit, TU Berlin, Berlin (1996).
- [83] H. A. Bethe, Bremsformel für Elektronen relativistischer Geschwindigkeit, *Ann. Physik* 5 (1930) 325.
- [84] A. E. S. Peterson, L. R. and Green, The relation between ionization yields, cross section and loss function, *J. Phys. B (Proc. Phys. Soc.* 2 (1968) 1.
- [85] H. Sygiyama, Stopping power formula for intermediated energy electrons, *Physics in Medicine and Biology* 30 (1984) 331.
- [86] S. Kanaya, K. and Okayama, Penetration and energy-loss of electrons in solid targets, *Journal of Physics D: Applied Physics* 5.
- [87] J. Sempau, E. Acosta, J. Baro, J. M. Fernández-Varea, F. Salvat, An algorithm for Monte Carlo simulation of coupled electron-photon transport, *Nuclear Instruments and Methods in Physics* 132 (1997) 377.
- [88] S. Tanuma, D. R. Powell, C. J. and Penn, Calculations of Electron Inelastic Mean Free Path, *Surface and Interface Analysis* 17 (1991) 911.
- [89] M. P. Cumpson, P. J. and Seah, Elastic Scattering Corrections in AES and XPS. II. Estimating Attenuation Length and Conditions Required for Valid Use in Overlayer/Substrate Experiments, *Surface and Interface Analysis* 25 (1997) 430.
- [90] J. F. Ostwald, Private Mitteilung.
- [91] C. Bieth, J. L. Bouly, J. C. Curdy, S. Kantas, P. Sortais, P. Sole, J. L. Vieux-Rochaz, Electron cyclotron resonance ion source for high currents of mono- and multicharged ion and general purpose unlimited lifetime application on implantation devices, *Review of Scientific Instruments* 71 (2000) 899.
- [92] C. Bieth, S. Kantas, P. Sortais, D. Kanjilal, G. Rodrigues, Recent development in ECR sources, *NUKLEONIKA* 48 (2003) 93.
- [93] I. G. Brown, *The Physics and Technology of Ion Sources*, John Wiley&Sons Inc, New York, 1998.
- [94] G. D. Shirkov, G. Zschornack, *Electron impact ion sources for charged heavy ions*, Vieweg, 1996.
- [95] W. Möller, Vorlesungsscript: Fundamental of Plasma Physics, Technische Universität Dresden (2005).

- [96] L. Müller, Gepulste Extraktion von hochgeladenen Ionen aus einer Plateau-Elektron-Zyklotron-Resonanz-Ionenquelle, Diplomarbeit, Westfälische Wilhelms-Universität Münster, 2000.
- [97] G. Zschornack, Vorlesung: Plasmaphysik, Technische Universität Dresden (2002).
- [98] F. Cap, Lehrbuch der Plasmaphysik und Magnetohydrodynamik, Springer Verlag, Berlin a.o., 1994.
- [99] K.-H. Spatschek, Theoretische Plasmaphysik, B.G. Teubner, Stuttgart und Leipzig, 1990.
- [100] D. Kost, Eine UHV-Apparatur zur Untersuchung des Leistungseintrags langsamer hochgeladener Ionen in Festkörperoberflächen: Aufbau und erste Experimente, Diplomarbeit, Institut für Ionenstrahlphysik und Materialforschung, TU Dresden (2003).
- [101] F. Ullmann, Untersuchung der Erzeugung hochgeladener Ionen in einer Raumtemperatur-Elektronenstrahl-Ionenfalle, Doktorarbeit, Technische Universität Dresden (2005).
- [102] B. A. Huber, C. Ristori, H. J. Andrä, P. A. Hervieux, M. Maurel, C. Guet, Excitation of multiply charged ions by electron impact, *Z. Phys. D - Atoms, Molecules and Clusters* 21 (1991) 203.
- [103] L. Kenez, S. Biri, J. Karacsony, Langmuir probe data analysis including the multi-component multiply charged nature of electron cyclotron resonance ion source plasma, *Nuclear Instruments and Methods in Physics B* 187 (2002) 249.
- [104] L. Kenez, S. Birl, J. Karacsony, Diagnostic research of plasma generated by a 14,5 GHz ECR ion source using Langmuir-probe, *Review of Scientific Instruments* 73 (2002) 2.
- [105] I. Langmuir, H. Mott-Smith, *Studies of Electric Discharges in Gases at Low Pressures*, General Electric Company 27 (1924) 449.
- [106] P. C. Stangeby, G. M. McCracken, Plasma Boundary Phenomena in Tokamaks, *Nuclear Fusion* 90 (1990) 1225.
- [107] J. Hopwood, C. R. Guarnieri, S. J. Whitehair, Langmuir probe measurements of radio frequency induction plasma, *J. Vac. Sci. Technol. A* 11 (1992) 152.
- [108] V. A. Godyak, R. B. Piejak, B. M. Alexandrovich, Probe diagnostic of non-Maxwellian plasmas, *Journal of Applied Physics* 73 (1992) 3667.
- [109] W. H. Kegel, *Plasmaphysik: Eine Einführung*, Springer-Verlag Berlin, 1998.
- [110] H. Rabinder, *Plasmadiagnostik an der ECR-Quelle der Rossendorfer Zweiquellenionenstrahlanlage*, Diplomarbeit, Technische Universität Dresden (2005).

- [111] U. Birke, Entwicklung von Diagnostikverfahren für die Untersuchung plasmarelevanter Größen an ECR-Ionenquellen, Diplomarbeit, Technische Universität Dresden (1991).
- [112] T. Werner, Modellierung des ECR-Plasmas zur Untersuchung des Einflusses von physikalischen Basisprozessen und des Feldeinschlusses auf einzelne Plasmaparameter, Diplomarbeit, Technische Universität Dresden (1997).
- [113] O. Tasset, Sputtering user' manual, Pantechnik, 12, rue Alfred Kastler - 14000 Caen (2004).
- [114] O. Tasset, Furnace User's Manual, Pantechnik, 12, rue Alfred Kastler - 14000 Caen (2004).
- [115] F. Röder, D. Kost, Konzipierung einer Langmuir-Einzelsonde für die ECR-Ionenquelle und Bestimmung des Plasmapotenzials in Abhängigkeit von Quellenparametern, Tech. rep., Forschungszentrum Rossendorf (2005).
- [116] D. W. O. Heddle, Electrostatic Lens Systems, 2nd Edition, Institute of Physics Publishing Bristol Philadelphia, 2000.
- [117] D. Henke, H. Tyrroff, R. Grötzschel, H. Wirth, Slow, Highly Charged Ions from a 7.25 GHz ECR Ion Source, Nucl. Instr. Meth. (1995) 528.
- [118] D. Henke, H. Tyrroff, Ion Optical System for Transport and Deceleration of Highly Charged Ions, Rev. Sci. Instrum. 67 (1996) 1070.
- [119] R. Bachmann, F. J. DiSalvo, T. H. Geballer, R. L. Greene, R. E. Howard, C. N. King, H. C. Kirsch, K. N. Lee, R. E. Schwall, H.-U. Thomas and R. B. Zubeck, Heat Capacity Measurements on Small Samples at Low Temperatures, Review of Scientific Instruments 43 (1972) 205.
- [120] R. J. Schutz, Thermal Relaxation calorimetry below 1K, Review of Scientific Instruments 45 (1974) 548.
- [121] R. E. Schwall, R. E. Howard and G. R. Stewart, Automated small sample calorimeter, Review of Scientific Instruments 46 (1975) 1054.
- [122] John P. Shepherd, Analysis of the lumped τ_2 effect in relaxation calorimetry, Review of Scientific Instruments 56 (1985) 273.
- [123] W. Hemminger, G. Höhne, Grundlagen der Kalorimetrie, Akademie-Verlag Berlin, 1980.
- [124] U. Kentsch, Untersuchung des Leistungseintrag hochgeladener langsamer Schwerionen in Festkörpertargets, Diplomarbeit, Institut für Kern- und Teilchenphysik, Technische Universität Dresden (2001).

- [125] D. H. G. Schneider and M. A. Briere, Investigations of the Interactions of Highest Charge State Ions with Surface, *Physica Scripta*. 53 (1995) 228.
- [126] N. Stolterfoht, Electron Emission in Heavy Ion - Atom Collisions, Doktorarbeit, Freie Universität Berlin (1971).
- [127] M. Grether, Auger-Elektronenemission bei Wechselwirkung langsamer, hochgeladener Neon-Ionen mit einer Aluminiumoberfläche, Doktorarbeit, Technische Universität Berlin (1995).
- [128] A. Itoh, Schneider D., G. Schiwietz, Selective production of Auger electrons from fast projectile ions studied by zero-degree Auger spectroscopy, *J. Phys B: At. Mol. Phys.* 16 (1983) 3965.
- [129] H. Lebius, B. A. Huber, Electron capture by metastable Ar^{8+} ($2p^53s$) ions in He, *Z. Phys. D - Atoms, Molecules and Clusters* 21 (1991) 271.
- [130] J. W. McDonald, D. Schneider, M. W. Clark, D. Dewitt, Observation of High Electron Emission Yield following Highly Charged Ion Impact (up to Th^{75+}) on Surfaces, *Physical Review Letter* 68 (1992) 15.
- [131] A. Arnau, F. Aumayr, P. Echenique, M. Grether, W. Heiland, J. Limburg, R. Morgenstern, P. Roncin, S. Shippers, R. Schuch, N. Stolterfoht, P. Varga, H. W. T.J.M. Zouros, Interaction of slow multicharged ions with solid surfaces, *Surf. Sci. Rep.* 27 (1997) 113.
- [132] J. Ducreé, J. Mrogenda, E. Reckels, M. Rütter, A. Heinen, C. Vitt, M. Venier, J. Leuker, H. J. Andrä, R. D. Muiño, Interactions of Ar^{9+} and metastable Ar^{8+} with a Si(100) surface, *Phys. Rev. A* 57 (1998) 1925.
- [133] J. Ducreé, J. Mrogenda, E. Reckels, H. J. Andrä, Fingerprints of early K-Auger emission from slow highly charged ions approaching surfaces, *Physica Scripta* T80 (1999) 217.
- [134] R. H. Fowler, L. W. Nordheim, Electron Emission in Intense Electric Fields, *Proc. Roy. Soc. Lond.* A119 (1928) 173.
- [135] M. Lenzlinger, E. H. Snow, Fowler-Nordheim Tunneling into Thermally Grown SiO_2 , *Journal of Applied Physics* 40 (1969) 278.
- [136] R. K. Chanana, K. McDonald, M. Di Ventura, S. T. Pantelides, G. Y. Chung, C. C. Tin, J. R. Williams, Fowler-Nordheim hole tunneling in p-SiC/ SiO_2 structures, *Applied Physics Letters* 77 (2000) 2560.
- [137] G. Zschornack, F. Ullmann, Dresden EBIT Homepage, <http://www.dresden-ebit.de>.

-
- [138] B. Manil, G. E. Ntamack, H. Lebius, B. A. Huber, D. Duft, T. Leisner, F. Chandezon, C. Guet, Charge emission and decay dynamics of highly charged clusters and microdroplets, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* B 205 (2003) 684.
- [139] E. Grimsehl, W. Schallreuter, H. Haferkorn, *Lehrbuch der Physik, Band 3 Optik*, Teubner Verlagsgesellschaft, 1982.
- [140] H. Freiesleben, *Vorlesung: Atom und Molekülphysik*, Universität Dresden (1999).
- [141] E. W. Schpolski, *Atomphysik II*, Deutscher Verlag der Wissenschaften, 1958.
- [142] Finkelburg, *Einführung in die Atomphysik*, Springer Verlag Berlin u.a., 1967.
- [143] J. Gillaspay, Highly charged ions, *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* 34 (2001) R91.
- [144] C. McGuinness, *The Cowan code utilities: Description and Usage* (1998).

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 im Ausland in gleicher oder ähnlicher Form einer anderen Prüfungsbehörde vorgelegt.

Die Dissertation wurde im Institut für Ionenstrahlphysik und Materialforschung des Forschungszentrums Rossendorf unter der wissenschaftlichen Betreuung von Herrn Prof. Dr. Wolfhard Möller angefertigt. Die Promotionsordnung der Fakultät Mathematik und Naturwissenschaften der Technischen Universität Dresden in der Fassung vom 20.03.2000 erkenne ich an.

Daniel Kost,
Forschungszentrum Rossendorf,
Dezember 2006

Thesen

zur Dissertation

Energieeintrag langsamer hochgeladener Ionen in Festkörperoberflächen

vorgelegt von
Daniel Kost

1. Hochgeladene Ionen besitzen neben der Eigenschaft kinetische Energie zu transportieren, auch die Möglichkeit innere potenzielle Energie zu speichern. Diese ergibt sich aus der Summe der zur Ionisation aufgebrauchten Energie und ist somit über den Ladungszustand einstellbar. Bei der Wechselwirkung mit Oberflächen wird ein Großteil dieser Energie innerhalb einer Fläche von wenigen nm^2 und einer Tiefe von wenigen Atomlagen deponiert. Interessant für die Grundlagenforschung, aber auch für industrielle Anwendungen im Bereich der oberflächennahen Nanostrukturierung ist die Beantwortung der Frage, wieviel potenzielle Energie dabei in der Oberfläche deponiert wird.

Motivation: In früheren Arbeiten von Schenkel et al. [1] und Kentsch et al. [2] wurden bereits Bestrebungen unternommen, die deponierte potenzielle Energie zu quantifizieren. In beiden Fällen wurden einerseits absolute Werte für die deponierte Arbeit angegeben, jedoch musste bei der Aufstellung einer Energiebilanz unter Berücksichtigung des emittierten Teils der potenziellen Energie festgestellt werden, dass nahezu 50 % der potenziellen Energie nicht erfasst wurden. Zielstellung ist es, den fehlenden Anteil zu evaluieren und die Energiebilanz zu vervollständigen.

Ergebnis: Kalorimetrische Experimente zur Ermittlung des deponierten Anteils der potenziellen Energie wurden in Kombination mit elektronenspektroskopischen Experimenten zur Ermittlung des Anteils der emittierten Energie durchgeführt. In beiden Fällen wurden absolute Werte für die Energiebeiträge ermittelt und die Energiebilanz konnte erfolgreich aufgestellt werden.

2. Die vorliegende Arbeit beinhaltet Beschreibungen zum Aufbau und zur Inbetriebnahme einer Ionenstrahlanlage zur Erzeugung langsamer hochgeladener Ionen variabler kinetischer Energie.

Motivation: Um die Wechselwirkung hochgeladener Ionen mit Oberflächen zu studieren, benötigt man Anlagen, die zuverlässig Ionen verschiedener Ladungszustände und verschiedener Stoffe produzieren. Um die Effekte der potenziellen Energie erforschen zu können oder diese von kinetischen Effekten separieren zu können, besteht bei vielen internationalen Forschergruppen großes Interesse an langsamen hochgeladenen Ionen, Ionen deren potenzielle Energie die kinetische Energie übersteigt.

Ergebnis: Die Rossendorfer Zwei-Quellenanlage, welche im Rahmen dieser Arbeit aufgebaut wurde, besteht aus zwei verschiedenen Ionenquellen, einer Elektronen-Zyklotron-Resonanzquelle

und einer Elektronenstrahl-Ionenquelle. Aufgrund der unterschiedlichen Funktionsweise und Eigenschaften finden beide Quellen unterschiedliche Anwendungen. So produziert die ECR-Quelle niedrige bis mittlere Ladungszustände von Festkörpern und Gasen in hohen Strömen bis zu mehreren $10\ \mu\text{A}$. Die EBIT-Quelle hingegen produziert mittlere bis höchste Ladungszustände von vornehmlich gasförmigen Materialien. Die produzierten Ströme sind dabei unterhalb einiger nA. Der Ort der Ionenerzeugung beider Quellen und deren elektrostatisches Potenzial ist dabei auf ein mit der Strahlführung verbundenes elektrostatisches Potenzial aufgesetzt. Damit ist es möglich durch Variation des Strahlkanalpotenzials die kinetische Energie an der geerdeten Probe zu bestimmen, ohne dass sich die Transportenergie im Strahlkanal ändert und Parameter angepasst werden müssen.

3. Die Messung des totalen Ionenstroms zur Probe im Kalorimetrieexperiment wurde verbessert.

Motivation: Eine mögliche Erklärung für die unvollständige Energiebilanz im Experiment von Kentsch et al. [2] ist in der Messung des Ionenstroms zur Probe zu suchen. Eine exakte Messung ist für die Ermittlung absoluter Werte des Energieeintrags pro Ion unabdingbar. Jedoch stellt dies für langsame hochgeladene Ionen eine große Herausforderung dar, da der Beschuss von Oberflächen zum Einen stets mit einer ladungszustandsabhängigen Sekundärelektronenemission einhergeht, welche die Messung verfälscht. Um dies zu verhindern, kann zum Zweiten eine sonst übliche elektrostatische Unterdrückung der Sekundärelektronen nicht durchgeführt werden, da bei einer sehr geringen kinetischen Energie der Ionen ebenfalls deren Flugbahnen beeinflusst würden. Des Weiteren würde eine Unterdrückung der Sekundärelektronen die Resultate des Energieeintrags verfälschen.

Ergebnis: Um die Kalorimetrieprobe herum wurde ein Metallschirm installiert, der als Sekundärelektronenkollektor dient. Der exakte Ionenstrom ergibt sich aus der Summation des an der Probe gemessenen Stroms und dem Sekundärelektronenstrom. Es konnte gezeigt werden, dass die hieraus ermittelten Sekundärelektronenausbeuten mit jenen durch Elektronenspektroskopie ermittelten übereinstimmen. Die Bestimmung des absoluten tatsächlichen Ionenstroms ist somit korrekt.

4. Um die Genauigkeit der kalorimetrischen Messungen zu erhöhen, wurden störende äußere Einflüsse verringert, die ihren Ursprung in der Boltzmannstrahlung haben.

Motivation: Der Temperaturgradient zwischen Wärmebad und Probe wird nicht nur durch das elektrische Referenzheizen und Heizen durch Ionenbeschuss bestimmt. Einen maßgeblichen Einfluss hat auch der Wärmefluss, verursacht durch die Boltzmannstrahlung. Zwar wird die Temperaturänderung zwischen eingeschalteter Heizung und ausgeschalteter Heizung durch eine Differenzmessung bestimmt. Die Absolutbeträge der Boltzmannstrahlung annullieren sich somit. Änderungen der Strahlungsleistung hingegen verringern die Genauigkeit der Ermittlung des absoluten

Leistungseintrags. Änderungen in der Strahlungsleistung werden unter anderem durch eine über den Tag verteilte kontinuierliche Drift der Rezipienttemperatur verursacht [100].

Ergebnis: Um dies zu vermeiden, wurde der Metallschirm zur Ermittlung des Sekundärelektronenstroms temperaturstabilisiert. Die Stabilisierung gelingt, indem der Schirm über Peltierelemente an einem ebenfalls über ein Wasserbad temperaturstabilisierten Flansch befestigt wurde. Das Wasserbad und der Flansch unterliegen Temperaturschwankungen kleiner als 100 mK. Die Peltierelemente sind in Spannungsregelung betrieben, so dass eine Änderung des Wärmeflusses zum Schirm (durch Boltzmannstrahlung oder Ionenbeschuss) und damit eine Änderung der Schildtemperatur über den sich anpassenden Peltierelementstrom kompensiert werden kann. Die Konstanz der Proben temperatur wurde damit entscheidend verbessert. Sie unterliegt lediglich nur noch einer Drift von etwa 6 mK in zehn Stunden, verglichen mit der Dauer eines Einzelerperiments von etwa einer halben Stunde.

5. Zusätzlich zu den Kalorimetrieexperimenten zum Energieeintrag wurden Elektronenspektrometrieexperimente zur Ermittlung der Energieemission durchgeführt.

Motivation: Neben der Deposition potenzieller Energie, welche über die Kalorimetrie quantifiziert werden kann, wird ein Teil der potenziellen Energie auch emittiert. Für Ionen mittlerer Kernladungszahlen umfassen die Prozesse der Energieemission hauptsächlich die Emission von Sekundärelektronen. Die Aufnahme von doppeldifferenziellen Sekundärelektronenspektren während der Wechselwirkung hochgeladener Ionen mit Festkörperoberflächen bietet zum Einen die Möglichkeit der Ermittlung der totalen Elektronenausbeute und zum Zweiten die Berechnung der emittierten Energie durch Sekundärelektronen. Somit stehen für die Aufstellung der Energiebilanz alle dominierenden Relaxationskanäle zur Verfügung. Durch Untersuchungen des Einflusses der kinetischen Energie der einfallenden Ionen auf die Sekundärelektronenemission und den Teil der dabei emittierten potenziellen Energie kann die Annahme der linearen Extrapolation für die Auswertung der Kalorimetriedaten geprüft werden bzw. ein Bereich der kinetischen Energie ausgewählt werden, in dem eine lineare Extrapolation gerechtfertigt ist.

Ergebnis: Die Integration der doppeldifferenziellen Sekundärelektronenspektren über den Raumwinkel und die kinetische Energie der Elektronen liefert die totale Elektronenausbeute. Dies wurde für Argonionen mit Ladungszuständen zwischen $q=2$ bis 9 und kinetischer Energie zwischen 500 eV und 5000 eV untersucht. Erstmals wurden hierbei Ergebnisse der absoluten emittierten Energie für die unterschiedlichen Projektile präsentiert. Mit höherem Ladungszustand steigt auch die Menge der emittierten potenziellen Energie. Es ergibt sich ein nahezu konstantes Verhältnis aus emittierter und totaler potenzieller Energie, welches bei etwa 15 % liegt und damit nur einen äußerst geringen Teil der potenziellen Energie repräsentiert. Weiterhin konnte festgestellt werden, dass in einem Bereich von 100 eV bis 1000 eV die Menge der emittierten Energie nur geringfügig

(5% der totalen potenziellen Energie) mit kleiner werdender kinetischer Energie ansteigt. Somit kann für die Kalorimetrie der Bereich (100 eV bis 1000 eV) für die lineare Extrapolation definiert werden.

6. Unterschiedliche Materialien mit unterschiedlichen elektronischen Strukturen beeinflussen die Neutralisationsdynamik der Ionen vor der Oberfläche und die Anteile der emittierten und deponierten potenziellen Energie verschieben sich.

Motivation: Die Neutralisation und auch die Relaxation von hochgeladenen Ionen beginnt bereits wenige nm vor der Oberfläche. Interessant ist die Fragestellung, wie groß der Einfluss des Probenmaterials auf die Relaxationsdynamik, respektive auf den Anteil der deponierten Energie ist. Untersucht man hierbei unterschiedliche elektronische Systeme, wie Metalle, Halbleiter und Isolatoren mit Unterschieden sowohl in der Bandstruktur als auch in der Austrittsarbeit, so lassen sich daraus Erkenntnisse zum grundlegenden Verständnis der Relaxationsdynamik ableiten.

Ergebnis: Im Rahmen dieser Arbeit wurde Kupfer als Vertreter der Metalle, p- und n-dotiertes Silizium als Vertreter der Halbleiter und Siliziumdioxid als Vertreter der Isolatoren untersucht. In allen Fällen konnte die Energiebilanz, bestehend aus dem emittierten Anteil und dem deponierten Anteil, erfolgreich aufgestellt werden. Im Rahmen der Messgenauigkeiten konnten dabei keine Abweichungen der Energiebeiträge zwischen der Kupferprobe und den beiden Siliziumproben festgestellt werden. Zu Siliziumdioxid hingegen wurde eine Verschiebung der Anteile zu Gunsten der Deposition beobachtet, die jedoch in einer dynamischen makroskopischen Aufladung der Probe begründet ist. Mit beiden Methoden (Elektronenspektroskopie und Kalorimetrie) kann der Einfluss der elektronischen Struktur der Proben als vernachlässigbar abgeschätzt werden.

7. Ein Vorschlag zur Erweiterung des COB-Modells wurde geliefert.

Motivation: Die erhaltenen Resultate sollen in das bisherige theoretische Verständnis der Relaxationsdynamik eingeordnet werden bzw. mit dessen Hilfe verstanden werden. Hierfür steht eine numerische Computersimulation zur Verfügung, die in Experimenten mit streifendem Einschuss sehr gute Übereinstimmung mit dem Experiment hinsichtlich Gleichgewichtsladungszustand und Elektronenausbeute brachte. Für aussagekräftige Resultate bezüglich der Energiebilanz musste das bestehende Modell erweitert werden.

Ergebnis: Eine numerische Simulation für die Wechselwirkung hochgeladener Argonionen mit einer Kupferoberfläche wurde programmiert. Dabei wurden die Konzepte der EDCOM-Simulation übernommen, die Rechnung auf Regionen unterhalb der Oberfläche ausgedehnt und für das Erstellen der Energiebilanz die kinetische Energie der Sekundärelektronen entsprechend ausgewertet. Als Ergebnis gelingt es, die experimentellen Daten für den emittierten und den deponierten Teil der potenziellen Energie in guter Übereinstimmung zu reproduzieren. Dabei lässt sich wei-

terhin zwischen Energiebeiträgen unterscheiden, die durch Zuwachs der kinetischen Energie des Projektils oberhalb der Oberfläche (Bildladungsbeschleunigung) im atomaren System der Probe deponiert werden und jenem Beitrag der über Elektronentransfer im elektronischen System der Probe deponiert wird.

8. Die weiterentwickelte Simulation geht mit experimentellen Ergebnissen anderer Arbeitsgruppen konform.

Motivation: Die Ergebnisse der Simulation, aber auch die experimentellen Daten sollen mit dem bisherigen Wissensstand und bisherigen experimentellen Daten verglichen werden.

Ergebnis: Die berechneten Werte für den Anteil der potenziellen Energie, der in einen Zuwachs der kinetischen Energie des Projektils transformiert wird, spiegeln experimentelle und numerische Daten von Lemell und Burgdörfer wider. Weiterhin gelingt es erstmalig in dieser numerischen Simulation qualitativ zu zeigen, dass mit abnehmender Projektilgeschwindigkeit die Ausbeute der potenzialemittierten Sekundärelektronen ansteigt.

